

펄스 코로나 반응기에서 방전극의 배열에 따른 탈질을 연구

A Study on the NO_x Removal Rate by Arrangement of Discharge Electrode in Pulsed Corona Discharge Reactor

최 민 · 박 소 진* · 위 영 호

충남대학교 화학공학과

(2002년 12월 23일 접수, 2003년 3월 11일 채택)

Min Choi, So Jin Park* and Young Ho Wi

Chungnam National University, 220, Kung-dong, Yusung-ku, Taejeon 305-764, Korea

(Received 23 December 2002, accepted 11 March 2003)

Abstract

The goal of this study is the optimization of discharge electrode for pulsed corona discharge reactor located in thermal power plant. For this purpose, we have performed experiments of NO_x removal rate by exchange of discharge electrode diameter and arrangement of discharge electrode in the non-thermal plasma reaction facility using a ethylene as additive. If the diameter and numbers of discharge electrode were larger, the NO_x removal rate was higher. From these results, if we optimized the shape and installed numbers of discharge electrode at the pilot plant, we could increase the NO_x removal rate with less amount of additive than current amount.

Key words : Pulsed corona discharge, NO_x, Removal rate, Discharge electrode

1. 서 론

최근 각종 환경보호단체들에 의한 환경보전운동이 지속적으로 이루어지면서 많은 국민들이 환경에 대한 인식을 새롭게 하게 되었고, 국제적으로는 국경과 이념을 초월해서 모든 국가의 정부, 기업, 국민들이 공동으로 지구환경의 보전과 개발을 동시에 실현하려는 리우선언 이후, 환경보호는 국지적인 문제에서 범세계적인 문제로 확산되었고, 선진국을 중심으로 쾌적한 지구환경을 만들기 위한 다양한 국

제규약이 제정되고 있다.

지구환경보전 및 환경오염규제 강화추세에 따라 공해배출을 최소화할 수 있는 청정석탄이용기술(CCT; Clean Coal Technology)의 개발이 절실히 요구되고 있는 현 시점에 있어서 기존의 석탄화력을 대체할 수 있는 신 석탄화력 발전기술로 가압유동층 연소기술(PFBC; Pressurized Fluidized Bed Combustion), 미분탄연소+배연탈황기술(FGD; Flue Gas Desulfurization) 및 석탄가스화 복합발전기술(IGCC; Integrated Gasification Combined Cycle) 등이 선진 외국에서 상용화가 추진 중이며 우리나라에서도 각 기술별로 기반기술 연구 및 실용화에 대한 노력이 추진 중이다. 이러한 석탄이용 신 발전기술 이외에

* Corresponding author
Tel : +82-(0)42-821-5681, E-mail : sjpark@cnu.ac.kr

발전소 또는 대형 산업체 등에서 다량으로 배출되는 아황산가스 및 질소산화물을 효율적으로 저감시키기 위한 각종 제거기술들이 활발하게 연구되어 다양한 기술이 상용화되었거나 실증실험 단계에 있다.

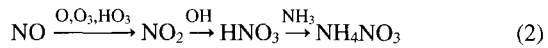
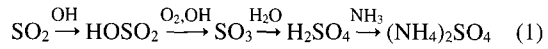
우리나라에서도 환경오염 방지시설의 설치로 인한 외화의 유출을 방지하기 위해서 발전소 또는 대형 산업시설에서 아황산가스 및 질소산화물 저감을 위해 습식 또는 건식 탈황설비의 개발, SCR 촉매를 이용한 탈질설비 개발, 저 NO_x버너 사용, 연소조건 개선 등과 같이 환경오염방지에 관련된 기술 및 공정의 개발에 많은 노력과 연구를 진행하여 많은 기술이 상용화를 위한 실증실험 단계에 있으나, 이러한 기술의 개발은 이미 선진국에서 상용화되어 있는 기술로 21세기에 선진국들이 보유하게 될 첨단 기술에 비하여 낙후된 기술이다. 따라서 첨단의 기술이 접목되는 환경오염방지기술에 대한 개발 및 실용화 연구는 국가경쟁력 강화를 위해서도 반드시 필요한 과제로 등장하고 있다. 그러므로 기존의 화학적, 물리적 처리방법에 비하여 높은 탈황/탈질율을 지니면서 설비의 설치 및 운영을 단순화하여 기존의 기술에 비하여 경제성이 높은 기술의 개발은 반드시 이루어져야 한다.

최근 21세기 환경기술로 떠오르는 분야가 플라즈마를 이용하는 기술의 개발이다. 환경기술에서의 플라즈마 공정은 고상 또는 액상 오염물질의 처리에 이용되는 고온 플라즈마 공정 (Thermal Plasma Process)과 가스상 오염물질의 처리에 이용되는 저온 플라즈마 공정 (Non-Thermal Plasma Process)으로 구분할 수 있다. 저온 플라즈마 공정은 가스상의 오염물질을 처리하는 공정으로 배연탈황/탈질 동시처리공정에서 주로 이용되고 있다.

