

습식 및 건식 석탄가스화공정에 대한 비교 연구

심 현민¹⁾, 왕 홍약, 정 수용, 김 형택²⁾

The Comparative Study on the Gasification Process between Coal Water Slurry and Dry Pulverized Coal

Hyun-min Shim¹⁾, Hong-yue Wang, Su-yong Jung and Hyung-taek Kim²⁾

Key words : IGCC, Gasifier, Coal Water Slurry, Dry Coal, ASPEN

Abstract : 기존의 미분탄 화력발전을 대체할 수 있는 차기 주자인 가스화복합발전(Integrated Gasification Combined Cycle) 기술은 단순히 열과 전기를 얻는데 그치지 않고 CO₂ 저감뿐만 아니라 다양한 형태의 2차 에너지원과 화학원료를 생산할 수 있는 기술이다. 상용화 운전 중인 기존의 IGCC 플랜트는 석탄 공급에 있어 건조된 미분탄(dry pulverized coal) 형태로 공급하는 건식 형태와 석탄슬러리(Coal water slurry)의 액상으로 공급하는 습식 형태로 대별되고 있다. 본 연구에서는 ASPEN plus를 이용하여 상용화 IGCC 플랜트에 대한 기본 모델을 구축하였으며, 산지별로 대상 탄종을 illinois #6(미국), Shenhua(중국), Drayton(호주)로 선정하여 가스화공정에 대한 성능을 해석하였다. 동일한 발전 출력을 얻고자 하였을 때, 석탄의 공급방식에 따라 필요한 석탄과 유틸리티 공급량과 가스화기 전·후단에서의 운전특성과 생성되는 합성가스(syngas) 조성, 냉가스(cold gas) 효율 및 탄소 전환율을 통해 각 case에 대한 플랜트 특성을 비교하였다.

Nomenclature

AFT : ash fusion temperature (°C)
ASU : air separation unit
CWS : coal water slurry
DC : dried coal
DR : drayton coal
HHV : high heating value (MJ/kg)
IL : illinois #6 coal
LHV : low heating value (MJ/kg)
PC : pulverized coal
SH : shenhua coal

Subscript

D : dry
E : experimental
W : wet
S : simulation

1. Introduction

지속되는 고유가와 반세기에 걸친 화석연료의 무분별한 사용으로 인한 지구 온난화는 이상 기

후를 야기 시키면서 신재생에너지의 개발과 보급이 날로 가속화되고 있다. 이 같은 움직임에 기존의 화석연료를 이용한 발전에 있어서도 환경 친화적인 기술이 도입되고 있으며, 그 대표적인 사례로 가스화(gasification)기술을 이용한 복합발전을 꼽을 수 있다. 가스화공정은 Fig.1과 같이 스팀과 전력생산뿐만 아니라 후단공정의 옵션에 따라 수소생산, 수송연료(DME, MTG) 그리고 다양한 화학원료를 생산할 수 있는 기술이다. 그리고 여기에서 부산물로 발생하는 회재(ash)는 슬래그(slag)로 배출시켜 폐기물을 안전하고 그 발생량을 저감시킬 수 있으며, 각종 대기오염의 배출원(SO_x, NO_x, PM etc)의 저감을 더 낮은 비용으로 기존 기술대비 40~90%로 끌어 올릴 수 있다. 또한, CO₂를 포획하여 격리시키는 공정을 추가할 경우 굴뚝 없는 플랜트를 실현 가능케 하는 청정기술이라 할 수 있다.

가스화 공정에 사용되는 가스화기는 고정층,

- 1) 아주대학교 에너지시스템 학부
E-mail : trami77@ajou.ac.kr
Tel : (031)219-2972 Fax : (031)219-2969
- 2) 아주대학교 에너지시스템 학부
E-mail : htkim@ajou.ac.kr
Tel : (031)219-2321 Fax : (031)219-2969

유동층, 분류층 등 다양한 형태로 개발되어 왔지만, 전 세계적으로 현재 상용화 운전되고 있는 가스화기는 대부분이 분류층 형태로 건조되었으며 GE Texaco, Shell, ConocoPhillips, Mitsubishi와 같은 글로벌 에너지 회사에서 그 원천기술을 보유하고 IGCC 플랜트시장을 선도하고 있다. 각 회사마다 나름대로 가스화기의 특징이 있겠지만 석탄을 어떻게 공급하느냐에 따라 즉, 건식과 습식으로 그 특징을 구분 지을 수도 있다.

