

이종방전 중첩에 의한 방전 플라즈마반응기의 효율개선의 시도 - 연면 · 직류코로나 방전 중첩형 반응기의 특성 -

우인성[†] · 山隈瑞樹^{*} · 황명환

인천대학교 안전공학과 · *일본노동성산업안전연구소물리공학안전연구부

(2000. 5. 24. 접수 / 2000. 9. 4. 채택)

A Trial for Improvement of Energy Efficiency of Plasma Reactor by Superposing Two Heterogeneous Discharges - Characteristics of Surface and Corona Discharge Combined Plasma Reactor -

In-Sung Woo[†] · Mizuki Yamaguma^{*} · Myung-Whan Hwang

Department of Safety Engineering, Incheon University

^{*}Department of Engineering Safety Research Division National Institute of Industrial Safety, Japan

(Received May 24, 2000 / Accepted September 4, 2000)

Abstract : In order to cope with environmental problems caused by harmful gases emitted from various industrial sources, a new technology which employs discharge plasma formed in ordinary atmospheric pressure has been intensively investigated in many industrialized nations. Although a plenty of useful outcomes and suggestions have been made public by scientists in this field, few commercial products which effectively decompose pollutant gases have appeared as yet. This is partly because that the energy efficiency of a most effective plasma reactor has not reached a satisfactory level in comparison with those of devices using conventional technologies. In an attempt to solve the problem mentioned above, we noticed to combine heterogeneous electrical discharges. This concepts is based on that each plasma reactor has its specific spatial region in which chemical reaction are active and by electrically affected with another reactor of different type, the activated region would increase - which may lead to cutting down the energy consumption. To prove this concept experimentally, two different discharge equipments, a plane ceramic-based surface discharge electrode and a corona electrode with tungsten needle array, are selected and combined to fabricate a hybrid plasma reactor.

The results are summarized as follows;

- (1) Ozone concentration generated in the plasma region drastically increases when the positive corona discharge is added to the surface discharge. The rate of increase of ozone depends on the frequency of the surface discharge. The negative corona, however, does not contribute to the improvement of the ozone generation.
- (2) NO(nitrogen monoxide) decomposition rate also improves by simultaneously applying the surface and the positive corona discharges. The effect of the corona superposition is more evident when the level of the surface discharge is moderate.
- (3) By adjusting the corona level, the net energy efficiency during NO decomposition improves in comparison with the simple surface discharge reactor.

Key Words : plasma chemical reaction, surface discharge, corona discharge, decomposition, NO_x, VOC, ozone

[†]To whom correspondence should be addressed.
insung@lion.inchon.ac.kr

1. 서론

생산 현장뿐만 아니라 일상생활의 여러 곳에서 환경을 악화시키는 유해물질이 배출되어, 그를 위한 대책이 초미의 관심사로 되어있다. 종래 다종다양한 유해물질 중에서 일부의 기체상의 물질에 대해서는 그 성질에 따라 연소나 촉매를 사용한 화학적 처리, 활성탄 흡착 등의 물리적 처리가 실시되어 왔지만 근년 대기중에서의 방전현상에 수반하여 발생하는 플라즈마에 의한 화학반응을 사용한 처리방식이 많은 연구기관에서 시도되고 그 중에는 종래 방식으로는 곤란했던 물질(예를 들면 프론가스)의 분해·무해화 처리로 실용화된 예도 있다. 나아가 화력발전소, 쓰레기 소각로 등으로부터의 배기가스중의 NOx·SOx 또는 다이옥신이나 생산공장으로부터 배출되는 VOC(휘발성유기화합물) 등의 유해물질의 처리에 플라즈마를 응용하기 위한 연구가 활발하게 행해지고 있으며, 특히 플라즈마 중의 전자온도가 이온온도보다 극히 높다고 하는 성질을 갖는 비평형 플라즈마는 적용할 수 있는 물질이 많다는 것, 방전제어가 용이하다는 것, 또 기존설비에 추가적인 부착 등 구조적인 자유도가 높은 등의 이유로 주목받고 있는 기술이다¹⁾.

