

CO₂/NO_x-free 50kW 매체순환식 가스연소기

산화-환원 연속반응 실증

류 호 정* · 진 경 태** · 이 창 근***

Continuous Operation of CO₂/NO_x-free 50kW Chemial-Looping Combustor

Ho-Jung Ryu*, Gyoung-Tae Jin** and Chang-Keun Yi***

ABSTRACT

For gaseous fuel combustion with inherent CO₂ capture and low NO_x emission, chemical-looping combustion(CLC) may yield great advantages of savings of energy to CO₂ separation and suppressing the effect on environment. In chemical-looping combustor, fuel is oxidized by metal oxide medium (oxygen carrier particle) in a reduction reactor. Reduced particles are transported to oxidation reactor and oxidized by air and recycled to reduction reactor. The fuel and the air are never mixed, and the gases from reduction reactor, CO₂ and H₂O, leave the system as separate stream. The H₂O can be easily separated by condensation and pure CO₂ is obtained without any loss of energy for separation. The purpose of this study is to demonstrate inherent CO₂ separation and no NO_x emission and to confirm high CO₂ selectivity, no side reaction (i.e., carbon deposition, hydrogen generation) by continuous reduction and oxidation experiment in a 50kWth chemical-looping combustor. NiO/bentonite particle was used as a bed material and CH₄ and air were used as reacting gases for reduction and oxidation respectively.

Key Words : Chemical-Looping Combustor, CO₂ separation, NO_x, Continuous operation, 50kW, Electricity generation

1. 서 론

새로운 천연가스연소-발전 기술인 매체순환식 가스연소(CLC, Chemical-Looping Combustion) 기술은 공정 내에서 별도의 분리설비 없이 CO₂를 원천적으로 분리할 수 있고 thermal NO_x의 발생이 없으며 발전효율이 높아 차세대 저공해-고효율 천연가스 발전기술로 관심을 얻고 있다 [1].

매체순환식 가스연소기술은 식(1)에 표시된 기

체연료(메탄)와 공기 중 산소의 직접적인 연소반응을 산소공여입자(금속매체입자)를 이용하여 식(2)의 산화반응과 식(3)의 환원반응으로 나누어 반응시키는 기술이다. 이와 같은 별개의 산화-환원반응에 의하면 직접적인 연소반응에 비해 여러 가지 장점을 얻을 수 있다. 식(2)의 산화반응은 기체-고체 반응이며 화염(flame)이 없는 상태에서 일어나기 때문에 thermal NO_x의 발생을 원천적으로 차단할 수 있으며[2], 식(3)의 환원반응에 의한 기체생성물은 CO₂와 수증기뿐이므로 수증기를 응축하여 제거하면 고농도의 CO₂를 공정 내에서 원천적으로 분리할 수 있다. 식(2)와 식(3)을 더하면 식(1)과 같아지게 되며, 전체 공정의 열 출입은 직접연소의 경우와 같아지게 된다.

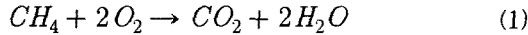
* 한국에너지기술연구원

† 연락처, hjryu@kier.re.kr

** 한국에너지기술연구원

*** 한국에너지기술연구원

Direct combustion :



Oxidation :



Reduction :

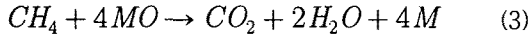


Fig. 1은 매체순환식 가스연소기술의 기본 개념을 나타내고 있다. 그림에 나타난 바와 같이 매체순환식 가스연소기는 두 개의 반응기로 구성되며 한 반응기에서는 산화반응이, 다른 반응기에서는 환원반응이 이루어지며 두 반응기 사이를 금속매체입자(산소공여입자)가 순환하게 된다. 산화반응기(공기반응기)에서는 식(2)와 같이 금속 입자(M)가 공기중의 산소에 의해 산화되어 금속산화물(MO)을 형성하고, 이 금속산화물은 환원반응기로 이동되며, 환원반응기(연료연소기)에서는 식(3)과 같이 금속산화물(MO)입자가 기체연료(CH_4 , H_2 , CO , C_nH_{2n+2} , LNG 등)와 반응하여 다시 금속 입자를 형성하고, CO_2 와 H_2O 만을 발생시킨다. 환원반응기에서 환원된 금속입자는 다시 산화반응기로 순환되어 위의 과정을 반복하게 된다. 매체순환식 가스연소기는 발전효율이 차세대 발전방식과 비슷한 수준으로 높고[3-5], CO_2 발생량이 적으며, 일반적인 보일러 배가스 중에는 CO_2 이외에도 N_2 , O_2 , CO , H_2O , NO_x , SO_x 등이 포함되는 반면 매체순환식 가스연소기의 환원반응기에서는 CO_2 와 H_2O 만이 배출되므로 H_2O 를 응축하여 제거하면 CO_2 를 고농도로 쉽게 분리할 수 있어 온실가스인 CO_2 의 분리를 위한 에너지 소모량이 매우 작다[6]. 또한 산화반응기에서 일어나는 산소공여입자의 산화반응은 화염(flame)이 발생하지 않는 상태에서 일어나므로 thermal NO_x 의 발생을 원천적으로 차단할 수 있다[2].

