

오존발생특성 향상을 위한 강유전성 알루미나 무성방전관의 개발

(Development of Silent Discharge Chamber with Al₂O₃ Dielectric Pellet to Improve Ozone Generation Characteristics)

곽동주*

(Dong-Joo Kwak)

요 약

최근 탈취, 탈색, 정수처리 및 배연가스의 정화에 많이 이용되고 있는 오존의 효과적인 발생에 많은 관심이 모아지고 있다. 전기 방전에 의한 오존 발생 방법 중 유전체 배리어 방전이 보다 낮은 전력을 소모하며, 또한 저전압 동작이 가능하여 가장 효과적인 것으로 생각되고 있다. 본 연구에서는 오존발생농도 및 에너지효율을 개선하기 위하여 알루미나 유전체 및 알루미나 유전체와 알루미나 비드를 충전한 무성방전관을 제작하여 무성방전특성을 연구하였다. 또한 오존발생특성을 무성방전특성과 연관하여 논하였으며, 특히 방전시 유전체에 축적되는 벽전하 및 소비 전력특성의 관점에서 논하였다.

결과, 비드를 가진 방전관의 경우 축적되는 벽전하량은 비드가 없는 방전관에 비하여 약 2.5배 정도였으며, 발생되는 오존농도 및 에너지 수율 또한 개선되었다.

Abstract

Recently deep interests have been paid on the effective generation of ozone, which has been widely used for water treatment, deodorization, color removal, and chemical processing of exhausted smoke. The silent discharge reaction has been proposed as the most effective one in the many ozone generation methods, because the silent discharge can be generated under the conditions of lower applied voltage and power consumption, compared other ones. In this paper, in order to improve the ozone generation and ozone generation efficiency, the conventional silent discharge chamber with Al₂O₃ dielectric layer and tubular ferroelectric bed discharge reactor packed with Al₂O₃ pellets were made, and the silent discharge of the reactors were studied experimentally. The ozone generation characteristics are also discussed based on the discharge characteristics, especially on the wall charge accumulation properties and power consumption. The results show that the electric charges of discharge tube with bead are around 2.5 times as large as those without bead. In the discharge chamber packed with dielectric beads, the ozone concentration and the energy yield characteristics were also improved, compared with those in the conventional silent discharge reactor.

Key Words : Ozone, Silent discharge, Al₂O₃ dielectrics, Al₂O₃ dielectric bead, Wall charge, Energy yield

* 주저자 : 경성대학교 전기전자공학과 교수
Tel : 051-620-4771, Fax : 051-624-5980
E-mail : djkwak@ks.ac.kr

접수일자 : 2006년 4월 19일
1차심사 : 2006년 4월 25일
심사완료 : 2006년 6월 12일

1. 서 론

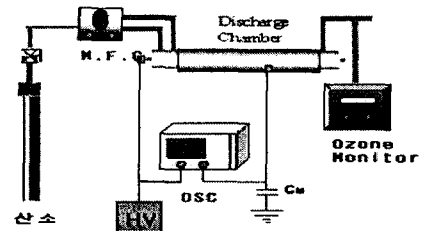
상수의 살균을 비롯하여 악취 처리, 탈색 등에 활발하게 사용되고 있는 오존의 발생을 위한 오존 발생기는 방전관을 비롯하여 전원 장치, 냉각부, 그리고 원료 가스의 공급부로 구성되나, 시스템의 효율성 및 안정적 동작을 위하여 무엇보다 방전관에 관심이 집중되고 있다. 오존 발생을 위한 방전양식으로는 스트리머 코로나 방전(streamer corona discharge)을 비롯하여, 연면 방전(surface discharge) 그리고 무성 방전(silent discharge) 등을 들 수 있으며, 각각의 방전 양식에 따라 에너지 효율 및 오존 수율의 향상에 대한 연구가 시행되어 왔으나[1-4], 이 중 전극 사이에 삽입된 유전체의 분극 효과로 인하여 보다 저전압 동작이 가능할 것으로 기대되는 무성 방전 양식의 반응기가 최근 많은 주목을 받아 오고 있다[1-2].

