

[Research Paper]

## 등유-산소 층류 확산화염의 길이 변화 특성에 관한 실험적 연구

이수한 · 이종원\* · 박설현\*\*†

조선대학교 기계시스템공학과 대학원생, \*한국항공우주연구원 융합기술연구본부 연구원,

\*\*조선대학교 기계시스템미래자동차공학부 교수

## Experimental Investigations of the Characteristics of the Length Variation of Kerosene–Oxygen Laminar Diffusion Flames

Soo-Han Lee · Jong won Lee\* · Seul Hyun Park\*\*†

Graduate student, Dept. of Mechanical System & Automotive Engineering, Chosun Univ.,

\*Researcher, Future & Converging Technology Research Division, Korea Aerospace Research Institute,

\*\*Professor, Dept. of Mechanical System & Automotive Engineering, Chosun Univ.

(Received October 29, 2018; Revised November 27, 2018; Accepted November 30, 2018)

### 요 약

등유-산소 동축류 확산화염 버너에서 연료의 유량, 버너 외측에 공급되는 산화제의 온도, 불활성가스로 희석된 산화제의 특성이 화염 길이 변화 특성에 미치는 영향을 고찰해 보았다. 각 실험 조건에서 생성된 동축류 확산 화염은 쉐리렌 카메라를 이용하여 촬영한 뒤 디지털 이미징 프로세싱 기법을 적용하여 그 길이를 측정하였다. 실험결과를 통해 측정된 화염길이는 등유 연료의 유량과 산화제의 온도에 비례하여 증가하는 것을 확인할 수 있었다. 아울러, 산화제에 첨가되는 불활성가스의 희석량이 증가할수록 화염 길이는 증가하는 하였고, 특히 동일한 산소 농도에서 질소가스로 희석된 경우가 헬륨가스로 희석된 경우에 비해 화염길이가 큰 폭으로 증가하였다. 이는 유체의 점성 저항에 영향을 미치는 불활성가스의 희석이 화염 길이 변화에 영향을 미치는 주요 메커니즘이기 때문으로 판단된다.

### ABSTRACT

The flame length in coaxial diffusion flame configurations was investigated when the kerosene fuel flow rate, temperature of the oxidizer stream, and inert gas concentrations in the oxidizer stream were varied. The diffusion flame was photographed using a Schlieren camera under each of the experimental conditions and the obtained images were then digitized to measure the flame length. The measured flame lengths were proportional to the kerosene fuel flow rate and increased with increasing temperature of the oxidizer stream. In addition, increases in the inert gas concentration in the oxidizer stream resulted in stretching of the flame. In particular, the flame was further elongated in the oxidizer steam diluted with helium gas. Inert substitutions in the oxidizer stream that can adjust the viscous drag are believed to be one of the important mechanisms that affect the length of the coaxial diffusion flames.

**Keywords** : Coaxial diffusion flame, Flame length, Viscosity, Froude number

### 1. 서 론

플화재는 액체 연료의 종류, 연료의 감소율(증발율), 연료 표면으로 복사 열전달 등의 분석을 통해 화염길이, 화염 진동과 같은 단일 화재 특성을 체계적으로 고찰하기 위해 서 일반적으로 주로 사용되는 되는 대표적인 확산화염이

다. 하지만, 플화재 실험의 경우 주어진 연소 환경에 따라 증발하는 액체 연료 감소율이 결정되기 때문에 이로 인해 결정되는 화염길이, 화염온도, 각종 화학종 생성, 복사 열전달 등의 특성을 체계적으로 분석하기 힘든 단점이 존재 한다. 이에 반해 동축류 확산버너의 경우 실험장치도 비교적 간단하고 확산화염의 길이와 안정성과 같은 특성에 영

† Corresponding Author, E-Mail: [isaac@chosun.ac.kr](mailto:isaac@chosun.ac.kr), TEL: +82-62-230-7949, FAX: +82-62-230-7171

© 2018 Korean Institute of Fire Science & Engineering. All right reserved.

향을 미치는 파라미터들을 비교적 용이하게 제어할 수 있기 때문에 관련된 이를 이용한 연구<sup>(1-5)</sup>가 광범위하게 진행되어 오고 있다.

