한국에너지공학회(2000년도)
춘계 학술발표회 논문집 P159~164

# 석탄 연소가스 정제용 탄화규소 필터 개발

우상국, 서두원, 한인섭, 이기성, 배강, 홍기석, 임정환, 박영옥
한국에너지기술연구소

# Development of Silicon Carbide Filter for Cleaning of Combustion Gas from Coal

Sang Kuk Woo, Doo Won Seo, In Sub Han, Kee Sung Lee,
Kang Bai, Kee Seok Hong, Jeong Hwan Lim and Young Ok Park
Korea Institute of Energy Research

## 1. 서 론

최근 들어 운반이 쉽고 사용이 편리한 석탄의 액화 및 가스화 연구가 활발히 진행되고 있다. 석탄가스화 연구 중에는 연소 시 발생하는 배가스로 증기터빈을 돌려 발전효율을 높이는 석탄가스화 복합 발전시스템(IGCC), 가압유동층연소(PFBC)방법이 에너지 효율 및 청정 전력생산을 위한 차세대 석탄화력발전 기술로 제시되고 있다 [1,2]. 이러한 발전시스템의 배가스는 고온(600~1000°C), 고압(6~10 atm)의 상태로 증기터빈으로 유입되며, 이 때 배가스 중에 부식의 원인이 되는 화학물질인 Na, K, V, Ca, Pb등이 미세먼지의 형태로 존재하여 가스터빈을 부식시키는 원인으로 작용한다. 따라서 이러한 화학물질을 포함하고 있는 먼지입자들을 고효율로 포집 제거하여 청정 배가스로 전환하는 세라믹 캔들 필터의 개발은 매우 중요하다.

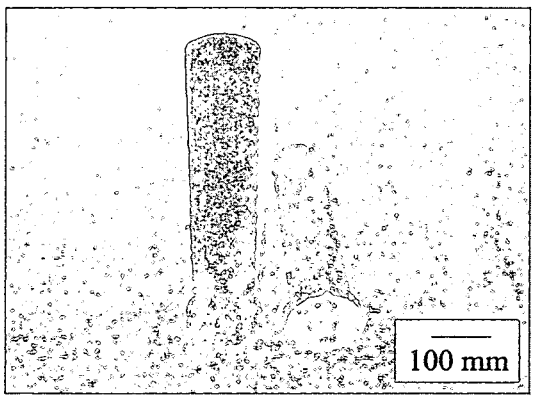
최근 수년간 고온 배가스 정제용 세라믹 필터가 주목되었는데 이는 1000°C 정도의 고온하에서의 세라믹스의 우수한 물리적 내구성, 반응성 가스에 대한 화학적 안정성, 탈진 시에 형성되는 열적 및 기계적 충격에 대한 우수한 저항성 때문이다. 즉 세라믹 필터는 다른 소재에 비해 고온, 고압 하에서의 미세입자 포집이 유리하고 사용수명, 알칼리 부식에 대한 내구성, 열충격 등에서 우수한 특성을 보유하고 있어 폭넓은 응용이 기대되고 있다 [1,2]. 이러한 세라믹 필터의 개발에 있어서는 우수한 강도특성과 함께 미세먼지 입자를 포집하기 위한 기공율과 기공크기 및 분포의 조절이 그 핵심기술이다. 즉 집진을 위한 목적과 내구성 및 유체 통과를 위한 목적이 상반되므로 적절한 기공크기 및 분포의 조절이 매우 중요하다 [3]. 현재 까지 개발된 고온에서 사용가능한 세라믹 필터로는 그 형상 및 용도에 따라 캔들 필터, 튜브형 필터, parallel-flow 필터, cross-flow 필터, 섬유형 여과재 등이 있으나, 고온, 고압하에서 장기적으로 사용 가능한 재질의 필터가 많지 않은 실정이다. parallel-flow 필터, cross-flow 필터등은 넓은 여과면적을 갖고 있지만 처리기체의 통로가 작은 단점이 있고, 높은 기공율의 저밀도 섬유형 여과재는 여과효율이 우수한 장점이 있으나 기계적 특성이 열악하고 고압에 견디지 못하는 단점을 갖고 있다.

