과농 조건에서 산소부화된 $CH_4/O_2/N_2$ 예혼합화염의 화염구조

이기용*† · 권영석**

Flame Structure of Fuel-rich $CH_4/O_2/N_2$ Premixed Flame with Oxygen Enrichment

Ki Yong Lee and Young Suk Kwon

ABSTRACT

Numerical simulations are conducted at atmospheric pressure in order to understand the effect of the oxygen enrichment level on structure of $CH_4/O_2/N_2$ premixed flames. Under several equivalence ratios the flame speeds are calculated and compared with those obtained from the experiments, the results of which are in good agreement. The effects of the oxygen enrichment are investigated on flames under fuel-rich conditions. As the oxygen enrichment level is increased from 0.21 to 1, the flame speed and the temperature are increased. The emission index of CO_2 is decreased in cases of flames for fuel rich mixtures, so the efficiency of combustion may be decreased. The maximum emission index of NO is obtained for 0.6 of the oxygen enrichment level.

Key Words : Flame speed(화염 속도), Oxygen enrichment(산소부화), Quivalence ratio (당량비), Fuel rich(연료 농후), Premixed flame(예혼합 화염), Emission index(배출지수)

기 호 설 명

Ω : 산소부화율	W_i : 화학종i의 분자량
EI_i : 화학종i의 배출지수	$\dot{\omega}_i$: 화학종i의 순생성율

1. 서 론

산소부화연소는 산화제에 포함된 산소의 비율을 21%이상 최대 100%까지 유지된 상태에서 연료를 연소시키는 방식으로, 고온이 필요한 분야(알루미늄 용융, 유리용융, 철 생산 등[1])에 많이 적용하고 있다. 산소부화연소는 높은 화염온도, 낮은 점화에너지, 연소효율의 증대 등의 장점이 있지만 열적 NO_x의 증가, 산소 사용에 따른 운전비용 상승 등의 단점도 있다[2].

임성준 등[3]은 요로에 산소부화연소를 적용할 경우 약 10~20%의 에너지를 절약할 수 있다고 했다. 채재우 등[4]은 난류 확산화염에서 산소 부화율에 따른 NO의 증감 변화를 조사하였고, 산소부화율이 71%까지는 방출 NO 농도는 증가하나 그 이후는 감소함을 보여주었다.

Westenberg와 Fristrom [5]은 0.1기압과 Fristrom 등[6]은 0.05기압의 조건에서 CH_4/O_2 화염 구조를 조사하였고, 질량과 에너지 전달의 관점에서 화염 구조를 분석 하였다. 이기용 등[7]은 희박 조건에서$CH_4/O_2/N_2$ 예혼합 화염의 화염구조를 조사하였다.

산소 부화연소 방식에서 형성된 화염 구조는 기존의 연료/공기로부터 형성된 화염 구조와 다른 면을 나타낸다[8]. 산소부화율이 증가할수록 희박 가연한계(lower flammability limit)는 별로 변하지 않지만 농염 가연한계(upper flammability limit)는 현저하게 상승하여 가연한계의 범위가 넓어진다. 높은 당량비(당량비 1 이상)를 갖는 화염일수록 NOx의 생성은 감소되기 때문에 연료-농

* 안동대학교 기계공학부
† 연락저자, kylee@andong.ac.kr
* 안동대학교 기계공학과 대학원

후 조건에 산소부화연소를 적용함으로 NO 생성의 감소를 가져올 수 있다.

본 논문에서는 기존에 개발된 상세한 화학반응 메카니즘을 사용하여 자유롭게 전파하는 $CH_4/O_2/N_2$ 예혼합 화염에서 당량비와 산소변화율 변화에 따른 화염 속도를 예상하고, 이를 기존의 실험 결과와 비교하였다. 연료-농후 조건에서 형성된 화염에 대하여 산소부화율 변화에 따른 화염 구조를 조사하였다.

