

민감도 해석을 통한 무회분 석탄의 가스화 최적 운전조건 도출

박성호*, 전동환, 윤성필, 정석우, 최호경[†], 이시훈[†]

고등기술연구원 플랜트 엔지니어링 센터
449-863 경기 용인시 백암면 고안로 51번길 175-28
[†]한국 에너지기술 연구원
305-343 대전광역시 유성구 가정로 152

(2014년 4월 22일 접수; 2014년 6월 9일 수정본 접수; 2014년 6월 26일 채택)

Optimization of Operating Condition on Gasification of Ash-free Coal by Using the Sensitivity Analysis of ASPEN Plus[®]

Sung-Ho Park*, Dong-Hwan Jeon, Sung-Phil Yun, Seok-Woo Chung, Ho-Kyung Choi[†], and Si-Hyun Lee[†]

Plant Engineering Division, Institute for Advanced Engineering
175-28, Goan-ro, 51 beon-gil, Baegam-myeon, Cheoin-gu, Yongin-si, Gyeonggi 449-863, Korea
[†]Korea Institute of Energy Research
152 Gajeong-ro, Yuseong-gu, Daejeon 305-343, Korea

(Received for review April 22, 2014; Revision received June 9, 2014; Accepted June 26, 2014)

요 약

석탄에 포함되어 있는 회분은 환경오염을 유발시킬 수 있으며, 고온에서 운전되는 발전 설비에 용착되어 열전달 효율을 저하시키는 문제점을 가지고 있다. 이러한 문제를 해결하기 위해서 알칼리나 산, 또는 유기 용매를 이용하여 석탄 내의 회분을 제거하기 위한 연구와 함께 무회분 석탄을 이용한 석탄화력 발전 및 석탄가스화 복합발전에 대한 타당성 연구가 활발히 진행 중이다. 따라서 본 연구에서는 200 ppm급 무회분 석탄을 석탄가스화 발전에 이용하기 위해서 필요한 가스화기 운전조건을 ASPEN Plus[®] 공정모사의 민감도 해석을 바탕으로 도출하였다. 특히 석탄가스화 공정은 열분해, 휘발분 연소, 좌 가스화 공정으로 나누어 해석을 진행하였으며, 1.5 톤일급 비용융(non-slugging) 가스화기의 크기 및 운전 조건을 반영하여 모델링 하였다.

주제어 : 무회분 석탄, 최적화, 가스화 운전조건, ASPEN Plus, 민감도 해석

Abstract : Ash included in coal can cause environmental pollution and it can decrease efficiency of mass and heat transfer by getting scorched and stick in the facilities operated at high temperature. To solve this problem, a feasibility study on pulverized coal fired power plant and integrated gasification combined cycle (IGCC) using the AFC (Ash-Free Coal) as well as the development to remove the ash from the coal was conducted. In this research, optimization of operating condition was proposed by using sensitivity analysis of ASPEN Plus[®] to apply the coal containing under the 200 ppm ash for integrated gasification combined cycle. Particularly, the coal gasification process was classified as three parts : pyrolysis process, volatile matter combustion process and char gasification process. The dimension and operating condition of 1.5 ton/day class non-slugging gasifier are reflected in the coal gasification process model.

Keywords : Ash-free coal, Optimization of gasifier operating condition, ASPEN plus, Sensitivity analysis

1. 서 론

석유 자원 고갈 및 국제 유가 상승, 그리고 지구 온난화 문제 등으로 인하여 친환경 발전 설비에 대한 관심이 커지고

있다. 특히 석유나 천연가스에 비해 상대적으로 저렴하고 매장량이 풍부한 석탄을 이용한 친환경 발전 설비가 각광 받고 있다. 석탄을 이용한 친환경 발전 설비에 대한 연구의 경우, 석탄의 고품위화에 대한 연구[1-4]와 석탄을 이용한 고효율

* To whom correspondence should be addressed.
E-mail: sh.park@iae.re.kr http://cleantech.or.kr/ct/

doi: 10.7464/kset.2014.20.3.298 pISSN 1598-9721 eISSN 2288-0690

This is an Open-Access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0>) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited..

발전 시스템 개발[5-6]의 측면에서 많은 노력이 이루어지고 있다. 석탄의 고품위화에 대한 연구는 수분과 회분이 많은 저등급 석탄을 고등급 석탄으로 전환하기 위한 연구가 대부분이며, 특히 석탄에 포함되어 있는 무기성분인 회분을 제거함으로써 발전 설비 내부에 회분이 용착되어 열전달 효율을 저해시키는 문제를 해결하고, 수분의 함량을 줄여 고열량 석탄으로 전환하는 연구가 각광을 받고 있다. 이와 같은 초청정 석탄 제조 기술은 회분을 제거하는 기술에 따라 크게 두 가지로 분류되며, 이는 유기용매를 이용하여 석탄으로부터 가연성분을 녹여내어 추출한 후 다시 유기용매를 증발시켜 무회분 석탄(ash-free coal, AFC)을 제조하는 기술과 알칼리나 산을 이용하여 석탄 내의 회분을 녹여내어 제거하는 기술(ultra clean coal, UCC)로 나눌 수 있다[7]. 전자의 경우 가연성분만 추출하기 때문에 회분의 함량을 수백 ppm 수준까지 낮출 수 있고, 저열량 석탄이 고열량 석탄으로 전환됨으로써 화력 발전 설비에 투입되는 석탄의 양이 줄어들기 때문에 약 7~10%의 이산화탄소 저감 효과가 있는 장점이 있다. 뿐만 아니라 회분의 함량이 줄어들기 때문에 발전 설비 후단에 회분을 제거하는 설비가 간소화 되는 장점이 있어 공정 구성 및 운용이 용이해지는 장점을 가지고 있어 초청정 석탄 제조에 대한 많은 연구가 활발히 진행 중이다.

