

반탄화에 의한 커피박 연료특성

오도건*, 김용현**, 손홍석

Fuel Properties of Spent Coffee Bean by Torrefaction

Dohgun Oh*, Yonghyun Kim** and Hong-seok Son

Abstract

This research analyzed the fuel characteristic change of spent coffee bean by torrefaction. The calorific value was increased from 4,974 kcal/kg to 6,075 kcal/kg (260°C, 30min), 6,452 kcal/kg (270°C, 30min), 6,823 kcal/kg (280°C, 30min), 6,970 kcal/kg (260°C, 30min). The highest energy yield was obtained when the spent coffee bean were torrefied on the condition of 280°C, 30min. The moisture absorption rate was decreased from 5.12% to 2.76% when the spent coffee bean were torrefied on the condition of 290°C, 30min. Lignin was increased from 11.33% to 14.39% on the condition of 260°C 30min. But it did not preferability to torrefy spent coffee bean at temperature of more than 270°C because lignin decreases to the level that is hard to make pellet.

Key words

Torrefaction(반탄화), Spent Coffee bean(커피박), Biomass-Solid Refuse Fuel(바이오고형연료), Hemicellulose(헤미셀룰로오스), Higher Heating Value(고위발열량), Moisture Absorption Rate(흡습율), Carbonization Pellet(탄화펠릿)

(접수일 2013. 7. 31, 수정일 2013. 8. 30, 게재확정일 2013. 8. 30)

* ㈜유니바이오 (Unibio corporation research & development center)

■ E-mail : odg@unibio.co.kr ■ Tel : (062)674-0586 ■ Fax : (062)674-0587

** ㈜유니바이오 (Unibio corporation research & development center)

■ E-mail : unibio@unibio.co.kr ■ Tel : (062)674-0586 ■ Fax : (062)674-0587

1. 서론

고유가와 교토의정서에 의한 기후변화 대처가 절실한 상황에서 저비용의 신재생에너지 생산 및 조기 성과창출, 온실가스 감축을 위해 폐자원 및 바이오매스 에너지에 대한 관심이 고조되고 있으며, 이의 일환으로 각국에서 가축분뇨 자원화, 농산 바이오매스 에너지화 및 바이오디젤 생산, 수산 및 해양 바이오매스 에너지화, 산림 바이오매스 에너지화 등이 추진되고 있다.

산림 바이오매스 에너지화 부문에서 북미와 유럽을 중심으로 가장 활성화 되고 있는 분야가 미활용 목재 및 부산물

을 이용한 목재펠릿연료 산업으로 2006년도 북미지역에서는 80개 이상의 제조업체들이 연간 230만톤의 목재펠릿을 생산하고 있으며, 유럽에서는 300개 이상의 업체가 연간 총 450만톤의 펠릿을 생산하고 있다.⁽¹⁾ 목재 펠릿은 제재 부산물 또는 숲가꾸기 산물 등을 톱밥으로 파쇄한 후 압축해 만든 목재연료를 지칭하는 것으로 기존 목재연료와 비교해 밀도를 약 3배정도 압축해 단위 부피당 발열량을 증가시키고 형태와 크기를 일정하게 해 정량공급이 가능한 장점이 있다. 또한 목재성분인 리그닌이 접착제 역할을 함으로써 별도의 첨가제를 사용하지 않고 석탄이나 무정형 목재연료 대비 일산화탄소 및 분진배출량이 적어 친환경 연료로 평가 받고 있

으며, 연료비가 경유의 57%, 보일러 등유의 85% 수준인 대체 에너지이다.⁽²⁾

그러나 목재펠릿은 발열량이 4,300kcal/kg 내외로 화석 연료 대비 현저히 낮고 목재 특유의 흡습성에 기인한 자연분해에 따른 품질저하 문제로 저장비용이 높은 단점이 있다.⁽³⁾ 또한 셀룰로오스 등 섬유질로 구성되어 있어 석탄혼소발전소 혼소시험결과 석탄과의 혼소에 적합한 입도로 분쇄하기 위한 추가공정 및 에너지 비용이 소요되는 문제점이 대두되고 있다. 원재료수급 측면에서도 신재생에너지 발전의무비율 할당제(RPS : Renewable Portfolio Standards) 이행을 위한 각국의 목재자원 확보전쟁이 가속화 되고 있어 목재펠릿의 원재료인 산림자원의 수급 어려움이 가중되고 있다.