비평형 플라즈마의 발생방식으로서 펄스 방전, 무성방전 등의 방식이 제안되고 있으며 각각 특징을 가지고 있다. 펄스 등은 종래부터 소형이면서 비교적 큰 방전에너지의 발생이 가능한 세라믹을 베이스로 하는 연면방전에 주목해 주로 유기용제 등인 VOC를 대상으로 그 특성을 조사해왔다²⁾. 즉 이 방식을 이용한 화학적인 처리방식은 최초, 増田에 의해 제창되어SPCP(Surface Discharge Induced Plasma Chemical Process)라고 하는 명칭으로 널리 알려져 있다³⁾.

연면방전 전극은 세라믹기판 표면에 소결된 가늘고 긴 텅스텐 전극근방에서 방전 플라즈마를 발생시키는 것이므로 이것을 이용해서 반응기를 구성할 때에는 피 처리가스를 가능한 전극근방에 연하도록 통과시켜야 하는 구조상의 공리가 처리능력의 향상에 불가결하다. 이처럼 반응영역이 편재하는 것은 시간당의 처리량의 증가를 기도하는 경우에 애로가 된다. 이 점을 개량하는 시도로서 이미 다른 연구기관에 있어서 원통형 연면방전 리액터의 중심축 상에 배리어

방전전극을 배치한 연면·배리어 방전중첩방식⁴⁾ 및 같은 원통형 연면방전리액터 중심에 코로나 방전용 와이어를 배치한 연면·코로나 방전 중첩식⁵⁾이 제안되어 각각 어느 정도의 효율 향상이 인정된 것이 보고되고 있다.

본 연구에서 채용한 방식은 전술한 연면·코로나방전 중첩식의 일종이지만 기왕의 연구와는 다르며 주파수가변의 교류전원을 이용해서 연면방전의 전기적 조건을 변화시키고 있으며 더욱 코로나 전극으로서 텅스텐 침 어레이전극유닛을 사용함으로써 연면 및 코로나 양전극간에 안정한 상호작용이 생기도록 궁리하고 있다.

이번에는 NOx를 대상으로 그 분석 특성을 실험적으로 조사해 연면·코로나 방전중첩방식이 전력효율의 개선에 유효하다는 것, 나아가 그 효과는 연면 방전 측의 방전전력 및 주파수, 코로나 방전 측의 극성 및 인가전압의 영향을 받는 것 등을 밝혔다.

2. 실험장치 및 실험방법

본 연구에서 제작한 연면·코로나 복합형 반응기의 구조를 그림 1에 나타낸다. 연면방전 발생용으로는 판형 방전전극((주)増田연구소제. 이하 연면 전극이라 한다)을 코로나 방전발생용으로는 텅스텐 침상 전극을 1열 당 21개를 3열로 매립한 어레이전극((주)春日電機제. 이하 코로나 전극이라 한다)을 사용했다. 이들의 전극외관을 그림 2에 나타낸다. 양전극은 20mm의 간격으로 방전면을 대향시켜 배치되어 있다. 방전용 전원에는 고주파가변주파수전원(가변범위 5~15

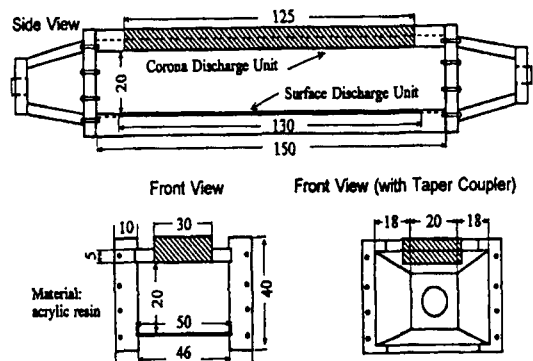


Fig. 1. Structure of plasma reactor combined with surface and corona discharge. [unit:mm]

