

## 고압 저등급탄-이산화탄소 슬러리 분무특성에 관한 연구

김창연<sup>1</sup> · 김학덕<sup>1</sup> · 송주현<sup>2†</sup>

<sup>1</sup>부산대학교 대학원, <sup>2</sup>부산대학교 기계공학부

### Spray Characteristics of a Coal Slurry with Liquid Carbon Dioxide

CHANGYEON KIM<sup>1</sup>, HAKDUCK KIM<sup>1</sup>, JUHUN SONG<sup>2†</sup>

<sup>1</sup>Grad. School of Pusan National University

<sup>2</sup>School of Mechanical Engineering, Pusan National University Univ. San 30,  
Jangjeon-dong Geumjeong-gu, Busan 609-735, Korea

**Abstract** >> There is potential method to utilize the liquid carbon dioxide (LCO<sub>2</sub>) in coal gasification plants. The LCO<sub>2</sub> could be used to effectively transport coal particles instead of conventional carrier such as liquid water (H<sub>2</sub>O) particularly in wet-fed gasifier. However, there is a lack of fundamental study on the atomization behavior of LCO<sub>2</sub> coal slurry under high pressure condition. In this study, the flashing spray characteristics of a coal mixture with LCO<sub>2</sub> was examined during a throttling process by using a flow visualization system. The spray of coal water slurry which is in the Rayleigh-type break up mode was significantly different. This difference indicates that the coal water slurry did not effectively transport the coal, as compared to LCO<sub>2</sub> coal slurry.

**Key words** : Coal gasification(석탄 가스화), Flashing spray(증발 분무), Liquid carbon dioxide(LCO<sub>2</sub>, 액화 이산화탄소), Coal slurry(석탄 슬러리)

#### Nomenclature

CO<sub>2</sub> : Carbon dioxide

LCO<sub>2</sub> : Liquid carbon dioxide

SCO<sub>2</sub> : Solid carbon dioxide

H<sub>2</sub>O : Water

#### 1. 서 론

현재 화석연료가 에너지 부문에서 절대적인 비중을 차지하며, 200년 이상의 가채년수가 보장되는 석탄은 발전원으로써 현재보다 비중이 더 높아질 것으로 예측된다. 매장량 중 50% 이상이 저급탄(Low Rank Coal, LRC)으로 알려져 있으며, 사용이 확대되고 있는 추세이다. 하지만 저급탄을 직접 이용할 경우 연소과정에서 다량의 대기오염물질과 온실가스가 발생, 발열량 저하를 야기한다. 이러한 문제해결을 위해 국내외 연구소에서 저급탄 고품위화 기술, 가스화 기술, 바이오매스와 저급탄을 혼합한 연료 연소에 대한 기술<sup>1)</sup> 등 저급탄 활용에 대한 연구가 진행 중에

<sup>†</sup> Corresponding author : jxs704@pusan.ac.kr

Received : 2015.08.04 in revised form : 2015.08.20 Accepted : 2015.8.30

Copyright © 2015 KHNES

있다.

가스화기는 전력 또는 고품질 합성연료 생산을 위해 대부분 석탄을 이용하고 있다. 습식 가스화기는 소요동력이 적어 더 큰 압력으로 압축이 가능하며 건식에 비해 수소와 메탄가스의 비율이 증가하여 냉가스의 효율이 높아지는 장점이 있다. 기존의 수송유체인  $H_2O$ 를 사용할 경우 석탄 내 수분함량이 증가하는 문제점이 발생하고 있다. 특히 잔류수분과 휘발분이 많은 저등급탄을 습식 가스화기에 사용할 경우, 고등급탄에 비해 상대적으로 더 큰 효율저하문제가 일어나는 것으로 보고되고 있다<sup>2)</sup>. 이러한 습식 가스화기에서의 문제를 해결하기 위해 슬러리 내  $H_2O$ 의 농도를 줄이는 방법으로써 액상이산화탄소( $LCO_2$ )-슬러리 기술개발의 필요성이 대두되고 있다.

$LCO_2$ 를 석탄의 수송유체로 사용 시,  $H_2O$ 와 비교하여 더 높은 석탄 체적분율로 공급이 가능하다고 보고되었으며<sup>3,4)</sup>, 초임계 이산화탄소를 이용한 저등급탄 내 수분제거의 연구가 이미 진행되었다<sup>5)</sup>. Lin<sup>6)</sup> 등은  $LCO_2$  분무시 생성된 flash spray 및 눈입자의 특징 및 과열효과에 관해 실험적으로 연구하였다.

