

석탄에너지 활용 기술

김상돈 · 조용준

한국과학기술원 화학공학과

1. 서 론

산업혁명 이래 전 세계의 에너지의 공급은 석탄에 의존하여 왔으나, 1950년대 중동의 석유개발 이후 석유자원의 편의성으로 말미암아 석탄 활용기술에 대한 연구는 미진하였다. 그후 1970년대의 oil shock 이후 미국을 위시한 선진국에서 대체에너지원으로서 석탄에너지의 활용기술에 대한 연구가 활발히 진행되어져 오다가 석유 가격의 안정화에 따라 이에 대한 연구의 열기가 감소하게 되었다. 그럼에도 불구하고 선진국에서는 석유자원 분포의 편재성 및 고갈성에 대한 대책으로 석탄에너지의 활용 기술에 대한 꾸준한 연구가 진행되어 왔다. 최근에는 환경문제에 대한 관심이 증가함에 따라 석탄에너지의 이용에 대한 제약이 증가하고 있으나 급증하는 에너지 수요에 대한 해결책으로서 석탄의 공해저감 기술의 개발에 많은 노력을 기울이고 있다.

한편, 국내의 경우, 80년대 후반부터 급속한 경제성장의 여파와 국제 저유가 현상에 따라 에너지 수요가 연평균 10% 이상의 증가세를 보임으로써¹⁰ 어떤 형태의 에너지원이든 GNP의 증가에 따라 증가하는 에너지 수요에 대처하여야 할 입장에 처하게

되었다. 특히 최근의 걸프만 전쟁의 상황과 70년대의 oil shock를 경험한 우리나라의 경우를 볼 때 부족한 자원이 없는 우리입장에서 에너지 문제는 대외 의존도를 줄이는 국가안보 차원의 에너지 수급 대책이 필요하다 하겠으며, 특히 전 에너지원의 30% 이상을 차지하고 있는 석탄에너지의 보다 효율적인 활용기술의 개발이 절실하다 하겠다.

본 고에서는 석탄 에너지의 활용기술 중에서 최근 공해문제의 심각한 대두에 따라 석탄의 저공해형 기술 및 청정연료화 기술로 활발히 연구되고 있는 유동층 석탄연소 기술, 석탄 가스화 기술, 석탄 액화 기술을 중심으로 기술의 내용을 간략히 소개하고, 국내외의 기술개발 동향 및 연구 방향 등에 대하여 소개하고자 한다.

2. 유동층 연소기술

가. 기술의 내용

유동층이란 기체를 고르게 분사하는 분배판위에서 기체에 의해서 매우 격렬한 혼합을 이루는 고체층을 이르며, 유동층 연소란 고온의 유동층으로 주입된 연료를 연소시키고 연소열을 이용하는 기술이다.



김 상 돈

- 캐나다 Univ. of Western Ontario 공학박사
- 캐나다 McMaster Univ. 연구원
- 미국 Illinois 주립대학 에너지 자원 연구소 연구원
- 캐나다 동자부 에너지 연구소 초빙 연구원
- 불란서 CNRS 화학공학 연구소 초빙 연구원
- 현 Energy-The International Journal-Associate Editor
- 현 한국과학기술원 화공과 교수, 학과장
- 현 한국과학기술원부설 에너지 환경 센터 소장
- 현 한국에너지공학회 학술간사

조 용 준

- 1984 한양대 화공과(학사)
- 1986 한국과학기술원(석사)
- 1986-1990 국방과학연구소 연구원
- 1990-현재 한국과학기술원 박사과정

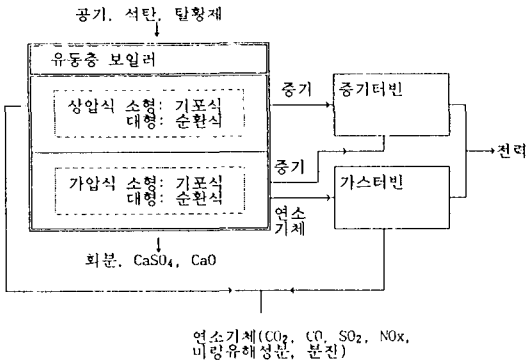


Fig. 1. Flow diagram of fluidized bed coal combustion process.

유동층 석탄연소 보일러에 대한 공정의 개념도를 Fig. 1에 나타내었는데, 그림에서 보듯이 석탄을 탈황 흡수제와 함께 연소로내로 공급하고, 연소공기를 분배기를 통해 층내로 공급하여 층내를 유동화시키면서 석탄을 연소시키고 이때 발생된 열량을 전열부를 통해 회수하여, 얻어진 고압의 증기를 산업용 증기로 공급하거나 또는 증기터빈을 구동시켜 전력을 생산하는 공정이다.²⁾ 이때 가압유동층을 사용하면 고압의 배기가스를 얻을 수 있어 가스터빈을 이용하여 전력생산을 할 수도 있다.

유동층 연소 보일러의 기술적 특성으로는 연료의 수용폭(fuel flexibility)이 커서 다양한 성질의 연료(저열량 연료, 고유황합유 연료, 점착성 연료, 고수분 함유 연료 등)에 적용이 가능하고, 연료의 미분쇄가 필요하지 않다는 것이다(석탄의 경우 입경 약 30 mm 이하 사용). 또 탈황제의 로내주입에 의한 직접탈황으로 별도의 배연탈황설비가 불필요하며, 낮은 연소온도(1,000℃ 이하)로 NO_x 생성이 크게 억제된다.³⁾

유동층은 조압압력에 따라 상압유동층(Atmospheric Fluidized Beds)과 가압유동층(Pressurized Fluidized Beds)으로 분류되고, 층내의 유동특성에 따라 기포유동층(Bubbling Fluidized Beds)과 순환유동층(Circulating Fluidized Beds)으로 분류된다.

제 2세대 유동층 연소기술로 주목받고 있는 순환 유동층 연소기술은 유동층내에 기체를 고속으로 주입함으로써 난류 유동 및 고속 유동영역에서 조업하는 유동층으로 발달되는 고체 입자를 집진기(cyc-

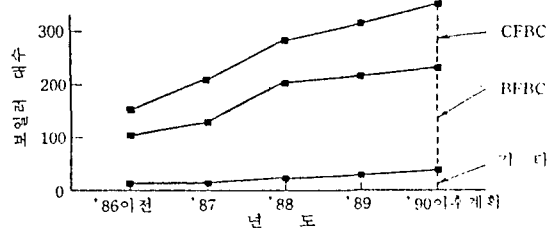


Fig. 2. Commercial FBC boilers in the world.