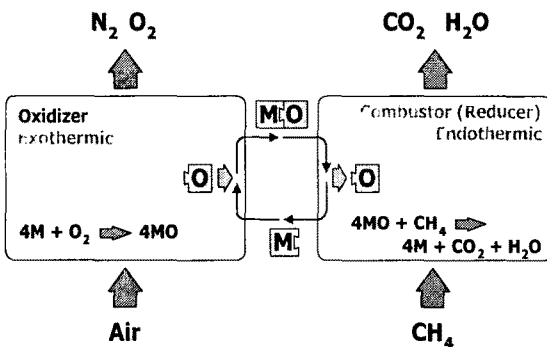


Fig. 1 Concept of chemical-looping combustion.

매체순환식 가스연소기술 개발은 크게 시스템 해석 및 경제성 평가, 산소공여입자 개발, 공정 개발의 세 분야로 나눌 수 있다. 매체순환식 가스연소기에 대한 시스템 해석 및 경제성 평가 분야의 연구동향을 살펴보면 Ishida 등[7], Ishida와 Jin[8], Anhedenen과 Svedeberg[9, 10], Jin과 Ishida[11]등은 엑서지 분석(exergy analysis)을 통해 매체순환식 가스연소기의 발전효율이 기존의 석탄가스화 복합발전(IGCC, Integrated gasification combined cycle), 순산소 수소연소 시스템사이클(HTSC, H_2/O_2 fired high temperature steam cycle)의 경우와 유사하거나 더 높은 것으로 발표하였으며, Wolf 등[12], Copeland 등[13]은 ASPEN PLUS를 이용한 공정모사를 통해 매체순환식 가스연소기의 발전효율이 천연가스 복합발전(NGCC, Natural Gas Combined Cycle), 고체산화물 연료전지-가스터빈 시스템(SOFC-GT, Solid Oxide Fuel Cell-Gas Turbine)과 유사하거나 더 높은 것으로 발표하였다. 한편 Ryu 등[14]은 열용량 기준 50kW 매체순환식 가스연소기에 대한 개념설계 및 변수해석을 통해 매체순환식 가스연소기에 적합한 공정구성, 조업조건 등을 선정하였으며 가스연소기의 조업조건이 기존의 순환유동층 조업조건과 유사하며 현재의 산소공여입자 제조기술 수준에서 매체순환식 가스연소기의 조업이 가능하다고 발표한 바 있다. 시스템 해석 및 경제성 평가에 대한 기존의 연구결과를 종합하면 매체순환식 가스연소기술은 기존의 발전방식과 발전효율이 유사하거나 더 높으며 NO_x 저감, CO_2 원천분리가 가능하기 때문에 대기오염물질 규제강화에 대응하고 온실가스를 감축할 수 있는 신기술로 평가받고 있다.

매체순환식 가스연소기에 적용하기 위한 산소공여입자 개발과 관련한 연구동향을 살펴보면 금속산화물로는 Co, Fe, Ni, Cu계 물질들이 사용되었으며 지지체로는 bentonite 또는 clay, YSZ(Yttria-Stabilized Zirconia), Al_2O_3 , MgO, TiO_2 , $NiAl_2O_4$, $CoAl_2O_4$ 등이 사용되었다. 매체순환식 가스연소기 관련 연구팀들의 기술수준을 비교하면 일본 Tokyo Institute of Technology의 Ishida 교수 연구팀이 다른 연구팀에 비해 여러 종류의 금속산화물 및 지지체를 이용한 산소공여입자를 개발하였다. 최근 한국에너지기술연구원에서도 5종류의 산소공여입자가 개발된 바 있으며 산소공여입자의 반응성과 입자제조기술에 대해 일본의 기술수준에 근접한 결과를 보고한 바 있다[15]. 지금까지의 산소공여입자 제조기술개발은 주로 소형 반응실험장치(TGA, 고정층)를 이용한 실험결과를 기준으로, 반응속도의 개선에

대한 연구가 진행되었기 때문에 실제공정에 적용하기 위해 필수적으로 고려해야하는 산소전달능력과 이에 따라 요구되는 반응속도, 고체순환속도 및 내마모성에 대한 고려는 이루어지지 않았다. 또한 개발된 산소공여입자의 경제성에 대한 분석도 미흡한 실정이다.

