

CO₂ 재순환형 산소연소 가열시스템개발에 관한 실험적 연구

정유석*† · 이은경* · 고창복* · 장병록** · 한형기** · 노동순*

A Preliminary Experimental Study on the Development of Oxy-Fuel Combustion Heating System with CO₂ Recycle

Yu-Seok Jeong*, Eun-Kyung Lee*, Chang-Bok Go*, Byung-Lok Jang**,
Hyung-Kee Han**, Dong-Soon Noh*

ABSTRACT

An Experimental study was conducted on CO₂ recycle combustion heating system using pure oxygen instead of conventional air as an oxidant, which is thereby producing a flue gas of mostly CO₂ and water vapor(H₂O) and resulting in higher CO₂ concentration. The advantages of the system are not only the ability to control high temperatures characteristic of oxygen combustion with recycling CO₂, but also the possibility to reduce NOx emission in the flue gas. A small scale industrial reheating furnace simulator and specially designed variable flame burner were used to characterize the CO₂ recycle oxy-fuel combustion, such as the variations of furnace pressure, temperature and composition in the flue gas during recycle. It was found that CO₂ concentration in the flue gas was about 80% without CO₂ recycle, but increased to 90~95% with CO₂ recycle. The furnace temperature and pressure was decreased due to recycle and the NOx emission was also reduced to maintain under 100ppm.

Key Words : Oxy-Fuel Combustion, CO₂ Recycle, NOx emission, Furnace, Flex Burner

1. 서 론

온실가스의 대부분을 차지하는 이산화탄소의 대기 중 농도를 1990년 수준으로 안정화시키기 위한 전세계 선진 38개국의 CO₂ 배출량 규제가 이미 진행되었다. 우리나라는 이산화탄소 배출량 세계 9위로 OECD국가 중 가장 빠른 증가추세를 보이고 있어 자발적인 감축이 절실히 요구되는 실정이다. 철강, 시멘트, 화력발전 등 에너지다소비 업종을 중심으로 저탄소에너지원의 사용을 중대시하고 있고, CO₂ 회수처리를 위한 다양한 기술적 접근이 이루어지고 있지만 설비개선에 따른 높은 회수비용으로 실제 적용에는 많은 어려움이 있는 실정이다. 따라서 배기가스 중에 CO₂를 고효율 저비용으로 농축 회수할 수 있는 기술이 현

재 가장 중요한 쟁점이 되고 있다. 또한 O₂/CO₂ 연소기술은 CO₂회수의 경제성으로 발전용 보일러적용을 목표로 추진되고 있다. 국제적으로 발전용 보일러의 약 30%가 석탄(미분탄)을 연료로 사용하고 있으며 CO₂ 배출량의 1/3이 화력발전소에서 배출되고 있고 국내의 경우 1/4 수준을 차지하고 있는 실정이다.

CO₂ 배출저감을 위한 국내 기술은 현재 회수면에서의 비용저감에 집중되어 있다. 따라서 앞으로 CO₂ 재순환형 산소연소기술을 이용한 효율성과 경제성에 초점을 맞춰 순산소연소시 고온의 화염온도에 견딜 수 있는 고온재료기술과 경제성이 있는 산소제조기술 또한 병행되어야 할 것이다.

순산소 연소는 99%이상의 고순도 산소만을 산화제로 이용하는 기술로서, 불활성가스인 질소(N₂)가 거의 없는 상태에서 연소가 이루어지기 때문에 근본적으로 NOx 생성을 억제할 수 있다 [1]. 그리고 질소를 가열하는데 많은 열이 소요되

* 한국에너지기술연구원

** (주)에스에이씨 기술연구소

*† 연락처자: vsieong@kier.re.kr

는 것을 막을 수 있을 뿐만 아니라 배기가스량도 줄어들게 된다. 또한 공기연소시 배출되는 CO₂ 농도가 13~16%를 차지하는 반면에 순산소연소시 생성되는 연소가스는 대부분 이산화탄소(CO₂)와 물(H₂O)로 이루어진다. 따라서 고농도의 CO₂로 복사 열전달량은 증가하게 되고 배기가스 용축을 통해 고농도의 CO₂ 회수가 가능하여 회수비용을 획기적으로 절감할 수 있다.

