총 설

저등급 석탄으로부터 초청정석탄 제조 기술

이시훈† · 김상도

한국에너지기술연구원 기후변화기술연구본부 청정석탄연구센터 대전광역시 유성구 장동 71-2 (2008년 1월 15일 접수, 2008년 4월 2일 채택)

Technology for the Preparation of Ash-free Coal from Low Rank Coal(LRC)

Sihyun Lee[†] and Sangdo Kim

Clean Coal Technology Research Center, Climate Change Technology Research Division, Korea Institute of Energy Research 71-2, Jang-dong, Yuseong-gu, Daejeon 305-343, Korea (Received 15 January 2008; accepted 2 April 2008)

요 약

고유가 대응방안으로 저등급 석탄의 효과적인 활용기술에 대해 고찰하였다. 현재 산업체에서 사용하는 석탄 중에 갈 탄과 아역청탄이 저등급 석탄에 속하며 매장량이 풍부하고 세계적으로 고르게 분포되어 있지만 높은 수분 함량과 자연발화 가능성으로 인해 활용이 많이 되지 않고 있다. 본 논문에서는 저등급 석탄으로부터 화학적 정제기술을 이용하여 초청정석탄을 제조하는 기술에 대하여 고찰하였다. 회분 제거기술인 UCC 공정과 가연성분 추출기술인 Hyper Coal 공정을 비교하였다. 회분 제거기술인 UCC(Ultra Clean Coal) 공정은 Hyper Coal 공정에 비해 단순하다는 장점이 있지만 생성물의 회분 농도가 0.1% 이상으로 높다. 가연성분 추출 기술인 Hyper Coal 공정은 용매추출과 이온제거공정등 구성은 복잡하지만 회분이 200ppm 이하로 생성된다. 초청정석탄은 오일과 동일 등급의 초 청정연료로써 산업용 석유를 대체하고 장기적으로는 IGCC와 IGFC, 그리고 차세대 고도연소기술의 연료로 활용될 수 있을 것이다.

Abstract – Efficient use of low rank coals (LRC) have been investigated as a method to cope with recent high oil price. Among the coals used in industry, lignite and sub-bituminous coals are belong to the LRC, and have abundant deposit and are distributed worldwide, but high moisture contents and self ignition properties inhibits their utilization. In this paper, chemical coal cleaning to produce ash-free coal from LRC has been investigated. Two technologies, that is, UCC(Ultra Clean Coal) process removing ash from coal and Hyper Coal process extracting combustibles from coal were compared with. UCC process has merits of simple and reliable when it compared with Hyper Coal process, but the remaining ash contents werehigher than Hyper Coal. Hyper Coal has ash contents under the 200ppm when raw coal is treated with appropriate solvent and ion exchange materials to remove alkali materials in extracted solution. The ash-free coal which is similar grade with oil can be used as alternate oil in the industry, and also used as a high grade fuel for IGCC, IGFC and other advanced combustion technology.

Key words: Hyper Coal, Ultra Clean Coal, Alkali Leaching, Solvent Extraction, Ash-free Coal

1. 서 론

최근의 유가는 \$100 가까이를 오르내리면서 고유가 시대 도래를 예고하고 있고 장기적으로도 유가가 하락할 것으로 보이지 않기 때문에 고유가에 의한 국가 에너지위기는 장기화 될 것으로 전망된다. 석유 수업국으로는 일본에 이어 세 번째인 우리나라는 경제상황

석유 수입국으로는 일본에 이어 세 번째인 우리나라는 경제상황 전체가 석유류의 가격변동에 매우 민감하게 반응할 수밖에 없으며, 국내 경제상황에서 에너지가 차지하는 비중이 매우 크므로 지금과 같은 고유가 시대에 따른 에너지의 위기는 곧바로 국가위기로 이어 질 수 있다는 점에서 중요하다 하겠다.

고유가 시대가 되면서 세계적으로 다시 관심의 대상이 되고 있는 것이 석탄이다. 매장량이 풍부한 저가의 석탄을 청정에너지화 하여 고유가에 대응하고 청정화된 석탄 사용에 의해 연소효율을 증가시켜 온실가스 문제를 동시에 해결하기 위한 많은 연구가 수행되고 있다. 최근의 국제적인 석탄관련 키워드는 IGCC(Integrated Gasification Combined Cycle), CTL(Coal to Liquid), 고도연소기술 (Advanced Combustion Technology), 그리고 CCS(carbon Capture & Storage)이다[1].

석탄을 사용하는데 있어서 가장 큰 걸림돌은 오염물질이다. 석탄

 $^{^{\}dagger}\text{To}$ whom correspondence should be addressed.

E-mail: LSH3452@kier.re.kr

[‡]이 논문은 서강대학교 최청송 교수님의 정년을 기념하여 투고되었습니다.

444 이시훈·김상도

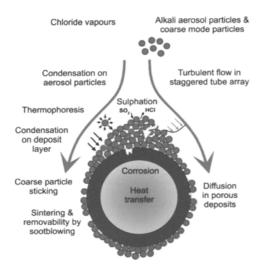




Fig. 1. Schematic illustration of deposit formation and condensation of inorganic vapors on a superheater tube surface.

의 청정에너지화가 필요한 것이다. 석탄에 함유되어 있는 오염물질 중에서 가장 많은 비중을 차지하고 있는 것이 회분이다. 회분은 석탄 중에 평균 15%를 차지하고 있으며 사용 중에 약 80%는 Fig. 1에서 보는바와 같이 보일러 벽과 튜브 표면에 융착하여 열전달을 방해하고 결과적으로 발전효율을 저하시키며, 20%는 비산재로 배출되어 대기오염의 주원인이 되고 있다[2]. 이러한 융착현상의 초기융착을 지배하는 물질은 회분중의 알칼리 물질들(Na, K 등)이며 회분중에 약 0.1를 차지하고 있다. 융착은 보일러 크기를 크게 하고단위 에너지 생산을 위한 석탄 사용량을 증가시켜 CO_2 발생양을 증가시키는 또 다른 문제점을 만들고 있는 것이다[3].

