

매체순환식 가스연소기 산소공여입자의 LNG 연소특성

류호정* · 배달희* · 진경태*

LNG Combustion Characteristics of Oxygen Carrier Particles for Chemical-Looping Combustor

Ho-Jung Ryu* · Dal-Hee Bae* · Gyoung-Tae Jin*

ABSTRACT

LNG combustion characteristics of oxygen carrier particles were investigated in a batch type bubbling fluidized bed reactor. Three particles, NiO/bentonite, NiO/NiAl₂O₄, Co_xO_y/CoAl₂O₄, were used as oxygen carrier particles and LNG and air were used as reactants for reduction and oxidation, respectively. In the reducer, high gas conversion and high CO₂ selectivity were achieved for all three particles. In the oxidizer, NO_x was not detected. The results of exhaust gas analysis showed that inherent CO₂ separation and NO_x-free combustion are possible in the LNG fueled chemical-looping combustion system with NiO/bentonite, NiO/NiAl₂O₄ and Co_xO_y/CoAl₂O₄ particles.

Key Words : Chemical-Looping Combustor, CO₂ separation, NO_x, LNG

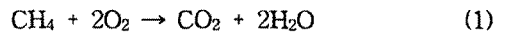
1. 서 론

새로운 천연가스연소-발전 기술인 매체순환식 가스연소(CLC, Chemical-Looping Combustion) 기술은 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 기체연료(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 환원반

응에 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.

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

* 한국에너지기술연구원 청정에너지연구센터

† 연락처, hjryu@kier.re.kr

환원반응기로 이동되며, 환원반응기(연료연소기)에서는 식(3)과 같이 금속산화물(MO)입자가 기체연료(CH_4 , H_2 , CO , $\text{C}_n\text{H}_{2n+2}$, 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].

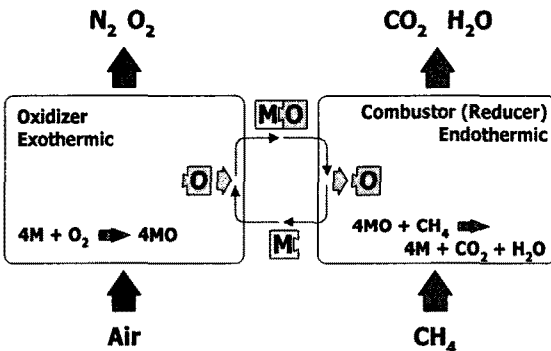


Fig. 1 Concept of chemical-looping combustion.

매체순환식 가스연소기 기술 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 스팀사이클(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-가스터

빈 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 고속유동층-기포유동층 조건에서 매체순환식 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 가스연소기 기술은 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 고려해야 하는 산소전달능력과 이에 따라 요구되는 반응속도, 고체순환속도 및 내마모성에 대한 고려는 이루어지지 않았다. 또한 개발된 산소공여입자의 경제성에 대한 분석도 미흡한 실정이다.

매체순환식 가스연소기에 대한 공정개발 연구동향을 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 수력학특성에 대한 실험을 수행한 바 있다. 미국 TDA Research Institute의 Copeland 박사 연구팀에서는 가압기포유동층 조