Okuyama et al.[8]은 무회분 석탄을 제조하기 위한 제조 공정과 다양한 석탄을 이용하여 무회분 석탄을 제조하였을 때 석탄 추출(coal extraction) 비율을 비교함으로써 ‘solvent de-ashing technology’가 경제성을 갖추면서 무회분 석탄을 생산하기 위한 유망한 방법임을 증명하였다. 또한 Takanohashi et al.[9]은 다양한 등급의 석탄을 이용하여 무회분 석탄 제조 시 다양한 등급의 석탄 별로 온도에 따라 나타나는 열가소성(Thermoplastics), 열중량(Thermogravimetric) 특성에 대해서 연구하였다. 이러한 무회분 석탄의 물성치에 대한 기초적인 연구와 함께 무회분 석탄을 적용한 가스화 및 다양한 활용분야에 적용한 연구도 진행되었다. Kopyscinski et al.[10,11]은 무회분 석탄을 이용하여 K₂CO₃ 촉매 가스화에 대한 연구를 수행하였으며, 특히 K₂CO₃ 촉매와 무회분 석탄의 상호작용에 대한 연구 및 촉매 가스화에서 온도 변화에 따른 탄소 전환 및 합성 가스 생산 수율에 대한 연구를 수행하였다. 뿐만 아니라 국내에서도 무회분 석탄을 이용한 가스화에 대한 연구가 많이 이루어졌다. Kim et al.[12]은 무회분 석탄의 스팀 가스화를 통해 수소를 생산하는 연구를 진행하였으며, 특히 K₂CO₃ 촉매를 이용하기 때문에 700 °C에서도 무회분 석탄을 이용한 스팀 가스화가 매우 활성화된다는 연구결과를 보고하였다. Park et al.[13]은 스팀을 이용한 촉매가스화 실험에서 역청탄과 무회분 석탄의 반응속도를 비교하였으며, 특히 K₂CO₃ 촉매를 첨가하였을 때 반응속도의 증가 및 H₂/CO 생성물의 비율도 증가된다는 연구결과를 발표하였다. Jin et al.[14]은 직접탄소연료전지(DCFC)의 성능 향상을 위해 무회분 석탄을 스팀 가스화 촉매와 함께 연료전극 측에 공급하여 수소의 생산량을 향상시키고 이에 따라 전력밀도가 향상되는 결과를 도출하였다. 이와 같이 초청정 석탄인 무회분 석탄을 이용한 다양한 연구가 진행 중에

있으나, pilot급 가스화 설비에 적용되어 운전된 사례는 드물다.

따라서 본 연구에서는 상용공정 해석 프로그램인 ASPEN Plus[®]를 이용하여 1.5 톤일급 비용융(non-slugging) 방식의 석탄가스화기에 연료로서 무회분 석탄을 적용하였을 때 가스화 성능을 간접적으로 예측하고, 원탄(raw coal)을 이용하였을 때의 가스화 성능과 비교하였다. 또한 민감도 해석을 통해서 무회분 석탄을 이용한 석탄가스화기의 운전조건을 도출하여 무회분 석탄 가스화 운전에 필요한 기초 운전 데이터 도출에 대한 연구를 수행하였다.

2. 공정 모델링 및 해석 방법

2.1. 해석 조건

본 연구의 석탄가스화 공정 해석에 적용된 석탄의 특성은 Table 1과 같다. Table 1에서 Raw coal은 무회분 석탄 제조를 위해 사용된 원탄을 나타낸 것이며, Ash-free coal은 무회분 석탄 제조 공정을 통해 제조된 무회분 석탄의 특성을 나타낸 것이다. 이는 Hyper coal의 제조 방식과 유사하게 용매와 미분탄을 350 °C/30 bar 반응기에 주입하여 석탄의 가연성분을 추출해 내는 기술이다. 특히 이와 같은 제조 기술은 가연성분을 추출해내기 때문에 추출된 용매와 가연성분은 고온의 반응기 상부로 배출되며, 하부로는 회분이 제거되지 않은 잔탄이 침전된다. 이러한 특성으로 인해 무회분 석탄에는 수분과 회분이 제거된 가연성 성분이 주를 이루게 되는데, 상대적으로 가연성분 중 고정 탄소 성분의 흡수율이 적기 때문에 무회분 석탄에 포함된 고정 탄소 성분은 줄어들고 잔탄의 고정 탄소 성분은 증가하게 된다.

석탄가스화 공정 해석을 위한 시뮬레이션 조건은 Table 2와 같다. 작동온도 및 압력, 가스화기 크기와 같은 조건을 동일하지만, 입도 조건은 원탄과 무회분 석탄이 다소 상이하다. 이러한 이유는 용매와 함께 배출된 가연성분은 스프레이 공정을 통해 용매와 가연성분이 분리되며 이러한 공정 특성으로 인해 무회분 석탄의 입도는 원탄의 입도에 비해 작다.

Table 1. Coal characteristics parameters

		Value	
		Raw coal	Ash-free coal
Proximate analysis (wt.%, air dry basis)	Moisture	11.39	0.65
	Fixed carbon	41.80	31.07
	Volatile matter	40.60	68.26
	Ash	6.21	0.02
Ultimate analysis (wt.%, dry basis)	Carbon	69.18	85.65
	Hydrogen	5.21	6.85
	Nitrogen	1.06	1.35
	Sulfur	0.26	0.05
	Oxygen	17.29	6.08
	Ash	7.01	0.02
Higher heating value (kcal/kg, dry basis)		6,260	8,280

Table 2. Simulation condition of coal gasifier model

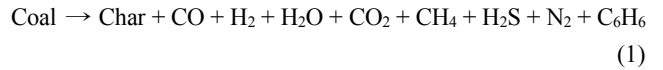
Parameter	Unit	Value
Coal flow rate	ton/day	1.5
Coal supply temperature	℃	25
Coal supply pressure	bar	13
Particle size	Raw coal	μm
	Ash free coal	
Oxygen/coal ratio	-	0.5 ~ 2.0
Oxygen supply temperature	℃	25
Oxygen supply pressure	bar	13
Steam/coal ratio	-	0 ~ 1.0
Steam supply temperature	℃	350
Steam supply pressure	bar	13
Gasifier operating pressure	bar	10
Gasifier height	m	3.5
Gasifier diameter	m	0.3

본 연구의 목적은 1.5 톤일급 석탄가스화기에 무회분 석탄을 적용하였을 때의 운전특성을 파악하기 위한 것이기 때문에 1.5 톤일급 석탄가스화기의 실제 운전조건 및 가스화기 크기를 반영하였다.