Fig. 2는 van Krevelen diagram으로 O/C, H/C ratio로 비교한 석 탄의 형성과정을 나타낸 것이다. 초기상태에서는 O/C와 H/C가 각 각 0.6과 0.1 정도 된다. O/C와 H/C는 catagenesis(퇴화)를 거치면 서 감소하는데 peat는 55% C, 6% H, 35% O를 가지며 갈탄은 65% C, 6% H, 25% O를, 그리고 아역청탄 등급은 75% C, 5% H, 15%

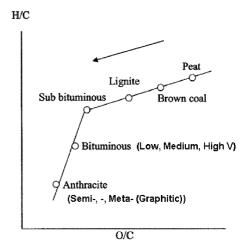


Fig. 2. The van Krevelen diagram representing a coal formation.

Table 1. Coal properties of various ranks

Coal rank*	Volatile matter (wt%, maf**)	Fixed carbon (wt% maf**)	Ash (wt% mf***)	Calorific value (Btu/lb, mmmf****)
Lignite	69-44	76-62	8-1	4,500-3,500
Sub-bituminous	52-40	80-71	10-3	6,400-4,600
HvBb 50-29		86-76	20-10	7,200-5,800
HvCb	50-29	86-76	20-10	7,200-5,800
HvAb	49-31	88-78	20-10	>7,500
Lvb	22-14	91-86	20-10	7,200-5,800
Mvb	31-22	91-86	20-10	7,200-5,800
Semi-anthracite	14-2	99-91	30-10	6,400-4,600
Anthracite	14-2	99-91	30-10	4,500-3,500
Meta-anthracite	14-2	99-91	50-20	4,500-3,500
Graphitic anthracite	5-2	99-91	-	-
Graphite	-	99-91	-	-

^{*}HvBb: High volatile B bituminous

HvCb: High volatile C bituminous

HvAb: High volatile A bituminous

Lvb: Low volatile bituminous

Mvb: Medium volatile bituminous

^{**}moisture ash free

^{***}moisture free

^{****}moisture mineral matter free

O를 갖게 된다[4].

석탄은 Fig. 2에서 보는바와 같이 갈탄(brown coal, lignite)에서부터 아역청탄, 역청탄(유연탄), 무연탄으로 나뉘어진다[4]. 역청탄은다시 저휘발분, 중휘발분, 고휘발분 역청탄으로 나뉘어지고 무연탄은다시 반무연탄, 무연탄, meta-무연탄, 흑연계 무연탄으로 나뉘어진다. 국내 무연탄은 무연탄과 meta-무연탄 등급에 속하며 장시간의 연소지속시간과 회분의 강도를 요구하는 연탄의 주원료로 사용되고 있다. 국내 석탄화력발전소에서 설계탄(design coal)으로 사용하는 석탄 등급은 역청탄이다.

Table 1에 석탄의 등급에 따른 조성을 보다 자세하게 비교하였다. 등 급이 증가할수록 휘발분이 낮아지고 고정탄소와 회분이 증가하는 것이 특징이다. 발열량은 역청탄에서 최대값을 갖는 것을 알 수 있다[5].

Brown coal과 lignite를 합쳐서 갈탄이라고 하는데 일반적으로 저 등급 석탄(LRC: Low Rank Coal)으로 분류한다. 일부 아역청탄도 저등급석탄에 속한다. 저등급석탄은 Table 2에서 보는바와 같이 매 장량과 세계적인 분포는 역청탄과 유사하지만 두 가지 단점으로 인해 사용이 되지 않고 일부가 화학제품의 원료로 판매되고 있다[5].

1) 수분이 많다. 일반적으로 발전소에서 사용하는 역청탄은 5~15%의 수분을 갖고 있지만 갈탄은 30~50%의 수분을 함유한다. 수분이 많으면 보일러 크기가 커지고 효율이 낮아지는 단점이 있다.

Table 2. Coal reserves and worldwide distribution of different ranks

M/T	Bituminous/ anthracite	Sub-Bituminous/ Brown	Lotal	
World	509491	474720	984211	
North America	116707	139770	256477	
S. & Cent. America	7839	13735	21574	
Europe	41664	80368	122032	
former Soviet Union	97476	132707	230178	
Africa	61162	250	61412	
Mid. East	193	-	193	
Australia	47300	43100	90400	
China	62200	52300	114500	
India	72733	2000	74733	
Indonesia	770	4450	5220	

CROSS BOXING TO MORE

Fig. 3. Structure model for bituminous coals.

단위 생산 에너지에 대한 CO, 발생양도 많다.

2) 산소 기능성 그룹이 많고 기공이 많아 수분의 흡탈착에 의한 열축적과 산소와의 반응으로 자연발화를 일으킬 가능성이 높다. 이렇게 되는 이유는 Fig. 3의 오른쪽 석탄 구조모델에서 보는바와 같이 저등급석탄의 경우 구조가 치밀하지 못하여 기공이 많고 방향족과 같은 안정한 유기화합물 보다는 유기구조(matrix)에 가지를 친형태의 유기화합물(peripheral hydrocarbon)이 많아서 반응성이 크기 때문이다[6]. 석탄의 등급이 낮다는 것은 아직 탄화가 덜되어 고분자화가 덜 되었다는 것을 의미하므로 기공이 많고 반응성이 높은 것은 당연한 것이다.

