한국환경과학회지 제12권(제12호), 1261~1267, 2003
J. of the Environmental Sciences

충격식 코로나 방전 플라즈마를 이용한 배연가스로부터 먼지제거에 대한 특성

김 은 호
창원대학교 환경공학과
(*2003*년 *12*월 *4*일 접수; *2003*년 *12*월 *22*일 채택)

The Characteristics of Dust Removal in Flue Gas by the Plasma of Impulse Streamer Corona

Ean-Ho Kim
Department of Environmental Engineering, Changwon National University, Changwon 641-773, Korea
(Manuscript received 4 December, 2003; accepted 22 December, 2003)

On the basis of the distribution of particle size measured by laser diffraction spectrometers, this research was carried out to investigate the characteristics of mist removal with the change of operating condition in the plasma reactor of impulse streamer corona. The operating parameters in this experiment were power of impulse streamer corona, gas velocity, impulse generation time, gas temperature, and SOx/NOx concentration. The collection efficiency T(d) was estimated by the distribution of particle size in the collection zone through the advanced model.

Key words : Plasma of impulse streamer corona, Distribution of particle size, Laser diffraction spectrometers

1. 서 론

입자상 물질인 먼지, 에어로졸, 콜로이드 물질과 가스상 물질 등에 함유된 미세한 입자들을 제거하기 위해서 고성능의 대기오염 제어장치들이 개발되어지고 있다. 입자상 물질을 제어하는 플라즈마 기술 및 여러 제거시설을 이해하는 데는 입자가 물리, 화학적으로 변화하는 기본적인 원리를 이해하는 것이 중요하다. 이들의 플라즈마 장치에서 실행되는 운전상의 특성과 제거율을 효율적으로 결정하는 것이 장치개발 보다 힘든 과제이다. 입자상 물질들의 다양한 교환 작용에 따라 입자크기는 다양하게 변형되므로 전처리 과정을 거치지 않고는 입자크기를 정확하게 나타낼 수 없다. 입자들은 여러 공정을 거치는 동안 다양한 교환작용에 의해서 변화되므로 미세한 입자를 제어하는 과정의 효율을 정확하게 측정하기란 쉽지 않다[1]. 본 연구에서는 플라즈마 장치에서 미세한 입자 제거효율을 평가하기 위한 새로운 모델개발과 운전특성 조사를 위해서 입자분포경의 변화를 측정하는 분체공학적인 실험을 수행하였다. 실험의 조건은 플라즈마 방전시간, 가스속도, 가스온도 등이며 본 연구에서는 이들 변화에 따른 영향을 조사하였다. 그리고, 집진 효율을 효율적이고 정성적으로 평가하기 위해서 새로 개발된 모델은 기존의 모델과 다른 매개변수를 이용하여 연구되어졌다.

Corresponding Author : Ean-Ho Kim, Department of Environmental Engineering, Changwon National University, Changwon 641-773, Korea
Phone : +82-55-279-7560
E-mail : kimeanho@hanmail.net

2. 이론적 배경

플라즈마 장치내에서 제거효율을 정성적으로 평가하기 위해서 유입부, 유출부, 포집부의 입자분포 변화를 측정하여 제거된 입자량을 계산하였으며, 입자분포도를 구하기 위해 플라즈마 장치에 연결된 He-Ne 레이저회절장치(Helos laser diffraction spectrometers)를 이용하여 입자크기 변화를 분석하였다. 플라즈마 장치의 운전조건에 따른 반응특성 관계를 효율적으로 평가하기 위해서 사용된 레이저 회절장치의 원리는 Fraunhofer 이론을[2,3] 적용하여

제작되었고, 입자분포도는 플라즈마 장치내에서 채취된 시료를 측정 셀(Cell)에 주입하여 분석된 레이저강도에 의해 계산되어진다. 레이저강도 I(r, d)는 측정 셀내에 분포하는 입자수, 입사되는 레이저강도 I_o, 렌즈의 초점거리 f, 빛의 파장 λ, Detector의 반경 r의 값에 따라 결정된다.

