

산업용 우드펠릿의 자연발화 특성과 화재위험성에 관한 연구

최유정 · 김정훈* · 최재욱†

부경대학교 소방공학과
48513 부산광역시 남구 용소로 45
*광명토탈엔지니어링

47257 부산광역시 부산진구 서면문화로 43

(2017년 6월 11일 접수, 2017년 6월 30일 수정본 접수, 2017년 7월 14일 채택)

A Study on the Spontaneous Ignition Characteristics and Fire Risk of Commercial Wood Pellets

Yu-Jung Choi, Jung-Hun Kim* and Jae-Wook Choi†

Department of Fire Protection Engineering, Graduate School, Pukyong National University, 45, Yongso-ro, Nam-gu, Busan, 48513, Korea

*Kwangmyung Total Engineering, 43, Seomyeonmunhwa-ro, Busanjin-gu, Busan, 47257, Korea

(Received 11 June 2017; Received in revised form 30 June 2017; accepted 14 July 2017)

요 약

화력발전소의 연료로 사용되는 우드펠릿을 시료로 하여 시료 용기의 크기에 따른 최소자연발화온도를 구하였으며, 이 온도로부터 Frank-Kamenetskii의 열발화 이론을 이용하여 결보기 활성화 에너지를 구함으로써 물질의 위험성을 예측하였다. 용기의 크기가 클수록 발화한계온도는 낮아졌으며, 결보기 활성화 에너지는 37.83 kcal/mol을 구하였다. 또한 시료의 용기가 커질수록 발화유도시간 및 최고온도에 도달하는 시간이 길어졌다.

Abstract – Using wood pellets, which are used as fuel for thermal power generation plants, as test specimens, the minimum spontaneous ignition temperatures according to the size of the container for the test specimens were measured, and by applying the Frank-Kamenetskii theories on thermal energy to these temperatures, the danger factor of the materials were calculated by deriving the apparent activation energies. The results confirmed that the ignition threshold temperature decreased as the size of the container increased and that the spontaneous ignition energy was 37.83 kcal/mol. The results also confirmed that the larger the container for the test specimens was the time to arrive at the spontaneous ignition time and maximum temperature also increased.

Key words: Wood pellet, Minimum spontaneous ignition temperatures, Apparent activation energy

1. 서 론

화학공업의 발달과 새로운 화학물질의 기술개발로 인한 원료 및 제품을 분체로 취급하는 공정이 많아짐과 동시에 취급량이 증대하고 공정의 연속화 및 제품의 정밀화에 따른 자연발화로 인하여 화재의 위험성이 더욱 높아지게 되었다. 새로운 형태의 고형 또는 분체를 저장 및 취급하는 공정이 증가하고 있으므로 스파크와 같은 착화원이 존재하지 않는 상황에서 자연발화를 일으킬 잠재적 위험성이 있기 때문에 큰 피해를 초래할 수 있다[1].

2015년 4월 H 화력발전소의 우드펠릿 사일로에서 컨베이어로 연

결되는 공정에서 우드펠릿이 혼소하여 화재가 발생하였다. 이것은 외부연소, 방화, 미소화원에 의한 발화원인이 없다고 사료되어 이 사고는 우드펠릿에 의한 자연발화로 추정되고 있다[2].

우드펠릿은 고체형태로써 바이오매스로 이용되며 톱밥을 분쇄하여 원기둥으로 압축 성형한 연료로 장작이나 목재칩에 비해 밀도는 높고 크기는 작아 수송과 보관에 유리 할 뿐만 아니라 최소발열량이 약 4,000~5,000 kcal/kg으로 연료의 열효율이 뛰어나 화력발전소에서 유연탄과 혼합하여 많이 사용된다[3].

자연발화는 외부로부터 화염, 전기불꽃 등 아무런 착화원이 없는 상태에서 물질 자체가 대기 중의 상온에서 스스로 발열하여 그 열이 장기간 축적되어 발화점에 도달하여 연소를 일으키는 현상이다. 자연발화는 물질의 고유의 성질, 양, 물질이 놓여있는 환경조건의 지배를 받는 경우가 많다. 즉 방열이 되기 쉬운 상태에 있으면 열의 발생량이 많아도 열이 축적되기 어렵고, 반면에 방열되기 어려운 상태에 있으면 발열량이 적어도 충분히 열이 축적될 수 있기 때문이다. 따라서 자연발화의 특징은 열의 축적 과정에 있으며 자연발화는 환경

†To whom correspondence should be addressed.

