

## 2탑 가압순환유동층 형태의 매체순환식 가스연소기에서 고체흐름특성

류호정\*, 배달희, 이승용, 박재현  
한국에너지기술연구원 청정신공정연구센터  
(hjryu@kier.re.kr\*)

## Solid Flow Characteristics in a Two-interconnected PCFB-type Chemical-Looping Combustor

Ho-Jung Ryu\*, Dal-Hee Bae, Seung-Yong Lee, Jaehyeon Park  
Advanced Clean Energy Process Research Center, Korea Institute of Energy Research  
(hjryu@kier.re.kr\*)

## 서론

기존의 연소-발전 시스템의 경우 연료와 공기가 직접 접촉하여 연소되기 때문에 온실 효과를 유발하는 CO<sub>2</sub>와 대기오염물질인 NO<sub>x</sub>가 발생하며 이러한 기체물질의 저감 및 분리기술에 대한 연구가 꾸준히 진행되고 있다. 최근에 이러한 문제에 대처할 수 있는 새로운 가스연소 개념으로 매체순환식 연소(Chemical-Looping Combustion, CLC)기술에 대한 연구가 활발하게 진행되고 있다. 매체순환식 가스연소 기술은 연소과정을 별개의 산화-환원 영역으로 나누어 산화영역에서는 식(1)과 같이 화염(flame)이 없는 조건에서 NO<sub>x</sub>의 발생 없이 금속입자가 산화되어 금속산화물 입자를 생성하여 환원반응기로 전달하며 환원영역에서는 식(2)와 같이 기체연료가 금속산화물 입자를 환원시키고 CO<sub>2</sub>와 H<sub>2</sub>O만을 발생시키므로 H<sub>2</sub>O의 응축제거에 의해 고농도의 CO<sub>2</sub>를 분리회수할 수 있는 새로운 개념의 연소기술이다. 매체순환식 유동층 가스연소 기술은 NO<sub>x</sub> 발생을 원천적으로 차단함과 동시에 CO<sub>2</sub>를 공정내에서 원천적으로 분리할 수 있으며 고효율 에너지회수가 가능한 첨단 기술로서 에너지절감, 대기오염 방지 및 CO<sub>2</sub> 저감을 동시에 달성할 수 있는 기술이다[1].

Oxidation reaction : 800-1300°C, 발열반응,  $M + 0.5 O_2 \rightarrow MO$  (1)

Reduction reaction : 400-800°C, 흡열반응,  $CH_4 + 4MO \rightarrow CO_2 + 2H_2O + 4M$  (2)

매체순환식 가스연소기에서 금속(금속산화물) 입자는 두 반응기를 순환하면서 산소를 전달하는 산소 carrier 역할과 함께 산화 반응기에서 얻은 열을 환원반응기로 전달하는 열 전달매체의 역할도 함께 하고 있다.

지금까지 여러 연구자들에 의해 열중량분석기, 고정층, 유동층 반응기에서 산소공여입자의 산화-환원 반응특성에 대한 연구가 진행되었으나[2] 실제 공정과 유사하게 두 반응기 사이에 산소공여입자의 순환이 이루어지는 시스템에 대한 연구는 제한적이다. 최근에 Johanson 등[3]은 2탑 순환유동층에서 고체순환속도 및 기체누출에 대한 연구를 수행한 바 있다. 하지만 그들의 연구는 산화반응기와 환원반응기 사이에 기체누출이 있었으며 상온-상압 조건에서 이루어진 실험이기 때문에 실제 조업조건인 고온-고압조건에서의 고체흐름특성을 예측하기에는 한계가 있다. 본 연구에서는 고속유동층과 기포유동층이 연결된 2탑 가압순환유동층 형태의 매체순환식 가스연소시스템을 이용하여 고온, 고압조건에서 고속유동층의 유속, slide valve의 개구비(opening ratio), 온도 및 압력 변화에 따른 산화반응기와 환원반응기 사이의 고체흐름특성 변화를 측정 및 고찰하였다. 본 연구를 통해 고온, 고압조건에서 산화반응기와 환원반응기 사이의 원활한 고체순환을 위한 경계조건을 결정할 수 있었으며 이 결과를 이용하여 매체순환식 가스연소기의 실증을 위한 산화-환원 연속반응실험의 조업조건을 결정하였다.