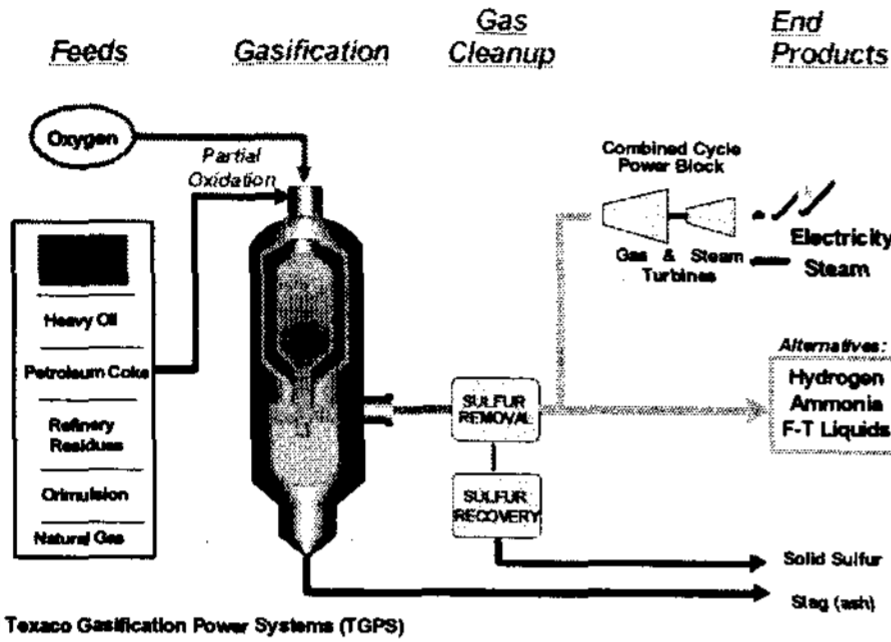


Fig. 1 가스화 공정 기술과 그 응용범위

2. Simulation of IGCC Power Plant

건식과 습식형태의 석탄 가스화복합발전 플랜트의 특성을 파악하기 위해 300 MW급의 동일한 발전량을 얻고자 하였을 때 소요되는 석탄, 산화제(oxidant) 및 기타 유틸리티와 가스화과정에서 생성되는 합성가스의 조성을 통해 각 방식에 대한 가스화기의 냉가스 효율(cold gas efficiency)과 탄소 전환율(carbon conversion)을 비교하였다. 본 연구에서 시뮬레이션 범위는 석탄 전처리에서 가스화공정에 초점을 두었다.

2.1 Initial Conditions & Assumptions

본 연구에서 고려한 석탄 선정에 있어서는 산지 그리고 석탄의 등급(rank)을 고려하여 선별하였으며, Table 1과 같이 공업 및 원소 분석 값과 회용점 온도를 고려하여 성능 해석에 반영하였다.

Table 1. 탄 종에 따른 공업, 원소분석 및 발열량

Coal		Illinois#6	Shenhua	Drayton
Proximate Analysis (wt%)	M	11.12	10.62	8.7
	V.M	34.99	28.45	31.9
	F.C	44.19	55.09	47
	Ash	9.7	5.84	12.4
Ultimate Analysis (dry, wt%)	C	71.72	72.6	72.13
	H	5.06	4.11	5.06
	O	8.08	15.49	6.74
	N	1.41	1.0	1.48
	S	2.82	0.27	1.02
	Ash	10.91	6.53	13.57
Heating value (kcal/kg)		6475	6785	6425
AFT(°C)		1060	1165	1300

각 방식에 대한 가스화공정의 공급조건은 Table 2와 같이 공급된다고 설정하였다¹⁻²⁾.

