

## 단일 알루미늄 연료 입자의 점화 및 연소 모델링

양희성\* · 임지환\* · 김경무\*\* · 이지형\*\* · 윤웅섭\*

### Modeling of the Ignition and Combustion of Single Aluminum Particle

Heesung Yang\* · Jihwan Lim\* · Kyungmoo Kim\*\* · Jihyung Lee\*\* · Woongsup Yoon\*

#### ABSTRACT

A simplified model for an isolated aluminum particle burning in air is presented. Burning process consists of two stages, ignition and quasi-steady combustion (QSC). In ignition stage, aluminum which is inside of oxide film melts owing to the self heating called heterogeneous surface reaction (HSR) as well as the convective and radiative heat transfer from ambient air until the particle temperature reaches melting point of oxide film. In combustion stage, gas phase reaction occurs, and quasi-steady diffusion flame is assumed. For simplicity, 1-dimesional spherical symmetric condition and flame sheet assumption are also used. Extended conserved scalar formulations and modified Shvab-Zeldovich functions are used that account for the deposition of metal oxide on the surface of the molten aluminum. Using developed model, time variation of particle temperature, masses of molten aluminum and deposited oxide are predicted. Burning rate, flame radius and temperature are also calculated, and compared with some experimental data.

Key Words: Aluminum Particle Combustion(알루미늄 입자 연소), Oxide Film(산화피막), Heterogeneous Surface Reaction(이상표면반응), Oxide Deposition(산화물 응착)

#### 1. 서 론

알루미늄 입자 연소에 대한 연구는 1960년대 초반부터 진행되어 왔으나, 대부분 로켓모터의 비추력 증강이나 액체로켓엔진에서의 연소불안정 해결을 위한 첨가제로서의 알루미늄 분말 연소에 대한 연구가 주를 이루었다. 1980년대 해수

를 산화제로 사용하는 고속어뢰 개발이 진행되면서부터 고에너지 밀도의 주 추진제로서 알루미늄 연소에 대한 연구가 본격화 되어 알루미늄 입자의 점화는 물론 준정상상태의 연소에 대한 다양한 실험과 해석 모델들이 제시되었고[1,2,3], Williams 등은 전반적인 알루미늄 연소의 특성에 대하여 요약·정리하였다[4].

알루미늄 입자의 점화는 외부의 열원은 물론 이상표면반응(HSR)에 의한 내부 열원으로부터의 에너지 공급에 의해 빠른 시간에 이루어지게 되며[5], 정상상태의 연소단계가 되면 기상의 반응

\* 연세대학교 기계공학부

\*\* 국방과학연구소

연락처, E-mail: wsoon@yonsei.ac.kr

이 진행되어 확산화염이 입자 반경의 2~5배에 달하는 위치에 형성되는 것으로 알려져 있다 [4,6].

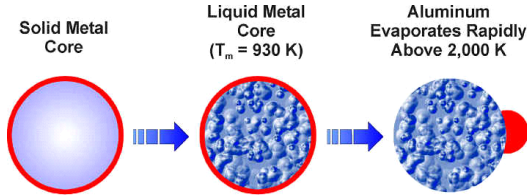


Fig. 1 Schematic for ignition process and oxide cap formation from initial oxide film

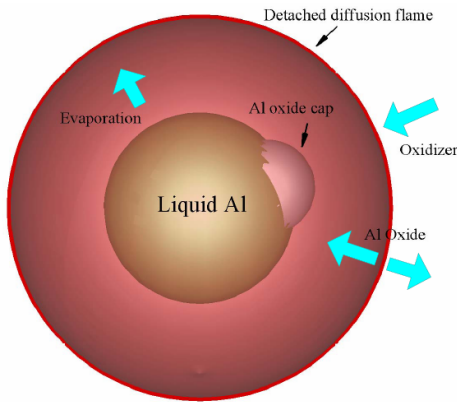


Fig. 2 Schematic for quasi-steady combustion process

알루미늄 입자의 연소는 탄화수소계열 연료 액적의 연소와 유사성을 갖고 있으나, 금속 산화물의 존재로 인해 상당한 차이점을 보인다. 초기 알루미늄 입자는 인위적 혹은 자연적으로 산화피막( $Al_2O_3$ )에 둘러싸여 있으며, 이 산화피막은 알루미늄 보다 녹는점이 높아 점화지연의 원인이 되므로 알루미늄 입자 연소를 위해서는 피막 제거가 선행되어야 한다[Fig. 1]. 외부로부터의 열전달과 산화피막 내부에서의 HSR에 의해 입자의 온도가 상승하면 표면을 둘러싸고 있던 산화피막이 용융되어 액상이 되고, 표면장력 차이로 인해 용융된  $Al_2O_3$ 가 알루미늄 표면에서 반구형태로 응집되는데 이를 "oxide cap"이라 한다. Oxide cap은 연소과정에서 생성된  $Al_2O_3$ 의