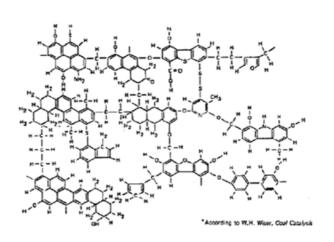
초청정석탄의 원료는 저등급석탄이다. 기존 화력발전소에서 사용하는 역청탄의 가격은 석유가격과 함께 동반 상승하고 있고 이미이 역청탄을 설계탄으로 하는 보일러가 운전되고 있으므로 역청탄으로 초청정석탄을 생산할 필요는 없기 때문이다.

본 논문에서는 고유가 시대의 대응책으로 현재 세계적으로 매장 량이 풍부하면서도 높은 수분 함량과 자연발화 가능성으로 인해 활용이 되지 않고 있는 갈탄 및 아역청탄을 원료로 오일과 동일 등급의 초청정석탄을 제조하여, 단기적으로는 석유를 대체하고 장기적으로는 IGCC와 IGFC(Integrated Gasification Fuel Cell)의 연료 공급을 목적으로 하는 초청정석탄 생산기술의 개발 동향에 대해 논하였다.

2007년도 APP-AP6(Asia Pacific Partnership, Asia-Pacific 6 Countries) 의 에너지 분야 Action plan을 Table 3에 나타내었다[1]. Table 3에서 보는바와 같이 위에서 언급한 석탄관련 키워드에 ultra clean coal 또는 hyper coal과 같은 석탄의 화학적 고도정제기술이 포함된 것은 초청정석탄 제조기술 개발이 국제적으로 필요성을 인정받고 있다는 것을 의미한다.

2. 초청정석탄 제조기술

초청정석탄 제조기술은 석탄 정제기술의 하나이다. 석탄 정제기술은 크게 물리적, 생물학적, 화학적 정제기술로 구별되며[7] 회분의 제거형태에 따라 석탄으로부터 회분을 제거하는 기술과, 석탄으



446 이시훈 · 김상도

Table 3. Themes in APP-AP6 initial action plan for clean fossil energy development 2007

Themes	Contents
CO ₂ capture and storage	This covers enhanced oil recovery, natural gas CO ₂ separation, and CO ₂ capture from fossil fuel use. This theme is linked to technologies under themes 2 and 3 that enable the capture of CO ₂ for storage.
Post-combustion capture, oxy-fuel combustion and other advanced technologies	Development and commercial deployment of advanced combustion technologies, such as ultra clean coal (UCC) and hyper coal, super/ultra-supercritical power stations with capture of CO ₂ through oxy-fuel combustion or post-combustion CO ₂ capture, and a range of advanced fluidized bed technologies that reduce emissions and support more efficient use of lower grade fuels.
Coal gasification and liquefaction	This covers coal integrated gasification combined cycle, including with carbon capture and storage (CCS) and chemical plants with pure CO2for capture.
Energy market access for gas	This involves identifying and addressing potential barriers to LNG market efficiency and growth.
Gas handling infrastructure improvements	Energy efficiency gains and emissions reductions through application of gas processing, transport and utilization technology improvements.

로부터 가연성분을 회수하면서 회분을 남기는 2가지 기술이 개발되어 왔다. 전자는 오염물질을 제거하는 기술이고 후자는 유효성분을 추출하는 기술이다.

석탄 정제기술 중에서 물리적 정제기술은 비중선탄, 탑형부선, 초미분쇄 기술 등 회분의 일부를 저감하는 기술로써 회분의 상당량이 남기 때문에 초청정석탄 제조기술로 볼 수 없다[7]. 생물학적 정제기술은 본래 무기황을 제거하는 기술로 개발되었으며 회분 전체를 제거하기에는 어려우므로 역시 초청정석탄 제조기술로 보기 어렵다. 이에 반해 화학적 정제기술은 회분을 200 ppm 이하, 즉 오일과 동일 수준으로 제거할 수 있는 기술이기 때문에 초청정석탄 제조기술 이라고 할 수 있다.

회분 200 ppm 이하의 초청정석탄을 사용하면 이로부터 얻을 수 있는 효과는 다음과 같다.

- 1) 초 청정석탄 전용 가스터빈을 개발하여 발전효율을 48%로 증가시키고 이로부터 10% 이상의 CO_2 저감효과를 얻을 수 있다. 실제로 일본에서는 미쓰비시 중공업에서 초청정석탄 전용 가스터빈을 개발하고 있다.
- 2) 회분에 의해 야기되는 오염물질이 없으므로 집진설비의 설치가 최소화 된다.
- 3) 보일러에 융착 되는 회분이 없기 때문에 전용 연소 보일러 설계시에는 보일러 규모를 기존의 2/3로 축소시킬 수 있으며 기존 보일러에 석탄과 혼합 연소하는 경우 연소효율을 증가시킬 수 있다. IGCC 연료로 사용하는 경우 회분의 슬레깅 부분이 필요 없게 되어 장치의 대폭적인 축소가 가능하다.
- 4) 발열량이 증가한다. 원료석탄은 역청탄의 경우 평균 $6,500 \, \text{kcal/kg}$, 본 논문에서 대상으로 하는 저능급 석탄인 갈탄이나 아역청탄의 경우 $4,500 \, \text{kcal/kg}$ 인데 반해 초청정석탄은 평균 $8,500 \, \text{kcal/kg}$ 으로 약 30~70% 증가한다. 열효율이 증가하고 발전효율이 증가하므로 $CO_2 \, \text{저감효과가 크다}$.
- 5) 석유류 수입대체 외에 기존 석탄 사용발전소에 적용시 에너지절 약효과와 대기청정효과, 그리고 ${
 m CO_2}$ 저감효과를 동시에 얻을 수 있는 기술이므로 고유가 시대에 대응할 수 있는 가장 적합한 기술이다.

