

바이오매스 가스화 공정의 생성가스 중 타르 및 입자 제거를 위한 pre-coating 기술 연구

김준엽^{1,2}, 최병권¹, 조영민², 김상범^{1*}
¹한국생산기술연구원, ²경희대학교 환경응용과학과

Removal of tar and particulate from gasification process using pre-coating technology

Joon-Yub Kim^{1,2}, Byoung-Kwon Choi¹, Young-Min Jo², Sang-Bum Kim^{1*}

¹Korea Institute of Industrial Technology

²Department of Applied Environmental Science, Kyunghee University

요약 화석연료의 고갈 및 지구 온난화 등 환경문제에 대응하기 위해 세계는 화석연료를 대신할 에너지에 대한 연구를 진행하고, 그중 바이오매스가 대체에너지로써 주목받고 있다. 바이오매스는 재생 가능하고 탄소 중립(carbon neutral)적인 특성이 있으나 수분함량이 많고 낮은 에너지밀도를 가지므로 에너지 생산 시스템에 이용하기 위해서는 열화학적 변환 공정이 필요하다. 그중 하나인 가스화는 바이오매스로부터 수소, 일산화탄소, 메탄 등으로 구성된 합성가스(syngas)를 생성시켜 연료로써 이용할 수 있도록 해준다. 그러나 가스화 과정 중에 발생하는 타르와 입자상 물질은 배관, 연소 엔진, 발전 터빈 등에서 막힘 현상을 일으켜 공정 효율을 감소시키는 문제를 야기하므로 제거가 필요하다. 본 연구에서는 가스화 공정에서 발생하는 타르를 비롯한 입자물질에 대해 제거 효율이 뛰어난 필터를 사용하였으며, 타르로부터 필터 눈 막힘 현상을 방지하기 위해 pre-coating 기술을 적용하였다. pre-coating에 사용된 물질로써는 소석회와 활성탄(wood char)을 사용하였으며, 타르 및 입자에 대한 제거효율이 소석회 코팅의 경우 86 %, 활성탄(wood char)의 경우 80 %로 나타났다.

Abstract Due to the depletion and environmental problems of fossil fuel, biomass has arisen as an alternative energy source. Biomass is a renewable and carbon-neutral source. However, it is moister and has lower energy density. Therefore, biomass needs thermal chemical conversion processes like gasification, and it does not only produce a flammable gas, called 'syngas', which consists of CO, H₂, and CH₄, but also some unwanted byproducts such as tars and some particulates. These contaminants are condensed and foul in pipelines, combustion chamber and turbine, causing a deterioration in efficiency. Thus this work attempted to find a method to remove tars and particles from syngas with a filter which adopts a pre-coating technology for preventing blockage of the filter medium. Hydrated limestone powder and activated carbon(wood char) powder were used as the pre-coat materials. The removal efficiency of the tars was 86 % and 80 % with activated carbon(wood char) coating and hydrated limestone coating, respectively.

Keywords : Biomass, Gasification, Tar, Particulate, Filter, Pre-Coating

1. 서론

화석연료의 고갈 및 지구온난화를 비롯한 환경 문제로 인해 이를 대체할 에너지원으로써 바이오매스가 주목받

본 논문은 한국생산기술연구원 연구과제(No. Kitech JA-19-0009)로 수행되었음.

*Corresponding Author : Sang-Bum Kim(Korea Institute of Industrial Technology, KITECH)
email: sbkim@kitech.re.kr

Received August 8, 2018

Revised November 11, 2018

Accepted December 6, 2019

Published December 31, 2019

고 있다[1].

2016년 세계 에너지 생산 분야 중 바이오 및 폐기물 분야는 15년 9.5 %에서 16년 9.8 %로 증가하였고, 우리나라의 경우 신재생 에너지를 통한 에너지 생산이 13년 21.7 %에서 17년 30.5 %로, 그중에서 바이오 분야는 13년 15.8 %에서 16년 19 %로 증가하였으며, 앞으로도 신재생 에너지를 통한 에너지 생산 비중이 꾸준히 증가할 것으로 예상하였다[2,3].

바이오매스는 식물과 같이 광합성을 통해 양분을 만드는 유기 생명체의 총칭이며 넓게는 음식폐기물, 분뇨 등 유기성 폐기물도 포함된다. 따라서 바이오매스는 화석연료와 달리 세계 곳곳에 고르게 퍼져있으며, 손쉽게 구할 수 있고 지구온난화의 주범으로 불리는 이산화탄소 배출에 있어서 탄소 중립적(carbon neutral)인 특성이 있으므로, 온실가스 감축을 시도하는 현대에 화석연료를 대신할 수 있는 대체 연료 중 하나이다[4,5].

바이오매스는 수분이 많고, 낮은 점화 온도와 에너지 밀도를 가지고 있어 발전 설비에서의 직접적인 사용이 어렵다. 따라서 열분해나 가스화와 같은 열화학적 변환을 통해 합성가스(syngas)를 생산하는 과정이 필요하다[6].

가스화는 공기, 증기(steam), 산소 등의 산화제와 함께 바이오매스나 석탄, 플라스틱 등 탄소질 물질(carbonaceous substance)을 열화학적으로 부분 산화시켜 H_2 , CO, CH_4 구성의 합성가스를 생산한다. 이렇게 생성된 가스는 열과 전기를 생산하거나 액체연료로 합성되며, 연료전지의 연료로 사용된다[7].

가스화로 생성된 합성가스는 연료로 사용하거나 발전을 통한 에너지 생산에 사용하기 전에 정제공정을 거쳐야 하는데, 합성가스 생산 시 타르(tar)를 비롯하여 재(ash), 찰(char) 등 입자상 물질이 발생하며, 이러한 불순물들은 가스화 후단 발전설비의 배관에 축적되어 배관 막힘 현상을 일으켜 발전효율을 떨어뜨리거나 운영비용을 증가시키므로 정제가 필요하다[8,9]. 타르는 탄화수소의 복합체로서 그 종류가 다양하다. 연구자마다 내리는 정의가 다르긴 하나, 공통적으로 벤젠 이상의 분자량을 가지며 점착성이 있는 물질이라고 명시하고 있다[10,11].

입자상 물질의 제거에는 필터를 통한 제거가 유리하나 가스화로 생성된 합성가스 내 타르의 존재로 인해 타르가 필터 표면에 달라붙어 필터 눈 막힘 현상을 발생시키거나, 타르가 필터로 유입된 재 나 찰 등의 입자가 함께 필터 표면에 엉겨 붙으면서 케이크(cake) 층 형성을 방해하는 등 필터의 기능을 저하시킨다[12,13]. 따라서 가스화 공정에 집진 장치를 적용하여 타르 물질을 제거하

는 선행 연구에는 세라믹 필터 혹은 촉매가 담지 된 세라믹 필터를 이용하여 고온에서 타르의 응축을 억제하며 열에 의해 분해 및 제거하는 연구가 주로 진행되었다[14,15,16].

세라믹 필터의 경우 그 비용이 상당하고, 기계적 특성이 약하기 때문에 [14,17], 세라믹 필터에 비해 저렴하면서도, 동일하게 입자 제거 성능이 우수한 섬유 필터(fabric filter)를 적용한다면 개선이 가능하나, Hasler (1999) 등이 실험을 통해 밝힌 바와 같이 타르에 의해 필터 여과 기능이 저하되거나 상실되므로 [13], pre-coating 기술의 도입이 필요하다[18,19].