내측으로의 확산 및 응축에 의해 성장하게 되며 [Fig. 2], 이 영향으로 알루미늄의 표면적이 감소하게 되어 비대칭 기화 및 연소가 진행된다. 한편, 기상의 생성물이 화염면의 바깥쪽으로 확산되는 경우에는 화염면 근처에서 액상으로 응축되었다가 해리되면서 화염온도를 알루미늄의 해리온도로 고정시키는 현상이 발생하는 것으로 알려져 있는데 이를 "oxide smoke에 의한 limit temperature postulate"라고 부르며, 이러한 현상은 고압연소 시에 주로 발생하는 것으로 알려져 있다[7].

본 연구에서는 기존의 수치해석 결과[2,8,9]에 비해 적은 계산 부하로 점화와 준정상상태의 연소과정 전체를 모사하는 단일 알루미늄 입자의 연소 모델을 작성하였다. 작성된 모델은 초기 산화피막의 두께 계산, HSR에 의한 금속입자의 가열 및 산화피막의 제거, 점화·준정상상태의 연소시 대류 및 복사열전달, 기상의 알루미늄 연소반응, 생성물의 표면으로의 응축 및 잔류 산화물의 형성 등의 주요 현상을 반영하였다.

## 2. 알루미늄 입자 연소 모델링

본 연구에서는 초기 산화피막이 존재하는 단일 알루미늄 입자가 다양한 온도의 공기 외기 환경에 노출되었을 때의 연소과정을 해석하기 위한 간략화 된 모델을 작성하였다. 알루미늄 입자의 연소과정은 점화단계 (산화피막 제거)와 준정상상태 연소 (Quasi Steady Combustion) 단계로 구성된다.

초기 산화피막의 두께는 알루미늄과 산소의 phase diagram과 lever rule을 사용하여 도출하였다.

점화단계에는 산화피막에 둘러싸인 알루미늄 입자가 외기로부터의 대류 및 복사열전달에 의해 가열되며, HSR은 추가적인 자체 열원으로써 입자의 온도가 올라감에 따라 반응이 활성화되어 입자의 온도가 일정 온도 이상이 되면 점화의 주요 에너지 공급원이 된다. 초기에 존재하는 산화피막이 녹아 알루미늄의 표면이 외부 산화

제 환경에 노출되는 시점까지를 점화단계로 간주하여 입자의 온도가 산화피막의 용융온도 (약 2200K)에 도달하면 점화가 완료되어 다음 단계인 준정상상태의 연소단계로 진행하는 것으로 가정하였다.

준정상상태 연소단계에는 알루미늄 입자를 둘러싸고 있던 피막이 용융되어 액상의 알루미늄 표면이 노출되고, 용융된 알루미늄이 응집되어 알루미늄 표면에 cap을 형성한다. 용융된 알루미늄 표면이 외부의 기상의 산화제에 환경에 노출되면 증발된 기상의 알루미늄이 공기와 반응하여 확산화염을 형성하면서 연소되며, 복잡성을 피하기 위하여 1차원 구대칭의 연소를 가정하고, flame sheet 모델을 적용하였다. 화학반응은 global reaction 만을 고려하였으며[10], 각종 계산시 필요한 물성치는 상수값을 사용하였다. 액상 알루미늄의 기화와 반응 생성물의 내측 확산 및 알루미늄 표면으로의 응착현상을 모사하기 위하여 extended conserved scalar 공식과 modified Shvab-Zeldovich 함수를 사용하였으며 [11], oxide smoke에 의한 화염온도 제약효과는 화염온도 계산 시 알루미늄의 해리에너지에 관한 항을 추가하는 방법을 사용하였다.