$$I(d) = \int_{d_{min}}^{d_{max}} N_t \, q_o I(r, d) dd \tag{1}$$

플라즈마 장치에 분석장치를 온라인 시스템으로 연결하여 입자분포에 따라서 측정된 레이저강도 변화를 나타내는 식 (1)을 이용하여 입자분포수 q_o가 계산되어진다. 식 (1)에서 계산된 입자수분포도는 식 (2)와 같이 질량분포도로 전환할 수 있다.

$$q_3(d) = \frac{d^{-3} \, q_0(d)}{\int_{d_{min}}^{d_{max}} d^{-3} \, q_0(d) dd} \tag{2}$$

여기에서, $q_3(d)$는 입자질량분포경, $q_0(d)$는 입자수분포경을 나타낸다. 식 (1)의 관계에 따라 측정된 입자분포경의 곡선 변화에 의해서 플라즈마 장치의 운전조건에 따른 제거율의 변화를 정성적으로 평가할 수 있다. 플라즈마 반응과정에서 유입, 유출부와 포집부의 입자분포경의 결과를 이용하여 장치의 포집효율을 정성적으로 평가하기 위해서 입자제거율, T(d)를 정성적으로 나타내는 모델이 식 (6)과 같이 국내에서 처음 시도되었다.

$$Q_A(x) = g \, Q_G(x) + f \, Q_F(x) \tag{3}$$

여기에서, g는 포집부 입경분포량이고, f는 유출부의 입경분포량을 나타낸다. 식 (1)의 분포경에서 적분으로 치환하여 누적분포경의 형태로 치환하여 식 (3)과 (6)에 사용되어진다.

$$g = \frac{Q_A(d) - Q_F(d)}{Q_G(d) - Q_F(d)} \tag{4}$$

$$f = \frac{Q_A(d) - Q_F(d)}{Q_F(d) - Q_G(d)} \tag{5}$$

$$T(d) = g\frac{Q_G(d)}{Q_A(d)} = B1 - f\frac{Q_F(d)}{Q_A(d)} = \frac{g \, Q_F(d)}{g \, Q_G(d) + f \, Q_F(d)} \tag{6}$$

3. 실험장치 및 방법

본 연구를 위하여 사용된 실험장치는 전원공급설비, 충격식 발생장치(Impulse Generator), 반응장치(Reactor), 포집부(Bunker) 등 주요 반응설비와 냉

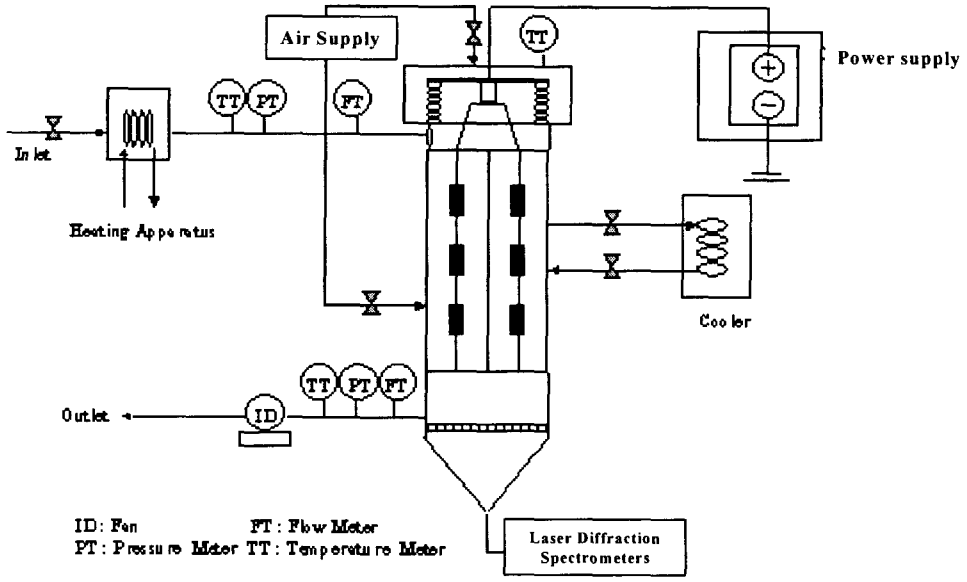

Fig. 1. Schematic diagram of plasma reactor.

