

저공해 연료의 개발현황과 환경오염에 미치는 영향에 관한 연구 - 합산소 연료 및 개질연료에 관하여 -

A Study on the Effect of Low Emission Fuel on Environmental Pollution and Its Developing Situation - about Oxygenated Fuel and Reformulated Gasoline -

정 용 일, 박 권 하, 김 정 흠
Y. I. Jeong, K. Park, J. H. Kim



정 용 일
· 정회원
· 한국기계연구원 책임연구원
· 환경, 자동차배출가스 및 내연기관



박 권 하
· 정회원
· 한국기계연구원 선임연구원
· 디젤엔진 분사와 유동에 관한 연구, 환경 및 자동차배출가스 분야



김 정 흠
· 한국기계연구원 선임연구원
· 과학기술 정책연구 및 기계산업 기술개발, 경제적 효과 분야

서 자동차 배기가스 저감이 최근 세계 각국의 관심의 대상이 되고 있다. 이를 위하여 엔진 주변의 개선과 청정연료 및 개선등에 많은 연구가 진행되고 있다.

본 연구실에서는 연료개선 방향으로서 휘발유에 산소함유량을 증가시켜 불완전연소에 의한 유독성 배기물질을 감소시키기 위한 합산소연료와 광학스모그의 감소 일환으로 규제를 더욱 강화시킨 개질연료에 대한 개발현황과 문제점 및 대기오염에 미치는 영향을 검토하였으며, 앞으로 연구되어야 할 방향을 제시하였다.

2. 환경문제에 의한 가솔린연료의 변화

60년대부터 자동차가 환경에 미치는 영향이 증가하면서 배출가스를 줄이기 위한 노력이 꾸준히 지속되어 왔다. 초기의 간단한 방식은 positive crankcase ventilation(PCV) 밸브사용으로부터 시작되었다. 변화는 급속하여 촉매사용, 배기 재순환장치(EGR), 증발방지 캐니스터, 엔진 전자제어, 공연비조절장치 개선, 각종 센서사용, 연료인젝터를 사용한 포트급급방식(port fuel injection)등의 기술에까지 도달하였다.

배기조절 이전의 차량과 비교하면 배출가스 감소량은 일산화 탄소(CO)와 탄화수소(HC) 성분은 95% 이상 저감되었고, 질소산화물(NOx)

1. 서 론

자동차는 국가경제 발전의 기본이 되는 인적·물적 교류의 수단 및 국민 생활의 편의를 제공하는 현대사회의 필수품이다. 그러나, 경제 발전과 국민소득의 증대에 따라 급속히 증가하는 자동차 대수와 함께 대도시 오염의 주원인이 되고 있는 일산화탄소 및 광학스모그현상의 주범으로

도 70% 이상 감소하였다.

지금까지의 배기저감은 대부분 자동차 기술의 발전에 의해 이루어졌으나 거의 한계에 도달한 것으로 보고 있으며, 이제부터는 깨끗한 연소연료 개발이 중요한 역할을 할 것으로 기대하고 있다.

2.1 무연연료

자동차 공해문제 해결을 위한 연료의 가장 첫 변화는 촉매사용을 위한 무연화였다. 유연연료를 사용하면 촉매표면이 납으로 피막 되어 촉매기능을 할 수 없게 되기 때문에 연료의 무연화는 필수적으로 요구된다.

미국 EPA에서는 1970년대부터 연료의 납함유량을 법적으로 규제하였으며 1985년 1월부터 1.1 g/gal, 7월에 0.5 g/gal, 1996년 1월에는 0.1 g/gal으로 강력하게 규제하였다.

그러나 납(tetraethyl lead)은 가솔린 연료의 옥탄가 향상을 위하여 사용되기 때문에 무연화에 따른 옥탄가 보상 대책이 마련되어야 했다. 정유회사에서는 이를 위한 방법으로 더욱 엄격한 제조 공정처리와 함산소제(alcohols and ethers) 첨가방식을 사용하였다. 그러나 제조공정처리방식 향상에 따라 옥탄가는 증가하였지만 동시에 aromatics, olefins/diolefins와 "hight end components" 성분들이 증가되는 문제점이 나타났다.

