

Sooting 및 Non-Sooting 정상 확산 화염에서 생성되는 매연 입자의 특성에 대한 연구

최인철* · 이재복* · 황정호**

(2000년 1월 17일 접수)

Characterization of Soot Particles Generated in Non-sooting and Sooting Normal Diffusion Flames

In-Chul Choi, Jae-Bok Lee and Jung-Ho Hwang

Key Words: Soot Particle(매연입자), Thermocouple Particle Densitometry(열전대 입자 계측법), Soot Volume Fraction(매연 부피 분율), TEM(투과 전자 현미경), Thermophoresis(열영동)

Abstract

Characteristics of carbon soot particles generated in diffusion flames were studied. Non-sooting and sooting normal diffusion flames using propane or ethylene as fuel were selected. In the flames, soot volume fraction was measured by a thermocouple, and primary particle diameter and cluster size were analyzed by TEM photographs. The characteristics of soot particles depended on flame(non-sooting or sooting) and fuel(propane or ethylene) type. Unlike the sooting diffusion flames, particle growth and oxidation processes were clearly observed in the non-sooting diffusion flames. In the sooting diffusion flames, soot particle size was slightly changed at the flame tip.

1. 서론

현재 디젤 자동차에서 배출되는 입자상 물질의 저감을 위한 연구가 활발히 진행되고 있다. 이러한 입자상 물질(PM)중에서 대부분을 차지하는 것은 일반적으로 매연이라고 불리는 soot 입자이다. soot 입자는 일반적으로 탄화수소 계의 연료의 불완전 연소에 의해 발생하게 되는데, 처음에는 H/C 비가 2 이상이 되는 연료들의 열분해(pyrolysis) 과정을 통해 12~22개의 탄소 입자를 가진 기본 매연 입자(primary soot particle)들이 생성된다.⁽¹⁾ 이렇게 생성된 구형의 기본 입자들은 화염 속에서 표면 성장→ 응집→ 산화의 과정을 거치게 되며, 수백~수천 앙스트롬(Å) 정도의 크기

로 성장한다. 본 논문에서의 soot 입자는 특별한 언급이 없는 한 기본 입자가 아닌 응집체 형태의 soot 입자를 의미한다.

이러한 soot 입자의 특성을 나타낼 수 있는 것으로는 부피 분율(soot volume fraction, SVF), 수 농도(number concentration), 기본 매연 입자 지름(primary soot particle diameter) 등이 있다. 기존의 Santoro 등,⁽²⁾ McEnally 등⁽³⁾은 버너를 통하여 확산 화염을 형성하고 화염 내부의 soot 입자의 특성을 구하였다. 실험에 사용된 버너는 일반적으로 Santoro 버너^(2,4)라고 불리는 것으로 동심 축을 갖는 내관과 외관으로 구성되며, 내관으로는 연료가, 외관으로는 산화제로 공기가 공급되어 정상 확산 화염⁽⁵⁾을 형성한다. SVF 측정 방법으로는 Santoro 등⁽²⁾의 광 산란/감쇠 법(laser extinction/scattering technique), Köylü 등⁽⁶⁾의 열영동 포집 및 TEM법(thermophoretic sampling particle diagnostic, TSPD), McEnally 등⁽³⁾의 열전대 입자 계측법(thermocouple particle densitometry, TPD) 등의 방법이 있으나, 본 연구에서는 McEnally 등의 TPD법을 사용하여 SVF를 측정하였다. 이 방법

* 연세대학교 대학원 기계공학과

** 회원, 연세대학교 기계공학과

E-mail: hwangjh@yonsei.ac.kr

TEL : (02)361-2821 FAX : (02)312-2159

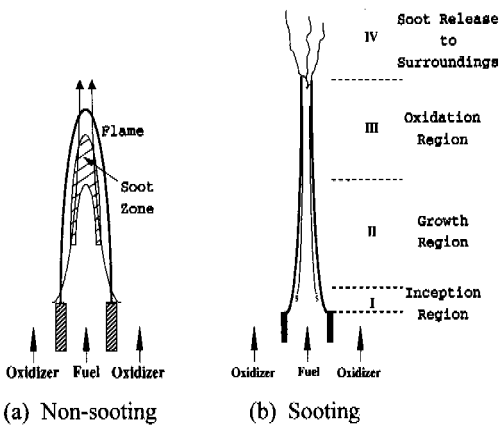


Fig. 1 Flame shapes of diffusion flames⁽⁷⁾

의 장점으로는 다른 두 방법들에 비해 복잡한 실험장비를 사용하지 않기 때문에 가격이 저렴하면서도 비교적 정확한 값을 얻을 수 있는데 있다.

본 연구에서는 프로판(C_3H_8) 및 에틸렌(C_2H_4)을 이용하여 non-sooting 및 sooting 정상 확산 화염을 형성한 후(Fig. 1), 열전대를 이용하여 화염 내부의 온도를 측정하고 SVF를 계산하여, 연료의 변화 및 화염의 변화에 따른 영향을 확인해 보았다. 그리고, 포집 그리드를 이용하여 화염 내부의 soot 입자를 포집하고 TEM을 통해 각 종류의 화염에 대한 soot 입자의 생성 및 변화 과정, 기본 매연 입자의 크기 및 클러스터의 모양 등의 구조적 특성을 가시적으로 측정 및 분석하였다.

2. 이론

열전대가 화염의 외부에서 내부로 삽입되면, 고온인 화염과 상대적으로 저온인 열전대 접점(junction)의 사이에서 온도 구배가 발생하게 되고, soot 입자들은 열전대의 접점으로 이동하여 달라붙게 된다. 이때, 이론적으로 열영동에 의해 서만 soot 입자가 이동하는 것으로 가정하였다.

