

CH₄-공기 동축 제트화염의 NO_x 배출특성에 관한 수치 및 실험적 연구

김중현* · 오창보* · 이창언†

(2002년 3월 7일 접수, 2002년 8월 29일 심사완료)

Numerical and Experimental Studies on the NO_x Emission Characteristics of CH₄-Air Coflow Jet Flames

Jong-Hyun Kim, Chang-Bo Oh and Chang-Eon Lee

Key Words : NO_x(질소산화물), NO_x Emission Index(EINO_x; 질소산화물 배출지수), Thermal NO_x, Prompt NO_x, Coflow Jet Flame(동축 제트화염)

Abstract

The NO_x emission characteristics of CH₄-Air coflow jet flames were numerically and experimentally investigated. NO_x was measured using a chemiluminescent detection and calculated by the parabolic-type equation solver with a detailed NO_x chemistry. The fuel flow rate(Q_F), the diameter of mixture nozzle and the equivalence rate(Φ) were varied to discuss the EINO_x of each flames at the various combustion conditions. The NO_x emission index(EINO_x) was introduced to quantify the NO_x emission from the parametrically varied flames. The results show that Prompt EINO_x increases on a logarithmic profile with increasing Φ and keeps nearly constant for the variation of Q_F . Thermal EINO_x reaches the maximum value at around $\Phi=1.5$ and then slowly decrease for $\Phi>1.5$. In addition, Thermal EINO_x increases with increasing Q_F , but nearly indifferent to the variation of the mixture nozzle diameter. Total EINO_x also shows a peak at around $\Phi=1.5$, followed by a relatively sharp decrease for $1.5<\Phi<2.5$ and increase slowly for $2.5<\Phi<\infty$. The present Total EINO_x trend is well explained by a combination of above Thermal and Prompt EINO_x trend with the variation of Φ .

기호설명

x : 축방향 거리
 r : 반경방향 거리
 u : 축방향 속도
 M : 전체 질량유속(Mass Flux)
 Y_i : 화학종 i 의 질량분율
 X_i : 화학종 i 의 몰분율
 T : 온도
 c_p : 혼합기의 정압비열

c_{pi} : 화학종 i 의 정압비열
 W_i : 화학종 i 의 분자량
 \bar{W} : 혼합기의 평균 분자량(Molecular Weight)
 W_F : 연료의 분자량
 V_i : 화학종 i 의 확산속도(Diffusion Velocity)
 p : 압력
 Q_F : 연료의 유량
 g : 중력가속도
 R : 일반기체상수(Universal Gas Constant)

† 책임저자, 회원, 인하대학교 기계공학부
 E-mail : chelee@inha.ac.kr

TEL : (032)860-7323 FAX : (032)868-1716
 * 회원, 인하대학교 대학원 기계공학과

그리스문자
 ξ : 무차원 유동함수

- ρ : 혼합기의 밀도
 ρ_0 : 주위 공기의 밀도(Reference Density)
 $\dot{\omega}_i$: 화학종 i 의 단위체적 당 몰생성률
 μ : 혼합기의 점성계수
 λ : 혼합기의 열전도계수
 Φ : 당량비(Equivalence Ratio)

1. 서론

가스연료의 연소방식은 연료-산화제의 예혼합 정도에 따라 예혼합, 부분예혼합 및 비예혼합 화염으로 분류되며, 이들 화염은 안정성, 질소산화물(NOx), 매연(Soot) 발생 측면에서 서로 다른 장단점을 가지고 있다. 종래에는 화염의 안정성 및 매연발생 장단점이 연소방식의 결정에 중요한 기준으로 사용되어 왔으나, 근래에는 NOx 배출 정도가 연소방식을 결정하는 중요한 인자로 부각되고 있다. 연소장에서의 NOx 생성은 유동과 반응, 그리고 이들의 상호작용에 의해 민감하게 지배된다. 따라서 각각의 연소방식에서 연소조건 변화에 따른 NOx의 생성과 배출 특성에 대한 체계적인 연구는 매우 중요한 과제라 할 수 있다.

NOx 배출특성에 관한 종래의 연구로서, Drake와 Blint⁽¹⁾는 1D 대향류 확산화염을 대상으로, 확산화염의 모든 스트레인율(Strain rate)에서 Fenimore NO 기구가 탄화수소계 연료의 주된 NO 생성기구라고 보고한 바 있다. Nishioka 등⁽²⁾은 CH₄ 대향류 이중화염(Double Flame)에서 당량비 및 스트레인율 변화에 따른 NOx 배출(EINOx) 정도를 검토하여, EINOx는 당량비보다 속도구배에 더 민감하게 지배되며, 속도구배가 작을 경우에는 Thermal NO 기구가 속도구배가 클 경우에는 Fenimore NO 기구가 지배적임을 보였다. 그러나, 이들 초기 연구들은 1D 화염에서 얻어진 것으로, 이 결과들이 다차원 효과가 큰 화염도 유효하게 적용되는 것은 아니므로 알려져 있어 다차원 화염에 대한 연구의 필요성이 대두되고 있다.⁽³⁾

2D 화염에 대한 연구로서, Smooke 등⁽⁴⁾은 질소로 희석된 CH₄ 제트 확산화염에서의 NOx 발생은 Prompt NO 기구에 의한 것이 지배적이라고 보고하고 있다. 그러나, 본 저자들⁽⁵⁾은 선행 연구를 통해 희석하지 않은 CH₄ 제트 확산화염에서의 NOx 발생은 주로 Thermal NO 기구를 통해 발생함을 지적한 바 있다.

부분 예혼합화염에 대한 연구로 Gore 등⁽⁶⁾은 CH₄ 제트화염에 대한 실험 연구에서, 당량비(Φ)

가 2.0 보다 작은 영역에서 NOx 배출지수(EINOx)가 매우 높은 값을 가지는 것은 Thermal NOx에 기인하는 것으로 보았다. 그러나, Kim 등⁽⁷⁾은 C₂H₆ 동축류 제트화염에 대한 실험을 통해 Φ 가 1.3 근처에서 EINOx가 최대가 됨을 보였으나, 그 이유는 Prompt 반응기구에 기인하는 것으로 판단하였다. Zhu 등⁽⁸⁾은 연료-공기혼합기의 노즐유량을 일정하게 유지하면서 당량비를 변화시킨 CH₄ 제트화염을 대상으로 한 수치해석 연구에서, EINOx는 당량비 증가와 더불어 단순 증가하며, 모든 당량비에서 Prompt NO가 Thermal NO보다 지배적이라고 보고한 바 있다.

이들 연구에서 보는 바와 같이 동축 제트화염인 경우, 당량비 변화에 대한 일반적인 NOx 배출특성에 대해서는 아직 일치된 결론이 얻어지지 않은 상태이며, 각 조건에서의 NOx 생성에 미치는 Thermal NOx와 Prompt NOx의 역할 또한 명확하지 않다. 따라서 이들 화염에서의 NOx 배출특성에 관해 수립된 결론을 얻기 위해서는 다양한 연소조건에 대한 연구가 선행되어야 할 것으로 생각된다. 또한, NOx 생성에 미치는 각 NOx 생성 반응기구별 기여도에 대한 구체적인 해석을 위해서는 실험연구 뿐만 아니라 상세 화학반응(Detailed Chemistry)을 적용한 수치연구를 병행할 필요가 있다. 그러나 현재의 컴퓨터 성능으로 볼 때 상세 화학반응을 적용한 NOx의 계산에는 많은 계산시간이 요구되기 때문에 수치계산을 이용하여 다양한 연소조건 변화에 대한 NOx 배출특성을 검토하는 것은 현실적으로 많은 어려움이 따른다.

