

# 0.5 MWth 급 케미컬루핑 연소시스템에서 대량생산 산소전달입자의 환원반응 특성에 미치는 온도, 압력, 유속 및 용량의 영향

류호정<sup>1†</sup> · 이도연<sup>1</sup> · 남형석<sup>1</sup> · 황병욱<sup>1</sup> · 김하나<sup>1</sup> · 원유섭<sup>1</sup> · 백점인<sup>2</sup>

<sup>1</sup>한국에너지기술연구원, <sup>2</sup>한국전력공사 전력연구원

## Effects of Temperature, Pressure, Gas Velocity, and Capacity on Reduction Characteristics of Mass Produced Particle in a 0.5 MWth Chemical Looping Combustion System

HO-JUNG RYU<sup>1†</sup>, DOYEON LEE<sup>1</sup>, HYUNGSEOK NAM<sup>1</sup>, BYUNG WOOK HWANG<sup>1</sup>, HANA KIM<sup>1</sup>, YOOSOB WON<sup>1</sup>, JEOM-IN BAEK<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Korea Institute of Energy Research, 152 Gajeong-ro, Yuseong-gu, Daejeon 34129, Korea

<sup>2</sup>Korea Electric Power Corporation (KEPCO) Research Institute, 105 Munjo-ro, Yuseong-gu, Deajeon 34056, Korea

†Corresponding author :  
hjryu@kier.re.kr

Received 1 February, 2021  
Revised 23 February, 2021  
Accepted 28 February, 2021

**Abstract >>** Batch type reduction-oxidation tests were performed to check effects of temperature, pressure, gas velocity, and capacity on reduction characteristics of mass produced particle in a 0.5 MWth chemical looping combustion system. The fuel conversion and the CO<sub>2</sub> selectivity increased as the temperature increased and as the gas velocity decreased. However the CO<sub>2</sub> selectivity showed the maximum and decreased as the capacity increased because the CO emission increased. The results show that high temperature, low gas velocity and low inert gas concentration are preferable to ensure high reactivity of oxygen carrier in the fuel reactor.

**Key words :** Chemical looping combustion(케미컬루핑 연소), Oxygen carrier(산소 전달입자), Batch test(회분식 실험), Fuel conversion(연료전환율), CO<sub>2</sub> selectivity (CO<sub>2</sub> 선택도)

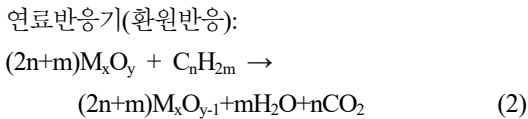
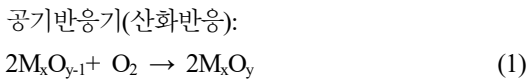
### 1. 서론

온실가스인 이산화탄소를 포집하기 위한 여러 기술 중 연소 중 포집기술(순산소 연소기술, 케미컬루핑 연소기술)은 연소기(combustor 또는 boiler) 자체에서 이산화탄소가 고농도로 분리되어 배출되므로

추가적인 분리설비 없이 이산화탄소를 원천적으로 분리할 수 있으며 주로 기존 발전소의 retrofit 또는 신규 발전소 건설에 적용될 수 있다. 한편 연소 중 포집기술의 하나인 케미컬루핑 연소시스템은 공기에서 산소를 미리 분리하여 연소기에 공급하는 순산소 연소기술과는 달리 금속산화물을 포함하는 산소전달입

자를 이용하여 연료에 산소를 공급하는 기술이다. 케미컬루핑 연소시스템의 공기반응기에서는 산소전달입자가 공기에 포함된 산소를 흡수한 후 연료반응기로 이동하고, 연료반응기에서는 연료와 접촉하면서 연료와 산소가 반응하게 된다. 이와 같이 두 개의 반응기를 이용하여 산소를 흡수하고 내어주는 분리연소 반응이 일어나게 되므로 공기 중의 질소와 연소에 의해 발생하는 이산화탄소의 혼합을 방지할 수 있고 산소를 분리하기 위한 별도의 설비가 필요 없는 차세대 연소기술이다<sup>1-3)</sup>.

Fig. 1 에는 케미컬루핑 연소시스템의 개념도를 나타내었다. 전체 시스템은 두 반응기, 즉 공기반응기와 연료반응기로 구성되어 있다. 공기반응기에서는 산소전달입자에 포함된 금속성분(M)이 공기 중의 산소에 의해 산화되어 금속산화물(MO)을 형성하고 (식 [1]), 산소를 포함한 산소전달입자는 연료반응기로 이동하게 되며, 연료반응기에서는 산소전달입자에 포함된 금속산화물(MO)과 연료가 반응하면서 산소가 소모되어 금속산화물이 금속성분으로 다시 환원되면서 CO<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>O만을 발생시킨다(식 [2]). 연료반응기에서 산소를 소모한 산소전달입자는 공기반응기로 재순환되어 다시 공기 중의 산소와 반응하여 금속산화물 형태로 산화되고 위의 과정을 반복한다<sup>4)</sup>.



케미컬루핑 연소시스템의 공기반응기에서 일어나는 산소전달입자의 산화반응은 기체-고체 반응이며 화염이 없는 조건에서 일어나므로 thermal-NO<sub>x</sub>의 발생을 최소화할 수 있다. 또한 기존의 순산소 연소기술과는 달리 공기를 주입하여 산소를 전달하므로 별도의 공기분리 설비가 필요하지 않다. 특히 연료반응기 배출기체에 포함된 성분은 이산화탄소와 수증기

가 대부분이므로 배출기체의 온도를 낮추어 수증기를 액체인 물로 응축하면 기체상태에는 이산화탄소만 남게 되므로 별도의 분리설비 없이 이산화탄소를 고농도로 원천분리할 수 있는 장점이 있다<sup>5,6)</sup>.

