



극세선 열전대에 의한 수소화염의 전파특성 측정

*김동준

산업안전종합연구소 안전과학연구부문
(2009년 11월 18일 접수, 2010년 6월 7일 수정, 2010년 6월 7일 채택)

Measurements on the Propagation Characteristics of the Hydrogen Flame by Ultra Fine Thermocouple

*Dong Joon Kim

Research Institute of science for Safety and Sustainability, Natinal institute of Industrial Science and Technology, Ibaraki-Ken, Japan
(Received 18. November. 2009, Revised 7. June. 2010, Accepted 7. June. 2010)

요 약

최근 석유에너지의 대체에너지로 수소에 대해 사회적인 관심이 높아짐에 따라, 수소의 연소특성에 관한 연구가 많이 진행되고 있다. 하지만, 수소화염의 온도는 고온이며, 전파속도가 빠르며, 수소화염은 가시광을 거의 방출하지 않기 때문에 화염의 특성을 파악하는 것이 쉽지 않다. 본 연구에서는 직경12.7, 25.4, 50.8 μm 인 3종류의 극세선 열전대를 이용하여 화염의 도달시간 및 온도를 동시에 측정하였다. 이론혼합농도에서의 화염도달시간을 검출한 결과, 빠른 수소화염의 전파속도를 정밀히 측정할 수 있음이 확인되었다. 또한, 열전대의 시정수를 고려함으로써, 화염온도를 추측하는 것이 가능함을 확인했다.

Abstract - Hydrogen is expected to become a new, clean source of energy for the next generation. Therefore, many studies have investigated the characteristics of the hydrogen flame. However, because the hydrogen flame has high temperature, the flame does not emit visible light, and the flame propagates at a high velocity, investigating its characteristics is difficult. In the present study, in order to simultaneously examine the flame temperature and flame propagation velocity of hydrogen/air mixtures, ultra fine thermocouples with diameters of 12.7, 25.4, and 50.8 μm are utilized. The results show that it is possible to detect the arrival time of the flame. Due to the temperature compensation with the time constants of thermocouples, it is also possible to estimate the flame temperature.

Key words : hydrogen, flame, ultra fine thermocouple, propagation velocity, temperature

1. 서 론

수소는 연소 후 생성물이 수증기이므로 환경 오염이 없어, 석유에너지를 대체할 친환경 에너지로 기대되고 있다. 하지만, 수소는 누출이 쉽고, 폭발범위가 넓고, 착화가 용이하기 때문에 사용시 높은 안전성 확보가 필수적인 에너지원이다[1]. 따라서, 수소의 연소/폭발 특성에 관한 연구가 많이 진행되어 왔으며,

특히, 최근에는 수소의 대량 생산, 저장, 소비가 예측되기 때문에 연소/폭발특성을 조사하기 위해 야외에서의 대규모 실험을 실시하고 있다[2,3].

하지만, 야외실험은 실험환경이 열악하며, 경제성, 안정성의 이유로 실험횟수가 한정되기 때문에, 연소특성을 이해하기 위해 필수불가결한 화염의 온도, 전파속도를 정밀히 측정하는데 어려움이 있다. 일반적으로 간단한 온도측정방법은 열전대, 적외선 카메라등을 이용하는 것이지만, 이론혼합농도의 수소/공기혼합기의 화염온도는 약2000도에 달하는 고

*주저자:dj-kim@aist.go.jp

온이기 때문에[4] 사용온도범위를 크게 초월하며, 화염전파속도가 빠르기 때문에[5-7], 측정속도가 따라가지 못한다. 또한, 일반적으로 화염전파속도를 측정하기 위해서 고속도카메라를 사용하지만, 수소화염은 가시광을 거의 방출하지 않기 때문에 고속도 카메라에 의한 화염의 전파속도를 측정하는 것이 곤란하다. 수소화염의 검출을 위해 광학적수법인 슈리렌(Schlieren)법을 이용하여 밀도의 차이로 인해 화염을 검출[8]하고 있지만, 렌즈 또는 거울의 크기에 의해 측정범위가 한정되어진다. 또한 가시광을 방출시키기 위해 이물질은 혼입[9,10]시켜 화염을 가시화하는 방법이 있지만, 이물질의 혼입으로 본래의 화학반응에 영향을 미칠 가능성이 있다. 이상과 같이 수소화염의 온도와 전파속도를 직접 측정하는 것은 쉽지 않은 상황이다.