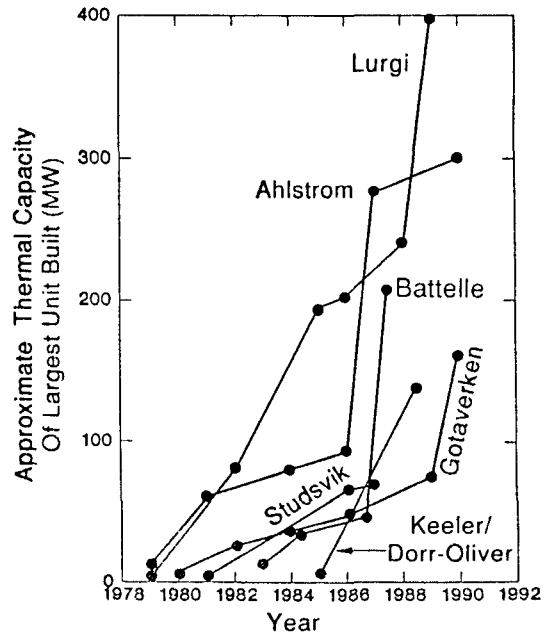


Fig. 3. The unit capacity growth of circulating fluidized bed boilers.

lone)에서 포집하여 층내로 강제로 순환시켜 구성하며, 종래의 기포 유동층에 비해 연료의 처리능력이 크고, 높은 반응 전환율을 가지므로 대용량의 연소로에 적합하다. 또한 순환식은 기포식보다 연소효율(99%)과 탈황제 사용효율(Ca/S=1.5-2에서 탈황효율 90% 이상)이 더 향상되었고, NO_x 배출농도가 더 낮추어진(200 ppm 이하) 기술이다.³⁾

가압유동층은 최근 석탄 이용의 증가에 따라 발전효율의 향상을 위해 연구되고 있는 기술로서 층내를 고압(약 10기압)으로 유지함으로써 고압의 배기가스를 이용하여 전력을 생산할 수도 있어서 전력생산에 유리하나 아직은 실증실험 단계에 있다.

나. 기술개발동향

상압(기포, 순환)식은 1980년대중반부터 미국(Co-

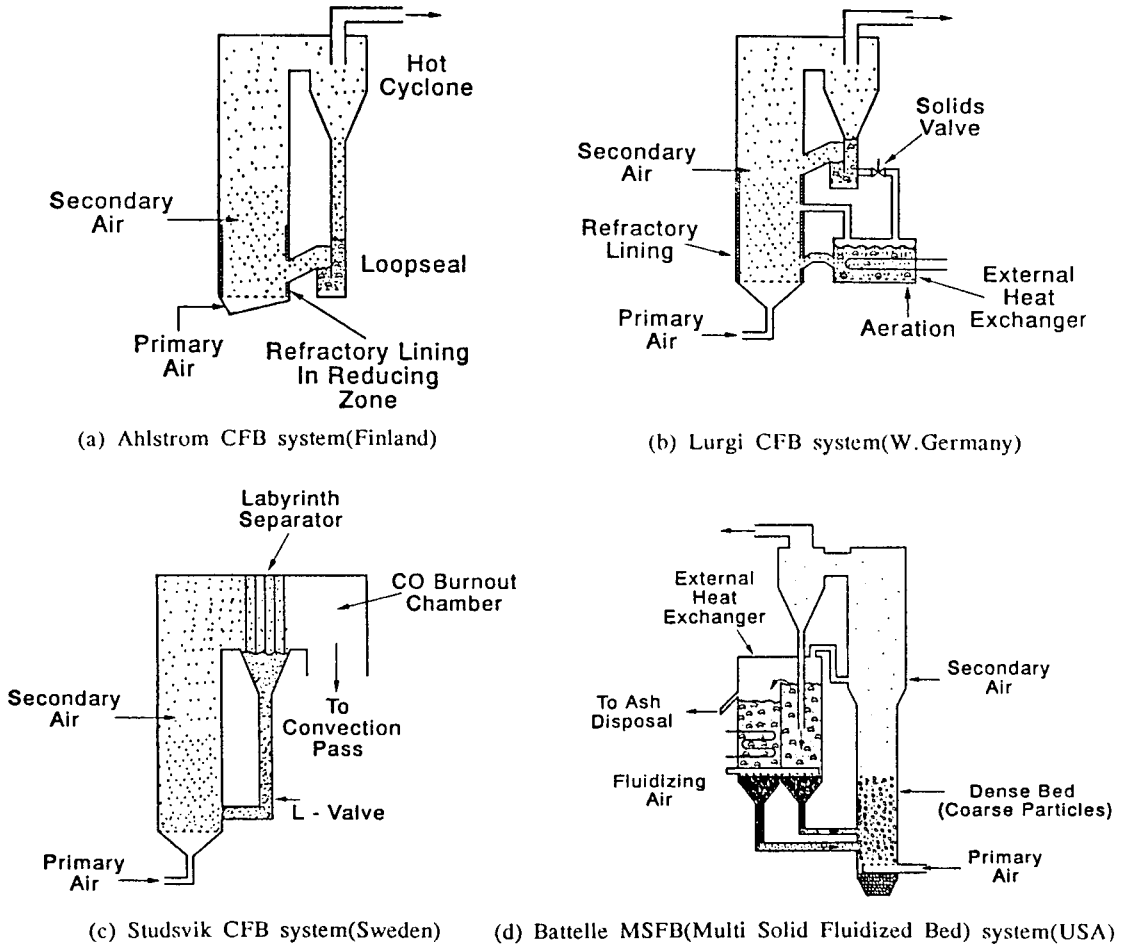


Fig. 4. Types of commercial CFB boilers.

mbustion Engineering, Foster Wheeler, Pyropower), 독일(Lurgi), 핀란드(Ahlstrom)의 boiler maker에서 판매를 시작하였다. 환경규제가 엄격한 미국에서는 2000년대까지 약 60%의 석탄보일러가 유동층보일러로 대체될 것으로 전망되고 있다. 근래의 동향은 발전용으로 상압식의 응용 및 scaleup, 시범플랜트단계의 가압유동층 연소기술의 개발이 계속되고 있다.^{4,5)} 주요 기술보유기관으로는 각 보일러 제작사, Energy & Environmental Research Center (University of North Dakota, USA)가 대표적이다.

유동층 보일러의 세계적 보급 현황을 Fig.2에 나타내었다. 그림에서 보듯이 유동층보일러는 1980년도 이후 환경규제의 강화로 본격적으로 보급되었으며 기포식은 전반기에 주로 설치되었고 순환식은

후반기에 급격한 증가추세를 보였다. 이는 보일러의 대형화가 가속되었고, 또 환경규제도 계속적으로 강화됨에 따라 기포식에서 순환식으로 발전되었기 때문이다. 기포식의 경우 1983년부터 1988까지 신설된 보일러의 증기용량은 연평균 약 800 t/h로 단위용량이 20t/h인 소형 산업용보일러를 고려할 때 연간 약 40기가 설치되었고, 순환식의 경우에는 본격적으로 보급이 시작된 1985년부터 1990년까지 120t/h 열병합발전 보일러를 기준으로 약 119기가 보급되었다.⁶⁾

1986년도의 일본 Wakamatsu plant부터 시작된 발전용 보일러 개발은 주로 상압유동층 기술을 채택하고 있다. 1991년 현재까지 대부분의 규모는 50 MWe에서 100 MWe이고 미국, 일본, 독일, 프랑스,

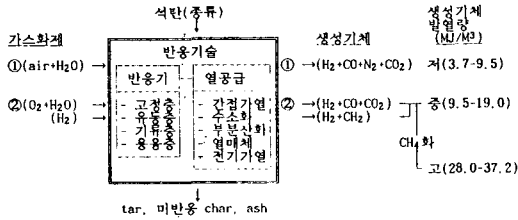


Fig. 5. Flow diagram of coal gasification process.