## 실험

Fig. 1에는 본 실험에 사용된 50kWth 매체순환식 가스연소기의 공정도를 나타내었다. 매체순환식 가스연소기는 크게 고속유동층 형태의 산화반응기와 기포유동층 형태의 환원반응기, loopseal과 수평고체흐름관으로 이루어진 입자순환 및 기체 seal 장치, 고체 hopper와 1, 2차 사이클론, 필터로 이루어진 산소공여입자 공급 및 회수장치, 배출된 기체의 냉각 및 수분 응축을 위한 열교환기로 이루어진 배가스 냉각장치, 반응기의 예열을 위한 히터, 공기-메탄-질소 공급 및 예열장치, 탄소침적 저감을 위해 공급되는 스팀의 공급 및 유량측정 장치, 온도, 압력, 유량 측정, 제어와 실험자료 수집을 위한 계장장치 등으로 구성되어 있다. 전체 시스템의 크기는 W3.6×D2.7×H6.25m이며 기포유동층 형태의 환원반응기는 직경 0.143m, 높이 2.5m이다. 반응기 하부에는 직경 1mm의 구멍이 40개 뚫려있는 다공판(perforated plate) 형태의 분산판을 설치하였으며 비산된 입자의 포집을 위해 내경이 각각 0.05, 0.03m인 표준비율을 갖는 1, 2차 사이클론을 사용하였다. 기포유동층 하부 고체배출관의 직경은 0.025m이며 고속유동층으로의 고체순환을 위한 수평고체흐름관의 직경은 0.05m이다. 고속유동층 형태의 산화반응기는 반응기 하부에 고체체유량을 확보하기 위해 하부와 상부의 직경이 다르도록 설계되었으며 하부의 직경은 0.102m, 상부의 직경은 0.078m이며 반응기 하부로부터 0.5-0.75m에서 축소되도록 하였다. 고속유동층에서 비산되는 고체의 포집을 위해 표준비율을 갖는 직경 0.14, 0.068m의 1, 2차 사이클론을 설치하였다. 두 반응기 사이의 기체혼합 방지와 원활한 고체순환을 위해 설치된 loopseal은 직경 0.078m, 높이 1.5m이며 순환되는 고체의 유동화를 위해 하부에 1.2mm hole 4개와 1.0mm hole 4개가 뚫린 sparger 2개를 설치하였다[4].

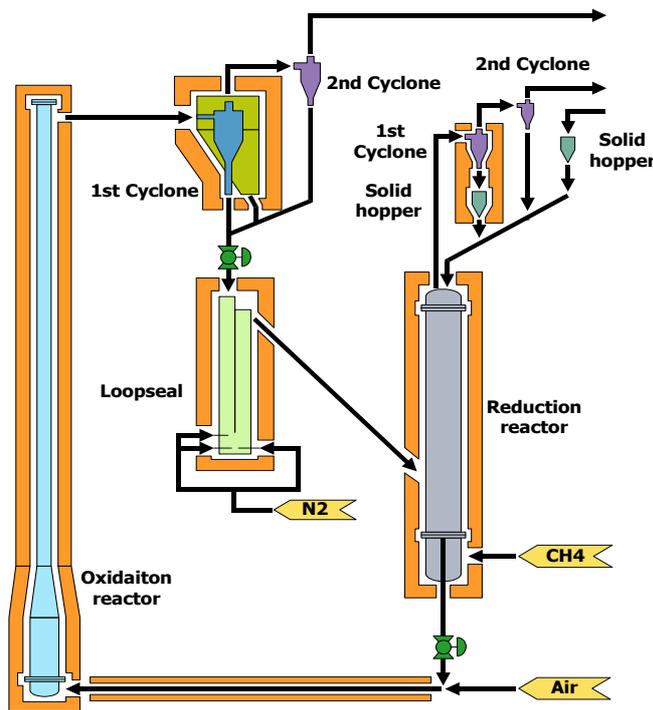


Fig. 1. Schematic diagram of 50kWth CLC.