최근 극세선 열전대가 보급됨으로써, 화염주변의 급속한 온도변화를 극세선 열전대를 이용하여 측정할 연구 예가 있다. 따라서, 본 연구에서는 시정수가 1ms이하인 극세선 열전대를 사용하면, 화염전파속도가 초속 수십미터인 수소/공기혼합기의 화염도달을 검출가능하리라 생각하였다. 또한, 일반적으로 수소화염의 온도는 열전대의 사용온도한계를 크게 초월하지만, 열전대가 사용온도한계에 도달하기까지의 열전대의 온도변화를 시정수를 이용하여 응답보상함으로써, 화염의 온도를 추측할 수 있을 것이라 생각하였다.

본 연구는 극세선 열전대를 이용하여, 고온, 고속 화염을 동시에 측정하는 것을 목적으로, 수소/공기 혼합기의 화염을 대상으로 그 가능성을 조사하였기에 이하와 같이 보고한다.

II. 실험

Fig. 1에 극세선 열전대를 이용하여 수소의 화염전파속도 및 화염온도를 측정하기 위한 실험배치를 나타낸다. 수소와 공기의 각 봄베이에서부터 투명비닐하우스(폴리에틸렌, 두께 $50\ \mu\text{m}$)의 용기($0.5 \times 0.5 \times 0.5\ \text{m}^3$)에 유량계를 통하여 공급하였다. 하우스내부의 혼합기의 수소농도는 공급시의 유량비를 통하여 이론혼합비의 부근인 수소 20, 30, 35 vol.%가 되도록 조절하였으며, 초기의 하우스내부 공기가 일정혼합기로 치환되도록, 수소와 공기의 봄베이에서부터 약 40 liter/min의 유량속도로 약 30분간 공급하였다. 최종적으로 비닐하우스 내부의 농도는 복수의 장소에서 가스농도측정기(FI-21, .Riken Keiki)를 이용하여 안전거리에서 원격조작하여 확인했다.

혼합기의 착화는 니크롬선의 주열열(Joule heat-

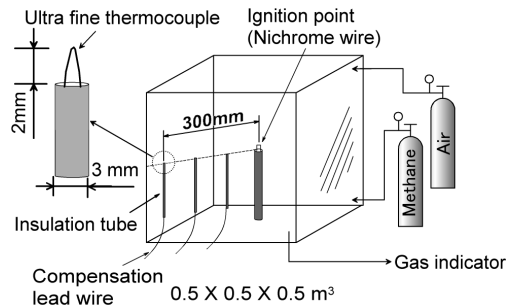


Fig. 1. Experimental setup.

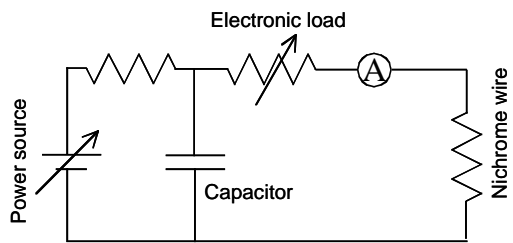


Fig. 2. Electrical circuit of the ignition equipment.

ing)에 의한 고온표면을 이용하였다. Fig. 2에 혼합기의 착화를 위한 전기회로를 나타낸다. DC 전원(E3640A, Agilent Technologies)으로 콘덴서(총합 0.1 F)에 전하를 충전시켰으며, 전자부하(PLZ334WL, Kikusui Electronics)를 통해 5 A의 일정한 전류를 니크롬선(직경 $0.2\ \text{mm}$, 길이 $4\ \text{mm}$)에 흐르게 하였다. 또한, 전류 프로브(TCP312, Tektronix)를 이용하여 착화전류의 피크치와 지속시간을 확인하였다.