본 연구의 플라즈마를 이용한 배연탈황/탈질 동시처리(플라즈마 동시처리)기술은 펄스 발생장치를 이용하여 생성되는 전자를 배가스에 전달하는 pulsed streamer corona discharge process로, streamer corona 방전을 이용하여 SO_x와 NO_x를 동시에 처리하는 기술이다.

플라즈마 공정에 의한 SO₂와 NO_x 제거반응식은 Luigi, C(1992)가 제시한 식(1)과 (2)의 메커니즘에 의해 간단하게 설명될 수 있으며, 산화되는 SO₂와 NO_x는 암모니아를 가하지 않고도 황산과 질산의 에어로졸 상태로 제거할 수 있으나, 첨가제로 암모

니아를 가할 경우, 중화반응을 거쳐 최종적으로 중화된 하얀색의 입자상 암모늄으로 변한다.



이렇게 생성된 염은 암모니아를 가하지 않은 에어로졸 상태보다 훨씬 잘 포집될 수 있을 뿐만 아니라 생성된 황산암모늄과 질산암모늄은 단비 혹은 복비 형태의 비료로 활용될 수 있는 장점이 있어 대부분의 플라즈마 공정에서는 암모니아를 첨가제로 가하여 입자상의 상태로 포집하는 공정에 대해 연구가 진행중에 있으며, 국내의 여러대학과 연구소에서 방전 플라즈마에 의한 NO_x와 SO₂의 제거에 관한 연구가 다양하게 진행되고 있다.

본 논고에서는 플라즈마 반응특성 실험설비에서 최적의 방전극간의 거리와 방전극 배열을 도출하기 위하여 실험한 전극간의 거리 및 배열에 따른 탈질율에 대한 결과를 발표하고자 한다.

2. 실험

2.1 플라즈마 반응특성 실험설비의 개요

본 연구를 위하여 제작한 플라즈마 반응특성 실험설비는 B화력발전소에 설치된 파일렛 플랜트의 원리와 동일하지만, 처리대상가스로 모사가스를 사용하는 점이 다르다. 플라즈마 반응특성 실험설비는 모사가스 발생/조절장치, 플라즈마 반응특성장치, 모사가스 처리용 Scrubber, 모사가스 조절설비 및 계측설비로 구분된다. 모사가스 발생/조절장치는 모사가스를 발전소 실 배기가스와 유사한 상태로 만들기 위하여 oil burner와 gas burner로 이루어진 연소로를 설치하여, 1,300 Nm³/hr의 가스를 발생시키도록 하였고, 주 배관으로 500 Nm³/hr의 가스가 일정하게 유입되도록 by-pass 배관에 용량 3kW의 fan을 설치하고, fan 전단에 유량조절용 valve를 설치하여 주 배관의 가스량을 조절하도록 하였다. 플라즈마 반응특성 실험장치는 크게 reactor와 impulse generator로 구분되는데, reactor는 반응관과 방전극으로 구분되며 방전극의 구조는 플라즈마 방전시 발생하는 reactor의 break-down 현상을 방지하고,

저주파수에서 높은 에너지를 배기가스에 인가하는 실험을 원활하게 하기 위하여 다양한 방전극 부착이 가능하도록 제작하였으며, 방전시 나타나는 각종 현상을 정확하게 파악하기 위하여 감시창을 8개 설치하였다.

2.2 반응특성 실험설비의 방전극 실험 내용

플라즈마 반응특성실험설비의 반응기 직경은 250 mm이고, 田春生(1980)의 방전·고전압공학에서 제시된 Meek의 streamer이론에 따라 처리대상 가스의 절연과피도를 높이기 위하여, 방전극의 직경을 다양하게 제작하여 반응기에 설치하면 전극간의 거리가 변화되므로 방전극 직경을 70 mm, 90 mm, 110 mm로 제작하였고, 각각의 방전극의 설치에 따라 전극간의 거리가 70 mm 방전극에서는 90 mm, 90 mm 방전극에서는 80 mm, 110 mm 방전극에서는 70 mm가 되며, 방전극의 배열은 그림 1과 같이 방전극 1개를 2단으로 하여 설치하였으며 이때 방전극의 길이는 모두 210 mm로 동일하였다. 또한 다양한 직경의 방전극 설치수량을 바꾸면서 방전극의 수량과 탈질율의 변화를 측정하였다. 즉 직경 70 mm, 길이 210 mm의 방전극을 그림 4와 같이, 방전극 직경 90 mm, 길이 210 mm의 방전극 4개를 사용하여 그림 7과 같이, 방전극 직경 110 mm, 길이 210 mm의 방전극을 사용하여 그림 10과 같이, 방전극 직경 90 mm, 길이 210 mm의 방전극 4개를 사용하여 그림 13과 같이 다양하게 배열하여 탈질율의 변화를 측정하였다.