Table 2. 건식 및 습식 IGCC 플랜트 석탄 공급조건

Flow rates (tons/hr)	DC feed	CWS feed
Raw Coal	98.4	111.1
Pulverized Coal	87.5	111.1
Water	-	33.5% of CWS
Oxygen(95%)	86% of PC	61% of CWS
Nitrogen	7.7% of PC	-

가스화공정의 운전조건은 건식 가스화기의 경우 운전압력과 온도를 각각 28 kg/cm², 1470°C로, 습식의 경우 42kg/cm², 1370°C의 조건으로 운전된다고 가정하였다.

2.2 Coal Pre-Treatment Process

석탄이 가스화기로 공급되어 고체연료가 가스로 열분해 및 가스화과정이 이루어지기 위해서는 미세입자로 분쇄되어야 한다. 건식 가스화에 공급되는 석탄의 경우 그 입도(particle size)를 평균 74 μm로 분쇄한 뒤 원활한 분체이송 공급을 위해 미분탄 내에 있는 수분을 95°C로 가열된 질소로 건조시킨 뒤 공기분리설비(ASU)에서 분리된 질소를 이송가스로 활용한다.

습식의 경우 서로 다른 극성을 갖는 물과 혼합이 잘 이뤄지도록 석탄의 평균 입자는 10~20 μm으로 유지하며, 74 μm 미만의 입도분포는 80% 이상이 되도록 분쇄한다³⁾. 하지만 석탄슬러리(CWS)의 농도를 높이면 슬러리의 점도가 커지는 경향이 있으며, 이것은 곧 가스화기로 주입되는 CWS의 이송에 영향을 미치기 때문에 CWS에서 미분탄의 농도와 적정 분포를 갖는 입도를 고려해야 한다. Fig.2는 건식과 습식가스화기에 적용되는 석탄 전처리공정에 대한 흐름도를 도시한 것이다.

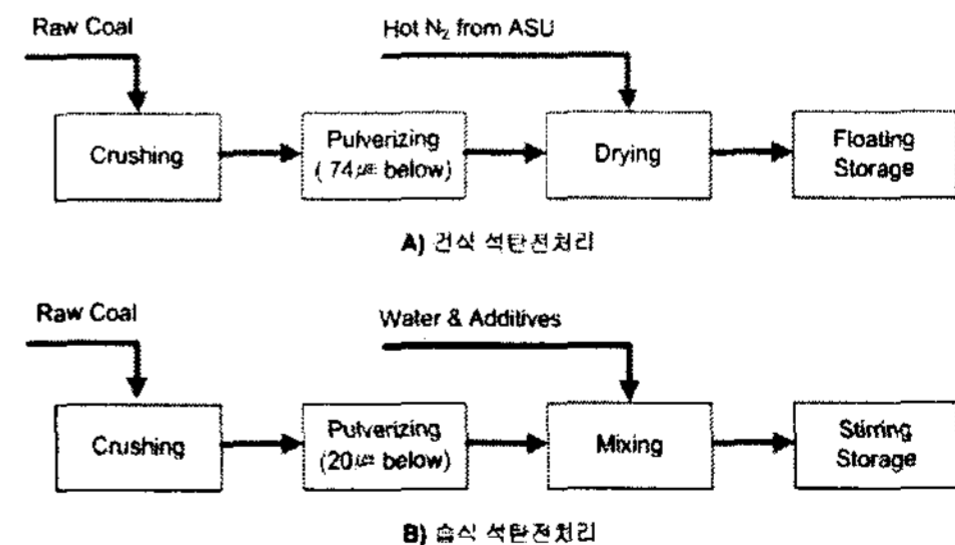
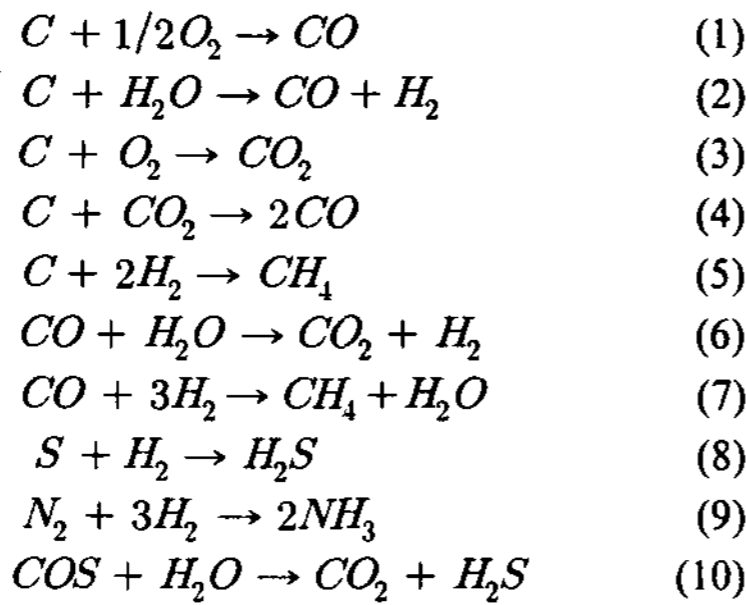


