

습식분류층 석탄가스화기 수치해석 및 실험적 연구

Numerical and Experimental Study on the Coal Reaction in an Entrained Flow Gasifier

김혜숙 · 최승희 · 황민정 · 송우영 · 신미수 · 장동순[†] · 윤상준* · 최영찬* · 이재구*

Hey-Suk Kim · Seung-Hee Choi · Min-Jung Hwang · Woo-Young Song · Mi-Soo Shin

Dong-Soon Jang[†] · Sang-June Yun* · Young-Chan Choi* · Gae-Goo Lee*

충남대학교 환경공학과, *한국에너지기술연구원

Department of Environmental Engineering, Chungnam National University

**Fossil Energy & Environmental Research Dept. Korea Institute of Energy Research*

(2009년 08월 26일 접수, 2010년 01월 29일 채택)

ABSTRACT : The numerical modeling of a coal gasification reaction occurring in an entrained flow coal gasifier is presented in this study. The purposes of this study are to develop a reliable evaluation method of coal gasifier not only for the basic design but also further system operation optimization using a CFD(Computational Fluid Dynamics) method. The coal gasification reaction consists of a series of reaction processes such as water evaporation, coal devolatilization, heterogeneous char reactions, and coal-off gaseous reaction in two-phase, turbulent and radiation participating media. Both numerical and experimental studies are made for the 1.0 ton/day entrained flow coal gasifier installed in the Korea Institute of Energy Research (KIER). The comprehensive computer program in this study is made basically using commercial CFD program by implementing several subroutines necessary for gasification process, which include Eddy-Breakup model together with the harmonic mean approach for turbulent reaction. Further Lagrangian approach in particle trajectory is adopted with the consideration of turbulent effect caused by the non-linearity of drag force, etc. The program developed is successfully evaluated against experimental data such as profiles of temperature and gaseous species concentration together with the cold gas efficiency. Further intensive investigation has been made in terms of the size distribution of pulverized coal particle, the slurry concentration, and the design parameters of gasifier. These parameters considered in this study are compared and evaluated each other through the calculated syngas production rate and cold gas efficiency, appearing to directly affect gasification performance. Considering the complexity of entrained coal gasification, even if the results of this study looks physically reasonable and consistent in parametric study, more efforts of elaborating modeling together with the systematic evaluation against experimental data are necessary for the development of an reliable design tool using CFD method.

Key words : Coal Gasification Reaction, CFD program, Operation Optimization, Syngas, Cold Gas Efficiency

요약 : 석탄 가스화 반응을 모델링하여 습식분류층 석탄 가스화기의 반응특성에 대한 수치해석적 연구를 수행하였다. 본 연구의 목적은 신뢰성 있는 수치해석기술을 이용하여 가스화 장치의 기본설계와 더불어 최적 운전조건의 설정에 있다. 석탄 가스화 반응은 복사가 관여하는 고체와 기체의 이상 난류반응으로서 수증기 증발로부터 휘발화, 촉와 가스의 반응 등 일련의 연소반응의 구조를 가진다. 본 연구에서는 실험과 수치해석적인 방법을 병행하여 연구를 수행하였으며 한국에너지기술연구원에 설치된 1톤 규모의 실험용 가스화기를 대상으로 하였다. 본 연구에서는 기본적으로 상용프로그램을 사용하였으며 석탄 가스화 반응해석에 필요한 여러 서브루틴을 개발하여 해석하였다. 세부 반응 서브루틴의 난류반응은 기본적으로 에디브레이크모델에서 화학적 반응속도의 개념을 조화평균의 형태로 사용하였다. 그리고 석탄입자궤적은 라그랑지안 접근방식을 선택하였으며 입자의 궤적 계산에서 저항력에 나타나는 난류비선형적인 문제에 대한 모델도 고려하였다. 이와 같이 개발된 프로그램은 실험에서 얻어진 가스농도와 온도분포 그리고 냉가스 효율 등의 자료들과 비교하여 성능을 일차적으로 검토하였다. 석탄의 입자크기분포, 석탄 슬러리 농도, 그리고 가스화기의 형상변화는 가스화 성능에 직접적으로 영향을 주며 이를 합성가스 생성량과 냉가스 효율을 통해 비교·검토하였다. 본 연구 결과가 비록 물리적으로 타당하고 변수연구의 일관성을 보여주나 기류층 석탄가스화 반응장치의 복잡성을 고려하여 볼 때 보다 많은 실험결과에 대한 정교한 모델검증 노력이 신뢰성 있는 프로그램의 완성에 필요할 것으로 판단된다.

주제어 : 석탄 가스화, 수치해석 기술, 최적운전조건, 합성가스, 냉가스효율

1. 서론

IGCC 플랜트의 핵심공정인 가스화 공정은 저급탄화수소 연료, 특히 유황함유율이 높은 연료를 환경 친화적이면서도 고효율로 활용이 가능토록 할 수 있는 가장 신뢰성 있는 기술로 석탄, 중질잔사유, 석유코크스, 폐기물 등의 탄소를 함유하는 모든 물질에서 H_2 와 CO 의 합성가스를 생성하는 공정이다. 이러한 IGCC 발전방식은 기존의 미분탄 발전방식에 비해 발전효율의 증대로 인한 20% 내외의 CO_2 저감효과를 얻을 수 있고 특히 대기오염물질인 SO_x 를 95% 이상 그리고 NO_x 발생량을 90% 이상 줄일 수 있다. 따라서 우리나라와 같이 국내 에너지원을 해외로부터 거의 전량 수입하는 입장에서는 석탄의 발전연료로서의 사용이 필수적이고 이에 대하여 최소한 21세기 중반까지의 예상되는 환경규제치를 만족시킬 수 있는 IGCC와 같은 발전방식이 선택될 수밖에 없는 현실이다.¹⁾ 또한 석탄과 더불어 저급탄화수소 연료(오일세일, 오일샌드, 석유코크스, 중질잔사유 등)를 원료로 한 가스화 공정의 개발은 에너지원의 다변화가 필요한 국내 실정을 감안한다면 환경 측면에서도 우수하고 효율도 높은 가스화기술의 사용은 필연적인 추세라고 할 수 있다.

