

펄스 코로나 방전을 이용한 NO제거 에너지 효율에 대한 연구

강 훈*, 송봉식*, 이석현*, 도현호*, 김윤택**
 인하대학교*, 한국코트렐**

A Study on the Energy Efficiency for NO Removal by Pulsed Corona Discharge

Hun Kang*, Bong-Shik Song*, Seok-Hyun Lee*, Hyun-Ho Doh*, Youn-Teag Kim**
 INHA Univ.*, Korea Cottrell**

Abstract - The product of electrons by Pulsed Corona Discharge leads to produce radicals which work on NO, and NO is finally removed. Energy efficiency for NO removal was improved with increasing peak voltage rather than with increasing pulse frequency. The rate of energy transfer increased with decreasing value of C_p (Pulse - Forming Capacitance : 2.15, 1.06, 0.55, 0.36, 0.1[nF]). When the value of C_p reached to 0.36 [nF], the energy efficiency for NO removal was maximized. And good agreement was obtained between chemical kinetic calculations and the experimental results.

1. 서 론

오늘날 심각한 환경문제를 해결하기 위한 기술로 선처리 기술과 후처리 기술이 있다. 선처리 기술로는 청정 원료 개발 등이 있고, 후처리 기술로는 화학적 처리가 일반적인 처리방법이지만 2차 오염이라는 큰 단점 때문에 이미 선진산업국에서는 후처리 기술로써 2차 오염원이 없는 비열 플라즈마 기술을 이용한 각종 유해가스처리 연구가 진행되고 있다. 특히, 펄스 코로나 방전을 이용한 NO_x와 SO₂제거 연구가 활발하다. 제거효율을 향상시키기 위해 반응기, 펄스 발생기 등의 장치들과 화학적 접근 방법으로 NH₃, CH₄등의 각종 첨가제가 연구되고 있다. 하지만, 가장 근본적인 에너지 소비를 줄일 목적으로 고전압 펄스 발생이나 고전압 펄스 발생부에서 반응부로 전달되는 에너지의 효율향상 연구가 활발하다.

본 연구에서는 배기가스 제거에 주요한 역할을 하는 N₂O 래디칼 형성을 효과적으로 함으로써, NO제거 에너지효율을 개선하기 위한 실험, 분석을 실시하였다. 주입 에너지로써 인가전압의 최고치와 펄스 주파수를 파라미터로 사용하여 각각의 NO의 농도와 전압, 전류파형의 곱으로 소비전력을 측정하였으며, C_p 의 값을 0.1, 0.36, 0.55, 1.06, 2.15[nF]로 변화시키면서, 소비전력, 에너지 전달효율, 그리고 NO 농도를 측정하여 NO 제거 에너지효율특성을 조사하였다. 뿐만 아니라 기체방전 현상과 화학적 반응을 모델링하여, NO 농도변화를 계산하였다. [1],[2],[3]

2. 본 론

2.1 실험장치

그림 1은 본 실험에서 사용된 실험장치의 개략도가 나타나 있다. 반응기는 Wire-Cylinder형태로 길이가 1000mm이고, 반지름은 20mm이다. Wire는 반지름이 0.2mm인 SUS를 사용하였다. 전원은 R.S.G(Rotaty Spark Gap)Switch를 통해 직류 고전압을 펄스형 고전압으로 전환시켜, 이를 반응기로 인가하였다. 이때 R(안정저항)을 통해, 직류 고전압이 C_p (Pulse forming

Capacitance)에 충전되었다가, R.S.G Switch가 아크로써 통전될 때마다, 반응기로 방전되는 원리를 하고 있다. R.S.G Switch에 의한 펄스 주파수는 DC 모터의 회전수로 조절한다. 또한 반응기와 병렬로 R_t (Tail Resistance)를 연결하였다.

NO의 초기농도는 N₂(balanced gas)에 NO를 희석시켜서 200ppm이 되도록 했으며, 가스는 반응기 전단부에서 공급되어 처리 후, 반응기 후단부에서 가스 분석기(GreenLine MK2)로 측정하였다. 또한 반응부에서 소비되는 전력을 측정하기 위해 High Voltage Probe(Tektronix P6015A, 1000:1)로 전압 파형과 Current Probe(Tektronix A6302)와 Current Amplifier (TM 502A)로 전류 파형을 Digital Oscilloscope(Tektronix TDS 420A, 200MHz, 100

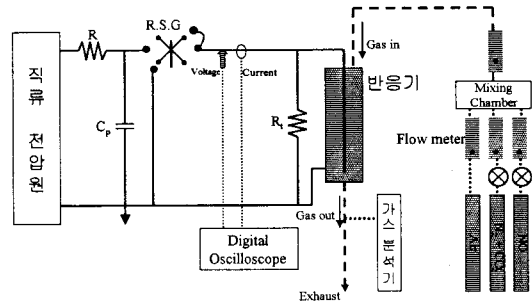


그림1. 실험장치 개략도

MS/s)로 측정하였다.