Fig. 2 건식 및 습식 석탄 전처리공정 흐름도

2.3 Gasification Process

가스화 공정의 해석에서 가스화기 모델은 고체의 미분탄 입자가 휘발분(volatil matter)으로 열분해되는 열분해(thermal decomposition)과정과 탄소입자와 기타 유기물의 연소과정에 의해 생성되는 가스화(gasification)과정으로 나누어 Fig.3과 같이 해석에 반영하였다. 가스화기 내에서 일어나는 주요 반응은 식(1)~(10)과 같다고 반영하였다⁴⁾.



가스화 과정에서 발생하는 발열량은 Dulong이 제안한 대상 탄종의 원소분석 수치를 이용한 계산식을 적용하였으며, 건조된 미분탄은 식(11)과 같다.

$$HHV(MJ/kg) = 34.91 \times C + 117.82 \times H - 10.34 \times O - 1.51 \times N + 10.05 \times S - 2.11 \times A \quad (11)$$

CWS는 물의 증발잠열을 고려해 식(12)에 반영하였다.

$$LHV(MJ/kg) = 34.91 \times C + 117.82 \times H - 10.34 \times O - 1.51 \times N + 10.05 \times S - 2.11 \times A - 21.98 \times H \quad (12)$$

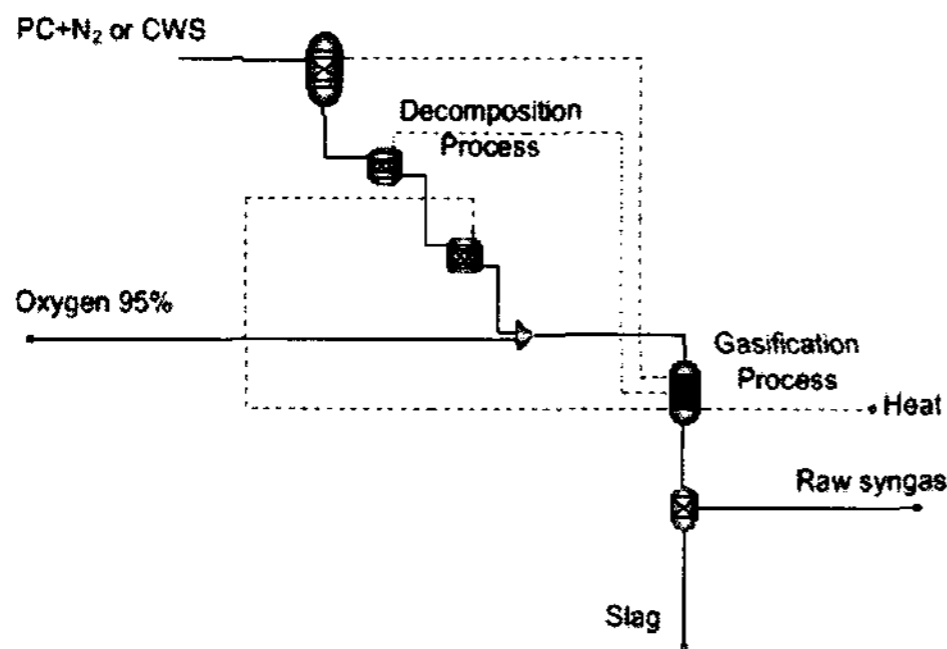


Fig. 3 가스화공정에 대한 ASPEN 모델

3. Results & Evaluation