Pre-coating 기술은 필터를 통한 여과 개시 전 pre-coat 물질을 투입하여 필터 표면에 mm 단위의 얇은 입자 층을 형성시켜 필터에 눈 막힘 등 문제를 야기하는 물질로부터 필터 표면을 보호할 뿐 아니라 필터를 통과하는 미세 입자를 사전에 생성시킨 입자 층에서 제거하므로 결과적으로는 필터 여과성능을 향상시켜준다[18,20].

Pre-coating 기술에 사용할 수 있는 pre-coat 물질로는 여러 가지가 있으나[18,21,22], 본 연구에서는 일반적으로 많이 사용되는 소석회($Ca(OH)_2$) 분말과 타르 물질을 비롯한 VOC 물질을 흡착 및 제거가 가능한 활성탄 분말을 사용하여 필터 표면에 코팅을 진행 후 가스화 생성 가스 내 입자와 타르 물질을 제거하는 연구를 진행하였다[23,24].

2. 실험 재료 및 방법

2.1 가스화 장치

2.1.1 가스화 반응기

내부에 층 물질(bed material)이 공기(pressurized air)유입에 의해 유동하고 있어 반응기 내부 온도가 고르도록 맞춰줄 수 있고, 또한 모래와 같은 층 물질은 열을 저장해 둘 수 있기 때문에 일정한 온도 유지가 가능해 바이오매스와 같은 연료가 투입되었을 때 연료와 층 물질이 잘 혼합되도록 하여 효율적인 반응을 진행할 수 있다는 장점[25]이 있는 기포유동층(bubbling fluidized bed) 반응기를 사용하였다. 반응기는 Fig. 1과 같이 직경 10 cm, 높이 100 cm 이며, 상단에는 연료 공급을 위한 스크류 피더(screw feeder)가 장착되어 있다.

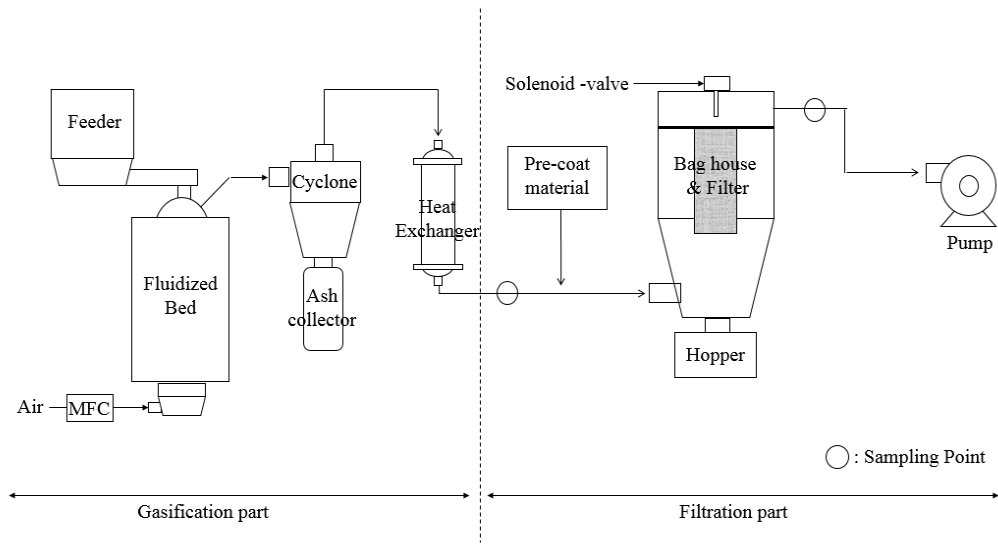


Fig. 1. Schematic diagram of experiment set-up

2.1.2 바이오매스 (biomass)

가스화 연료로 ㈜세종조합의 목재펠릿을 사용하였으며(직경 5 mm), 길이 10~20 mm 크기로 분쇄한 후 사용하였다. 물성분석을 위해 공업분석(proximate-analysis), 원소분석(ultimate-analysis)을 실시하였고, 각각 ELTRA와 EA112/FLASH2000으로 분석하였다. 분석 결과는 Table 1과 같다.

Table 1. Proximate and Ultimate analysis of Wood pellet

| Proximate analysis(wt %) | |
|------------------------------------|-----------|
| Moisture | 6.4~8.6 |
| Volatile | 72.8~74.5 |
| Fixed Carbon | 18.2~18.8 |
| Ash | 0.3~0.4 |
| Ultimate analysis(wt %, dry basis) | |
| C | 47.4~52.1 |
| H | 5.6~6.0 |
| O | 39.2~42.1 |
| N | 0.12~0.15 |
| S | 0.0 |

2.1.3 층 물질 (bed material)

유동화가 원활하게 진행될 수 있도록 Geldart particle classification에서 B 그룹에 속하는[26] 평균 입도 301 μm 의 규사(SiO_2)로 선정하였으며, 겉보기 밀도

(bulk density) 1290 kg/m^3 , 입자 밀도(app density) 2580 kg/m^3 , 공극율은 0.5 이다.

2.2 집진 장치

2.2.1 필터

가스화 생성 가스 중의 타르가 필터 표면에 부착되더라도 영향을 덜 받을 수 있도록 소유성(疏油性, oleophobic)재질을[27], pre-coating으로 필터 표면에 케이크 층이 형성되더라도 필터에 걸리는 차압이 낮게 유지되도록 통기도가 높은 필터인 PPS (Polyphenylenesulfide), P.P(Polypropylene), GF-PTFE (Glassfiber-Polytetrafluoroethylene, PTFE coated)을 선정하였다[23]. 필터는 ㈜창명산업으로부터 직경 10 cm, 높이 20 cm의 백(bag)형태로 제작하였다. 집진장치(bag house)에는 필터 1개가 장착되며 Table 2에 필터에 관한 정보를 나타내었다.

Table 2. Specification of filter mediums

| Filter media | Thickness (mm) | Permeability ($\text{cm}^3/\text{cm}^2/\text{sec}$) | Surface treatment |
|--------------|----------------|---|-------------------|
| PPS | 1.4 | 12 | X |
| P.P | 1.8 | 15 | melt-blown |
| GF-PTFE | 0.5 | 10 | PTFE foam coating |

2.2.2 Pre-coat 물질 (pre-coat material)

필터 표면에 입자 층 형성을 위한 코팅 물질로서 분말 소석회(Ca(OH)₂), 석탄(coal)계 분말 활성탄, 목질계 분말 활성탄(wood char)을 사용하였으며, Table 3에는 pre-coat 물질 특성을 표시하였다. Pre-coat 물질은 스크류 피더를 통해 주입하며, air와 함께 집진장치로 유입된다.

Table 3. Specification of pre-coat materials

| Pre-coat material | Bulk density (kg/m ³) | Particle density (kg/m ³) | Porosity (%) |
|------------------------------|-----------------------------------|---------------------------------------|--------------|
| Ca(OH) ₂ | 276.2 | 1933.3 | 86 |
| Activated carbon (Coal) | 300 | 1500 | 80 |
| Activated carbon (wood char) | 180 | 1200 | 85 |

2.2.3 플라이애시 (fly ash)

당진 화력발전소의 플라이애시(fly ash)를 사용하였다. Table 4에 성분 분석 정보를 나타내었으며, Fig. 2는 여과속도 1 m/min을 유지하며 주입한 플라이애시와 가스화 생성 가스 중의 타르 및 입자를 Dust monitor(Dust spectrometer ver.1.108, Grimm, Germany)로 측정된 결과를 나타내었다.

