

## PF8) 파일럿규모 막분리 공정을 통한 LNG 연소 배가스에서 이산화탄소 회수연구: 실험결과와 수치해석 비교

### CO<sub>2</sub> Recovery from LNG-fired Flue Gas Using Pilot-scale Membrane Plants: Comparison of Experimental Results with Numerical Analysis Data

최승학<sup>1),2)</sup> · 김정훈<sup>1),2)</sup> · 김범식<sup>1)</sup> · 이수복<sup>1)</sup> · 이웅택<sup>3)</sup>

<sup>1)</sup>한국화학연구원 신화학연구단 환경에너지센터,

<sup>2)</sup>과학기술연합대학원대학교 정정화학 및 생물학, <sup>3)</sup>충남대학교 화학공학과

#### 1. 서 론

국·내외에서 계속되는 기상이변으로 인하여 경제적으로는 수조원단위에 이르는 피해와 함께 많은 인명피해를 수반한다. 이러한 기상이변은 지구 온난화 현상에 기인하고 그 대응책 마련을 위한 국제사회의 논의가 본격화되고 있으며 그 논의의 중심에 CO<sub>2</sub>가 자리하고 있다. 현재 세계적인 CO<sub>2</sub>관련 연구 추세를 보면 실배출원으로부터 CO<sub>2</sub>를 포집하여 해양이나 지상에 저장하는 CCS(Carbon Capture & Storage)에 관한 연구가 활발하게 진행 중이다. CCS의 전체 비용의 약 70-80%를 분리·농축 비용이 차지하게 되므로 전체 공정에서 가장 중요한 공정이라 할 수 있다. 이러한 분리 공정에는 흡수법(absorption), 흡착법(adsorption), 심냉법(cryogenics), 그리고 막분리법(membrane) 등이 있다. 그 중에서도 막분리법은 기존의 분리 공정에 비해 장치가 작고 에너지 소비가 적으며 운전 및 유지 관리가 용이하며, scale-up이 매우 용이하며 환경 친화적이며 원격조정이 가능하다는 장점 때문에 최근에 많은 연구가 수행되고 있다. 특히 화석연료를 연소시키는 과정에서 발생하는 CO<sub>2</sub>의 회수를 위해 막분리 공정을 도입해 보았으며 그 가능성에 관한 연구를 수행하였음에도 불구하고 아직까지 실제 plant의 설계 및 운전엔 필요한 다양한 공정 변수 등에 대한 체계적인 연구가 국내외적으로 매우 미흡한 상태이며 아직 실증규모로 실배출원을 대상으로 적용된 연구사례가 아직 보고되지 않고 있다. 이러한 배경아래 본 연구팀은 CO<sub>2</sub> 주 배출원인 화력발전 및 각종 산업의 LNG 보일러의 적용을 고려하여, LNG 보일러 연소배가스로부터 CO<sub>2</sub> 분리·회수(회수율 90%, 회수농도 99%)를 위한 막분리 공정을 개발하고자 연구를 수행하였다. 본 연구에서는 국내외에서 아직 시도되지 않았던 pilot 규모(건조 배가스 기준, 1000Nm<sup>3</sup>/day)의 막분리 공정을 전산모사에 의해 설계한 후 제작, 운전하여 막분리 공정을 최적화하였으며 전산모사의 결과와 비교하였다. 이러한 연구 결과를 통해 향후의 막분리 기술을 이용한 CO<sub>2</sub>의 분리기술의 연구 방향을 설정하고자 하였다.

#### 2. 연구 방법

현재 상용화된 고분자 소재 중 가스화 저항성이 우수하고 CO<sub>2</sub>/N<sub>2</sub>의 분리특성이 뛰어난 폴리에테르술폰(PES)을 사용하여 외부에 박막의 선택층을 갖는 비대칭구조의 증공사막을 제조하고 이를 모듈로 제작하여 사용하였다. 다양한 공정변수의 변화에 따른 단일 분리막 모듈의 투과특성을 조사하였으며, CO<sub>2</sub>에 의한 가스화 현상을 반영한 투과도와 선택도를 바탕으로 얻어진 수치모사 결과와 비교한 결과 매우 잘 일치하였다(최승학 등, 2005). 이 실험결과와 함께 각 단의 물질 수지식(mass balance) 및 에너지 수지식(heat and energy balance) 등을 작성하였으며 이를 바탕으로 1,000Nm<sup>3</sup>/day 규모의 pilot plant를 그림 1-(a)에서처럼 상세설계하고 제작하여 한국화학연구원 내에 설치하였다(그림 1-(b)). 설치된 plant를 이용하여 다양한 공정변수별 회수 유량과 회수 농도를 고찰하였다.