유동화입자로는 평균입경 0.159mm, 입자밀도 2617kg/m<sup>3</sup>인 인조규사를 사용하였으며 유동화기체로는 산화반응기, 환원반응기, loopseal 모두 공기를 사용하였다. 두 반응기 사이의 고체흐름특성 측정을 위해 먼저 hopper를 통해 유동화고체를 주입하였으며 기포유동층, 고속유동층과 loopseal에 유동화기체를 주입하면서 원하는 온도가 될 때 까지 전체 시스템을 가열하였다. 전체 시스템이 원하는 온도에 도달하면 자동압력조절밸브를 이용하여 원하는 압력까지 압력을 증가시켰으며 이 과정에서 가압에 따른 유속감소를 보상하기 위해 주입되는 기체의 유량을 증가시켰다. 원하는 온도와 압력에서 기포유동층 하부의 slide valve를 열어 고체순환을 시작하였으며 고체순환에 의한 온도와 압력의 변화를 PLC를 통해 측정 및 기록하면서 고속유동층, 기포유동층 및 loopseal의 온도와 압력강하가 정상상태에 도달할 때까지 고체순환상태를 유지하였다. 전체 시스템의 온도와 압력 및 압력강하값이 정상상태가 되었을 때 기포유동층 하부의 slide valve를 순간적으로 닫아 기포유동층에서 고체의 증가량을 증내 압력강하 값을 통해 측정하였으며 다시 slide valve를 열어 고체의 감소량도 함께 측정하여 두 반응기 사이의 고체순환속도를 결정하였다.

**결과 및 고찰**

Fig. 2에는 두 반응기 사이의 고체순환속도( $G_s$ )를 결정하는 방법을 나타내었다. Fig. 2(a)에 나타난 바와 같이 두 반응기 사이의 고체순환이 정상적으로 이루어지고 있는 상태에서 기포유동층 하부의 slide valve를 잠그면 고속유동층으로의 고체순환이 없기 때문에 고속유동층에 있던 고체는 모두 비산되어 loopseal을 통해 기포유동층으로 도입되므로 기포유동층의 압력강하, 즉 기포유동층의 층높이가 증가하게 되며 수평관에서의 압력강하는 감소하게 된다. 한편 Fig. 2(b)의 경우에는 고체가 loopseal과 기포유동층에 있을 때 slide valve를 열어 고속유동층으로 고체를 순환시켰을 때를 나타내며 수평고체흐름관에서의 압력강하는 증가하여 일정해지고 기포유동층에서의 압력강하는 감소하여 고체순환이 정상상태가 되면 일정한 값으로 유지된다. 시간에 따른 기포유동층의 압력강하 증가 및 감소(층높이 증가 및 감소)와 입자의 벌크밀도를 이용하여 고체순환속도를 계산할 수 있다. 본 연구에서는 Fig. 2(a)와 (b)의 경우 모두에 대해 측정하였으며 두 값의 평균값을 주어진 조건에서의 고체순환속도로 고려하였다.

Fig. 3에는 고체순환이 정상상태일때 고속유동층에서의 축방향 압력강하 분포를 나타내고 있다. 그림에 나타난 바와 같이 고속유동층 하부에서는 비교적 압력강하가 높게 나타났으며 분산관으로부터의 높이가 증가함에 따라 감소하는 일반적인 경향을 나타내었다.