무성 방전은 오존을 생성시키는 과정에서 방전의 효율을 증대시킬 수 있는 방법이지만, 방전이 시간적으로나 공간적으로 매우 불규칙하게 발생하므로 방전 전압 및 전류 그리고 방전 소비 전력에 대한 명확한 정의가 어려울 뿐만 아니라, 정확한 방전 메커니즘의 해명이 어렵다. 따라서 오존 발생 효율을 보다 증대시키고 시스템의 저전압 동작 등으로 인한 안정적인 시스템 운영을 위해서는 전체 오존 발생 장치의 핵심 부분인 방전관의 무성 방전 특성에 대하여 폭넓은 연구의 필요성이 부각되고 있다[5-6].

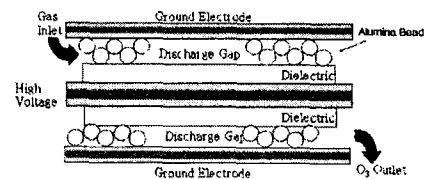
무성방전특성에 영향을 미치는 인자로는 방전공간을 통과하는 원료가스의 종류, 주변온도, 유전체의 종류, 압력, 전극형상, 전극간거리 및 인가전압의 주파수 등을 들 수 있으며[7-8], 오존발생기의 효율적 동작을 위해서는 무엇보다 이러한 제 인자들이 무성 방전에 미치는 영향을 규명하는 것이 선행되어야 한다. 즉 고농도의 오존 발생 및 향상된 에너지 수율을 얻기 위해서는 보다 낮은 전압에서 효율적인 무성방전의 발생 및 유지가 가능해야 하며, 이를 위해서는 우선 무성방전특성에 미치는 유전체의 영향을 고찰한 후, 가장 효율적인 무성 방전을 가능하게 하는 유전체를 선정, 방전관을 제작해야 한다. 또한 제작된 방전관의 최적 운용을 위하여, 방전관의 무성방전특성 및 오존발생특성을 세밀히 고찰해야한다.

이에 본 연구에서는 무성방전관에 삽입되는 유전체로써, 알루미늄 및 알루미늄 비드(bead)를 충전한 무성방전관을 자체 제작하여 무성 방전 특성과 오존 발생특성에 미치는 유전체의 영향을 면밀히 검토하였으며, 무성방전시 전하수송 특성을 고찰하여 오존발생특성과의 상관관계를 해명함으로써 안정된 방전의 발생 및 유지방안과 에너지 수율의 향상을 추구 하였다.

2. 실험 장치 및 방법



(a) 실험장치의 개념도



(b) 방전관의 단면도

그림 1. 실험장치(a) 및 알루미늄 비드로 충전된 무성방전관의 개념도(b)

Fig. 1. Experimental setup and silent discharge tube with Al_2O_3 beads

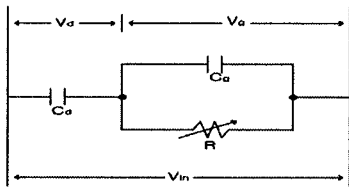
방전관은 원통형으로, 고전압전극으로는 오존 발생으로 인한 산화를 막을 수 있는 직경 10[mm]의 스테인레스(stainless steel)전극을 사용하였으며, 접지 전극으로는 두께 0.5[mm], 길이 200[mm]의 원통형 알루미늄(Al) 전극을 사용하였다. 고전압측 전극은 고전압 인가로 인한 전로파괴현상을 막기 위하여 테프론을 사용하여 절연을 시켰다. 방전관에 공급되는 원료가스로는 순수산소(99.99[%])를 사용하였으며, 공급되는 가스의 유량의 조절에는 MFC(Mass Flow Controller)를 이용하여 0.5[L/min.]의 유량으로 고정하였다. 무성방전의 제 특성을 이해하기 위한 방전

오존발생특성 향상을 위한 강유전성 알루미늄 무성방전관의 개발

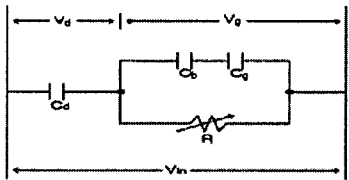
전압 및 전류 그리고 방전전력을 측정에는 고압 푸르부(Tektronix P6015A)와 전류 푸르부 시스템(Tektronix TM502A) 및 오실로스코프(HP 54540A)로 측정하였으며, 사용된 전원은 가변 주파수의 교류 전압 발생 장치(30[kV], 6[kVA])를 사용하였다. 한편 오존의 효율적 생성을 위하여 알루미늄(Al_2O_3)와 알루미늄 비드(직경 1[mm], Bio-Ceramic사)를 충전한 무성방전관을 제작하였다. 그림 1에 실험장치의 개념도 및 알루미늄 비드를 충전한 방전관의 단면도를 나타낸다. 방전 전극의 간격은 3[mm]의 방전공간을 유지하도록 설계·제작하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1 방전특성 및 오존 발생 특성