#### 3. 결과 및 고찰

본 연구에서는 선행연구를 통해 그 가능성이 확인된 PES 증공사막모듈을 이용한 다단 막분리 공정을 이용하여 실배출원(LNG 보일러)으로부터 CO<sub>2</sub>를 분리·회수하기위한 pilot plant에 대한 운전한 결과를 보고하였다. Pilot plant는 건조 배가스 기준 회수율 90%, 99%의 순도로 회수하기 위하여 제습공정, 다

단 막분리 공정, 액화공정으로 구성되었으며 전산모사결과와 실험 결과를 바탕으로 상세 설계 하여 설치, 운전하였다(송인호 등, 2007). 다만 막분리 공정의 경우 다양한 조업변수(공급압력, 투과측의 상압 및 감압조건)를 바꾸어 가며 이들 변수가 회수율과 회수 농도에 미치는 영향을 연구하였다.

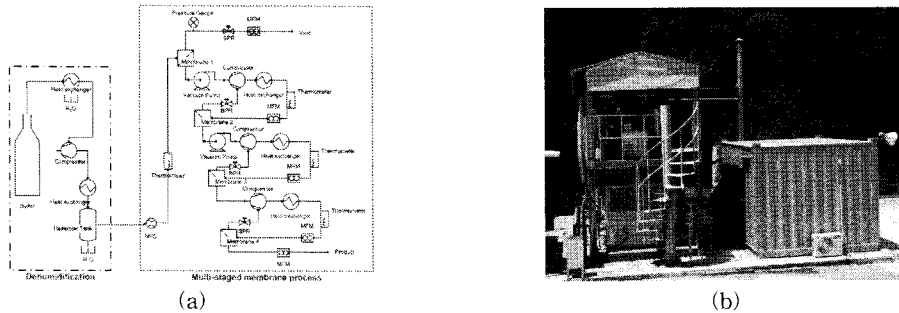


Fig. 1. (a) Schematic illustration of dehumidification and multi-staged membrane system and (b) photograph of a multi-staged membrane system for CO<sub>2</sub> recovery from LNG fired flue gas(installed in KRICT).

Pilot plant 운전 결과 다양한 운전조건에서 순도 95-99%의 CO<sub>2</sub>가 0.15-0.2ton/day의 회수율 70-95% 회수규모로 얻어졌다. 특히 1단에서 투과측에 감압을 적용하는 경우 막면적의 감소와 함께 CO<sub>2</sub>의 농도의 증가가 현저하게 증가하였다. 얻어진 실험 결과는 수치 모사 결과와 비교하였을 때 매우 잘 일치하는 것을 알 수 있었으며 이로 보아 plant의 설계에서 설치 운전까지의 단계들이 매우 성공적으로 수행되었음을 확인할 수 있었다. 이러한 결과는 단일가스를 통한 이상 선택도와 투과도만의 데이터에 의존하는 단위 막모듈의 전산모사에만 의존하지 않고 실제 모듈의 투과성능을 다양한 조건에서 평가하고 이를 수치 모사에 반영하여 보다 더 정확한 공정 예측이 가능했기 때문이라고 본다.

일부 공정 조건 (막면적, 모듈수)에서는 실험 결과와 수치 모사 결과가 일정 부분의 오차를 보였는데 이는 막면적을 민감하게 조절할 수 없는 문제이거나 준비된 여러 개의 모듈들의 막 성능(투과도 및 선택도)에서 약간씩의 차이를 보이기 때문이라고 생각된다.

Table 1. Comparison of numerical simulation and experimental results: 0.2kg/cm<sup>2</sup> of permeate pressure at the 1<sup>st</sup> and 2<sup>nd</sup> stage.

stage		Q <sub>feed</sub> [l/min]	Q <sub>perm</sub> [l/min]	Q <sub>ret</sub> [l/min]	[CO <sub>2</sub> ] <sub>feed</sub> [%]	[CO <sub>2</sub> ] <sub>perm</sub> [%]	[CO <sub>2</sub> ] <sub>ret</sub> [%]	recovery [%]	module [ea]
1 <sup>st</sup>	Sim.	500.0	102.1	397.9	11.3	49.8	1.4	90.0	9
	Exp.	500.0	122	378.0	11.3	43.3	1.3	91.8	10
2 <sup>nd</sup>	Sim.	119.91	63.1	56.8	49.8	84.5	11.3	89.3	2
	Exp.	137.0	53.0	84.0	43.3	78.5	11.8	70.1	3
3 <sup>rd</sup>	Sim.	80.07	62.3	17.8	84.5	94.4	43.2	86.9	1
	Exp.	56.0	41.0	15.0	78.5	95.7	45.7	89.4	1
4 <sup>th</sup>	Sim.	62.25	45.3	17.0	94.4	98.2	79.5	75.6	1
	Exp.	41.0	38.0	3.0	95.9	99.7	81	96.4	1

### 참 고 문 헌

- 송인호, 안효성, 전현수, 정현규, 이용택, 김정훈, 이수복 (2007) 폴리이서설론 중공사 모듈을 이용한 연소 배가스로부터 이산화탄소 분리회수를 위한 다단계 막분리 공정연구, Membrane J., 17(2).  
 최승학, 김정훈, 김범식, 이수복 (2005) 폴리이서설론 중공사 모듈을 이용한 연소배가스로부터 이산화탄소 분리회수를 위한 다단계 막분리 공정연구, Membrane J., 15(4).