

## 석탄 합성가스 제조 및 화학원료(DME) 전환설비의 운전 특성

정 석 우<sup>1)</sup>, 김 문 현<sup>2)</sup>, 이 승 종<sup>3)</sup>, 윤 응 승<sup>4)</sup>

### Operation Characteristics of Coal Syngas Production and DME Conversion Facilities

Seokwoo Chung, Munhyun Kim, Seungjong Lee, Yongseung Yun

**Key words** : Coal Gasification(석탄 가스화), Syngas(합성가스), DME(Dimethyl Ether), Particulate Removal(집진), Desulfurization(탈황), Carbon Conversion Efficiency(탄소전환율), Compressor(압축기), Cold Gas Efficiency(냉가스효율)

**Abstract** : In this study, the syngas producing facility that consists of pulverized coal feeding/gasification and hot gas clean-up system was tested for Indonesian subbituminous coal. And the DME conversion facilities have been developed and tested for converting syngas to DME by reactions with catalysts. So, the entrained-bed slagging type pilot scale coal gasifier was operated normally in the temperature range of 1,400~1,450°C, 7~8 kg/cm<sup>2</sup> pressure. And Roto middle coal produced syngas that has a composition of 36~38% CO, 14~16% H<sub>2</sub>, and 5~8% CO<sub>2</sub>. Particulates in syngas were 99.8% removed by metal filters. H<sub>2</sub>S composition in syngas was also desulfurized by the Fe chelate system to yield less than 0.1 ppm level. When the clean syngas 70~100 Nm<sup>3</sup>/h was provided to DME conversion reactor, normally operated in the temperature range of 230~260°C and 60 kg/cm<sup>2</sup> pressure, 4.5% DME was yielded.

#### 1. 서 론

석탄의 가스화 기술은 차세대 고효율 청정 발전의 기본이 되는 기술로서 이미 미국, 유럽 및 일본 등의 선진국에서는 상용화 단계의 연구가 활발히 진행중에 있으며, 최근에는 가스화 반응에 의해 생성되는 CO와 H<sub>2</sub>가 주성분인 합성가스를 이용하여 차세대 대체에너지원으로 DME(Dimethyl Ether)를 생산하고자 하는 연구가 세계적으로 활발히 진행되고 있다.

이러한 DME는 물리적인 성질이 LPG나 프로판과 유사하여 동일한 방법으로 저장 및 운송이 가능하여 수송에너지로서 각광받고 있고, 발열량도 메탄에 비해 높고 황 함량이 없어 LNG나 디젤의 대체연료로 개발되고 있으며, 다른 연료에 비해 환경오염에 미치는 영향이 적은 차세대 청정에너지로서 국내외 같이 LPG 인프라가 잘 갖추어진 곳에서는 LPG 대체가스 또는 디젤차량 연료로 사용이 가능하나 아직까지 그 생산 수요량은 극히 적은 상황이다. 그리고, 현재 연료로 사용되고 있는 디젤, LPG, 가솔린, 천연가스와 DME의 지구

온난화에 영향에 미치는 배출 가스를 상대적으로 비교한 결과, DME 연료가 다른 연료에 비해 지구 환경 보전성에 우수한 것으로 밝혀졌다.

따라서, 본 연구에서는 pilot급 석탄 가스화 시스템으로부터 제조된 석탄 합성가스를 이용하여 발전용, 수송용 뿐만아니라 가정용 연료로도 사용이 가능한 DME를 생산할 수 있는 전환공정 개발을 위하여, 아역청단 계열인 인도네시아

- 1) 고등기술연구원 플랜트엔지니어링센터  
E-mail : swchung@iae.re.kr  
Tel : (031)219-1946 Fax : (031)219-2306
- 2) 고등기술연구원 플랜트엔지니어링센터  
E-mail : kmunhyun@iae.re.kr  
Tel : (031)219-2687 Fax : (031)219-2306
- 3) 고등기술연구원 플랜트엔지니어링센터  
E-mail : sjlee@iae.re.kr  
Tel : (031)219-2670 Fax : (031)216-9125
- 4) 고등기술연구원 플랜트엔지니어링센터  
E-mail : ysyun@iae.re.kr  
Tel : (031)219-2677 Fax : (031)216-9125

Roto Middle탄을 대상으로 양질의 합성가스를 안정적으로 제조하고, 제조된 합성가스를 이용하여 DME로 전환시키는 시험을 진행하였다.

