

3MW_{th}급 순환유동층 바이오매스 가스화기의 운전에서 Equivalence ratio 영향

박성범* · 이정우* · 송재현* · 박대원†

*한솔신텍(주)

†서울과학기술대학교 에너지환경대학원 에너지환경공학과
(2017년 2월 6일 접수: 2017년 3월 7일 수정: 2017년 3월 21일 채택)

Effect of equivalence ratio on operation of 3MW_{th} circulating fluidized bed for biomass gasification

Seongbum Park* · Jeungwoo Lee* · Jaehun Song* · Daewon Pak†

*Hansol SeenTec

†Graduate School of Energy and Environment, Seoul National University of
Science and Technology, Seoul 139-743, Korea

(Received February 6, 2017; Revised March 7, 2017; Accepted March 21, 2017)

요약 : 유동층가스화기는 경제적으로 기술적으로 입증된 기술로서 가장 상용화에 가까운 가능성을 보여주고 있다. 그러나 한국에서는 설계, 현장문제 해결뿐 아니라 파일럿 규모의 설비 운전 등이 부족하여 상용화에 이르지 못하고 있다. 본 연구에서는 바이오매스의 가스화를 위하여 3 MW_{th} 급 순환유동층(CFB) 반응기를 개발하여 운전하였다. 유동층반응기는 순환유동층 반응기와 기포유동층 반응기로 구성되었으며 타르와 산성가스를 제거하기 위하여 세라믹필터, 급속냉각, 습식스크러버를 사용하였다. 3 MW_{th} 급 바이오매스 가스화기의 최적 운전조건을 도출하기 위하여 equivalence ratio에 따른 영향을 조사하였다

주제어 : 바이오 매스 가스화, CFB, BFB, 합성 가스 발전

Abstract : Fluidized bed gasification is technically and economically proven technology, which shows the high possibility of realization and commercialization. However, in Korea, development of FBG to the commercial scale for power generation and industry is mainly blocked by the fact that there is no experience of design, troubleshooting and operation of even pilot scale fluidized bed gasifier. In this study, a 3 MW_{th} circulating fluidized bed(CFB) was newly developed for biomass gasification. The fluidized bed was mainly composed of circulating and bubbling fluidized reactors integrating in-situ tar removal step in the system. For cleaning of the tar and acid gas in the product gas, the sequential gas cleaning process comprised of a ceramic filter, rapid quencher and

†Corresponding author
(E-mail: daewon@seoultech.ac.kr)

wet scrubber was adopted. Effect of equivalence ratio was investigated to find the optimal operating conditions for the 3 MW_{th} integrated system of fluidized bed gasification.

Keywords : biomass gasification, CFB, BFB, syngas power generation

1. 서론

바이오매스는 재생가능하고 탄소 중립적인 에너지원으로서 연소, 열분해, 가스화 등의 열화학 공정, 발효 및 혐기성 소화 등의 생물학적 공정을 통해 전기 및 열 생산뿐만 아니라 바이오에탄올, 바이오디젤 및 바이오가스 등의 다양한 에너지원으로 활용되고 있다[1,2].

바이오매스의 가스화는 기술적, 경제적으로 입증된 기술 중의 하나이다[3-6]. 유동층을 이용한 바이오매스 가스화기술은 유럽을 중심으로 활발하게 연구가 진행되었으며 현재까지 전 세계적 기술수준을 고려할 때 실질적으로 상용화에 매우 가까운 가능성을 보여준다[7-10].

