



# R245fa(C<sub>3</sub>H<sub>3</sub>F<sub>5</sub>)/CH<sub>4</sub>/O<sub>2</sub>/N<sub>2</sub> 혼합물을 사용한 외부로 전파하는 구형화염의 특성에 관한 연구: 부력의 영향에 관한 고찰

A study on characteristics of outwardly propagating spherical flames of R245fa(C<sub>3</sub>H<sub>3</sub>F<sub>5</sub>)/CH<sub>4</sub>/O<sub>2</sub>/N<sub>2</sub> mixtures: consideration on buoyancy effect



### 2017년 8월

한국해양대학교 대학원

## 기관시스템공학과

## 신 우 중

## 본 논문을 신우중의 공학석사 학위논문으로 인준함.



## 한국해양대학교 대학원



List of Tables	 iii
List of Figures	 iv
Abstract	 vij

1. 서 론

1.1 연구배경	1
1.2 외부로 전파하는 구형화염 실험	3
1.3 연구목적	4

- 2. 실험장치
   5

   2.1 연소장치
   6

   2.2 시각화 및 기타 장치
   7
- 3. 실험결과 및 분석
   9

   3.1 구형화염의 특징
   12

   3.2 외부로 전파하는 구형화염의 3가지 거동
   14

   3.3 관찰된 부상거동의 구분
   17

   3.4 준정상상태 구간의 선정
   19

   3.5 외부로 전파하는 구형화염의 스트레치 없는 화염전파속도
   26

#### 4. 부력의 영향

4.1 부력 영향에 관한 고찰	35
4.2 정확한 스트레치 없는 화염전파속도의 계산	
4.2.1 r1에서 부력의 영향	40
4.2.2 r1에서 부력 영향의 제거	43

#### 5. 결과의 검증 및 기타

Collection @ kmou

5.1 화염전파속도의 검증 및 불확실성 ..... 48

— i —

5.2	준정상상태	범위에	관한	고찰	 52
5.3	실용적 측면	의 기대	효과	•••••	 55

6.	결론		58
----	----	--	----

참고문헌	60
------	----





## List of Tables

Table 1 Experiment condition of R245fa/CH4/O2/N2 mixture at R0=0.30  $\cdots$  11Table 2 Total GWP ratio of R245fa and CH4 mixed fuel  $\cdots$  56





### List of Figures

Fig. 1 Schematic of the experimental setup ------ 5 Fig. 2 Schematic of the cylindrical combustion chamber with central spark **Fig. 4** Schlieren images for certain time intervals for  $R_R$ =0.30, 0.90 and Fig. 5 Schematic of buoyancy effect on outwardly propagation spherical flames ······· 16 Fig. 6 Definitions of characteristic lengths for the four directions and risen length $L_r$  of the spherical flame  $\sim 18$ Fig. 7 Different regimes for the experimental conditions of  $R_R$  vs  $R_O$  ... 18 Fig. 8 Profiles of time and flame radius (a)  $R_R$ =0.00, 0.40 at  $R_O$ =0.15 (b)  $R_R$ =0.00, 0.60 and 0.75 at  $R_O$ =0.20 21 (c)  $R_R$ =0.60, 0.90 and 0.95 at  $R_O$ = Fig. 9 The displacement speed of the stretched flame front as a function Fig. 10 Profiles of  $r_{1-4}$  according to time for  $R_R$ =0.00, 0.80 and 0.95 at R<sub>0</sub>=0.30 ------ 25 **Fig. 11** The displacement speed according to stretch rate for various  $R_R$ conditions in data range  $1 < r_t, r_1 < 4cm$  (a)  $R_0$ =0.15 (b)  $R_0$ =0.20 (c)  $R_0$ = Fig. 12 The unstretched flame speed according to the variation in  $R_R$  at Fig. 13 Characteristics of the Markstein length according to the variation in  Fig. 14 The displacement speed according to stretch rate for various  $R_R$ conditions in data range  $25\% < r_f < 4cm$  (a)  $R_O$ =0.15 (b)  $R_O$ =0.20 (c)  $R_O$ = Fig. 15 The unstretched flame speed according to the variation in  $R_R$  and  $R_{O}$  for comparison in each data range ------ 34 Fig. 16 Characteristics of the Markstein length according to the variation in Fig. 17 Schlieren images for the experimental conditions of  $(R_0, R_R)$ =(0.20, 0.70),  $(R_O, R_R)$ =(0.20, 0.75) and  $(R_O, R_R)$ =(0.40, 1.00). (a)  $r_f = 1 cm$ , (b) Fig. 18 Schlieren images for showing the difference between theoretical Fig. 19 The risen length of the flame  $L_r$  in terms of time t for the Fig. 20 The measured acceleration vs. time in drop tower ...... 42 Fig. 21 The risen length of the flame  $L_r$  in terms of time for the free drop and each regime 42 FIg. 22 The displacement speed according to stretch rate for various  $R_R$ conditions using initial upper flame radius  $r_1$  (a)  $R_0=0.15$  (b)  $R_0=0.20$  (c) Fig. 23 The unstretched flame speed according to the variation in  $R_R$  and  $R_o$  for comparison of each characteristic flame radius ------ 47 Fig. 24 The unstretched flame speed according to the variation in  $R_R$  and Fig. 25 The error of calculated unstretched flame speed with simulation and experiment using each characteristic flame radius ...... 50 Fig. 26 Comparison of the uncertainty in the measurement of unstretched 

Collection @ kmou

– v –

Fig.	27	Schlieren images for showing deformation of flame front as
prop	aga	ntion 53
Fig.	28	Comparison of the uncertainty in the measurement of unstretched
flam	le s	peed in buoyancy-induced regimes in each data range
Fig.	29	Total GWPs ratio and efficiency for various $R_R$





## A study on characteristics of outwardly propagating spherical flames of R245fa( $C_3H_3F_5$ )/ $CH_4/O_2/N_2$ mixtures: consideration on buoyancy effect

Woo-jung Shin

Department of Marine Systems Engineering Graduate School of Korea Maritime and Ocean University



The incineration characteristics of waste refrigerant in a combustor were investigated via analyses of flame propagating speed, flammability limit and risen behavior of outwardly propagating spherical flames of R245fa/CH4/O2/N2 mixtures. The Schlieren image processing and matlab code were used for the analysis of flame propagating speed. The asymptotic analysis of linear model based on correlation of stretch ratio versus flame propagating speed was applied for the calculation of unstretched flame propagating speed.

The calculated unstretched flame propagating speed was sequentially decreased with increasing refrigerant concentration in fuel. The flame propagating speed also dramatically was increased with increasing oxygen concentration in oxidation. Overall flame propagating speed of the R245fa mixtures was faster than that of R134a. As concentration of refrigerant



increase, the markstein length which means the instability of flame front became negative and risen behavior by buoyancy on spherical flames was observed. The risen behavior can be classified into typical behavior, transition behavior and buoyancy behavior based on the unstretched flame propagating speed. For the study of the rising behavior through figurative analysis of flames, there was a difference between the side flame radius used to calculate a flame propagating speed and figurative flame radius. These reasons are supported by analysis of deformation and stretch of flame surface by buoyancy. As a result of simulation and correlation for the flame propagating speed versus reactants composition, the uncertainty was increased as the buoyancy effect was increased.

In this study, we have confirmed the combustion properties and flammability limits of  $R245fa/CH_4/O_2/N_2$  mixtures and the physical characteristics of risen spherical flames. For comparition with the global warming potentials of reactants and products, the mixed incineration method of collected waste refrigerant gas and methane like R245fa is expected to contribute to the recycling of energy and the reduction of global warming potentials.

KEY WORDS: Premixed flame 예혼합 화염; Outwardly propagating spherical flame 외 부로 전파하는 구형화염; Buoyancy 부력; Flame stretch 화염 퍼짐; R245fa (C3H3F5)/methane fuels R245fa/메탄 연료;



– viii –

### 제1장 서론

#### 1.1 연구배경

1987년 몬트리울 의정서(Montreal Protocol)의 발효를 통해 오존층 파괴물질 (Ozone Depleting Substances, ODSs)의 규제가 시작되었고 선진국의 경우 HCFC 계열 냉매를 제외한 대부분의 규제물질의 생산소비 전폐가 완료되었다(UNEP, 2012). HCFC(Hydrochlorofluorocarbon) 계열의 경우에도 2020년까지 99.5%의 생산 소비의 감축이 예정되었다(UNEP, 2012). 대부분의 오존층 파괴물질들은 높은 열 용량을 가지는 냉매의 특성상 강력한 온실가스이므로, 몬트리울 의정서로 시작된 오존층 파괴물질 저감의 노력은 지구온난화 속도를 감소시키는 긍정적인 결과를 가져왔다(UNEP, 2011; Montzka et al., 2011). 하지만 산업분야에서 오존층 파괴물 질인 할론(Halon)과 CFC(Chlorofluorocarbon) 계열의 냉매를 대체하기 위해 온난화 지수(global warming potentials, GWPs)가 높은 HFC(Hydrofluorocarbons) 계열의 냉매가 개발 및 보급되었으며 교토의정서(Kyoto Protocol)에서는 이들 물질을 온 실가스(Green house gas, GHGs)로 규정하여 대기 배출을 제한하고 있다. 최근 유 엔환경계획(United Nations Environment Programme, UNEP)의 종합보고서(UNEP, 2011)는 HFC 계열 냉매 사용의 증가가 향후 기후변화에 미치는 영향이 클 것을 경고하고 있으며, Montzka et al. (2011)의 연구에서는 지구온난화 문제를 개선하 기 위해서 CO₂ 배출의 통제뿐만 아니라 HFC 계열을 포함한 Non-CO₂ 가스의 배 출감소가 병행되어야 함을 강조하였다. 결국 지구온난화 문제의 개선은 온난화지 수가 낮은 친환경 냉매로의 교체와 함께 기존에 사용되고 있는 온난화지수가 높 은 냉매의 폐기를 필요로 한다.

2002년을 기준으로 유엔환경계획은 오존층 파괴물질의 파괴처리에 관한 12가지 기술을 승인하였고 여기에는 연소를 활용하는 소각기술이 포함되었다(UNEP, 2011). 아직까지 온실가스 처리기술에 관한 국제적인 기준은 없으나, 오존층 파괴

- 1 -

물질과 온실가스 모두 폐가스 처리의 객관적 평가기준(*예를 들어, 파괴 및 제거효 율, 기타 오염물질의 배출, 기술능력 등*)은 동일할 것이다. 또한 연소방식은 유기 화합물의 완전한 파괴를 위해 필요한 고온 환경을 화학반응으로 손쉽게 형성하기 때문에 온실가스의 처리에 적합한 기술이다. 이 논문은 HFC 계열 냉매의 연소를 연소장치에 적용하기 위해 필요한 화학종의 물성치와 가연한계 및 화염의 물리적 특성을 정적 연소실 환경에서 실험하였으며 선행된 R134a(C<sub>2</sub>H<sub>2</sub>F<sub>4</sub>) 혼합물의 실험 (Choi et al., 2016)에 이어, R245fa(C<sub>3</sub>H<sub>3</sub>F<sub>5</sub>) 혼합물을 대상으로 실험을 수행하였다.





#### 1.2 외부로 전파하는 구형화염 실험

비정상상태의 외부로 전파하는 구형화염의 연구는 곡선의 화염면이 전파되면서 평면으로 나아가는 특징(Andrew & Bradley, 1972)을 기반으로 스트레치-화염전파 속도의 관계에 대한 점근해석이 사용되었다(Kelley & Law, 2009; Wu & Law, 1984; Chen, 2011; Kelley et al., 2012). 외부로 전파하는 구형화염의 연구들은 실 험을 통해 층류연소속도를 정확하게 계산하기 위해 선형(Kelley & Law, 2009; Wu & Law, 1984) 및 비선형 방식(Chen, 2011; Kelley et al., 2012)의 다양한 점근해석 을 도입했다. Wu et al. (2015)의 연구는 다양한 점근해석 방법의 불확실성을 점 화에너지, 루이스 수 등의 관계에서 분석하였고 마크스텐 수(Markstein number)와 칼로비츠 수(Karlovitz number)를 통하여 그 불확실성을 무시할 수 있는 정량적 범위를 제시하였다. 하지만 화염면이 불안정성을 대표하는 루이스 수(또는 마크스 텐 수)가 1에 멀어짐에 따라 점근해석의 불확실성은 무실할 수 없는 수준으로 증 가하였다. 최근 Beeckmann et al. (2017)는 수소화염에서 화염면의 불안정성의 결 과인 벌집 구조(Cellular structure)의 특징을 분석하였다. 그들의 연구는 유체역학 적(Hydrodynamic) 및 열적 확산(Diffusive-thermal)의 영향 모두를 고려한 이론 (Rastigejev & Matalon, 2006; Matalon et al., 203; Giannakopoulos et al., 2015)을 기반으로 불안정성이 발생하는 임계 화염반경(Critical radius)을 계산하였으며 이 값은 실험으로 관찰된 데이터보다 작았고 이론적 계산과 일치했다.

