

## 가압유동층에서 석탄의 연소특성

진경태, 한근희, 박재현, 손재익  
한국에너지기술연구소

### Coal Combustion Characteristics in Pressurized Fluidized Bed Combustor

G. T. Jin, K. H. Han, J. Park and J. E. Son  
Korea Institute of Energy Research

#### 1. 서론

가압유동층 복합발전(Pressurized Fluidized Bed Combustion Combined Cycle 또는 PFBC-CC)은 고효율 및 공해물질 배출이 적은 석탄이용 차세대 발전기술이다. 석탄을 연소하면서 발생하는 열은 스팀으로 회수하여 스팀터빈을 구동하고, 고온, 고압의 연소가스로 가스터빈을 구동하여 복합 발전함으로서 효율을 42- 45%까지 얻을 수 있으며, 유동층연소의 장점인 연소중 탈황과 낮은 질소산화물 배출특성으로 환경친화적이며 경제성이 우수한 청정석탄 이용기술이다(이와 손[1], Miller[2]).

1960년대 말부터 가압유동층 연소기술에 대한 연구가 수행되어 왔으며, 상업화, 발전시장의 선점 기술 보유 및 노후 발전소의 교체기술로 보급하기 위하여 실증사업을 추진하여 1990년 초부터 80 MWe 실증규모의 운전이 시작되어 현재 6개의 발전설비가 운전 또는 건설 중에 있으며, 일본의 Karita에 1999년 340 MWe상업화 운전을 목표로 건설되고 있다(진 등[3]). 가압유동층 복합발전에 관심을 갖고 있는 나라에서는 독자적인 기술개발과 보다 효율이 높은 제2세대 가압유동층 복합발전기술을 개발하기 위한 연구가 진행중이며, 현재 Florida주의 Lake City에 157 MWe의 실증규모가 설계 중에 있다[4].

가압유동층 연소기는 유동층 석탄연소의 장점과 가압의 장점을 갖는다. 유동층 석탄연소의 장점은 연소중 흡착제를 주입함으로 경제적인 탈황을 수행할 수 있으며, 연소온도가 낮아 Thermal NOx의 발생이 없으며, 조업성이 우수하다는 것이다. 가압할 경우 장치의 소형화, 유동층의 운전 높이를 상압의 경우보다 2- 5배 높게 운전할 수 있어 용량 증대뿐만 아니라 NOx의 발생도 저감할 수 있으며, 고온, 고압의 연소가스로 가스터빈을 구동함으로서 발전효율을 높일 수 있다는 것이다.

세계적으로 저공해 및 고효율 발전기술이 보급될 것으로 전망되며, 국내에서도 이에 대비하여 탄종에 따른 가압유동층 석탄연소의 제반특성의 이해와 필요한 요소기술의 개발 및 도입후 단시간 내의 자립화나 일부 요소기술의 국산화를 위하여 1994년 청정에너지기술개발사업이 수행되고 있으며, 그 일환으로 가압유동층 석탄연구를 수행하고 있다. 설계, 제작 및 시운전을 통하여 운전기술을 습득하였고, 연소특성에 대한 연구를 수행하고 있다. 본 연구에서는 가압유동층 운전조건에 따른 연소효율과 NOx 및 CO의 발생특성에 대하여 살펴보았다.