2.1 연소 가스 온도

열전대가 화염 내부로 삽입되게 되면, 초기에는 열전대 접점의 온도가 급증하는 과도 응답 구간이 존재하게 되는데, 이때 화염과 열전대 접점 사이의 급격한 온도 구배에 의한 열영동 효과로

고온의 soot 입자가 열전대 접점에 부착되기 시작한다. 그러나 시간이 경과함에 따라 열전대 접점의 온도가 증가하면서 이러한 온도 구배는 감소하고, 열영동에 의한 soot 입자의 부착도 점차 줄어들게 된다. 이때 열전대 접점에서의 최대 온도는 실제의 연소 가스의 온도(T_g)보다 낮아지게 된다. 이러한 과도 응답 구간이 끝나게 되면, 열전대 접점과 연소 가스 사이에는 매 순간마다 준정적 평형상태를 이룬다고 가정할 수 있다. 이때, 화염에서 열전대 접점으로의 전도 및 대류에 의한 열전달이 열전대 접점에서 주위로의 복사에 의한 열전달과 같다고 가정하면 다음과 같은 에너지 방정식을 얻을 수 있다.

$$\frac{Nu_j}{d_j} k_g T_g \left[\frac{1}{x+1} \left\{ 1 - \left(\frac{T_j}{T_g} \right)^{x+1} \right\} \right] = \epsilon_j \sigma T_j^4 \quad (1)$$

위의 식에서 하첨자 j는 접점에서의 값을 의미한다. Nu_j 는 열전대 접점에서의 평균 Nusselt수이다. 또한, 열전대 접점에 달라붙는 soot을 구형이라고 가정한다면 평균 Nusselt수는 아래와 같이 표현된다.⁽⁸⁾

$$Nu_j = 2 + 0.552 Re_j^{1/2} Pr^{1/3} \quad (2)$$

그리고 Re수는 아래와 같이 표현된다.

$$Re_j = \frac{U_z d_j}{\nu_g} \quad (3)$$

ν_g 는 연소가스의 동점성계수로 공기의 물성치를 사용하여 온도의 함수로 표현하면, $\nu_g = 1.29 \times 10^{-9} T_g^{1.65} \text{ m}^2/\text{s}$ 이 된다.⁽⁶⁾ 또한, 층류 확산화염에서 축방향의 화염속도 U_z 는 가스종류 및 연료유량과는 무관하게 다음과 같이 표현할 수 있다.⁽⁹⁾

$$U_z = \sqrt{2az} \quad (4)$$

식 (4)에서 a는 부력에 관련되어있는 가속도이며, 일반적으로 $a=25\text{m/s}^2$ 이다. z는 버너 위쪽으로 화염의 수직방향 높이이다.

식 (1)에서 연소가스의 열전도율 k_g 는 ν_g , Pr과 마찬가지로 공기의 물성치를 사용하고, k_g 가 온도에 선형적으로 의존한다고 가정하면 아래와 같이 표현할 수 있다.⁽⁶⁾

$$k_g = 6.54 \times 10^{-5} T_g \quad (W/m \cdot K) \quad (5)$$

식 (1)에서 x는 연소 가스 온도에 대한 열전도율

의 비로 정의되며, $\chi = 0.84$ 의 값을 갖는다.⁽⁸⁾ ϵ_j 는 열전대 접점에서의 표면 방사율로 접점에 soot 입자가 부착되지 않은 경우에는 0.16, 부착된 경우에는 0.9의 값을 사용한다.⁽⁸⁾ σ 는 스테판-볼츠만 상수이고, T_j 는 열전대 접점의 온도이다. 식 (2)~(5)를 통해 구한 값 및 위에서 언급된 값들을 식 (1)에 대입하면 실제의 연소가스의 온도 T_g 를 구할 수 있게 된다. 여기서 d_j 및 T_j 는 실험을 통해서 얻는 값이다.

2.2 soot 입자 부피 분율

soot의 이동은 열영동에 의해서만 일어난다고 가정하였으므로, 화염으로부터 열전대 접점으로 단위 면적, 단위 시간 당 유입되는 soot 입자의 개수 \dot{m}'' 은 아래와 같이 표현된다.

$$\dot{m}'' = \nu_g K_T \frac{Nu_j}{d_j} \times \left[\frac{1}{x+1} \left\{ 1 - \left(\frac{T_j}{T_g} \right)^{x+1} \right\} \right] \rho_p f_v \quad (6)$$

여기서 K_T 는 열영동 계수로 약 0.554의 값을 가지며, ρ_p 는 soot입자의 밀도이다. 또한, 열영동에 의한 입자 유입에 의해 열전대 접점의 지름이 증가하게 되므로 다음과 같은 식을 얻을 수 있다.

$$\dot{m}'' = \frac{\rho_d}{2} \frac{dd_j}{dt} \quad (7)$$

ρ_d 는 열전대 접점에 달라붙는 soot의 부착밀도이다. 위의 식 (6)과 (7)에서 각각 좌변을 소거하면 다음과 같은 식을 얻는다.

$$\frac{dd_j}{dt} = \frac{2 \nu_g K_T Nu_j}{\phi d_j} \times \left[\frac{1}{x+1} \left\{ 1 - \left(\frac{T_j}{T_g} \right)^{x+1} \right\} \right] f_v \quad (8)$$

여기서 ϕ 는

$$\phi = \frac{\rho_d}{\rho_p} \quad (9)$$

로 정의되는데, ρ_d 는 매 실험마다 열전대 접점에 달라붙는 soot의 지름(d_j) 및 질량을 측정하여 구한다.

식 (1)을 시간에 대해 미분하여 식 (8)과 연립

하고 양변을 적분하면 다음과 같은 식을 얻는다.

$$\left[\frac{1}{4} \left(\frac{T_g}{T_j} \right)^8 - \frac{1}{2} \left(\frac{x-3}{x-7} \right) \left(\frac{T_g}{T_j} \right)^{7-x} \right]_{T_g(0)}^{T_g(t)} \quad (10)$$

$$= (x+1) \frac{\nu_g K_T \epsilon_j^2 \sigma^2 T_g^6}{\phi Nu_j k_g^2} f_v t$$

여기서 두 변수 β 와 G 를

$$\beta = (x+1) \frac{\nu_g K_T \epsilon_j^2 \sigma^2 T_g^6}{\phi Nu_j k_g^2} \quad (11)$$

$$G = \left[\frac{1}{4} \left(\frac{T_g}{T_j} \right)^8 - \frac{1}{2} \left(\frac{x-3}{x-7} \right) \left(\frac{T_g}{T_j} \right)^{7-x} \right] \quad (12)$$

로 정의하면, 식 (10)은 아래와 같이 간단하게 표현된다.

$$G(t) = \beta f_v t + G(0) \quad (13)$$

식 (13)은 G 에 대한 1차 함수이므로 기울기 m 을 구하면 $m = \beta f_v$ 에서 soot의 부피 분율 f_v 를 구할 수 있다.