핀란드, 스웨덴, 스페인 등에서 이루어지고 있다. 가장 활발한 개발이 이루어지고 있는 미국의 경우에는 1996년에 약 250 MWe 규모의 상압유동층 발전용 보일러의 개발을 계획하고 있다. 발전용에 유리한 가압유동층 보일러의 개발은 1989년부터 시작되었으며 미국에서는 1996년에 약 325 MWe 규모의 개발을 계획하고 있다.⁷⁾

Fig. 3은 세계적으로 유명한 순환식 유동층 보일러 제작사의 단위용량 증가현황(scale-up)을 나타낸다. 순환식 보일러의 선두주자인 Lurgi와 Ahlstrom사는 1970년대말부터 개발을 시작하여 1985년 이후에는 급격한 scale-up을 이루었고 1990년에는 증기발생량 약 500 t/h의 대용량 보일러의 보급에까지 이르고 있다. 그러나 현재의 규모는 열병합발전용에 있다고 볼 수 있으며 발전용 보일러로서는 아직 소규모에 적용될 수 있다고 평가되며, 궁극적으로는 발전용까지의 개발이 계속 추구하고 있다. 그밖의 보일러 제작사(Battelle, Gotaverken, Keeler/Dorr-Oliver, Studsvik)의 보급경험은 1990년 기준으로 증기발생량 약 100t/h의 수준에 있다.⁸⁾ 참고로 제작사별 순환유동층 보일러의 특징을 Fig. 4에 비교하여 나타내었다.

한편, 국내의 경우 본격적인 연구는 1980년 이후부터 한국과학기술원을 중심으로 학계의 기초기술 연구,⁹⁻²⁰⁾ 한국동력자원연구소(현재 한국에너지기술연구소)를 중심으로 연구소의 파이롯트 규모 기술 개발 및 실용화 연구²¹⁻²⁵⁾ 등이 이루어졌으며, 그 결과 기포식의 중소형 산업용 보일러는 상용화되었고 계속적으로 경제성 향상 및 성능 향상이 진행되는 단계에 있다.

순환유동층 보일러에 대한 연구는 1980년대 이후부터 한국과학기술원을 중심으로 수력학적 특성 및 연소특성에 대한 기초연구가 실험실 규모로 수행되어 왔으며,²⁶⁻²⁸⁾ 1985년부터 한국에너지기술연구

Table 1. Characteristics of product gas.

생성가스	특 성
저열량가스	- 에너지 밀도가 작아 수송 및 저장에 불리 - CO로 인하여 직접 가정용연료로 곤란 - 공정이 단순하고 비용이 저렴하여 발전용이나 스티프산수에 경제성이 유망
중열량가스	- 범용 공업연료 및 합성화학공업 원료로 이용
고열량가스	- 합성(대체) 천연가스(SNG) - 천연가스와 동등한 고에너지 밀도를 지님 - 장거리 수송 및 광역 공급이 가능 - 가정용 연료로도 적합 저열량가스보다 제조원가가 훨씬 큰 단점이 있음.

소를 중심으로 pilot 규모의 연구가 진행되고 있다.³⁷⁻³⁹⁾ 한편, 대기업들의 외국기술도입에 의한 보급이 이미 이루어지고 있다.

가압식에 관한 연구는 1986년에 한국과학기술연구원(KIST)에서 연구를 시작하였으나 곧 중단되었고 아직 기초연구단계에 있다.

3. 석탄가스화 기술

가. 기술의 내용

석탄의 가스화는 복잡한 유기화합물로 구성된 천연 고분자로 존재하는 석탄의 화학 결합을 수증기, 수소, 산소, 공기 등의 가스화제를 사용하여 여러가지의 화학반응을 거쳐서 CO, H₂, CH₄, CO₂ 등의 저분자 기체로 변환하는 기술이며, 기본개념도는 Fig. 5와 같다.

석탄 가스화에 관여하는 반응으로서는 열분해(건류) 반응, 수성가스반응, 발생로 가스반응, 수소가스화반응, CO전환반응, 메탄화반응, 연소반응 등의 여러 반응이 있으며, 이 반응을 통하여 석탄은 연료용가스나 합성용 가스로 전환된다. 석탄가스화는 열분해반응이 먼저 일어나는데 저온 열분해(500℃ - 700℃)에서는 다량의 타르가 생성되지만, 고온 열분해(700℃)에서는 이 타르가 열분해되어 가스, 건류탄, 방향족 고온 타르로 변화된다. 또한 생성탄소(char)는 수증기와 반응하여 다량의 수성가스(H₂+

Table 2. Characteristics of coal gasifiers and related processes.

	고정층(Fixed Bed)	유동층(Fluidized Bed)	기류층(Entrained Bed)	용융층(Molten Bed)
특 징	<ol style="list-style-type: none"> 반응기속의 석탄, 회분이 화격자에 의해 지지. 원료석탄이 중력에 의해 반응기에 투입. 예열부, 건조부, 건류부, 가스화부, 연소부 및 회분층의 구별이 뚜렷. 화격자, 분배장치, 교반기가 있다. 	<ol style="list-style-type: none"> 반응기속의 석탄, 회분과 같은 고체상들이 기체에 의해 지지(화격자가 없음). 고체와 기체간의 혼합이 우수. 층내의 온도가 균일. 	<ol style="list-style-type: none"> 미분탄(200 mesh 이하), 공기, 수증기의 기류층내 가스화. 고온, 고속처리 공정. 	원료석탄의 현탁, 반응물 접촉성, 열저장 및 유황제거와 같은 여러가지 특성을 지님.
장 점	<ol style="list-style-type: none"> 처리율 높음. 석탄과 기체가 역류로 흐르기 때문에 열효율이 우수. 체류시간이 길어 탄소전환율이 높음. 회분생성량이 적음. 	<ol style="list-style-type: none"> 고체와 기체의 접촉성이 우수. 원료석탄의 질과 입도에 대한 변화를 크게 할 수가 있다. 단위부피당 가스화처리용량이 크다. 신뢰성, 안정성 및 안전성이 높다. 생성가스 조성이 균일. 생성가스중 타르분이 없다. 	<ol style="list-style-type: none"> 석탄의 접결성(caking property)과 규격에 상관없이 모든 석탄 사용가능. 생성가스중 타르분이 없다. 처리용량이 크다. 고체와 기체의 접촉성이 높다. 회분이 slag형태로 생성된다. 	<ol style="list-style-type: none"> 생성가스중 회분이나 유황성분을 포함하지 않는다. 원료석탄의 종류와 규격에 관계없이 처리할 수 있다. 생성가스중 타르분이 없다. 단위부피당 가스화처리용량이 크다. 신뢰성, 안정성 및 안전성이 높다.
단 점	<ol style="list-style-type: none"> 석탄을 전처리나 교반시켜주지 않으면 접결탄(caking coal)은 사용할 수 없다. 석탄규격이 제한된다. 석탄분말은 성형(briquette)이 필요하다. 생성가스중에 타르 등이 형성되기 때문에 이것들을 세척해야 한다. 처리용량이 작아 여러개의 반응기가 필요. 생성가스의 온도가 낮기 때문에 폐열로 증기를 만들때 압력이 제한된다. 	<ol style="list-style-type: none"> 생성가스의 현열손실이 크다. 비산에 의한 탄소손실이 크다. 접결탄(caking coal)은 전처리 필요. 복잡한 가스분배기 필요. 원료석탄을 완전히 건조해야 함. 	<ol style="list-style-type: none"> 제어, 안정성이 어렵다. 비산에 의한 탄소손실이 큼. 내화성 물질을 입힌 반응기가 필요. 반응기의 벽을 통한 열손실이 크다. 생성가스의 온도가 높아 열회수장치에서의 열손실이 크다. 용융상태의 회분이 열회수장치에서 문제를 야기함. 분쇄기가 필요하여 유지비가 커진다. 	<ol style="list-style-type: none"> 용융염을 재생한 때 여과와 탈황과정이 복잡. 용융염은 부식성이 있기 때문에 용융염처리 장치에 문제를 유발. 많은 양의 용융염이 생성가스로 비산되기 때문에 터어빈에 들어가기 전에 정제장치가 필요. 용융염이 소모되기 때문에 용융염의 보충이 필요.
주 요 공 정	<p>1-stage: Lurgi, GEGAS, Wellman Galusha Riley-Morgan, MERC, KGN 등</p> <p>2-stage: ATC/Wellman, FW/Stoic 등</p> <p>slagging: BGC/Lurgi, GFETC 등</p>	<p>Catalytic, CO₂ Acceptor, Cogas, Hygas, Synthane, U-Gas, Westinghouse, Winkler, HT Winkler 등</p>	<p>1-stage: Bell HMF, Koppers-Totzek, Mountain Fuel, Shell, Texaco 등</p> <p>2-stage: Bigas, C-E, Foster Wheeler, Rockwell International 등</p>	<p>Saaber-Otto, Rummel single shaft, Otto-Rummel double shaft 등</p>

