

3C2) 저온범위에서의 망간계 금속산화물이 침착된 촉매필터의 NO 제거 특성

Removal Characteristics of Nitrogen Oxide by Catalytic Filters Coated with Manganese Oxide at Low Temperature Range

박영옥 · 이건왕¹⁾ · 이영우¹⁾

한국에너지기술연구원 청정석탄연구센터, ¹⁾충남대학교 바이오응용화학부,

1. 서 론

화석연료의 사용이 늘면서 연소 후에 배출되는 미세먼지입자, 질소산화물 및 황산화물 등의 대기오염 물질들의 발생이 증가하고 있다. 이런 오염물질들을 처리하기 위해서는 오염물질의 종류에 따라 처리장치를 별도로 설치되어야 오염물질의 처리가 가능하다. 그러나 각 오염물질을 처리하기 위한 각각의 공정을 복합 할 수 있는 복합처리기술이 개발, 활용된다면 공정단순화, 에너지절약 등의 큰 효과를 가져올수 있으리라 기대된다. 이러한 복합기술 중 미세먼지입자와 다이옥신 또는 NOx를 동시제거하기 위한 연구는 국내에서는 2000년대부터 연구되어 오고 있었다. 그러나 집진장치로 유입되는 배가스나 소각가스의 온도인 160℃~230℃에서 재가열이 필요 없는 NOx제거 활성이 우수한 촉매가 필요하였고 배가스의 온도에서 변형이 되지 않는 촉매 담지용 필터개발이 필요하였다. 본 연구에서는 배가스의 온도 범위인 160℃~230℃에서 활성이 우수한 CuMnO_x 촉매를 선정하였고 고온의 배가스 분위기에서 변형이 없는 filter media의 중간부분에 선정된 촉매를 고착 담지하였다. 본 실험에서는 최적 촉매 고착량을 결정하기 위해 촉매의 담지량과 반응온도의 변화에 따라 NO 제거 특성을 비교 분석하였으며, 산소의 농도 변화와 SO₂ 유입조건 NO의 제거에 미치는 영향에 대해서도 비교 분석하였다.

2. 연구 방법

고온용 집진필터에 고착 담지용 촉매입자의 크기는 촉매의 활성을 위하여 13μm 크기의 미세한 파우더 형태로 제조하여 사용하였다. 고온용 집진필터에 촉매의 고착 담지량은 250g/m²~550g/m² 범위에서 변화시켜 제조하여 실험용으로 사용하였다.

촉매필터의 NO 제거 특성을 실험하기 위한 실험장치의 공정도를 그림 1에 나타냈고 실험장치의 구성을 그림 2에 나타냈다.

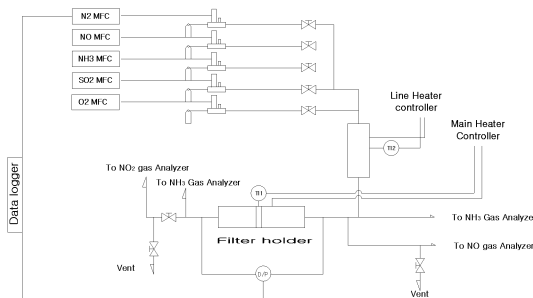


Fig. 1. Schematic diagram of the catalytic filter test unit.



Fig. 2. Catalytic filter test unit.

반응기로 공급하는 가스는 NO, NH₃, O₂, N₂, SO₂로서 각 실린더에서 질량유량조절기(Mass Flow Controller, Brooks Co., Model UP351, YOKOGAWA)를 사용하여 정확한 유량을 공급하였다. 가스공급

관은 전체에 걸쳐 스테인레스 관으로 구성하였으며, NO와 NH₃가 반응하여 생성되는 NH₄NO₃, NH₄NO₂와 같은 염의 생성을 방지하기 위하여 pre-heater를 통하여 150℃로 일정하게 유지하였다. 반응기는 내경 55mm, 길이 90mm 수평형 반응기로써 온도조절은 촉매필터의 전단에 설치된 K-type 열전대를 사용한 PID 온도제어기(Models 2408, YOKOGAWA)를 이용하였다. 촉매필터에 의한 NO의 제거 성능을 측정하기 위하여 NO의 농도는 비분산 적외선 가스분석기(ULTRAMAT 23, Gas Analyzer for IR-Absorbing Gases and Oxygen, Siemens AG, A & D PI, Process Instrumentation & Analytic, Germany)로 측정하였다. 암모니아 농도는 검지관(3M, 3La, GasTech Co.)을 사용하여 분석하였다. 또한 촉매필터 전 후단에 걸리는 압력손실은 차압계(Differential Pressure Transmitter with HARTProtocol, EMERSON)를 이용하여 측정하였다.