동축류 확산화염 버너에서 연료나 산화제의 유속의 증감은 화염 길이에 직접적으로 영향을 줄 수 있고 화염의 부상이나 화염 날림을 유발 할 수 있다. 따라서 확산 화염 길이의 변화는 버너의 안정성을 평가하는 중요한 요소이며 이에 대한 연구는 꾸준히 진행되어 왔다. 특히 Ropper<sup>(1-3)</sup>는 다양한 버너의 형상(원형, 직사각형, 슬롯, 곡선형 슬롯)에서 확산화염의 길이의 변화를 운동량과 부력의 관점에서 설명하였다. 아울러 동축류 확산 화염의 길이가 길어지면 증가하는 부력의 효과로 인해 화염의 불안정성이 더욱 증가하며 복사 열전달의 증가로 인해 매연 발생에도 영향을 미치는 것으로 알려져 있다<sup>(4)</sup>. 동축류 확산화염의 안정성은 연료에 따라서도 다른 양상을 보이는 것으로 보고된 바 있으며, 이는 화염 내부에서 생성되는 매연의 농도가 상이하고 이로 인한 화염의 온도의 변화가 부력에 영향을 미쳐 화염 길이나 형상에 영향을 주기 때문으로 알려져 있다<sup>(4,5)</sup>. 김준홍 등<sup>(6)</sup>은 프로판 동축류 버너에서 부력 효과에 의한 화염 형상 변화를 연구하였고, 화염의 온도가 상승하여 부력의 영향이 커지는 경우 화염 길이는 증가하지만 질량보존의 원리에 의해 화염 폭은 급격하게 줄어들음을 확인하였다. Choudhri 등<sup>(7)</sup>은 동축류 버너에서 수소-탄화수소(메탄, 프로판) 하이브리드 연료의 연소특성을 바탕으로 버너 출구의 운동량과 화염 복사 열손실의 변화를 계산하고 이를 바탕으로 화염 길이 변화를 설명한 바 있다. 이와 같이 대부분의 선행연구에서는 확산화염의 길이 변화를 유속 변화에 따른 운동량의 증감과 화염온도의 변화에 따른 부력 및 복사 열손실의 관점에서 설명하고 있다. 본 연구에서는 선행 연구결과와는 달리 버너 외측에 공급되는 산화제 조성 변경을 통해 달라지는 열·물질전달의 변화가 화염 길이변화에 미치는 영향을 고찰해 보고자 하였다. 이를 위해 동축류 버너 내측에 공급되는 연료로는 가정의 난방에서부터 발전소의 전기 생산에 이르기 까지 다양한 분야에서 사용되고 있는 등유를 사용하였다. 아울러, 동축류 버너 외측에 공급되는 산소를 열·물질전달 특성이 확연히 구분되는 불활성가스(질소와 헬륨)로 희석시켜 산소 몰농도 변화에 따른 화염의 길이 변화를 살펴보았다.

## 2. 실험장치 및 방법

Figure 1은 등유-산소 동축류 확산화염을 가시화하기 위해 본 연구에서 사용된 실험장치의 개략도이다. 그림에서 볼 수 있는 바와 같이 실험 장치는 크게 액체연료 증발 장치와 동축류 버너, 가시화를 위한 쉐리렌 장치 및 카메라로 구성되어 있다. 액체연료 증발장치는 Bronkhorst사의 등유 전용 증발기를 사용하여 기화되어 동축류 버너 내측에 공급되는 연료의 유량을 제어하였다. 증발장치는 등유를 포

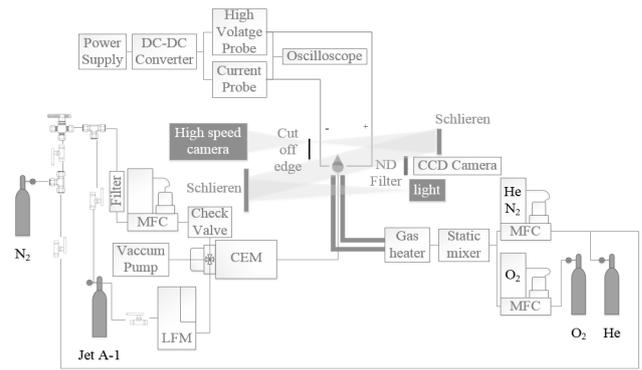


Figure 1. Schematics of the experimental setup and configurations.