$LCO_2$ 의 강한 흡착력(cohesive force)은 석탄의 기공 사이로  $H_2O$  재진입을 방지하며, LICADO (Liquid Carbon Dioxide) 공정에서  $H_2O$ 와 회성분이  $LCO_2$ -석탄 슬러리와 분리되어지는 것을 통해 증명되었다<sup>7)</sup>. 또한, 액상이산화탄소는 기존 습식가스화기에 사용되는  $H_2O$ 보다 더 적은 점성과 석탄내부로의 습윤성을 가지고 있어 석탄수송 시에 높은 체적분율로 수송이 가능할 것이다. 대부분 석탄- $H_2O$  슬러리(CWS)의 분무 특성과 액적 크기 분포에 초점을 맞춘 연구가 진행되었다<sup>8)</sup>. 앞서 언급한  $LCO_2$ 관련 연구는 모델링 단계에 그치고, 석탄을 활용한  $LCO_2$ 의 실험적인 분무평가는 이루어지지 않았다<sup>9,10)</sup>. 이러한 기술개발을 위해, 액상이산화탄소에 관한 다양한 압력, 온도 조건에서의 유동 특성과 분무특성에 관한 연구가 필요하다. 따라서 본 연구에서는 감압과정 동안  $LCO_2$

슬러리의 분무 패턴과 동일 조건에서의  $H_2O$ 와  $LCO_2$  분무형태 차이와 특성을 측정하고자 하였다.

## 2. 실험 장치 및 방법

### 2.1 Flashing spray 가시화 장치

고압에서 액체상태로 존재하는  $CO_2$ 와  $CO_2$ 슬러리의 분무특성에 관한 실험을 진행하기 위해 가시화가 가능한 장치를 구성하여 실험하였다. 본 실험장치는 상·하부 고압 챔버, 노즐관 및 광학창으로 구성된 중간 블록, 챔버 내 온도와 압력을 모니터링하고 각종 밸브를 제어하는 제어부로 구성되어 있다. Fig. 1은 본 연구에서 사용된 고압 Flash spray 시스템의 개략도이다.

상·하부 챔버에는 고압 유동가시화가 가능한 광학창으로 이루어져 있다. 이 광학창의 경우  $80^\circ C$ , 100 bar까지 견딜 수 있도록 설계되어 있으며, 100 bar 이상의 압력이 가해질 경우 안전을 위해 릴리프 밸브

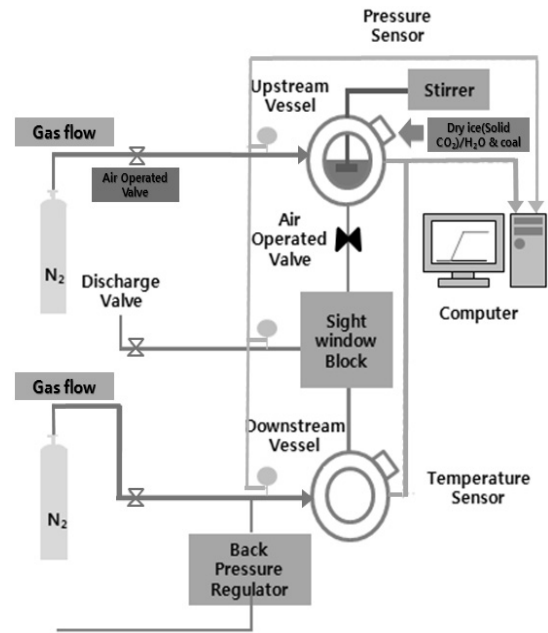


Fig. 1 Schematic of the experimental setup

가 자동으로 압력을 제거하도록 제작하였다. 또한 상·하부 챔버 사이에는 고압 압력조건을 유지하면서 유체 흐름을 유발시키는 솔레노이드 밸브를 설치하였다.