각기, 열 교환기, 전압계와 전류계, 레이저회절장치, 온도, 압력, 유량측정기 등의 설비로 구성되어 있으며, Fig. 1은 B화력발전소의 배연가스 속에 함유된 미세한 입자와 NO_x/SO_x를 동시처리하기 위한 플라즈마장치 개략도이다. 실험에 사용된 배기가스는 B화력발전소의 전기집진장치에서 유출되는 일부분의 실제 배기가스를 이용하였다. 실험장치내에 배기가스가 주입되기 전/후의 온도, 압력 및 유량, 충격코로나 전압, 전류 등의 특성 변화에 따른 미스트 제거율을 포집부에서 미스트의 입경 크기를 측정하여 나타난 분포곡선의 변화로 분석하였다. 본 연구에서 플라즈마를 발생시키는 충격식 발생장치는 회로내에 방전자를 설치하고 방전자 내부의 전압차를 이용하여 최저 10~35kV, 최고 50~80kV로 조정이 가능하고, 파장이 200~500nsec, 주파수가 0.5~2.3kHz의 범위로 조절이 가능하도록 제작되었다. 충격식 발생장치를 이용하여 반응장치 내벽으로 양전위 충격전압(Positive Impulse Voltage)을 공급해 줌으로써 방전이 발생되게 하였으며 이때 최고 전압은 80kV에 이른다. 반응장치 상·하단의 판에 고정된 밸브를 조절하여 처리용량 및 처리가스 속도를 조절하였고 가스온도는 냉각장치와 열 교환기를 이용하여 조절하였다.

B화력발전소에서 배출되는 배기가스의 성분은 발전설비의 운전조건에 따라서 다양하게 배출되어진다. 따라서, 배연가스에 함유된 NO_x와 SO_x의 성분이 미세한 입자상 물질의 제거에 미치는 영향을 조사하기 위해서 가스분석기(모델명 : France Seres)로 배연가스내 NO_x와 SO_x의 함유량을 분석하였고, 배기가스내 함유된 NO_x와 SO_x의 농도가 미스트의 제거에 미치는 영향을 조사하였다. 본 연구의 실험변수와 충격식 코로나방전 실험장치의 운전조건은 Table 1과 같다. 실험에 사용된 배기가스의 농도는 B화력발전소에서 배출되는 배연가스의 농도 중 SO_x와 NO_x 농도가 상대적으로 최대와 최저치가 되는 대표적인 배출 상태를 선택하여 사용하였다.

Table 1. Experimental conditions

Type of experiment / Experimental condition	Impulse streamer corona
Operating time (min.)	30~210
Voltage of impulse streamer corona (kV)	10~80
Gas speed (m/s)	1.4~2.0
Temperature (oC)	40~140
Concentration of flue gas (ppm)	SO_2 323/NO 178
	SO_2 230/NO 157
	SO_2 100/NO 167
	SO_2 25/NO 212