300 MW급의 동일한 전력을 생산할 수 있다고 제한하였을 때, 공급방식에 따른 석탄 IGCC 플랜트의 운전결과를 확인하였다. 해석모델의 검증에 위해 Illinois #6 석탄을 대상으로 GE Texaco¹⁾와 Shell²⁾의 가스화 플랜트 운전 자료를 근거로 하여 비교 검증하였으며, 그 결과를 Fig.4에 도시하였다. 건식 가스화 모델인 IL-DS 모델에서는 실제 IL-DE와 비교했을 때 그 상대오차가 합성가스의 주성분인 CO와 H₂에 대해서 각각 3.65%, 7.92% 이었으며, 습식의 경우인 IL-WS에서는 CO와 H₂에 대해서 각각 6.0%, 16.4%의 오차를 보였다. 이렇게 오차가 크게 나타난 이유는 실제 모델에 대한 풍부한 운전 자료가 부족한 이유가 있기도 하지만 모델에 대한 최적화가 아직 이루어지지 않아 추후 연구에서 보완이 필요하다.

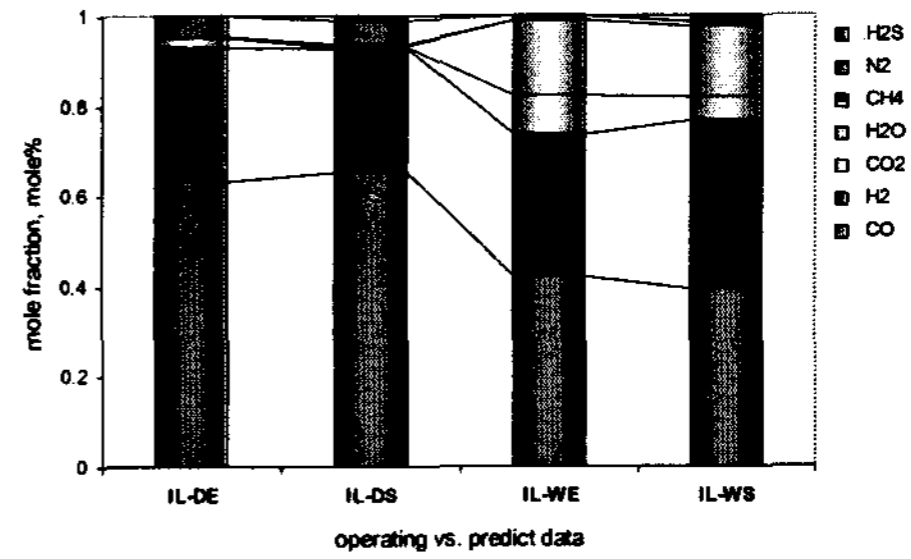


Fig. 4 공급방식별 실제운전 및 모사결과 비교 (IL-DE, WE: Shell & Texaco, IL-DS, WS: Simulation)

3.1 Coal Pre-Treatment

석탄 전처리 전후에 대한 입도분포를 Fig.5에 나타내었다. 3단계에 걸친 crushing과 pulverizing 모사에는 탄종이 갖는 HGI(hardgrove grindability index)를 적용한 BW(bond work)를 산출하였으며⁵⁾, 그 결과 건식과 습식 각각 74μm 이하 입도의 누적분포는 84%, 92%로 보였다.