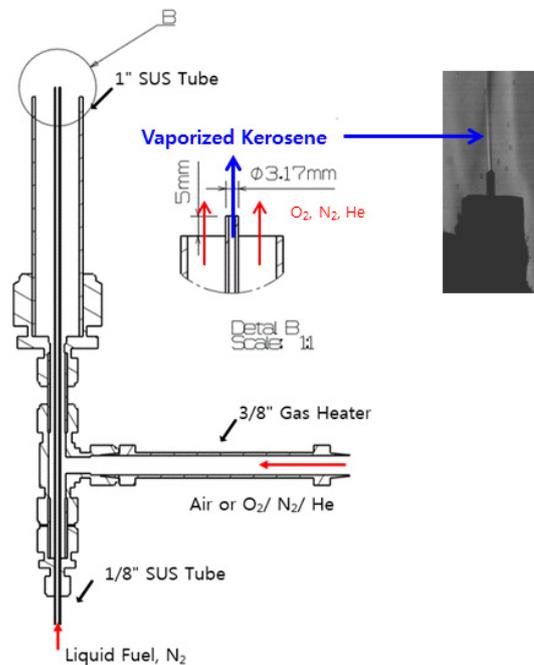


Figure 2. Cross-sectional view of the coaxial diffusion burner used in the present study.

화온도 이상으로 가열하여 증발시키는 히팅 시스템과 등유 전용 액체 질량 유량 조절기(Mass flow controller, MFC)와 캐리어가스인 질소 전용 질량 유량 조절기로 구성되어 있다. 대기압 환경에서 이 증발기는 30 g/h으로 공급되는 액체등유를 응축과정이 없이 안정적으로 기화시킬 수 있도록 설계되어 있다. 버너 내측에 공급되는 등유는 액체 MFC에서 설정된 유량으로 증발기로 공급되며 포화온도이상으로 가열되어 완전히 기화되고 질소 전용 MFC에서 공급된 캐리어 가스와 혼합되어 동축류 버너의 내측에 전달된다. 버너 내측을 통해 토출되는 등유는 점화 직전 쉐리렌 가시화장치를 이용하여 정상상태로 기화되고 있는지 여부를 확인한 뒤 실험을 수행하였다.

Figure 2는 본 연구를 통해 제작된 동축류 버너의 단면도이다. 동축류 버너 내측과 외측의 내경은 각각 1.8 mm와 25.2 mm이며, 내측과 외측의 사이에는 산화제-불활성가스

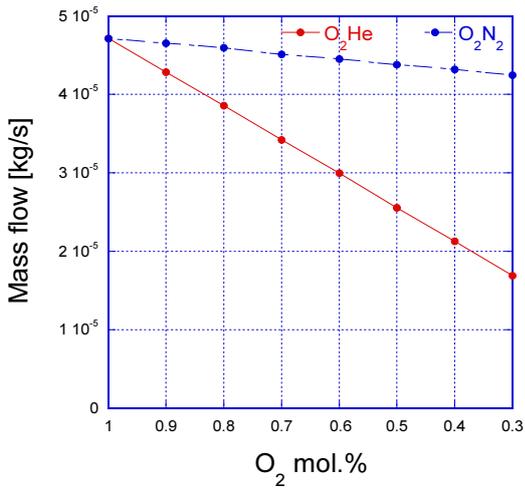


Figure 3. Measured mass flow rate plotted versus the O<sub>2</sub> mole concentration in N<sub>2</sub> or He.

의 균일한 유동을 돕기 위해 지름이 6.0 mm인 스테인리스 비드로 채워져 있다. 버너의 외측에는 산소와 불활성가스(질소, 헬륨)가 원활하게 공급될 수 있도록 별도의 가스 라인이 연결되어 있다. 이때 산소와 불활성가스는 정적 믹서(Static mixer)를 이용하여 충분히 혼합될 수 있도록 교반하였고, 배관용 히터를 통해 충분히 가열한 뒤 버너 외측에 공급하였다. 아울러 버너 내측으로 공급되는 등유가 버너 팁에 도달하기 전 액화하는 것을 방지하기 위해서 버너의 외측 및 배관에는 선 히터를 감아 실험이 실시되기 전부터 가열하였고, 스테인리스 비드의 가열을 통해 버너 내측도 동시에 가열될 수 있도록 하였다. 증발된 등유와 산소-불활성가스가 버너 내측과 외측에 각각 공급되면 스파크 점화기를 이용하여 확산화염을 생성시켰고, 생성된 화염이 부상하거나 날리지 않도록 연료와 산소-불활성가스의 유량을 최적화 하였다. 주어진 조건에서 생성된 확산화염은 쉘리