4. 결과 및 고찰

4.1. SO_x와 NO_x의 농도 영향

플라즈마 발생장치에서 미세 먼지입자의 제거율은 Ha-Pahl 모델을 적용하여 식 (6)의 관계에 의해서 계산되어졌다. 포집부의 입자분포량 g와 유출부의 입자분포량 f는 레이저 회절장치를 이용하여 측정된 유입부의 입자분포경 $Q_A(d)$, 포집부의 입자분포경 $Q_G(d)$와 유출부의 입자분포경 $Q_F(d)$를 식 (4)와 식 (5)에 대입하여 계산되어졌다. 계산결과를 식 (6)에 대입함으로써 플라즈마 장치에서 제거될 수 있는 입자경의 변화를 정성적으로 평가할 수 있다. Fig. 2는 배기가스 온도 90°C, 배기가스 유속 1.4m/s와 충격코로나 방전전압 60kV로 공급한 조건에서 유입, 유출과 포집부의 입자분포경을 측정하여 Ha-Pahl 모델에 적용하여 구한 제거율의 변화를 나타내었다. 이 결과에서 보면 입자크기 0.8 μm는 50% 이상 제거됨을 알 수 있고, 1 μm 이상의 입자크기는 90% 이상 제거됨을 알 수 있다.

충격식 코로나방전에 의하면, 배기가스 속에 함유된 화학종이 이온(Ion)이나 라디칼(Radical) 등과 같은 활성화된 입자들로 변환되어 미스트가 제거된다. 본 연구에서는 배기가스에 포함된 SO_2와 NO_x의 농도변화에 따른 미스트 제거율 변화를 조사하였다. 충격식 코로나방전에 의해 인가된 에너지에 의해서 O_2, N_2와 H_2O 등이[5] 높은 에너지를 갖는 라디칼로 바뀌고 플라즈마 반응기를 통과하면서 SO_2와 NO_x와 반응한 후에 수증기와 결합됨으로서 미세입자가 상호응집되어 미스트가 제거된다[6].

다시말해, 배연가스 중에 함유된 SO_x/NO_x 가스 성분이 플라즈마 반응에 의해서 생성된 라디칼과

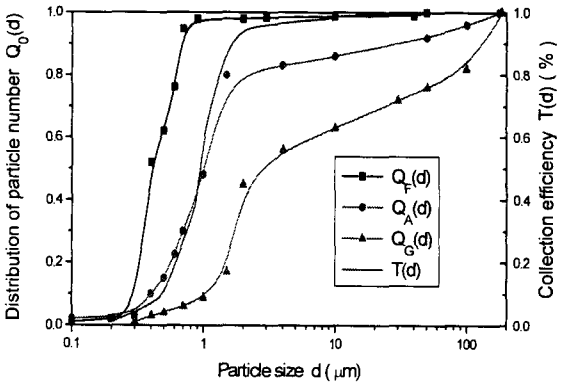

Fig. 2. Comparison of calculated results by new model with experimental results of the distribution of particle number at the discharge process of impulse streamer corona.

반응하여 분해되는 동시에, 미세한 입자가 큰 입자 형태로 응집침강하거나 점착현상에 의해 제거된다.

배연가스에 함유된 SO_x/NO_x의 혼합상태에 따른 입자변화를 조사하기 위해서 B화력발전소 배연가스 중에 SO_2와 NO_x 농도가 상대적으로 최대치인 경우에서 실험을 수행하였으며 이때의 레이저회절장치의 분석조건은 3bar, 렌즈의 초점거리 100mm이었다.

Fig. 3은 배연가스에 함유된 SO_x/NO_x 농도변화에 따른 입자질량분포경 q_3의 변화를 나타내고 있다. 이 결과에서 보면 SO_2의 농도가 높을수록 미세입자의 질량분포량은 감소하였고 큰 입경분포는 증가하였다.

플라즈마 반응에 의해 생성된 라디칼에 의한 SO_2의 산화율이 NO_x 보다 높기 때문에 미스트와 결합하는 율은 SO_2 농도에 따라 큰 영향을 받게 된다. 다시말해, SO_2 성분이 플라즈마 반응에 의해 SO_3로 전환되어 미세입자와 결합하는 속도가 NO가 NO_2로 전화되는 속도 보다 빠르기 때문에 SO_2의 농도가 미세한 입자를 미스트로 형성되는 과정에 더 큰 작용을 하게 된다.

