

## 제트확산화염에서 이산화탄소의 첨가가 매연생성에 미치는 영향 The Effects of Carbon Dioxide as Additives on Soot Formation in Jet Diffusion Flames

지정훈 · 이의주\*†

Jung-Hoon Ji · Eui-Ju Lee\*†

부경대학교 방재연구소, \*부경대학교 안전공학부  
(2010. 10. 28. 접수/2010. 12. 10. 채택)

### 요 약

동축류버너를 이용한 제트확산화염에서 이산화탄소의 첨가가 매연 생성에 미치는 영향을 조사하였다. R-타입 열전대를 이용하여 화염대 및 황염과 청염의 경계온도를 측정하였다. 광감쇄법을 이용하여 화염이 존재하는 국소부분에서의 상대적인 매연 농도( $1 - I/I_0$ )를 측정하였다. 광원으로는 파장이 632.8nm인 He-Ne 레이저가 사용되었고 디텍터를 이용하여 매연입자에 의해 산란과 흡수를 겪은 후의 감쇄된 신호를 직접 측정하였다. 또한, 매연 생성에 있어서의 열적 효과를 알아보기 위해 산화제의 유속을 변화시켜 유속에 의한 영향을 알아보았다. 실험 결과로써, 황염과 청염 각각의 온도는 이산화탄소의 첨가에 따라 점차 낮아졌지만 황염과 청염의 경계온도는 거의 일정하였다. 산화제 측에 이산화탄소를 첨가함에 따라 상대적인 매연 농도는 낮아졌고 이는 산화제의 유속을 증가시켰을 때의 효과와 유사했다. 이것은 화염온도의 저하와 매연입자의 체류시간 감소에 기인하는 것으로 생각된다. 또한 이산화탄소의 첨가가 화염의 불안정성을 야기하여 순수 에틸렌/공기 화염에 비해 화염의 길이가 다소 증가하는 것으로 나타났다.

### ABSTRACT

The effect of carbon dioxide addition on soot formation was investigated in jet diffusion flames in coflow. Flame temperature were measured with R-type thermocouple and the boundary temperature between blue and yellow flame was confirmed. Light-extinction method was introduced for the relative soot density ( $1 - I/I_0$ ) in the in-flame region. He-Ne laser with wave length at 632.8 nm was used for the light source, and the signal attenuated by absorption and scattering was detected directly. Oxidizer velocity effect on soot formation was studied to know that the thermal influence for soot formation. The results showed that the temperature of both blue and yellow flame were decreased according to the dilution of carbon dioxide but boundary temperature was nearly constant. The relative soot density was lower when carbon dioxide was added in oxidizer stream and oxidizer velocity increased. These were caused by the reduction of flame temperature and shorter residence time for soot growth. Also carbon dioxide addition enhanced the instability of jet flames like flickering, so the flame length was a little longer than pure ethylene/air flame.

**Key words** : Soot formation, Light-extinction method, Jet diffusion flames

### 1. 서 론

반 밀폐 공간에서의 화재는 시간이 지남에 따라 제한된 산소 농도 분위기(under ventilated condition)에 의해 특성화 된다. 따라서 부족해진 산소로 인해 불완전 연소가 발생하게 되고 이때 일산화탄소 등 독성물질과

매연(soot) 등 여러 가지 유해물질이 연소생성물로서 배출된다. 화재현장에서 이들 물질은 간접적으로는 피난자의 가시도를 저하시켜 현장에서의 피난을 곤란하게 만들뿐만 아니라 직접적으로는 흡입으로 인해 인체에 치명적인 피해를 입히는 것으로 알려져 있다. 실제로 영국과 미국의 통계자료<sup>1,3)</sup>에 의하면 화재로 인한 사망자 중 약 50% 이상이 매연과 일산화탄소 같은 독성가스의 직접적인 흡입에 의해 사망한 것으로 조사되

† E-mail: ejlee@pknu.ac.kr

었다. 따라서 화재안전을 위해서는 매연생성에 대한 연구가 필수적으로 선행되어야 한다.

