

수소화염과 탄화수소화염의 상호작용에 관한 수치계산 연구

오창보[†] · 이의주

부경대학교 안전공학부

(2010. 1. 18. 접수 / 2010. 4. 14. 채택)

Numerical Study of Interaction between Hydrogen and Hydrocarbon Flames

Chang Bo Oh[†] · Eui Ju Lee

Division of Safety Engineering, Pukyong National University

(Received January 18, 2010 / Accepted April 14, 2010)

Abstract : Numerical simulations were performed for the prediction of the flame structure during the interaction between hydrogen and hydrocarbon flames. A counterflow flow geometry was introduced to establish the interacting two flames. Methane was used as a representative hydrocarbon fuel in this study. A well-known numerical code for the counterflow flame, OPPDIF, was used for the simulations. The detailed chemistry was adopted to predict the flame structure reasonably. The interaction of two one-dimensional premixed flames established in counterflow burner was investigated with the global strain rate and velocity ratio. It was found that the maximum temperature located near the methane flame surface while the heat release rate of methane was lower than hydrogen flame. The flame thickness become narrow with increasing the velocity ratio while the global strain rate was fixed. The local strain rate and heat release rate at the methane flame surface were correlated with the global strain rate, while those at the hydrogen flame were not correlated with the global strain rate. However, the maximum temperature of the interacting flames was correlated with the global strain rate.

Key Words : hydrogen, hydrocarbon, flame-flame interaction, counterflow flame, numerical simulation

1. 서론

최근 에너지 문제가 대두되면서 신재생 에너지의 활용에 대한 기대가 증가되고 있으며, 신재생 에너지 후보 중에서도 수소연료에 대한 기대가치가 매우 높아지고 있다. 그러나 수소는 모든 원자 중 그 크기가 가장 작고 확산속도가 크며 점화에너지가 작은 특징을 가지고 있다. 또한, 산소와의 반응성이 강하여 폭발범위가 넓고 화염전파속도가 매우 큰 가연성 가스이기 때문에 수소의 제조, 수송, 저장 및 이용단계에 있어서 누출, 확산, 점화 및 폭발과 관련된 안전상의 위험이 상존하고 있다.

수소 취급과정에서 안전사고는 저장용기의 결함 혹은 사고로 인해 용기에서 대기 중으로 수소가스가 직접 누설되거나 저온의 액체수소가 누설된 후 대기 중에서 증발하면서 증기운을 형성하는 것으

로부터 시작된다¹⁾. 이렇게 확산된 수소가스는 누적된 후 주위의 고온 점화원에 의해서 점화가 된다 면 폭발과 같은 매우 위험한 상황이 연출될 수 있지만, 만약 수소확산 초기단계에서 점화가 이루어진다면 수소화재가 발생할 수도 있으며, 수소가스 폭발 이후 단계에서도 수소화재가 발생할 수 있다. 이러한 종류의 사고사례는 근래에 실제로 보고된 바도 있다²⁾. 만약 연료전지처럼 실내공간에서 수소 연료를 사용하는 장치에서 수소화재가 발생한다면 이 화재는 주위의 탄화수소 가연물로 전파되어 결국 수소화재와 탄화수소화재가 상호작용하는 형세가 될 가능성이 높다.

수소화재의 특징은 가시적으로 잘 보이지 않으며 화염온도는 높지만 복사 열전달량이 적고 연료에 탄소 성분을 포함하고 있지 않기 때문에 본질적으로 CO와 CO₂가 발생하지 않는다. 반면에 통상의 가연물은 탄화수소계 연료성분을 포함하고 있어 화재는 적염의 성질을 보이며 화염온도는 수소

[†] To whom correspondence should be addressed.
cboh@pknu.ac.kr

화재보다 낮지만 복사 열전달량이 크고 CO 및 연기 발생량 또한 많다. 이렇게 특징이 상이한 두개의 화재가 실내공간에서 상호작용하게 되면 현재까지 알려진 통상의 화재와는 매우 다른 양상을 보일 가능성이 높다. 따라서 수소연료의 안전관리 측면에서 실내공간에서 수소를 사용할 경우 발생할 수 있는 수소화재와 탄화수소화재의 상호작용에 관한 연구가 필요하다. 그러나 현재까지 수소화재 자체에 대한 연구도 많지 않지만 수소화재와 탄화수소화재의 상호작용에 관한 연구는 진행된 바 없다.