점근해석의 불확실성은 루이스 수 뿐만 아니라 화염의 부상거동에 따라서도 증 가한다. 희박 메탄 조건(Chen, 2011)이나 농후 부탄 조건(Kelley & Law, 2009) 및 질소로 희석된 수소 조건(Qiao et al., 2007)과 같이 화염전파속도가 작은 실험조 건에는, 부력에 의한 화염의 부상이 관찰되었으며 마크스텐 길이(Markstein length)는 음수로 계산되었다. 또한 R134a의 혼합물을 사용한 선행연구(Choi et al., 2016)에서도 혼합물 중 냉매 농도의 증가에 따라 구형화염의 부상거동이 발달 되었으며 마크스텐 길이 또한 음수로 나타났다. 이러한 부력의 영향은 화염면의 전파를 왜곡시킴에 따라 계산된 층류연소속도에 대한 불확실성이 증가했다. 반응 에 사용된 화학종의 물성치를 연소기에 적용하기 위해서는 이러한 불확실성이 제 거되어야 한다. 하지만 현재 부력에 의해 발생하는 구형화염의 물리적 특징을 설 명한 문헌은 찾을 수 없었다.

- 3 -

#### 1.3 연구 목적

이론적인 1차원 평면화염을 통하여 미연소가스의 측면에서 계산되는 층류연소 속도는 화학종의 농도와 온도에 따라 결정되는 고유의 물성치이며 화학반응 메커 니즘의 규명과 발전에 필요한 중요 데이터이다. 이 연구에서는 우선 선행된 R134a 혼합물의 실험(Choi et al., 2016)과 R245fa의 화염전파속도, 가연한계 및 부상거동으로 대표되는 물리적 특징을 비교하였다. 또한 선행된 구형화염의 화염 전파속도 계측에서 발생한 불확실성을 개선하기 위해 부력이 화염의 스트레치에 작용하는 영향을 분석하였으며 이러한 개선된 방법을 통해 보다 정확한 R245fa/ 메탄/산소/질소 혼합물의 화염전파속도를 계산하였다. 그리고 지구온난화의 문제 에 있어 온실가스 처리에 관한 연소방식의 효용성을 고찰하였다.





## 제 2 장 실험장치

실험장치는 크게 (1) 연소 장치(Combustion equipment), (2) 시각화 장치 (Visualization system), (3) 데이터 수집 장치(Data acquisition equipment), (4) 가스 공급 및 배출장치(Gas suppling and discharging system)로 구성되었다. 장치 구성 의 전체적인 모습은 Fig. 1을 통해 나타내었고 참고문헌(Song, 2013)과 동일한 실 험장치를 사용하였다.



Fig. 1 Schematic of the experimental setup

#### 2.1 연소장치

각 장치의 상세한 구성을 설명하자면 연소장치의 경우, 연료가 연소가 진행되 는 정적 연소실(Constant volume combustion chamber)가 있으며 여기에는 초기 점화를 위한 점화장치(Ignition unit)와 계측을 위한 압력 센서(Pressure sensor)가 설치되었다. 연소실의 규격은 Fig. 2를 통해 확인되며 내경 200 mm, 외경 220 mm 이고 재질은 스테인레스 스틸이다. 연소실의 양끝에는 길이 150 mm, 두께 40 mm의 아크릴이 설치되었다. 이 아크릴 판(Acrylic plate)이 투시경(Sight glass) 의 역할을 하여 직경 90 mm의 창을 통해 연소가 진행되는 동안 연소실 내부를 관찰하였다. 연소실의 중앙에는 직경 0.5 mm의 텅스텐 전극이 0.5 mm의 매우 좁 은 방전 간격을 두어 연소실의 정중앙에서 초기 점화가 발생하도록 위치하였다. 점화원을 만들기 위해 전극에는 8-10kV의 높은 전압을 인가하는 캐패시터 방전 점화 시스템(Capacitor discharge ignition system)이 연결되었다.





#### 2.2 광학 및 기타 장치

Fig. 1에서 나타나듯, 시각화 장치는 300 W xenon 광원(Light), 1500 mm 직경의 오목 거울(Concave mirror)을 사용한 슐리렌 장치(Schlieren system)가 설치되었다. 광원의 빛은 핀 홀(Pin hole)을 지나 첫번째 오목거울에서 반사되어 연소실의 투 시경을 통해 화염을 지나게 된다. 화염을 통과한 빛은 두번째 오목거울에서 다시 반사되어 고속카메라를 통해 촬영되었다. 고속 카메라의 초점은 나이프 에지 (Knife edge)를 통해 조정하였다. 일반적인 카메라의 경우 화염에서 생성되는 강 한 빛으로 인해 정확한 화염면을 볼 수 없으나, 슐리렌 장치는 유동에서 생기는 밀도구배(Density gradient)를 시각화하는 기술을 통해 화염면의 선명한 관찰이 가 능하다. 실험의 사진은 528 × 1024 픽셀(Pixels)의 해상도(Resolution)로 초당 10,000 프레임(Frames)의 고속카메라로 촬영되었다.

데이터 수집 장치에는, 전하 증폭기(Charge amplifier)가 장착된 석영 압력 센서 (Quartz pressure sensor)를 연소실에 설치하여 연소반응이 진행되는 동안 발생하 는 연소실의 압력 변화를 데이터 기록계(Data logger)를 통해 기록하였다.

가스 공급 및 배출장치에서 사용된 혼합물은 순도 높은 R245fa(1,1,1,3,3-pentafluorpropane, C<sub>3</sub>H<sub>3</sub>F<sub>5</sub>), 메탄(Methane, CH<sub>4</sub>), 산소(Oxygen, O<sub>2</sub>), 질소(Nitrogen, N<sub>2</sub>)를 사용하였다. 균질한 혼합물을 만들기 위해 점화전 15분 동안 혼합하는 시간을 가 졌다. 실험 후 연소실에 생성된 연소가스 및 응축수의 배출위해 진공 펌프 (Vacuum pump)와 압축 공기 공급기(Compressed air supplier)를 교대로 수차례 반 복하여 작동시켰다. 배출되는 연소가스에는 인체에 유해한 불화 수소(Hydrogen fluoride, HF)가 포함되어 있으므로, 수산화 나트륨(Sodium hydroxide, NaOH)과 물 을 사용한 중화장치(Neutralization unit)를 경유시켜 대기로 배출하였다.





Fig. 2 Schematic of the cylindrical combustion chamber with central spark electrodes and observation windows on both vertical walls

### 제 3 장 실험결과 및 분석

정적 챔버를 활용하여 구형 화염(Spherical flame)을 관찰하는 이 실험의 경우, 사용된 연료 및 산화제를 이상기체(Ideal gas)로 가정하여 혼합물의 조성을 구성하 였다. 이상기체의 가정을 통해 실험에서 사용된 모든 혼합물은 식 (1)과 같이 달 톤의 압력 가산 법칙(Dalton's low additive pressure)을 따른다(Cengel & Boles, 2011).

$$\frac{P_i(T_m, V_m)}{P_m} = \frac{(N_i R_u T_m) / V_m}{(N_m R_u T_m) / V_m} = \frac{N_i}{N_m} = y_i$$
(1)

여기서 m은 혼합물, i는 각 화학종, *P*는 압력, *T*는 온도, *V*는 체적, *R<sub>u</sub>*는 이상기 체상수(Ideal gas constant), *N*은 몰수(Molecular number), *y*는 몰분율(Mole fraction)이다. 식 (1)에 따라서, 각 화학종이 혼합된 1 몰(Mole)의 혼합물의 압력은 동일하다. 이를 바탕으로 연료와 산화제의 함량을 변경한 이론당량비 (Stoichiometric)의 혼합물 조성표(Concentration table)를 작성하여 실험을 수행하 였다.

실험의 연료로 메탄(CH4)만을 사용하여 공기와 반응한 경우, 1단계 총괄반응 (1-step global reaction)의 생성물(Product)은 이산화탄소(CO<sub>2</sub>), 물(H<sub>2</sub>O), 질소(N<sub>2</sub>)로 구성된다. 하지만 이 실험은 메탄 및 냉매 R245fa 혼합물이 연료로 사용되므로 생성물에서 불화수소(HF), COF<sub>2</sub>(Carbonic difluorid), CF<sub>4</sub>(Carbon tetrafluoride)가 추 가로 생성된다. COF<sub>2</sub>와 CF<sub>4</sub>의 경우, 이론당량비 반응에서 둘 중 하나만이 선택적 으로 생성된다(Grosshandler et al., 1998; Takizawa et al., 2006). 따라서 이 연구 에서는 R134a/메탄/산소/질소 혼합물을 사용한 선행된 실험(Choi et al., 2016)과 일치 및 비교를 위해 CF<sub>4</sub>가 생성되는 반응을 적용하였다. 이론당량비 공기-연료 비율에서 R245fa/메탄/산소/질소 혼합물의 1단계 총괄 반응은 다음과 같이 나타낼 수 있다.



$$R_{R} \times C_{3}H_{3}F_{5} + (1 - R_{R}) \times CH_{4} + (2 + 0.5R_{R}) \times \left\{O_{2} + \frac{(1 - R_{O})}{R_{O}}\right\}$$
  
$$\rightarrow (1 + R_{R}) \times CO_{2} + 3R_{R} \times HF + 2(1 - R_{R}) \times H_{2}O + \frac{(2 + 0.5R_{R})(1 - R_{O})}{R_{O}} \times N_{2}$$
(2)

$$R_{R} = \frac{X_{R245fa}}{X_{CH_{4}} + X_{R245fa}}$$
(3)  
$$R_{O} = \frac{X_{O_{2}}}{X_{N_{2}} + X_{O_{2}}}$$
(4)

 $R_R$ 은 이종 연료(Binary fuel) 중 R245fa의 비율을,  $R_O$ 는 산화제 중 산소의 비율을 나타낸다. 예시로 Table. 1은  $R_O$  = 0.30의 경우 사용된 실험의 연료 및 산화제 조성표이다.

본 실험은 실온(25℃) 및 대기압(1 atm) 조건에서 수행되었으며, 고전압의 방전 으로 화염을 점화하였다. 점화 시, 두 전극 사이에서 화염핵(Flame kernel)이 형성 되며, 이후 미연소 가스(Unburned gas)를 따라 화염면이 외부로 전파(Outwardly propagation)되면서 구형의 화염이 발달되었다. 또한 구형의 화염 반경(Radius of flame, r<sub>f</sub>)은 시간에 따라 비선형적(Nonlinearly)으로 발달하였다.

1945



п	Mole fraction ( $R_o = 0.30$ )						
ĸ	R245fa	CH4	O <sub>2</sub>	N <sub>2</sub>			
0.00	0.000	0.130	0.261	0.609			
0.10	0.013	0.115	0.262	0.611			
0.20	0.025	0.100	0.263	0.613			
0.30	0.037	0.086	0.263	0.614			
0.40	0.048	0.072	0.264	0.616			
0.50	0.059	0.059	0.265	0.618			
0.60	0.069	0.046 45	0.265	0.619			
0.70	0.079	0.034	0.266	0.621			
0.80	0.089	0.022	0.267	0.622			
0.90	0.098	0.011	0.267	0.624			
0.95	0.103	0.005	0.268	0.624			

Table 1 Experiment condition of R245fa/CH<sub>4</sub>/O<sub>2</sub>/N<sub>2</sub> mixture at  $R_O = 0.30$ 

#### 3.1 구형화염의 특징

정상상태 구형 화염(Steady state spherical flame)은 구형의 정체 화염을 통해 연구되며(Qiao et al., 2007) 곡률의 영향과 유동방향에 따른 화염면 변형이 서로 상쇄되어 스트레치(Stretch)는 0이 된다(Qiao et al., 2007; Chung, 1985; Chung & Law, 1984). 내부로 전파하는 구형화염(Inwardly propagating spherical flame)은 미 연소 가스의 측면에서 압축되는 모습이므로 음의 스트레치를 가지는 반면 외부로 전파하는 구형화염(Outwardly propagating spherical flame)은 팽창하는 모습인 양 의 스트레치(Positive stretch)를 가지며 화염반경(즉, 곡률반경)의 증가에 따라 곡 률κ은 감소한다(Williams, 1975; Mizomoto et al., 1985; Chung, 1985; Chung & Law, 1984). 따라서 화염전파가 진행됨에 따라 화염면은 평면으로 나아간다.(즉. 스트레치→0) 여기서 스트레치는 화염 영역(Flame region)의 시간 변화율(Time rate)로써 유동장이 화염에 미치는 영향을 의미한다. 이것은 Karlovitz et al. (1953)에 의해 처음 제안되었고, Williams (1965)에 의해 일반화된 개념이다. 일반 적으로 외부로 전파하는 구형화염은 화염으로의 질량유동이 없으므로, 연소속도 (Burning velocity) 또는 화염전파속도(Propagating flame speed,  $S_d$ )는 화염면이 연 소가스로 부터 미연소가스 지역으로 전파하는 속도로 정의된다. 또한 스트레치가 없는 일차원 평면화염에서 질량보존에 따른 미연소 가스의 측면에서, 이 연소속 도는 해당 연료의 조성이 가지는 고유한 물성치인 스트레치 없는 층류 화염 속도 (Laminar flame speed,  $S_L^o$ )라 한다.

