

고압 석탄 분류층 가스화기 전산유동에서 탈휘발 모델의 영향 평가

에인수* · 박상빈* · 류창국** · 박호영** · 김봉근***

Evaluation of devolatilization models in CFD for high-pressure entrained flow coal gasifier

Insoo Ye*, Sangbin Park*, Changkook Ryu**, Hoyoung Park**, Bongkeun Kim***

ABSTRACT

In an entrained flow coal gasifier, predicting the reaction behavior of pulverized coal particles requires detailed information on devolatilization, char gasification, gaseous reactions, turbulence and heat transfer. Among the input parameters, the rate of devolatilization and the composition of volatile species are difficult to determine by experiments due to a high pressure (~40 bar) and temperature (~1500°C). This study investigates the effect of devolatilization models on the reaction and heat transfer characteristics of a 300 MWe Shell coal gasifier. A simplified devolatilization model and advanced model based on Flashchain were evaluated, which had different volatiles composition and devolatilization rates. It was found that the tested models produce similar flow and reaction trends, but the simplified model slightly over-predict the temperature and wall heat flux near the coal inlets.

Key Words : Coal, Devolatilization, Entrained gasifier, Flashchain, Gasification

석탄 가스화 기술은 석탄을 산소 및 스팀을 이용하여 CO와 H₂로 전환한 후 복합발전, 추가 메탄, CO₂ 포집과 수소 생산등의 공정에 이용할 수 있기 때문에 최근 많은 연구가 이루어지고 있다.

가스화 시 석탄은 수분증발, 탈휘발, 좌반응을 거쳐 회분만 남게 되는데, 탈휘발의 경우 매우 짧은 시간 내에 이루어지는데다 고온·고압 조건에서 실제 측정 또한 어렵기 때문에 전산유동 해석에서 탈휘발의 속도와 휘발분 조성을 추정하는데 어려움이 있다.

본 연구에서는 300MWe급 복합발전 분류층 가스화기를 대상으로 석탄의 탈휘발 모델에 따른 내부 온도 및 벽면 열전달, 화학종 분포 등을 CFD 해석을 통해 평가하였다.

Fig. 1은 본 해석 대상인 가스화기의 형상이다. 4개의 노즐로부터 석탄과 Flux, 가스화제가 주입되며, 반응 후 생성된 가스는 상부로, 슬래그는 벽면으로부터 흘러내려가 하부의 스킨트로 빠져 나간다. 석탄의 특성 및 공급량은 참고문헌[1]을

기준으로 하였으며, 가스화제로 쓰인 산소와 증기는 각각 석탄대비 0.83, 0.05의 유량[2,3]으로 설정하였다.

해석 형상은 실제 형상의 1/4을 periodic 조건으로 158,834 개의 육면체격자로 구성하여 상용 CFD 코드인 Fluent 6.3을 사용해 해석을 진행하였다.

석탄의 탈휘발 시 다양한 휘발분들이 동시다발

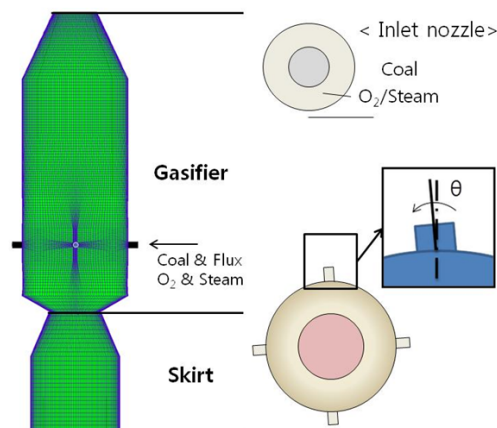


Fig 1 Geometry and grid of gasifier

* 성균관대학교 기계공학부

** 한전전력연구원 그린에너지연구실

*** 두산중공업 IGCC개발팀

† 연락처자, cryu@mech.skku.ac.kr

TEL : (031)299-4841 FAX : (031)-290-5889

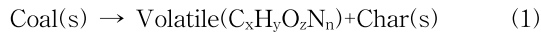
Table 1 Volatiles composition predicted by Flashchain (DTF condition, 42 bar, 1500°C)

Products	wt.%daf	Products	wt.%daf
Tar(C _{5.6} H _{6.1} O _{0.3} N _{0.2})	20.3	C ₃ H ₈	0.0
H ₂	1.88	CO	3.2
CH ₄	2.3	CO ₂	2.7
C ₂ H ₂	0.0	H ₂ O	5.8
C ₂ H ₄	1.27	HCN	1.27
C ₂ H ₆	0.39	H ₂ S	0.82
C ₃ H ₆	1.04	Char	59.03

Table 2 Simple devolatilization model (tar only)

Products	wt.%daf	Products	wt.%daf
Tar(C _{1.4} H _{5.2} O _{0.8} N _{0.2})	36.53	Char	63.47

적으로 배출된다. 그러나 Fluent에서는 탈휘발이 진행 될 때 식 (1)과 같이 단일 화학종만 고려 가능하기 때문에 실제와 차이를 보인다.



