바이오가스의 극저온 액화기술

장 호 명[1], 박 성 범[2], 성 현 제[2]
홍익대학교 기계시스템디자인공학과[1]
한솔이엠이(주) 환경연구소[2]

1. 서 론

바이오가스는 매립지나 혐기성 소화조에서 유기물질이 혐기성 미생물에 의해 분해되면서 발생하는 가스로 메탄(CH_4)과 이산화탄소(CO_2)가 주성분이다. 두 기체는 모두 지구온난화에 영향이 큰 온실가스이기 때문에 바이오가스를 연료화하면 재생 에너지의 활용과 함께 온실가스 저감에도 기여할 수 있어 최근에 다양한 활용기술이 연구되고 있다.

우리나라의 경우, 바이오가스의 이용은 중대형 매립지를 중심으로 발전에만 편중되어 가스엔진 등 주요 기자재를 수입하여 공정을 구성하는 수준에서 실용화가 진행되고 있으며, 선진국과 같이 바이오가스를 고질화된 자동차용 연료로 이용하려는 시도는 미미한 실정이다. 표 1은 국내 대표적인 매립지의 바이오가스 발생량을 나타내고 있다.

바이오메탄은 바이오가스를 정제하여 메탄의 함량이 95% 이상인 상태로서, 이를 차량용 연료로 활용하기 위해서는 에너지밀도를 높여야 하는데, 압축천연가스(CNG: compressed natural gas)와 액화천연가스(LNG: liquefied natural gas)가 대표적인 방법이다. CNG는 상온에서 고압으로 압축하여 저장하는 기술로 설비가 간단하고 경제성이 높아 이미 시내버스 등에 널리 활용되고 있으나, 저장용량의 한계로 장거리 운전이 어렵고 고압탱크의 안전성에 문제가 있다. 반면에 LNG는 대기압의 극저온 액체로 저장하기 때문에 에너지 저장밀도가 매우 커서, 대형 선박이나 탱크로리 등의 대용량 수송에 사용되고 있으나, 극저온 액화와 저장에 따른 경제성과 증발기체(BOG: boil-off gas)의 손실 등이 단점으로 지적되고 있다.

바이오가스는 그 생산량이 다소 제한적이고 지리적 여건상 파이프라인을 설치하여 수요자에게 공급하기는 적합하지 않다. 따라서 최근

표 1. 국내 대표적인 매립지의 바이오가스 발생량.

매립지명	운영 개시일	바이오가스 발생량 (m^3/min)
수도권 매립지	2001. 12	900
부산 생곡 매립지	2003. 5	114
대전 금고 매립지	2003. 7	50
포항 호동 매립지	2002. 6	25
제주 회천 매립지	2003. 4	20
군산 내초 매립지	2002. 12	30
광주 운정 매립지	2003. 12	53
청주 학천 매립지	2004. 2	31
난지도 매립지	2001. 11	326
울산 성암 매립지	2002. 11	52
합 계		1,604

미국과 유럽에서는 바이오가스를 정제하여 생산된 바이오메탄을 액화하는 중소형 액화기를 개발하여 상업화단계에 이르고 있다.

이 글에서는 국내에서 지식경제부의 지원으로 진행 중인 "바이오가스 액화공정을 통한 LNG 생산 및 CO_2 회수기술" 개발과제의 개요를 간략히 소개하고, 바이오메탄 극저온 액화사이클의 열역학설계, 그리고 최근에 설치 완료된 Pilot Plant의 제작/설치 및 시운전 결과를 간략히 기술하기로 한다.

2. 신재생에너지 기술개발 과제

"바이오가스 액화공정을 통한 LNG 생산 및 CO_2 회수기술" 개발과제는 지식경제부에서 시행하는 신재생에너지 기술개발사업의 일환으로 2007년에 시작되었다. 이 과제에서는 바

이오가스를 정제하여 바이오메탄을 생산하고 생산된 바이오메탄을 액화하여 하루에 1,000 gallon(약 66.6 kg/hr)의 LNG를 생산할 수 있는 Pilot Plant의 설계, 제작, 운전을 목표로 하고 있다. 여기에는 바이오가스의 전처리기술(주로 수분, 황화수소, 실록산 등의 제거) 및 CO_2-CH_4의 고효율 분리기술이 기반기술로 포함되며, 가장 핵심이 되는 기술은 바이오메탄의 극저온 액화기술이다. 이 Pilot Plant는 경제성 확보와 Skid-Mount가 가능한 소형화를 지향하고 있다.