건에서 반응실험을 수행한 바 있으며, 노르웨이 Norwegian University of Science and Technology의 Bolland 교수 연구팀에서는 고정층과 기포유동층 조건에서 반응실험을 수행한 바 있다. 한편 국내의 경우 한국에너지기술연구원 에서 TGA, 고정층, 기포유동층, 순환유동층, 가압유동층에서 반응실험이 수행되었으며 체계적인 scale-up 과정을 통해 가압순환유동층 형태의 50kW급 매체순환식 가스연소기의 실증이 진행 중이다. 기존의 연구결과를 종합적으로 고려하면 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 2탑 연결 가압순환유동층 형태의 매체순환식 가스연소기를 설계 제작하여 장기연속 실증운전을 마친 바 있다. 한편 기존의 연구들에서 환원반응 기체로는 주로 수소와 메탄을 이용하였다. 환원반응기체로 수소를 이용하는 이유는 반응이 간단하며, 탄소침적, 수소생성 등의 부반응이 없어 산소공여입자의 산화-환원 반응성 측정에 적합하기 때문이며, 수소에 의한 반응성 해석 후에는 메탄을 이용한 실험적 해석을 통해 부반응 여부를 검증하는 것이 일반적이다. 하지만 매체순환식 가스연소기의 실제 적용처는 천연가스 연소-발전 시스템이므로 천연가스의 연소특성에 대한 해석이 필수적이다. 천연가스에는 메탄 이외에 에탄, 프로판, 부탄, 펜탄 등이 포함되어 있으며 각 성분에 포함된 탄소와 수소 원자의 몰수 변화에 따라 산소공여입자의 필요량이 달라진다. 또한 에탄, 프로판, 부탄, 펜탄 등 탄소원자의 수가 많은 기체성분의 경우 산소공여입자와의 반응에 의해 CO 생성특성 또는 탄소침적특성 등이 달라질 수 있다. 결과적으로 매체순환식 가스연소기술의 상용화를 위해서는 천연가스를 이용한 산화-환원 반복실험에 의한 성능 검증이 필수적이다.

본 연구에서는 세 종류의 산소공여입자에 대해 천연가스 연소조건에서 산화-환원 반복실험을 통해 각 산소공여입자의 반응성, 재생성 및 탄소침적특성을 측정 및 해석하였으며 이를 통해 매체순환식 가스연소기 산소공여입자의 천연가스 연소 적용가능성을 검토하였으며, 최적의 산소공여입자를 선정하고자 하였다.

2. 실험

2.1 실험장치

본 연구에서 산소공여입자로는 기존 연구에서 개발된 세 종류의 산소공여입자(NiO/bentonite (NiO 60 wt.%), NiO/NiAl₂O₄, Co_xO_y/CoAl₂O₄)를 사용하였으며 환원반응기체로는 LNG를, 산화반응기체로는 공기를 사용하여 회분식 유동층 반응기에서 10회까지의 환원-산화 반복실험에 의해 CH₄ 전환율, CO₂ 선택도, 탄소침적특성, 수소생성 등의 부반응 특성을 고찰하였으며, 반복실험에 따른 성능변화를 함께 측정 및 고찰하였다.

Fig. 2는 본 실험에 사용된 회분식 유동층 반응기를 나타내고 있다. 고온에서 열산화의 영향을 최소화하기 위해 반응기는 내경 0.05m, 높이 0.6m의 SUS 310으로 제작되었고 압력측정점과 기체주입부는 인코넬(inconel)로 제작되었다. 반응기 내부온도는 기체분산판 위의 고체층에 잠기는 높이에 설치된 K형 열전대에 의해 측정되었으며 반응기 내부온도는 전기히터와 온도조절기에 의해 조절되었다. 분산판은 반응기의 하단부에서 0.06m 위에 설치되었고 압력측정점은 분산판 아래 0.016m와 위 0.016m, 0.51m에 설치되어 차압형 압력 변환기와 연결되었다. 반응기체는 질량유량계(MFC, 5850E, 5850i, Brooks Instrument)와 MFC controller(Gmate 2000, LOKAS automation Co.)에 의해 조절되어 반응기로 주입되었으며 반응을 마친 기체는 필터와 냉각기(condenser)를 거쳐 전용 기체분석기에 의해 CH₄, CO, CO₂, H₂, NO, NO₂, N₂O, O₂의 농도가 분석되었고 시간에 따른 기체농도 분석값은 PC에 저장되었다. 환원반응기에서 배출되는 기체의 경우 수증기와 CO₂ 등의 기체를 포함하고 있으므로 수증기의 응축을 위해 유리제 냉각기를 사용하였으며 냉각수를 순환시켜 냉각기의 온도를 유지하였다.

