

0.5 MWth 케미컬루핑 연소 시스템 적용을 위한 신규 산소전달입자의 고온·고압 반응 특성

김정환¹ · 이도연¹ · 남형석¹ · 조성호¹ · 황병욱¹ · 백점인² · 류호정^{1,†}

¹한국에너지기술연구원, ²한국전력공사 전력연구원

Reaction Characteristics of New Oxygen Carrier for 0.5 MWth Chemical Looping Combustion System at High Temperature and High Pressure Conditions

JUNGHWAN KIM¹, DOYEON LEE¹, HYUNGSEOK NAM¹, SUNG-HO JO¹, BYUNG WOOK HWANG¹, JEOM-IN BAEK², HO-JUNG RYU^{1,†}

¹Korea Institute of Energy Research, 152 Gajeong-ro, Yuseong-gu, Daejeon 34129, Korea

²Korea Electric Power Corporation (KEPCO) Research Institute, 105 Munji-ro, Yuseong-gu, Daejeon 34056, Korea

†Corresponding author :
hjryu@kier.re.kr

Received 13 July, 2018
Revised 15 October, 2018
Accepted 30 October, 2018

Abstract >> To check applicability of recently developed new oxygen carrier for 0.5 MWth chemical looping combustion system, reactivity tests were carried out at high temperature and high pressure conditions. Pressure, temperature, gas velocity, CH₄ flow rate, and solid height were considered as operating variables. The new oxygen carrier (N016-R4) showed not only high fuel conversion but also high CO₂ selectivity within all the operating conditions in this study. The reactivity of N016-R4 particle was compared with previous oxygen carriers. The N016-R4 particle represented outstanding reactivity among 10 oxygen carriers in terms of fuel conversion and CO₂ selectivity.

Key words : Chemical looping combustion(케미컬루핑연소), Oxygen carrier(산소전달입자), High temperature(고온), High pressure(고압), Fuel conversion(연료전환율), CO₂ selectivity (CO₂ 선택도)

1. 서론

발전소, 소각로, 산업용 보일러 등과 같은 대형 이산화탄소 배출원으로부터 이산화탄소를 포집하여 분리하기 위한 기술 중에서 연소 후 분리기술과 연소 전 분리기술의 경우, 연소기와는 별도로 이산

화탄소를 분리하기 위한 설비가 필요한 반면, 순산소 연소기술은 연소기 자체가 CO₂ 분리설비이므로 주로 신규발전소 또는 기존 발전소의 retrofit을 위한 설비로 활용될 수 있다. 순산소 연소기술 중 케미컬루핑 연소기술은 공기 중의 산소를 사전에 분리하여 연소기에 공급하는 기존의 순산소 연소기

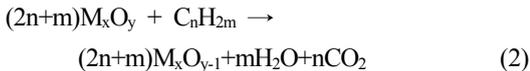
술과는 달리 금속산화물을 이용하여 하나의 반응기에서는 공기 중의 산소를 흡수하고, 이를 다른 반응기로 이동시켜 연료와 산소를 반응시키는 분리 연소 반응을 통하여 공기 중의 질소와 연소에 의하여 발생하는 이산화탄소의 혼합을 막을 수 있으며 산소를 분리하기 위한 별도의 설비가 필요 없는 차세대 연소기술이다¹⁻³⁾.

Fig. 1에는 케미컬루핑 연소 시스템의 기본적인 개념을 나타내었다. 전체 연소 시스템은 공기반응기와 연료반응기로 구성되며, 공기반응기에서는 식 (1)과 같이 산소전달입자에 포함된 금속성분(M)이 공기 중의 산소와 반응하면서 산화되어 금속산화물(MO)을 형성하고, 산소전달입자가 연료반응기로 이송되면 연료반응기에서는 식 (2)와 같이 금속산화물(MO)이 연료(천연가스, 석탄, 합성가스, 바이오매스 등)와 반응하여 다시 금속산화물이 금속성분으로 환원되면서 CO₂, H₂O 만을 발생시킨다. 연료반응기에서 환원된 산소전달입자는 공기반응기로 재순환되어 위의 과정을 반복한다⁴⁾.

산화 반응:



환원 반응:



이와 같이 두 개의 반응기로 분리된 케미컬루핑 연소 시스템을 사용하는 경우, 공기반응기에서는 화염이 없는 조건에서 기체-고체 반응이 일어나므로 thermal-NOx의 발생을 최소화할 수 있으며, 별도의 공기분리설비가 필요하지 않으며, 연료반응기에서 배출되는 기체는 CO₂와 H₂O 뿐이므로 수분을 응축하여 분리하면 별도의 CO₂ 분리설비 없이도 고농도의 CO₂를 원천적으로 분리할 수 있는 장점이 있다^{5,6)}. 한편, 천연가스 복합발전 시스템에 상압 케미컬루핑 연소 시스템을 적용할 경우 스팀터빈을 구동하여 얻을 수 있는 발전효율은 40-42%인 반면 고압 케미컬

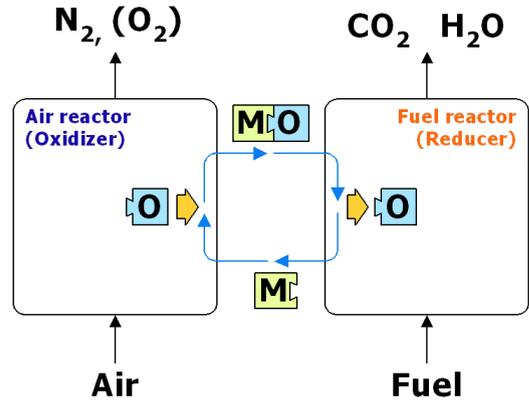


Fig. 1. Conceptual diagram of chemical looping combustion system

루핑 연소 시스템을 적용할 경우 스팀터빈과 가스터빈을 함께 구동할 수 있어 52-53%의 발전효율을 얻을 수 있는 것으로 보고된 바 있다⁷⁾.