2. 수치해법

앞서 개발된 컴퓨터 코드 RUN-1DL[9, 10]을 사용하여 자유롭게 전파하는 $CH_4/O_2/N_2$ 예혼합 화염에 대한 수치해석을 수행하였다. 수치해석 수행을 위해 기존에 개발된 상세한 화학반응 메카니즘[11]을 사용하였고, 반응 메카니즘에 있는 화학종들의 열역학적 물성치 및 전달 물성치는 GRI-3.0 메카니즘[12]에 있는 자료를 사용하였다. 언급한 메카니즘은 불활성 기체로서 Ar을 포함한 53개의 화학종(질소 원자를 포함한 화학종과 C_3H_8과 C_3H_7을 제외한 나머지 화학종은 C_1과 C_2를 포함한 화학종)과 632개의 순방향 기초반응식(*forward elementry reaction*)으로 구성되어 있고 Ref. 11에서 찾아 볼 수 있다.

본 연구에서는 주어진 계산 구간 안에서 온도와 화학종의 농도가 급격히 변하므로 이들의 정확한 분포를 얻기 위해 약 160~200개 정도의 격자 수를 사용하여 결과를 얻었다. 초기 조건으로 Ar의 농도를 0으로 하고, 초기가스 온도는 300K, 압력은 1기압의 조건을 갖은 화염에 대하여 수치해석을 수행하였다.

3. 결과 및 논의

3.1 화염속도와 최대 화염온도 결과

자유롭게 전파하는 $CH_4/O_2/N_2$ 예혼합 화염에 대하여 언급한 화학반응 메카니즘을 사용하여 수치해석을 수행하였다. 당량비를 0.55부터 2까지, 산화제에서 산소의 몰분율(=산소부화율)을 0.21부터 0.985까지 변화시키면서 화염 속도를 계산하였고, 그 결과를 Fig. 1에 나타냈다. 수치해석 결과는 Ref. 13에서 얻어진 화염 속도 결과(Bunsen 버너 화염으로부터 화염 속도 측정)와 비교하였다. 여기서 산소부화율(Ω)은 $\frac{X_{O_2}}{X_{O_2}+X_{N_2}}$ 로 정의하였고, X_{O_2}와 X_{N_2}는 각각 산소와 질소의 몰분율이다. 산소부화율이 0.21과 1은 산화제로서 각각 공기와 순수한 산소를 사용한 화염의 경우를 나타낸다.

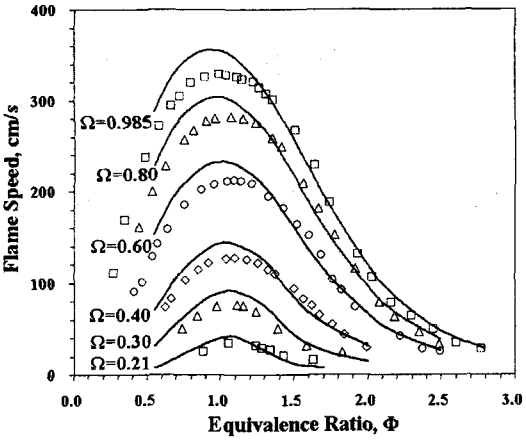

Fig. 1 A comparision of flame speeds with the different O_2 enrichment levels, present with respect to equivalence ratio. Line: Our calculation ; Symbol: Ref. 13

예상한 것처럼 당량비가 0.55에서 2까지 범위 내에서 산소부화율에 관계없이 이론 당량비 부근에서 최대 화염 속도를 나타내고, 양쪽 방향으로 화염 속도는 감소한다. 산소부화율의 증가는 언급한 당량비 범위 내에서 화염 속도의 증가를 가져오고, 화염 속도의 증가폭은 최대 화염 속도가 발생하는 지점에서 가장 크다.

산소부화율이 낮은 화염에 대하여 계산한 화염 속도는 언급한 당량비 범위 내에서 실험 결과와 비교적 잘 일치한다. 산소부화율이 증가하여도 연료 희박과 연료 농후 조건에서 얻어진 화염 속도는 실험 결과와 매우 잘 일치하지만, 이론 당량비 조건 부근에서는 계산한 화염 속도가 실험 결과보다 높게 예상하고 있다. 이러한 차이의 가능성으로 실험에서는 Bunsen 버너 화염 기술을 사용하여 화염 속도를 측정할 경우 화염의 스트레치 효과에 대한 보정을 고려하지 않거나[14] 또는 이론에 근거한 Bunsen 버너 화염의 표면적 계산이 실제 화염의 표면적과의 오차[13] 등이 있고, 수치해석에서는 사용한 기초 반응식에 존재하는 계수들의 부정확성 등이 있을 수 있다.

