

가압유동층연소에서 국내무연탄의 압력변화에 따른 연소특성
(Combustion characteristics at elevated pressure
of domestic anthracite in PFBC)

한근희,* 박재현, 진경태, 손재익
(한국에너지기술연구원)

Keun-Hee Han,* Park Jaehyeon, Gyoung-Tae Jin and Jae-Ek Son
(Fluidization Research Center, Korea Institute of Energy Research
71-2, Jang-Dong, Yusung-Ku, Taejon, 305 343, Korea)

1. 서 론

경제성장에 따라 생활수준이 향상되면서, 편리한 생활을 영위하기 위하여 에너지의 사용량이 증대되기 시작하였다. 우리나라의 에너지 소비량은 지속적인 증가추세에 있으며, 그 중에서도 사용이 간편한 전기의 사용은 2000년을 기준으로 향후 10년간 50%의 증가율을 예상하고 있어, 안정적 공급을 위한 신설 발전소가 필요한 실정이다. 석탄은 편재성이 적고, 매장량이 많아, 에너지의 안정적 공급이 가능하고, 발열량에 비하여 가격이 저렴하지만, 공해물질의 배출이 큰 단점이다. 그러므로 선진국에서는 환경친화적이고, 효율적이고 경제적인 청정석탄활용기술을 개발보급하고 있다.

가압유동층연소복합발전은 청정석탄활용기술로서 1960년대 말 영국에서 시작하여, 1980년대에 pilot plant 연구가 진행되면서 그 가능성이 인정되었다. 1986년부터 미국의 Clean Coal Technology Demonstration Program(CCTDP)의 일환으로 미국 Tidd의 가압유동층 발전소, 스페인의 Escatron, 스웨덴의 Vartan, 일본의 Wakamatsu 등의 실증용 가압유동층연소복합발전소가 설치 가동되었다. 한편 1999년부터 일본의 Karita 지역의 340MWe의 세계최초의 상업용 가압유동층 복합발전이 가동중에 있다. 또 석탄가스화와 결합한 제2세대 가압유동층 석탄연소 복합발전방식으로 170MWe급의 실증규모건설계획으로 미국의 플로리다 Lakeland에 건설중에 있다[1].

국내에서는 1980년 이후 국내무연탄의 활용을 위하여 한국에너지기술연구원을 중심으로 유동층연소기술의 개발 및 실용화를 위한 연구가 활발히 진행되었다. 가압유동층연소기술은 통상산업부의 청정에너지사업의 일환으로 1994년부터 한국에너지기술연구원에서 벤치규모 PFBC에서 유연탄의 종류등 운전특성에 따른 연소 및 배가스특성과 엔지니어링자료의 축적을 목적으로 연구가 수행되었다[2].

본 연구에서는 가압유동층 연소에서 국내 무연탄의 연소와 열전달 그리고 배가스 특성을 고찰하여 이의 효율적 이용을 도모하고자 하였으며, 가압유동층 연소기의 설계 및 운전자료, 최적화에 필요한 엔지니어링 자료를 제공함으로써 가압유동층 연소기의 효율적 활용을 목적으로 수행하였다.

2. 가압유동층복합발전(PFBC-CC)

Fig. 1에 일반적인 가압유동층 복합발전의 기본 개념도를 나타냈다. 가압용기내의 유동층연소로에서 발생하는 열은 증기터빈을 구동하고 연소가스는 분진이 제거된 후 공기압축기와 발전기가 동일축으로 연결되어 있는 가스터빈을 구동한다. 공기압축기의 효율을 증대하기 위하여 압축후에 inter cooler를 설치하여 냉각시키며, 이를 운전 압력까지 압축한다. 가스터빈을 구동하고 유출된 가스는 필요에 따라 NOx를 제거하

