

# 바이오매스 변환을 위한 Dual 유동층 가스화공정의 개발

## 1. Dual 유동층 가스화 기술의 필요성

최근 국제 에너지 시장에서 석탄 및 바이오매스를 이용한 가스화 복합기술 (Integrated Gasification Combined Cycle, IGCC), 석탄 액화 (Coal to Liquid, CTL) 및 각종 화학원료 합성 공정들이 각광 받고 있다. 이는 석유의 생산이 하향세에 들어섰다고 판단되고 있으며 본격적인 석유 부족 시대가 도래 할 수도 있다고 예측되기 때문이다.

석탄/바이오매스 가스화는 연료를 고온(600-1000℃)에서 부분 산화하여 열을 발생시키고 한편으로 수증기를 주입하여 합성가스 (CO + H<sub>2</sub>)나 메탄 등의 가연성 가스를 생산하는 기술이다. 가스화 공정은 연소 공정과 달리 환원성 분위기에서 반응이 이루어져 비교적 오염원 배출이 적기 때문에 차세대 청정 이용 기술로 각광을 받고 있다. 국내에서는 석탄 및 바이오매스 가스화에 대한 기초적인 연구가 수행된 바 있으나 공정 개발에 대해서는 미국이나 일본, 유럽 등의 선진국에 비해 미약한 편이다. 다행히 최근 세계적인 신재생에너지며 특히 발전부분과 연계된 복합기술 개발에 대해서는 정부 연구프로그램이 최근 가동되고 있다.

가스화를 통해 생성된 합성가스는 주로 CO와 H<sub>2</sub>로 이루어졌으며 석탄 액화 공정에서 합성 석유를 생산하기 위해서는 합성가스의 H<sub>2</sub>/CO 비율이 Cobalt 계열의 촉매의 경우 2.15, Iron 계열의 촉매의 경우 1.05 - 1.7을 만족시키는 중 열량 합성가스를 필요로 한다. 따라서 고열량의 합성가스를 얻기 위해 가스화 매개체의 희석이 없고 최대한 반응성을 높일 수 있는 가스화기의 개발이 필요한 실정이다.

현재까지 상용화되어 있는 유동층 가스화 기에는 Winkler 가스화기, KRW (Kellogg-Rust-West inghouse) 가스화기, Spouted bed 부분 가스화기, Foster Wheeler 상온 CFB 가스화기, Battelee/Columbus 간접 가스화기, KBR transport 반응기, CO<sub>2</sub> acceptor 공정 등이 있다. 기존의 석탄 가스화기는 가스화 매체로 순 산소를 이용하는데, 가스화기 전단에 공기 분리 장치 (ASU: Air Separation Unit)가 요구된다. 예를 들어 석탄가스화 복합발전 기술 (IGCC : Integrated Gasification Combined Cycle)의 경우 ASU는 총 투자비의 12%로 높은 비용이 소요된다. 따라서 연료의 연소반응에 산소가 아닌 공기를 사용할 필요가 있으며 동시에 생성가스의 질을 유지할 수 있는 새로운 시스템이 요구된다.

가스화 반응은 흡열 반응이므로 지속적인 반응을 위해서는 외부로부터의 열 공급이 필요하다. 기존의 석탄 가스화기는 가스화 매체인 수증기 이외에 공기를 같이 주입, 연소반응을 유도

하여 이 때 발생된 연소열로 가스화 반응에 필요한 열을 공급하고 있다. 이렇게 생산된 생성가스에는 질소 함량이 45-55%로 높기 때문에 저열량 가스(4-6 MJ/Nm<sup>3</sup>)를 생산할 수밖에 없는 단점을 갖는다. 저 열량 가스는 열량이 낮기 때문에 합성 과정에는 적합하지 않을 뿐만 아니라 높은 질소 함량으로 활용하기 쉽지 않다. 연소매체로 공기가 아닌 순수한 산소를 사용하면 중 열량 이상의 생성가스를 얻을 수가 있지만 공기 분리장치(ASU)를 설치하고 유지하는데 큰 비용이 소요되어 이 또한 경제적이지 못하다. 이러한 점을 극복하고자 1970년대 중반부터 현재에 이르기 까지 새로운 개념의 가스화 기술이 개발되어 오고 있다.