이러한 장점을 가진 케미컬루핑 연소시스템을 천연가스복합발전(natural gas combined cycle, NGCC) 시스템에 적용하기 위한 방법의 하나로 고압 케미컬루핑 연소시스템이 고려되고 있다. 상압 케미컬루핑 연소시스템의 경우 배출되는 기체의 압력이 낮으므로 스팀터빈만을 구동할 수 있으며 이 때 예상되는 발전효율은 40-42%인 반면 스팀터빈과 가스터빈을 함께 구동할 수 있는 고압 케미컬루핑 연소시스템의 경우 52-53%의 발전효율을 얻을 수 있는 것으로 보고된 바 있다<sup>7)</sup>. 하지만 실제 공정개발 측면에서는 국외 선진기관의 경우에도 자열반응(autothermal)을 실증하는 수준에 머물고 있으며, 스팀을 생산하거나 가스터빈에 의해 전기를 생산하는 단계에는 도달하지 못하고 있다<sup>7)</sup>.

본 연구팀에서는 발전효율이 높은 NGCC 시스템으로 적용하기 위한 고압 케미컬루핑 시스템의 개발을 위해 0.5 MWh 급 시스템을 설계 및 건설하였으며<sup>1)</sup>, 여러 가지 산소전달입자들의 상압, 고압 반응특성을 측정 및 해석하고 반응성에 미치는 변수들의 영향을 측정 및 비교하여 최종적으로 N016-R4 입자를 최적 산소전달입자로 선정하였다<sup>8)</sup>. 또한, 0.5 MWh

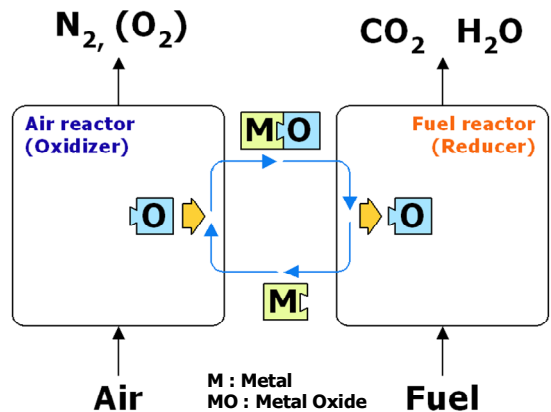


Fig. 1. Conceptual diagram of chemical looping combustion system

급 가압 케미컬루핑 연소시스템에 적용하기 위해 대량으로 생산된 N016-R4 입자를 이용하여 고속유동층-기포유동층으로 구성된 2탑 가압 유동층 시스템에서 수력학특성 및 고체순환특성을 측정 및 해석하였으며<sup>9)</sup>, 0.5 MWth 급 케미컬루핑 연소시스템에서 공기반응기 내부의 고체 체유량(solid holdup)에 미치는 조업변수의 영향을 측정 및 해석하였고<sup>10)</sup>, 상압, 회분식 반응조건에서 환원반응특성에 미치는 용량(연료 유량)과 산화-환원 반복횟수의 영향을 확인한 바 있다<sup>1)</sup>.

본 연구에서는 0.5 MWth 급 케미컬루핑 연소시스템의 운전조건 선정을 위해 N016-R4 입자를 산소전달입자로 사용하여 환원반응특성에 미치는 온도, 압력, 유속 및 용량의 영향을 측정 및 비교하였다.

## 2. 실험

### 2.1 산소전달입자

0.5 MWth 급 케미컬루핑 연소시스템에서 산소전달입자로는 기존 연구에 의해 최적 산소전달입자로 선정된 N016-R4 입자를 사용하였다. N016-R4 입자는 한국전력공사 전력연구원에서 분무건조법에 의해 제조되었다<sup>1)</sup>. N016-R4 입자는 NiO가 주성분이며 무게기준 70%가 포함되어 있다.

Fig. 2에는 N016-R4 입자에 대해 산화상태에서의 광학현미경 사진을 나타내었으며 그림에 나타난 바와 같이 구형을 나타내었다. Table 1에는 N016-R4 입자의 입자크기 범위, 평균 입자크기, 벌크밀도 및



Fig. 2. Microscopic image of N016-R4 particle

Geldart 입자분류를 나타내었다.

### 2.2 0.5 MWth 가압 케미컬루핑 연소시스템

Fig. 3에는 본 연구에 사용된 0.5 MWth 급 가압 케미컬루핑 연소시스템의 배치도 및 각 부분의 명칭을 나타내었다. 전체 시스템은 고속유동층(transport bed) 조건에서 조업되는 공기반응기(air reactor), 공기반응기에서 비산된 입자를 포집하는 공기반응기 사이클론(air reactor cyclone), 공기반응기 사이클론에서 포집된 입자를 연료반응기로 재순환시키는 상

Table 1. Summary of particle characteristics

Properties	Particle	N016-R4
Main component		NiO (70 wt.%)
Particle size range (μm)		34-248
Average particle size (μm)		105.0
Bulk density (kg/m <sup>3</sup> )		2,017
Geldart's classification		Group B
Supplier		KEPCO RI

