

방전 Plasma 반응에 의한 NO_x의 안전처리에 관한 연구

崔載旭[†] · 山隈 瑞樹^{*}

釜慶大學校 安全工學科 · *日本 勞働省産業安全研究所 物理工學安全研究部
(2000. 1. 25. 접수 / 2000. 4. 27. 채택)

A Study on Safety Treatment of NO_x by Discharge Plasma Reaction

Jae-wook Choi[†] · Mizuki Yamaguma^{*}

Department of Safety Engineering, Pukyung National University

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

(Received January 25, 2000 / Accepted April 27, 2000)

Abstract : In this experiment, we studied about concentration characteristics of NO_x and generation of ozone in the reactor of corona discharge type by using mixed gas of NO/N₂ and N₂/O₂. In the case of the initial NO concentration increased, decrease rate of NO concentration was weakened and discharge input power of minimum NO concentration became high. When NO concentration was high, NO decomposition limit was appeared. And NO reduction rate was decreased, when initial NO concentration and discharge input power increased. When discharge input power was 5W, we could know the most proper energy value for treatment of NO. When the concentration of initial NO increased, generation of ozone decreased and in the case of same concentration of NO, according to discharge input power increase, generation of ozone increased.

1. 서 론

경제의 발전에 따른 공업화와 도시화가 진행됨에 따라 화학공장의 plant와 자동차 등에서 발생하는 폐가스는 대기오염의 원인이 되어 환경의 파괴를 가져오고 있으며, 이에 대한 시급한 대책이 요망되고 있다. 대기오염의 가스 중에는 NO_x산화물과 CO, SO_x 등의 유해물질이 다량으로 함유되어 있다. 특히 NO_x는 산성비와 광화학 스모그를 일으키는 원인의 물질이므로 이를 분해처리하는 기술이 필요하다.¹⁻³⁾

연소에 의해서 발생하는 NO_x의 발생원은 공장의 plant에서 발생하는 고정발생원과 자동차 등과 같이 동력에 의해 움직이면서 배출되는 이동발생원이 있다. 최근 기술의 진보로 이들로 부터 발생하는 폐가스의 처리기술이 이용되고 있지만, 상온·상압상태에서 다량의 폐가스를 처

리하는 방법은 기술적으로 어려운 실정이다.⁴⁻⁶⁾

최근 플라즈마 반응에 의한 NO_x를 처리하는 연구가 활발하게 진행되고 있지만, 폐처리가스의 조성에 따라서 생성물의 농도가 크게 변화하기 때문에 이들에 대한 검토가 요구되고 있다.

플라즈마를 이용한 NO_x의 연구로는 Urashima 등⁷⁾은 반응기의 형태와 암모니아의 첨가에 의한 NO_x처리에 관한 연구를 하였으며, Veldhuizen 등⁸⁾은 메탄 버너의 가스연료로부터 펄스코로나 방전에 의한 NO 변환의 에너지 효율에 대하여 연구한 바 있다. 또한 Oda 등⁹⁾은 제올라이트 촉매를 응용하여 플라즈마 반응에 의한 질소산화물의 감소 효과를 연구하였으나, 아직 에너지에 의한 분해효과와 반응기의 저수명으로 인하여 계속적인 연구 및 기술개발이 요망되고 있는 실정이다. 그러므로 본 연구에서는 배기가스 중에 함유되어 있는 NO_x의 성분비가 90% 이상인 NO를 빠른 속도로서 NO₂로 반응처리시킬 수 있는 방법을 착안했다. 이는 침상전극을 취부한 플라즈마 반응기를 제작하여 장치의 특성을 실험적

[†]To whom correspondence should be addressed.
jwchoi@pknu.ac.kr

으로 조사하고, 유효성을 검증했다.