본 연구팀에서는 가압 케미컬루핑 연소 시스템을 개발하기 위한 과정으로 0.5 MWth 케미컬루핑 연소 시스템에서 가압 장기운전을 실증하고자 하며, 이를 위하여 0.5 MWth 시스템과 유사한 장치규격을 갖는 상온-상압 아크릴 실험장치를 이용하여 산소전달입자의 고체순환 특성을 해석한 바 있으며⁸⁾, 고온-고압 고체순환 특성을 해석한 바 있다^{9,10)}. 또한, 0.5 MWth 시스템에 적용하기 위한 산소전달입자 후보군을 선정하기 위한 반응성 실험도 함께 수행하였다¹¹⁻¹⁶⁾. 본 연구에서는 최종적으로 0.5 MWth 시스템에 적용하기 위한 최적 산소전달입자를 선정하기 위하여 가압 유동층을 이용하여 고온-고압 조건에서 압력, 온도, 기체유속, CH₄ 유량, 고체층 높이 등의 조업 조건 변화에 따른 산소전달입자의 반응성을 측정 및 해석하였으며, 기존에 개발된 산소전달입자들의 반응성과 비교하였다.

2. 실험

2.1 산소전달입자

산소전달입자로는 한국전력공사 전력연구원에서 분무건조법(spray drying method)을 사용하여 제조된



Fig. 2. Microscopic image of N016-R4 particle

Table 1. Properties of oxygen carrier particle

Particle name	Raw materials		Bulk density (kg/m ³)	Particle size range (μm)
	Metal oxide	Supporter/promoter		
N016-R4	NiO (70 wt.%)	Confidential (30 wt.%)	1,614.5	52-249

Table 2. Summary of test conditions and variables

Case	Pressure (bar-abs)	Temperature (°C)	Gas velocity (m/s)	CH ₄ flow rate (NL/min)	Solid height (m)
A	3	900	0.058	0.2	0.2
	4				
	5				
	6				
B	6	800	0.058	0.2	0.2
		850			
		900			
		950			
C	6	900	0.039	0.2	0.2
			0.044		
			0.049		
			0.054		
			0.058		
D	6	900	0.058	0.2	0.2
				0.3	
				0.4	
				0.5	
				0.6	
				0.7	
				0.9	
				1.0	

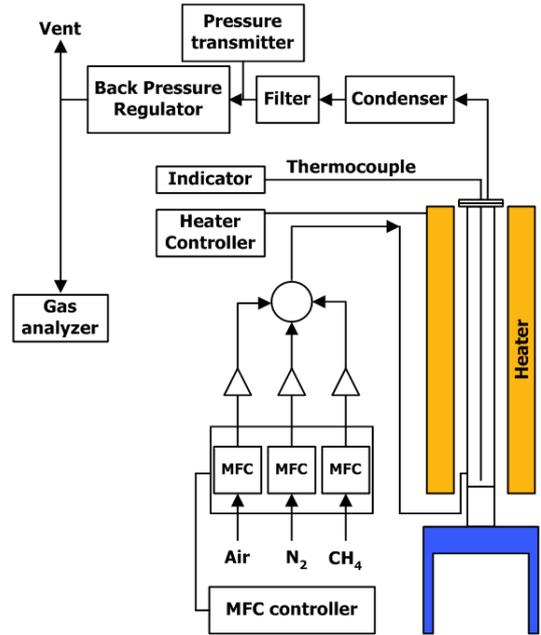


Fig. 3. Schematic of a pressurized fluidized bed reactor

N016-R4 입자를 사용하였다. Fig. 2와 Table 1에는 산소전달입자의 광학현미경 사진과 입자 특성을 나타내었다. Fig. 2에 나타난 바와 같이 N016-R4 입자는 구형을 나타내었으며 Table 2에 나타난 바와 같이, 입자의 벌크밀도는 1614.5 kg/m³, 입자크기 분포는 52-249 μm로 측정되었다.