매체순환식 가스연소기에 대한 공정개발 연구 동향을 살펴보면 일본 Tokyo Institute of Technology의 Ishida 교수 연구팀과 Advanced Industrial Science and Technology의 Hatano 박사 연구팀은 TGA, 고정층, 순환유동층 조건에서 반응실험을 수행한 바 있으며, 스웨덴 Chalmers University of Technology의 Lyngfelt 교수 연구팀의 경우 고정층, 기포유동층에서 반응실험을, 순환유동층에서 수력학적특성에 대한 실험을 수행한 바 있다. 미국 TDA Research Institute의 Copeland 박사 연구팀에서는 가압기포유동층 조건에서 반응실험을 수행한 바 있으며, 노르웨이 Norwegian University of Science and Technology의 Bolland 교수 연구팀에서는 고정층과 기포유동층 조건에서 반응실험을 수행한 바 있다. 한편 국내의 경우 한국에너지기술연구원에서 TGA, 고정층, 기포유동층, 순환유동층, 가압유동층에서 반응실험이 수행되었으며 체계적인 scale-up 과정을 통해 가압순환유동층 형태의 50kW급 매체순환식 가스연소기의 실증이 진행 중이다. 기존의 연구결과를 종합적으로 고려하

면 선진국의 경우에는 고정층 또는 가압유동층에서 산소공여입자의 반응성 비교를 위한 산화, 환원 반응에 대한 회분식 실험과 수력학적특성에 대한 연구에 머물러 있는 반면 우리나라에서는 산화-환원 연속반응을 위한 2탑 가압순환유동층 반응공정 설계 및 제작[14], 가압 회분식 유동층 반응실험[16] 등의 연구가 수행되어 왔으며 세계 최대규모의 2탑연결 가압순환유동층 형태의 매체순환식 가스연소기를 설계 제작하여 시운전을 마친 바 있다. 본 연구에서는 세계최초로 산소공여입자가 산화반응기와 환원반응기를 순환하면서 산화-환원 반응이 연속적으로 일어나는 50kW급 매체순환식 가스연소기의 연속운전을 통해 NOx free 및 CO₂ 원천분리 가능성을 실증하여 매체순환식 가스연소기술의 상용화 가능성을 입증하고 이를 통해 관련 기술을 선도하고자 하였다.

2. 실험

2.1 실험장치

Fig. 2에는 본 실험에 사용된 50kW급 매체순환식 가스연소기의 공정도를 나타내었다. 매체순환식 가스연소기는 크게 고속유동층 형태의 산화반응기와 기포유동층 형태의 환원반응기, loopseal과 수평고체흐름판으로 이루어진 입자순환 및 기체 seal 장치, 고체 hopper와 1, 2차 사

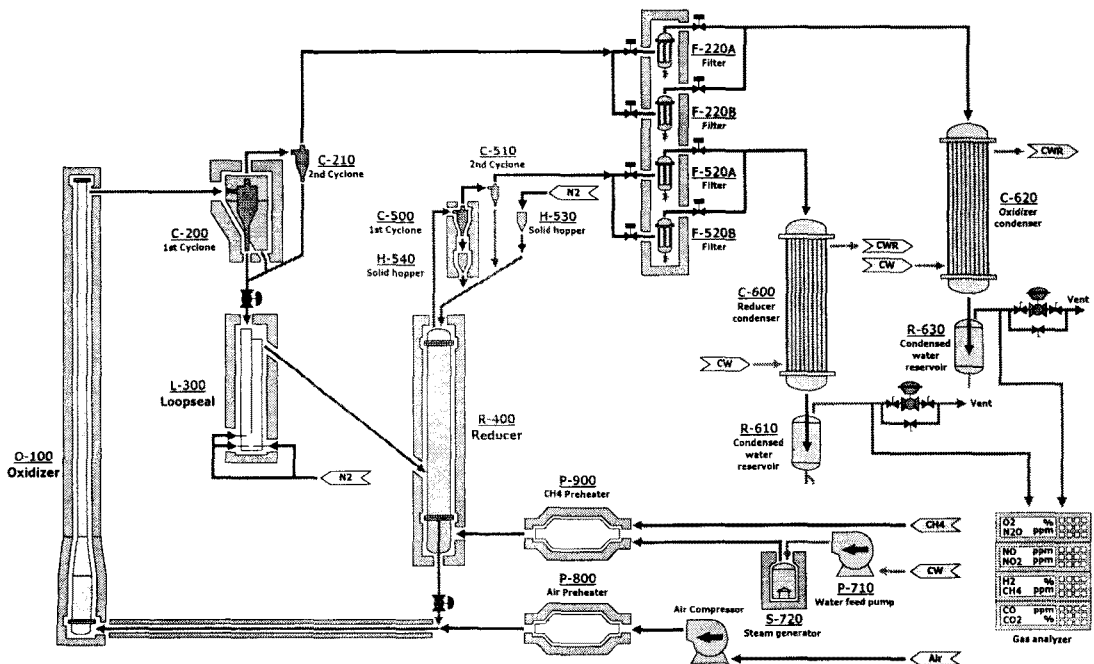


Fig. 2 50kW chemical-looping combustor.