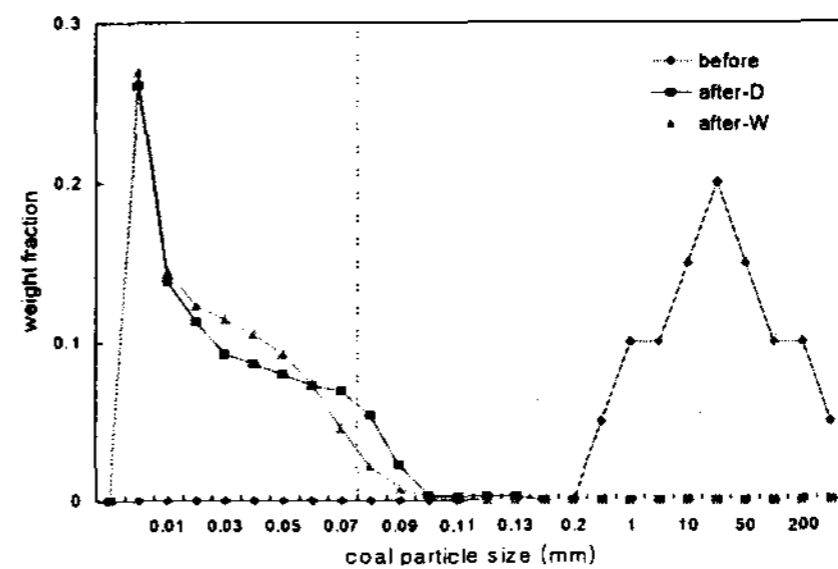


Fig. 5 미분화공정 전후에 대한 석탄 입도분포

3.2 Gasification process

모델에 반영된 3개의 대상 탄인 Illinois#6(US), Shenhua(CHN), Drayton(AUS)에 대해 건식과 습식 가스화반응을 거쳐 얻어진 합성가스의 조성과 CO/H₂ 함량비의 결과는 각각 Fig.6과 Fig.7에 도시한 바와 같다.

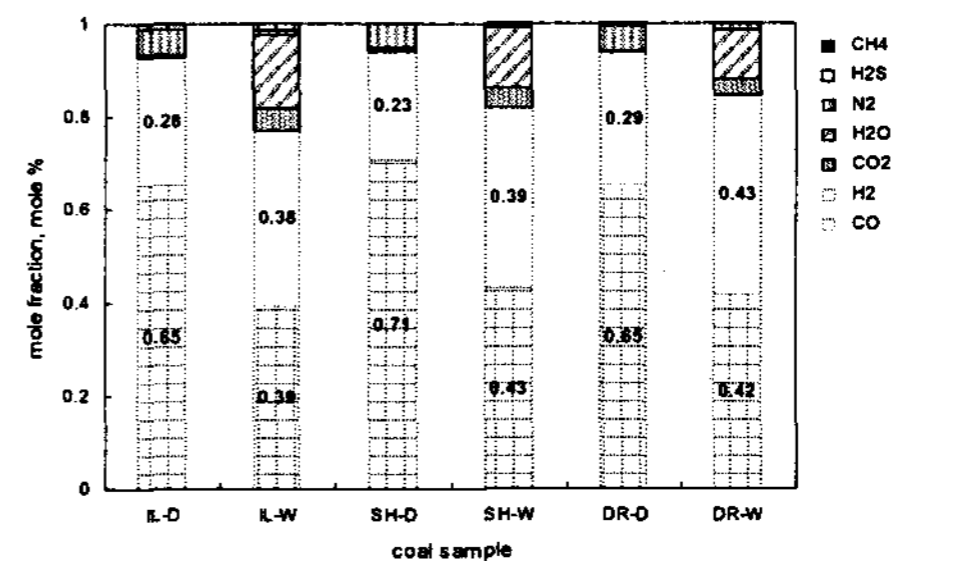


Fig. 6 탄종 및 공급방식에 따른 합성가스 조성

Fig.6의 결과에 의하면 건식 가스화에서 Illinois#6과 Drayton의 경우 합성가스 조성이 유사한 반면, Shenhua는 H₂의 몰 비는 낮고 CO의 몰 비가 높음

을 확인하였다. 이는 Shenhua의 산소 함량이 다른 두 석탄에 비해 약 2배 이상 높으며, 이것은 석탄 내 산소원자가 열분해와 가스화반응에 참여하면서 탄소와 빠르게 반응해 CO가 생성됨을 보여주고 있다. 습식에서는 CWS의 H₂O 성분이 식(2)와 식(6)에 참여하면서 H₂의 생성을 유도하여 CO/H₂ 물 비를 1 내외에서 유지해주고, 그 잉여 성분은 그대로 잔존하는 것으로 판단된다.