아울러 CO₂ 재순환에 의해 화염온도를 제어하여 열적 NO_x 생성을 줄일 수 있는 이점이 있다.

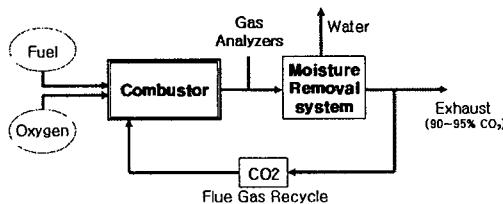


Fig. 1 Simplified Oxy-fuel firing arrangement with CO₂ Recycle

Fig. 1은 CO₂ 재순환을 위한 산소연소시스템의 개략도를 나타낸다. 연료와 산화제인 산소가 연소반응을 한 후 생성되는 연소 생성물 중에 H₂O는 냉각 용축하여 배출시키고 CO₂는 다시 연소실로 보내어지는 원리이다.

순산소 연소기술은 적용대상설비의 열적, 구조적인 특성에 부합되도록 활용되고 있으며 [2,3,4,5], 본 연구에서는 에너지다소비 열설비인 공업용 가열로에 CO₂ 재순환 산소연소 가열시스템 특성에 관한 기초적 실험을 통해 순산소 연소 가열로의 상용화설계를 위한 원천기술을 확보하고 추후 CO₂ 재순환 강재 배치식 가열로(10톤/charge)의 실증 및 실용화에 적용하고자 한다.

2. 실험장치 및 방법

2.1 실험장치 및 실험조건

본 연구에서는 순산소 연소시 생성되는 배기가스 중 CO₂를 재순환시켜 연소실의 분위기온도와 노내 압력변화 그리고 배기가스 특성을 비교 분석하였다.

Fig. 2는 실험장치의 개략도로서, 배기가스 재순환을 위한 가열로와 연소기, 배가스 냉각장치, 유량제어장치, 그리고 배기가스 분석 장치로 구성되었다.

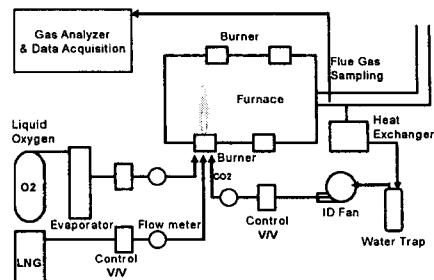


Fig. 2 Schematic diagram of experimental setup

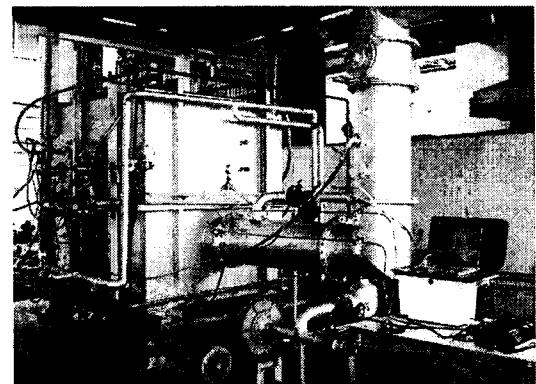


Fig. 3 Experimental test furnace simulator.

Fig. 3은 실험용 시뮬레이터를 보여 준다. 실험에 사용된 가열로는 1톤/Charge 강재의 승은 및 온도특성을 파악하기 위해 제작된 연소 시뮬레이터를 사용하였다[6]. 가열로는 가로 1m, 세로 1.4m, 높이 1m의 내부 체적을 갖는 직육면체 형태이며, 내부에는 1800°C 이상의 고온에 견딜 수 있도록 내화재 처리를 하였고, 4개의 연소기가 좌우측면 상단에 각각 2개씩 설치되었다. 이번 연구에서는 우측 1개의 버너를 이용하여 실험을 수행하였다. 정면에는 화염관측을 위한 2개의 가시창을 부착하였고 외부 공기의 유입을 차단하여 NO_x 발생을 최소화하기 위해 구조적인 보완(sealing)을 하였다.