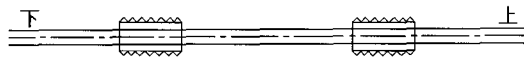


Fig. 1. Arrangement of discharge electrode used at diameter exchange experiment.

2.3 플라즈마 반응특성실험설비의 실험조건

모든 실험은 B화력발전소 배가스를 연돌입구에서 일부 분기시켜 유량을 500 Nm³/hr, 인입온도 90°C에서 NO_x 농도를 180~210 ppm 사이로 유지되도록 하였고, Akira. M 등(1992)의 실험 결과에 의거 Ethylene을 0, 1, 2, 3, 4, 5 lpm으로 주입하였으며, 펄스 전압 10 kV, 항전압 30 kV, 주파수 0.58 kHz로 고

정하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1 방전극의 직경변화에 따른 탈질율 변화

방전극의 직경을 변화시킨 전극간의 거리에 따른 탈질율의 변화는 그림 2에서와 같이 전극의 거리가 짧을수록(방전극의 직경이 클수록) 즉 방전극 직경이 70 mm인 경우보다 110 mm인 경우 NO의 제거율과 NO₂ 전환율은 약 10% 가량 상승하여, 전극간의 거리가 가까울수록 NO_x의 제거율은 약간 증가함을 확인할 수 있었다.

전극간의 거리변화에 따른 펄스 파형의 변화를 오실로스코프를 이용하여 측정하여 spread sheet

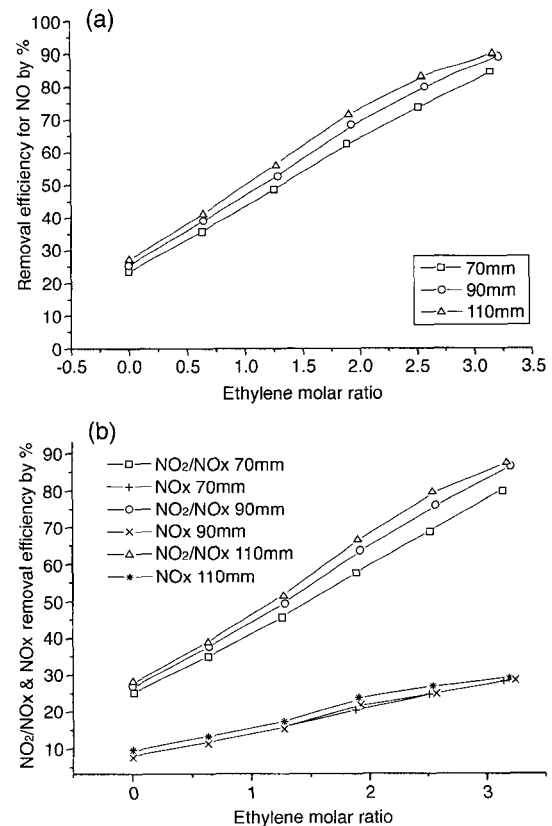


Fig. 2. Conversion rate of NO₂ and removal rate of NO_x with various diameters of discharge electrode.

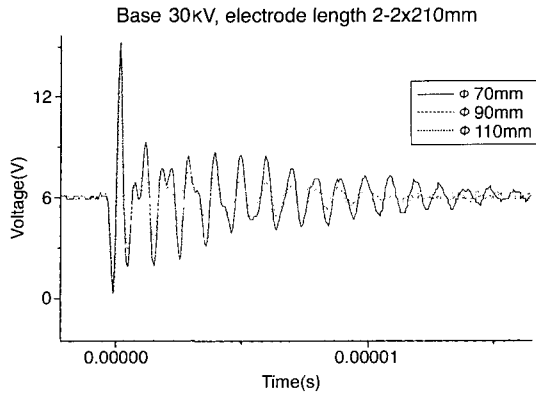


Fig. 3. After tremor by diameter exchange of discharge electrode.

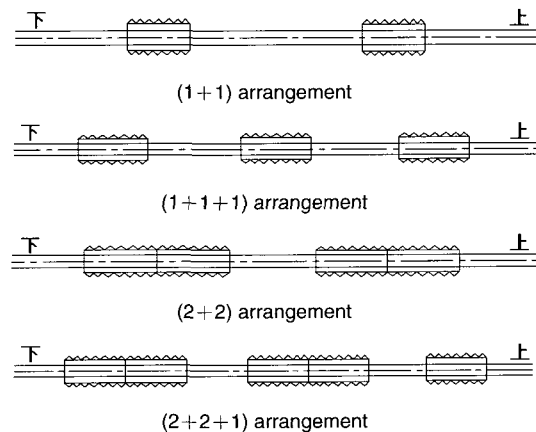


Fig. 4. Arrangement of discharge electrode in 70 mm diameter.

data인 CSV file로 저장하였다. 다양한 전극간의 거리에서 발생하는 펄스의 파형을 중첩하면 그림 3에서와 같이 펄스의 피크 전압은 전극간의 거리에 관계없이 거의 동일하지만, 전극간의 거리가 멀수록 피크 파형 이후에 나타나는 여진의 파고도 크고, 여진 길이도 길다는 것을 확인하였다.