## 2. 이론적 배경

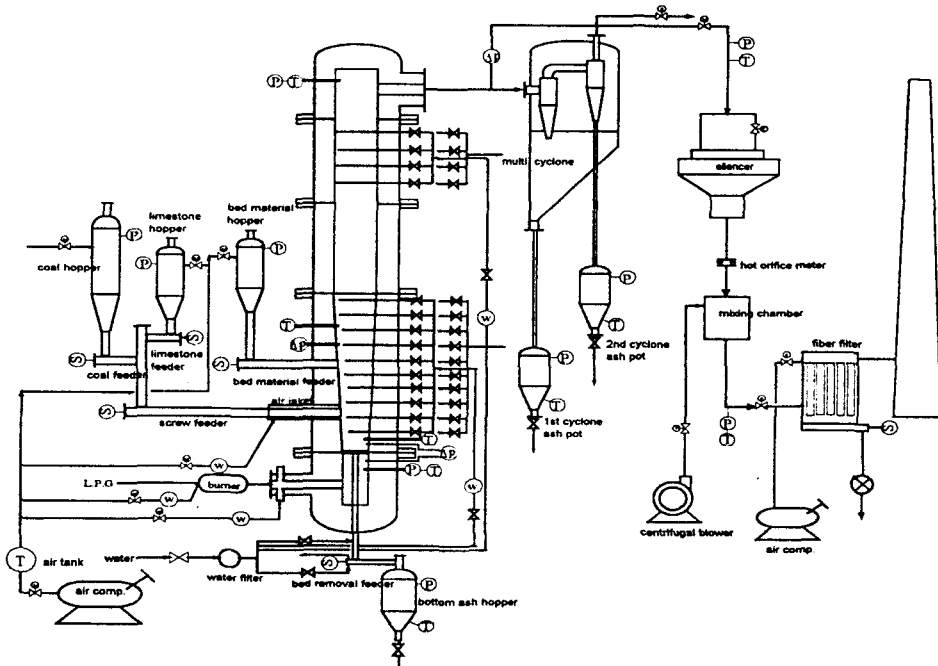
유동층 석탄연소는 온도, 압력에 따른 석탄의 반응속도, 유동층에서 기체의 체류시간, 과잉공기의 양, 석탄입자의 비산, 석탄의 표면적 및 char내부에서 기체의 확산 등에 영향을 받는다. Wallman & Carlsson[5]이 보고한 회분식 가압유동층의 압력에 따른 연소특성에서는 압력이 연소특성에 미치는 영향을 관찰할 수 없었다. 산소의 분압증가와 확산속도의 감소가 서로 상쇄되기 때문에 발표하였다. 석탄의 완전연소는 체류시간이 증가함에 따라 증가한다고 하였는데(Podolski 등[6]) 상대적으로 높은 유동층 높이를 갖는 가압 유동층의 연소효율은 증가한다. 연소온도는 CO의 농도와 관계가 있으며, Anthony & Preto[7]는 CO는 온도가 높더라도 건조한 공기나 산소분자와 반응하지 않으며, 오히려 유동층 내부의 기포의 분출영역 및 Freeboard상부에서 산화가 관찰되는데, 이 영역에서 회분에 OH, H 등의 radical이 재결합하여 CO와 반응하기 때문에 발표하고 있으며, 이는 Freeboard온도가 CO의 농도에 많은 영향을 줄 수 있다는 것이다.

질소산화물은 반응온도, 연료 및 분위기의 여러 화합물의 농도에 따라 복잡한 경로를 통하여 다양하게 생성하고 분해된다고 제안하고 있으며, 각 반응식에서 반응속도상수가 NO, NO<sub>2</sub> 및 N<sub>2</sub>O의 농도를 결정한다. 여러 연구자들이 제안한 NO<sub>x</sub>의 발생기구의 화학반응식을 토대로 NO<sub>x</sub>의 발생농도에 영향을 미치는 인자로는 연료의 형태, 연료 중 질소 성분, 산소농도, 온도, 환원제의 농도, 수분, Char의 특성과 회분이 있다(Leckner[8], Johnsson[9]). 연소시 발생하는 CO가 환원제로 작용함에 따라 배출농도는 서로 영향을 받는다.

## 3. 실험장치 및 방법

본 실험에 사용한 연소설비의 공정도를 [그림 1]에 보였다. 시스템은 가압유동층 연소로, 예열 가스버너, 석탄 및 충물질 주입장치, 하부회 배출장치, 가압공기 주입부분, 1차 및 2차 사이클론 및 내부 압력을 조절하는 Control Valve, 상압으로 압력을 낮추는 Silencer, 배가스 분석장치 및 Bag Filter로 구성되어 있다. 가압 유동층 연소로는 외부는 압력을 견딜 수 있는 카본스틸로 직경 0.7 m의, 높이 6 m의 가압용기를 제작하고 내부에 내화제로 하부에서의 직경이 0.17 m, 2m높이에서 직경이 0.25m인 Tapered 유동층으로, 그 이상에서는 직경이 일정하며 높이는 3m로 연소로를 제작하였다. 석탄은 Screw Feeder로 주입하도록 하였으며, 내부에 발생하는 열을 추출하기 위하여 유동층 영역에 전열관을 10개 설치하였으며, 위치별로 열전대와 압력점을 설치하여 내부의 연소온도를 관찰하고 층 높이를 예측할 수 있도록 하였다.

