

넓은 당량비 구간에서 수소 함유량에 따른 합성가스(H₂/CO)-공기 예혼합 화염의 층류연소속도에 관한 연구

정병규* · 황철홍** · 이기만*†

A study on the laminar burning velocity according to the H₂ content variation in a large range of equivalence ratio of syngas(H₂/CO)-air premixed flames

Byeong-Gyu Jeong*, Cheol-Hong Hwang**, Kee-Man. Lee*†

ABSTRACT

In this study, syngas laminar burning velocities with various hydrogen contents were studied using both experimental measurements and kinetic simulations. The laminar burning velocities were measured by the angle method of Bunsen flame configuration and the numerical calculations including burning velocities were made using CHEMKIN Package with USC-Mech II. A large range of syngas mixture compositions such as 10:90%, 25:75%, 50:50%, 75:25% and equivalence ratio from lean condition of 0.5 to rich condition of 5.0 have been conducted. The experimental results of burning velocity were in good agreement with previous other research data and numerical simulation. Also, it was shown that the experimental measurements of laminar burning velocity linearly increased with the increasing of H₂ content although the flame speed of hydrogen is faster about ten times than carbon monoxide. This phenomenon is attributed to the rapid production of the hydrogen related radicals such as H and OH at the early stage of combustion, which is confirmed the linear increasing of radical concentrations on kinetic simulation.

Key Words : Synthetic gas, Bunsen flame, Laminar burning velocity, Hydrogen content, Kinetic simulation, Radical reaction

천연가스 및 원유 그리고 화석연료의 무분별한 사용으로 인해 지구온난화 문제와 대기 오염 그리고 열 오염 등의 문제가 심각해지고 있다. 이러한 문제들을 해결하기 위해 기존의 화석연료에 대한 의존을 탈피하기 위한 노력이 활발히 진행되고 있다. 그 일환의 하나로 합성가스(Synthetic gas)를 활용하는 방향으로 연구가 많이 진행되고 있는데 이러한 합성가스는 제철소 및 정유사의 공정에서 발생하는 부생가스와 석탄의 가스화 공정 등에서 발생하는 혼합 가스이다. 특히 석탄 가스화 공정에서 발생하는 합성가스는 석탄가스 화복합발전(IGCC)에서 사용되는 주된 연료로 발열량이 낮아 저급의 연료로 분류되지만, 이 합성연료의 주성분이 H₂ 와 CO로 되어 있어, 연소

효율 및 연소 배출물 발생에 있어서는 우수한 성능을 갖는 것으로 잘 알려져 있다.

그런데 일반 탄화수소 연료에 비해 연소속도가 매우 빠른 합성가스 주요 성분인 H₂의 함유량 차이는 점화와 역화현상, 화염불안정 등 연소 성능에 큰 영향을 미칠 것으로 판단된다. 이에 따라 화염의 안정성과 최적화를 위한 설계정보를 도출하기 위해 연료의 성분비와 당량비 변화와 같은 연소기 운전조건에 따른 보다 상세한 연소속도의 정보가 요구된다. 연료와 공기가 예혼합된 상태에서의 미연가스에 관련된 화염속도나 화염의 전파 과정은 연소기의 기본성능과 배기성능에 직접적인 영향을 미치게 된다. 그 중에서도 주성분이 H₂와 CO의 조성비 변화에 따른 연소현상, 특히 미래 에너지원의 중요한 역할을 할 것으로 기대되는 수소 성분이 포함되는 경우 화염의 안정화 성능과 관련된 연소속도 변화 특성은 합성가스 특성 연구에서 가장 먼저 파악되어

* 순천대학교 우주항공공학전공

** 대전대학교 소방방재공학부

† 연락처, kmlee@sunchon.ac.kr

TEL : (061)750-3828 FAX : (061)-750-3820

야 할 중요한 연구 분야이다.

이러한 합성가스 연료를 사용하는 버너 설계와 버너 시스템에서의 환경오염 물질 저감을 위해서는 다양한 조성의 합성가스 연료에 대한 기초적인 연구가 필요한데 이러한 연구 중 화염의 층류 연소속도를 실험적으로 측정하는 분야에는 이미 오래전부터 많은 연구들이 진행되어 왔다.