플라즈마 반응특성 실험설비를 가동하면 방전파형은 피크 전압 이후에 여진이 발생되고 있었다. 첨가제를 주입하지 않는 실험에서는 인입가스의 온도가 높을수록 또한 항전압이 높을수록 여진의 파고가 낮아지고, 여진의 길이가 짧아졌으며, 여진의 파

고가 낮고, 길이가 짧을수록 탈질율이 향상되었다. 본 실험의 전극간의 거리에 관한 실험에서도 거리가 짧을수록 여진의 파고가 낮고 여진의 길이가 짧아졌으며, 탈질율도 향상되었다. 따라서 방전파형에서 나타나는 여진이 탈질율에 상당히 영향을 미치고 있으므로 여진의 파고를 낮게 하면서 여진의 길이를 짧게 하는 최적의 물리적, 전기적 조건을 도출하여야 할 것이다.

3.2 방전극의 설치 수량에 따른 탈질율의 변화

파이릿 플랜트 공정의 최적조건을 도출하기 위한 실험을 진행하던 중에 방전극의 배열에 따라 탈황/탈질율이 변화하는 것을 확인하고, 플라즈마 반응특성 실험설비에서 다양한 직경의 방전극 설치수량을 바꾸면서 방전극의 수량과 탈질율의 변화를 확인하

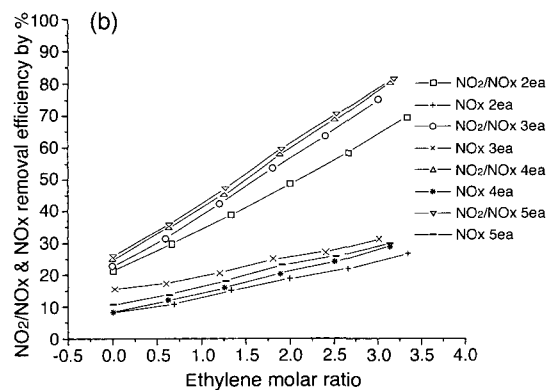
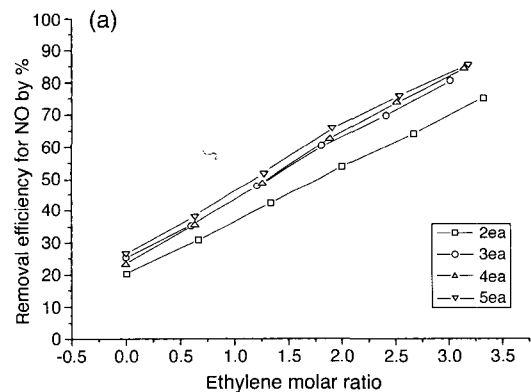


Fig. 5. Exchange of NO_x by numbers of discharge electrode in 70 mm diameter.

었다.

방전극의 직경이 70mm일 때에는 그림 5의 (a)에서와 같이 방전극의 수가 많을수록 NO 제거율이 높았다. 그러나 그림 5의 (b)에서 방전극의 설치수량이 많을수록 NO₂로의 전환율은 높지만, NO_x의 제거율은 방전극을 3개 설치하였을 때가 탈질율이 가장 높게 나타났고, 전체적으로는 전극이 많을수록 탈질율이 상승하였다.

전극간의 설치수량에 따른 펄스 파형의 변화를 오실로스코프를 이용하여 그림 6과 같이 중첩하여 방전파형을 분석하면, 피크 전압은 방전극의 수량에 관계없이 동일한 값을 갖으며, 방전극의 수가 적을수록 여진의 파고가 커지고, 여진의 길이는 거의 변화가 없었다.

직경 90 mm, 길이 210 mm의 방전극을 그림 7과

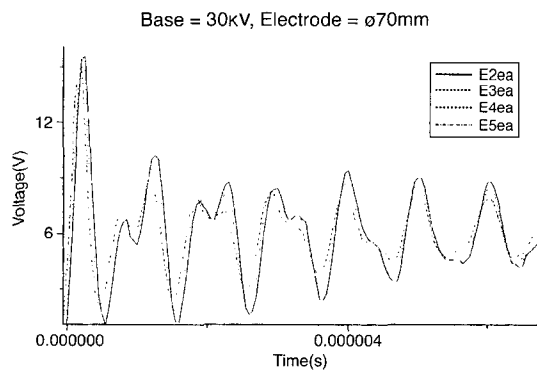


Fig. 6. Exchange of after tremor by numbers of discharge electrode in 70 mm diameter.