이클론, 필터로 이루어진 산소공여입자 공급 및 회수장치, 배출된 기체의 냉각 및 수분 응축을 위한 열교환기로 이루어진 배가스 냉각장치, 반응기의 예열을 위한 히터, 공기-메탄-질소 공급 및 예열장치, 탄소침적 저감을 위해 공급되는 스팀의 공급 및 유량측정 장치, 온도, 압력, 유량 측정, 제어와 실험자료 수집을 위한 계장장치 등으로 구성되어 있다. 전체 시스템의 크기는 $W3.6 \times D2.7 \times H6.25m$ 이며 기포유동층 형태의 환원 반응기는 직경 0.143m, 높이 2.5m이다. 반응기 하부에는 직경 1mm의 구멍이 40개 뚫려있는 다공판(perforated plate) 형태의 분산판을 설치하였으며 비산된 입자의 포집을 위해 내경이 각각 0.05, 0.03m인 표준비율을 갖는 1, 2차 사이클론을 사용하였다. 기포유동층 하부 고체배출관의 직경은 0.025m이며 고속유동층으로의 고체순환을 위한 수평고체흐름관의 직경은 0.05m이다. 고속유동층 형태의 산화반응기는 반응기 하부에 고체체유량을 확보하기 위해 하부와 상부의 직경이 다르도록 설계되었으며 하부의 직경은 0.102m, 상부의 직경은 0.078m이며 반응기 하부로부터 0.5-0.75m에서 축소되도록 하였다. 고속유동층에서 비산되는 고체의 포집을 위해 표준비율을 갖는 직경 0.14, 0.068m의 1, 2차 사이클론을 설치하였다. 두 반응기 사이의 기체혼합 방지와 원활한 고체순환을 위해 설치된 loopseal은 직경 0.078m, 높이 1.5m이며 순환되는 고체의 유동화를 위해 하부에 1.2mm hole 4개와 1.0mm hole 4개가 뚫린 sparger 2개를 설치하였다.

실험 시작 과정에서 산소공여입자는 solid hopper(H-530)를 통해 환원반응기(R-400)로 공급된다. 환원반응기에 공급되는 메탄은 압력조절기와 질량유량계(MFC)를 거쳐서 예열기(P-900)에 의해 가열되어 환원반응기에 공급된다. 산화반응기(O-100)에 공급되는 공기는 고압공기압축기, 압력조절기 및 질량유량계를 거친후 공기예열기(P-800)에 의해 가열되어 환원반응기 하부에서 배출되는 산소공여입자를 이송하면서 산화반응기로 공급된다.

산화반응기에서는 고속의 공기흐름에 의해 산소공여입자가 비산되며 1차 사이클론(C-200)에 의해 포집되어 loopseal(L-300)로 순환된다. 1차 사이클론을 통과한 산소공여입자는 2차 사이클론(C-210)에서 다시 포집되고 2차 사이클론을 통과한 미분은 필터(F-220A, F-220B)에서 포집된다.

Loopseal로 순환된 산소공여입자는 loopseal 하부에서 공급되는 질소기체에 의해 유동화되어 환원반응기로 재순환된다. 질소기체는 압력조절기와 질량유량계를 거쳐 loopseal에 주입되며 두 반응기 사이의 기체혼합을 막는 역할도 담당할 수 있다.

환원반응기에서 비산된 산소공여입자는 1, 2차 사이클론(C-500, C-510) 및 필터(F-520A, F-520B)에서 포집되며 1, 2차 사이클론에 포집된 산소공여입자는 환원반응기로 재순환될 수 있다. 환원반응기에서 산화반응기로의 고체순환은 stand pipe와 수평 고체흐름관에 의해 이루어지며 수평고체흐름관에서 고체이송을 위한 기체는 산화반응기에 주입되는 공기를 이용하였다.

산화반응기와 환원반응기에서 배출된 기체는 각각의 열교환기(C-600, C-620)를 거치면서 냉각되어 수분이 응축되고 응축된 수분은 응축수용기(R-610, R-630)에 보관된다.

열교환기를 거치면서 냉각된 기체는 압력조절밸브와 소음기(silencer)를 거친 후 대기로 배출되며 기체농도 측정을 위한 분석용 기체는 압력조절밸브 전단에서 압력조절기를 거친 후 기체분석기로 유입된다.

기체분석기에서는 실시간으로 8종류의 기체(O_2 , N_2O , NO , NO_2 , H_2 , CH_4 , CO , CO_2)의 농도를 분석하여 PC에 저장한다.

환원반응기에서 탄소침적 저감을 위한 방법의 하나로 증기를 주입하기 위해 물 주입용 펌프(P-710)와 증기발생기(S-720)를 설치하였으며 발생된 증기는 기체연료와 합쳐져 예열기(P-900)에서 가열되어 환원반응기로 주입되도록 하였다.

전체 공정은 자동화에 의해 유량, heater 온도, 반응기 압력, control valve opening 등이 제어되었다.