Fig. 4는 배연가스에 함유된 SO_x/NO_x 성분조건에 따라서 플라즈마 반응에 의하여 입자상물질이 제거되는 량을 추정하기 하기 위해서 입자크기 변화를 측정하여 식 (6)에 대입하여 나타낸 실험결과이다. 운전조건이 일정한 상태에서 입자가 제거되는 변화를 보면 SO_2 농도가 높고 NO 농도가 낮은 상태의 배기조건일 때 1 μm 이하 입자의 제거율이 90% 이상인 반면에 NO 농도가 높고 SO_2 농도가 낮은 조건에서 80% 제거율로 나타났다.

4.2. 운전조건 변화에 따른 결과

플라즈마 운전조건인 플라즈마 공급시간, 가스공급속도, 충격 코로나 방전전압과 가스공급온도의 변화에 따른 포집부에서 제거된 입경분포를 조사하였다. 먼저, 플라즈마 공급시간 변화에 따른 실험결과를 나타낸 것이 Fig. 5이다. Fig. 5에서 플라즈마 공급시간 40분 보다 240분 조건에서 큰 입자분포수가 많음을 알 수 있다. 플라즈마 공급시간을 증가시킴에 따라 플라즈마 반응에 의해 형성된 라디칼과 입자간의 점착력 증가로 배기가스 내에 함유된 미세한 입자의 부착력이 증가하기 때문에 큰 입자분포수가 운전시간 증가에 따라 증가하는 결과를 나타낼 수 있다[1].

Fig. 6은 가스공급속도 변화에 따른 입자경분포를 나타내고 있다. 본 실험에서 유속 1.0~2.0m/s로 변화시켰으며 가스온도 90°C, 가스동점도 22.5~10 ^{6}m^2/s에서 레이놀드수는 12,000~27,890 범위로 계산되었다. 이 결과에서 흐름형태는 난류 상태로 간주할 수 있으며, 흐름의 저항은 유속이 증가할수록 증가하고, 가스흐름은 동역학적 에너지를 가지게 된다[1,4].

일반적으로 유속의 증가는 미세한 입자를 함유한 배기가스의 플라즈마 장치내 체류시간을 감소시키므로, 플라즈마 반응에 의해 발생되는 미세입자의 점착력이 감소하게 된다.

Fig. 6에 나타낸 바와 같이, 가스공급 속도의 변화에 따른 입자수분포경의 변화를 보면 입자크기가 0.3 μm 이상의 입자크기 범위에서 흐름속도의 감소에 따라 입자수 분포도가 강하게 증가함을 볼 수 있다. 이 결과에서 보면 충격코로나 방전전압이 같은 조건에서 공급속도가 낮은 상태에서 입자의 응집상태가 양호함을 알 수 있다.

0.5 μm 이상의 입자수 분포도에서 가스속도가 1.4m/s일 때는 10 μm 이상의 입경분포율이 100%

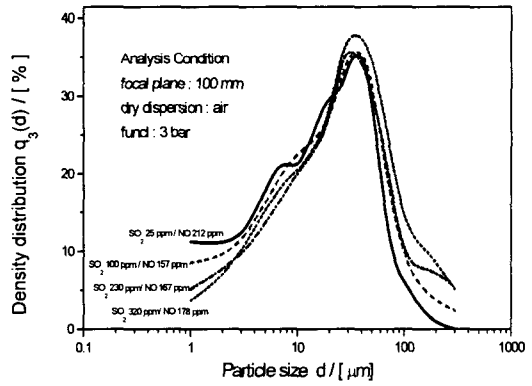

Fig. 3. Variation of density distribution of particle size with SO_2/NO concentration in impulse streamer corona discharge.

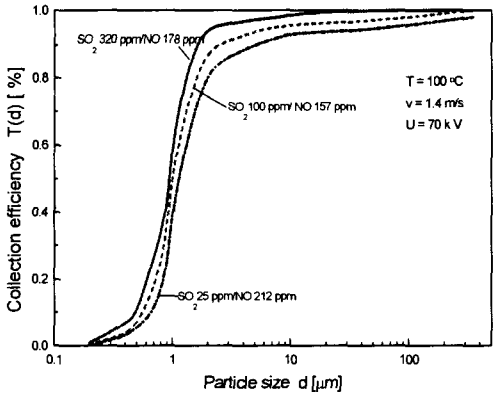

Fig. 4. Variation of collection efficiency with SO_2/NO concentration in impulse streamer corona discharge.