2.2 실험장치

Fig. 3에는 본 연구에서 사용된 기포유동층 반응기의 개략도를 나타내었다. 본 연구에 사용된 기압유동층의 주 반응기는 기포유동층이며 SUS310S 재질을 사용하여 내경 0.025 m, 높이 0.312 m가 되도록 제작하였다. 기체는 질량유량계(MFC)를 통하여 반응기 하부에서 0.005 m 높이에 삽입된, 0.5 mm의 구멍이 4개 뚫려있는 기체분사관(sparger)을 통하여 주입하였다. 반응기 상부로부터 열전대(K-type)를 삽입하여 반응기 하부로부터 높이 0.05, 0.10 m의 지점에서 반응기 내부온도를 측정하였다. 반응기 내부온도

는 반응기 내부 2곳과 히터 외부온도 중 선택하여 제어할 수 있다. 유동층 내부의 압력은 반응기 상부에 설치된 압력탭에 압력변환기를 연결하여 측정하였으며 압력제어를 위하여 역압조정기(back pressure regulator)를 설치하였다. 반응기에서 배출되는 기체는 응축기(condenser)와 필터, 역압조정기를 거친 후 일부는 기체분석기로 유입되고 여분의 기체는 대기로 배출되도록 하였다. 배출기체의 농도분석을 위하여 CO, CO₂, H₂, CH₄, O₂의 농도를 실시간으로 측정 및 기록할 수 있는 온라인 기체분석기(Hartmann & Braun Co., Advaned Optima)를 사용하였다. 반응기의 온도, 기체 유량, 압력 및 기체분석기에서 분석되는 각 기체성분의 농도 값은 PLC를 거쳐 실시간으로 PC에 저장되었다.

2.3 실험 조건 및 방법

산소전달입자의 반응성 확인을 위한 실험에서 환원성 기체로는 메탄(CH₄)을 사용하였고 산화성 기체로는 공기(air)를 사용하였다. 먼저 상압 조건의 기포유동층 반응기에 원하는 높이의 고체를 장입한 후 공기를 흘려주면서 온도를 상승시켰다. 반응기 내부온도가 최종 온도 부근에 도달하면 압력을 상승시키기 위하여 유량을 증가시키면서 역압조정기를 조절하여 반응기 내부 압력이 원하는 압력이 되도록 하였다. 유속, 온도, 압력이 실험 조건에 도달하면 공기를 질소로 교체하여 반응기 내부 기체가 교환되도록 하였으며 기체분석기를 통하여 모든 기체의 농도가 0이 되는 것을 확인함으로써 기체가 모두 질소로 교환되었음을 확인하였다. 기체교환이 끝나면 질소의 유량을 감소시키면서 CH₄의 유량을 증가시켜 산소전달입자와 CH₄의 환원 반응이 시작되도록 하였다. 각 실험 조건에서 환원 반응은 약 10분 이상 수행하였으며 환원 반응이 종료되면 CH₄를 질소로 교체한 후 반응기 온도와 압력을 낮추어 실험을 종료하였다. 본 연구에서는 매 실험 조건마다 새로운 산소전달입자를 장입하여 사용하였다.

Table 2에는 본 연구의 실험변수 및 실험 조건을 요

약하여 나타내었으며, 주어진 조건에서 실험변수를 굵은 글씨로 표시하였다. 표에 표시된 바와 같이 900°C 조건에서 압력을 3-6 bar로 변화시켰으며(case A), 6 bar 조건에서 온도를 800-950°C로 변화시키면서(case B) 산소전달입자의 반응성에 미치는 압력과 온도의 영향을 각각 측정 및 해석하였다. 또한 6 bar, 900°C 조건에서 기체유속을 0.039-0.054 m/s로 변화시켰으며(case C), 6 bar, 900°C 조건에서 CH₄의 유량을 0.3-1.0 Nl/min로 변화시키는 실험(case D)도 수행하였다. 표에 나타난 조건 중 case A, B, C의 경우에는 압력, 온도, 기체유속이 변화할 때 CH₄의 유량은 변화시키지 않고 질소의 유량을 변경하는 방법을 사용하여 기체유속 조건을 만족하도록 하였으며, case D의 경우에는 CH₄ 유량이 변함에 따라 질소의 유량을 함께 변경하여 기체유속이 동일하게 유지되도록 하였다.

2.4 환원 반응성 비교 방법

산소전달입자의 환원 반응성을 비교하기 위하여 연료전환율(fuel conversion)과 CO₂ 선택도(CO₂ selectivity)를 측정 및 해석하였다. 연료전환율은 주입된 연료기체 중 반응한 연료의 몰수를 의미하며 식 (3)과 같이 계산하였다. 주입된 연료기체의 몰수는 각 실험 조건에서 주입되는 기체의 농도를 이용하여 결정하였고, 반응한 연료의 몰수는 배출기체 중 CO₂와 CO의 농도를 이용하여 계산하였다. 연료전환율을 통하여 반응기에 주입된 연료기체가 산소전달입자와 어느 정도 반응하였는지를 확인할 수 있다^{1,17)}.

CO₂ 선택도는 전체 주입된 연료기체 중에서 CO₂의 형태로 배출되는 기체의 분율을 의미하며 식 (4)와 같이 계산하였으며 CO₂ 선택도가 높을수록 CO₂의 원천분리가 용이함을 의미한다^{1,17)}.

$$\text{Fuel conversion} = \frac{\text{moles of reacted fuel}}{\text{moles of input fuel}} \times 100 \quad (3)$$

$$\text{CO}_2 \text{ selectivity} = \frac{\text{CO}_2 \text{ in output gas}}{\text{Total carbon in output gas}} \times 100 \quad (4)$$