2.2 실험방법

실험을 위해 먼저 고정층높이 0.4m에 해당하는 산소공여입자를 반응기에 주입한 후 반응온도인 900℃까지 가열시켰다. 온도가 상승하는 동안 공기를 주입하면서 산소공여입자가 완전히 산화되도록 하였다. 반응기 내부온도가 900℃에 도달하면 반응기체를 환원분위기의 혼합기체(LNG 0.2l/min + N₂ 1.8l/min)로 교환하여 10분간 환원반응을 수행하였다. 환원반응 후 반응기 내부 기체의 퍼지(purge)를 위해 10분간 N₂ 2l/min를 주입하면서 기체분석기를 이용하여 반응기 내부 기체의 완전한 교체를 확인한 후 반응기체를 공기(2l/min)로 교환하여 30분간 산화반응을 수행하였다. 산화반응 후 마찬가지로 N₂로 10분간 퍼지한 후 다시 환원반응을 수행하였다. 산화-환원 반복실험은 10회까지 수행하였으며 실험조건 및 실험변수를 요약하여 Table 1에 나타내었

다. 반응에 사용한 천연가스(LNG)의 조성은 Table 2에 나타나 있으며 실험의 편의를 위해 기체실린더에 저장하여 사용하였다.

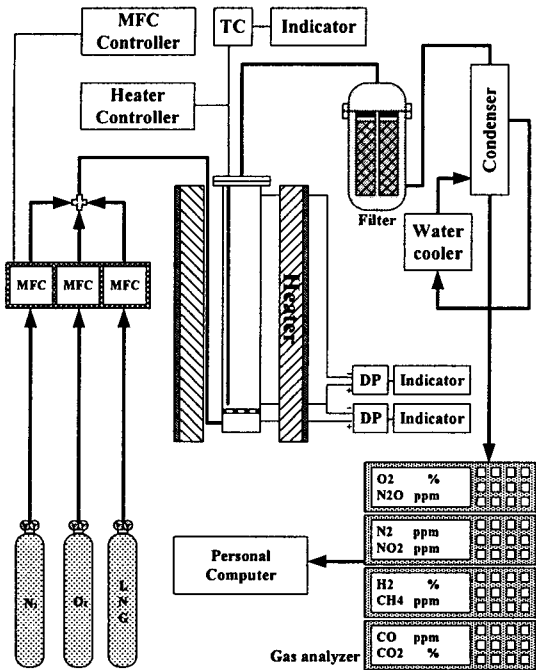


Fig. 2 Schematic of batch type bubbling fluidized bed reactor.

Table 1. Summary of experiment conditions

Particles	NiO/bentonite NiO/NiAl ₂ O ₄ Co _x O _y /CoAl ₂ O ₄
Particle size range[μ m]	106 - 212
Metal oxide content [wt.%]	60
Temperature [°C]	900
Inert gas (for purge)	N ₂ (2l/min)
Reactant	Reduction LNG (0.2l/min) + N ₂ (1.8l/min) Oxidation Air (2l/min)

Table 2. Composition of LNG

Components	Content [vol. %]
CH ₄	88.4857
C ₂ H ₆	6.8617
C ₃ H ₈	2.9631
i-C ₄ H ₁₀	0.6991
n-C ₄ H ₁₀	0.7222
i-C ₅ H ₁₂	0.0337
n-C ₅ H ₁₂	0.0089
N ₂	0.2256