E-mail: jwchoi@pknu.ac.kr

‡이 논문은 부경대학교 이재근 교수의 정년을 기념하여 투고되었습니다.

This is an Open-Access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0>) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

조건에 깊은 관계를 가지는 현상이다[4-6].

이러한 고체의 자연발화에 대한 연구로 국외에서는 Beamish 등 [7]과 Krause와 Schmidt[8]가 퇴적 상태에 따른 자연발화 온도에 관한 연구를 하였으며, Thomas[9]는 나무, 코르크 등 셀룰로오스 물질의 반응열에 의한 자연발화 특성에 대한 연구를 하였다. 국내에서는 Choi 등[10]은 도장폐기물에 의한 자연발화 연구를 하였다.

자연발화는 시료의 퇴적 상태에 따라 장시간 방열이 나쁜 상태에 놓이면 내부의 축적열에 의해 발화되기에 화재원인을 밝혀내지 못하는 경우가 있으며 고체형태의 가연성 물질의 경우 입자형태, 크기, 구성성분 등에 따라 다양한 결과를 나타내기에 기존의 실험 자료로 예방하기에 어려운 측면이 많다[11,12].

따라서, 본 연구에서는 용기의 크기에 따른 자연발화온도와 발화 한계온도를 이용하여 걸보기 활성화 에너지를 구함으로써 물질의 위험성을 예측하여 이를 사용하는 화력발전소 등에 있어서 화재 및 폭발예방에 필요한 자료를 제공하고자 한다.

2. 이론적 배경

2-1. Frank-Kamenetskii의 열 발화 이론

우드펠릿의 자연발화에는 계내의 온도분포를 고려한 Frank-Kamenetskii의 열 발화이론을 적용하였다[13].

Fourier의 열전도식에 Arrhenius형 반응식을 조합시켜 축대칭 1차원의 형상을 고려하여 열전도도가 온도와 장소에 의존하지 않고, 0차 반응으로 보면 에너지 방정식은 식 (1)이 된다.

$$C_p \rho \left(\frac{\partial T}{\partial t} \right) = K \left(\frac{\partial^2 T}{\partial X^2} + \frac{J}{X} \frac{\partial T}{\partial X} \right) + Q A_0 \exp^{-E/RT} \quad (1)$$

식 (1)을 해석하기 위해 무차원 변환을 위해 무차원 온도 θ , 무차원 좌표 ξ , 무차원 시간 τ_d 를 도입한다.

$$\theta \equiv \frac{E}{RT_a} (T - T_a) \quad (2)$$

$$\xi \equiv \frac{X}{a} \quad (0 \leq \xi \leq 1) \quad (3)$$

$$\tau_d = \frac{Kt}{C_p \rho a^2} \quad (4)$$

식 (2)~(4)를 사용하여 식 (1)을 풀면 식 (5)와 같이 된다.

$$\frac{\partial \theta}{\partial \tau_d} = \frac{\partial^2 \theta}{\partial \xi^2} + \frac{J}{\xi} \frac{\partial \theta}{\partial \xi} + \delta \exp(\theta) \quad (5)$$

여기서 δ 는 식 (1)을 푸는 과정에서 발열속도 항에 도입되어야 하는 무차원 반응속도로서 Frank-Kamenetskii의 Parameter라고 하여 식 (6)과 같다.

$$\delta = \frac{E Q a^2 C_0^m A_0 \exp^{-E/RT_a}}{K R T_a^2} \quad (6)$$

식 (6)을 정리하면 (7)식과 같이 된다.

$$\ln \frac{\delta_c T_c^2}{a^2} = -\frac{E}{R T_c} + \ln \frac{Q A_0 E}{K R} \quad (7)$$

3. 실험장치 및 실험방법

3-1. 실험시료

본 실험에서 사용된 시료는 K 회사에서 공급하며, H 화력발전소의 열량첨가제로 사용하는 우드펠릿을 사용하였다. Table 1은 KOTITI Testing & Research Institute에서 Test report를 참고하여 우드펠릿의 물적 특성 값을 나타내었다.