따라서 본 연구에서는 NOx의 상세반응을 고려하더라도 계산시간이 비교적 적은 포물선형 방정식을 이용하여 계산하고, 이 계산결과를 실험과 비교하여 계산결과와 신뢰성을 검토하였다. 이렇게 검토된 계산결과를 통해 CH₄-공기 제트화염에서 당량비, 혼합기 노즐직경 및 혼합기 유량변화에 따르는 NOx 배출특성과 NOx 생성에 미치는 각 NOx 생성기구의 역할에 대해 살펴보았다.

2. 실험장치 및 방법

본 연구에서는 Fig. 1과 같이 중심에 설치된 혼합기(CH₄+공기) 노즐과 그와 동축으로 설치된 직경 50mm인 주위류 노즐로 구성된 연소기에서 형성되는 CH₄-공기 층류 제트화염을 실험 및 계산 대상으로 하였다. 실험 및 계산에서 혼합기 노즐 직경과 연료 유량조건은 Table 1에서 보는 바와 같으며, 노즐직경을 8mm로 고정시키고 연료유량을 변화시킨 경우(Case A)와 연료유량을 고정시키고

고 노즐직경을 변화시킨 경우(Case B)로 하였다. 두 경우 모두 당량비는 0.8 에서 확산화염까지 변화시켰다. 혼합기 노즐의 당량비는 연료량을 고정시킨 후 공기량을 증감시켜 조절하였다. 주위류는 46L/min 으로 고정하여 부분 예혼합화염 및 확산화염에서도 충분히 연소가 일어나도록 하였다.

배기가스 중 NO 및 NO_x 의 농도는 급속팽창 식영 프루브(최소직경 0.1mm, 최대직경 10mm)를 이용하여 반경방향의 NO 농도의 상대변화가 ± 2%인 이내인 충분히 하류지역에서 연소가스를 샘플링하여, 화학발광법을 이용한 질소산화물 분석기(California Analytical, Model : 300-CLD)를 이용하여 측정하였다.

EINO 및 EINO₂ 의 계산에는 식 (1)을 이용하였는데, 이 식에서 CO₂ 의 농도는 유입되는 연료가 완전연소 된다는 조건하에 계산된 값을 이용하였다. 또한, 화염에서 생성된 NO 는 화염 하류 및 대기중에서 대부분 NO₂ 로 변환되기 때문에, 본 연구에서는 식 (2)와 같이 NO₂ 를 기준으로 NO_x 배출지수를 나타내었다.⁽⁸⁾

$$EI_i = \frac{1000X_i}{X_{CO_2}} \times \frac{W_i}{W_F} \quad (g/kg), \quad (i = NO, NO_2) \quad (1)$$

$$EINO_x = EINO \frac{W_{NO_2}}{W_{NO}} + EINO_2 \quad (g/kg) \quad (2)$$

3. 수치해석 방법

3.1 지배방정식

본 연구의 대상인 동축 제트화염은 경계층 근사가 가능하여, Von Mises 의 좌표변환을 적용하면 지배방정식은 식 (3)~(6)과 같이 축방향 확산을 무시한 2 차원 포물선형(Parabolic Type) 편미분 방정

식으로 근사화 될 수 있다.⁽⁹⁾

운동량방정식

$$\rho u \frac{\partial u}{\partial x} + \frac{dp}{d\xi} = \frac{\rho u}{M^2} \left(\rho u r^2 \frac{\partial u}{\partial \xi} \right) + g(\rho_0 - \rho) \quad (3)$$

화학종방정식

$$\rho u \frac{\partial Y_i}{\partial x} = \dot{\omega}_i W_i - \frac{\rho u}{M} \frac{\partial}{\partial \xi} \left(r \rho Y_i V_i \right) \quad (4)$$

에너지방정식

$$\rho u c_p \frac{\partial T}{\partial x} = \frac{\rho u}{M} \frac{\partial}{\partial \xi} \left(\rho u \lambda r^2 \frac{\partial T}{\partial \xi} \right) - \sum_{i=1}^K \dot{\omega}_i W_i h_i - \frac{\rho^2 u r^2}{M} \sum_{i=1}^K Y_i V_i c_{pi} \frac{\partial T}{\partial \xi} \quad (5)$$

상태방정식

$$p = \frac{\rho RT}{\bar{W}} \quad (6)$$

위 식들 중 열역학적 물성치 및 화학종의 생성율은 CHEMKIN-II Package⁽¹⁰⁾로, 전달물성치는 TRANFIT Package⁽¹¹⁾를 이용하여 계산하였다.

3.2 경계조건 및 계산방법

유입 경계조건으로서 각 노즐출구 단면에서의 유속분포는 균일하게 하였으며, 제트의 중심축에는 대칭조건을, 반경방향 외부 경계에는 No-slip 조건을 부여하였다. 본 계산에서는 경계층 근사를 적용한 포물선형 방정식을 이용하므로 계산방법의 특성상 노즐림 직후, 즉 계산 초기단면에 화염을

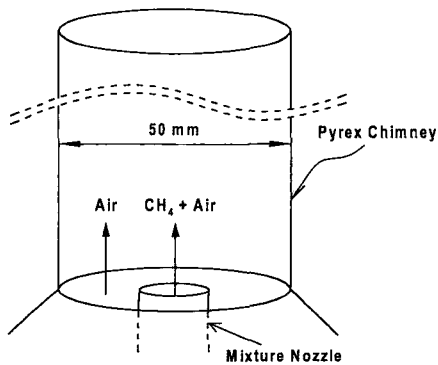


Fig. 1 Schematic diagram of coflow jet combustor.

Table 1 Numerical and Experimental boundary conditions at nozzle outlet

Case	Nozzle Diameter (mm)	Fuel Flow Rate (Q _F ; L/min)	Equivalence Ratio (Φ)
A	8.0	0.30	0.8 ~ ∞ (Diffusion)
		0.43	
		0.60	
		0.80	
B	6.0 8.0 10.0 12.0 13.7	0.43	0.8 ~ ∞ (Diffusion)
		0.80	

형성하기 위한 고온의 착화 에너지를 주어야 한다. 이 착화 에너지로서 혼합기 노즐 바로 외측을 기준으로 폭 1mm 구간에 2100K의 최고 온도를 갖는 가우스분포 형태의 온도분포를 주었다. 착화온도의 결정은 부과한 착화온도가 계산결과에 미치는 영향이 최소가 되도록 시행착오를 거쳐 경험적으로 결정하였다.

계산에는 CRESLAF Code⁽⁹⁾를 수정하여 사용하였다. 계산과정은 유입 경계조건을 이용하여 전진법(Marching Method)에 의해 하류방향으로 순차적으로 계산을 수행하게 된다. 방정식의 차분에는 유한차분법(FDM)이 이용되었고, 각 전진 단면에서의 계산은 Newton 법을 이용하였다. 계산에 필요한 반경방향 격자는 화염대 근처에 밀집되도록 300 개를 부등간격으로 배열하였으며, 축방향 전진 격자거리의 상류단면과 하류단면 사이의 변화가 허용 범위 안에 있도록 조절하였다.