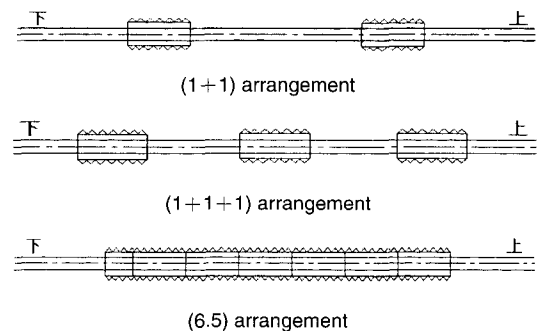


Fig. 7. Arrangement of discharge electrode in 90 mm diameter.

같이 배열하고 동일 조건으로 실험을 진행하였을 때, 그림 8의 (a)와 (b)에서와 같이 방전극의 수량이 많아지면 NO 제거율, NO₂ 전환율은 상승하는 것으로 나타났다. 그러나 방전극 설치 수량이 2개와 3개 설치한 경우는 탈질율이 동일하지만, 방전극의 수량을 6.5개 설치하면 탈질율이 5~10% 증가하였다. 전극간의 거리변화에 따른 펄스 파형의 변화를 오실로스코프로 측정하여 그림 9와 같이 중첩하면, 피크 전압은 방전극의 수량에 관계없이 동일한 전압을 나타내지만, 방전극의 수량이 증가하면 피크 파형 이후 여진의 파고가 낮고, 여진의 길이도 짧아졌다. 또한 방전극 직경 70mm에서 보다는 여진의 파고가 낮아졌다.

직경 110 mm, 길이 210 mm의 방전극을 그림 10과 같이 배열한 후 동일조건에서 실험한 결과 그림

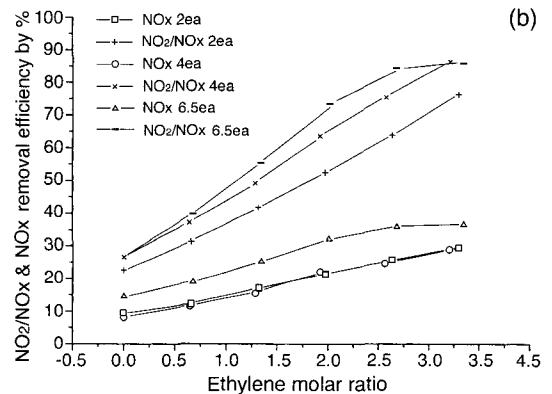
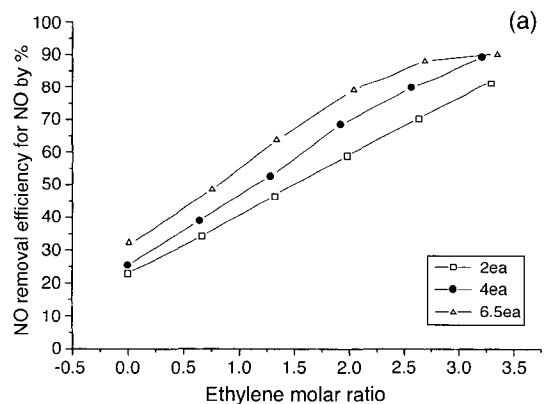


Fig. 8. Exchange of NO_x by numbers of discharge electrode in 90 mm diameter.

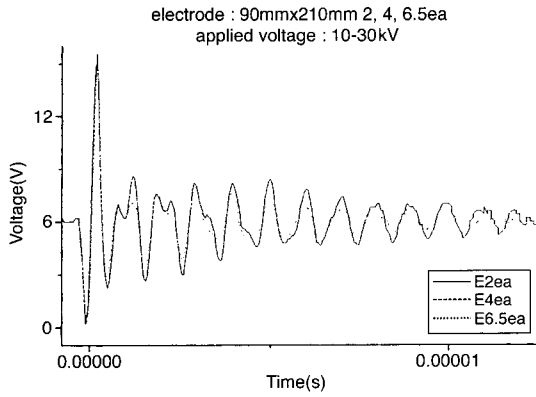


Fig. 9. Exchange of after tremor by numbers of discharge electrode in 90 mm diameter.

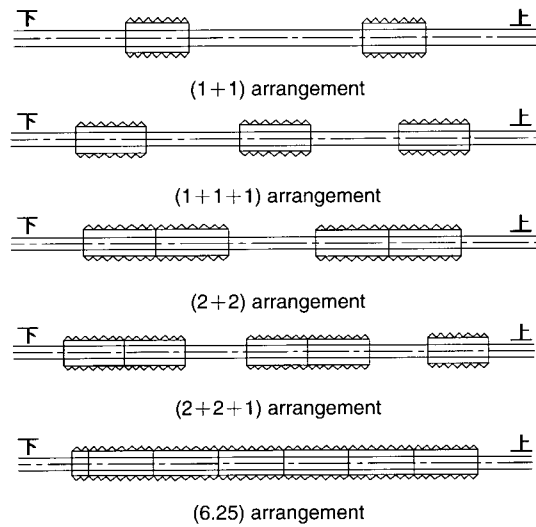


Fig. 10. Arrangement of discharge electrode in 110 mm diameter.