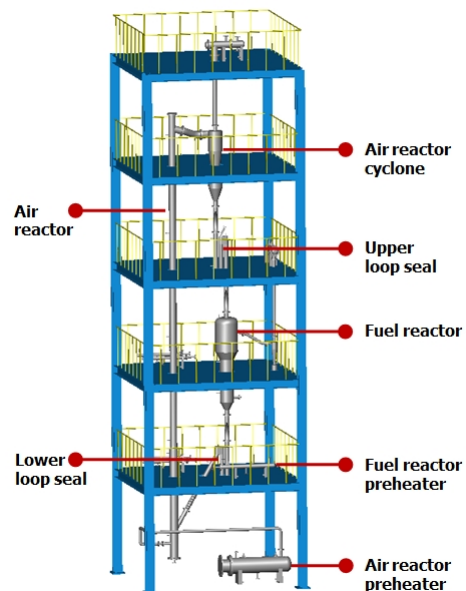


Fig. 3. Three dimensional view of 0.5 MWth chemical looping combustion system

부 루프실(upper loop seal), 기포유동층(bubbling bed) 조건에서 조업되는 연료반응기(fuel reactor), 산소전달입자를 연료반응기로부터 공기반응기로 재순환시키는 하부 루프실(lower loop seal), 전체 시스템의 구동(start-up) 과정에서 반응기를 예열하기 위한 공기반응기 예열기 및 연료반응기 예열기 등으로 구성되어 있다. 전체 시스템은 고온, 고압에서 조업할 수 있도록 하기 위해 내부는 내화물로 제작하였으며 외부는 SUS304로 제작하였고 각 반응기 외부를 보온하였다. 공기반응기의 하부 직경은 0.3 m, 상부직경은 0.25 m 이며 공기반응기 바닥으로부터 높이 2.0 m부터 2.5 m까지의 구간에서 직경이 변화되도록 하였고 총 높이는 18 m이다. 연료반응기의 하부직경은 0.5 m, 상부직경은 0.85 m이며, 연료반응기 바닥으로부터 높이 1.5 m부터 1.81 m까지의 구간에서 직경이 변화되도록 하였으며 총 높이는 3 m이다. 상부 루프실과 하부 루프실은 입자가 유입되고 배출되는 방향만 다르게 하여 동일한 형태와 크기로 제작되었으며 직경 0.15 m의 관이 U자로 설치된 형태로 총 높이는 2.4 m로 제작되었다.

반응기체로 환원반응 동안에는 질소와 천연가스(도시가스)의 혼합기체를 사용하였고 산화반응 동안에는 공기를 사용하였으며 환원반응과 산화반응 사이에 기체 교환(purge)을 위해 질소를 사용하였다. Table 2에는 본 실험에 사용한 천연가스의 대표적인

Table 2. Typical composition of natural gas

Component		Content (vol. %)
CH <sub>4</sub>	Methane	91.31
C <sub>2</sub> H <sub>6</sub>	Ethane	5.48
C <sub>3</sub> H <sub>8</sub>	Propane	2.03
i-C <sub>4</sub> H <sub>10</sub>	i-butane	0.46
n-C <sub>4</sub> H <sub>10</sub>	n-butane	0.51
i-C <sub>5</sub> H <sub>12</sub>	i-pentane	0.02
n-C <sub>5</sub> H <sub>12</sub>	n-pentane	0.01
N <sub>2</sub>	Nitrogen	0.18
CO <sub>2</sub>	Carbon dioxide	0.00
Total		100.00

조성을 나타내었다.

### 2.3 실험방법 및 반응성 해석 방법

0.5 MWth 급 가압 케미컬루핑 연소시스템에서 N016-R4 입자의 환원반응성을 확인하기 위해 공기반응기와 연료반응기 사이의 고체순환이 없는 회분식 반응조건에서 실험을 수행하였다. 이를 위해 상부 루프실과 연료반응기 사이, 연료반응기와 하부 루프실 사이의 배관에 blind flange를 설치하여 공기반응기와 연료반응기를 분리하였으며 가압 조건에서 연료반응기의 압력은 후단에 설치된 압력제어밸브(pressure control valve)를 이용하여 제어하였다.

연료반응기에 약 453 kg (고체층 높이 0.80 m)의 산소전달입자를 장입하였으며 공기를 주입하면서 온도를 상승시켜 반응기의 온도가 900°C 이상이 되면, 주입되는 기체를 공기에서 질소로 교체하여 반응기 내부의 기체를 치환하였다. 기체가 질소로 치환되었는지의 여부는 기체분석기에서 측정된 산소농도가 0이 되었는지를 확인하여 결정하였다. 기체의 치환이 완료되면 질소와 천연가스의 혼합기체를 주입하여 산소전달입자의 환원반응을 수행하였다. 산소전달입자의 환원반응에 의해 연료반응기 내부의 온도가 감소하여 740°C 이하가 되면 기체를 질소로 교체하였으며, 기체가 치환된 후 다시 공기를 주입하여 산소전달입자의 산화반응을 수행하였다. 이때 산소전달입자의 산화반응은 발열반응이므로 연료반응기 내부의 온도가 다시 증가하게 되며 원하는 초기 반응온도에 도달하면 공기량과 질소량을 변화시켜 급격한 온도 상승이 일어나지 않도록 제어하였다.

0.5 MWth 급 케미컬루핑 연소시스템의 연료반응기에서 환원반응특성을 해석하기 위한 특성값으로 연료전환율(fuel conversion)과 CO<sub>2</sub> 선택도(CO<sub>2</sub> selectivity)를 고려하였다. 연료전환율은 주입된 연료의 몰수 중 반응한 연료의 몰수를 의미하며 식 (3)과 같이 정의된다. 주입된 연료의 몰수는 각 실험조건에서 주입되는 기체의 유량과 농도를 이용하여 결정하였고, 반응한 연료의 몰수는 배출기체 중 CO<sub>2</sub>와 CO

의 농도를 이용하여 계산하였다. 연료전화율을 통해 연료반응기에 주입된 연료기체가 산소전달입자와 어느 정도 반응하였는지를 확인할 수 있다<sup>1)</sup>.