Table 1. Test matrix and configuration

초기 알루미늄 입자 직경	165 $\mu\text{m}$
초기 알루미늄 입자 온도	300 K
외기 조성	Air (N <sub>2</sub> +O <sub>2</sub> gas)
외기 유동 조건	Free falling
외기 압력	1 atm
외기 온도 조건	1000 K
	1500 K
	2000 K
	3000 K

작성된 모델을 사용한 해석조건들은 Table 1에 나타내었다.

### 3. 해석 결과

#### 3.1 초기 산화피막 두께

공기중에 장시간 노출되어 자연적으로 산화피막이 알루미늄 표면에 형성되어 있음을 가정하고, Al-O의 phase diagram과 lever rule을 사용하여 그 두께를 계산하였다. 해석결과는 Table 2에 나타낸 바와 같이 Eisenreich[12] 등이 나노 알루미늄 입자를 SEM 이미지기법을 통해 실측한 결과와 근사한 값을 예측함을 확인하였다.

Table 2. Comparison of predicted and measured oxide film thicknesses

Values	Prediction	Experiment
Volume ratio (Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /Al)	0.1183	0.12
Thickness ratio (피막두께/입자반경)	0.0365	-

#### 3.2 입자 온도 변화

시간에 따른 입자의 온도변화 결과를 Fig. 3에 나타내었다. 외기 온도가 낮을수록 점화지연 시간이 길어지고, 알루미늄 입자가 용융·기화하는 구간에서는 온도가 일정하게 유지됨을 확인할 수 있다.

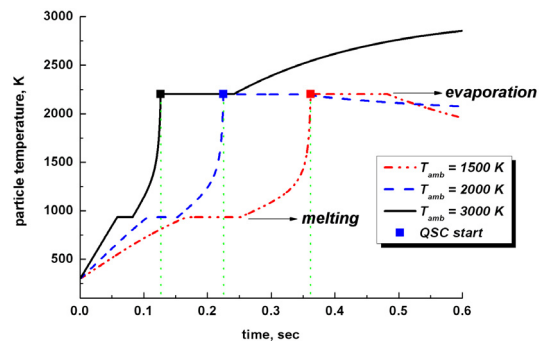


Fig. 3 Evolution of the particle temperature ( $T_{\text{amb}} = 1500\text{K}, 2000\text{K}, 3000\text{K}$ )

입자의 온도가 약 1400K 이상으로 높아져야 이상표면반응(HSR)이 활성화되어 주요한 점화에너지 공급원이 되며, 이후에 입자의 온도가 급격하게 상승하게 됨을 확인하였다.

### 3.3 입자 직경 변화

시간에 따른 입자 직경의 변화를 Fig. 4에 나타내었다. 초기 산화피막이 존재하므로 전체 입자(알루미늄+산화피막)와 순수한 액상의 알루미늄의 직경은 서로 다르며, 점화가 완료되어 연소가 진행되면 직경이 감소한다. 전체 입자와 알루미늄의 직경의 감소율(=기울기)이 다른 것은 연소 생성물의 내측 확산이 존재함을 의미한다.

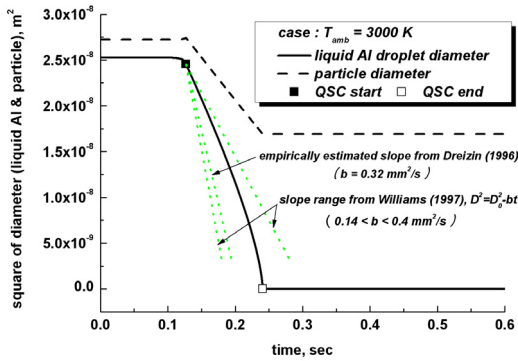


Fig. 4 Time variation of particle diameter (case :  $T_{amb} = 3000K$ )

알루미늄 입자 연소시 생성물의 표면 응축으로 인해 oxide cap이 성장하여 연소 종료시  $Al_2O_3$  잔여물이 남는데, 그 크기는 초기 전체 입자의 1/2~2/3 정도인 것으로 알려져 있으며, 작성된 모델을 사용한 해석결과와 잘 일치함을 확인하였다. 또한, 직경의 감소율도 Williams[4]와 Dreizin[13]이 제시한 실험결과와도 비교적 잘 일치하고 있다.

### 3.4 액상 알루미늄과 알루미늄의 질량 변화

Figure 5와 Fig. 6에 외기온도별 시간에 따른 액상 알루미늄과 알루미늄( $Al_2O_3$ )의 초기 입자 질량 대비 질량분율의 변화를 각각 나타내었다.