3. 결과 및 고찰

Fig. 3에는 대표적으로 NiO/NiAl₂O₄ 입자에 대해 첫 번째 반복횟수에서 환원반응과 산화반응 동안 시간에 따른 배출기체의 농도변화를 나타내고 있다. 환원반응의 경우 반응기 내부로 LNG가 주입되면 식(3)과 같은 기체연료의 연소(금속산화물의 환원)반응에 의해 CO₂와 수증기가 생성된다. 그림에 나타난 바와 같이 시간이 지남에 따라 CO₂의 농도가 증가한 후 일정한 값을 나타내었으며 부반응인 수소생성은 나타나지 않았다. CO₂와 CO의 선택도를 비교하면 CO의 평균농도가 0.1%로 나타나 LNG의 대부분이 연소하여 CO₂로 전환됨을 알 수 있었다. 또한 CH₄가 검출되지 않은 것으로 미루어 주입된 LNG가 모두 환원반응에 의해 연소된 것을 확인할 수 있었다. 산화반응에서는 식(2)와 같이 환원반응에 의해 금속으로 환원된 산소공여입자가 다시 금속산화물의 형태로 산화되며 이 과정에서 공기중에 포함된 산소가 소모된다. 그림에 나타난 바와 같이 환원반응의 지속시간이 600초까지는 산소가 검출되지 않다가 산소공여입자가 대부분 금속산화물로 산화된 후인 600초 이후부터 산소농도가 다시 증가하는 경향을 나타내었다. 산화반응 동안 NO_x(NO, NO₂, N₂O)는 검출되지 않았다. 결과적으로 첫 번째 환원-산화 반응을 통해 본 실험조건에서 기체의 체류시간이 LNG의 완전연소와 산화반응에 적합한 것을 확인할 수 있었으며 기체전환율과 CO₂ 선택도가 높고 NO_x 발생이 없으며, 수소생성 등의 부반응이 없음을 확인할 수 있었다.

Fig. 4에는 세 가지 산소공여입자에 대해 반복횟수 변화에 따른 환원반응에서의 기체전환을 변화를 나타내고 있다. 기체전환율은 주입된 천연가스 중에서 환원반응에 의해 CO₂ 또는 CO로 전환된 정도를 의미한다. 그림에 나타난 바와 같이 세 입자 모두에 대해, 모든 반복횟수에서 99.7% 이상의 기체전환율을 나타내었으며, 10회까지의 반복횟수에 대한 평균전환율을 비교하면 NiO/bentonite 입자 99.82%, NiO/NiAl₂O₄ 입자

99.99%, $\text{Co}_x\text{O}_y/\text{CoAl}_2\text{O}_4$ 입자 99.96%를 나타내 $\text{NiO}/\text{NiAl}_2\text{O}_4$ 입자가 다른 입자들에 비해 기체 전환율 측면에서 우수한 경향을 나타내었다. 한편 반복횟수 변화에 따른 기체전환율의 변화경향을 살펴보면, $\text{NiO}/\text{NiAl}_2\text{O}_4$ 입자는 반복횟수 증가에 따른 기체전환율 변화가 거의 없이 일정한 성능을 유지하는 반면, $\text{NiO}/\text{bentonite}$ 입자는 기체전환율이 증가하는 경향을 나타내었으며, $\text{Co}_x\text{O}_y/\text{CoAl}_2\text{O}_4$ 입자의 경우에는 산소공여입자의 성능이 다소 저하되는 경향을 나타내었다.

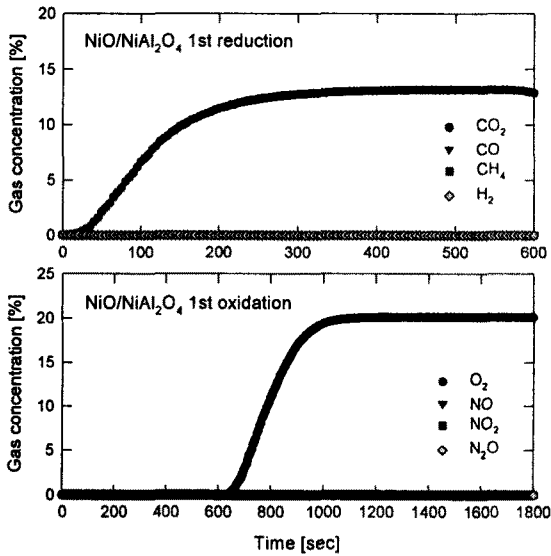


Fig. 3 Typical trends of each component during reduction and oxidation.

