

## 이산화탄소 수송을 위한 압축 및 액화 공정 설계 및 비용 평가

양시엽 · 이 웅 · 임영섭 · 정영수 · 김정남 · 이치섭\* · 한종훈†

서울대학교 화학생물공학부  
151-744 서울시 관악구 대학동 관악로 1  
\*한국전력기술  
446-713 경기도 용인시 기흥구 용구대로 2354  
(2012년 7월 3일 접수, 2012년 8월 23일 채택)

### Process Design and Cost Estimation of Carbon Dioxide Compression and Liquefaction for Transportation

Seeyub Yang, Ung Lee, Youngsub Lim, Yeong Su Jeong, Jeongnam Kim, Chiseob Lee\* and Chonghun Han†

Seoul National University, Gwanak-ro 1 Daehak-dong, Gwanak-gu, Seoul 151-744, Korea  
\*KEPCO E&C, 2354 Younggudaero, Giheung-gu, Yongin-si, Gyeonggi 446-713, Korea  
(Received 3 July 2012; accepted 23 August 2012)

#### 요 약

이산화탄소 포집 및 저장 기술 중에서 수송 단계를 위한 전처리 과정인 초임계 압축 및 액화 공정에 대해서 압축 방법에 따른 에너지와 그 때의 비용의 평가가 이루어졌다. 이산화탄소를 초임계상까지 직접 압축하는 경우(공정 1-1), 액화 후 펌프로 초임계상을 만드는 경우(공정 1-2), 이산화탄소의 가압 팽창으로 액화하는 경우(공정 2), 다른 냉매를 사용하면서 그 냉매를 가압, 팽창으로 얻는 경우(공정 3-1), 냉매를 흡수 냉각법으로 얻는 경우(공정 3-2), 캐스케이드 방법을 사용한 경우(공정 4)에 대해서 각각 공정 모사되었으며 그 때의 비용이 평가되었다. 비용은 \$4~7/ton으로 추정된다.

**Abstract** – Energy and cost analysis of the preprocessing for carbon capture and storage transportation such as supercritical compression and liquefaction is done using chemical simulation model. Direct compression to supercritical phase (process 1-1), liquefaction and pumping (process 1-2), carbon dioxide compression and expansion as a refrigerant itself (process 2), usage of other refrigerant with compression and expansion (process 3-1), with absorption chiller (process 3-2), cascade refrigeration (process 3-2) have been simulated and evaluated. The specific cost is about 4 to 7 \$/ton.

Key words: CCS, Carbon Dioxide, Transportation, Liquefaction

### 1. Introduction

#### 1-1. Background

최근 기후 변화가 중요한 이슈가 되면서 이산화탄소로 대표되는 온실가스의 감축을 위하여 여러 경제주체들이 노력을 기울이고 있다. 한국 정부의 경우에는 저탄소 녹색성장 기조를 표방하며 2020년까지의 BAU 이산화탄소 배출량인 813백만톤 대비 30%인 244백만톤 감축을 목표로 하고 있다[1]. 이것은 2005년 대비하여 4% 감축을 의미한다. CCS의 경우 화석 연료를 대체할 수 있는 에너지원이 나올 때까지 사용할 수 있는 기술로서 평가되며 CDM의 하나로 인정받고 있다[2]. CCS는 IEA로부터 온실 가스 감축에서 단일 기술로는 최대인 19%정도를 담당할 것으로 평가된 바 있다[3].

이산화탄소 대량 배출 산업에는 발전과 철강, 석유화학, 시멘트 산

업 등이 있다. 이 중에서 발전 산업은 2010년을 기준으로 국가 전체 이산화탄소 배출량의 29%인 182백만톤을 배출하고 있으며, 이에 따라서 적극적으로 CCS의 도입을 고려하고 있다[4]. 유연탄 사용 대형 화력발전소에서의 2010년 이산화탄소 배출량은 Table 1에 나타나있다. 한국전력거래소에서 발표한 5차 전력수급계획상 2020년까지 증설 예정인 석탄화력발전소를 참고하여[5] 최종적인 BAU 배출량을 추정하였다.

Fig. 1은 CCS의 수송 체인을 나타낸다. 이 논문의 연구범위는 배가스로부터 포집된 이산화탄소를 저장지로 수송하기 위하여 필요한 압축 및 액화 공정이다.