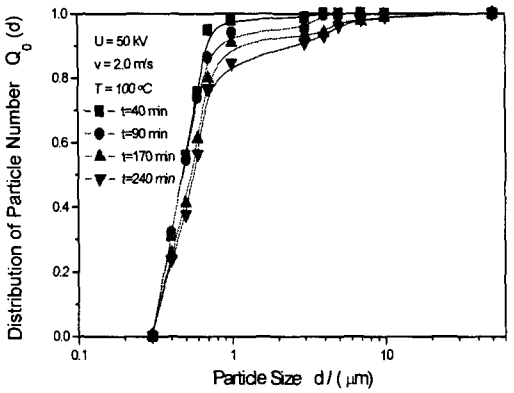

Fig. 5. Variation of distribution of particle number with the impulse generation time at the discharge process of impulse streamer corona.

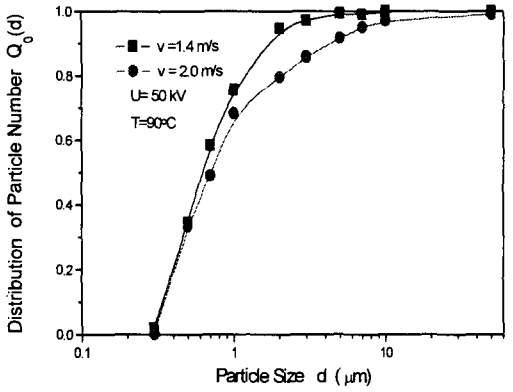

Fig. 6. Variation of distribution of particle number with the gas speed at the discharge process of impulse streamer corona.

이고, 2m/s의 공급속도에서는 60 μm 이상의 입자 수분포도가 100%로 나타났다. 따라서, 공급속도가 낮은 경우가 플라즈마의 반응에 효과적임을 알 수 있다.

Fig. 7은 충격 코로나 방전전압의 변화에 따른 입자수 분포도의 변화거동을 나타내고 있다. 코로나 방전전압이 낮은 상태에서는 플라즈마 형성과정에서 입자밀집현상과 부착력의 방해에 따라 입자가 부착할 수 있는 힘이 감소하므로 큰 입자 보다 미세한 입자수가 증가함을 추측할 수 있다[1]. 충격식 코로나 방전에 의해서 발생되는 이온강도는 전압이 증가할수록 높아져 집진효율이 증가하나, 일정 전압 이상에서 운전될 경우 방전의 전리현상에 의한 전류흐름의 저하가 두드러져 전체적으로 감소현상이 일어날 수 있다. 따라서, 전계강도가 증가하면 이온형성이 증가하지만 이와 동시에 전압을 증가시키면 전류의 전리현상이 증가된다. 이 현상은 전류흐름의 돌진현상이 발생함으로 인해 잠시동안 전장이 쇠약해지므로 코로나방전 전압은 플라즈마 발생을 위한 반응과정에 영향을 미친다. 최적효율을 얻기 위한 전압은 이온강도의 증가를 위해 부착력의 방해에 의한 집진효율 저하가 무시될 수 있는 한계까지의 전압이다.

Fig. 7의 결과에서 보면 충격코로나 방전전압이 증가할수록 입자분포곡선에서 큰 입자분포가 증가함을 알 수 있다. 이는 플라즈마 발생을 위한 충격코로나 방전전압이 높을수록 단위 입자당 전압이 충전전압이 증가하고, 이온강도의 증가에 따른 이온증배현상이 증가되어 미세한 입자의 부착력이 증가하기 때문에 나타난 결과로 판단된다.

