

Dielectric packed-bed 플라즈마 반응기를 사용한 NOx 제거 특성

김 응 복 · 김 동 옥 · 정 영 식
인천대학교 전기공학과

NOx removal characteristics by the dielectric packed-bed plasma reactor

Eung-Bok Kim · Dong-Ook Kim · Young-Sik Chung
Dept. of Electrical Eng. University of Incheon

Abstract - This paper presents the removal characteristics of nitrogen oxides (NOx) by the dielectric (Al₂O₃) packed-bed plasma reactor. Reactor packed with 5-mm diameter Al₂O₃ beads, and was designed to remove NOx at atmospheric pressures from the moving pollution source such as diesel automobile. The experiments were conducted for applied voltages from 5 to 10kV, flue gas rate from 2 to 5L/min, and frequency from 0.5 to 2kHz. The NOx removal efficiency significantly increased with increasing applied voltage. Especially removal rate significantly increased with increasing frequency. However, in this experiment discharge power was relatively high.

은 packed-bed plasma reactor를 사용하여 NOx 제거 특성에 관해 분석하였다.

2. 실험장치 및 방법

2.1 실험장치

본 연구에서 사용된 실험 장치의 개략도는 그림 1과 같이 전원공급 장치, 반응기 및 분석 장치로 구성되어 있다. 전원공급 장치는 최대 15kV, 16mA, 3kHz의 AC 전원을 공급할 수 있는 고주파 발생장치(Seiden kogyo co. model SHF-15k3kH)를 사용하였고, 실험에서 전압은 5kV~10kV 사이의 전압을 인가하였고, 주파수는 500~2000Hz 사이에서 변화시켰다. 전압 측정은 고전압 probe(Tektronix P6015A 1000:1), 전류측정은 전류 증폭기(Tektronix AM 503B)와 전류 probe(Tektronix A6312)를 사용하여 디지털 오실로스코프(Tektronix 724A 500MHz)에 연결하여 측정하였다. 오실로스코프는 컴퓨터에 연결되어 전압 및 전류 수치들을 기록하며, 이 수치를 계산하여 반응기가 소모하는 전력 값을 산출하였다. NOx 측정은 NO와 NO₂를 합한 값을 NOx로 나타내는 chemiluminescent NO/NO₂/NOx 분석기 (Advanced pollution instrumentation, model 200AU)를 사용하여 측정하였다. 실험에 사용된 샘플 가스는 N₂를 balance 가스로 NO 1492[ppm]가스에 혼합하여 유량계로 농도를 조절하여 사용하였으며, 유속은 2~5(L/min)로 하여 실험을 수행하였다.

1. 서 론

오늘날 세계가 직면하고 있는 심각한 문제 가운데 대기 문제와 같은 환경 문제가 대두되고 있다. 대표적인 환경 대기 문제에는 산성비(acid rain), 지구 온난화(global warming), 오존층 파괴(ozone layer depletion), 스모그(smog) 현상 등이 있다. 최근 지구 환경에 관심이 높아짐에 따라 환경 보전에 관한 새로운 기술이 등장하였으며, 특히 대기 환경 보전에 관계되는 다수의 기술이 개발되었고, 많이 실용화가 되고 있지만, 성능, 경제성 등을 고려한 차세대의 새로운 기술의 연구가 이루어지고 있다. 그 한가지 예로써 방전 플라즈마에 의한 배기가스(NOx 혹은 SOx) 처리가 있다. 플라즈마 중에 전자의 높은 에너지를 이용하여 전기적 에너지의 대부분을 활동적인 전자들을 발생시키는데 이용하고 주위의 가스와 이온들에게는 거의 에너지가 전달되지 않기 때문에 효율적 방법이다. 비록 이 전자들이 대기압 상태에서 짧은 시간 동안 존재하고, 오염 분자들과 거의 충돌하지 않지만, 배경 가스 분자들과 충돌하여 전자 충돌에 의한 해리와 산화를 통해 라디칼(radical)을 생성하게 되며, 이 활성 종은 질소 분자들을 산화 또는 해리시켜 제거한다. 이러한 기술이 비열 플라즈마(non-thermal plasma)이다. 비열 플라즈마는 근본적으로 크게 두 가지 방법으로서 전자빔 조사에 의한 배기 가스 정화처리 방법과 전기장 방전에 의한 방법이 있다. 전자빔 조사의 방법은 높은 설비비가 소요되는 문제점이 있어, 이러한 점을 개선하기 위한 방법으로 전기적 기체 방전을 이용한 기체 방전법이 있다. 이러한 방법에는 코로나 방전(Corona discharge), 부분 방전(Partial discharge), 펄스 스트리머 방전(Pulse streamer discharge), 연면 방전(Surface discharge), 무성방전(Silent discharge)등이 있다. 이들 방법 중 본 연구는 디젤 자동차와 같은 이동 오염원에 적용이 가능하도록 화학적 첨가제나 촉매제를 사용하지 않았으며, 상온의 대기압 상태에서, cylinder-wire 반응기 내부를 유전체인 알루미늄으로 채