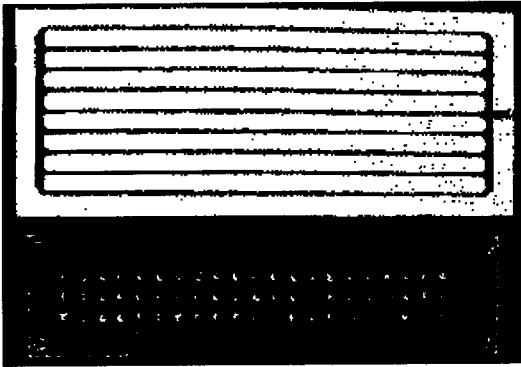


Fig. 2. Photograph of surface discharge unit(upper) and corona discharge unit(lower)

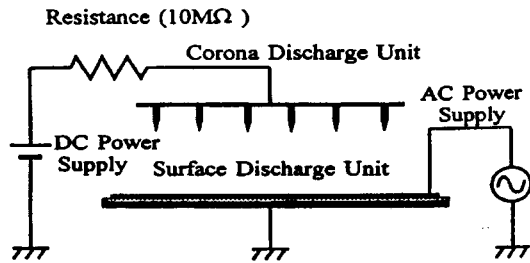


Fig. 3 Conceptual electric circuit of the experiment system

kHz) 및 직류고전압전원을 사용했다. 또한 직류전원과 코로나 전극은 스파크(불꽃방전)에 의한 양전극간의 교락을 방지하기 위해 10MΩ의 저항을 접속하여 과전류 대책을 행했다. 방전경로를 그린 개념적인 전기회로를 그림 3에 나타낸다.

실험용의 피 처리가스로서 NO를 질소 또는 공기를 베이스로 혼합한 모의 가스를 사용했다. NOx의 농도측정에는 화학발광식 NOx 농도계((주)島津제작소제NOA-7000)를 사용했다. 연면방전의 방전전력은 디지털오실로스코프에 전압 및 전류파형을 읽혀 컴퓨터로 그 적을 1주기에 걸쳐 적분하여 평균전력을 구했다.

또한 보고중의 처리가스의 분해율은 다음 식으로 정의되는 값이다.

$$\text{분해율} = (\text{처리전 농도} - \text{처리후 농도}) / \text{처리전 농도}$$

3. 실험 결과

3.1. 공기중에 있어서의 오존 발생특성

일반적으로 대기중에서의 방전은 필연적으로 오존의 생성을 수반하며 그 발생량은 플라즈마의 에너지 크기와 밀접한 관계가 있다고 알려져

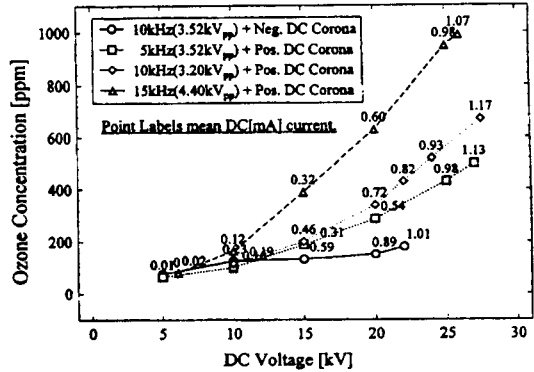


Fig. 4. Effect of superposition of two discharges on ozone generation (10kHz, 534ppm, 2 l /min)