화학적 정제기술은 1980년대 초부터 연구되어 왔다[7]. 그 시기에는 화학적 정제기술이 품질대비 석유가를 넘어설 수 있을 정도의 경제성을 갖추지 못하여 대부분 파일럿 규모까지만 수행하고 중단되었다. 그러나 최근 고유가로 인해 세계 각국에서는 다시 화학적 정제기술에 관심을 갖기 시작했으며 현재 부각되고 있는 화학적 정제기술은 앞에서 언급한대로 회분을 제거하는 기술인 Ultra Clean Coal process, 회분을 남기고 가연성분을 추출하는 Hyper-coal

process, 이렇게 두 가지가 개발되고 있다. 본 논문에서는 이 두가지 기술 현황에 대하여 고찰하였다.

2-1. Ultra Clean Coal I (UCC-I) Process

화학적 정제 기술 중에서 알칼리와 산을 이용한 회분 제거기술은 크게 알칼리 용액을 이용한 숙성(digestion) 공정을 사용하는 Battelle Hydrothermal Coal(BHC) process와 TRW의 Gravimelt process로 구 별된다[8-10]. 두 가지 공정 모두 본래 목적은 석탄으로부터 무기황을 제거하는 것이었다. 다음 식에서 보는바와 같이 sodium(Na)과 무기황(S)이 반응하여 Na_2S 가 생성되고 물에 용해되어 제거되는 것이다.

$$8FeS_2 + 30NaOH \longrightarrow 4Fe_2O_3 + 14Na_2S + Na_2S_2O_3 + 15H_2O$$
 (1)

TRW의 Gravimelt process는 많은 양의 알칼리를 사용하는(NaOH/Coal=4) 용융침출법(molten caustic leaching)을 사용한 반면 BHC는 상대적으로 저농도의 수용액(NaOH 1% 수용액)을 이용하기 때문에 효율은 낮으나 경제성은 Gravimelt process보다 높다는 평가를 받았다. BHC 공정의 경우 고압(10기압)에서 숙성을 하므로 알칼리 사용

랑이 적다. 그러나 효율은 낮아서 회분 제거효율이 95%(Gravimelt process의 경우 98% 이상)로 보고되고 있다. 이 두 가지 공정 모두 파일럿 규모까지 연구가 진행된 후 상용화 단계에서 경제성 문제로 중단되었다[7].

최근 호주 CSIRO에서 일본의 JCOAL과 공동으로 회분 0.3% (3,000 ppm)의 청정석탄 제조기술을 개발 하고 있다. 이 공정이 UCC(Ulltra Clean Coal) Project로 명명되었으며 1995년에 일본의 NEDO와 JCOAL, 그리고 호주의 CSIRO에서 공동으로 투자하여 공정의 가장 큰 약점으로 지적되고 있던 알칼리의 재생공정을 개발하였으며 현재 상용화 개발단계에 있다. 재생공정은 다음과 같은 반응에 따른다.

$$Na_2S + CO_2 + H_2O H_2S + Na_2CO_3$$

 $Na_2CO_3 + CaO + H_2O CaCO_3 + 2NaOH$ (2)

UCC 공정의 개괄적인 흐름도를 Fig. 4에 나타내었다[11]. 알칼리 재생에 lime(생석회)를 사용한다. UCC공정은 현재 호주의 Hunter Valley에 약 1,500만 US\$를 투자하여 10 ton/day를 생산하는 demonstration plant가 운전되고 있으며 2006년에는 UCC company를 설립하였고 중국 Datong Co., 일본 Mitsubish 중공업과 함께 초청정석탄 전용 가스터빈을 개발하고 있다[12, 13].

Table 4에 UCC 원료탄과 처리탄의 특성을 비교하였다. 회분의 양

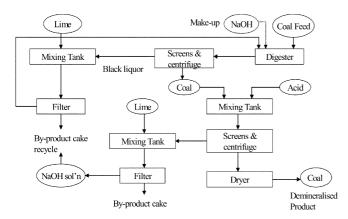


Fig. 4. Schematic diagram of UCC(ultra clean coal) process.

Table 4. Properties of raw and UCC

Property	Feed Coal	UCC	
Total ash	8.3%	0.15%	
Ash particle size	-	<5 mm	
Inorganic content of the coal	(ppm)	(ppm)	
Si	24,800	35	
Al	12,300	8	
Ti	733	477	
Fe	3,383	34	
Ca	437	22	
Mg	431	5	
Na	919	58	
K	464	9	
P	86	3	
Mn	13	0	
V	29	12	
Ash fusion temperature IDT (Initial Deformation Temperature)	>1,500 °C	>1,500 °C	

이 0.15%로 감소하고 회분의 주성분인 Si와 Al이 현저하게 감소한 것을 알 수 있는데 Si와 Al은 sodium과 silicate와 aluminate 화합물을 만들어 제거된다. 용융의 초기는 알칼리 물질들이 지배하지만 석탄의 회분중에 Si와 Al이 특히 많아서 이들이 회분의 용융온도를 지배하는 것으로 알려져 있다. UCC의 경우 Si와 Al이 많이 제거되었는데도 용융온도는 크게 변화가 없는 것으로 나타난다. Ti가 많이 남아 있기 때문이다. 일반적으로 산화성 무기물인 Si, Al, Ti는 회분의 용융온도를 높이는 역할을 하는데 Ti가 많이 제거되지 않아 용융온도는 차이가 없게 나타나는 것으로 판단된다. UCC를 가스터빈에 사용하는 경우 가스터빈 블레이드의 수명에 영향을 미치는 물질은 Na와 K이다. 이들이 각각 58과 9 ppm으로 낮아 UCC Co.에서는 가스터빈에 적용이 가능한 것으로 판단하고 있다.