주관기관은 한솔이엠이(주)이며, 참여기업으로 리텍솔루션(주)과 위탁연구기관으로 서울산업대학교와 홍익대학교가 참여하는 산학협동과제로 구성되었다. 총 연구기간은 3년으로, 현재 마지막 3차년도 사업이 진행 중이다.

향후 상용공정은 하루 5,000-22,000 gallon LNG 액화규모의 설비로 예상되며, 이를 위한 Scale-Up기술의 확보도 연구내용에 포함되어 있다. 이 기술은 국내 중소규모 매립지 및 혐기성 소화조의 바이오가스 소각설비 또는 발전설비의 대체설비로 활용될 수 있을 뿐 아니라, 중국, 말레이시아, 태국, 베트남 등 주변국에 전략적 수출도 가능할 것으로 기대된다.

3. 메탄 액화 사이클의 종류

메탄의 대기압 액화온도는 약 111 K(-162℃)이며, 표준상태(1기압 298K)의 기체 1 kg을 액화하는데 필요한 열역학 최소일은 약 1076 kJ이다. 이러한 이상적인 액화 사이클은 엔트로피가 전혀 생성되지 않는 가역과정을 통해 구성이 가능하나, 실제 액화기에서는 사이클 및 냉매의 종류, 운전조건, 부품의 성능 등에 따라 이보다 적게는 2배(예: 초대형 액화플랜트)에서 많게는 10배(예: 소형 액화설비)까지 더 많은 일이 필요하다. 액화기의 성능을 나타내는 열역학 액화효율(FOM)은 소비된 실제 일에 대한 최소 일의 비로 정의되어, 50%에서 10%의 범위에 있는 셈이다.

기본적인 세 가지 액화 사이클의 구성은 그림 1과 같다. JT사이클은 냉매가 상변화를 하는 증기사이클로 액체냉매가 JT밸브에서 스로틀 팽창한 후, 증발하면서 냉동을 수행한다. 반면에 Brayton 사이클은 기체 사이클로 냉매는 저온팽창기를 통해 저온에 도달하고 기체 상으로 냉동을 수행한다. Claude사이클은 두 사이클을 조합한 구성으로 저온에서의 상변화는 JT사이클이며 중간온도에서 팽창기를 이용한다.

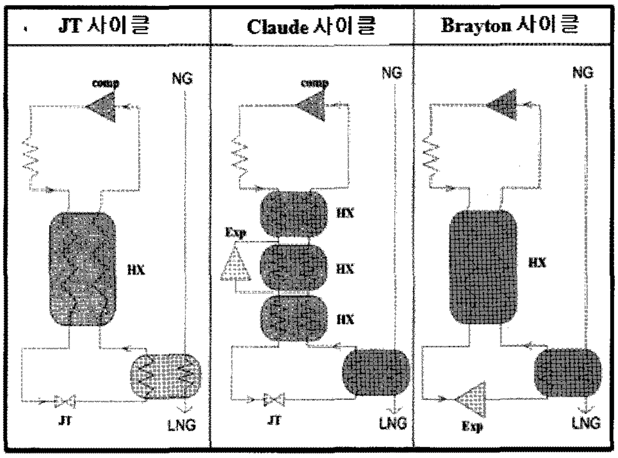

그림 1. 세 가지 기본 액화 사이클의 구성.

표 2. 메탄 액화사이클의 종류와 특징.

액화 사이클	특 징
예냉 JT사이클	낮은 냉각효율 복잡한 구성
캐스케이드 사이클	중간 냉각효율, 편리 운전 대용량, 여러 냉매 사용
혼합냉매 사이클	높은 냉각효율 중대형 LNG 생산시설
Claude 사이클	메탄을 직접 냉매로 사용 중소용량 액화기
역Brayton 사이클	고성능 및 간단, 소용량 터보팽창기 사용
액체질소 개방사이클	간단한 냉각공정 소형 LNG 생산시설