그러나 최대 화염 속도를 갖는 당량비가 1, 산소부화율이 0.985인 메탄/산소 화염에 대한 수치해석과 실험 결과의 화염 속도 차이는 27cm/s로, 이 값은 실험에서 얻어진 화염 속도 328cm/s의 10% 내에서 존재한다. 결국 산소부화율이 0.21부터 1까지 변화하는 화염에서 화염 속도에 대한 수치해석 결과는 실험 결과와 잘 일치한다.

Fig. 2는 당량비를 0.55부터 2까지, 산소부화율을 0.21부터 1까지 변화시키면서 계산한 화염 하류 지점 온도를 보여준다. 산소부화율 0.21과 1에서 계산 결과는 Ref. 13에서 얻어진 결과와 비교적 잘

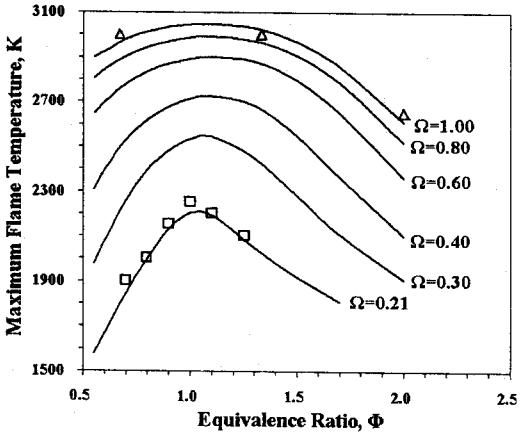

Fig. 2 A comparision of maximum temperature with the different O_2 enrichment levels, present with respect to equivalence ratio. Line: Our calculation ; Symbol: Ref. 13

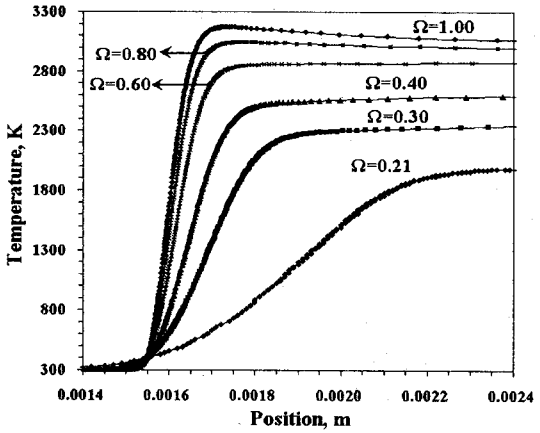

Fig. 3 Spatial temperature profiles for a Φ =1.3 flame with the different O_2 enrichment level, presented with respect to position

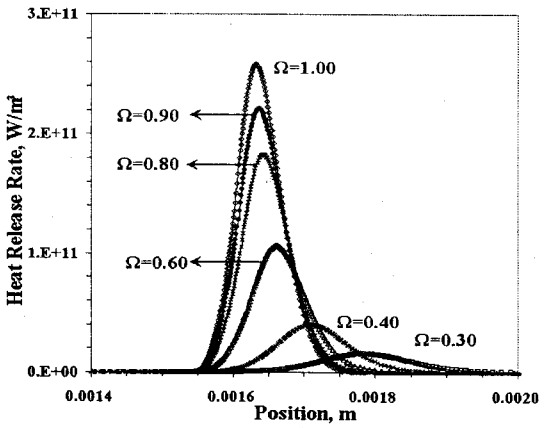

Fig. 4 Heat release profiles for a Φ=1.3 flame with the different O_2 enrichment level, presented with respect to position

일치한다. CH_4/Air 화염에서 최대 화염 온도는 이론 당량비 근처에서 발생하고, 양방향으로 감소한다. 산소부화율이 0.21에서 1로 증가할수록 최대 화염 온도가 발생하는 위치는 약간 연료-농후 쪽으로 이동하는데, 일반적으로 탄화수소 화염에서처럼 연료-농후 조건에서 생성된 생성물들의 평균 비열이 이론 당량비인 조건보다 더 낮기 때문이다.