최근 유럽을 기점으로 이러한 목재자원의 문제점을 개선한 탄화바이오매스의 개발이 가속화 되고 있다. 탄화바이오매스는 바이오매스를 200~300℃로 열분해 하여 흡습성분인 헤미셀룰로오스를 분해하여 hydroxyl radicals을 감소시킴으로써 흡습성을 감소시키고 휘발성 유기화합물을 제거하여 공정에서 에너지원으로 재활용함으로써 목재펠릿 대비 제조원가를 절감⁽¹⁶⁾하는 한편, 탄소 비율을 높임으로써 석탄 특성에 보다 가까운 에너지원으로 변환하는 것으로 bio-char 또는 bio-coal이라고도 불리운다. 탄화바이오매스는 탄화에 의해 목질계 바이오매스의 섬유질이 감소되어 분쇄가 용이하게 함으로써 석탄과의 혼소가 쉽고 흡습성 및 자연분해성이 개선되어 저장성이 제고되며, 발열량은 유연탄(bituminous coal)의 26MJ/kg에 약간 못 미치는 수준이나 전건목재 및 우드펠릿 발열량 17~18MJ/kg 보다 높은 특성이 있다. 한편으로는 반탄화에 의해 휘발성유기화합물을 제거하는 공정 특성으로

인해 원재료 범위가 바이오매 산림자원에 한정되지 않고 오염도가 낮은 폐바이오매스 까지 확대할 수 있는 장점도 있다.

커피박이란 원두에서 커피를 추출하고 남은 잔사로 목질계 성분인 셀룰로오스, 헤미셀룰로오스, 리그닌이 목재 수준으로 함유되어 있으며 발열량은 5,855kcal/kg으로 1급 목재펠릿 발열량인 4,300kcal/kg를 1,500kcal/kg 이상 상회하며, 회분함유량 2%이하로 연료가치가 목재자원보다 높은 폐바이오매스 자원이다.⁽⁴⁾ 우리나라의 2010년 커피박 발생량은 전건기준 약 14만톤에 이르며 연평균 8% 이상 수입규모가 급증하고 있으나 대부분 폐기되고 있다. 이는 2011년 보급계획인 목재펠릿 11만톤을 전량 대체할 수 있고 2010년 기준 열병합발전소 수요량인 60만톤의 23%에 달하는 규모이다.⁽⁵⁻⁷⁾

따라서 본 연구에서는 국내에서 발생하는 커피박을 이용하여 반응온도와 시간에 따라 반탄화 처리를 수행하여 물리, 화학적 특징 및 연료로서 이용가능성을 조사하였으며, 중량감소율과 에너지 수율을 고려한 최적의 반탄화 조건을 탐색하였다. 반탄화는 반응이 진행되는 동안 중량감소와 에너지 수율 감소를 가져오며, 헤미셀룰로오스 뿐만 아니라 일정비율의 셀룰로오스 및 펠릿성형시 접착제 역할을 하는 리그닌 감소도 수반하므로 과도한 반탄화는 바이오매스의 성형을 어렵게 만든다. 따라서 에너지수율을 극대화 시키는 한편, 리그닌 감소를 최소화함으로써 펠릿형태로 제조 가능한 탄화바이오매스 제조조건 탐색이 필요하다.

2. 실험

2.1 대상시료

커피박은 동서식품(주) 부평공장에서 수거하여 반탄화 처리전 105℃에서 24시간 건조하여 전건상태로 유지한 후 착유기(내쇼날이엔지, 오일러브프리미엄)를 이용하여 160℃에서 가열압착법에 의해 착유함으로써 커피박내 함유된 유지성분을 제거한 후 수거된 커피박을 30mesh 이하로 분쇄하여 사용하였다.