상용화 플랜트에 적용되고 있는 대표적인 메탄 액화사이클의 종류와 특징이 표 2에 정리되어 있다. JT사이클은 가장 간단한 냉동사이클로 냉매의 열역학특성을 이용하기 때문에 사용가능한 냉매가 제한적이며, 액화효율도 낮은 편이다. 실제로 액화효율을 높이기 위해서는 고온부에 프로판 또는 암모니아를 냉매로 이용하는 예냉사이클을 추가하여 예냉JT 사이클로 구성되어야 한다. 그리고 효율을 더욱 향상시키기 위해서 보통 프로판(C3)-에틸렌(C2)-메탄(C1)을 직렬 연결한 캐스케이드

(cascade)사이클도 널리 이용되고 있다. 각 냉매의 JT사이클도 3단으로 구성하여 총 9단 냉각시스템이 되면 우수한 효율이 가능하지만, 장치가 점점 더 복잡하게 되어 소규모 시스템에는 적합하지 않다.

혼합냉매(MR: mixed refrigerant)를 이용한 JT사이클은 여러 단을 구성하지 않아도 높은 효율을 낼 수 있는 장점이 있다. 부탄(C4), 프로판(C3), 에탄(C2), 메탄(C1), 질소(N2) 등을 최적의 비로 혼합된 냉매를 이용하면 간단한 장치로 가장 높은 효율을 얻을 수 있다. 반면에 MR사이클은 유지보수가 어렵고 운전에 전문성을 요구하는 단점이 있다.

Claude사이클은 널리 상업화된 공기액화기와 마찬가지로 별도의 냉매를 사용하지 않고 메탄을 직접 압축하여 액화하는 사이클이다. 효율은 높은 편이나 설계와 운전이 어렵고, 유량과 순도가 일정하지 않은 바이오가스의 액화 사이클로는 적합하지 않다.

Brayton 사이클은 JT사이클의 JT밸브를 팽창기로 대치한 구성으로, 이론적으로 두 개의 등압 과정과 두 개의 등엔트로피 과정으로 이루어진다. 기체사이클로 질소, 헬륨 등을 냉매로 사용할 수 있으며, 소용량과 소형화가 요구되는 바이오가스의 액화에 가장 적합한 사이클로 판단된다. 소형 터보팽창기의 가용성과 성능이 실용화에 가장 중요한 요소이다.

4. 액화사이클 열역학 설계

Brayton 사이클을 이용한 메탄 액화시스템의 기본 구성은 그림 2와 같다. 좌측의 냉동사이클은 압축(1-2), 후냉각(2-3), 재생 열교환(3-1, 7-1), 팽창(4-5), 냉동(5-6-7)으로 구성되어 있다. 우측의 바이오메탄은 상온에서 포화온도까지 기체 상에서 냉각(a-c)된 후, 응축(c-b)된다. 편의상 재생 열교환기를 RHX, 액화 열교환기를 LHX로 각각 표기한다.

메탄 액화용 Brayton 사이클의 냉매로는 헬륨과 질소가 가능하다. 열역학 해석을 수행한 결과, 시스템의 소형화에는 헬륨이 더 유리하지만 고효율에는 질소가 더 유리할 것으로 예측되었다. 또한, 질소는 포화온도가 LNG 온도와 차이가 적어 팽창기 출구에서 액적생성의 가능성이 더 큰 것으로 평가되었지만, 헬륨이 누설 가능성과 가격이 상대적으로 더 높은 단점이 있다. 여러 가지 면을 종합적으로

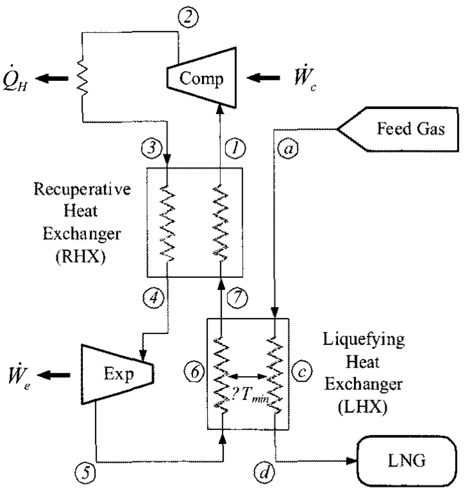

그림 2. 질소 Brayton 사이클을 이용한 액화 공정.

고려하여 질소를 적정 냉매로 선정하였다.