화염 속도는 층류 예혼합 화염에서 기초적 변수이면서 실제적으로 화염 전파의 중요한 요소이다. 따라서 본 연구에서 적용한 화학 반응 메카니즘을 사용하여 계산한 결과는 언급한 실험결과와 잘 일치하기 때문에 본 메카니즘을 사용하여 당량비가 1 보다 큰 조건에서 형성된 $CH_4/O_2/N_2$ 예혼합 화염들의 화염 구조 해석에 적용이 가능하다. 이후의 논의에서 당량비가 1.3인 화염에 대하여 수행한 수치해석 결과들을 갖고 산소부화율의 변화에 따른 화염구조를 조사하였다.

3.2 화염 온도와 열 방출률 분포

당량비가 1.3인 $CH_4/O_2/N_2$ 예혼합 화염에 대하여 서로 다른 산소 부화율을 갖는 6종류의 화염들에 대한 온도 분포와 열 방출률 분포를 Fig. 3과 4에 각각 나타냈다. 산소부화율이 0.21부터 1까지 증가함에 따라 산화제 내에 포함된 질소 농도의 감소로 인하여 기연가스의 온도는 각각 2050K에서 3056K까지 증가한다. 산소부화율의 증가는 화염 내에서 급격한 온도 구배 상승을 가져오기 때문에 화염 온도는 산소부화율이 낮은 화염인 경우 완만하게 증가하나 산소부화율이 높은 화염인 경우 급격하게 증가한다. 산소부화율이 0.21인 화염에서 온도 구배는 2.79×10^6 K/m이지만 산소부화율이 1인 화염에서 그 값은 2.73×10^7K/m으로 급상승한다. 산소부화율이 0.8 이상인 화염의 경우 화염 하류로 진행함에 따라 화염 온도는 감소한다. 이것은 높은 온도로 인한 CO_2의 해리에 기인한다[7].

산소부화율이 0.21로부터 1.0으로 증가는 열방출이 발생하는 범위를 감소시키지만, 화염 온도와 메탄 소비율의 증가로 인해 최대 열방출률 값은 2.50×10^9W/m^{3}에서 2.58×10^{11}W/m^{3}로 급격히 증가한다. 최대 메탄 소비율은 5.76×10^{-3}mole/s · cm^{3}에서 9.10×10^{-1}mole/s · cm^{3}로 증가한다. 산소부화율의 증가는 메탄과 산소 소비율의 발생을좀 더 미연가스가 존재하는 방향으로 이동시키기 때문에 최대 열방출률의 위치도 같은 방향으로 이동한다.

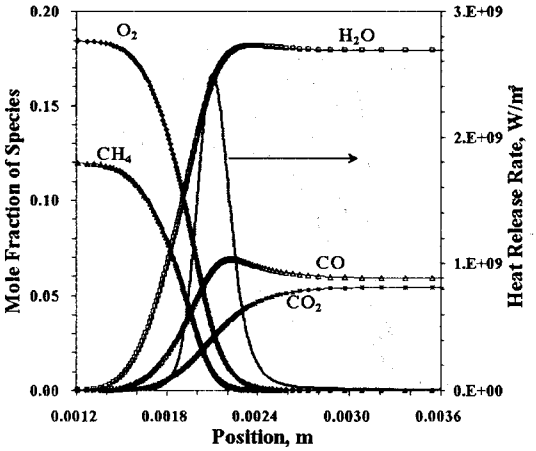

Fig. 5 Heat release profile and species concentration profiles of some species for a Φ=1.3 flame with the 21% O_2 enrichment level, presented with respect to position

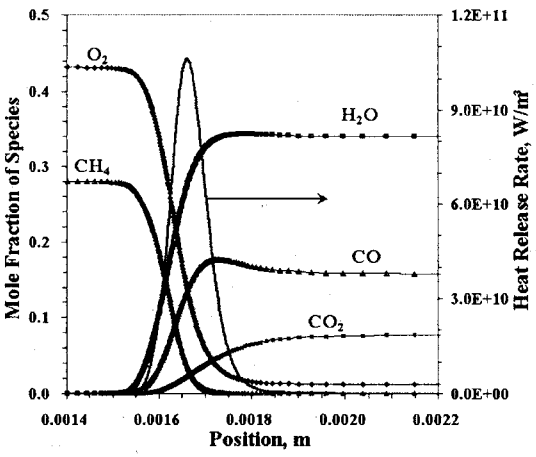

Fig. 6 Heat release profile and species concentration profiles of some species for a Φ=1.3 flame with the 60% O_2 enrichment level, presented with respect to position