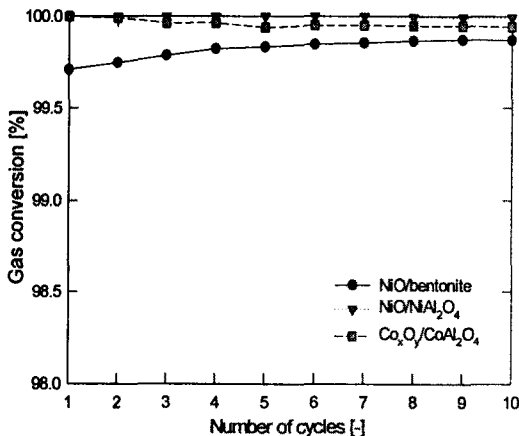


Fig. 4 Gas conversion as a function of the number of cycles.

Fig. 5에는 세 가지 산소공여입자에 대해 반복횟수 변화에 따른 환원반응에서의 CO_2 선택도 (selectivity)의 변화를 나타내고 있다. CO_2 선택도는 배출되는 기체 중 수증기를 제외한 기체 중에서 CO_2 가 차지하는 비율로, 이 값이 높을수록 기체연료가 대부분 CO_2 로 전환되며 CO 또는 H_2 생성 등의 부반응이 적은 것을 나타낸다. 그림에 나타난 바와 같이 세 입자 모두에 대해, 모든 반복횟수에서 96% 이상의 CO_2 선택도를 나타내었으며, 10회까지의 반복횟수에 대한 평균 CO_2 선택도를 비교하면 $\text{NiO}/\text{bentonite}$ 입자 97.20%, $\text{NiO}/\text{NiAl}_2\text{O}_4$ 입자 98.96%, $\text{Co}_x\text{O}_y/\text{CoAl}_2\text{O}_4$ 입자 98.43%를 나타내 $\text{NiO}/\text{NiAl}_2\text{O}_4$ 입자가 다른 입자들에 비해 CO_2 선택도 측면에서도 우수한 경향을 나타내었다. 한편 반복횟수 변화에 따른 CO_2 선택도 변화경향을 살펴보면, $\text{NiO}/\text{bentonite}$ 입자의 경우 반복횟수가 증가함에 따라 CO_2 선택도가 다소 증가하는 반면, $\text{NiO}/\text{NiAl}_2\text{O}_4$, $\text{Co}_x\text{O}_y/\text{CoAl}_2\text{O}_4$ 입자의 경우에는 반복횟수가 증가함에 따라 산소공여입자의 성능이 다소 저하되는 경향을 나타내었다. 측정된 기체분석자료에 의하면 모든 입자들에 대해 환원반응 동안 수소 (H_2)가 배출되지 않았으며 CO_2 이외의 성분은 모두 CO 로 나타났다.

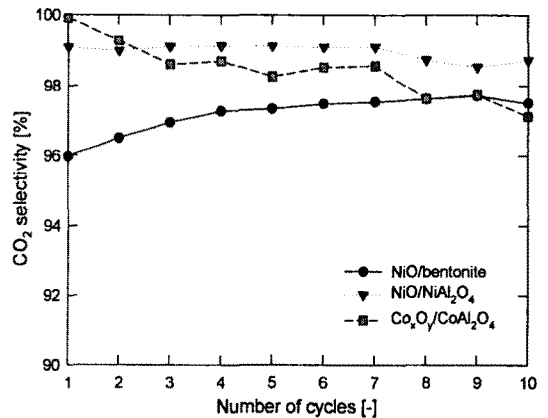


Fig. 5 CO_2 selectivity as a function of the number of cycles.

Fig. 6에는 세 가지 산소공여입자에 대해 반복횟수 변화에 따른 산화반응에서의 NO , NO_2 및 N_2O 의 변화를 나타내고 있다. 그림에 나타난 바와 같이 $\text{NiO}/\text{bentonite}$, $\text{NiO}/\text{NiAl}_2\text{O}_4$ 입자의 경우에는 모든 반복횟수에 대해 NO , NO_2 및 N_2O 가 발생하지 않았다. 한편 $\text{Co}_x\text{O}_y/\text{CoAl}_2\text{O}_4$ 입자의 경우 N_2O 는 발생하지 않았으나 NO 의 경우 반복횟수가 적을 때 다소 배출된 후 반복횟수가 증가함에 따라 감소하였으며, NO_2 의 경우 약 1ppm 정도가 발생하였다. 하지만 10회 반복횟