Table 1. Physical properties of wood pellet [14,15]

| Test item (s) | Unit | Limit | Test result |
|------------------------|--------------------|------------|-------------|
| Diameter | mm | 6~8 | 8 |
| Length | mm | L ≤ 40 | 20 |
| Unit volume mass* | kg/m ³ | Min. 600 | 650 |
| Total moisture* | %wt | Max. 10 | 8.1 |
| Ash*** | %wt | Max. 3.0 | 3.0 |
| Fines | %wt | Max. 2.0 | 2.0 |
| Gross calorific value | As air dried basis | Min. 4,300 | 4,680 |
| | As dried basis | Min. 4,200 | 4,530 |
| | As received basis | Min. 4,100 | 4,300 |
| Net calorific value* | %wt | Min. 3,900 | 3,940 |
| Chlorine*** | %wt | Max. 0.05 | 0.03 |
| Sulphur*** | %wt | Max. 0.05 | 0.03 |
| Nitrogen*** | %wt | Max. 0.5 | 0.5 |
| Hydrogen** | %wt | Report | 6.22 |
| Ash fusion temperature | °C | Min. 1,150 | 1,211 |
| | As | mg/kg | Max. 1.0 |
| | Cd | mg/kg | Max. 0.5 |
| | Cr | mg/kg | Max. 10 |
| | Cu | mg/kg | Max. 10 |
| | Pb | mg/kg | Max. 10 |
| | Hg | mg/kg | Max. 0.05 |
| | Ni | mg/kg | Max. 10 |
| | Zn | mg/kg | Max. 100 |
| Biomass** | %wt | Max. 90 | 95.7 |
| DNA test | | Negative | Negative |

*As received basis

**As dried basis

***As air dried basis

3-2. 실험장치

본 연구에서 사용한 실험장치는 Fig. 1에 나타내었으며, 실험장치는 항온조, 열전대, 온도제어장치, 기록계와 시료용기로 구성되어 있다 [16].

항온조는 내용적 27 l (30 cm × 30 cm × 30 cm)의 열풍 순환식 항온조로 내부의 온도분포를 일정하게 유지하기 위하여 Sirocco fan (Ø10 cm)을 부착하여 내부공기를 강제 순환시켰으며, 항온조의 가열히터는 1200 °C까지 온도를 상승시킬 수 있는 1.5 kW의 히터 5개를 설치하여 가열하였다. 항온조 상부의 배기구에는 팬을 설치하여 설정온도보다 내부온도가 높을 때는 릴레이 스위치에 의해 팬이 자동으로 작동되게 하였다. 온도측정용 열전대는 주위온도의 제어 및 측정용과 시료의 중심온도 측정용으로 사용하였으며, 전자는 시료용기와 항온조의 벽면중심에 설치하고, 후자는 직경은 0.35 mm로서 2 조의 Chromel-Alumel 열전대를 시료용기의 중심에 설치하였다. 온도제어장치(제조사: Konics, EC-5600)는 프로그램의 설정에 의해

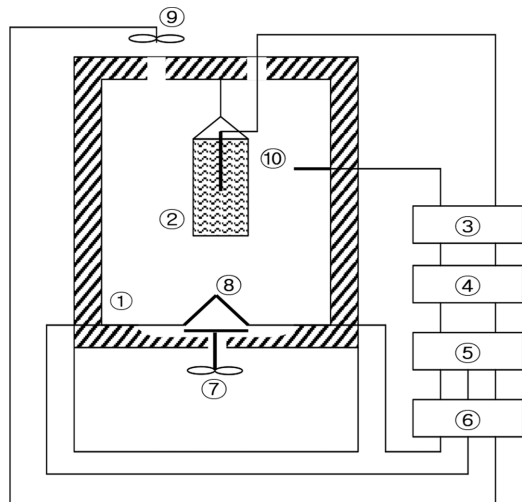


Fig. 1. Schematic diagram of experimental apparatus for spontaneous ignition temperature measurement.

- | | |
|-------------------------|---------------------------------|
| 1. Electric furnace | 6. Relay switch |
| 2. Sample | 7. Sirocco fan |
| 3. Cold junction | 8. Heater |
| 4. Program controller | 9. Fan |
| 5. Temperature recorder | 10. Chromel-alumel thermocouple |

주위온도를 제어하는 방식으로 냉접점을 거친 보정된 온도를 제어할 수 있도록 하였으며, 이를 설정온도와 비교하고 그 차이에 의해 1.5 kW의 히터 5개의 전류치를 제어하여 릴레이 스위치로서 상부 팬의 작동을 on-off로 제어하도록 하였다. 온도기록장치(제조사: Yoko gawa, model 4151)는 펜형 기록계로서 설정온도 및 시료중심 온도를 연속적으로 기록하도록 되어 있다.