현재 선진국에서는 IGCC 발전소들이 실증단계에 있으며 IGCC 발전소의 개발목표를 지구온난화와 환경문제뿐만 아니라 발전효율 향상, 건설비 및 발전단가를 줄이는데 중점을 두고 단위공정 기술개발과 전체시스템의 최적화를 위한 연구개발에 노력하고 있다. 특히 16개 이상의 단위공정으로 구성된 석탄가스화 복합발전기술 중 석탄가스화 공정은 전체 IGCC 플랜트 구성에 중요한 영향을 미치므로 가스화 기술의 장애요인이나 문제점을 사전에 제거하고 최적의 가스화 공정을 선택하는 것이 매우 중요하다.²⁾

석탄가스화 공정은 가스화로의 베드형태에 따라서 고정층(fixed bed), 유동층(fluidized bed), 및 분류층(entrained bed)으로 구분할 수 있다. 본 연구에서 고려한 가압 분류층 가스화기는 가스화 온도와 압력(1200~1700°C, 20 kg/cm² 이상)이 높아 탄소전환율이 높고, 타르와 오일이 생성되지 않고 회재를 용융처리하며 탄중 적합성이 매우 우수한 방식이다. 또한 연료가스의 온도가 매우 높아 많은 열량이 증기상태로 회수되므로 발전용으로 적합하며 탄중적합성, 부하추종성 및 대용량화, 운용성 등에 유리하다. 분류층 가스화 공정에는 석탄의 공급방식(건식 및 습식)과 가스화로의 운전조건(가압 및 상압), 산화제(공기 및 산소)의 종류에 따라 각각 독특한 기술 및 발전방식을 가지고 있다. 현재 전세계적으로 기술이 개발되고 있는 주요 분류층 석탄가스화 공정에는 미국 플로

리다주 템파(Tampa)에 위치한 폴크(Polk)발전소의 Texaco 공정과 독일의 Krupp-Koppers, 네덜란드의 Shell, 일본의 CRIEPI & ABB CE 공정 등이 있다.³⁾

본 연구에서는 일차적으로 저급의 석탄시료를 고온/고압조건에서 불완전 연소 및 가스화 반응을 일으켰을 경우 다양한 설계인자 및 운전조건에 따른 난류반응특성을 수치해석하여 환경규제치를 만족함과 동시에 청정 에너지원으로 활용할 수 있는 최적의 가스화기 설계에 일조하고자 한다. 특히 고온/고압으로 운전되는 가스화기는 내부의 반응에 대한 구체적인 측정이 제한적일 뿐만아니라, 실험적인 변수연구가 원활하지 못한 것이 주지의 사실이다. 따라서 가스화기 내부에서 일어나는 복잡한 물리·화학적 현상에 대한 물리적 이해와 데이터의 확보를 통한 최적조건인 가스화기 설계를 위해서는 수치해석적 연구가 선행되거나 실험과 병행하여 상호 검증의 도구로 수행되어야 한다.

일단 수치해석모델에 대한 검증이 이루어지면 수치해석적 연구는 실험적인 연구의 제한성을 극복하고 반응로 내부의 복잡한 난류유동장의 화학반응특성을 파악하는데 현실적 대안이 될 수 있을 것으로 판단된다. 현재 캐나다의 CANMET 에너지기술센터(CETC)에서는 탄소포집 및 저장(Carbon Capture and Storage, CCS)을 위한 순산소-연소기술에서 이와 같은 수치해석 연구를 성공적으로 수행하여 설계에 반영하고 있으며 IGCC 기술개발 프로그램에도 이의 연구를 단계적으로 포함하여 2015년까지 발전 및 합성가스 생산을 위한 IGCC 기술의 상용화 계획을 발표하였다.⁴⁾ 그러므로 본 연구에서는 실험실 규모의 KIER 1.0 T/D급 산소-슬러리 분류상 가스화 반응기에 대한 수치해석 모델을 수립하고 실험결과로부터 일차적인 검증을 한 후 운전조건 및 가스화기 형상변화에 대한 가스화 반응특성을 체계적으로 평가하고자 하였다.

2. 실험 방법^{5,6)}

Fig. 1은 KIER 에 설치된 1.0 T/D 습식분류식 석탄 가스화 장치에 대한 전체적인 도면을 나타낸 것으로 석탄 전처리부, 석탄 가스화장치부, 자동제어 및 분석시스템부 그리고 가스 정제장치부로 크게 나누어진다. 석탄전처리부에서는 200mesh로 분쇄된 석탄을 계면활성제와 물을 섞은 후 슬러리 형태로 생성하여 고압스크류 펌프에 의해 가스화 반응기에 공급하도록 설계되었다.