일반적으로 화염면은 열적 확산(Thermal diffusion, α)과 질량 확산(Mass diffusion, D)의 균형에 의해 형성된다. Fig. 3은 정상상태 구형 화염의 개념도이 다. 열적 확산은 반응영역에서 미연소가스 방향으로 열전도를 통하여 확산되며, 질량 확산은 미연가스에서 반응영역을 향하여 주로 농도구배를 통해 확산된다. 두 확산계수(Diffusion coefficient)의 관계는 α/D로 정의되는 루이스 수(Lewis number, *Le*)에 의해 특징되며, 이 루이스 수에 따라 화염의 스트레치에 매우 의 존적으로 확산 선호도(Preferential diffusion)의 영향이 다르게 나타난다(Mizomoto et al., 1985; Chung, 1985).



Fig. 3 Schematic of outwardly propagating spherical flame

#### 3.2 외부로 전파하는 구형화염의 3가지 거동

이 실험은 메탄/R245fa/산소/질소 혼합물을 대상으로 정적 연소실 환경에서 생 성된 외부로 전파하는 구형 화염을 관찰하였으며 관찰 시간 중 연소실의 압력변 화의 영향은 매우 작으므로 무시 가능한 수준이었다(Choi et al., 2016). 실험조건 마다 화염전파속도의 차이로 인하여 관찰시간은 상이하였지만 전체적으로 약 10-140 ms 범위 내에서 화염전파가 확인되었으며 몇가지 특징적인 화염의 거동 이 관찰되었다.

Fig. 4는 산화제 비율 R<sub>0</sub>=0.30, 연료 비율 R<sub>R</sub>=0.30, 0.90, 0.95의 조건에서 촬영한 슐리렌 이미지로 실험에서 관찰된 특징적인 거동을 대표하는 예로써 선택하였으 며 시간에 따른 구형 화염의 변화를 보여준다. Fig. 4a는 R<sub>R</sub>=0.30의 경우, 화염은 40~80 ms 동안 중심에서 상하 좌우 방향이 동일하게 화염이 전파되어 나갔다. 이 것은 연소실의 중심에서 생성된 화염핵이 발달하면서 외부로 전파되어 나가는 전 형적인 거동(Typical behavior)을 보여준다.

Fig. 4b는  $R_R$ = 0.90의 경우로, R245fa 비율의 증가에 따라 반응물과 생성물간의 밀도(Density,  $\rho$ ) 차이로 인해 중력(Gravity)과 반대 방향으로 부력이 발생하며 화 염이 상승하는 것을 볼 수 있었다. 이러한 부력에 의한 구형 화염의 상승 거동은  $R_R$ = 0.95의 경우인 Fig. 4c에서 더욱 분명하게 나타났다. 이러한 두 거동을 각각 천이 거동(Transition behavior)과 부력 거동(Buoyancy-induced behavior)이라 한다.

화염에 작용한 부력의 영향은 초기점화 지점으로부터 상승하는 거동뿐만 아니 라 화염의 모습에도 영향을 주었다. Fig. 5는 부력이 구형 화염의 모습에 미치는 영향을 도시화한 그림이다. 부력에 따른 구형화염의 변화에 관한 자세한 내용은 뒤에서 다룰 것이며 이 절(Chapter)에서는 화염의 모습에 관한 내용으로 제한하여 설명하고자 한다. 부력에 의해 구형화염이 위쪽으로 수직 이동할 경우 화염면 방 향으로의 반응물 이동거리에서 구배가 발생한다. 이 반응물 이동거리가 길수록 화염전파에 따른 반응물의 상대속도는 작아진다. 따라서 해당 화염면의 반응강도 는 약해지며 이는 화염전파속도의 감소를 의미한다(Chung, 1988; Kuo, 2005). 화 염 전파의 진행에 따라 좌우측 화염면에 비해 상대적으로 화염전파속도가 크게 감소하는 하부 화염면은 변형되어 전체적인 화염의 모습은 버섯 모양이 되었다.





Fig. 4 Schlieren images for certain time intervals for  $R_R$ =0.30, 0.90, and 0.95 at  $R_O$ =0.30



Fig. 5 Schematic of buoyancy effect on outwardly propagation spherical flames

#### 3.3 관찰된 부상거동의 구분

화염의 부상에 따라 구분되는 3가지 화염의 거동은 산화제 및 연료 조성에 따 라 전체적인 실험조건에서 확인되었다. 하지만 이러한 부상거동의 명확한 구분을 위해 정량적인 기준이 필요했다. 화염의 부상거동의 정량적 구분에 앞서, 이 실험 결과의 해석에 사용한 특징적인 길이는 Fig. 6을 통해 나타내었다.

화염은 점화점(Ignition point)에서 시작되어 t₁에서는 점선(Dotted line)으로 표시 된 화염의 표면을 가지며, 이후 시간이 경과한 t₂(=t₁+△t)에서는 굵은 실선 (Solid line)으로 표시된 화염의 표면을 가진다. 점화점과 화염의 상부 및 하부 표 면의 수직 반경은 각각 r₁과 r₄으로 정의하였다. 화염 중심에서 좌우 수평반경은 각각 r₂와 r₃으로 정의하였다. Choi et al. (2016)의 실험과 동일하게 이 실험에서 도 화염반경rf는 r₂와 r₃의 평군(즉, (r₂+r₃)/2)을 사용하였다. 또한 화염의 상승 에 따른 화염 중심의 이동거리는 r₁과 rf의 차(=r₁-rf)인 Lr로 정의하였다. 따라 서 화염의 중심은 A점에서 B점으로 이동하게 된다. 이러한 특징적인 길이는 앞서 정의된 기준에 맞춰 매트렙(Matlab) 코드를 통해 추출되었다.

Fig. 6을 통해 나타낸 특징적인 길이들 중 수직반경r₁과 화염반경r₅의 반경비 (즉, r₁/r₅)를 사용하여 부상거동을 구분하였다. 반경비(Ratio of radius)가 1.08 미 만인 경우, 외부로 전파하는 구형화염은 상하 좌우의 화염면이 거의 동일하게 전 파하는 전형적인 거동을 보였다. 대표적으로 R₀=0.20, R<sub>R</sub>=0.00-0.30 경우가 해당 되며, 냉매 비율의 증가에 따라 반경비는 점차 증가하였다. 반경비가 1.08 ≤ r₁/r₅ < 1.35의 경우, 화염이 부력에 의해 상승하며 천이 거동이 나타났다. 메탄만 을 연료로 사용한(즉, R<sub>R</sub>=0.00) 다른 경우에서는 전형적인 거동을 보였으나 산화 제의 산소 비율이 가장 낮은 R₀=0.15, R<sub>R</sub>=0.00에서는 천이 거동이 나타났다. r₁/r₅ > 1.35에서는 천이 거동보다 화염이 더욱 상승된 부력 거동이 나타났다.

앞서 설명한 특징들을 종합하여 냉매 및 산소의 비율에 따른 화염 거동을 지도 화(Mapping)한 Fig. 7을 작성하였다. 여기서 전형적인 영역(Typical regime)은 검은 색 네모로, 천이 영역(Transition regime)은 빨간색 동그라미로, 부력 영역 (Buoyancy-induced regime)은 파란색 세모로 표시하였다. 그리고 초기 점화에서 화염이 생성되지 않거나 관찰 중 소화된 실험조건은 엑스로 표시하였다.



Fig. 6 Definitions of characteristic lengths for the four directions and risen length  $L_r$  of the spherical flame



Fig. 7 Different regimes for the experimental conditions of  $R_R$  versus  $R_O$ 

#### 3.4 준정상상태 구간의 선정

매트렙 코딩으로 추출된 특징적인 길이를 화염전파의 데이터로 사용하기 위해 서는 실험장치와 환경에 의한 영향을 고려하여 적절한 준정상상태(Quasi-steady) 구간을 선택해야 한다. 관련된 주요한 고려대상은 아래와 같다(Kelley & Law, 2009; Byun, 2012; Chen et al., 2009; Pfahl et al., 2000).

1)	화염의	초기, 점화에 의한 영향으로 발생하는 화염전파의 왜곡
2)	화염의	전파 중, 바깥으로 전파하는 구형화염의 특성상 스트레치의 효과
3)	화염의	후기, 용기 벽면에 의한 열손실 및 압력변화

초기 점화에 의한(Ignition affected) 영향의 경우, Kelley & Law (2009)의 연구는 점화 에너지(Ignition energy)의 크기가 구형화염의 초기 화염전파속도에 크게 영 향을 미치는 것을 보여주었다. 하지만 점화의 영향은 초기에만 국한될 뿐 화염전 파가 상당히 진행된 이후에는 영향을 미치지 않으므로(Kelley & Law, 2009; Chen et al., 2009; Pfahl et al., 2000) 이 연구에서는 화염반경 $r_f > 1 cm$ 를 초기 점화의 영향을 제외한 준안정상태의 데이터 구간으로 선택하였다.

화염의 전파 중 발생하는 스트레치의 영향을 고려하기 위한 선행된 연구들에서 는 스트레치가 없는 상태(Unstretchded state)를 예측하는 방법으로 점근해석이 도 입되었다(Kelley & Law, 2009; Chen, 2011; Wu et al., 2015; Wu & C.K. Law, 1984; Creta & Matalon, 2011). 이러한 점근해석의 다양한 모델들은 사용된 화학 종의 종류와 혼합물의 루이스 수에 따라 적절하게 선택된다. 관련하여 Wu et al. (2015)의 연구는 단열 상태의 이론반응을 기준으로 예측 모델의 불확실성 (Uncertainty)을 종합적으로 검토하였다. 본 연구는 전파하는 구형화염의 점근해석 해석모델들 중 곡률을 기반으로 한 선형모델의 점근해석 방법을 선택하였다 (Chen, 2011; Clavina, 1985). 정압 환경의 경우, 구형 화염의 연소가스는 정지 상 태로 가정한다(Bradley et al., 1996; Bradley et al., 1998). 이와 관련하여 미연소 혼합물(Unburned mixture) 방향으로 전파하는 스트레치가 없는 화염전파속도*S<sub>u</sub>*는 아래와 같이 나타낼 수 있다(Chen, 2011; Gu et al., 2000; Law & Sung, 2000).

- 19 -

 $S_u-S_d=L_b\,{}^{\bullet}\,K$ 

Collection @ kmou

(5)

여기서,  $L_b$ 은 연소가스의 마크스텐 길이(Markstein Length)이고 K는 화염의 전체 스트레치(Total Stretch),  $S_d$ 는 스트레치 화염전파속도(Stretched propagating flame speed)이다. 외부를 향해서 구형으로 전파되는 화염 표면적 A의 시간 변화율을 의미하는 K (Bradley et al., 1996; Bradley et al., 1998; Gu et al., 2000; Law & Sung, 2000)와 순간적인 화염 반경의 시간 변화율을 나타내는 스트레치 있는 화 염전파속도  $S_d$  (Bradley et al., 1996; Bradley et al., 1998; Gu et al., 2000)는 다음 과 같이 정의된다.

$$K = \frac{1}{A} \cdot \frac{dA}{dt} = \frac{2}{r} \cdot \frac{dr}{dt} = \frac{2}{r} \cdot S_d$$

$$S_d = \frac{dr}{dt}$$
(6)
(7)

점근해석 모델의 선택과 밀접한 관련이 있는 루이스 수에 따른 화염전파속도의 관계를 설명하자면, 일반적으로 이론당량비의 메탄/공기 혼합물의 경우, 루이스 수는 1에 가깝다(Wu et al., 2015; Bradley et al., 1996; Qiao et al., 2008). 현재로 는 R245fa의 열역학적 물성치와 반응 메커니즘의 불확실성 때문에 혼합물의 루이 스 수나 생성물의 밀도 등의 정확한 계산이 어렵다. 하지만 고분자의 유기화합물 인 R245fa가 첨가될 경우, 혼합물의 질량 확산과 열전도도는 상대적으로 작아질 것이며 이러한 두 비율의 밸런스에 따라 루이스 수가 1이 아닐 것으로 예측되었 다. 따라서 점근해석을 통한 스트레치가 없는 화염전파속도의 계산은 선형 모델 보다는 비선형 모델이 더욱 정확할 것이다(Kelley & Law, 2009; Chen, 2011; Creta & Matalon, 2011). 하지만 선행 연구(Choi et al., 2016)의 메탄/R134a/산소/ 질소를 사용한 구형화염 실험결과와 동일한 조건에서의 비교가 필요했으며 확산 선호도의 영향이 비교적 작은 이론당량비 조건(Mizomoto et al., 1985; Monnhomme et al., 2013)으로 실험을 수행하였기에 선형 모델을 사용하였다.