2.2. 석탄 가스화 공정 모델링

본 연구에서는 1.5 톤일급 무회분 석탄의 가스화 특성 파악 및 가스화기 운전조건을 도출하기 위해서 ASPEN Plus®의 가

스화 공정 모델을 N₂ 기류 수송을 이용한 1.5 톤일급 석탄 가스화기의 공정으로 모델링하여 가스화 특성 및 가스화 운전 조건을 도출하기 위한 선행 연구를 수행하였다[15]. Figure 1은 무회분 석탄 가스화 공정 모델링에 대한 개략도이며, 전체 가스화 공정은 크게 3가지로 분류되어 모델링이 수행되었다. 공급되는 석탄은 식 (1)과 같은 반응을 통해 상압 열분해(Pyrolysis) 공정을 거쳐 콰(Char)와 휘발분 성분을 포함한 가스 성분으로 분리되며 이때 필요한 열원은 휘발분 연소를 통해 전달받는다.



또한 이러한 열분해 공정을 통해 배출되는 각 생성물의 조성은 Suuberg et al.[16]이 상압 열분해 실험을 통해 도출한 결과를 바탕으로 본 석탄가스화 모델의 열분해 모델에 적용하였다. 무회분 석탄에 대한 상압 열분해 관련하여 발표된 연구 결과가 없기 때문에 원탄과 유사한 열분해 특성을 가진다고 가정하여 Suuberg et al.의 실험 결과를 반영하였다. 또한 상압 열분해와 가압 열분해의 특성이 다르기 때문에 이를 보정하기 위해서 Wen and Chuang et al.[17]이 제안한 압력에 따른 영향을 보정하는 식 (2)를 모델에 적용하였다. V₁은 상압에서 휘발분의 전체 수율(total yield)을 나타내며, V₂는 실제 가스화기에서 휘발분의 전체 수율(total yield)을 나타낸다. 그리고 α는 constant로 0.066이며, P₁은 실제 가스화기의 압력을 나타낸다.

$$V_2 = V_1(1 - \alpha \cdot \ln P_1) \quad (2)$$

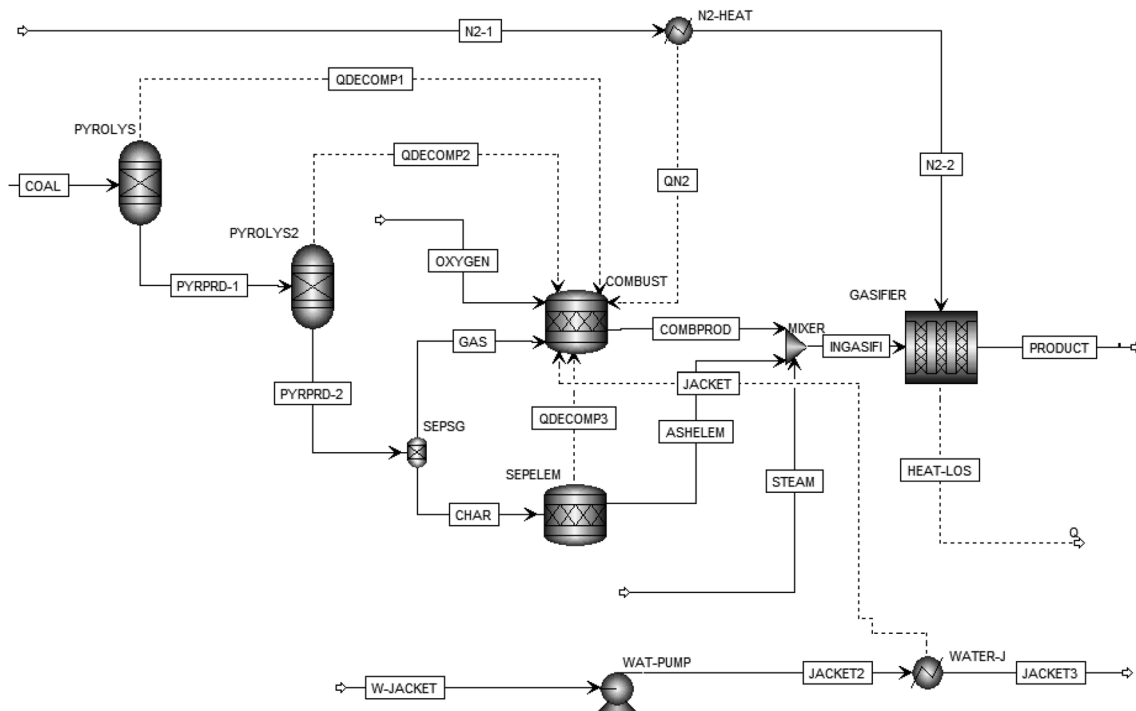
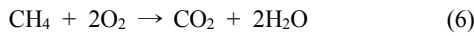
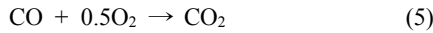
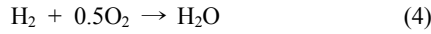
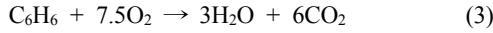


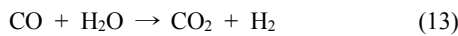
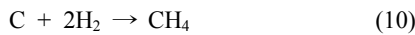
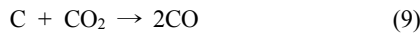
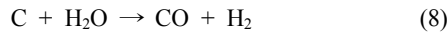
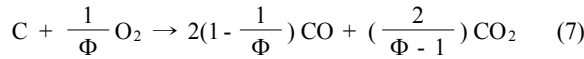
Figure 1. Schematic of coal gasification modeling.