3. 실험

3.1 실험 장치

실험장치는 Fig. 2와 같이 화염 생성부와 데이터 취득 및 입자 포집부의 두 부분으로 나누어진다. 화염 생성부에서는 연료로 순도 99.5%의 프로판(C_3H_8) 및 에틸렌(C_2H_4)을 사용하여 4종류의 non-sooting 및 sooting 확산 화염을 형성하게 된다. 실험에 사용된 버너는 Santoro 등이 제작한 버너와 유사한 geometry를 갖고 있으며, 내경 10.8mm(외경 12.7mm)의 SUS로 제작된 내관과 동심축을 갖는 내경 94mm(외경 100mm)의 황동으로 제작된 외관으로 구성된다. 내관으로는 연료가 공급되며, 외관으로는 산화제로 공기가 공급되어 확산 화염을 형성한다. 외관으로 나오는 공기를 속도를 균일하게 하기 위하여 내관과 외관 사이에 지름 7mm의 유리 구슬 및 철망을 설치하였고, 외관의 출구 쪽에는 하니콤을 설치하였다.

버너로 유입되는 연료 및 산화제는 불-형 유량계를 통하여 공급되며, 안전 및 정확한 유량의 공급을 위하여 역화 방지 밸브와 미세 유량 조절 밸브를 사용하였다. 또한 버너로 공급되는 공기는 압축기를 통해 공급되는데, 오일 트랩 - 확산

건조기 - HEPA 필터의 세 부분으로 구성되는 정정 공기 공급부를 거치게 하여 깨끗하고 건조된 상태로 공급되게 하였다.

버너의 주위는 화염을 주위의 환경의 영향을 받지 않고 안정하게 발생시키기 위하여 상단과 하단의 2단으로 구성된 아크릴 실린더로 외부와 차단되고, 연소 가스는 버너 위쪽에 설치된 후드를 통하여 외부로 배출된다.

데이터 취득 및 입자 포집부에서는 SVF 측정 시 열전대를 이용한 데이터 취득 및 TEM 촬영을 위한 입자를 포집하게 된다. 사용된 열전대는 약 1500K 까지 측정이 가능한 K형 열전대로 와이어의 지름은 300 μ m이고, 접점의 지름은 700 μ m이다. 열전대는 하단 아크릴 실린더의 옆면에 5mm 간격으로 천공된 지름 3mm의 구멍을 통해 화염 내부로 삽입되게 되는데, 정확한 위치로의 신속한 삽입을 위해 솔레노이드를 사용하였고, 이 경우 열전대가 화염대를 통과하는 시간이 짧아지므로 측정하고자 하는 위치까지 도달하는 동안에 발생할 수 있는 열전대로의 soot 입자 부착이 최소화 될 수 있다.

TEM 사진을 찍기 위한 입자 포집을 위해서 지름이 3.1mm이고 한쪽면이 탄소로 코팅된 300 mesh의 TEM 그리드를 사용하였으며, 이를 부피 분율을 측정하기 위해서 하단 실린더에 천공된 구멍을 통하여 화염 내부로 삽입시켰다. 이때에도 soot 입자는 열영동 현상에 의하여 TEM 그리드로 달라붙게 되는데, 삽입시간이 너무 작으면 그리드에 충분한 입자가 달라붙지 않게 되고, 너무 길면 화염에 의해 그리드가 손상되기 때문에 적절한 삽입시간을 결정해야 한다. 또한 화염 내부로 그리드를 순간적으로 삽입시켰다가 빼내기 위하여 열전대를 삽입할 때와 마찬가지로 솔레노이드를 사용하였다. 입자 포집 프로브는 참고 문헌[6], [10]을 바탕으로 제작하였다.

3.2 실험 방법

3.2.1 연소 가스 온도 측정 및 부피 분율 계산

실험은 4종류의 화염에 대해 각각 화염의 중심($r=0$)에서 높이(z)방향으로 수행되었으며, 각각의 경우의 화염에 대하여 Case A, B, C, D로 구분하였다. Table 1에 실험에서 생성되는 화염의 종류 및 화염의 휘염길이(luminous flame height), 실험에 사용된 연료 및 공기의 체적 유량과 유속, 측정 위치가 정리되어있다. 특히 프로판의 경우에

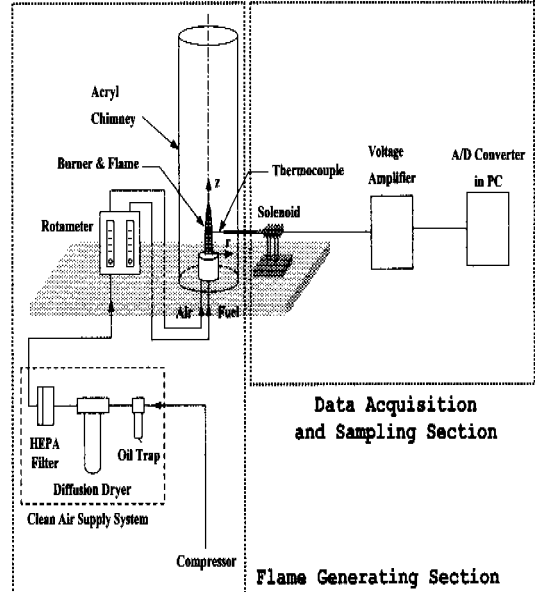


Fig. 2 Experimental set up

는 non-sooting 확산 화염에 대하여 화염 길이의 변화에 의한 화염 특성의 변화를 알아보기 위하여 공기의 양은 고정시키고 연료의 양을 변화시켜 가면서 3종류의 화염을 형성하여 실험하였다. (Case A(a), (b), (c)). 이때, 각각의 화염에 대해 6~7개의 측정점을 선택하여, 열전대를 이용하여 온도(T)를 측정하고 이론식으로부터 연소 가스 온도를 산출한 뒤 soot 입자의 부피 분율을 계산하였다. Table 2에 각각의 화염에 대하여 측정점의 위치를 나타내었는데, 여기서 각각의 Case별로 화염이 서로 길이가 달라 비교하기가 어려우므로 측정점의 위치를 전체 화염의 길이로 나누어 무차원 길이 H_{DL} 을 도입하였다.