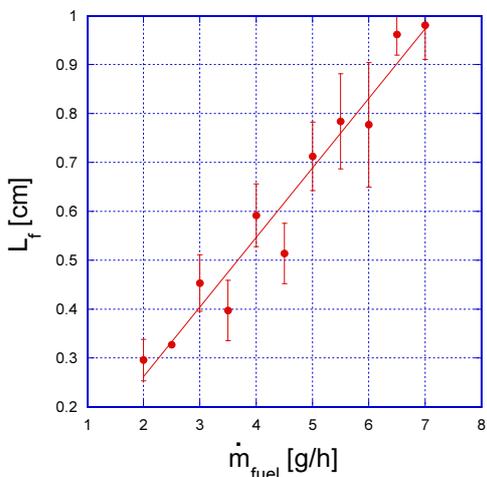
렌 장치의 초고속 카메라를 통해 PC에 이미지로 저장하였고, 디지털 이미지 프로세싱 기법을 이용하여 화염길이를 측정하였다.

앞서 언급한 바와 같이 본 연구에서는 연료 유량, 버너 외측에 공급되는 동축류 가스 온도, 불활성가스로 희석된 동축류의 산소 몰농도 변화에 따른 화염길이의 영향을 고찰하고자 하였다. 이를 위해 동축류 가스의 온도는 버너 외측에 연결된 배관 히터를 이용하여 등유의 포화온도인 433 K 이상부터 약 565 K까지 가열하였고, 점화 직전 버너 팁에서 K type 열전대를 이용하여 측정하였다. 가열된 산소-불활성가스의 조성은 몰분율 기준으로 식(1)을 통해 계산하였고, 산소의 농도(몰농도)가 100%에서 30%까지 조정될 수 있도록 불활성가스(질소, 헬륨)를 이용하여 희석하였다.

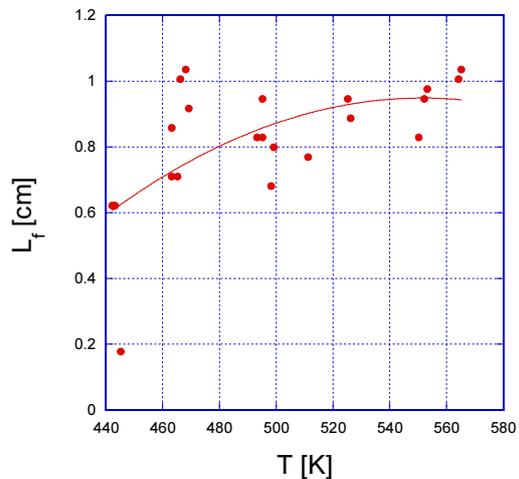
$$O_2 \text{ mol. \%} = \frac{Y_{O_2}}{Y_{O_2} + Y_{N_2 \text{ or He}}} \quad (1)$$

여기서 Y는 각 가스의 몰분율, 아래첨자 O<sub>2</sub>는 산소, N<sub>2</sub>는 질소, He는 헬륨 가스를 각각 의미한다.

Figure 3은 동축류 버너 외측에 산소만 공급되는 경우와 질소와 헬륨가스로 희석되어 산소의 몰농도가 낮아지는 경우 각 조건에 해당되는 혼합 가스의 질량유량을 도시한 그래프이다. 본 연구에서는 산소를 불활성가스로 희석할 때 증가하는 혼합 가스의 질량유량으로 인해 유발될 수 있는 화염 날림(Flame blowoff)을 방지하기 위해 산소 몰농도는 동일하게 유지하면서 전체 유량을 감소시켜 실험을 수행하였다. 그림에서 관찰할 수 있는 바와 같이 동축류 버너 외측에 공급되는 산소를 헬륨가스로 희석하는 경우 질소로 희석하는 경우에 비해 동일한 산소 농도조건에서 질량유량의 감소 폭이 훨씬 더 큰 것을 볼 수 있다. 이는 질소가스의 밀도가 헬륨가스에 비해 훨씬 크기 때문이다.