3. 결과 및 고찰

Fig. 4에는 N016-R4 입자에 대해 대표적으로 압력 6 bar, 온도 900°C, 유속 0.058 m/s의 조건에서 환원 반응 동안 CH₄ 0.2 NL/min을 주입할 때 환원 반응 시간 동안 측정된 온도, 압력 및 기체분석기에서 측정된 CO, CO₂, CH₄, H₂의 농도변화를 나타내었다. 그림에 나타난 바와 같이, 환원 반응 동안 온도와 압력은 거의 유사한 값을 유지하였으며, 기체 농도의 경우 다른 기체들은 검출되지 않았으며, CO₂의 경우, 식 (2)에 나타난 바와 같은 환원 반응에 의하여 시간이 경과함에 따라 CO₂ 농도가 증가한 후 거의 일정해지는 경향을 나타내었다. 본 연구에서 연료전화율 및 CO₂ 선택도는 CO₂ 농도가 증가한 후 일정하게 유지되는 동안의 데이터에 대하여 평균값

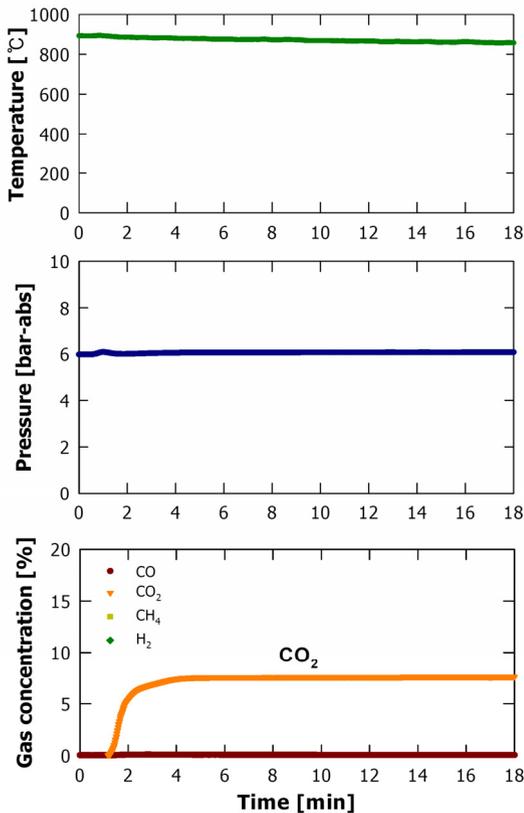


Fig. 4. Typical trends of temperature, pressure, and gas concentrations during reduction of oxygen carrier

을 이용하여 결정하였다.

Fig. 5에는 온도 900°C, 기체유속 0.058 m/s, CH₄ 유량 0.2 NL/min의 조건에서 압력변화에 따라(case A) 측정된 연료전화율 및 CO₂ 선택도의 변화를 나타내었다. 그림에 나타난 바와 같이, 모든 압력 조건에서 연료전화율은 100%를 나타내었으며, CO₂ 선택도의 경우, 압력이 증가함에 따라 다소 감소하는 경향을 나타내었으나 감소폭은 크게 나타나지 않았다.

본 연구에서 사용한 N016-R4 입자와 기존에 개발된 산소전달입자의 반응성을 비교하기 위하여 동일한 조건에서 실험한 기존 문헌¹¹⁻¹⁶⁾의 실험 결과들과 비교하였으며, 이 결과를 Fig. 6에 나타내었다. 그림에 나타난 바와 같이 10종류의 산소전달입자들 중에서 본 연구에 사용된 N016-R4 입자의 경우가 3-6 bar의 압력 조건에서 연료전화율과 CO₂ 선택도가 가장 높게 나타났다. 결과적으로 0.5 MWth 급 케미컬루핑 연소 시스템과 같은 고온, 고압 조건에 적용하기 위한 최적의 산소전달입자로 N016-R4 입자를 선정하였다.

Figs. 7-9까지에는 N016-R4 입자에 대하여 전화율 및 CO₂ 선택도에 미치는 온도, CH₄ 유량 및 기체유속의 영향을 측정된 결과를 나타내었다. Fig. 7에 나타난 바와 같이, 압력 6 bar, 기체유속 0.058 m/s, CH₄ 유량 0.2 NL/min 조건에서 온도를 800°C부터

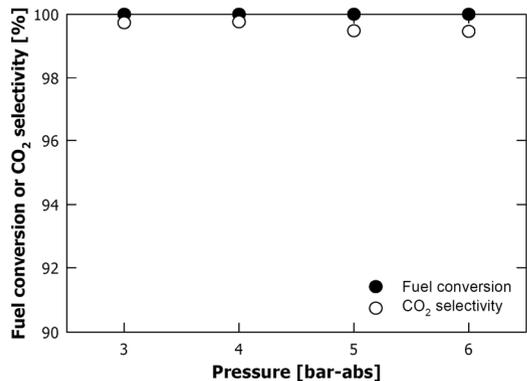


Fig. 5. Effect of pressure on fuel conversion and CO₂ selectivity of N016-R4 oxygen carrier (case A)