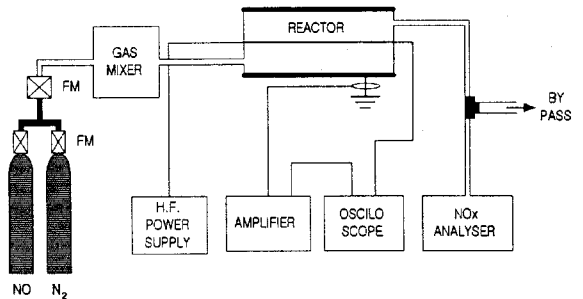
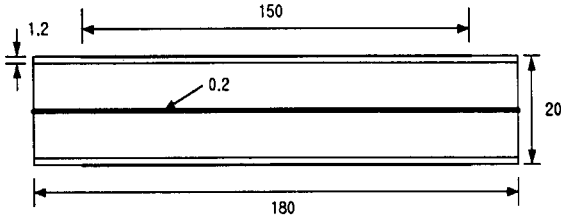


그림 1. 실험장치 개략도

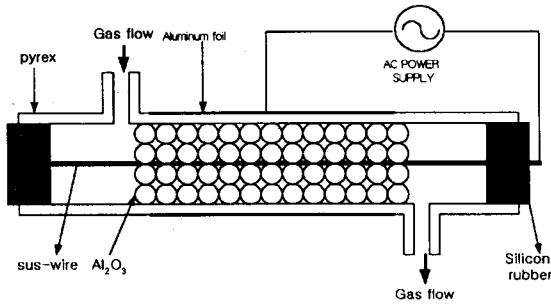
2.2 반응기

본 실험에서 사용된 반응기는 그림 2에 나타나 있다. 그림 2(a)는 반응기의 전반적인 크기를 나타낸 것으로 반응기 길이는 180mm, 내경 18mm, 외경 20mm의 pyrex 유리관을 사용하였으며, 전극간의 거리는 9.9mm이다. 유리관 외부를 알루미늄 박막을 감싸서 외부 전극으로 사용하고, 내부 전극은 직경 0.2mm의 스

테인레스 선을 전극으로 사용하였다. 그림 2(b)는 실제 사용된 Packed-bed plasma reactor로서 반응기 내부 중심 전극과 유리관 사이를 유전체로 채운 형태로, 유전체로 사용된 알루미늄(Al_2O_3)은 구형인 직경 5mm의 구를 사용하였다. 구 형태의 pellets는 평면과는 다른 더욱 유효한 방전 특성을 가질 수 있으며, 유효 방전 면적이 크게 되는 장점이 있을 것으로 사료된다. 인가 전압을 점차 상승시키면 반응기 내의 알루미늄과 알루미늄의 서로 접촉하는 부분에서 방전이 일어나는 것이 관찰되었다.