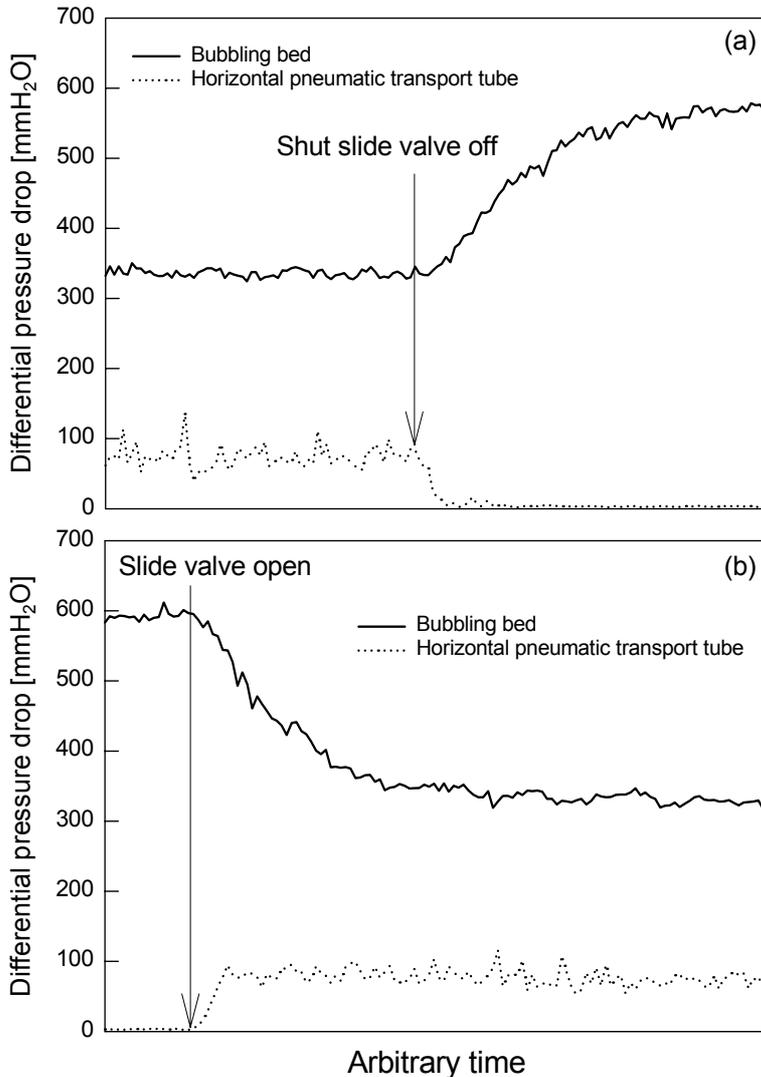


Fig. 2. Determination of solid circulation flux.

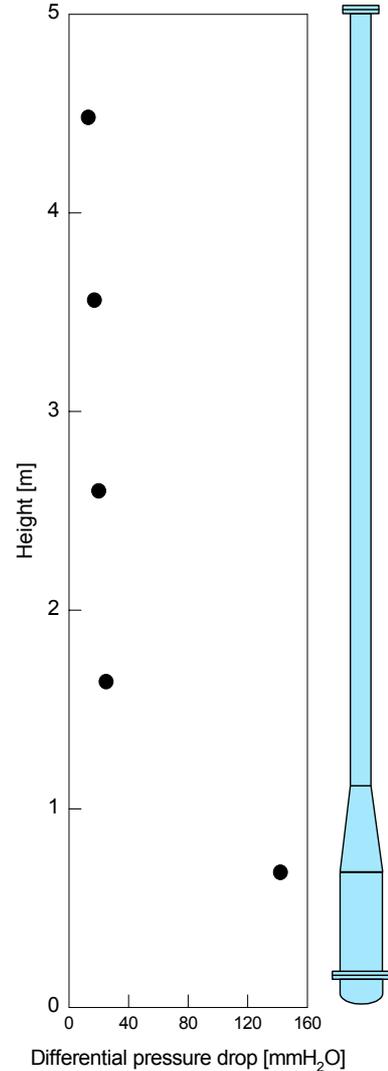


Fig. 3 Axial pressure drop profile.

Fig. 4에는 800°C 1기압과 2기압에서 기포유동층의 유속이 0.1m/s일 때 고속유동층의 유속(3.5-5.5m/s)과 slide valve의 개구비(opening ratio, 55-80%) 변화에 따른 고속유동층 최하부의 압력강하 변화를 나타내고 있다. 고속유동층의 압력강하는 높이가 증가함에 따라 지수적으로 감소하므로 전체 압력강하값 중에서 고속유동층 최하부의 압력강하값이 대부분을 차지하며 이 값이 기포유동층의 압력강하보다 큰 경우에는 고체가 기포유동층에서 고속유동층 방향으로 흐르는 것이 아니라 반대 방향으로 흐르는 역류현상이 일어날 수 있기 때문에 공정유지를 위해 중요하게 고려해야하는 변수이다. 그림에 나타난 바와 같이 고속유동층 하부의 압력강하, 즉 고체체유량은 slide valve의 개구비가 증가함에 따라 증가하고, 고속유동층의 유속이 증가함에 따라 감소하는 일반적인 경향을 나타내었으며 고체순환속도는 주로 slide valve의 개구비와 고속유동층의 유속에 영향을 받는 것으로 나타났다. 고속유동층에서 일어나는 산화반응을 위해서는 고속유동층의 고체체유량이 높은 것이 좋지만 고체역류와 고체순환속도 측면에서는 적절한 고체체유량을 유지해야 한다. 한편, 고속유동층과 기포유동층 사이의 압력균형이 적절하지 않은 경우에는 고체 역흐름이 발생하였으며 slide valve의 개구비에 따라 적정 유속범위가 존재함을 알 수 있었다. 결과적으로 본 연구를 통해 2탑 가압순환유동층 형태의 매체순환식 가스연소기에서 원활한 고체흐름을 유지하기 위한 조업범위를 결정할 수 있었다.