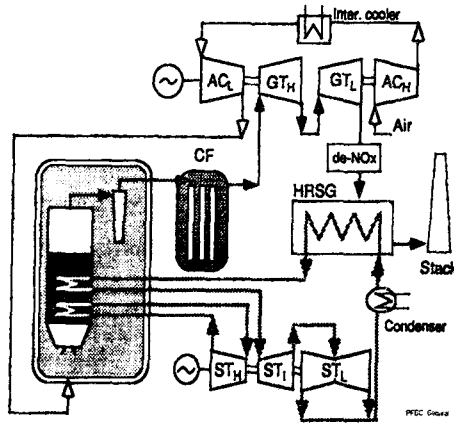


Fig. 1 Concept diagram of PFBC-CC

는 공정을 거친후 배열을 회수한다. 현재 개발 가동중인 가압유동층의 발전효율은 조건에 따라 다르지만 38-42%를 얻고 있으며, 차세대 및 진보된 가압유동층복합발전기술의 개발이 완료되면 50-56%가 가능하리라고 전망하고 있다 [2]. 가압유동층은 상압유동층에 압력을 가하는 것이다. 유동층에 압력을 가하면 공기의 밀도가 증가하여 최소유동화속도는 감소하고, 공기부피가 압력비만큼 감소함으로써 연소영역의 부피를 줄일 수 있다. 낮은 유동화속도는 비말동반되는 석탄입자의 양이 감소하여 입자의 층내 체류시간이 길어져 연소효율을 증대시킬 수 있다[2]. 이 밖에도 전체 시스템의 압력이 높기 때문에 증물질이 유동하는 층높이를 높여 용량증대를 높일 수 있다.

가압유동층에서 석탄의 연소는 시스템의 압력이 증가함에 따라 산소의 분압이 증가하여 연소효율이 증가하고 전체시스템에 가한 압력이 유동층에서 증물질의 높이로 이하여 발생하는 압력보다 훨씬 높기 때문에 층높이를 증가시킬 수 있다. 이 증가된 층높이는 고체와 기체의 체류시간을 늘려 연소효율의 증가와 노내탈황을 위하여 주입된 흡수제의 탈황율을 증가시킬 수 있다.

가압유동층연소에서 배출가스 중 SO₂의 제거를 위하여 상압의 연소로에 석회석을 주입하면 SO₂와 반응하여 CaSO₄가 생성된다. 상압에서 흡수제의 SO₂흡수는 아주 빠른시간(약 15-30min)내에 이루지고, 가압상태의 흡수제는 초기부터 아주 느리게 반응하여 수시간이상까지 계속적으로 흡수능력을 보여 어느정도의 체류시간후에는 상압에서보다 더 높은 탈황율을 보인다.

유동층연소에서는 연소온도가 상대적으로 낮아 배출되는 NO의 농도가 다른 연소방법에 비해 작은 반면, N₂O의 발생량이 상대적으로 높으며, 운전온도인 750~900℃ 범위에서 N₂O의 발생은 온도가 증가함에 따라 감소하고, NO의 발생은 온도가 증가하면서 증가한다. 또한 과잉공기 및 온도가 증가할수록 NO_x의 발생은 증가한다.

3. 실험장치 및 방법

Fig. 2은 본 연구의 벤치규모 가압유동층연소장치의 공정구성을 개략적으로 나타낸 것이다. 장치 구성 및 제원은 연료 및 공기의 공급, 연소로, 배가스처리부등으로 구성되어 있다. 연소로는 높이가 총 5m로 층(bed)과 freeboard로 나누어져 있다. 공해물질의 배출농도 측정은 O₂와 CO₂, CO, SO₂, NO_x, N₂O 등을 분석할 수 있는 전용분석기(Hartmann and Braun Co., Advance Optima)를 이용하였다.

연소로의 공기상자 앞에 설치된 버너에 LPG와 공기를 함께 공급하여 연소로를 예열하였다. 층(bed)온도의 상승에 따라 모래를 주입하고, 석탄이 연소 가능한 온도까지 상승하면 석탄을 주입하였다. 석탄의 연소열로 인하여 연소로내 층온도를 유지할 수 있으면 버너로 공급된 LPG와 공기를 차단하고 유동화 공기를 공급하였다. 실험장치에 압력을 가하고, 증물질을 주입하여 설정된 실험조건에 따라 층온도, 압력, 석탄 및