벽면에 의한 영향은 전파하는 화염이 벽면에 근접할수록 열손실의 증가와 반응 물과 생성물의 밀도차이에 기인한 압력 상승으로 인해 화염전파속도가 급격하게 변화하는 현상을 의미한다. 하지만 이 실험의 경우 관찰에 활용되는 투시경의 직 경이 90 mm 인 것과 비교하여 연소실의 직경은 200 mm 로 상대적으로 매우 크 기 때문에 관찰하는 동안 벽면의 영향은 발견되지 않았다. 따라서 관찰이 종료되

는  $r_1 < 4.0 \, cm$ 의 넓은 반경을 데이터로 활용하였다.

전체적으로 냉매와 산소 비율의 변화에 따른 모든 실험조건에서 위에서 언급한 검토를 통해 적절한 데이터를 선택할 수 있었다. 이러한 데이터 구간의 선택을 Fig. 8-11를 통해 시간에 따른 화염반경  $r_f$ 의 변화로 나타내었다. 그러나 특이하 게 ( $R_o$ =0.20,  $R_R$ =0.70), ( $R_o$ =0.20,  $R_R$ =0.75), ( $R_o$ =0.40,  $R_R$ =1.00)의 경우, 화염전파 후기에서 그래프(Fig. 8b, 8d)의 기울기(*즉*, 화염전파속도)가 크게 변화했다. 이 현 상을 자세하게 확인하기 위해 Fig. 9a-b을 통해 스트레치와 화염전파속도의 관계 로 나타낸 결과, 감소하는 화염전파속도가(*즉*, *음의 마크스텐 길이*) 연소가 진행됨 에 따라 빨라지는(*즉*, *양의 마크스텐 길이*) 현상이 발생했고 데이터 구간에 따라 마크스텐 길이의 차이는 매우 컸다. 따라서 해당 실험조건은 선형 모델을 사용한 점근해석의 정확도를 향상하기 위해 초기 점화의 영향을 제외한 데이터 범위 중 스트레치와 화염전파속도가 선형적인 관계를 보이는  $1cm < r_f < 1.2cm$ 구간을 사 용하였다.

다시 정리하자면, 산소와 냉매 비율의 변화에 따른 대부분의 경우에서는  $1cm < r_f$  및  $r_1 < 4.0 cm$ 를, 선형모델을 사용한 점근해석의 불확실성이 증가하는 특수한 경우  $1cm < r_f < 1.2 cm$ 를 데이터 구간으로 사용하였다. Fig. 10은 전형적 인 거동, 천이 거동, 부상 거동을 각각 대표하는 ( $R_o$ =0.30,  $R_R$ =0.00, 0.80, 0.95)의 실험조건에서, 시간에 따른 준안정상태 데이터 구간을 적용한 상하좌우 방향의 특징적인 길이를 나타낸다. Fig. 10에서 나타나듯, 냉매 비율 증가에 따라  $r_1$ 과  $r_4$ 의 차이가 증가하였으며 이것은 화염의 부상을 의미했다. 또한 부력거동의 경우, 부상이 크게 발달하므로 화염은 점화점보다 높은 위치에까지 상승하였고  $r_4$ 는 음 수로 나타났다.





Fig. 8 Profiles of time and flame radius (a)  $R_R$ =0.00, 0.40 at  $R_O$ =0.15 (b)  $R_R$ =0.00, 0.60 and 0.75 at  $R_O$ =0.20 21 (c)  $R_R$ =0.60, 0.90 and 0.95 at  $R_O$ =0.30 (d)  $R_R$ =0.60, 1.00 at  $R_O$ =0.40



Fig. 9 The displacement speed of the stretched flame front as a function of stretch rate; (a)  $R_O$ =0.20,  $R_R$ =0.75 (b)  $R_O$ =0.40,  $R_R$ =1.00



Fig. 10 Profiles of r<sub>1-4</sub> according to time t for  $R_{\rm R}{=}0.00,$  0.80, and 0.95 at  $R_{\rm O}{=}0.30$ 


#### 3.5 외부로 전파하는 구형화염의 스트레치 없는 화염전파속도

일반적으로 정적 연소실을 활용한 구형화염의 실험들은 화염의 전파가 진행됨 에 따라 스트레치가 감소하는 구형화염의 특성을 활용하여 혼합물이 가지는 고유 의 물성치인 층류화염속도(Laminar flame speed,  $S_L$ )를 측정하는데 그 목적이 있 다. 1-D(1-dimension) 평면상의 정상상태 화염전파에 관한 질량 보존을 기반으로 미연소 혼합물의 층류연소속도는 스트레치가 없는 화염전파속도(Unstretched propagating flame speed,  $S_u$ )와 아래의 관계를 가진다(Chung, 1985; Chung & Law, 1984; Law & Sung, 2000).

$$S_L = \frac{\rho_b}{\rho_u} \bullet S_u \tag{8}$$

여기서 ρ는 가스 밀도(Density)이고, 아래첨자 b와 u는 각각 연소 및 미연소 혼 합물을 의미한다. 이 연구와 같이 사용된 화학종의 열역학적 물성치와 반응 메커 니즘에 불확실성이 있는 경우 S<sub>L</sub> ∝ S<sub>u</sub>관계에 따라 층류연소속도 대신 관찰을 통 해 계산이 가능한 스트레치가 없는 화염전파속도를 활용하여 물성치의 정량적 분 석을 수행할 수 있다.

실험으로 측정된 스트레치 화염전파속도와 스트레치율의 상관관계를 활용한 점 근해석을 수행하기 위하여 Fig. 11a-d의 그래프를 통해 산소농도별로 분류하였다. Fig. 12을 통해, R134a 혼합물과 비교하기 위하여 이론당량비 메탄/R245fa/산소/질 소 혼합물의 스트레치 없는 화염전파속도를 함께 나타내었다. 그래프에 나타나듯, R245fa 혼합물도 R134a와 동일하게 냉매 농도의 증가에 따라 스트레치 없는 화 염전파속도는 순차적으로 감소하다. 반면 산소 농도의 증가에 따라서는 급격하게 증가하였다(Choi et al., 2016). 또한 전체적으로 R134a와 비교해 R245fa 혼합물의 스트레치 없는 화염전파속도가 더 빠르게 계산되었지만 몇몇 경우에서는 반대되 는 결과를 보이며 일관된 경향이 나타나지 않았다.

Fig. 11에서 그래프의 기울기에 해당하는 마크스텐 길이는 Fig. 13을 통해 나타 내었다. 마크스텐 길이도 냉매 비율을 증가함에 따라 감소하는 경향이 확인되었 다. 전형적인 거동을 대상으로 일부 실험조건을 제외하고는 마크스텐 길이가 양

수로 나타났다. 그러나 전체적인 실험조건에서 마크스텐 길이는 음수로 관찰되었 다(Choi et al., 2016). 마크스텐 길이는 반응물과 생성물의 밀도비와 관련이 있으 며, 양의 마크스텐 길이는 안정적인 확산선호도를 그리고 음의 마크스텐 길이는 불안정한 확산선호도를 의미한다(Qiao et al., 2008). 관련된 실험으로는 희박 메탄 조건(Chen, 2011)이나 농후 부탄 조건(Kelley & Law, 2009) 및 질소로 희석된 수 소 조건(Qiao et al., 2007)과 같이 부력으로 인해 부상거동이 관찰되는 경우에서 음의 마크스텐 길이가 관찰되었다. 이렇듯 마크스텐 길이가 음수로 나타날 경우, 선형 모델을 활용한 점근해석의 불확실성이 증가하여 스트레치 없는 화염전파속 도의 계산에 대한 신뢰성이 감소한다(Kelley & Law, 2009; Chen, 2011; Monnhomme et al., 2013). 냉매 비율에 따른 스트레치 없는 화염전파속도와 마크 스텐 길이는 감소하는 것으로 확인되었으나, 구형화염에서 관찰되는 부상거동의 구분과 직접적으로 연관되는 특징은 발견되지 않았다.

R134a를 사용한 Choi et al. (2016)의 실험에서는 충류화염속도 $S_I$ 와 상승속도 $U_r$ 의 비율(Ratio)을 기준으로 하여 바깥으로 전파하는 구형화염의 부상거동을 구분 하였다. 하지만 R245fa의 실험에는 층류연소속도와 비례관계인 스트레치 없는 화 염전파속도를 기준으로 구상거동이 구분되지 않았다. 때문에 추가적으로 선행 실 험과 동일한 조건에서의 비교를 위해 최대 r1 = 4 cm의 화염반경에서 초기 25%를 제외한 데이터 구간을(즉, 25% < r1 < 4cm) 사용하여 그래프를 다시 비교하였다. Fig. 14a-d는 Choi et al. (2016)의 실험과 동일한 데이터 구간을 적용한 스트레치 율과 화염전파속도의 관계를 나타냈다. Fig. 15는 Fig. 14의 점근해석으로 계산된 스트레치 없는 화염전파속도와 냉매 농도의 상관관계를 각각의 적용된 데이터 구 간으로 구분하여 비교했다. (25% < r1 < 4 cm)의 데이터 구간으로 계산된 스트레치 없는 화염전파속도는 전체적으로 (1 < r<sub>f</sub>, r<sub>1</sub> < 4 cm)의 데이터 구간을 활용한 결과 와 동일했다. 하지만 앞서 설명하였듯 선형모델(Chen, 2011; Gu et al., 2000; Law & Sung, 2000)의 점근해석을 적용하기 위해 (1 < r<sub>1</sub> < 1.2 cm)의 데이터 구간을 적 용한 (R<sub>0</sub>=0.20, R<sub>R</sub>=0.40), (R<sub>0</sub>=0.20, R<sub>R</sub>=0.45), (R<sub>0</sub>=0.40, R<sub>R</sub>=1.00)조건에서는 스트 레치 없는 화염전파속도가 증가했다. 그래프로 나타내지는 않았지만, 이러한 결과 는  $(1 < r_1 < 1.2 cm)$ 가 아닌  $(1 < r_t, r_1 < 4 cm)$ 의 데이터 구간의 결과와 동일했다. Fig. 16에서 나타나듯 냉매 비율의 증가에 따라 마크스텐 길이는 전체적으로 감소 하였지만 원래 데이터 구간의 결과와 비교하여 경향의 일관성은 감소했다.

다시 정리하자면 (1 <  $r_f$ ,  $r_1$  < 4cm 또는 1 <  $r_1$  < 1.2cm) 및 (25% <  $r_1$  < 4cm)의 데이터 구간으로 계산된 결과들을 종합할 때, 전형적인 거동에서는 냉매의 농도 에 따른 스트레치 없는 화염전파속도가 순차적으로 감소하고 마크스텐 길이는 대체적으로 양수가 나타나는 특징들을 보였다. 특히나 Fig. 16에서 실선으로 표시하였듯 스트레치 없는 화염전파속도의 경우 R134a 혼합물의 실험조건  $R_0$ =0.30,  $R_R$ =0.60(Choi et al., 2016)만을 제외하고는 115 cm/s (±9)를 기준으로 전형적인 거동과 천이 거동의 경계가 구분되었다. 하지만 천이 거동과 부력 거동에서는 경계구분의 기준이 되는 일관된 특징이 발견되지 않았다.