순환유동층 가스화 기술과 관련하여 유럽에서는 1980년대 초기 핀란드 Ahlstrom (현재 Foster Wheeler)사에 의해 15-35MW의 순환유동층 반응기가 설치되었으며, 가스화기에서 생성된 가스는 펄프공장의 lime kiln의 연료로 사용하였다. Lurgi 순환유동층 가스화기는 제지공장의 lime kiln에 열에너지를 공급하기 위해 Austria에 설치되었으며 1996년 이후에는 독일의 Ruderdorfer Zement GmbH에서 가동 중인 것으로 알려졌다. 기존 보일러에 합성가스를 혼소하기 위해 오스트리아 Zeltweg에 처음으로 가스화기가 설치되었으며, 이후 핀란드 Lahti, 네덜란드 Amer, 미국 Vermont, 벨기에 Ruien에 가스화기가 설치되었다. 하지만 발전소의 폐쇄로 인해 오스트리아의 Zeltweg는 운전이 중단되었다고 알려지고 있으며, 미국 Vermont 프로젝트 또한 성공을 거두었지만 발전소의 낮은 이용률로 인해 현재에는 운전되지 않고 있다. Lahti 가스화기는 성공적으로 운전되었고 유사한 타입의 가스화기가 벨기에 Ruien에서 운전되고 있다. 가스화 복합발전에서 사용된 예는 영국에 설치되어 운전된 ARBRE 프로젝트가 있다. ARBRE 프로젝트는 복합발전에서 운전되어 왔으나, 알 수 없는 이유로 장치의 소유주인 Kelda 그룹이 EPRI에 플랜트를 팔게 되면서 중단되었다. Bioelettrica 프

로젝트는 Lurgi의 가스화 기술을 활용하였으나 많은 기술적 문제들을 가지고 있었고 후에 Carbona의 가압 가스화 기술로 전환되었으며 2003년에 프로젝트가 완전히 종료되었다. Foster Wheeler의 Varnamo 가압 가스화기는 설비로부터 긍정적인 결과를 얻었지만 프로젝트가 보류되었다가 EU의 다자간 공동개발기술 프로그램의 승인 하에 Varnamo 가스화기를 이용하여 합성가스를 생산하기 위한 CHRISGAS 프로젝트를 수행하게 되었다. 순환유동층 가스화기에 가스엔진을 접목시켜 에너지 생산하기 위한 장치로는 REPOTECH과 Vienna공대가 개발한 오스트리아 Gussing의 2MWe급 바이오매스 가스화 시스템이 있다[11].

국내의 경우 유동층 바이오매스 가스화기술은 지속적인 연구개발이 이루어지고 있으나 아직까지 발전 및 산업용으로 활용할 수 있는 상용급 수준의 기술확보가 이루어지지 않고 있다[12-15]. 그 주요 요인은 대용량 유동층 가스화기에 대한 설계, 제작 및 운전기술에 대한 know-how가 축적되어 있지 않은 점을 들 수 있으며 특히, 바이오매스의 경우 석탄과 비교할 때 에너지밀도, 성상 및 수분 함량 등에 현격한 차이가 있기 때문에 석탄 유동층 연소기 또는 가스화기와의 설계 및 운전이 서로 상이하다는 점을 들 수 있다. 본 연구에서는 목질계 바이오매스를 대상으로 한 대용량 순환유동층 가스화기의 운전에서 Equivalence ratio에 따른 영향을 연구하였다.

2. 연구방법

2.1. 유동층 가스화기 제작 및 운전

본 연구에서 제작된 유동층 가스화기의 기본공정개념은 Fig. 1과 같다. 연소기와 가스화기가 분리된 이중 유동층 구조를 특징으로 하며, 연소기는 순환유동층, 가스화기는 기포유동층으로 운전된다. 주 연료인 바이오매스는 가스화기로 투입되어 가스화가 진행되고 미 반응된 바이오매스는

Char로 전환되어 층물질과 함께 하부루프실을 통해 연소기로 이송되어 연소된다. 연소기에서 가열된 층물질은 사이클론과 상부루프실을 거쳐 가스화기로 공급되어 가스화 반응의 열원으로 사용된다. 본 연구에서는 생성가스의 광범위한 적용을 위해서 유동화 기체로 공기와 스팀을 동시에 사용할 수 있도록 구성하였고, 가스화기로부터 발생된 생성가스와 타르성분을 연소로에서 in-situ 방식으로 개질할 수 있도록 생성가스의 경로를 연소기의 freeboard 쪽으로 변경 가능하도록 하였다. 유동층 가스화기의 주요 사양을 Table 1에 나타내었다.