석탄 슬러리와 공급되는 산소는 버너 상단에서 분사되기 전에 석탄슬러리와 혼합되고 가스화 반응기 하부로 down-

Table 2. Gasification reaction rate considered in this study

Gasification Reaction	Surface Reaction Rate	Diffusion Rate
Char-O ₂ Reaction	$K_s=8,710exp(-17,967/T_s)$	$k_{diff} = 0.584(\frac{T_g}{T_g - 1800})^{\frac{4.26 T_g}{1800}} / (P_i d_p)$
Char-Steam Reaction	$K_s=247exp(-21,060/T_s)$	$k_{diff} = 10 \times 10^{-4} (\frac{T_g}{2000})^{0.75} / (P_i d_p)$
Char-CO ₂ Reaction	$K_s=247exp(-21,060/T_s)$	$k_{diff} = 7.45 \times 10^{-4} (\frac{T_g}{2000})^{0.75} / (P_i d_p)$

$$\frac{dV}{dT} = \frac{V^*}{T_{devol}} \quad (1)$$

여기서 V* = 휘발성 물질의 함유량 (kg)
 T_{devol} = 사용자가 정의한 휘발화 시간

3.2. 좌 연소

가스화기의 연소반응은 고체 좌에 대한 직접 연소와 휘발화된 연료가스의 연소를 포함한다. 좌 연소에 필요한 시간은 석탄 연소과정에서 중요한 부분이며 이에 대한 현상학적 모델링은 여러 복잡한 현상을 고려하여야 한다. 구체적으로 석탄 좌의 구조, 좌와 다양한 반응물(O₂, H₂O, CO₂, H₂ 등)과의 반응기작, 좌 분열(fragmentation), 좌의 정확한 성분 등을 거론할 수 있다. 그렇게 때문에 좌 연소에 대한 모델링은 구체적으로 석탄의 실험적인 반응속도 값에 의존한다. 현재까지 좌연소 속도를 예측하기 위해 세 가지 경험적 모델들(Constant rate model, First order combined rate model, Half-order combined rate model)이 제안되었다.⁷⁾ 이 중 본 연구에서는 First-order combined rate model을 사용하였으며 이에 대한 반응기전을 설명하면 다음과 같다.

좌 입자는 Fig. 3과 같이 층류 경계층이 주변을 형성하고 있으며 이 경계층을 통해 산소가 좌와 반응한다. 결국 전형적인 물질전달속도와 화학반응속도의 상호문제가 나타나게 된다. 즉 좌와 산소와의 표면반응속도가 매우 빠른 경우 좌 연소속도는 경계층을 통한 산소의 물질확산속도(K_d)에 의해 영향을 받게 된다. 그러나 산소의 표면 반응속도(K_c)가 K_d와 비

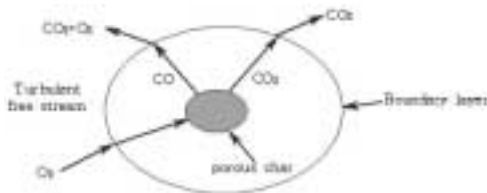


Fig. 3. Simplified view of char oxidation.

교하여 작을 경우 전체반응속도는 좌의 유효표면적에 대한 화학반응 속도상수(K_c)로 주어지게 된다. 결국 좌 연소속도는 확산속도 제한 또는 화학반응속도 제한에 의해 영향을 받으므로 식 (2)와 같은 경험적이기는 하나 합리적인 조화평균 형태의 일차원 속도모델이 제안된다.⁸⁾

$$q = \left(\frac{K_c K_d}{K_c + K_d} \right) P_g \quad (2)$$

결과적으로 좌 연소속도는 아래와 같이 주어진다.

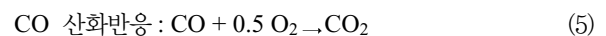
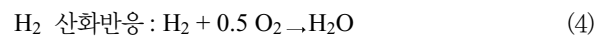
$$\frac{dchar}{dt} = -q \pi d_p^2 \quad (3)$$

3.3. 석탄 가스화 반응

가스화기의 중요한 목적은 석탄의 가스화 반응이다. 이 반응이 일반적인 연소공정과 다른 점은 공급되는 산소의 양을 줄여 로내를 환원조건으로 형성한다는 것이다. 좌-스팀 가스화 반응은 흡열반응으로 부분적인 좌의 연소반응이 가스화에 필요한 열량을 공급하게 된다. 본 모델에서 고려한 가스화 반응의 구체적인 반응상수 값은 Table 2에 제시하였다.⁹⁾

3.4. 가스상 반응

가스화기에서는 고상연료의 휘발화에 따른 일련의 연소반응이 일어나게 된다. 본 연구에서 고려한 연료의 가스상 반응은 다음과 같다.



가스상 연소반응은 연료의 화학반응시간이 매우 빠르기 때문에 연료와 산화제가 혼합되면서 연소가 이루어지므로 전체 반응속도는 일차적으로 난류혼합속도에 의해 영향을 받는다는 전통적인 기체연료 난류반응 개념을 사용하였다.¹⁰⁾ 이때

Table 3. Finite-rate/eddy-dissipation reaction considered in this study

Reaction	Chemical Reaction	Reaction Type
1	$mv_vol + 1.706O_2 \rightarrow CO_2 + 1.543H_2O$	Volumetric
2	$C(s) + 0.5O_2 \rightarrow CO$	Particle surface
3	$C(s) + CO_2 \rightarrow 2CO$	Particle surface
4	$C(s) + H_2O \rightarrow H_2 + CO$	Particle surface
5	$H_2 + 0.5O_2 \rightarrow H_2O$	Volumetric
6	$CO + 0.5O_2 \rightarrow CO_2$	Volumetric

연료와 산화제의 혼합시간은 난류에디의 붕괴속도인 k/ϵ 에 비례하며 Magnussen 과 Hjertager가 제안한 난류연소모델을 사용하여 화학반응속도와 혼합속도를 고려하였다.

$$w_{fu} = \text{minimum of } [\bar{\rho} A m_{fu} \epsilon / k, \bar{\rho} A (m_{ox}/i) \epsilon / k, \bar{\rho} A (m_{pr} \Lambda + i) \epsilon / k] \quad (6)$$

여기서 i 는 연료의 단위질량당 화학양론적인 산화제의 질량분율을, m_{fu} 와 m_{ox} 는 연료와 산화제의 질량분율, m_{pr} 은 생성물의 질량분율, 그리고 A 는 Lockwood 등이 제시한 경험상수이다.¹⁰⁾