## 2. 실험장치 및 방법

본 연구에 사용된 시스템은 크게 석탄의 가스화 반응을 통하여 CO와 H<sub>2</sub>가 주성분인 합성가스를 제조하기 위한 석탄 합성가스 제조설비, 합성가스 중에 포함된 분진 및 부식성이 강한 COS 및 H<sub>2</sub>S 성분을 제거하기 위한 정제설비, 청정 합성가스를 이용하여 DME를 생산하기 위한 화학원료(DME) 전환설비로 구성된다.

### 2.1 석탄 합성가스 제조설비

석탄 합성가스 제조설비는 공급되는 미분탄을 산소와 고온/고압의 조건에서 가스화 반응을 통하여 합성가스를 생산하기 위한 설비로서, 본 연구에서 사용한 석탄 합성가스 제조설비는 크게 대상탄을 74 $\mu$ m 크기로 분쇄하고 건조하는 석탄 분쇄/건조장치, 분쇄된 미분탄을 기류수송 방식에 의해 고온/고압으로 운전되는 석탄 가스화에 공급하는 고압 미분탄공급장치, 미분탄과 산소의 가스화 반응에 의해 합성가스를 제조하고 불연분은 용융시켜 슬액으로 배출하는 석탄 가스화기, 가스화기에서 배출되는 고온의 합성가스를 정제설비의 처리온도까지 낮추기 위한 합성가스 냉각장치 등으로 구성되며, Fig. 1은 이러한 pilot급 석탄 가스화기 시스템의 개략적인 공정 구성도를 나타낸 것이다.

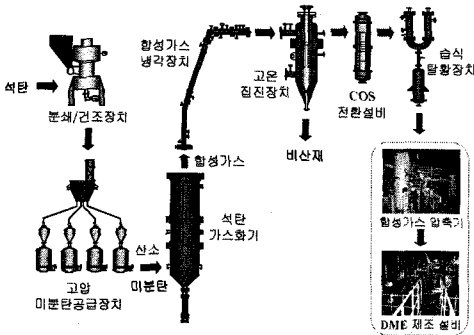


Fig. 1 Process flow diagram of pilot scale coal gasification and DME conversion system

석탄 합성가스 제조 실험은 Fig. 1에서 습식 탈황장치까지 운전압력으로 가압이 완료된 상태에서 미분탄과 산소를 공급하기 시작하면서 진행되는데, 정상운전 중 합성가스 제조설비의 운전압력은 습식 탈황장치 후단에 설치된 압력조절밸브를 이용하여 조절되며, 가스화기 내부의 운전온도는 미분탄과 산소의 공급량 조절을 통하여 석탄 회분의 용융온도 이상 조건으로 유지되는데, Table 1은 이러한 석탄 가스화기의 운전조건을 나타낸 것이다.

Table 1 Operating conditions of pilot scale coal gasifier

Coal	ROTO Middle
Operating pressure	7-8 kg/cm <sup>2</sup>
Operating temperature	1,400-1,450 °C
Coal feed rate	40 kg/h
Oxygen feed rate	22-26 Nm <sup>3</sup> /h
Nitrogen feed rate	35-40 Nm <sup>3</sup> /h
Feed oxygen temperature	250-300 °C

### 2.2 합성가스 정제설비

합성가스 정제설비는 석탄 합성가스 중에 포함된 불순물인 분진 및 부식성이 매우 강하며 DME 전환 촉매에 영향을 미치는 COS와 H<sub>2</sub>S 가스를 제거하기 위한 설비로서, Fig. 1에 나타내었듯이 합성가스 냉각장치를 통과한 합성가스는 먼저 금속필터 또는 세라믹필터가 12개 장착된 고온집진장치를 통과하면서 분진이 제거된다.

그리고, 분진이 제거된 합성가스는 COS 정제설비에 장착된 알루미늄(Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) 계열의 촉매층을 통과하면서 가수분해 반응이 일어나게 되고 이에 따라 합성가스 중 COS 성분이 H<sub>2</sub>O로 전환된다. 합성가스 정제설비의 마지막 단계인 습식 탈황장치에서는 유입되는 합성가스에 철킬레이트 용액을 노즐을 통하여 분사함으로써 H<sub>2</sub>S 가스를 순수한 황 성분으로 전환시키면서 제거하도록 구성되어 있다.