(a) Flame length vs. fuel mass flow rate



(b) Flame length vs. co-flow temperature

Figure 4. Measured flame length plotted versus the fuel mass flow rate and co-flow temperature at 100% O<sub>2</sub> mole concentration.

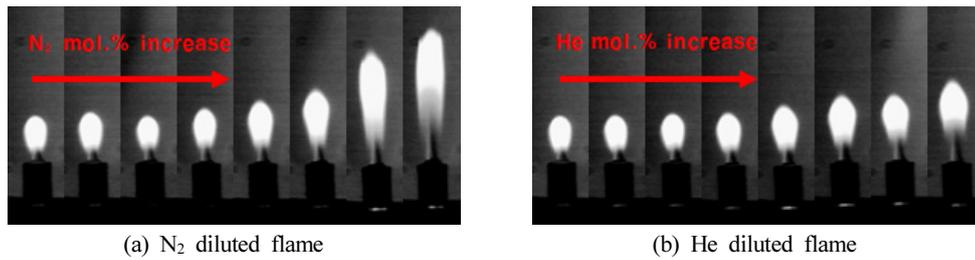


Figure 5. Images of co-axial diffusion flame influenced by inert gas substitutions.

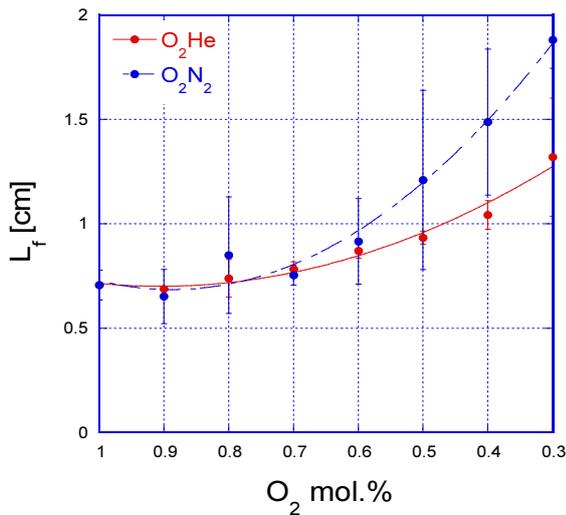


Figure 6. Measured flame length as a function of the O<sub>2</sub> mole concentration in N<sub>2</sub> or He.

### 3. 실험결과 및 고찰

등유-산소 동축류 확산화염의 기본적인 특성을 고찰해 보기 위해 연료유량과 동축류 버너 외측에 공급되는 산소 가스 온도를 증가시키고, 이때 달라지는 화염 길이를 측정하여 Figure 4에 도시하였다. 그림에서 볼 수 있는 바와 같이 버너의 내측으로 공급되는 등유의 질량유량과 산소가스의 온도가 증가함에 따라 화염길이도 증가하는 것을 관찰할 수 있다. 이 실험 결과는 Ropper<sup>(1)</sup>가 원형 층류 확산화염의 길이,  $L_f$ 를 계산하기 위해 제시한 식(2)에 포함되어 있는 각종 파라미터들의 증감의 상관관계로도 비교적 잘 설명할 수 있다.

$$L_f = \frac{Q_F(T_\infty/T_f)^{0.67}}{4\pi D_\infty \ln(1+1/s)} \quad (2)$$

식(2)에서  $Q_F$ 는 연료의 유량,  $T_\infty$ 는 동축류의 온도,  $T_f$ 는 화염의 온도,  $D_\infty$ 는 산소-불활성가스 간 확산계수,  $s$ 는 이론 공연비이다. 식(2)를 통해 예측할 수 있는 바와 같이 화염 길이와 연료 유량 간에는 선형적 비례 관계가 성립하며 실험 결과에서도 이러한 상관 관계를 확인할 수 있다. 다만,

연료 유량이 증가하면 분모항의 이론 공연비에 영향을 줄 수 있지만, 자연 로그항에 포함되어 변화량 대비 화염 길이에 대한 영향은 무시할만한 수준으로 판단된다. 아울러, 식(2)의 동축류 온도와 화염온도 비의 지수관계가 화염 길이에 미치는 영향은 Figure 4(b)의 실험결과에도 잘 반영되어 있음을 확인할 수 있다.