## 2.2 실험 방법 및 실험 조건

상·하부 챔버 내부에  $\text{SCO}_2$  (Solid Carbon Dioxide, dry ice)를 투입하여 포화상태의  $\text{LCO}_2$ 를 생성할 수 있었다. 이때 챔버 내 온도 조절은 히팅 테이프(Heating Tape)를 이용하여  $22^\circ\text{C}$ 의 초기 온도를 유지하였다. 가시화 중간블럭과 하부챔버의 초기 온도도 상부 챔버와 같은 초기 온도를 유지시켰다. 추가적인 챔버내 압력 증가는 질소를 충전함으로써 달성할 수 있었다. 챔버 내 압력과 온도 데이터는 모니터를 통해 실시

간으로 확인 가능하며, 길이 300 mm, 직경 0.4 mm의 분사노즐을 하부 챔버에 연결한 후 분사 실험을 진행하였다. 실험 조건은 Table 1과 같은 세 가지 다른 압력차 조건에서 실행되었으며, 하부 챔버내 압력은 상용 가스화기의 운전 압력범위보다는 약간 큼을 확인할 수 있다. Fig. 2는  $22^\circ\text{C}$ 에서 초기 및 최종 상태로 변하는 세 가지 다른 상변화과정을 나타낸 도식이다. 모든 실험은 25bar의 압력차를 가지도록 고정하였으며, 이러한 압력차 유지를 위해 역 압력 조정기(Back pressure regulator)를 설치하여 유체 유동 시 하부 압력이 일정하게 유지되도록 하였다. 이중 85/60 bar 조건의 경우 상부/하부 챔버의 압력 모두가 포화압력이상으로 유지한 관계로 노즐 유동시의  $\text{LCO}_2$ 의 상변화는 최대한 억제시킬 수 있음을 예상할 수 있다.

각 조건에서 감압과정을 거쳐 노즐에서 분사되는  $\text{LCO}_2$ -석탄 슬러리는 Fig. 3과 같이 섀도우(Shadow) 사진 기법을 이용하여 고속 카메라로 1/40000s 프레임으로 연속으로 촬영 하여 two-phase 분무 특성을 관찰하였다. 본 실험의 경우 vapor flow가 발생하는 65/40 bar조건처럼 분무주위에 아지랑이가 많아지고 contrast가 약한 경우에 vapor phase가 상대적으로 많이 존재한다고 판단하였다. 분무를 관찰하는 하부챔버의 가시화 창 크기는 지름 5 cm로 설계 제작하였다. 따라서 3개 압력차 조건에 걸쳐 분무크기를 이같은 가시화 영역에 맞추기 위해, 앞에서 언급한 분사노즐의 길이와 직경을 결정하였다.

Table 1 Experimental conditions

parameters	Case #1	Case #2	Case #3
Upstream Pressure (bar)	65	75	85
Downstream Pressure (bar)	40	50	60
Fluid	$\text{H}_2\text{O/LCO}_2$		
Charging method	Mass		
Temperature	$22^\circ\text{C}$		

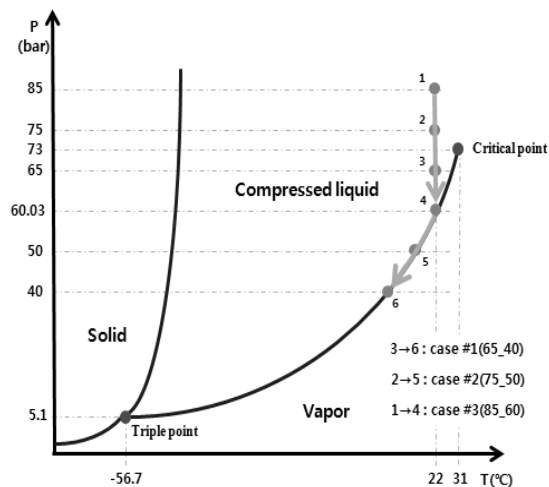


Fig. 2 Schematic of spray test condition mapping in the P-T diagram of  $\text{CO}_2$

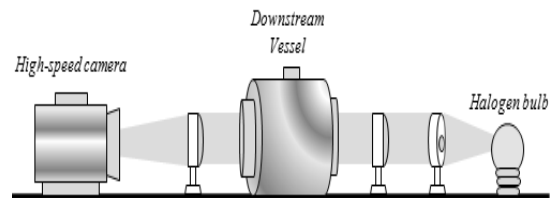


Fig. 3 Schematic of the shadow graph technique

**Table 2** Properties of coal used in this experiment

analysis	contents	values
proximate analysis (wt.%, wet basis)	Moisture	5.22
	Volatile matter	50.67
	Fixed carbon	39.92
ultimate analysis (wt.%, dry ash free basis)	Ash	4.19
	C	74.08
	H	5.91
	O	18.67
	N	1.27
	S	0.07
density (kg/m <sup>3</sup> )	1100	