#### 1-2. Literature review

이산화탄소의 압축과 액화 기술은 포집 기술에 비하여 적은 수의 선행연구가 진행되었다. 이 압축 과정은 대체로 발전소의 효율을 3~4% 정도 낮추는 것으로 알려져 있다[6]. Aspelund *et al.*[7]은 이산화탄소의 초임계 압축을 위하여 액화 후 펌프 사용 및 기체 상태

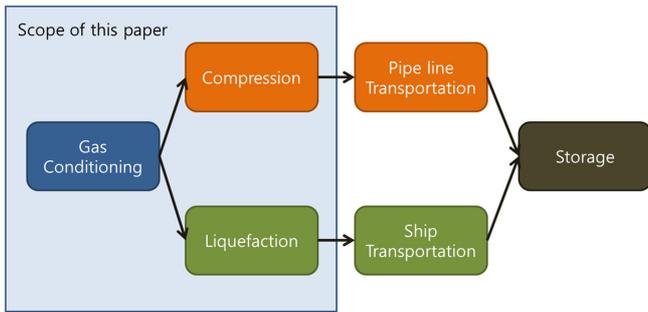
† To whom correspondence should be addressed.

E-mail: chhan@snu.ac.kr

‡ 이 논문은 KAIST 박선원 교수님의 정년을 기념하여 투고되었습니다.

**Table 1. Carbon dioxide emission from large coal combustion power plant**

Power plant	Emission in 2010	Operating ratio	Capacity	Fuel	BAU emission in 2020
Boryeong	30.8Mton	0.957	4000MW	bituminous	46.2Mton
Taeon	28.3Mton	0.93	4000MW	bituminous	42.5Mton
Dangjin	28.1Mton	0.978	4000MW	bituminous	35.1Mton
Hadong	27.0Mton	0.961	4000MW	bituminous	27.0Mton
Yeongheung	21.6Mton	0.9772	3340MW	bituminous	44.1Mton
Samcheonpo	20.9Mton	0.9007	3240MW	bituminous	20.9Mton



**Fig. 1. Carbon dioxide transportation chain and scope of this study.**

의 컴프레션 두 가지 기술과 이산화탄소를 65 bar까지 가압한 후 액화, 팽창시켜서 6.5 bar의 액체 상태로 만드는 방법을 발표했다. 이때 약 100 kWh/ton의 에너지가 든다고 발표했다. 그러나 북해의 낮은 수온(10 °C)을 이용하여 충분히 액화시킬 수 있었기 때문에 현실적으로 바로 적용하기 어렵다.

LNG의 액화 수송은 이산화탄소와 액화 기술에 비하여 오래 연구되어 발전한 기술이다. 질소와 C3 등의 혼합 냉매를 이용한 LNG 액화기술은 1970년대부터 나왔다[8]. 또한 비교적 최근에는 흡수식 냉각기를 이용한 LNG 액화공정 효율 향상의 논문도 찾을 수 있다[9]. 압력과 온도 범위에서 차이가 있기 때문에 그 적용 가능성에 대해서 연구가 더 필요하다.

## 2. Process Design

### 2-1. Process description

압축 및 액화공정으로 들어오는 이산화탄소의 양은 가장 일반적인 500 MW급 발전소에서 나오는 10,000TPD의 이산화탄소 중 포집율 90% 기준으로 삼았다. 또한 현재 보령화력발전소에서 얻은 MEA 파일럿 플랜트의 1.8 bar 탈거탑 상단 데이터를 기준으로 한 이산화탄소, 물, 질소, 산소의 농도를 Table 2에 나타내었다.

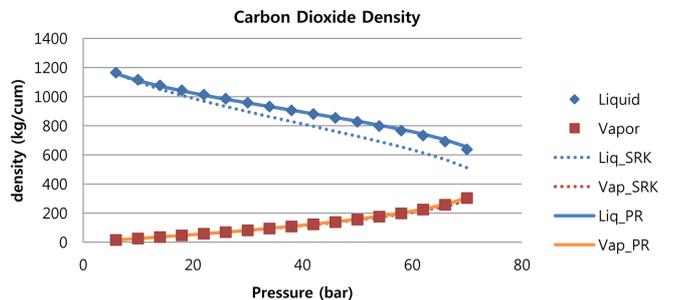
이산화탄소의 임계점은 73.3 bar, 31.1 °C이다. 이산화탄소를 초임계까지 압축하거나 액화하기 위해서 가장 중요한 공정 조건 중의 하나는 가능한 냉각 온도이다[10]. 보령 화력발전소를 기준으로 사용 가능한 해수의 수온 및 기온의 온도는 Table 3과 같다. 열교환기에서의 MITA를 고려하여 평균온도는 15 °C, 최고 온도는 35.6 °C를 기준으로 하여 고온기(Worst case scenario)에도 적용 가능한 공정을 만드는 것을 목표로 한다. 최종 생산물에서의 물의 함량은 DYNAMIS의 기준에 따라 500 ppm 미만[11]으로 했다. 함량을 초과하게 되면 TEG 분리탑 등 90%를 제거 가능한 분리장치가 공정의 끝에 추가되었다. 이산화탄소의 압축에 대해서 알아보는 것이 주 목표이기 때문에 TEG 분리탑은 성분분리기로 모사되었다.