동축류 확산화염의 길이는 식(2)에서 제시되어 있는 바와 같이 산소-불활성가스 간 확산계수,  $D_\infty$ 에 큰 영향을 받을 수 있다. Figure 5는 동축류 버너 외측에 순수 산소 가스만이 공급될 때(그림에서 가장 왼쪽)부터 Figure 3에서 보여 준 바와 같이 점차 질소와 헬륨가스의 질량 유량을 늘려 산소가스가 희석될 때 생성된 화염을 촬영한 이미지이다. 그림에서 볼 수 있는 바와 같이 질소가스를 이용하여 희석한 경우 헬륨가스로 실험을 수행한 경우에 비해 희석량이 증가함에 따라 화염길이가 훨씬 길어지는 경향을 확인할 수 있다.

Figure 6는 Figure 5에 제시된 화염 이미지를 촬영하기 위해 적용된 실험 환경과 동일한 조건에서 5회 반복 실험을 수행하여 측정된 화염 길이를 도시한 그래프이다. 그림에서 볼 수 있는 바와 같이 동축류에 공급되는 산소 농도가 비교적 높은 경우(70% 이상인 경우) 불활성가스 첨가가 화염길이 변화에 미치는 영향은 크지 않고, 산소 농도가 60% 이하로 떨어지는 경우 본격적인 영향이 나타나는 것을 확인할 수 있다. 특히, 불활성가스의 농도가 높아짐에 따라 화염길이는 헬륨가스로 희석된 경우에 비해 질소가스로 희석된 경우 훨씬 더 길어진다.

본 연구에 적용된 실험 조건과 같이 Froude 수  $\gg 1$ 인 경우 층류 확산 화염 길이는 부력의 영향보다는 연료 주위에 공급되는 산화제 가스의 운동량에 의해 지배적인 영향을 받는 것으로 알려져 있다<sup>(1-3,8)</sup>. Figure 7은 공급되는 가스 운동량의 변화가 화염 길이 변화에 미치는 영향을 고찰해 보기 위해 동축류 버너 외측에 공급되는 혼합가스의 Reynolds 수를 도시한 그래프이다. Reynolds 수는 식(3)을 이용하여 계산하였으며, 산소-질소, 산소-헬륨 혼합가스의 점도는 식(4)를 이용하여 계산하였다.

$$Re = \frac{4\dot{m}}{\mu\pi d} \quad (3)$$

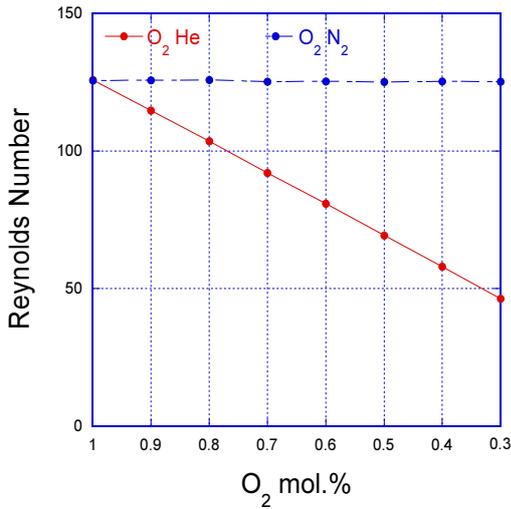


Figure 7. Calculated Reynolds number and viscosity plotted versus the O<sub>2</sub> mole concentration in N<sub>2</sub> or He.