있다. 그래서 순수한 건조공기를 시료가스로 하여 오존 발생량을 측정하고 연면전극의 구동주파수와 코로나전극의 인가전압의 영향을 조사했다. 그 결과를 그림 4에 나타낸다. 이 실험에서는 연면방전 만인 때에는 거의 오존을 발생하지 않는 저 레벨의 전압을 인가하고 연면전극의 구동주파수와 코로나 전압만 변화시키면서 측정된 것이다. 부 극성인 코로나 방전을 중첩한 경우 오존의 발생량은 거의 변화하지 않지만 정 극성인 코로나 방전의 경우에는 인가전압의 증가와 함께 오존 발생량도 증가하며 더욱이 연면방전의 주파수가 높을수록 증가율도 커졌다. 이처럼 부 극성코로나인 경우 방전화학반응에는 거의 영향을 미치지 않는다고 여겨졌기 때문에 이후의 실험에서는 부 극성 코로나를 쓰지 않기로 했다(실제로 예비실험에 있어서 부 극성코로나는 NOx의 분해에 거의 기여하지 않았다).

3.2. NOx 모의 가스의 분해특성

다음으로 질소(N₂)에 534ppm의 일산화질소(NO)를 혼합한 시료가스(모의 가스)를 반응기에 도입해서 분해를 시도했다. 정 극성 코로나 방전 만인 경우 및 연면방전 전극의 인가전압을 일정(약 5.04kVpp)하게 하고 코로나 방전을 중첩한 경우의 결과를 그림 5에 나타낸다. 코로나 방전 만 발생시킨 경우에는 NO는 거의 분해되지 않지만(최대 분해율 약5%) 연면방전과 코로나 방전을 중첩한 경우에는 코로나 전압의 상승과 함께 분해율(초기치 45%)이 조금씩 증가하여 코로나 전압 20kV인 때 86%에 달했다. 또한 전원 용량의 관계로 20kV를 넘는 전압을 가할 수 없

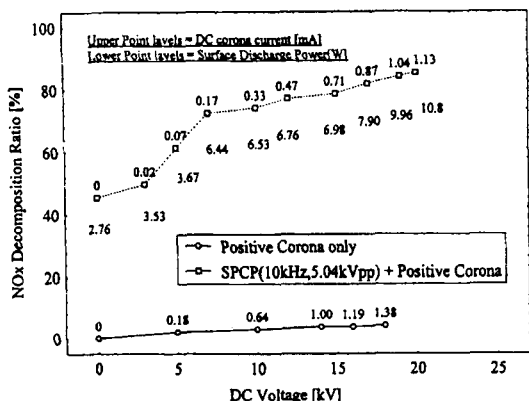


Fig. 5. Effect of superposition of two discharges on NO decomposition(1) (N_2 balance, 534ppm, 2 l/min)

었다. 같은 그림의 연면·코로나중첩시의 그래프의 위쪽 및 아래쪽에는 각각 코로나방전전류(직류, mA) 및 연면방전전력(W)이 기재되어 있다. 이들 값의 변화를 보면 코로나 전압을 증가하면 직류전류뿐만 아니라 연면방전 전력도 증가하고 있는 것을 알 수 있다. 코로나 방전만의 경우 방전전압을 증가시켜도 NO분해율이 저 레벨에 머물러 있는 것으로부터 연면방전의 개입이 분해 효율향상에 보다 많이 기여한 것으로 여겨진다.

그림 6은 모의 가스의 유량을 1~10 l/min의 범위에서 변화시키면서 방전중첩의 효과를 살펴본 것이다. 이 실험에 있어서는 연면방전전극의 주파수(10kHz) 및 인가전압(5kVpp 및 5.3kVpp), 코로나 방전전극의 인가전압(10kV)은 일정 값으로 유지되고 있다. 어느 유량에 있어서도 코로나 방전중첩에 의한 분해효율의 향상이 인정되어

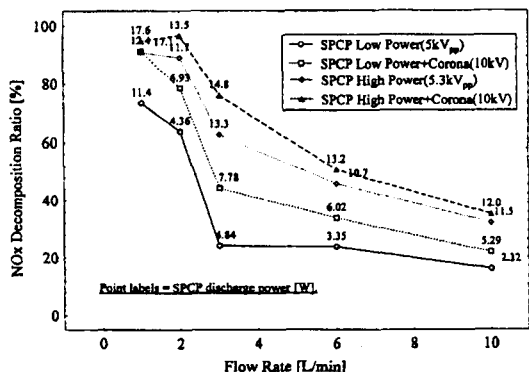


Fig. 6. Effect of superposition of two discharges on NO decomposition(2) (N_2 balance, 534ppm)

