

Downer 반응기에서의 석탄가스화 반응 특성

김 용전, 이시훈, 김 상돈
한국과학기술원 화학공학과 및 에너지·환경 연구 센터

Coal Gasification Characteristics in a Downer Reactor

Y. J. Kim, S. H. Lee and S. D. Kim
Dept. of Chem. Eng. & Energy and Environment Research Center
KAIST, Taejon, Korea

서 론

2차 세계대전 이후 두 차례에 걸친 원유파동과 최근의 유가상승으로 석유의 대체에너지 원으로서의 석탄의 중요성이 새롭게 대두되어, 석탄의 활용에 대한 연구가 석탄 부존량이 풍부한 미국, 영국, 독일 등을 중심으로 집중적으로 진행되고 있다. 이중 석탄가스화 복합발전은 공해가 적은 새로운 에너지원으로서의 실용화가 가장 유망한 새로운 발전기술로서, 경제성 및 환경 보전성이 우수하며, 고효율 발전과 에너지 절약 및 전력 계통의 운용측면에서도 큰 효과가 기대되는 핵심기술이라 할 수 있다.

석탄 가스화공정의 개발을 위해서는 가스화 공정의 핵심이 되는 석탄가스화반응기의 개발이 우선되어야하며 이를 위해 downer 가스화 반응기를 개발하였다. Downer 반응기는 축-횡방향의 기체 및 고체 흐름의 균일성 증가로 기-고 접촉시간이 균일해 생성물의 선택도가 높고, 국부 가열이 없어 hot spot 이 생성되지 않는다. 또한 기체 및 고체의 하향흐름으로 최소 유동화 속도, 최소 transport 속도가 존재하지 않아 반응구역에서의 불필요한 반응기체량을 줄일 수 있어 매우 집약적 반응을 일으킬 수가 있으며 고체의 처리량이 상대적으로 크다는 장점이 있다[1-3].

순환유동층의 장점과 분류층 반응기의 장점을 갖는 순환유동층 downer 가스화 반응기는 석탄이 반응가스로 인해 상향흐름을 갖는 riser 에서의 연소 반응과 반응가스와 석탄이 하향흐름을 갖는 downer 에서의 가스화 반응으로 나눌 수 있다. 이러한 순환유동층 반응기의 riser 및 downer 개념은 분류층 반응기의 건식 상향흐름과 습식 하향 흐름과 비슷하나 조업 온도가 분류층 반응기와 달리 비교적 낮은 온도 (950°C 이하)에서 조업되며, 낮은 온도에서의 조업으로 야기되는 미전환 석탄의 재순환 방식이 분류층의 가스화 방식과는 차이가 있다고 하겠다. 입자의 순환은 연소로에서의 연소열을 downer 로 공급해 가스화 반응에 필요한 열과 충분한 체류시간을 공급해 석탄의 전환율을 증가시키며, 반응구역의 분리로 downer 영역에서 중열량가스의 생성이 가능하다.

이에 본 연구에서는 내경 0.078 m, 높이 8.8 m 의 연소로와 내경 0.1 m, 높이 5.0 m 의 가스화로를 갖는 순환유동층 downer 반응기에서 반응온도, $\text{H}_2\text{O}/\text{C}$ 비의 변화에 따른 생성 가스의 조성, 생성가스수율, 생성가스 발열량, 탄소 전환율, cold gas efficiency 등에 미치는 영향을 조사하였다.