2.2. 산소공여입자

매체순환식 가스연소기 산화-환원 연속반응에 사용된 입자는 NiO/bentonite 입자로서 금속산화물로는 공업용 NiO(일본화학산업주식회사)를, 지지체로는 동해산 bentonite를 사용하여 제조된 입자이다. 공업용 동해산 bentonite에 함유된 성분들은 SiO_2 65.0%, Al_2O_3 19.5%, Fe_2O_3 2.84%, MgO 1.27%, CaO 2.30%, Na_2O 0.49%, K_2O 2.22%이며 free moisture는 10.8%, viscosity(100rpm)는 14c.p.s. 압축강도는 $0.54kg/cm^2$ 이며 aerosizer에 의해 분석된 평균입경은 $4.0\mu m$ 였다. 공업용 NiO에 포함된 성분은 Ni 70.1%, Fe 0.2%이하, Co 0.1%이하, Cu 0.05%이하, Al 4.0%이하이며 EDAX 분석에 의하면 NiO가 90% 함유된 것으로 나타났으며 aerosizer에 의해 분석된 평균입경은 $1.7\mu m$ 였다.

NiO/bentonite 산소공여입자의 대량생산을 위해 먼저 NiO 입자와 bentonite 입자를 정량하여 전체 입자 중에서 NiO의 함량이 60%가 되도록 혼합한 후 기계식 교반기를 이용하여 5분이상 혼합한다. 혼합한 시료에 증류수를 첨가하여 paste 상태로 만든 후 건조기(drying oven)를 이

용하여 105℃에서 24동안 건조시킨다. 건조된 시료는 진기로를 이용하여 900℃, 공기분위기에서 6시간동안 소성하였다. Roll crusher와 disk mill을 이용하여 소성된 입자를 분쇄하였으며 twist screen을 이용하여 원하는 입도를 분리하였다. 소성과 체분리 과정을 거친 입자의 대표 시료를 채취하여 EDAX 분석을 통해 NiO 함량을 측정하였고 SEM을 이용하여 입자 표면의 기공구조를 촬영하였다. NiO/bentonite 입자의 기공도, 평균 기공크기 및 입자밀도는 mercury porosimeter를 이용하여 측정하였다. NiO/bentonite 입자의 벌크밀도는 1.13g/cm³, apparent density는 4.01g/cm³이며 평균입경 159 μm(-212+106μm)의 입자를 사용하였다.

3. 결과 및 고찰

Fig. 3부터 5까지는 3시간 이상의 산화-환원 연속반응 실험에서 산화반응기에서의 압력강하, loopseal에서의 압력강하, 환원반응기와 수평고체흐름관에서의 압력강하 분포를 각각 나타내고 있다. Fig. 3부터 5에 나타난 실험자료는 산화-환

원 연속반응 실험의 대표적인 예로 1atm, 750℃에서 산화반응기 유속 3.8m/s, 환원반응기 유속 0.05m/s이며 산화반응기체로 공기를, 환원반응기체로 10%의 CH₄(N₂ balance)를 사용하고, loopseal의 유동화와 두 반응기 사이의 기체혼합방지를 위해 세 개의 주입구로 각각 0.02m/s의 N₂를 주입하였을 경우를 나타내고 있다. Fig. 3과 4에 나타난 바와 같이 산화반응기와 loopseal에서의 압력강하는 산화-환원 연속반응 동안 거의 일정한 값을 유지하였으며 이를 통해 산화-환원 연속반응이 정상상태에서 이루어졌음을 알 수 있었다. 한편 Fig. 5에서 환원반응기의 압력강하 값은 시간이 지남에 따라 계속 감소하였는데, 이는 입자의 마모에 의해 산화반응기의 1, 2차 사이클론을 거쳐 배출되는 산소공여입자 손실 때문으로 사료되었으며, 약 190분 동안 14%의 입자손실(시간당 4.4% 입자손실)이 있었다. 매 체순환식 가스연소기의 연속적인 조업과 안정적인 운전을 위해서는 산소공여입자의 내마모성 개선이 중요한 것으로 사료되었다.

Fig. 3부터 5까지를 종합적으로 고려하면 loopseal과 수평고체흐름관에 의한 고체순환이 정상적으로 이루어짐을 알 수 있었다.

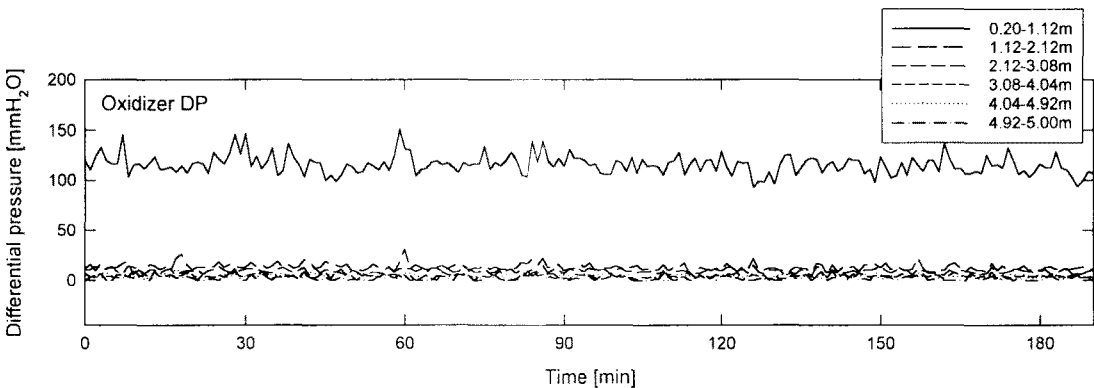


Fig. 3. Pressure drop profile in an oxidizer.