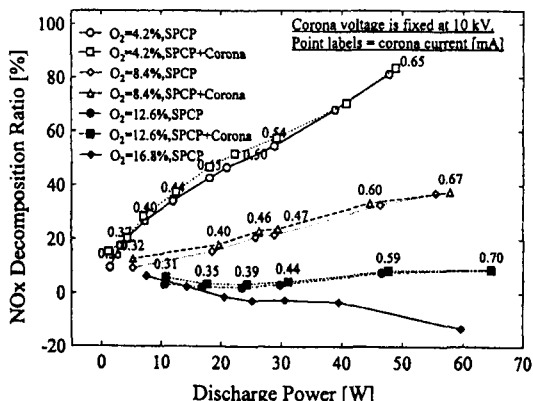


Fig. 7. Effect of superposition of two discharges on NO decomposition(3) (534ppm, 2 l/min)

역시 그림 5와 마찬가지로 코로나 방전의 중첩이 연면방전의 전력을 증가시킨다고 하는 특징이 보인다.

더욱이 실제의 배기가스에는 산소가 포함되어 있는 경우가 많은 것을 고려해서 모의 가스중의 산소농도를 4.2%~16.8%까지 변화시키면서 연면 방전과 연면·코로나 중첩(연면방전 주파수를 10kHz, 코로나 전압을 10kV로 고정)인 경우의 분해율과 방전전력과의 관계를 그림 7에 나타낸다. 산소농도가 높을수록 분해율이 저하하는 경향이 있지만 이것은 측정기가 NO 외에 NO₂ (이산화질소)를 가산해서 측정하기 때문에 NO의 분해시의 생성물의 하나인 NO₂가 가미된 결과로 여겨진다. 산소농도(4.2%, 8.4% 및 12.6%)가 어느 조건에서도 코로나 방전을 중첩하면 분해율이 향상하는 것 및 코로나 중첩효과는 연면방전의 방전전력이 작은 영역에서 보다 높다고 하는 결과가 얻어졌다.

4. 고찰

방전의 상태를 관측하면 코로나방전의 효과가 있다고 여겨지는 영역이라도 방전 스트리머가 반응기전체를 채운다고 하는 일이 없고 오히려 연면방전을 활발하게 하는 (방전전력이 증가한다) 현상이 보인다. 이 경향은 주파수가 높을수록 현저하게 되므로 이것이 상기 오존생성량의 결과에서 보이는 고주파영역에서의 방전화학반응의 촉진에 기여하고 있는 것으로 여겨진다. 이 주파수 의존성의 메커니즘의 해명에 대해서는

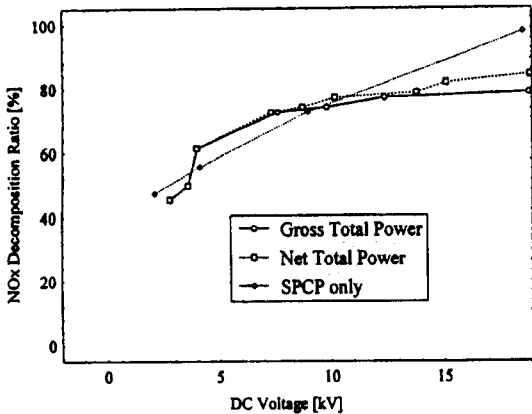


Fig. 8. Range in which energy efficiency of superposing reactor surpasses that of normal reactor

앞으로 과제로 예정하고 있다.

부 극성 코로나 방전을 중첩한 경우에 그 효과가 거의 보이지 않는 이유로서 코로나방전전극으로부터의 스트리머의 진전이 전혀 없거나 정극성 코로나와 같은 연면방전으로의 작용이 거의 보이지 않는 것을 들 수 있다.