3.3 화학종 농도 분포

당량비 1.3이고 산소부화율이 0.21과 0.6인 화염에서 중요한 화학종(CH_4, O_2, H_2O, CO_2, CO)의 농도 분포를 각각 Fig. 5~6에 나타냈다. 산소부화율이 0.21인 화염의 경우 1차 반응 영역(화학반응 에너지가 방출되는 영역)에서 메탄과 산소는 거의 완전히 소비되지만, 산소부화율이 0.6으로 증가하면 산소는 완전히 소비되지 않고 화염 하류에서 일정한 농도를 갖는다. 이 영역에서 CO 농도는 CO_2 농도보다 크고, 두 화학종의 농도

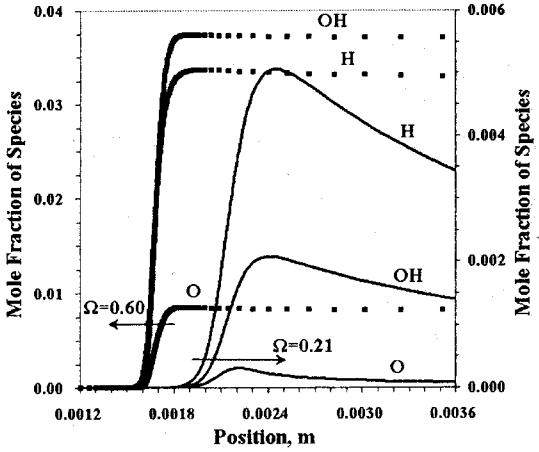

Fig. 7 Species concentration profiles of some species for a Φ=1.3 flame, presented with respect to position

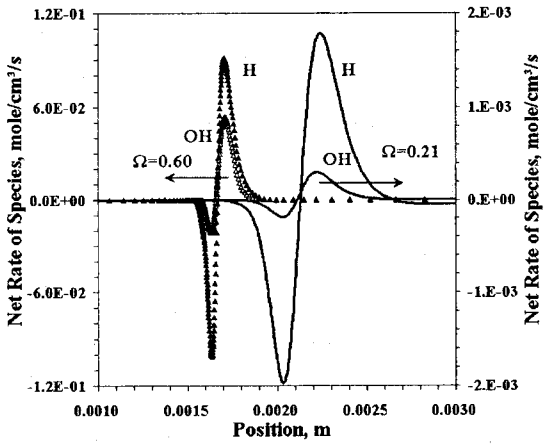

Fig. 8 Net rate of species OH, H for Φ=1.3 flame with the 21% and 60% O_2 enrichment levels, presented with respect to position

비(CO/CO_2)는 산소부화율이 증가할수록 더 커진다. 이러한 경향은 화염 하류에서도 지속되고, 연료-농후 조건이기 때문에 화염 하류에서 CO 농도가 CO_2 농도보다 높게 유지한다.

Fig. 7은 당량비 1.3이고 산소부화율이 0.21과 0.6인 화염에서 중요한 레디칼(radical, OH, O, 및 H)의 농도분포를 나타내다. 중요한 레디칼의 농도는 1차 반응 영역에서 생성되기 시작하여 화염 하류에서 최대값을 갖고, 그 후부터 감소한다. 레디칼의 농도 감소율은 산소부화율이 증가할 수록 완만하다. 산소부화율이 0.21인 경우 레디칼 농도 크기의 순서는 H, OH, O 이지만, 산소부화율이 0.6에서 그 크기의 순서는 OH, H, O로 바

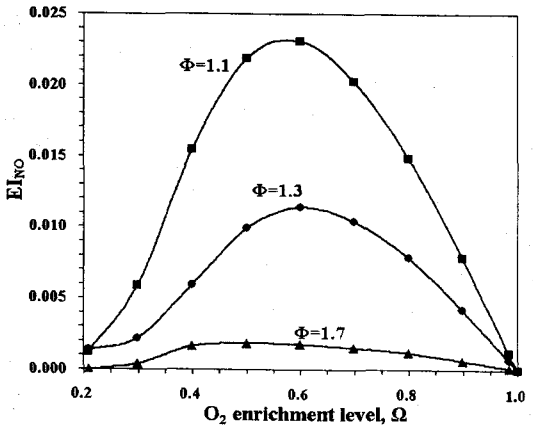

Fig. 9 EI_{NO} for the different equivalence ratios with respect to the O2 enrichment level