CO)를 만들며, 결과적으로 석탄중의 탄소, 질소, 산소, 유황원자는 수소와 반응하여, 메탄, 페놀, 물, 암모니아, 유화수소 등의 화합물로 변화하게 된다. 즉, 가스화 반응기 내부에서는 이러한 반응들이 연

속적이거나, 함께 일어나 석탄의 대부분이 가스화 되고 일부는 소량의 타르나 미반응 탄소 혹은 회분의 형태로 반응기 밖으로 배출된다.²⁾

따라서 석탄 가스화는 원료 석탄과 최종 석탄

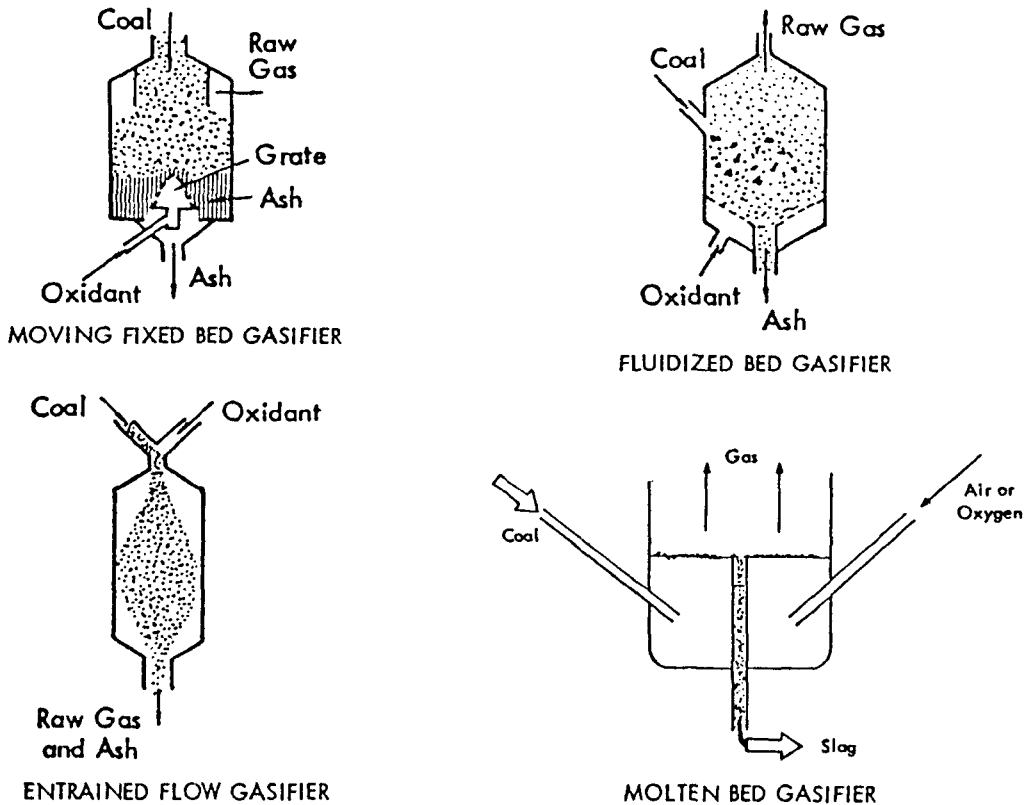


Fig. 6. Types of gasifiers.

Table 3. Operation conditions of typical coal gasifier.

반응기 형태	고 정 층	유 동 층	기 류 층
석탄 크기	6.4-12.7 mm	6.4 mm 이하	70%-0.07 mm
석탄 형태*	Non-caking	Non-caking	All
석탄처리량(ton/day)			
- 상압식	>100	<1,000	<850
- 가압식	>800 (30기압)	-	-
석탄 체류시간	1-3시간	20-40분	0.5-10초
원료 가스온도(°C)	480-650	730-900	1,100-1,430
타르	Yes	No	No
Turndown**	20-30%	30-40%	60%
회재형태	Dry	Dry	Slag

*전처리 없는 형태, **최대용량에 대한 백분율

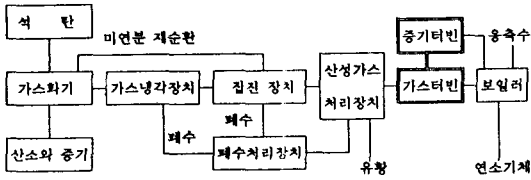


Fig. 7. Flow diagram of Integrated Gasification Combined-Cycle (IGCC) process.

가스의 사용 목적에 따라 적용하는 반응의 조건과 공정이 달라지게 되고 다양한 방법으로 적용하여 활용되어진다.

석탄 가스화 공정은 최종 생성가스의 발열량의 차이에 따라 저열량(3.7-9.5 MJ/M³), 중열량(9.5-19.0 MJ/M³), 고열량(28.0-37.2 MJ/M³)으로 분류할 수 있으며, 반응기 형태에 따른 접촉 방식의 차이에 따라 고정층법, 유동층법, 기류층법, 용융층법으로 나눌 수 있다. 또한 열의 공급 방식에 따라 간접가열, 수소화방식, 부분산화법, 열매체방식, 전기가열법 등으로 분류할 수 있다.

Table 1에는 생성 가스의 발열량에 따른 특성을 정리하였으며, Table 2에는 반응기 형태에 따른 공정의 특징 및 장단점, 적용된 주요 공정을 비교하여 정리하였다.^{40,41)} 반응기 형태에 대한 개략도를 Fig. 6에 나타내었으며, 주요 조업조건을 Table 3에 비교하여 정리하였다.⁴²⁾ 한편, 앞에서 열거된 여러가지 반응기의 형태 중 유동층 반응기의 적용공정은 로내에 dolomite나 석회석을 첨가할 경우 직접적인 탈황이 가능하므로, 석탄수요의 증가에 따른 고유황석탄의 처리에 가장 경제적인 공정으로 평가되고 있다.⁴⁰⁾

나. 석탄 가스화 복합 발전(IGCC)

석탄 가스화 복합 발전(IGCC)의 기본 원리는 석탄을 불완전 산화시켜서 저열량이나 중열량의 연소 가스를 생산하고 생산된 가스에서 환경 오염물질인 유황산화물을 제거한 후에 이 가스를 가스 터빈에 보내어 1차로 전기를 생산하고 나오는 열을 스팀으로 회수한 후 증기 터빈으로 보내어 2차로 전력을 생산하는 공정이다. 석탄가스화 복합발전의 개념도는 위의 Fig. 7에 나타내었다. 석탄가스화 기술은 복합발전용으로 최근에 있어 활용도가 외국의 경우 급격히 증가하고 있는데, 전력 생산에 석탄 가스화

Table 4. Comparisons of emission characteristics.