(a) 반응기의 기본 구조



(b) packed-bed plasma reactor

그림 2. 반응기

2.2 실험결과

그림 3과 그림 4는 입력 전압과 주파수의 변화에 따른 NO와 NOx의 분해량을 도시한 그래프로 모의 가스는 N_2 가스를 balance 가스로 NO가스 1492ppm을 700ppm으로 유지하고, 유량은 2(L/min)로 하였다. 인가전압을 변화시켰을 때의 반응기에서의 가스 분해도를 보았을 때, 전압이 상승함에 따라 NO와 NOx의 분해가 주파수 500Hz일때 인가전압이 7kV 이상에서 급격한 감소가 이루어 졌고 10kV에서 192ppm까지 분해를 보였다. 주파수 1kHz인 경우에는 6kV 인가전압 부근부터 방전이 활발해져 급격한 가스의 분해가 이루어

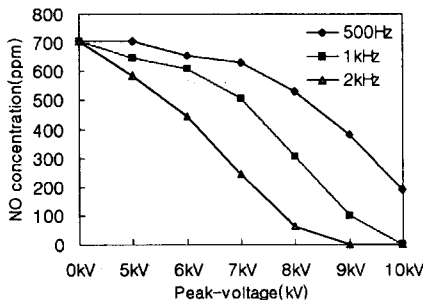


그림 3. 피크 전압에 따른 NO 분해도

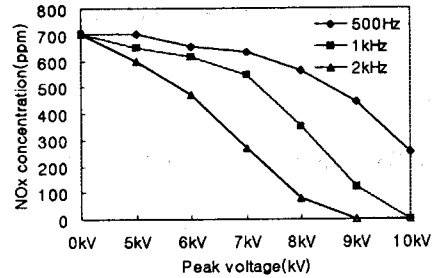


그림 4. 피크 전압에 따른 NOx 분해도

졌으며, 10kV의 전압을 인가하였을 때는 NO와 NOx 가스의 거의 전부가 분해되었다. 주파수 2kHz의 경우는 5kV 이상에서 가스의 분해가 활발히 이루어져 NOx와 NO의 농도가 급격히 감소하였으며, 9kV 전압에서 완전한 분해가 이루어졌다. 이는 주파수를 상승시킴에 따라 전극의 극성이 빠른 빈도로 변하여 전자에 비해 속도가 낮은 양이온이 음극에 도달하기 전에 전극간에 잔류하여 공간 전하를 형성케 되므로 방전 개시전압이 저하되고, 방전 전류도 증가하게 되므로 동일 전압에서의 시간당 라디칼의 생성 비율이 많아져 NO가 NO_2 로 산화되거나 혹은 해리되는데 필요한 라디칼이 증가하게 되어 NOx나 NO가스의 제거율이 증대된다.

그림 3과 그림 4에 인가된 전압과 주파수의 변화에 따른 반응기의 방전 전력당 NO가스의 제거량을 그림 5에 도시하였다. 주파수가 높은 경우에는 동일 전압시의 가스 분해율이 높지만, 전력당 가스 분해율로 볼 경우는 주파수를 상승시키는 것보다 전압을 상승시키는 것이 에너지 효율면에서 유리한 것으로 나타났다.