점화단계 초기에는 HSR에 의한 가열은 없고, 외기로부터의 대류·복사열전달에만 의해서 입자가 가열되어 산화피막 내부의 알루미늄이 용융된다[Fig. 1]. 피막 내부의 알루미늄이 모두 용융되면 입자의 온도가 점점 상승하고, HSR이 활성화되면서 추가적인 에너지가 공급되어 입자의

온도가 급격하게 상승하게 된다[Fig. 3]. 이러한 과정에 의해 점화단계에서도 소량의 액상 알루미늄이 소모되고 알루미늄이 생성되는데, 이를 Fig. 5와 Fig. 6에서 확인할 수 있다.

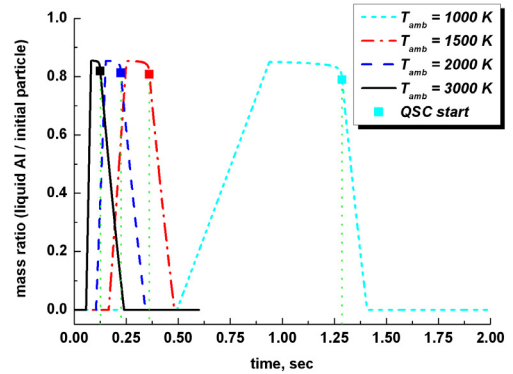


Fig. 5 Time variation of mass ratio between liquid aluminum and initial particle

점화이전에 알루미늄 입자는 산화피막에 둘러싸여 있고, 점화단계에서의 HSR은 물론 준정상상태의 연소단계에도 알루미늄은 계속 소모되므로 액상 알루미늄의 질량분율은 항상 1보다 작은 값을 갖는다.

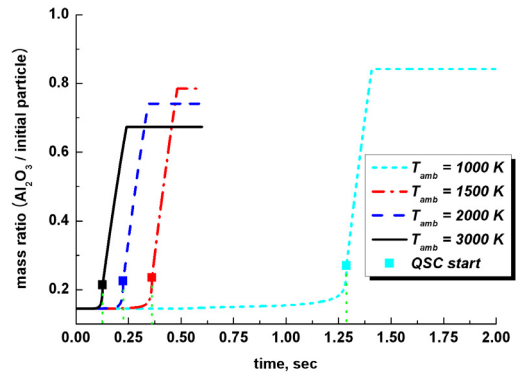


Fig. 6 Time variation of mass ratio between aluminum oxide and initial particle

마찬가지로, 초기 산화피막의 존재로 인해 알루미늄의 질량분율은 항상 0보다 큰 값을 갖게 되며, Fig. 6에 보이는 바와 같이 외기 온도가

낮을수록 알루미늄의 질량분율이 높게 나타나는데, 이는 낮은 외기 온도에서 HSR이 활성화되기 까지 소요시간이 길어져 더 오랜 시간동안 HSR이 진행되기 때문이다.

### 3.5 화염 반경 및 온도, 연소시간

작성된 모델에 의해 예측된 확산화염의 위치와 화염온도를 Table 3에 나타내었다.

알루미늄 입자 연소시 확산화염이 입자반경의 2~5배 거리에 형성되는 것으로 알려져 있으나, 본 연구에서는 6.5~7.8배 거리에 화염이 형성되는 것으로 예측되었다. 화염온도 역시 oxide smoke에 의한 화염온도 제약효과인해 화염의 온도가 알루미늄의 해리온도인 약 4000K 정도인 것으로 알려져 있으나 본 연구에서는 3300~4300K 정도로 예측되었다. 다양한 테스트 결과 이러한 오차의 원인은 각종 열열학적·수송역학적 물성치를 상수값으로 처리한데 기인하는 것으로 생각되며, 향후 물성치를 온도의 함수로 표현하여 모델을 개선함으로써 보다 정확한 값을 예측할 수 있을 것으로 기대된다.

Table 3. Predicted flame radius and temperature

$T_{amb}$ (K)	$r_f/r_{p0}$	$T_f$ (K)
1000	6.58~6.83	3297.73
1500	7.10~7.14	3540.76
2000	7.07~7.42	3771.77
3000	7.56~7.85	4312.69
Ref.	2~5	~ 4000 (oxide smoke effect)

Table 4에는 외기 온도에 따른 연소시간 예측 결과를 나타내었다. 연소시간은 점화지연시간을 제외한 준정상상태의 연소시간만을 나타낸 것으로 Fabignon 등이 제시한 실험식[14]과 비교·검토하여 10% 내외의 오차를 갖는 값을 예측함을 확인하였다.