화염의 온도를 측정하기 위해 착화원에서부터 0.05 ~ 0.30 m의 위치에 절연관(직경 $3\ \text{mm}$)을 통하여 극세선 열전대(K-type, 직경 $12.7, 25.4, 50.8\ \mu\text{m}$, Omega Engineering)를 설치하였다. 열전대의 접합점은 절연관에서 약 2 mm 노출되어 있다. 열전대에서 출력되는 기전력은 보상도선을 통하여 샘플 주파수 100 kHz로 디지털 오실로스코프(PXI-6133, National Instruments)에 입력했다.

III. 결과 및 고찰

3.1. 화염전파속도

수소 30vol.%의 경우에 극세선 열전대(직경 $25.4\ \mu\text{m}$)를 이용하여 화염도달에 의한 온도변화를 측정할 결과를 Fig. 3에 나타낸다. 그래프의 횡축의 기준은

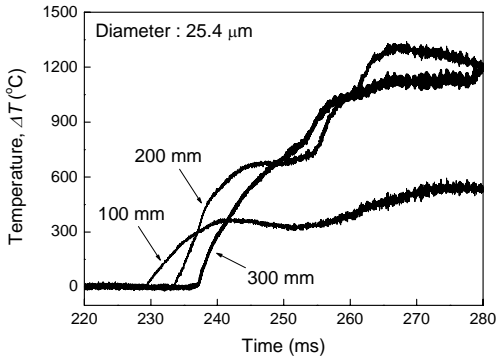


Fig. 3. Time histories of flame temperature at each distance.

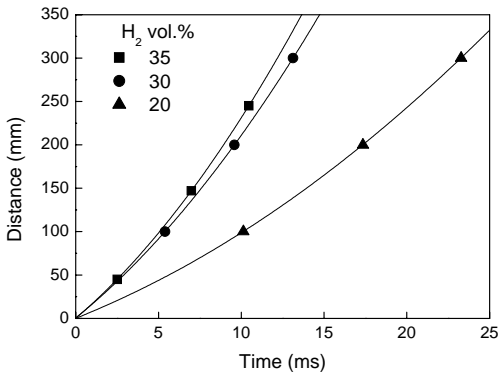


Fig. 4. Arrival time of flam for different concentrations.

혼합기가 착화된 순간이 아니라 착화전극에 전류를 흐르게 한 순간이다. 화염의 도달에 의해 불연속적으로 온도가 상승한 것을 알 수 있다. 본 실험에서는 불연속적으로 온도가 상승하는 순간을 화염도달시간으로 정했다.

Fig. 4에 농도변화(수소 20, 30 35vol%)에 따른 화염도달시간을 측정된 결과를 나타내고 있다. 이차다항식으로 근사한 결과를 실선으로 나타낸다. 화염전파는 일정한 속도를 가지는 것이 아닌, 화염이 전파함에 따라 가속되어지는 것을 알 수 있다. 초기 화염전파시는 혼합기가 정지상태이므로 층류화염이라고 고려되지만, 화염의 전파함에 따라, 기연가스에서 미연가스로 전파되어오는 압력파에 의해 미연가스의 이동과 난류를 일으킨다고 생각되어진다. 따라서, 화염전파의 가속현상은 층류화염에서 난류화염으로 전환, 다시말해 화염파면의 증가로 인해 단위시

간당의 연소가스의 양이 증가되기 때문이라 생각되어진다.

화염전파속도는 수소 20, 30, 35 vol%,의 순서로 화염전파속도가 빨라지는 것을 알 수 있다. 이론혼합기보다 높은 농도에서 최대화염전파속도를 나타낸다는 이전의 연구결과[12]와 일치한다. 또한, 본 실험에서 확인된 화염전파속도(flame propagation velocity)의 타당성을 확인하기 위하여, 각 농도에서의 연소속도(burning velocity)를 식(1)을 이용하여 문헌치[5,7]와 비교하였다.

층류화염연소속도(S_L)는 다음과 같은 식으로 표현된다[6].

$$S_L = \left(\frac{\rho_b}{\rho_u} \right) \frac{dr_f}{dt} \quad (1)$$

여기서, S_L 는 연소속도, ρ_b 와 ρ_u 는 기연과 미연의 가스밀도, dr_f/dt 는 화염전파속도를 나타내며, Fig. 4에서의 곡선(이차다항식으로 근사한 결과)을 미분하여 착화지점(0 mm)에서의 화염전파속도를 사용하였다. 또한, 계산에 필요한 기연과 미연의 가스밀도는 문헌치[6]를 이용했다. 또한, 식(1)을 이용하여 계산한 결과와 문헌치를 Table 1에 나타낸다. 문헌치와 비교해 본 결과, 큰 오차없이 일치하고 있다. 이상과 같이 극세선 열전대를 이용하여 빠른 화염전파속도를 가지는 수소화염을 정도 높게 측정가능함이 확인되었다.