또한, Fig. 7의 결과에서 보면 70kV와 50kV의 조건에서 제거된 입자수분포경에서 전체적인 제거율은 70kV에서 우수하지만 0.5 μm 이하의 미세한 입자에 있어서는 50kV에서 우수하였다. 이들의 결과는 충격코로나 발생 전압의 증가에 따라 전계력의 변화로 입자의 움직임은 편향이 발생하고, 이온강도에 의해서 입자들의 부착에 의한 응집체의 견고성이 손실되었기 때문에 나타난 현상으로 판단된다. 또는, 전압의 증가는 전계력의 강화로 전체적인 집진효율은 증가시키나 전계 내에서 입자층의 밀집효과를 방해하는 전단응력을 감소시키기 때문에 50kV보다 70kV일 때가 미세 입자수가 상대적으로 증가하였음 알 수 있다. 이 결과에서 충격코로나 발생 방전전압은 70kV보다 낮게 50kV를 전·후로 해서 공급하는 것이 효과적임을 알 수 있다.

일반적으로 충격식 코로나 방전에 의한 반응장치 내부의 온도변화에 따라 라디칼에 의한 화학반응속도가 달라지고, 동시에 전자자극을 받지 않는 분자를 통한 에너지 전달에 의해 가스와 반응온도가 상승되어 활성에너지 인가량이 변화되는 것으로 추정된다[7]. Fig. 8의 결과는 인입 온도를 45°C에서 140°C로 변화시켜 실험한 결과를 나타내고 있다. 반응온도가 플라즈마 반응에 미치는 영향을 정확하게 확인할 수 없지만 인입온도가 상승되면 반응온도가 상승되고 이 현상에 의해서 플라즈마에 의한 화학종의 화학반응과 전자자극을 받지 않는 분자의 에너지 전달을 촉진시키게 된다.

Fig. 8의 결과에서 온도가 45°C로 너무 낮은 경우에는 라디칼로 활성화된 입자들과 NO_x 성분이 결합할 수 있는 활성에너지가 낮아 미스트 제거율이 감소하였고, 다시 온도가 100°C로 높은 경우에는 SO_x 성분이 활성화된 라디칼 입자와 결합할 수 있는 인

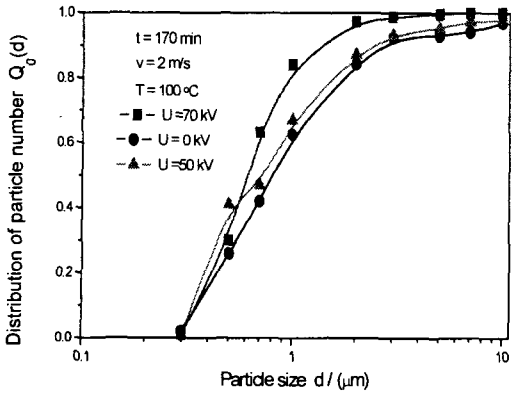

Fig. 7. Variation of distribution of particle number with the high voltage at the discharge process of impulse streamer corona.

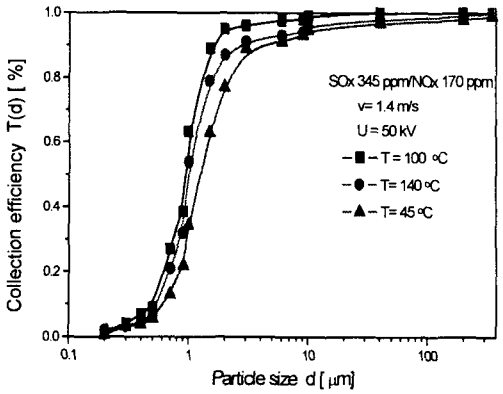

Fig. 8. Variation of collection efficiency with gas temperature in impulse streamer corona discharge.

가 에너지가 증가하기 때문에 미스트 제거율이 증가함을 알 수 있다.