Table 4. Comparison between predicted combustion time and correlation (The combustion time is for quasi-steady combustion only)

$T_{amb}$ (K)	$t_c$ (Prediction)	$t_c$ (Correlation)	Error (%)
1000	0.120	0.131	-8.4
1500	0.120	0.128	-6.3
2000	0.118	0.125	-5.6
3000	0.114	0.120	-5.0

## 4. 결 론

본 연구에서는 공기중에서 자유낙하하는 단일 알루미늄 입자의 연소에 대한 모델을 작성하였다. 전체 연소과정은 점화와 준정상상태 연소의 두 단계로 구성되었으며, 초기 산화피막의 존재와 반응 생성물의 응착현상에 대한 고려가 포함되었다. 기존의 실험결과와 비교하여 비교적 신뢰할 만한 수준의 결과를 예측함을 확인하였고, 상대적으로 큰 오차를 갖는 화염반경 및 온도 예측 결과에 대해서는 모델을 수정·보완해 나갈 계획이다.

## 후 기

본 연구는 방위사업청과 국방과학연구소의 지원으로 수행되었으며, 이에 감사드립니다.(계약번호 UD070027AD)

## 참 고 문 헌

1. Law, C. K., "A Simplified Theoretical Model for the Vapor-Phase Combustion of Metal Particles," *Combustion Sci. and Tech.*, 7, 1973, pp. 179-212
2. J. F. Widener, Y. Liang, M. W. Beckstead, "Aluminum Combustion Modeling in Solid

- Propellant Environments," AIAA-99-2629, 1999, pp. 1~16
3. J. C. Melcher, H. Krier, R. L. Burton, "Burning Aluminum Particles Inside a Laboratory-Scale Solid Rocket Motor," *Journal of Propulsion and Power*, 18(3), 2002, pp. 631-640
  4. Williams, F. A. "Some Aspects of Metal Particle Combustion," Amsterdam, Gordon and Breach Science Publ., 1997
  5. M. A. Trunov, M. Schoenitz, X. Zhu, E. L. Dreizin, "Effect of polymorphic phase transformations in  $Al_2O_3$  film on oxidation kinetics of aluminum powders," *Combustion and Flame* 140, 2005, pp. 310-318
  6. P. Bucher, R. A. Yetter, F. L. Dryer, "Flame Structure Measurement of Single, Isolated Aluminum Particles Burning in Air," *Proc. of 26th Int. Symp. on Comb.*, 1996, pp. 1899-1908
  7. T. A. Brzustowski, I. Glassman, "Vapor-Phase Diffusion Flames in the Combustion of Magnesium and Aluminum I. Analytical Developments," *Heterogeneous Combustion*, 15, 1964, pp. 75-116
  8. Y. Liang, M. W. Beckstead, "Numerical Simulation of Unsteady, Single Aluminum Particle Combustion in Air," AIAA-98-3825, 1998, pp. 1-10
  9. V. A. Babuk, V. A. Vasilyev, "Model of Aluminum Agglomerate Evolution in Combustion Products of Solid Rocket Propellant," *Journal of Propulsion and Power*, 18(4), 2002, pp. 814-823
  10. D. Tatum, K. K. Kuo, "Physicochemical Considerations in Modeling Ignition and Combustion of Highly Non-Spherical Nano-Sized Aluminum Particles," AIAA-2003-5211, 2003, pp. 1-11
  11. Desjardin, P. E. et al., "Mechanistic Model for Aluminum Particle Ignition and Combustion in Air," *Journal of Propulsion and Power*, 21(3), 2005, pp. 478-485
  12. N. Eisenreich, et al., *JCSE* vol. 6, 2003, Paper H062, Manchester
  13. Dreizin, E. L. "An Experimental Study of Stages in Aluminum Particle Combustion in Air," *Combustion and Flame*, 105(4), 1996, pp. 541-556
  14. Y. Fabignon, et al., "Combustion of Aluminum Particles in Solid Rocket Motors," AIAA-2003-4807, 2003, pp. 1-10