(a) 비드가 없는 경우

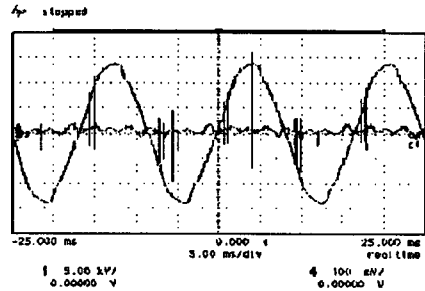


(b) 비드가 있는 경우

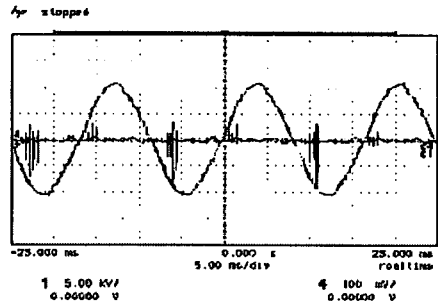
그림 2. 무성방전관의 등가회로
Fig. 2. Equivalent circuits of silent discharge type ozone generating tubes

그림 2에 본 연구에 사용된 비드가 있는 경우와 없는 경우의 알루미늄 무성방전관의 등가회로를 나타낸다. 그림에서 C_g 는 방전 전극 사이의 방전공간의 정전용량이며, C_a 및 C_b 는 각각 삽입된 유전체와 비드의 정전용량을 나타내고 있다. 방전이 개시되기 전에는 C_g 가 용량성 커패시터의 역할을 하지만, 인가전압이 상승하여 방전이 개시되면 방전공간은 가변저

항 R의 역할을 하게 된다. 따라서 방전공간에 주입된 산소가스층은 비선형 저항과 직렬 연결된 캐패시터로 간주할 수 있다. 더욱이 알루미늄 비드로 충전된 무성방전관의 경우에는 비드층이 산소가스층과 직렬로 연결된 캐패시터로 작용하게 되며, 이러한 등가회로로부터 방전의 흐름을 쉽게 관측할 수 있다.



(a) 비드가 없는 경우



(b) 비드가 있는 경우

그림 3. 무성방전관의 전형적인 전압-전류 파형
Fig. 3. Typical V-I waveforms of silent discharge current

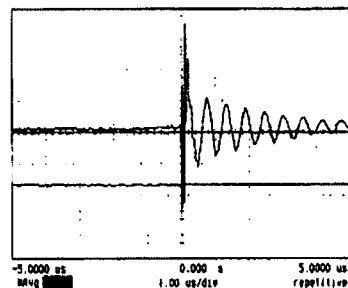


그림 4. 방전전류 파형
Fig. 4. Discharge current waveform

그림 3 및 4는 각각 무성방전시 전형적인 방전전압-전류 파형 및 전류파형의 상세도를 나타낸다. 그림으로부터 인가전압의 반주기 동안에는 인가전압이 증가하여 최대치에 이를 때까지 전류가 발생하여 흐르다가, 전압이 감소하면 전류는 멈추게 되는 과정이 반복되고 있으며, 교류전압의 1주기에 방전구간과 방전휴지구간이 각각 2회씩 존재하는 전형적인 무성방전이 발생함을 알 수 있다. 전류의 발생은 위치나 크기의 면에서 매우 불규칙하였으며, 하나의 방전전류 펄스는 전압이 상승하는 동안 매우 짧은 약 수 [ns] 정도의 지속시간을 갖는 몇 개의 미소방전으로 구성됨을 그림 4로부터 알 수 있었다. 또한 동일한 전압 조건하에서 비드로 충전된 방전관의 전류펄스가 보다 강렬하여 강유전체인 알루미늄 비드의 자발분극 특성이 무성방전의 발생 및 유지에 효과적으로 기여하고 있음을 알 수 있다.