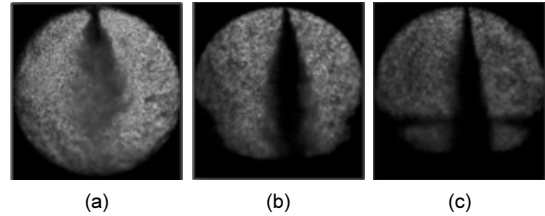
### 2.3 석탄 및 슬러리 특성

본 연구에서 LCO<sub>2</sub>와 H<sub>2</sub>O에 석탄을 적절한 비율로 투입, 상부 챔버에서 혼합하여 실험을 진행하였다. 슬러리에는 저등급 석탄인 Adaro를 이용하였으며, 공업분석과 원소분석에 대한 정보는 Table 2에 나타내었다. 사용된 석탄의 휘발분은 50%이상인 반면 수분은 5.22%인 것으로 보아 아역청탄 계열의 석탄으로 볼 수 있다. 수송유체 대비 석탄의 체적분율은 1.5%조건으로 고정하였다. 45-75 μm의 크기를 가지는 석탄을 사용하였고, 수송유체의 질량대비 석탄의 질량을 계산하여 고상인 상태에서 혼합시켰다. 수송유체내 석탄의 분산도 향상을 위해 고압 교반기를 상부 챔버에 설치/사용하였다.

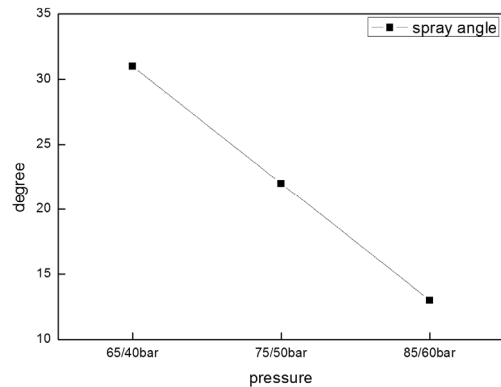
## 3. 결과 및 고찰

### 3.1 LCO<sub>2</sub>의 분무 형태

압력에 따른 LCO<sub>2</sub>의 분무형태를 고속 카메라를 사용하여 측정한 결과는 Fig. 4와 같다. 65 bar/40 bar의 경우 내부 플래시 비등현상의 영향으로 다른 조건의 경우보다 더 증가한 분무각과 감소된 분무거리가 보이는 bowl spray의 특징을 보였다. 이러한 결과를 통해 낮은 압력 단계로 갈수록 내부 기포성장을



**Fig. 4** Spray patterns under different levels of upstream pressure observed through a high speed camera: (a) 65/40 bar, (b) 75/50 bar and (c) 85/60 bar



**Fig. 5** The variation of spray angle with upstream pressure

통해 유동액체의 flash 무화 현상이 일어남을 확인할 수 있다. 본 연구에서 측정된 bowl spray형태는 과열정도에 따른 분무각 변화 모델링을 제시한 Senda et al.의 연구와 유사한 형태를 띄고 있다<sup>11)</sup>. 반면에 65 bar/40 bar 경우와는 다르게 85 bar/60 bar의 실험에서는 flash 비등현상이 나타나지 않는 일반적인 jet spray 패턴이 관찰 되었다. 이 같은 분무 형태는 노즐 오리피스 내 유체의 기포 형성과 유속의 차이 때문이라고 볼 수 있다. Fig. 5에 압력변화에 따른 분무각의 변화를 정량적으로 확인해 볼 수 있다.