Table 4. Component of fly ash

| | SiO ₂ | Al ₂ O ₃ | CaO | MgO | Fe ₂ O ₃ | MnO |
|---|------------------|--------------------------------|------|------|--------------------------------|------|
| % | 55.9 | 24.17 | 1.01 | 1.34 | 7.77 | 0.22 |

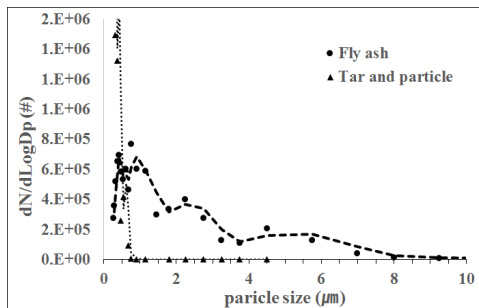


Fig. 2. Size distribution of particles

2.3 실험 방법

본 실험은 가스화 생성 가스 중 타르를 비롯한 불순물을 제거하기 위해 pre-coating 기술을 적용한 필터를 사용하였을 때 효과가 있는지 알아보았으며, 전체 실험 장치 구성은 Fig. 1에 나타내었다.

필터 종류와 pre-coat 물질에 따라 그 부착량과 여과 효율을 측정하여 pre-coating 기술을 적용하기에 적합한 필터와 pre-coat 물질을 결정하였다. Pre-coat 물질은 스크류 피더를 이용하여 집진 장치 전단 투입구로 2~3 g/min씩 투입하였으며 여과속도는 1.0 m/min가 되도록 펌프 유량을 맞추어 진행하였다. Pre-coat 물질 투입 후 필터에 걸리는 차압이 20, 40, 60 mmH₂O에 도달할 때, pre-coat 물질 투입 전후의 필터 무게차를 이용해 부착량을 측정하였으며, 측정된 부착량은 Eq. (1)에 대입하여 코팅 두께를 계산하였다[23].

$$L_c = \frac{w_p}{A \times \rho_p} \quad (1)$$

L 은 필터 표면에 형성된 코팅층 두께를 나타내며 (mm), w 는 필터 표면에 부착된 pre-coat 물질의 양을 나타내며(g), A 는 여과면적(m²), ρ 는 pre-coat 물질의 겉보기 밀도이다(kg/m³).

앞선 실험에서 선정한 pre-coat 물질과 필터로 플라이애시 입자 제거 실험을 진행하였고, 플라이애시 도입 전 pre-coat 물질을 통한 코팅 후 최고 차압인 100 mmH₂O에 도달 시 5 bar, 1~2 ms 간격으로 펄스 제트(pulse jet)를 발생 시켜 필터를 탈진시킨 후 재코팅을 하였다.

코팅 두께를 0.5~0.9 mm 변경해 가며 코팅두께에 따른 필터 보호 효과 및 여과성능을 확인하고, 가스화기 후단에 적용할 적정 코팅두께를 선정하였다.

가스화 조건으로는 선형 실험[28]을 통해 최적의 운전 조건을 결정하였으며, 온도는 850 °C, 공기(Air)유량은 질량 유량 제어기(MFC: Mass Flow Controller, 이하 MFC)로 일정하게 주입하여 이론 연소공기량과 실제 연소 공기량의 비(Equivalence Ratio, ER)가 0.25가 되도록 28.9 L/min으로 주입하였다. 반응기 하단 10 cm 높이부터 위쪽으로 10 cm 간격으로 설치한 4개의 k-type thermocouple과 차압계를 주시하며 반응기 온도를 840~860 °C, free-board 압력을 0~100 mmH₂O 유지

하도록 했으며, 반응기로부터 열 교환기 까지 연결 배관은 타르의 응축을 막기 위해 300 ℃로 유지하였다[29].

가스화로 생성된 가스는 여과속도가 1 m/min이 되도록 펌프로 유량을 조절해 집진장치로 유입되게 하였으며, 생성 가스를 유입시키기 전 pre-coating을 진행하고, 생성 가스 유입 후 필터에 걸리는 차압이 일정하게 유지될 때 펄스 제트로 필터를 완전히 탈진시킨 후 재코팅을 진행하였다. 탈진 진행 후의 필터 단면을 FE-SEM(JSM-6701F, JEOL, Japan)으로 분석을 진행하여 pre-coating 효과를 확인하였으며, 제거효율은 집진 장치 전단, 후단의 sample port에서 dust monitor로 측정된 후 집진 장치 전·후단 입자 수 차이로 계산하였다.

마지막으로, 가스화 생성 가스 중 타르 및 입자의 제거에 사용한 pre-coat 물질의 재사용 가능여부를 판단하기 위한 pre-coat 물질 재사용 실험을 진행하였으며, 집진 장치의 호퍼(hopper)에 쌓인 pre-coat 물질을 수거하여 앞선 실험과 동일한 조건으로 pre-coating을 진행한 후 타르 및 입자 제거효율과 탈진 후 나타난 잔류차압을 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

필터를 통한 가스화 후 생성 가스를 정제하기에 앞서 pre-coating에 사용할 필터와 pre-coat 물질 및 코팅 두께 선정 위한 실험을 진행하였다.

3.1 Pre-coat 물질 및 필터 선정

3.1.1 Pre-coat 물질별 여과효율

Pre-coating 기술 적용에 있어서 pre-coat 물질은 필터에서 대부분 제거되어야 필터 여과효율에 영향을 주지 않으므로, 여과효율이 높은 pre-coat 물질을 선정해야 한다[23]. 따라서 필터 전단에 pre-coat 물질 투입 후, 집진장치 후단 샘플링 포트(sampling port)에서 여과효율을 측정하였으며, Fig. 3에 나타난 것처럼 PPS 필터의 경우 3 가지 pre-coat 물질에 대해 각각 90 %, 92 %, 83 %로 다른 두 필터보다 높은 여과효율을 보였다. pre-coat 물질 중에는 활성탄(coal)을 제외하고는 3가지 필터 모두 80 % 이상의 제거효율을 보여주었다. 여과효율을 비교해 보았을 때 적절한 pre-coat 물질로는 소석회와 활성탄(wood char)를 선정할 수 있다.