**Table 2. Input stream value**

Input	Value
Temperature	40 °C
Pressure	1.8 bar
Flow Rate	380 ton/hr
CO <sub>2</sub>	98.6 wt%
H <sub>2</sub> O	1.33 wt%
N <sub>2</sub>	79 ppm
O <sub>2</sub>	8.4 ppm
MEA	trace

**Table 3. Coolant temperature at Boryeong coal plant [17]**

	Minimum	Average	Maximum
Sea water	0.2 °C	15.5 °C	30.6 °C
Atmosphere	-17.6 °C	12.3 °C	37.8 °C



**Fig. 2. Carbon dioxide density as a function of pressure and its estimation based on cubic equations, solid squares are from NIST database.**

공정모사에는 상용 시뮬레이터인 Aspen plus 7.3이 사용되었다. 또한 압축기의 효율은 80%, 펌프의 효율은 75%이다. 컴프레서에서의 압축비는 최대 4를 넘지 않도록 컴프레서의 개수를 정했다.

상태방정식은 Peng-Robinson을 사용하였다. 이 논문에 사용된 공정의 경우 초임계 압축의 몇 스트림만을 제외하면 대부분의 공정조건에서 아임계상이다. 따라서 시뮬레이션 계산 상에 유리한 3차 상태 방정식을 적용하였다. Aspeund *et al.*[7]은 SRK 상태 방정식을 사용하였는데 Fig. 2의 NIST 데이터베이스[12]의 밀도를 참고할 때 기상의 경우에는 어느 식을 써도 괜찮지만 액상 이산화탄소 부피의 경우에는 PR의 경우가 SRK에 비하여 더 나은 계산값을 보여준다고 볼 수 있다. 물과 이산화탄소 사이의  $k_{ij}$  값은 760.65 K 이하에서 0.120이다[13].

### 2-2. Process for transportation

초임계 압축, 이산화탄소 사용 액화, 외부 냉매 사용 액화, 케스케

이드 공정을 이용한 액화 크게 네 가지로 나누었다. 또한 초임계 압축을 기상에서의 가압(공정 1-1)와 액상으로부터의 가열(공정 1-2)로 나누고, 암모니아 냉매를 사용할 때에 압축 암모니아를 사용한 것(공정 3-1), 흡수식 냉각기를 사용한 것(공정 3-2)으로 나누어 세부적으로 총 6가지 케이스에 대하여 인터쿨링 온도 각각 두 가지씩 대하여 모사되었다.

2-2-1. Supercritical compression

공정 1-1은 110 bar까지 단순 4단 압축을 해서 초임계상을 만드는 공정이다. 멀티 컴프레서단의 압축비를 동일하게 2.793으로 가져갔으며 최종단에는 냉각기를 집어넣지 않고 109.3 °C에서 초임계상으로 나오는 것으로 계산되었다. 1-2는 60 bar에서 액화시킨 후 펌프로 110 bar 가압하는 것이다. 1-2와 같이 이산화탄소를 그 자체로 압축 팽창하여 냉매로 사용하는 경우에는 35.6 °C는 액화가 불가능하며 초임계 영역에서의 팽창은 그때의 기상의 비율이 높아 액화시키기 어렵기 때문에 15 °C에 대해서만 모사하였다. Fig. 3에서 앞 단의 3단 압축은 같지만 기체 상태에서 한번 더 압축하는 것이 1-1이고 일단 액화를 시킨 후 펌프로 가압하는 것이 1-2이다. Fig. 4과 5는 각각의 압력-엔탈피 그래프이다. 세로축은 log scale이다.

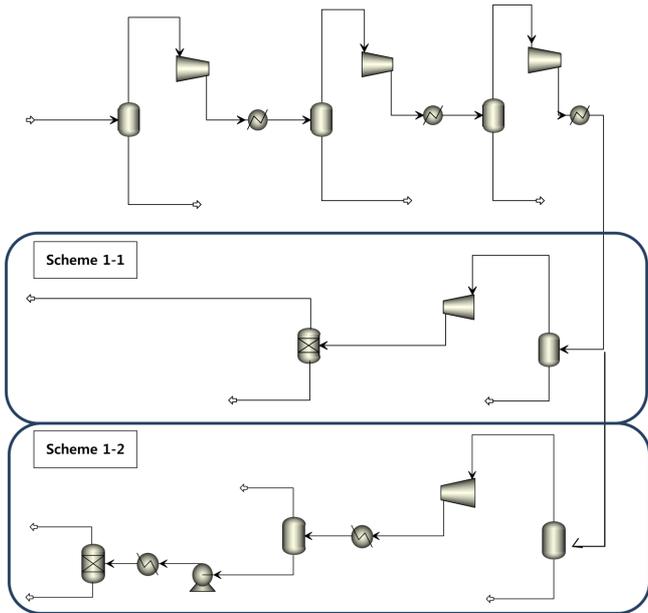


Fig. 3. Process Flow Diagram of 1-1 (middle) and 1-2 (bottom).