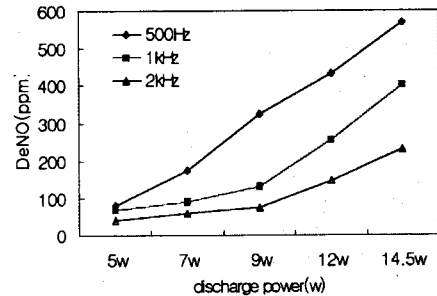


그림 5. 방전 전력에 따른 NO 분해량

그림 6과 그림 7은 유량을 2(L/min)로 하고 전압을 8kV로 인가할 때 NO가스 농도 변화에 따른 NO와 NOx의 분해량을 도시한 그림으로, 주파수를 각각 500Hz, 1kHz, 2kHz인 경우로 나누어 표시하였다. 저농도 부근에서의 가스 분해량은 500Hz의 경우는 방전이 활발하게 이루어지는 전압에 이르지 못하기 때문에 분해량이 일정하여 분해율은 저하 되지만, 주파수가 그 이상이 되면 동일한 전압에서의 방전이 활발히 이루어져 라디칼의 생성이 증가됨으로 NO가스의 분해량이 증대되었다. 농도를 증가시킴에 따라 가스를 분해하기 위한 전자의 수가 증가하기 위해서 방전 전류가 커지고 소비전력도 증가한다. 특히 2kHz의 경우에는 농도와는 관계없이 8kV 이상의 전압에서는 높은 방전 전력과 함께 유량 2L/min에서는 NOx와 NO가스 거의 전부가 분해되었다.

3. 결 론

본 실험에서는 비열 플라즈마를 이용한 유해가스 처리 방법중 유전체 알루미늄(Al_2O_3)를 삽입한 reactor를 사용하여 주파수 변화와 전압의 변화가 방전 및 NO_x 가스를 제거에 미치는 영향을 실험적으로 연구 검토하여 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. 유전체의 형태를 구형으로 함으로써 반응기 내부를 보다 더 밀집되게 할 수 있었고, 유전체와 유전체의 접촉 부분에서 연면방전이 발생하므로 구형으로 이루어진 형태가 방전 영역의 확대면에서 더 유리하다.
2. 인가 전압을 상승시키에 따라서 NO_x 의 분해는 선형적으로 증가하였고, 동일 전압에서 주파수를 높이면 극성의 변화도에 의해 방전 개시 전압이 저하되고, 방전 전류의 증가와 함께 라디칼의 증대로 가스 분해가 급격히 증대되었다.
3. 농도의 증가에 따라 500Hz 주파수 범위에서는 제거량이 거의 일정하여 제거율은 감소했지만, 동일 전압시 2kHz의 주파수대에서는 높은 방전 전류 때문에 가스 분해율이 거의 미소하게 하락하였다.
4. 유량 증가할수록 제거율의 하락을 가지고 왔으며, 특히 2kHz주파수에서는 유량의 증대와 함께 급격한 제거율 저하를 가져왔다.
5. 방전 전력에 따른 NO_x 분해율을 보면 500Hz 주파수대가 다른 1,2kHz의 주파수 대역보다 에너지 측면에서 높은 분해를 보였다. 따라서 NO_x 가스의 제거에는 주파수의 상승보다는 전압의 상승이 에너지 측면에서는 더 유리하다고 사료된다. 그러나 저주파수 대에서의 가스 분해를 상승시키기 위해서는 인가 전압을 높여주어야 하고, 보다 높은 주파수 범위에서는 인가전압은 낮출 수 있으나 방전 전력이 커지게 됨으로 유해 가스 처리에 효율 측면에서 가장 적절한 주파수와 전압의 선정이 필요하다.

[참 고 문 헌]