### 2.3 화학원료 전환설비

화학원료 전환설비는 정제설비를 통과한 CO와 H<sub>2</sub>가 주성분인 청정 합성가스를 고압으로 다시 압축한 후 일정한 온도/압력 조건에서 촉매와의 반응에 의해 DME로 전환시키기 위한 설비로서, Fig. 1에 나타낸 바와같이 먼저 왕복동식 합성가스 압축기를 이용하여 상압으로 정제설비에서 배출되는 석탄 합성가스를 90 kg/cm<sup>2</sup>까지 가압하게 된다.

그리고, 가압된 합성가스는 압축기 후단에 설치된 압력조절밸브에 의해 60 kg/cm<sup>2</sup>으로 압력이 조절되면서 DME 전환 반응기로 공급되어 내부에 장착된 Cu/ZnO/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> + r-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 촉매층을 통과하게 되는데, 이때 촉매와 합성가스가 접촉하며 합성가스의 DME이 전환이 진행된다. Table 2는 이러한 DME 전환 반응기의 정상적인 운전조건을 나타낸 것이다.

Table 2 Operating condition of DME conversion reactor

Syngas flow rate	80-100 Nm <sup>3</sup> /h
Feed syngas temperature	100 °C
Operating temperature	230-260 °C
Operating Pressure	60 kg/cm <sup>2</sup>
Feed water temperature	220 °C

### 3. 실험결과 및 토의

#### 3.1 석탄 합성가스 제조 실험결과

인도네시아 ROTO Middle탄을 대상으로 양질의 석탄 합성가스 제조를 위한 실험결과는 Fig. 2에 나타낸 바와 같은데, 이 결과에 의하면 정상운전 중 가스화기 압력은 7-8 kg/cm<sup>2</sup> 범위에서 일정하게 유지되었고, 온도는 1,400-1,470℃로 운전되었으며, 기류수송 방식에 의해 미분탄을 40 kg/h 공급하는 조건에서 합성가스는 100-120 Nm<sup>3</sup>/h가 제조되었음을 알 수 있다.

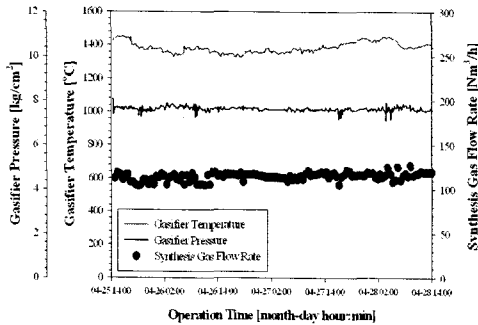


Fig. 2 Operation profile of pilot scale coal gasifier

Fig. 3은 본 연구의 대상이 되는 pilot급 석탄 가스화기 시스템을 이용하여 제조한 합성가스의 조성을 나타낸 그래프로서, ROTO Middle탄을 이용하여 Table 1의 운전조건으로 가스화기 시스템 정상운전시 부피비로 CO 36-40%, H<sub>2</sub> 14-16%, CO<sub>2</sub> 5-8% 범위에서 안정적으로 합성가스를 제조할 수 있었다. 이 결과에서 합성가스의 조성을 제외한 나머지는 거의 대부분 미분탄의 기류수송에 사용되는 이송용 질소 가스이다. 그리고, 석탄 가스화기의 성능을 나타내는 가스화 탄소전환율과 냉각수효율은 Fig. 4에 나타내었듯이 운전기간 동안 각각 평균적으로 96-99%, 62-67% 정도임을 확인할 수 있었다.