2. 측정장치 및 실험방법

본 연구에 대한 실험의 개략도는 Fig. 1과 같다. 실험을 위하여 코로나 방전형의 반응기를 제작하여 사용하였으며, Fig. 2에 나타내었다. 방전 발생용에는 침상전극을 1열당 21본을 3열로 배치하여 사용했다. 방전용 전원에는 고주파 가변 주파수 전원장치(HEL-30PN2-SA)를 이용하여 8~20KHz의 전류를 사용했다. 반응가스는 NO/N₂ 혼합가스(N₂:balance gas) 및 N₂/O₂혼합가스를 이용하였으며, 산소의 농도 조절은 N₂를 사용하였다. 또한 플라즈마 반응의 시험에 사용되는 혼합 가스는 시험가스 발생장치system(SEC-4400MC)인 가스혼합기를 통하여 정량적이고 균일하게 혼합하여 반응기에 도입하였다.

반응기내의 가스는 초기 NO농도를 설정하고 유속을 2 l/min으로 공급하였으며, NO와 NO_x (=NO+NO₂)의 농도측정은 NO_x분석계(shimadzu NOA 7000)로 행하였다.

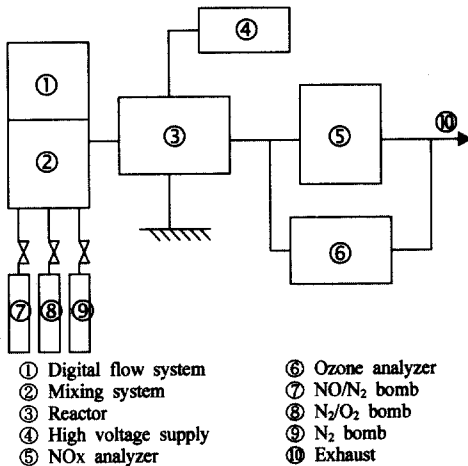


Fig. 1. Schematic diagram of the experimental system

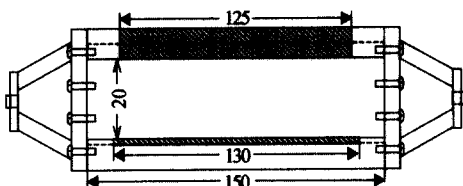


Fig. 2. Equipment of corona discharge reactor

반응에 의해서 생성되는 생성물질인 오존은 O₃농도 측정기(dasibi DY-1500)로 측정하였다.

3. 측정결과 및 고찰

3.1. NOx의 농도변화

Fig. 3, 4 및 5는 산소의 농도를 15%로 하고, 초기의 NO농도를 변화시켰을 경우에 방전주입 전력에 대하여 NO_x, NO 및 NO₂의 농도변화를 표시했다. Fig. 3은 방전부 주입전력이 1.8W일 때 NO농도는 23ppm에서 0ppm으로 급격하게 감소하였고, NO₂농도는 0.7ppm에서 21ppm까지 증가하다가, 서서히 감소하여 6ppm까지 하강하였다. NO의 감소는 플라즈마에 의하여 NO가 분해되어 활성질소와 활성산소 원자가 생성되기 때문이고, NO₂의 증가는 미분해된 NO가 생성된 활성 산소원자와 반응하여 NO₂가 생성되기 때문이다.

또한 방전부주입전력 1.3W에서부터 NO₂의 감소가 일어나고 있는 것은 방전주입전력이 높아짐에 따라 NO₂가 활성질소와 산소분자로 분해되기 때문이다.

Fig. 4는 동일한 산소농도에서 NO의 농도가 46ppm일 때 NO_x의 농도변화를 나타내었다.