2.2 반탄화 공정

반탄화를 위한 시스템은 Fig. 2와 같다. 교반식 로스터(동

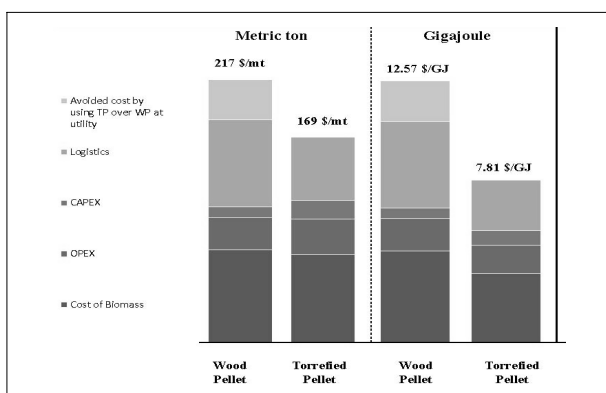


Fig. 1 Production cost of wood pellet and torrefied pellet⁽¹⁶⁾

광유압, D-1692)를 예열하여 하부에 위치한 열판의 온도를 300℃에 도달하게 한 후 탈지된 커피박을 투입하고 커피박의 온도가 반탄화 목표온도(260, 270, 280, 290℃)에 도달한 후 30분간 반탄화 하였다. 반응이 종료된 후 진공이송기를 이용하여 저장탱크로 이송하여 100℃ 이하로 냉각시켰다. 반응온도 및 반응시간은 기존의 연구결과를 바탕으로 설정하였다.⁽⁹⁾ 반응시간 동안 생성된 가스는 열교환기를 이용하여 냉각하여 1차 포집하고 스크리버를 이용하여 세척함으로써 악취를 제거하였으며, 스크리버를 통과한 비응축성 가스는 건조용 열원에 투입하여 소각하였다. 반응기간 동안 질소는 투입하지 않았으며, 1회 투입량은 20kg, 함수율은 5% 내외, 발생가스의 배출량은 1.5m³/min 였다.

2.3 연료 분석기기

원소분석은 자동원소분석기(Vario MACRO/elementar)에 17mg 내외의 반탄화 커피박을 투입하여 C,H,N,S 구성비를 분석하였으며, 발열량은 폭발열량계(리코코리아, AC-350)에 0.3g의 시료를 투입하여 3회 고위발열량을 측정한 후 평균값을 사용하였다.

2.4 에너지수율

에너지수율은 Rodrigues and Rousset가 제시한 방법⁽⁹⁾에 따라 다음의 식 (1)과 (2)를 이용하여 계산하였다.

$$\text{Gravimetric yield (Yg)} = \frac{\text{Torrefied biomass}}{\text{Input biomass}} \times 100 \quad (1)$$

$$\text{Energy yiled (%) } = Yg \times \frac{\text{Torrefied biomass higher heating value}}{\text{Input biomass higher heating value}} \quad (2)$$

2.5 목질계 성분 및 회분

목질계 성분인 헤미셀룰로오스, 셀룰로오스, 리그닌 변화를 분석하기 위하여 헤미셀룰로오스, 셀룰로오스는 Van Soest법을 이용하여 정량하였고 리그닌은 72% 황산가수분해법(TAPPI method T222 om-88)에 의해 정량하였으며, Van Soest법에 의한 헤미셀룰로오스와 셀룰로오스는 다음의 식 (3)과 (4)를 이용하여 계산하였다. 회분함유량 분석은 “목재펠릿품질규격”에 기술된 방법에 의하여 측정하였다.⁽⁸⁾

$$\text{Hemicellulose(\%)} = \text{NDF(\%)} - \text{ADF(\%)} \quad (3)$$

$$\text{Cellulose(\%)} = \text{ADF(\%)} - \text{Ligin(\%)} \quad (4)$$

2.6 흡습율, 겉보기밀도, 미세분, 내구성

반탄화 커피박의 흡습율은 무처리 커피박과 260, 270, 280, 290℃에서 30분 동안 반탄화 된 커피박을 Mechanical oven(HB-502M)을 이용하여 105℃에서 4시간 건조한 후 상