화염의 층류 연소속도를 실험적으로 측정하는 방법에는 주로 분젠식(Bunsen type) 버너를 통한 원뿔형화염(conical flame)을 이용한 방법과 밀폐된 용기 내에서 잘 혼합된 연료의 점화를 통해 구형으로 퍼져 나가는 구형화염(spherical flame)을 이용하는 방법으로 분류되는데 본 연구에서는 실험장치 구성과 측정방법이 비교적 간단하면서 정확한 방법으로 알려진 분젠식 버너에서 형성된 예혼합화염을 대상으로 하여 주성분이 H₂와 CO인 합성가스의 조성비 및 당량비별 연소속도를 측정하였다. 측정된 결과는 Chemkin-II Package의 PREMIX Code를 이용하여 수치 계산한 결과와 비교를 하였다. 계산은 수소-일산화탄소 연소속도 계산에 비교적 적합한 것으로 알려진 USC-II Mechanism을 사용하였다.

Fig. 1은 본 연구에 사용된 실험 장치를 개략적으로 나타낸 그림이다. 버너 출구에서 균일한 속도 분포를 갖기 위해 교축비가 25인 수축 노즐 형이 적용되었고, 노즐 끝 팁(Tip) 부분은 화염에 의한 예열 현상이 억제되도록 최대한 얇고 날카롭게 가공하였다. 한편 혼합이 잘 이루어지고 역화를 방지하기 위해 버너의 밑 부분에 직경 2.5mm의 스테인레스 볼을 넣으며 그 위로 메쉬(mesh)를 적층하여 층류 유동을 형성하였다.

연료는 화염의 특성을 보다 엄밀하게 관찰하기 위하여 순도 99.99%의 고 순도 수소와 일산화탄소를 사용하였으며, 연소용 공기도 고 순도의 공기를 사용하였다. 이들의 유량은 버블(bubble) 유

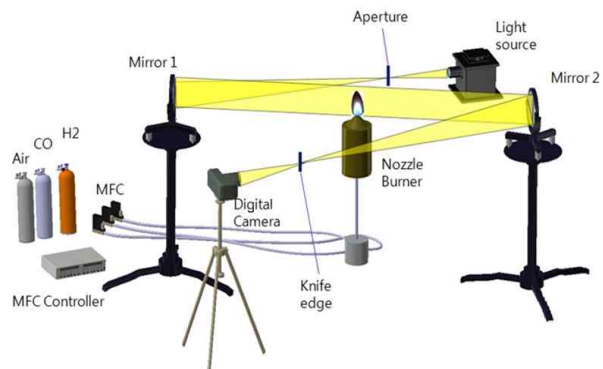


Fig. 1 Experimental set-up

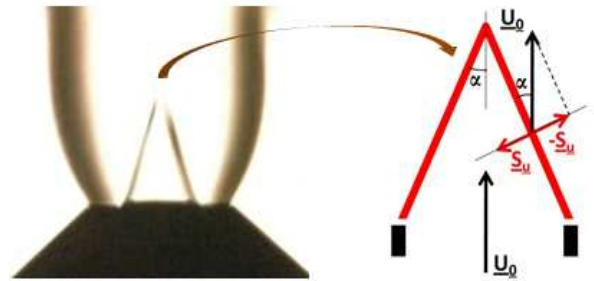


Fig. 2 Typical example of a Schlieren image and cone angle methodology

량계로 교정한 습식(wet)가스미터와 질량유량계(MFC)를 통해 정밀한 양으로 조절하였다.

연소속도 측정에 사용된 광학계로는 Fig. 1에서 보는 바와 같이 할로겐램프 광원과 2개의 거울(mirror) 및 핀홀(pin hole)과 나이프에지(knife edge)로 구성된 schlieren 광학 시스템을 사용하였고 측정된 이미지들은 각도법에 의한 연소속도 계산에 사용되었다.

실험조건은 이전연구의 수치결과와 비교하기 위하여, 물분을 기준으로 대표적 연료 조성비 (H₂:CO)는 10:90%, 25:75%, 50:50%, 75:25%가 적용되었고, 여기에 비교를 위해 수치계산은 5:95%를 더했다. 혼합기의 당량비는 넓은 조건으로 0.5에서 5.0까지 고려되었으며, 고려된 연료 조성에서 수소의 성분 변화에 따라 층류 연소속도의 변화 폭이 매우 크기 때문에 수소 함량이 작은 조건에서는 화염의 안정성을 고려하여 혼합기의 평균 유속이 낮은 범위에서 실험이 수행되었고, 수소의 함량이 많은 경우에는 혼합기의 유속이 증가된 조건에서 실험이 진행되었다. Fig. 2는 본 실험의 대표적인 Schlieren 이미지와 그 이미지를 이용한 층류 화염속도의 측정 원리를 나타낸 것이다. 층류 화염속도 (S_u)는 식 (1)을 통해 측정된다. 본 실험에서 촬영한 이미지에서의 각도는 Adobe Photoshop CS를 사용하여 측정하였다.