11의 (a)에서와 같이 방전극 설치수량이 많을수록 NO 제거율은 상승하였지만, 방전극 설치수량이 5개 이상이 되면 NO 제거율은 동일하게 유지됨을 확인할 수 있었다. 또한 그림 11의 (b)에서와 같이 NO₂의 전환율은 방전극의 설치수량이 증가하면 전환율도 증가하였다. NO_x의 제거율은 방전극의 설치수량 5개 이하에서는 거의 동일한 제거율을 갖지만, 방전극의 설치 수량이 5개 이상이 되면 설치수량을 5개

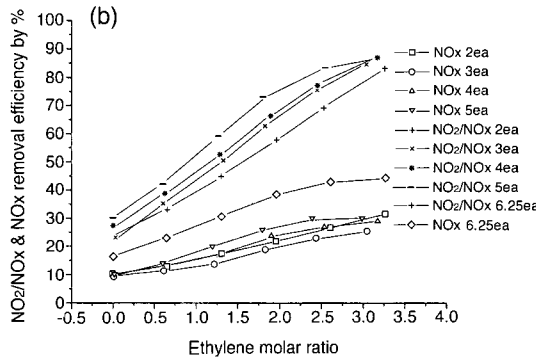
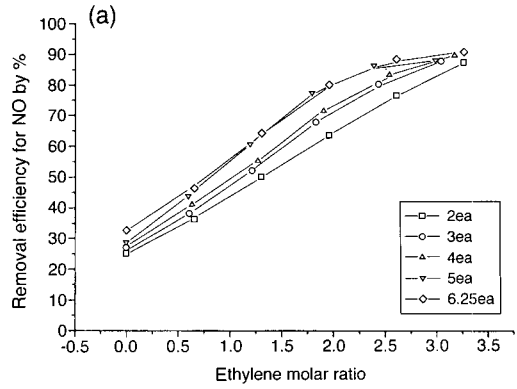


Fig. 11. Exchange of NO_x by numbers of discharge electrode in 110 mm diameter.

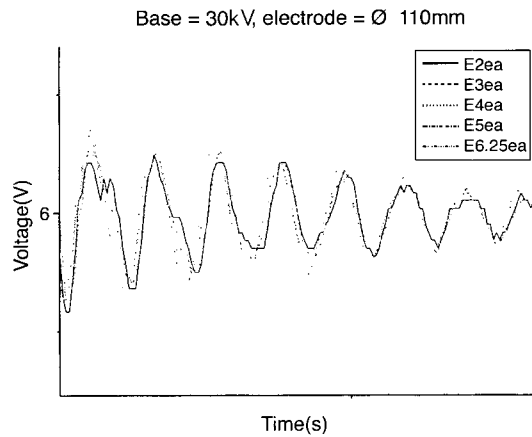


Fig. 12. Exchange of after tremor by numbers of discharge electrode in 110 mm diameter.

이하로 하였을 때보다 최고 10% 이상 탈질율이 상승하였다.

전극간의 거리변화에 따른 펄스 파형의 변화를 오실로스코프로 측정하여 그림 12와 같이 중첩하면 펄스 파형은 방전극의 수가 적을수록 여진의 파고 가 작고, 여진의 길이도 짧아졌다.

3.3 방전극의 배열에 따른 탈질율의 변화

플라즈마 반응특성실험설비에서 방전극의 직경과 설치수량을 변화하여 방전극의 직경과 설치수량에 따른 탈질율의 변화를 확인한 결과, 방전극의 직경이 클수록(양극, 음극 전극간의 거리가 짧아 질수록) 탈질율이 높아졌고, 방전극의 설치수량이 증가할수록 탈질율은 증가하였으나, 방전극의 직경에 따라 탈질율이 조금씩 다르게 나타나고 있다. 따라서 방전극 직경 90 mm, 길이 210 mm의 방전극 4개를 사용하여 그림 13과 같이 방전극을 배열하여 탈질율의 변화를 확인하였다.

NO 제거율과 NO₂ 전환율은 그림 14의 (a)와 (b)에서와 같이 방전극의 배열과 관계없이 비슷한 경향을 나타내었다. 즉 방전극의 배열에 관계없이 방전극의 설치수량이 동일하면, NO 제거율과 NO₂ 전환율은 거의 일정함을 확인할 수 있었다.