시스템 전체의 전력효율(소비전력에 대한 분해량의 비율)의 개선이라고 하는 관점으로부터 연면·코로나 방전중첩의 효과를 평가하면 한정적이긴 하지만 유효하다고 판단할 수 있다. 예를 들면 그림 8은 그림 4에서 얻어진 연면·코로나 중첩시의 분해율과 별도 연면방전만으로 측정된 분해율과 방전전력의 관계를 나타내는 것이며 총 방전전력이 10W정도 미만의 영역에서는 연면·코로나중첩형 쪽이 효율이 높다는 것을 알 수 있다. 코로나 방전전력이 차지하는 비율이 더욱 커지면 반대로 연면방전 만인 때보다 효율이 저하한다고 하는 것로부터 코로나 방전 측의 전원용량은 작은 것으로 충분하다고 여겨진다. 또한 그림 8속의 Gross Total Power와 Net Total Power는 전자가 연면방전 전력에 직류 코로나전극의 인가전압과 전류의 적을 가한 것 임에 대해 후자는 이것으로부터 스파크 방지용 저항(10MΩ)에서의 전력의 손실 분을 뺀 것이다. 물론 후자의 경우인 쪽이 전력효율은 높아지지만 전술한 유효 범위 내에 있어서는 큰 차이는 보이지 않는다. 따라서 코로나 방전의 안정성(스파크발생이 적다)를 확보하기 위해서도 이러한 저항을 회로 중에 삽입하는 것이 유익하다고 여겨진다.

5. 결 론

방전화학반응을 이용한 유해물질처리시의 전력효율의 개선을 위한 목적으로 연면방전과 코로나 방전을 조합시킨 중첩방전형 플라즈마 반응기를 제작하여 그 특성을 실험적으로 조사했다. 그 결과 이하의 결론을 얻었다.

즉 이번에는 이러한 종류의 연구의 단서를 연다고 하는 의도였으므로 연면방전에 대해서 직류코로나방전만을 중첩한다고 하는 수법을 시도했지만 교류 또는 펄스의 코로나 방전을 중첩시킨 경우에 대해서도 전력효율의 향상이 가능성이 있다고 여겨지므로 앞으로의 검토과제로 할 예정이다.

(1) 연면방전의 구동주파수가 높을수록 정 극성코로나방전 중첩시의 오존 발생량의 증가는 크고, 부 극성코로나 방전은 오존 증가에 거의 기여하지 않는다.

(2) 정 극성 코로나 방전을 연면방전과 동시에 발생하는 것으로부터 NO의 분해율을 향상하는 것이 가능하였으며, 분해율 향상에의 기여도는 연면방전의 방전 에너지가 작을수록 큰 경향이 있다.

(3) NO의 분해에 있어서는 정극성 코로나 방전의 레벨을 적당한 값으로 함으로서 총합적인 전력효율의 개선이 가능하다.

참고문헌

- 1) 靜電氣學會編, 靜電氣ハンドブック、オーム社 pp. 27~129 (1998).
- 2) 山隈瑞樹, 大澤敦, 兒玉勉, 田島泰幸, 放電プラズ마化學反應を用いた有害物質の無害化, RIIS-RR-92, pp. 157~166 (1993).
- 3) S. Masuda, A Ceramic-Based Ozonizer Using High Frequency Discharge, IEEE Trans.on IA, pp. 223~231 (1988).
- 4) 伊藤泰郎, 放電重疊法によるプラズマリアクタの開發, 靜電氣學會研究會, IES 195-1-7, pp. 65~74 (1995).
- 5) S. Satoh, N. Katsuki, K. Hakiyai, S. Ihara, M.Ishimi, C. Yamabe, An effect of Superposition of Positive Streamer and Surface Discharge on Ozone Generation, 13th Ozone World Congress, Kyoto, Japan, pp. 865~869 (1997).