Aromatics는 암발생 원인으로 알려져 있는 벤젠(benzene), 독성이 있는 톨루엔(toluene), 스모그 발생의 중요 원인인 질리엔(xylene)등을 생성하며 또한 이들 생성물들은 자동차 연료공급계에 사용되는 고무계의 탄성을 저해시킨다. 1970년대의 가솔린 연료의 aromatics 함량은 20% 정도였으나 1990년대에 와서는 30~40% 이상으로 높아졌다. Olefins와 diolefins는 스모그 발생에 기여하는 성분이며 또한 자동차엔진에 gum과 lacquer 등의 퇴적물을 발생시키며 특히 부탄(butane)과 같은 light end components는 연료 휘발성에 중대한 영향을 미친다. 납이 옥탄가향상제로 사용되던 60~70년대에는 옥탄가 88~90이 사용되면서 RVP는 겨울철 8.7psi, 여름철은 0.4psi 높은 9.1psi 정도였다. 그러나 80년 이후 납을 사용하지 않을 때에는 옥탄가 87수준

에서 겨울철 RVP 9.8psi, 여름철 10.4psi로 높아졌다. 이와 같은 휘발성 증가는 높은 증발가스(evaporative emissions)를 유발시켰다.

2.2 휘발성 규제

증발가스의 증가는 당연히 연료 휘발성에 대한 규제의 필요성을 가져왔다. 1989년에 EPA Phase I Volatility Control 프로그램이 시행되었으며, 6월 1일부터 9월 15일 사이에 시판되는 가솔린의 RVP를 9.0~10.5psi로 규제하고 가솔린과 에탄올 혼합연료는 가솔린 연료보다 1.0psi 높게 허용하였다. 이 프로그램 결과로 1988년 여름철 전국평균 RVP 10.0psi에서 1989년에는 9.0psi로 크게 낮아졌다.

1992년에 Phase II 프로그램을 시행하였으며 이때는 6월 1일과 9월 15일 사이 판매되는 가솔린의 RVP는 9.0psi 이하로 규정하였다. 특히 오존미달성(ozone non-attainment)지역은 규제기간 동안 RVP 7.8psi 이하로 규제하였다.

2.3 지역별 함산소연료 프로그램

겨울철에 대기 중 일산화탄소량이 많은 콜로라도에서는 1988년 1월에 자동차 배출가스중 CO 배출량을 감소시키기 위하여 겨울동안 함산소연료 사용을 의무화하였다. 현재 주로 사용되고 있는 산소함유 배합 성분은 에탄올과 MTBE로서 이들과 혼합된 함산소연료는 공기연료 혼합기에 산소를 추가한 결과를 가져오기 때문에 완전연소에 보다 가까워 일산화탄소 배출량을 줄여준다. 이 프로그램의 성과가 긍정적으로 나타나자 1991년까지 피닉스, 아리조나, 라스베가스, 네바다, 뉴멕시코, 텍사스 등에서도 이 프로그램을 의무화하였으며 이것이 Clean Air 정책의 주요 부분이 되었다.

2.4 Clean Air Act 수정안

1990년 11월 부시 대통령에 의해 발표된 Clean Air Act 수정안은 가솔린연료에 또다른 전환점을 가져왔다. 이 수정안은 전국의 대부분 CO 문제지역(CO non-attainment area)은 1992년부터 함산소연료를 사용하고, 특정 오존

문제지역은 1995년부터 reformulated gasoline (개질연료)사용을 의무화하였다.