충전물로 사용한 모래는 평균 입경 0.4mm 이었으며, 석탄은 중국의 울란탄을 사용하였고, 그 물성은 수분, 휘발분, 고정탄소 및 회분이 각각 12.05, 29.63, 53.10 및 5.22%이며, 발열량은 6,000 Kcal/kg, C, H, N 및 S는 각각 71.20, 5.30, 0.74 및 0.28%이었다. 실험조건은 반응온도 850, 900 및 950 °C, 과잉공기비는 10, 20 및 30%, 공탑속도는 0.9, 1.1 및 1.3 m/sec, 조업압력은 4, 5 및 6기압에서 수행하였으며, 본 연소실험에서 유동층의 높이는 2m로 일정하게 유지하였다. 배가스는 전처리하여 입자와 수분을 제거하고 O<sub>2</sub>, CO<sub>2</sub>, SO<sub>2</sub>, CO 및 NO<sub>x</sub>를 분석하였으며, 층 회분, 사이클론 회분, 백필터 회분은 시간별로 수집하여 무게를 측정하고 원소분석을 수행하여 탄소함량을 분석하였다.



[Figure 1] Schematic Flow Diagram of 0.1 MWt PFBC Facility in KIER

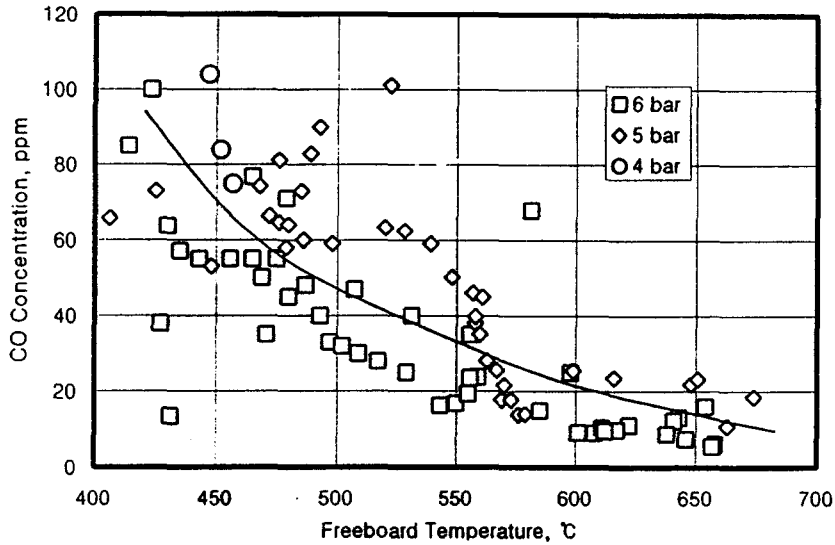
#### 4. 결과 및 고찰

각 운전조건이 연소특성 및 공해물질배출에 미치는 영향을 살펴보았다.

**일산화탄소 :** 공해물질중의 하나로 분류되어 그 농도를 제어하여야 하지만, 이 값의 증가는 경제성과 보일러의 성능에 중요한 영향을 미치는 연소효율의 감소를 의미한다. 국내에서는 일산화탄소의 배출규제치를 산소농도 6%에서 250 ppm이하로 규제하고 있으나, 효율향상을 위하여 보다 낮은 배출치를 얻기 위한 각 조업인자들의 영향을 분석할 필요가 있다. [그림 2]에 Freeboard의 온도에 따라 일산화탄소의 배출치를 보였다. Freeboard의 온도가 430 °C에서 670 °C로 증가함에 따라 일산화탄소의 배출농도는 100 ppm에서 20 ppm으로 지수적으로 감소함을 보였다.

반응기 출구에서 일산화탄소의 농도는 출구온도에서 이산화탄소와 평형농도관계에 영향을 받으며, 이때까지의 온도변천 과정에서 미반응 석탄과 수분 및 비산회가 일산화탄소의 촉매적인 역할로 이산화탄소로 전환시켜준다고 알려져 있다. 연소중 생성된 수분 중 일부가 수산radical(OH)을 형성하여 일산화탄소와 반응하여 이산화탄소와 수소 radical을 생성하며, 수소 radical은 다시 물과 반응하여 수소와 수산radical을 생성하여 반응이 촉진된다고 알려져 있다. 전체적인 반응식은 water gas shift reaction으로 알려져 있다(Anthony와 Pretof[7]). 본 시운전 상태에서의 반응은 다량의 수분이 반응에 참여하고, 이산화탄소와의 평형관계가 지수적으로 표현할 수 있는 반응온도인 400 - 900 °C범위에서 연소가 일어났기 때문에, 온도가 증가함에 따라 일산화탄소의 배출농도는 지수적으로 감소함을 보인 것으로 설명할 수 있다.