항 목	석탄가스화복합발전	석탄화력	중유화력
SO _x (ppm)	30	100	60
NO _x (ppm)	30	300	60
분진 (mg/Nm ³)	5	50	10
비 고	상업석탄가스화로 습식처리법 채택	최신기술의 목표치	최신기술의 목표치

(주) ppm은 과잉산소 6% 환산치

방법을 이용하는 가장 큰 이유는 효율과 환경에 대한 문제이다. 즉, 석탄을 가스화하여 그것을 연료로 한 가스터빈과 증기 터빈의 복합발전은 전체 발전효율 면에서 가스터빈 기술의 진보에 따라 미분탄 화력 발전의 열효율을 능가할 것으로 기대되고 있다. Table 4에서 보듯이 배기가스의 SO_x, NO_x, 분진 함유량이 매우 낮아 환경규제치가 더욱 엄격해질 경우에도 대응할 수 있다.⁴⁰⁾ 또는 석탄 가스화는 연소 방식에 비하여 생성가스량이 적어서 대기 오염 물질을 쉽게 경제적으로 제거할 수 있으며, Limestone을 사용하지 않으므로 고품 폐기물의 발생도 적은 장점을 지니고 있고, 증기 터빈만에 의한 발전설비보다 용수량이 절감되며, 이에 따라 폐온수량도 감소하게 되어 발전설비 입지 선택에도 융통성이 커진다.

석탄가스화 복합발전은 기존의 증기 플랜트를 개조하거나 새로운 동력 플랜트로서 활용될 수 있는데 이 공정의 높은 효율, 낮은 대기오염 문제와 취급하기쉬운 고체 부산물 배출문제, 그리고 기존의 방식보다 훨씬 적은 물의 사용은 다른 clean coal technology보다 싼 값의 전기를 공급할 수 있다는 장점을 갖는다.^{43,44)}

다. 기술 개발 동향

석탄가스화 기술의 개발은 일찌기 독일에서 개발되었으며, 생성가스의 조성 등에 따라 여러가지의 목적으로 사용되고 있는데, Lurgi, Texaco, Shell, Dow, Winkler 등에서 반응기의 형태와 처리법의 변화에 대한 연구를 통하여 석탄가스화 공정을 개발하고 있다. 세계적으로 석탄 가스화를 대표할 만한 공정은 약 37개에 이르며 이중 약 180여개의 상이한 석탄 가스화 기술이 알려지고 있다.⁴⁵⁾

가스화 장치의 개발 과정은 1930년에서 1940년대에 개발된 Lurgi, Winkler 및 Koppers-Totzek 등의 제 1세대 석탄 가스화 공정에서, 1970년 이후 Texaco, British Gas-Lurgi 및 Westing House 가스화 공정 등이 제 2세대 가스화 장치의 대표적인 것으로 실용화 단계에 있으며, 주로 가스화 장치에 연구가 집중되고 있다. 제 2세대 석탄 가스화 기술은 제 1세대 석탄가스화 기술의 보완 또는 고온, 고압, 처리용량, 전환율 등에서 혁신적인 공정으로 개발되었고, 대부분 상이한 탄종에 대응할 수 있는 가스화 장치의 개발을 위한 Pilot Plant 또는 Process Development Unit(PDU)의 개발 단계에 있다. 이들은 BGC/Slagging-Lurgi, Ruhr-100, 가압 Winkler, U-gas, KRW, Hygas, CO₂-Acceptor, Synthane, CO gas, Shell-Kopper, Shell, Texaco, BIGAS 및 Saarberg-Otto 공정들이며, 최근 미국의 Grait Plains (Lurgi 공정) 공장은 14,000 ton/day의 갈탄을 처리하여 SNG를 생산중이며, Cool Water Plant(Texaco 공정)의 경우 복합 발전용으로 석탄 처리량 1,000 ton/day의 석탄 가스화 공장이 가동되고 있다. 이외에도 제 3세대 석탄 가스화 기술로 대표적인 것은 Rheinbraun AG의 직접 수소 첨가법의 가스화 공정과 Exxon R & D에서 개발중인 촉매 가스화 공정이 SNG 생산을 위해 Pilot Plant와 PDU 규모로 개발단계에 있다. 이같은 개발 공정의 공통적인 과제는 반응 장치 설계, 전환율의 증대, 처리 용량 증대, 회재 용융, 고온고압 조작 및 탄종에 대한 제한성을 감소화시키는 것과 가스정제, 부산물 폐기처리 및 환경 문제 개선, Scale-up 방법, 특히 획기적인 기술 개발로 타에너지에 비해 석탄 가스의 경제적 우위를 확보하는 것이 중요한 연구 개발 과제로 되어 있다.⁶⁾

현재까지 연구된 가스화 공정 중 상업적으로 가장 많이 운전되고 있는 공정은 고정층 Lurgi 가스화 공정으로 세계적으로 20기 이상 건설되어 운전중에 있다. 최근 유가변동의 상황에도 불구하고 미국, 일본, 영국, 독일 등은 새로운 에너지 위기에 대처하기 위하여 Surface coal gasification project, Advanced coal gasification project, Sunshine project 등을 추진하고 있으며, 막대한 연구 개발비를 투입하여 석탄 가스화 연구를 추진하고 있다.

한편, 국내의 경우 1960년대 나주비료에서 암모니아 합성에 필요한 수소제조를 목적으로 Lurgi 공

정을 도입한 바 있으나 국내 무연탄에 대한 특성의 연구부족으로 실패하였다. 그 이후 석탄가스화에 대한 연구는 1980년대부터 일부 대학과 한국과학기술원을 중심으로 기초 연구가 수행되었고,⁴⁶⁻⁵⁶⁾ 한국 에너지기술연구소를 중심으로 소규모 장치에 대한 연구가 추진되고 있으나⁵⁷⁻⁶⁰⁾ 초보적인 단계에 있는 실정이다.

석탄가스화의 기술이 발전함에 따라 복합 발전로의 이용에 대한 경제성은 증대되는데 최초의 석탄가스화를 이용한 복합발전은 1972년 독일의 Steag사에서 Kellerman 발전소에 170 MW의 고정층 가스화 복합발전 플랜트를 개발한 것이 처음으로, 현재 미국에서는 Texaco Syngas Inc.와 Commonwealth Energy and General Electric Co.가 Free-town에 석탄가스화 복합발전소를 건설하여 440 MW의 전력을 생산할 계획을 진행하고, 이탈리아에서도 INEL이 2기의 석탄가스화 복합발전 시설에서 340 MW를 생산하기 위한 계획이 추진중인데 금년 중 공급업체를 선정하여 1995년 시험가동, 1996년 완전가동을 목표로 하고 있다. 일본에서도 선사인 프로젝트의 일환으로 석탄처리량 200 ton/day 규모의 파이롯트 플랜트의 연구가 진행중이다.⁶⁾

석탄 가스화에 의한 복합발전기술의 개발은 미국의 경우에는 우수한 환경보전성이 있는 플랜트 개발에 역점을 두는 반면 유럽에서는 탈석유 기술의 개발을 위주로 하여 개발하고 있다. 또한 석유 매장량이 빈약한 유럽 및 일본, 인도, 남아공화국 등이 지속적인 석탄가스화의 개발 및 활용을 도모하고 있는 점과 미국이 현재 석유가의 전제 및 석유매장량의 한계성에 대비하기 위하여 석탄가스화 개발에 주력하고 있음을 주목할 필요가 있다.