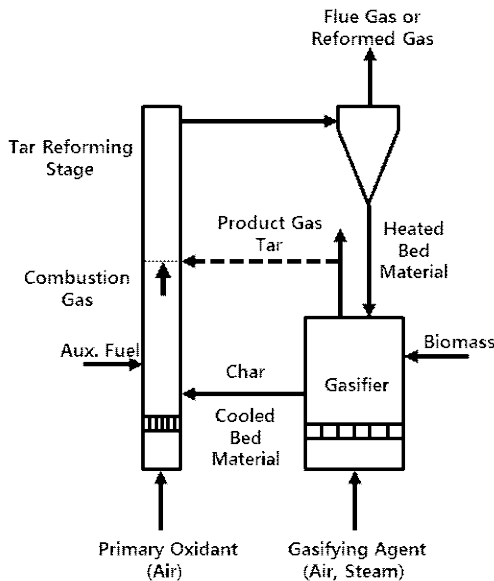


Fig. 1. Basic concept of 3MW_{th} fluidized bed gasification process.

순환유동층 가스화기에 층 물질을 유동화 시킨 상태에서 Start-up burner를 사용하여 연료의 착

화가 가능한 온도(≥400℃)까지 가열하였다. 층 내 온도가 착화 가능 온도에 도달했을 때 Feeder를 이용해 가스화기 내부로 연료를 공급하였다. 층 내 온도가 600℃ 이상의 온도에 도달할 때까지는 연소조건에서 가스 조성을 모니터링하며 반응기 내부에 연료가 과잉으로 공급되지 않도록 서서히 공급하였으며, 600℃이상부터 연료를 연속으로 공급하여 가스화기 온도를 원하는 온도까지 승온하였다. 원하는 온도에 도달했을 때 Equivalence Ratio(이하 ER)을 1이하로 조정하여 연소조건에서 가스화 조건으로 반응 조건을 서서히 전환시켰다. 가스화 반응에서 생성된 합성가스는 Online-gas analyzer를 통해 실시간으로 분석하였으며, 가스 성상의 비교분석을 위해 정상상태 조건에서 가스를 Sampling port를 통해 채취하여 GC로 분석하였다. Table 2는 가스화 실험을 위한 실험 변수 및 범위를 나타내었다.

Table 2. Operation conditions of 3MW_{th} fluidized bed gasification process

Parameter	Range
Feeding rate(kg/hr)	145 ~ 660
Gasifier temperature(℃)	700 ~ 850
ER(-)	0.25 ~ 0.67
SBR(-)	0.29 ~ 0.46
Gasifier fluidizing velocity(m/s)	0.37~0.56 (3.8U _{mf} ~5.7U _{mf})

2.2. 가스 분석

가스화를 통해 생성된 합성가스의 분석은 ABB사의 Online-Gas analyzer를 사용하여 H₂, CO, CO₂, CH₄, O₂를 실시간으로 분석하여 1초 간격으로 데이터를 저장하였다. Table 3에 Online-Gas analyzer의 사양을 나타냈다.

Table 1. 유동층 가스화기의 주요 제원

Feedstock		Woody biomass
Capacity		3MW _{th} (15Ton/day)
Dimension	Gasifier	1.0m(W)X1.5m(L)X2.5m(H)
	Riser	Φ0.4m X 15.8m
Fluidization Velocity	Gasifier	0.3~0.5m/s(3~5U _{mf})
	Combustor	4~5m/s
Bed material		Silica sand, 380μm

Table 3. Specification of online-gas analyzer

Gas component	Measurement type	Measurement range (vol.%)
H ₂	TCD	0~50
CO	NDIR	0~50
CO ₂	NDIR	0~20
CH ₄	NDIR	0~15
O ₂	Magneto-mechanical analysis	0~21

2.3. 성능평가

가스화기의 성능평가를 위해 연료의 성상 및 투입량, 합성가스의 조성 및 유량을 통해 저위발열량(LHV) 및 냉가스효율, 탄소전환율을 결정하였다. 합성가스의 저위발열량은 식 (1)을 통해 계산하였다.

$$LHV = (30 \times CO + 25.7 \times H_2 + 85.4 \times CH_4 + 151.3 \times C_nH_m) \times 4.2 \text{ (kJ/Nm}^3\text{)} \quad (1)$$