수에 대한 평균농도를 고려하면 NO 1.07, NO₂ 0.93 ppm으로 매우 낮은 농도를 나타내었다. 결과적으로 기존의 매탄을 이용한 산화-환원 반복 실험 및 50kWh 매체순환식 가스연소기 실증운전과 마찬가지로 LNG를 이용한 산화-환원 반복 실험에서도 세 종류의 산소공여입자에 모두에 대해 NO_x가 거의 배출되지 않음을 확인할 수 있었다.

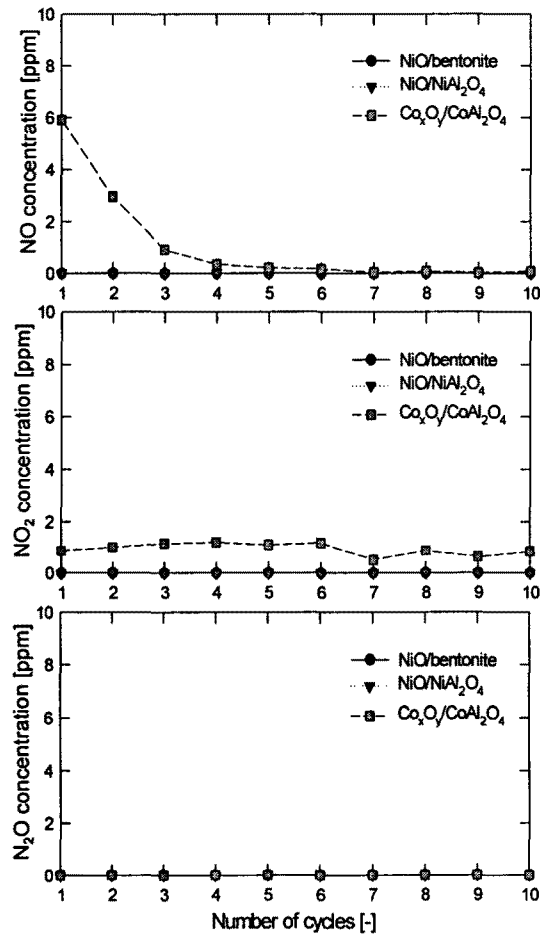


Fig. 6 NO, NO₂, N₂O concentrations versus the number of cycles.

4. 결론

매체순환식 가스연소기의 천연가스연소 실증에 앞서 기존 연구에 의해 개발된 세 종류의 산소공여입자를 이용하여 소형 유동층 반응기에서 천연가스 연소특성을 측정 및 해석하였다. 산소공여입자의 반응성으로는 기체전환율, CO₂ 선택도,

NO_x 배출여부, 수소생성 등의 부반응 여부를 측정 및 고찰하였으며 재생성 확인을 위해 10회까지 환원-산화반응을 반복하여 수행하였다. 세 종류의 산소공여입자 모두에 대해 환원반응에서 99.7% 이상의 기체전환율을 나타냈으며 96% 이상의 CO₂ 선택도를 나타내어 천연가스연소의 경우에도 CO₂의 공정내 원천분리가 가능함을 확인하였다. 또한 환원반응에서 수소생성 등의 부반응이 없는 것을 확인하였으며 산화반응에서 NO_x는 수 ppm 이하로 배출되어 NO_x-free 연소가 가능한 것을 확인하였다. 세 종류의 산소공여입자 모두에 대해 10회까지의 반복횟수 변화에 따른 성능저하는 크게 나타나지 않았으나 기체전환율, CO₂ 선택도, NO_x 배출특성 등을 종합적으로 고려하면 NiO/NiAl₂O₄ 입자가 가장 좋은 성능을 나타내었다.

후기

본 연구는 공공기술연구회 기본사업과 에너지관리공단 청정·자원기술개발사업의 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).