CO<sub>2</sub> 선택도는 전체 주입된 연료기체 중에서 CO<sub>2</sub>의 형태로 배출되는 기체의 백분율을 의미하며 식 (4)와 같이 정의된다. CO<sub>2</sub> 선택도가 높을수록 고농도로 CO<sub>2</sub>를 원천분리 할 수 있음을 의미한다<sup>1)</sup>. 반응기에서 배출되는 기체의 농도(CH<sub>4</sub>, CO<sub>2</sub>, CO, H<sub>2</sub>, O<sub>2</sub>)는 온라인 기체분석기(Advanced Optima, Hartmann & Braun Co., Zurich, Swiss)를 사용하여 실시간으로 측정하였다.

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

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

### 3. 결과 및 고찰

Fig. 4에는 1 bar 조건에서, 총 유량 중 천연가스의 유량이 140 NL/min (천연가스 발열량 기준 0.1 MWth) 이고, 질소 유량이 50 NL/min인 경우, 유량조건이 안정된 이후부터 시간 변화에 따른 질소와 천연가스의 유량, 연료반응기 내부 온도, CO, CH<sub>4</sub>, CO<sub>2</sub>의 상대농도(CO, CH<sub>4</sub>, CO<sub>2</sub> 전체 농도 중 각 성분의 농도), 연료전화율과 CO<sub>2</sub> 선택도의 변화를 나타내었다. Fig. 4(a)와 같이 전체 반응시간 동안 질소와 천연가스 유량은 일정하게 유지되었다. 연료반응기 내부 온도는 Fig. 4(b)와 같이 주입된 연료와 산소전달입자의 흡열반응에 의해 감소하는 경향을 나타내었다. 이 경우 반응시작온도는 882°C, 종료시점의 온도는 740°C이며 반응시간 동안의 평균온도는 811°C였다. 한편 Fig. 4(c)에 나타난 바와 같이 천연가스가 주입된 후 산소전달입자와 천연가스의 반응에 의해 CO<sub>2</sub> 상대농도는 급격히 증가한 후 일정한 값을 나타내었으며, CH<sub>4</sub> 상대농도의 경우 감소한 후 일정한 값을 나타내었다. 또한 CO 상대농도의 경우 매우 작은 값을 나타내었다. Fig. 4(d)에 나타난 바와 같이 환원반

응 실험 동안 연료전화율과 CO<sub>2</sub> 선택도 모두 증가한 후 일정한 값을 나타내었다. 향후 각 조업조건에서 측정된 연료전화율과 CO<sub>2</sub> 선택도의 비교에서는 천연가스 주입 후 5분 이후의 분석값을 사용하여 계산한 값들을 사용하였다.

Fig. 5에는 5 bar 조건에서 환원반응을 마친 후 연료반응기에 공기 800 NL/min을 주입하였을 때 유량 조건이 안정된 이후부터 시간 변화에 따른 공기 유량, 반응기 내부 온도, 산소농도의 변화를 나타내었

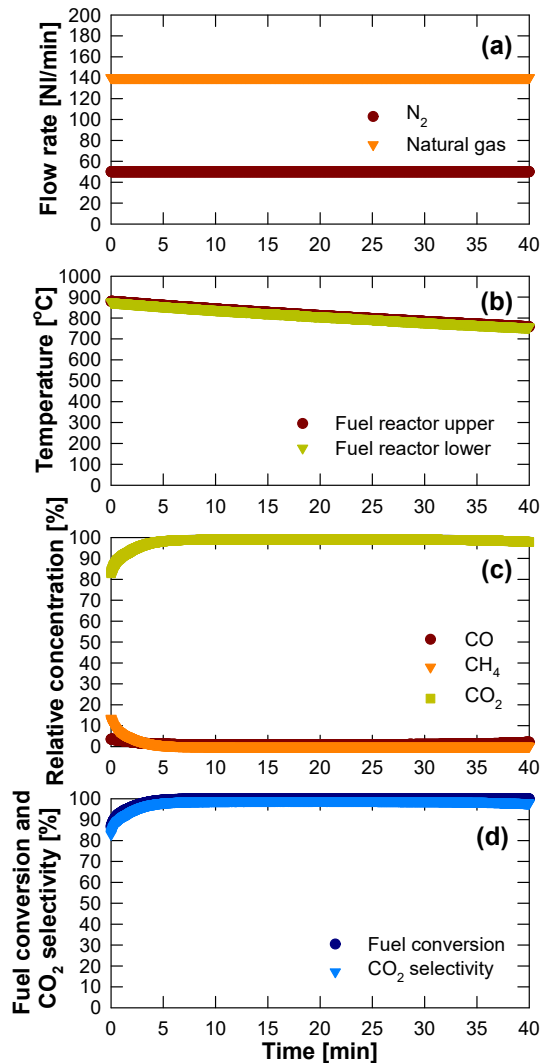


Fig. 4. Trends of (a) flow rate, (b) temperature, (c) relative concentration, (d) fuel conversion and CO<sub>2</sub> selectivity during reduction reaction

다. Fig. 5(a)와 같이 전체 반응시간 동안 공기 유량은 일정하게 유지되었다. 반응기 내부 온도는 Fig. 5(b)와 같이 주입된 공기중의 산소와 산소전달입자의 발열반응에 의해 증가한 후 산화반응이 종료되어 감에 따라 반응기의 열손실에 의해 다소 감소하는 경향을 나타내었다. 그림에서 산화반응 시작온도는 740°C였으며 최대 상승온도는 897°C였다. 한편 Fig. 5(c)에 나타난 바와 같이 공기가 주입되면 공기 중에 포함된 산소는 모두 산소전달입자와 반응하여 소모되었으며 산화반응이 종료되어가면서 산소농도가 다시 증가하는 경향을 나타내었다.