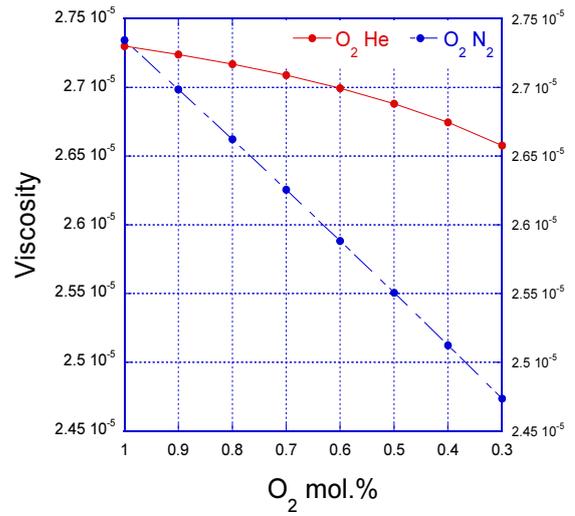


Figure 8. Calculated viscosity plotted versus the O<sub>2</sub> mole concentration in N<sub>2</sub> or He.

$$\mu_{ga} = \frac{\sum_{i=1}^2 y_i \mu_i \sqrt{M_{y_i}}}{\sum_{i=1}^2 y_i \sqrt{M_{y_i}}} \quad (4)$$

식(3)과 (4)에서  $m$ 은 혼합 가스의 질량유량,  $\mu$ 는 혼합 가스의 점성,  $d$ 는 버너의 외측 직경,  $M$ 은 가스의 분자량, 아래첨자  $i$ 는  $i$ 번째 가스를 의미한다. 그림에서 볼 수 있는 바와 같이 산소-질소 혼합가스의 Reynolds 수는 산소 몰농도와 상관없이 일정 하지만 산소-헬륨 혼합가스의 경우 헬륨 가스의 희석량이 증가하여 산소 몰농도가 낮아질수록 Reynolds 수는 급격히 감소한다. 산소 몰농도의 감소는 이론 공연비에 영향을 미치지 때문에 헬륨나 질소가스로 희석된 경우 모두 화염길이를 증가시킬 수 있다. 하지만, 산소-헬륨 혼합가스에 비해 상대적으로 산소-질소 혼합가스의 높은 운동량(관성력)이 화염 길이에 영향을 미치는 것으로 판단된다. 아울러 Table 1에 정리되어 있는 바와 같이 질소가스에 비해 헬륨가스의 높은 확산계수는 식(2)를 통해 예측할 수 있는 바와 같이 화염 반경방향으로의 물질 확산을 증가시켜 화염 길이를 더욱 감소시킬 수 있다<sup>(8)</sup>. 식 (2)에 포함되어 있는 산소-헬륨 혹은 산소-질소 Binary 확산계수는 산소 몰농도의 증감에 의해 직접 영향을 받지 않고 일정한 값을 유지하므로, 동축류의 산소 몰농도가 감소할 때 동일한 조건, 가령 산소 몰농도가 각각 동일한 60 - 30% 조건에서 헬륨보다 질소 희석된 경우 화염 길이가 훨씬 더 길어지는 현상은 단순히 Binary 확산계수의 차이로만으로는 충분히 설명할 수 없다.

Figure 8에는 불활성가스의 희석량이 화염길이에 미치는 영향을 고찰해 보기위해서 산소 몰농도의 변화에 따라 달라지는 점성계수를 식(4)를 이용하여 계산하고 그 결과를 도시하였다. 동축류에 공급되는 산소의 몰농도가 동일한 경우라도 헬륨가스에 비해 질소가스의 희석량이 증가하면

혼합가스의 점성이 훨씬 더 큰 폭으로 감소하는 것을 관찰할 수 있다.

결국 동축류에 공급되는 혼합가스의 질량유량(Figure 3)이 줄어들면 운동량(관성력)도 감소로 인해 화염길이는 작아져야 하지만 Figure 8에서 관찰할 수 있는 바와 같이 동시에 줄어드는 점성 저항(Viscous drag)으로 인해 화염길이는 오히려 증가할 수 있고, 산소-헬륨 혼합가스 대비 산소-질소 혼합가스의 점성 저항이 훨씬 더 큰 폭으로 줄어들기 때문에 질소가스로 희석되는 경우 화염길이가 크게 증가하는 것으로 판단된다.

### 4. 결 론

본 연구에서는 등유-산소 층류 확산화염 길이에 관한 실험을 수행하였으며 특히 확산화염 동축류 버너의 외측에 공급되는 산소가스에 확산 계수의 차이가 극명한 질소와 헬륨가스를 공급하여 희석하고 그 영향을 고찰해 보았다. 본 연구를 통해 도출된 결과를 요약하면 다음과 같다.