따라서 본 연구에서는 수소화재와 탄화수소계 연료의 화재가 상호작용하는 경우의 기초 연소특성에 대해 수치계산을 이용하여 검토하였다. 본 연구가 이러한 분야의 초기 연구이므로 향후 연구에 기본자료를 제공한다는 측면에서 기하학적으로 간단한 대향류화염 형상을 대상으로 하였으며, 대향류 화염에서 중요한 인자인 스트레인율(Strain rate) 변화에 따른 화염구조를 검토하였다.

2. 수치계산 방법

2.1. 대향류화염

수소화재와 탄화수소화재의 상호작용에 관한 고찰은 기본적으로 수소화염과 탄화수소화염간의 상호작용 고찰에서부터 출발한다. 본 연구에서는 Fig. 1과 같이 기하학적으로 간단한 형상의 대향류 연소기에서 형성되는 두개의 화염간의 상호작용을 고찰하였다. Fig. 1에 보이는 연소장은 상사(Similarity)를 이용하면 1차원 화염으로 모사할 수 있어 반경 방향으로는 화염구조가 변하지 않고 축방향으로만 화염구조가 변하게 된다. 이 대향류 연소장은 1차

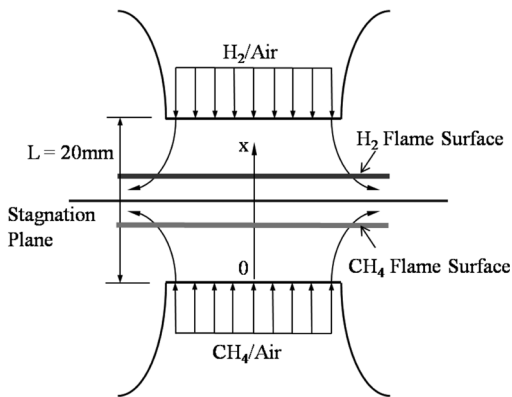


Fig. 1. Schematic of counterflow flame geometry for the simulation of interaction between hydrogen and hydrocarbon flames.

원으로 화염을 모사할 수 있기 때문에 상세화학반응기구(Detailed chemistry)를 적용할 경우 계산시간이 장시간 소요되지 않으면서도 화염구조를 자세히 관찰할 수 있게 해준다³⁾.

본 연구에서 탄화수소 화염을 형성시키기 위해서는 화학반응기구가 잘 알려진 가장 보편적인 메탄(CH₄) 연료를 사용하였다. 실제의 수소화재와 탄화수소화재들은 각각 전체적으로는 확산화염 특성을 가지고 있으며 공기 부족조건에서는 과농 부분 예혼합화염(Partially premixed flame)의 특성을 갖기도 한다. 본 연구에서는 우선 당량비가 각각 1.0인 수소화염과 메탄화염이 상호작용하는 것으로 가정하였다. 이 조건은 수소화재와 탄화수소화재의 상호작용을 정확히 모사한다고 할 수는 없지만 각 확산화염면은 양론혼합비의 조건을 갖는다는 점과, 향후 수행될 부분예혼합화염간의 상호작용 연구에 대한 방향을 제시해 줄 수 있다는 점에서 먼저 수행되었다.

2.2. 계산방법 및 조건

수소-메탄 대향류 화염간의 상호작용 수치계산에는 OPDIF 코드⁴⁾를 이용하였으며 관련 지배방정식과 경계조건은 참고문헌에 자세히 나와 있으므로 여기서는 생략한다. 계산에 대한 정확도를 높이고 보다 정교한 화염구조 고찰을 위해서 상세화학반응기구인 GRI-3.0⁵⁾을 이용하였다. 이 반응기구는 53개의 화학종과 325개의 반응으로 메탄화염을 매우 잘 예측하는 것으로 알려져 있으며 수소반응도 포함하고 있기 때문에 수소-메탄 화염간의 상호작용 수치해석에 적합하다.