NO_x의 제거율은 (1+3), (3+1), (4), (2+2)와 같은 배열의 순으로 효과가 좋은 것으로 나타나고 있지만, 전극의 배열이 탈질율에 미치는 영향에 대하

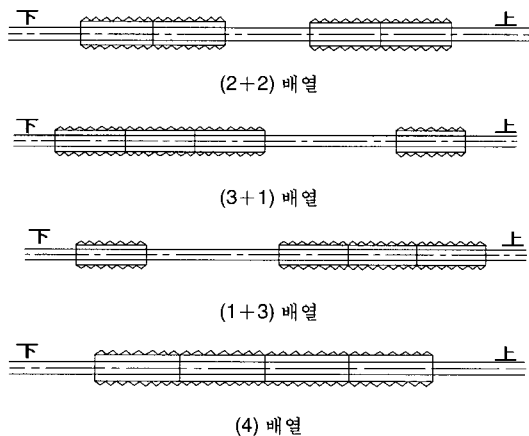


Fig. 13. Arrangement of discharge electrode.

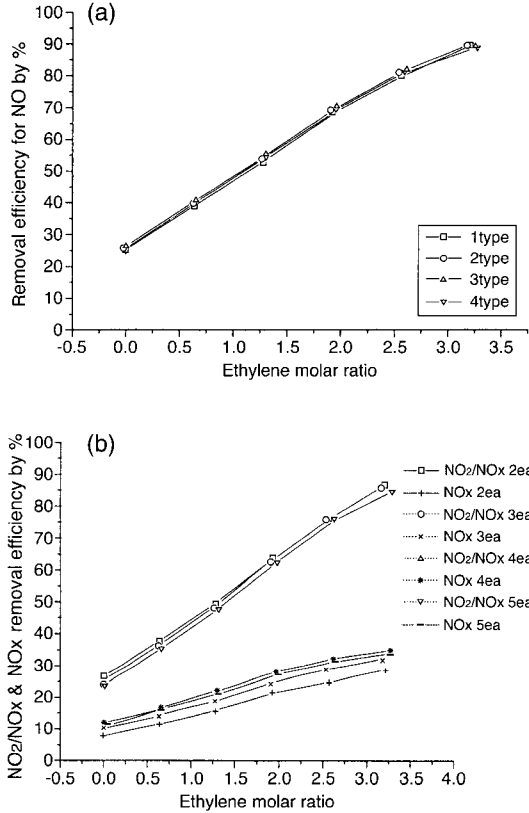


Fig. 14. Exchange of NO_x by arrangement of discharge electrode.

여 연구된 자료는 아직 발표되지 않았으며, 본 실험을 통하여 처음 확인되었다.

전극의 배열에 따른 펄스 파형의 변화를 오실로스코프로 측정하여 각각의 펄스 파형을 중첩하면 그림 15와 같이 펄스의 파형은 약간의 위상차가 나타나지만 방전극의 배열에 관계없이 동일한 펄스 파형을 갖고 있었다. 펄스의 파형이 배열에 따라 변화가 없는 것은 방전극이 동일한 규격과 형상을 갖으면, 방전극 한 개가 갖는 정전용량은 일정하고, 반응기와 방전극은 각각의 침에 대하여 병렬로 구성되므로 동일한 규격과 형상을 갖는 방전극을 설치할 때 방전극의 설치수량이 동일하면 방전극의 배열에 관계없이 반응기가 갖는 정전용량은 같게 되므로 배가스에 인가하는 에너지량도 동일하게 되어 그림 14에서와 같이 방전극의 배열에 관계없이 동

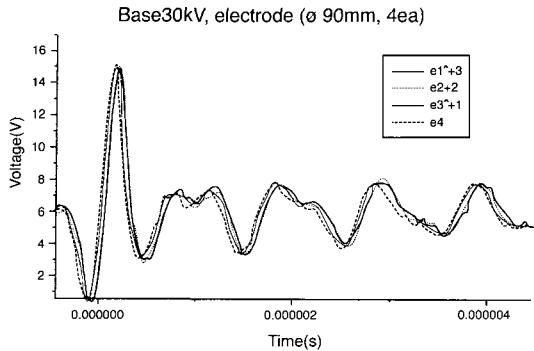


Fig. 15. Exchange of wave by arrangement of discharge electrode.

일한 NO제거율과 NO₂ 전환율을 갖게 되는 것으로 판단된다.

그러나 탈질율이 방전극의 배열에 따라 다르게 나타나는 현상은 탈질율이 방전조건 변수에 의한 영향보다는 방전영역 또는 배가스의 방전구간 통과 시간 등 다른 조건에 크게 영향을 받는 것으로 추정된다. 따라서 탈질율의 변화를 정확하게 분석하기 위하여는 반응기의 길이를 4~5 m로 길게 하여 전극간의 거리에 따른 탈질율의 변화와 배열에 따른 탈질율의 변화 및 방전구역의 변화에 따른 탈질율의 변화 등 다양한 실험이 이루어져야 할 것이다.