Fig. 11 The displacement speed according to stretch rate for various  $R_R$  conditions in data range  $1 < r_f, r_1 < 4cm$  (a)  $R_O$ =0.15 (b)  $R_O$ =0.20 (c)  $R_O$ =0.30 (d)  $R_O$ =0.40



Fig. 12 The unstretched flame speed according to the variation in  $R_R$  at  $R_o$ =0.15, 0.20, 0.30 and 0.40 for each refrigerant mixture



Fig. 13 Characteristics of the Markstein length according to the variation in  $R_R$  at  $R_O$ =0.15, 0.20, 0.30 and 0.40





Fig. 14 The displacement speed according to stretch rate for various  $R_R$  conditions in data range  $25\% < r_f < 4cm$  (a)  $R_O$ =0.15 (b)  $R_R$ =0.20 (c)  $R_R$ =0.30 (d)  $R_R$ =0.40



Fig. 15 The unstretched flame speed according to the variation in  $R_R$  and  $R_O$  for comparison in each data range



Fig. 16 Characteristics of the Markstein length according to the variation in  $R_R$  and  $R_O$  for comparison in each data range

## 제 4 장 부력의 영향

#### 4.1 부력 영향에 관한 고려

Choi et al. (2016)의 R134a 혼합물 실험과 비교하여 R245fa 혼합물을 사용한 이 실험에서는 화염의 부상이 발생하는 천이 거동과 부력 거동에서는 화염전파속도 가 일관된 경향을 보이지 않았으며 음의 마크스텐 길이가 관찰되었다. 이러한 천 이 거동 및 부력 거동의 특징들은 계산된 스트레치 없는 화염전파속도의 불확실 성을 암시한다(Kelley & .Law, 2009; Chen, 2011; Wu et al., 2015; Wu & Law, 1984; Creta & Matalon, 2011; Monnhomme et al., 2013). 이 장에서는 이러한 불 확실성이 발생하는 원인에 대해 분석하였다.

rf를 사용한 화염전파속도와 실제 화염전파속도의 차이를 확인하기 위해 슐리렌 이미지를 통한 형상적 분석을 수행하였다. Fig. 17a, 17b는 마크스텐 길이가 데이 터 구간에 따라 민감한 ( $R_0$ =0.20,  $R_R$ =0.40), ( $R_0$ =0.20,  $R_R$ =0.45), ( $R_0$ =0.40,  $R_R$ =1.00)를 대상으로 시간에 따른 화염반경  $r_f$  및 화염면의 변화를 보여준다. 데이 터 구간이 시작되는  $r_f = 1.0 cm$  (Fig. 17a)에서 구형화염은 초기점화가 발생하는 전극봉을 기준으로 위를 향하여 부상되었지만 전체적으로는 둥근 원의 모습을 유 지하였다. 하지만 관찰이 종료되는  $r_1 = 4.5 cm$  (Fig. 17b)에서, 화염은 부상과 함께 버섯모양으로 변형되었다. 이러한 구형화염의 모습은 R134a의 실험(Choi et al., 2016)에서 관찰된 이미지와 동일하였다. 버섯모양으로 화염이 변형된 경우, 하부 화염면의 평평한 변화가 좌우 화염면으로 전이되면서 접선방향 변형이 압축되는 모습을 보였다(Matalon et al., 2003; Chung, 1988; Creta & Matalon, 2011; Law & Sung, 2000). 이러한 변화는 Fig. 5를 통해 설명한 바와 같이 부력에 따른 화염면 에서의 반응강도 변화(*즉, 화염전파속도의 변화*)에 기인한다.

자세한 관찰을 위하여 Fig. 18를 통해 화염의 부상거동 종류에 따라 비교하였 다. Fig. 18a의 전형적인 거동의 경우,  $r_f$ 가 최대가 되는 화염의 중심이 초기점화

지점과 거의 동일하였고(즉,  $L_r = 0$ )  $r_f = r_1 \ \ r_4$ 와 거의 일치하였다. 그리고 각 특성길이의 점을 연결하여 삼각형을 그렸을 때 직각이등변삼각형이 그려졌다. 여 기서 직각이등변삼각형이 가지는 의미는 뒤에 일반적인 변형과 접선방향 변형의 관계에서 설명하겠다. 따라서 전형적인 거동의 특징적인 길이들은 Fig. 18a의 바 깥으로 전파하는 구형화염의 모습을 정확하게 설명했다.

그러나 Fig. 18b의 천이 거동의 경우, 화염반경  $r_f$ 을 기준으로 화염을 그리면 상부 화염면은 C선까지 도달해야 한다. 하지만 실제 화염에서  $r_1$ 은 B선까지만 도 달했으며 Fig. 18c의 부력 거동의 경우 이러한 B-C의 차이가 더 크게 나타났다. 또한 Fig. 18b-c는 각각 다른 각도의 직각삼각형이 그려지면서 화염면의 변형이 관찰되었다. Fig. 6의 구형화염의 특징적인 길이로 계산한 화염의 이동거리 $L_r$ 은  $r_1 - r_f$ 이다. 하지만 형상적인 구형화염의 이동거리는 다르게 나타났으며 이것을  $L_c$ 라 정의하였다. 형상적 화염의 이동거리 $L_c$ 와 계산된 화염의 이동거리 $L_r$ 는 둘 다 좌우 화염면의 화염반경 $r_f$ 과 관계되었으므로 그 값의 불확실성을 포함한다.

기존의 화염반경r<sub>f</sub>이 천이 거동과 부력 거동에서 화염의 모습과 일치하지 않는 이유에 관하여 스트레치K에 관한 개념을 기반으로 설명하자면, 일반적으로 화염 면의 스트레치는 아래와 같이 표현된다(Matalon et al., 2003; Chung, 1988; Law & Sung, 2000).

 $K = S_I \kappa + K_s$ 

$$K_s = -(\mathbf{v} \bullet \mathbf{n})_{\kappa} + \nabla_{\tau} \bullet \mathbf{v}_{\tau}$$

여기서. *S<sub>L</sub>*는 층류연소속도이고 *κ*는 곡률로 1/*R*<sub>1</sub>+1/*R*<sub>2</sub>를 의미하며 (*1/R*<sub>1</sub>*와 1/R*<sub>2</sub> *는 곡률의 두가지 주요 반지름*) 구형 화염의 경우 *κ*=2/*R* 이다. *K<sub>s</sub>*는 변형률 (Strain rate)이며 이 중 -(v•n) *κ*는 유동방향으로의 변형(normal strain)을 의미한 다.(v=접선방향 성분, n=유동방향 성분) ⊽<sub>τ</sub>•V<sub>τ</sub>는 접선방향의 변형을 의미하며 화 염의 두께가 매우 얇다고 가정할 경우(*즉*, *R*(*t*)-*r*=0) 비균일 유동장에 의한 화 염의 변형은 다음과 같다(Matalon et al., 2003; Chung, 1988; Law & Sung, 2000).

$$K_s = \frac{\sigma - 1}{\sigma} \cdot \frac{2R}{R} \tag{11}$$

- 36 -

(9)

(10)

여기서,  $\sigma 는 \rho_u / \rho_b 로 열팽창계수(Thermal expansion coefficient) 이고 <math>R$ 는 스트 레치 있는 화염전파속도 $S_d$ 이다. 따라서 화염의 스트레치K는 아래와 같이 다시 정 리된다(Matalon et al., 2003; Chung, 1988; Law & Sung, 2000).

$$K = S_L \kappa + K_s = \frac{2\dot{R}}{\sigma R} + \frac{\sigma - 1}{\sigma} \cdot \frac{2\dot{R}}{R} = \frac{2\dot{R}}{R} = \frac{2S_d}{r}$$
(12)

여기서 (식 11)에서 나타나듯 비균일 유동장에 의한 화염의 변형은 κ=2/R로써 곡률반경이 R인 원과 관계를 가진다. 하지만 천이 거동과 부력 거동의 경우, Fig. 18b, 18c의 직각삼각형 각도를 통하여 확인되듯 화염면의 변형이 발생하며 이러 한 변형은 곡률반경이 R과 일치하지 않는 방향으로 진행되었다. 정리하자면, 전 형적인 거동의 경우, 좌우 화염면의 곡률반경R<sub>c,f</sub> 및 상부 화염면의 곡률반경R<sub>c,1</sub> 은 이론적인 화염의 곡률반경R<sub>c</sub>와 일치하였다.(즉, R<sub>c,f</sub> = R<sub>c,1</sub> = R<sub>c</sub>) 하지만 천이 거동과 부력 거동의 경우, Fig. 18b, 18c의 각 화염면 중심으로 그려진 직각삼각 형을 대상으로 분석할 때 이론적인 화염의 곡률반경R<sub>c</sub>은 좌우 화염면의 곡률반경 R<sub>c,f</sub>보다는 크고 상부 화염면의 곡률반경R<sub>c,1</sub>보다는 작았다.(즉, R<sub>c,f</sub> < R<sub>c</sub> < R<sub>c,1</sub>) 또한 이론적인 화염의 곡률반경을 기준으로 한 차이는 하부 화염면의 영향으로 인해 좌우 화염면의 곡률반경R<sub>c,f</sub>이 더 컸다.(즉, R<sub>c</sub> - R<sub>c</sub> - R<sub>c,1</sub>) 따라서, 기 존의 스트레치에 관한 이론은 부력의 영향으로 변형이 발생한 구형화염을 설명할 수 없었다.

Fig.18에서 관찰되는 화염변형 발생의 이유는 다음과 같다. 첫 번째로 유동방향 변형과 관계하여 부력에 의한 화염의 부상은 유동방향 성분n을 불균일하게 만든 다. 앞선 Fig. 5에서 우리는 상부 및 하부 화염면을 기준으로 화염의 이동에 따른 반응강도 차이의 발생을 설명하였다. 상부 화염면의 경우, 화염의 이동은 반응물 이 유입되는 유동을 야기한다. 반면 하부 화염면의 경우, 반응물이 유출되는 유동 을 야기한다. 이러한 화염면에 따른 유동의 영향은 Fig. 27b의 하부 화염면의 약 화로 관찰되듯 화염전파속도의 차이를 발생시켰다(Mizomoto et al., 1985). 두 번 째로 상부 및 하부 화염면에서 발생하는 유동방향 성분의 불균형은 접선방향의 변형을 야기한다. 또한 이러한 변형은 전파속도가 감소하는 화염면에 대하여 압  $축(즉, ∇_r \cdot V_r < 0)$ 되는 방향으로 작용한다. 특히나 좌우 화염면의 경우, 상부 및 하부 화염면에 의한 접선방향 변형의 영향을 받게 되므로 화염전파의 진행에 따



라 화염변위속도는 감소하게 되고 이 결과는 음의 마크스텐 길이로 나타난다. 기 존의 스트레치에 관한 이론에서 설명되듯 화염의 변형에 작용하는 두 요소는 서 로 복합적으로 작용한다(Matalon et al., 2003; Chung, 1988; Creta & Matalon, 2011; Law & Sung, 2000). 여기서 고려되어야 할 중요한 점은 부력에 의한 화염 전파속도의 감소와 혼합물의 루이스수*Le*에 의한 화염전파속도의 증가의 상쇄이 다. 혼합물의 루이스수*Le*> 1경우, 외부로 전파하는 구형화염의 스트레치 변화(즉, *K*→ 0)에 따라 화염전파속도는 증가한다(Kelley & Law, 2009; Chen, 2011; Creta & Matalon, 2011). Fig. 9a, 9b와 같이 구형화염의 발달과정에서 화염전파속도 증 가의 경향은 부력에 의한 화염전파속도의 감소보다 루이스수에 따른 화염전파속 도의 증가가 크기 때문으로 추측된다. 따라서 Fig. 11a, 11d에서 그래프의 기울기 가 점차 완만해지는 실험조건은 루이스수*Le*> 1에 해당함을 유추할 수 있다.



Fig. 17 Schlieren images for experimental conditions of  $(R_0, R_R)$ =(0.20, 0.70), (0.20, 0.75) and (0.40, 1.00). (a)  $r_f = 1 cm$ , (b)  $r_1 = 4.5 cm$ 





### 3.7 정확한 스트레치 없는 화염전파속도의 계산

#### 3.7.1 r1에서 부력의 영향

Collection @ kmou

앞선 Fig. 18의 각 화염면 중심으로 그려진 직각삼각형으로 나타난 곡률반경의 비교는 좌우 화염면 보다 상부 화염면의 변형이 작은 것으로 나타났다. 따라서 화염의 변형이 작은 데이터 구간을 대상으로,  $r_1$ 에서 화염의 이동거리를 제외한 값을 새로운 화염반경 $r_{f,1}$ 으로 사용한다면, 보다 정확한 화염전파속도의 계산이 가능할 것이다. 하지만 이러한 작업을 위해서는 3.6절에서 언급한 화염의 이동거 리 $L_r$ 에 대한 불확실성의 개선이 필요했다. 이 장에서는 구형화염에 미치는 물리 적 영향의 분석을 통해 실제 화염의 이동거리를 분석하였다.