3.2.2 TEM을 이용한 매연 입자의 크기 분석

앞에서의 4종류의 화염 및 각각의 측정 위치에 서의 포집된 soot 입자에 대해, 기본 입자의 지름, 클러스터(cluster)당 기본 입자 수 등을 알아내기 위해 TEM 사진을 이용하였다. TEM 사진을 이용하여 기본 입자의 크기를 결정하기 위해서 사진 위에 격자를 입히고 측정하였다. 이렇게 하여 기본 입자의 크기가 결정되면, 다음의 관계식을 이용하여 클러스터 당 기본 입자 수를 계산 할 수 있다.⁽¹¹⁾

Table 1 Experimental conditions

Flame Type	Fuel	Flame Length (mm)	Fuel Flow rate (mlpm)	Fuel Velocity (cm/s)	Air Flow-rate (mlpm)	Air Velocity (cm/s)	Case
Non-sooting Flame	C ₃ H ₈	50	87	1.58	42000	10	A
		70	103	1.88	42000	10	
		88	125	2.27	42000	10	
	C ₂ H ₄	90	215	3.91	42000	10	B
Sooting Flame	C ₃ H ₈	170	200	3.64	42000	10	C
	C ₂ H ₄	140	258	4.70	42000	10	D

Table 2 Sampling positions

Non-sooting Flame						Sooting Flame					
Case A			Case B			Case C	Case D				
C ₃ H ₈						C ₂ H ₄		C ₃ H ₈		C ₂ H ₄	
50mm		70mm		88mm		90mm		170mm		140mm	
z (mm)	H _{DL}	z (mm)	H _{DL}	z (mm)	H _{DL}	z (mm)	H _{DL}	z (mm)	H _{DL}	z (mm)	H _{DL}
15	0.3	20	0.29	20	0.23	20	0.22	40	0.24	30	0.21
20	0.4	30	0.43	30	0.34	30	0.33	60	0.35	50	0.36
25	0.5	35	0.5	40	0.45	40	0.44	80	0.47	70	0.5
30	0.6	40	0.57	50	0.57	50	0.56	100	0.59	90	0.64
35	0.7	50	0.71	60	0.68	60	0.67	120	0.71	110	0.79
40	0.8	55	0.79	70	0.8	70	0.78	140	0.82	130	0.93
45	0.9	65	0.93	80	0.91	80	0.89	-	-	-	-

$$N = k_a (A_c / A_p)^\alpha \quad (14)$$

여기서 N은 한 개의 클러스터 당 응집되어 있는 기본 매연 입자의 개수이고 A_c와 A_p는 각각 TEM 사진 상에 나타나 있는 클러스터와 기본 매연 입자의 면적으로 TEM 사진 위에 격자를 입혀서 구

하게 된다. k_a와 α는 실험 상수로 각각 1.15과 1.1의 값을 갖는다.⁽¹¹⁾ 또한 응집 되어있는 soot 입자를 같은 부피를 갖는 한 개의 구의 지름으로 환산하여 이를 유효 지름이라고 정의하면 다음과 같이 구할 수 있다.

$$d_3 = \sqrt[3]{N} d_2 \quad (15)$$

여기서, d₂는 TEM사진을 이용하여 구한 기본 입자의 지름이고, d₃는 유효 지름으로 soot 입자의 지름인 d_p와 같다.

4. 결과 및 고찰

4.1 연소가스의 온도 측정

실험을 통하여 4가지의 Case에 대하여 각각 열전대 접점의 온도 변화 곡선을 얻을 수 있었다. 이렇게 얻은 접점의 온도와 식 (1)의 에너지 방정식을 이용하면 연소 가스의 온도(T_g)를 구할 수 있게 된다. 이때 계산에 사용되는 접점의 온도(T_j)는 최고 온도이며 d_j는 soot free 조건에서의 비드 직경이다. 연소 가스의 온도는 접점의 온도

보다 20~50K정도 높게 나타났으며, 접점의 온도가 높을수록 온도 차이가 크게 나타났다. Non-sooting 및 sooting 확산 화염 사이에는 큰 차이를 보이고 있었으나, 연료의 변화에 의한 차이는 크지 않음을 알 수 있었다. sooting 확산 화염의 경우에는 화염의 끝부분으로 갈수록 화염 자체의 요동이 심해져서 매끄러운 온도 변화 곡선을 얻을 수 없었으며, 온도의 변화가 매우 크게 나타났다. Fig. 3과 4에는 프로판 non-sooting 및 sooting 확산 화염에 대해 열전대 접점의 온도 분포 곡선이 나타나 있다.