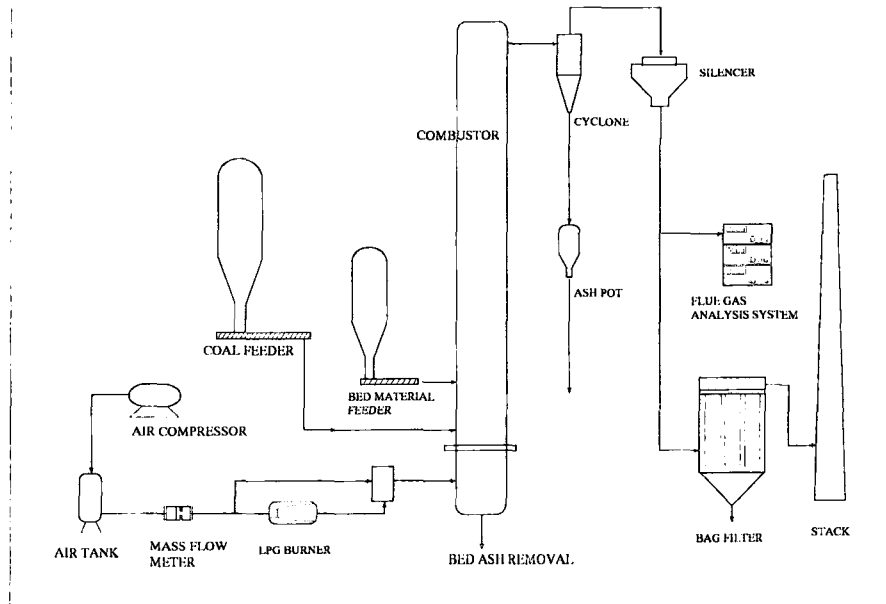


Fig 2 Schematic diagram of pressurized fluidized bed combustion facility

공기의 공급량을 변화시키면서 실험을 수행하였다. 연료의 공급은 무연탄의 황함량과 석회석의 CaO함량으로 Ca/S몰비를 계산한 후 석탄과 석회석을 미리 혼합하여 공급하였다. 본 장치의 실험장치 및 실험방법등은 한 등[3]에 상세하게 수록되어 있다.

Table 1에 무연탄과 석회석의 물성을 수록하였다. 무연탄은 강원도 태백지역의 것으로 한국전력(주)동해화력발전소의 순환유동층보일러에서 사용중인 것이다. 공업분석 결과를 보면 고정탄소가 58.3%이고, 회분이 31.3%로 고회분 무연탄임을 알 수 있다. 원소분석에서는 탄소가 62.25%로 비교적 높고, 황 함량은 0.61%로 분석되었다.

Table 2에 실험조건을 나타냈다. 운전압력은 1atm에서 6atm 범위이고, 층온도는 무연탄이 안정적으로 연소가 가능한 850~950℃로 하였다. 탈황실험에 사용된 석회석은

<Table 1> Properties of coal & limestone

Proximate analysis(%)	Moisture	5.63
	V.Meter	4.81
	Ash	31.29
Elemental analysis(%)	Fixed carbon	58.27
	Carbon	60.25
	Hydrogen	0.95
	Nitrogen	0.56
	Sulfur	0.61
	Oxygen	2.33
	Mean particle diameter(mm)	0.33
	Calorific heating value(kcal/kg)	4,850
Limestone	CaO	54.25

<Table 2> Experimental variables

Experimental parameter	Conditions
Superficial gas vel. (m/s)	1.1
Bed temperature(℃)	850, 900, 950
Excess air ratio(%)	10, 20, 30
Ca/S mole ratio	0.8, 1.8, 2.8, 4.8
Pressure (atm)	1.0, 2.0, 4.0, 6.0
Bed height (m)	2.0 (0.6)

-Proximate analyzer(MAC-400, LECO)
 -Elemental analyzer(CHN-1000, LECO)
 -Sulphur analyzer(SC-432DR, LECO)
 -Calorific analyzer(AC-300, LECO)
 -Dry basis

삼척지방에서 얻은 것으로 CaO의 함량이 54.25%를 보였다.

4. 결과 및 고찰

연소효율 연소효율은 주입된 석탄중에 미연소된 층, 싸이클론 그리고 백필터의 회재와 CO 가스로 배출되는 탄소의 양으로부터 다음과 같이 계산하였다.

$$\eta(\%) = \left(1 - \frac{X_b F_b + X_f F_f + X_c F_c + X_g F_g}{X_{\text{coal}} F_{\text{coal}}}\right) \times 100$$

여기서, F_{coal} 와 X_{coal} 는 연소로에 유입되는 석탄 가연분(휘발분, 고정탄소)의 양과 분율이며, F와 X는 각각 층, 필터, 사이클론에서의 미연분(휘발분, 고정탄소) 그리고 CO가스의 유입량과 분율을 나타낸다.