연료분자에서 매연입자로의 전개과정을 살펴보면 연료의 열분해, 다중 고리 방향족 탄화수소(Polycyclic Aromatic Hydrocarbon, PAH)의 형성, 초기입자, 응집, 표면성장, 탄화, 응고, 산화와 같은 매우 복잡한 물리화학적 단계로 구성되어 있다.<sup>4-6)</sup> 이러한 각 단계에서 매연의 생성을 제어하기 위한 여러 가지 연구가 수행되고 있는데, 다양한 가스계 첨가제가 매연의 생성에 미치는 영향에 대한 연구<sup>7-9)</sup>들이 조사된 바 있다. 이 가운데 이산화탄소는 연소반응의 생성물로서 화염에 재첨가 된다는 점에서 매우 중요하게 여겨지고 있으며 특히 반 밀폐 공간의 화재에서는 생성된 이산화탄소의 배출이 곤란하므로 이러한 작용이 더욱 두드러진다. 여러 선행연구<sup>10-12)</sup>에서 연료나 산화제 측에 이산화탄소를 첨가하였을 때 매연의 발생량이 감소한 것으로 나타났다. Schug 등<sup>10)</sup>은 연료 측에 이산화탄소를 첨가하였을 때 열적 요인에 의해 매연이 감소하는 경향을 보인다고 주장했고, Du 등<sup>11)</sup>은 이산화탄소의 첨가가 매연의 감소에 미치는 영향을 회석효과, 화학적 효과, 열적 효과로 구분하여 제시하였다. 또한 Liu 등<sup>12)</sup>은 이산화탄소의 첨가에 의한 화학적 효과를 수치해석적 방법을 통하여 연구하였다.

한편 매연의 정량적인 분석을 위해 레이저를 이용한 광계측법이 널리 사용되고 있다. Shaddix 등<sup>13)</sup>은 LII(Laser-Induced Incandescence)를 이용하여 다양한 연료에 대해 안정한 화염 및 명멸(flickering) 화염에서의 매연특성을 비교하였으며 특히 Lee 등<sup>14)</sup>은 광감쇄법(light-extinction method)을 이용하여 작은 풀화재에서 액면의 직경에 따른 매연 특성 등을 조사하였다.

본 연구에서는 동축류 버너를 이용한 제트화산화염에서 산화제 측에 이산화탄소를 첨가하여 이산화탄소가 매연의 생성에 미치는 영향을 실험적으로 조사하였다. 이산화탄소의 첨가가 화염대의 온도에 미치는 영향을 정량적으로 알아보기 위해 R-type 열전대를 사용하여 청염과 황염부분에서 각각 온도를 측정하였다. 또한 매연의 정량적인 분석을 위해 광감쇄법을 이용하여 상대적인 매연농도(relative soot density)를 측정하였고 열적 효과에 의한 매연감소를 규명하기 위해 산화제의 유속이 매연에 미치는 영향을 알아보았다.

## 2. 실험방법

실험에 사용된 버너는 Figure 1에 나타낸 바와 같이 내경이 각각 7.5mm와 20mm인 이중관 실린더형으로

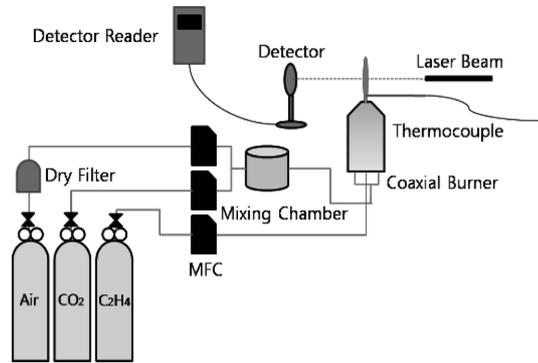


Figure 1. Schematic of experimental setup.

제작하였다. 안쪽 관에서는 연료를 분사하였고 노즐 림의 두께에 의한 영향을 최소화하기 위해 테이퍼(taper) 가공을 하였다. 바깥쪽 관에서는 산화제를 흘려주었고 균질한 흐름을 위해 수축형 노즐로 설계하였다. 또한 버너 내부에 직경이 약 2mm인 비드를 채워 버너 팁에서의 초기유속이 버너 직경 전 구배에 걸쳐 균질하게 하였다. Bubble meter로 검증된 MFC(Mass Flow Controller)를 사용하여 유량을 오차범위 ±1% 미만으로 제어하였으며, 연료로는 순도 99.9%인 에틸렌(C<sub>2</sub>H<sub>4</sub>)을 사용하였고 산화제로는 수분제거용 필터를 거친 압축공기와 비활성기체인 CO<sub>2</sub>를 혼합하여 사용하였다.