3.2. 화염온도

극세선 열전대를 사용하여 화염온도의 측정 가능성을 파악하기 위하여, 착화원에서 부터 같은 거리(250mm)에 있는 일정 간격내(6mm)에 직경이 다른 3 종류의 열전대 (12.7, 25.4, 50.8 μm)를 사용하여 화염온도측정을 시도하였다. Fig. 5에 이론혼합비의 혼합기를 착화시킨 경우의 온도측정결과를 나타낸다. 화염의 온도는 직경이 다름에 따른 열전대의 응답속도의 차이로 인해 다르게 나타나고 있지만, 화염의 도착시간은 일치하고 있음을 알 수 있다. 본 연구에서는 이하와 같은 방법으로 실제의 연소가스의 온도를 검토하였다. 연소시의 화염온도(T_g)와 열전대의 접점온도(T)와의 관계는 다음과 같은 식(2)으로 부여된다[4].

$$T_g = T + \tau \frac{dT}{dt} \quad (2)$$

여기서, t 는 시간, τ 는 열전대의 시정수가 되며, 식(3)으로 부여된다.

$$\tau = \frac{\rho C d}{4h} \quad (3)$$

여기서, ρ, C, d, h 는 각각 열전대의 밀도, 비열, 직경,

Table 1. Flame propagation velocity (df/dt) and burning velocity(SL) for different concentration

H ₂ vol.%	df/dt (m/s)	S _L (m/s)		
		Present work	Ref. (5)	Ref. (7)
20	7.6	1.4	1.5	0.8
30	15.4	2.2	2.5	2.1
35	16.2	2.5	3.1	2.8

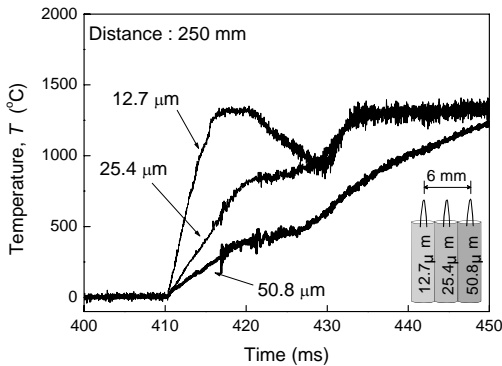


Fig. 5. Time histories of temperature for different diameters of ultra fine thermocouples.

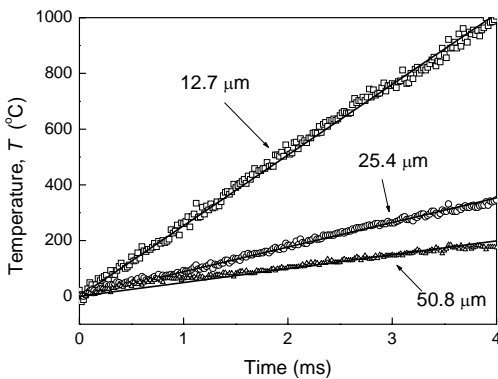


Fig. 6. Fitting of temperature rising for time constant.

열전달을 나타낸다.

화염이 도착하여, 열전대와외의 접점에서 가스온도(T_g)가 충분히 빠르게 상승하고 난후, T_g 가 일정하

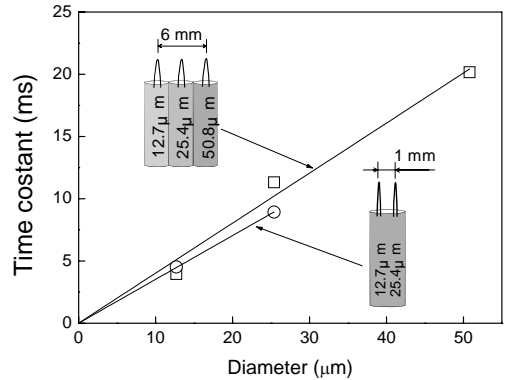


Fig. 7. Time constants versus diameters of thermocouples.