반응기구는 GRI-2.11 반응기구⁽¹²⁾를 이용하였다. 이 반응기구는 49 개 화학종과 279 개의 가역 반응으로 구성되어 있다. CH₄의 산화반응은 C2-Chemistry 까지 고려하고 있으며, NO_x 반응기구는 Thermal NO, Prompt NO (N₂O 경우 NO 포함) 및 NO₂ 반응 등 NO_x의 반응경로를 자세히 묘사하고 있다. 본 연구에서는 NO_x 생성에 미치는 Thermal NO 및 Prompt NO 기구의 역할을 분리하여 검토하기 위해 Nishioka 가 제안한 NO_x 분리법⁽²⁾을 이용하였다. 즉, Full NO는 위에 언급한 GRI-2.11 반응기구를 그대로 이용하여 계산한 것이며, Thermal NO는 GRI-2.11 중의 C2-Chemistry에 Thermal NO 반응기구 3 개만을 포함하여 계산한 것이다. 그리고 위 Full NO에서 Thermal NO를 뺀 값을 Prompt NO라 정의하였다. 이와 같이 정의한 Prompt NO에는 미량의 NO₂를 함유한 NO도 포함되어 있다.

본 계산에서 NO, NO₂ 배출지수는 식 (7)로 계산하였고, NO_x 배출지수는 실험의 경우와 동일하게 NO₂를 기준으로 하여 식 (2)와 같이 계산하였다.

$$EI_i = \frac{2\pi \int Y_i \rho r dr \times 1000}{\dot{m}_F} \quad (g/kg), \quad (i = NO, NO_2) \quad (7)$$

여기서 \dot{m}_F 는 연료의 질량유량을 나타낸다. 이와 같이 계산된 NO_x 배출지수는 축방향 거리에 따라 증가하다가 일정한 값에 도달하는데, 이 때의 값을 각 화염에서의 배출지수로 사용하였다.

4. 결과 및 검토

Fig. 2는 직경(D) 8mm인 연료+공기 혼합기 노즐에서 CH₄ 연료유량(Q_F)을 변경시킨 Case A 화염의 Φ 변화에 따른 EINO_x를 도시한 것이다. 그림을 보면, 모든 Q_F에서 EINO_x는 Φ 가 증가함에 따라 급격히 증가하다가 $\Phi=1.5$ 근처의 부분 예혼합화염에서 최고치를 나타낸다. Φ 가 1.5보다 큰 영역에서는 $\Phi=2.0$ 부근까지 다소 급격히 감소하다가 다시 Φ 증가에 따라 완만히 증가함을 알 수 있다. Q_F 변화에 따른 경향을 보면, Φ 가 동일하더라도 EINO_x는 Q_F에 비례하여 증가한다. 그리고, Q_F가 적은 경우에는 확산화염에서의 EINO_x가 부분 예혼합 영역에서의 EINO_x 최대치 보다 좀 더 높으나, Q_F가 증가할수록 부분 예혼합 영역에서의 EINO_x 최대치가 높아져 두 값이 서로 대등해짐을 알 수 있다.

Fig. 3은 Q_F를 0.43, 0.8L/min로 일정하게 하고, 노즐직경을 변화시킨 Case B 화염의 Φ 변화에 따른 EINO_x를 도시한 것이다. 이 결과에서는 혼합기 노즐직경이 변하더라도 Q_F가 동일하면 EINO_x는 거의 유사함을 알 수 있으며, Φ 변화에 따른 EINO_x 경향 및 Q_F 변화에 따른 EINO_x 증가경향은 Fig. 2에서 설명한 바와 같다.

Fig. 2, 3의 결과로부터 연료유량, 혼합기 노즐 직경 및 당량비 변화에 따른 EINO_x 배출특성은 잘 확인할 수 있었다. 그러나, 그 원인에 대해서 본 실험결과만으로 분석하기에는 한계가 있으므로 수치계산결과를 이용하여 자세히 분석하고자 한다.

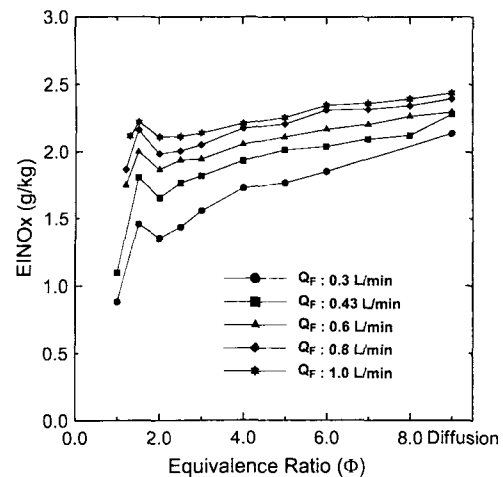


Fig. 2 Measured NO_x emission indices of coflow jet flames with the variation of fuel flow rate

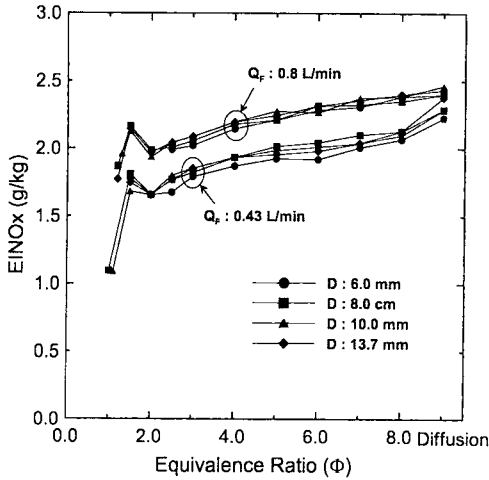


Fig. 3 Measured NO_x emission indices of coflow jet flames with the variation of the mixture nozzle diameter

Fig. 4는 본 연구에 사용한 수치계산방법 및 결과의 타당성을 검토하기 위해, Smooke 등⁽⁴⁾이 복사를 고려하여 수행한 타원형(Elliptic Type) 방정식의 계산결과 및 실험과 비교 도시한 것이다. 포물선형 계산법에서는 인위적인 착화 에너지가 부과된 초기 단면에서부터 NO_x 반응 계산을 시작하면 노즐림 직후에 고농도의 NO_x 발생지역이 나타나며, 이로 인해 하류의 NO_x 생성도 다소 영향을 받게 된다. 이와 같이 실제 화염과는 다른 노즐림 직후의 NO_x 생성을 억제하기 위해, 본 계산에서는 NO_x 반응의 계산 시작점(Initiation Point of NO_x Calculation; IPNO_x)을 착화점 보다 약간 하류지역에서 두었다. 그림에서 이 계산 시작점의 위치(IPNO_x=0, 1.0, 2.5 mm)에 따라 NO_x 농도의 절대치는 다소 영향을 받지만 분포 경향에는 별 차이가 없음을 알 수 있다. 따라서, 본 계산에서는 착화 에너지에 의한 비정상적(Abnormal)인 NO_x 생성을 억제하면서, 인위적으로 정한 IPNO_x의 영향이 최소가 되도록 시행착오를 통해 NO_x 계산을 노즐림 구에서 1.0mm 하류에서부터 시작하였다. 포물선형 방정식의 해법에 IPNO_x를 도입한 본 계산결과(IPNO_x=1.0mm)를 Smooke의 타원형 방정식의 계산결과와 비교해 보면 본 수치계산 결과도 충분히 타당하다는 것을 확인할 수 있다.