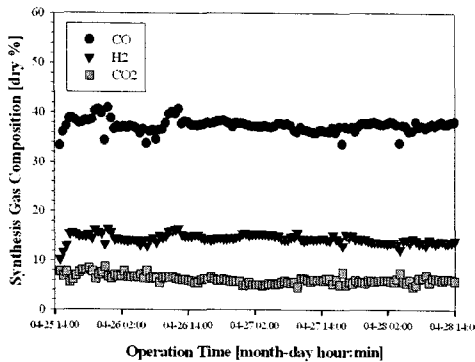


Fig. 3 Syngas compositions produced from the pilot scale coal gasification system

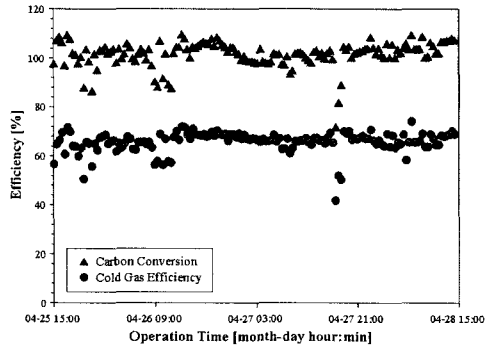


Fig. 4 Carbon conversion efficiency and cold gas efficiency

#### 3.2 합성가스 정제 실험결과

본 연구에서는 가스화기에서 제조된 석탄 합성가스에 포함된 분진입자 제거를 위하여 12개의 금속필터를 고온집진장치 내부에 장착하여 정제 실험을 진행하였는데, 집진필터에 달라붙는 입자의 제거를 위한 역세정 압력 15 kg/cm<sup>2</sup>, 집진장치 입구온도 250℃, 집진장치 출구온도 200℃, 합성가스 유량 100 Nm<sup>3</sup>/h으로 운전되는 조건에서 Fig. 5에서 알 수 있듯이 집진필터의 차압은 40-60 cmAq. 범위에서 일정하게 유지되었다. 그리고, 집진필터의 성능을 측정하기 위하여 이러한 조건에서 운전되는 집진필터 전후단의 분진농도를 측정된 결과 집진필터 전단 2,883 mg/Nm<sup>3</sup>, 집진필터 후단 4 mg/Nm<sup>3</sup> 정도로 측정됨으로써 사용한 금속필터의 집진효율은 99.8% 이상인 것으로 측정되었다.

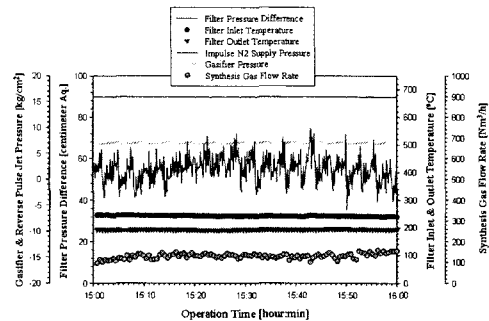


Fig. 5 Operation profile of high temperature particulate removal system

그리고, 이렇게 분진이 제거된 합성가스를 3단으로 구성된 습식 탈황설비에 공급하면서 철킬레이트 수용액을 분사하여 합성가스 중에 포함된 H<sub>2</sub>S 성분 제거시험을 실시하였는데, 실험결과 Fig. 6에서 알 수 있듯이 습식 탈황설비 전단에서 200-350 ppm 정도이던 H<sub>2</sub>S 가스의 농도가 탈황설비 후단에서는 0.1 ppm 이하로 감소함으로써 습식 탈황설비에서의 탈황효율이 99.9% 이상임을 확인할 수 있었다.

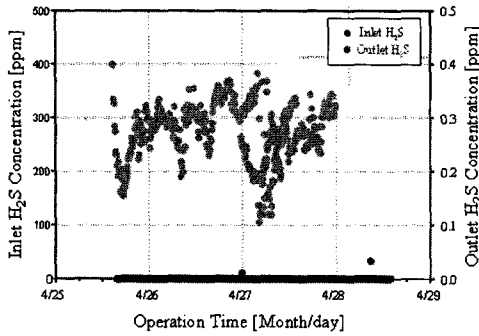


Fig. 6 H<sub>2</sub>S Concentration before and after low temperature desulfurization system

### 3.3 화학원료 전환 실험결과

본진과 황성분의 가스가 제거된 청정 합성가스는 합성가스 압축기를 이용하여 90 kg/cm<sup>2</sup>까지 가압한 후, DME 전환 반응을 위하여 촉매층이 장착된 DME 전환 반응기에 공급하였는데, Fig. 7에 나타내었듯이 DME 전환 반응기가 65 kg/cm<sup>2</sup>의 압력으로 운전되는 상태에서 압축기로부터 합성가스는 70~100 Nm<sup>3</sup>/h 범위에서 공급이 진행되었다.