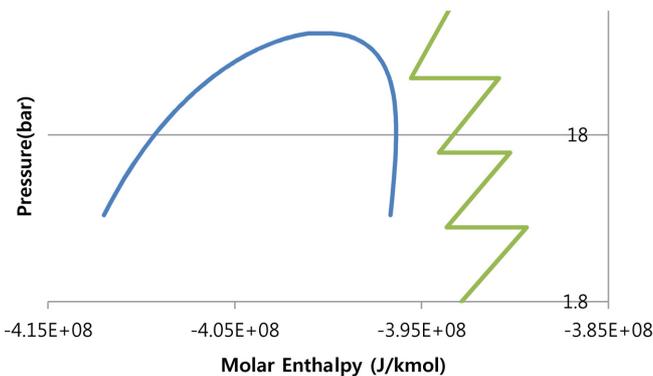


Fig. 4. P-H diagram for 1-1.

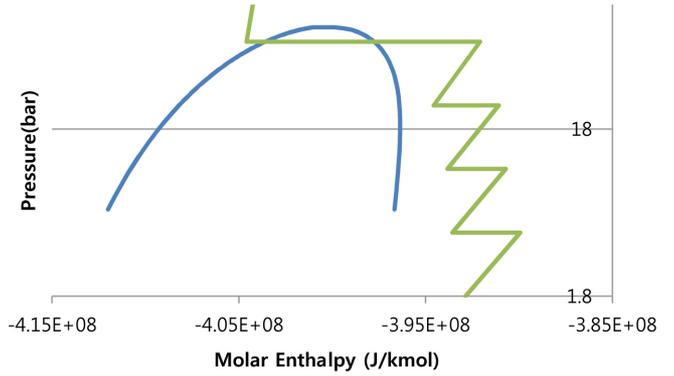


Fig. 5. P-H diagram for 1-2.

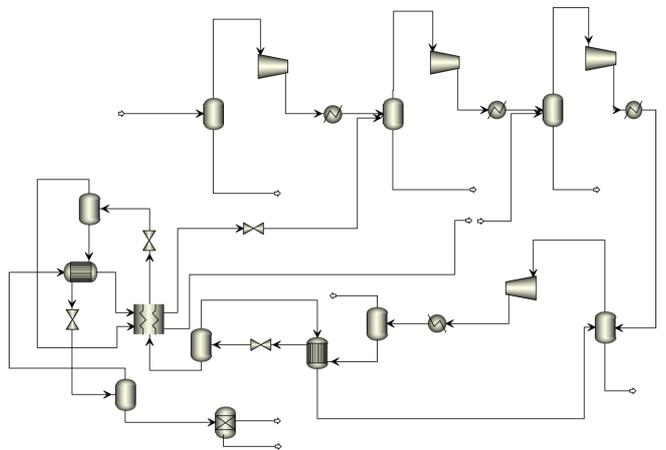


Fig. 6. Process flow diagram for 2.

2-2-2. Liquefaction carbon dioxide as refrigerant

이산화탄소는 냉각 기술의 초기에 사용되던 냉매 중의 하나이다. 프레온 가스(CFC) 및 그 변형인 수소염화불화탄소(HCFC) 등은 오존층 파괴 때문에 사용이 제한되면서 이산화탄소 등 천연 냉매에 대한 재조명이 이루어지고 있다[14]. Aspeland는 목표인 이산화탄소 자체를 가압 팽창하여 액화시키는 공정을 발표했다[7]. Fig. 6는 그때의 공정도를 나타낸다. 15 °C의 경우 이것은 가장 효율적인 공정의 하나이다. 그러나 고온에서 액화를 위해 초임계 공정(Transcritical Process)이 필요하기 때문에 고온기에는 적용할 경우에 압축에너지가 크게 증가한다. 즉, 15 °C 냉각 공정에서는 위 논문에서 제시한 값

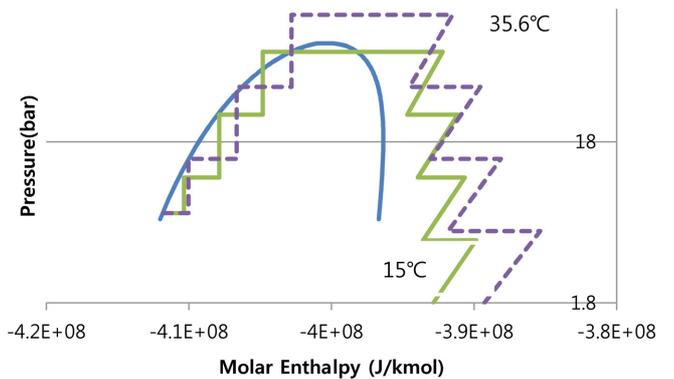


Fig. 7. P-H diagram for 2.