연소기는 Fig. 4와 같이 O₂/CO₂ 혼합노즐 안에 연소용 O₂노즐이 편심으로 설치되었고 O₂노즐 안에 연료노즐을 역시 편심 설치하여 각각의 노즐이 독립적으로 회전함으로써 일정한 연소부하를 유지하면서 다양한 화염형상을 얻을 수 있도록 설계하였다. 이는 공간적으로 연료과동-회박 영역이 공존하는 다단연소개념으로 NO_x를 제어

할 수 있을 뿐만 아니라 연료 과농영역에서의 휘염(Luminous Flame)형성으로 동일 연소부하에서 더 많은 복사열을 얻을 수 있고, 연소시 화염 형상을 얇은 막상으로 넓게 펼쳐서 열방산이 일어나게 함으로써 국부 고온영역을 억제시키는 효과가 있다[7]. 그리고 CO₂ 재순환에 따른 연소특성과 화염 안정성을 얻기 위해 특별히 고안된 Single Flex 버너의 화염 형상을 상용소프트웨어인 FLUENT(Ver. 6.2)를 이용해 수치모사 비교하였다.

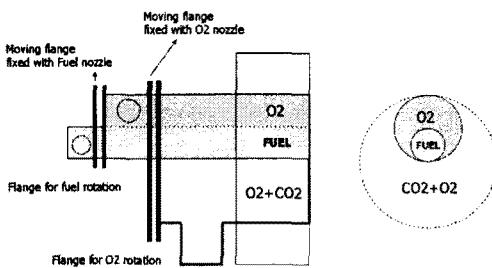


Fig. 4 Single Flex Burner

버너 상단부에는 초기점화를 위한 파일럿버너와 점화여부를 확인하기위한 UV센서를 장착하였다. 점화 후 파일럿 버너 운전을 차단하여 로내의 연소특성에 영향을 미치지 않도록 하였다.

배기가스는 가열로에 재순환되기 전에 수냉식 열교환기를 설치하여 냉각시켰고 응축수는 Water Trap을 사용하여 분리 배출하였다. 그리고 재순환을 위해 ID펜과 벨브를 이용하여 로내에 공급되는 CO₂의 압력손실을 보완 유지하였다. 로내 분위기 온도는 연소실내 중앙 상단부에 R-Type 열전대를 설치하여 측정하였고, 배기가스 조성을 측정하기위해 가열로 후단에 샘플링 프로브(Sampling Probe)를 연결하였다. 배기가스 측정을 위해 사용한 가스분석기는 O₂, CO, CO₂, NO, NO₂를 측정 할 수 있는 TESTO 360 분석기를 이용하였고 NOx 지시값은 NO와 NO₂의 합으로 나타내었다. 분석기는 실험을 수행하기 전에 표준가스를 사용하여 보정하였으며, 분석기 특성상 100% 까지 CO₂ 측정범위를 높이기 위해 질소가스(N2) 또는 Fresh Air를 혼입하였다. 또한 TESTO 300M 가스분석기를 추가로 설치하여 O₂, NOx 지시값을 확인 비교하였다.

실험에 사용된 산화제로는 액체산소를 사용하였고, 연료는 충남도시가스이었다. 가스연료의 조성은 다음과 같다. CH₄ : 88.48 [VOL%], C₂H₆[6.86%], C₃H₈[2.96%], C₄H₁₀[1.4%], N₂[0.22%].

Table 1은 실험에 사용된 연소기의 각 노즐직

경, 연료, O₂, CO₂ 공급량, 그리고 유속을 나타내었다. 각각의 공급량은 Pneumatic Control valve를 이용해 연소조건에 따라 일정량을 조절 공급하였다.

Table 1. Flow Condition and Nozzle

	직경 [mm]	유량 [m ³ /hr]	유속 [m/s]
Fuel	10.9	10	29.77
O ₂	25	21	22.8
CO ₂	43.1	6.2/13	3.13/6.55

본 연구에서 순산소 연소에 의해 가열로가 정상상태에 도달할 때까지 로내 분위기 온도(1200 °C)를 높여 CO₂ 재순환을 적용하였다. 이때 재순환량을 변화시켜 화염의 특성과 재순환시 노내 분위기 온도와 압력, 그리고 배출되는 O₂, CO, CO₂, 그리고 NOx 특성을 비교하였다. 재순환되는 CO₂ 공급압력은 300mmAq 조건을 유지하였고 공급되는 CO₂ 재순환량은 증감 조절시 노내 압의 변동에 의해 외부공기의 유입이 발생할 수 있으므로, 노내 공급되는 재순환량을 로내 압력이 1.5 ~ 2 mmH₂O로 일정하게 유지되는 조건내에서 단위시간당 평균 재순환량으로 산출하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1 연소특성