시료용기의 크기는 Small (H20 cm × L20 cm × W3 cm), Intermediate (20 cm × 20 cm × 5 cm), Large (20 cm × 20 cm × 7 cm), Extra large (20 cm × 20 cm × 14 cm)로서 형상을 입방체로 하여 무한평판에 접근하도록 하였으며, 이 용기는 300 mesh의 스테인리스 망으로 앞면과 뒷면을 일차원 방향으로 열전달이 되게 하였으며, 다른 부분은 약 1 cm의 석면판으로 단열시켰다.

3-3. 실험방법

온도제어 장치의 프로그램을 미리 설정하여 소정의 온도로 가열된 항온조의 중심에 우드펠릿을 충전한 시료용기를 장치 내에 걸고, 열전대를 시료용기의 중심부, 시료용기와 벽면과의 공간 중앙부에 같은 높이가 되도록 설치하였다.

시료용기를 실험 장치에 넣은 후 시료의 중심온도 변화를 관찰하여 중심온도가 설정온도보다 급격하게 상승 시 「발화」로 판정하고, 시료의 중심온도가 설정온도와 유사하게 유지 할 때에는 「비발화」로 판정하고 1회의 실험을 중지하였다.

동일한 조건으로 실험을 반복하여 시료가 발화한 최저온도와 발화하지 않았던 최고온도와 차이가 5 °C 일 때 실험을 종료하고, 양자의 평균온도를 발화한계온도로 하였다.

4. 결과 및 고찰

4-1. 우드펠릿의 자연발화온도

4-1-1. 시료용기가 3 cm 일 경우

시료 용기의 폭이 3 cm에서 사용된 시료의 양은 0.45 kg으로서 자연발화온도를 구하였다. Fig. 2는 175 °C에서 비발화 되었으며, Fig. 3은 설정온도를 180 °C로 일정하게 하고 시료용기를 실험 장치에 넣은 후 2시간 36분이 지남에 따라 발화가 일어나고 9시간 정도에서 최고발화 온도를 기록하였다. 주위온도는 6시간 36분이 지나면서 설정온도보다 높아졌으며, 이것은 발화의 영향으로 시료용기 내의 온도가 높아져 항온조의 주위온도가 상승하고 있음을 나타낸다.

따라서 Small 용기의 경우 우드펠릿의 발화온도인 180 °C와 비발화로 판정되는 175 °C의 평균온도인 발화한계온도 177.5 °C를 구하였다.

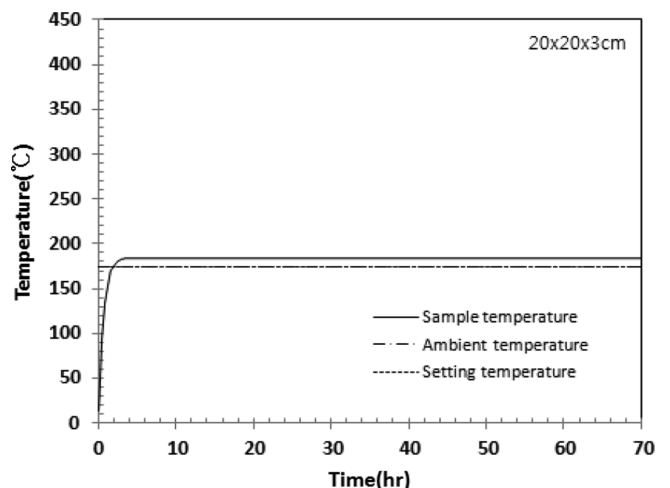


Fig. 2. Relation between time and temperature for wood pellet in 3 cm vessel (at 175 °C).

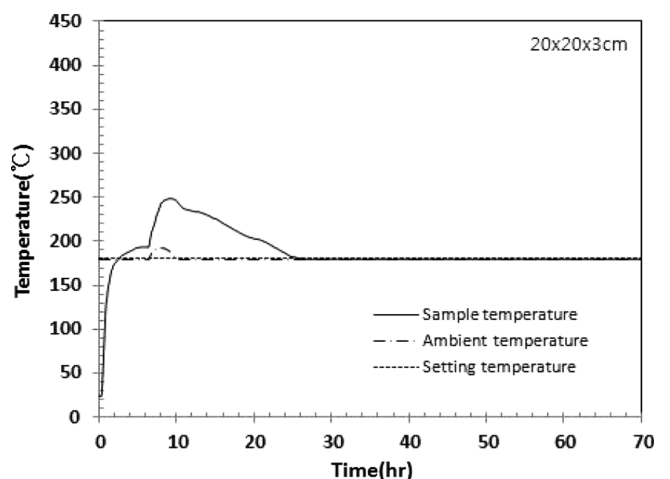


Fig. 3. Relation between time and temperature for wood pellet in 3 cm vessel (at 180 °C).