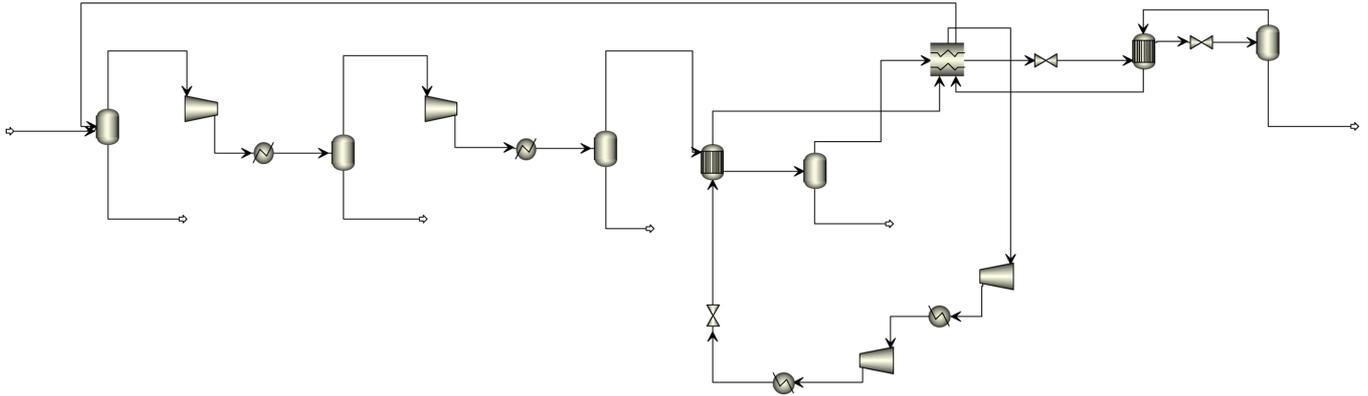


Fig. 8. Process flow diagram for 3-1.

인 68 bar에서 액화가 가능하지만(압축비 2.479), 35.6 °C가 될 경우에는 위의 공정1과 마찬가지로 110 bar까지 가압한 후에 냉각하여 팽창 압축 라인을 따라가게 된다. 초월임계 공정에서는 열교환기가 엔탈피를 충분히 교환해 주지 않기 때문에 재순환 비율이 증가하게 되고, 공정의 크기가 커지게 된다. Fig. 7의 P-H 선도에서 실선은 15 °C, 점선은 35.6 °C를 나타낸다.

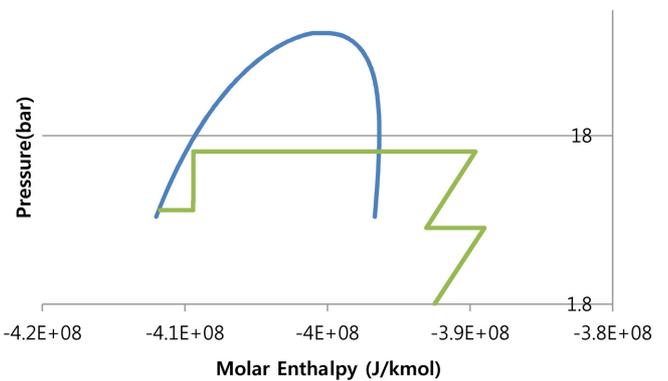


Fig. 9. P-H diagram for 3.

2-2-3. Liquefaction with single refrigerant

여기서는 가장 흔하게 쓰이는 냉매중의 하나인 암모니아를 가지고 묘사하였다. 액화 암모니아를 얻는 방법으로는 두 가지가 사용되었다. 공정 3-1은 일반적인 압축 팽창 과정이며 공정 3-2는 흡수식 냉각기를 이용한 공정이다. Fig. 8은 이산화탄소 압축공정의 액화기를 냉매를 이용하여 설계한 것이다. Fig. 9은 이 때 이산화탄소 흐름의 p-H선도이다. 이산화탄소는 14.5 bar까지 가압된 후 20 bar에서 1 bar 까지 팽창되어 -33 °C까지 냉각된 암모니아로 먼저 1 °C까지 온도를 낮춰 남은 물을 제거한 뒤 암모니아로 냉각할 수 있는 압력(14.5 bar)

에서 액화를 시킨다. 그리고 그것을 6.5 bar까지 팽창시키고 재순환하여 -52 °C의 액화 상태까지 만든다.