가스화 시스템의 성능 평가 시 중요한 인자 중 하나인 냉가스효율(Cold gas efficiency, CGE)은 투입연료의 총 발열량에 대해 현열을 제외한 합성가스의 총 발열량의 비로 표현되며 냉가스효율 계산을 위해 식 (2)가 사용되었다. 탄소전환율은 (Carbon conversion efficiency, CCE)는 가스화기로 공급되는 연료 중 carbon의 양에 대한 생성 가스에 포함 된 carbon의 양으로 표현 될 수 있으며 식(3)을 사용하였다.

$$CGE = \frac{Q_{gas} \times LHV_{gas}}{M_{fuel} \times LHV_{fuel}} \quad (2)$$

$$CCE = \frac{Q_{gas} \times C_{gas}}{M_{fuel} \times C_{fuel}} \quad (3)$$

$$Q_{gas} = \text{volume flow of gas (m}^3\text{/s)}, LHV_{gas} = \text{low heating value of gas (kJ/m}^3\text{)}$$

$$M_{fuel} = \text{solid fuel consumption (kg/s)}, LHV_{fuel} = \text{low heating value of fuel (kJ/kg)}$$

3. 결과 및 고찰

3.1. Equivalence ratio (ER) 에 따른 출구 온도 변화

ER (equivalence ratio: 완전연소 대비 산소 비율) 변화에 따른 가스화기 및 Riser 출구 온도변화를 Fig. 2에 나타내었다. ER이 1.0 이하로 낮아지면 연소 조건에서 가스화 조건으로 전환되며 공급되는 연료가 가스화 반응에 의해 합성가스로 전환되기 위해 열을 필요로 하는 흡열반응이 진행된다. 가스화 반응에 따른 흡열반응으로 ER이 낮아짐에 따라 가스화기 온도는 점차 낮아지는 것을 확인 할 수 있으며, Char의 연소 및 합성가스가 일부 연소되면서 Riser의 온도는 점차 증가하게 된다. 본 실험에서 공기를 가스화 매체로 사용하는 순환유동층 가스화기를 ER 0.2 ~ 0.4의 조건에서 운전할 경우 반응온도를 700°C 이상으로 유지하기 위해서 추가적인 열공급이 필요하며 반응기 온도를 유지하기 위한 열원은 층 물질의 순환을 통해 Riser로부터 열을 공급받아 가스화기 온도 유지에 필요한 추가 열원으로 공급하였다.

3.2. ER 변화에 따른 합성가스의 조성 및 발열량 변화

ER 변화에 따른 합성가스의 조성 및 발열량 변화를 Fig. 3에 나타내었다. ER이 낮아짐에 따라 CO, H₂ 및 CH₄의 수율은 증가하였으며 이로 인해 합성가스의 저위발열량이 증가 되었다. 가스화 반응에서 생성된 합성가스는 최종 사용용도에 따라 요구되는 Gas 조성이 다르게 된다. 본 실험에서는 가스화 반응으로 생성된 합성가스를 가스엔진에 공급하여 전력을 생산하는 목적을 가지고 있어서 이를 위해서는 합성가스의 조성을 upgrade 해야 할 필요가 있다. 합성가스의 조성은

반응온도, 가스화 매체에 영향을 받으며 온도가

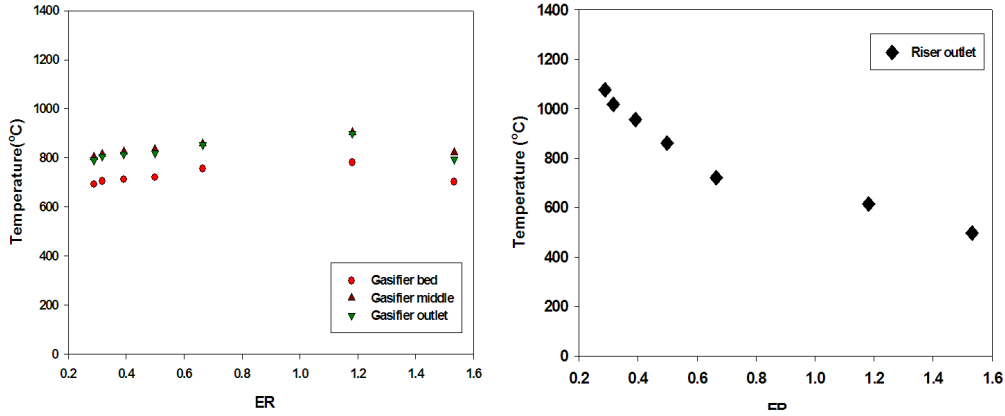


Fig. 2. Temperature of gasifier and riser depending on equivalence ratio.