이러한 열분해 공정으로 생성된 좌와 가스성분 중 가스성분은 휘발분 연소(volatile matter combustion) 공정에서 식 (3)~(6)과 같이 산소와 함께 연소하며 이 때 발생한 열원은 열분해 공정에 전달되는 것으로 가정하였다. 또한 휘발분 연소의 경우, 반응속도가 열분해나 좌 가스화에 비해서 상대적으로 빠르기 때문에 휘발분 성분은 완전 연소로 가정하였다.



또한 전체 가스화 공정에서 발생하는 열량의 5%는 가스화기 외부 열손실로 가정하였다. 이는 가스화기의 내화재를 통해 전달된 열이 가스화기 외벽으로 방출되기 때문에 가스화기의 크기를 고려하여 자연대류(natural convection)로 배출되는 열량을 고려해준 것이다.

최종적으로 열분해 공정에서 발생한 좌와 휘발분 연소 후 가스성분은 식 (7)~(13)과 같이 좌 가스화 반응을 통해 합성가스로 전환되게 된다.



특히 좌 가스화 반응의 경우 미반응 수축핵 모델(unreacted-core shrinking model)을 이용하였으며 전체 속도 식은 식 (14)과 같이 표현할 수 있다[15].

$$R_i = \frac{1}{\frac{1}{k_{diff}} + \frac{1}{k_s Y^2} + \frac{1}{k_{dash} \left(\frac{1}{Y} - 1\right)}} (P_i - P_i^*) \quad (14)$$

k_{diff} 는 gas film diffusion ($g/cm^2 \cdot atm \cdot s$)이며, k_s 는 surface reaction constant ($g/cm^2 \cdot atm \cdot s$)을 말하는 것이며 이들은 각 reaction에 따

Table 3. Parameters for kinetics of Reactions

식	k_{diff}	k_s
7	$\frac{0.292\phi \left(\frac{4.26}{T}\right) \left(\frac{T}{1800}\right)^{1.75}}{P_t d_p}$	$8710e^{-\frac{17967}{T}}$
8	$\frac{10 \times 10^{-4} \left(\frac{T}{2000}\right)^{0.75}}{P_t d_p}$	$247e^{-\frac{21060}{T}}$
9	$\frac{7.45 \times 10^{-4} \left(\frac{T}{2000}\right)^{0.75}}{P_t d_p}$	$247e^{-\frac{21060}{T}}$
10	$\frac{1.33 \times 10^{-3} \left(\frac{T}{2000}\right)^{0.75}}{P_t d_p}$	$0.12e^{-\frac{17921}{T}}$
11	$\frac{1.33 \times 10^{-3} \left(\frac{T}{2000}\right)^{0.75}}{P_t d_p}$	$0.12e^{-\frac{17921}{T}}$

라 Table 3과 같이 나타낼 수 있다. 특히, 식 (7)의 Φ 는 입자의 크기에 따라 결정되는 계수로서 Wen and Chaung이 제안하는 식을 이용하였다. 또한 좌 가스화에 대한 반응속도 상수의 경우도 무회분 석탄의 경우 열분해를 통해 생성된 좌를 이용한 가스화 반응속도 상수 도출에 대한 연구 결과가 아직까지 발표된 것이 없기 때문에 기존 미분탄에 대한 반응속도 상수를 적용하여 해석을 수행하였다[18]. Park et al.[13]이 수행한 무회분 석탄을 스템과 촉매를 이용해 가스화 반응 연구를 한 경우, 무회분 석탄에 대한 가스화 반응에 대한 연구이기는 하지만, 스템과 촉매를 이용해서 가스화 반응을 하였기 때문에 본 연구의 비용융(non-slugging) 가스화 반응에 비해서 반응 속도가 빠르고, 촉매를 이용한 가스화기 때문에 가스화 운전 온도가 상대적으로 낮다. 따라서 촉매 가스화의 반응속도를 적용하는 것에 비해 일반 미분탄에 대한 반응속도를 적용하는 것이 해석에 대한 오차를 줄일 수 있을 것이라 판단되어 이를 적용하였다.

또한 좌 가스화 공정 모델은 ASPEN Plus[®]로부터 제공된 반응속도 상수에 대한 Fortran subroutine을 바탕으로 N₂ 기류 수송이 적용된 1.5 톤일급 가스화기의 운전 조건을 반영 및 수정하여 이루어졌다.

3. 결과 및 고찰

3.1. 모델의 신뢰성 평가

석탄가스화 공정 모델에 대한 신뢰성을 평가하기 위해서 실제 실험 결과와 비교/분석이 필요하며, 이를 위해서 KPU 석탄을 이용한 1.5 톤일 급 석탄가스화 실험 결과와 공정 해석 결과를 Figure 2와 같이 비교/분석 하였다. 특히 실험에 사용된 KPU 탄의 특성을 석탄가스화 해석 모델에 적용하였을 때 생성되는 합성가스의 조성을 비교하였는데, 그 결과 가스화 공정의 효율에 영향을 미치는 CO와 H₂의 조성에 있어서 오차범위가

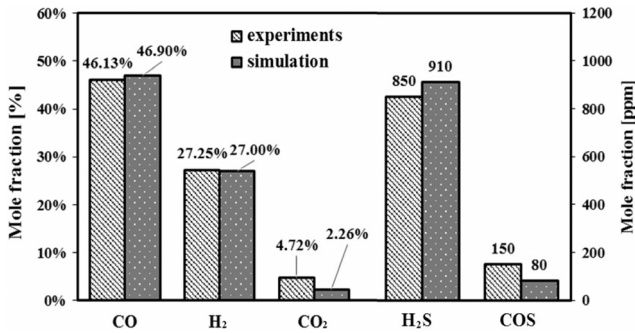


Figure 2. Comparison result between experiments and simulation for coal gasification using the KPU coal (Gasifier operating condition : 1,200 °C/20 bar).