형상적인 화염의 중심이 아닌 실제 화염의 중심을 확인하기 위해, 화염에 미치 는 부력의 영향을 분석하였다. 형상적인 화염의 중심은 Fig. 6의 계산된 화염의 이동거리 $L_r$ 를 사용했다. Fig. 19는 부력 거동의 실험조건들을 대상으로 시간에 따 른  $L_r$ 의 관계를 보여준다. 이 그래프를 통해 선형 회귀분석을 수행한 결과,  $L_r = 10.33967 + 0.01732t$ , R = 0.989 로계산되었으며 Choi et al. (2016)의 R134a와 R245fa 혼합물의 상승속도는 각각 17.28 cm/s와 17.32 cm/s로 거의 동일했다. 2차 비선형 회귀분석의 적용 결과,  $L_r = -0.15387 + 0.01177t + 0.0000364599t^2$ , R = 0.993으로 상관계수 값으로 미루어 볼 때 상승속도는 선형보다는 비선형에 가까웠다.

시간에 따른 계산된 화염의 이동거리<sub>L</sub>의 비선형적인 상관관계를 선행연구에서 는 부력과 항력의 상호작용에 따른 결과로 설명하였다(Choi ea al., 2016). 이 논 문에서 항력은 그 힘의 다양성으로 인해 일반화가 어려우므로 부력에 관해서만 논하겠다. 비정상상태 구형화염에서 부력의 관계식은 아래와 같이 표현된다.

$$F_b(t) = (\rho_u - \rho_b) \bullet g \bullet V(t) \tag{13}$$

여기서,  $F_b$ 는 부력(Buoyant force), g는 중력가속도이며 질량계에서 부력에 의한 정지된 물체의 이동거리 $L_r$ 는 중력가속도만이 관여한다. 따라서 중력가속도g가 상 수인 경우, 시간에 대한 적분을 통하여  $1/2 \cdot g \cdot t^2$ 로 계산된다. 이것은 시간에 따른 상승거리 $L_r$ 의 비선형적인 상관관계를 설명해 준다. 하지만 낙하탑을 활용한 시간

#### - 40 -

에 따른 가속도의 변화(田炳浩, 2008; Liu et al., 2016; Jang et al., 2014)에서 나타 나듯, 초기 중력가속도는 관성으로 인해 상수가 아니다. Fig. 20의 낙하탑 실험에 서 계측된 시간에 따른 가속도 변화에서 나타나듯, 중력가속도g는 낙하직후 급격 하게 상승하여 약 300 ms 이후 상수가 되었다(田炳浩, 2008). 자유낙하에 따른 물 체의 이동거리와 부력에 의한 물체의 이동거리는 동일하게 중력가속도g와 관계되 므로, Fig. 20의 중력가속도 그래프를 시간에 대한 적분을 통하여 Fig. 21에서 시 간에 따른 부력에 의한 구형화염의 이동거리를 실선(Solid line)으로 나타내었다. 부력 거동의 상승거리와 천이 거동의 형상적인 화염의 이동거리는 각각 점선 (Dash line)과 쇄선(Dot line)으로 나타내었다. 이 그래프를 통해 부력에 의한 화염 의 이동거리는 형상적인 이동거리보다 작았다.(즉, 부력거동 및 천이거동*L*<sub>r</sub> > 자유 낙하*L*<sub>r</sub>) 또한 부력에 의한 구형화염의 이동거리(Fig. 21의 실선)에 항력을 반영할 경우, 이 힘은 부력과 반대되는 반향으로 작용하기 때문에 그래프의 기울기는 더 욱 완만해질 것이다.



Fig. 19 The risen length of the flame  $L_r$  in terms of time for the buoyancy-induced regime



Fig. 20 The measured acceleration vs. time in drop tower



Fig. 21 The risen length of the flame  $L_r$  in terms of time for the free drop and each regime



#### 3.7.2 r1에서 부력 영향의 제거

Fig. 21을 통해 형상적인 화염의 이동거리보다 부력에 의한 화염의 이동거리가 작은 것을 확인하였다. 하지만 실제 화염의 이동거리를 계산하기 위해서는 초기 점화의 영향에 따른 화염 중심의 이동(Kelley et al., 2012; Beeckmann et al 2017) 과 화염의 부상에서 발생하는 항력의 영향(Choi et al., 2016)이 고려되어야 했다. 다만, Fig.21의 부력에 의한 화염의 이동거리를 통해 화염전파 초기에는 부력의 영향이 비교적 작으며, 약 200 ms 내에서는 그 영향을 무시할 수 있었다. 따라서 천이 거동과 부력 거동의 경우, 본 연구에서는 초기 점화의 영향 및 화염에 대한 부력의 영향이 상대적으로 작은 1 < r<sub>1</sub> < 1.2*cm*의 데이터 구간을 준안정상태로 하 였다.

위의 데이터 구간을 대상으로 화염전파속도를 계산하였으며, Fig. 22a-d는 각 산소농도에서 R245fa의 농도에 따른 스트레치-화염전파속도의 관계를 보여준다. 초기 상부 화염반경r,을 사용하여 계산된 각 실험조건에서의 스트레치 없는 화염 전파속도Su는 Fig. 23를 통해 나타내었으며 좌우 화염반경rf으로 계산된 값과 비 교하였다. 전형적이 거동에서 초기 상부 화염반경r1과 좌우 화염반경rf의 스트레 치 없는 화염전파속도*S.*는 거의 동일했는데 이것은 화염면에 관계없이 화염반경 및 스트레치가 동일한 전형적인 거동의 특징 때문이다. 이와 대조적으로, 천이 거 동과 부력 거동의 스트레치 없는 화염전파속도S, 는 화염반경 및 스트레치의 차이 로 인해 전체적으로 크게 증가하였다. Fig. 24를 통해 각각의 연료에서 냉매 농도 에 따른 비교에서, 좌우 화염반경r,을 사용한 결과와 마찬가지로 초기 상부 화염 반경r1을 사용한 경우에도 R134a보다 R245fa 혼합물의 스트레치 없는 화염전파속 도S"가 더 빨랐다. 또한 두가지 냉매를 사용한 실험데이터를 종합한 결과, Choi et al. (2016) 실험의 (R<sub>0</sub>=0.30, R<sub>R</sub>=0.60)를 제외하면 전형적인 거동과 천이 거동은 135 cm/s (오차: ±5)를, 천이 거동과 부력 거동은 35.5 cm/s (오차: ±1)를 경계로 구분되었다. 앞서 Fig. 15의 좌우 화염반경r,를 사용한 경우 천이 기동과 부력 거 동 구분의 경계가 확인되지 않은 반면, 초기 상부 화염반경rf1의 사용은 선형모 델의 점근해석에서 발생하는 불확실성을 개선하므로써 구형화염의 거동에 대한 일관성있는 특징이 설명하였다. 이러한 결과는 선행 연구[5]에서 부력을 대표하는 평균상승속도(Average rising speed,  $U_{r,avg}$ )와 스트레치 없는 화염전파속도를 대신



하는 층류연소속도 $S_L$ 의 비율(즉,  $S_L/U_{r,avg}$ )로써 화염의 부상거동을 구분한 것과 관련하여 초기 상부 화염반경  $r_{f,1}$ 의 사용은 부력의 영향을 배제하여 스트레치 없 는 화염전파속도만으로도 부상거동의 구분이 가능함을 보였다.









**Fig. 22** The displacement speed according to stretch rate for various  $R_R$  conditions using initial upper flame radius  $r_{f,1}$  (a)  $R_O$ =0.15 (b)  $R_O$ =0.20 (c)  $R_O$ =0.30 (d)  $R_O$ =0.40



Fig. 23 The unstretched flame speed according to the variation in  $R_R$  and  $R_O$  for comparison in each characteristic flame radius





#### 3.8 화염전파속도의 검증 및 불확실성

지구중력 환경에서 실험한 화염전파속도의 정확성을 검증하는 가장 좋은 방법 은 마이크로 중력(Micro-gravity) 환경의 실험이다(Qiao et al., 2007; Qiao et al., 2008; 田炳浩, 2008; Liu et al., 2016; Jang et al., 2014). 마이크로 중력환경을 만 들기 위한 가장 현실적인 방법은 낙하탑을 이용하는 것이다. 하지만 낙하탑의 실 험은 큰 규모의 실험장치들에 대한 소형화를 필요로 하며 완전한 마이크로 중력 환경에서 점화 및 화염전파를 관찰하기 위해서는 약 20 m 이상의 낙하높이가 필 요로 하며 이것은 연구자들에게 매우 어려운 실험조건이다.

따라서 이 연구에서는 차선책으로써 제한된 준안정상태에서 초기 상부 화염반 경r,을 사용한 화염전파속도의 계산을 제안하였다. 이 방법으로 계산된 화염전파 속도의 정확성을 확인하기 위하여 2가지 방법으로 검증하였다. 첫번째 방법은 메 탄만을 연료로 사용한 실험조건을 대상으로 한 시뮬레이션이다. 메탄은 현재 다 양한 실험장치들을 통해서 반응 메커니즘과 열역학적 물성치가 충분히 발전되었 기 때문에 시뮬레이션을 통하여 정확한 층류연소속도 Sr 및 스트레치 없는 화염 전파속도  $S_u$ 를 계산할 수 있다(Chen, 2011; Chen, 2009). 이 계산에는 Reaction Design사에서 제공하는 CHEMKIN-Pro의 Premixed Laminar Flame-Speed Calculation model (Reaction Design Inc., 2008)을 사용하였으며 상세 반응 메커니 즘은 325가지의 반응과 53개의 화학종을 포함하는 GRI-3.0 (Bowman et al., 1999) 을 적용하였다. Fig. 25는 시뮬레이션으로 계산된 스트레치 없는 화염전파속도Su 를 기준으로 좌우 화염반경r<sub>f</sub> 및 초기 상부 화염반경r<sub>1</sub>으로 각각 계산된 스트레 치 없는 화염전파속도Su의 오차(Error)를 나타낸 그래프이다. 이 그래프에서 열린 동그라미는 r<sub>f</sub>를, 닫힌 세모는 r<sub>f1</sub>를 사용한 경우이다. 시뮬레이션 결과, 메탄만을 연료로 사용한 모든 실험조건에서  $r_f$ 에 비해  $r_{f,1}$ 을 사용한 경우 스트레치 없는 화염전파속도Su의 오차가 감소하였다. 하지만 천이 거동에 해당하는 (Ro=0.15, R<sub>B</sub>=0.00)의 경우, 스트레치 없는 화염전파속도S<sub>u</sub>의 오차는 25%에서 15.6%로 가장 크게 감소하였음에도 불구하고 여전히 상당한 오차가 남아있었다. 그래프로 나타 내지 않았지만 해당 실험조건의 경우, 범용으로 사용되는 다른 반응 메커니즘들 (Bowman et al., 1999; San Diego Mechanism, 2016; Wang et al., 2007)간에도 최



대 9% 가량의 차이가 존재하므로 15.6%의 오차는 그 정확성을 신뢰할 수 있다고 판단되었다. 하지만 다른 실험조건들과 비교하여 상대적으로 큰 오차가 존재함은 분명했다. 그 원인에 관해서는 정확한 준평형상태의 선정과 관련하여 3.9절에서 다루도록 하겠다.

스트레치 없는 화염전파속도 S<sub>u</sub>의 정확도를 검증하는 두번째 방법은 선행 연구 에서 사용한 화염전파속도와 반응물 조성간의 상관관계이다. 이것은 열적 화염 이론(Kuo, 2005)을 기반으로 층류연소속도와 반응률(Reaction rate, ω)의 상관관계 (즉, S<sub>L</sub><sup>α</sup> (α•ω)<sup>0.5</sup>, α: 열확산계수), 그리고 화학반응에 기초한 반응률과 반응물 조성의 상관관계(즉, ω = k•[A]<sup>n</sup>•[B]<sup>m</sup>, k: 반응률상수, [A]: 산화제 조성, [B]: 연료 조성, n과 m: 각 조성의 지수)를 통하여 아래의 식으로 정리된다(Choi et al., 2016).

LILD .

(14)

$$S_u[cm/s] = a \bullet R_0^b \bullet (1 - R_R)^c$$

여기서 a는 비례상수이고 b와 c는 각 화학종 조성의 지수이다. (식 14)에서 연료 의 R245fa와 산화제의 질소는 반응 억제제의 역할을 하므로 고려하지 않았다. Fig. 26은 (식 14)에 대한 화염전파속도∝ 반응률의 관계를 확인하기 위해 절편값 0을 대상으로 회귀분석을 수행하였으며 그 결과는 아래와 같다.

$$S_u[cm/s] = 0.99502 \cdot \{12,835 \cdot R_0^{2.58} \cdot (1-R_R)^{1.06}\}, R = 0.99$$
: 전형적인 거동

$$S_u[cm/s] = 0.97596 \bullet \{79,869 \bullet R_0^{3\cdot 84} \bullet (1-R_R)^{1\cdot 29}\}, R = 0.98$$
: 천이 거동

$$S_u[cm/s] = 1.25417 \cdot \{3E + 12 \cdot R_0^{12.5} \cdot (1 - R_R)^{3.45}\}, R = 0.87$$
: 부력 거동

전형적인 거동과 천이 거동의 경우, 0.98 이상의 매우 높은 상관계수(Coefficient of correlation)가 나타났다. 이것은 Choi et al. (2016)의 연구중 천이 거동의 상관 계수 *R*=0.92와 비교하여 매우 높은 값이다. 부력 거동의 경우에도, 선행 연구와 비교해 상관계수*R*=0.77에서 *R*=0.87로 크게 향상되었다. 하지만 이 값은 그 불확 실성을 무시가능한 수준은 아니었다. (식 14)로 표현한 화염전파속도와 반응률의

관계의 경우, 전형적인 거동과 천이 거동은 기울기 1에 가까운 반면 부력 거동은 1.25417로 크게 증가하였다. 이것은 부력 거동에서 존재하는 불확실성을 나타낸 다.