**연소효율 :** 운전조건에 따라 배출되는 일산화탄소의 농도, 비산회 및 하부회의 탄소

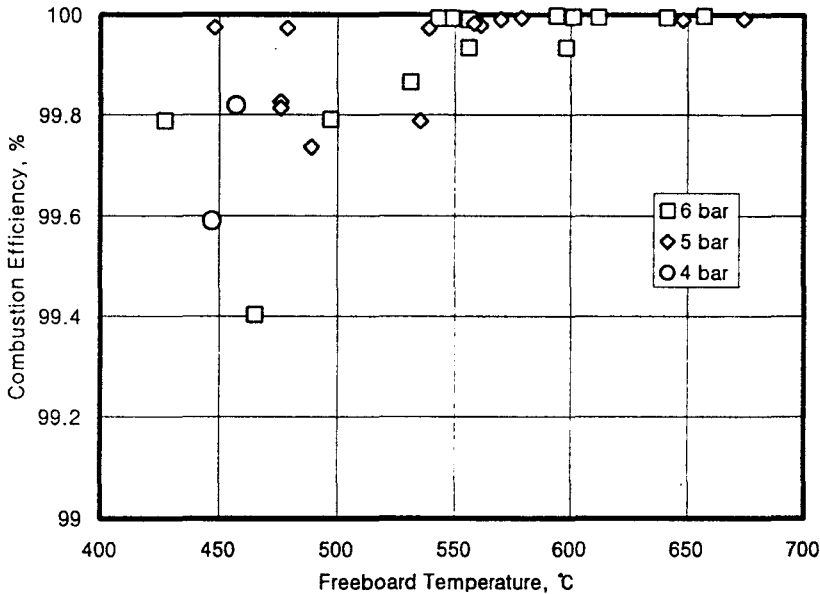


[Figure 2] The Effect of the Freeboard Temperature on Carbon Monoxide Emissions.

농도로부터 연소효율을 계산하였다. 연소효율은 연소로의 성능을 상대적으로 분석할 수 있는 방법중 하나이다. 회분이나 일산화탄소의 배출을 최소화하는 운전조건의 규명이 무엇보다 중요하며, 반응온도, 압력, 산소농도, 석탄의 물성, 입자의 체류시간, 연소로 내부에서의 고체입자의 충분한 혼합, 열전달 특성 등이 종합적으로 영향을 미친다고 알려져 있다. [그림 3]에 Freeboard온도에 따른 연소효율에 미치는 영향을 도시하였다. 결과에서 Freeboard온도가 450 °C에서 700 °C로 증가함에 따라 연소효율은 99.4%에서 100%까지 증가함을 보였다.

본 실험에서 Freeboard온도는 실험변수가 아니라 측정변수이었다. 시운전 단계에서 얻어진 본 실험결과는 Freeboard 영역에서 내화제의 건조단계가 진행됨에 따라 상당량의 열손실이 발생하여 별도의 열추출이 없이 Freeboard에서 낮은 온도를 유지하였으며, 운전조건이나 유동층의 내부온도와 무관하였으며, 총 실험시간에 따라 증가하였다. 연소는 유동층 내부에서 활발하게 진행되는데, 그 외에도 Freeboard영역에서 미반응 석탄과 Char, 일산화탄소가 산소와 반응한다. 유동층 내부의 온도가 석탄의 연소를 촉진하더라도 완전연소를 이룰 수 있는 영역이 감소함에 따라 미반응 석탄의 연소나 일산화탄소의 산화속도가 감소하여 연소효율이 낮게 나타난 것으로 추측된다. 그 외에도 과잉공기비가 증가함에 따라 연소효율은 증가하는 결과를 얻었으며, 이는 산소농도가 증가함에 따라 반응속도가 증가하기 때문이다[8]. 또 [그림 2]에서 보여준 Freeboard온도에 따른 일산화탄소 배출농도에서 보여준 바와 같이 온도의 증가에 따라 일산화탄소의 배출농도가 감소하는데, 이는 가스상에서의 연소효율이 증가함을 의미하며[7], 전체적인 연소효율의 증가를 가져온다.