또한 H₂O 또는 NH₃ 등 첨가제가 존재하는 조건만을 변화시킨 상태에서 동일한 방법으로 실험하고 탈질율을 분석하여 보다 효율적인 설비의 운영조건을 도출하여야 할 것이다.

4. 결 론

플라즈마 반응특성실험의 첨가제로 Ethylene에 대한 실험을 진행하였으며, 플라즈마 반응특성실험은 주로 방전극의 직경변화 및 방전극의 배열에 따른 NO₂의 전환율에 대한 실험을 진행하여 다음과 같은 변화를 확인하였다.

1. 방전극의 직경을 변화시켜 전극간의 거리를 조정하면, 전극간의 거리가 짧을수록 NO 농도는 감소하고 NO₂가 증가하나, NO_x의 제거율은 동일하였다. 또한 전극간의 거리가 짧을수록 펄스 피크 전압이

높고 펄스의 여진도 짧아진다.

2. 방전극의 설치수량이 증가할수록 NO₂의 농도가 증가하며, 펄스 피크 전압이 크고 여진의 파고가 낮아지며, 여진의 길이는 짧아지는 것을 확인하였다.

3. 동일 직경 및 길이의 방전극 4개를 다양한 방법으로 배열하여 탈질율의 변화를 확인한 결과, NO의 제거율과 NO₂ 전환율은 방전극의 배열에 관계없이 동일하게 나타나지만, NO_x는 배열에 따라 제거율이 다르게 나타나며, 펄스의 파형은 배열에 관계없이 동일하게 나타나는 것으로 확인되었다.

4. 탈질율이 방전극의 배열에 따라 다르게 나타나는 현상은 탈질율이 방전조건 변수에 의한 영향보다는 방전영역 또는 배가스의 방전구간 통과 시간 등 다른 조건이 크게 영향을 받는 것으로 추정된다. 따라서 탈질율의 변화를 정확하게 분석하기 위하여는 동일한 조건에서 수분 또는 NH₃ 등 첨가제의 투입량을 변화시키면서 탈질율의 변화를 분석하여 보다 효율적인 설비 운영조건을 도출하여야 할 것이다.

플라즈마 반응특성실험설비에서 방전극의 변화실험을 통하여 탈질율이 향상되는 경우는 방전극의 직경이 클수록(양극, 음극 전극간의 거리가 짧아 질수록), 전극의 수량이 많을수록, 탈질율이 향상되었음을 확인할 수 있었다. 그러므로 파일렛 플랜트에서 방전극의 형상 및 설치수량을 최적화하면, 현재보다 적은 량의 첨가제 투입에서 탈질율을 향상시킬 수 있을 것으로 판단되므로 본 연구에서 다양하게 사용되는 파일렛 플랜트 플라즈마 동시처리설비는 매우 경제성이 높은 배가스 처리기술로 개발될 것으로 사료된다.

참 고 문 헌

강현춘, 우인성, 강안수(2000) 방전플라즈마에 의한 NO_x와 SO₂의 제거, 화학공학, 38(4), August, 529-535.
 김경숙, 양석란, 장경룡, 박태성, 임희문(2001) 플라즈마 공정에 의해 생성된 부산물의 분석, 화학공학, 39(3), June, 357-360.
 노재식(1999) 21세기 환경문제의 새로운 조명, '99환경과학기술 Workshop 발표집, 한국과학기술단체총연합회, 12, 9-21.

- 류청걸, 위영호, 이중범 (1999) IGCC용 고온건식 탈황제 개발 연구동향(II), 화학공업과 기술 한국화학공학회, 17(1), 41-52.
- 한영옥 (1997) 플라즈마를 이용한 배연탈황·탈질 동시처리기술, 제2차 배연탈황/탈질 동시처리기술 워크샵전력연구원, 7. 14.
- 田春生 (1980) 방전·고전압공학, 동명사, 10, 77-87.
- Masahiro, I. and O. Rikako (1997) Final Stage Development to Commercialize EBA Process, Non-thermal Plasma Technology for Gaseous Pollution Control, Proceedings of the Second International Symposium, August 11-15, 410.
- Norman, W.F. and H. Shinichi (1993) The History of Electron Beam Processing for Environmental Pollution Control and Work Performed in the United States, Non-thermal Plasma Technology for Pollution Control, part B: 187.
- Luigi, C. (1992) Industrial Application of Pulsed Corona Processing to Flue Gas, NATO Advanced Research Workshop on Non-Thermal Plasma Tech. for Pollution Control, England, September 21-25, 116-118.
- Akira, M., A. Chakrabarti, and O. Ken (1992) Application of Corona Technology in the Reduction of Greenhouse Gases and Other Gaseous Pollutants, NATO Advanced Research Workshop on Non-Thermal Plasma Tech. for Pollution Control, England, September 21-25, 170-172.