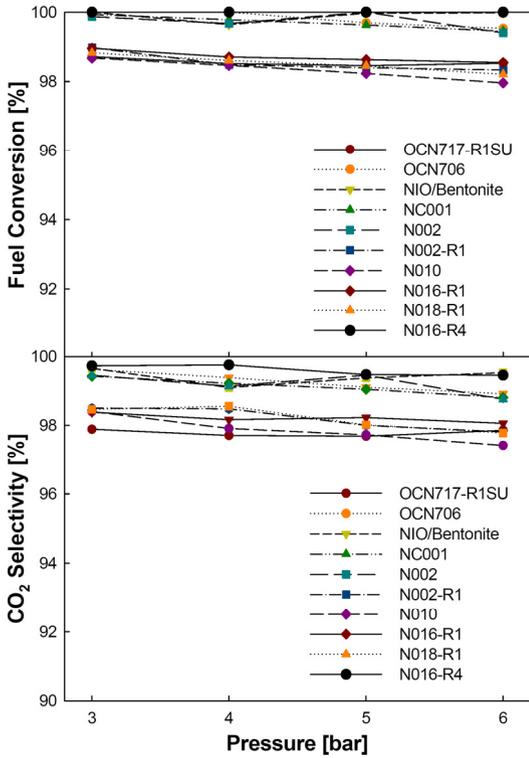


Fig. 6. Comparison of fuel conversion and CO₂ selectivity for 10 kinds of oxygen carriers at high pressure conditions (at 900°C)

950°C까지 변화시켰을 때(case B) 연료전화율은 모든 조건에서 100%를 나타내었으며, CO₂ 선택도의 경우 큰 변화가 나타나지 않았다.

Fig. 8에 나타난 바와 같이 6 bar, 900°C, CH₄ 유량 0.2 NI/min인 조건에서 기체유속을 0.039 m/s부터 0.058 m/s까지 변화시켰을 때(case C) 연료전화율은 모든 조건에서 100%를 나타내었으며, CO₂ 선택도의 경우 큰 변화가 나타나지 않았다. 본 연구의 실험 조건에서 기체유속이 증가하는 경우, 반응기체가 고체층과 접촉할 수 있는 시간이 감소하는 것을 의미하며, 본 실험의 고체층 높이(0.2 m)를 고려하면 기체와 고체의 이론적인 접촉시간이 5.1초에서 3.5초로 감소하는 경우에도 충분한 반응이 일어날 수 있음을 의미한다.

Fig. 9에는 6 bar, 900°C, 기체유속 0.058 m/s 조건에서 CH₄ 유량을 0.2 NI/min부터 1.0 NI/mi까지 변화

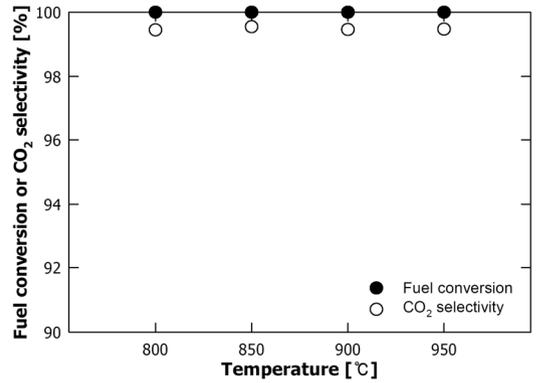


Fig. 7. Effect of temperature on fuel conversion and CO₂ selectivity of N016-R4 oxygen carrier (case B)

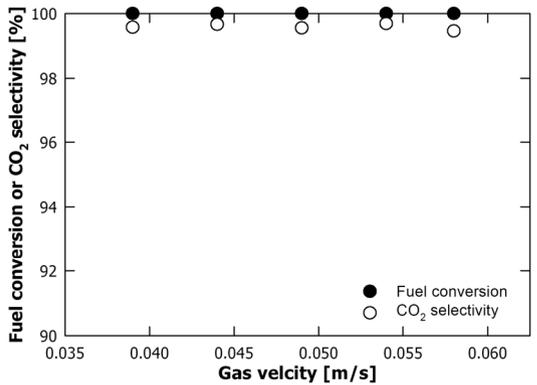


Fig. 8. Effect of temperature on fuel conversion and CO₂ selectivity of N016-R4 oxygen carrier (case C)

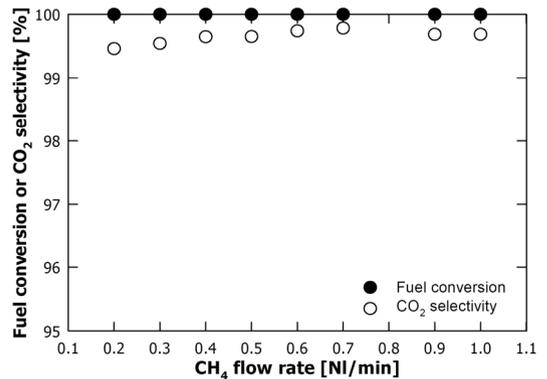


Fig. 9. Effect of CH₄ flow rate on fuel conversion and CO₂ selectivity of N016-R4 oxygen carrier (case D)

시켰을 때(case D) 연료전화율과 CO₂ 선택도의 변화를 나타내었다. 본 실험에서 CH₄ 유량을 증가시키

Table 3. Summary of additional test conditions and variables

Case	Pressure (bar-abs)	Temperature (°C)	Gas velocity (m/s)	CH ₄ flow rate (NL/min)	Solid height (m)
E	6	900	0.054	0.2	0.10 0.15 0.20
F	6	900	0.063	0.2 0.4	0.1
G	6	900	0.058	0.1 0.2	0.2 (oxygen carrier: sand=2:8)

경우, 기체유속을 동일하게 유지하기 위하여 증가되는 CH₄ 유량만큼 질소의 유량을 감소시켰으며, 결과적으로 CH₄ 유량의 증가는 반응기체 중 CH₄ 농도 증가를 의미한다. 그림에 나타난 바와 같이, 모든 실험 조건에서 연료전화율은 100%를 나타내었으며 CO₂ 선택도의 경우 CH₄ 유량(즉, CH₄ 농도)이 증가함에 따라 다소 증가하는 경향을 나타내었다. 이는 반응물의 농도가 증가함에 따라 평형 반응이 정반응 쪽으로 이동되기 때문으로 사료되었다.