### 3.2 H<sub>2</sub>O 슬러리의 분무 형태

LCO<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>O, 석탄-H<sub>2</sub>O 슬러리에 관해 일정온도하의 같은 압력조건인 65 bar/40 bar에서 비교해 보았으며, 그 결과는 Fig. 6에 나타내었다. 동일한 노즐 직경과 길이에서 H<sub>2</sub>O 분무 형태는 LCO<sub>2</sub> 분무에 비하여 충

분히 발달되지 않은 형태를 나타내었다. 액적(droplet) 평균 크기부분에서 LCO<sub>2</sub>는 수십  $\mu\text{m}$ 단위였으나, H<sub>2</sub>O의 경우에는 0.4~1 mm 정도이며, 평균적으로 큰 액적 크기를 가지는 것을 확인 하였다. H<sub>2</sub>O의 경우 노즐 입구에서 제대로 분무되지 않아 액적으로 낙하, 낮은 웨버수(Weber number)를 가진 액체의 특성이 나타났다. 액적으로 떨어지는 형태를 보이는 것은 노즐 내 H<sub>2</sub>O의 높은 점성력과 표면장력을 가져서 나타나는 것으로 보이며, 이러한 Break up 현상은 Dechelette<sup>12)</sup>가 CWS실험에서 관찰한 Rayleigh-type break up mode와 유사한 형태이다.

석탄-H<sub>2</sub>O 슬러리의 경우 노즐입구에서 석탄과 H<sub>2</sub>O가 엉켜 단일 액적으로 분무되는 형태를 띄고 있다. 또한 액적 지름은 5 mm까지 달하는 것으로 관찰되

었다. 이러한 분무 특징을 보이는 것은 액적이 노즐을 떠날 때, 추가되는 석탄에 의한 정제와 석탄과 H<sub>2</sub>O사이의 증가된 점성력의 영향 때문이라고 볼 수 있다. Fig. 6의 경우에는, 제한된 data수와 일반 제트 분무형태가 아닌 관계로 분무각과 거리를 정의하여 정량적인 분석결과를 도출하기가 어려웠다.

### 3.3 관 직경에 따른 분무 형태

관의 직경에 따른 H<sub>2</sub>O와 LCO<sub>2</sub>의 분무 형태를 관찰하기 위해 65bar/40bar의 22°C 조건에서 관 직경을 0.4 mm와 0.8 mm로 다르게 하여 분무거동의 차이를 비교해 보았으며, 그 결과를 아래 Fig. 7에서 나타내었다. 두 조건 모두 LCO<sub>2</sub>의 분무각이 H<sub>2</sub>O보다 더 큰 것을 확인 할 수 있었다. LCO<sub>2</sub> 분무 시, 0.4 mm 대비 0.8 mm 노즐직경에서는 더 작은 분무각과 더 큰 분무거리를 가지는 분무형태로 측정되었다. 한편 H<sub>2</sub>O의 경우에는, 0.4 mm직경에서의 분무형태와는 달리, 0.8 mm직경의 경우에는 일반적인 Jet spray의 특징을 보이는 분무형태가 관찰되었다. 이는 노즐 직경의 증가를 통해 유량과 유속이 증가하여 Rayleigh-type분무에서 일반적인 Jet spray 형태로 천이되었음을 알 수 있다.

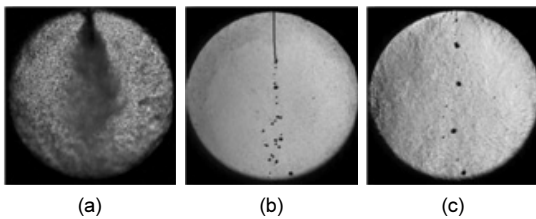


Fig. 6 Spray patterns of different fluids at the same pressure condition of 65/40 bar: (a) LCO<sub>2</sub> (b) H<sub>2</sub>O and (c) H<sub>2</sub>O coal slurry

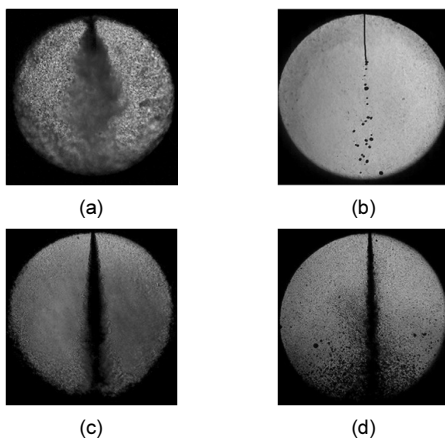


Fig. 7 Spray patterns of different diameter of nozzle entrance at the same pressure condition of 65/40 bar: (a) LCO<sub>2</sub> at d=0.4mm, (b) H<sub>2</sub>O at d=0.4mm (c) LCO<sub>2</sub> at d=0.8mm (d) H<sub>2</sub>O at d=0.8mm