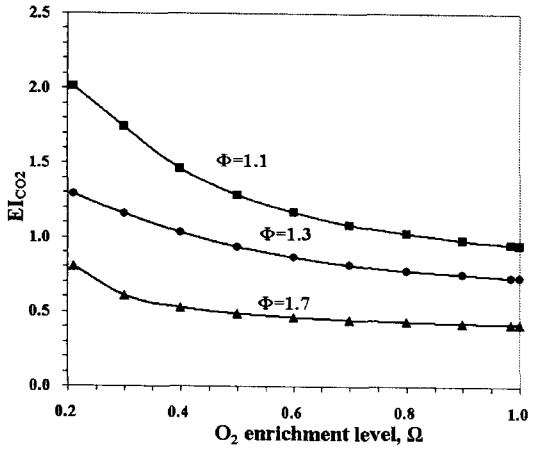

Fig. 10 EI_{CO2} for the different equivalence ratios with respect to the O_2 enrichment level

꿔게 된다. 이러한 경향은 산소부화율이 0.4이상인 화염에 대하여 발생한다.

Fig. 8에서 보는 것처럼 산소부화율이 높아질수록 OH 순소비율(음의 값)의 증가보다 OH 순생성율(양의 값)의 증가가 훨씬 크게 발생하며, 이것은 탄화수소 연소에서 매우 중요한 연쇄 분지 반응(chain branching reaction)인 $H+O_2 = O+OH$에 기인한다. 과농 조건에서 수소원자 농도와 산소부화율 증가에 따른 산소 농도의 증가는 연급한 반응식을 통해 높은 OH와 O의 생성을 가져온다. 또한 수소 원자의 순생성율 및 순소비율 절대값도 산소부화율 증가에 따라 크게 상승하지만, 순생성율은 순소비율 증가에 비례하여 같이 증가한다.

3.4 NO와 CO_2 배출 지수

화학종 i의 배출지수(Emission Index, EI_i)는 연소과정에 의해 소비된 연료의 질량에 대한 화학종 i의 질량의 비로 정의하였고, 다음과 같은 식으로 나타냈다.

$$EI_i = \frac{m_i}{m_F} = \frac{W_i \int_0^L \dot{\omega}_i \, dx}{- W_{CH_4} \int_0^L \dot{\omega}_{CH_4} \, dx}$$

여기서 m은 질량, W_i는 화학종 i의 분자량, $\dot{\omega}_i$는 화학종 i의 순생성률, L은 수치해석 계산 구간이다. 분모에 (-)가 있는 것은 연료의 순생성률을 적분하면 음의 값을 갖기 때문이다.

3종류의 당량비 조건에서 형성된 화염에서 산소부화율 변화에 대한 EI_{NO}와 EI_{CO2} 변화를 각각 Figs. 9-10에 나타냈다. 당량비가 1.1로부터 1.7로 증가함에 따라 EI_{NO}와 EI_{CO2}는 각각 감소한다. 당량비에 관계없이 EI_{NO}는 산소부화율 0.6 주위에서 최대로 발생하고 양쪽 방향으로 감소한다. 화염 온도, 산소원자 및 질소 농도 등은 NO 생성의 중요한 인자들이고, 서로 간의 영향이 NO 생성에 밀접한 관련이 있다. 산소부화율 0.6 이하에서는 화염 온도와 산소원자의 농도가 NO 생성에 영향을 미치지만, 산소부화율 0.6 이상에서는 질소 농도가 언급한 인자들 보다 더 NO 생성에 영향을 미친다.

산소부화율 전 범위에서 당량비 1.1인 화염의 EI_{CO2}는 더 높은 당량비를 갖는 화염의 EI_{CO2} 보다 크다. EI_{CO2}는 산소부화율이 0.21에서 0.4까지 크게 감소하다가 그 이후부터 완만하게 감소한다.

4. 결 론

산소부화율이 연료-농후 조건에서 자유롭게 전파하는 $CH_4/O_2/N_2$ 예혼합 화염의 화염 구조에 미치는 영향을 조사하였다. 이를 위해 기존에 개발된 상세한 화학반응 메카니즘을 사용하여 화염속도, 화염 온도, 화학종의 농도분포, 열발생률, EI_{NO} 등을 계산하였다.