2030년에 UCC를 이용한 가스터빈의 상용화를 목적으로 하고 있으며 발전효율의 증가로 연간 약 250만톤의 CO_2 를 저감할 것으로 예상하고 있다. 현재 이 공정은 국내를 포함하여 약 97개국에 특허 등록되어 있다[13].

2-2. Ultra Clean Coal II (UCC-II) Process

같은 UCC라는 이름을 사용하면서 기술적으로는 전혀 다른 공정이 개발되고 있다. 최근 영국 Nottingham 대학교의 Fuel and Energy

Table 5. Properties of CENFuel

	Input coal sample	Output cenfuel product
Ash	25%	0.59%
BTU/lb	11,077	15,186
Moisture	13.6%	0.3%
\$ per MMBTU	< 0.5	<3.0
\$ per tonne	\$12	\$100

Center에서는 불산과 질산을 사용한 회분제거기술을 연구하고 있으며 수용액에서의 미네랄들의 용해특성과 사용한 용제의 재활용등을 연구하여 상용화를 추진하고 있다[14-17]. 연구주체인 Karen 등[14]에 의하면 회분 8%의 영국석탄을 대상으로 3시간동안 65℃에서 불산으로 처리한 후 다시 질산으로 처리하면 0.1% 이하의 회분을 갖는 석탄을 생산할 수 있다고 하였다. 1980년대 초반만 하더라도 유가가 낮아 석탄의 화학적 정제기술이 온실가스 저감이라는 국제적이슈를 해결하는데 기여하기가 어려웠지만 이제는 유가가 높고 석탄가격이 동반 상승하여 고품위 석탄의 수요가 증가한다는 것이 UCC 개발 팀의 주장이다.

또한 미국 Carbonx사와 일본에서는 불산을 이용하여 석탄에 포함되어 있는 회분을 제거하고 조립하여 발전소 및 가스터빈 등에 사용할 수 있는 초청정석탄 제조기술을 연구하였다[18, 19]. Table 5는 원료 석탄과 제조된 CENfuel의 특성을 비교하여 나타낸 것으로 원료 석탄에 비해 CENfuel의 제조단가는 8배 증가하지만, 회분의 함량은 0.59%로 감소하고, 발열량은 40% 정도 향상되는 것으로 나타났다. 최근 Carboxt에서는 제조된 초청정석탄을 탄소 물질의 원료로서 활용하는 기술을 개발하고 있다.

2-3. Hyper Coal Process

일본은 호주와 공동으로 개발하고 있는 UCC project와는 별도로 독자적으로 JCOAL의 지원으로 AIST/ETRI(National Institute of Advanced Industrial Science & Technology/Energy Technology Research Institute)에서 회분 200 ppm 이하의 초청정석탄 제조기술 을 개발하고 있으며 이 공정이 Hyper Coal Process로 알려져 있다 [20]. 또한 본 기술은 일본의 CCT(Clean Coal Technology) program 의 장기개발계획 로드맵에 포함되어 있는 기술이기도 하다[21].

Hyper Coal project는 1999년에 시작하여 2001년에 Phase I이 수행되어 기초연구가 시작되었고 2004년에 벤치규모 연구인 Phase II 가 시작되었으며 2007년에는 Phase III가 시작되고 2020년에 상용화를 계획하고 있는 장기적인 프로젝트이다. 현재 Phase III의 파일 럿 규모는 Kobe Steel이 주관하고 있다[22-28].

Hyper Coal 공정의 개념을 Fig. 5에 나타내었다[21]. 석탄에서부터 용매를 이용하여 탄소성분을 추출해내고 초청정석탄을 제조한다. 사용하는 용매는 가장 저렴하면서 회수가 용이한 LCO(Light Cycle Oil)이며 NMP(n-Methyl Pyrolydone)와 같은 극성용매가 사용되기도 한다. 온도는 350 ℃ 이상이며 압력은 5기압 이상으로 알려져 있다. 용매추출 후 용매에 녹은 석탄의 가연성분들은 용매를 휘발시키면 결정화 되고 회분 200 ppm 이하의 초청정석탄이 만들어진다. 초청정석탄은 초청정석탄전용 가스터빈을 개발하여 발전효율을 48%까지 증가시킬 수 있다. 가스터빈 전용으로 사용하기 위해서는 회분 중 Na와 K 등과 같은 알칼리 물질을 제거하여야 하기 때문에이온교환체를 이용한 Na, K 제거공정이 추가되어야 한다. 효율이

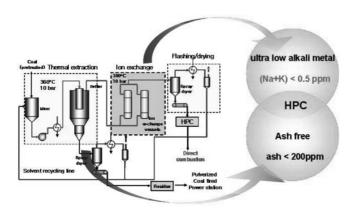
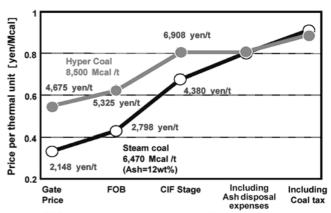


Fig. 5. Process flow diagram of Hyper Coal process.

48%까지 상승하면 기존 발전소 대비 ${\rm CO_2}$ 저감효과가 커서 ${\rm CO_2}$ 저 감을 위한 교토협약을 포함한 국제환경문제의 대응수단이 될 수 있다. Fig. 5에서 보는바와 같이 Hyper Coal 제조과정에서 발생하는 잔탄(residue coal) 역시 회분 약 20% 정도로 역청탄과 유사한 등급으로 탄화된 형태를 보이며 산지에서 스팀터빈용 발전 연료로 사용이 가능하다.