4-1-2. 시료용기가 5 cm 일 경우

시료 용기의 폭이 5 cm에서 사용된 시료의 양은 0.9 kg로서 Fig. 4에는 비발화된 것을 나타 내었으며, Fig. 5는 175 °C에서 발화되었다. 따라서 발화된 온도 175 °C와 비발화된 온도 170 °C의 평균값인 172.5 °C의 발화한계온도를 구하였다.

4-1-3. 시료용기가 7 cm 일 경우

시료 용기의 폭이 7 cm에서 사용된 시료의 양은 1.39 kg이며,

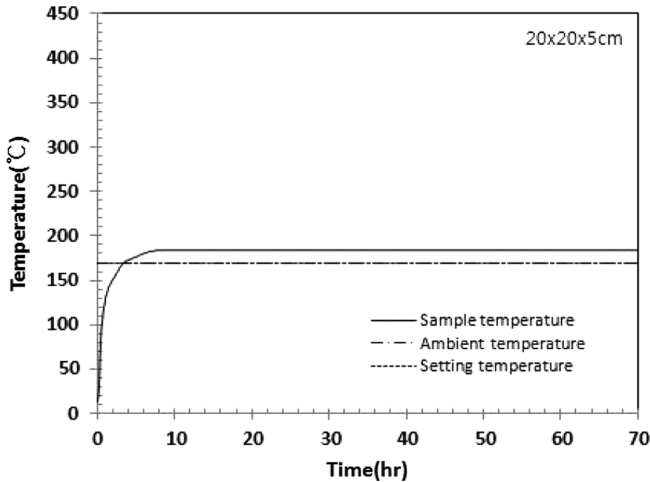


Fig. 4. Relation between time and temperature for wood pellet in 5 cm vessel (at 170 °C).

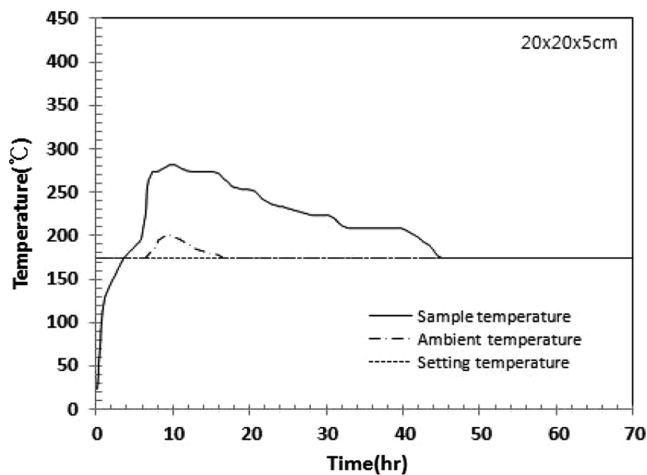


Fig. 5. Relation between time and temperature for wood pellet in 5 cm vessel (at 175 °C).

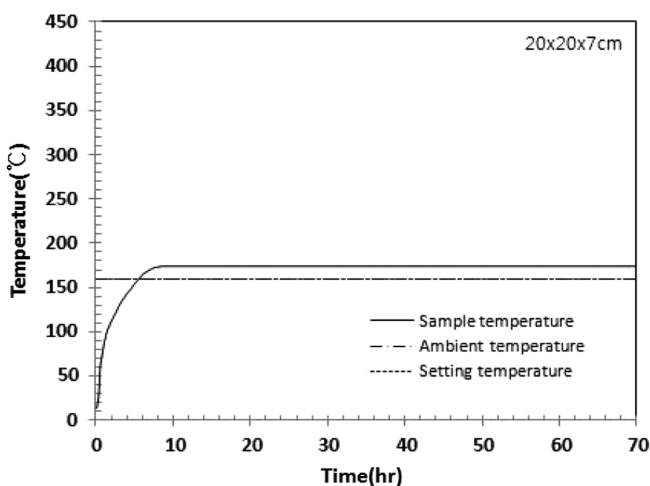


Fig. 6. Relation between time and temperature for wood pellet in 7 cm vessel (at 160 °C).