이는 앞으로 논의하게 될 오존발생특성과 관련하여 비드를 가진 방전관의 경우, 보다 활발한 벽전하의 축적 및 수송으로인하여 동일한 전압조건하에서 효과적인 오존발생을 기대할 수 있을 것으로 예상된다. 한편 본 연구에서 제작된 방전관은 유전체의 종류에 관계없이 전압이 양의 상승구간과 음의 상승구간에서 전류펄스가 발생함을 알 수 있었다.

한편 무성방전시 유전체에 축적되는 벽전하량을 인가전압의 반주기를 고려하여 산출해 보면, 그림 5의 인가전압에 대한 전하파형에서 $t_0 \sim t_1$ 까지는 절연 파괴 이전 전하들이 유전체 표면에 축적되는 것으로, 외부인가 전압이 기체의 방전전압 이하가 되는 구간이며, $t_1 \sim t_2$ 까지는 방전유지전압에 해당하여 이 때부터 기체는 절연 성능을 잃고, 전하수송이 이루어진다. 이 때 수송된 전하는 다음에 소개될 그림 7의 측정 캐패시터인 C_M 에 축적되게 되며, 방전개시순간에 외부인가전압은 방전유지전압보다는 다소 낮은 경향을 보이게 되는데, 이는 축적된 전하로 인해 다음 반주기에 내부 전계와 외부 전계가 일치함에 따른 것이다. 이후 이러한 과정의 반복으로 인해 무성방전이 발생되며 유지 할 수 있게 된다. 그림 5 (b)에는 실측된 알루미늄 방전관의 인가전압에 대한 실측된 전하파형을 나타내고 있다. 알루미늄 비드를 충전한 방전관의 경우의 전하파형도 그림 (b)와 거

의 유사하였다.

한편 오존발생특성에 미치는 유전체의 영향을 고찰하기 위하여, 반주기 동안의 총 하전입자의 이동 중에 벽 전하로 축적되는 구간인 $t_0 \sim t_1$ 까지의 하전입자의 이동을 고찰하여 보면, 알루미늄 방전관의 경우,

$$\Delta Q = C \Delta V \tag{1}$$

이므로 t_0 에서 t_2 그리고 t_0 에서 t_1 사이에 전송되는 총 전하 입자를 각각 Q_{02} 및 Q_{01} 이라면,

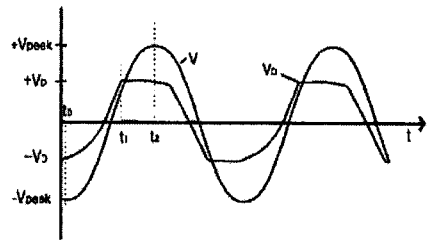
$$Q_{02} = C_d 2(V_{peak} - V_D) \tag{2}$$

$$Q_{01} = C_g 2V_D \tag{3}$$

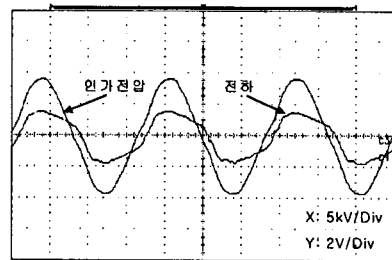
이다. 따라서 방전시 이동하는 하전입자의 양은

$$\Delta Q = Q_{02} - Q_{01} = 2C_d(V_{peak} - V_D) - 2C_g V_D \tag{4}$$

로 된다. 단, 여기서 V_{peak} 는 외부인가전압의 피크치, V_D 는 방전유지전압을 나타낸다.

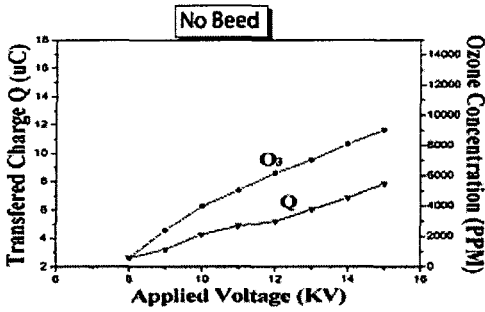


(a) ideal

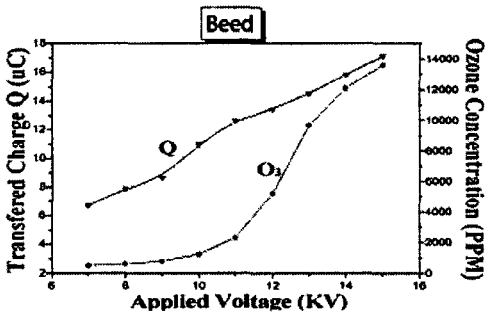


(b) measured

그림 5. 방전전압 및 벽전압의 파형
Fig. 5. Ideal (a) and measured (b) waveforms of discharge voltage and wall voltage