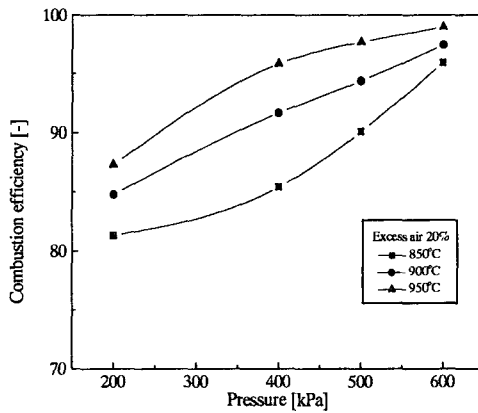


Fig. 3 Effects of pressure on the combustion efficiency.

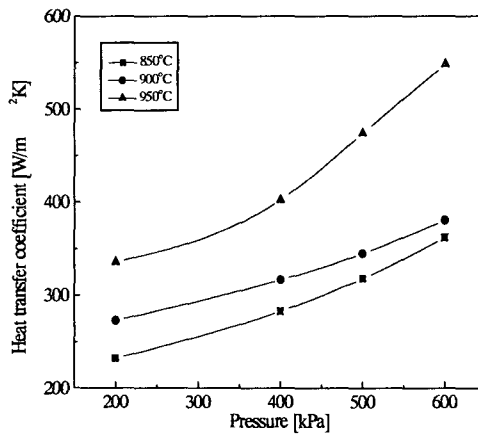


Fig. 4 Effects of pressure on the heat transfer coefficient (excess air=20%).

유동층의 연소압력이 연소효율에 미치는 영향은 Figure 3에 나타내었다. 과잉공기가 20%이고 900°C의 유동층 온도 조건에서 연소효율은 압력이 200kPa에서 600kPa까지 증가함에 따라 84.8%에서 97.5%까지 증가하였다. 또한 850°C와 950°C에서도 유사한 결과를 얻었다. 연소로 내부의 압력이 증가하면, 공기의 밀도가 증가하며 산소의 분압도 증가하게 되므로 연소의 반응성을 증가시킬 뿐만 아니라, 석탄입자 내부의 산소확산저항을 감소시켜 연소효율을 증가시킨다고 설명할 수 있다[4,5].

열전달계수 가압유동층의 압력이 열전달계수에 미치는 영향을 Figure 4에 나타내었다. 그림에서 볼 수 있듯이 전열판과 유동층간의 열전달계수는 유동층의 압력이 증가함에 따라 증가하는 경향을 나타내었다. Fig. 4에서 과잉공기가 20%, 유동층의 온도가 850°C일 때 운전압력이 200kPa인 경우 열전달계수는 232W/m²K였으나 운전압력이 600kPa인 경우에 열전달계수는 361W/m²K로 약 56% 증가하였다. 또한, 유동층의 온도가 950°C일 때 운전압력이 200kPa인 경우 열전달계수는 336W/m²K였으나 운전압력이 600kPa인 경우 열전달계수는 548W/m²K로 약 63% 증가하는 것으로 나타났다. 이와 같이 유동층내의 압력 증가가 열전달계수를 증가시킨 이유는 압력증가로

인하여 기체의 밀도가 증가되어 유동층 내부에 생성되어 상승하는 기포의 크기가 감소하고, 또한 기포의 크기가 좀 더 균일해지기 때문에 유동층 내부에서 유동하는 고체 유동입자들과 전열과 표면과의 접촉빈도수와 강도가 증가되어 접촉효율이 증가되기 때문이라 할 수 있다[6].

CO의 배출 CO는 독성가스로서 배출허용치를 현재 250ppm이하로 규제하고 있으나, 실제로 이 값의 증가는 연소효율의 감소와 장치의 부식을 초래하기 때문에 경제성 및 보일러의 효율성 문제면에서 저감하여야 한다. CO의 농도는 온도 증가에 따라 CO₂와의 평형관계에 의해 감소한다[9]. 유동층연소로의 압력과 연소온도가 배가스중

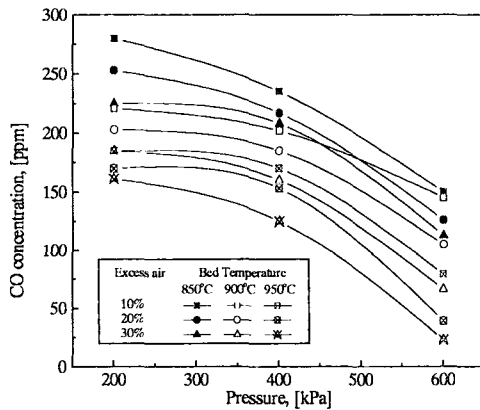


Fig. 5 Effects of bed pressure on the CO in the flue gas.