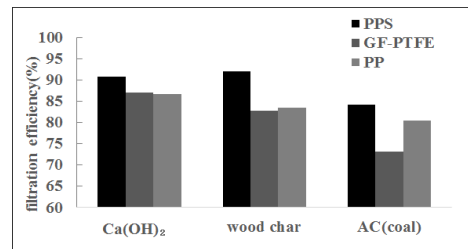
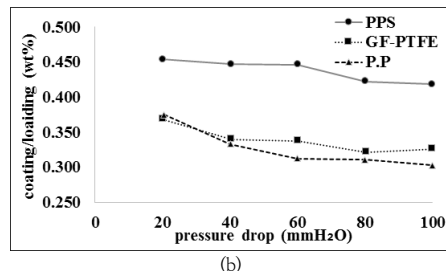
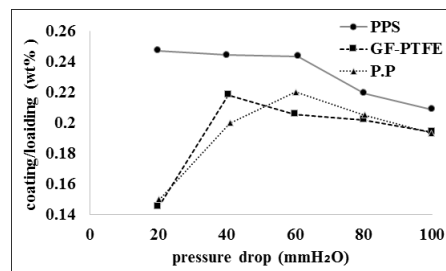


Fig. 3. Filtration efficiency of pre-coat materials

3.1.2 필터 재질 및 pre-coat 물질에 따른 부착효율

Pre-coat 물질을 충분히 필터에 부착시켜 호퍼에 떨어지는 양을 줄여야 버려지는 총량을 줄일 수 있기 때문에 충분한 부착효율을 가지는 필터와 pre-coat 물질 선정이 필요하다. 하나의 필터당 3가지 pre-coat 물질을 투입하며 총 9가지 실험을 진행하였으며, 그 결과는 Fig. 4 (a),(b),(c)에 나타내었다. 3가지 pre-coat 물질에 대해 부착효율이 24 %, 45 %, 52 %로 PPS 필터가 다른 두 필터에 비해 많은 양의 pre-coat 물질이 부착되었으며 이는 PPS가 다른 두 필터와 달리 표면처리가 되어있지 않고, 높은 여과 효율로 인해 다른 필터에 비해 부착효율이 높았으며[20, 23], P.P의 경우 필터 표면에 멜트 블로운(melt-blown)처리를 하였기 때문에 그 영향을 받은 것으로 사료된다[20]. 따라서 pre-coating 기술에 사용하기 적합한 필터로 가장 높은 부착효율과 Fig. 3에서 가장 높은 여과효율을 보인 PPS 필터를 선정하였다.



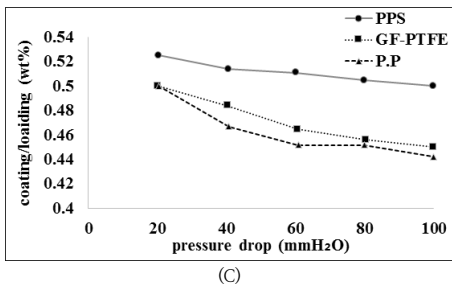


Fig. 4. Pre-coat material coating/loading (wt%) depending on pressure drop change (a) Ca(OH)₂ coating (b) activated carbon(coal) coating (c) activated carbon(wood char) coating

3.2 플라이애시 입자 제거

앞선 3.1 에서 선정된 PPS 필터에 2가지 pre-coat 물질인 소석회와 활성탄(wood char)을 사용하여 pre-coating을 진행한 후 플라이애시를 유입 시켜 제거 효율, 차압변화, 잔류차압 등을 측정하였다.

3.2.1 제거 효율

Pre-coat 적용 전후의 플라이애시 입자 입경 별 제거효율 변화를 Fig. 5에 나타내었다. Pre-coat 적용 전 (●)에는 1~2 μm이하 입자에 대하여 80% 미만의 제거효율을 보였다. 하지만 활성탄 코팅(■)과 소석회 코팅(▲)을 적용 후 모든 입경에 대하여 88% 이상의 효율을 보였으며 필터 표면에 pre-coat 물질로 형성된 코팅층이 새로운 여과체 역할을 함으로써 PPS 필터의 제거효율이 증가한 것으로 사료된다[24].

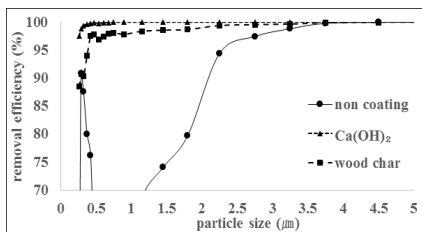


Fig. 5. Removal efficiency of fly ash before and after using pre-coating

3.2.2 차압 변화

Fig. 6에는 pre-coating을 진행을 하지 않은 (a)와 pre-coating을 진행한 (b), (c)를 비교하였다. 실험 결과 pre-coating 적용 여부에 따른 차이가 5 번째 탈진 시

행 이후부터 나타났으며, 5 번째 이전까지는 pre-coating의 적용으로 최고 차압인 100 mmH₂O 중에 절반 이상의 차압이 코팅으로 인한 것이기 때문에 처음 여과 개시로부터 몇 번의 탈진이 반복되는 동안은 코팅을 진행하지 않았을 경우 보다 오히려 여과 진행 시간이 짧게 나타났다. 그러나 pre-coating으로 인해 여과 진행 시간이 일정하게 유지되었기 때문에 (d)에 나타난 것처럼 5 번째 탈진 시행 이후로 pre-coating을 적용한 경우가 하지 않은 경우보다 더 긴 시간 동안 여과 진행이 가능한 것으로 나타났다[23,30].

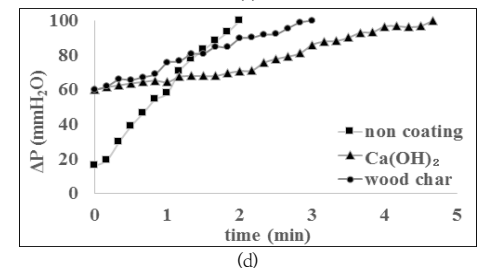
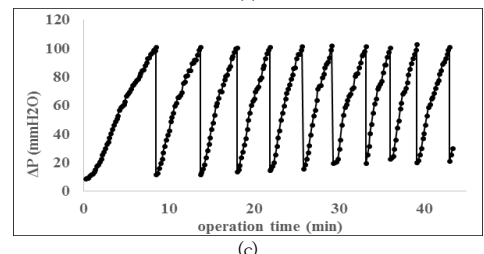
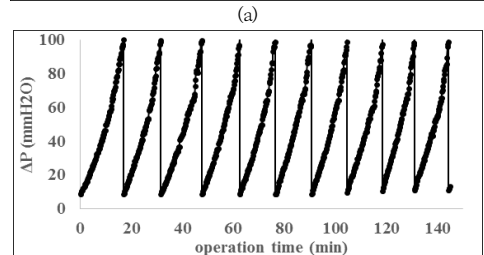
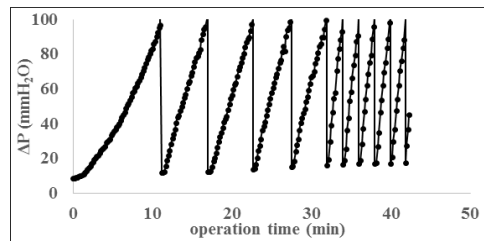


Fig. 6. Pressure drop change during a filtration process (a) non-coating, (b) Ca(OH)₂ coating, (c) activated-carbon(wood char) coating (d) 6th filtration cycle

3.2.3 잔류 차압

총 10회의 여과 사이클(filtration cycle)을 진행하는 동안 펄스 제트로 필터를 탈진한 직후의 잔류차압 값을 기록하였고, 그 변화를 Fig. 7에 나타내었다. Pre-coating이 진행되지 않은 경우(●)는 여과 사이클이 지속될수록 탈진 후 잔류차압이 서서히 증가하는 경향이 나타났으며, 이는 필터를 통과하는 일부 플라이에서 입자가 필터 내부에 잔존해 잔류차압 증가에 영향을 주었으며, 여과 진행 횟수가 늘어남에 따라 그 양이 누적되었기 때문으로 사료된다[31]. 반면 pre-coating이 진행된 경우에는 코팅층에서 대부분의 입자를 제거해 주었기 때문에 필터를 통과하거나 필터 섬유층에서 제거되는 입자수가 감소하였고, 이로 인해 pre-coating을 진행하지 않은 경우에 비해 잔류 차압 변화량이 적게 나타났다[23].