Fig. 6에는 1 bar, 0.1 MWth (천연가스유량 140 NL/min) 조건에서 온도와 질소유량 변화에 따라 측정된 연료 전환율 및 CO<sub>2</sub> 선택도의 변화를 나타내었다. 그림

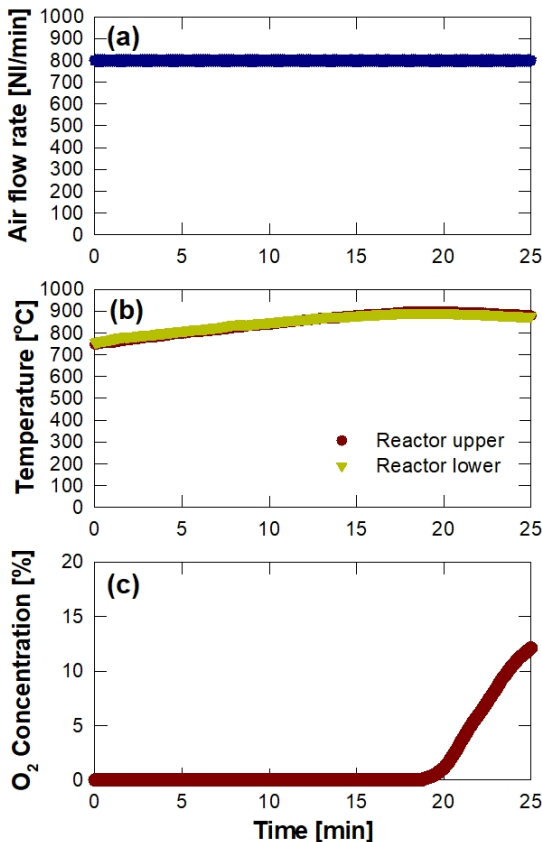


Fig. 5. Trends of (a) air flow rate, (b) temperature, (c) O<sub>2</sub> concentration during oxidation reaction

에 나타난 바와 같이 연료전환율과 CO<sub>2</sub> 선택도 모두 온도가 증가함에 따라 증가하는 경향을 나타내었다. 한편 천연가스와 함께 주입되는 질소유량이 증가함에 따라 전체 주입기체의 유량이 증가하므로 기체유속이 증가하여 기체의 층내 체류시간이 감소하고 천연가스의 농도가 감소하므로 연료전환율과 CO<sub>2</sub> 선택도가 감소하는 경향을 나타내었다.

Fig. 7에는 1 bar, 0.1 MWth (천연가스유량 140 NL/min) 조건에서 총 기체유량(천연가스 유량은 일정하게 유지하고 질소의 유량만 변화)과 온도 변화에 따라 측정된 결과를 나타내었다. Fig. 6의 결과와 마찬가지로 천연가스 유량이 동일한 조건에서 총 기체유량이 증가함에 따라 기체유속이 증가하여 기체의 층내 체류시간이 감소하고, 질소 유량 증가에 따른 천연가스의 농도 감소 영향도 함께 작용하여 연료전환율과 CO<sub>2</sub> 선택도가 감소하는 경향을 나타내었다. 또한,

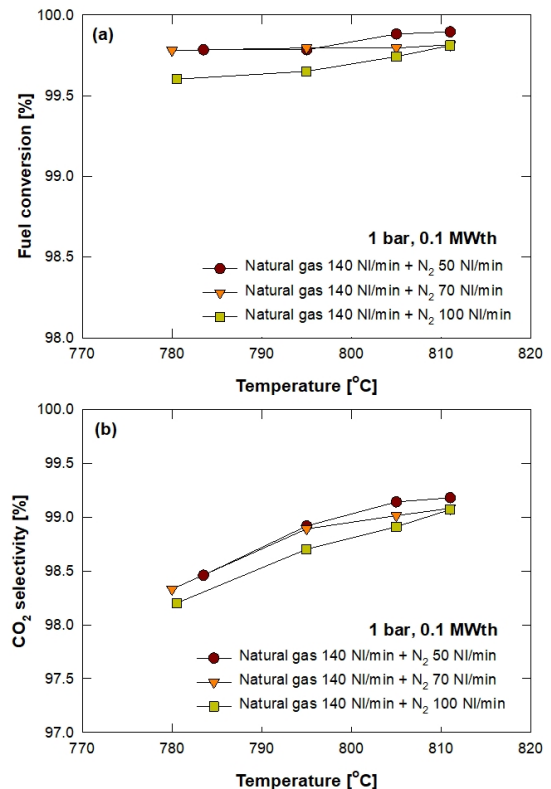


Fig. 6. Effects of temperature and total flow rate on (a) fuel conversion, (b) CO<sub>2</sub> selectivity

Fig. 6과 마찬가지로 반응온도가 증가함에 따라 연료 전화율과 CO<sub>2</sub> 선택도가 증가하는 경향을 나타내었으며, CO<sub>2</sub> 선택도의 경우가 온도증가에 의한 반응성 개선효과가 더욱 뚜렷하게 나타났다.