게 된다고 가정하면, 시정수는 온도의 상승비율로 인해 계산하는 것이 가능하게 된다. Fig.6에 0-4 ms 시간의 열전대의 온도변화를 나타낸다. 여기서, 시간의 기준(0 ms)은 화염의 도착시간을 의미한다. 본 연구에서는 초기(0-4 ms)의 온도상승을 최소자승오차법으로 선형근사하여 각 직경의 시정수를 구했다. 시정수를 계산한 결과를 Fig. 7에 □로 나타낸다. 식(3)에서 알 수 있듯이, 시정수는 열전대의 직경에 비례한다. 약간의 오차를 가지고 비례하고 있음을 알 수 있다. 오차의 이유는 열전대를 고정시키기 위해 직경 3 mm의 절연관을 사용하였다. 3개의 절연관이 나란히 배치되어 있음으로 인해, 높은 난류화염으로 변화되어, 국소적으로 화염의 전파속도와 방향에 영향을 미쳤기 때문이라 생각되어진다.

식(2)를 이용하여, 열전대의 응답보상을 고려하여, 화염온도를 계산한 결과를 Fig. 8에 나타낸다. 화염온도의 시간변화는 상대적으로 일치하고 있으나, 온도의 절대치는 일치하고 있지 않는 결과를 나타내고 있다. 그 이유는 각 시정수가 직경에 비례하지 않을 뿐만 아니라, 3종류의 열전대의 간격이 6 mm이기 때문에 온도의 국소적인 변동에 의한 영향등으로 각 열전대의 화염온도가 일치하지 않았다고 생각되어진다.

이상과 같은 영향을 최소화하기 위해, 한개의 절연관에 직경이 다른 두개의 열전대(직경 12.7, 25.4 μm)를 1 mm의 간격내에 설치하여 화염온도를 측정하였다. 0-4 ms의 시간의 열전대의 온도변화를 이용하여, 각 직경의 시정수를 구한 결과를 Fig.7에 ○로 나타낸 결과, 높은 직선관계를 나타내고 있음을 알 수 있다. 절연관에 의한 난류의 발생이 최소화되었다고

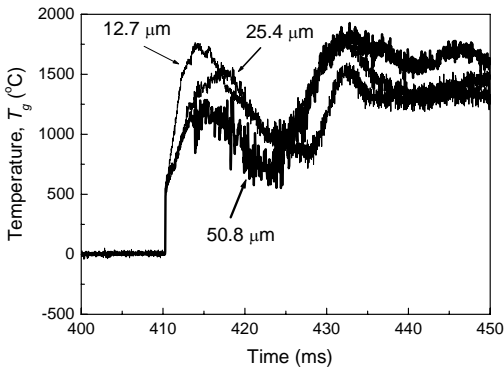


Fig. 8. Temperature compensation results for three thermocouple within 6 mm.

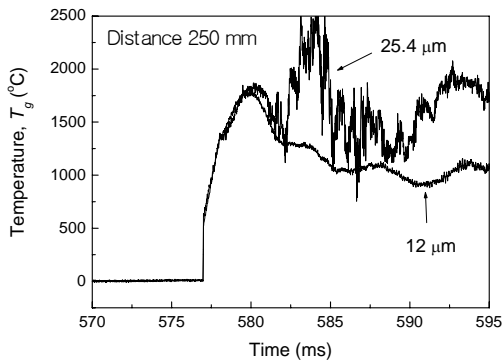


Fig. 9. Temperature compensation results for two thermocouple within 1 mm.