따라서 본 연구에서는 고온, 고압의 환경 하에서 그 특성이 상대적으로 우수할 것으로 예상되는 탄화규소를 사용하여 필터를 개발하고자 하였고, 특히 출발분말 크기선정, 성형압력조절, 상대적으로 미세한 기공을 함유한 멤브레인 코팅 등의 기술적용을 통해 집진효율 및 강도가 동시에 우수한 다공질 세라믹 필터를 개발하고자 하였으며, 개발된 필터의 성능시험을 위해 압력손실 및 집진효율을 평가할 수 있는 실험실 단위의 장치를 제작하였다.

## 2. 실 험

### 2.1. 필터 제조

약 200 $\mu$m의 크기로 선별된 탄화규소(SiC) 출발분말을 소결용 결합제, 성형보조제와 함께 혼합한 후 그림 1과 같은 캔들형 형상으로 정수압 가압 성형(Cold Isostatic Press)하였다.




[그림 1] 탄화규소 캔들 필터의 형상

제조된 캔들 필터의 외경은 60 mm, 내경 40 mm, 길이 500 mm ~ 1000 mm 이었으며 성형압력은 200 ~ 400 kgf/cm$^2$ 내에서 조절하였다. 성형된 필터를 충분히 건조시킨 후 미리 제조한 탄화규소 현탁액을 분무 코팅하였다. 분무 코팅시킨 현탁액 내의 탄화규소 분말의 크기는 평균 5 ~ 25 $\mu$m 이었으며 분말의 결합 및 현탁액의 분산 안정화를 위해 결합제, 분산제, 소포제를 미량 첨가하였다. 코팅된 필터를 24시간 자연 건조시킨 후 최고온도 1400 ~ 1450℃ 으로 대기 중에서 소성하였다.

### 2.2. 특성 분석

제조된 필터의 중간부분을 파쇄하여 밀도, 기공율, 기공크기 및 꺾임 강도를 측정하였으며 이들의 미세구조는 주사전자현미경(SEM)을 사용하여 시편의 파단면을 관찰하였다.

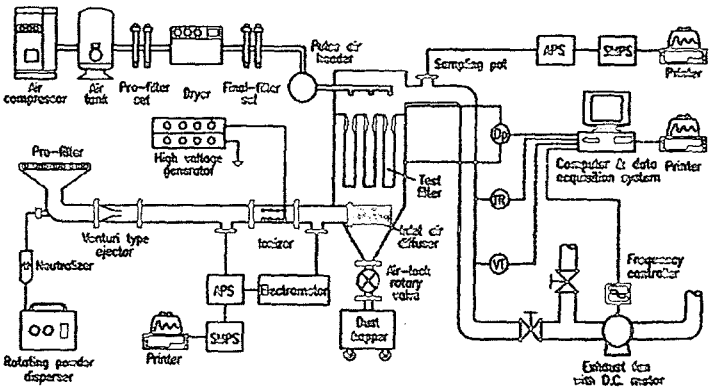
밀도 및 기공율은 각 시험편을 수중에서 3시간 이상 끓인 후, 현수무게, 포수무게 및 건조무게를 칭량하여 계산하였다. 기공크기는 수은을 가압하여 침투시키는 방법으로 porosimeter를 이용하여 측정하였다. 꺾임 강도는 다이아몬드 절삭기를 통해 40 mm x 10 mm x 5 mm의 크기로 절단한 후 만능강도시험기에서 3점 꺾임강도법으로 측정하였다.

### 2.3. 필터 성능 시험

각종 필터의 성능시험을 위해 실험실 단위의 성능실험장치를 그림 2와 같이 제작한 후 제조된 필터의 성능실험을 수행하였다. 실험장치는 실험용 먼지 유입부, 필터 설치부, 탈진장치부, 유량조절부, 기타 측정부 등으로 구성되어있다.