탈휘발을 보다 정확하게 모사하기 위해 석탄 탈휘발 예측 소프트웨어인 NEA(Niksa Energy Associates)의 Flashchain[4]을 사용하여 석탄 휘발분 조성 및 탈휘발 속도를 예측하고 이 자료를 user-defined function(UDF)을 사용하여 Fluent에 적용하였다. 이 경우 식 (2)와 같이 탈휘발 진행 시 다양한 휘발분이 빠져나가게 된다.



Flashchain에서 설정한 탈휘발 조건은 Drop tube furnace의 42 bar의 압력과 1500°C의 온도 분위기로서, Table 1과 같은 총 휘발분 조성을 얻었다. 해석시에는 CH₄를 제외한 C₂+ 탄화수소 계열을 모두 합쳐 C_{2.3}H_{4.9}의 형태로 설정하였다.

이와 대조적으로 Flashchain을 사용하지 않았을 경우(Simple)는, 공업분석 및 원소분석 자료를 바탕으로 타르의 조성을 구하여 이를 반응식에 적용하였다. 이때 가정된 타르대비 휘의 비율은 1.74 이다. 조성은 Table 2에 정리하였다.

탈휘발 속도는 single rate model[5]을 사용하였고, pre-exponential factor는 Flashchain에서 예측된 454.7s⁻¹, 활성화에너지는 10.6MJ/kmol 이다.

최의 가스화 반응은 총 4가지로, Shrinking core model[6]을 적용하여 회분 형성과 주변 가스와의 화학 평형에 따른 확산 및 반응 속도 저하를 고려하였으며, 고압에 의한 휘발분 감소[6]

Table 3 Char and gas reaction models

Char gasification : Shrinking core model[5] $\text{C(s)} + \text{O}_2 \rightarrow \text{CO}$ $\text{C(s)} + \text{CO}_2 \rightarrow 2\text{CO}$ $\text{C(s)} + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{CO} + \text{H}_2$ $\text{C(s)} + 2\text{H}_2 \rightarrow \text{CH}_4$
Gas-phase reactions[8,9] $\text{Tar} + a\text{O}_2 \rightarrow b\text{CO} + c\text{H}_2\text{O} + n\text{N}_2$ $\text{Tar} + a\text{H}_2\text{O} \rightarrow b\text{CO} + c\text{H}_2\text{O} + n\text{N}_2$ $\text{C}_x\text{H}_y + a\text{O}_2 \rightarrow b\text{CO} + c\text{H}_2\text{O}$ $\text{C}_x\text{H}_y + a\text{H}_2\text{O} \rightarrow b\text{CO} + c\text{H}_2\text{O}$ $\text{CO} + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{CO}_2 + \text{H}_2$ $\text{H}_2 + 0.5\text{O}_2 \rightarrow \text{H}_2\text{O}$ $\text{CH}_4 + 0.5\text{O}_2 \rightarrow \text{CO} + 2\text{H}_2$ $\text{CH}_4 + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{CO} + 3\text{H}_2$
Calcination of Flux[10-12] $\text{CaCO}_3 \rightarrow \text{CaO} + \text{CO}_2$

와 함께 탈휘발 모델과 마찬가지로 UDF로 코딩하였다.

가스 연소 모델은 Finite rate/Eddy dissipation rate 모델[7]을 사용하였으며 이때 가스 반응은 Global reaction scheme[9]을 적용하였다. Flux는 구성 성분이 대부분 CaCO₃[10]이고 가스화기 내에서 CaO와 CO₂를 생성하기 때문에 추가반응을 고려하였다[11,12]. 해석에 적용한 휘 및 가스 반응식을 Table 3에 정리하였다.

난류 모델은 Realizable k-ε Model을, 석탄과 Flux의 입자 거동은 Discrete Phase Model을 사용하며 Stochastic tracking을 통해 난류의 영향도 고려하였다.

입자와 벽면 간 복사 열전달 모델의 경우 구분중좌법(DOM)을 사용하였다. 입자의 복사열전달은 체적 대비 입자 밀도가 높아 복사 열전달 계산에 있어 상당한 불안정성을 일으킨다. 따라서 보다 안정적인 해석을 위해 입자의 복사 열전달을 가스의 흡수계수에 포함시켰다. 이를 위해, 가스 및 입자의 복사계수를 통합한 모델[13]을 이용하여 대상 가스화 조건에서 4.12 m⁻¹의 흡수계수를 구한 후 적용하였다.