이것의 냉매 압축부분을 Fig. 10처럼 흡수 냉각기를 이용하여 모

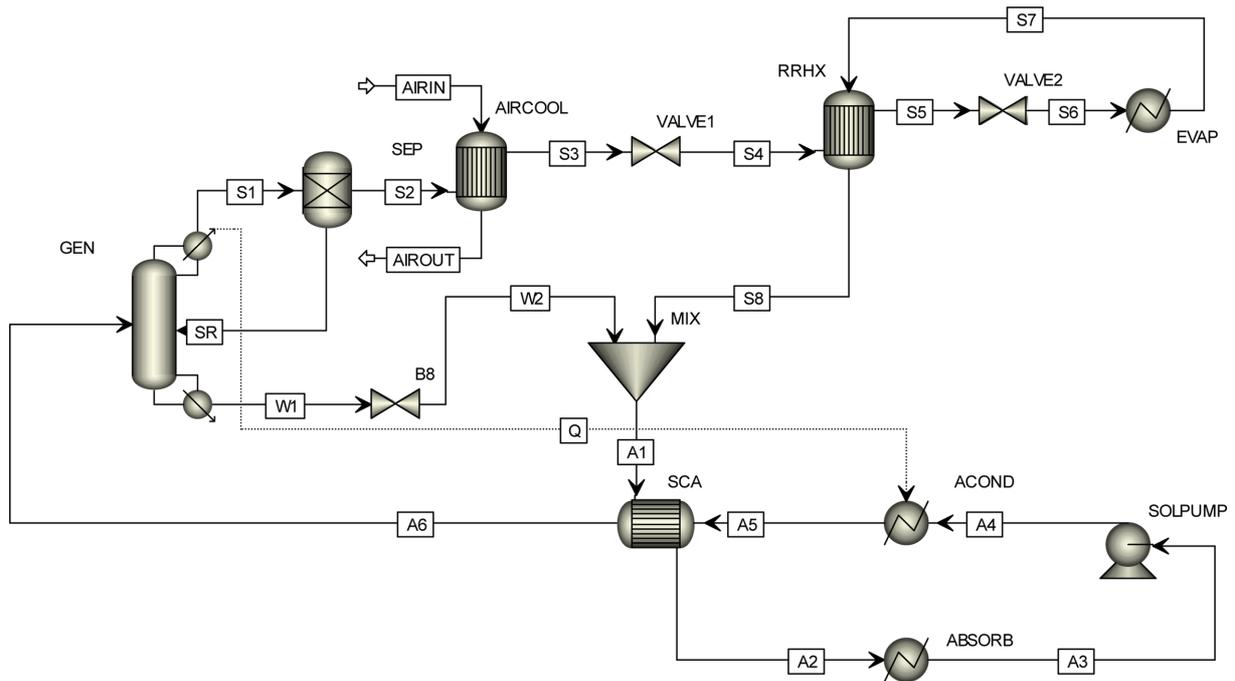


Fig. 10. Process diagram for absorption cooler.

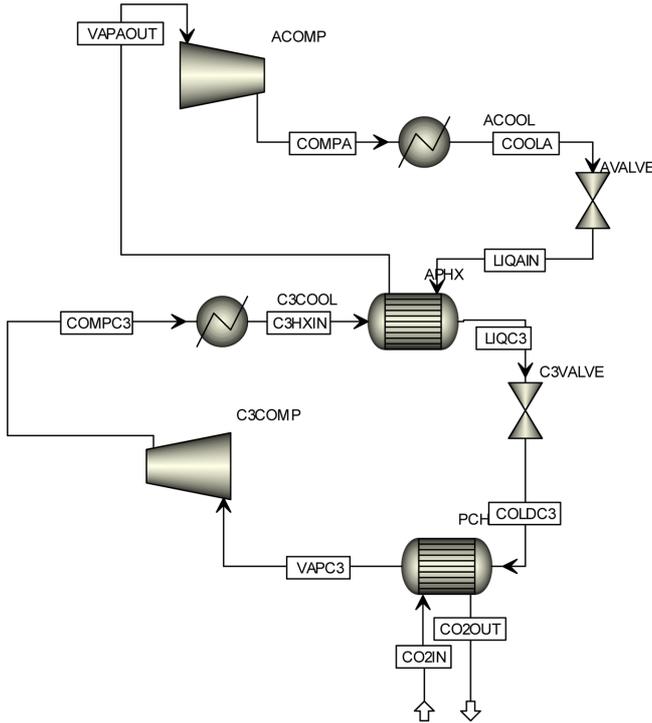


Fig. 11. Schematic PFD for 4.

사할 수 있다[15]. (공정 3-2) 흡수 냉각은 물에 녹인 암모니아를 펌핑하여 압력을 높인 후 분리하여 팽창 냉각하는 것으로 이것은 액체를 가압하는 것에 드는 에너지가 기체를 가압하는데 필요한 에너지보다 훨씬 작기 때문에 가능하다. 그러나 물과 암모니아를 분리하는데 열에너지가 필요하기 때문에 잉여 스팀 등 열원이 공급가능 경우에 적용할 수 있는 방법이다. 3.25 bar, 25 °C에서 암모니아수를 펌프로 가압하여 15.55 bar로 만든 후 열교환을 통하여 91 °C까지 가열하고 이 리치워터를 3단짜리 칼럼(Aspen Plus RadFrac)을 이용하여 암모니아(top)와 린워터(bottom)으로 나눈 후 이 15.55 bar짜리 암모니아가 팽창하여 저온이 되어 증발기로 보내져서 이산화탄소를 액화하는데 사용된다. 증발기를 통과한 암모니아는 다시 아까의 린워터와 합쳐져서 사이클로 순환한다. 리보일러에서 스팀의 열에너지와

전기에너지 사이의 효율을 40%로 가정할 때 인터쿨링 온도에 상관 없이 93 kWh/ton 정도의 에너지가 추가되는 것으로 계산되었다.

