

NO_x 및 NH₃ Slip 저감을 위한 Urea-SCR 제어기반 모델 개발 및 검증

이승근* · 이성욱* · 강연식*†

* 국민대학교 자동차공학과

Development and Validation of Urea- SCR Control-Oriented Model for NO_x and NH₃ Slip Reduction

Seung Geun Lee*, Seang Wock Lee* and Yeonsik Kang*†

* Dept. of Automotive Engineering, Kookmin Nat'l Univ.

(Received March 20, 2014 ; Revised September 1, 2014 ; Accepted October 19, 2014)

Key Words: Selective Catalytic Reduction(선택적환원촉매), NO_x Reduction(질소 산화물 저감), After-treatment(후처리기술)

초록: 디젤 자동차의 점점 강화되는 NO_x 배기가스 규제를 만족하기 위해서는 화학공학 기반의 SCR 반응모델을 사용한 모델기반 제어 알고리즘 개발이 필요하다. 본 연구에서는 소형 경유차량을 대상으로 NO_x 를 저감하기 위한 배기 후처리 시스템 모델을 설계하기 위하여 SCR 시스템 모델링과 Rig 실험 및 Matlab 을 이용하여 시뮬레이션 및 검증을 하였다. SCR Rig 실험은 디젤엔진에서 배출되는 배기가스와 같은 성분의 모사가스를 생성하여 공간속도와 온도의 변화에 의한 SCR 의 NO_x 저감효율에 대한 실험 조건 및 데이터를 획득하였다. 또한, 제안된 모델은 Rig 실험에서 사용한 실험조건과 결과데이터를 이용하여 Matlab 을 통해 검증하였으며 시뮬레이션 시 필요한 모델의 파라미터 값들은 실험데이터를 기반으로 최적화하였다.

Abstract: To satisfy stricter NO_x emission regulations for light- and heavy-duty diesel vehicles, a control algorithm needs to be developed based on a selective catalytic reaction (SCR) dynamics model for chemical reactions. This paper presents the development and validation of a SCR dynamics model through test rig experiments and MATLAB simulations. A nonlinear state space model is proposed based on the mass conservation law of chemical reactions in the SCR dynamics model. Experiments were performed on a test rig to evaluate the effects of the NO_x and NH₃ concentrations, gas temperature, and space velocity on the NO_x conversion efficiency for the urea-SCR system. The parameter values of the proposed SCR model were identified using the experimental datasets. Finally, a control-oriented model for an SCR system was developed and validated from the experimental data in a MATLAB simulation. The results of this study should contribute toward developing a closed-loop control strategy for NO_x and NH₃ slip reduction in the urea-SCR system for an actual engine test bench.

1. 서 론

전세계적인 온난화의 가속으로 인하여 온실가스 배출을 줄이기 위해서 선진국을 중심으로 노력을

기울이고 있다. 그와 같은 노력의 일환으로 배기가스에 대한 규제가 강화되고 있으며 특히 CO₂ 배출을 줄이기 위해서는 가솔린 엔진보다 디젤엔진에 대한 선호도가 높은 추세이다. 디젤 엔진은 높은 열효율과 연료 소비 측면에서 이점을 지니고 있다. 그러나 디젤엔진은 연소특성상 국부적인 고온반응에서 NO_x 가 배출된다. 따라서 엔진 연소를 제어하거나 배기가스 후처리 장치를 장착한 배출