Table 3은 본 연구에서 고려한 가스상 균질반응과 고체-가스상 비균질 반응을 요약하여 나타내었다. 반응 1은 휘발화된 석탄(가스상)의 연소반응이며 반응 2와 3, 4는 좌 연소를 나타낸 것으로 고체-가스상의 비균질 연소반응이다. 특히 반응 2의 좌 연소에 의해 발생한 열(연소반응열)을 반응 3과 4가 흡수하여 가스화 반응이 일어나게 되며 산화제로 사용된 CO_2 와 H_2O 에 의해 합성가스인 CO 와 H_2 가 생성된다. 아레니우스 식으로 표현되는 반응 3과 4의 가스화 반응속도는 서로 같다고 가정하였으며 이는 여러 연구자들의 실험에 의해 검증된 결과이다.^{11~13)} 반응 5와 6은 생성된 합성가스의 연소반응을 나타낸 것으로 가스-가스상의 균질반응이다.

3.5. 경계조건

Fig. 4는 구축된 가스화기 형상을 나타낸 것으로 실제 버너는 Fig. 4c와 같이 연료주입구를 중심으로 8개의 산화제 주입구가 있으나 동일한 면적을 가진 원주둘레로 산화제가 공급된다고 가정하였다. 이는 버너 직경에 비해 가스화기의 전장인 길이 때문에 합리적인 가정으로 판단된다.

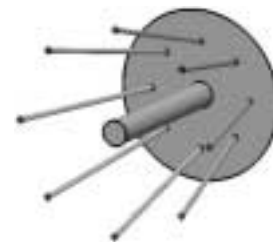
Fig. 5는 Gambit에서 구축된 형상에 대해 생성된 격자를 나타낸다. 버너에는 작은 격자들이 비교적 조밀하게 생성된 반면, 가스화기 중심부에서는 비교적 큰 격자를 생성하여 필요 이상의 계산상의 부담을 최소화하였다. 그러나 복잡한 화학반응이 포함된 연소반응문제에서는 버너와 연소기에서 격자 크기에 따른 제어체적 사이의 불일치 현상에 주의하여 최



(a) geometry of 1.0t/d KIER gasifier



(b) simplified burner design



(c) burner detail

Fig. 4. Schematic diagram of the entrained flow coal gasifier.



Fig. 5. Axisymmetric grid generation (cell # = 4292).

적화된 격자를 생성하여야 하며 본 연구에서는 격자에 대한 민감도 분석결과에 기초하여 4292개의 셀을 구축하였다.

본 연구에서는 상용코드인 Fluent를 사용하여 가스화 반응 특성을 해석하였으며 KIER 1.0T/D 가스화기 출구에 대한 경계조건으로는 압력조건을 주었으며 입구는 Table 4와 같이 실험조건과 동일하게 입력하였다. 산화제와 연료의 주입온도는 400 K으로 가정하였으며 석탄입자는 버너 중앙에서 0.018 kg/s 속도로 공급되며 입자크기분포는 Rosin Rammler 분포를 가정하였다. 공급되는 미분탄 입자크기는 연료/산화제 공급온도와 함께 가스화 특성에 직접적인 영향을 주므로 입자크기를 1 μm 이하로 작게 한 경우와 비교하여 그 민감도 정도를 정량적으로 파악하고자 하였다.

난류모델은 표준 $k-\epsilon$ 모델을 사용하였으며 석탄입자궤적은 stochastic random walk 모델을 고려한 Lagrangian 방법을 사용하였다.¹⁴⁾ 석탄연소 반응모델로는 finite-rate/eddy-dissipation reaction을 사용하였고 CO_2 와 H_2O 가스농도에 따른 흡수/반사계수를 고려한 P1 복사모델

Table 4. Inlet boundary conditions for the 1.0T/D gasifier

	Velocity Magnitude(m/s)	Temperature*(K)	Turbulent Intensity(%)	Hydraulic Diameter(mm)
Fuel Inlet	2.381	400	10	10
Oxygen Inlet	273.25	400	10	30

Table 5. Chemical properties of Datong coal

Proximate Analysis (wt.%)				Ultimated Analysis (wt.%)					Heating values (kcal/kg)
M	VM	Ash	FC	C	H	N	O	S	
9.36	26.43	9.44	54.77	74	4.48	0.44	10.68	0.59	6,910

Table 6. The combustion properties of pulverized coal

Parameter	Standard Condition
Density	1300
Cp	1000
Vaporization Temperature*	550
Volatile Component Fraction*	32.55
Binary Diffusivity	5e-4
Swelling Coefficient	2
Combustible Fraction*	67.45
Combustion Model	multiple surface reaction
Latent Heat (J/kg) *	2.25×10 ⁶
Devolatilization Model(1/s)*	50

* Numerical parameters employed in this study

을 사용하였다. 석탄 연소 및 가스화 반응에서는 석탄 자체의 입자와 생성탄화물에 의한 복사현상 등이 중요하므로 본 연구에 사용한 모델외에 다양한 복사모델에 대한 조직적인 연구가 필요할 것으로 사료된다. Table 5는 사용한 대동탄의 화학조성비를 나타내며 Table 6은 미분탄의 연소특성에 대한 입력 자료를 나타낸 것으로 휘발화 온도, 가연분 및 고정탄소 비율, 증발잠열, 휘발화 속도 등 실험조건과 동일하게 하여 수치해석을 수행하였다. 수치해석으로부터 계산된 가스화기 출구 합성가스 생산량을 실험결과와 비교함으로써 가정된 수학적 모델들을 순차적으로 검증·보완하였다.