0.25~0.77% 정도로 미미한 것으로 파악되었다. 반면, CO₂ 조성에서는 2.46% 차이가 나타나는 것을 확인할 수 있었는데, 이는 석탄가스화 실험 시 가스화기의 운전온도를 제어하기 위해서 O₂의 공급량을 변화시키기 때문에 정적 모델인 공정해석과 차이가 나타나는 것으로 판단된다. 하지만, 결론적으로 석탄가스화를 통해 배출되는 합성가스의 주요 성분에 대한 조성에 큰 차이가 없고, 특히 냉가스효율(cold gas efficiency, CGE)을 정의하는 CO와 H₂의 조성에 큰 차이가 없기 때문에 공정해석 모델에 대한 신뢰성이 확보되었다고 할 수 있다.

3.2. 운전조건 도출을 위한 민감도 해석

무회분 석탄을 이용한 석탄가스화기 운전조건을 도출하기 위해서 ASPEN Plus[®]를 이용한 민감도 해석(sensitivity analysis)을 통해 O₂/coal ratio와 steam/coal ratio 변화에 따른 합성가스 조성의 변화(CO/H₂/H₂O/CO₂ mole fraction), 냉가스효율 및 가스화기 운전온도(Operating temperature)의 변화를 살펴보았다. 또한 원탄(raw coal)에 대한 가스화 운전조건도 민감도 해석을 이용하여 동일한 모델을 통해 도출함으로써 무회분 석탄 가스화 운전조건과의 차이를 비교/분석하였다.

3.2.1. 원탄의 가스화 운전조건 도출

공정 해석을 통해 도출된 무회분 석탄의 가스화 운전 조건에 대한 특성을 파악하고, 기존 석탄과의 가스화 특성을 비교/분석하기 위해서 원탄(raw coal)에 대한 가스화 운전조건을 Figure 3과 같이 도출하였다. 이는 O₂/coal ratio와 steam/coal ratio가 변화함에 따라 합성가스의 조성에 대한 경향성을 나타낸 것이다.

Figure 3(a)는 CO의 조성에 대한 경향성을 나타낸 것으로서 O₂/coal ratio가 0.82, steam/coal ratio가 0인 조건에서 46.15%로서 CO의 조성이 가장 높은 것을 확인할 수 있었다. 반면 Figure 3(b)의 H₂와 같은 경우에는 O₂/coal ratio 0.7, steam/coal ratio가 0.1인 조건에서 27.7%로서 H₂의 조성이 가장 높은 것

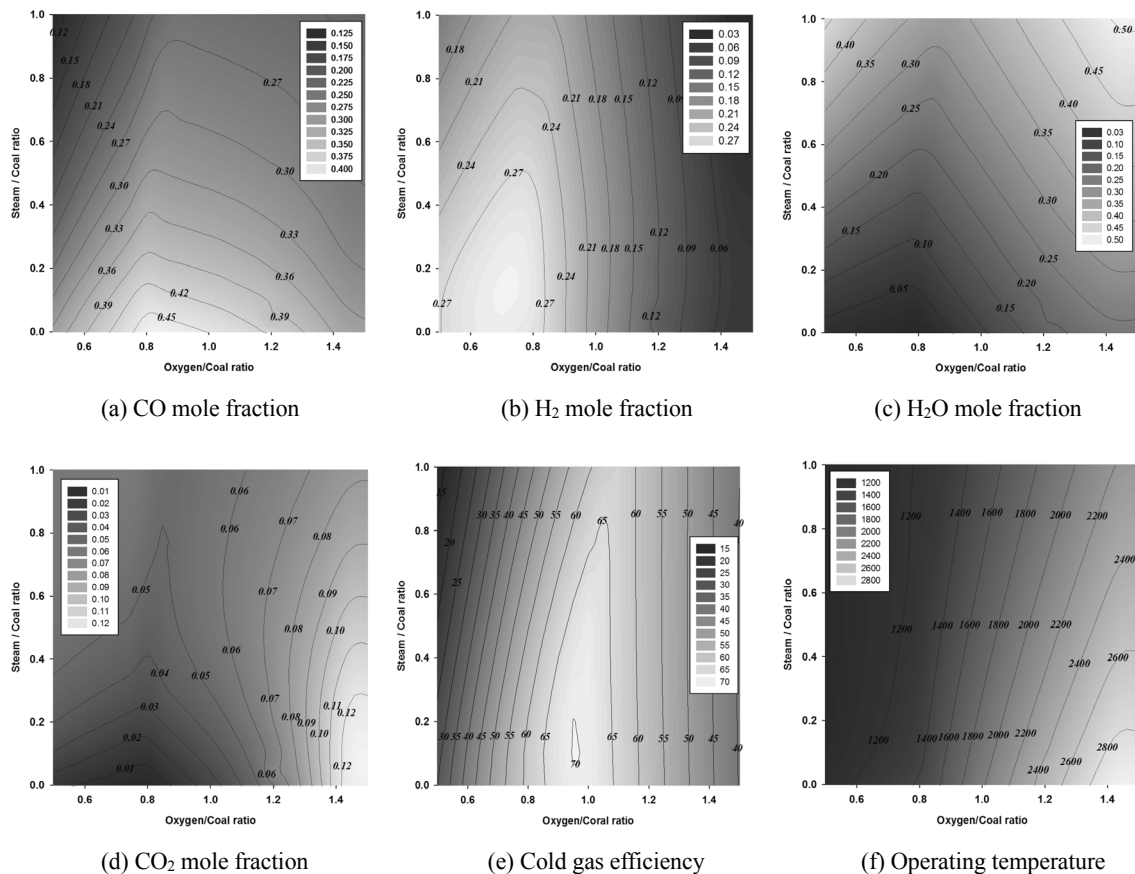


Figure 3. Sensitivity analysis result of raw coal gasification depending on changing the O₂/coal ratio and steam/coal ratio.