생각되어진다. 또한 열전대의 응답보상을 고려하여, 화염온도를 계산한 결과를 Fig.9에 나타낸다. 약 582 ms까지의 온도 변화가 일치하고 있음을 알 수 있다. 25.4 μm의 파형에서 582ms부터 나타나는 급격한 온도변화는 본질적인 화염의 온도변화를 나타내는 것이 아닌, 고온가스에 의한 열전대의 산화, 압력파에 의한 열전대의 손상 등에 의한 영향으로 노이즈가 생겨났다고 생각되어진다. 본 실험결과, 화염의 최대 온도는 약 1800도를 나타내고 있어, 수소/공기혼합기의 화염온도는 약 2000도라는 계산결과[4]보다 낮은 온도를 나타내고 있다. 이것은 금속이 화염속에 존재함으로 인해 발생하는 열전도와 복사에 의한 열손실로 인해, 본 실험의 온도측정결과 약 10% 낮은 온도가 측정되었다고 생각되어진다. 이상의 결과를 토대로, 극세선 열전대를 이용하여 수소화염의 온도를 약 10%범위의 오차를 가지고 측정가능하다고 생

각되어진다. 보다 정도 높은 온도측정을 위해서는 열복사, 열전도에 의한 열손실을 고려한 온도보상이 필요하다.

IV. 결론

극세선 열전대를 이용하여, 수소/공기혼합기의 화염의 전파속도와 온도를 동시에 측정하였다. 그 결과, 화염전파는 일정한 속도를 가지는 것이 아니며, 화염이 전파함에 따라 가속되어지며, 이론혼합비보다 약간 높은 농도에서 최대 화염전파속도를 나타내는 것이 확인되었다. 본 실험의 화염전파속도에서 구한 연소속도를 문헌치와 비교한 결과, 빠른 전파속도를 가지는 수소화염을 정도 높게 검출가능함이 확인되었다. 또한, 열전대의 시정수를 고려하여 온도보상을 계산한 결과, 약 10%범위내의 오차를 가지고 화염온도를 추측가능함이 확인되었다.

화염의 온도, 전파속도 측정은 연소공학에서 중요한 실험이다. 이 두가지가 동시에 측정가능함에 따라, 수소와 같은 고속화염의 연소특성을 연구하는데 큰 도움이 될 것이라 생각되어진다.

참고문헌

- [1] Daniel, A. and Jo, Y., "The hazard and risks of hydrogen", *Journal. of Loss Prevention in the Process Industries*, 20, 58-164, (2007)
- [2] Saito, H. et al., "A field experiment of hydrogen-air deflagration", *Science and technology of energetic materials*, 65, 140-146, (2004)
- [3] Wakabayashi, K. et al., "Experimental study on blast wave generated by deflagration of hydrogen-air mixture up to 200 m³", *Science and technology of energetic materials*, 68, 25-28, (2007)
- [4] Gaydon, A. G. and Wolfhard, H. G., "Flames - Their structure, radiation and temperature", 4th Edition, Chapman and Hall, (1979)
- [5] Koroll G., Kumar R., and Bowles E., "Burning velocities of hydrogen-air mixtures", *Combustion and Flame*, 94, 330-340, (1993)
- [6] Kwon O. and Faeth G., "Flame/Stretch interactions of premixed hydrogen-fueled flames : Measurements and predictions", *Combustion and Flame*, 124, 590-610, (2000)

- [7] Dahoe A., "Laminar burning velocities of hydrogen-air mixtures from closed vessel gas explosions", *Journal of Loss Prevention in the Process Industries*, 18, 152-166, (2005)
- [8] Sarivastava D., Weinrotter M., Iskra K., Agarwal A., and Wintner E., "Characterisation of laser ignition in hydrogen-air mixtures in a combustion bomb", *International Journal of Hydrogen Energy*, 34, 2475-2482, (2009)
- [9] Fujisawa N. and Nakashima K., "Simultaneous measurement of three-dimensional flame contour and velocity field for characterizing the flickering motion of a dilute hydrogen flame", *Measurement Science and Technology*, 18, 2103-2110, (2007)
- [10] Mogi, T., KIM, D. J., Shina, H., and Horiguchi, S., "Self-ignition and explosion during discharge of high-pressure hydrogen", *Journal. of Loss Prevention in the Process Industries*, 21, 199-204, (2008)
- [11] Tagawa M. and Ohta Y., "Two-thermocouple probe for fluctuation temperature measurement in combustion - Rational estimation of mean and fluctuation time constants", *Combustion and Flame*, 109, 549-560, (1997)
- [12] Makeev, V. I., et al, "Combustions and detonation of hydrogen-air mixtures in free spaces", *Combustion, explosion and shock waves*, 19, 548-550, (1984)