수소 및 메탄화염을 형성시키기 위한 대향류 노즐간의 간격은 20 mm로 하였다. 두개의 화염간의 상호작용 정도는 두개 화염면간의 거리를 조절하여 가능하다. 대향류화염에서 두 화염면간의 거리는 스트레인율과 관계된다. 본 연구에서는 두 화염간의 상호작용 정도를 나타내는 파라미터로서 아래 식 (1)과 같이 정의되는 총괄 스트레인율(Global strain rate; a_g)⁶⁾을 이용하였다.

$$a_g = \frac{2V_O}{L} \left(1 + \frac{V_F \sqrt{\rho_F}}{V_O \sqrt{\rho_O}} \right) = \frac{2V_r V_F}{L} \left(1 + \frac{1}{V_r} \frac{\sqrt{\rho_F}}{\sqrt{\rho_O}} \right) \quad (1)$$

여기서 V 는 혼합기의 유속, ρ 는 혼합기의 밀도, L 은 노즐사이의 간격을 의미하며, 아래첨자 F 와 O 는 각각 메탄혼합기 및 수소혼합기를 나타낸다. 또

한 V_r 은 두개의 혼합기 유속간의 비로서 V_o/V_r 와 같이 정의된다.

양쪽 노즐의 유속이 너무 낮으면 화염이 노즐에 닿게 되어 경계조건에 영향을 주게 되므로 화염이 노즐과 약간 떨어지는 유속조건부터 점차 유속을 증가시킨 조건에 대해 계산을 수행하였다. 또한 총괄스트레인을 조건을 맞춘 상태에서 가급적 화염대가 양쪽 노즐의 중간에 위치하도록 속도비 조건을 주었다. 양쪽 노즐출구의 혼합기체 초기온도는 300K으로 하였다.

계산에 사용된 격자수는 스트레인을 조건에 따라 달라지는데 낮은 스트레인을 조건으로 갈수록 상호작용하는 고온 화염대가 두꺼워지게 되어 격자수가 많이 소요된다. 높은 스트레인을 조건($a_g \sim 5000s^{-1}$)에서는 축방향 거리 20mm 내에 700개의 격자가, 낮은 스트레인을 조건($a_g \sim 500s^{-1}$)에서는 900개 정도의 적응격자(Adaptive grid)가 사용되었으며, 이 격자수로 좁은 영역에서 발생하는 CH 라디칼도 충분히 잘 해상할 수 있었다. 현재의 수치계산은 전체적인 화염구조를 보는 것인 목표이기 때문에 복사효과는 고려하지 않았다. 복사효과에 대한 연구는 추후 별도의 논문에서 다룰 예정이다.

3. 결과 및 고찰

Fig. 2에는 상호작용하는 메탄-수소 화염의 최고온도를 총괄 스트레인을 변화에 대하여 도시하였다. 대략 $a_g = 1000s^{-1}$ 이상에서는 a_g 가 증가할수록 점차 단순 감소하는 것을 알 수 있다. 또한 이 화염 최고온도는 속도비인 V_r 에 크게 영향을 받고 있지 않음을 알 수 있다. 그러나 $a_g = 1000s^{-1}$ 이하의 특정 조건에서는 a_g 가 감소할수록 화염 최고온도도

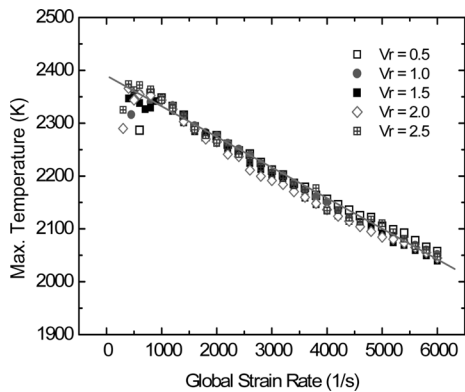


Fig. 2. Maximum temperature of counterflow hydrogen-methane interacting flame.

갑자기 낮아지는 것을 알 수 있다. 이 a_g 값 영역은 두개의 화염면 중에서 적어도 하나가 노즐출구에 근접하여 경계조건에 영향을 주게 되는 조건으로서 수치계산적으로 의미있는 조건도 아니며 실험적으로 구현하기도 힘들다. 따라서 우리가 관심을 갖게 되는 영역은 대략 $a_g = 1000s^{-1}$ 이상의 조건이 되기 때문에 $a_g \geq 1000s^{-1}$ 조건의 화염에 대해서만 검토를 수행하였다.