으로 확인되었다. H₂의 경우 CO와 달리 steam/coal ratio 0.1 조건에서 조성이 가장 높았으나, 스팀을 공급하지 않더라도 큰 차이는 없는 것으로 확인되었다. 반면에 H₂O와 CO₂ 조성의 경우 O₂/coal ratio가 약 0.7인 조건에서 가장 낮은 것으로 확인되었다. 따라서 최적화된 운전조건을 도출하기 위해서 냉가스 효율에 대한 민감도 해석을 수행하였는데, 그 결과는 Figure 3(e)에 나타내었다. O₂/coal ratio와 steam/coal ratio 변화에 따른 냉가스 효율의 민감도 해석 결과 O₂/coal ratio 0.93, steam/coal ratio 0.1인 조건에서 냉가스효율이 약 70%로 가장 높은 것으로 확인되었다. 하지만, Figure 3(f)와 같이 가스화기 운전온도에 따른 민감도 해석을 수행한 결과, 냉가스효율이 가장 높은 조건에서는 가스화기 운전온도가 1,600 °C 이상이므로 비용융(non-slugging) 조건으로의 운전이 불가능하다. 따라서 비용융 조건에서의 운전과 함께 높은 냉가스효율을 유지하기 위해서는 O₂/coal ratio 0.7, steam/coal ratio 0~0.05의 조건으로 가스화기가 운전되어야 하는 것으로 파악되었다.

3.2.2. 무회분 석탄의 가스화 운전조건 도출

원탄을 이용한 가스화 운전조건 도출 방법과 동일하게 무회분 석탄에 대한 운전조건 도출을 민감도 해석을 통해 수행하였다. 특히 무회분 석탄의 경우, 탄소와 휘발분의 함량이 원탄에 비해 상대적으로 높기 때문에 O₂/coal ratio를 원탄과는 다르게 0~2.0까지 변화시키며 그 경향성을 확인하였다.

Figure 4는 무회분 석탄을 이용한 가스화 반응에서의 합성 가스 조성과 냉가스효율, 가스화기 운전온도 도출 결과를 나타낸 것이다. Figure 4(a)는 무회분 석탄 가스화 공정에서 발생한 CO의 조성을 나타낸 것으로, 전체적인 경향성은 원탄의 경우와 유사하지만, 공급되는 O₂/coal ratio가 약 1.25로서 원탄에 비해 많은 양의 산소가 필요한 것으로 확인되었다. 이는 탄소 및 휘발분의 함량이 상대적으로 높기 때문이며, 이러한 결과로 인해서 CO의 조성 또한 54.5% 정도로 원탄의 경우에 비해 약 8.35% 향상되는 것으로 파악되었다.

Figure 4(b)는 무회분 석탄 가스화 공정에서 발생하는 H₂의 조성을 나타낸 것으로 전체적인 경향성은 원탄과 유사하지만, CO 조성에 대한 결과와 같이 O₂/coal ratio가 1.2, steam/coal ratio가 0.1인 조건에서 가장 높은 것으로 확인되었다. 하지만 이러한 조건에서 H₂ 조성은 21.1%로 원탄에 비해 6.6% 낮은 것으로 확인되었다. 무회분 석탄의 경우 휘발분 성분이 기존 원탄에 비해서 높기 때문에 O₂가 상대적으로 많이 필요하다. 따라서 O₂의 함량이 높은 분위기에서 H₂가 H₂O로 전환됨에 따라 H₂의 함량이 줄어들고 H₂O의 함량이 늘어나기 때문인 것으로 판단된다. 그리고 이러한 결과는 Figure 4(c)의 H₂O 조성을 통해서도 간접적으로 확인할 수 있다. 무회분 석탄의 경우 회분을 제거하는 과정을 거치면서 고온의 용매와 석탄의 혼합 공정 및 용매 회수 공정을 통해 수분이 대부분 제거된다. 따라서 원탄의 가스화 공정에 비해 무회분 석탄의 가스화 공