합산소연료 사용은 주에 따라 약간의 시행방법에 유연성을 주고 있지만 기본적으로 시판 가솔린에 2.7wt% 산소를 요구하고 있다. 또한 1995년부터 시행되는 reformulated 가솔린 사용은 우선적으로 오존문제가 매우 심각한 9개 지역에 먼저 시행하고 나머지 문제지역도 각자 선택에 따라 시행할 수 있도록 규정하고 있다.

특히 오존이 가장 심하게 초과하는 extreme area는 캘리포니아의 로스앤젤레스로서 California Air Resources Board(CARB)는 미 연방규제보다 더욱 엄격한 규제를 제정하여 시행하고 있다. 오존문제와 관련된 reformulated 가솔린의 정의가 간단하지 않아 현재는 미국 EPA에서 제시한 Simple model 기준을 사용되고 있으며, 1995년과 1996년의 6월 1일부터 9월 15일 사이에 판매되는 가솔린은 이 기준에 만족하여야 한다.

1993년 3월 EPA에서는 Complex model을 준비하여 1997년부터 판매되는 가솔린에 적용할 계획이다. Complex model에는 Volatile Organic Compounds(VOC)와 Toxic Air Pollutants (TAP)의 감소 등을 추가하였다.

Clean Air Act 수정안에는 또한 anti-dumping 조항이 포함되어 있고 모든 납 및 중금속 성분을 제거하도록 규정하고 있다. 또한 1995년부터 시판되는 가솔린에 연료공급시스템의 퇴적을 방지할 수 있는 첨가제 사용을 요구하고 있으며 이것은 연소실과 흡기 밸브 퇴적물도 동시에 줄일 수 있을 것으로 예상하고 있다. 마지막으로 수정안은 대체연료 사용 차량-예를 들면 에탄올, 메탄올, 가스연료, 전기자동차 등을 촉진시킬 수 있는 Pilot Alternative Fuel Program을 포함하고 있다.

3. 합산소연료의 특성

가솔린연료의 합산소제 혼합은 먼저 가솔린연료의 무연화에 따른 옥탄가 보상 대책으로 사용되었으며, 또한 겨울철에 대기 중 일산화탄소량

이 많은 지역에서 자동차 배출가스중 CO 배출량을 감소시키기 위하여 합산소연료 사용을 의무화함으로써 중요하게 되었다.

합산소제는 주로 알콜과 에테르류이지만 현재 가장 많이 사용되고 있는 성분으로는 methyl tertiary butyl ether(MTBE)와 에탄올의 두 종류이며, 최근 들어 tertiary amyl methyl ether (TAME)와 ethyl tertiary butyl ether(ETBE)도 사용되고 있다.

3.1 에탄올(Ethanol)

1970년대 후반의 유류파동 사태 시에 에탄올이 대체연료로서 가솔린과 혼합하여 많이 사용되었으며, 이때 가솔린에 10% 에탄올을 혼합한 것을 gasohol이라 불렀다. 이후에 가솔린 공급이 다시 원활해지면서 에탄올은 옥탄가 향상제로 주로 사용되었으며 에탄올 혼합가솔린의 명칭도 "unleaded plus", "super unleaded plus"등으로 불려졌다.

에탄올혼합 가솔린은 일반 가솔린에 비해 연소를 향상시켜 CO 배출량을 감소시키며, 일부 연구에서는 오존발생에 관여하는 배기성분도 줄인다고 보고하고 있다. 또한 최근에는 에탄올은 가솔린에 비해 지구 온난화를 감소시킨다는 연구결과도 발표되고 있다.