Fig. 3과 4는 $a_g = 1000s^{-1}$, $V_r = 1.5$ 인 조건에 대해서 수치계산을 통해 얻은 화염구조를 보여주고 있다. Fig. 3에서 화염온도와 열발생률(Heat release rate; HRR)을 나타내고 있는데, 좌측과 우측의 HRR 최고점 위치는 각각 메탄과 수소 화염면의 위치를 나타낸다. $a_g = 1000s^{-1}$, $V_r = 1.5$ 인 조건의 화염 최고온도는 2344K이다. 이는 통상의 당량비 1.0 상태로 공기중에서 연소되었을 경우의 메탄연료의 단열화염온도($\sim 2223K$)와 수소연료의 단열화염온도($\sim 2483K$)의 중간정도를 보이고 있다. 또한 고온화염대 영역도 통상의 확산화염보다 매우 넓게 분포하고 있음을 알 수 있다. 각 연료와 산화제인 O_2 의 분포를

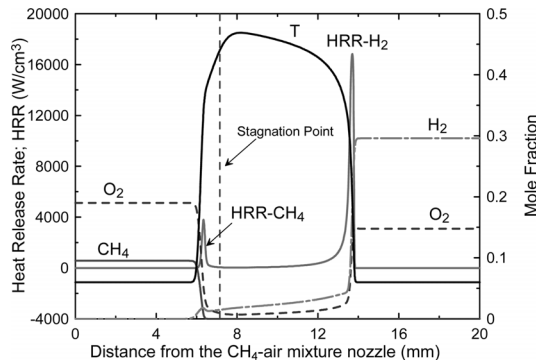


Fig. 3. Profiles of the flame temperature, heat release rate and major species concentration, $V_r=1.5$, $a_g=1000s^{-1}$.

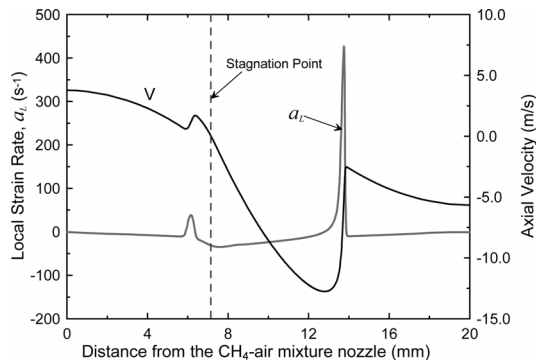


Fig. 4. Profiles of the axial velocity and the local strain rate, $V_r=1.5$, $a_g=1000s^{-1}$.

살펴보면 메탄은 반응대에서 전부 산화되어 존재하고 있지 않지만 수소성분은 수소 화염면과 메탄 화염면 사이에 존재하고 있으며 농도는 수소 화염면에서 급격히 낮아져서 메탄 화염면 근처로 갈수록 서서히 낮아지는 분포를 보이고 있다.

다음으로 온도분포와 HRR 분포를 비교해보면 메탄화염의 HRR은 수소화염의 HRR보다 훨씬 적게 나타나고 있지만 화염 최고온도점은 메탄 화염면에 가까이 위치하고 있음을 알 수 있다. 그림에 도시한 조건에서는 Fig. 4에서 보이는 바와 같이 메탄-공기 혼합기 유속은 3.77m/s, 수소-공기 혼합기 유속은 5.66m/s이다. 양쪽 혼합기의 유속 차이뿐만 아니라 화염대 내부에서는 열팽창에 의한 밀도차에 의해 유속분포는 정체점(수직 점선)을 기준으로 큰 차이를 보인다. 특히 수소 화염면 이후의 유속은 12.8m/s 가까이 증가되었다가 점차 감소되는데 반해 메탄 화염면 이후 유속은 노즐출구에서 줄어들다가 다시 약간 증가하여 1.7m/s 정도가 되었다가 점차 줄어드는 것을 알 수 있다. 따라서 수소 화염면에서 발생한 열이 수소 반응대 측의 큰 유속에 의한 대류효과로 인해 정체점으로 많이 전달되기 때문에 정체점 근처에서 화염 최고점이 형성된다. 또한 메탄화염의 전파속도는 수소화염보다 작기 때문에 메탄 화염면은 수소화염보다 정체점 근처에 위치하게 되고 정체점과 가까운 메탄 화염면 근처에서 화염 최고점이 형성되는 것으로 보인다.