또한, 본 계산방법에 복사효과를 고려한 경우(IPNO_x, 점선)에는 Smooke의 계산보다 실험치를 더 잘 예측하는 것을 알 수 있다. 그러나, 본 계산의 복사모델로서 이용된 광학적으로 얇은 모델(Optically Thin Model)⁽¹³⁾은 특정조건에서는 NO_x 예

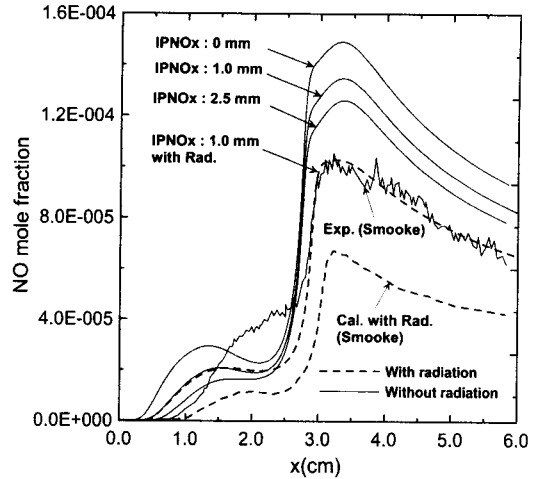


Fig. 4 Comparison of computed and measured NO concentration profile in center line of laminar coflow jet diffusion flames (flow rate of nozzle; 0.264L/min, nozzle fluid; CH₄:N₂=51.5:48.5 by mass)

측치를 합리적으로 예측하고 있으나, Fig. 2, 3에서 제시한 당량비, 연료유량 및 노즐직경에 따른 실험상의 경향을 잘 예측하지는 못하는 것으로 확인되어, 이후 계산에서 복사효과는 고려하지 않았다. NO_x 농도에 대한 정량적인 예측성능까지 향상시키기 위해서는 향후, 좀 더 개선된 복사모델을 고려할 필요가 있는 것으로 판단된다. 그러나, 실선으로 도시한 복사효과를 고려하지 않은 계산결과(IPNO_x=1.0mm)도 NO_x의 분포경향을 비교적 잘 예측하고 있어 이 결과들을 이용하여 분류화염의 NO_x 생성특성을 정성적으로 논의하는데는 별 문제가 없을 것으로 사료된다.

Fig. 5는 Case A 중에서 Q_F가 0.3, 0.43 및 0.6L/min에 대한 EINO_x 계산결과를 나타낸다. Fig. 6은 Case B 중에서 Q_F가 0.43L/min인 조건에 대한 계산결과를 나타낸다. 그림에서, Total EINO_x는 실험결과와 EINO_x와 동일한 것이며, Thermal EINO_x 및 Prompt EINO_x는 앞의 계산방법에서 언급한 NO_x 분리법으로 구한 Thermal NO 및 Prompt NO의 배출지수이다. 그림에서 알 수 있듯이 EINO₂는 매우 미소하기 때문에, 계산에서 정의한 Prompt EINO_x는 대부분 Prompt NO 반응기구에서 발생한 것이라고 해도 무방함을 알 수 있다. Fig. 5의 Total EINO_x를 Fig. 2의 실험결과와 비교해 보면, 계산결과는 정량적인 측면에서 실험치보다 약 2~3배 높게 예측하고 있으나, Φ 및 Q_F에 따른 EINO_x 경향은 실험결과와 잘 일치함을 알 수 있다. 그리고, Fig. 6의 Total EINO_x를 Fig. 3의 실험결과와 비교해 보면 이 경우에도 정량적인 측면에서 실험치보다

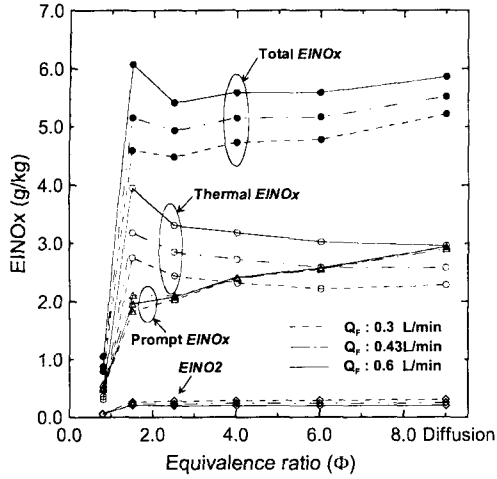


Fig. 5 Computed NOx emission indices of coflow jet flames with the variation of fuel flow rate

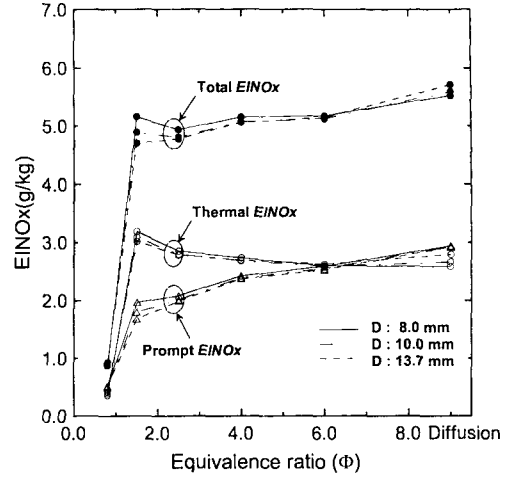


Fig. 6 Computed NOx emission indices of coflow jet flames with the variation of the mixture nozzle diameter

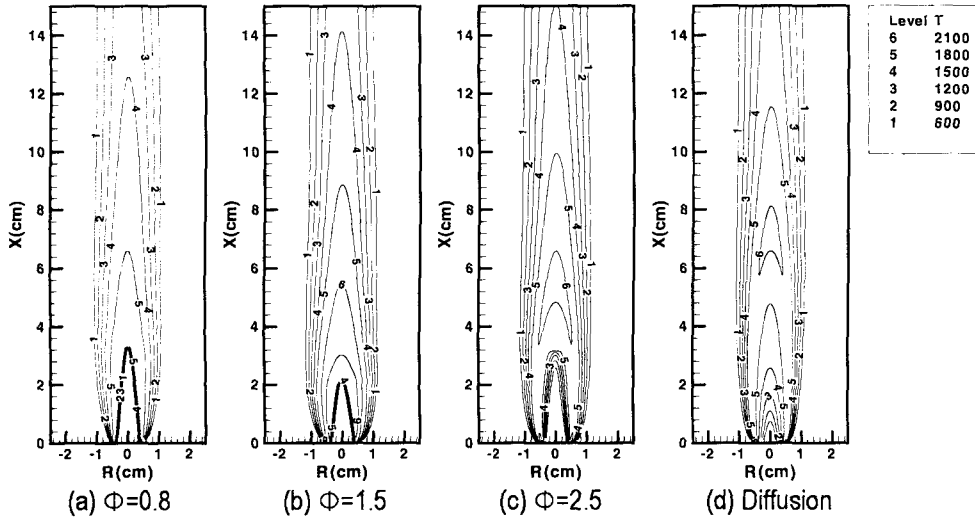


Fig. 7 Computed temperature isopleths for representative premixed, partially premixed and diffusion flames ($\Phi = 0.8, 1.5, 2.5$ and infinity)