Fig. 5와 Figs. 7-9에 나타난 바와 같이, Table 2에 나타난 본 연구의 실험 조건 내에서 연료전화율은 모든 조건에서 100%를 나타내었으며, CO₂ 선택도는 99.45%에서 99.78%의 높은 값을 나타내었다. 따라서 보다 가혹한 조건에서 N016-R4 입자의 반응성을 확인하기 위하여, 아래의 Table 3과 같은 추가적인 조건을 고려하였다. Table 3에 나타난 바와 같이, 주입되는 CH₄ 유량 대비 산소전달입자의 양(즉 공급할 수 있는 산소의 양)을 변화시키기 위하여 유동층 내부의 고체층 높이를 변화시켰으며(case E), case E 대비 높은 기체유속(0.063 m/s)에서 case E의 가장 낮은 고체층 높이 기준으로 CH₄ 유량을 2배로 증가시키는 실험도 추가적으로 수행하였고(case F), 주입되는 CH₄ 유량 대비 산소전달입자의 양(즉 공급할 수 있는 산소의 양)이 더욱 적은 조건을 고려하기 위하여, 산소전달입자와 비활성물질인 모래를 2:8의 무게 비로 혼합한 입자를 사용한 경우(case G)에 대해서도

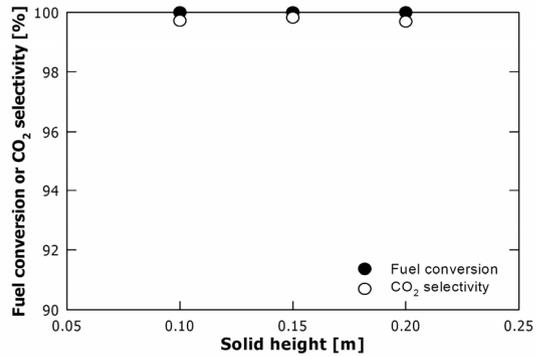


Fig. 10. Effect of solid height on fuel conversion and CO₂ selectivity of N016-R4 oxygen carrier (case E)

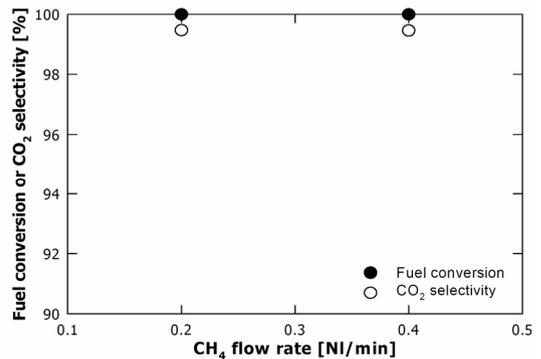


Fig. 11. Effect of CH₄ flow rate on fuel conversion and CO₂ selectivity of N016-R4 oxygen carrier at shallow bed condition (case F)

추가적인 실험을 수행하였다.

Fig. 10에는 6 bar, 900°C, 기체유속 0.054 m/s, CH₄ 유량 0.2 NL/min인 조건에서 고체층의 높이를 0.10, 0.15, 0.20 m로 변화시켰을 때(case E)의 결과를 나타내었다. 연료전화율은 모든 조건에서 100%를 나타내었으며, CO₂ 선택도의 경우에도 큰 변화가 나타나지 않았다. 본 연구의 실험 조건에서 고체층 높이의 감소는 산소전달입자의 감소(즉, 연료에 전달할 수 있는 산소량의 감소)와 함께 고체와 기체의 접촉시간 감소를 의미한다. 그림에 나타난 바와 같이 산소전달입자량이 감소하고 고체와 기체의 접촉시간이 감소한 고체층 높이 0.1 m 조건에서도 매우 높은 CO₂ 선택도를 나타낸 것을 확인할

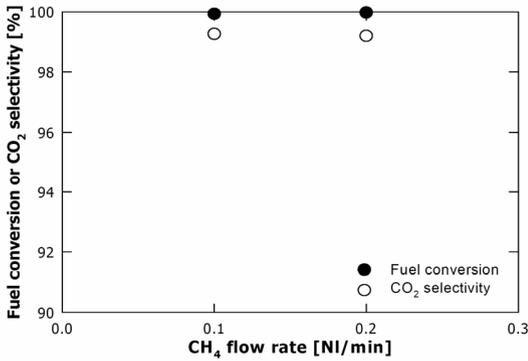


Fig. 12. Effect of CH₄ flow rate on fuel conversion and CO₂ selectivity of N016-R4 oxygen carrier (case G)

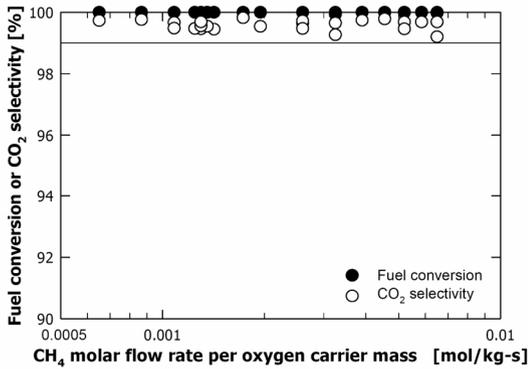


Fig. 13. Fuel conversion and CO₂ selectivity versus CH₄ molar flow rate per oxygen carrier mass

수 있었다.