기존 연구에 따르면 두개의 예혼합화염이 상호 작용할 경우 조건에 따라서는 두개의 화염 중 하나는 통상적인 예혼합화염과는 달리 유동의 상류측이 아닌 하류로 전파되는 특성을 보일 수도 있다고 알려져 있다. 본 연구에서 다루는 조건에서는 두개의 화염면이 정체점을 기준으로 각 노즐측(상류측)에 위치하고 있어서 두개의 화염 모두 상류로 전파되는 예혼합화염의 특징을 잘 유지하고 있음을 알 수 있으며 음(negative)의 화염전파 특성은 확인되지 않았다.

Table 1. Parameters directly related to the combustion characteristics of the H₂-CH₄ interacting flames

	$a_g = 1000s^{-1}$		$a_g = 5000s^{-1}$	
	Hydrogen	Methane	Hydrogen	Methane
Maximum temperature(K)	2344		2091	
Maximum HRR(W/cm ³)	16828	3796	17062	6128
Maximum $a_L(s^{-1})$	427	38	413	66
Minimum $a_L(s^{-1})$	-35		-119	
a_L at the flame surface(s ⁻¹)	378	6	344	-44

참고로, 당량비가 1.0인 메탄 예혼합화염 조건에서는 혼합기 중에서 메탄의 체적비가 9.5%에 해당되어 순수 메탄-메탄화염의 상호작용에서도 화염이 형성될 수 있는 조건에 해당된다⁷⁾. 그러나 현재까지 순수 수소-수소화염의 상호작용에 관한 화염 안정화 조건은 알려진 바 없어 본 연구에서 다른 수소 화염측 조건이 수소-수소화염 상호작용 때와 어떻게 다른지에 대해서는 추가적인 연구가 필요할 것으로 생각된다.

Fig. 4의 국소 스트레인율(Local strain rate; a_L) 분포를 보면 수소화염 측에서의 유속의 변화가 메탄 화염 측보다 훨씬 크게 되어 Table 1에서 보는 바와 같이 a_L 최고값도 수소화염에서는 메탄화염에서의 최고 값보다 10배 이상 큰 값을 갖는 것을 알 수 있다. a_L 과 HRR값은 모두 급격하게 변하기 때문에 최고값의 위치가 정확히 일치하지는 않는다. 실제 연소특성과 가장 밀접한 관련이 있는 각 화염면 위치에서의 a_L 값은 수소화염측이 메탄화염 측보다 60배 이상 큰 값을 갖는 것을 확인할 수 있다. 각 화염의 a_L 최고치에 대한 화염면에서의 a_L 값은 수소 화염측은 89%이며 메탄 화염측은 16% 정도로서 화염면 위치와 a_L 최고점의 위치가 약간 차이가 나는 것을 알 수 있다. 따라서 a_L 최고값 위치는 수소화염의 경우에는 화염면의 위치에 많이 근접하지만 메탄화염의 경우에는 화염면과 약간 떨어져서 있는 것을 확인할 수 있다.

Fig. 5와 6은 $a_g = 5000s^{-1}$, $V_r = 1.5$ 인 조건에 대한 화염구조이다. 이 조건은 $a_g = 1000s^{-1}$ 인 조건에서보다 화염면 사이의 간격은 줄어들었지만 총괄 스트레인율이 증가에 따른 노즐출구 유속의 증가로 인해 그림에서 보는 바와 같이 화염폭이 매우 좁아졌으며 통상의 높은 스트레인율을 받는 단일 연료의 확산화염과 유사한 분포를 보이고 있다. 이때 화염 최고온도는 2091K으로 $a_g = 1000s^{-1}$ 인 조건보다 많이 낮아졌음을 알 수 있다. 각 화염측에서의 a_L 최고값은 수소측이 메탄측보다 6배정도 크게 나타나서 수소측과 메탄측 a_L 최고값간의 차이가 줄어들었음을 알 수 있다. 스트레인율은 절대값이 중요하기 때문에 절대값을 기준으로 한다면 화염면에서의 a_L 값은 수소측이 메탄측보다 8배 가까이 높게 나타나고 있어 $a_g = 1000s^{-1}$ 조건에서보다 차이가 많이 줄어들었음을 알 수 있다. 이것은 $a_g = 5000s^{-1}$ 인 조건에서는 $a_g = 1000s^{-1}$ 인 조건에서보다 메탄 화염면에서의 a_L 값이 7배나 커졌기 때문이다. 한가지 특이한 점은 총괄 스트레인율, a_g 가 증가하