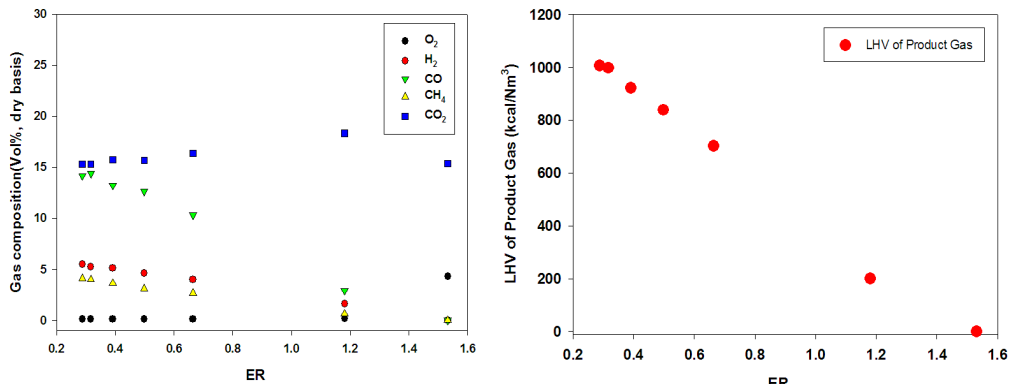


Fig. 3. Effect of equivalence ratio on syngas composition and its heating value

높아짐에 따라 수소는 증가하는 반면 메탄은 낮아지게 된다. 가스엔진의 초기 시동을 위해서는 수소의 농도가 중요한 역할을 하며 시동이 걸린 이후 엔진이 구동되기 위해서는 열량이 높은 메탄의 농도가 일정수준 이상으로 유지되어야 한다.

본 연구에서는 반응온도에 따른 영향을 확인하기 위해 가스화기의 온도를 750°C 이상으로 유지시키며 ER에 따른 합성가스조성 변화를 확인하였으며, Fig. 4와 Table 4에 나타내었다. Riser로 공급된 고온의 층 물질의 열원으로 인해 Autothermal 보다 높은 반응온도를 유지할 수 있었으며, 온도가 높아짐에 따라 같은 ER 조건에서 합성가스 내의 수소 및 메탄의 농도가 증가하였다.

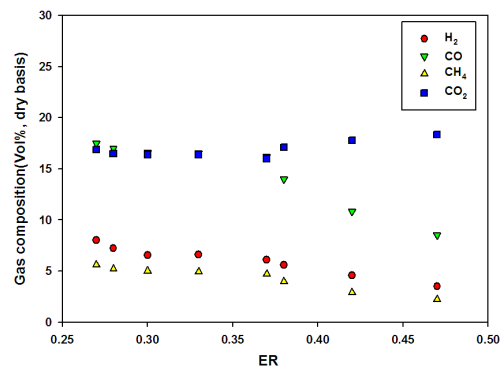


Fig. 4. Effect of equivalence ratio on syngas composition

Table 4. Operation conditions of gasifier and syngas composition depending on equivalence ratio