에탄올은 이미 미국 내에서 판매되고 있는 가솔린에 8%가량 함유되어 있으며 특히 중요한 정유회사 들에서 사용되고 있다. 에탄올 가격이 가솔린에 비해 비싸기 때문에 혼합비율을 10vol%로 제한하고 있다. 10% 에탄올 혼합시 옥탄가는 2.5~3.0 상승하며 RVP는 10 psi 정도 상승한다. 최근 엔진개발 기술의 향상에 따라 디젤엔진에의 에탄올 적용연구도 진행되고 있다. Peroxide와 같은 보조물질을 이용하여 순수 에탄올과 디젤연료를 혼합하는 방법 등이 연구되고 있으며 디트로이트 디젤엔진회사에서는 100% 에탄올을 이용한 6V~92 엔진을 개발하여 발표한 바 있다. 에탄올과 디젤은 쉽게 혼합되나 시간에 따라 상분리가 일어난다. 따라서 peroxide와 같은 촉매를 사용하여 이 문제를 해결할 수 있으며, 10% peroxide/60% ethanol/30% die-

sel의 비율로 혼합하여 사용할 경우 보통의 디젤 연료와 비슷한 성능을 얻을 수 있는 것으로 발표되고 있다.

또한 tri-glyceride fatty acid의 methyl and/or ethyl esters인 bio-diesel 연료를 사용한 연구도 진행되어 배출가스를 감소하면서 디젤유와 비슷한 특성을 갖는다는 연구결과도 보고되고 있다.

3.2 MTBE(Methyl Tertiary Butyl Ether)

MTBE는 메탄올과 isobutylene의 화학반응으로 제조하며 가솔린내 MTBE 함량은 최대 15vol%로 한정하고 있다. 현재 미국내의 판매규모는 가솔린 판매량의 20~25% 수준이나 가솔린에의 혼합비율은 6~8% 정도가 일반적이다.

15vol% MTBE는 2.7wt% 산소를 함유하고 있으며 옥탄가는 2.5~3.0 상승한다. 자동차회사에서 추천하는 MTBE함유 가솔린을 살펴보면 현대자동차가 11% 이내, Peugeot 12.5% 이내, Saab 11% 이내를 추천하고 있다.

MTBE 자체에 포함된 methanol, i-butane 등이 불완전 연소시 유독가스인 HCHO를 발생하여 인체에 유해하다는 것이 밝혀지면서 계속적인 MTBE 사용시 문제점에 대해 검토가 진행되고 있다. 또한 미국 아틀란타 방역센터에서 수행한 연구결과에서 MTBE 사용 지역에서 다수의 사람들이 두통, 무력감, 권태, 구토, 졸립현상 등을 느꼈으며, MTBE에 일상적으로 노출된 사람들의 경우 혈액 속에서 MTBE가 검출되었다. 이러한 생리적인 현상들이 혈액 중 MTBE 농도와 상관관계가 있을 것으로 추측하고 있으며 현재 보다 구체적인 연구가 진행되고 있다.

3.3 TAME(Tertiary Amyl Metyl Ether)

최근에 사용되기 시작했으며 성능은 일반적으로 MTBE와 거의 비슷한 것으로 알려져 있다. 가솔린 혼합 최대 허용량은 16.7vol%이며 이때의 산소함량은 2.7wt%이며 옥탄가는 3.0 정도 상승시킨다.

TAME는 메탄올과 isoamylene으로 부터 만들어지며 혼합시 가솔린의 증기압을 낮추어 준다.

3.4 ETBE(Ethyl Tertiary Butyl Ether)

아직 상업적인 상품으로 개발되어 있지는 않지만 조만간에 사용될 것으로 전망하고 있다. 최대 허용량은 17.2vol%로 이때의 옥탄가 증가는 3.0 정도이며 에탄올과 isobutylene의 반응에 의해 생성된다.

현재까지는 한 연료에 한가지 합산소제만 사용되어 왔으나 미국 EPA에서는 합산소율을 2.7% 이내로 만족하는 범위에서 동시에 몇 종류의 혼합을 허용하고 있다. 합산소연료와 개질(reformulated)가솔린의 요구를 동시에 만족하기 위해서는 이와 같은 복합 사용이 일반화될 것으로 예측하고 있다.