Fig. 8에는 1 bar 조건에서 용량(천연가스 유량) 증가에 따른 (a) 연료전화율과 (b) CO<sub>2</sub> 선택도의 변화를 나타내었다. 그림에 나타난 바와 같이 주어진 온도와 기체유속 조건에서 용량이 증가(총 기체유량이 일정한 조건에서 천연가스의 유량은 증가하고 질소의 유량은 감소)함에 따라 연료전화율은 지속적으로 증가하는 경향을 나타내었으나 배출되는 기체 중 불완전연소에 의해 배출되는 CO 농도가 증가하는 경향을 나타내었다.

한편, 용량이 증가함에 따라 CO<sub>2</sub> 선택도는 증가한 후 최대점을 보인 후 감소하는 경향을 나타내었다. 이는 총 기체유량이 일정한 조건에서 천연가스 유량

이 증가함에 따라 초기에는 천연가스 농도 증가에 따른 반응성 개선이 있으나 천연가스 유량이 계속적으로 증가하면 입자로부터 공급되는 산소량에 한계가 있어 반응성이 저하되기 때문으로 해석될 수 있었다. 결과적으로 CO<sub>2</sub> 선택도를 높게 유지하기 위해서는 지속적인 산소공급, 즉 산화된 산소전달입자의 교체순환이 필요한 것으로 사료되었다. 한편, Fig. 8에서도 유사한 유속조건에서 온도가 높을수록, 유사한 온도에서 기체유속이 낮을수록 연료전화율과 CO<sub>2</sub> 선택도가 높게 나타났다.

Fig. 9에는 0.1 MWth (천연가스 유량 140 NL/min) 조건에서 압력과 온도변화에 따른 연료전화율과 CO<sub>2</sub> 선택도의 변화를 나타내었다. 그림에 나타난 바와 같이 압력이 증가함에 따라 연료전화율과 CO<sub>2</sub> 선택도가 감소하는 경향을 나타내었으며 이는 용량(천연가스 유량)이 동일한 조건에서 압력이 증가함에 따라

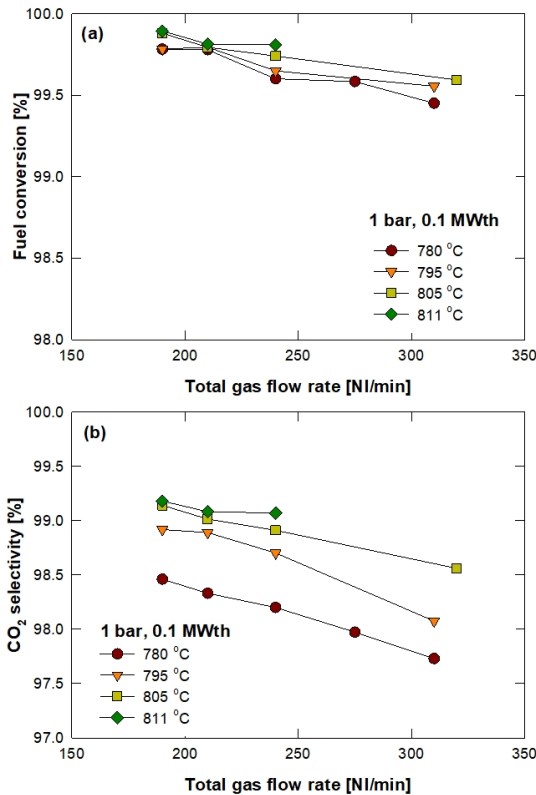


Fig. 7. Effects of total flow rate and temperature on (a) fuel conversion, (b) CO<sub>2</sub> selectivity

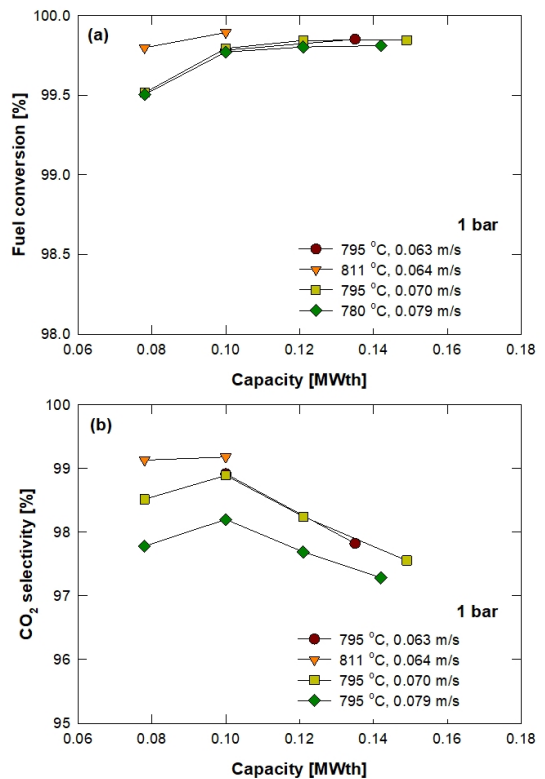


Fig. 8. Effects of capacity, temperature, and gas velocity on (a) fuel conversion, (b) CO<sub>2</sub> selectivity

같은 유속조건을 맞추기 위해 주입되는 질소의 유량이 증가하고 이로 인해 천연가스의 농도가 감소하므로 반응성이 저하되기 때문으로 사료되었다. 한편 Fig. 9에서도 유사한 기체유속 조건에서 온도가 높을수록 CO<sub>2</sub> 선택도가 높게 나타났다.