면서 메탄화염면의 HRR값은 160% 증가하였지만 수소화염면의 HRR값은 1.3% 증가에 그쳐 큰 변화가 없다는 것이다. 이러한 경향은 국소 스트레인율, a_L 값을 통해서도 확인할 수 있는데, 메탄 화염면에서의 a_L 값은 HRR 증가와 유사하게 증가하였지만 수소 화염면에서의 a_L 최고값은 큰 차이는 없음을 알 수 있다.

a_L 값은 화염에서의 HRR과 직접 연관되는 중요한 인자로서 화염구조를 결정하는데 중요한 역할을 하게 된다. 그러나 Fig. 5와 6을 통해서 확인한 바와 같이 각각의 화염층에서의 a_L 값이 a_g 의 변화를 각각 다르게 추종한다면 화염구조는 a_g 변화에 단순한 거동을 보이지 않고 복잡한 거동을 보일 수도 있다. 그러나 Fig. 5와 Fig. 6에서 확인한 바와 같이 최고 화염온도는 a_g 증가에 대해 단순감소의 거동을 보이고 있음을 알 수 있다. a_g 와 전체 화염 구조간의 상관관계를 좀 더 자세히 알기 위해서는 추가적인 연구를 통해 각 화염면 위치에서의 a_L 과 a_g 사이의 관계를 먼저 정립하는 것이 필요할 것으로 판단된다.

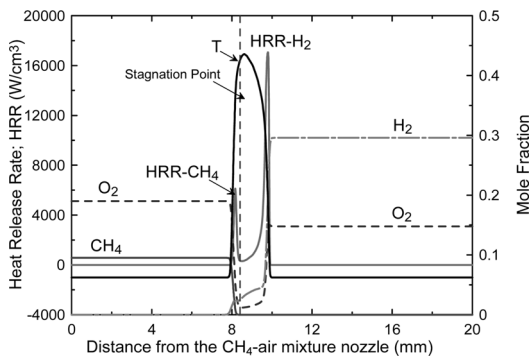


Fig. 5. Profiles of the flame temperature, heat release rate and major species concentration, $V_r=1.5$, $a_g=5000s^{-1}$.

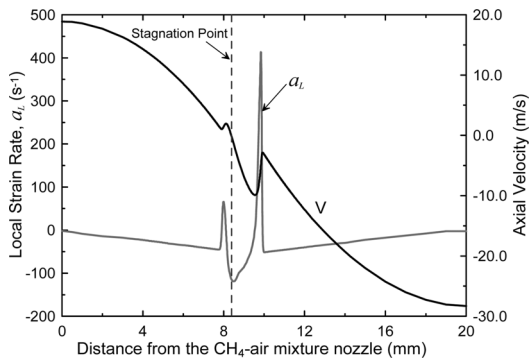


Fig. 6. Profiles of the axial velocity and the local strain rate, $V_r=1.5$, $a_g=5000s^{-1}$.

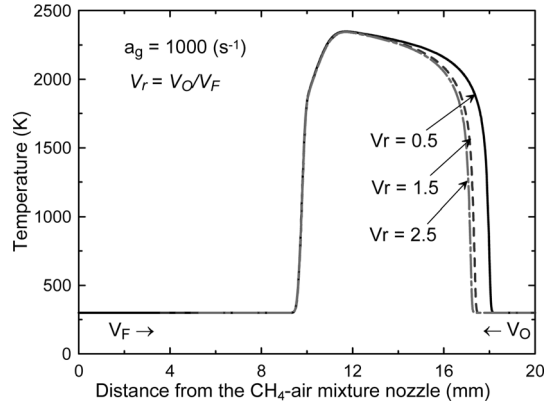


Fig. 7. Temperature profiles of the interacting flames with the variation of the velocity ratio, V_r , while the global strain rate, a_g , is fixed to $1000s^{-1}$.