최근 관심을 받고 있는 dual 유동층 기술은 기본적으로 공기에 의한 연소반응이 일어나는 연소로와 수증기 가스화 반응이 일어나는 가스화 반응기로 구성되어 있다. Fig. 1에 그 개념을 보인바와 같이 두 개의 반응기는 분리가 되어 있으며 연소 후 생성 가스는 연소로를 통해, 가스화 반응 후 생성기체는 가스화기를 통해 독립적으로 분리되어 배출되기 때문에 중 열량 이상의 합성가스를 얻을 수 있다. 분리된 두 반응기에 모래와 같은 열매체를 순환시킴으로써 연소로에서 생성된 열을 열매체를 통해 가스화기로 공급하여 가스화에 필요한 열을 충당한다. 또한 ASU가 필요 없으므로 투자비를 현저하게 줄일 수 있는 장점을 가지고 있다. 최근 세계적으로 이 double system을 응용한 가스화플랜트의 개발이 활발히 이루어지고 있어 이에 대한 소개는 향후 관련된 연구 개발에 큰 도움이 될 것으로 기대한다.

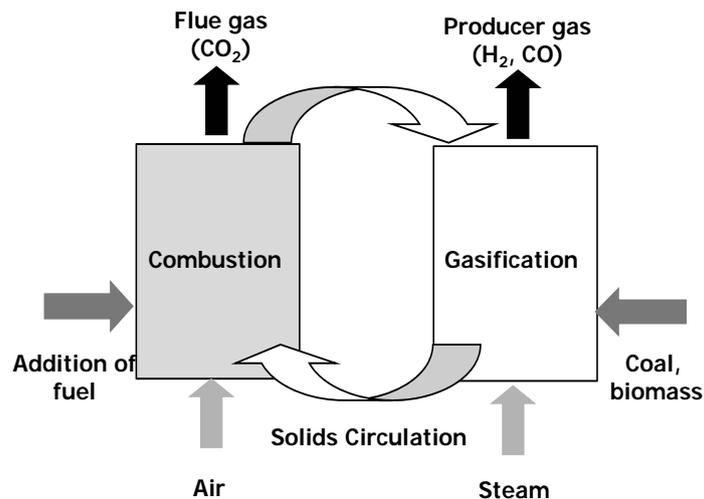


Fig. 1 Schematic diagram of dual fluidized bed gasifier

## 2. 국내·외 관련 기술의 현황

이 공정에 대해 여러 이름이 존재하고 정확히 정의가 되지 않는 않았지만 다른 연구자 들 및 기관들로부터 각각 다른 이름을 가지게 되었다. 예를 들면 Battelle-Columbus 가스화 공정 (2001), EBARA 사의 Internally Circulating Fluidized-bed Gasifier (ICFG) 기술, Hayashi (2006)의 dual-gas flow two-stage (DGF-TS) 가스화기, Corella 및 Herguido (1992)의 Multi-solid and Catalytic Double Fluidized Bed Circulating (MSCDFBC) 가스화기, Hofbauer(2000)의 Fast Internally Circulating Fluidized Bed (FICFB) 가스화기, TNEE(1989)의 dual fluidized bed 등으로 불려왔다. 따라서 Corella et al. (2007)은 이 기술의 명칭을 “Dual Fluidized Bed Gasifier (DFBG, dual 순환유동층 가스화기)” 로 통일하기로 제시하였다.

Dual 순환 유동층 가스화 기술은 연소매체로 공기를 사용하기 때문에 공기 분리 장치 (ASU) 가 필요 없어, 경제적이면서 가스화 영역에서는 순 수증기를 이용한 중 열량의 합성가스를 얻을 수 있는 장점을 가진다. Dual 순환 유동층 가스화기기는 앞서 말한 바와 같이 기본적으로 흡열반응의 가스화기와 발열반응의 연소기로 이루어져 있으며 각각의 반응기는 (1) bubbling fluidized bed (BFB), (2) two-in-series BFBs, (3) revolving (EBARA's concept) bed, (4) circulating fluidized bed (CFB), (5) riser with a BFB at the bottom, (6) moving bed or downer 중 하나로 구성된다.