4. 수치해석 결과 및 토론

석탄 가스화를 위한 수치해석은 가스와 입자의 이상(二相) 반응과 난류유동에 유기적으로 관계된 여러 현상학적인 모델들을 포함하고 있다. 따라서 적절한 모델검증을 위해서는 석탄의 반응에 대한 반응속도론적인 자료와 함께 실제 가스화기의 운전결과에서 얻어지는 반응 유동장에 대한 실험적인 자료가 요구된다. 이를 위하여 현재 KIER에서는 1.0 T/D 가스화기에서 석탄 및 중질잔사유 등을 포함한 비재래형 연료를 이용한 가스화 실험이 진행되고 있다. 가스화기 내부 및 출구에서 측정된 온도와 합성가스조성비는 산화제와 석탄주입비율,

압력변화, 슬러리 농도 등 운전조건 등에 민감하게 변화하므로 평균 온도범위(1300~1400℃)와 합성가스 조성비(CO와 H₂ 비율, 20~30 vol.%)를 선택하여 가스화 모델을 검증하였다. 특히 실험시 석탄 슬러리의 공급이 원활하지 않을 경우 가스화기 실험결과에 대한 변동 폭이 크므로 수치해석 검증시 공급량의 오차범위를 고려한 정량적인 검증이 신뢰성 있는 실험자료 획득을 위하여 고려되었다.

4.1. 표준조건

실험에서 사용한 대동탄의 경우 Table 5의 조성을 가지므로 회분이 없는 건조된 상태의 석탄조성(DAF, Dry Ash Free)으로 환산하여 계산하였다. 본 연구에서는 고상 석탄입자의 반응과 운동량이 기상반응과 유동에 주는 영향을 최소화하여 계산하고자 하였다. 구체적으로 반복 계산시 발산을 방지하고 수치해석상의 안정성 확보를 위해 공급한 석탄의 입자 크기분포가 1 μm 이하로 매우 작아 기상상태에 가까운 조건에 대한 결과를 구하였다. 이와 같은 조건으로부터 매우 작은 석탄입자인 경우와 실제 입자크기인 경우 석탄입자가 기상유동과 반응에 주는 영향을 평가하고자 하였다. 이러한 입자크기 이완화 방법을 통하여 안정된 가스상의 계산결과를 성공적으로 얻었으며 반복 계산과정에서 최종적으로 실제 실험에서 사용한 입도분포 결과와 동일한 값으로 입력하여 계산을 수행하였다.

일차적인 비교를 위하여 석탄입자가 1 μm 이하로 작을 때의 계산결과를 Fig. 6에 제시한다. 석탄 입자의 크기가 작아짐에 따라 가스화기 내부 온도가 비교적 높은 것으로 나타났다. 즉 버너 입구에서 고온의 화염이 형성되었으며 출구로 갈수록 가스화 반응이 진행됨에 따라 점차적으로 온도가 감소되고 있는 것을 볼 수 있다. Fig. 6b는 석탄입자의 궤적 및 체류시간을 보여주는 것으로 대부분의 입자는 로내 반응에 빠르게 참여하여 출구로 빠져나가는 미연분 함량이 거의 없는 것으로 나타났다.

석탄입도가 감소할수록 비표면적이 증가하고 이에 따라 연소 및 가스화 반응속도가 증가되므로 로내 온도가 높아지고 합성가스 발생량 역시 증가되게 된다. Fig. 6c와 d는 CO와 H₂ 몰 분율을 나타낸 것으로 출구 평균 몰분율은 각각 31.4%, 50.6%로 Fig. 2의 실험에서 얻은 합성가스량(CO:30%, H₂:20%)에 비해 합성가스 생산량이 82%로 다소 높게 계산되었다. 이는 평균 70 μm의 입자분포를 가지는 실험과 달리 석탄의 입자크기를 1 μm 이하로 매우 작다고 가정하였기 때문이며 이외 실험시 발생하는 운전상의 문제(석탄슬러리 공급의 불안정, 버너 노즐막힘 현상 등)로 판단된다.