다소 높게 예측하고 있으나, 노즐직경 변화에 따른 EINOx 경향은 서로 유사하며 실험결과와 잘 일치함을 알 수 있다. 아직까지 NOx 반응기구에 대한 모델링이 완전하지 않은 점과 EINOx가 모든 단면에서 발생하는 NOx량을 전체 체적에 대해서 적분한 정보를 가지고 있기 때문에, 수치계산에서 EINOx 실험치를 정확하게 예측하는 것은 매우 어렵다. 이러한 점을 고려해 볼 때, 본 계산 결과는 실험치를 매우 합리적으로 예측하는 것으로 생각되며, 이 수치계산결과를 이용하여 실험에서 분석할 수 없는 여러 가지 NOx 생성특성을 면밀히 분

석해 보는 것은 충분히 의미가 있다고 할 수 있다. Fig. 5, 6의 계산결과를 이용하여 NOx 생성에 미치는 각 반응기구별 기여도를 살펴보면, Prompt EINOx는 Φ 에 대해서는 로그함수의 모양과 유사한 형태로 변화하며, Q_f 변화에 대해서는 차이가 없고 일정한 값을 갖는다. 한편, Thermal EINOx는 $\Phi = 1.5$ 근처에서 최고치에 도달하고, 그 이상에서는 서서히 감소하는 경향을 보이며, Q_f 가 증가하면 같이 증가함을 알 수 있다. 따라서 실험결과 Fig. 2, 3의 EINOx 경향은 Φ 에 따른 Thermal NOx 및 Prompt NOx의 발생경향의 차이에 기인하며, 이

두 EINO_x 발생 경향의 조합으로 잘 설명될 수 있다. 그리고, Q_F 에 따른 EINO_x 증가경향은 Q_F 증가에 따른 Thermal EINO_x의 증가에 기인하며, Q_F 가 동일한 경우 노즐직경의 변화는 EINO_x에 영향을 미치지 않음을 알 수 있다. Fig. 5, 6의 계산결과로부터 Thermal NO_x와 Prompt NO_x 중 어느 쪽이 NO_x 발생에 지배적으로 기여하는지는 Φ 이외에도 Q_F 즉, 화염크기에 따라 달라짐을 알 수 있다.

이후, Fig. 7~11의 결과들은 Φ 변화에 따른 NO_x 생성특성을 면밀히 검토하기 위해, Q_F 를 0.43L/min로 일정하게 고정시킨 경우에 해당된다.

Fig. 7은 Φ 변화에 따른 화염온도의 등치선 (Contour)을 도시한 것이다. Fig. 7 (a)의 $\Phi = 0.8$ 인 희박 예혼합화염의 경우, 화염온도는 원추형의 예혼합 반응대에서 급격히 최고치에 도달하지만, 최고 온도는 1800K 정도로서 비교적 낮다. 이 화염온도는 반응대 하류에서도 당분간 동일하게 유지하나 좀 더 하류에서는 서서히 감소하는 경향을 볼 수 있다. Fig. 7 (b), (c)의 부분 예혼합화염의 경우에도 화염온도는 내부 예혼합 반응대에서 급격히 상승하나 그 최대치(Level 6)는 보다 하류에 위치한다. 또한, 내부 반응대 외부의 영역이 미연 연료가 연소하는 확산연소 영역이므로 이 부분에도 매우 고온영역이 형성됨을 알 수 있다. 이와 같은 분포는 부분 예혼합화염의 이중 화염구조의 특징을 잘 보여주고 있다. 그리고, 이 고온영역은

$\Phi = 1.5$ 인 경우 예혼합 반응대를 둘러싸는 형태로 넓게 분포하고 있으며, 당량비가 증가하면 반응대 하류의 중심 영역으로 이동함을 알 수 있다. Fig. 7 (d)의 경우에는 중심축 상에서 온도가 서서히 증가하여 최고 온도에 달한 후, 서서히 감소하는 확산화염의 특징을 잘 보여 주고 있으며, 고온영역은 화염 하류 중심축의 좁은 영역에 위치하고 있음을 알 수 있다. 이 계산결과들은 Φ 변화에 따른 각 화염의 형태 및 연소특성의 변화를 잘 묘사하고 있음을 알 수 있다.

Fig. 8은 Φ 변화에 따른 NO 농도의 등치선을 도시한 것으로서, $\Phi = 0.8$ 인 Fig. 8 (a)의 범례 (Legend)는 다른 그림에 비해 약 5배정도 낮은 값이다. $\Phi = 0.8$ 의 경우, 전 화염에서 NO 농도는 다른 화염에 비해 매우 낮으며, 비교적 고농도 영역은 온도분포와 유사하게 반응대 주변 및 화염하류에 위치한다. Fig. 8 (b), (c)의 부분 예혼합화염의 경우, 고농도 영역(Level 4 이상)은 부분 예혼합 화염의 확산연소 영역과 대략 일치하며, 비교적 고농도인 영역(Level 3)은 예혼합 반응대 및 확산연소 영역의 주변에 위치함을 알 수 있다. 그리고 Φ 가 증가하면 확산연소 영역에서 고농도의 NO 영역(Level 5)은 사라진다. Fig. 8 (d)의 확산화염인 경우에는 매우 고농도인 영역(Level 5)은 Fig. 7 (d)의 최고 온도영역과 대략 비슷하게 위치하고 있다. 또한, Fig. 7, 8의 그림을 비교해 보면, 고온영역과 NO 고농도 영역은 대략 일치함을 알 수 있다.

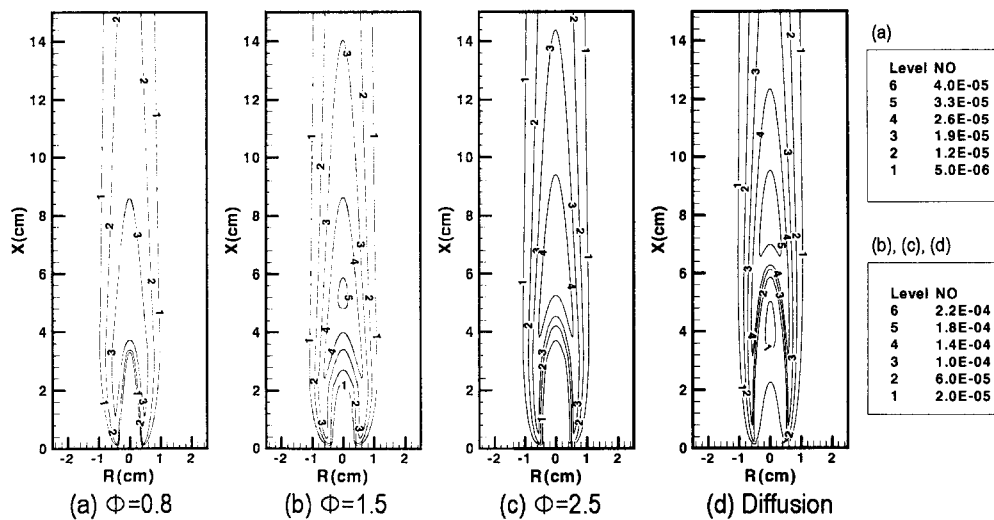


Fig. 8 Computed NO isopleths for representative premixed, partially premixed and diffusion flames ($\Phi = 0.8, 1.5, 2.5$ and infinity)