(a) 비드가 없는 경우



(b) 비드가 있는 경우

그림 6. 인가전압의 변화에 대한 오존농도 및 벽전하 특성
Fig. 6. Ozone concentration and transferred charge characteristics as a function of applied voltage

본 연구에서는 방전공간의 정전용량 C_g 및 삽입된 유전체의 정전용량 C_d 가 각각 $0.226 \times 10^{-9} [C]$ 및 $3.9871 \times 10^{-9} [C]$ 임을 고려하여, 그림 6에 각각 유전체 비드가 있는 경우와 없는 경우의 알루미늄 방전관의 벽전하량을 나타내었다. 그림으로부터 알 수 있는 바와 같이 비드가 없는 무성방전관의 경우 방전이 개시되는 8[kV] 정도의 인가전압 조건하에서 오존 농도(O₃) 및 축적 전하량(Q)은 인가전압이 증가함에 따라 거의 선형적으로 증가하였다. 축적되는 전하량은 8-15[kV]의 인가전압 범위에서 약 1.7~8.1[μC]의 범위였으며, 비드가 있는 방전관의 경우 8.2~17.2[μC]의 범위로 알루미늄 비드의 존재로 인한 전하축적 효과가 매우 크다는 사실을 알 수 있었다. 한편 비드를 가진 방전관의 경우, 방전이 개시되는 전압은 7[kV]로, 보다 낮은 전압 조건하에서 방전이 개시되었으며, 방전이 비교적 미미한 10[kV]까지의 인

가전압 조건하에서의 오존 농도는 약 1,000[ppm] 정도로 거의 일정하였다. 그러나 10[kV] 이상의 전압 조건하에서는 인가전압의 증가와 함께 오존 농도는 급격하게 증가하여 동일한 전압 조건하에서 알루미늄 방전관에 비해 평균적으로 약 2.5배 정도의 오존 농도를 얻을 수 있었다. 그림 6의 결과는 10[kV] 이상의 전압 조건하에서 알루미늄 비드의 높은 유전율로 인하여 알루미늄 비드 및 유전체층에 축적된 전하량이 증가한 때문으로 사료된다.

3.2 소비전력의 측정 및 에너지 수율 특성

앞서 설명한 바와 같이 무성방전은 방전전류의 크기 및 발생확률 면에서 불규칙하므로 무성방전의 소비전력특성의 이해는 무성방전의 제 특성을 이해하기 위하여 매우 중요하다. 그림 7에 소비전력의 해석을 위한 회로의 개념도를 나타낸다. 즉 방전 개시 이전의 방전 공간의 정전용량을 C_g 라하고, 이와 직렬로 콘덴서 C_M 을 삽입하여 횡축에 방전 전극 양단의 전압, 종축에 직렬로 삽입된 콘덴서 양단의 전위차를 측정함으로써 방전 공간에 유입되는 전하량을 측정하였다. 본 연구에서 측정한 전형적인 V-Q 리사쥬 도형의 예를 그림 8에 나타낸다. 리사쥬 도형의 면적은 인가전압의 한 주기 당 방전 시 소비된 에너지에 비례하므로, 이에 대한 방전전력의 표현식을 구하면 다음과 같다.

$$P = 4f \cdot C_d \cdot \frac{1}{1+\beta} V_D(V - V_D) \quad (5)$$

여기서 C_d 는 유전체의 정전용량이고, β 는 정전용량에 관계된 계수, V_D 는 방전유지전압이며, V 는 인가전압, f 는 주파수를 말한다. 본 연구에서의 소비 전력은 방전 시의 전력을 Power Analyzer(Voltech PM3300)를 사용하여 측정 후, 순수전원 장치에서 발생한 전력을 감하는 방법과 리사쥬 도형의 고찰 결과를 이용하는 두 가지 방법으로 측정하였으며, $\pm 2[\%]$ 내외의 오차 범위로 잘 일치하고 있음을 확인하였다.