$$S_u = U_0 \sin \alpha \quad (1)$$

Table 1 Experimental and calculation conditions

Fuel	H ₂ , CO
Oxidizer	Air
Nozzle contraction ratio	25
Diameter of nozzle	10mm
Equivalence ratio(Φ)	0.5 ~ 5.0
Composition ratio of mixture	H ₂ :CO= 5:95 (Cal.)
	H ₂ :CO=10:90 (Exp.&Cal.)
	H ₂ :CO=25:75 (Exp.&Cal.)
	H ₂ :CO=50:50 (Exp.&Cal.)
	H ₂ :CO=75:25 (Exp.&Cal.)

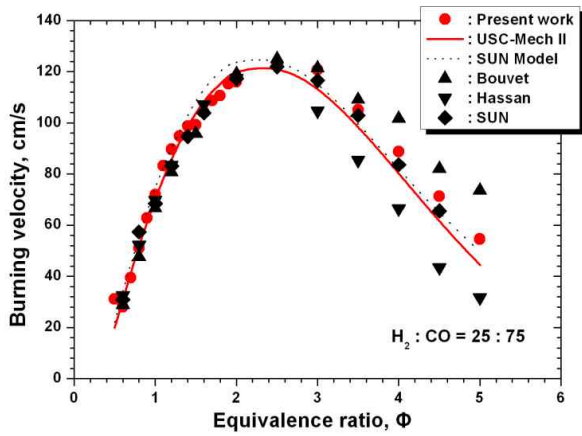


Fig. 3 Laminar burning velocity compared with other data and calculations for 25% H₂ content

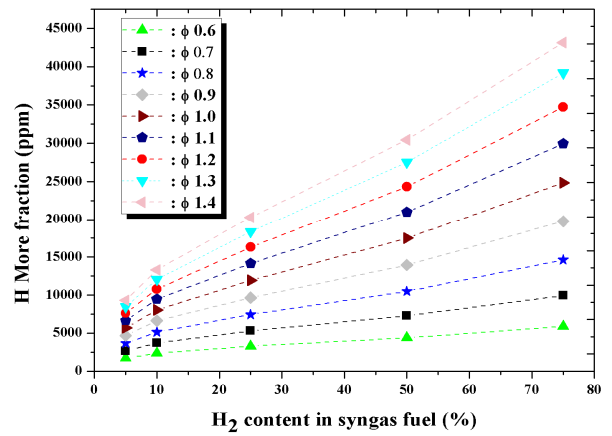


Fig. 6 Production rates of H radical with different H₂ content in lean mixture condition

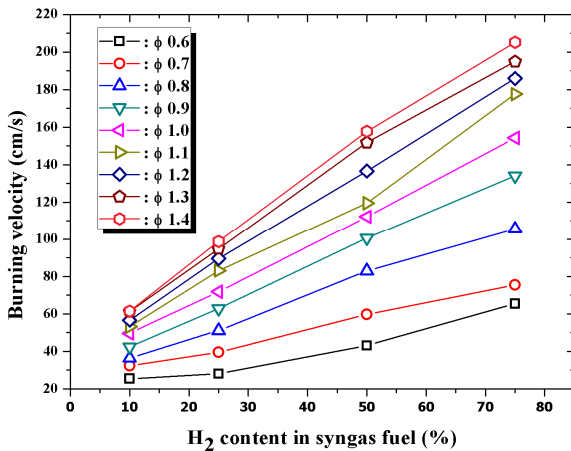


Fig. 4 Flame speed versus H₂ content at the various equivalence ratio (lean mixture region)

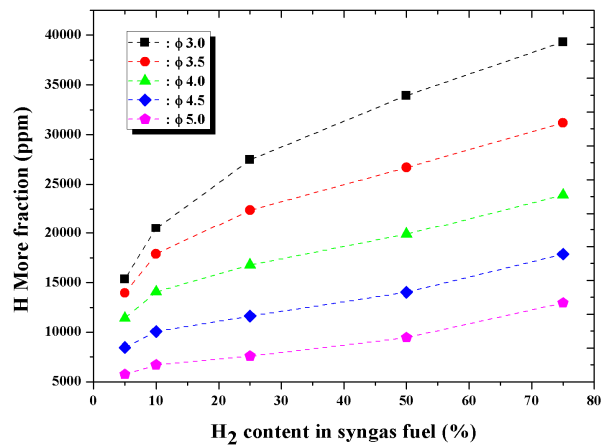


Fig. 7 Production rates of H radical with different H₂ content in rich mixture condition