Biomass feeding rate(kg/hr)	348	394	443	443	494	547	602	602
Air flow rate(Nm ³ /hr)	662	669	677	664	665	663	670	665
Bed temperature(°C)	853	879	836	841	799	796	790	750
Freeboard temperature(°C)	860	872	826	822	771	768	765	731
ER(-)	0.47	0.42	0.38	0.37	0.33	0.30	0.28	0.27
Gas composition								
CO (Vol%, dry)	8.52	10.83	13.98	16.20	16.54	16.60	17.00	17.5
H ₂ (Vol%, dry)	3.48	4.58	5.58	6.10	6.60	6.56	7.20	8.01
CO ₂ (Vol%, dry)	18.32	17.80	17.10	15.95	16.38	16.37	16.50	16.9
CH ₄ (Vol%, dry)	2.19	2.87	3.94	4.70	4.90	5.01	5.20	5.61
Gas Flow rate*(Nm ³ /hr)	764	815	887	906	912	931	965	997
LHV(MJ/Nm ³)	2.23	2.89	3.78	4.39	4.55	4.60	4.79	5.08
CGE	0.29	0.35	0.45	0.53	0.51	0.46	0.45	0.49

합성가스 내의 수소 함량을 보다 높이기 위해 공정에서 생성되는 스팀을 가스화기에 일정하게 공급하였으며 ER을 낮추면서 합성가스 조성을 확인하였다. Fig. 5와 Table 5에는 반응조건 및 실험 결과를 나타내었다. 스팀이 주입됨에 따라 동일한 ER 조건에서 수소의 농도가 상승함에도 불구하고 CO 및 CH₄의 수율이 감소하며, 합성가스의 저위발열량은 큰 변화가 없었다. 합성가스 내 수소 농도의 상승은 가스 엔진 시동을 위해 긍정적인 요인으로 작용하나 스팀이 주입됨에 따라 동일한 ER 조건에서 하강하는 온도 유지를 위해서는 보조 열원이 추가적으로 소요되므로 시스템의 효율은 다소 저하 될 수 밖에 없다고 판단된다.

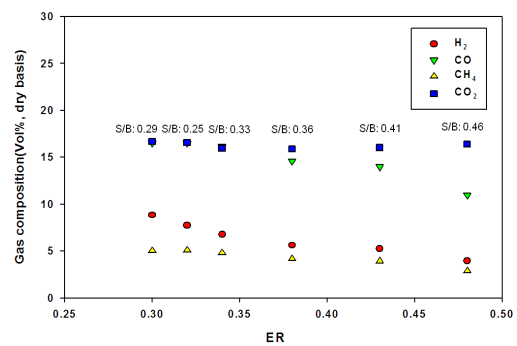


Fig. 5. Effect of steam injection on syngas composition

Table 5. Operation conditions of gasifier and syngas composition depending on steam injection

Biomass feeding rate(kg/hr)	347	394	443	494	547	547
Air flow rate(Nm ³ /hr)	679	677	681	674	700	662
Steam flow rate(kg/hr)	161	161	161	161	137	161
Bed temperature(°C)	821	811	804	787	740	743
Freeboard temperature(°C)	810	794	787	778	752	752
ER(-)	0.48	0.43	0.38	0.34	0.32	0.30
S/B	0.46	0.41	0.36	0.33	0.25	0.29
CO (Vol%, dry)	10.98	13.99	14.6	16.17	16.52	16.53
H ₂ (Vol%, dry)	3.95	5.28	5.63	6.79	7.75	8.85
CO ₂ (Vol%, dry)	16.41	16.03	15.91	15.92	16.55	16.66
CH ₄ (Vol%, dry)	2.9	3.95	4.19	4.82	5.10	5.05
Gas Flow rate*(Nm ³ /hr)	798	866	887	931	1007	973
LHV(MJ/Nm ³)	2.85	3.75	3.95	4.5	4.75	4.85
CGE	0.38	0.48	0.46	0.50	0.51	0.51

4. 결론

3 MW_{th} 급 순환유동층 바이오매스 가스화기의 연속 운전을 통해 최적 운전조건을 도출하기 위하여 equivalence ratio에 따른 영향을 조사하여 다음과 같은 결과를 도출하였다.

1. 공기를 가스화 매체로 사용하는 순환유동층(CFB) 가스화기에서 Equivalence ratio (ER) 가 낮아짐에 따라 가스화기 온도가 낮아져서 ER을 0.2 - 0.4의 조건에서 운전할 경우 가스화 반응 온도인 700°C 이상 유지하기 위해서는 추가적인 열원 공급이 필요하였다. 이를 위해 Riser에서 승온된 층물질의 순환을 통하여 열공급을 받았다.
2. ER 이 낮아짐에 따라 합성가스의 조성이 변화가 관찰되었으며 가연성가스 성분의 수율증가로 인하여 저위발열량이 상승하는 것을 확인할 수 있었다.
3. 스팀을 주입하여 합성가스의 조성을 변화시킬 수 있었다. 스팀을 주입할 경우 동일 ER 조건에서 수소 농도가 상승함에도 CO 및 CH₄의 수율이 감소하여 합성가스의 저위발열량에는 큰 변화가 없었다.