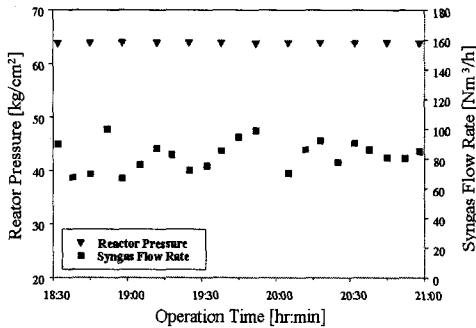


Fig. 7 Operating Pressure & syngas flow rate of DME conversion reactor

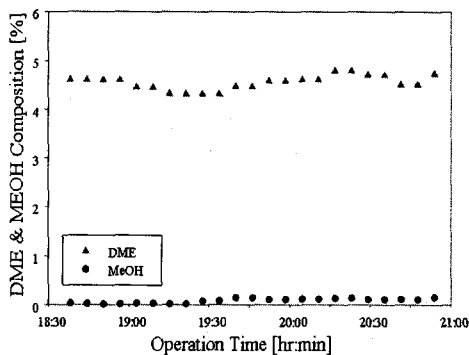


Fig. 8 Profiles of DME & MeOH Composition

이러한 조건에서 청정 석탄 합성가스를 공급하며 DME 전환 실험을 진행한 결과, Fig. 8에서 알 수 있듯이 약 4.5%의 DME와 미량의 메탄올을 생산할 수 있었다. 그리고, DME는 합성가스 중 CO와 H<sub>2</sub>의 반응에 의해 생성되므로 4.5%의 수치는 초기 DME 전환 반응기로 유입되는 합성가스 중 H<sub>2</sub> 가스의 농도를 기준으로 85% 이상의 DME 전환효율을 달성하였음을 나타내는 것이다.

## 4. 결론

본 연구에서는 화학원료(DME) 생산을 위하여 인도네시아 ROTO Middle탄을 대상으로 pilot급 합성가스 제조설비를 이용하여 양질의 합성가스를 안정적으로 제조하는 실험을 진행하였는데, 그 결과 가스화기 운전온도 1400~1450℃, 운전압력 7~8 kg/cm<sup>2</sup> 조건에서 CO 36~40%, H<sub>2</sub> 14~16% 조성(CO:H<sub>2</sub> = 2.5:1)의 합성가스를 제조하였으며, 합성가스 중에 포함된 본진 및 H<sub>2</sub>S 가스 제거를 위한 metal fibre 방식의 금속필터 적용 고온집진장치 및 철킬레이트를 분사하는 습식 탈황장치를 사용하여 각각 99.8%, 99.9% 이상의 제거효율을 달성하였다.

그리고, 이렇게 정제된 청정 합성가스를 이용하여 DME 전환 반응기 운전온도 230~260℃, 운전압력 60~65 kg/cm<sup>2</sup> 조건에서 합성가스 70~100 Nm<sup>3</sup>/h를 공급하며 DME 전환실험을 진행한 결과, 약 4.5% DME를 생산함으로써 합성가스 중 H<sub>2</sub> 성분의 농도를 기준으로 85% 이상의 가스상 DME 전환효율을 달성할 수 있었다.

## 후기

본 연구는 산업자원부 산하 에너지관리공단 신·재생에너지센터에서 지원하는 "석탄 가스화기로부터 발생된 합성가스를 사용한 화학원료 전환기술 개발" 과제에 일환으로 수행되었습니다. 지원에 감사드립니다.

## References

- [1] Lee, S.J., Yoo, Y.D., Yun, Y., "Development of DME Synthetic Technologies in Pilot-scale Coal Gasification System", 3rd Asian DME Conference, p.227-233, 2006
- [2] 산업자원부, 2006, "석탄가스화 합성가스 제조공정 및 발전시스템 기술 개발", 완료보고서 2003-N-C002-P-0-000
- [3] Yun, Y.S., Yoo, Y.D., 2001, "Performance of a Pilot-scale Gasifier for Indonesian Baiduri Coal", Korean J. of Chem. Eng., 18(5), p.679