방전부 주입전력이 6W일 때 NO농도가 46ppm에서 0ppm으로 감소하였으며, NO₂농도는 6.5ppm에서 40.5ppm까지 증가하다가 방전주입전력이

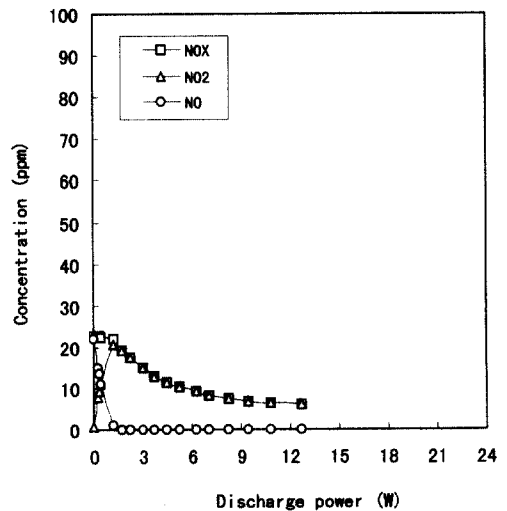


Fig. 3. Characteristics of NO, NO₂ and NO_x in corona discharge reactor (initial NO concentration = 23ppm)

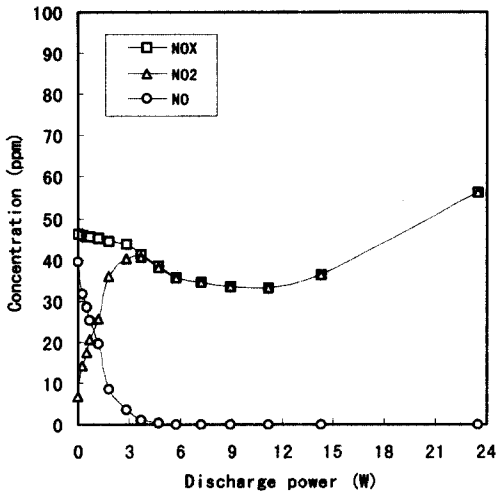


Fig. 4. Characteristics of NO, NO₂ and NO_x in corona discharge reactor (initial NO concentration = 46ppm)

4 ~ 11W 증가시 33ppm까지 서서히 감소하였다. 이는 NO의 감소는 Fig. 3과 동일한 결과로서 초기 NO농도가 높을 때는 방전주입전력이 높아져야 NO의 분해가 용이하고, 주입전력이 높은 11W에서 NO₂가 다시 증가하고 있는데 이는 반응기내에 공급되는 NO가 생성된 활성산소원자와 반응하여 NO₂가 생성되기 때문이다.

Fig. 5는 NO의 초기농도가 66ppm일 때의 결과를 나타낸 것으로 방전주입전력이 8W에서 NO의 농도가 최저상태인 8.5ppm으로 감소하

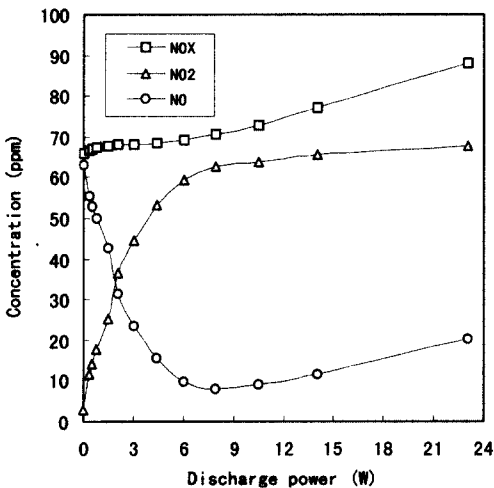


Fig. 5. Characteristics of NO, NO₂ and NO_x in corona discharge reactor (initial NO concentration = 66ppm)

다가, 방전주입전력이 증가할 수록 NO의 농도가 서서히 증가하였다. 이는 NO의 농도가 높을 때는 NO의 분해한계가 나타나고 있으며, 활성질소와 활성산소가 재결합하여 NO가 증가하는 것으로 생각된다. 또한 NO_x와 NO₂는 방전주입전력이 증가할수록 증가하고 있다. 이는 NO의 농도가 높을 때는 미분해된 NO와 재결합으로 생성된 NO가 플라즈마에 의하여 산소 분자가 활성산소원자로 된 이들과 결합하기 때문인 것으로 사료된다.

