

자유롭게 전파하는 CH₄/O₂/N₂ 예혼합화염에서 산소부화에 따른 화염구조

이기용* · 남태형* · 유현석** · 최동수**

The Flame Structure of Freely Propagating CH₄/O₂/N₂ Premixed Flames on Adding Oxygen

Ki Yong Lee, Tae-Hyoung Nam, Hyun Seok You, Dongsoo Choi

Key Words: flame speed, O₂ enrichment level, freely propagating flame

Abstract

Numerical simulations of freely propagating flames burning stoichiometric CH₄/O₂/N₂ mixtures are performed at atmospheric pressure in order to understand the effect of the O₂ enrichment level on CH₄/Air flame. A chemical kinetic mechanism is employed, the adopted scheme involving 54 gas-phase species and 632 forward reactions. The calculated flame speeds are compared with the experiments for the flames established at several O₂ enrichment level, the results of which is in excellent agreement. As a result of the increased O₂ enrichment level from 0.21 to 1, the mole fraction of CO in the burned gas is increased. The flame speed and the temperature in the burned gas are also increased, but the thickness of the flame is severely shrunken in the preheat region.

1. 서론

산업체에서는 제품을 생산하기 위해 에너지가 필요하고, 이러한 에너지는 주로 버너를 사용하여 탄화수소 연료(가스 또는 액체 연료)를 연소시킴으로 얻는다. 대부분의 연소과정은 산화제로서 공기에

존재하는 산소를 사용한다. 공기는 체적 비로 대략 산소 21%와 질소 79%로 구성되어 있다. 공기에 존재하는 산소의 함량 비율보다도 더 높은 산소의 함량 비율을 갖게 산화제를 공급하여 연료를 연소시키는 방법이 산소 부화 연소(oxygen-enhanced combustion, OEC)이다[1]. 순수한 산소를 공기와 혼합하여 버너로 공급하거나, 또는 더 나아가 공기 대신 순수한 산소를 100% 산화제로 사용하여 연소하는 방법이 예가 될 수 있다. 일반적으로 사용하던 연료/공기 연소보다도 산소 부화 연소는 더 높은 화

* 국립안동대학교 기계공학과

** 한국가스공사 연구개발원

염 온도, 이용할 수 있는 에너지의 증대, 낮은 점화 온도와 에너지 요구, 감소된 배출가스의 양, 연소효율의 증대, 화염의 안정성 강화 등의 장점을 갖고 있다[1]. 반면 높은 화염 온도로 인한 열적 NO_x(thermal NO_x)의 증가, 배기가스 양의 감소로 인한 대류 열전달의 감소, 산소 사용에 따른 운전비용 상승 등의 단점도 가지고 있다[1]. 산업체에는 언급한 장점을 적용할 수 있는 많은 공정들(알루미늄 용융, 유리 용융, 철 생산 등[2])이 있기 때문에 국외에서는 산소부화 연소를 이러한 공정들에 적용하고 있고, 앞으로 그 범위는 넓어질 것으로 예상된다.

본 연구에서는 자유롭게 전파하는 CH₄/O₂/N₂ 예혼합 화염의 상세한 화학반응 메커니즘을 개발하고, 이 반응 메커니즘을 근거로 산소의 첨가량 변화에 따른 화염의 구조를 조사하였다.

2. 수치해법

자유롭게 전파하는 CH₄/O₂/N₂ 예혼합 화염에 대한 수치해석을 수행하기 위해 이미 개발된 수치해석 코드(RUN1-DL)[3,4]를 사용했고, 이 코드는 1차원 층류 예혼합화염에 대한 구조를 해석하기 위해 개발된 것이다. 수치해석을 수행하기 위해 상세한 화학반응 메커니즘(detailed chemical kinetic mechanism)외에 메커니즘에 포함된 화학종의 열역학적 또는 물리적 물성치가 필요하며 이들의 물성치에 대한 자료를 Ref. 5로부터 얻었다. 주어진 계산 구간 안에서 온도 및 화학종의 농도 분포가 급격히 변하므로 이들의 정확한 분포를 얻기 위해 약 200 - 220 정도의 격자 수를 사용하여 결과들을 계산하였다.