그러나, 140°C로 높이면 수분(H_2O)과 입자간의 결합이 저항을 받게 되어 미스터 제거율이 다시 감소하게 됨을 알 수 있다. 따라서, 최적온도는 100°C 부근인 것으로 판단된다.

5. 결 론

충격식 코로나 방전 플라즈마 장치에서 공급되는 가스의 SO_x 및 NO_x 농도변화와 운전조건 변화에 따른 먼지제거율을 조사한 본 연구에서는 다음과 같은 결론이 도출되었다. 운전시간의 증가에 따라서 포집부에서 탈진된 미스트의 분석과정에서 나타난 입경분포도를 분석한 결과 플라즈마 반응에 따라서 미세한 입자의 점착력이 증가함으로서 포집부에서 분석된 입경분포 중 큰 입자로 분포하는 량이 증가하였다. 가스속도 변화에 따른 운전조건에서는 가스속도가 증가할수록 0.5 μm 이상의 입자들이 크게 증가하였다. 가스속도 증가는 일정한 운전조건에서 플라즈마 반응이 진행될 수 있는 체류시간이 감소하기 때문에 인입속도가 효율에 큰 영향을 미쳤다. 충격 코로나 방전의 증가에 따른 이온강도의 증가는 전체 미스트 제거율은 증가하였지만, 미세한 입자포집은 50kV가 70kV보다 상대적으로 약간 높게 나타났다. 그 이유는 일정한 전압의 증가는 플라즈마 발생은 증가하지만, Break-down 현상이 더 많이 발생하기 때문에 플라즈마를 발생할 수 있는 전압 이상이 되면 플라즈마 반응을 둔화시키기 때문이었다. 배연가스에 함유된 SO_x와 NO_x의 농도비율에 따라 미스트가 형성과정을 입자크기를 분석한 결과에서 보면 SO_x의 농도변화가 NO_x의 변화 보다 미스트 형성과정에 크게 작용하였고, 미스트 제거율도 약간 효율적으로 영향을 미쳤다. 배연가스에 함유된 미세한 입자는 배기가스 속에 함유된 SO_x/NO_x의 농도변화에 따라서 황산염과 질산염 형태로 전환되는 것을 막기 위해서 산화제인 O_3, H_2O_2와 환원제인 NH_3, C_2H_4의 첨가에 따른 플라즈마 반응시 SO_x나 NO_x 다른 부산물로 생성시키게 하는 선행연구가 전제되어져야 한다. 배기가스의 인입온도는 플라즈마 반응에 의해서 활성화된 입자와 여러 화학종 간의 화학결합을 위해서 필요한 반응온도에 큰 영향을 미치게 된다. 이 결과에서 45°C와 140°C에서는 제거율이 낮았고, 90~100°C의 범위에서 제거율이 높게 나타났다.

참 고 문 헌

1) 하상안, 1999, 코로나방전극의 구조에 따른 입자상물질의 집진효율에 관한 특성연구, 대한환경공학회지, 24(4), 677-685.
2) Loeffler, R., 1988, Staubabscheiden, Georg Thieme VerlagStuttgart, New York, 10pp.
3) Pahl, M., 1992/93, Mechanische Verfahrenstechnik fuer Volesung 1, University Parderborn, Germany, WS.
4) Zhu, Y. and N. Wang, 1998, Optimization ogf Pulsed Corona Discharge for Flue Gas Treatment, 7th conference on ICESP, 201-210pp.
5) Denisov, V. F., 1993, 고주파 스트리머 방전을 이용한 산업폐가스 중의 황산화물, 질소산화물, 기타 유해성분 정화, Russia, 비철금속, 8pp.
6) Amirov, R. H., 1998, Investigation of NOx, SO_2 Oxidation and CO Formation in Flue Gas by

Nanisecond Streamer corona, All-Russian Thermal Eng. Inst., 8, 230-236.

7) 최병선, 1999, The Technology of simultaneous removal of SOx and NOx in Flue Gas, 3차 환경부 보고서, 71-88pp.