Pre-coat 물질별로는 소석회로 코팅한 경우(■)가 활성탄으로 코팅한 경우(▲)보다 잔류차압 변화가 적어 pre-coating을 통한 필터 보호 효과가 뛰어난 것으로 나타났는데, 소석회를 사용한 경우가 제거효율이 높았으며(Fig. 5), 이는 탈진 후 잔류차압에 영향을 주는 입자에 대한 제거가 잘 이루어져 여과 사이클에 따른 잔류차압의 증가량이 적었던 것으로 사료된다.

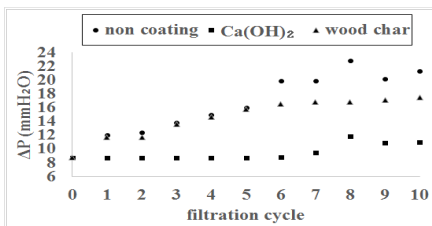


Fig. 7. Residual pressure drop during 10 filtration cycles

3.2.4 Pre-coating 두께와 잔류차압 변화

소석회로 코팅을 진행하였을 때, 표면 부착량이 많아 코팅 두께를 실험 변수로써 적용이 가능하였기에, 소석회를 사용해 실험을 진행하였고, 실험 조건과 방법은 동일하다.

입자 제거효율에 있어서 pre-coating 후 플라이 애시 0.3~10 μm 입경에 대해 90 % 이상의 제거효율을 보였으며, 두께 차이에 따른 입자 제거효율의 차이는 거의 없었다. 하지만 잔류차압 변화에는 차이가 있었는데, Fig. 8에 나타난 것처럼 약 0.5 mm로 코팅했던 경우(■)가 약 0.7 mm(▲), 0.9 mm(◆)에 비해 잔류차압이 높게 나타

났다. Sascha 등(2014)[23]은 0.5 mm 이하로 코팅한 경우에 일부 입자가 코팅 층을 투과(penetration)하는 현상이 있었고, 투과한 입자 중 일부가 필터 내부에 남아 축적되면서 잔류차압 변화에 영향을 주었다고 하였다. 코팅 두께 0.7, 0.9 mm로 진행하였을 때 0.5 mm에 비해 잔류차압이 낮게 나타났지만, pre-coat 물질 주입개시 후 차압 60 mmH₂O 이후부터는 코팅효율이 떨어지는 경향이 있었으므로(Fig. 9), 최적의 코팅 두께는 차압 60 mmH₂O에서 나타난 약 0.7 mm 두께로 진행했을 때 부착되지 않는 pre-coat 물질 양도 줄이고 안정적인 필터 보호 효과도 낼 수 있어 최적의 조건인 것으로 사료된다 [32].

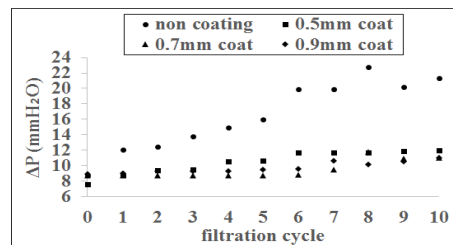


Fig. 8. Change of residual pressure drop during a 10 filtration cycles

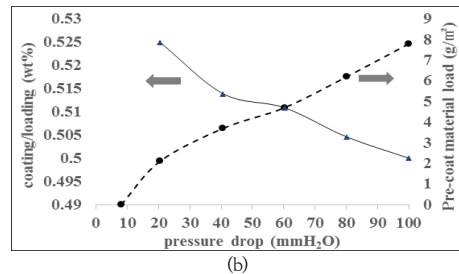
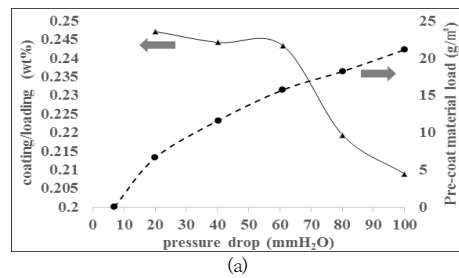


Fig. 9. Change of coating/loading (wt%) and pre-coat material loading weight on filter surface (g/m²) over pressure drop change (a) Ca(OH)₂ coating, (b) activated carbon (wood char) coating

3.3 타르 및 입자 제거

3.3.1 제거 효율

Fig. 10에는 첫 여과 사이클을 진행할 때의 pre-coat 물질별 타르 및 입자에 대한 제거효율을 나타내었으며, pre-coat 물질을 통한 코팅을 진행하지 않은 경우(X)는 Hasler 등 (1999)의 결과와 비슷하게 제거효율이 50 %로 나타났으며[13], 집진장치로부터 필터를 분리하여 관찰한 결과 필터 표면에 부착된 타르에 의해 필터 색이 변한 것을 알 수 있었다. 필터 표면에 부착된 타르는 펄스 제트 탈진으로도 떨어지지 않았기 때문에 계속해서 여과 진행이 불가하였으나, pre-coating 적용으로 필터 표면에 생성된 코팅층에서 타르를 비롯한 입자의 제거가 이루어졌고, 탈진 후 재 코팅을 통해 여러 번의 여과 진행이 가능하였다. 제거효율은 소석회 코팅(a)는 평균 86%, 활성탄 코팅(b)은 평균 80%의 제거효율로 나타났고, 시간이 지남에 따라 감소하는 경향이 나타났다(Fig. 10). Jakub 등 (2016)은 필터 표면에 형성된 입자층에서 타르와 같은 오일(oil) 입자를 흡수하면 입자 표면에 얇은 액체 막(liquid film)을 형성하는데, 이 형성된 막과 막 사이에 존재하는 모세관 힘(capillary force)에 의해 입자 간 응축이 일어나 입자층 구조가 변화가 생긴다고 하였으며, 타르와 같은 입자(liquid droplet)는 고상 입자

(solid particle)와 달리 입자와 입자간 혹은 필터와 입자간 인력이 필터를 통과하는 공기에 의해 밀리는 힘보다 약하기 때문에 필터 후단으로 빠져나가는 현상(re-entrainment)이 발생하여 효율이 감소한다고 설명하였다[33]. 본 실험의 경우 pre-coat 물질로 필터 표면에 형성시킨 입자층에서 타르 물질을 흡수함에 따라 층의 구조가 변화하였고, 이로 인해 코팅 층에서의 여과 기능이 저하되어 효율이 감소한 것으로 사료된다. 실제로 제거효율이 감소되는 시점에서 필터 표면의 코팅 입자끼리 뭉쳐 덩어리를 형성한 것과 함께 필터를 통과하여 나온 배 가스 색이 점점 타르로 인해 변하는 것을 관찰할 수 있었다.

3.3.2 차압 변화 및 잔류차압 변화

Fig. 11은 pre-coating 적용 후 첫 번째 여과 사이클에 대한 차압변화를 나타내었다. pre-coat 물질 중에서는 보호 효과가 뛰어난 소석회 코팅(a)이 활성탄 코팅(b)보다 긴 시간 여과 진행이 가능하였다.