3.1.1 화염특성

Fig. 5에 재순환전 후의 화염형태를 비교하였다. 운전초기(a) (상온 분위기) 연소기 노즐 구조특성상(Fig. 4) 노즐 선단에서 연료노즐을 중심으로 상부에는 연료가 회박한 청염이 좁은 영역에서 형성되고, 하부에는 연료과농인 휘염이 넓은 영역에서 형성되고 있다. 따라서 화염은 연소기 중심축을 기준하여 복사능력이 강한 휘염이 하부에 편향되어 있는 형태를 취하게 되고 이는 실제 가열로에 적용시 피열물로의 열전달량을 높여 가열시간을 단축할 수 있는 장점을 갖는다고 볼 수 있다.

한편 일정시간 운전 경과 후, 연소실의 온도가 고온화(1200°C)된 경우(b), 화염의 형태는 유지되나 하부의 휘도는 감소됨을 볼 수 있는데 이는 연소실 벽면 복사광에 의한 상쇄효과에 의한 것으로 판단되며, 하부 중심부에는 여전히 연료과농의 휘염이 존재하고 있음을 보여 준다. 한편 (b)와 동일한 고온 분위기에서 CO₂ 재순환 량을 일정량 공급한 경우(c), 화염의 길이는 다소 길어

지며 휘도가 낮아지는 결과를 보여 준다. CO_2 의 공급량 및 위치는 산화제의 농도를 저하시키는 동시에 공간적 혼합특성에 변화를 주기 때문에 화염구조 및 NO_x 생성에 영향을 미치게 된다.

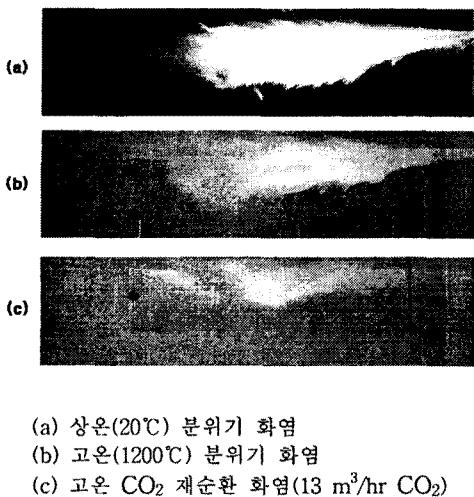
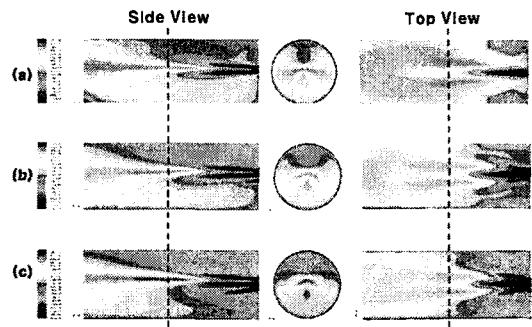


Fig. 5 Flames with/without CO_2 recycle at different ambient temperature.

Fig. 6은 실험 연소기 구조에 대하여 CO_2 재순환량에 따른 축방향 온도분포를 수치모사한 것이다. 원통형 연소실을 가정하고 실험과 동일한 조건에 대하여 해석하였고 연소기 구조의 비대칭성을 고려하여 연소기 중심 축방향 수직단면과 수평단면에서의 온도분포를 비교한 것이다. CO_2 재순환이 없는 경우(a), 수직단면에서와는 달리 수평단면 연소기 출구에서 고온영역이 형성되고 있으며, 이는 연소기 노즐의 기하학적 배열에 의해 수평단면 연료노즐 가장자리에서 연료와 산화제가 최적 혼합비에 가까운 혼합기가 형성되기 때문이다. 수직단면에서는 연료노즐 상단에 연료회박 혼합기 상태가 형성되고 하단에는 연료파이프 상태가 형성되기 때문에 판단된다. 이러한 판단은 CO_2 재순환량을 증가시킨 (b)와 (c)의 경우, 수평단면 노즐 가장자리에서의 고온 영역이 점차 이탈되는 결과에 근거한다. 일반적으로 CO_2 재순환량이 증가함에 따라 고온영역이 상대적으로 감소되고 노즐하류로 이동이 되면서 온도구배가 작아짐을 알 수 있다. 이러한 예상은 Fig. 6의 중앙에 표시한 하류방향 일정한 위치(그림상의 점선 위치)에서 반경방향 단면에서의 온도분포 결과로부터 가능하다. 즉 중앙의 고온영역은 크게 변동이 없으나 주위의 저온영역이 상대적으로 감소되고 있으며, 이는 CO_2 재순환에 따른 화염온도의 저하 및 연소반응에 영향을 주기 때문에 볼 수 있다.