다음으로 case E에 비하여 더 가혹한 조건에서 N016-R4 입자의 반응성을 확인하기 위하여 case E의 가장 낮은 고체층 높이 조건인 0.1 m와 더 높은 기체유속인 0.063 m/s에서(온도, 압력은 동일) CH₄ 유량을 0.2, 0.4 NI/min로 변화시켰을 때의 결과를 Fig. 11에 나타내었다. 연료전화율은 두 가지 조건 모두 100%를 나타내었으며, CO₂ 선택도 역시 큰 변화 없이 높은 값을 나타내었다.

마지막으로 case F에 비하여 더 가혹한 조건을 시험하기 위하여, 산소전달입자와 비활성물질인 모래를 2:8의 무게비로 혼합한 입자를 사용한 경우에 대한 결과를 Fig. 12에 나타내었다. 산소전달입자의 무게함량이 20%임에도 불구하고 연료전화율은 두 조

건 모두 100%를 나타내었으며, CO₂ 선택도 역시 큰 변화 없이 높은 값을 나타내었다.

본 연구에서 고려된 모든 실험 조건을 종합적으로 고려하기 위하여 산소전달입자 단위무게 당 CH₄ 몰유량 변화에 따른 연료전화율과 CO₂ 선택도의 측정값을 Fig. 13에 나타내었다. 그림에 나타난 바와 같이 본 연구의 실험 범위는 산소전달입자 단위무게 당 CH₄ 몰유량의 변화 범위가 0.00065부터 0.0065 mol/kg-s 범위에 속하였으며, 이 범위 내에서 연료전화율은 모든 조건에서 100%를 나타내었고 CO₂ 선택도는 99% 이상을 나타내었다. 따라서, 이 결과를 이용하여 본 연구에서 사용한 N016-R4 입자의 경우에 대해 CO₂ 선택도 99%를 얻을 수 있는 연료반응기 고체 충전량을 결정할 수 있다. 0.5 MWth 케미컬루핑 연소 시스템의 경우, CH₄ 주입 몰유량은 0.623 mol/s이므로 산소전달입자 단위무게 당 CH₄ 몰유량 0.00065의 경우 산소전달입자 무게는 958 kg에 해당하며 0.0065의 경우 산소전달입자 무게는 95.8 kg에 해당한다. 따라서, 0.5 MWth급 케미컬루핑 연소 시스템에서 99% 이상의 CO₂ 선택도를 얻기 위해서는 초기 고체장입량이 95.8 kg 이상이 되어야 함을 알 수 있다.

4. 결론

고온, 고압 조건에서 운전되는 0.5 MWth급 케미컬루핑 연소 시스템에 적용하기 위하여 개발된 산소전달입자(N016-R4)의 반응성을 확인하기 위한 실험을 수행하였다. 본 연구에서 얻어진 결론을 요약하면 다음과 같다.

1) N016-R4 산소전달입자는 본 연구의 모든 실험 조건에서 연료전화율 100%를 나타내었으며 CO₂ 선택도의 경우 온도, 기체유속 변화에 따른 차이는 크게 나타나지 않았으며 압력이 증가함에 따라 다소 감소하고, CH₄ 유량이 증가함에 따라 다소 증가하는 경향을 나타내었다.

2) N016-R4 산소전달입자와 기존에 개발된 산소전달입자의 연료전화율 및 CO₂ 선택도를 비교하였

으며, N016-R4 입자가 다른 입자들에 비하여 우수한 성능을 나타내어 0.5 MWth급 케미컬루핑 연소 시스템에 적용하기 위한 최적의 산소전달입자로 선정할 수 있었다.

3) 좀 더 가혹한 조건에서 N016-R4 입자의 반응성을 확인하기 위하여 고체층 높이, 기체유속을 변화시킨 조건과 산소전달입자를 모래와 혼합한 경우에 대하여 추가적인 실험을 수행하였으며, 모든 조건에서 높은 연료전환율과 CO₂ 선택도를 나타내었다.

4) 본 연구의 실험 결과를 종합적으로 고려하면, CO₂ 선택도 99% 이상을 얻기 위해서는 0.5 MWth급 케미컬루핑 연소 시스템을 기준으로 연료반응기 초기 고체장입량 95.8 kg 이상이 필요한 것을 알 수 있었다.

후 기

본 연구는 2015년도 산업통상자원부의 재원으로 한국에너지기술평가원(KETEP)의 지원을 받아 수행한 연구과제이다(20152010201840).