## 4. 결 론

석탄 습식가스화기에서 미분탄 수송유체로서 물 대신 LCO<sub>2</sub>를 사용하는 적용가능성을 살펴볼 필요가 있다. 따라서 본 연구에서는 LCO<sub>2</sub>의 Flash spray 특성과 추가적인 분사압력 효과에 관한 영향을 살펴보았다. 압력 증가에 따라 LCO<sub>2</sub>내 액상 유체가 증가함으로 인해 Bowl spray에서 jet spray 분무형상으로 변화됨을 확인할 수 있었다. 이같은 분무형태의 차이는 압력증가에 따른 노즐 내부 Flash 비등현상의 감소에 의해 일어난다고 볼 수 있다. 따라서 Flash spray 형상이 관측되지 않았던 85 bar/60 bar 경우가 Flash

spray 특성을 보이는 65 bar/40 bar 조건에 비해 석탄 공급과 분산이 용이할 것으로 판단된다.

낮은 웨버수를 가지는 Rayleigh-type break up mode 인 석탄-H<sub>2</sub>O 슬러리는 LCO<sub>2</sub> 슬러리에 비해 노즐 입구에서 원활한 분무와 석탄의 분산이 이루어지지 않음을 확인할 수 있었다. 이같은 비교를 통해 고압에서 운전되는 습식 가스화기의 수송유체로써 H<sub>2</sub>O보다 LCO<sub>2</sub>가 보다 효과적이라고 판단해 볼 수 있다.

## 후 기

이 논문은 부산대학교 자유과제 학술연구비(2년)에 의하여 연구되었으며, 이에 감사드립니다.

## References

1. H. Haykiri-Acma and S. Kucukbayrak, "Co-combustion of low rank coal/waste biomass blends using dry air or oxygen", *Applied Thermal Engineering*, Vol. 50, 2013, pp. 251-259.
2. EPRI, Gasification User Association (GUA) Annual Report(#1021657), December, 2010.
3. C. Botero, The phase inversion-based coal-CO<sub>2</sub> slurry (PHICCOS) feeding system: design, coupled multi scale analysis, and techno-economic assessment. Ph. D. dissertation, MIT, 2014.
4. C. Botero, R. P. Field, H. J. Herzog, and A. F. Ghoniem, Coal-CO<sub>2</sub> Slurry feed for pressurized gasifiers slurry preparation system characterization and economics. *Energy Procedia*, Vol. 37, 2013, pp. 2212-2214.
5. Y. Iwai, "Physical properties of low rank coals dried with supercritical carbon dioxide", *Journal of Supercritical fluids*, Vol. 18, 2000, pp. 73-79.
6. Y. H. Liu, G. Calvert, C. Hare, M. Ghadiri, and S. Matsusaka, "Size measurement of dry ice particles produced from liquid carbon dioxide", *Journal of Aerosol Science*, Vol. 48, 2012, pp. 1-9.
7. J. Dooher, and J. Phillips, Program on technology innovation: advanced concepts in slurry-fed low-rank coal gasification liquid CO<sub>2</sub> / coal slurries and hot water drying, EPRI report, Dooher Institute; 2006.
8. S. Y. Son, and K. D. Kihm, Effect of coal particle size on coal-water slurry (CWS) atomization. *Atomization Sprays* Vol. 8, 1998, pp. 503-519.
9. G. A. Nunez, M. I. Briceno, D. D. Joseph, and T. Asa, Colloidal coal in water suspensions. available online, 2005.
10. J. R. Marasigan, Liquid CO<sub>2</sub>/coal slurry for feeding low rank coal to gasifiers, DOE Project report, 2013.
11. J. Senda, Y. Hojyo, and H. Fujimoto, Modeling on atomization and vaporization process in flash boiling spray, *JSAE Review*, Vol. 15, 1994, pp. 291-296.
12. A. Dechelette, O. Campanella, C. Corvalan, and P. E. Sojka, An experimental investigation on the breakup of surfactant-laden non-Newtonian jets. *Chem. Eng. Sci.* Vol. 66, 2011, pp. 6367-6374.