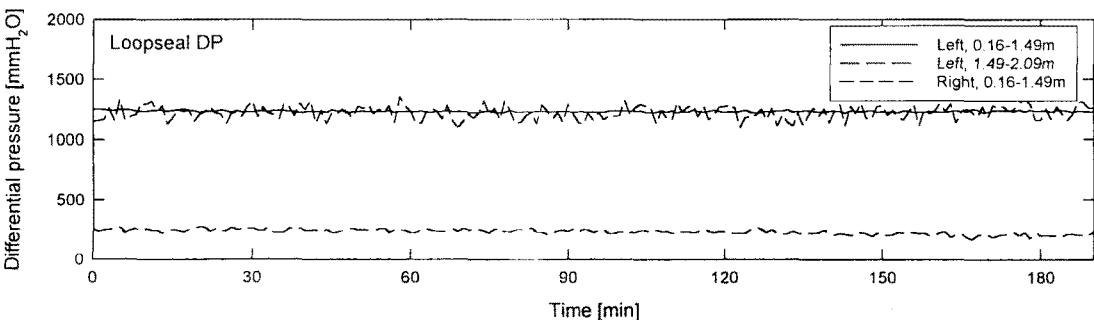


Fig. 4 Pressure drop profile in a loopseal.

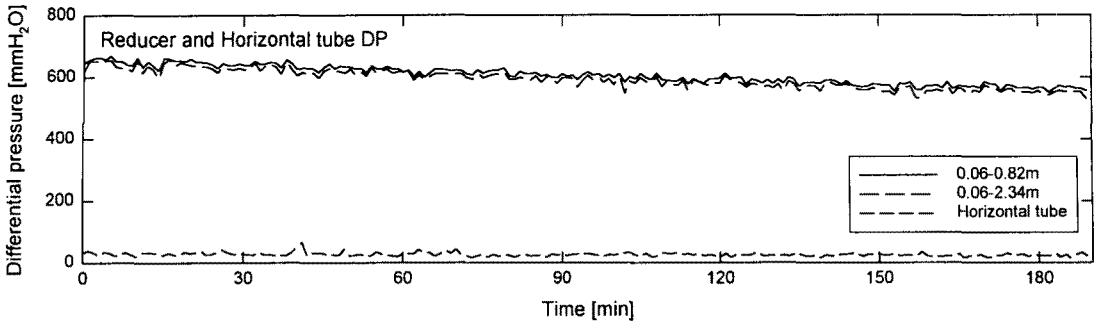


Fig. 5 Pressure drop profile in reducer and horizontal tube.

Fig. 6에는 산화-환원 연속반응 실험에서 환원 반응기에서 배출되는 기체의 농도변화를 나타내었다. 그림에 나타난 바와 같이 산화-환원 연속반응을 3시간 이상 지속할 수 있었으며 CH₄가 주입되고 10분 이후의 평균배출농도를 살펴보면 CH₄ 0.03%, CO 1.97%, CO₂ 98%로 CH₄의 전환율이 99.7%이며, CO₂ 선택도가 98%이상인 것으로 나타나 CO₂의 원천적인 분리가 가능함을 실증할 수 있었다. 또한 환원반응기에서 H₂가 배출되지 않는 것으로 미루어 CH₄의 분해반응에 의한 탄소침적이 발생하지 않았으며 CO 농도가

낮은 것으로 미루어 Boudouard reaction에 의한 탄소침적이 적게 일어나는 것을 예측할 수 있었다.

Fig. 7에는 산화-환원 연속반응 동안에 산화반응기에서 배출되는 기체의 농도변화와 O₂ 소비비(O₂ consumption ratio)의 변화를 나타내고 있다. 그림에 나타난 바와 같이 산화-환원 연속반응 동안에 NO_x의 평균배출농도는 N₂O 0ppm, NO 3.3ppm, NO₂ 3.1ppm으로 분석기의 오차범위에 속하는 정도로 매우 낮게 나타나 매체순환식 가스연소기가 NO_x-free 공정임을 실증할 수 있

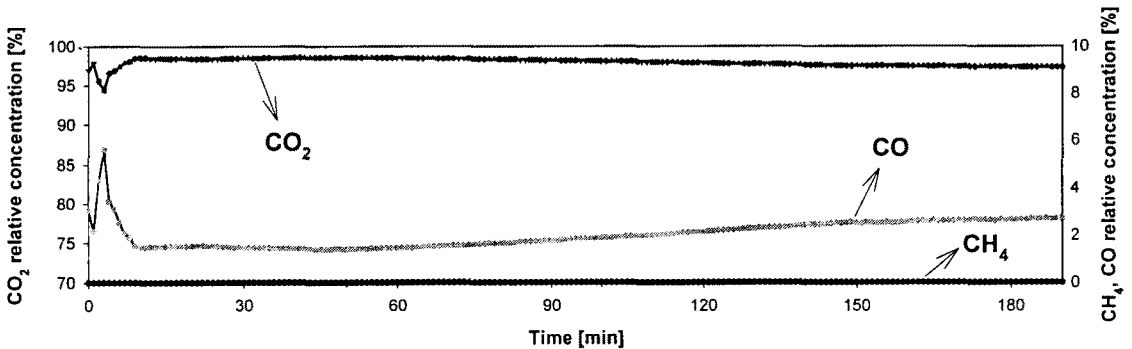


Fig. 6. Concentration of exhausted gas from reducer.