4. Auto/Oil Programme

1989년에 미국의 자동차 빅 3사와 14개 중요 정유 회사가 Air Quality Improvement Research Program(AQIRP)콘소시움을 구성하여 자동차 배출가스 감소와 대기오염 해결을 위한 개질(reformulated)가솔린 및 대체연료와 자동차 배출물과의 상관관계를 규명하는 Auto/Oil Programme을 시작했다. 수백만불이 투입된 Phase I 프로그램은 이미 종료되었으며 2단계 Phase II 프로그램이 현재 진행되고 있다.

Phase I에서는 최근 및 사용차량(current and older vehicles)에 대하여 배출물을 측정 비교하였다. 이 실험에서는 aromatic, olefin, 합산소성분, 황성분, 증기압, 90% 증류점 등을 다양하게 변화시킨 reformulated 가솔린을 사용하였고 151가지의 배기성분을 측정하였다. 또한 가솔린에 메탄올을 0%에서 85%까지(M0 to M85) 혼합한 연료를 사용한 연구용 차량(FFV/VFV)의 배기가스를 측정하였다.

Auto/Oil Phase I의 결과로서 주어진 알콜 및 합산소제 사용의 효과를 보면, 가솔린에 합산소제인 MTBE를 15% 사용, 즉 연료에 합산소량을 2.7% 증가시키는 경우에 대한 배출가스의 저감효과를 Fig 1에서 보여준다. 탄화수소 배출물이 5% 내지 9% 감소하고 있으며, 일산화탄소는 11%에서 14%까지 감소했다. 한편 NOx

와 타 유해물질의 배출에 대하여는 큰 차이가 없는 것을 보여준다. 다른 합산소제인 에탄올, ETBE나 TAME를 사용하였을 경우도 상기와 유사한 효과를 갖는다.

가솔린연료에 유황성분을 500ppm에서 50ppm으로 낮추었을 때 NOx 9%, Co 13%, NMHC 16%가 감소하며, olefin을 20%에서 5%로 저하하였을 때 NOx 7%, 1,3 butadiene 30%로 감소한다.

90% 증류점을 360°F에서 280°F로 저감하면 Fig.2에서 보여주는 것처럼 최근차량의 경우 HC배출량이 22%까지 감소하고 대기유해물질이 16% 감소하는 반면 CO는 영향이 없으며 NOx는 5% 증가하고 있다. 한편 사용차량의 경우는 CO가 14%나 증가하고 HC가 6% 감소하며 NOx와 유해물질의 배출량에는 변화가 없는 것으로 나타났다.

기타 주요 결과를 정리하면, 유해한 차량배기의 감소와 대기오염 개선을 위한 연료변화를 크게 다음과 같이 들고 있다.

1. 연료증발 배출물과 오존(ozone)감소를 위한 RVP(Reid Vapor Pressure)의 저감.
2. 배출가스, 유해물질 및 오존 감소를 위한 유황성분의 감소.
3. 오존 감소를 위한 olefin 성분의 감소

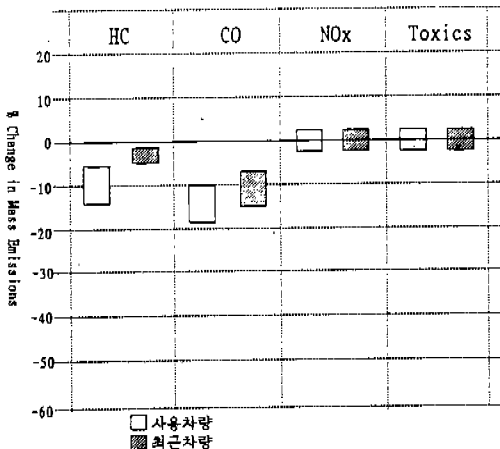


Fig.1 합산소연료 사용효과 (MTBE 0% to 15%)

4. 오존과 배기HC의 저감을 위한 90% 증류점의 감소
5. 유해물질 저감을 위한 aromatic 성분의 감소
6. CO의 저감을 위한 합산소 연료의 사용.