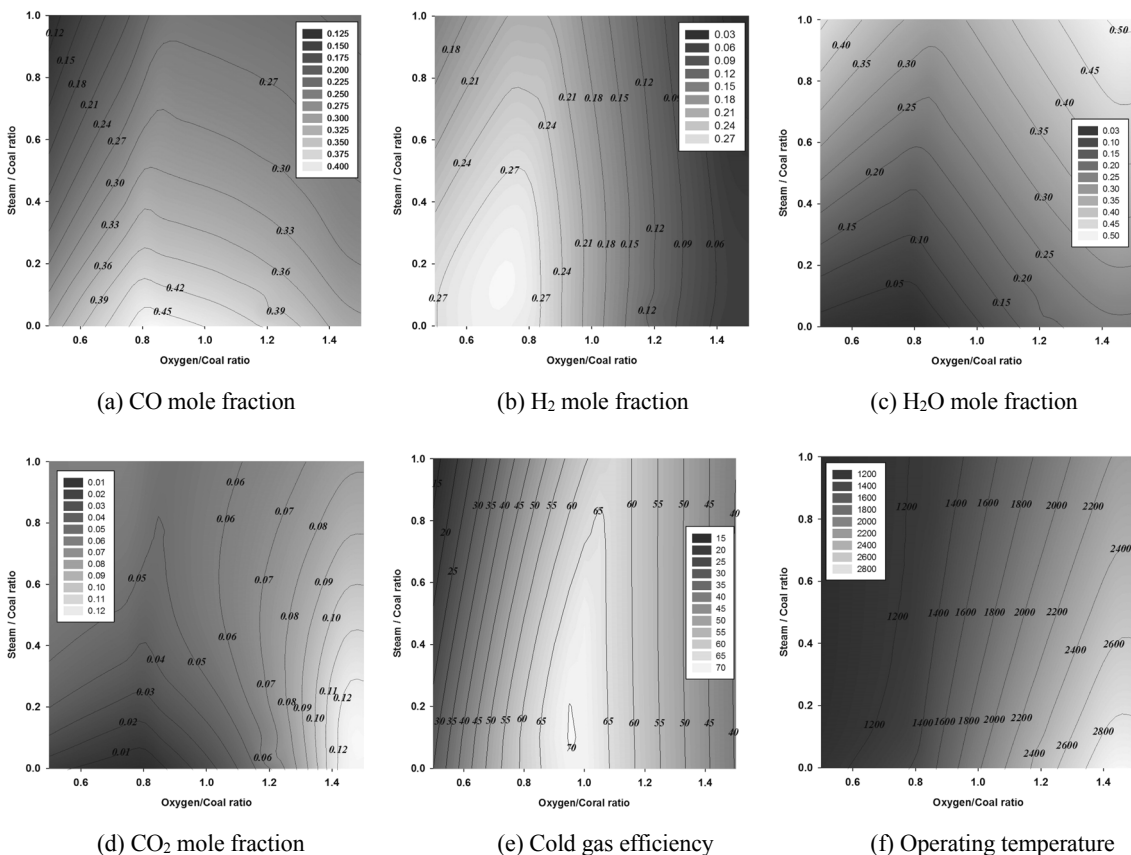


Figure 4. Sensitivity analysis result of ash free coal gasification depending on changing the O₂/coal ratio and steam/coal ratio.

정에서 발생하는 수분 함량이 높다는 것은 H_2 와 O_2 의 반응에 의해 생성된 것이라고 유추할 수 있다. 따라서 Figure 3(c)와 Figure 4(c)의 H_2O 의 함량을 비교해 본 결과, 무회분 석탄의 H_2O 함량이 11.1%로 원탄의 3.5%에 비해 7.6% 높은 것으로 확인되었다. 이는 무회분 석탄의 가스화 공정은 $O_2/coal$ ratio가 약 1.2인 조건에서 운전되기 때문에 원탄의 가스화 공정에 비해 상대적으로 과잉 산소 분위기에서 가스화 반응이 이루어지게 되며 이에 따라 H_2 와 O_2 의 반응에 의해 H_2O 생성되기 때문인 것으로 판단되었다. Figure 4(d)는 무회분 석탄 가스화 반응에서 생성되는 CO_2 조성을 나타낸 것으로, CO_2 의 경우 H_2O 조성과 마찬가지로 $O_2/coal$ ratio가 1.2인 조건에서 2.89%로 가장 낮은 것을 확인할 수 있었다. 그리고 무회분 석탄의 CO_2 조성 또한 원탄의 CO_2 조성에 비해 높은 것을 확인할 수 있었는데, 이는 H_2O 의 조성이 증가하는 이유와 동일한 것으로 판단되었다. Figure 4(e)는 $O_2/coal$ ratio와 steam/coal ratio의 변화에 따른 무회분 석탄 가스화 공정의 냉가스 효율을 나타낸 것으로, $O_2/coal$ ratio 1.25 조건에서 73% 정도인 것으로 확인되었으며 이는 원탄을 이용한 가스화 공정의 냉가스 효율에 비해 3% 높은 것으로 확인되었다. 다시 말해서 무회분 석탄을 이용한 가스화 공정에서는 H_2 의 조성이 6.6% 감소하였지만, CO 의 조성이 약 8.35% 향상되었기 때문에 냉가스효율이 3% 향상되는 것으로 파악되었다. 또한 무회분 석탄을 이용한 가스화 공정의 경우, 냉가스효율이 가장 높은 $O_2/coal$ ratio 1.25 조건에서도 가스화기의 운전온도가 1,200 °C 미만으로 원탄에 비해 많이 낮은 것으로 파악되었다. 따라서 무회분 석탄의 경우 상대적으로 낮은 온도에서의 비용용 방식 운전을 위해 원탄의 경우처럼 냉가스효율이 낮은 영역에서 운전해야 하는 제약 사항은 없을 것으로 판단되었다.

4. 결론

본 연구에서는 무회분 석탄을 적용한 1.5 톤일급 석탄가스화기의 운전조건을 도출하기 위해서 상용 공정해석 프로그램인 ASPEN Plus[®]를 이용하여 민감도 해석을 수행하였고, 이를 바탕으로 무회분 석탄을 이용한 가스화 공정의 운전조건을 도출하였다. 또한 원탄을 이용하는 가스화 공정의 운전조건과 비교/분석을 통해 무회분 석탄을 이용하는 가스화 공정의 운전 특성을 파악하였다.

무회분 석탄은 원탄에 비해 산소 함량이 적고, 탄소 및 휘발분의 함량이 많기 때문에 가스화를 위해서는 원탄에 비해 많은 산소 공급량이 필요하게 된다. 따라서 무회분 석탄의 경우 이보다 높은 $O_2/coal$ ratio 1.25 조건에서 냉가스효율이 최대가 되는 것으로 확인되었다. 특히 냉가스효율이 최대인 운전조건에서 CO 의 조성이 8.35% 높은 반면에 H_2 의 조성은 6.6% 감소되는 것으로 확인되었다. 이는 무회분 석탄 가스화는 원탄에 비해 과잉 산소 분위기에서 반응이 이루어짐에 따라 반응성이 좋은 H_2 가 O_2 와 반응하여 H_2O 로 전환되기 때문인 것으로 파악되었다.