2.2 실험결과 및 고찰

2.2.1 전압, 전류파형 특성

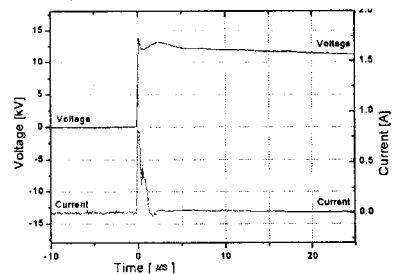


그림2. 전압, 전류 파형

그림 2는 반응기 전단부에서 측정된 전형적인 전압, 전류파형이다. 전압파형은 상승속도가 약 0.7 [kV/ns]이고, 진폭은 수ms이다. 전류파형은 최고 1(A)이상 상승하고, 진폭은 약 2~3[μs]이다. 소비전력은 측정된 전압과 전류파형을 같은 시간축에 대해 적분해서 얻어진다.

2.2.2 Peak Voltage와 펄스 주파수에 대한 NO 제거 에너지효율 비교

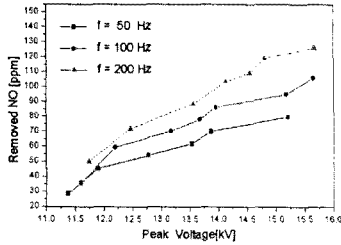


그림3. Peak voltage에 대한 NO 제거량 ($C_p = 2.15 \text{ nF}$, $R_t = 5.25 \text{ M}\Omega$)

그림 3은 peak voltage에 따른 NO 제거량을 나타낸 것이다. NO 초기농도 200ppm에서 peak voltage가 증가할수록, NO 제거량이 비례적으로 증가하였다. 또한 펄스 주파수에 대해서도 비례적으로 NO 제거량이 증가하였다. 즉, 에너지량이 증가할수록 반응기에서 이온화가 더 잘 일어나, 더 많은 래디칼을 형성하게 된다. 따라서, NO의 제거량이 증가하였다.

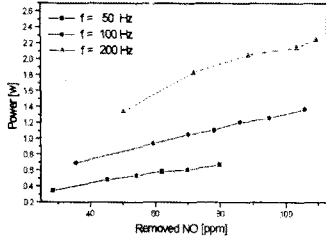


그림4. NO 제거량에 대한 소비전력 ($C_p = 2.15 \text{ nF}$, $R_t = 5.25 \text{ M}\Omega$)

그림 4는 NO 제거량에 대한 소비전력이다. 펄스 주파수를 증가할수록, 같은 NO를 제거하기 위해서 필요한 소비전력이 커진다. 즉, NO 제거량을 증가시키기 위해 투입 에너지를 증가시켜야 하는데, 펄스 주파수를 높이는 것보다는 낮은 주파수에서 인가전압, 즉 peak voltage를 증가시키는 것이 에너지당 NO 제거량 측면에서 효과적이다. 이는 아래 그림으로 설명된다.

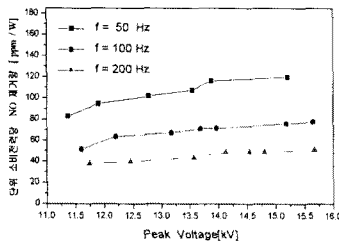


그림5. Peak voltage에 대한 단위 소비전력당 NO 제거량 ($C_p = 2.15 \text{ nF}$, $R_t = 5.25 \text{ M}\Omega$)

그림 5는 peak voltage에 대한 단위 소비전력동안 NO 제거량을 펄스 주파수에 따라 나타낸 것이다. 이 그림은 단위 소비전력 즉, 1초당 1(J)의 비율로 에너지가 공급될 때, peak voltage가 클수록 NO 제거량은 증가함을 나타낸다. 하지만, NO 제거량을 증가시키기 위해 펄스 주파수를 증가시키는 것은 비효율적임을 알 수 있다. 일반적으로 NO는 N이나 N₂로 환원되기보다는 O나 O₃에 의해서 산화되어 제거되는 경향이 주요하다. 이때 O₃는 O나 O₂의 결합으로 생성되는데, 이는 반응시간이 상당히 길다. 따라서 주파수가 증가할수록, 주파수가 낮은

경우보다, O₃의 반응시간적 영향이 상대적으로 적어, NO의 절대적 제거량이 증가할지라도, 에너지 효율 측면에서 비효율적이다. 하지만, 에너지효율이 좋은, 낮은 주파수에서 동작될 때, NO 최대 제거량이 작아 대용량 제거에는 적절치 못하다. 따라서, 실제 시스템에서는 요구한계 제거량과 주파수에 대한 경제성을 고려하여 구동 주파수를 결정해야 한다.