극저온용 열교환기는 여러 가지 형태가 가능하나, 가장 대표적이며 국내 생산이 가능한 판-핀(plate-fin) 열교환기를 채택하였다. 액화기를 구성하는 판-핀 열교환기의 구성은 그림 3과 같다. 판과 판 사이에 굴곡판은 전열면적을 넓히는 확장표면(extended surface)의 역할과 판 사이 간격을 유지하는 스페이서(spacer)의 역할을 동시에 한다. 상부의 RHX는 고압 질소와 저압 질소 사이의 향류열교환기이며, 하부의 LHX는 저압 질소과 액화되는 메탄사이의 향류열교환기이다.

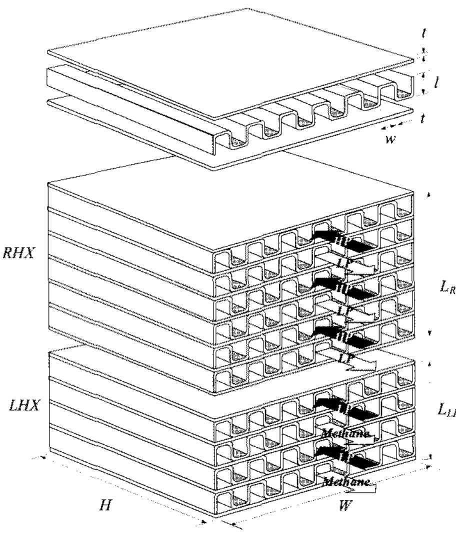

그림 3. 향류 판-핀 열교환기의 구조.

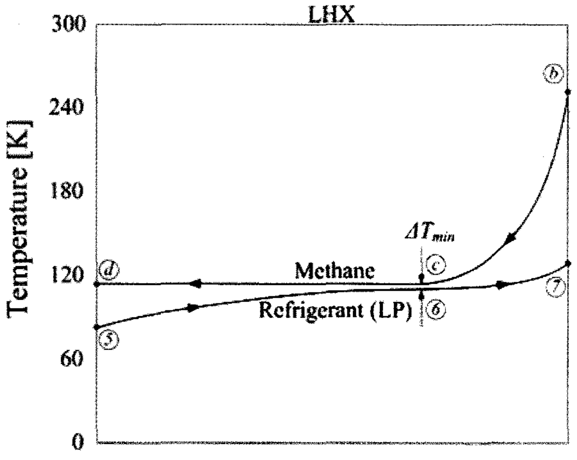

그림 4. 액화 열교환기의 온도 핀치점.

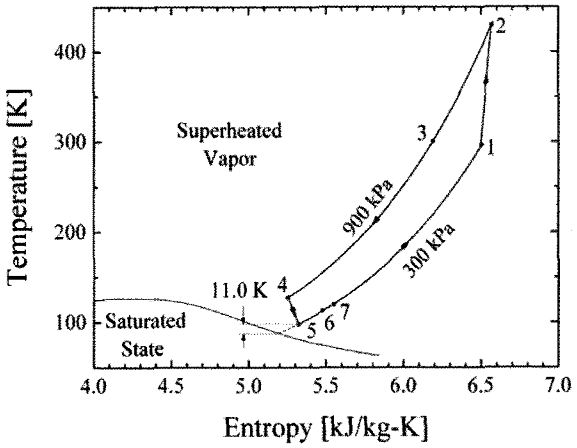

그림 6. 온도-엔트로피 선도상의 질소 사이클.

열교환기의 설계에서 가장 주의해야 하는 점은 LHX의 온도 핀치점 문제이다. 그림 4와 같이 기체냉매가 메탄을 액화시키려면, 상변화로 인해 메탄이 포화증기인 위치(c-6)에서 두 유체 사이의 온도차가 최소가 되는 핀치점을 갖게 된다. 이런 경우, 일반 열교환기에 비해 충분히 큰 전열면적으로 설계해야 한다.

Brayton 사이클에 가장 중요한 설계변수는 압력비이다. 일반적으로 압력비가 작을수록 효율이 증가하나, 이를 실현하기 위해서는 냉매의 유량이 커야 하고 따라서 열교환기의 크기도 커진다. 열교환기의 크기가 주어지면 그림 5와 같이 최적의 압력비가 존재하는데, 이 시스템의 경우 약 3.0 근처로 계산되었다.