산소부화 연소에 적용할 수 있는 자유롭게 전파하는 CH₄/O₂/N₂ 예혼합 화염에 대한 상세한 화학반응 메커니즘을 개발하였고, 이 반응 메커니즘은 메탄 연소를 위해 만든 GRI-3.0 반응 메커니즘[5]과 김 등[6]이 만든 H₂-O₂ 반응 메커니즘을 결합한 형태이다.

사용한 반응 메커니즘에는 3개의 탄소원자 갖는 화학종이 2개(C₃H₈와 C₃H₇) 포함되어 있지만 주로 C₁과 C₂를 포함한 화학종과 질소 원자를 포함한 화학종들로 구성되어 있다. 불활성 기체로서 Ar을 포함한 53개의 화학종과 632개의 순방향 기초반응식(forward reaction)으로 이루어져 있다.

본 연구에서는 메커니즘에 포함된 화학종 Ar의 농도를 0으로 하고, 미연가스의 온도는 300K, 압력은 1기압의 조건을 갖는 화염에 대하여 수치해석을 수행하였다.

3. 결과 및 논의

3.1. 화염속도의 결과 비교

당량비가 1인 조건에서 자유롭게 전파하는 CH₄/O₂/N₂ 예혼합 화염에 대하여 제안한 화학반응 메커니즘을 사용하여 수치해석을 수행하였다. 산화제에서 산소의 몰분율을 0.21부터 1까지 변화시키면서 화염속도를 계산하였고, 그 결과를 Fig. 1에 나타냈다. Morgan과 Kane[7]은 벤슨 화염과 셀리렌 장치를 이용하여 산화제에서 산소의 몰분율 변화에 대한 화염속도를 측정하였고, 이 실험 결과를 본 연구에서 얻은 수치해석 결과와 비교하였다. 현재까지 메탄 연소에 대하여 잘 정립된 화학반응 메커니즘인 GRI-3.0[5]을 사용하여 산소 부화 화염에 대한 화염속도를 계산하였고, 그 결

과를 Fig. 1에 나타냈다. 여기서 산소부화율(Ω)은 $\Omega = O_2 / (N_2 + O_2)$ 로 정의하였고, O_2 와 N_2 는 각각 산소와 질소의 몰분율이다. 산소부화율이 0.21과 1는 산화제로서 각각 공기와 순수한 산소를 사용한 화염의 경우를 나타낸다.

당량비가 1인 메탄/공기 예혼합 화염의 경우 언급한 3가지 방법에서 얻어진 화염속도는 일반적으로 알려진 화염속도(약 40 cm/s[8])와 비교적 잘 일치한다. 또한 산소부화율이 0.3까지 증가하더라도 2개의 서로 다른 화학반응 메커니즘을 사용하여 얻어진 화염속도 결과는 Morgan과 Kane의 실험 결과[7]와 잘 일치한다.

그러나 산소부화율이 0.3 이상의 조건에서 GRI-3.0 화학반응 메커니즘을 사용하여 얻어진 화염속도는 산소부화율이 증가함에 따라 실험 결과보다 점점 커다란 차이를 나타낸다. 산소부화율이 0.3 이하의 조건에서 형성한 예혼합 화염에 대하여 GRI-3.0 화학반응 메커니즘을 적용할 수 있으나 그 이상의 값을 갖는 예혼합 화염에 이러한 메커니즘을 적용하는 것은 바람직하지 않다. 따라서 높은 산소부화율을 갖는 화염에 대한 수치해석을 수행하기 위해 새로운 화학반응 메커니즘이 요구된다.

이를 위해 본 연구에서는 산소부화율에 적용할 수 있는 화학반응 메커니즘을 개발하였고, 이러한 화학반응 메커니즘을 사용하여 다양한 산소부화율에 대해 얻어진 화염속도는 Morgan과 Kane의 실험 결과[7]와 매우 잘 일치한다. 단지 산소부화율이 매우 높은 조건에서 얻어진 수치해석 결과는 실험 결과와 차이를 나타낸다. 이러한 것은 실험 수행에 있어서 오류 또는 수치해석에서 사용한 화학반응 메커니즘에 존재하는 파라미터들의

부정확성, 고온으로 인한 해리 등에 기인할 수 있다. 높은 산소부화율을 갖는 화염은 높은 화염온도와 화염속도를 갖기 때문에 높은 온도 범위에서 화학반응식의 계수에 대한 정확성이 야기될 수 있다.