2.2.3 에너지 전달 특성

고전압이 반응기로 인가되어 고전계가 형성되면, 스트리머가 진행하면서 래디칼이 형성된다. 따라서, NO가 형성된 래디칼의 화학적 작용에 의해서 제거되는 것이다. 그러므로, NO제거에 영향을 주는 래디칼 형성이 효과적인 에너지전달에 의하여 좌우된다.

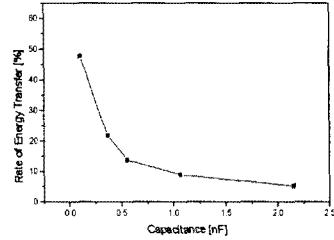


그림6. Capacitance에 대한 에너지 전달율 ($f = 100\text{Hz}$, $R_t = 3.5 \text{ M}\Omega$)

그림 5는 C_p(Pulse-forming capacitance)에 충전된 에너지가 R.S.G Switch를 통해 반응기로 전달되는 비율을 나타낸 것이다. 이 그림에서 나타난 것처럼, C_p가 작을수록 반응기로 전달되는 에너지 비율이 증가하였다. 에너지 전달은 전원임피던스와 부하임피던스가 일치할수록 잘 이루어진다. 반응기는 일반적으로 방전 전에는 단일 정전용량성분으로, 방전 중에는 시변하는 정전용량성분과 저항성분이 병렬로 결합된 등가회로로 표현된다. 본 실험에서 사용된 반응기의 자체정전용량은 약 0.015nF정도이다. 부하임피던스인 반응부의 임피던스에는 미지의 유도용량 성분과 정전용량 성분이 반응기의 등가성분과 결합되어 있으므로, 임피던스 정합에 부합되는 C_p를 수직적으로 결정하기가 어렵다.

2.2.4 Capacitance에 따른 NO제거 에너지 효율특성

그림 7은 펄스 주파수 100Hz에서 C_p를 0.1, 0.36, 0.55, 1.06, 2.15[nF]로 변화시키면서 단위 소비전력당 NO의 제거량을 나타낸 것으로 C_p가 0.36nF에서 가장 좋은 NO제거 에너지 효율을 보였다.

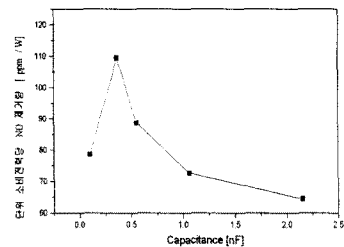


그림7. Capacitance에 대한 단위 소비전력당 NO 제거량 ($f = 100\text{Hz}$, $R_t = 3.5 \text{ M}\Omega$)

C_p가 작을수록 NO제거에 대한 에너지효율이 대체로 높다가 C_p가 0.36nF일 때 단위 소비전력당 NO가 110ppm으로 최대로 제거되었다. 그러나, 0.1nF에서는

오히려 효율이 낮아졌다. C_p 에 충전된 에너지가 R.S.G Switch를 통해 반응기로 전달되면, 반응기의 자체정전용량에 충전된 후, 코로나 방전이 일어나게 된다. 따라서, C_p 에 충전된 에너지가 반응기에 충분히 전달되면 에너지가 반응기 자체정전용량을 충전시키고, 방전개시되어 코로나 방전이 일어나지만, C_p 에 충전된 에너지가 너무 작게 되면, 코로나 방전을 위한 충분한 에너지가 공급되지 못하여 이온화로 인해 생긴 전자 및 그에 의한 래디칼 생성이 잘 이루어지지 못한다. 따라서 NO제거가 잘 이루어지지 못하게 된다.

2.3 NOx 수치해석

2.3.1 기체방전과 화학적 모델

코로나방전을 이용한 NO에서 NO₂로 전환되는 데 있어서 N, O, O(¹D) 래디칼이 중요한 역할을 한다. 대기 중 코로나의 전계 38kV/cm(150Td)로 유지되며 가스의 성분비를 N₂:83%, O₂:13% CO₂:4%로 하여 펄스 코로나 해석에 필요한 전자의 drift속도, 이온화, 흡착률, 래디칼 생성은 ELENDIF[4]를 사용하여 구하였다. 그리고 화학적 반응모델에 있어서는 배경가스의 밀도($10^{18} \sim 10^{19} / \text{cm}^3$)는 다른 생성물에 비하여 크므로 화학반응에 의해서 감소하지 않으며 가스온도는 300K로 하였으며 반응기에서 코로나가 생기는 영역을 정확히 알 수 없지만 $10^3 \sim 10^2$ (체적비)로 하였다[5]. 그리고 가스흐름에 따른 화학적 반응은 플러그흐름 모델로 가정하고 38개의 화학종과 547개의 화학반응식을 적용하였다. 화학적 반응식은 생성되는 화학종에 따라 생성과 소멸시간이 많은 차이를 보이는 Stiff 상미분 방정식이므로 농도계산에 있어 Jacobian 행렬을 사용하여 계산하였다.