Fig. 5에는 각각의 Case에 대하여 연소 가스의 온도를 도시하였는데, non-sooting 확산 화염과 sooting 확산 화염의 경우가 확연하게 구분되어 나타나고 있다. 먼저, non-sooting 확산 화염에 대하여 프로판 non-sooting 확산 화염인 Case A의 (a), (b), (c)의 경우에는 화염의 길이가 길어질수록 온도가 약간 높게 나타났으나 전체적인 온도 분포 경향은 유사함을 보이고 있다. 그러나 에틸렌 non-sooting 확산 화염인 Case B의 경우에는 화염의 온도가 처음에는 증가하지만 그후 차차 감소하다가 화염의 끝단에서 다시 증가하는 모습을 보였다. 에틸렌 non-sooting 확산 화염의 경우에는 화염 외부로 배출되는 soot 입자를 가시적으로 관찰 할 수는 없었으나, 프로판 non-sooting 확산 화염에서는 볼 수 없었던 그을음 날개(soot

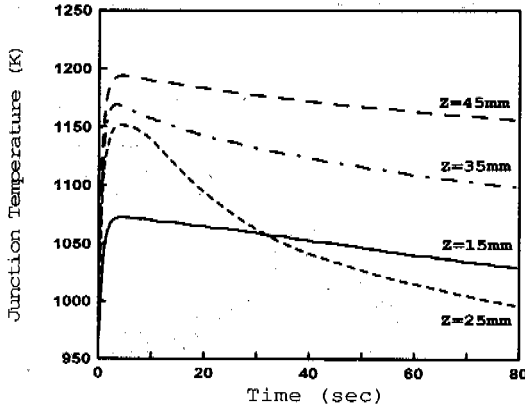


Fig. 3 Non-sooting C_3H_8 diffusion flame(Case A)

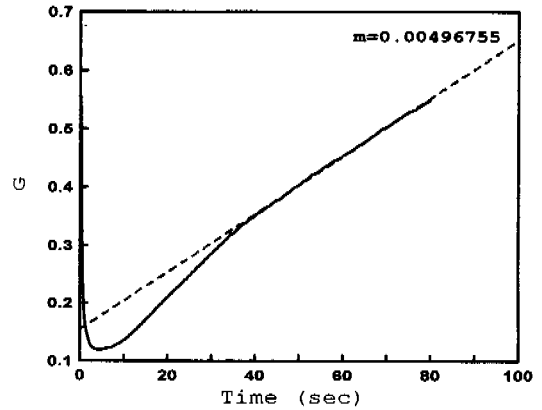


Fig. 6 (t, G) graph (Case A(a), z=25mm)

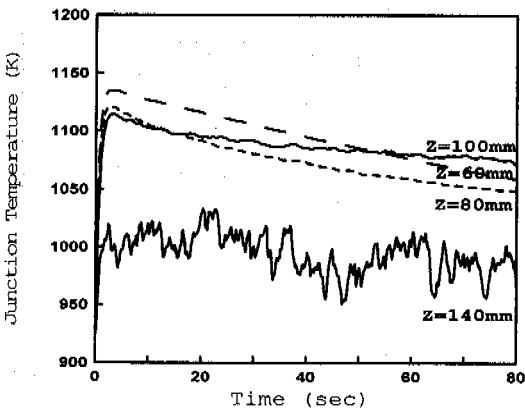


Fig. 4 Sooting C_3H_8 diffusion flame(Case C)

이로 미루어 볼 때, 에틸렌 non-sooting 확산 화염은 프로판에 비해서 화염 내부에 존재하는 매연 입자의 양이 많고, 이로 인해 외부로의 복사 열전달이 증가해 프로판과는 달리 온도가 감소하였을 것으로 예측된다. Sooting 확산 화염의 경우에는 프로판, 에틸렌 모두 유사한 경향을 보였다. Case C, Case D 모두 화염의 끝단으로 갈수록 온도가 계속 떨어지는 경향을 보이는데, Case B의 경우와 마찬가지로 매연 입자의 복사 열전달에 의한 온도 감소로 생각되며, 다량의 soot 입자가 화염의 외부로 배출되기 때문에 화염의 끝단에서도 온도가 상승하지 않고 계속 온도가 감소함을 알 수 있었다.

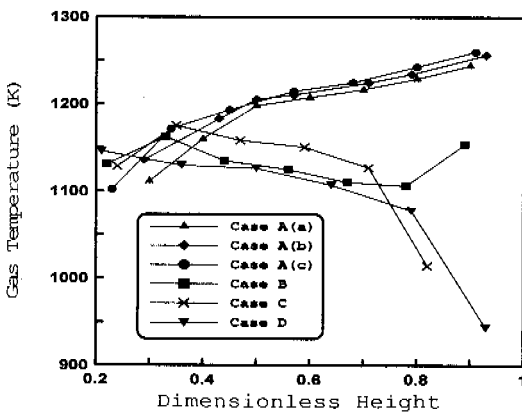


Fig. 5 Gas temperature of all Cases

4.2 Soot 입자의 부피 분율 계산

매연 입자의 부피 분율을 구하기 위해서는 식 (13)에서의 기울기 m 을 결정하고, β 를 계산하여야 한다. 먼저, 기울기 m 을 구하기 위해서 다음의 과정을 따른다.⁽³⁾ ① 실험에서 구한 (t, T_j)의 그래프를 식 (1)을 이용하여 구한 연소 가스의 온도 T_g 와 식 (12)를 이용하여 (t, G)의 그래프로 변환한다. ② 위에서 구한 (t, G)의 그래프를 피팅(fitting)하여 기울기 m 을 구한다. 기울기 m 은 Fig. 3, 4에서의 온도 분포 곡선에서 온도 감소 경향이 클수록 크게 나타나고 있음을 알 수 있는데⁽¹³⁾ Fig. 6은 (t, G)의 그래프와 기울기의 한 예를 보여준다. 식 (11)의 β 값을 구하기 위해서는 식 (9)에서 정의한 ϕ 의 값을 구해야 한다. ϕ 를 구하기 위해서는 각각의 화염에 대하여 모든 측정점에서의 열전대 접점에 달라붙은 soot 입자의 질량 및

wing)를 관찰 할 수 있었다. 그을음 낱개는 화염 속에서 생성된 soot 입자가 화염을 통과하여 외부로 배출될 때 발생하는 것으로 알려져 있으며,⁽¹²⁾

지름을 구해야 하는데, 질량은 0.01mg까지 측정할 수 있는 micro-balance로 측정하였고, 지름 d_p 는 각각의 위치별로 1.0~3.5mm 정도임을 알았다. 그 결과 $\phi \approx 0.03 \sim 0.08$ 의 값을 갖는다.