실험조건은 표 1에 나타냈으며, 실험변수로는 반응기의 온도, 촉매 고착담지량, 여과속도, SO₂ 농도가 있다. 촉매 고착 담지량의 범위는 250g/m²~550g/m²이며, 반응기 온도는 150℃~250℃의 범위에서 온도를 -10℃/10min의 속도로 하강시키며 반응기 출구부분에서 NO의 농도를 측정하여 NO의 제거효율을 산정하였다. SO₂의 영향이 NO 제거율에 미치는 영향을 알아보기 위하여 정상적인 NO의 제거실험 도중에 탈황시설이 없는 석탄연소 시설의 SO₂농도 조건인 150ppm의 농도로 주입하여 NO의 전환율의 변화를 관찰하였다. 또한 배출가스중의 산소에 농도에 의한 영향이 NO 전환에 미치는 영향을 관찰하기 위하여 O₂의 농도를 1.0~21% 범위로 산소를 주입하여 NO의 전환율 변화를 살펴보았다.

Table1. Experimental condition.

실험변수	실험조건
Diameter of the catalytic filter	55mm
Area of the catalytic filter	23.8cm ²
Catalyst	CuMnO _x
NH ₃ /NO molar ratio	1.0
Face velocity	1m/min
Inlet NO gas concentration	250ppm
Reactor temperature	150~300℃
Catalyst loading	250~550g/m ²
O ₂ concentration	1.0~21%
SO ₂ concentration	150ppm

3. 결과 및 고찰

NO gas를 250ppm의 농도로 주입하고 NH₃ 또한 NO와 몰비를 1로 주입하여 실험한 결과 그림 3에 나타낸바와 같이 200℃까지는 NO 제거율이 증가하였고 200℃ 이후부터는 NO의 제거율이 감소됨을 볼 수 있었다. 이는 실험용으로 촉매필터에 적용 촉매가 일반적인 연소배가스의 온도범위내에 해당하는 200℃ 전후에서 NO 제거율이 가장 높게 유지된다는 것을 확인하였다. 고온용 집진필터에 촉매입자의 고착 담지량에 따른 NO의 전환율에 실험결과를 그림 4에 나타냈다. 집진필터에 촉매의 담지량이 많을수록 NO의 전환율이 증가함을 볼 수 있었다. 특히 촉매의 담지량이 250~400g/m²의 범위에서는 촉매 담지량이 많을수록 NO의 제거율이 담지량에 따라 비율적으로 증가하였으나 촉매의 담지량이 400g/m² 이상에서는 촉매 담지량 증가에 비해 NO의 제거율의 작게 증가하고 있음을 확인할 수 있었다. 이와 같은 현상은 촉매의 담지량이 400g/m² 이상에서부터 집진필터의 한정된 공간 내에서 촉매입자 고착 담지 되는 과정에서 촉매입자 간에 서로 중첩되어 반응이 일어나는 촉매표면적이 담지량에 따라 비례하게 증가하지 못했기 때문이라 추정된다.

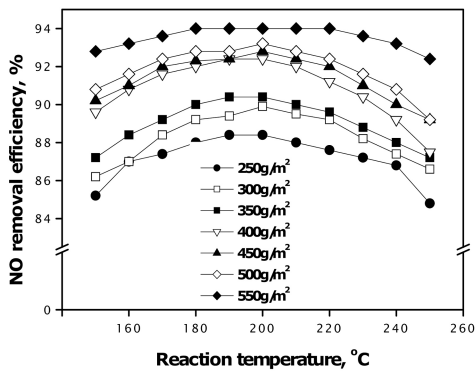


Fig. 3. NO removal efficiency as a function of reaction temperatures.

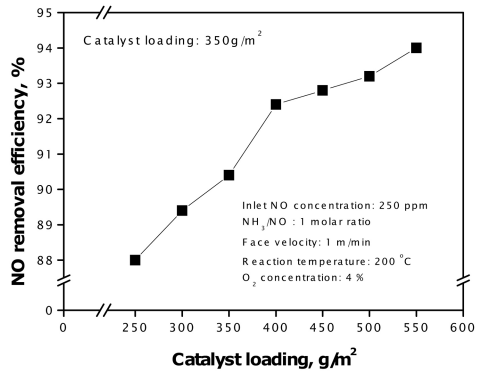


Fig. 4. NO removal efficiency as a function of catalyst loadings.

참 고 문 헌

- 박영욱, 이건왕, 노학재, 이영우 (2007) 저온촉매 고착 주름필터의 산화질소 제거 특성, 한국입자 에어로졸학회, 291-292.
- 박영욱, 최호경, 노학재, 이건왕, 오재석 (2007) “저비용 고효율 건식배가스 처리용 One-Touch 촉매필터 및 일체형 촉매여과시스템 상용화 개발” 연차·실적 보고서, 환경부.
- 이재의 (2006) 산화질소 제거용 금속산화물 촉매 및 그 제조방법, 공개특허 10-2006-0096609, 대한민국 특허청.