- 1) 공급되는 연료(등유)의 질량유량이 증가하면 화염길이도 선형적으로 증가하였으며, 동축류에 공급되는 산소-불활성가스의 온도가 상승함에 따라 화염길이도 증가하지만 일정온도 이상에서는 길이변화가 작아짐을 확인하였다.
- 2) 동축류에 공급되는 산소가스에 헬륨이나 질소가스를 이용하여 희석시킨 경우 산소 몰농도 감소로 인해 동일하게 화염길이가 길어지지만, 질소가스를 이용하여 희석시킨 경우 헬륨가스를 이용한 경우에 비해 동일한 산소 농도에서 화염길이가 더 길어졌다. 이는 산소-질소 혼합가스가 산소-헬륨가스에 비해 더 큰 운동량(관성력)을 발생시키고, 반경 방향으로 물질확산을 억제하기 때문으로 판단된다.
- 3) 본 연구에서는 산소가스에 불활성가스를 추가로 공급하여 희석시키는 경우 화염 부상과 화염 날림이 발생할 수

있어, 혼합가스의 질량을 줄이면서 실험을 수행하였다. 이는 동축류에 공급되는 혼합가스의 운동량(관성력)을 감소시켜 화염길이를 작게 할 수 있지만, 오히려 측정된 화염길이는 증가하였으며 질소로 희석시키는 경우 헬륨으로 희석시키는 경우에 비해 산소농도가 감소함에 따라 더 큰 증가율을 보였다.

4) 산소가스에 불활성(질소, 헬륨)가스를 첨가하는 경우 점성 저항의 감소를 유발시켜 화염길이는 증가할 수 있으며, 특히 질소가스를 첨가하는 경우 점성 저항의 감소가 헬륨가스를 첨가하는 경우에 비해 훨씬 커 화염길이는 더욱 증가하는 것으로 판단된다.

## 후 기

본 연구는 2017년도 정부(미래창조과학부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 기초 연구 사업(No. 2017R1A2B4006194)이며 아울러 한국전력공사의 2018년 착수 사외공모 기초연구(개별)에 의해 지원되었음(과제번호: R18XA06-64).

## References

1. F. G. Roper, "The Prediction of Laminar Jet Diffusion Flame Sizes: Part I. Theoretical Model", *Combustion and Flame* 29, pp. 219-226 (1977).
2. F. G. Roper, C. Smith and A. C. Cunningham, "The Prediction of Laminar Jet Diffusion Flame Sizes: Part II. Experimental Verification", *Combustion and Flame* 29, pp. 227-234 (1977).
3. F. G. Roper, "Laminar Diffusion Flame Sizes for Curved Slot Burners Giving Fan-shaped Flames", *Combustion and Flame* 31, pp. 251-258 (1978).
4. M. Chahine, P. Gillon, B. Sarh, J. N. Blanchard and V. Gilard, "Stability of a Laminar Jet Diffusion Flame of Methane in Oxygen Enriched Air Co-jet", Chia Laguna, Cagliari, Sardinia, Italy (2011).
5. J. H. Ji and E. J. Lee, "The Effects of Carbon Dioxide as Additives on Soot Formation in Jet Diffusion Flames", *Journal of Korean Institute of Fire Science & Engineering*, Vol. 24, No. 6, pp. 170-175 (2010).
6. J. H. Kim, M. K. Shin and S. H. Chung, "Buoyancy Effect on Stable and Oscillating Lifted Flames in Coflow Jets for Highly Diluted Propane", *Kosco Symposium*, pp. 9-16 (2001).
7. A. R. Choudhuri and S. R. Gollahalli, "Combustion Characteristics of Hydrogen-hydrocarbon Hybrid Fuels," *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol. 35, Issue 6, pp. 2556-2565 (2010).
8. P. B. Sunderland, B. J. Mendelson, Z. G. Yuan and D. L. Urban, "Shapes of Buoyant and Nonbuoyant Laminar Jet Diffusion Flames," *Combustion and Flame* 116.3, pp. 376-386 (1999).