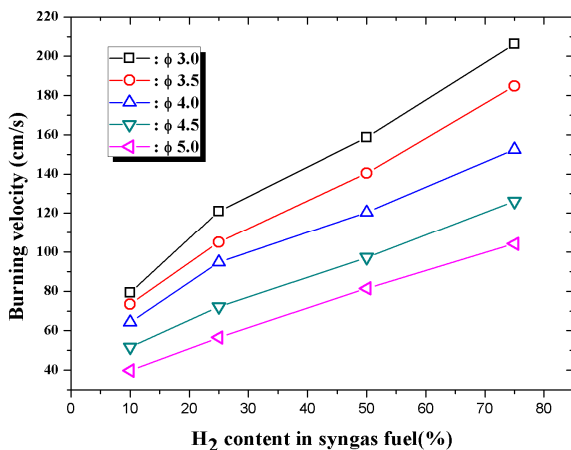


Fig. 5 Flame speed versus H₂ content at the various equivalence ratio (rich mixture region)

Fig. 3 은 본 연구자가 실험으로 측정된 연소 속도와 수치해석으로 구한 연소속도의 대표적인 비교 그래프로 수소의 조성비가 25%일 때의 그래프이다. 이 그래프에서는 수치해석인 USC-II Mechanism이 적용되었고 같은 조성에서 이전의

다른 연구자들이 실험적으로 구한 연소속도와 다른 수치해석으로 구한 연소속도가 비교되었다. 연소속도가 증가하는 구간에서는 본 연구자와 이전의 연구자들이 실험적으로 측정된 연소속도가 대부분 잘 일치함을 보이고 있고, 수치해석으로 구한 연소속도와 비교해도 잘 일치함을 알 수 있다. 하지만 최대연소속도 이후에서는 이전의 연구자들이 실험적으로 구한 연소속도와 본 연구자가 실험적으로 측정된 연소속도가 차이가 나는데 수치해석으로 구한 연소속도와 본 연구자가 실험적으로 측정된 연소속도가 이전 연구자들의 실험으로 측정된 것보다 잘 일치하며 이는 실험으로 측정된 연소속도가 비교적 연소기 설계에 대한 기초 정보도 활용되어도 이상이 없다고 판단된다.

Fig. 4는 합성가스 연료 조성비에서 수소의 함유량 변화가 연소속도에 미치는 영향을 파악하고자 각도법으로 측정된 연소속도 변화를 각 당량비 별로 표시한 그래프이다. 반응물의 상태가 희박영역인 당량비 0.8 이하에서는 수소의 함유량이 증가함에 따라 연소속도의 증가율은 다시 완

만하지만 당량비 0.9 이상에서는 수소 함유량에 따라 모든 당량비 조건에서 선형적으로 증가하는 것을 알 수 있다. 이처럼 수소의 연소속도가 일산화탄소의 연소속도보다도 약 10배 정도 빠름에도 불구하고 수소 함유량 증가에 따라 연소속도가 선형적으로 증가한다는 사실은 매우 흥미로운 결과이다.

Fig. 5는 Fig. 4와 같은 그래프로 연소속도가 최대인 지점을 지나고 그 속도가 감소하는 구간을 도시한 그래프이다. 이 그래프에서는 연소속도가 증가하는 구간에서와는 달리 수소의 함유량이 증가하여도 당량비가 증가 할수록 연소속도가 더 작아지는 것을 확인 할 수 있다. 당량비가 증가 할수록 연소속도는 작아지지만 이 구간에서도 역시 수소의 함유량에 따라 연소속도는 선형적으로 증가하는 것을 확인 할 수 있다. 이처럼 반응물에서 수소 함유량이 증가함에 따라 연소속도가 증가하는 이유로는 수소의 성분이 증가하게 되면 수소와 관련된 매우 빠른 반응들을 통해 연소 반응을 촉진 시키는 H와 OH 라디칼의 생성이 급속하게 증가되면서 화염의 연소속도가 증가하는 것으로 판단된다.