Table 1에 본 실험에서의 실험조건을 나타내었다. Case 1은 정상상태의 안정적인 화염모드를 위해 사용되었다. Case 2~4는 실제화재에서의 화염과 유사하도록 화염을 난류화시키기 위해 연료의 유량을 더욱 증가시켰으며, 연료의 유속을 고정시킨 채 산화제의 유속만을 증가시키면서 산화제의 유속이 매연생성에 미치는 영향을 알아보았다.

화염온도는 비교적 안정한 화염조건인 case 1에서 측정되었으며 R-type 열전대를 사용하였고 청염과 황염에서 각각 이산화탄소의 첨가에 따른 온도변화를 측정하였다. 청염에서의 온도는 HAB(Height Above Burner)를 0.5mm 간격으로 연료노즐의 팁부터 청염과 황염

Table 1. Experimental Conditions on the Fuel and Oxidizer Velocities

Cases	Vel <sub>fuel</sub> (cm/s)	Vel <sub>oxi</sub> (cm/s)
1	3.77	62
2	5.66	37
3	5.66	99
4	5.66	185

경계면까지 측정하였고, 황염에서는 HAB = 1.4cm인 지점에서의 주 화염대(primary reaction zone) 온도와 그 안쪽과 바깥쪽으로 각각 1mm 떨어진 지점에서의 온도를 측정하여 이산화탄소의 첨가에 따른 화염대의 온도변화를 알아보았다.

매연의 부피분율을 구하기 위해 광감쇄법을 도입하였다. 광감쇄법은 광원으로부터의 초기 광강도(I<sub>0</sub>)와, 매연영역을 거치면서 매연입자에 의해 흡수와 산란 등의 감쇄를 겪은 후 투과된 강도(I)와의 비(I/I<sub>0</sub>)를 이용하여 매연의 양을 정량적으로 분석하는 방법이다. 비록 원자와 분자 규모의 입자농도측정은 불가능 하지만 비교적 간단히 수 나노미터 이상의 매연 입자 농도를 실시간으로 분석할 수 있다는 장점 때문에 매연입자의 광계측 방법으로 널리 사용되고 있다.<sup>14,15</sup> 광원으로는 He-Ne 레이저(max 5mW at 632.8nm)를 사용하였고 실리콘 타입의 디텍터로 신호를 받아 1분간의 평균을 취하여 감쇄강도를 결정하였다. 또한 화염의 형상을 촬영하기위해 CCD 카메라(30fps)를 사용하였으며 이를 바탕으로 화염길이를 결정하였다.

### 3. 실험결과 및 토의

Figure 2에 case 1에서의 화염형상을 나타내었다. 약 10~20Hz의 범위로 미세한 자체 떨림(self-excitation)이 화염의 끝단(tip)에서 일어났고 이산화탄소의 몰분율이 증가함에 따라 화염의 길이가 조금 길어지며 휘염도(luminosity)가 감소하는 것으로 나타났다.

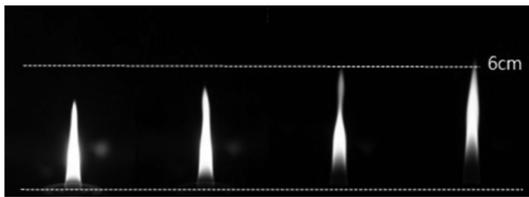


Figure 2. Direct photos of the flames (case 1).

Table 2. Flame Length and Modes

Cases	Flame Length (cm)	Flame Description
1	4	Only flame tip is flickering
2	11	Flickering
3	8	Flickering
4	6	Flickering

연료의 유속이 증가함에 따라서 화염의 길이는 매우 민감하게 늘어났고 명멸과 같은 화염의 불안정정도 증가하였다. 각 조건별 화염의 길이와 형상을 Table 2에 나타내었다. 본 실험조건에서는 산화제의 유속증가에 따라 화염의 길이가 조금 짧아졌고 명멸도 다소 감소하였다.