Fig. 10에는 5 bar 조건에서 용량(천연가스 유량) 변화에 따라 측정된 연료전환율과 CO<sub>2</sub> 선택도의 변화 및 각 조건에서의 CH<sub>4</sub>와 CO 상대농도의 변화를 함께 나타내었다. 그림에서 x축에 나타난 용량(0.078, 0.100, 0.142, 0.178, 0.213, 0.249 MWh)은 천연가스 유량 110, 140, 200, 250, 300, 350 NL/min에 해당한다. Fig. 8에 나타난 1 bar 조건과 마찬가지로 주어진 온도와 기체유속 조건에서 용량이 증가함에 따라 연료전환율은 지속적으로 증가하는 경향을 나타내는 반면 CO<sub>2</sub> 선택도는 증가한 후 최대점을 보인 후 감소하는 경향을 나타내었다. 이와 같은 경향은 CH<sub>4</sub> 및 CO 농도 경향과 함께 고려하여 해석할 수 있다. Fig. 10(c)와 Fig. 10(d)에 나타난 바와 같이 용량이 증가함에 따라 미반응 CH<sub>4</sub>의 농도는 계속적으로 감소하지만 불완전연소에 의한 CO 농도는 감소한 후 급격히 증가하는 것으로 나타났다. 따라서 용량이 증가함에 따라 연료전환율(총 배출 기체 중 CO+CO<sub>2</sub>의 농도)은 지속적으로 증가하는 것으로 나타나지만 CO<sub>2</sub> 선택도(배출기체 중 CO<sub>2</sub>의 농도)는 증가한 후 감소하는 것으로 해석할 수 있다. 결과적으로 CO<sub>2</sub> 선택도를 높게 유지하기 위해서는 지속적인 산소공급, 즉 산화된 산소전달입자의 고체순환이 필요한 것으로 사료되었다. 한편, Fig. 10에서도 유사한 유속조건에서 온도가 높을수록 연료전환율과 CO<sub>2</sub> 선택도가 높게 나타났다.

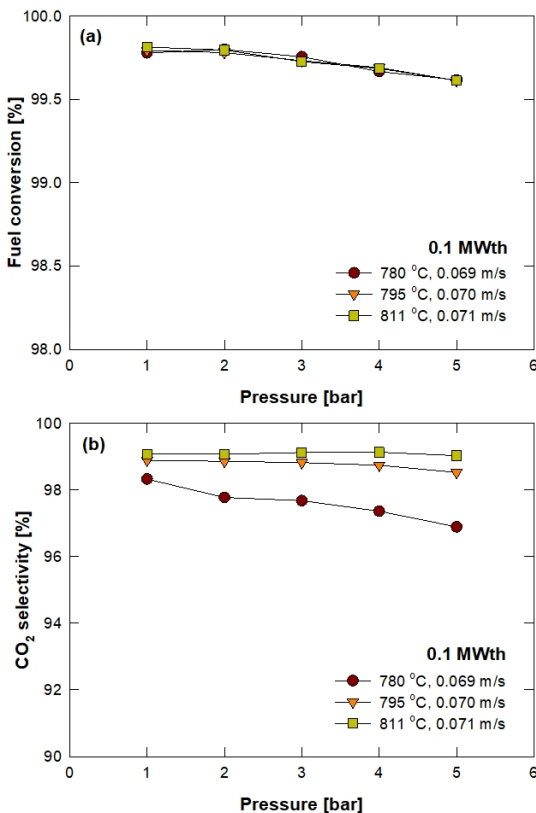


Fig. 9. Effects of pressure and gas velocity on (a) fuel conversion, (b) CO<sub>2</sub> selectivity

Figure 10 consists of four line graphs, (a) through (d), showing the effects of capacity and temperature on fuel conversion, CO<sub>2</sub> selectivity, and relative concentrations of CH<sub>4</sub> and CO at a constant pressure of 5 bar. All graphs compare three different conditions based on temperature and gas velocity.

Capacity [MWh]	780 °C, 0.062 m/s	795 °C, 0.063 m/s	811 °C, 0.064 m/s
0.078	99.2	99.5	99.6
0.100	99.6	99.7	99.8
0.142	99.7	99.8	99.9
0.178	99.8	99.9	99.9
0.213	99.8	99.9	99.9
0.249	99.9	99.9	99.9

Capacity [MWh]	780 °C, 0.062 m/s	795 °C, 0.063 m/s	811 °C, 0.064 m/s
0.078	94.5	96.5	97.5
0.100	96.0	97.5	98.5
0.142	95.0	97.5	98.5
0.178	94.0	97.5	98.5
0.213	90.0	96.5	98.0
0.249	87.0	94.5	97.5

Capacity [MWh]	780 °C, 0.062 m/s	795 °C, 0.063 m/s	811 °C, 0.064 m/s
0.078	0.8	0.6	1.0
0.100	0.4	0.4	0.4
0.142	0.35	0.35	0.35
0.178	0.3	0.3	0.3
0.213	0.25	0.25	0.25
0.249	0.25	0.25	0.25

Capacity [MWh]	780 °C, 0.062 m/s	795 °C, 0.063 m/s	811 °C, 0.064 m/s
0.078	4.5	2.5	2.5
0.100	3.5	1.5	1.5
0.142	4.5	1.5	1.5
0.178	6.5	1.5	1.5
0.213	9.5	2.5	1.5
0.249	13.5	4.5	2.5

Fig. 10. Effects of capacity and temperature on (a) fuel conversion, (b) CO<sub>2</sub> selectivity



## 4. 결론

0.5 MWth 급 케미컬루핑 연소시스템의 운전조건을 선정하기 위해 대량생산된 최적 산소전달입자를 사용하여 환원반응특성에 미치는 온도, 압력, 유속 및 용량의 영향을 측정 및 비교하였다. 본 연구에서 얻어진 결론을 요약하면 다음과 같다.