결국 CO_2 재순환은 화염형태의 제어, 연소반응제어 및 분위기 온도의 제어에 이용할 수 있는 연소제어기술로 활용할 수 있음을 알 수 있다.



(a) 고온 산소연소화염
 (b) 고온 CO_2 재순환 산소연소화염($6.2 \text{ m}^3/\text{hr} \text{ CO}_2$)
 (c) 고온 CO_2 재순환 산소연소화염($13 \text{ m}^3/\text{hr} \text{ CO}_2$)

Fig. 6 Temperature contour of flame.

3.1.2 로온 및 로압의 변동

CO_2 재순환을 수행하기 전에 로내 분위기 온도와 압력은 1200°C ~ 1250°C 와 $3\sim 4 \text{ mmH}_2\text{O}$ 상태로 유지하였다.

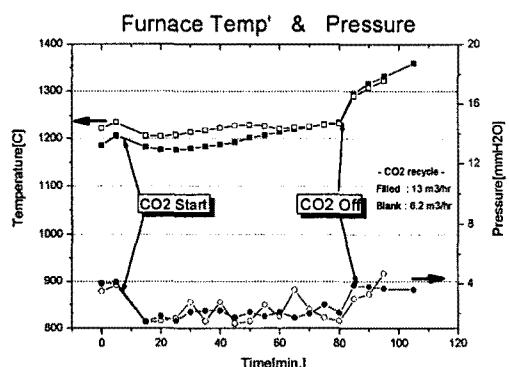


Fig. 7 Variation of Furnace Temp./Pressure during Operation.

Fig. 7에서와 같이 CO_2 가 재순환 초기에 로내 온도는 약 20°C ~ 30°C 감소되어 시간이 경과함에 따라 점차 승온되는 경향을 보이다가 CO_2 재순환 차단 후에 급격하게 온도가 증가하는 것을 알 수 있었다. 이는 배가스중 수분 응축을 위한 냉각과정에 의해 CO_2 의 온도는 재순환 공급시 약 35°C 로, 로내 가스와의 직접 혼합과 동시에 연소반응에도 영향을 주어 전반적인 로온 저하로 이

어지는 것으로 판단된다. 한편 실험조건 범위내에서 재순환량의 증가에 따른 로내 분위기 온도 저하폭은 큰 차이를 보이지 않았다. 결과적으로 Fig. 9에서와 같이 순산소 연소시 매우 높은 화염 온도때문에 발생하는 Thermal NOx를 200ppm에서 100ppm로 일정수준 감소시키는데 기여할 수 있음을 보여 준다. 이것은 CO₂ 재순환에 따른 화염온도 제어뿐만 아니라 연소기의 구조적인 특성 때문에 화염이 분할되고 얇은 막상으로 넓게 펼쳐서 열방산을 증대시킨 효과에 의한 것으로 사료된다.

로내압은 재순환 수행시 ID팬을 통해 배기가스를 유인하는 입구쪽 압력과 ID팬을 통해 로내로 공급되는 배관내 압력과의 평형에 의해 초기로 압인 3~4 mmH₂O보다 낮은 1.5~2mmH₂O 압력을 유지하였다. 일반적으로 가열로의 압력은 배기구의 개도를 조절하여 유지하게 되며 이는 배기ガ스량의 조절을 의미한다. 아울러 연소 배가스의 온도에 따라 압력이 변동하게 되므로 배가스량 및 연소실 온도를 고려한 로압조절이 요구되는 것이다. 따라서 본 연구의 실험조건내에서는 만일 초기에 로내압을 대기압수준의 상압(0~1 mmH₂O)을 유지하게 되면 재순환시 ID팬에 의한 유인압력보다 토출압력이 작아져 부압이 형성되어 그로 인해 연돌부 또는 장출입구에서 공기가 유입될 수가 있으므로 추가적인 로온의 저하 및 NOx 생성의 원인이 될 수 있다. 따라서 CO₂ 재순환 및 산소연소기술을 적용하는 공업용 가열로의 경우, 정상적인 운전을 위해서 로압은 최소한 3~4 mmH₂O 이상을 유지해야 할 것으로 판단된다.