본 실험에 사용된 먼지는 평균 입자크기 17.2 $\mu$m, 비중 2.22 g/cm$^3$ 인 fly ash를 분쇄하여 평균 5.2 $\mu$m의 입자크기를 갖는 실험용 먼지로 제조하여 사용하였다. 실험용 먼지는 상부에서 수직 스크루 형의 먼지 정량공급장치를 통해 정량화 시켜 공급하였다.

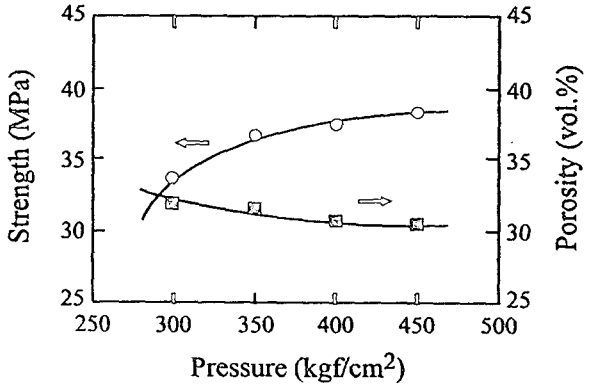
상온 상압조건에서 여과속도 혹은 먼지부하에 따른 압력손실특성, 총괄 집진효율등을 측정 분석하였다. 먼지부하와 여과속도 변화에 따른 입, 출구에서의 압력손실은 pressure transmitter와 manometer를 이용하여 측정하였으며, 먼지농도 측정은 APS를 사용하여 측정하였다.




[그림 2] 집진필터 성능시험 장치 모식도

## 3. 결과 및 고찰

제조된 필터의 성형압력에 따른 기공율 및 강도 측정결과를 그림 3에 나타내었다.

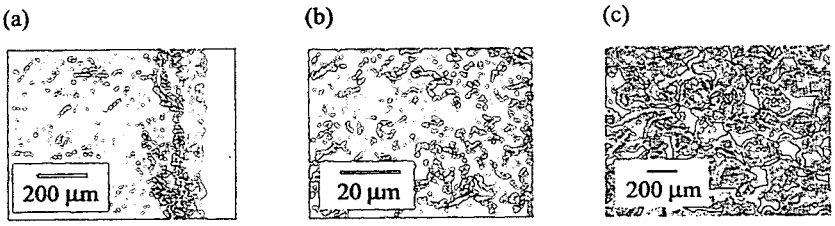



[그림 3] 성형압력에 따른 강도 및 기공율

성형압력에 따라 기공율은 감소하는 반면 감소된 기공율에 기인해 강도는 향상된 값을 보이고 있다. 기공율은 30 ~ 32 vol.% 으로 유지됨을 알 수 있고 형성된 기공에 비해 비교적 높은 꺾임 강도 (33.5 ~ 38 MPa) 의 필터 제작이 가능하였다. 성형압력이 높을수록 강도가 향상된 것은 성형밀도가 증가하였기 때문이다. 한편 평균기공크기는 성형압력에 따라 약 44 ~ 64 $\mu$m 범위의 크기를 갖는 것으로 측정되었다.

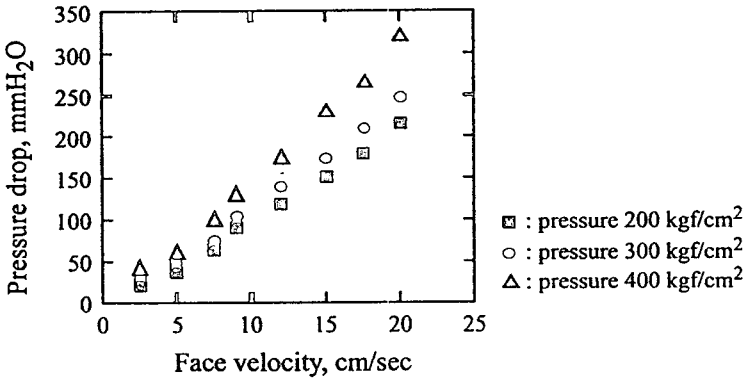
성형압 300 kgf/cm$^2$ 에서 제조한 필터에 상대적으로 미립의 탄화규소 분말이 함유된 현탁액을 분무 코팅한 후 소결된 필터의 파단면을 주사전자현미경으로 관찰한 사진을 그림