CO에 미치는 영향을 Fig. 5에 나타내었다. CO는 운전압력과 층온도 그리고 과잉공기가 증가함에 따라 감소하였다. 각 운전압력에서 과잉공기의 증가는 최대 60ppm의 감소를 보였고, 층온도가 850°C에서 950°C로 증가함에 따라 최대 80ppm정도 감소하였다. 또 과잉공기 10%, 층온도 850°C일 때 압력 200kPa에서 280ppm을 배출하였고, 400kPa에서는 230ppm을 보였고, 600kPa일때는 160ppm을 보여 압력이 증가함에 따라 현저하게 감소한 것을 볼 수 있다. 층온도가 증가함에 따라 반응속도가 증가하여 결과적으로 불완전 연소에 의해 발생하는 CO의 농도가 감소하기 때문이다. 또한 압력의 증가에 따라 배출농도가 감소한 것은 산소의 분압증가로 인하여 반응성이 좋아졌기 때문이다.

SO₂의 탈황 SO₂의 이론적으로 배출될수 있는 농도는 무연탄을 원소분석 및 공업 분석을 수행하여 분석된 값을 이용하였다. 연소중에 얻어진 배가스중의 SO₂농도는 과잉공기 10, 20, 30%에 대한 값을 나타내므로 산소농도 6%로 환산하였다. 또 무연탄의 성분중 CaO의 함량이 0.91%가 함유되어 있어 이를 황 함량과 비교하여 보면 Ca/S물비가 0.8몰에 해당하여 이를 기본으로 하였다. 석탄탈황율은 다음과 같이 계산하였다.

$$\text{Sulphur capture ratio (\%)} = 1 - \frac{\text{Measured SO}_2 \text{ concentration}}{\text{Theoretical SO}_2 \text{ concentration}} \times 100$$

Fig. 6은 Ca/S물비가 탈황에 미치는 영향을 나타낸 것이다. Ca/S물비가 증가함에 따라 모든조건에서 증가한 것을 보였고, 운전압력이 증가함에 따라 증가한 것으로 나타났다. Ca/S 물비4.8의 조건에서 100kPa일 때 72%의 탈황율을 얻었고, 200kPa일때는 85%, 400kPa일 때 93%, 600kPa일때는 98%이상을 보였다. 그러므로 유동층연소로에서 국내무연탄을 연소할 경우 상압조건에서는 Ca/S물비 4.8보다 더 많은 흡수제가 필요하고 압력 6기압에서는 4.8몰보다 적은 양의 흡수제를 가지고 충분한 탈황이 가능하다고 사료된다. 그리고 상압에서의 탈황율은 최 등 [7]이 직경 0.2m의 상압유동층연소로에서 국내무연탄의 탈황특성을 고찰한 결과와 거의 유사한 탈황율을 보였다. 또 김 등[8]이 동해화력발전소의 순환유동층보일러에서 국내무연탄을 연소하여 얻은 탈황효율보다 낮게 나타났다.

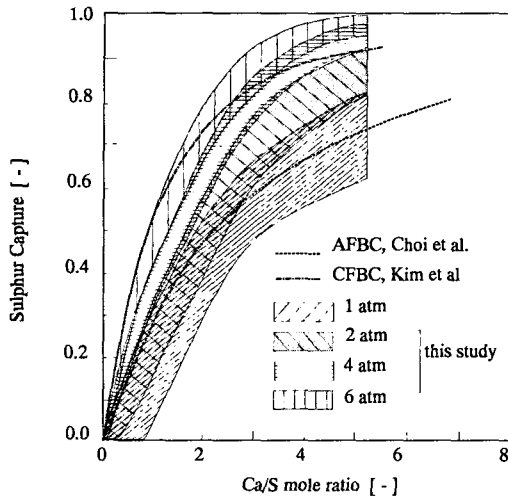


Fig. 6 Comparison of sulphur capture on the domestic anthracite with Choi et al.[7], Kim et. al[8] and this study