또한 비용용(non-slugging) 방식으로 가스화기를 운전하기

위해서는 원탄 가스화의 경우 4~6% 정도의 냉가스효율이 감소하는 조건인 $O_2/coal$ ratio 0.65~0.70 조건에서 운전을 진행해야 하는 반면 무회분 석탄 가스화의 경우, 수분 생성량이 원탄에 비해 높아 상대적으로 낮은 온도에서 운전되기 때문에 73%의 높은 냉가스효율을 유지하며 비용용(non-slugging) 방식 운전이 가능한 것으로 확인되었다. 본 연구에 적용한 최가스화 반응속도 상수는 미분탄의 반응성 연구에 대한 결과를 적용한 것으로서 무회분 석탄의 반응성과는 다소 차이가 있을 수 있다. 따라서 무회분 석탄의 열분해 및 무회분 석탄 최의 가스화에 대한 반응성에 대한 실험적 연구와 함께 실험을 통해 도출된 반응속도 상수를 적용한 무회분 석탄 가스화 모델에 대한 연구가 진행될 계획이다.

감사

본 연구는 2013년도 산업통상자원부의 재원으로 한국에너지기술연구원(KETEP)의 지원을 받아 수행한 연구과제입니다 (NO.20131010101810).

References

1. Stacic, T., Cvetimovic, D., and Skobalj, P., Spasojevic, V., "An Initial Study on Feasible Treatment of Serbian Lignite through Utilization of Low-Rank Coal Upgrading Technologies," *Chem. Eng. J.*, Article in Progress(2014).
2. Petela, R., "Application of Flow Consecutor for Coal Upgrading," *Fuel Process. Technol.*, **60**, 29-48 (1999).
3. Sakaguchi, M., Laursen, K., Nakagawa, H., and Miura, K., "Hydrothermal Upgrading of Loy Yang Brown Coal-Effect of Upgrading Conditions on the Characteristics of the Products," *Fuel Process. Technol.*, **89**, 391-396 (2008).
4. Mahidin, Ogaki, Y., Usui, H., and Okuma, O., "The Advantages of Vacuum-treatment in the Thermal Upgrading of Low-rank Coals on the Improvement of Dewatering and Devolatilization," *Fuel Process. Technol.*, **84**, 147-160 (2003).
5. Singh, O. K., and KaushiK, S. C., "Energy and Exergy Analysis and Optimization of Kalina Cycle Coupled with a Coal Fired Steam Power Plant," *Appl. Therm. Eng.*, **51**, 787-800 (2013).
6. Tzolakis, G., Papamokolaou, P., Kolokotronis, N., Samaras, N., Tourlidakis, A., and Tomboulides, A., "Simulation of a Coal-fired Power Plant Using Mathematical Programming Algorithms in Order to Optimize Its Efficiency," *Appl. Therm. Eng.*, **48**, 256-267 (2012).
7. Kim, S. H., and Lee, C. G., "A Trend of Producing Technologies of the Ashless Hyper Coal as a Clean Energy Source," *J. Energy Eng.*, **21**(4), 325-338(2012).
8. Okuyama, N., Komatsu, N., Shigehisa, T., Kaneko, T., and Tsuruya, S., "Hyper-cal Process to Produce the Ash-free Coal," *Fuel Process. Technol.*, **85**, 947-967(2004).
9. Takanohashi, T., Shishido, T., Kawashima, H., and Saito, I.,

- “Characterisation of Hypercoals from Coals of Various Ranks,” *Fuel*, **87**, 592-598 (2008).
10. Kopyscinski, J., Rahman, M., Gupta, R., Mims, C. A., and Hill, J. M., “K₂CO₃ Catalyzed CO₂ Gasification of Ash-free Coal. Interactions of the Catalyst with Carbon in N₂ and CO₂ Atmosphere,” *Fuel*, **117**, 1181-1189 (2014).
 11. Kopyscinski, J., Lam, J., Mims, C. A., and Hill, J. M., “K₂CO₃ Catalyzed Steam Gasification of Ash-free Coal. Studying the Effect of Temperature on Carbon Conversion and Gas Production Rate Using a Drop-down Reactor,” *Fuel*, Article in Press (2014).
 12. Kim, J., Choi, H., Lim, J., Rhim, T., Chun, D., Kim, S., Lee, S., and Yoo, J., “Hydrogen Production Via Steam Gasification of Ash Free Coals,” *Int. J. Hydro. Energy*, **38**, 6014-6020 (2013).
 13. Park, S. K., Jun, Y. S., and Kim, H. T., “A Comparative Study on Catalyst Gasification Reaction Using Lignite and Hyper Coal,” Abstract of Korea Society of Energy & Climate Change, pp. 89-93 (2009).
 14. Jin, S. M., Yoo, J. H., Rhee, Y. W., Choi, H. K., Lim, J. H., and Lee, S. H., “Improved Performance of Direct Carbon Fuel Cell by Catalytic Gasification of Ash Free Coal,” *Clean Technol.*, **18(4)**, 426-431 (2012).
 15. “ASPEN Plus Model for Entrained Flow Coal Gasification,” ASPEN Technology, Inc(2011).
 16. Suuberg, E. M., Peters, W. A., and Howard, J. B., “Product Composition and Kinetics of Lignite Pyrolysis,” *J. Chem. Eng.*, **17**, 37-46 (1978).
 17. Wen, C. Y., and Chaung, T. Z., “Entrained Coal Gasification Modeling,” *Chem. Process.*, **18**, 684-695 (1979).
 18. Wen, C. Y., “Noncatalytic Heterogeneous Solid Fluid Reaction Models,” *Chem. Eng.*, **60**, 34-54 (1968).