2.3.2 시뮬레이션 결과

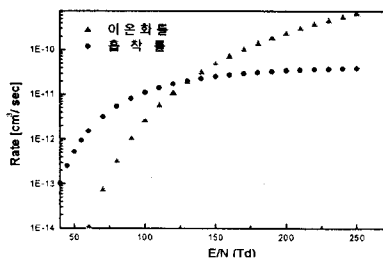


그림8. 전계에 따른 이온화률과 흡착률 (N₂:83% O₂:3% CO₂:3%)

그림 8은 전계에 따른 전자 이온화률과 흡착률을 나타내고 있다. 150Td 보다 작은 전계에서는 전자흡착률이 이온화률보다 크기 때문에 코로나 스트리머가 진행할 수 없다.

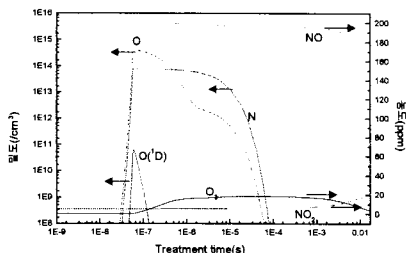


그림 9 50Hz에서의 래디칼의 생성과 소멸 (NO: 200 ppm, NO₂: 5 ppm)

그림 9은 가스의 성분비(N₂:83%, O₂:13%, CO₂:4%)일때의 래디칼의 생성을 나타내고 있다. 방전 후 생성된 래디칼이 화학적 반응에 의해 감소하고 있음을 알 수 있다.

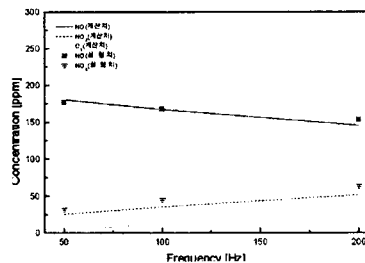


그림10. 주파수에 따른 NO 농도

그림 10는 주파수에 따른 NO의 감소량을 나타내고 있다. 주파수가 증가할수록 시간당 래디칼의 생성이 많아져 NO가 NO₂로 전환되는 데 필요한 래디칼도 증가하므로 NO의 농도는 감소한다. NO가 감소함에 따라 NO₂는 비례적으로 증가함을 알 수 있다.

3. 결론

이상의 연구에 의해서 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. Peak Voltage나 펄스 주파수가 증가할수록 NO의 제거량이 증가하였다. 그러나 단위 소비전력당 NO 제거량을 고려할 때, 에너지의 투입방법으로써 펄스 주파수보다는 Peak Voltage를 증가시키는 것이 에너지 효율적이다.
2. C_p (Pulse-forming capacitance)가 작을수록 C_p 에 충전된 에너지가 R.S.G Switch를 통해 반응기로 전달되는 에너지 비율이 향상되었다.
3. C_p 가 0.36nF일때, 단위 소비전력당 최고 110ppm의 NO제거를 보였다.
4. 실험결과 뿐만 아니라 수치해석 결과 주파수에 따라 NO농도가 감소하였다. 주파수가 증가할수록 시간당 래디칼의 생성이 많아져 NO농도는 감소한다. NO가 감소함에 따라 NO₂는 비례적으로 증가하였다.

(참고 문헌)

- [1] M. Rea and K. Yan, "Evaluation of Pulse Voltage Generators" IEEE Trans. Ind. Appl. 31, 507-512, 1995
- [2] Y.S.Mok, S.W.Ham, and I.S.Nam, "Evaluation of Energy Utilization Efficiencies for SO₂ and NO Removal by Pulsed Corona Discharge Process" Plasma Chemistry and Plasma Processing, Vol. 18, No. 4, 1998.
- [3] Zhu Yimin, Wang Rongyi, "Matching between generator and reactor for producing pulsed corona discharge" Journal of Electrostatics, Vol.44 41-45, 1998
- [4] W.L. Morgan and B.M Penetrante, "ELENDIF: A time-dependent boltzmann solver of partially ionized plasma", Computer Physics Communication, 58, pp.127-152, 1990
- [5] Y.L.M Creyton, "Pulsed Positive corona discharges: fundamental study and application to flue gas treatment", Dissertation: Eindhoven University of Technology, 1994