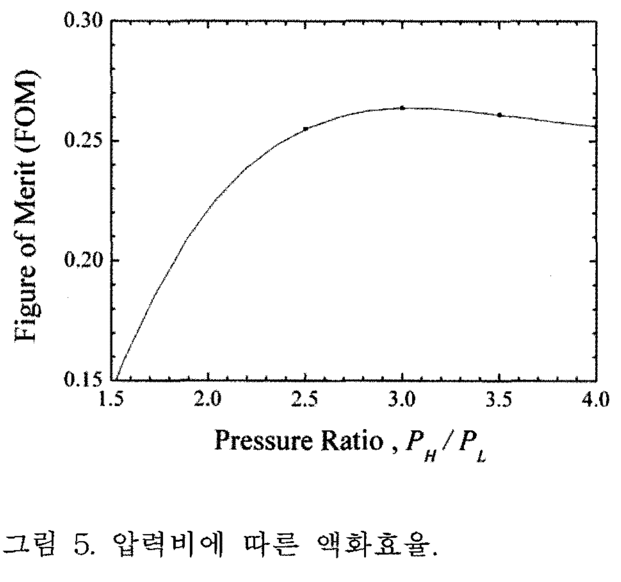

그림 5. 압력비에 따른 액화효율.

바이오가스를 액화하여 하루 1,000 gallon의 LNG를 생산하는데 적합한 Brayton 사이클을 설계하였고, 그 결과를 그림 6의 온도-엔트로피 선도에 나타내었다. 사이클에서 저압과 고압은 각각 300 kPa, 900 kPa이며, 전체 열교환기의 크기가 주어졌을 때, RHX와 LHX의 크기는 약 60:40 정도로 분배하는 것이 가장 적합하다.

5. Pilot Plant의 제작 및 시운전

열역학 설계를 바탕으로 1,000gallon LNG /day급 Pilot Plant의 상세설계를 수행하였고, 수도권매립지(인천광역시 서구 백석동 소재)에 제작 설치하였다. 그림 7에 Pilot Plant의 전경과 주요 설비가 표시되어 있다.

좌측 하단으로 바이오가스가 유입되면 전처리 설비에서 수분, 황화수소, 실록산 등을 제거하고 상부 중앙에 위치한 PSA(Pressure Swing Adsorption)에서 이산화탄소가 분리된다. 99% 이상의 순수 메탄은 우측 하단의 저온 용기(Cold Box)에서 질소가스와 열교환을 통해 냉각 및 액화되어 우측에 위치한 LNG 탱크에 저장된다.

질소압축기는 중앙에 위치하고 있으며, 냉각수는 좌측의 냉각탑에서 냉각된다. Brayton 사이클의 핵심 부품인 터보팽창기는 공기 베어링 방식으로 약 70,000 rpm까지 운전이 가능하며, 생산된 동력으로 질소 가스를 2차 압축하는 부스터 압축기와 축으로 연결되어 소