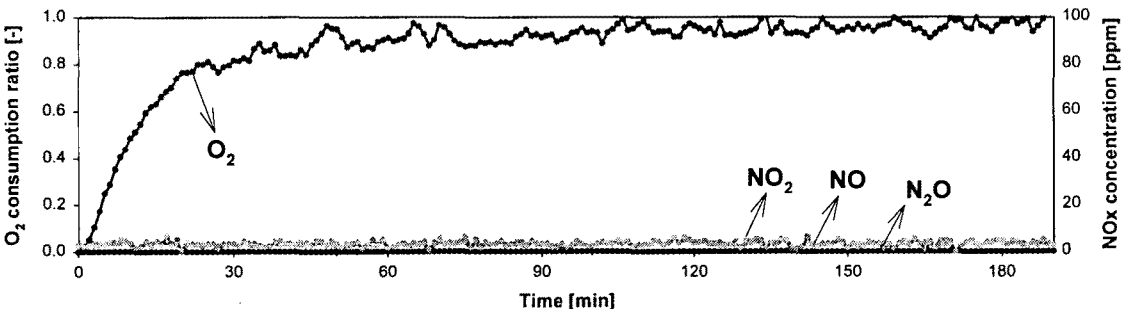


Fig. 7. Concentration of exhausted gases from oxidizer.

었다. 또한 산화반응 동안에 CO_2 와 CO 가 검출되지 않았는데, 이 결과를 통해 환원반응기에서 탄소침적 현상이 일어나지 않았음을 직접적으로 확인할 수 있었다. 한편 Fig. 7에서 O_2 소모비 (O_2 consumption ratio)는 이론적으로 반응해야 할 O_2 와 실제로 산화반응에서 소모된 O_2 의 비를 나타내고 있으며 다음의 식(4)와 같이 계산할 수 있다. 그림에 나타난 바와 같이 산화-환원 연속반응 시간이 경과됨에 따라 O_2 소모비가 1에 접근하였는데, 이와 같은 결과는 환원반응기에서 CH_4 와의 반응에 의해 환원된 산소공여입자가 산화반응기에서 공기중의 산소에 의해 산화되어 원래의 산소전달능력을 회복하는 것을 의미한다.

$$\text{O}_2 \text{ consumption ratio} = \frac{\text{consumed O}_2}{\text{theoretical O}_2 \text{ demand}} \quad (4)$$

Fig. 6과 7의 결과를 종합적으로 고려하면 50kWth 매체순환식 가스연소기를 이용한 산화-환원 연속반응 실험을 통해 3시간 이상의 연속조업이 가능하였으며, 환원반응기에서 CO_2 선택도가 98% 이상으로 나타나 수증기의 응축에 의해 CO_2 를 원천적으로 분리할 수 있음을 확인하였으며, CO 농도가 낮고 H_2 배출이 없는 것으로 나타나 환원반응기에서 탄소침적이 적음을 간접적으로 확인하였고, CH_4 전환율이 99.7%로 나타나 완전한 매체순환식 연소가 가능함을 실증하였다. 또한 산화반응기에서 배출되는 NO_x 농도는 3.3ppm 이하로 나타나 매체순환식 가스연소기가 NO_x -free 공정임을 실증하였으며 CO_2 , CO 가 배출되지 않았으므로 환원반응기에서 탄소침적이 발생하지 않는다는 것을 직접적으로 확인할 수 있었다. 또한 반응시간이 경과함에 따라 O_2 소모비가 1에 접근하는 것으로 나타나 환원반응기에서 환원된 산소공여입자가 산화반응기에서 다시 산화되어 초기의 산소전달능력을 회복하여 환원반응기로 재순환되는 것으로 나타났다.

결과적으로 본 연구를 통해 산화-환원 연속반응 실험을 통해 매체순환식 가스연소기에서 CO_2 원천분리 및 thermal- NO_x 발생억제 여부를 실증하였으며 연속적인 조업이 가능하여 매체순환식 가스연소기의 상용화가 가능함을 입증하였다.