- [1] T.Suzuki, H.Murakami, K.Takaki, T.Fujiwara, "Reduction Of NO_2 in Simulated Exhaust Gas Using Dielectric Barrier Discharge", T.IEE Japan, vol.117-A, NO.11,1997
- [2] T.Yamamoto, Ben W.-L.Jang, "Aerosol Generation and Decomposition of CFC-113 by the Ferroelectric Plasma Reactor" IEEE Trans. Ind. Applicat., vol.35, NO.4, JULY/AUGUST, 1999
- [3] S.Masuda, S.Hosokawa, X-L Tu, K.Sakakibara, S.Kitoh and S.Sakai, "Destruction of Gaseous Pollutants by Surface-Induced Plasma Chemical Process(SP-CS)", IEEE Trans. on IA, Vol.29, No.4, pp.781~786, 1993.
- [4] A.Ogata, K.Yamanouchi, K.Mizuno, S.Kushiyama, T. Yamamoto, "Oxidation of Dilute Benzene in an Alumina Hybrid Plasma Reactor at Atmospheric Pressure", Plasma Chemistry and Plasma Processing, Vol.19, No 3, 1999
- [5] Yan KP, Hui HX, Cui M, Miao JS, Wu XL, Bao CG, Li RN, "Corona Induced Non-thermal Plasma-Fundamental Study and Industrial Applications", Journal of Electrostatics, V.44N1-2, 1998
- [6] T.Oda, T.Takahashi, "Frequency Effect on NO_x Reduction by Using Non-thermal Plasma Processing", Institute of Electrotechnics Japan, pp373~376, 1995
- [7] T.Yamamoto, M.Okubo, K.Hayakawa, K.Kitaura, "Effect of Nonthermal Plasma Reactors on NO_x control", The Asia-Pacific Workshop on Water and Air Treatment by Advanced Oxidation Technology, pp. 50~55, 1998

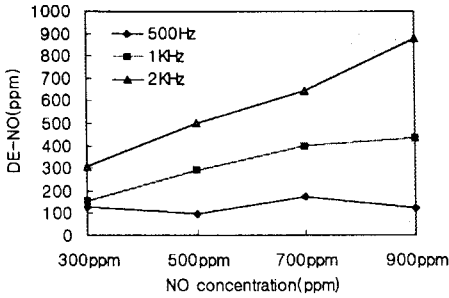


그림 6. 농도에 따른 NO 분해량

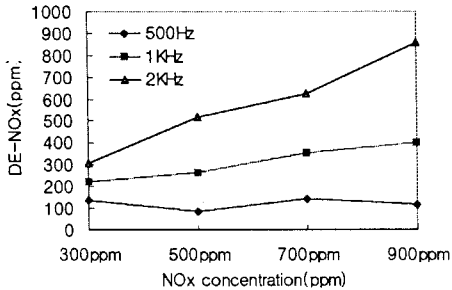


그림 7. 농도에 따른 NO_x 분해량

그림 8과 그림 9는 입력 전압을 8kV, 가스 농도를 700ppm으로 하였을 때, 유량의 변화에 따른 NO 와 NO_x 의 분해율을 도시한 그림이다. 유량은 2L에서 5L까지 가변하였고, 주파수는 500에서 2kHz까지 변화시켰다. 유량이 증가할수록 가스의 반응기내 잔류시간이 적어지므로 효과적인 분해가 이루어지지 않았고, 특히 2kHz 주파수 범위에서는 3L/min 이상의 유량일 때 반응기를 통과하는 가스를 산화시키거나, 해리시키는 에너지의 한계를 초과하여 분해율이 크게 감소되었다.

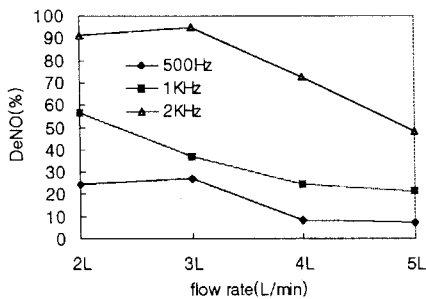


그림 8. 유량에 따른 NO 분해율

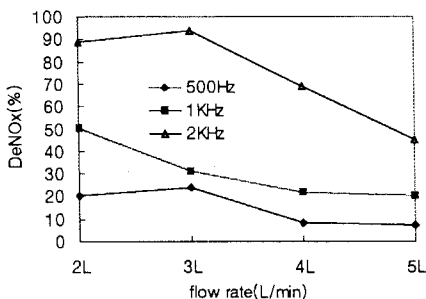


그림 9. 유량에 따른 NO_x 분해율