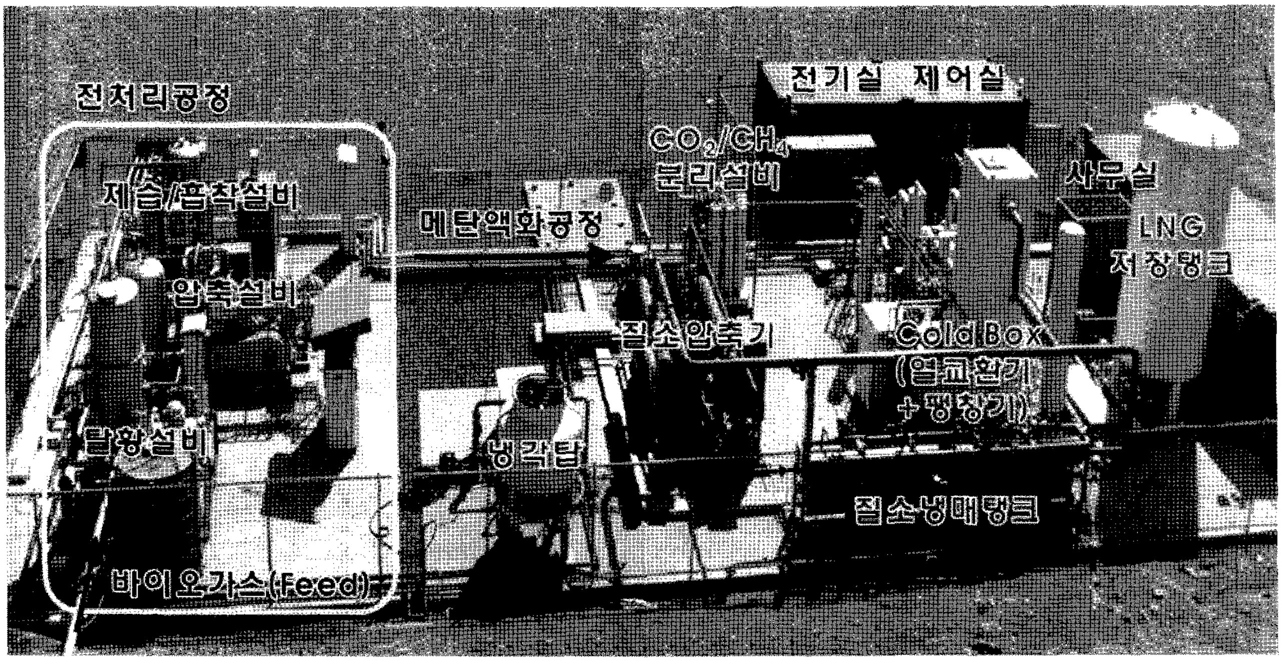

그림 7. Pilot Plant의 전경 및 주요 구성품.

위 컴팬더(Compander)를 이루고 있다.

설치 완료된 Pilot Plant는 2010년 3월 12일부터 15일까지 1차 시운전을 실시하였고, 추가적인 설비 보완작업을 거처 6월 1일부터 3일까지 2차 시운전을 실시하였다. 외기 조건에 따라 다소 유동적이기는 하나 전체적으로 하루 평균 1,100 gallon의 LNG를 성공적으로 생산하였다.

6. 결 론

한국가스공사에서 운영하는 인천기지와 평택기지에는 대량의 LNG가 저장되어 있다. 그 LNG가 인도네시아 또는 걸프만의 가스전에서 얻은 천연가스를 외국기술로 액화한 제품이라면, 이 LNG는 우리나라에서 만들어진 바이오가스를 국내에서 개발된 액화기술로 얻은 LNG라고 할 수 있다. 말 그대로 "최초의 순수 한국산(Made in Korea) LNG"인 셈이다. 지식경제부의 사업으로 진행되고 있는 이 연구개발과제의 성공이 지구온난화와 재생에너지 활용에 크게 기여하기를 기대해 본다.

감사의 글

본 사업은 지식경제부 신재생에너지 기술개발사업의 일환으로 수행된 "바이오가스 액화공정을 통한 LNG 생산 및 CO_2회수 기술"(과제번호:2007NBI02P0100002008)에 관한 연구의 결과입니다.

참고문헌

[1] Flynn, T.M., Cryogenic Engineering, 2nd ed., CRC Press, 2008.
[2] D.F. Gongaware, M.A. Barclay, J.A. Barclay, M.P. Skrzypkowski, "Conversion of a waste gas to liquid natural gas," Advances in Cryogenic Engineering, Vol. 49, pp. 83-90, 2004.
[3] M.A. Barclay, E. Gongaware, K. Dalton, M.P. Skrzypkowski, "Thermodynamic cycle selection for distributed natural gas liquefaction," Advances in Cryogenic Engineering, Vol. 49, pp. 75-82, 2004.
[4] Q.H. Fan, H.Y. Li, Q.S. Yin, L.X. Jia, "Design and analysis of small-scale biogas liquefaction cycle," Advances in Cryogenic Engineering, Vol. 53, pp. 1166-1174, 2008.
[5] H.M. Chang, M.J. Chung, M.J. Kim, S.B. Park, "Thermodynamic design of methane liquefaction system based on reversed-

Brayton cycle," Cryogenics, Vol. 49, pp. 226-234, 2009.

저자이력

장호명(張鎬明)

1960년 9월 21일생, 1983년 서울대학교 기계공학과 졸업(공학사),1988년 미국 M.I.T. 기계공학과 졸업(Ph.D.), 1990년~현재 홍익대학교 기계공학과 교수.

박성범(朴城範)

1965년 9월 29일생, 1988년 서울대학교 화학과 졸업(학사), 1992년 동 대학원화학과 졸업(석사), 2003년~현재 한솔이엠이 환경연구소 연구소장.

성현제(成鉉濟)

1967년 8월 12일생, 1991년 한양대학교 화학과 졸업(학사), 1994년 동대학원 화학과 졸업(석사), 2006년~현재 한솔이엠이 환경연구소 수석연구원.