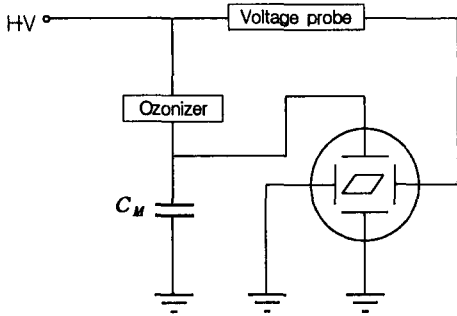
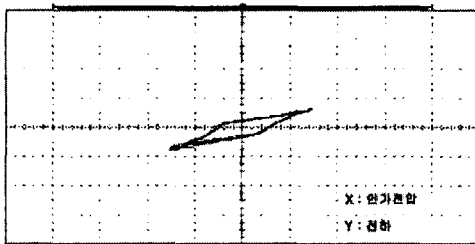


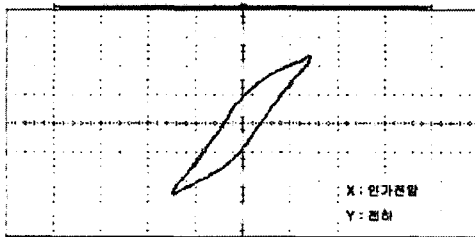
그림 7. 방전특성을 측정하기 위한 회로
Fig. 7. Circuit for measuring discharge characteristics

한편 두 방전관의 인가전압의 상승에 따른 전력소모 및 에너지 효율 특성을 구하여 각각 그림 9와 10에 나타내었다. 오존 생성 수율은 방전전력에 대한 시간당 오존 발생량으로 구하였다.

$$\text{오존 생성 수율} = \frac{\text{오존 발생량} [g/h]}{\text{방전전력} [kW]} \quad (6)$$



(a) 비드가 없는 경우



(b) 비드가 있는 경우

그림 8. 무성방전관의 리사쥬 도형의 예
Fig. 8. Lissajous figures of silent discharge tubes

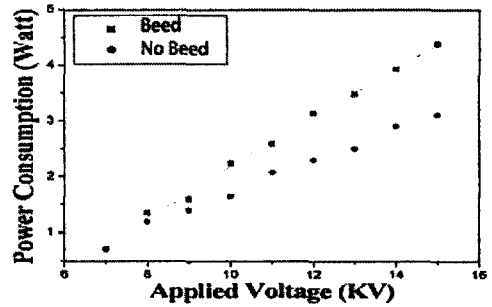


그림 9. 무성방전관의 소비전력-인가전압 특성
Fig. 9. Power consumption-applied voltage characteristics for two type of ozonizers

그림 10으로부터 오존 발생을 위한 무성방전의 발생 및 유지에 소모되는 방전전력은 인가전압이 8-15[kV]의 범위에서 약 5[W] 이하로 매우 작은 범위였으며, 또한 주어진 전압 조건하에서 방전유지를 위한 방전전력은 알루미늄 비드를 가진 방전관의 경우가 비드가 없는 방전관의 경우에 비해 전반적으로 높음을 알 수 있다.

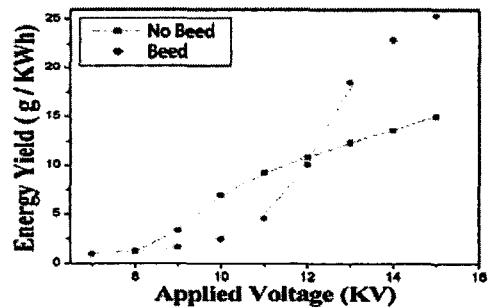


그림 10. 인가전압의 변화에 대한 에너지 수율 특성
Fig. 10. Energy yield characteristics with variation of applied voltage

그러나 오존 발생을 위한 에너지 효율은 인가전압이 12[kV]까지는 비드를 가진 방전관의 경우가 다소 낮았으나, 그 이후의 전압조건하에서의 비드를 가진 방전관의 경우의 에너지 효율은 급격하게 증가하여 비드가 없는 방전관에 비해 약 2배 이상의 에너지 효율을 얻을 수 있었다. 이는 그림 6의 인가전압의 변화에 대한 오존발생특성의 결과에서 나타난 바와 같이 비드가 존재하는 경우, 약 10[kV] 이상의 인가전압 조건하에서 방전 공간 내에 고전계가 형성됨으로

써 활발한 벽전하의 형성이 기대되며, 이러한 벽전하에 의한 내부전계의 도움으로 활발한 오존발생이 가능한 때문으로 사료된다.