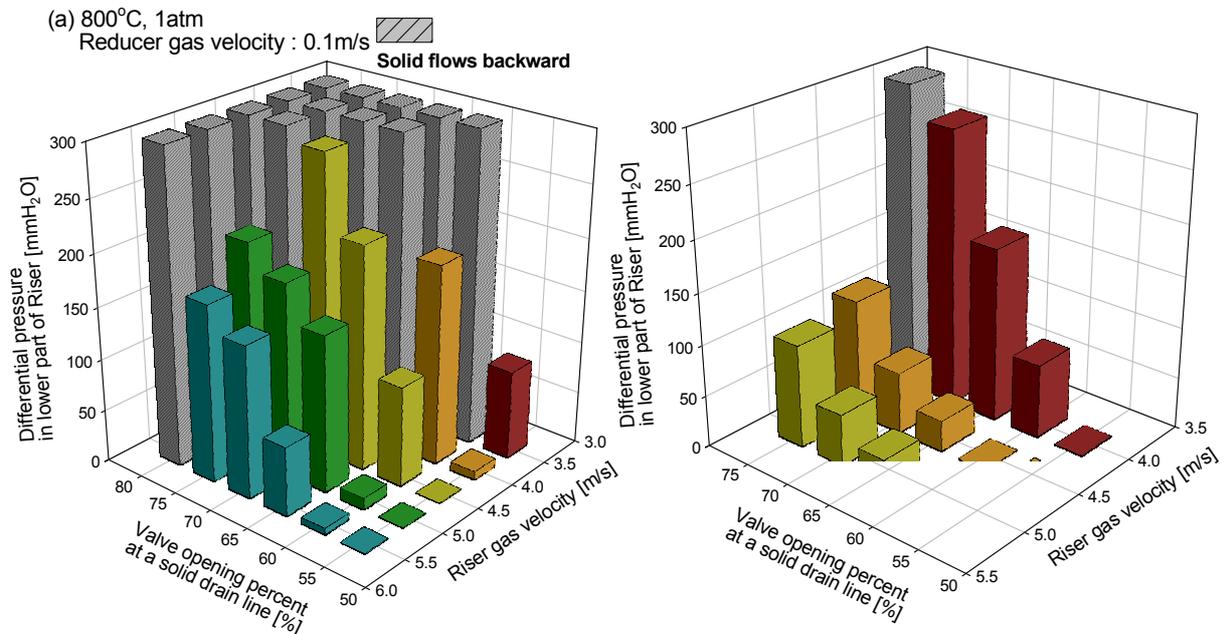


Fig. 4. Effects of riser gas velocity and slide valve opening on pressure drop in lower part of riser

### 참고문헌

1. Ryu, H. J., Lim, N. Y., Bae, D. H. and Jin, G. T., "Carbon Deposition Characteristics and Regenerative Ability of Oxygen Carrier Particles for Chemical-Looping Combustion", *KJChE*, **20**(1), 157-162(2003).
2. Ryu, H. J., "CO<sub>2</sub>-NO<sub>x</sub> free 매체순환식 신 가스연소기술 조사연구", KOSEN report, <http://www.kosen21.org> (2003).
3. Johanson, E., Lyngfelt, A., Mattisson, T. and Johnsson, F., "Gas Leakage Measurements in a Cold Model of An Interconnected Fluidized Bed for Chemical-Looping Combustion", *Powder Technology*, **134**, 210-217(2003).
4. Ryu, H. J. and Jin, G. T., "Conceptual Design of 50kW thermal Chemical-Looping Combustor and Analysis of Variables", *Energy Engg. J.*, **12**(4), 289-301(2003).