메탄을 대상으로 한 스트레치 없는 화염전파속도  $S_u$ 의 시뮬레이션과 화염전파 속도와 반응물 조성간의 상관관계를 활용한 위와 같은 검증을 통해, 부력의 영향 이 작은 데이터 구간에 대하여  $r_f$ 와 비교하여  $r_{f,1}$ 이 보다 정확한 스트레치 없는 화염전파속도의 계산에 적합함을 확인하였다. 이러한 제안된 계산방법의 사용은 천이 거동에 까지 그 정확성을 신뢰할 수 있었다.



Fig. 25 The error of calculated unstretched flame speed with simulation and experiment using each characteristic flame radius



Fig. 26 Comparison of the uncertainty in the measurement of laminar burning velocity in three regimes using initial upper flame radius  $r_1$ 

#### 3.9 준정상상태 범위에 관한 고찰

초기 상부 화염반경r<sub>1</sub>을 사용한 화염전파속도의 계산으로 이전보다는 향상된 정확성은 앞선 검증을 통해 확인되었으나 부력 거동의 경우 그 값에 대한 불확실 성은 여전히 존재했다. 3.8절에서 부력 거동의 경우 화염전파속도와 반응률의 상 관관계가 비교적 낮게 나타난 것이 그 불확실성의 증거이다. 이러한 불확실성의 원인을 확인하기 위해 화염에 대한 형상적 분석을 수행하였다.

Fig. 27는 부력 거동 중에서도 화염의 부상이 가장 크게 나타난 ( $R_o$ =0.15,  $R_R$ =0.40), ( $R_o$ =0.15,  $R_R$ =0.45), ( $R_o$ =0.30,  $R_R$ =0.95) 조건에 대하여 화염반경에 따른 슐리렌 이미지를 보여준다. 이 연구에서 준정상상태로 사용한  $1 < r_1 < 1.2 cm$ 의 이미지를 보면, 마크스텐 길이가 음수로 나타난 ( $R_o$ =0.15,  $R_R$ =0.45)의 경우 다른 실험조건과 비교하여  $r_1$ =1.0에서 1.2 cm로 화염전파가 진행되면서 화염의 변형이 발생하였다. 즉, 해당 실험조건에서는  $1 < r_1 < 1.2 cm$ 의 데이터 구간이 준정상상태 가 아님을 유추할 수 있었다. 앞에서 언급하였듯 준정상상태의 선정은 초기점화 와 외벽의 의한 영향을 배제한 데이터 구간이며 이 연구에서는 부력의 영향을 추 가로 고려하였다. 이를 바탕으로 다른 실험조건과의 균형있는 비교를 위해 부력 조건의 경우에 대하여 데이터 구간을  $1 < r_1 < 1.2 cm$ 에서  $1.0 < r_1 < 1.1 cm$ 와  $1.1 < r_1 < 1.2 cm$ 로 변경하였다. Fig. 28은 데이터 구간에 따른 화염전파속도와 반 응률의 상관관계를 비교한 그래프이다. Fig. 26과는 다르게, 이 그래프에서는 부력 조건만을 대상으로 하였으며 변경된 데이터 구간의 그 결과는 아래와 같았다.

데이터 구간을 1 < r<sub>1</sub> < 1.2*cm*에서 1.0 < r<sub>1</sub> < 1.1*cm*와 1.1 < r<sub>1</sub> < 1.2*cm*로 변경 함에 따라 비례상수a와 화학종 조성의 지수 b, c는 이전에 비해 감소하였으며 화 염전파속도∝반응률의 관계에서 완만한 기울기의 변화와 함께 상관계수는 각각 R=0.94 및 0.95로 향상되었다. 따라서 부력 거동의 경우 다른 부상 거동들과 비교 하여 준정상상태가 다르게 위치하는 것으로 추측된다.



Fig. 27 Schlieren images for showing deformation of flame front as propagation



Fig. 28 Comparison of the uncertainty in the measurement of unstretched flame speed in buoyancy-induced regimes in each data range

#### 3.10 실용적 측면의 기대효과

이 연구는 R245fa 혼합물의 연소를 통해 화염전파속도의 측정과 그 화염의 특 징적인 거동을 관찰하였다. 해당 냉매는 HFC계열로 오존층 파괴물질은 아니지만 온실가스로써 지구온난화를 가속화하는 물질이다. 실험의 혼합연료로는 메탄을 사용하여 폐냉매의 소각처리 방법과 동일한 조건에서 실험을 수행했다(UNEP, 2011). 때문에 이 장에서는 소각처리를 통한 냉매의 폐기가 가져오는 지구온난화 문제에서의 실용적인 효과를 다루었다.

Table. 2는 R245fa/메탄/산소/질소 혼합물에서 연소전후 발생하는 온난화지수를 정리한 표이다. 이러한 비교방식은 Choi et al. (2016)의 연구에서 R134a 혼합물에 관하여 보인바 있다. 지구온난화지수(GWP, global warming potential)는 이산화탄 소 lkg이 미치는 온실효과를 1로 규정하여 다른 온실가스들의 지구온난화에 기여 하는 정도를 수치화한 단위이다(Montzka et al., 2011; EPA's center, 2015). 이 표 에서 R245fa 및 메탄의 온난화지수는 100년의 시계를 기준으로 각각 1,030 및 25 GWPs이며(EPA's center, 2015), 이 실험에서 사용한 연료 중 냉매 혼합비율  $R_{R}$ 의 증가에 따라 반응물의 온난화지수는 크게 증가하였다. 반면 생성물인 이산화탄소 의 온난화지수는 1에서 2 GWPs로 매우 조금 증가하였다. Fig. 29은 냉매 농도에 따른 온난화지수 비율과 최대 효율을 보여준다. 여기서, [온난화지수의 비율 = 생 성물의 온난화지수 / 반응물의 온난화지수]이고 [효율 = 해당 냉매조성에서의 온 난화지수 비율 / 최대 온난화지수 비율] 이다. 반응물과 생성물의 온난화지수를 비교할 때 냉매를 연소함에 따라 최대 515배까지 온난화지수가 감소하였다. 또한 연료 중 냉매 조성 R<sub>R</sub>=0.10의 소량 혼합으로도 최대 효율의 67%에 달하는 효과 적인 감소를 보였다. 뿐만 아니라 냉매의 소량 혼합에 따른 메탄의 과농조건의 경우 연소 중 메탄의 누설이 지구온난화에 미치는 영향을 우려할 수 있지만, 메 탄의 수명이 9년으로 non-CO₂ 가스들 중에서도 상대적으로 짧기 때문에(Montzka et al., 2011) 연소방식에서 메타의 누설이 지구온난화에 차지하는 영향은 매우 작 을 것이다. 이러한 결과를 종합하면 단계적인 환경규제의 강화를 통해 기존의 HFC 계열의 냉매를 폐기할 경우, 연소방식을 활용하면 지구온난화 문제의 완화에 기여할 것으로 기대된다.

Mole fraction	Mass fraction	GWP	(100-year time ho	orizon)	GWP of reactants, GWP <sub>reac</sub>	GWP of products, GWP <sub>prod</sub>	Total GWP ratio
$R_{ m R}$	$R_{ m R}$	$R_R \cdot C_3 H_3 F_5$	$(1-R_R) \cdot CH_4$	$(1+R_R)\cdot CO_2$	$\sum_{reac} m_i GWP_i$	$\sum_{prod} m_i GWP_i$	$GWP_{reac} / GWP_{prod}$
0.00	0.00	0.00	25.00	1.00	25.00	1.00	25.00
0.10	0.48	495.91	12.96	1.48	508.87	1.48	343,49
0.20	0.68	696.58	8.09	1.68	704.67	1.68	420.37
0.30	0.78	805.18	5,46	1.78	810.63	1.78	454.97
0.40	0.85	873.25	3.80	1.85	877.06	1.85	474.64
0.50	0.89	919.92	2.67	1.89	922.59	1.89	487.34
0.60	0.93	953.90	1.85	1.93	//////955.75	1.93	496.20
0.70	0.95	979.75	1.22	1.95	980.97	1.95	502.75
0.80	0.97	1000.08	0.73	1.97	1000.81	1.97	507.78
0.90	0.99	1016.48	0.33	1.99	1016.81	1.99	511.76
1.00	1.00	1030.00	0.00	2.00	1030.00	2.00	515.00

Table
$\sim$
The
calculated
GWPs
of
R245fa
and
$CH_4$
mixed
fuel



Fig. 29 Total GWPs ratio and efficiency for various  $R_R$ 

# 제 4 장 결론

이 연구는 선행된 R134a의 실험(Choi et al., 2016)과 연관되어 R245fa/메탄/산소 /질소 혼합물의 외부로 전파하는 구형화염의 화염전파속도와 부상거동을 정적 연 소실을 활용하여 관찰하였다.

#### 1. 혼합물의 물성치 및 가연한계

R245fa 혼합물의 스트레치 없는 화염전파속도 S<sub>u</sub>는 기존의 화염반경 r<sub>f</sub>을 사용 하여 계산되었다. 그 값은 연료 중 냉매 비율의 증가에 따라 점차 감소하였으며, 산화제 중 산소 비율의 증가에 따라 크게 증가하였다. 전제적으로 화염전파속도 는 R134a에 비해 R245fa 혼합물이 더 빨랐으며(Fig. 16), 마크스텐 길이는 일부 전형적인 거동을 제외하고는 대부분 음수로 나타났다(Fig. 17). 따라서 Fig. 11에 나타낸 냉매 농도에 따른 부상거동의 메핑은 R134a와 비교하여 전체적으로 오른 쪽으로 이동하였으며 이것은 가연한계는 증가를 의미한다. R245fa 혼합물의 실험 의 경우, Choi et al. (2016)의 실험에서는 발견되지 않은 현상으로 몇몇 실험조건 에서 선형피팅의 점근해석 적용이 어려운 경우가 확인되었다. 그 결과, r<sub>f</sub>를 사용 한 R245fa 혼합물의 스트레치 없는 화염전파속도의 경우 천이 거동과 부력 거동 을 구분하는 경계가 관찰되지 않았다.

#### 2. 준정상상태의 정의

이 문제를 분석하는 과정에서 좌우 화염반경<sub>rf</sub>이 실제 화염반경과 차이가 있음 을 발견하였고 화염 스트레치의 분석을 통해 그 원인은 부력에 의한 화염면의 변 형이었다. 좌우 화염반경<sub>rf</sub>은 부력에 의한 화염면의 변형 때문에 준정상상태를 정 의하기 어려웠으며 선행 연구(Choi et al., 2016)에서도 언급하였듯 천이 거동과 부력 거동에서 스트레치 없는 화염전파속도의 불확실성이 매우 컸다. Fig. 18b, 18c의 분석을 통해 상부 화염면이 좌우 화염면에 비해 부력에 의한 화염면 변형 이 상대적으로 작았다. 또한 Fig.21의 부력에 의한 화염의 이동거리를 통해 화염



전파 초기에는 부력의 영향이 비교적 작다. 따라서 천이 거동과 부력 거동의 경 우, 본 연구에서는 초기 점화의 영향 및 화염에 대한 부력의 영향이 상대적으로 작은 1<r1<1.2cm의 데이터 구간을 준안정상태로 정의하였다.

#### 3. 수정된 화염반경의 제안

초기 상부 화염반경r<sub>1</sub>으로 계산된 스트레치 없는 화염전파속도S<sub>u</sub>는 좌우 화염 반경r<sub>f</sub>의 값과 비교하여 전형적인 거동에서는 거의 동일하였으나 천이 거동과 부 력거동에서는 크게 증가했다. 또한 선행 연구(Choi et al., 2016)에서 부력을 대표 하는 평균상승속도(Average rising speed, U<sub>r,avg</sub>)와 층류연소속도S<sub>L</sub>의 비율을 통해 화염의 부상거동을 구분한 것과 관련하여 초기 상부 화염반경r<sub>f,1</sub>의 사용은 부력 의 영향을 배제하여 스트레치 없는 화염전파속도만으로도 부상거동의 구분이 가 능함을 보였다.