Case 1에서 매연의 농도가 가장 높게 나타난 HAB = 1.4cm에서 측정된 화염대의 온도를 Figure 3에 나타내었다. 이산화탄소의 첨가에 따라 전체적으로 온도가 감소하는 것으로 나타났는데 이는 첨가된 이산화탄소의 열용량만큼 화염대의 열손실이 발생하는 것에 기인한다고 생각된다. 또한 이산화탄소의 첨가에 따라 최고 온도 지점이 점점 바깥쪽으로 이동하여 X<sub>CO2</sub> = 0.1 부근에서는 초기 주 화염대의 위치에서 1mm 바깥쪽의 온도가 초기 주 화염대 위치에서의 온도보다 더 높아지는 것을 확인할 수 있으며, 이는 이산화탄소의 첨가

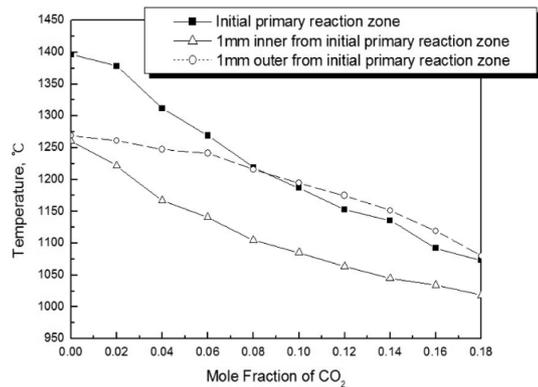


Figure 3. Temperature of primary reaction zone according to the mole fraction of CO<sub>2</sub> (case 1).

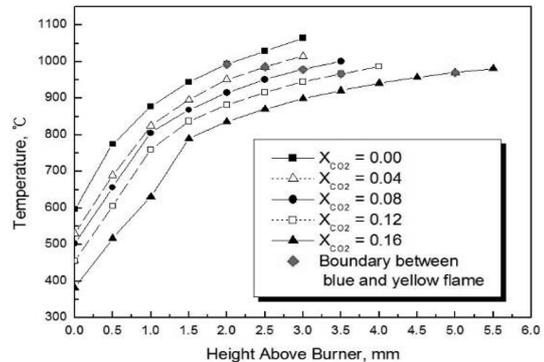


Figure 4. Flame temperature according to HAB in the blue flame region (case 1).

에 의해 화염면이 다소 확장된다는 것을 말해준다.

화염의 베이스부분에 위치한 청염에서의 온도측정 결과를 Figure 4에 나타내었다. 청염에서의 온도는 이산화탄소의 첨가에 따라 최대 200°C 가량 떨어졌으며 감소폭은 이후 황염과의 경계부분까지 거의 유지되었다. 또한 청염과 황염의 경계온도도 약 970~990°C로 비교적 일정하게 유지되었는데 이는 매연의 전구체(precursor)가 특정온도 이상에서만 생성된다는 기존 문헌<sup>16)</sup>의 결과를 잘 대변한다.

매연 양의 정량적인 측정을 위해 광감쇄법을 도입하였고 상대적인 매연 농도(relative soot density,  $1 - (I/I_0)$ )를 비교적 안정한 화염인 case 1에서 측정하여 Figure 5에 나타내었다.

매연농도는 점점 증가하다가 HAB = 1.4cm 지점부터 다시 감소하기 시작한다. 이는 이 높이를 기점으로, 생

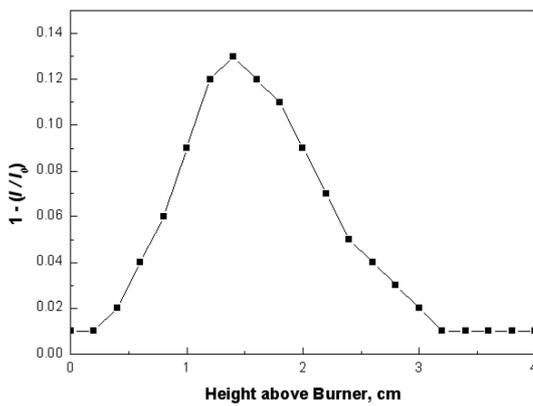


Figure 5. Relative soot density in ethylene/air flame (case 1).

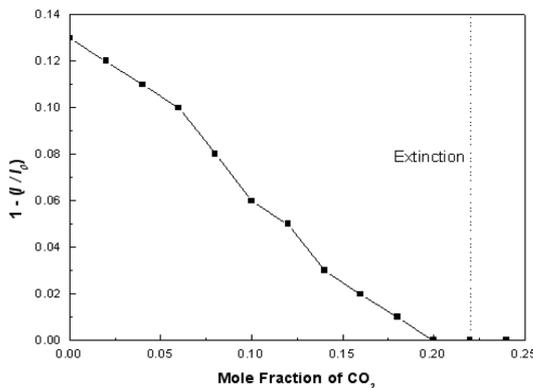


Figure 6. Relative soot density with respect to mole fraction of CO<sub>2</sub> in oxidizer stream (case 1).