가스화기 작동 압력은 42 bar[3]이며 가스화기 벽면은 슬래그의 T_{cv}인 1150°C를 설정하였으며, 하부의 스킵 부분은 고압의 물이 지나가는 membrane wall로 설정하였다. Bottom wall 부분은 실제 물이 있는 부분으로, 42기압의 포화수 증기온도로 설정하였다.

Fig. 2는 가스화기 내 단면 온도분포를 나타낸 것으로, 전체적으로 노즐 근처에서 고온부를 형성하고 가스 출구로 향할수록 온도가 하락하여 최종적으로 1510~1520°C로 빠져나간다. 하부의

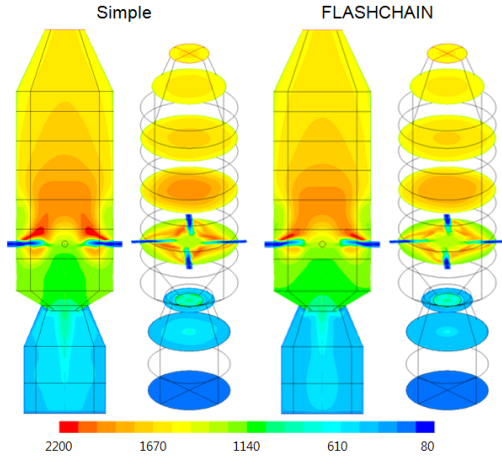


Fig. 2 Comparison of temperature distribution

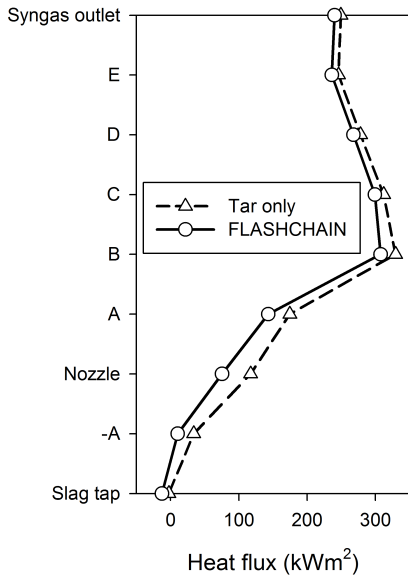


Fig. 3 Comparison of heat flux on the membrane wall (area-averaged)

온도는 1100~1200℃로 회분 슬래그의 T_{cv} 에 가깝게 형성되어 배출을 저해할 우려가 있다. 스키투트는 수관벽과 포화수에 직접 노출되어 있기 때문에 전체적으로 낮은 온도분포를 이룬다.

단순모델과 Flashchain 기반 모델을 사용한 경우를 비교하였을 때, 전체적으로 같은 조건하에 탈휘발 모델만 바뀌었기 때문에 온도 분포는 크게 달라지지 않았다. 그러나 타르만을 적용한 단순모델의 경우 2000℃가 넘는 최고 온도를 포함한 고온영역이 더 넓게 형성되었는데, 이는 탈휘발이 단일 화학종(타르)만 빠져나오면서 가스의 산화반응이 상대적으로 많아져 국부적으로 온도가 상승하였기 때문이다.

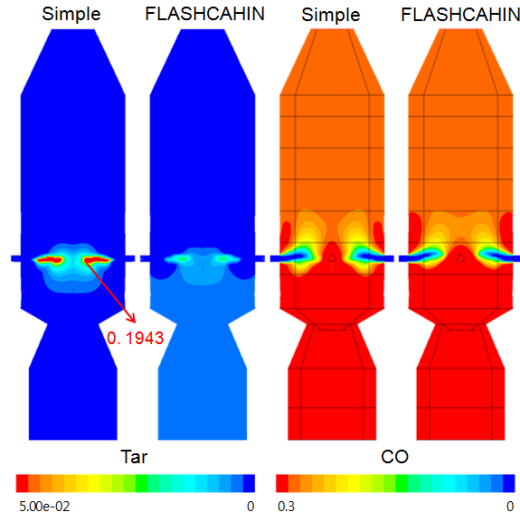


Fig. 4 Comparison of tar and CO concentration

Fig. 3의 벽면의 열유속 분포 또한 고온의 영향으로 타르의 탈휘발만을 고려하였을 경우가 전반적으로 조금 더 열이 많이 빠져나가는 것을 볼 수 있으며, 이를 석탄의 총 투입 열량 대비 벽면 열손실로 환산하면 단순모델의 결과는 2.4%, Flashchain 기반 모델은 2.1%이 된다.

Fig. 4는 가스화기 및 스키투트 내 단면의 타르와 CO의 물분율 분포를 나타낸 것이다. 단일조성의 휘발분만 고려한 단순모델에서 휘발분 물분율은 국부적으로 최고 0.19까지 상승하나 빠르게 소멸된다. Flashchain의 경우, 낮은 농도이나 저온 영역에 산소가 고갈된 노즐 하부로 일부 반응을 하지 못한 타르가 남아있는 것을 확인할 수 있다. CO는 노즐 부근에서 약간의 차이가 있으나 전반적으로 매우 유사하다.