### 4. 제안의 검증

# ATTIME AND OCEAN

계산된 스트레치 없는 화염전파속도 $S_u$ 의 검증위해 메탄만을 연료로 사용한 실 험조건을 대상으로 시뮬레이션을 수행하였다. 그 결과 좌우 화염반경  $r_f$ 보다 초기 상부 화염반경  $r_{f,1}$ 이 그 계산된 값의 오차가 감소하였다. 또한 화염전파속도와 반응률의 비례관계를 통해 초기 상부 화염반경  $r_{f,1}$ 의 사용이 불확실성을 많이 감 소시켰고 그 정확도는 천이 거동까지 만족하였다. 하지만 부력 거동의 경우 계산 값의 불확실성이 여전히 존재했으며 이는 준정상상태 구간의 변경을 통하여 개선 되었다.

#### 5. 실용적 효과

🕖 Collection @ kmou

외부로 전파하는 구형화염의 실험을 통해 R245fa 혼합물의 연소특성을 적용하 여 냉매를 폐기할 경우, R245fa와 메탄이 이산화탄소로 산화되면서 최대 515배까 지 온난화지수가 감소하며  $R_R$ =0.10의 소량 냉매 혼합으로도 최대 냉매량과 비교 하여 67% 높은 효율을 보였다. 소량 냉매 혼합에 따른 높은 메탄 비율에 따른 누 설 우려의 경우, 메탄의 짧은 수명으로 인해 온실가스로써의 영향은 작을 것으로 예상되기에 연소를 통한 냉매의 폐기가 지구온난화 문제의 완화에 기여할 것으로 기대된다.

## 참고문 헌

- UNEP, 2012. Handbook for the Montreal Protocol on Substances that Deplete the Ozone Layer, 9th Edition, UNEP.
- UNEP, 2011. *HFCs: A Critical Link in Protecting Climate and the Ozone Layer*, November 2011, UNEP Synthesis Report.
- S.A. Montzka, E.J. Dlugokencky & J.H. Butler, 2011. "Non-CO2 greenhouse gases and climate change", *Nature*, Vol. 476, pp. 43-50.
- UNEP, 2011. Report of the UNEP Technology and Economic Assessment Panel, May 2011, UNEP Progress Report.
- B.C. Choi, J.S. Park & A.F. Ghoniem, 2016. "Characteristics of outwardly propagating spherical flames of R134a(C<sub>2</sub>H<sub>2</sub>F<sub>4</sub>)/CH<sub>4</sub>/O<sub>2</sub>/N<sub>2</sub> mixtures in a constant volume combustion chamber", *Energy*, Vol. 95, pp. 517–527.
- G.E. Andrew & D. Bradley, 1972. "Determination of burning velocities: A critical review", *Combust. Flame*, Vol. 18, pp. 133–153.
- A.P. Kelley & C.K. Law, 2009. "Nonlinear effects in the extraction of laminar flame speeds from expanding spherical flames", *Combust Flame*, Vol. 156, pp. 1844–1851.
- C.K. Wu & C.K. Law, 1984. "On the determination of laminar flame speeds from stretched flames", *Proc. Combust. Inst.*, Vol. 20, pp. 1941–1949.
- Z. Chen, 2011. "On the extraction of laminar flame speed and Markstein length from outwardly propagating spherical flames", *Combust. Flame*, Vol. 158, pp. 291–300.
- A.P. Kelley, J.K. Bechtold & C.K. Law, 2012. "Premixed flame propagation in a confining vessel with weak pressure rise", J. Fluid Mech., Vol. 691, pp. 26–51.
- F. Wu, W. Liang, Z. Chen, Y. Ju & C. K. Law, 2015. "Uncertainty in stretch extrapolation of laminar flame speed from expanding spherical flames", *Proc. Combust. Inst.*, Vol. 35, pp. 663–670.

- J. Beeckmann, R. Hesse, S. Kruse, A. Berens, N. Peters, H. Pitsch & M. Matalon, 2017. "Propagation speed and stability of spherically expanding hydrogen/air flames: Experimental study and asymptotics", *Proc. Combust. Inst.*, Vol. 36, pp. 1531–1538.
- Y. Rastigejev & M. Matalon, 2006. "Nonlinear evolution of hydrodynamically unstable premixed flames", *J. Fluid Mech.*, Vol. 554, pp. 371–392.
- M. Matalon, C. Cui & J.K. Bechetold, 2003. "Hydrodynamic theory of premixed flames: effects of stoichiometry, variable transport coefficients and arbitrary reaction orders", *J. Fluid Mech.*, Vol. 487, pp. 179–210.
- G.K. Giannakopoulos, M. Matalon, C.E. Frouzakis & A.G. Tomboulides, 2015.
  "The curvature Markstein length and the definition of flame displacement speed for stationary spherical flames", *Proc. Combust. Inst.*, Vo. 35, pp. 737–743.
- W.S. Song, S.W. Jung, J. Park, O.B. Kwon, Y.J. Kim, T.H. Kim, J.H. Yun & S.I. Keel, 2013. "Effects of syngas addition on flame propagation and stability in outwardly propagating spherical dimethyl ether-air premixed flames", *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol. 38, pp. 14102–14114.
- Y. A. Cengel, M.A. Boles, 2011. *Thermodynamixs: An Engineering Approach*, 7th Edition, MaGraw-Hill Korea, Inc., pp. 702–703
- W. Grosshandler, M. Donnelly, C. Womeldorf, 1998. "Lean flammability limit as a fundamental refrigerant property Phase III", NISTIR 6229
- K. Takizawa, A. Takahashi, K. Tokuhashi, S. Kondo, A. Sekiya, 2006.
  "Reaction stoichiometry for combustion of fluoroethane blends", ASHRAE Trans, Vol. 112, pp. 459–468.
- L. Qiao, Y. Gu, W.J.A. Dahm, E.S. Oran & G.M. Faeth, 2007. "Near-limit laminar burning velocities of microgravity premixed hydrogen flames with chemically-passive fire suppressants", *Proc. Combust. Inst.*, Vol. 31, pp. 2701–2709.
- F.A. Williams, 1975. "Analytical and Numerical Methods for Investigation of Flow Fields with Chemical Reactions, Especially Related to Combustion",


AGARD Conference Proceedings, No. 164.

- M. Mizomoto, Y. Asaka & S. Ikai, 1985. "Effects of preferential diffusion on the burning intensity of curved flames", *Symposium (International) on Combustion*, Vol. 20, pp. 1933–1939.
- S.H. Chung, 1985. "Phenomenological Derivation of the Effects of Flame Stretch and Preferential Diffusion on Premixed Flame", *Transaction of the Korean Society of Mechanical Engineers*, Vol. 9, pp. 655–662.
- S.H. Chung & C.K. Law, 1984. "An Invariant Derivation of Flame Stretch", *Combust. Flame*, Vol. 55, pp. 123-125.
- B. Karlovitz, D.W. Denniston, D.H. Knapschafer, F.E. Wells, 1953. "Studies on Turbulent Flames," *Proc. Combust. Inst.*, Vol. 4, pp. 613–620.
- F.A. Williams, 1965. Combustion Theory, Addison-Wesley, pp. 98.
- S.H. Chung, 1988. "An Integral Analysis of the Structure and Propagation of Stretched Premixed Flames", *Combust. Flame*, Vol. 72, pp. 325–336.
- K.K. Kuo, 2005. Principles of combustion, 2nd Edition, John Wiley & Sons Inc.
- J.J. Byun, 2012. "Laminar Flame Speed Measurement using Combustion Pressure Trace in Constant Volume Spherical Chamber", *Journal of Korean Society of Combustion*, Vol. 17(2), pp. 1–8.
- Z. Chen, M.P. Burke & Y. Ju, 2009. "Effects of Lewis number and ignition energy on the determination of laminar flame speed using propagating spherical flames", *Proc. Combust. Inst.*, Vol. 32, pp. 1253–1260.
- U.J. Pfahl, M.C. Ross, J.E. Shepherd, K.O. Pasamehmentoglu & C. Unal, 2000. "Flammability Limits, Ignition Energy, and Flame Speeds in H<sub>2</sub>-CH<sub>4</sub>-NH<sub>3</sub>-N<sub>2</sub>O-O<sub>2</sub>-N<sub>2</sub> Mixtures", *Combust. Flame*, Vol. 123, pp. 140-158.
- C.K. Wu & C.K. Law, 1984. "On the determination of laminar flame speeds from stretched flames", *Proc. Combust. Inst.*, Vol. 20, pp. 1941–1949.
- F. Creta & M. Matalon, 2011. "Strain rate effects on the nonlinear development of hydrodynamically unstable flames", *Proc. Combust. Inst.*, Vol. 33, pp. 1087–1094.
- P. Clavina, 1985. "Dynamic behavior of premixed flame fronts in laminar and



Collection @ kmou

turbulent flows", Prog. Energy Combust. Sci., Vol. 11, pp. 1-59.

- D. Bradley, P.H. Gaskell & X.J. Gu, 1996. "Burning velocities, Markstein lengths, and flame quenching for spherical methane-air flames: a computational study", *Combust. Flame*, Vol. 104, pp. 176–198.
- D. Bradley, R.A. Hicks, M. Lawes, C.G.W. Sheppard & R. Woolley, 1998. "The measurement of laminar burning velocities and Markstein numbers for iso-octaneeair and iso-octaneen-heptaneeair mixtures at elevated temperatures and pressures in an explosion bomb", *Combust. Flame*, Vol. 115, pp. 126–144.
- X.J. Gu, M.Z. Haq, M. Lawes & R. Woolley, 2000. "Laminar burning velocity and Markstein lengths of methane air mixtures", *Combust. Flame*, Vol. 121, pp. 41–58.
- C.K. Law & C.J. Sung, 2000. "Structure, aerodynamics, and geometry of premixed flamelets", *Prog. Energy Combust. Sci.*, Vol. 26, pp. 459–505.
- F.A. Williams, 1985. *Combustion theory*, 2nd Edition, Redwood City, CA: Addison Wesley.
- L. Qiao, W.J.A. Dahm & G.M. Faeth, 2008. "Burning Velocities and Flammability Limits of Premixed Methane/Air/Diluent Flames in Microgravity", 46th Aerospace Sciences Meeting and Exhibit, AIAA 2008–959.
- A. Monnhomme, L. Selle & T. Poinsot, 2013. "Curvature and confinement effects for flames peed measurements in laminar spherical and cylindrical flames", *Combust. Flame*, Vol. 160, pp. 1208–1214.
- P. Clavin & J.C. Graña-Otero, 2011. "Curved and stretched flames: the two Markstein numbers", J. Fluid Mech., Vol. 686, pp. 187–217.
- 田炳浩, 2008. "微小重力環境を利用した同軸噴流拡散火炎の すす生成に及ぼす低 速周囲空気流影響の研究", Ph.D. 札幌: 北海道大学大学院.
- T. Y. Liu, Q. P. Wu, B. Q. Sun & F. T. Han, 2016. "Microgravity Level Measurement of the Beijing Drop Tower Using a Sensitive Accelerometer", *Scientific Reports*, Vol. 6, No. 31632.



- H.J. Jang, J.H. Lee, J.H. Choi & S.H. Park, 2014. "Performance Evaluation of inertial Balance for Measuring mass in Macrogravity", *Tran. Korean Soc. Mech. Eng. A*, Vol. 38, pp. 1395–1401.
- Z. Chen, 2009. "Effects of hydrogen addition on the propagation of spherical methane/air flames: A computational study", *Int. J. Hydrogen Energ.*, Vol. 34, pp. 6558–6567.
- CHEMKIN-PRO, 2010. Release 15131, Reaction Design Inc., San Diego, CA.
- C. T. Bowman, M. Frenklach, W. R. Gardiner & G. Smith, 1999. *The GRI 3.0 Chemical Kinetics Mechanism*, <a href="http://www.me.berkeley.edu/gri\_mech">http://www.me.berkeley.edu/gri\_mech</a>
- San Diego Mechanism, 2016. version 2016–08–15, http://web.eng.ucsd.edu/ mae/groups/combustion/mechanism.html.
- H. Wang, X. You, A.V. Joshi, S.G. Davis, F. Egolfopoulos & C.K. Law, 2007. USC mech version II. high-temperature combustion reaction model of H2/CO/C1-C4 compounds. May 2007, http://ignis.usc.edu/USC\_Mech\_II.htm
- EPA's center for corporate climate leadership. 2015. *Emission factors for greenhouse gas inventories*. version 2015–11–19.