References

1. H. J. Ryu, S. S. Park, J. H. Moon, W. K. Choi, and Y. W. Rhee, "Effects of Temperature, Pressure, and Gas Residence Time on Methane Combustion Characteristics of Oxygen Carrier Particle in a Pressurized Fluidized Bed Reactor", *Trans. of the Korean Hydrogen and New Energy Society*, Vol. 23, No. 2, 2012, pp. 173-183.
2. H. J. Ryu, S. S. Park, D. H. Lee, W. K. Choi, and Y. W. Rhee, "Method for Improvement of Reduction Reactivity at High Temperature in a Chemical-looping Combustor", *Korean Chem. Eng. Res.*, Vol. 50, No. 5, 2012, pp. 843-849.
3. Y. Liu, Q. Guo, Y. Cheng, and H. J. Ryu, "Reaction Mechanism of Coal Chemical Looping Process for syngas Production with CaSO₄ Oxygen Carrier in the CO₂ Atmosphere", *Industrial and Engineering Chemistry Research*, Vol. 51, 2012, pp. 10364-10373.
4. H. J. Ryu, C. W. Lee, D. H. Lee, D. H. Bae, S. Y. Lee, and Y. S. Park, "Direct Combustion Characteristics of Coal by Oxygen Carrier", *Trans. of the Korean Hydrogen and New Energy Society*, Vol. 25, No. 1, 2014, pp. 87-96.
5. Y. Liu, W. Jia, Q. Guo, and H. J. Ryu, "Effect of Gasifying Medium on the Coal Chemical Looping Gasification with CaSO₄ as Oxygen Carrier", *Chinese Journal of Chemical Engineering*, Vol. 22, 2014, pp. 1208-1214.
6. Q. Guo, X. Hu, Y. Liu, W. Jia, M. Yang, W. Man, H. Tian, and H. J. Ryu, "Coal Chemical Looping Gasification of Ca based Oxygen Carriers Decorated by CaO", *Powder Technology*, Vol. 275, 2015, pp. 60-68.
7. J. Adanez, A. Abad, F. Garcia-Labiano, P. Gayan, and L. F. de Diego, "Progress in Chemical Looping Combustion and Reforming Technology", *Progress in Energy and Combustion Science*, Vol. 38, 2012, pp. 215-282.
8. J. Y. Yoon, H. Kim, J. Kim, D. Lee, J. I. Baek, and H. J. Ryu, "Solid Circulation Characteristics of Oxygen Carrier for Chemical Looping Combustion System at Ambient Temperature and Pressure", *Trans. of the Korean Hydrogen and New Energy Society*, Vol. 28, No. 4, 2017, pp. 384-391.
9. J. Kim, D. H. Bae, J. I. Baek, Y. S. Park, and H. J. Ryu, "Effect of Pressure on Minimum Fluidization Velocity and Transition Velocity to Fast Fluidization of Oxygen Carrier for Chemical Looping Combustor", *Trans. of the Korean Hydrogen and New Energy Society*, Vol. 28, No. 1, 2017, pp. 85-91.
10. H. J. Ryu, D. H. Lee, M. S. Jang, J. Kim, and J. I. Baek, "Conceptual Design and Feasibility Study on 0.5 MWth Pressurized Chemical Looping Combustor", *Trans. of the Korean Hydrogen and New Energy Society*, Vol. 27, No. 2, 2016, pp. 201-210.
11. H. Kim, J. Park, J. I. Baek, and H. J. Ryu, "Selection of Oxygen Carrier Candidates for Chemical Looping Combustion by Measurement of Oxygen Transfer Capacity and Attrition Loss", *Trans. of the Korean Hydrogen and New Energy Society*, Vol. 27, No. 4, 2016, pp. 404-411.
12. H. Kim, J. H. Moon, G. T. Jin, J. I. Baek, and H. J. Ryu, "Effect of H₂S on Reactivity of Oxygen Carrier Particles for Chemical Looping Combustor", *Trans. of the Korean Hydrogen and New Energy Society*, Vol. 27, No. 4, 2016, pp. 412-420.
13. H. J. Ryu, Y. C. Park, S. Y. Lee, S. H. Jo, D. Shun, and J. I. Baek, "CH₄ Combustion Characteristics of Oxygen Carriers in a Bubbling Fluidized Bed", *Trans. of the Korean Hydrogen and New Energy Society*, Vol. 27, No. 5, 2016, pp. 581-588.
14. J. Y. Yoon, D. H. Bae, J. I. Baek, and H. J. Ryu, "Reduction Characteristics of Oxygen Carriers in a Pressurized Bubbling Fluidized Bed", *Trans. of the Korean Hydrogen and New Energy Society*, Vol. 27, No. 5, 2016, pp. 589-596.
15. H. Kim, D. Lee, D. H. Bae, D. Shun, J. I. Baek, and H. J. Ryu, "Comparison of Reduction Reactivity of New Oxygen Carriers for Chemical Looping Combustion System in a Bubbling Fluidized Bed", *Trans. of the Korean Hydrogen and New Energy Society*, Vol. 28, No. 5, 2017, pp. 554-560.
16. J. Kim, H. Kim, J. Y. Yoon, D. Lee, J. I. Baek, and H. J. Ryu, "Performance Evaluation of New Oxygen Carriers for

- Chemical Looping Combustion”, *Journal of Energy and Climate Change*, Vol. 12, No. 2, 2017, pp. 107-115.
17. H. J. Ryu, K. S. Kim, Y. S. Park, and M. H. Park, “Natural Gas Combustion Characteristics of Mass Produced Oxygen Carrier Particles for Chemical-looping Combustor in a Batch Type Fluidized Bed Reactor”, *Trans. of the Korean Society of Hydrogen Energy*, Vol. 20, No. 2, 2009, pp. 151-160.