차압변화는 Fig. 11(a)에 나타난 것처럼 차압이 증가하다가 순간적으로 상승한 뒤 일정하게 유지하는 변화를 보였는데, 이는 필터 표면 코팅층에서 타르 입자를 흡수하면서 차압이 점진적으로 증가하는 단계, 코팅층 입자 표면에서 타르를 흡수하며 형성된 액체 막이 코팅층 구조를 변화시키면서 차압이 순간적으로 증가하는 단계, 마지막으로 코팅층이 완전히 타르로 인해 완전히 젖은 상태(saturation)가 되어가며, 차압이 일정하게 유지되어 가는 단계(steady state)로 변화하였다고 설명할 수 있다. 코팅층 구조변화가 일어나면서 필터를 통과하는 입자 수가 늘어남에 따라 제거효율이 점진적으로 감소하는 변화가 생기고, 구조변화가 끝나게 되면서 Fig. 10(b)와 같이 통과하는 입자 수가 일정해졌기 때문에 차압이 더 증가하지 않고 일정해진 것으로 사료된다[27,34]. 차압변화가 일정해지고 난 후로는 시간이 지남에 따라 코팅층이 타르로 인해 필터 표면에 붙게 되어 탈진 후에도 잔류차압이 높게 나타나는 문제가 있었다. 이러한 문제를 최소화하기 위해 생성 가스 유입 후 차압이 일정하게 유지될 때, 펄스 제트 탈진을 진행함으로써 연속운전이 가능하도록 하였다.

잔류차압의 경우, Fig. 12를 보면 알 수 있듯 pre-coat 물질로 소석회를 사용한 경우(■)가 최대 25.3 mmH₂O로, 27.5 mmH₂O였던 활성탄(▲)보다 잔류차압이 낮게 나타났으며, 이는 소석회 코팅층의 필터 보호기

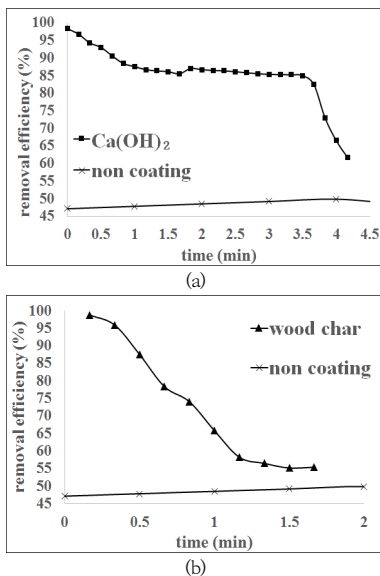


Fig. 10. Removal efficiency of particulates from gasification process during 1st filtration cycle (a) Ca(OH)₂ coating, (b) activated carbon (wood char) coating

능이 활성탄 코팅 경우보다 우수하였기 때문에 이와 같은 결과가 나타난 것으로 사료된다.

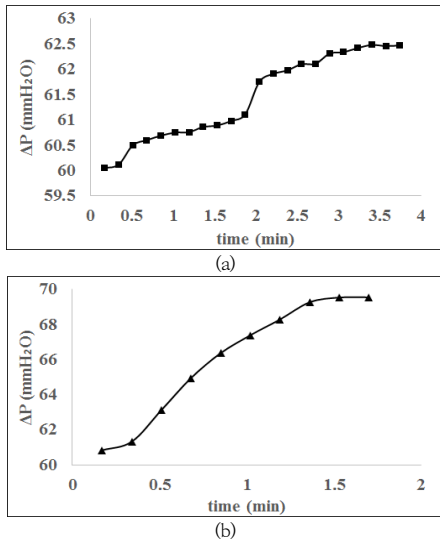


Fig. 11. Pressure drop change of 1st filtration cycle (a) Ca(OH)₂ coating, (b) activated carbon (wood char) coating

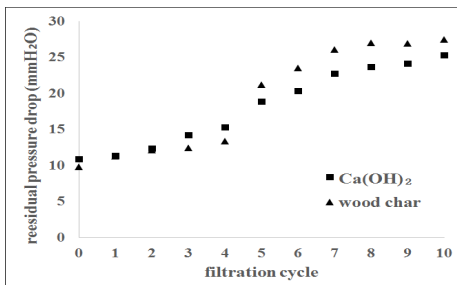


Fig. 12. Change of residual pressure drop during a 10 filtration cycles

3.3.3 Pre-coat 물질 재사용

Sascha 등 (2016)이 실험을 통해 pre-coat 물질을 재사용할 수 있다는 것을 보여준 것처럼, 본 실험에서도 한 번 사용한 pre-coat 물질을 회수 후 2회 재사용으로 pre-coat 물질을 총 3번 사용하였고, 필터 보호 효과가 좋게 나타난 소석회를 pre-coat 물질로 사용하였다. Fig. 13에 나타난 것과 같이 pre-coat 물질을 처음 코팅 하였을 때 여과 진행 시간은 4분, 회수하여 재사용하였을 때 3분 40초, 재사용 2회 차에서 약 2분 40초로 나타난 점과 Fig. 14에 나타난 여과 사이클별 측정 잔류차압을 통해 pre-coat 물질을 재사용하더라도 pre-coating에

의한 필터 보호 효과와 그 성능이 유지됨을 볼 수 있었다. 이처럼 한번 사용을 마친 pre-coat 물질은 1~2회 재사용이 가능하며, 이를 통해 공정에 소모되는 pre-coat 물질의 양을 절약할 수 있을 것으로 사료된다 [35].

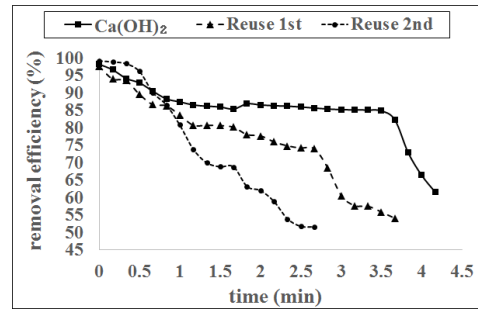


Fig. 13. Change of Removal efficiency with time during 1st filtration cycle

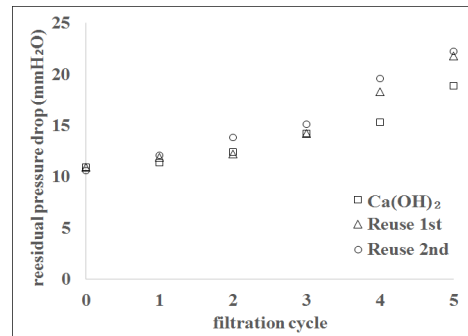


Fig. 14. Residual pressure drop changing with 5 filtration cycles

3.3.4 FE-SEM 분석

Fig. 15에는 Pre-coating 적용 전(a)과 후(b,c), 펄스 제트 탈진 후의 필터 단면을 분석한 결과를 나타내었다. Pre-coating이 진행되지 않은 경우(a)에는 타르와 입자가 필터에 달라붙으면서 탈진 후에도 그대로 남아있었으나 Pre-coating 적용 후(b,c)에는 필터 표면을 제외하고 타르나 입자에 의해 오염되지 않음을 통해 코팅층의 필터 보호 효과를 확인 할 수 있었으며, 보호 효과가 더 뛰어났던 소석회 코팅(b)이 활성탄 코팅(c)보다 필터가 상대적으로 덜 오염되었음을 확인할 수 있었다.