5. 에탄올 연료의 실험적 고찰

에탄올 혼합연료의 영향을 살펴보기 위하여 시판되는 무연가솔린에 에탄올을 5%, 10%, 20%씩 각각 혼합하여 CO, HC, NOx 등의 배출가스 성분들과 연료소비율을 측정 비교하였으며, 엔진 실험은 엔진회전수 1500,2000,3000,4000rpm과 엔진토크 30,60,90Nm와 최대토크의 총 16점에서 측정하였다.

실험한 결과 CO는 에탄올 증가와 함께 일반적으로 감소하는 경향을 보였으며 토크의 증가와 더불어 역시 감소하였다. HC의 전반적인 변화 경향은 에탄올 혼합율의 증가와 함께 감소하지만 3000rpm이하에서는 에탄올 10% 이상에서만 감소하는 효과가 있었다. NOx는 에탄올 혼합율의 증가에 큰 영향이 없었으나 고부하에서는 약간 증가하는 경향이 있었으며 토크의 증가와 함께 증가함을 보여 주었다. 한편 연료소모율(bsfc) 역시 큰 변화가 없었지만 부분적으로 감소하는 경향을 보여 주었다. Figs.3~6은 에탄올 혼합율

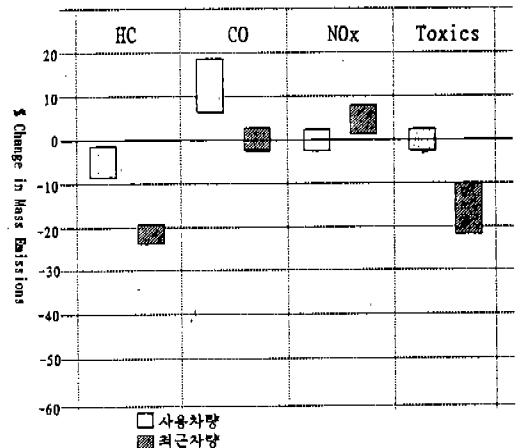


Fig.2 90% 증류점 저감에 따른 효과 (360F to 280F)