2-2-4. Liquefaction with cascade process

두 가지 이상의 냉매를 이용하여 캐스케이드 공정으로 압축하는 것은 LNG 압축에서 많이 사용되는 방식이다. 그 개략적인 모양은 Fig. 11에 나타내었다. 고압에서 액화가 35.6 °C 이상에서 일어나고 저압에서 이산화탄소의 액화온도인 영하 51.2 °C 이하가 되는 냉매를 찾기 위하여 C2(Normal BP=184.6 K)와 C3(Normal BP=231 K)의 혼합 냉매를 사용하였다. C2 31.4 wt%, C3 68.6 wt%의 냉매를 사용하여 26 bar, 35.6 °C에서 액화되어 액상 암모니아로 냉각된 후 1 bar, -67 °C까지 팽창되어 이산화탄소를 액화하는 공정을 모사하였다.

3. Result and Conclusion

3-1. Result Summary

ICARUS를 이용하여 각 장치들의 필요 크기 및 비용이 추정되었으며 각각의 공정에 대해서 압축에 필요한 전기에너지와 함께 Table 4에 나타내었다. \*표로 표시한 것은 전기 에너지 이외에 열에너지가 필요한 공정이다. 공정 1-2는 40 °C로 공정 3-2는 166 °C에서의 열에너지를 필요로 한다. 40 °C는 압축공정 사이에 나오는 열에너지로 충분히 회수 가능하다. 그러나 166 °C는 발전소에서 스팀을 받아다가 사용해야 한다. 일반 케이스의 경우 143.1 kWh/ton, 고온 케이스의 경우 152.22 kWh/ton의 총 에너지가 필요하게 된다. 물 제거를 위한 TEG 분리탑의 비용은 고려되지 않았으며, 고온기의 운전이 어려운 1-2번 공정을 제외하고는 모두 고온기의 캐피탈 비용을 나타내었다.

2012년 6월 기준 유연탄 연료 발전단가 ₩49.41/kWh를 적용하고 (한국전력거래소, 2012) 환율 ₩1150/\$를 사용하였다. 들어오는 이산화탄소의 가격은 0으로 했다.

$$PV = \text{Capital Cost} + \frac{\text{Operation Cost}}{\text{interest}} (1 - (1 + \text{interest})^{-\text{project year}})$$

Project year는 20년으로 했다. 그렇게 해서 이산화탄소 액화공정 각각에 대하여 톤 당 가격 및 현재가를 추산하였다(Table 5) 이자율은 12%로 가정되었다.

Table 4. Modeling summary

	15 °C	35.6 °C	TEG column	Capital Cost
Process 1-1	80.6 kWh/ton	90.4 kWh/ton	O	35.75 Mil\$
Process 1-2	71.7 kWh/ton*	Not Feasible	O	41.39 Mil\$
Process 2	89.3 kWh/ton	130.2 kWh/ton	O	47.33 Mil\$
Process 3-1	102.2 kWh/ton	119.2 kWh/ton	×	62.35 Mil\$
Process 3-2	49.74 kWh/ton*	58.88 kWh/ton*	×	44.28 Mil\$
Process 4	103.1 kWh/ton	116.11 kWh/ton	×	60.91 Mil\$

Table 5. Process cost of each process

	Normal Operation Cost	Worst Operation Cost	Normal PV	Worst PV
Process 1-1	\$3.46/ton	\$3.88/ton	132 Mil\$	142 Mil\$
Process 1-2	\$3.08/ton	Not Feasible	125 Mil\$	-
Process 2	\$3.84/ton	\$5.59/ton	152 Mil\$	200 Mil\$
Process 3-1	\$4.39/ton	\$5.12/ton	182 Mil\$	202 Mil\$
Process 3-2	\$6.15/ton	\$6.54/ton	212 Mil\$	223 Mil\$
Process 4	\$4.43/ton	\$4.99/ton	182 Mil\$	197 Mil\$

1-2 공정은 비용이 다른 경우들에 비해 낮지만 낮은 해수 온도가 필수적이기 때문에 1년 내내 운전하기 어렵다. 혼합 냉매를 사용하는 경우에 한 가지 냉매를 사용하는 공정에 비하여 평소에는 더 높은 비용을 고온기에서는 더 낮은 비용을 나타낼 수 있다. 참고로 국내 초임계 이산화탄소의 포집 비용은 \$41.3/ton으로 산출되었다[16].