4에 나타내었다. 도포된 탄화규소 멤브레인 의 코팅 두께는 100 ~ 200 $\mu$m 범위이었으며 약 5 ~ 10 $\mu$m의 미세기공들이 균일하게 분포하고 있음을 사진에서 확인할 수 있다. 그림 4(c)와 같이 지지층은 미세먼지 입자가 코팅층에서 걸러내어진 후 계속적으로 통과되어져야 하는 기체의 투과도(gas permeability)에 문제가 없도록 상대적으로 크고 보다 균일한 분포를 갖는 기공을 함유하는 구조로 이루어져 있다. 또한 탄화규소 입자들간의 결합이 비교적 양호하게 형성되어 필터로 사용하기에 충분한 강도를 유지할 수 있었다. 즉 본 연구에서는 미세먼지 입자를 코팅층의 미세기공에 의해 포집이 쉽게 이루어지면서도 배가스 흐름에 문제가 없도록 상대적으로 큰 기공을 갖으며 강도가 우수한 지지층으로 이루어진 이중막 층상구조의 필터를 디자인하였다.




[그림 4] 세라믹 필터 파단면의 미세구조 ; (a) 지지층/코팅층 (b) 코팅층 (c) 지지층

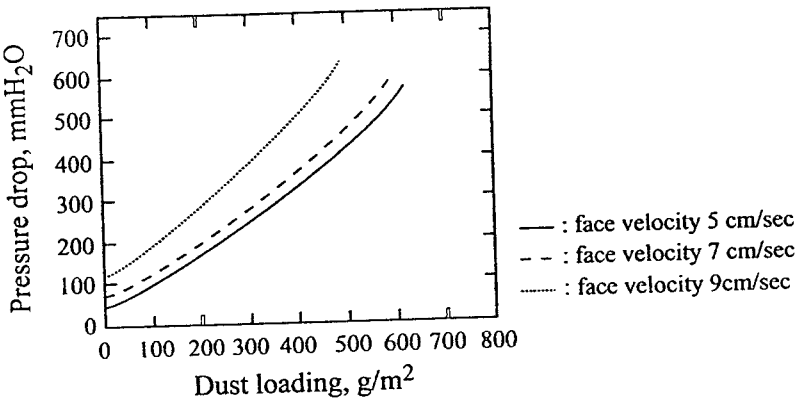
성형압력 200, 300, 400 kgf/cm$^2$ 으로 제조한 세라믹 캔들 필터를 실험용 먼지를 공급하지 않은 상태에서 필터 자체의 압력손실을 여과속도의 변화에 따라 측정하여 그 결과를 그림 5에 나타내었다.




[그림 5] 각 성형압력에서 여과속도에 따른 압력손실 변화

그래프에서 알 수 있듯이 여과속도가 증가함에 따라 필터의 압력손실이 선형적으로 증가하는 경향을 나타내었다. 또한 성형압력이 증가함에 따라 압력손실 증가기울기가 증가하는 경향을 나타내었다. 상대적으로 높은 압력으로 성형된 필터의 자체 압력손실이 다른 필터들에 비해 큰 값을 보이는 것은 높은 성형압력에 기인해 감소한 기공율과 밀접한 관련이 있다.

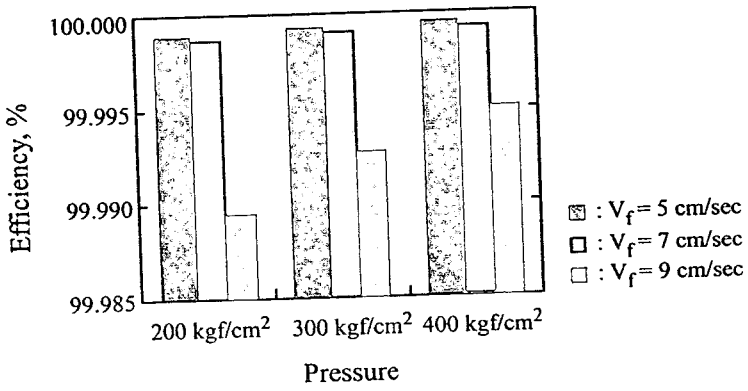
다음으로 성형압을 300 kgf/cm$^2$ 으로 제조한 필터에 대해 먼지부하의 변화에 따른 압력손실을 측정하였으며 그 결과는 그림 6과 같다.