감사의 글

본 연구는 산업통상자원부 산하 산업기술진흥원의 국제공동기술개발사업의 일환 (과제번호 : GT-2009-BI-IN-0036) 으로 수행되었습니다.

References

1. J.Y. Soh, H.J. Kim, J.S. Lee, K.S. Oh, Index Evaluation to Define the Bioenergy as a Renewable Energy Resource, J.Kore.Oil Chem. Soc., 30(3), 480(2013)
2. J.H. Lee, J.K Kim, E.S. Yim, C.S. Chung, H.J. Rheem, Overview of the Biomass as a Renewable Energy, J.Kor.Oil Chem. Soc., 29(4), 638(2012)
3. J.H. Moon, J.W. Lee, U.D. Lee, Economic analysis of biomass power generation schemes under renewable energy initiative with Renewable Portfolio Standards (RPS) in Korea, Bioresour. Technol.,102(20), 9550(2011)
4. T.X. Do, Y.I Lim, H.J Yeo, U.D. Lee, Y.T. Choi, J.H. Song, Techno-economic analysis of power plant via circulating fluidized-bed gasification from woodchips, Energy, 70, 547(2014)
5. C.Z.Wu, H. Huang, S.P.Zheng, X.L.Yin, An economic analysis of biomass gasification and power generation in China, Bioresource Technology, 83, 65(2002)
6. P.Klimantos, N. Koukouzas, A.Katsiadakis, E.Kakaras, Air-blown biomass gasification combined cycle(BGCC): System analysis and economic assessment, Energy, 34, 708(2009)
7. H. Hofbauer, R. Rauch, K. Bosch, R. Koch, C. Aichernig, Biomass CHP plant Guessing - a success story, In: Bridgwater, A.V. (Ed.): Pyrolysis and Gasification of Biomass and Waste, CPL Press, Newbury, UK, 527(2003)
8. J. Hrbek, Status report on thermal biomass gasification in countries participating in IEA Bioenergy Task 33, IEA(2016)
9. H. Thunman, F. Niklasson, F. Johnsson and B. Leckner, Composition of volatile gases and thermochemical properties of wood for modeling of fixed or fluidized beds, Energy Fuels, 15(6), 1488(2001).
10. L.R. Glicksman, M.R. Hyre, P.A. Farrell, Dynamic similarity in fluidization, Int. J. Multiphase Flow, 20(1), 331(1994)
11. E4tech, Review of Technologies for Gasification of Biomass and Wastes, NNFCC project(2009)
12. W.J. Cho, Y.G. Mo, T.K Song, Y.S. Baek, S.S. Kim, Synthesis Gas Production from Gasification of Woody Biomass, Trans. Of the Korean Hydrogen and New Energy Society, 21(6), 587(2010)
13. K.S. Kim, B. Leckner, J.W. Lee, U.D. Lee, Y.T. Choi, A Devolatilization Model of

- Woody Biomass Particle in a Fluidized Bed Reactor, Korea Chem.Eng.Res., 50(5), 850(2012)
14. W.J. Jo, S.H. Jeong, S.J. Park, Y.T. Choi, D.H. Lee, Effects of Biomass Gasification by Addition of Steam and Calcined Dolomite in Bubbling Fluidized Beds, Korean Chem.Eng.Res., 53(6), 783(2015)
15. H.Sun, B.H. Song, Y.W. Jang, S.D. Kim, H. Li, J. Chang, The characteristics of steam gasification of biomass and waste filter carbon, Korean J. Chem. Eng., 24(2), 341(2007)