Fig. 6은 160 °C에서 비발화 되었으며, Fig. 7은 165 °C에서 5시간 48분이 경과할 때 주위온도보다 시료용기 내의 온도가 서서히 상승

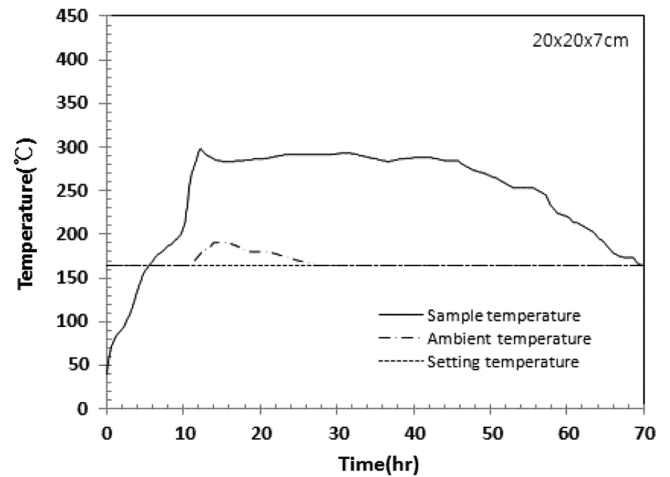


Fig. 7. Relation between time and temperature for wood pellet in 7 cm vessel (at 165 °C).

한 후에 낮아지는 것을 확인할 수 있었다. 이것은 시료용기 중심에 삽입된 열전대 부근의 시료가 발화된 후 산소부족으로 연소가 소강 상태에 놓여 온도가 하강하다가 인접한 시료에서 재발화하여 다시 온도가 상승한 것으로 예측된다.

따라서 시료용기가 7 cm 일 때 발화와 비발화의 평균온도인 발화 한계온도 162.5 °C 임을 알 수 있었다.

4-1-4. 시료용기가 14 cm 일 경우

시료 용기의 폭이 14 cm에서 사용된 시료의 양은 2.73 kg이며, Fig. 8은 145 °C에서 비발화된 것을 나타내었으며, Fig. 9는 150 °C에서 발화되었다.

따라서 시료용기가 14 cm 일 때 발화한계온도는 147.5 °C 임을 알 수 있었다.

시료용기가 커질수록 발화유도시간이 길어지는데 이것은 용기가 커질수록 시료층의 두께가 두꺼워지므로 시료의 표면에서 중심까지 열전달이 어렵기 때문인 것으로 판단된다.

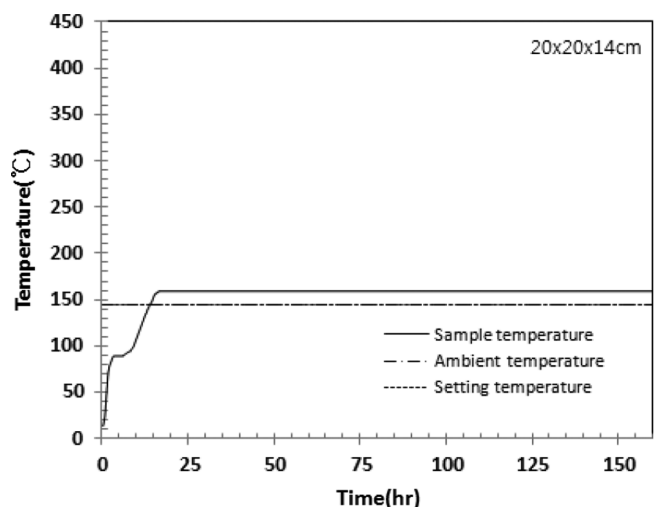


Fig. 8. Relation between time and temperature for wood pellet in 14 cm vessel (at 145 °C).