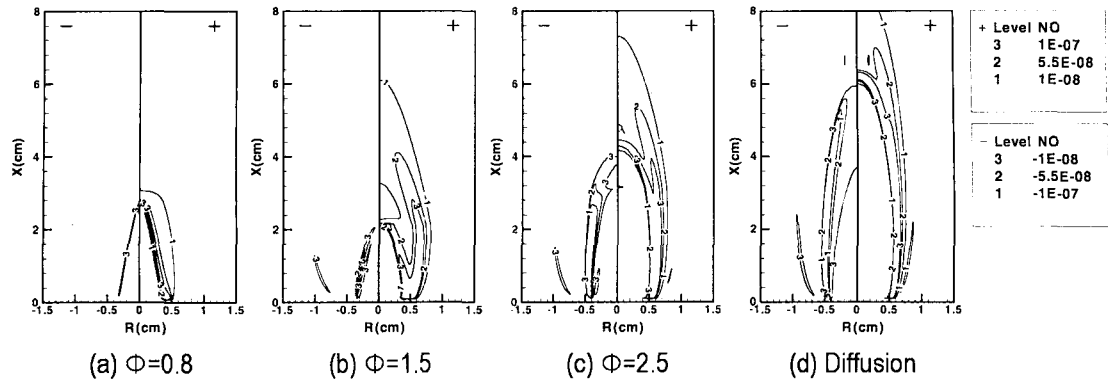


Fig. 9 Computed NO production isopleths for representative premixed, partially premixed and diffusion flames ($\Phi = 0.8, 1.5, 2.5$ and infinity, Left : destruction, Right : production)

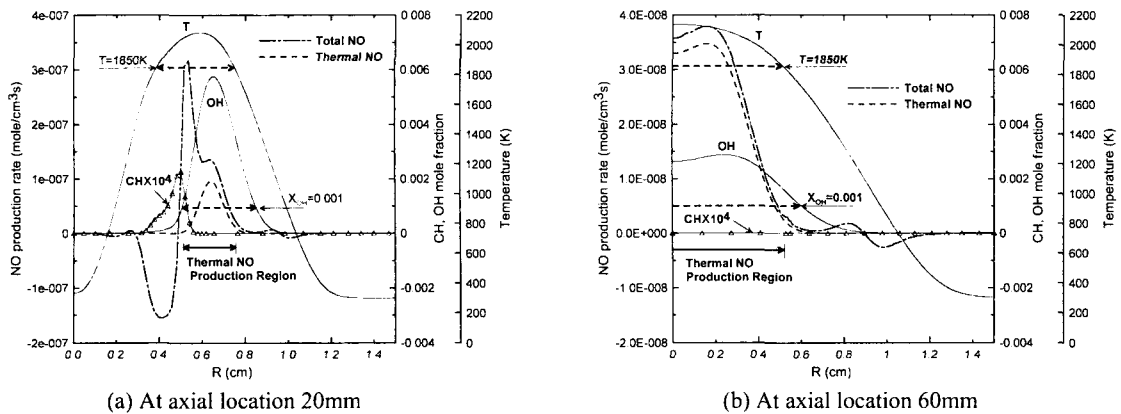


Fig. 10 Computed profiles of temperature, NO production rate and two radicals (OH and CH) closely related to NO formation

Fig. 9은 NO 생성 및 소멸률($\text{mole}/\text{cm}^3\text{s}$)의 등치선을 도시한 것으로서, 그림의 오른쪽은 양의 값(NO 생성)을 갖는 영역을 나타내며, 왼쪽은 음의 값(NO 소멸)을 갖는 영역을 나타낸다. Fig. 9(a)의 회박 예혼합화염의 경우, NO는 원추형의 예혼합 반응대 및 그 주변의 비교적 좁은 영역에서 생성되며, 반응대에서 소멸되기는 하지만, 매우 좁은 영역에 국한된다. 그리고, 생성물의 크기는 다른 조건의 화염들에 비해 매우 작다. 부분 예혼합 및 확산화염의 경우, NO 생성영역(Level 1 이상)은 Φ 증가에 비례하여 하류방향으로 매우 넓어지고 있다. 이 NO 생성영역은 Fig. 7의 온도분포와 비교해 보면 반응대 주변의 약 1850K 이상의 영역과 대체적으로 일치하며, 생성물이 매우 높은 영역(Level 3)은 Fig. 8의 NO 고농도 영역보다 상류지역에 위치함을 알 수 있다. NO 소멸영역은 화염온도가 점점 증가하는 반응대 내부영역과 대체로 일치한다. 그리고 Φ 가 증가할수록 소멸영역도 하류로

넓어지는 것을 알 수 있다. 화염 외측에 존재하는 좁은 소멸지역 (Level 3)은 NO가 HO_2 와 반응하여 NO_2 로 변환되는 영역을 나타내며, 화염 내측의 NO 소멸지역은 연료의 산화과정에서 생성되는 $\text{CH}_i(i=0\sim 3)$, HCCO 등의 라디칼에 의한 재연소(Reburn) 반응의 영향을 받는 영역을 나타낸다.⁽⁵⁾

Fig. 10(a), (b)는 Fig. 8의 $\Phi = 2.5$ 인 화염의 $x=20\text{mm}$ 및 $x=60\text{mm}$ 단면에서의 NO 생성률과 이들 생성률과 관련성이 높은 화염온도, OH 및 CH 농도를 도시한 것이다. Fig. 10(a)의 상류단면에서는 Thermal NO 생성률은 화염대의 온도 최고점보다 다소 외측에 분포하며, 이 Thermal NO 발생영역은 가스온도가 1850K 이상이면서 동시에 OH가 존재하는 영역과 대체로 일치한다. 즉, 화염대 내부에서는 화염온도가 1850K 이상이 되어도 OH가 존재하지 않기 때문에 Thermal NO도 발생하지 않음을 알 수 있다. 그리고, Prompt NO 생성률(Total NO에서 Thermal NO 생성률을 뺀 값)은 온도 최고점