현재, 석탄가스화 복합발전의 각 요소들은 상업화 규모까지 도달하여 경제성과 신뢰도의 제고를 위한 연구가 진행중이다. 참고로 각 회사에서 제작한 석탄 가스화 복합발전 형태를 Table 5에 정리하였는데, 이러한 여러 형태의 조합에 대한 최적화가 이루어져야 할 것이며, 또한 시스템 전체의 운영을 위한 제어시스템의 개발이 필요하다. 또한 Hot Gas Clean Up system(HGCU)와 Integrated Air Separation Unit(IASU)에 대한 연구를 통하여 보다 높은 효율과싼 가격의 공정의 개발이 필요하다.

Table 5. Comparisons of IGCC processes.

	석탄 공급	산화제	가스화로	열교환 방법	세정법
TEXACO	H ₂ O 슬러리	O ₂	기류층	복사/대류 또는 급냉	습식/저온
DOW	H ₂ O 슬러리	O ₂	기류층	2단 plus fire tube	습식/저온
SHELL	N ₂ carrier 건조형태	O ₂	기류층	재순환 급냉 및 대류	습식/저온
BGL	건조형태	O ₂	고정층	저온 대류	습식/저온
PLENFLOW	N ₂ carrier 건조형태	O ₂	기류층	복사/대류	습식/저온
COMBUSTION ENGINEERING	건조형태	공기	기류층	2단 plus 대류	건식/고온
FOSTER WHEELER	건조형태	공기	유동층	대류	습식/저온
RHEINBRAUN	건조형태	공기	유동층	대류	건식/고온
LURGI	건조형태	공기	순환유동층		층내 석회석 주입
CRSS/LURGI	건조형태	공기	유동층	없음	건식/고온

4. 석탄 액화 기술

가. 기술의 내용

석탄 자체의 분자구조를 전환 혹은 변형시켜 생성물의 수소/탄소 비를 증가시킴으로써 액체화하는 기술이다. 이때 얻어진 액화유는 기체 연료에 비해 에너지 밀도가 높고, 저장이나 운송비가 저렴한 장점이 있다. 또한 석탄 액화유는 기존의 정유 시설 및 기술을 이용하여 쉽게 정제가 가능하며, 특히 석탄 액화유에서 유도된 나프타 성분은 고 옥탄가 가솔린 제조에 매우 적합한 원료가 된다. 그리고 중간 증류유는 수소화 처리하여 No. 2 연료유로 전환시키거나 크래킹하여 고품질의 나프타로 쉽게 전환 가능하며, 혹은 직접 utility turbine의 원료로 사용할 수 있기 때문에 원유에 비하여 보다 더 가치있는 액체 연료라고 할 수 있다.⁶¹⁾

석탄 액화에는 간접액화와 직접액화 방법이 있다. 간접액화는 석탄을 가스화한 후, 발생된 가스를 정제하여 촉매 존재하에 고온, 고압반응기에서 수소와 반응시켜 methanol이나 액화유를 얻는 방법이며, 직접액화는 석탄을 용매와 혼합하여 촉매가 있는

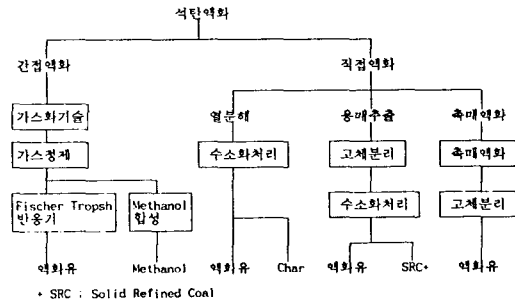


Fig. 8. Flow diagram of coal liquefaction process.

반응기에 주입하고 수소를 공급하여 수소/탄소 비를 증가시킴으로서 액화유를 얻으며, 2단계의 액화반응을 진행시킨다. 1단 반응기에서는 석탄의 전환이 주로 일어나며, 2단 반응기에서는 전환된 중질 액화유가 경질유로 개질된다. 수율은 공정에 따라 79-90%에 달하며, 액체 연료의 공해 물질을 최소화할 수 있다. Fig. 8에 석탄 액화 기술의 계통도를 나타내었다.

석탄 액화방법을 각각의 특징 및 주요 개발 공정을 중심으로 상술하면 다음과 같다.

1) 간접액화방법

석탄을 먼저 가스화한 후 Fisher-Tropsch 반응기에서 액화시키는데 이 때 사용하는 가스화장치는 Lurgi를 사용한다. 이 기술은 현재 남아연방에서 SASOL-I을 1955년에 시작하여 지금은 SASOL-V까지 개발되어 자국의 수송연료를 충당하기 위하여 가동중에 있다.

2) 직접액화법

직접액화법에는 열분해법, 용매추출법, 촉매액화법 등이 있으며 각각의 기술에 대해 설명하면 다음과 같다.

① 열분해법

석탄을 산소가 없는 조건하에서 약 400℃ 이상으로 가열함으로써 중질유, 경질유, 기체 및 char 등을 얻는 방법이다. 생성물의 조성 및 상대적인 양은 석탄의 석탄물성, 가열속도, 반응속도 등의 조업조건의 함수이다. 이 기술의 장점은 상압근처에서 조업되며, 다른 반응물질이 소요되지 않으며, 반응시간이 짧아 투자비가 적게들지만 석탄중 1/3만이 액화유로 전환된다는 단점이 있다.

② 용매추출법

수소전달이 용이한 수소 공여용매를 석탄과 혼합하여 수소와 반응시키며, 반응후 액화유는 개질한다. 이 공정의 장점은 열분해법보다 반응온도가 낮으며, 요구되는 생성물의 품질에 따라 조업조건의 변경이 용이하다. 지금까지 개발된 공정으로는 SRC(Solid Refined Coal) 공정, CSF(Consol Synthetic Fuel) 공정, EDS(Exxon Donor Solvent) 공정, 일산화탄소와 증기를 함께 넣어 수소의 사용량을 저감시키는 CO-Steam 공정, 영국의 NCB에서 개발한 Supercritical Gas Solvent 추출공정, UOP 용매추출공정 등 많은 공정이 개발되었다.

③ 촉매액화법

용매추출 공정과는 달리 반응기내에 촉매를 직접 넣고 반응시킴으로서 액화유의 품질 및 효율을 상대적으로 높일 수 있고, 반응기의 severity가 상대적으로 낮다는 장점이 있다. 대표적으로 개발된 공정으로는 H-Coal 공정, Synthoil 공정, Zinc-Halide 촉매를 이용한 액화, 분산촉매를 이용한 액화 등이 있으며, 이 공정들의 응용, 촉매개발 등을 PDU 규모에서 계속 개발중에 있다.

촉매액화법으로 Southern Electric Co.가 연구

수행중인 미국의 Wilsonville Pilot Plant는 단위공정의 위치를 변형시켜 액화유의 수율, 반응물의 개질 등에 관한 연구를 수행하고 있는데, 이에 대한 대표적인 공정으로는 RITSL(Reconfigured Integrated Two Stage Liquefaction), CC-ITSL(Closed Coupled ITSL), CTSL(Catalytic TSL) 등이 있다. 그 외에도 1단 반응기가 짧은 체류시간을 갖도록하는 Lummus ITSL(Integrated Two Stage Liquefaction) 공정이 있으며 이 공정에서는 고-액 분리기술로 Lummus사에서 개발한 Anti-Solvent Deashing을 사용하고 있는데, 지금까지 개발된 고-액 분리기술은 Wilsonville에서 사용하고 있는 Kerr-McGee사에서 개발한 CSD(Critical Solvent Deashing) 공정이 선두주자이다.⁶²⁾ 기존 1단 반응기와 2단 반응기 사이에서 회분을 제거하는 공정에서, 2단 액화후에 회분을 제거하는 공정인 CC-ITSL은 1단에서 반응하여 아직 안정화가 되지 않은 radical 상태의 반응물들이 회분제거공정에서 다시 고분자화하는 것을 방지하며 수율 및 생성물 분포를 저분자화하는 장점이 있다. 앞에서 열거된 여러 공정중 주요한 공정에 대하여 각각의 특징 및 조업 조건을 Table 6에 나타내었다.