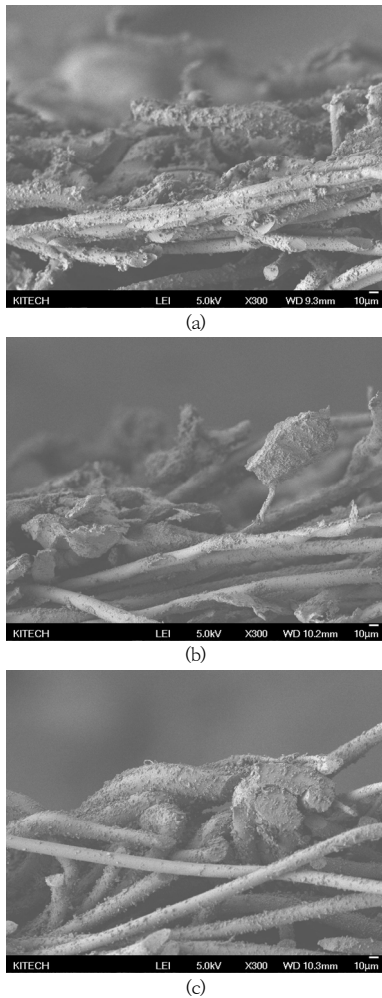


Fig. 15. Cross sectional FE-SEM image of a filter after pulse jet dedusting proceeded (a) non coating, (b) $\text{Ca}(\text{OH})_2$ coating, (c) activated carbon (wood char) coating

4. 결론

- (1) 소석회, 활성탄(coal), 활성탄(wood char)의 3가지 pre-coating 물질에 대한 여과효율이 높고, 부착효율이 높았던 PPS가 pre-coating 기술 적용에 알맞은 필터인 것으로 나타났다.
- (2) 소석회를 pre-coat 물질로 사용하였을 때 활성탄(wood char)보다 제거 효율이 높았고, 잔류 차압의 변화가 적은 것으로 나타났다.
- (3) Pre-coating을 두께 0.7 mm으로 진행하였을 때,

충분히 좋은 부착효율을 유지하면서, 안정적인 보호층 역할을 수행하여 잔류차압 증가량이 적게 나타났다.

- (4) Pre-coating을 적용함으로써 타르 및 입자에 대한 평균 제거효율이 소석회 코팅으로 86 %, 활성탄(wood char)으로 80 %로 나타났으며, 탈진을 통하여 필터를 재사용할 수 있었다.
- (5) 필터 표면에 형성시킨 코팅층이 타르를 흡수하며 구조가 변화하였고, 이로 인해 여과효율이 점차 감소하는 경향을 보인 것으로 사료된다.
- (6) 소석회를 pre-coat 물질로 사용하였을 때 활성탄에 비해 오랜 시간 높은 효율 유지가 가능하였으므로, 필터를 사용한 가스화 생성 가스 중 타르 및 입자 제거 시에는 pre-coat 물질로써 소석회가 적절할 것으로 사료된다.
- (7) Pre-coat 물질은 한 번 사용 후 폐기하는 것이 아니라 1~2회 재사용이 가능하였으며, 이를 통해 공정에 소모되는 pre-coat 물질의 양을 줄일 수 있을 것으로 사료된다.

References

- [1] Haimiao Yu, Ze Zhang, Zeshen Li, Dezhen Chen, "characteristics of tar formation during cellulose, hemicellulose and lignin gasification", *The Science and Technology of Fuel and Energy*, Vol.118, No.15, pp.250-256, Feb. 2014.
DOI: <https://doi.org/10.1016/j.fuel.2013.10.080>
- [2] NamHun Kang, Korea energy agency hand book, p.11-477, Korea Energy Agency, 2018.
- [3] EuiSeok Yang, world energy issue, p.2-71, Korea Energy Economics Institute, 2018.
- [4] Peter McKendry, "Energy production from biomass (part 1): overview of biomass", *Bio resource Technology*, vol.83, No. 1, pp.37-46, May 2002.
DOI: [https://doi.org/10.1016/S0960-8524\(01\)00118-3](https://doi.org/10.1016/S0960-8524(01)00118-3)
- [5] Jun Han, Heejoon Kim, "The reduction and control technology of tar during biomass gasification/pyrolysis: An overview", *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, vol.12, No.2, pp.397-416, Feb. 2008.
DOI: <https://doi.org/10.1016/j.rser.2006.07.015>
- [6] Marek Dudyński, Johan C. van Dyk, Kamil Kwiatkowski, Marta Sosnowska, "Biomass gasification: Influence of torrefaction on syngas production and tar formation", *Fuel processing technology*, vol.131, pp.203-212, March 2015.
DOI: <https://doi.org/10.1016/j.fuproc.2014.11.018>