1) 온도가 증가함에 따라 연료전환율과 CO<sub>2</sub> 선택도 모두 증가하는 경향을 나타내는 반면 기체유속이 증가함에 따라 연료전환율과 CO<sub>2</sub> 선택도가 감소하는 경향을 나타내었다.

2) 용량(천연가스 유량)이 증가함에 따라 연료전환율은 지속적으로 증가하는 경향을 나타내었으나 CO<sub>2</sub> 선택도는 증가하여 최대점을 보인 후 감소하는 경향을 나타내었으며, 이는 배출되는 CO 농도의 경향과 반비례하게 나타났다.

3) 압력이 증가함에 따라 연료전환율과 CO<sub>2</sub> 선택도가 감소하는 경향을 나타내었으며 이는 용량이 동일한 조건에서 압력이 증가함에 따라 주입되는 질소의 유량이 증가하고 이로 인해 천연가스의 농도가 감소하므로 반응성이 저하되기 때문으로 사료되었다.

4) 결과적으로 0.5 MWth 급 케미컬루핑 연소시스템의 연속운전 조건에서 반응성을 높게 유지하기 위해서는 연료반응기의 온도를 높게 유지하고, 연료반응기의 기체유속은 낮게 유지하며, 상부 루프실과 하부 루프실에 공급되는 질소 또는 다른 불활성 기체의 유량을 가능한 낮게 유지하는 것이 유리한 것으로 사료되었다.

## 후 기

본 연구는 2020년도 정부(산업통상자원부)의 재원으로 한국에너지기술평가원의 지원을 받아 수행된 연구입니다(20208401010070, 3 MWth 매체순환연소 시스템생산 기술개발).

## References

1. H. J. Ryu, S. H. Jo, S. Y. Lee, D. Lee, H. Nam, B. W. Hwang, H. Kim, and J. I. Baek, "Solid circulation and reaction characteristics of mass produced particle in a 0.5 MWth chemical looping combustion system", *Trans Korean Hydrogen New Energy Soc*, Vol. 30, No. 2, 2019, pp. 170–177, doi: <https://doi.org/10.7316/KHNES.2019.30.2.170>.
2. N. Son, J. Y. Do, N. K. Park, U. S. Kim, J. I. Baek, D. Lee, H. J. Ryu, and M. Kang, "Oxygen transfer capacity of pseudo-brookite particles derived from ilmenite mineral (x wt.%CuO/y wt.%red Mud-z wt.%ilmenite)", *Journal of Nanoscience and Nanotechnology*, Vol. 19, No. 10, 2019, pp. 1–11, doi: <https://doi.org/10.1166/jnn.2019.17087>.
3. J. Kim, D. Lee, H. Nam, S. H. Jo, B. W. Hwang, J. I. Baek, and H. J. Ryu, "Reaction characteristics of new oxygen carrier for 0.5 MWth chemical looping combustion system at high temperature and high pressure conditions", *Trans Korean Hydrogen New Energy Soc*, Vol. 29, No. 5, 2018, pp. 473–482, doi: <https://doi.org/10.7316/KHNES.2018.29.5.473>.
4. H. J. Ryu, D. Lee, H. Nam, S. H. Jo and J. I. Baek, "Solid circulation characteristics of two oxygen carriers for chemical looping combustion system", *Trans Korean Hydrogen New Energy Soc*, Vol. 29, No. 4, 2018, pp. 393–400, doi: <https://doi.org/10.7316/KHNES.2018.29.4.393>.
5. Y. Liu, W. Jia, Q. Guo, and H. J. Ryu, "Effect of gasifying medium on the coal chemical looping gasification with CaSO<sub>4</sub> as oxygen carrier", *Chinese Journal of Chemical Engineering*, Vol. 22, No. 11–12, 2014, pp. 1208–1214, doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.cjche.2014.09.011>.
6. Q. Guo, X. Hu, Y. Liu, W. Jia, M. Yang, M. Wu, 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, doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.powtec.2015.01.061>.
7. J. Adanez, A. Abad, F. Garcia-Labiano, P. Gayan, and L. F. de Diego, "Progress in chemical-looping combustion and reforming technologies", *Progress in Energy and Combustion Science*, Vol. 38, No. 2, 2012, pp. 215–282, doi: <https://doi.org/10.1016/j.peccs.2011.09.001>.
8. 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 Korean Hydrogen New Energy Soc*, Vol. 28, No. 5, 2017, pp. 554–560, doi: <https://doi.org/10.7316/KHNES.2017.28.5.554>.
9. H. J. Ryu, J. Kim, B. W. Hwang, H. Nam, D. Lee, S. H. Jo, and J. I. Baek, "Hydrodynamics and solid circulation characteristics of oxygen carrier for 0.5 MWth chemical I

- ooing combustion system”, *Trans Korean Hydrogen New Energy Soc*, Vol. 29, No. 6, 2018, pp. 635–641, doi: <https://doi.org/10.7316/KHNES.2018.29.6.635>.
10. H. J. Ryu, D. Lee, H. Nam, S. H. Jo, S. Y. Lee, and J. I. Baek, “Effect of operating variables on solid holdup in an air reactor of 0.5 MWth chemical looping combustion system”, *Journal of Energy & Climate Change*, Vol. 13, No. 2, 2018, pp. 145–153, doi: <https://doi.org/10.7316/KHNES.2018.29.6.635>.