† Corresponding Author, ykang@kookmin.ac.kr

© 2015 The Korean Society of Mechanical Engineers

가스 감소기법이 활발히 연구되고 있다. 특히 EURO-6 이상으로 강화되는 배기가스 배출 규제를 만족시키기 위해서는 기관의 전처리 기술만으로는 한계가 있으며, 후처리 장치인 deNO_x 촉매의 적용이 이루어져야만 규제치를 안정적으로 만족할 수 있을 것으로 보고 있다.⁽¹⁾ deNO_x 촉매는 선택적환원촉매(SCR : Selective Catalytic Reduction)와 흡장형 탈질장치(LNT : Lean NO_x Trap)로 나눌 수 있다. Urea-SCR 은 높은 NO_x 저감효율을 보이거나 환원제로 사용되는 Urea 를 별도로 공급할 수 있는 장치를 설치해야하는 단점을 가지고 있다. LNT 는 별도의 환원제 공급 없이 기관 제어만으로 질소산화물을 제어할 수 있다는 장점을 갖고 있으나 내구성 및 연비 악화 등의 문제점이 있다.⁽²⁾ 이 중 Urea-SCR 은 강화되는 배기가스 규제에 대응하기 위한 가장 상용화가 앞선 촉매 장치로 주목 받고 있다. 또한, Urea-SCR 시스템은 이미 공장이나 대형 트럭엔진에 적용되어 그 성능을 검증 받았다.⁽³⁾ 그러나 이 시스템은 NH₃ slip 과 같은 문제가 있다. NH₃ slip 은 SCR 촉매에서 반응하지 않고 암모니아가 배기관을 통해 대기 중으로 흘러나온 것을 말한다. 이러한 NH₃ slip 의 원인은 Urea 가 배기관에 너무 많이 주입되거나, NH₃ 가 NO_x 와 반응하여 환원되기에 온도가 낮을 경우, 또는 촉매가 오래되어 성능이 저하되었을 경우에 발생한다. 이 문제는 SCR 시스템의 주요 연구 문제 중 하나라 남아있다.

본 연구의 목표는 체계적인 SCR 제어방법론을 발전시키기 위해 SCR 시스템 모델을 설계하는 것이다. SCR 시스템의 복잡성과 비선형성 때문에 효율적인 제어를 위해서 적절한 제어모델의 개발이 중요하다. 따라서 본 연구에서는 NO_x 저감 성능을 향상시키고 NH₃ slip 은 저감하기 위해 바나듐(Vanadium)계열의 촉매를 사용한 SCR 시스템에 대한 제어모델을 설계하였다. 또한 Rig 실험과 Matlab simulink 시뮬레이션을 통해 제안된 모델을 검증하였다.

2. Urea-SCR 시스템 모델

2.1 SCR 반응원리

SCR 시스템에서 NO_x 환원반응은 Fig. 1 과 같이 3 단계의 과정을 거쳐 일어난다. 1 단계는 Urea 가 촉매 전단에서 분사되고 NH₃ 로 변환된다. 2 단계는 NH₃ 가 촉매의 기질에 흡착되고 3 단계에서 흡착된 NH₃ 가 디젤엔진 배기가스 중 NO_x 와 환원반

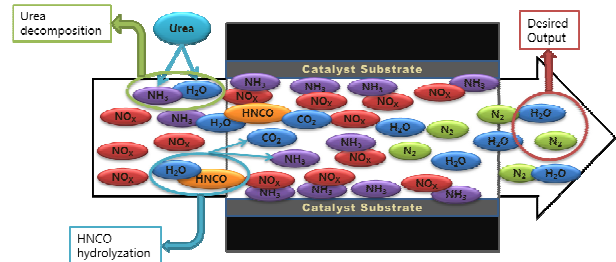


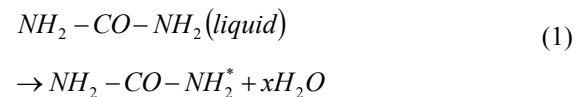
Fig. 1 Schematic presentation of SCR NO_x reduction process

응하는 과정을 거쳐 환경에 무해한 물질인 N₂ 와 H₂O 로 변환되어 대기 중으로 배출된다.