Fig. 7, 8, 9에는 각각의 Case에 대한 부피 분율이 나와있다. 각각의 화염 모두 화염 길이가 다르기 때문에 부차원 길이 H_{DL} 로 부피 분율을 나타내었다. Fig. 7에는 Case(a), (b), (c)인 세 가지의 프로판 non-sooting 확산 화염의 SVF를 나타내었는데, 세 가지 모두 비슷한 경향을 보이고 있으며, 최대의 SVF값도 $0.4 < H_{DL} < 0.5$ 의 위치에서 3~3.5ppm 정도의 값을 보이고 있음을 알 수 있다. 그리고 앞 절에서 구한 온도 분포 역시 세 가지 경우 모두 비슷함을 보이고 있으므로 non-sooting 확산 화염의 경우에는 화염의 길이가 변하여도 화염이 나타내는 특성이 유사함을 알 수 있다. Kent의 실험 결과⁽¹⁴⁾에서는 프로판 non-sooting 확산 화염이 갖는 최대의 SVF가 $f_v = 3.7$ 로 나타나 있는데, 이는 본 실험에서 얻은 최대의 SVF인 $f_v = 3.0 \sim 3.5$ 와 거의 일치하고 있음을 알 수 있다. Fig. 8에는 에틸렌 non-sooting 확산 화염에 대하여 본 실험에서의 Case B와 기존의 McEnally 등이 TPD법을 사용하여 측정된 SVF에 대한 결과가 나와있다. 두 화염은 화염 길이(Case B: 90mm, McEnally: 88mm) 및 실험 조건이 거의 유사한 non-sooting 확산 화염이다. 실험 결과 최대의 SVF값은 Case B의 경우(6.6ppm)가 McEnally 등의 경우(5.7ppm)에 비해 14% 정도 높은 값을 보였으나, 이는 TPD 기법이 열전대의 종류 및 열전대 선의 두께 등에 의해 영향을 받기 때문에 생길 수 있는 오차로 볼 수 있으며, 두 화염의 SVF의 변화 경향이 유사하게 나타나고 있음을 알 수 있다 Fig. 9에는 sooting 확산 화염의 경우인 Case C, D의 SVF가 나타나 있는데, 이 경우는 non-sooting 확산 화염과는 달리 $H_{DL} = 0.35$ 부근에서 최대의 SVF값을 보이며, 그 최대값은 non-sooting 확산 화염의 최대값보다 크게 나타나고 있다. 그러나, 가시적으로 매연 입자의 발생이 보임에도 불구하고 $H_{DL} > 0.35$ 인 곳에서는 SVF가 급격하게 감소하고, $H_{DL} > 0.6$ 이 되면 아예 SVF를 측정할 수 없게 된다. 이러한 원인으로서는 열영동 현상의 약화와 화염의 불안정성을 들 수 있다. 열영동이 입자 이동의 주 메커니즘이지만, Fig. 5에서 볼 수 있는 것처럼 sooting 확산 화염은

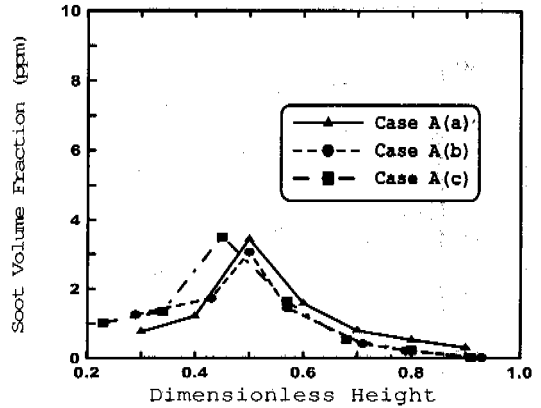


Fig. 7 Soot volume fraction of Case A

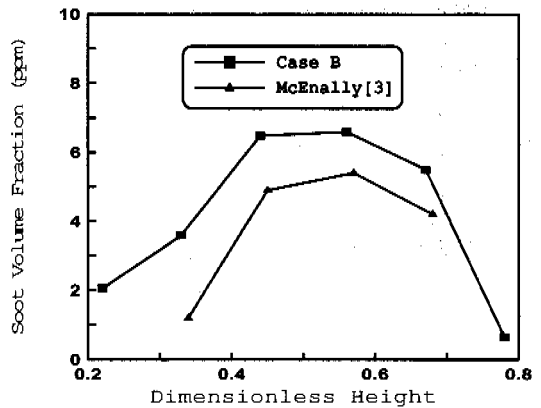


Fig. 8 SVF of Case B and McEnally et al.

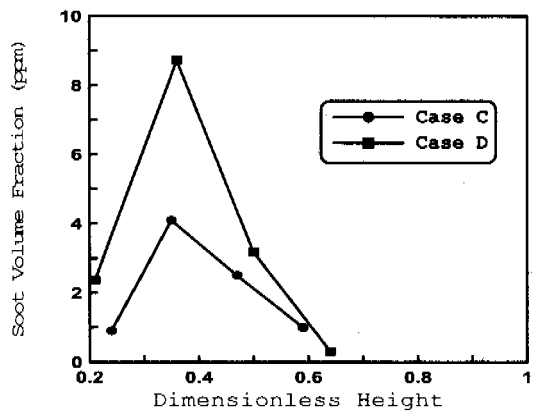


Fig. 9 SVF of Case C and D

non-sooting 확산 화염과는 다르게 화염의 끝단으로 갈수록 온도가 점점 감소하기 때문에 열전대의 접점쪽으로 입자를 이동시키는 열영동력이 약