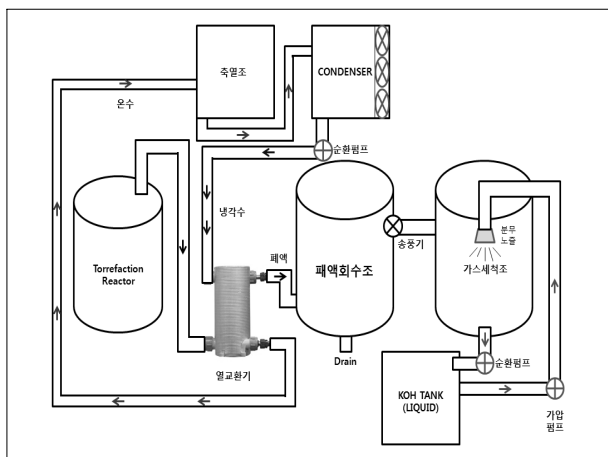


Fig. 2 Torrefaction system



Fig. 3 Ring die pelletizer

대습도 75±5% 항온항습기(한백과학, HB-105LP)에 48시간 동안 저장한 후 “포장용실리카겔건조제 흡습율 시험방법(KS T 1084 : 2008)”을 준용하여 측정하였다. 겉보기밀도와 미세분발생량 및 내구성 측정은 Fig. 3의 링다이 펠릿타이저를 이용하여 260℃에서 30분 반탄화 시킨 커피박을 회전 Rotor의 속도를 각각 30, 60, 90, 120RPM으로 변화시켜 탄화펠릿을 성형한 후 “목재펠릿품질규격”에 기술된 방법에 의하여 측정하였다.⁽⁸⁾

3. 결과 및 고찰

3.1 원소분석 및 발열량

반탄화 전후의 커피박 원소분석 및 발열량 분석결과는 Table 1과 같다. 탄소는 온도상승에 비례하여 상승하여 무처리군 49.38%대비 290℃ 30분 처리군에서 64.55%까지 상승하였으나 290℃ 이상 처리군의 경우 상승률이 둔화되었고 수소는 온도상승에 따라 구성비가 감소하여 무처리군 5.725%에서 290℃ 30분 처리군에서 4.601%까지 감소하였다. 질소는 온도상승에 비례하여 4.357%까지 증가하였으며, 황은 260℃ 처리군에서는 무처리군 대비 다소 증가하였으나 270℃ 이상에서는 온도상승에 따라 감소하여 290℃ 처리군에서 0.423%까지 감소하였다. 발열량은 260℃ 6,075kcal/kg, 270℃ 6,452 kcal/kg, 280℃ 6,823kcal/kg, 290℃ 6,970kcal/kg으로 반응온도 상승에 비례하여 상승하였으나 290℃에서는 발열량 상승률이 현저히 둔화되었으며, 280℃ 처리군의 발열량 제고율이 가장 높았다. 이와 같은 결과는 반탄화 온도 상승에 의해 발열량 및 탄소, 질소는 증가하고 수소는 감소한다는

Table 1. Elemental compositions and higher heating value of torrefied spent coffeebean

Item	Ultimate analysis (%)				Calorific value (kcal/kg)
	C	H	N	S	
CON	49.38	5.725	2.595	0.421	4,974
260℃ 30분	59.00	4.982	3.968	0.517	6,075
270℃ 30분	61.56	4.753	4.268	0.451	6,452
280℃ 30분	64.90	4.648	4.386	0.449	6,823
290℃ 30분	64.55	4.601	4.357	0.423	6,970