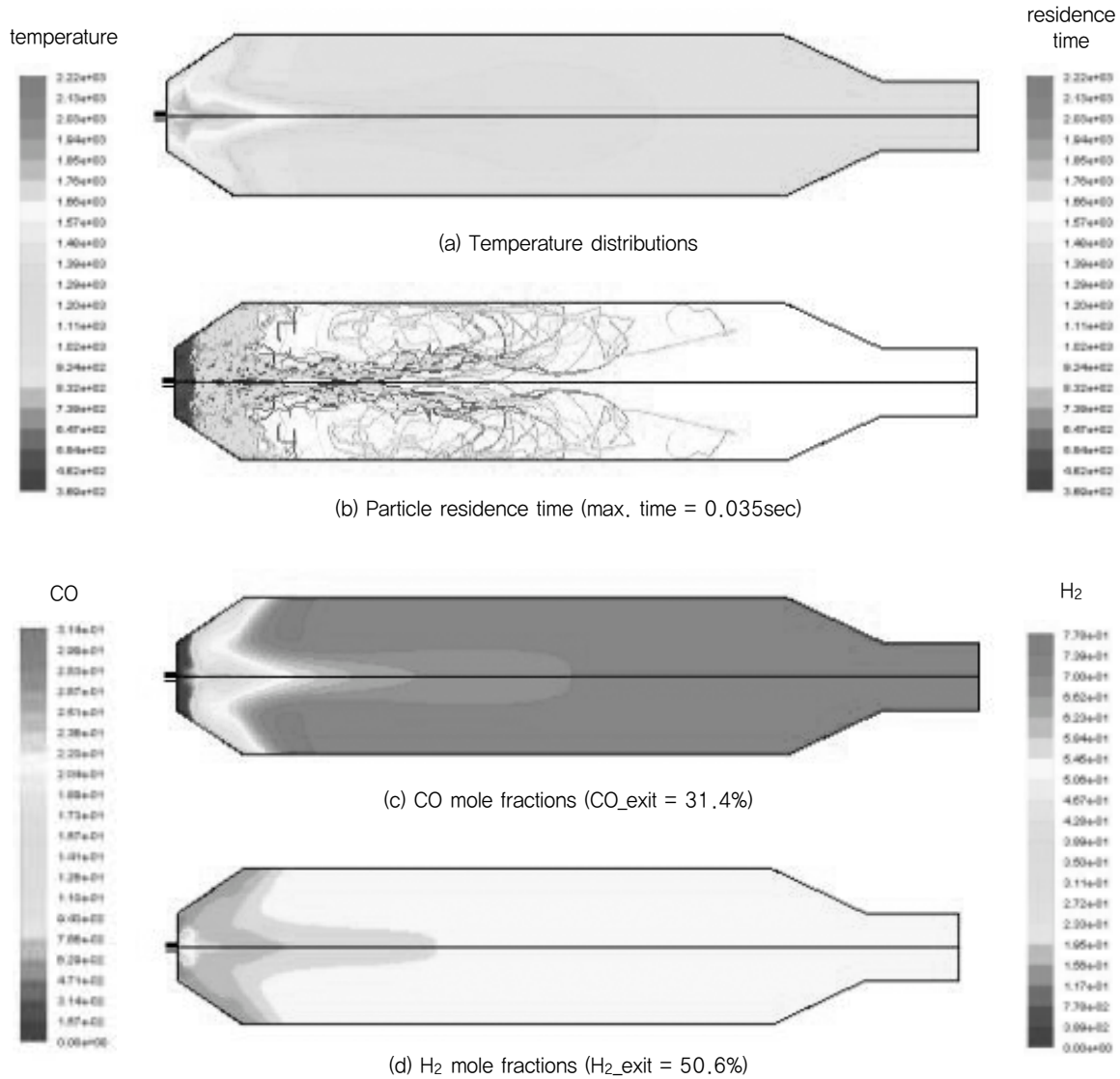


Fig. 6. Gasification characteristics for the pulverized coal in the standard condition.

4.2. 석탄 입자크기 분포

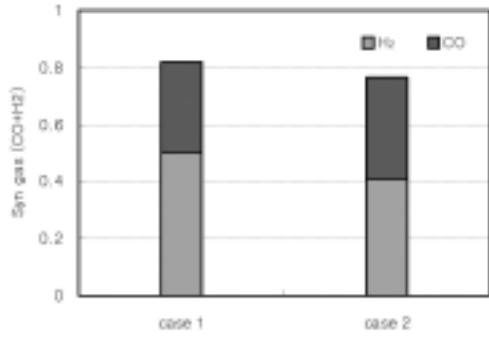
Fig. 7은 석탄의 입자크기분포를 실험조건과 동일하게 한 후 가스화 특성을 평가한 것으로 평균 석탄입경 70 μm , 최대입경 134 μm , 최소입경 5 μm 를 갖는 Rosin Rammler 분포를 가정하였다. 석탄입자가 커짐에 따라 Fig. 6a로부터 버너 근처 중심부에서 보이던 고온의 화염이 사라지고 대체적으로 낮은 온도분포를 보였다. 이는 석탄 입자크기가 커짐에 따라 연소반응이 지연되고 있음을 의미하며 가스화 반응이 진행되면서 출구쪽에서 서서히 온도가 낮아지는 현상을 나타내었다. 또한 석탄입자의 체류시간 역시 1초 이상 증가되었으며 가스화기 내부에서 완전히 휘발화되지 못하고 출구로 빠져나가는 미연분이 계산되었다. 결국 공급되는 석탄 입자가 작을수록 석탄의 휘발화 및 좌의 가스화 반응이 빠르게 진행되는 것을 알 수 있었다.

입자크기변화에 따른 합성가스 생산량과 냉가스효율을 비

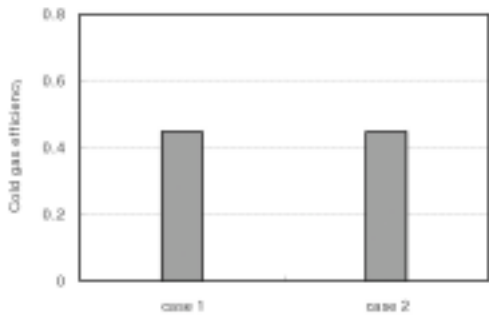
교하여 나타내면 Fig. 7과 같으며 냉가스 효율은 다음과 같이 석탄과 합성가스 발열량의 비로 부터 계산하였다.

$$\text{Cold gas efficiency} = \frac{\text{Chemical energy in the syngas}(CO, H_2)}{\text{Chemical energy in the coal}}$$

1 μm 입자를 가정한 case 1에 비해 70 μm 평균입자를 갖는 case 2의 경우 합성가스 생성량이 76.2%로 약간 감소하였으나 냉가스 효율에는 큰 차이를 나타내지 않았다. 이를 Fig. 2의 실험결과와 비교하여 볼 때 H₂ 생산량이 40%로 비교적 높게 계산되었는데 이는 수치해석시 가스화 반응을 단순화하여 모델을 구축한 것에 기인한 것으로 판단되며 이에 대한 연구가 현재 수행되고 있다. Case 2의 결과를 일차적인 수치해석 표준조건으로 하여 석탄 슬러리 농도 및 가스화기 형상변경에 따른 정량적인 가스화 특성변화를 살펴보았다.