Hyper Coal 공정은 용매에 의해 석탄에 포함되어 있는 유효성분인 탄화수소를 추출하는 기술이다. Hyper Coal의 단계별 공정과 가스터빈에의 활용에 대한 개괄적인 흐름도를 Fig. 6에 나타내었다. Hyper Coal의 제조는 4단계 과정을 거친다. 1단계는 석탄과 용매를 혼합하여 슬러리를 혼합하고 추출하는 과정이다. 2단계는 용액내의 금속이온(Na, K 등)을 분리하는 공정이며 3단계는 용매의 회수와 초청정석탄의 건조이다. 4단계는 잔탄의 처리공정이다.

Table 6에 원료탄과 Hyper Coal 그리고 잔탄의 특성을 비교하였다. 원료탄과 Hyper Coal은 수분과 회분이 감소하고 휘발분과 발열



FOB: Land transportation expenses 650 yen/t CIF: Cost, Insurance and freight 1,582 yen/t Ash-disposal expenses :7,000 yen/t Coal tax: 700 yen/t (2007.4~)

Fig. 7. Estimated coal prices of raw coal and Hyper Coal.

량이 증가한다. 산소와 수소의 차이는 크게 없는 것으로 나타난다. 잔탄의 경우에는 회분이 증가하기는 하지만 생산 현지에서 발전소 연료로 사용이 가능한 정도의 열량(6,000 kcal/kg)을 갖는다.

Hyper Coal 제조를 위해서는 용매추출공정 및 알카리 금속을 제거하기 위한 이온교환공정 등이 포함되어 제조단가가 높아질 것으로 예상되고 있다. Fig. 7에 일본 ETRI의 경제성 분석 결과를 나타내었다[21]. 2007년 4월 기준 일본의 석탄 가격을 기준으로 비교한 것이다. Hyper Coal의 초기 제조단가는 채광 현장에서의 생산가격과 비교하면 처리공정 가격이 포함되어 약 2.2배 정도 증가한다(2,148 yen대 4675 yen). 그러나 기존의 석탄은 사용 후에 발생된 회분을 처리하기 위한 비용이 발생하게 되지만, Hyper Coal은 회분

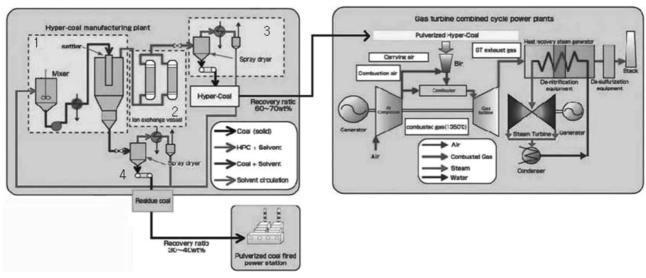


Fig. 6. Steps of Hyper Coal production and concept of utilization to the gas turbine.

Table 6. Comparison of coal characteristics of raw coal, hyper coal and residue coal produced from hyper coal process

	Moist (wt%)	Ash (wt%) db	VM (wt%) daf	Calorific value (MJ/kg)	C(wt%) daf	H(wt%) daf	N(wt%) daf	S(wt%) daf	O diff. (wt%) daf
Feed coal	1.6	10.3	35.1	29.7	87.0	5.5	2.3	0.7	4.62
HPC	0.0	0.0	38.8	35.5	87.7	5.3	2.1	0.7	4.23
RC	0.0	29.1	23.7	23.0	85.1	4.2	2.2	0.8	3.71

처리비용이 소요되지 않으므로 이를 감안하면 제조부터 처리까지 소요되는 비용은 거의 동일하며 결국 소비자 가격은 동일하다는 결 론이 도출된다. Fig. 7의 비용은 열량 기준으로 분석한 것이다.

일본에서는 인도네시아 등 저등급 석탄 산지에 공장을 설립하는 계획을 갖고 있다. 일반적인 추출 수율이 70% 이므로 석탄 산지에서 70%를 수입하고 잔탄은 현지의 발전소에 사용한다는 전략이다. 일본은 고품위 석탄을 수입하여 오일을 대체하고 석탄 산지에서는 초청정석탄을 수출하고 동시에 발전용 석탄을 얻는 경제적 이익을 얻게 된다는 논리이다.

2-4. 국내 연구동향

국내에서 석탄 정제기술에 대해서는 1990년대 초반부터 연구가시작되었다. 물리적 정제기술과 생물학적 정제기술, 화학적 정제기술들이 모두 연구되었다[29-33]. 물리적 정제는 기름 응집법과 탑형부선, 생물학적 정제기술은 미생물을 이용한 탈황기술[30], 그리고화학적 정제기술은 알칼리 침출 등이 연구되었다[31-33]. 불산을 포함한 super acid를 이용한 정제기술도 연구되었으나 역시 경제적인이유와 국내에서는 석탄에 대해서 깨끗하지 못한 연료라는 인식 때문에 전체적인 사용량이 감소하여 청정화에 대한 필요성이 낮아져상용화 단계 까지는 가지 못하였다.

최근에는 여러 가지 등급의 석탄을 대상으로 다양한 용매를 이용하여 추출수율 및 회분 농도등을 분석하는 연구를 수행한 연구결과가 발표되고 있다. 현재까지, 물론 용매와 석탄의 등급에 따라 조금씩의 차이는 있지만, 회분은 최소 100 ppm, 수율은 최대 86%까지 얻었으며 용매에 따라 수율과 회분의 농도가 달라지는 것을 보였다[34, 35].