이러한 결과로부터 비드를 가진 방전관의 경우, 오존 발생 및 에너지 수율 특성은 강유전성 알루미늄 비드의 자발분극 및 전하축적 현상에 의해 크게 개선될 수 있음을 알 수 있다.

한편 비드가 없는 방전관의 경우 인가전압이 증가함에 따라 에너지 수율은 거의 선형적으로 증가하여, 15[kV]의 인가전압 조건하에서 13[g/kWh]의 최대치에 달하였으며, 비드를 가진 방전관은 같은 전압 조건하에서 약 25[g/kWh]의 에너지 수율을 나타내었다.

4. 결 론

오존 농도 및 에너지 수율 향상을 위하여 유전율이 높은 알루미늄 유전체를 삽입한 무성방전관과 동일한 방전관에 알루미늄 비드를 충전한 방전관을 제작하였다. 결과를 요약하면 다음과 같다.

(1) 비드로 충전된 방전관의 전류 펄스가 알루미늄 방전관의 그것에 비해 보다 강렬하여 강유전체인 알루미늄 비드의 자발분극 특성이 무성방전에 효과적으로 기여하고 있음을 알 수 있다.

(2) 비드가 충전된 방전관의 경우, 방전이 활발한 10[kV] 이상에서는 인가전압의 증가와 함께 오존 농도는 급격하게 증가하여 동일한 전압 조건하에서 알루미늄 방전관에 비해 평균적으로 약 2.5배의 오존 농도를 얻을 수 있었다.

(3) 주어진 전압 조건하에서 방전유지를 위한 방전전력은 알루미늄 비드를 가진 방전관의 경우가 비드가 없는 방전관의 경우에 비해 전반적으로 높음을 알 수 있다.

(4) 비드를 가진 방전관의 경우, 오존 발생 및 에너지 수율 특성은 강유전성 알루미늄 비드의 자발분극 및 벽전하축적 현상에 의해 크게 개선될 수 있음을 알 수 있었으며, 향후 유전체 비드의 종류 및 크기가 미치는 영향에 대한 연구를 통하여 오존 발생 수율을 더욱 개선 할 수 있을 것으로 사료된다.

본 연구는 2005년도 경성대학교 연구년 지원사업으로 수행되었습니다.

References

- [1] Bernie M. Penetrante, "Non-Thermal Plasma Techniques for Pollution control", Part B, 212~221(1993).
- [2] J. Kitayama and M. Kuzumoto, "Theoretical and experimental study on ozone generation characteristics of an oxygen-fed ozone generator in silent discharge", J. Phys. D:Appl. Phys. 30, 2453~2461(1997).
- [3] Cesar Gutierrez-Tapia, "Dynamics of ozone generation in a silent oxygen discharge", IEEE Trans. on Plasma Science, Vol.26, No.4, 1357~1362(1998).
- [4] S. K Dhali and I. Sardja, "Dielectric- barrier discharge from processing of NOx/Sox", J. Appl. Phys., Vol.69, 6319~6324(1991).
- [5] A. Chakrabarti, A. Mizuno, "Gas Cleaning with Semi-Wet type Plasma Reactor", IEEE Trans, on IA, Vol.31, No.3, 500~506(1995).
- [6] Rachel Feng, "Automated System for Power Measurement in the Silent Discharge", IEEE Transactions on Industry Applications, V.34 No.3, 563~570(1998).
- [7] D.J. Kwak, et. al., "Ozone generation and electrical characteristics of silent discharge chamber according to the kinds of dielectric materials", the 21st sympo. on fma, 28-E-2, 163(2004).
- [8] S. Wang, et. al., "Voltage-Fed Pulse Density and Pulse Width Modulation Resonant Inverter for Silent Discharge Type Ozonizer", T. IEE Japan, Vol.120-D, No.4, 587-592(2000) Vol.29, No.4, 781~786(1993).

◆ 저자소개 ◆

곽동주 (郭東周)

1958년 6월 20일생. 1983년 2월 건국대학교 전기공학과 졸업. 1989년 3월 (일본)구주대학 전기공학과 졸업(박사). 1989년 3월 KERI 선임연구원. 1990년 3월 경성대학교 전기공학과 전임강사. 1997년 Texas Tech Univ. Visiting Scholar. 현재 경성대학교 전기전자공학과 교수.