Lee와 2인의 연구결과와 일치하였다.⁽²⁾

3.2 에너지수율

에너지수율은 Fig. 4와 같이 280℃ 30분 처리군까지는 80% 이상의 에너지수율을 얻을 수 있었으나 290℃에서의 에너지수율은 76.5%로 급격히 감소하였다. 이러한 결과는 Lee와 2인의 연구결과와 유사하였으나⁽²⁾, Rodrigues and Rousset의 연구결과인 280℃, 30분 처리군의 92.76% 보다는 낮았다.⁽⁹⁾

3.2 목질계 성분 및 회분

목재성분 중 헤미셀룰로오스는 열에 의해 가장 먼저 분해되고 다음으로 셀룰로오스, 리그닌의 순서로 분해된다. 여러 가지 다당류의 복합체인 헤미셀룰로오스의 주요 결합사슬의 분해가 활발하게 일어나는 반응온도는 200~250℃의 범위인 것으로 알려져 있다.⁽⁹⁻¹¹⁾ 260~290℃의 온도에서 반탄화후 셀룰로오스, 헤미셀룰로오스, 리그닌, 회분 함량은 Table 2와

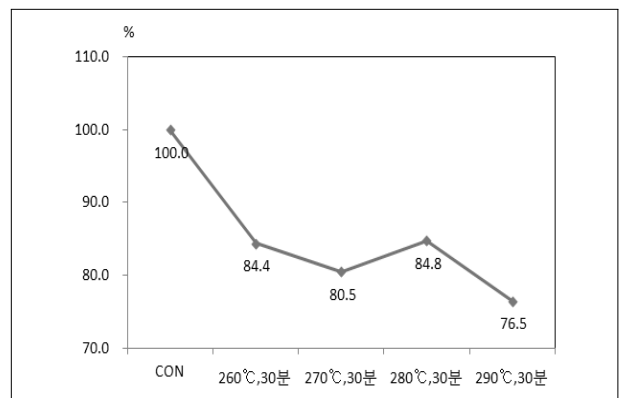


Fig. 4 Energy yield of torrefied spent coffee bean

Table 2. Cellulose, hemicellulose, lignin compositions of torrefied spent coffeebean

구분	회분 (%)	조지방 (%)	헤미셀룰로오스 (%)	셀룰로오스 (%)	리그닌 (%)	기타
CON	1.75	16.25	26.27	6.36	11.33	38.03
260-30	3.67	4.75	6.85	69.08	14.39	1.25
270-30	4.03	3.58	1.42	84.51	5.33	1.13
280-30	4.40	2.08	1.06	90.23	1.19	1.03
290-30	4.18	2.33	0.56	90.52	1.92	0.50

같다. 헤미셀룰로오스는 무처리군 26.7% 대비 290°C 30분 처리군에서 0.56%까지 감소하였으며, 셀룰로오스는 무처리군 3.36% 대비 290°C 30분 처리군에서 90.52%까지 증가하였다. 리그닌은 무처리군 11.33% 대비 260°C 30분 처리군에서는 14.39%까지 상승하였으나 270°C 이상 처리군에서는 감소하기 시작하여 290°C 30분 처리군에서 1.92%까지 감소하였다. 이러한 결과는 Kleinschmidt⁽¹⁰⁾의 주장과는 일치할 결과이나 온도상승에 따라 리그닌이 증가한다는 Lee와 2인의 연구결과와 상반된 결과이다⁽²⁾. 회분 함유량은 Lee와 2인⁽²⁾의 연구결과와 유사하게 무처리군 1.75% 대비 온도상승에 비례하여 상승하였으나 290°C 30분 처리군의 경우 회분함유량이 거의 상승하지 않았다.