한편 Morgan과 Kane[8]은 산소 부화율이 높은 메탄/산소/질소 화염의 화염속도를 측정하기 위해 매우 작은 직경을 갖는 노즐을 사용하였고, 노즐의 직경이 화염속도에 영향을 미칠 수 있다고 하였다.

Fig. 2는 당량비가 1보다 적은 희박 연소 조건에서 산소 부화율 변화에 따른 화염속도를 나타낸다. 그림에 있는 삼각형은 산소 부화율이 0.21인 메탄/공기 화염에 대해 Ref. 8 (실험 결과)부터 얻어진 화염속도를 나타내고, 이 값은 수치해석을 통해 계산한 결과와 잘 일치한다. 각각의 당량비에서 산소 부화율의 증가는 화염속도의 증가를 가져오고, 또한 당량비가 0.7부터 1.0까지 증가함에 따라 화염속도도 증가한다. 당량비가 1과 0.9인 메탄/산소 화염인 경우 계산으로부터 얻어진 화염속도는 각각 355.6 cm/s와 357.8 cm/s이다. 즉 당량비가 0.9인 화염의 화염속도가 당량비가 1인 화염의 속도보다 약 2.2 cm/s 높게 나타난다. 이것은 앞에서 언급한 것처럼 산소 부화율이 높은 조건에서 반응 메커니즘에 존재하는 파라미터들의 부정확성, 고온으로 인한 해리 등에 기인할 수 있는 것으로 좀 더 상세한 연구가 요구되어진다.

당량비가 1인 메탄/산소/질소 예혼합 화염에 대하여 서로 다른 산소 부화율을 갖는 3종류의 화염에 대한 온도분포를 Fig. 3에 나타냈다. 산소 부화율이 0.21, 0.5, 그리고 1로 증가함에 따라 화염 후

류에서 기연가스의 온도는 각각 2189K, 2814K, 그리고 3042K로 증가한다. 이것은 산소 부화율의 증가로 인해 미연 가스 또는 기연 가스에 포함된 질소 함유량의 감소에 기인한다. 산소 부화율의 증가는 화염 내에서 급격한 화염 온도 구배의 상승을 가져온다. 3000K 이상의 화염 온도를 갖는 메탄/산소 화염의 경우 화염 후류에서 온도 분포는 나머지 2개의 화염들과 다른 현상을 나타낸다. 화염 후류로 진행함에 따라 메탄/산소 화염의 온도는 감소하지만 나머지 2개 화염의 온도는 증가하는데 이것은 높은 온도로 인한 해리 현상에 기인하는 것으로 사료된다.

3.2. 화염 구조

Fig. 4는 3 종류의 화염에 대한 열방출률 분포를 나타내며, 그림의 괄호에 표시한 수치는 산소 부화율이 0.21과 0.5인 화염의 열방출률 값을 각각 2배와 10배로 확대하여 도시한 것이다. 산소 부화율이 0.21로부터 1.0으로 증가함에 따라 열방출이 발생하는 범위는 감소하지만 최대 열방출률 값은 5.28×10^9 에서 3.24×10^{11} 로 급격히 증가한다. 이것은 메탄의 최대 소비율이 1.1×10^2 에서 1.0 (mole/cm³ s)로 증가하기 때문이다.

산소 부화율의 증가는 메탄과 산소의 최대 소비율의 발생 위치를 좀 더 미연가스가 존재하는 방향으로 이동시키기 때문에 최대 열방출률의 위치도 미연가스가 존재하는 방향으로 이동한다. 화염 속도의 증가는 높은 산소 부화율을 갖는 화염이 낮은 산소 부화율을 갖는 화염보다 더 얇은 화염 두께를 갖는다.