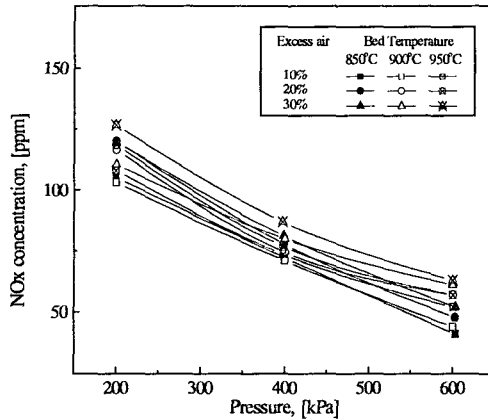


Fig. 7 Effects of bed pressure on the NOx in the flue gas.

실험변수에 영향을 받기도 하며, 가압상태에서는 압력에 대한 영향과 높은 층높이로 인하여 char 및 ash의 촉매 역할로 NOx의 농도가 감소한 것으로 설명할 수 있다.

NOx에 비해 N₂O에 대한 관심은 매우 적으나 온실가스의 하나로 부각되면서 이의 발생과 저감에 대한 연구가 발표되고 있다[10]. Fig. 8에는 각각의 운전압력에서 운전온도에 따른 N₂O의 배출농도를 나타낸 것이다. 배출경향을 보면 운전압력과 층온도가 증가함에 따라 뚜렷히 감소하는 경향을 나타냈고, 일반적으로 과잉공기가 증가

이것은 순환유동층의 경우 흡수제가 층내로 유입된 후 지속적인 순환으로 인한 체류시간 증가와 격렬한 기·고접촉거동으로 흡수제의 마멸로 새로운 기공이 발생한 결과 때문으로 사료된다. Ca/S몰비가 증가함에 따라 탈황율이 증가한 것은 연소중의 SO₂를 흡수할 수 있는 CaO의 절대량이 증가하였기 때문이고, 압력이 증가함에 따라 탈황율이 증가한 것은 흡수제의 체류시간과 흡수제의 반응표면에서 형성된 pore의 구조에 기인한 것으로 볼 수 있다[9].

NOx의 배출 Fig. 7에는 유속이 0.9m/s이고, 층온도의 변화에 따라 운전압력이 NOx의 농도에 미치는 영향을 나타낸 것이다. 운전압력이 증가함에 따라 각각의 운전온도에서 NOx의 농도는 감소하였다. NOx의 배출량은 압력 2atm에서 105~130ppm을 보였고, 압력 4atm에서는 75~90ppm을 그리고 6atm에서는 40~72ppm을 배출한 것으로 나타나 압력이 상승함에 따라 뚜렷하게 감소하는 경향을 나타냈다. 또 층(bed)온도와 과잉공기가 증가함에 따라 증가하는 경향을 보였다. NOx의 발생은 석탄에 함유된 volatile-N과 fuel NOx와 관련이 있고, CO의 농도와도 관련이 있다. 국내 무연탄은 유연탄보다 fuel NOx가 절반 정도로 적고, 매우 낮은 volatile-N을 함유하고 있어 낮은 NOx의 배출을 나타낸다. 그리고 NOx가 CO와 반응하여 N₂와 CO₂로 배출되는 관계로 CO의 농도와 반비례적인 관계에 있다. 또한 연소로내에서 가스의 체류시간, 과잉공기량 등의

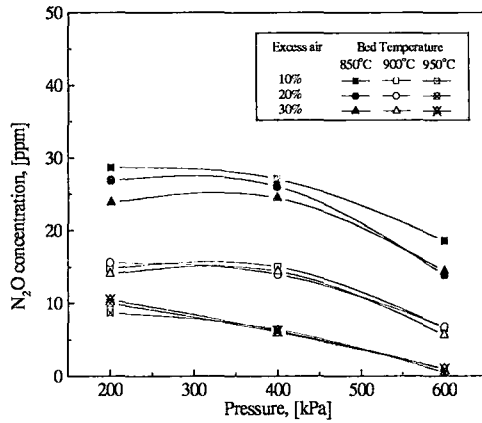


Fig. 8 Effects of bed pressure on the N₂O in the flue gas.