3.3 흡습율, 겉보기밀도, 미세분, 내구성

반탄화 전후의 커피박 흡습율은 Fig. 5에 나타내었으며, 260°C 30분 처리군의 펠릿타이저 Rotor 회전수에 따른 겉보기밀도 및 미세분은 Table 3, 내구성 측정치는 Table 4에 나타내었다. 260°C와 270°C 처리군의 흡습율은 유사하였으나 280°C 이상에서는 반탄화 온도상승에 따라 감소하여 무처리

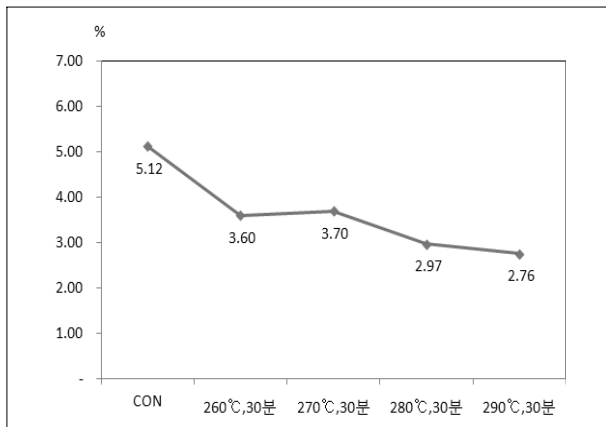


Fig. 5 Moisture absorption rate of torrefied spent coffeebean

Table 3. Bulk density and fines of pellet made of torrefied spent coffee bean

성능	RPM	30	60	90	120
	Bulk density (kg/m ³)		749.36	710.12	656.13
Fines (%)		0.48	0.68	0.81	1.02

군 5.12% 대비 290°C 30분 처리군의 경우 2.76%까지 개선되어 헤미셀룰로오스가 일정부분 제거되었음을 검증할 수 있었다. 겉보기밀도는 펠릿타이저의 Rotor 속도가 증가함에 따라 감소하여 30rpm 749.36kg/m³에서 120rpm 629.85kg/m³까지 감소하였으며, 미세분발생량은 Rotor 속도 증가에 따라 상승하여 30rpm 0.48%에서 120rpm 1.02%까지 상승하였다. 260°C에서 30분 반탄화 시킨 커피박을 30rpm으로 성형한 펠릿의 내구성은 98.7%로 1급 wood pellet 규격인 97.5% 보다 높게 분석되었다.

4. 결론

본 연구에서는 국내에서 발생하는 커피박을 이용하여 반탄화를 수행하였으며, 반탄화 조건에 따른 커피박의 에너지특성 변화를 탐색하여 최적 반탄화 조건을 도출하였다. 260, 270, 280, 290°C에서 30분 동안 반탄화를 수행한 결과 280°C 30분 처리군의 발열량 상승률이 가장 높았으며, 에너지수율은 260, 270, 280°C 처리군은 유사한 수준이었으나 290°C 처리군의 에너지수율은 76.5%로 급감하였다. 회분함유량은 반탄화에 대한 대부분의 연구결과와 동일하게 온도상승에 비례하여 증가하였다. 260°C와 270°C 처리군의 흡습율은 유사하였으나 290°C 30분 처리군의 경우 무처리군 5.12% 대비 2.76%까지 개선되어 헤미셀룰로오스가 일정부분 제거되었음을 검증할 수 있었다. 펠릿제도시 결착제 역할을 하는 리그



Fig. 6 Torrefied spent coffee bean pellet

Table 4. Durability of pellet made of torrefied spent coffee bean

구분	Torrefied spent coffee bean pellet (260°C, 30min)	Wood pellet (1급)
Durability (%)	98.7	≥97.5

닌 함유량은 260℃ 30분 처리군에서는 14.39%까지 상승하였으나 270℃ 이상 처리군에서는 감소하기 시작하여 290℃ 30분 처리군에서 1.92%까지 감소하였다. 따라서 펠릿형태로 성형하지 않을 경우 커피박의 최적 반탄화 조건은 발열량 상승률, 에너지수율을 고려했을 때 280℃에서 30분 동안 반탄화 하는 것이 적절할 것으로 판단되나 270℃ 이상 반탄화 하는 경우 리그닌이 감소하는 것으로 분석됨에 따라 탄화펠릿 성형성을 고려한다면 260℃에서 30분 반탄화 하는 것이 적절한 반탄화 조건임을 확인하였다.