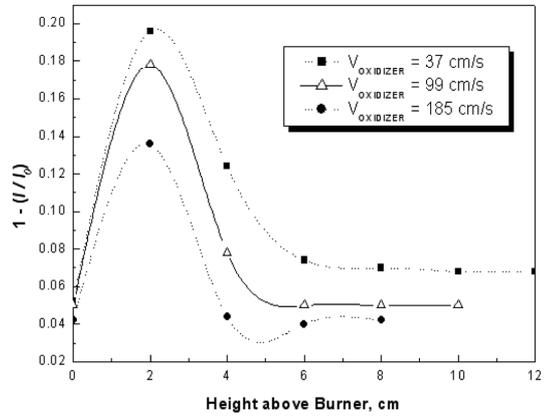


Figure 7. The effect of co-flow velocity on the soot density (case 2-4).

성되는 매연양 보다 산화되어 줄어드는 매연양이 더 많아진 것에 기인한다고 볼 수 있다.

Figure 6는 HAB = 1.4cm에서 이산화탄소의 첨가에 따른 상대적인 매연농도의 변화를 보여준다. 초기부터 소화농도 부근까지 매연농도가 거의 선형적으로 감소하는 것을 볼 수 있으며 이는 앞서 설명한 것과 같이 이산화탄소의 첨가로 인해 화염대의 온도가 감소하면서 매연 전구체의 생성이 제한되기 때문인 것으로 사료된다.

산화제의 유속에 따른 매연농도의 변화를 Figure 7에 나타내었다. 산화제에 이산화탄소를 첨가하지 않은 순수공기 조건임에도 산화제의 유속이 증가함에 따라 매연농도가 감소하는 것을 볼 수 있는데 이는 크게 두 가지로 나누어 생각해 볼 수 있다. 첫째로, 산화제의 유속증가가 화염대의 열손실을 증가시켜 궁극적으로 화염의 온도를 떨어뜨리기 때문인 것으로 볼 수 있다. 따라서 산화제의 유속증가에 의한 화염면의 열손실도 이산화탄소 첨가와 유사한 효과를 나타낼 수 있다. 둘째로, 산화제의 유속증가에 의해 매연입자의 전체적인 체류시간(residence time)이 짧아진 것도 입자의 성장을 저하시켜 매연의 농도를 감소시킨 것으로 생각할 수 있다. 산화제의 유속이 99cm/s 일 때 비해서 185cm/s 일 때 매연의 생성량이 급격히 줄어든 것을 볼 수 있는데 이때가 매연의 전구체 생성에 큰 영향을 미치는 화염온도 임을 알 수 있다. 또한 명멸에 의해 화염의 길이가 다소 변화하는 조건임에도 불구하고 매연 농도의 최대값은 같은 높이(HAB = 2cm)에서 나타났다. 이는 제트확산화염에서 황염의 진동(oscillation)으로 인한 길이 변화로 인해 겉으로 보이는 화염의 길

이가 변해도 화염대의 높이는 거의 변하지 않는다는 것을 말해준다.

#### 4. 결 론

본 논문은 등축류 제트화염을 이용하여 이산화탄소의 첨가가 매연입자의 생성과 성장에 미치는 영향을 정성적정량적으로 연구하였다. 실험결과 해석으로부터 다음과 같은 결론을 얻었다.

1) 본 실험조건에서 산화제 측에 이산화탄소를 첨가함에 따라 명멸과 같은 화염의 불안정성이 증가하였다. 또한 황염의 진동 폭이 커짐으로 인해 전체적인 화염의 길이가 다소 증가하였다.

2) 화염대의 온도는 이산화탄소를 첨가함에 따라 선형적으로 낮아졌으며 이는 이산화탄소의 열용량에 의한 화염대의 열손실에 기인한다고 생각된다. 또한 청염과 황염의 경계지점의 온도는 이산화탄소의 첨가에 관계없이 비교적 일정하게 유지되었는데 이로써 매연의 전구체가 특정온도 이상에서 생성됨을 확인하였다.

3) 산화제 측에 이산화탄소를 첨가함에 따라 화염온도는 점차 감소하였고 이로 인해 상대적인 매연 농도는 낮아졌다. 이는 매연이 특정온도이상에서 발생한다는 기존연구 결과를 잘 대변한다.