Fig. 6과 7은 이러한 이유를 살펴보고자 CHEMKIM-II Package를 이용하여 계산한 결과로 연소속도가 증가하는 구간에서의 H 라디칼 생성과 감소하는 구간에서의 H 라디칼 생성을 나타내고 있다. Fig. 5에서와 마찬가지로 연소속도가 감소하는 구간에서는 당량비가 증가 할수록 연소속도는 더 작아지고 H의 생성 또한 작아지는 것을 알 수 있다. 여기서 이들 결과들을 자세히 살펴보면 과잉 혼합기 상태의 5% 수소 함유량인 경우에만 약간의 차이를 보이나 수소 함유량 증가에 따라 층류 연소속도가 증가하는 특성이 수소 반응과 관련이 깊은 H 라디칼의 생성 특성과 매우 비슷한 경향을 보인다는 사실이다. 즉, 상대적으로 희박한 영역에서의 연소속도와 H 라디칼 생성 기울기가 Fig. 4와 Fig. 6에서 보는 바와 같이 비슷한 기울기를 하고 있으며, 과잉 혼합기 영역인 Fig. 5와 Fig. 7의 기울기도 유사함을 알 수 있다. 따라서 수소 함유량 증가에 따른 연소속도 증가 현상은 수소와 관련된 라디칼들의 연쇄반응(chain reaction) 증가로 연소반응이 가속화되는 특성과 매우 유사하며 이들 라디칼의 선형적인 반응 증가 특성을 잘 추종하여 나타난 결과로 판단된다.

본 연구에서는 전통적인 분젠 버너법을 이용한 syngas의 층류 화염속도의 측정에 대한 기초연구를 수행하였으며, 실험으로 구한 연소속도와 수치계산한 연소속도를 비교하였으며 비교적 잘 일치함을 확인하였다. 동일 당량비에서 수소의 함유량이 증가할수록 연소속도 또한 증가하는 것

을 재확인 하였고, 수소함유량 증가와 함께 H의 생성율이 높아지면서 화염의 연소반응을 촉진시켜 연소속도가 더 증가하는 것을 확인하였다. 이러한 연구 결과는 최근 관심이 높은 저 발열량의 합성가스 연료 사용 증대로 인해 다양한 연료 조성비와 연소기 운전조건에서 운용될 합성가스 연소기의 설계 자료에 중요한 기초정보로 활용될 수 있을 것으로 기대된다.

후 기

본 연구는 2012년도 정부(교육과학기술부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 연구입니다.(NRF-2012-009856)

참고 문헌

- [1] J.Y Park, K.M Lee, C.H Hwang, "Stability Characteristics of Syngas (H_2/CO)/Air Premixed Flames using an Impinging Jet Burner", *The Korean Society of Combustion*, Vol. 16, No. 1, 2011, pp. 15-21
- [2] B.G. Jeong, K.M. Lee, "Measurement of Laminar Flame Speed of Syngas(H_2/CO)/Air Premixed Flame using the Bunsen Burner Method", *The Korean Society of Combustion*, , No.43, 2012, pp. 181-183
- [3] N. Bouvet, C. Chauveau, I. Gokaip, S.Y. Lee and R.J. Santoro, "Charaterization of Syngas Laminar Flames using the Bunsen Burner Configuration", *Int. Journal of Hydrogen Energy*, Vol. 36, 2011, pp. 992-1005
- [4] H.J. Burbano, J. Pareja and A.A. Amell, "Laminar Burning Velocities and Flame Stability Analysis of H_2/CO /Air mixture with Dilution of N_2 and CO_2 ", *Int. Journal of Hydrogen Energy*, Vol. 36, 2011, pp. 3232-3242
- [5] Dong C, Zhou Q, Zhang Y, Xu T and Hui S, "Experimental study on the Laminar Flame Speed of Hydrogen/Carbon Monoxide/Air Mixture", *Fuel*, Vol. 88, 2009, pp. 1858-1863
- [6] Natarajan J, Lieuwen T and Seitzman J, "Laminar Flame Speeds of H_2/CO Mixture : Effect of CO_2 Dilution, Preheat Temperature, and Pressure", *Combustion and Flame*, Vol. 151, 2007, pp. 104-119
- [7] Yong He, Z. Zhang, Li Yang, R. Whiddon, Zhongshan Li, Junhu Zhou and Kefa Cen, "Investigation of laminar flame speeds of typical syngas using laser based Bunsen method and kinetic simulation", *Fuel*, Vol. 95, 2012, pp. 206-213.