3.2 배기ガ스특성

3.2.1 CO₂ 및 O₂ 변동

CO₂ 재순환을 통하여 배가스 중의 CO₂ 농도를 증가시킬 수 있었다. Fig. 8에 보인 바와 같이, CO₂를 재순환시키기 전의 배가스중의 CO₂ 농도는 응축후 약 80% 수준이었으나, 응축후의 배가스를 6.2m³/hr로 재순환시 CO₂ 농도는 약 5% 증가한 85%의 농도를 보였으며, 13m³/hr로 재순환 시 CO₂ 농도는 약 15% 증가한 95%의 농도를 보였다. 결국 재순환 배가스량의 증가는 허용되는 범위내에서는 가급적 증가시키는 것이 고농도 CO₂ 회수에 유리할 수 있다는 것을 의미한다. 이것은 고농도의 CO₂를 갖는 배가스를 반복 재순환시킴에 따라 연소배가스 중의 CO₂ 농도는 점진적으로 증가된다는 사실과 일치하는 결과이다. 한편 응축후의 O₂ 농도는 약 10% 정도를 유지하고 있음을 보여 주는데, 이는 응축전 배가스중의

O₂ 농도 3%에 비하여 상당히 증가한 것으로 배가스 응축에 따라 수분함량이 제거된 배가스중의 농도로 당연한 결과이다. 따라서 응축후 재순환 배가스중의 평균 90%는 CO₂이고 10%는 O₂로 보는 것이 타당할 것으로 판단되며, 재순환에 의해 과잉의 O₂가 반복적으로 추가 공급되는 결과를 가져오게 되며 이것은 결국 NOx 생성 증가의 원인이 될 수 있다는 사실에 유념할 필요가 있다.

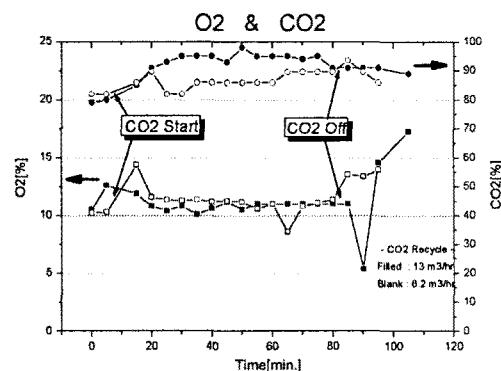


Fig. 8 Variation of O₂/CO₂ Concentration during Operation

3.2.2 NOx 및 CO의 변동

Fig. 9에 보인 바와 같이 실험조건에 따라 다소 차이는 있으나, NOx는 재순환전 최대 200 ppm을 유지하였으며 재순환 직후 재순환 배관 내에 남아있던 공기의 유입으로 일시적으로 큰 폭으로 NOx 값이 증가하였으나 시간이 경과함에 따라 최소 70 ppm까지 감소하였다. 이는 앞서 언급한 바와 같이 저온의 재순환 CO₂로 인하여 화염의 온도 및 연소실내의 온도가 전반적으로 낮아져 Thermal NOx를 줄일 수 있었던 것으로 사료된다. 본 실험에 이용한 가열로 시뮬레이터의 특성상 개구부를 통해 미량의 공기가 유입되어 NOx가 발생할 수 있다는 점과 연료중에 함유된 미량의 N₂에 의해 fuel/thermal NOx가 생성됨[8]을 보완한다면 NOx 발생량을 보다 더 줄일 수 있을 것으로 판단된다. 이를 위하여 본 실험에서 연료/산화제 및 재순환 CO₂를 고속으로 분사하여 연소실내 배가스의 로내 재순환을 강력하게 유도하는 방법을 도입할 수 있으며, 이 기술은 고온 무화염 산화반응(또는 연소) 개념으로 본 연구의 결과와 접목될 경우 에너지절감 및 CO₂ 회수 경제성을 동시에 확보할 수 있는 신 연소가열기술로 인식될 수 있을 것으로 판단된다. 한편 CO는 거의 생성되지 않는 것으로 측정되었

으며 이로써 재순환에 따른 화염온도의 저하로 인한 연소효율 저하는 없는 것으로 판단된다.