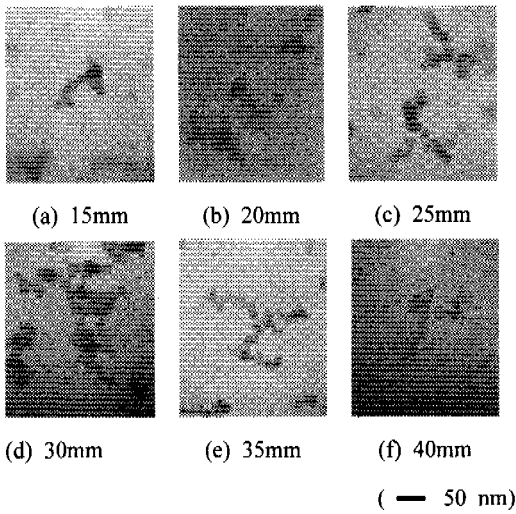


Fig. 10 TEM photographs of Case A(a)

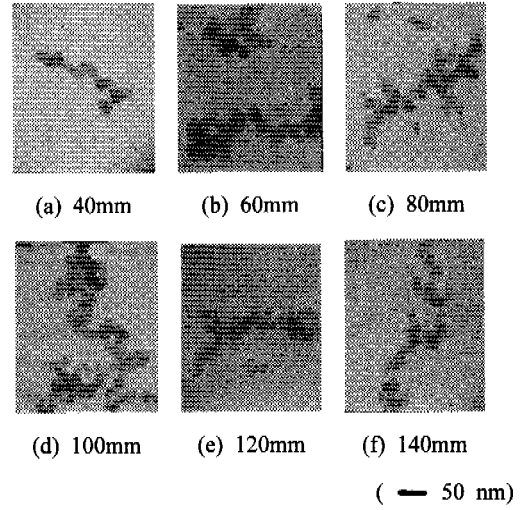


Fig. 12 TEM photographs of Case C

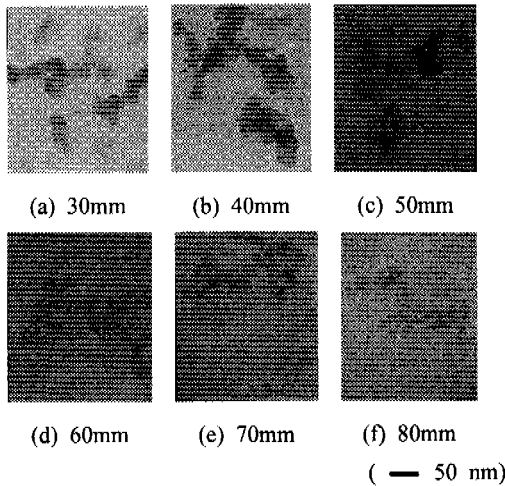


Fig. 11 TEM photographs of Case B

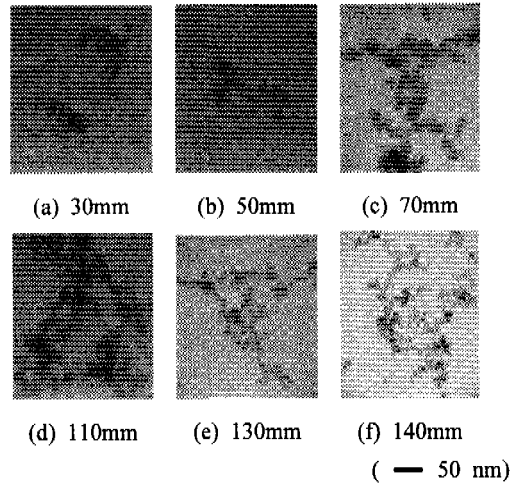


Fig. 13 TEM photographs of Case D

해지므로 $H_{DL} > 0.35$ 인 곳에서는 SVF가 감소하게 되는 것으로 생각된다. 또한, 화염의 끝단으로 갈수록 화염의 요동이 심해지므로 SVF의 측정이 어렵게 된다. 그러므로, sooting 확산 화염의 경우에는 SVF를 측정하기 위해서 TPD법이 아닌 다른 방법의 대체 실험이 요구됨을 알 수 있었다.

4.3 TEM을 이용한 매연 입자의 크기 분석

TEM 사진 및 식 (14), (15)를 이용하여 기본 입자 지름, 클러스터 당 기본 입자수(N) 및 유효 지름을 구하였으며, 대표적으로 Case A(a)의 경우에 대한 결과가 Table 3에 정리되어 있다. soot

입자의 클러스터 당 입자수 및 기본 입자의 크기는 $H_{DL} = 0.6$ 근방에서 최대값을 보이면서 다시 감소하고 있음을 알 수 있고, 화염 끝단에서는 기본 입자의 크기가 최소가 되면서 유효 지름도 작아지는데, 이는 화염 끝단에 존재하는 다량의 OH 라디칼에 의한 산화 작용 때문이라고 생각된다.⁽³⁾ 이는 TEM 사진상에서도 45mm 이상에서는 soot 입자가 존재하지 않았다는 사실로도 확인 할 수 있었다. 또한 Fig. 10에 나타나 있는 Case A(a)의 화염 길이가 50mm인 프로판 non-sooting 확산 화염에 대하여 15만배의 배율로 촬영한 TEM 사진을 통해서도 가시적으로 확인할 수 있다. 이와

Table 3 Results of TEM analysis(Case A(a))

H ₂ O	0.3	0.4	0.5	0.6	0.7	0.8
Primary Particle Diameter (nm)	-	-	22.76	26.28	20.18	16.4
Particle Number of Cluster	-	-	79.6	200.6	176.9	169.0
Soot Particle Diameter (nm)	-	-	97.9	153.8	113.3	90.7