3.2. NO의 분해율

Fig. 6은 초기 NO의 농도와 방전주입전력량에 따른 NO의 분해율을 나타내고 있다. 초기 NO의 농도가 증가할 수록 NO의 분해율이 감소하고, 동일한 농도일 경우에 방전주입전력이 증가할 수록 NO의 분해율이 감소하고 있다. 이는 초기 NO의 농도가 증가할 수록 미분해된 NO의 양이 많고, 방전주입전력이 낮은 초기 2~3W에서 NO의 분해가 대부분 일어나고 있다.

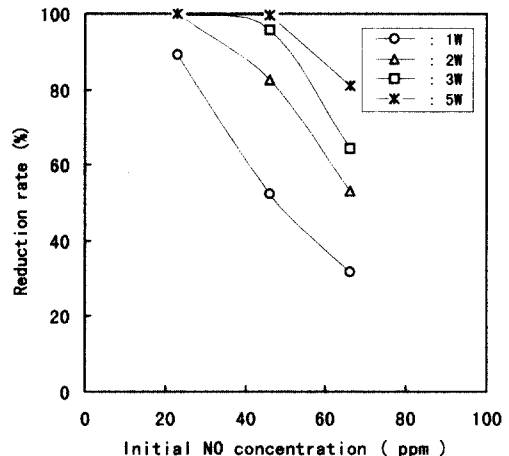


Fig. 6. Relation between initial NO concentration and reduction rate of NO

3.3. NO의 에너지 효율

NO의 분해는 방전주입전력의 초기에 많이 일어나므로, 방전주입전력의 5W에서 초기 NO농도 변화에 따라서 NO의 에너지 효율을 Fig. 7에 나타내었다.

초기 NO의 농도가 증가하면 NO를 분해하는데 필요한 에너지의 효율이 높고, 방전주입전력

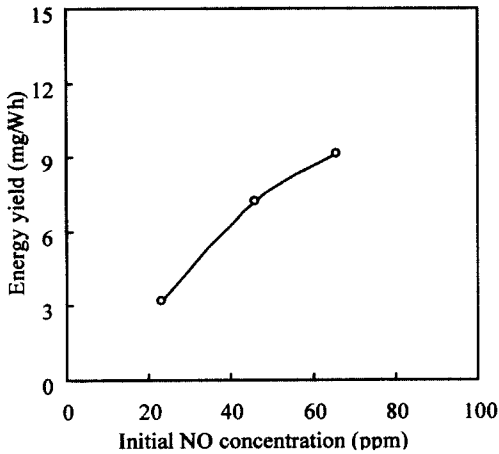


Fig. 7. Relation between initial NO concentration and energy yield of NO (corona discharge power 5W)

의 5W 이하에서 대부분 NO의 최저농도가 되므로 주입전력의 5W에서 NOx를 처리할 수 있는 가장 적당한 에너지의 값을 구하였다.

3.3. O₃의 생성

Fig. 8은 초기 NO의 농도와 방전주입전력의 변화에 따라서 O₃의 생성량을 나타내었다.

NO의 농도가 증가할 수록 O₃의 생성량이 감소하고, 동일한 NO의 농도에서 방전주입전력이 증가할 수록 O₃의 생성량이 증가하고 있다. 이는 NO의 농도가 증가할 때는 미분해된 NO와 활성