초청정석탄을 제조하는 과정에서 석탄의 구조가 변화하고, 이에 따라 석탄의 반응성이 변화한다. 이러한 변화는 초청정석탄의 활용 분야를 결정하는 매우 중요한 변수이다. 초청정석탄을 제조하는 과정에서 용매에 의한 열적 추출은 석탄의 구조를 파괴하여 저분자물질로 전환하며 이로 인해 반응성이 크게 증가하는 것으로 보고되고 있다. 대표적으로 가스화 반응속도는 원탄에 비해 약 10배 증가하는 것으로 알려져 있으며 연소반응속도 역시 크게 증가하는 것으로 보고되고 있다. Fig. 8에 원료탄과 초청정석탄, 그리고 잔탄의 등

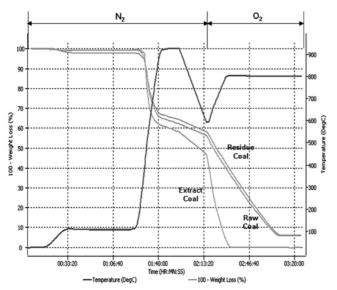


Fig. 8. Pyrolysis and combustion characteristics of raw coal, Hyper Coal and residue coal samples.

온 열적변화속도를 비교하였다. 시료를 900 °C까지 질소분위기에서 승온하면서 열분해 특성을 고찰하였으며 다시 600 °C까지 낮춘 후 산소분위기에서 800 °C까지 증가시키면서 각 시료의 연소특성을 고찰한 것이다. 열분해 조건(질소 분위기)에서는 Hyper Coal이 가장 많이 열분해 되는 것을 알 수 있다. 이는 석탄의 기연성분들이 추출되는 과정에서 저분자 물질이 많이 추출되었기 때문에 열분해 과정에서 가스화 되어 제거되는 것이다. 산소분위기인 연소조건에서는 원탄이나 잔탄에 비해 빠른 속도로 연소되는 것을 알 수 있다.

최근에는 국내에서도 갈탄 활용 기술 및 용매추출에 의한 초청정 석탄 제조기술의 상용화를 목적으로 구체적인 기획을 통해 사업화 를 추진하고 있으며 이 일환으로 우선 용매추출기술에 대해 단계별 사업을 시작하여 기반연구와 pilot plant 운전을 병행하여 일본과의 기술격차를 줄이고 장기적으로는 호주의 갈탄을 대상으로 일본과의 공동개발을 추진하려는 노력이 경주되고 있다.

3. 결 론

고유가와 더불어 동반상승하고 있는 석탄 가격으로 인해 국내 산업체가 많은 영향을 받고 있다. 저등급 석탄인 갈탄이나 아역청탄으로부터 화학적 정제기술을 이용하여 초청정석탄을 제조하는 공정에 대하여 국내외 기술개발현황을 고찰하였다. 화학적 정제기술 중회분 제거기술인 알칼리를 이용한 UCC-1 공정과 산을 이용하는 UCC-2 공정에 대해 고찰하였으며 유효성분 추출기술인 Hyper Coal 공정을 비교 검토 하였다. 회분 제거공정에 비해 유효성분 추출 공정이 회분의 양이 낮아(200 ppm:1,500 ppm) 오일과 동일한 품위의 초청정석탄이 제조된다.

초청정석탄 제조기술은 고유가시대에 대비하고 동시에 지구온난화 가스의 감축협약에 대비하는 기술로 기존 석탄사용발전소의 효율증 가와 신규발전소의 효율화를 기대할 수 있다. 현재 석유가의 1/4 수준으로 생산되는 저가연료를 정제하여 석유와 동일 등급의 초 청정연료를 생산함으로써 산업용 에너지유로 사용되는 석유를 대체할 수 있다. 기존 석탄사용 발전소와 신규발전소의 효율화를 통한 ${
m CO}_2$ 저감효과까지 고려하면 그 저감되는 비용과 효과는 커질 것으로 예상된다.

현재 설치되어 있는 배가스 처리설비 중 80% 이상의 절감이 가능하며 발열량 증가와 회분 융착 현상 감소로 발전 효율이 증가하여 CO_2 10% 발생 저감효과가 있으므로 석유류의 대체와 오염물질의 배출저감, CO_2 절감이라는 3중 효과를 얻을 것으로 기대된다.

고유가시대에 대비하여 석유의 수입을 감소시킴으로써 산업용 에너지의 안정적 확보가 가능하고 세계적으로 사용이 미비한 저등급 석탄 인 갈탄을 원료로 사용하므로 비용 절감 효과가 큰 기술로 판단된다.

감 사

최청송 교수님의 퇴임을 맞이하여 그동안 교수님의 지도와 편달에 감사드립니다. 앞으로도 그 열정 잃지 마시고 제자들의 등대가되어주시기를 바랍니다.

참고문헌

1. Smouse, S., "Asia Pacific Partnership on Clean Development and Climate Action Plan," APP CFE Task Force Meeting, July,