Figs. 5과 6은 각각 산소 부화율이 0.21(CH₄/Air 화염)과 0.5인 화염에서 중요한 화학종(CH₄, O₂, H₂O, CO₂, CO)의

농도분포를 나타낸다. 일반적으로 층류 탄화수소 예혼합 화염은 3개의 영역(열 발생이 거의 발생하지 않고 급격한 온도 증가가 시작되기 직전까지의 예열 영역, 화학반응 에너지가 방출되는 1차 반응 영역, 그리고 CO 반응과 활성화기 결합이 발생하는 2차 반응 영역)으로 구분하여 해석을 한다 [10]. 산소 부화율이 0.21에서 0.5로 증가함에 따라 화염 속도의 증가로 인하여 화염 속도에 반비례하는 예열 영역의 폭은 많은 감소를 가져온다. 1차 반응 영역에서 연료인 메탄은 거의 완전하게 소비되지만, 산화제인 산소는 일정한 분량이 1차 반응 영역을 통과하여 2차 반응 영역에 존재한다.

이러한 것은 1차 반응 영역에서 CO의 분량이 CO₂의 분량보다 많이 생성되고, 산소 부화율이 높아질수록 두 화학종의 분량비 차이는 더 커져진다. 2차 반응 영역에서는 CO의 반응이 존재하기 때문에 CO의 몰분율은 감소하고 CO₂의 몰분율은 증가한다. 열 손실을 고려하지 않으면 이러한 반응의 영향으로 평형 상태에 도달하기 전까지 화염 후류에서 화염 온도는 계속 증가한다(Fig. 3 참조). 산소 부화율이 증가할수록 이러한 영향은 감소되며, Fig. 3에 나타나는 것처럼 산소 부화율이 0.5인 화염의 온도구배는 산소 부화율이 0.5인 화염의 것보다 완만하다. 그것은 산소 부화율이 높아질수록 화염 온도는 높아지기 때문에 CO로부터 CO₂의 생성반응보다는 해리의 발생이 더 큰 영향을 미치는 것으로 사료된다.

4. 결론

자유롭게 전파하는 CH₄/O₂/N₂ 예혼합

화염의 상세한 화학반응 메카니즘을 개발하였고, 이 반응 메카니즘을 근거로 당량비가 1인 화염에서 산소 부화율이 화염 구조에 미치는 영향을 조사하였다. 본 연구에서 제안한 $\text{CH}_4/\text{O}_2/\text{N}_2$ 예혼합 화염에 대한 화학반응 메카니즘을 갖고 계산한 화염속도는 Morgan과 Kane이 수행한 실험 결과와 비교하였고, 산소 부화율이 0.8이하인 조건을 갖는 화염에 대하여 실험결과와 잘 일치한다. 따라서 사용한 반응 메카니즘은 당량비가 1인 예혼합 화염의 화염 구조를 해석할 수 있는 기초자료로 사용할 수 있다. 그러나 당량비가 1이고, 산소부화율이 0.8이상인 조건에서 형성한 화염에 대하여는 좀 더 연구가 필요하다.

$\text{CH}_4/\text{O}_2/\text{N}_2$ 예혼합 화염에서 산소 부화율이 증가함에 따라 화염 속도와 화염 온도는 증가하지만 화염 두께는 감소한다. 일반적으로 2차 반응 영역에서 CO에서 CO_2 로의 변환 반응이 중요하지만 산소 부화율이 높아짐에 따라 이 반응보다 해리의 발생이 중요해진다. 따라서 기연 가스에서 산소 부화율이 증가함에 따라 CO 분율은 크게 증가한다.

후기

본 연구는 한국가스공사 2000년 대학협력과제의 지원으로 수행 중인 연구의 일부입니다. 지원에 감사드립니다.

참고문헌

1. Baukal, C.E., (1998), "Oxygen-enhanced combustion", CRC.

2. "Oxygen-enhanced Combustion System Developed" in Metallurgia, (1998), p. 287.