### 가. 초기의 연구 그룹

초기의 dual 순환 유동층 가스화기에 대한 연구결과를 Table 1-1에 정리하였다. 일본의 D. Kunii 교수는 1975년 처음으로 일본 미야기 현에 RDF를 연료로 사용한 유동층 가스화 demo plant를 설치하였으며, 그 결과를 Table 1-1에 제시하였다(Corella et al., 2007). K-K (Kunii-Kunugi) 공정이나 Pyrox 공정을 디자인 할 때 가장 크게 고려한 점은 바로 가스화 구역과 연소 구역의 완벽한 sealing이었다. 그를 위하여 Deep legs가 K-K 공정이나 Pyrox공정에 사용되었지만, 이에 대한 보고는 드문 실정이다.

프랑스에서는, LERMAB (University of Nancy)와 TNEE사, 그리고 Saint Gobain이 DFBG를 개발하였다. 이 500kg wood/h 용량의 가스화기는 1984-1985년에 조업되었으며 생성가스의 저위 발열량은 15 MJ/Nm<sup>3</sup>인 것으로 알려졌다. 가스화기는 800°C 조업되는 기포 유동층 반응기였고 가스 배출구 (이 경우 열분해 가스)를 갖고 있었으며, 연소기는 고속유동층 riser로서 950 °C에서 조업되었다.

미국에서는 오하이오 주의 Battelle-Columbus Laboratories (BCL)에서 일본의 Pyrox system과 비슷한 DFB 바이오매스 가스화기를 개발하였으며 1992년 이 기술은 FERCO사가 구입, 특허를 갖게 되었으며 Burlington, VT에 demonstration scale에 도달하게 된다. 그들의 결과를 요약하면 다음과 같다.

- (1) 가스화생성가스는 비교적 낮은  $H_2$  함량이다 (17.3 vol%).
- (2) 가스화생성가스에는 타르함량이 높다 (23-32 g tar/Nm<sup>3</sup>)
- (3) 본 실증플랜트는 희망적이며 세계적으로 유동층 바이오매스 가스화기술과 관련하여 매우 중요한 결과를 제공한다.

그럼에도 불구하고 이 공정이 왜 중지되었는지에 대한 언급은 어디에도 찾아볼 수가 없다. 다만 single reactor 내부의 순환 시스템이 여러 문제점을 가지고 있었으리라는 예상은 해 볼 수 있다.

Table 1-1 Pioneering dual fluidized bed gasifiers

Parameter	Value/Comment			
	Kunii and co-workers	Lelan and co-workers	Paisley and co-workers	Fonzi and Italenergie S.p.A.
location of the authors	Funabashi, Japan	Rueil-Malmaison, Nancy, France	Burlington, VT USA	Sulmona, Italy
<b>Gasifier</b>				
type	deep BFB	BFB	riser	BFB
gasification agent	steam	recycled product gas (0.76 Nm <sup>3</sup> /kg pine barks)	steam	recycled pyrolysis gas + steam
feedstock	MSW	pine barks (38% water content)	several types of biomass	wood
capacity (kg <sub>a.r.</sub> /h)	6250	500	~ 9000	100—300
internal diameter (cm)	classified	55		120
effective (internal) total height (m)	classified	4		0.70 (bed)
temperature (°C)	720—750	760	660—820	700—750
pressure (at the top of the gasifier)	ambient	atmospheric		
<b>Regenerator/Combustor</b>				
type	deep BFB	riser	riser	BFB
internal diameter (cm)	classified	50		
total height (m)	classified	8		
temperature (°C)	820—850	980		830—880
pressure (at the top of the regenerator)	ambient	atmospheric		
sorbent or catalyst or in-bed or in-system circulating material, C	sand	sand	sand	“inert material” (α-Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> )
circulation, cycling, or recycle ratio, C/F (kg C/h)/(kg feedstock <sub>a.r.</sub> /h)	40—50	20	?	?
<b>Results</b>				
tar content (g/Nm <sup>3</sup> ) <sup>b</sup>		38	23—32	unavailable
LHV gas (MJ/Nm <sup>3</sup> ) <sup>b</sup>	~ 21	15.0	17.3	14.6
carbon conversion (%)		83% in gas [17% of C used for the entire process]		74
H <sub>2</sub> content (vol %) <sup>b</sup>	14.6—16.5	22.7	22	33.5
remarks	commercial operation for 8 yrs	pilot was operated by TNEE in la Cellulose du Pin Chemical Pulp Mill, at Factice, near Bordeaux		the combustor was an annular chamber surrounding the gasifier (they were “two concentric BFBs”)

<sup>a</sup>a.r. = as received. <sup>b</sup>Dry basis.