나. 기술개발동향

미국에서는 DOE의 지원하에 Wilsonville에서 가동중인 Pilot 규모의 이단 액화공정이 대표적이며, 공정의 개발을 위하여 공정간의 흐름위치를 변경함으로써 최적 석탄액화공정의 개발 및 요소기술을 개발중에 있다.¹⁸⁾ 이중에서 HRI에서 개발한 Ebullated 반응기와 Kerr-McGee사가 개발한 Critical Solvent Deashing 공정이 핵심기술이며, 1단반응기에서의 촉매로 분산촉매를 사용하는 추세이다. 일본의 경우 1974년에 계획된 국가사업 선샤인 계획(신에너지 기술개발 계획)에 의하여 삼단 액화법인 NE-DOL 공정, Solvolysis 공정 및 미쓰이공정 등이 연구수행중에 있다.⁶⁴⁾ 또 용매추출법으로 호주의 Victoria에 설치한 3000 ton/day 규모의 갈탄 액화공정에서 실증실험을 수행중이다. 서독에서는 1985년에 개발된 Pyrosol 공정이 Saarbergwerke AG에 의하여 연구수행중에 있으며, 캐나다에서는 자국의 서부지역에 풍부히 존재하는 저급탄(low rank coals)과 중질원유를 동시에 처리하기 위하여 액화기술 개발에 주요 관심을 두고 있으며, 대표적으로 중질유의

Table 6. Comparisons of coal liquefaction processes.

변수 공정	SRC	H-COAL	EDS	ITSL	CTSL
특징	-비촉매 수소첨가 공정 -고유황 및 회재함량이 높은 석탄을 용매정제화시키는 공정 -1단 공정	-촉매 수소화 공정 -고유황석탄을 연료유 및 인조 원유로 전환 -1단 공정	-다양한 종류의 석탄으로부터 저유황의 경질유 생산 -공정이 간단 -액화유의 수율이 높다. -1단 공정	-중류유의 수율이 상대적으로 높음 -기체상 탄화수소의 생성량이 낮음 -2단 공정	-1단과 2단에 각기 촉매를 사용 -조업조건 완화 -연속조업이 용이 -중류유의 수율, 질이 높음
석탄종류	역청탄	역청탄, 준역청탄	역청탄, 준역청탄	역청탄, 준역청탄	역청탄, 준역청탄
용매	Recycled Slurry	Recycled Oil	Catalytically Hydrogenated Solvent	Hydrotreated Solvent	Hydrotreated Solvent
S/C-비	3	2	2-3	2	2
온도 (°C)	Preheater: 420 Dissolver: 450	445	425-470	Dissolver: 430 Hydrotreater: 380	1st: 400 2nd: 430
압력 (기압)	Preheater: 120 Dissolver: 115	150-180	100-135	Dissolver: 50 Hydrotreater: 140	170
체류시간 (분)	Preheater: 5-10 Dissolver: -30	45	60-100	Dissolver: 417 kg coal/hr m ³	0.75 kg feed hr kg cat
촉매	Mineral matter (FeS ₂)	Co-Mo/ γ -Al ₂ O ₃	Ni-Mo/ γ -Al ₂ O ₃	Co-Mo/Al ₂ O ₃ or Ni-Mo/ γ -Al ₂ O ₃	Ni-Mo/ γ -Al ₂ O ₃

경질화 공정인 CANMET 공정에 기초하여 연구를 수행중에 있다. 남아연방의 경우 인종차별문제도 원유수입이 불가능하여 자체에서 필요한 수송용 연료를 충당하기 위하여 간접액화법에 의하여 석탄을 액화하며, SASOL-I에서 IV까지 건설하여 가동중이다.

한편, 국내의 경우 1985년부터 한국에너지기술연구소를 중심으로 물을 용매로 사용한 석탄액화 연구와 석탄에 따른 액화특성을 연구하였으며,⁶²⁾ 1990년부터 압력이 높은 물을 이용한 석탄액화방법을 지양한 기초연구와 촉매의 개발, 용매의 선정 등에 대한 연구를 수행하고 있다.

최근의 석탄 액화 연구 방향은 크게 나누어 공정의 열효율 및 액화전환율 향상, 고체/액체의 효과적인 분리, 그리고 중류유의 수율의 향상과 수소 이용 효율상승을 위한 촉매개발 연구 등으로 생각할

수 있다. 특히 효율적인 수소의 이용은 석탄액화 반응화학 및 경제성 측면에서 매우 중요하며, 그 일례로 수소 생산비가 석탄액화공정 건설에 소요되는 직접자본비의 약 1/3-1/5 정도를 차지하고 있는 실정이다. 또한 소비된 수소 중 액화유 생산에 소요되는 비율이 약 30%, 기체상 탄화수소(C1-C4) 생산에 40% 그리고 약 20%는 석탄중의 비균일 원자(O, S, N)의 제거에 사용되고 있다. 결국 액화유 수율을 극대화하고 공정 효율을 높일 수 있으며 이를 위하여 효과적인 촉매의 개발이 요구된다.

5. 결 언

석탄에너지의 활용기술은 다른 에너지원에 비해 수급 공헌도가 우수할 뿐만 아니라 기술개발이 비교적 많이 이루어진 분야로서 에너지의 안정적 공

급이라는 측면에서 전체 에너지 수급 목적에 부합하는 기술로 적극 개발하여야 할 기술이라 할 수 있으며, 미국, 일본을 위시한 선진국에서는 이미 오래전부터 국가의 전략적 차원에서 연구를 수행하여 상당한 분야에서 이미 상용화 및 실증실험 단계의 수준에 도달해 있다.

한편, 국내의 경우에도 동력자원부의 대체 에너지 개발사업의 주도 아래 석탄 에너지 분야에 대한 연구가 진행되어 많은 분야에서 기술 축적을 이루었으나 아직 그 기술 수준은 기초 및 응용 단계를 벗어나지 못하고 있는 실정이다.

따라서, 국가의 에너지 안보 차원에서 산-학-연의 관련된 전문인력이 모두 합심하여 기술의 자립을 위하여 배전의 노력을 경주하여야 할 것이다.