실험

실험에 사용된 downer 가스화로를 Fig. 1에 나타내었다. 그림에서 보듯이 Downer 가스화로는 크게 석탄 및 반응가스(공기, 수증기)주입부, 연소로(riser), 가스화로(downer), 사이클론, 유동층 공급장치, loopseal, 생성가스 처리부로 구성되어 있다. 연소로 ($0.078\text{ m I.D.} \times 8.8\text{ m high}$)를 통해 이송된 고체는 사이클론에서 분리되고 포집된 고체는 유동층 공급장치로 이동하고 연소가스는 settler 와 I.D. fan을 통해 배출된다. 포집된 고체를 downer ($0.1\text{ m I.D.} \times 5.0\text{ m high}$)로 공급하기 위한 유동층 공급장치는 4개의 6 mm orifice를 갖는 bubble cap 형태의 노즐을 통해 downer로 고체를 공급하였다. 노즐을 통해 공급된 고체는 downer 상부에 설치된 분산판을 통해 공급되는 반응가스(산소, 수증기)에 의해 균일하게 분산된다. 연소로에서 가열되어 순환되는 입자와 반응가스는 가스화로에서 반응하고 separator 와 프리보드를 통해 분리된다. Separator 는 loopseal에서의 입자순환을 위해 충분한 고체순환속도를 제공할 수 있는 고체의 inventory를 갖고 dead zone이 생기지 않도록 설계하였다. 연소로로 고체를 공급하기

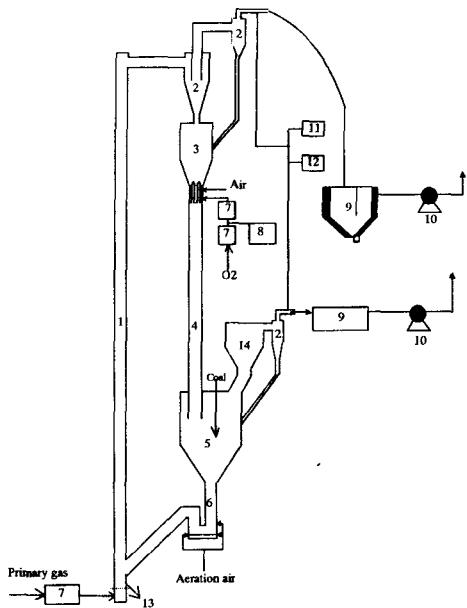


Fig. 1 Schematic flow diagram of the experimental apparatus
1. Riser, 2. Cyclone, 3. Fluidized bed feeder, 4. Downer, 5. Separator
6. Loopseal, 7. Gas preheater, 8. Steam generator, 9. Settler, 10. I.D. fan
11. Gas analyzer, 12. GC, 13. Bed drain, 14. Freeboard

위한 고체 재주입부는 비기계적 밸브인 loopseal ($0.1\text{ m-ID} \times 0.8\text{ m-high}$)을 사용하였고, 순환되는 고체의 양은 sparger를 통해 loopseal 내로 들어가는 공기유량을 조절하여 조정하였다. 재순환되는 고체는 분산판위 0.21 m 지점에서 연소로로 주입되었다. 하부 회재(bottom ash)의 배출을 위하여 분산판위 0.05 m 지점에 bed drain을 설치하였다.

연소로로 공급되는 공기는 유량계를 통해 정량되고 공기예열기를 거쳐 예열된 후(400°C) 분산판(7개의 bubble cap, 4 holes $\times 2.5\text{ mm-ID.}$)을 거쳐 공급되고, 수증기는 수증기 발생장치로부터 밸브와 예열기를 통해 가스화로로 주입된다. 석탄주입부는 separator 상부에 설치되었으며, 석탄호퍼와 가변속 screw feeder로 구성된다. 반응기의 예열, 반응기의 가열 및 온도 제어를 위해서 외벽에 총 30 kW 의 칸탈선 전열기를 설치하여 석탄의 착화온도 (500°C)까지 가열하였고, 반응기 외벽으로부터의 열손실을 줄이기 위하여 단열재인 kao-wool을 사용하여 두께 0.15 m 로 단열하였다. 반응기로부터 비산되는 입자를 포집하기 위해 사이클론을 설치하였고, 사이클론을 통과한 생성가스는 settler 와 I.D. fan을 통해 밖으로 배출된다. 정상상태로부터 얻어진 생성가스는 연소가스분석기와 GC로 분석하였다.