따른 NOx 특성 및 O₂/CO₂ 혼합비율에 따른 개발버너의 연소특성에 대한 연구가 보완될 필요가 있다

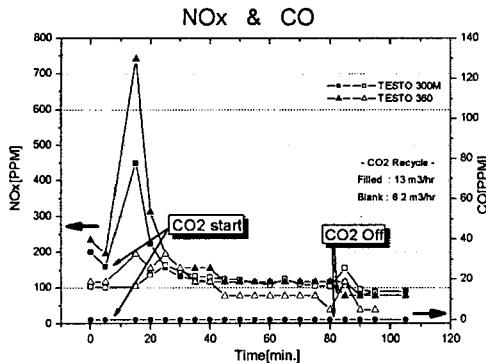


Fig. 9 Variation of NOx/CO Concentration during Operation

4. 결 론

CO₂ 재순환 산소연소시스템의 공업용 가열로 실용화 적용을 위한 재순환 연소특성과 운전특성에 관한 기초적 실험을 수행하였으며 다음의 결론을 도출하였다.

- 1) CO₂ 재순환시 화염길이는 길고 넓게 펴지는 형상을 보였다. 따라서 상대적으로 균일한 열분포를 갖게 되어 균일가열특성을 확보할 수 있다.
- 2) CO₂ 재순환에 따라 로내 온도와 로내압은 감소하였다. 재순환량의 증가에 따라 배가스중의 CO₂ 농도는 증가하였고, 이는 CO₂ 회수경제성을 담보할 수 있음을 의미한다.
- 3) 외부공기의 유입에 따른 NOx 특성변화가 민감함을 알 수 있었다. 미량의 N₂ 성분의 유입으로 NOx 생성에 큰 영향을 주는 것을 확인하였으며, 재순환 결과 NOx 발생량은 50%(200ppm → 100ppm) 가량 감소하였다. NOx 생성을 억제하기 위한 고속 재순환 분사방식의 접목이 요구된다.
- 4) Single flex 개발버너의 적용으로 화염의 과농연소와 회박연소 영역을 만들어 NOx를 줄일 수 있었을 뿐만 아니라 복사열전달을 향상시킬 수 있는 화염형상체어 가능성을 확인할 수 있었다.
- 5) 순산소 연소시 CO₂ 재순환량과 로온, 로압 및 연소부하와의 정량적 상관관계, CO₂ 분사위치에

후 기

이 연구는 2005년 과학기술부 프론티어사업인 이산화탄소저감 및 처리기술개발사업단의 연구비지원에 의해 수행되었으며 이에 감사의 뜻을 전합니다.

참고문헌

- [1] Chales, E. Baukal, "Oxygen-Enhanced Combustion", CRC Press, 1998.
- [2] 노동순 외, "연소시스템 고성능 지능화 기술개발", 이산화탄소 저감 및 처리기술 개발 사업보고서, 2005.
- [3] A. Brown, T. Ekman and C. L. Axelsson, "The Development and Application of Oxy-fuel technology for Use in Heating Furnace Applications", AFRC/JFRC/IEA 2001 Joint International Combustion Symposium, 2001.
- [4] O. Delabroy, et al., "Oxycombustion for Reheat Furnace", AFRC/JFRC/IEA 2001 Joint International Combustion Symposium, 2001.
- [5] T. Suwa, "Overview of Application Technologies using Oxy-fuel Combustion in Japan", AFRC/JFRC/IEA 2001 Joint International Combustion Symposium, 2001.
- [6] 이상준, 노동순, 김혁주, 이은경, "고성능 순산소 연소시스템의 가열특성에 대한 연구", 제29회 KOSCO Symposium 논문집, 175-180, 2004.
- [7] Charles, E. Baukal, "Heat Transfer in Industrial Combustion", CRC Press, 2000.
- [8] Charles, E. Baukal, "Industrial Burners Handbook", CRC Press, 2003.