1. 이미 개발된 상세한 화학반응 메카니즘을 갖고 계산한 화염 속도는 Ref. 13의 자료와 비교하였고, 결과적으로 잘 일치한다. 따라서 연료-농후 조건에서 형성된 $CH_4/O_2/N_2$ 예혼합 화염들의 화염 구조 해석에 적용이 가능하다.

2. 산소부화율이 증가함에 따라 화염 온도는 증가하고, 화염 내에서 온도 구배는 급격한 상승을 가져온다. 또한 최대 열방출률 값도 증가하고 그 위치는 화염 상류로 이동한다. 산소부화율이 증가할수록 최대 화염 온도가 발생하는 위치는 이론

당량비보다 약간 연료-농후 쪽으로 이동한다.

3. 산소부화율 증가는 높은 CO/CO_2의 농도비를 갖게 하고, 중요한 레디칼인 OH 농도를 높게 유지시킨다. 연료-농후 조건에서 EI_{NO}는 산소부화율 0.6 부근에서 최대값을 갖고 양쪽 방향으로 감소한다. EI_{CO2}는 산소부화율이 0.21에서 0.4까지 크게 감소하다가 그 이후부터 완만하게 감소한다.

후 기

이 논문은 2002년도 두뇌한국21사업에 의하여 지원되었음.

참고문헌

[1] "Oxygen-enhanced Combustion System Developed," *Metallurgia,* 1998, pp. 287.

[2] Baukal, C. E., "Oxygen-enhanced Combustion," CRC, 1998.

[3] 임성준, 김종남, 김지동 및 성재석, "산소부화연소에 의한 에너지 절약," *제2회 에너지 절약 기술 워크샵 논문집*, Vol. 4, 1987, pp. 13-44.

[4] 채재우, 전영남 및 김영권, "난류확산화염에서 산소부화가 NO 생성에 미치는 영향에 관한 실험적 연구," *대한기계학회논문집*, Vol. 14, No. 4, 1990, pp. 1022-1032.

[5] Westenberg, A. A. and Fristrom, R. M, "Methane-Oxygen Flame Structure. II. Conservation of Matter and Energy in the One-tenth Atmosphere Flame," *J. Phys. Chem.*, Vol. 64, 1960, pp. 1393-1398.

[6] Fristrom, R. M., Grunfelder, C. and Favin, S., "Methane-Oxygen Flame Structure. III. Characteristic Profiles and Matter and Energy Conservation in a One-twentieth Atmosphere Flame," *J. Phys. Chem.*, Vol. 65, 1961, pp. 587-590.

[7] 이기용, 남태형, 유현석 및 최동수, "산소부화된 자유롭게 전파하는 $CH_4/O_2/N_2$ 예혼합화염의 화염구조," *대한기계학회논문집 B권*, Vol. 26, No. 4, 2002, pp. 555-560.

[8] Glassman, I., "*Combustion,*" 3rd ed., *Academic press*, 1996.

[9] Rogg, B., "RUN-1DL : The Cambridge Universal Laminar Flamelet Computer Code," in: Reduced Kinetic Mechanism for Applications in Combustion Systems, Appendix C, N. Peters and B. Rogg (eds.), *Springer-Verlag*, 1993.

[10] Rogg, B., "RUN-1DL : The Universal Laminar Flame and Flamelet Computer Code," User Manual, 1994.

[11] 이기용, "$CH_4/O_2/N_2$ 예혼합 화염에서 산소부화에 따른 NO_x 및 화염구조의 조사," 2000년 대학협력과제 최종보고서, 한국가스공사 연구개발원, 2001.

[12] GRI-Mech Version 3.0, http://www.me.berkeley.edu/gri_mech/, 1999.

[13] Lewis, B. and Elbe, G., "Combustion, Flames and Explosions of Gases," *Academic press*, 1987.

[14] Leylegian, J. C., Zhu, D. L., Law, C. K. and Wang, H., "Experiments and Numerical Simulation on the Laminar Flame Speeds of Dichloromethane and Trichloromethane," *Combust. Flame*, Vol. 114, 1998, pp. 285.