함에 따라 감소하지만 본 연구의 실험 조건에서는 뚜렷한 경향을 보이지 않았다. 층온도 850°C에서 압력 200kPa 일 때 최대 30ppm이하를 보였고, 압력 400kPa일 때는 26ppm을, 600kPa일 때는 20ppm이하를 보였다. 또 층온도 900°C일 경우 최고 15ppm에서 7ppm으로 감소하였고, 950°C에서는 10ppm이하를 보여 매우 낮은 값을 나타냈다. N₂O는 volatile이 연소하면서 생성되기 때문에 휘발분이 낮게 함유된 무연탄은 유연탄보다 적게 배출된다. 또한 과잉공기량의 증가에 따른 영향은 volatile과 반응할 수 있는 O₂의 양이 증가하기 때문에 N₂O의 농도가 증가한다.

5. 결론

본 연구의 실험조건에서 다음의 결론을 얻었다.

- 1) 연소효율은 유동층내의 온도와 압력의 증가에 따라 80.1%에서 최대 99.1%까지 증가하였다.
- 2) 열전달계수는 유동층내의 온도와 압력이 증가함에 따라 증가하였다.
- 3) CO의 배출은 연소온도, 과잉공기, 운전압력이 증가함에 따라 감소하였는데, 운전 온도와 운전압력이 일산화탄소의 배출에 큰 영향을 미치는 것으로 나타났다.
- 4) 탈황율은 Ca/S몰비가 증가함에 따라 현저하게 증가하였고, 운전압력이 증가함에 따라 증가하였다. 최적의 탈황을 위하여 1, 2기압일 때는 Ca/S몰비 4.8보다 높은 몰비가 필요하고, 6기압일 때는 4.8몰보다 낮은 몰비에서도 가능한 것으로 사료된다.
- 5) NO_x는 층 온도에 대한 영향은 적지만 층온도가 증가함에 따라 증가하였고, 과잉공기가 증가함에 따라 증가하고, 운전압력이 증가함에 따라 감소하였다.
- 6) N₂O는 매우 낮은 농도로 배출되었으며, 운전압력과 과잉공기, 층온도의 증가에 따라 감소하였다.

감사의 글

본 연구는 산업자원부가 주관하고 에너지관리공단 R&D본부가 지원하는 청정에너지기술개발사업의 일환으로 수행되었습니다. 연구비 지원에 감사드립니다.

참고문헌

1. 진경태, 선도원, 이창근, 박재현, 한근희, 배달희, 조성호, "Bench scale 가압유동층 석탄연소 기술개발," 연구보고서 KIER-973402, 통상산업부, pp. 1-9, 1997
2. G. T. Jin, D. W. Shun, C. K. Yi, K. H. Han, D. H. Bae, S. H., Cho and J. H. Park, "Development of bench scale pressurized fluidized bed combustion", KIER-A03708, p.1-28, 2000.
3. Han Keun-Hee, Ryu Jung-In and Jin Gyoung-Tae, *Transactions of the Korean society of mechanical engineers B*, 25(10), p. 1373, 2001.

4. Han Keun-Hee, Oh Dong-Jin, Ryu Jung-In and Jin Gyoung-Tae, *Transactions of the Korean society of mechanical engineers B*, 24(5), p. 677, 2000.
5. Podolski, W. F. and Miller, S.A., "Pressurized Fluidized Bed Combustion Technology", Noyes Data Co., New Jersey. Sarofim, A., Goel, S. K. and Morihara, A. 1994 : *International Clean Coal Technology Symp. on PFBC*, Kitakyusyu, Japan, July, p. 12, 1983.
6. Y. Kang, Y. R. Kim, M. H. Ko, Y. C. Seo, G. T. Jin, J. E. Son and S. D. Kim, *HWAHAK KONGHAK*, 35, p. 282, 1987.
7. Jeong-hoo Chio, Jae-ek Son, "Sulfur retention of a fluidized bed burning a low calorific value anthracite coal," *Energy R&D*, Vol. 12(4), p. 81, 1990.
8. 김재성 외, "국내탄용 순환유동층 보일러의 운전특성 연구", 한국전력공사전력연구원 연구보고서, '00전력연-단256, pp.172-180, 2000.
9. Snow, M. J. H., Longwell, J. P., & Sarifim, A. F., "Direct sulfation of calcium carbonate", *Industrial Engineering Chemistry Research*, Vol., 27, pp. 268-273, 1988.
10. Heije, M., Maria, P. and Dan, S. : *Energy & Fuels*, 9(1), 10, 1995.