3. Rogg, B., (1993), "*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.

4. Rogg, B., (1994), "*RUN-1DL: The Universal Laminar Flame and Flamelet Computer Code*", User Manual.

5. GRI-Mech Version 3.0 7/30/99, http://www.me.berkeley.edu/gri_mech/.

6. Kim, T.J., Yetter, R.A., and Dryer, (1994), *Twenty-Fifth Symposium (International) on Combustion*, The Combustion Institute, Pittsburgh, p. 759.

7. Morgan, G.H. and Kane, W.R., (1953), *Fourth Symposium (International) on Combustion*, The Combustion Institute, Pittsburgh, p. 313.

8. Glassman, I., (1996), *Combustion*, 3rd Ed., Academic.

10. Fristrom, R.M and Westenberg, A.A., (1965), *Flame Structure*, McGraw-Hill.

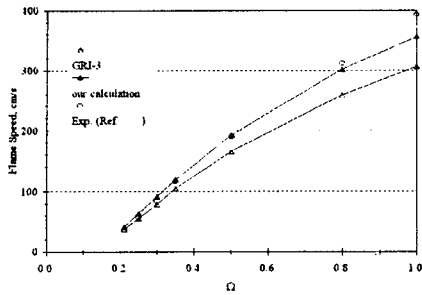


Fig. 1 A comparison of flame speeds for stoichiometric flames burning $\text{CH}_4/\text{O}_2/\text{N}_2$ with respect to the O_2 enrichment level.

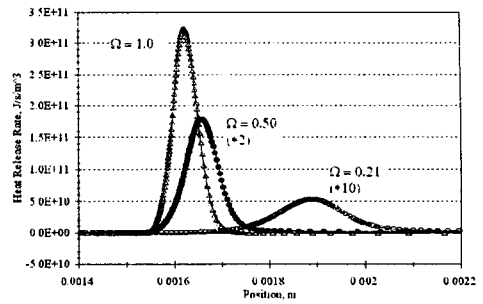


Fig. 4 The heat release profiles of several flames with respect to position.

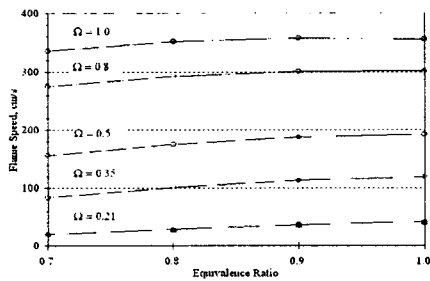


Fig. 2 Flame speeds for flames with the different O_2 enrichment level with respect to equivalence ratio. Symbol (\blacktriangle): measurements due to other investigator.

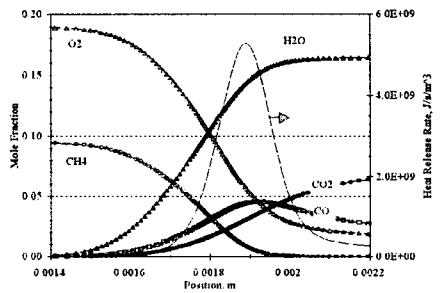


Fig. 5 Species concentration profiles of major species for stoichiometric CH_4/Air flame with respect to position.

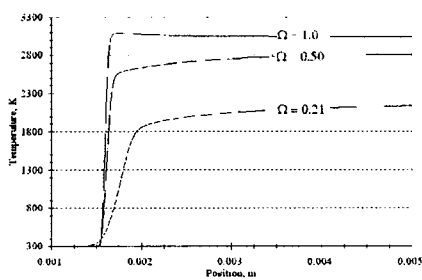


Fig. 3 Spatial temperature profiles for flames with the different O_2 enrichment level with respect to position.

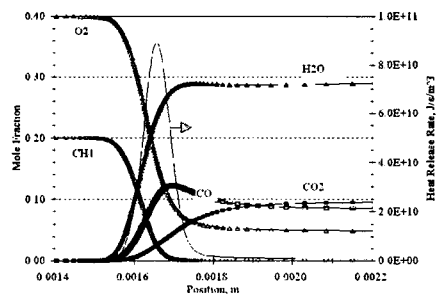


Fig. 6 Species concentration profiles of major species for stoichiometric $\text{CH}_4/\text{O}_2/\text{N}_2$ ($\Omega=0.5$) flame with respect to position.