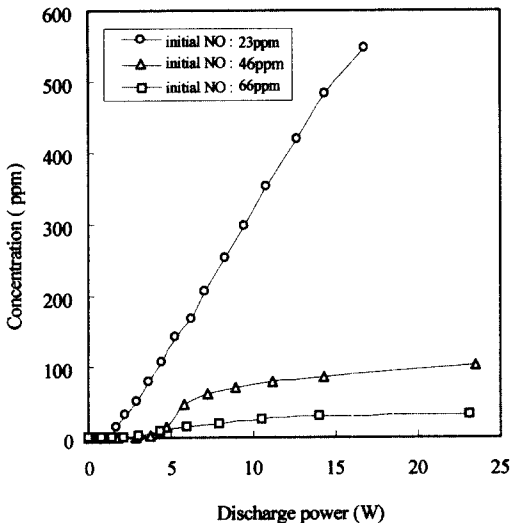


Fig. 8. Relation between discharge power and ozone concentration

산소가 결합하여 NOx가 증가하기 때문에 O₃의 생성량이 감소하는 것으로 생각되며, 이것은 3.1에서 증명되고 있다. 또한 방전주입전력이 높을 수록 O₃의 생성량이 증가하는 것은 NO가 방전플라즈마에 의해 분해된 활성산소가 산소분자와 결합하기 때문인 것으로 사료된다.

4. 결 론

코로나 방전형 반응기를 이용하여 NO/N₂ 및 N₂/O₂혼합가스를 사용한 NOx의 농도특성과 O₃의 생성량에 대하여 검토한 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

- 1) 초기 NO농도의 증가에 따라 NO의 감소율이 둔화되었으며, 최저 NO농도의 방전주입전력이 높았다.
- 2) NO의 농도가 높을 때는 NO의 분해한계가 나타남을 알았다.
- 3) NO의 분해율은 초기 NO농도와 방전주입전력이 증가할 수록 감소하였다.
- 4) 방전주입전력의 5W에서 NOx의 처리에 가장 적당한 에너지 값을 구할 수 있었다.
- 5) 초기 NO의 농도가 증가할 수록 O₃의 생성량이 감소하고, 동일한 NO의 농도에서는 방전주입전력이 증가할 수록 O₃의 생성량이 증가하였다.

참고문헌

- 1) J. S. Chang, T. Myint, A. Chakrabarti and A. Miziolek, "Removal of Carbon Tetrachloride From Air Stream by a Corona Torch Reactor", Jpn. J. Appl. Phys. Vol. 36, pp. 5018~5024, 1997.
- 2) R. Gasparik, M. Gasparikova, C. Yamabe, S. Satoh and S. Ihara, "DeNOx Characteristics of Tungsten and Copper Wire Electrodes in Wire-to-Plane Configuration under Condition of DC Streamer Corona", Jpn. J. Appl. Phys. Vol. 37, pp. 4186~4187, 1998.
- 3) 日本靜電氣學會編, 靜電氣ハンドブック, オーム社, pp. 79~88, 1998.
- 4) 이재희, 배성열, 임준혁, 이제근, "고온 배가스 처리용 Lanthanoid Perovskit형 촉매의 특성", 환경공학회 '98춘계발표회, pp. 150~151, 1998.
- 5) 吐合一徳, 谷口直樹, 猪原 哲, 佐藤三郎, 山部長兵衛, "大氣壓擴散狀グロー放電を用いたNO處理

- 特性”, 電氣學會誌, Vol. 119-1, pp. 25~30, 1999.
- 6) 伊藤泰郎, “放電を利用した環境改善-放電発生法を中心として-”, 静電氣學會誌, Vol. 21-1, pp. 2~4, 1997.
 - 7) K. Urashima, J. S. Chang and T. Ito, “Reduction of NO_x from Combustion Flue Gases by Superimposed Barrier Discharge Plasma Reactors”, IEEE Transactions on Industry Applications, Vol. 33, No. 4, 1997.
 - 8) E. M. van Veldhuizen, W. R. Rutgers and V. A. Bityurin, “Energy Efficiency of NO Removal by Pulsed Corona Discharges”, Plasma Chemistry and Plasma Processing, Vol. 16, No. 2, pp. 227~247, 1996.
 - 9) T. Oda, T. Kato, T. Takahashi and K. Shimizu, “Nitric Oxide Decomposition in Air by Using Non-thermal Plasma Processing with Additives and Catalyst”, Journal of Electrostatics 42, pp. 151~157, 1997.