Downer 가스화로내의 압력 및 온도분포를 측정하기 위하여 연소로의 벽면에 분산판으로부터 $0.1, 0.3, 0.7, 2.1, 3.7, 5.1, 6.5, 8.1\text{ m}$ 인 지점에 압력탭을 $0.2, 0.8, 1.3, 2.6, 4.4, 6.4, 8.4\text{ m}$ 인 지점에 K-type 열전대를 설치하였고, cyclone, 가스화로, standpipe, loop-seal 등에 압력탭과 K-type 열전대를 설치하였다. 압력은 manometer 와 pressure transmitter (dwyer 603A, cole-parmer T30)를 이용하여 측정하였고 온도와 함께 data acquisition system을 통해 computer에 저장하였다. 석탄은 2 mm 이하의 입도 ($d_p = 450\text{ }\mu\text{m}$)를 가진 중국 선화탄을 사용하였고, 그 특성을 Table. 1에 나타내었다. 총물질로는 모래($d_p = 237\text{ }\mu\text{m}$)를 사용하였다.

Table. 1 Typical analysis of coal

Proximate analysis	wt. %	Ultimate analysis	wt. %
Moisture	4.84	C	73.16
Volatile Matter	32.63	H	4.55
Fixed Carbon	5.46	O	10.10
Ash	57.07	N	1.60
Heating Value (kcal/kg)	7015	S	0.29

결과 및 고찰

반응온도는 가스화반응의 주 반응인 $\text{C} \cdot \text{H}_2\text{O}$, $\text{C} \cdot \text{CO}_2$ 반응이 흡열반응이므로 가스화기의 성능에 영향을 미치는 가장 중요한 변수이다. 반응온도는 높을수록 좋으나, 반응기의 재질, 회분의 융점, NO_x 와 같은 오염 물질의 생성이 반응온도를 제한한다[4, 5]. 본 연구에서는 회분의 융점 및 재질상의 문제로 연소로의 온도를 최대 900°C 로 제한하였다. 반응기의 온도가 높아질수록 외부로의 열 손실이 증가해 반응온도가 감소하므로 electric heater 에 의한 외부가열로 반응기의 온도를 일정하게 유지하였다.

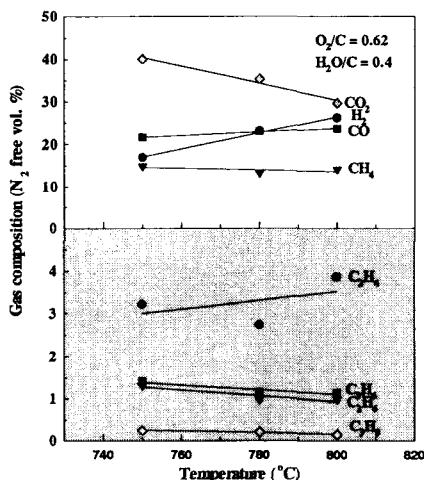


Fig. 2 Effect of reaction temperature on the product gas composition.