같은 높이에 따른 기본 입자 및 클러스터의 크기 변화는 기존의 전지호 등⁽¹⁵⁾의 실험 결과와도 유사함을 보인다. Fig. 11에는 Case B의 경우인 에틸렌 non-sooting 확산 화염의 TEM 사진이 나와 있는데, 전체적인 매연 입자의 성장과정은 Fig. 10의 경우와 유사하나, 화염의 끝단에서는 약간 다른 경향을 보이고 있었다. Case B의 경우는 화염의 끝단에서도 상당수의 매연 입자가 발견되며, 그 크기도 기본 매연 입자의 크기만 약간 작아질 뿐으로, 전체적인 클러스터의 크기는 크게 변하지 않는다. 이는 에틸렌 non-sooting 확산 화염이 프로판 non-sooting 확산 화염에 비해 soot 입자의 생성량이 많기 때문에 화염의 끝단에서도 미처 다 산화되지 못하였기 때문으로 여겨진다. 또, 화염 자체가 그을음 날개(soot wing)를 발생하는 화염인 것도 어느 정도 관계가 있을 것으로 생각된다. Fig. 12와 Fig. 13에는 각각 프로판과 에틸렌의 sooting 확산 화염에서의 TEM 사진이 나와있다. 두 화염 모두 외부로 soot 입자가 배출되는 화염으로, 화염의 끝단으로 가더라도 매연 입자는 계속 존재하며 그 숫자나 클러스터의 크기는 거의 변하지 않는 것을 알 수 있었다. TEM 사진으로부터 non-sooting 확산 화염에서는 soot 입자의 표면성장→ 응집→ 산화의 과정을 가시적으로 볼 수 있었으나, sooting 확산 화염에서는 최종 단계의 산화 반응이 거의 일어나지 않고, 이로 인해 화염 외부로 soot 입자가 배출됨을 확인 할 수 있었다.

5. 결론

본 실험은 non-sooting 확산 화염과 sooting 확산 화염에서의 매연 입자의 특성을 확인하였으

며, 다음과 같은 결론을 얻을 수 있었다.

(1) Non-sooting 확산 화염의 경우에는 화염의 길이가 변화하여도 화염내부에서의 매연 입자의 특성은 거의 변하지 않았으며, 같은 종류의 연료에 대해 sooting 확산 화염이 non-sooting 확산 화염에 비해 높은 SVF값을 나타내고 있었는데, 이는 TEM 사진을 통해서 정성적으로 확인 할 수 있었다.

(2) Non-sooting 확산 화염같이 화염이 안정되고 열영동 효과가 큰 경우에는 기존의 실험 결과와 거의 유사한 경향을 나타내므로 TPD법을 적용가능하나, sooting 확산 화염같이 불안정한 화염이나 열영동 효과가 작은 부분에 대해서는 정확한 결과를 얻을 수 없으므로 다른 대체 실험 기법이 요구된다.

(3) TEM 사진을 통하여 네 종류의 non-sooting 및 sooting 확산 화염에 대하여 화염 내부의 soot 입자의 성장 과정 및 크기 변화 등을 가시적으로 확인 할 수 있었다.

참고문헌

- (1) Smith, O. I., 1981, "Fundamentals of Soot Formation in Flames with Application to Diesel Engine Particulate Emissions," *Prog. Energy Combust. Sci.*, Vol. 7, pp. 275~291.
- (2) Santoro, R. J., Semerjian, H. G. and Dobbins, R. A., 1983, "Soot Particle Measurements in Diffusion Flames," *Combust. Flame*, Vol. 51, pp. 203~218.
- (3) McEnally, C. S., Köylü, Ü. Ö., Pfefferle, L. D. and Rosner, D. E., 1997, "Soot Volume Fraction and Temperature Measurements in Laminar Nonpremixed Flames Using Thermocouples," *Combust. Flame*, Vol. 109, pp. 701~720.
- (4) Santoro, R. J. and Semerjian, H. G., 1984, "Soot Formation in Diffusion Flames: Flow Rate, Fuel Species and Temperature Effects," *Twentieth Symp. (Int.) on Combustion*, pp. 997~1006.
- (5) 정종수, 이교우, 고범승, 강경태, 1998, "동축 이중 확산 화염의 매연 생성 특성," 대한기계학회 춘계학술대회논문집 B, pp. 674~679.
- (6) Köylü, Ü. Ö., McEnally, C. S., Rosner, D. E. and Pfefferle, L. D., 1997, "Simultaneous

- Measurements of Soot Volume Fraction and Particle Size/ Microstructure in Flames Using a Thermophoretic Sampling Technique," *Combust. Flame*, Vol. 110, pp. 494~507.
- (7) Kang, K. T., Hwang, J. Y., Chung, S. H. and Lee, W., 1997, "Soot Zone Structure and Sooting Limit in Diffusion Flames: Comparison of Counterflow and Co-Flow Flames," *Combust. Flame*, Vol. 109, pp. 266~281.
- (8) Eisner, A. D. and Rosner, D. E., 1985, "Experimental Studies of Soot Particle Thermophoresis in Nonisothermal Combustion Gases Using Thermocouple Response Techniques," *Combust. Flame*, Vol. 61, pp. 153~166.
- (9) Santoro, R. J., Yeh, T. T., Horvath, J. J. and Semerjian, H. G., 1987, "The Transport and Growth of Soot Particles in Laminar Diffusion Flames," *Combust. Sci. Tech.*, Vol. 53, pp. 89~115.
- (10) Dobbins, R. A. and Megaridis, C. M., 1987, "Morphology of Flame-Generated Soot As Determined by Thermophoretic Sampling," *Langmuir*, Vol. 3, pp. 254~259.
- (11) Köylü, Ü. Ö., Xing, Y. and Rosner, D. E., 1995, "Fractal Morphology Analysis of Combustion-Generated Aggregates Using Angular Light Scattering and Electron Microscope Images," *Langmuir*, Vol. 11, pp. 4848~4854.
- (12) Turns, S. R., 1996, *An Introduction to Combustion*, McGraw-Hill.
- (13) 최인철, 2000, "Non-Sooting 및 Sooting 확산 화염에서 생성되는 매연 입자의 특성에 관한 연구," 연세대학교 석사학위논문.
- (14) Kent, J. H., 1986, "A Quantitative Relationship Between Soot Yield and Smoke Point Measurements," *Combust. Flame*, Vol. 63, pp. 349~358.
- (15) 전지호, 김상수, 1991, "열영동 포집 방법을 이용한 층류 확산 화염내의 매연입자 크기측정," 대한기계학회논문집, 제15권, 제5호, pp. 1697~1705.