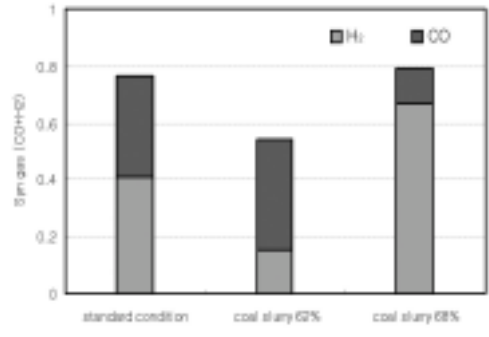


(a) Syngas composition

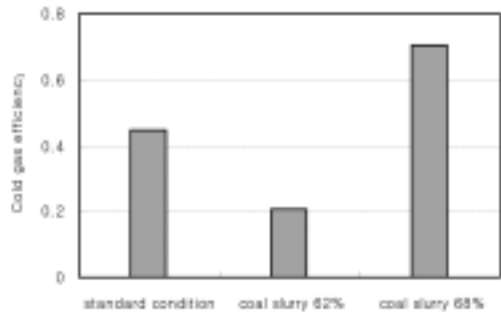


(b) Cold gas efficiency

Fig. 7. Gasification characteristics for the particle size distributions.



(a) Syngas composition



(b) Cold gas efficiency

Fig. 8. Gasification characteristics for the slurry concentrations.

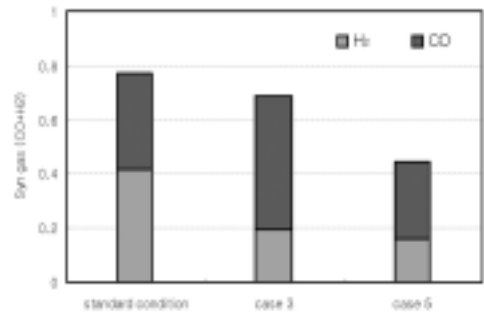
4.2. 석탄 슬러리 농도

본 연구에서 고려한 대동탄에 대한 가스화 반응 열수지 분석 결과 (최-산소반응, 최-스팀반응) 대략 69%의 석탄에 31%의 수분이 혼합된 슬러리 농도가 계산된다. 이를 KIER의 실험 조건인 65% 슬러리 농도를 기준으로 62%, 68% 슬러리 농도와 비교·검토하였다.

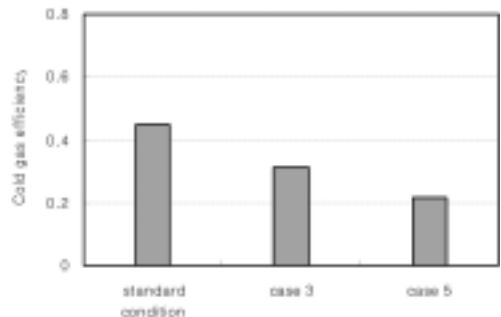
Fig. 8에서 보는 바와 같이 수분함량이 높아진 경우 낮아진 로내 온도로 인해 합성가스 생산량이 상당량 감소하여 석탄 슬러리 농도 62%에서 냉가스 효율 역시 20%로 가장 낮은 결과를 보였다. 반면 석탄슬러리 농도가 68%인 경우, 즉 수분 혼합량이 감소된 경우 합성가스 생산량은 큰 차이를 보이지 않았지만 H₂ 부피비가 증가함에 따라 냉가스 효율은 70%까지 증가되었다. 이는 감소된 수분으로 인해 최-산소의 연소 반응이 버너 근처에서 바로 일어나고 이때 발생한 열을 흡수하여 최-스팀 반응이 원활하게 진행된 것으로 판단된다. 결국 대동탄의 경우 석탄슬러리 농도는 열수지분석으로부터 이론적으로 계산된 68% 농도에서 최적의 냉가스 효율을 나타내었다.

4.3. 가스화기 형상

KIER 1.0T/D 가스화기의 운전조건과 동일한 상태에서 형



(a) Syngas composition



(b) Cold gas efficiency

Fig. 9. Gasification characteristics for the different configuration of a gasifier.

상(전장 대 직경비)을 변경하여 내부 가스화 특성을 평가하였

Table 7. The configuration of gasifier considered in this study

	Diameter (mm)	Height (mm)	Mesh (#)
case 3	250	1600	2847
case 4	500	800	2505
case 5	150	3200	3403

다. Case 3은 표준조건과 동일한 직경에서 전장이 조금 길어진 경우, case 4는 직경이 커지고 전장이 짧아진 경우, 그리고 case 5는 작은 직경에 긴 전장을 가진 가스화기에 대한 합성 가스량과 냉가스 효율을 Fig. 9에 나타내었다. 그림에서 보는 바와 같이 동일한 운전조건에서 형상 변경은 가스화 반응에 직접적으로 영향을 주는 것을 알 수 있으며 합성가스 생산량 및 냉가스 효율 역시 상당량 감소되었다. 특히 전장이 지나치게 짧은 case 4는 가스가 로내에 체류하는 시간이 짧아짐에 따라 가스화 반응이 발생하지 않았다. 결국 가스화기 설계시 높은 합성가스 생산량과 냉가스 효율을 얻기 위해서는 최적의 직경 대 전장비를 결정하여야 할 것으로 판단된다.

5. 결론

KIER에 설치·운영되고 있는 1.0 T/D 석탄 가스화기에 대한 수치해석은 가스와 입자의 복잡한 다상 반응특성을 포함하고 있으므로 모델의 유효성 검증이 쉽지 않다. 가스화 실험시 석탄 슬러리의 공급이 원활하지 않으므로 가스화 반응결과와 변동 폭이 크므로 수치해석 검증시 이의 오차범위를 고려한 정량적인 검증이 수행되었다. 특히 가스화기 내부 및 출구에서 측정된 온도와 합성가스 조성비는 산화제와 석탄 주입비율, 압력변화, 슬러리 농도 등 운전조건 등에 민감하게 변화하므로 평균 온도범위 (1300~1400℃)와 합성가스 조성비 (CO와 H₂ 비율 20~30 vol.%)를 선택하여 일차적으로 가스화 모델을 검증하였다. 본 연구의 주요 연구결과를 정리하면 다음과 같다.