### 3-2. Conclusion

이산화탄소의 수송을 위한 압축 및 액화공정이 방법론에 따라 비용이 평가되었다. 수송 수단이 파이프인지 선박인지 결정되고 이산화탄소의 발생 및 포집원에서 사용 가능한 냉각 온도가 결정되면 비용으로 압축 방법을 정할 수 있을 것이다.

## 감 사

This research was supported by the second phase of the Brain Korea 21 Program in 2012, Institute of Chemical Processes in Seoul National University, Strategic Technology Development and Energy Efficiency & Resources Development of the Korea Institute of Energy Technology Evaluation and Planning (KETEP) grant funded by the Ministry of Knowledge Economy (2010201020006D-12-2-100) and grant from the LNG Plant R&D Center funded by the Ministry of Land, Transportation and Maritime Affairs (MLTM) of the Korean government.

## 약어목록

BAU	: Business as usual
BP	: Boiling Point
C2	: Ethane
C3	: Propane
CCS	: Carbon Capture and Storage
CDM	: Clean Development Mechanism
IEA	: International Energy Agency
NIST	: National Insitute of Standards and Technology
MEA	: Monoethanolamine
MITA	: Minimum Internal Temperature Approach
LNG	: Liquefied Natural Gas
PR	: Peng-Robinson
PV	: Present Value
SRK	: Soave-Redlich-Kwong
TEG	: Triethyleneglycol
TPD	: Tonne per day

## 사용기호

P	: Pressure
H	: Enthalpy

## 참고문헌

- Huh, D.-G., Park, Y.-C., Yoo, D.-G. and Hwang, S.-H., CO<sub>2</sub> "Geological Storage Potential in Korea," *Energy Procedia*, **4**, 4881-4888(2011).
- Condor, J., Unatrakarna, D., Asghari, K. and Wilson, M., "Current Status of CCS Initiatives in the Major Emerging Economies," *Energy Procedia*, **4**, 6125-6132(2011).
- IEA, Energy Technology perspectives. 3 (2010).
- KEPCO, KEPCO Sustainability Report 2011. 1-88(2011).
- The 5th Basic Plan for Long-term Electricity Supply and Demand. *Ministry of Knowledge Economy Korea Power Exchange* 2010.
- G. G., The energetics of carbon dioxide capture in power plants. *US Department of Energy* 2004.
- Aspelund, A. and Jordal, K., "Gas Conditioning-The Interface Between CO<sub>2</sub> Capture and Transport," *International Journal of Greenhouse Gas Control.*, **1**(3), 343-354(2007).
- Kinard, G. E. and Gaumer, L. S., "Mixed Refrigerant Cascade Cycles for LNG," *Journal Name: Chem. Eng. Progr.*, v. 69, no. 1, pp. 56-61; *Other Information: Orig. Receipt Date: 30-JUN-74*, Medium: X (1973).
- Mortazavi, A., Somers, C., Alabdulkarem, A., Hwang, Y. and Radermacher, R., "Enhancement of APCI Cycle Efficiency with Absorption Chillers," *Energy*, **35**(9), 3877-3882(2010).
- Romeo, L. M., Bolea, I., Lara, Y. and Escosa, J. M., "Optimization of Intercooling Compression in CO<sub>2</sub> Capture Systems," *Appl. Therm. Eng.*, **29**(8-9), 1744-1751(2009).
- de Visser, E., Hendriks, C., Barrio, M., Mølnvik, M. J., de Koeijer, G., Liljemark, S. and Le Gallo, Y., "Dynamis CO<sub>2</sub> Quality Recommendations," *International Journal of Greenhouse Gas Control.*, **2**(4), 478-484(2008).
- NIST Standard Reference Database 69: NIST Chemistry Web-Book.
- Aspen Plus 7.3 APV73 EOS-LIT.
- Lorentzen, G., "Revival of Carbon Dioxide as a Refrigerant," *Int. J. Refrig.*, **17**(5), 292-301(1993).
- Darwish, N. A., Al-Hashimi, S. H. and Al-Mansoori, A. S., "Performance Analysis and Evaluation of a Commercial Absorption-refrigeration Water-ammonia (ARWA) System," *Int. J. Refrig.*, **31**(7), 1214-1223(2008).
- Lee, J.-H., Kwak, N.-S., Lee, I.-Y., Jang, K.-R. and Shim, J.-G., "Performance and Economic Analysis of Domestic Supercritical Coal-Fired Power Plant with Post-Combustion CO<sub>2</sub> Capture Plant," *Korean Chem. Eng. Res.(HWAHAK KONGHAK)*, **50**(2), 365-370(2012).
- KEPCO, General Design Standards of Sinboryeong Power Plant, KOMIPO (2012).