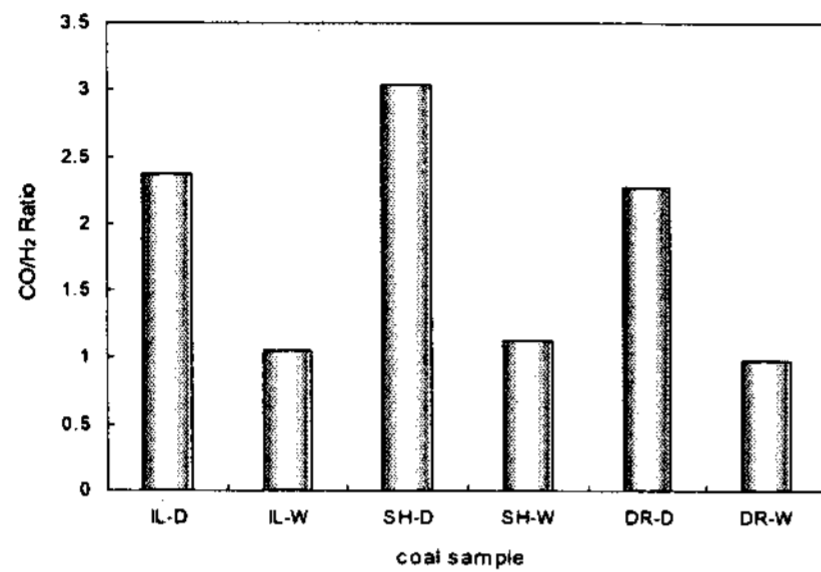


Fig. 7 탄종 및 공급방식에 따른 CO/H₂ ratio

Fig.7에 나타난 결과에 의하면 탄종이 갖는 고유의 원소함량과 발열량에 따라 CO/H₂의 물 비가 상이하게 나타났지만 건식에서는 약 2.3~3.0, 습식의 경우는 0.9~1.1 범위에서 물 비를 보였다.

가스화기의 성능을 평가하고 최적화하는데 있어서 지표로는 투입원료의 발열량 대비 생성가스의 발열량, 즉 냉가스 효율과 투입원료의 탄소량 대비 생성가스 중 잔존하는 탄소량의 비율인 탄소 전환율로 나타낸다⁶⁾. 하지만 이 지표는 운전조건에 의해서 변동이 생길 수 있다. 그 결과는 Fig.8에 나타내었으며, 건식은 71~96.5%, 습식에서는 47~61% 범위에서 냉가스 효율을 보였다.