4) 산화제의 유속증가에 의해 매연의 농도가 감소하였는데 이는 산화제의 유속증가에 의한 화염면의 열손실로 인해 궁극적으로 화염의 온도가 감소했기 때문으로 생각된다. 또한 유속증가에 의해 매연입자의 체류시간이 감소한 것이 매연의 성장을 제한시킨 것으로 판단된다.

반말폐 공간의 화재상황에서 이산화탄소의 재첨가가 매연생성에 미치는 영향을 규명하기위한 기초연구로써 본 연구에서는 층류확산화염을 대상으로 하였지만, 향후 실제 화재를 모사하기 위해 부력이 지배적인 난류확산화염을 대상으로 한 연구가 필요하다고 사료된다.

#### 감사의 글

이 논문은 2009년도 정부(교육과학기술부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 연구임 (No. 2009-0067043).

#### 참고문헌

1. T.R. Barfknecht, "Toxicology of Soot", Progress in Energy and Combustion Science, Vol.9, pp.199-237

(1983).

2. H.G. Neumann, "Health Risk of Combustion Products; Toxicological Considerations", Chemosphere, Vol.42, pp.473-479(2001).
3. "Toxicological Profile for Polycyclic Aromatic Hydrocarbons", Report of Agency for Toxic Substances and Disease Registry in U.S. Department of Health and Human Services.
4. Bockhorn H. Soot Formation in Combustion, Mechanism and Models. Springer Verlag; Berlin(1994).
5. I. Glassman, "Soot Formation in Combustion Process", Proc. Comb. Inst., Vol.22, pp.295-311(1998).
6. I.M. Kennedy, "Models of Soot Formation and Oxidization", Progress in Energy and Combustion Science, Vol.23, pp.95-132(1997).
7. J.B. Howard and W.J. Kausch, "Soot Control by Fuel Additives", Progress in Energy and Combustion Science, Vol.6, pp.263-276(1980).
8. A.V. Menon, S.Y. Lee, M.J. Linevsky, T.A. Litzinger, and R.J. Santoro, "Addition of NO<sub>2</sub> to a Laminar Premixed Ethylene-Air Flame; Effect on Soot Formation", Proceedings of the Combustion Institute, Vol.31, pp.593-601(2007).
9. H. Guo, K.A. Thomason, and G.J. Smallwood, "On the Effect of Carbon Monoxide Addition on Soot Formation in Laminar Ethylene/Air Coflow Diffusion Flame", Combustion and Flame, Vol.156, pp.1135-1142(2009).
10. K.P. Schug, Y. Manheimer-Timnat, P. Yaccarino, and I. Glassman, "Sooting behavior of Gaseous Hydrocarbon Diffusion Flames and the Influence of Additives", Combustion Science and Technology, Vol.22, pp.235-250(1980).
11. D.X. Du, R.L. Axelbaum, and C.K. Law, "The Influence of Carbon Dioxide and Oxygen as Additives on Soot Formation in Diffusion Flames", Twenty-Third Symposium (International) on Combustion, The Combustion Institute, pp.1501-1507(1990).
12. F. Liu, H. Guo, G.J. Smallwood, and O.L. Gulder, "The Chemical Effects of Carbon Dioxide as an Additives in an Ethylene Diffusion Flame; Implications for Soot and NO<sub>x</sub> Formation", Combustion and Flame, Vol.125, pp.778-787(2001).
13. C.R. Shaddix and K.C. Smyth, "Laser-Induced Incandescence Measurements of Soot Production in Steady and Flickering Methane, Propane, and Ethylene Diffusion Flames", Combustion and Flame, Vol.107, pp.418-452(1996).
14. E.J. Lee, C.S. Ahn, H.J. Shin, K.C. Oh, and U.D. Lee, "Smoke Characteristics of a Small Scale Pool

- Fire”, 한국화재소방학회, Vol.19, pp.58-63(2005).
15. J.F. Widmann, J.C. Yang, T.J. Smith, S.L. Manzello, and G.W. Mulholland, “Measurement of the Optical Extinction Coefficients of Post-Flame Soot in the Infrared”, Combustion and Flame, Vol.134, pp.119-129(2003).
16. K.P. Schug, Y. Manheimer-Timnat, P. Yaccarino, and I. Glassman, “Sooting Behavior of Gaseous Hydrocarbon Diffusion Flames and the Influence of Additives”, Combustion Science and Technology, Vol.22, pp.235-250(1980).