4. 결론

매체순환식 가스연소기에서 CO_2/NO_x -free를 실증하고, 상용화를 위한 안정적 운전을 입증하기 위해 대량으로 생산된 NiO/bentopnite 입자를 산소공여입자로 사용하여 고속유동층-기포유동

층으로 구성된 2탑 가압순환유동층 형태의 50kWth 매체순환식 가스연소기에서 산화-환원 연속반응을 실증하였다. 산화반응기와 환원반응기 사이의 고체순환이 원활하게 일어나, 3시간 이상의 안정적인 조업이 가능하였다. 산화-환원 연속반응에서 CO_2 선택도가 98% 이상으로 나타나 CO_2 의 원천분리가 가능한 것을 실증하였으며, CH_4 전환율도 99.7%로 나타났다. 산화반응기 배출기체 분석에 의해 NO_x 가 배출되지 않는 것을 실증하였으며 탄소침적, 수소생성 등의 부작용이 없고, 산화-환원반응기 사이의 기체혼합이 없음을 확인하였다. 본 연구를 통해 세계최초로 매체순환식 가스연소기의 산화-환원 연속반응을 실증하였으며 매체순환식 가스연소기에서 CO_2 원천분리 및 thermal- NO_x 발생억제가 가능하고 연속적인 조업이 가능하여 매체순환식 가스연소기의 상용화가 가능함을 입증하였다.

후 기

본 연구는 본 연구는 공공기술연구회 기본사업의 일환으로 수행되었습니다. 연구비 지원에 감사드립니다.

참고문헌

- [1] Ryu, H. J., "CO₂-NO_x free chemical-looping combustion technology", KOSEN report, <http://www.kosen21.org> (2003).
- [2] Hatanaka, T, Matsuda, S. and H. Hatano, "A New-Concept Gas-Solid Combustion System MERIT for High Combustion Efficiency and Low Emissions", *Proceedings of the Thirty Second IECEC*, vol. 1, 944-948(1997).
- [3] IEA Greenhouse Gas R&D Programme Report, "Greenhouse Gas Emissions from Power Stations", (2000), available on <http://www.ieagreen.org.uk/sr1p.htm>.
- [4] IEA Greenhouse Gas R&D Programme Report, "Carbon Dioxide Capture from the Power Stations", (2000), available on <http://www.ieagreen.org.uk/sr2p.htm>.
- [5] Wolf, J., Anheden, M. and Yan, J., "Performance Analysis of Combined Cycles with Chemical Looping Combustion for CO₂ Capture", *Proceedings of 18th Pittsburg Coal Conference*, December 3-7, newcastle, NSW,

- Australia, session 23, CD-ROM(2001).
- [6] Ishida, M. and Jin, H., "A New Advanced Power-Generation System Using Chemical-Looping Combustion", *Energy*, **19**(4), 415-422(1994).
- [7] Ishida, M., Zheng, D. and T. Akehata, "Evaluation of a Chemical-Looping Combustion Power-Generation System by Graphical Exergy Analysis", *Energy-The Int. Journal*, **12**, 147-154(1987).
- [8] Ishida, M. and Jin, H., "A New Advanced Power-Generation System Using Chemical-Looping Combustion", *Energy*, **19**(4), 415-422(1994).
- [9] Ahheden, M. and Svedberg, G., "Chemical-Looping Combustion in Combination with Integrated Coal Gasification", IECEC' 96, 31st Intersociety Energy Conversion Engineering Conference, Washington, D.C., USA, vol. 4, 2045-2050(1996).
- [10] Ahheden, M. and Svedberg, G., "Exergy Analysis of Chemical-Looping Combustion Systems", *Energy Convers. Mgmt.*, **39**(16-18), 1967-1980(1998).
- [11] Jin, H. and Ishida, M., "A Novel Gas Turbine Cycle with Hydrogen-Fueled Chemical-Looping Combustion", *Int. J. of Hydrogen Energy*, **25**, 1209-1215(2000).
- [12] Wolf, J., Ahheden, M. and Yan, J., "Performance Analysis of Combined Cycles with Chemical Looping Combustion for CO₂ Capture", Proceedings of 18th Pittsburg Coal Conference, December 3-7, newcastle, NSW, Australia, session 23, CD-ROM(2001).
- [13] Copeland, R. J., Alptekin, G., Cesario, M., Gebhard, S., Gershanovich, Y., "A Novel CO₂ Separation System", Proceedings of the First National Conference on Carbon Sequestration, Washington, DC, DOE/NETL (2001).
- [14] Ryu, H. J. and Jin, G. T., "Conceptual Design of 50kW thermal Chemical-Looping Combustor and Analysis of Variables", *Energy Engg.*, **12**(4), 289-301(2003).
- [15] Ryu, H. J., Jin, G. T., Lim, N. Y. and Bae, S. Y., "Reaction Characteristics of Five Kinds of Oxygen Carrier Particles for Chemical-Looping Combustor", *Trans. of the Korean Hydrogen Energy Society*, **14**(1), 24-34 (2003).
- [16] Ryu, H. J., Bae, D. H. and Jin, G. T., "Reaction Characteristics of Oxygen Carrier Particle in a Pressurized Fluidized Bed Chemical-Looping Combustor", *Theories and Applications of Chem. Eng.*, KICChE, **8**(1), 1101-1104(2002).