450 이시훈 · 김상도

- Beijing(2007).
- Biomass Co-firing An Efficient Ways to Reduce Greenhouse Gas Emissions, European Bioenergy Networks, Bioenergy 2003, September, Finland(2003).
- 3. Benson, S. A., Jones, M. L. and Harb, J. N., in L. D. Smmot (Ed.), Fundamentals of Coal Combustion, Elsevier, Amsterdam, 299-373(1993).
- 4. Opaprakasit, P., "Interaction and the Structure of Coal," Ph.D. Dissertation, The Pennsylvania State University, Troy, New York (2003)
- 5. Lee, S. H., "Utilization of Abroad Resources; Lignite," *ETIS*, **26**, 39-52(2005).
- Eliot, R. C., "Coal Desulfurization Prior to Combustion," Noyes Data Corporation, Park Ridge, New Jersey, 33-51(1978).
- Khoury, D. L., "Coal Cleaning Technology," Noyes Data Corporation, Park Ridge, New Jersey (1981).
- 8. Meyers, R. A., "Gravimelt Process Application and Economics," 1st International Pittsburgh Coal Conference, Pittsburgh, PA(1984).
- Meyers, R. A., Hart, W. D., Jones, J. F., McClanathan, L. C., Anastasi, J. L. and Barrish, E. M., "Gravimelt Process Modular Circuit Test Results," 3rd International Pittsburgh Coal Conference, Pittsburgh, PA(1986).
- Chriswell, C. D. and Markuszewski, R., "Improved Molten Caustic Leaching of Coals by Two-stage Leaching," 8th International Pittsburgh Coal Conference, Pittsburgh, PA(1991).
- 11. "UCC Energy," http://www.uccenrgy.com.au (2007).
- 12. Lagley, J., "Ultra Clean Coal," APP CFE Task Force Meeting, July, Beijing(2007).
- Paul, B., Bruce, W. A., Norman, C. K. and Brian, W. S., "Process for Demineralizing Coal," International Patent No. WO 2004/039927 A1(2004).
- 14. Steel, K. M. and Patrick, J. W., "The production of Ultra Clean Coal by Chemical Demineralization," *Fuel*, **80**, 2019-2023(2001).
- Steel, K. M., Besida, J., O'Donnell, T. A. and Wood, D. G., "Production of Ultra Clean Coal Part I Dissolution Behavior of Mineral Matter in Black Coal Toward Hydrochloric and Hydrofluoric Acid," Fuel Process. Technol., 70, 171-192(2001).
- Steel, K. M., Besida, J., O'Donnell, T. A. and Wood, D. G., "Production of Ultra Clean Coal Part II Ionic Equilibria in Solution When Mineral Matter from Black Coal is Treated with Aqueous Hydrofluoric Acid," Fuel Process. Technol., 70, 193-219(2001).
- Steel, K. M., Besida, J., O'Donnell, T. A. and Wood, D. G., "Production of Ultra Clean Coal Part III Effect of Coal's carbonaceous Matrix on the Dissolution of Mineral Matter Using Hydrofluoric Acid," Fuel Process. Technol., 76, 51-59(2002).
- 18. "Carbon Products," http://www.carbonxt.com/tech.html (2004).
- 19. Shimizu, K., Saito, I., Shimamura, K. and Suganuma, A., "Desulfurization and Solubilization High-sulfur Coal by Superacid HF/BF₃," *Energy & Fuel*, **12**, 734-739(1998).
- 20. "Coal Utilization Technology," http://www.jcoal.or.jp/overview

- en/gijutsu.html, JCOAL(2005).
- Saito, I., "Current Status and Perspective of Research and Development on Coal Utilization Technology in Japan," 20th International Pittsburgh Coal Conference, September, Pittsburgh, PA(2003).
- 22. Takanohashi, T., "Production and Utilization Technology of Hypercoal (ash-fre coal)," *Seminar at ETRI*, October, **29**(2006).
- Okuyama, N., Komatsu, N., Shigehisa, T., Kaneko, T. and Tsuruya, S., "Hyper-Coal Process to Produce the Ash-Free Coal," Fuel Process. Technol., 85, 947-967(2004).
- Yoshida, T., Takanohashi, T., Sakanishi, K., Saito, I., Fujita, M. and Mashimo, K., "The Effect of Extraction Condition on 'HyperCoal' Production (1) Under Room-Temperature Filtratio," Fuel, 81, 1463-1469(2002).
- Yoshida, T., Li, C., Takanohashi, T., Matsumura, A., Sato, S. and Saito, I., "The Effect of Extraction Condition on 'HyperCoal' Production (2) - Effect of Polar Solvents Under Hot Filtration," Fuel Process. Technol., 86, 61-72(2004)
- Li, C., Takanohashi, T., Yoshida, T., Saito, I., Aoki, H., Mashimo, K., "Effect of Acid Treatment on Thermal Extraction Yield in Ashless Coal Production," *Fuel*, 83, 727-732(2004).
- 27. Miura, K., Shimada, M., Mae, K. and Sock, H.Y., "Extraction of Coal Below 350 °C in Flowing Non-Polar Solvent," *Fuel,* **80**, 1573-1582(2001).
- 28. Sakanishi, K., Saito, I., Ishom, F., Watanabe, I., Mochida, I., Okuyama, N., Deguchi, T. and Simazaki, K., "Characterization and Elution Behaviors of Organically Associated Minerals in Coals During Acid Treatment and Solvent Extraction," Fuel, 81, 1471-1475(2002).
- 29. Tsai, S. C., "Fundamentals of Coal Beneficiation and Utilization," Elsevier Scientific Publishing Co., New York(1982).
- 30. Ryu, H. W., Chang, Y. K. and Kim, S. D., "Microbial Desulfurization of Coals by Sulfur Oxidizing Bacteria Thiobacillus Ferrooxidans," *HWAHAK KONGHAK*, **31**(3), 325-332(1993).
- 31. Lee, S. H. and Shon, E. K., "Changes in Combustion Characteristics of Coals after Treatment with Molten Caustic Leaching," HWAHAK KONGHAK, 32(3), 376-384(1994).
- 32. Lee, S. H., Shon, E. K. and Park, S. W., "Changes in Organic Structure of Coals after Treatment with Mo; Iten Caustic leaching," *HWAHAK KONGHAK*, **33**(6), 675-683(1995).
- 33. Lee, S. H. and Shon, E. K., "Effect of Molten Caustic Leaching on the Combustion Characteristics of Anthracite," *Fuel*, **76**(3), 241-246(1997).
- 34. Kim, S. D., Woo, K. J., Jeong, S. K., Rhim, Y. J. and Lee, S. H., "Production of Low Ash Coal from LRC(low rank coals) by Thermal Extraction with NMP(N-methyl-2-pyrrolidinone)," *Korean Korean. J. of Chem. Eng.*, 25(4), in press(2008).
- 35. Lee, S. H., Kim, S. D., Woo, K. J., Jeong, S. K. and Rhim, Y. J., "Ash-Less Coal Preparation by Using Solvent Extraction," 24th International Pittsburgh Coal Conference, September, Johannesburg, South Africa(2007).