참고문헌

1. “에너지 통계연감”, 에너지 경제연구원 (1990).
2. 김상돈 : “석탄 에너지변환 기술”, 민음사 (1986).
3. Peterson, V., Daramidos, G., Serbent, H. and Schmidt, H.W.: Proc. of 6th Intern. Conf. on FBC, 212, Atlanta (1980).
4. Wysk, S.R., Ropers, H.H., Janssen, K. and Drenkder, S.G.: Proc. of 8th Intern. Conf. on FBC, 468, Houston (1985).
5. Van Swaaij, W.P.M. and A.F. Afgan: “Heat and Mass Transfer in Fixed and Fluidized Bed” 433, Hemisphere Pub. Co. (1986).
6. “에너지/자원 연구개발 현황분석과 추진전략에 관한 연구”, 연구보고서 한국과학기술원 (1992).
7. Weth, G., Geffken, J. and Huber, D.A.: Proc. of 1991 Intern. Conf. on FBC, 468, Montreal (1991).
8. Dry, R.J. and La Nauze, R.D.: *Chem. Eng. Progr.*, July, 31 (1990).
9. Bak, Y.C., Son, J.E. and Kim S.D.: *화학공학*, **23**, 213 (1985).
10. Choi, C.S., Kim, I.S., Cho, Y.M. and Doh, D.S.: *화학공학*, **23**, 431 (1985).
11. Choi, J.C., Kim, Y.J., Moon, S.H. and Kim, S.D.: *화학공학*, **23**, 153 (1986).
12. Choi, J.H., Son, J.E. and Kim, S.D.: *화학공학*, **26**, 494 (1988).
13. Jung, Y.W. and Park, D.: *Kor. J. Chem. Eng.*, **5**, 109 (1988).
14. Bak, Y.C., Son, J.E. and Kim, S.D.: *Int. Chem. Eng.*, **29**, 166 (1989).
15. Choi, J.H., Son, J.E. and Kim, S.D.: Fluidization VI, 113 (1989).
16. Choi, J.H., Son, J.E. and Kim, S.D.: *J. Chem. Eng. Japan*, **22**, 597 (1989).
17. Kim, S.D., Park, B.Y. and Lee, G.S.: Proc. of 6th. Korea-U.S.A. Joint Workshop on Coal Utilization Technology, 1137 (1989).
18. Lim, P.Y., Kang, S.K. and Kim, S.D.: 7th. Proc. of U.S.A./Korea Joint Workshop on Coal Utilization Technol., 303 (1990).
19. Park, Y.S., Ghim, Y.S., Son, J.E. and Maeng, K.S.: *화학공학*, **28**, 568 (1990).
20. Kim, S.D., Lim, P.O. and Kang, S.K.: Proc. of 1991 Intern. Conf. on FBC, 1199, Montreal (1991).
21. Choi, J.H., Park, Y.S., Park, Y.O., Park, W.H. and Son, J.E.: *Kor. J. Chem. Eng.*, **2**, 111 (1985).
22. “저열량탄의 유동층 연소기술 개발연구(VI)”, 연구보고서 KE-86-21, 한국동력자원연구소 (1986).
23. “유동층연소 보일러 실용화 연구(II)”, 연구보고서, 과학기술처 (1987).
24. Park, Y.S. and Son, J.E.: *화학공학*, **28**, 320 (1990).
25. “유동층연소 발전기술 개발연구”, 연구보고서 KRC-88G-JO3, 한국전력공사기술연구원 (1990).
26. Shin, B.C., Koh, Y.B. and Kim, S.D.: *화학공학*, **22**, 253 (1984).
27. Lee, G.S., Han, G.Y. and Kim, S.D.: *Kor. J. Chem. Eng.*, **1**, 71 (1984).
28. Lee, G.S. and Kim, S.D.: *J. Chem. Eng. Japan*, **21**, 515 (1988).
29. Lee, G.S. and Kim, S.D.: *Kor. J. Chem.*, **6**, 15 (1989).
30. Lee, G.S. and Kim, S.D.: *Kor. J. Chem. Eng.*, **6**, 338 (1989).
31. Lee, G.S. and Kim, S.D.: *Chem. Eng. Commun.*, **86**, 92 (1989).
32. Lee, G.S. and Kim, S.D.: *Powder Technol.*, **62**, 205 (1990).
33. Lee, G.S. and Kim, S.D.: *Chem. Eng. J.*, **44**, 1 (1990).
34. Choi, Y.T. and Kim, S.D.: *J. Chem. Eng. Japan*, **24**, 195 (1991).
35. Lee, G.S. and Kim, S.D.: *Kor. J. Chem. Eng.*, **8**, 6 (1991).

36. Park, S.S., Choi, Y.T., Lee, G.S. and Kim, S.D.: Circulating Fluidized Bed Technology III, Academic Press (1991).
37. Choi, J.H., Lee, C.K. and Son, J.E.: *Kor. J. Chem. Eng.*, **7**, 306 (1990).
38. "상온 순환유동층의 측방향 고체체류량 분포", 연구보고서, 과학기술처 (1989).
39. "순환유동층보일러의 연소로 거동해석", 연구보고서, 한국동력자원연구소 (1991).
40. Bak, Y.C., Choi, J.H. and Son, J.E.: *Energy R & D*, **10**, 5 (1988).
41. Ma, J.L.: SRI Intern. Report No. 154 (1988).
42. Yang, S.M. and Park, W.H.: *화학공학*, **17**, 241 (1979).
43. "Clean Coal Technology-IGCC" GE Company Report (1991).
44. "Cost and Performance for Commercial Application of Texaco-Based Gasification Combined-Cycle Plants" EPRIAP-3486, Vol. I (1984).
45. Penner, S.S., Alpert, S.B., Bendantillo, V., Clardy, J., Furlong, L.E., Leder, F., Lee, L., Reichl, E., Ross, J., Sieg, R.P., Squires, A.M. and Thomas, J.: *Energy*, **5**, 1091 (1980).
46. Yoon, W.L., Lee, H.W., Kim, J.W. and Lee, W.K.: *화학공학*, **24**, 269 (1986).
47. Fung, D.P.C. and Kim, S.D.: *Fuel*, **63**, 1337 (1983).
48. Fung, D.P.C. and Kim, S.D.: *Fuel*, **63**, 1197 (1984).
49. Fung, D.P.C. and Kim, S.D.: *Kor. J. Chem. Eng.*, **7**, 109 (1990).
50. Kim, J.R., Kwon, T.W. and Kim, S.D.: *화학공학*, **25**, 379 (1987).
51. Kim, M.J., Yu, H.I. and Lee, W.K.: *화학공학*, **21**, 27 (1983).
52. Kwon, T.W., Kim, J.R., Kim, S.D. and Park, W.H.: *Fuel*, **68**, 416 (1989).
53. Kwon, T.W., Kim, S.D. and Fung, D.P.C.: *Fuel*, **67**, 530 (1988).
54. Lee, H.W., Kim, J.W., Kim, S.D. and Lee, W.K.: *화학공학*, **18**, 489 (1980).
55. Ng, S.H., Fung, D.P.C. and Kim, S.D.: *Fuel*, **63**, 1564 (1984).
56. Ng, S.H., Fung, D.P.C. and Kim, S.D.: *Fuel*, **67**, 530 (1988).
57. Bak, Y.C. and Son, J.E.: *화학공학*, **25**, 546 (1987).
58. Bak, Y.C., Yang, H.S. and Son, J.E.: *화학공학*, **29**, 323 (1991).
59. Lee, I.C.: *Kor. J. Chem. Eng.*, **4**, 194 (1987).
60. Park, K.Y., Bak, Y.C., Son, J.E. and Park, W.H.: *화학공학*, **25**, 345 (1987).
61. Yun, W.R. and Lee, I.C.: *Energy R & D*, **11**, 5 (1989).
62. "석탄액화기술기초연구(I)", 연구보고서 KRC-90g-T21, 한국전력공사 기술연구원(1990).
63. Rao, S.N., Schindler, H.D. and McGurl, G.V.: ACS Fuel Chem. Div. Prep., **33**, 145 (1988).
64. "월간 신/재생 에너지 기술 동향", 한국동력자원연구소, **6**, 1 (1989).