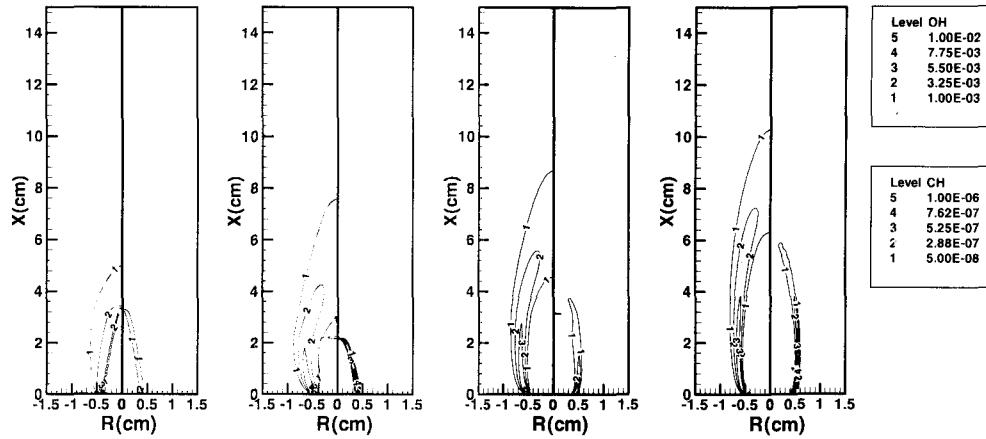


Fig. 11 Computed OH and CH isopleths for representative premixed, partially premixed and diffusion flames ($\Phi=0.8, 1.5, 2.5$ and infinity, Left : OH, Right : CH)

보다 다소 내측에서 양의 값(생성)을 가지며, 이보다 좀 더 내측에서 음의 값(소멸)을 갖는다. 이들 생성과 소멸영역은 연료 산화과정의 후기단계에서 발생하는 CH 농도의 최고점을 기준으로 내부는 소멸영역, 외부는 생성영역으로 구별되고 있음을 알 수 있다. Fig. 10 (b)의 하류단면에서는 Thermal NO의 생성률이 매우 높아 NO는 주로 Thermal NO에 의해 생성됨을 알 수 있으며, 이 NO 생성영역도 앞에서 언급한 바와 같이 온도가 1850K 이상 이면서 OH가 존재하는 영역과 일치한다. 그리고 Prompt NO 생성률은 매우 미소하며, 이 Prompt NO와 관계있는 CH 농도도 미소함을 알 수 있다. 위 결과로부터, 화염에서 Thermal NO 생성영역만을 독립적으로 나타내는 데에는 일정 농도(물분율 약 0.001이상)의 OH 농도 분포를 이용하는 것이 적절할 것으로 보이며, Prompt NO 발생지역은 CH 농도 분포를 이용하여, 그 내측은 Prompt NO 반응기구에 의한 NO 소멸지역, 그 외측은 NO 생성영역으로 나타낼 수 있음을 알 수 있다.

Fig. 11은 앞에서 언급한 바와 같이 Thermal NO의 발생영역을 나타내는 OH 농도(그림의 왼쪽)과 Prompt NO 생성/소멸영역을 볼 수 있는 CH 농도(그림의 오른쪽)의 등치선을 도시한 것이다. 그림에서 CH 농도가 분포하는 지역은 매우 폭이 좁으며 특히, Prompt NO는 이 CH 분포 지역의 외측에서만 발생하기 때문에 Prompt NO 발생량은 원추형 화염면의 표면적에 비례한다고 할 수 있다. 단, $\Phi=0.8$ 의 경우, CH 분포영역이 $\Phi=1.5$ 의 경우보다 넓게 보이나, 이 경우 CH 농도 및 온도도 낮아 Prompt NO 발생량은 매우 낮다. 이 결과로부터, Fig. 6에 도시한 동일 Q_F 의 경우 Φ 에 따른 Prompt EINO_x 경향은 Φ 에 따른 화염면적의 변화로 잘

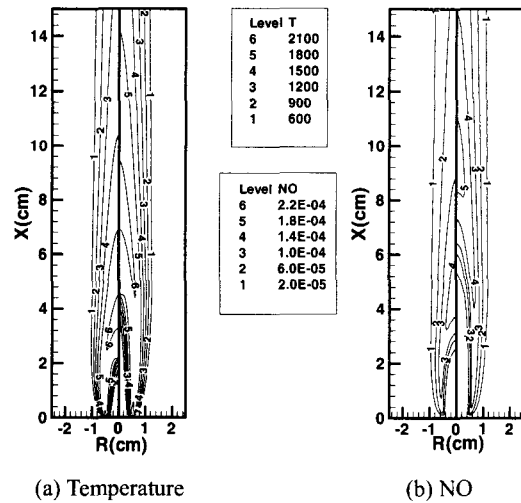


Fig. 12 Computed temperature and NO isopleths at $\Phi=2.5$ (Left : $Q_F=0.3L/min$, Right : $Q_F=0.6L/min$)

설명할 수 있다. OH 분포에서는 물분율이 0.001 이상인 영역이 화염하류에 넓게 분포하고 있으며, 이 분포면적을 축대칭으로 회전한 체적의 고온영역에서 Thermal NO가 발생한다고 볼 수 있다. 그리고 이 체적은 $\Phi=1.5$ 까지는 급격히 증가하나, $\Phi=1.5$ 이상에서는 Φ 가 증가하여도 비슷하거나 오히려 감소한다고 할 수 있다. 또한 OH 분포영역에서 Thermal NO 발생량과 관계가 깊은 화염온도는 Fig. 7에서 본 바와 같이 $\Phi=1.0$ 이하에서는 비교적 낮으며, $\Phi=1.5$ 인 경우에는 매우 높고, Φ 가 더 증가하면 고온영역은 작아지면서 하류의 중심영역으로 이동함을 보았다. 이 결과들은 Fig. 6에 도시한 Thermal EINO_x 경향, 즉 $\Phi=1.5$ 까지는

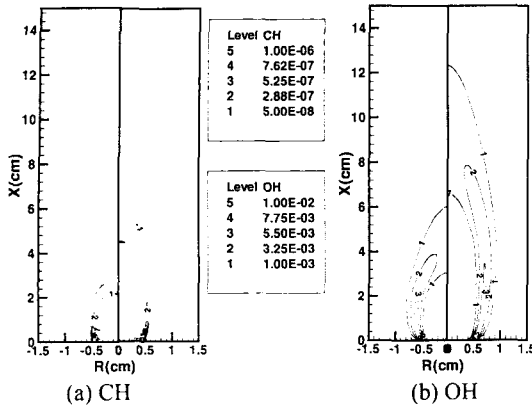


Fig. 13 Computed CH and OH isopleths at $\Phi=2.5$ (Left : $Q_f=0.3L/min$, Right : $Q_f=0.6L/min$).

급격히 상승하여 최고치에 도달하나 그 이상에서는 서서히 감소하는 이유를 잘 설명해 주고 있다고 판단된다.