- [7] Z. Abu El-Rub, E. A. Bramer, and G. Brem. "Review of Catalysts for Tar Elimination in Biomass Gasification Processes", *Ind. Eng. Chem. Res.*, vol.43, pp.6911-6919, Sep. 2004.
DOI: <https://doi.org/10.1021/ie0498403>
- [8] Prabhansu, Malay Kr. Karmakar, Prakash Chandra, Pradip Kr. Chatterjee "A review on the fuel gas cleaning technologies in gasification process", *Journal of Environmental Chemical Engineering*, vol.3, pp.689-702, June 2015.
DOI: <https://doi.org/10.1016/j.iece.2015.02.011>
- [9] Haimiao Yu, Ze Zhang, Zeshen Li, Dezhen Chen, "Characteristics of tar formation during cellulose, hemicellulose and lignin gasification", *Fuel*, vol.118, pp.250-256, Feb. 2014.
DOI: <https://doi.org/10.1016/j.fuel.2013.10.080>
- [10] Luc P. L. M. Rabou,* Robin W. R. Zwart, Berend J. Vreugdenhil, and Lex Bos, "Tar in Biomass Producer Gas, the Energy research Centre of The Netherlands (ECN) Experience: An Enduring Challenge", *Energy fuels*, vol.23, pp.6189-6198, Aug. 2009.
DOI: <https://doi.org/10.1021/ef900703z>
- [11] Chunshan Li, Kenzi Suzuki, "Tar property, analysis, reforming mechanism and model for biomass gasification—An overview", *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, Vol.13, No.3, pp.594-604, April. 2009.
DOI: <https://doi.org/10.1016/j.rser.2008.01.009>
- [12] Ute Wolfesberger, Isabella Aigner, and Hermann Hofbauer, Tar Content and Composition in Producer Gas of Fluidized Bed Gasification of Wood—Influence of Temperature and Pressure, *Special Issue: GTI-TechBiomass*, vol.28, No.3, pp.372-379, Oct. 2009.
DOI: <https://doi.org/10.1002/ep.103871>
- [13] P. Hasler, Th. Nussbaumer, "Gas cleaning for IC engine applications from fixed bed biomass gasification", *Biomass and Bioenergy*, vol.16, No.6, pp.385-395, June 1999.
DOI: [https://doi.org/10.1016/S0961-9534\(99\)00018-5](https://doi.org/10.1016/S0961-9534(99)00018-5)
- [14] Prabhansu, Malay Kr. Karmakar, Prakash Chandra, Pradip Kr. Chatterjee, "A review on the fuel gas cleaning technologies in gasification process", *Chem. Eng. Technol.*, vol.3, no.2, pp.689-702, June 2015.
DOI: <https://doi.org/10.1016/j.iece.2015.02.011>
- [15] Sanna Tuomi, Esa Kurkela, Pekka Simell, Matti Reinikainen, "Behaviour of tars on the filter in high temperature filtration of biomass-based gasification gas", *Fuel*, vol.139, pp. 220-231, Jan. 2015.
DOI: <https://doi.org/10.1016/j.fuel.2014.08.051>
- [16] L. Ma, H. Verelst, G.V. Baron, "Integrated high temperature gas cleaning: Tar removal in biomass gasification with a catalytic filter", *Catalysis Today*, vol.105, no.3-4, pp.729-734, Aug. 2005.
DOI: <https://doi.org/10.1016/j.cattod.2005.06.022>
- [17] Hyun-Jin Choi, *Preparation and Characterization of Ceramic Filter Media*, Ph.D dissertation, Korea University of Chemical & Biological Engineering, Seoul, Korea, pp.42-45, 2015.
- [18] Eberhard Schmidt, Torsten Pilz, "Raw Gas Conditioning and other Additional Techniques for Improving Surface Filter Performance", *Filtration & Separation*, vol.33, no.5, pp.409-415, May 1996.
DOI: [https://doi.org/10.1016/S0015-1882\(97\)84301-7](https://doi.org/10.1016/S0015-1882(97)84301-7)
- [19] Hofbauer Hermann, Rauch Reinhard, Bosch Klaus, Biomass CHP Plant Güssing - A Success Story, Thechnical report, Babcock borsig power, Austria, pp.1-13, 2003.
- [20] Ed Ravert, Precoating new filters for better airflow, longer filter life, p.1-5, Powder and Bulk Engineering, 2006.
- [21] GE ENERGY, "Solving problems in baghouse filtration", *Filtration+Separation*, vol.49, no.4, pp.28-31, July 2012.
DOI: [https://doi.org/10.1016/S0015-1882\(12\)70195-7](https://doi.org/10.1016/S0015-1882(12)70195-7)
- [22] James E. Bratina, "Fabric Filter Applications on Coke Oven Pushing Operations", *Journal of the Air Pollution Control Association*, vol.29, no.9, pp.916-920, March 2012.
DOI: <https://doi.org/10.1080/00022470.1979.10470881>
- [23] Sascha Schiller, Hans-Joachim Schmid, "Ultrafine Dust Filtration Using Precoat Materials Considering the Influence of Filter Media", *Chem. Eng. Technol.*, vol.37, no.6, pp.1009-1020, Dec. 2014.
DOI: <https://doi.org/10.1002/ceat.201300856>
- [24] S. Hajar1, M. Rashid, A. Nurnadia, M. R. Ammar, "The effect of PrekotAC on particle penetration through a ptfе filter media", *Perintis E-Journal*, vol.5, no.1, pp.22-33, 2015.
- [25] Maria Puig-Arnabat, Joan Carles Bruno, Alberto Coronas, "Review and analysis of biomass gasification models", *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, vol.14, no.9, pp. 2841-2851, Dec. 2010.
DOI: <https://doi.org/10.1016/j.rser.2010.07.030>
- [26] Semion Shaul , Evgeny Rabinovich & Haim Kalman, "Typical Fluidization Characteristics for Geldart's Classification Groups", *Particulate Science and Technology*, vol.32, no.2, pp.197-205, Jan. 2014.
DOI: <https://doi.org/10.1080/02726351.2013.842624>
- [27] Cheng Chang, Zhongli Ji, Fanyong Zeng, "The effect of a drainage layer on filtration performance of coalescing filters", *Separation and Purification Technology*, vol.170, pp.370- 376, Oct. 2016.
DOI: <https://doi.org/10.1016/j.seppur.2016.06.006>
- [28] Ju-Hoe Kim, Young-Min Jo, Jong-Su Kim, Sang-Bum Kim, "Removal of Tar from Biomass Gasification Process", *Journal of the Korea Academia-Industrial cooperation Society*, vol.19, no.8, pp.552-561, Aug. 2018.
DOI: <https://doi.org/10.5762/KAIS.2018.19.8.552>
- [29] Sergejs Osipovs, "Comparison of efficiency of two methods for tar sampling in the syngas", *Fuel*, vol.103,

pp.387-392, Jan. 2013.

DOI: <https://doi.org/10.1016/j.fuel.2012.05.021>

- [30] Sascha Schiller, Christoph Hellmich, Hans-Joachim Schmid, "Evaluation of the Efficiency of Filtration Processes Using Precoat Materials", *Chem. Eng. Technol.* vol.39, no.3, pp.491-498, Nov. 2016.
DOI: <https://doi.org/10.1002/ceat.201500385>
- [31] R. Boudhan, A. Joubert, K. Gueraoui, S. Durecu, D. Venditti, D. T. Tran1, "Pulse-Jet Bag Filter Performances for Treatment of Submicronic and Nanosized Particles from Waste Incineration", *Waste Biomass Valor.* vol.9, pp.731-737, Feb. 2018.
DOI: <https://doi.org/10.1007/s12649-017-9858-4>
- [32] Jeong-Heon Kim, *Low Temperature De-NOx Technology by Fabric Filter with Powder Catalyst Injection System*, Master's thesis, Kwangwoon University of Environmental Engineering, Seoul, Korea, pp.97-108, 2016.
- [33] Jakub M. Gac, Anna Jackiewicz, Łukasz Werner, Szymon Jakubiak, "Consecutive filtration of solid particles and droplets in fibrous filters", *Separation and Purification Technology*, vol.170, pp.234-240, Oct. 2016.
DOI: <https://doi.org/10.1016/j.seppur.2016.06.057>
- [34] Jie Zhang, Wuxuan Pan, Zhengwei Long, Congcong Wang, Zhuangbo Feng, "Study of the Oil Mist Filtration Performance: Pressure Drop Characteristics and Filter Efficiency Model", *Aerosol and Air Quality Research*, vol.17, pp.1063-1072, Jan. 2017.
DOI: <https://doi.org/10.4209/aaqr.2016.06.0258>
- [35] Sascha Schiller, Christoph Hellmich, Hans-Joachim Schmid, "Evaluation of the Efficiency of Filtration Processes Using Precoat Materials", *Chem. Eng. Technol.*, vol.39, no.3, pp.491-498, Nov. 2016.
DOI: <https://doi.org/10.1002/ceat.201500385>

김 준 엽(Joon-Yub Kim)

[준(학생)회원]



- 2012년 2월 : 강원대학교 환경공학과 (공학사)
- 2017년 9월 ~ 현재 : 경희대학교 일반대학원 환경응용과학과(공학 석사)

<관심분야>

대기오염제어, 대기질관리

최 병 권(Byong-Kwon Choi)

[준(학생)회원]



- 2019년 2월 : 호서대학교 화학공학과 (공학사)
- 2019년 3월 ~ 현재 : 호서대학교 일반대학원 화학공학과 (공학석사)

<관심분야>

환경/대기질관리

조 영 민(Young-MIn Jo)

[정회원]



- 1984년 2월 : 고려대학교 화학공학과 (공학사)
- 1986년 2월 : 고려대학교 화학공학과 (공학석사)
- 1997년 5월 : 뉴사우스웨일즈 대학교 화학공학과 (공학박사)
- 1998년 3월 ~ 현재 : 경희대학교 환경응용과학과 교수

<관심분야>

대기오염제어

김 상 범(Sang-Bum Kim)

[정회원]



- 1990년 2월 : 고려대학교 화학공학과 (공학사)
- 1993년 2월 : 고려대학교 화학공학과 (공학석사)
- 2002년 2월 : 고려대학교 화학공학과 (공학박사)
- 2004년 1월 ~ 현재 : 한국생산기술연구원 수석연구원

<관심분야>

대기환경, 에어로졸