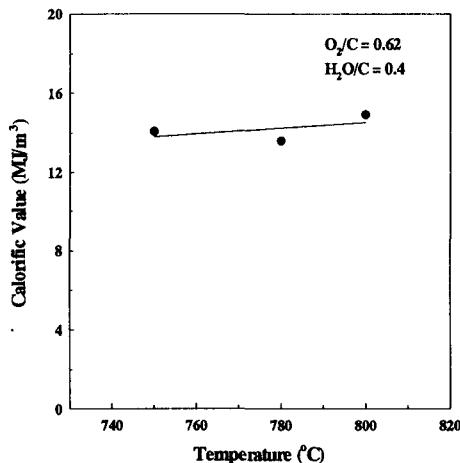


Fig. 3 Effect of reaction temperature on the calorific value of the product gas

$\text{O}_2/\text{C} = 0.62$ (riser) 이고 $\text{H}_2\text{O}/\text{C} = 0.4$ (downer) 일 때, 반응온도 변화에 따른 downer에서의 생성가스 조성(N_2 free) 을 Fig. 2에 나타내었다. 그림에서 보듯이, 생성가스는 $17.0\text{-}26.3\%$ H_2 , $21.7\text{-}23.7\%$ CO , $40.1\text{-}29.8\%$ CO_2 , $15.0\text{-}13.2\%$ CH_4 , $2.7\text{-}3.9\%$ C_2H_2 , $1.3\text{-}1.0\%$ C_2H_6 , $1.4\text{-}1.1\%$ C_3H_6 , $0.25\text{-}0.15\%$ C_3H_8 의 조성을 갖는다. 반응온도가 750 에서 $800\text{ }^{\circ}\text{C}$ 로 증가함에 따라 H_2 와 CO 의 조성은 증가하나, CH_4 , CO_2 , N_2 , 탄화수소의 조성은 감소하는 경향을 보이고 있다[4-7]. 이는 온도의 증가에 따라 흡열반응인 석탄 촉-수증기 반응의 증가 및 열분해 활성화로 H_2 와 CO 는 증가하나, 열분해에 의해 생성되는 CH_4 및 탄화수소의 경우 수율은 온도가 증가함에 따라 증가하나 다른 가스의 수율 증대와 cracking 반응으로 조성은 감소하기 때문이다. 고체의 재순환을 위하여 loopseal로 주입하는 공기에 의한 연소반응으로 CO_2 의 농도가 상대적으로 높은 값을 보였다.

반응온도 변화에 따른 생성가스발열량을 Fig. 3에 나타내었다. 생성가스 발열량은 $13.6\text{-}14.9\text{ MJ}/\text{m}^3$ 로 H_2 와 CO 조성의 증가로 증가할 것으로 예상되나 H_2 와 CO 보다 발열량이 높은 탄화수소 (CH_4 , C_2H_4 , C_2H_6 , C_3H_6 cpds.)의 감소로 거의 일정한 값을 보였다.

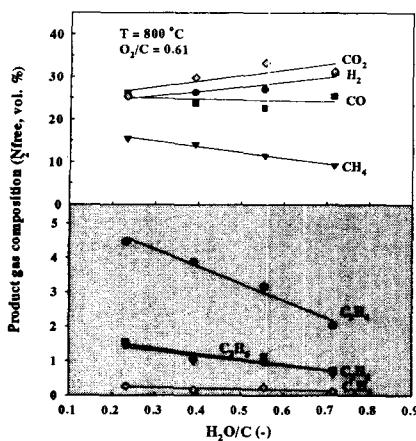


Fig. 4 Effect of H₂O/C ratio on the product gas composition.

참고문헌

- Bang, J. H., Kim, Y. J. and Kim, S. D.: "Radial Gas Mixing Characteristics in a Downer Reactor", Korean J. of Chem. Eng., 16, 624 (1999).
- Zhu, J. X., Yu, Z. Q., Jin, Y., Grace, J. R. and Issangya, A.: "Cocurrent Downflow Circulating Fluidized Bed (Downer) Reactors - A State of the Art Review", Can. J. Chem. Eng., 73, 662(1995).
- Kim, Y. J., Bang, J. H. and Kim, S. D.: "Bed-to-Wall Heat Transfer in a Downer Reactor", Can. J. Chem. Eng., 77, 207(1999).
- Kim, Y. J., Lee, J. M. and Kim, S. D.: "Coal gasification characteristics in an internally circulating fluidized bed with draught tube", Fuel, 76, 1067 (1997).
- Lee, J. M., Kim, Y. J. and Kim, S. D.: "Catalytic coal gasification in an internally circulating fluidized bed reactor with draft tube", Applied Thermal Eng., 18, 1013 (1998).
- Foong, S. K., Lim, C. J. and Watkinson, A. P.: "Coal gasification in a spouted bed", Can. J. Chem. Eng., 58, 84 (1980).
- Kikuchi, K., Suzuki, A., Mochizuki, T., Endo, S., Imai, E. and Tanji, Y.: "Ash-agglomerating gasification of coal in a spouted bed reactor", Fuel, 64, 368 (1985).