Q_f 가 변할 경우의 각종 EINOx의 경향을 살펴보기 위해 Fig. 12에는 화염온도 및 NO 물분율을, Fig. 13에는 CH 및 OH 물분율을 도시하였다. 그림의 결과는 대표적인 연소조건인 $\Phi=2.5$ 인 화염에 대한 것이다. 각 그림의 왼쪽에는 $Q_f=0.3L/min$, 오른쪽에는 그 2배인 $Q_f=0.6L/min$ 인 경우이다. Fig. 12 (a)의 등치선 분포를 비교해 보면, 온도가 급격히 증가하는 내부 화염대의 길이 및 고온영역(Level 5 이상 지역)이 Q_f 에 비례하여 2배정도 커지고 있음을 알 수 있다. NO 물분율 분포를 보면, 우선 내부 화염대에서의 NO 농도값은 Level 2, 3정도로서 많은 차이를 보이지는 않지만, 그 분포지역은 Q_f 에 비례하여 2배정도 커지는 것을 알 수 있다. 또한, Fig. 13(a)에 도시한 CH 농도 분포의 외측 표면적 즉, Prompt NO 생성지역의 분포로부터 이 두 화염에서의 Prompt NO 생성률 크기는 비슷하지만 발생영역인 화염 표면적이 Q_f 에 비례하여 증가하기 때문에 NOx의 발생량을 Q_f 로 무차원한 Prompt EINOx는 비슷한 수준으로 유지되는 것으로 판단된다. 그러나, 내부 화염대 후방의 NO 농도분포는 많이 달라짐을 확인할 수 있는데, $Q_f=0.3L/min$ 인 경우에는 최고농도가 Level 4로서 분포영역이 좁지만, $Q_f=0.6L/min$ 인 경우에는 Level 4인 영역이 매우 확장되며, 이보다 높은 Level 5인 영역도 나타남을 알 수 있다. 이것은 Fig. 12 (a)와 Fig. 13 (b)에서 보는 바와 같이 연료유량이 증가하면, Thermal NO의 생성지역과 관련된 고온영역과 OH의 고농도 분포 영역이 증가하기 때문이며, 이로 인해 Thermal EINOx도 증가하는 것으로 사료된다.

5. 결론

축대칭 2차원 층류 동축 제트화염을 대상으로 예혼합화염에서 확산화염까지 당량비, 연료유량 및 혼합기 노즐직경을 변화시키면서 NOx 배출특성을 검토하여 다음과 같은 결론을 얻었다.

(1) 제트화염에서의 Prompt EINOx는 당량비에 로그함수의 모양과 유사한 형태로 증가하며, 연료유량 변화에 대해서는 일정한 값을 갖는다. 이와 같은 Prompt EINOx 변화는 연소조건에 따른 단위 연료유량 당의 화염면 변화와 일치하며, 이 화염면 변화를 특성을 통해 Prompt EINOx 경향을 예측할 수 있다.

(2) Thermal EINOx는 $\Phi=1.5$ 근처까지는 급격히 상승하여 최고치에 도달하며, 그 이상에서는 서서히 감소한다. 또한, 연료유량이 증가하면 같이 증가하는 경향을 보이나, 노즐직경에 대해서는 변화가 없다. 이러한 Thermal EINOx의 경향은 1850K 이상의 고온이며 동시에 OH가 고농도인 영역의 변화경향으로 예측될 수 있다.

(3) Total EINOx는 $\Phi=1.5$ 근처의 부분 예혼합화염에서 가장 큰 값을 가지며, $\Phi=1.5$ 를 기준으로 희박해지면 급격히 감소하고 과농해지면 $\Phi=2.5$ 까지 급격히 감소한 후 완만히 증가한다. 이 Total EINOx의 경향은 앞에 언급한 Thermal 및 Prompt EINOx 경향의 조합에 의해 결정된다.

(4) 제트화염에서는 당량비가 커질수록 Thermal NOx 기구에 의한 역할은 작아지고 Prompt NOx 기구의 역할은 증가한다. 그러나, 특정 당량비에서 이 두가지 NOx 기구의 역할은 연료유량에 따라 달라지기 때문에 제트화염에서의 지배적인 NOx 생성기구는 당량비와 연료유량에 따라 달리 표현해야 함을 알 수 있다.

후 기

본 연구의 일부는 1999년도 인하대학교 교내 연구비 지원에 의해 수행되었으며, 일부는 연소기술 연구센터(Combustion Engineering Research Center)의 지원에 의해 수행되었습니다. 이에 감사드립니다.

참고문헌

- (1) Drake, M. C and Blint, R. J., 1991, "Relative Importance of Nitric Oxide Formation Mechanisms in

- Laminar Opposed-flow Diffusion Flames," *Combust. Flame*, Vol. 83, pp. 185~203.
- (2) Nishioka, M., Nakagawa, S., Ishikawa, S. and Takeno, T., 1994, "NO Emission Characteristics of Methane-Air Double Flame," *Combust. Flame*, Vol. 98, pp. 127~138.
- (3) Zhu, X. L., Nishioka, M and Takeno, T., 1998, "NO Emission Characteristics of Methane-Air Coflow Partially Premixed Flame," *Proceedings of the Combustion Inst.*, Vol. 27, pp. 1369~1376.
- (4) Smooke, M. D., Ern, A, Tanoff, M. A., Valdati, B. A., Mohammed, R. K., Marran, D. F. and Long, M. B., 1996, "Computational and Experimental Study of NO in an Axisymmetric Laminar Diffusion Flame," *Proceedings of the Combustion Inst.*, Vol. 26, pp. 2161~2170.
- (5) Oh, C. B. and Lee, C. E, 1998, "Numerical Analysis of NO_x Formation Characteristics in CH₄-Air Jet Diffusion Flame," *Transactions of KSME B*, Vol. 22, No. 2, pp. 193~204.
- (6) Gore, J. P. and Zhan, N. J., 1996, "NO_x Emission and Major Species Concentrations in Partially Premixed Laminar Methane/Air Co-flow Jet Flames," *Combust. Flame*, Vol. 105, pp. 414-427.
- (7) Kim, T. K., Alder, B. J., Laurendeau, N. M. and Gore, J. P., 1995, "Exhaust and *In-Situ* Measurements of Nitric Oxide for Laminar Partially Premixed C₂H₆-Air Flames : Effects of Premixing Level at Constant Fuel Flowrate," *Combust. Sci. and Tech.*, Vol. 110~111, pp. 361~378.
- (8) Turns, S. R., 2000, "Introduction to Combustion," 2nd Ed. *McGraw-Hill*.
- (9) Coltrin, M. E., Moffat, H. K., Kee, R. J. and Rupley, F. M., 1993, "CRESLAF(Version 4.0) : A Fortran Program for Modeling Laminar, Chemically Reacting, Boundary-Layer Flow in Cylindrical or Plnar Channels," *Sandia Report*, SAND93-0478.
- (10) Kee, R. J., Rupley, F. M. and Miller, J. A., 1989, "Chemkin-II : A Fortran Chemical Kinetic Package for the Analysis of Gas Phase Chemical Kinetics," *Sandia Report*, SAND89-8009B.
- (11) Kee, R. J., Dixon-Lewis, G., Warnatz, J., Coltrin, M. E. and Miller, J. A., 1986, "A Fortran Computer Code Package for the Evaluation of Gas-Phase Multicomponent Transport Properties," *Sandia Report*, SAND86-8246.
- (12) Smith, G. P., Golden, D. M., Frenklach, M., Moriarty, N. W., Eiteneer, B., Goldenberg, M., Bowman, C. T., Hanson, R. K., Song, S., Gardiner, W. C., Jr., Lissianski, V. and Qin, Z., http://www.me.berkeley.edu/gri_mech/.
- (13) Ju, Y., Gui, H., Maruta, K. and Liu, F., 1997, "On the Extinction Limit and Flammability Limit of Non-adiabatic Stretched Methane-Air Premixed Flames," *J. Fluid Mech.*, Vol, 342, pp.315~334.