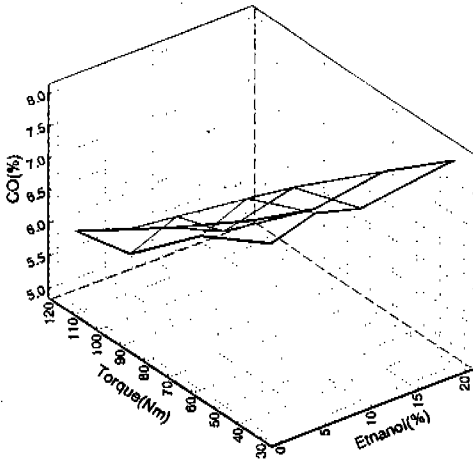


Fig.3 토크와 에탄올율에 따른 CO의 변화

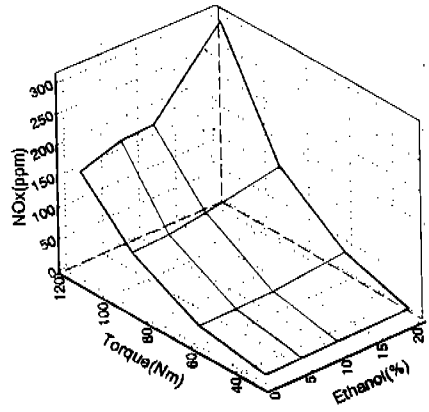


Fig.5 토크와 에탄올율에 따른 NOx의 변화

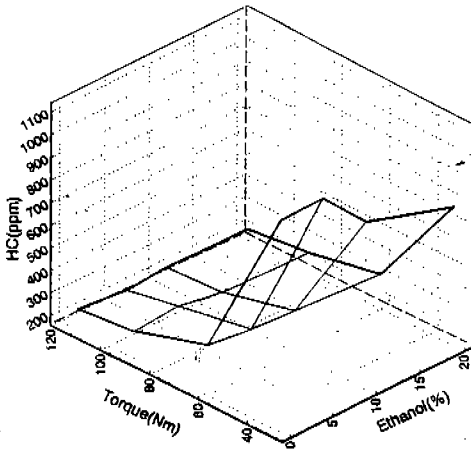


Fig.4 토크와 에탄올율에 따른 HC의 변화

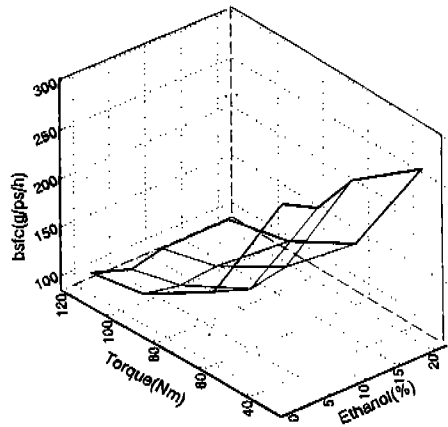


Fig.6 토크와 에탄올율에 따른 연료소모율의 변화

과 토크변화에 따른 4000rpm에서의 CO,HC, NOx 및 연비변화를 보여준다.

6. 결 론

대기오염의 증가와 함께 연료의 규제강화와 개발이 세계적으로 가속화되고 있으며 이의 적용이 신중히 검토되고 있다. 본 연구에서는 주요 대상이 되고 있는 합산소연료와 개질연료에 대한 검토가 이루어 졌다.

합산소제를 사용하면 일산화탄소의 배출이 크게 감소하며 탄화수소의 배출도 감소한다. 한편 보통사용영역에서의 NOx 배출에 대해서는 큰 변화가 없는 것으로 나타났다. Auto/Oil Programme과 본 실험 결과에 의하면 에탄올 10% 사용시 일산화탄소는 13%감소하며, 탄화수소는 5~6% 감소하고 있다. 이는 MTBE를 15%, ETBE를 17% 사용했을 때와 비슷한 결과이다. 따라서 합산소연료는 일산화탄소 문제지역에 적용되고 있으나 오존이 크게 문제시되는 지역에는 사용에 신중한 검토가 필요하다.

개질연료는 함산소량의 증가와 함께 RVP규제 및 몇가지 연료성분을 규제한 연료로서 오존문제 지역에 적용이 권장되고 있다.

한편 Bio-mass에 의한 대량생산기술을 기대 하면서, 앞으로의 연구방향으로 disohol(에탄올 + 디젤), 촉매 Peroxide를 혼합한 에탄올/디젤, ETBE 및 DME의 연료개발과 Bio-diesel연료 의 연구도 주시하여야 할 것으로 생각한다.

참 고 문 헌

1. 대기환경수준현황, 환경부 대기정책과, 1990 ~94.
2. 류정인, "가소홀의 문제점과 그 대책", 한국자동차공학회지, Vol. 9, No. 2, 1987. pp. 12~16.
3. 한국자동차공업협회, 자동차등록 통계월보,

- 한국자동차공업협회, 1994. 12.
4. 조광래외, "도시지역 대기질 개선에 관한 연구(Ⅲ)", 국립환경연구원보, 제13권, 1991.
5. 환경처, 환경백서, 환경처, 1994.
6. US EPA. "Analysis of the Economic and Environmental Effects of Ethanol as an Automotive Fuel", US EPA, 1990.
7. "Questions and Answers about Ethanol", Ethanol Fuel for Clean Air
8. "Toxic Air Pollutants from Mobile Sources", Proceedings of a U.S. EPA/A&WMA International Specialty Conference, Air & Waste Management Association, 1992.
9. "The Auto/Oil Air Quality Improvement Research Program—Phase I Final Report", 1993.