질소산화물 ; 질소산화물의 발생기구는 매우 복잡하고 다양한 반응기구를 갖으며, 유



[Figure 3] The Effect of the Freeboard Temperature on Combustion Efficiency

동층 연소에서는 반응온도가 낮기 때문에 Thermal NO<sub>x</sub>의 발생은 없으며, 연료중의 질소성분이 휘발하면서 복잡한 경로를 통하여 배출하는 것으로 알려지고 있다[8][9]. 본 실험결과 NO<sub>x</sub>의 발생은 온도가 증가함에 따라 40-60 ppm에서 25-45 ppm으로 오히려 약간 감소함을 보였다. 그런데 이 농도는 기존의 상압 기포유동층에서 발생하는 200 ppm보다 훨씬 낮은 값이며, 이 현상은 질소산화물이 유동층에 존재하는 char 및 회분의 촉매역할에 의하여 농도가 감소하며, 유동층의 높이를 증가시킬 경우 이 영향이 증가하기 때문이다(Verloop 등[10]). 과잉공기에 따른 NO<sub>x</sub>의 농도의 결과를 [그림 4]에 수록하였다. 결과에서 과잉공기가 20에서 35%로 증가함에 따라 NO<sub>x</sub>의 농도는 20에서 70 ppm으로 증가함을 보였다.

이 결과는 과잉공기비가 증가함에 따라 NO 및 N<sub>2</sub>O의 농도가 증가한다고 알려져 있으며[8], 많은 반응식들은 산소의 농도에 비례하여 NO<sub>x</sub>가 발생한다[9]. 그뿐 아니라 환원제로 작용하여 질소산화물의 농도를 저감시키는 일산화탄소 및 휘발분에서 생성되는 암모니아의 산화에 의해 환원제의 감소뿐만 아니라 암모니아의 산화에 의해 질소산화물이 증가된다.

## 5. 결론

이상과 같은 실험결과를 통하여 다음과 같은 결론을 내릴 수 있었다.

1. 운전조건에 따른 배가스중 일산화탄소의 농도는 100 ppm이하를 보였으며, Freeboard의 온도가 증가함에 따라 감소하였으며, 600 °C이상에서 20 ppm이하로 유지

하였다. 또 일산화탄소의 배출농도는 과잉공기비가 증가함에 따라 감소함을 보였다.

2. 본 가압유동층 연소설비에서 중국 울란탄을 사용한 연소실험에서 연소효율 99.4% 이상을 얻을 수 있었으며, Freeboard 온도 및 과잉공기비가 증가함에 따라 증가하였다.

3. 운전조건에 따른 질소산화물 배출농도는 20 - 70ppm의 농도를 보였으며, 과잉공기비의 증가에 따라 배출농도는 70 ppm까지 증가하였다.

#### 감사의 글

본 연구는 통상산업부가 지원하는 청정에너지기술개발사업의 일환으로 수행되었습니다. 연구비의 지원에 감사드립니다.

#### 6. 참고문헌

1. 이영우 and 손재익, "복합발전용 가압유동층 연소기술", 화학공업과 기술, 13(1), 53(1995)
2. Miller, C. L., "Commercialization and Future Role of Pressurized Fluidized Bed Combustion as a Clean Coal Technology", Int'l. Clean Coal Technology Symp. on PFBC, Kitakyusyu, Japan, July, 65(1994)
3. 진경태, 손재익, 선도원, 이창근, 박재현, 한근희, 배달희, 조성호, "Bench Scale 가압유동층 석탄연소기술개발", 최종보고서, KIER-973402, 통상산업부, (1997)
4. US DOE, Clean Coal Technology Demonstration Program", DOE/FE-0364, Oct, (1997)
5. Wallman, P. H. and Carlsson, R. C. J., "Fluidized Bed Combustion Kinetics at Elevated Pressures", Proc. of the 11th Int'l. Conf. on FBC, 1517(1991)
6. Podolski, W. F., Miller, S. A., Vogel, G. J., Gehl, S. M., Hanway, J. E. Jr., Henry, R. F., Smyk, E. B., Swift, W. M., Parker, K. M., Graves, R. L., Griffin, F. P. and Lackey, M. E., "Pressurized Fluidized Bed Combustion Technology", Noyes Data Co., New Jersey, (1983)
7. Anthony, E. J. and Preto, F., "Pressurized Combustion in FBC systems", In Pressurized Fluidized Bed Combustion(Ed. Cuenca and Anthony), 80 - 120pp(1995)
8. Leckner, B., "Fluidized Bed Combustion: Mixing and Pollutant Limitation", Prog. Energy Comb. Sci., 24, 31-61,(1998)
9. Johnsson, J. E., "Formation and Reduction of Nitrogen Oxides in Fluidized Bed Combustion", Fuel, 73(9), 1398-1415(1994)
10. Verloop, C., Andries, J., and Hein, K., "Experimental Study of the Effect of Ammonia Injection and Staged Combustion on the Emissions of a PFBC", Proc. of 13th Int'l. Conf. on FBC, 149-159pp, (1995)