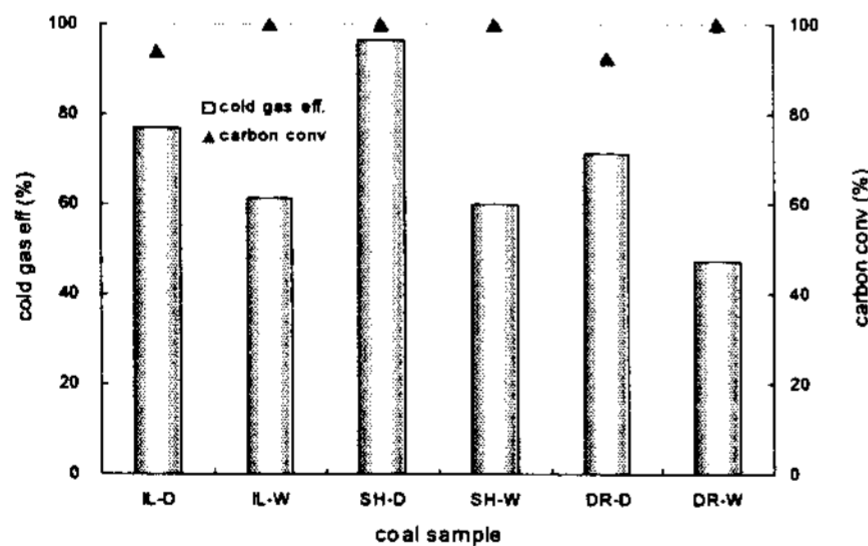


Fig. 8 탄종 및 공급방식에 따른 냉가스 효율 및 탄소 전환율

Illinois#6와 Drayton을 건식 가스화 이후 탄소 전환율은 약 93%를 보인 반면, Shenhua의 경우와 습식 가스화를 적용한 모든 탄종에 대해서는 합성가스 내에 잔존 탄소량이 없는 것으로 해석되었다.

4. Conclusions

본 연구를 통해 300 MW급 가스화플랜트에 대한

건식과 습식 가스화 모델을 구축하여 합성가스의 생성과 가스화기의 냉가스 효율 등을 토대로 각 모델에 대한 운전 특성을 비교 평가하였다.

석탄의 전처리에 있어서 중요한 설계 요소로는 미분탄의 입도와 석탄의 HGI에 의해 결정되는 분쇄에 필요한 소요 동력이라 하겠다. 이후 건식에서는 공기분리장치(ASU)로부터 분기된 질소를 이용한 분체이송이 고려되어야 하며, 습식공정에서는 점도가 있는 액상의 석탄슬러리 이송에 대한 장단점과 이들 공정과 연계되는 유틸리티에 대한 정량적인 경제성 평가가 필요하다.

건식 가스화에서는 CO/H₂의 물 비가 2~3 이상인 합성가스가 생성되었으며, 습식에서는 그 물 비가 1 내외에서 생성되었다. 그리고 CWS에서 H₂O의 과잉 공급으로 인해 가스화기 내에 수성가스반응을 촉진시켜 건식에 비해 많은 H₂를 생성시킨다. 하지만 잉여된 H₂O에 의해 건식 가스화보다 합성가스 내 수분 함량이 13~15% 높게 나타났고, 합성가스의 발열량이 떨어지는 원인이 되었다. 이는 곧 플랜트의 발전 효율과 직접으로 연관된다.

습식 가스화에서 발생된 합성가스 중 CO₂ 함량은 건식에 비해 3~5% 높게 발생됨을 확인하였다. 이는 곧 가스화공정 후단에 CO₂ 및 산성가스(Acid gas) 분리 및 포획설비의 규모에 영향을 미칠 것으로 판단된다.

따라서 석탄의 공급방식은 플랜트의 전체 발전 효율 뿐만 아니라 후단공정의 규모를 결정 짓는 중요한 설계인자 중에 하나라고 할 수 있으며, 얻고자 하는 최종생산물이 무엇인가에 따라 결정지어져야 할 것이다.

5. Acknowledgement

이 연구는 산업자원부와 에너지관리공단에서 주관하는 신재생에너지 인력양성사업의 일환인 "최우수실험실" 과제의 지원으로 이루어졌습니다.

References

- [1] Process Engineering Division, "Texco Gasifier IGCC Base Cases", NETL DOE, Report PED-IGCC-98-001, 2000
- [2] Process Engineering Division, "Shell Gasifier IGCC Base Cases", NETL DOE, Report PED-IGCC-98-002, 2000
- [3] Clean Coal Technologies in Japan, p70, NEDO, 2006
- [4] A. Williams, M. Pourkashanian, J. M. Jones, N. Skorupska, "Combustion and Gasification of Coal", p 86~88, Taylor & Francis Inc, 1999
- [5] Robert H. Perry, Don W. Green, "Perry's Chemical Engineers' Handbook", p 20-13~14, McGraw Hill
- [6] Chris Higman, Maarten van der Burgt, "Gasification", p25~26, Gulf Professional Publishing, 2003