후 기

본 연구는 2011년도 지식경제부의 재원으로 한국에너지기술평가원(KETEP)의 지원을 받아 추진한 신재생에너지기술 개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

References

- [1] E.J. Lee, D.G. Oh, S.M. Kim, E.S. Park, S.G. We, 2010, "Ash Reduction and the Change of Fuel Properties for Spent Mushroom Substrates by Acid Solution Extraction", Korean Chem. Eng. Res., Vol. 48, No. 3, pp. 365-374.
- [2] Jae-Won Lee, Young-Hun Kim, Soo-Min Lee and Hyoung-Woo Lee, 2012, "Torrefaction Characteristics of Wood Chip for the Production of High Energy Density Wood Pellet", Korean Chem. Eng. Res., Vol. 50, No. 2, pp. 385-389.
- [3] H.Boerrigter, J. Kiel, P.Bergman., 2006, "Biomass pre-treatment by torrefaction", ECN, Third ThermalNET meeting.
- [4] S.G. Lee, K.H. Lee, 2011, "A method for making coffee-meal pellets fuel and coffee-meal pellets thereby", Korea patent registration number 1010332120000.
- [5] 산림청, 2009, "목재펠릿의 에너지 활용대책".
- [6] 관세청, 2012, "커피시장 수입동향".
- [7] 에너지경제신문 2013.03.20.
- [8] Korea Forest Service, 2009, The quality standard of wood pellet. No. 2009-2.
- [9] Thiago Oliveria Rodrigues, Patrick Louis Albert Rousset, 2009, "Effets of torrefaction on energy properties of Eucalyptus grandis wood", Cerne, Kavras, v. 15, n. 4, pp. 446-452.
- [10] M.Sc. C.P. Kleinschmidt "Overview of international developments in torrefaction", KEMA Nederland BV.
- [11] Jong-jib, Lee, 2008, "Degradation properties and production of fuels from hemicellulose by pyrolysis-liquefaction", J. Korean Ind. Eng. Chem., Vol. 19, No. 2, pp. 199-204.
- [12] ARIAS, B., PEVIDA, C., FERMOSE, J., PLAZA, M. G., RUBIERA, F., PIS. J. J., 2008, "Influence of torrefaction on grindability and reactivity of woody biomass", Fuel Processing Technology. v. 89, pp. 169-175.
- [13] BERGMAN, P. C. A., BOERSMA, A. R., KIEL., J. H. A., PRINS, M. J., PTASINSKI, K. J., JANSSEN, F. J. J. G., 2005, "Torrefaction for entrained-flow gasification of biomass", Netherlands; ECN, 51 p.
- [14] BRIDGEMAN, T. G., JONES, J. M., SHIELD, I., WILLIAMS, P. T., 2008, "Torrefaction of reed canary grass, wheat straw and willow to enhance solid fuel qualities and combustion properties", Fuel, v. 87, pp. 844-856.
- [15] INARI, G. N., MOUNGUENGUI, S., DUMARCAY, S., PETRISSANS, M., GERARDIN, P., 2007, "Evidence of char formation during wood heat treatment by mild pyrolysis", Polymer Degradation and Stability, v. 92, pp. 997-1002.
- [16] Topell energy, 2011, "Topell on torrefaction", Technology Pioneer World Economic Forum.

오도건



1995년 한국외국어대학교 경영학과 경영학사
1997년 LG전자 주식회사 대리
2005년 (주)유니바이오 대표이사

현재 (주)유니바이오 부설연구소 소장
(E-mail : odg@unibio.co.kr)

김용현



2001년 광주대학교 환경공학과 공학사
2003년 조선대학교 환경공학과 공학석사

현재 (주)유니바이오 부설연구소 선임연구원
(E-mail : kyh@unibio.co.kr)

손흥석



2007년 고려대학교 생명과학부 이학사
2010년 고려대학교 생명공학과 이학박사

현재 동신대학교 식품영양학과 교수
(E-mail : hsson@dsu.ac.kr)