Fig. 7은 $a_g = 1000s^{-1}$ 로 고정시키고 속도비 V_r 을 변화시켰을 경우의 화염온도 분포를 보여주고 있다. 속도비 조건에 따라 화염위치가 달라지기 때문에 비교를 용이하게 하기 위해서 각 화염들을 $V_r = 0.5$ 인 화염온도와 좌측면이 일치하도록 이동시켜 도시한 것이다. 일반적으로 대향류화염에 대한 실험 및 계산에서는 화염을 버너 중간에 위치시키기 위하여 총괄 스트레인율은 고정된 상태에서 속도비를 조절하여 화염면 위치를 조정한다. 이때 총괄 스트레인율이 일정하기 때문에 화염구조는 큰 변화가 없게된다. Fig. 7은 동일한 개념을 상호작용하는 수소-메탄화염에 적용하였을 경우에 대한 결과로서 총괄 스트레인율이 일정하더라도 속도비가 커질수록 화염면의 두께가 얇아지는 것을 알 수 있다. 이것은 상호작용하는 화염에서는 총괄 스트레인율이 같더라도 속도비가 달라지면 화염구조가 바뀔 수 있음을 보여주는 결과로서 향후 이와 관련해서 보완연구가 필요할 것으로 생각되며, 상호작용하는 화염에 대한 연구에서 속도비와 총괄 스트레인율 선정에 있어 주의가 필요할 것으로 보인다.

4. 결론

대향류 연소기에서 형성되는 각각 당량비 1.0의 수소화염과 메탄화염의 상호작용에 대한 상세화학 반응기구를 적용한 수치계산 연구를 통해 다음과 같은 결론을 얻었다.

- 1) 수소화염과 메탄화염이 상호작용할 경우 화염면에서의 열발생률은 수소화염층이 메탄화염층보다 높지만 화염 최고온도의 위치는 메탄화염면과

가까운 곳에 위치하게 됨을 알 수 있었다.

2) 총괄 스트레인을 증가시키면 메탄화염면의 국소 스트레인은 크게 증가하면서 총괄 스트레인을 변화를 잘 추종하지만 수소화염면의 국소 스트레인을 변화는 크지 않아 총괄 스트레인을 변화를 잘 추종하지 않음을 알 수 있었다.

3) 총괄 스트레인을 증가시켜 두 화염면 사이의 거리를 줄이면 메탄화염의 열발생률은 증가하지만 수소화염의 열발생률에는 큰 변화가 없는데 이것은 각 화염면에서의 국소 스트레인을 변화 경향과 잘 일치한다.

4) 상호작용하는 두개의 화염이 있을 경우 총괄 스트레인을 고정한 상태에서 속도비를 변화시키면 화염면의 두께도 변할 수 있어 속도비와 총괄 스트레인을 변화에 주의를 기울일 필요가 있다.

감사의 글 : 이 논문은 2008년 정부(교육과학기술부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 연구임(KRF-2008-331-D00067).

참고문헌

1) 문일, 이영희, 김진경, “수소안전”, 도서출판 아진, 2007.

2) H₂ Incident Reporting and Lessons Learned, <http://www.h2incidents.org/>.

3) H. Tsuji, “Counterflow Diffusion Flames”, *Progress in Energy and Combustion Science*, Vol. 8, pp. 93 ~ 119, 1982.

4) A. E. Jutz, R. J. Kee, J. F. Grear and F. M. Rupley, “OPPDIF: A Fortran Program for Computing Opposed-flow Diffusion Flames”, Sandia National Laboratories, Sandia Report, SAND96-8243, 1997.

5) G. P. Smith, D. M. Golden, M. Frenklach, N. W. Moriarty, B. Eiteneer, M. Goldernberg, C. T. Bowman, R. K. Hanson, S. Song, W. C. Gardiner, Jr., V. Kissianski, and Z. Qin, http://www.me.berkeley.edu/gri_mech/.

6) K. Sheshadri and F. A. Williams, “Laminar Flow between Parallel Plates with Injection of a Reactant at High Reynolds Number”, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, Vol. 21, pp. 251 ~ 253, 1978.

7) S. H. Sohrab, Z. Y. He and C. K. Law, “An Experimental Investigation on Flame Interaction and the Existence of Negative Flame Speeds”, *Proceedings of the Combustion Institute*, Vol. 20, pp. 1957 ~ 1965, 1984.