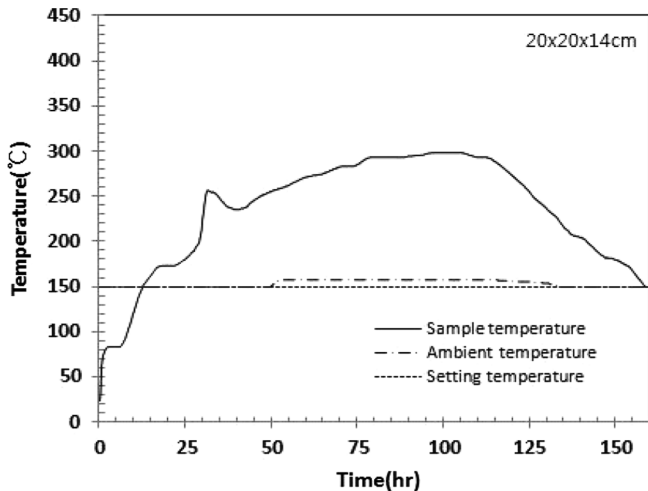


Fig. 9. Relation between time and temperature for wood pellet in 14 cm vessel (at 150 °C).

4.2. 우드펠릿의 겉보기 활성화 에너지

각 크기가 다른 시료용기에서의 실험 결과로부터 구한 발화한계 온도를 Table 2에 나타내었다.

우드펠릿의 겉보기 활성화 에너지를 구하기 위해 식 (7)에서 $\ln \frac{QA_0E}{KR}$ 와 $\frac{E}{R}$ 는 언제나 상수가 되므로, $\ln \frac{\delta_c T_c^2}{a^2}$ 을 $\frac{1}{T_c}$ 에 대해 도식화하면 Fig. 10과 같이 직선이 얻어진다. 또한 발화와 비발화를 나타내는 실험결과를 동시에 나타내었으며, 이 결과를 최소자승법으로 정리하면 다음의 식 (8)을 얻을 수 있다.

$$\ln \frac{\delta_c T_c^2}{a^2} = 62.46 - 19.04 \times 10^3 \times \frac{1}{T_c} \quad (8)$$

식 (8)로부터 겉보기 활성화 에너지를 구하면

$$\frac{E}{R} = 19.04 \times 10^3 \text{ [K]} \quad (9)$$

식 (9)가 얻어지고 활성화 에너지를 식 (10)과 같이 구하였다.

$$E = 37.83 \text{ [kcal/mol]} \quad (10)$$

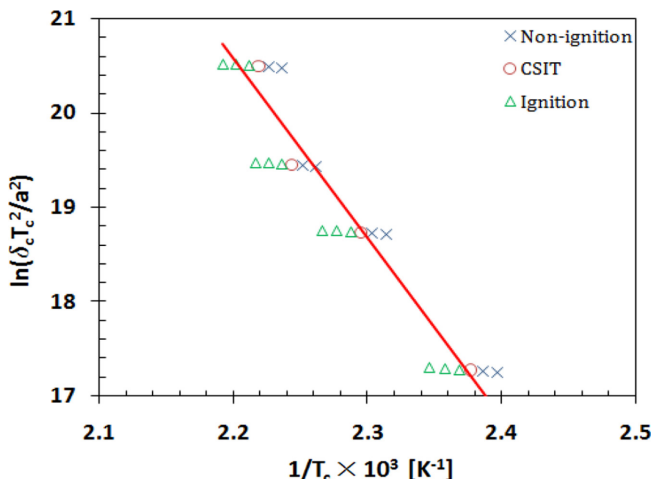


Fig. 10. Determination of activation energy for wood pellet.

Table 2. Relation between critical spontaneous ignition temperature and thickness in each sample vessel for wood pellet

| a [m] | T _c [K] | δ _i | $\ln \frac{\delta_c T_c^2}{a^2}$ | $\frac{1}{T_c} \times 10^3 \text{ [K}^{-1}\text{]}$ |
|----------------------|--------------------|----------------|----------------------------------|---|
| 1.5×10^{-2} | 450.66 | 0.878 | 20.4907 | 2.2190 |
| 2.5×10^{-2} | 445.66 | | 19.4468 | 2.2439 |
| 3.5×10^{-2} | 435.66 | | 18.7284 | 2.2954 |
| 7.0×10^{-2} | 420.66 | | 17.2721 | 2.3772 |

5. 결 론

우드펠릿을 사용하여 자연발화 온도 및 겉보기활성화 에너지를 구한 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

(1) 시료용기의 크기가 3 cm인 경우 우드펠릿의 발화온도는 180 °C 이고, 비발화 온도는 175 °C를 구하였으며, 발화와 비발화 온도의 평균값인 177.5 °C의 발화한계온도를 구하였다.

(2) 시료용기 크기가 5 cm인 경우 발화한계온도는 172.5 °C를 구하였으며, 시료용기 크기가 7 cm인 경우 발화한계온도 162.5 °C를 구하였다.