석탄의 입자크기 분포가 1 μm 이하로 작은 경우와 평균입경 70 μm를 갖는 크기분포에 대하여 가스화 특성을 살펴보았다. 석탄 입경이 커짐에 따라 비표면적이 감소되고 이에 따라 연소 및 가스화 반응속도가 지연됨에 따라 합성가스 생산량이 약간 감소하였다. 특히 합성가스 조성 중 CO의 부피비가 증가하고 H₂ 부피비가 감소되었으나 냉가스 효율에는 큰 차이를 나타내지 않았다.

KIER의 실험 조건인 65% 석탄슬러리 농도를 기준으로 62%, 68% 슬러리 농도와 비교·검토한 결과 수분함량이 높아진 경우 낮아진 로내 온도로 인해 합성가스 생산량이 상당

량 감소하였다. 반면 석탄슬러리 농도가 68%인 경우, 즉 수분 혼합량이 감소된 경우 합성가스 생산량에는 큰 차이를 보이지 않았지만 H₂ 부피비가 증가함에 따라 냉가스 효율은 70% 까지 증가되었다.

KIER 1.0 T/D 가스화기의 운전조건과 동일한 상태에서 형상(전장 대 직경비)을 변경하여 내부 가스화 특성을 평가하였다. 표준조건과 동일한 운전조건에서 형상 변경은 가스화 반응에 직접적으로 영향을 주며 합성가스 생산량 및 냉가스 효율 역시 상당량 감소되었다. 특히 전장이 지나치게 짧은 가스화기는 가스가 로내에 체류하는 시간이 짧아짐에 따라 가스화 반응이 일어나지 않았다. 결국 가스화기 설계시 높은 합성가스 생산량과 냉가스 효율을 얻기 위해서는 최적의 직경 대 전장비를 결정하여야 할 것으로 판단된다.

가스화기 내부 반응에 대한 실질적인 측정이 어렵고 기술적인 개발이 활발하게 이루어지고 있는 현 상태에서 수치해석을 이용한 다양한 설계 및 운전변수에 대한 가스화 반응 특성 평가는 효과적인 방법이라 판단되나 이를 위해서는 지속적인 가스화 모델 검증과 보완을 위한 연구가 지속적으로 수행되어야 할 것으로 사료된다.

KSEE

사 사

본 연구는 한국에너지기술연구소의 지원으로 수행하는 일반 기본연구로 수행되었으며 이에 감사드립니다.

기호설명

V	휘발성물질 함유량
T _g , T _s	가스온도 및 고체표면 온도
K _c	표면반응 속도상수
K _d	물질확산 속도상수
P	압력
d _p	석탄입자크기
\bar{m}_{fu} , \bar{m}_{ox} , \bar{m}_{pr}	연료, 산소, 생성물의 평균질량분율
k	난류생성에너지
ε	난류소멸에너지

참고문헌

1. 석탄신공정 - IGCC(Integrated Gasification Combined Cycle) 기술, www.coal.or.kr (2009).
2. 박태준, “중질유 IGCC 플랜트의 건설 및 시운전 현황,” IGCC W/S, RIST, Pphang, Korea, November 30 (2000).
3. 한국에너지기술연구원, “습식 분류층 가스화 장치 핵심 설계 소프트웨어 개발(II),” 최종보고서 (2008).
4. Chui, E. H., Majeski, A. J., Lu, D. Y., Hughes, R., Gao, H., McCalden, D. J. and Anthony, E. J., “Simulation of entrained flow coal gasification,” *Energy Procedia* **1**, 503~509 (2009).
5. 한국에너지기술연구원, “중질유 및 석탄슬러리를 원료로 하는 습식분류상 가스화 기술개발,” 최종보고서, KIER-A24504 (2002).
6. 박태준, 김재호, 손성근, 이재구, 홍재창, 김용구, 최영찬, “IT/D급 습식분류상 석탄가스화기에서의 석탄가스화 특성 연구,” 한국에너지공학회지, **8**(4), 553~559 (1999).
7. Migdal, D. and Agosta, V. D., “A source flow model for continuum gas-phase flow,” *Trans. ASME, J. Appl. Mech.*, **34**, 860~865 (1967).
8. Field, M. A., Gill, D. W., Morgan, B. B. and Hawksley, P. G. W., “Combustion of pulverized coal,” The British Coal Utilization Research Association, Leatherhead, England (1967).
9. Choi, Y. C., Li, X. Y., Park, T. J., Kim, J. H. and Lee, J. G., “Numerical study on the coal gasification characteristics in an entrained flow coal gasifier,” *Fuel*, **80**, 2193~2201 (2001).
10. Magnussen, B. F. and Hjertager, B. W., “On the structure of turbulence and a generalised eddy dissipation concept for chemical reaction in turbulent flow”, 19th AIAA Aerospace Meeting, St. Louis, USA (1981).
11. Watanabe, H. and Otaka, M., “Numerical simulation of coal gasification in entrained flow coal gasifier,” *Fuel*, **85**, 1935~1943 (2006).
12. Brown, B. W., Smoot, L. D., Smith, P. J. and Hedman, P. O., “Measurement and prediction of entrained-flow gasification processes,” *AIChE Journal*, **34**(3), 435~446 (1988).
13. Shi, S., Zitney, S. E., Shahnam, M., Syamlal, M. and Rogers, W. A., “Modeling coal gasification with CFD and the discrete phase method,” Fluent TN287 (2005).
14. Launder, B. E. and Spalding, D. B., “The numerical computation of turbulent flows,” *Comp. Meth. and Eng.*, **3**, 269~289 (1974).