[그림 6] 각 여과속도에서 먼지 부하에 따른 압력손실 변화

그래프에서 살펴볼 수 있듯이 일정 여과속도에서 먼지부하가 증가함에 따라 압력손실 역시 증가함을 알 수 있다. 이는 시험에 사용된 먼지입자들이 세라믹 캔들 필터 내에 집진되고 있음을 의미한다. 특히 여과속도가 빠른 조건일수록 압력손실값은 더욱 증가함을 알 수 있다. 압력손실의 증가 이유는 세라믹 캔들 필터 내에 유입된 미세먼지 입자들이 이송도중 필터내의 기공 내에 먼지층을 형성하고 충진밀도가 향상되면서 계속적으로 먼지입자들을 포집하는 것으로 생각된다 [4,5].

각 성형압에서 제조된 필터의 총괄 집진효율을 다양한 여과속도에 대해 평가한 결과를 그림 7에 나타내었다. 그래프에서 알 수 있는 바와 같이 여과속도 및 성형압력에 따른 미소한 경향은 있었으나 집진효율은 99.9% 이상의 높은 효율을 나타내어 우수한 집진특성을 보였다.




[그림 7] 각 여과속도에서 성형압력에 따른 집진효율

## 4. 결 론

가압유동층 석탄 연소 발전 설비에 장착이 가능한 탄화규소 캔들 필터를 제조하고 설치기술을 확보하였다. 본 연구에서는 특히 고온, 고압에서 내구성이 우수한 탄화규소 세라믹스를 사용하여 제조하였으며, 미세 먼지 입자 집진특성과 상온강도, 유체투과도가 모두 우수한 필터를 제조하기 위해 상대적으로 미세한 기공이 함유된 탄화규소 멤브레인을 코팅한 이중막 필터를 제조하였다. 코팅층의 기공크기는 5 ~ 10 $\mu$m, 코팅층 두께는 100 ~ 200 $\mu$m, 지지층의 기공크기는 약 45 $\mu$m, 기공율 약 32 vol.% 이었으며 지지층의 강도값은 약 35 MPa으로 입자간 결합력이 우수하였다. 여과속도 및 먼지부하에 따른 압력손실 측정결과 세라믹 필터에 의한 집진을 확인하였으며, 집진효율 측정결과 99.9% 이상의 먼지가 제거되었음을 확인, 향후 에너지효율이 높은 청정 화력발전에의 적용이 기대된다.

## 참고문헌


1. J. H. Choi, S. M. Keum and J. D. Chung, "Operation of Ceramic Candle Filter at High Temperature for PFBC Application," *Korean J. Chem. Eng.*, 16 823 (1999).
2. W. Duo, J. R. Grace, C. J. Lim, C. M. H. Brereton, A. P. Watkinson, and K. Laursen, "The Role of the Filter Cake in Hot Gas Cleaning with Ceramic Filters," *Ind. Eng. Chem. Res.*, 38 260 (1999).
3. Y. O. Park, Y. S. Shim, J. E. Son and T. S. Chung, "Coal Fly Ash Collection by Glass Fabrics-I. Growth of Dust Deposition and Pressure Drop Characteristics," *HWAHAK KONGHAK*, 29 463 (1991).
4. C. Kanaoka and T. Kishima, "Analysis of Hot Gas Filtration by Rigid Ceramic Candle Type Filter and Dust Release Mechanism," *Proceedings of the 4th Japan-Korea Symposium on Separation Technology*, Vol. 2, 725 (1996).
5. G. Ahmadi and D. H. Smith, "Particle Transport and Deposition in a Hot-Gas Cleanup Pilot Plant," *Aerosol Sci. and Tech.*, 29 183 (1998).