(3) 시료 용기의 폭이 14 cm에서 사용된 시료의 양은 2.73 kg으로서, 145 °C에서 비발화 되었으며 150 °C에서 발화가 되어 발화한계 온도는 147.5 °C임을 알 수 있었다.

(4) 발화와 비발화 온도의 실험결과로부터 겉보기 활성화 에너지를 구한결과 37.83 [kcal/mol]을 얻었다.

(5) 시료의 용기가 커질수록 발화유도시간 및 최고온도에 도달하는 시간이 긴 것으로 나타났다.

감 사

이 논문은 2016학년도 부경대학교 연구년(II) 교수지원 사업에 의하여 연구되었음(C-D-2016-0887).

Nomenclature

- a : Half thickness of sample vessel [m]
- A₀ : Arrhenius equation [-]
- C₀ : Concentration of reactant [mol/m³]
- C_p : Specific heat [J/mol·K]
- E : Activation energy of reaction [J/mol·K]
- J : Shape parameter [-]
- K : Heat conductivity of body [W/m·K]
- Q : Heat of reaction per unit mass [J/mol]
- R : Universal gas constant [J/mol·K]
- t : Time [sec]
- T : Mean temperature of internal system [K]
- T_a : Ambient temperature [K]
- T_a : Critical auto ignition temperature [K]
- X : Coordinate [-]

Greek Letters

- δ : Dimensionless reaction rate [-]
 θ : Dimensionless temperature [-]
 ξ : Dimensionless distance [-]
 ρ : Density of mixture system [mol/m³]
 τ_d : Dimensionless time [-]

Reference

1. Choi, J. W., Mok, Y. S. and Ha, D. M., "A Study on the Spontaneous Ignition of Hydroxy Propyl Methyl Cellulose," *Fire Science and Engineering*, **15**(4), 34-40(2001).
2. Hadong Fire Station, "H Thermal Power Plant Wood Pellet Transfer Facility Fire Site Survey," (2015).
3. Yoon, S. W., Kang, H. D. and Kang, K. Y., "Bio Industry and Environment," *Moonumsa Publisher*, 292-300(2010).
4. Mok, Y. S. and Choi, J. W., "A Study on Auto Ignition of Granulated Activated Carbon with Change of Ambient Temperature," *J. Korean Society of Safety*, **7**(4), 45-53(1992).
5. Kim, S. R., Mok, Y. S. and Choi, J. W., "A Study on Spontaneous Ignition Estimation of Granulated Activated Carbon," *Korean Chem. Eng. Res.*, **31**(5), 538-546(1993).
6. Lee, S. H., "Fire Science," *Donghwagisul Publisher*, 101-105 (2012).
7. Beamish, B. B., Lau, A. G., Moodie, A. L. and Vallance, T. A., "Assessing the Self-heating Behaviour of Callide Coal Using A 2-metre Column," *J. of Loss Prevention in the Process Industries*, **15**, 385-390(2002).
8. Krause, U. and Schmidt, M., "The Influence of Initial Conditions on the Propagation of Smouldering Fires in Dust Accumulations," *J. of Loss Prevention in the Process Industries*, **14**, 527-532(2001).
9. Thomas, P. H., "Self-heating and Thermal Ignition - A Guide to its Theory and Application," *America Society for Testing and Materials*, 56-82(1972).
10. Choi, J. W., Mok, Y. S., Ok, G. and Sagong, S. H., "A Study on the Spontaneous Ignition of Painting Waste," *J. Korean Society of Safety*, **14**(2), 90-96(1999).
11. Choi, J. J., "Hazard Estimate of Flour Evaluated From its Characteristics of Heat Decomposition and Spontaneous Ignition," Graduate School, *Chungnam National University*, 1-5 (2010).
12. Kitagawa, T., "Chemical Safety Engineering," A Daily News Paper(1971).
13. Frank-Kamenetskii, D. A., "Diffusion and Heat Transfer in Chemical Kinetises," 2nd ed., Trans by Apleton, Pleum Press, 5-36(1969).
14. Kim, Y. R. and Lee, S. R., "Test Report for Wood Pellet," KOTITI Testing & Research Institute(2016).
15. Korea Forest Research Institute, "Standards and Quality Standards of Wood Products," (2015).
16. Lim, W. S., "A Study on the Explosion Characteristics of Hydroxy Propyl Methyl Cellulose Dust," Graduate School, *Pukyong National University*, 26-31(2005).