출구에서 합성가스는 CO 0.58, H_2 0.28로 유사한 조성을 가지며 냉가스 효율로 환산하면 약 78%가 된다.

지금까지 고온 고압에서의 석탄 가스화시 탈휘발을 단일 화학종으로 단순화한 모델과 Flashchain 예측결과를 이용한 두 경우에 대해, 내부 온도와 벽면 열유속, 물농도분포 등을 알아 보았다. 이를 정리하면 다음과 같다.

- 단일 화학종으로 탈휘발을 고려한 단순모델은, Flashchain을 적용한 경우보다 노즐부분의 온도가 높고, 이에 따라 벽면 열손실 또한 더 많았다.
- 가스화기 출구의 화학종 분포는 거의 같으며 (CO 58%, H_2 28%), 냉가스 효율은 약 78%이다.
- 전체적인 가스화기의 출구와 유동, 온도분포 등의 경향성을 보는 데는 탈휘발을 단일 화학종으로 설정하는 것이 좋으나, 보다 정확한 온도 및 벽면 열유속 분포 해석에 있어서는 실제 탈휘

발과 가까운 Flashchain을 적용하는 것이 적절하다고 판단된다.

- 전체적으로 온도는 가스화기 입구 노즐 상부에서 높게 형성하며 하부는 슬래그의 T_{cv} 에 가까운 온도분포를 보였다. 스킵 부분은 포화수와 수냉벽의 영향으로 상당히 낮은 온도가 나타났다.

후 기

본 연구는 2011년도 지식경제부의 재원으로 한국에너지 기술평가원(KETEP)과 두산중공업의 지원을 받아 수행되었으며 이에 감사드립니다. (한국형 300MW급 IGCC 실증 플랜트 기술개발사업, No. 2011951010001A)

참고 문헌

- [1] 지준화, 오민, 김시문, 김미영, 이중원, 김의식, 2011, 석탄 가스화 반응의 동적 거동 전산 모사, 한국수소 및 신에너지학회 논문집, Vol.22(3), pp. 386-401.
- [2] 송지훈, 강민웅, 서동균, 임성진, 백민수, 황정호, 2010, 300MW급 Shell형 1단 분류층 석탄 가스화기의 전산수치해석, 한국수소 및 신에너지학회 논문집, Vol.21(3), pp. 227-240.
- [3] 김미영, 주용진, 최인규, 이중원, 300MW급 IGCC를 위한 건식 분류층 석탄 가스화 공정의 동적 상태 모사, 한국수소 및 신에너지학회 논문집, Vol.21(5), pp. 460-469.
- [4] S. Niksa, Flashchain theory for rapid coal devolatilization kinetics. 1. Formulation, 1991, Energy Fuels, Vol5(5), pp. 647-665.
- [5] S. Badzioch, P.G.W. Hawksiey, 1970, Kinetics of Thermal Decomposition of Pulverized Coal Particles, Ind. Eng. Chem. Process Des. Dev., Vol. 9, pp. 521-530.
- [6] C.Y. Wen, T.Z. Chaung, 1979, Entainment coal gasification modeling, Ind. Eng. Chem. Process Des. Dev., Vol. 18 pp. 684-695.
- [7] B. F. Magnussen and B. H. Hjertager. On mathematical models of turbulent combustion with special emphasis on soot formation and combustion. In 16th Symp. (Int'l.) on Combustion. The Combustion Institute, 1976.
- [8] A.Gómez-Barea, B. Leckner, 2010, Congress in Energy and Combustion Science, Vol. 36, pp. 444-509.
- [9] W.P. Jones, R.P. Lindstedt, 1988, Global reaction schemes for hydrocarbon combustion, Combustion and Flame, Vol. 73, pp. 233-249.
- [10] 정재화, 지준화, 이중원, 서석빈, 김기태, 박

호영, 2011, 분류층 석탄가스화기 하부 슬래그 탭 부근의 슬래그 거동 해석, 한국수소 및 신에너지학회 논문집, Vol.22(6), pp. 913-924.

[11] R.H. Borgward, 1985, Calcination kinetics and surface area of dispersed limestone particles, AIChE Journal, Vol. 31, pp. 103-111.

[12] D.K. Fidaros, C.A. Baxevanou, C.D. Dritselis, N.S. Vlachos, 2007, Numerical modelling of flow and transport processes in a calciner for cement production, Powder Technology, Vol. 171, pp. 81-95.

[13] P. Basu, L. Jestin, C. Kefa, 1999, Boilers and Burners, Springer, p 138.