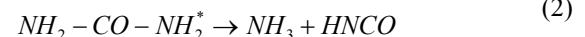
2.1.1 NH₃ 변환

SCR 시스템에서 Urea 가 NH₃ 로 변환되는 과정은 다음 화학식과 같이 3 단계에 걸쳐 변환된다.⁽⁴⁾

Urea 증발 :



Urea 분해 :



HNCO 가수분해 :



Urea 증발반응은 주로 분무입자크기와 온도에 의해 영향을 받는다.⁽⁵⁾ 또한, 이 과정의 반응속도는 Urea 인젝터 디자인과 엔진 작동조건에 의해 변한다. 증발된 Urea 는 분해반응을 통해 동등한 몰의 NH₃ 와 HNCO 를 생성한다. 이 반응은 온도에 상당히 의존적이며, 200°C~300°C 사이에서 주로 발생한다.⁽⁶⁾ 배기가스 온도가 200°C 보다 낮을 때에는 Urea 분해반응을 통해 시아누르산, 멜라민, 아멜라이드, 아멜린과 같은 부산물을 생성한다. 이 부산물들은 배기관 벽에 침착되어 제거하기 매우 어려운 물질이다. 이러한 문제를 해결하기 위해서는 배기가스 온도가 200°C 이상일 때 Urea 의 분사가 이루어져야 하고 배기관은 2 중벽으로 설계하여 온도가 낮아지지 않도록 해야 한다. 가수분해는 Urea 의 분해반응을 통해 생성된 HNCO 가 동등한 몰의 NH₃ 와 CO₂ 로 변환하는 반응이다.

요컨대, 배기가스온도가 충분히 높고 Urea 인젝터와 SCR 시스템이 적절히 설계되었다면 Urea 의 3 단계 변환과정은 빠르게 반응하여 NH₃ 를 생성

할 것이다.

2.1.2 NH₃ 흡착/탈착반응

암모니아 흡착과정은 다음 식 (4)와 같다.



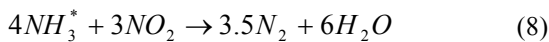
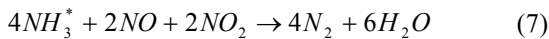
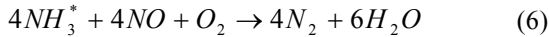
θ_{free} 는 SCR 촉매에 NH₃ 가 흡착될 수 있는 기질공간을 나타내며 NH_3^* 는 이 기질공간에 흡착된 NH₃ 를 나타낸다. θ_{free} 는 NH₃ 흡착/탈착 반응에 중요한 변수로서 온도에 의해 변화한다.⁽⁷⁾ SCR 시스템 제어에 있어 NH₃ 흡착공간이 충분하지 않을 시에 낮은 NO_x 변환효율과 NH₃ slip 이 발생한다.

암모니아 탈착과정은 흡착과정의 반대로서 다음 식 (5)와 같이 나타낼 수 있다.



2.1.3 NO_x 환원반응

바나듐 계열의 SCR 촉매에서 발생하는 주요 3 가지 화학반응은 다음 화학식들과 같다.

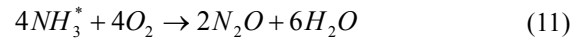
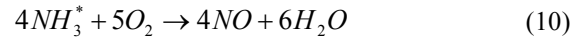
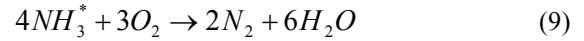


식 (6)에 있는 첫 번째 반응은 보편적으로 알려져 있는 Standard SCR 반응이다. 이 반응은 반응속도가 빠르게 발생하고 배기가스의 NO_x 중 NO₂ 보다 NO 의 함유량이 많을 때 발생한다. 식 (7)에 있는 두 번째 반응은 널리 알려져 있는 Fast SCR 반응이다. 이 반응은 NO 와 NO₂ 가 동등한 몰의 양이 반응함으로써 NO 만 반응하는 Standard SCR 반응속도 보다 더 빠르다.^(8,9) 이 반응은 높은 NO₂/NO_x 비율이 NH₃ 와 빠르게 반응하여 NO_x 변환효율을 높이고 NO_x 제거율을 빠르게 하는 결과를 가져온다.⁽¹⁰⁾ 이런 특징에 기초하여 최근의 많은 SCR 시스템은 NO_x 저감율을 높이기 위해 NO 를 NO₂ 로 변환시켜주는 디젤산화 촉매(DOC: Diesel Oxidation Catalyst)를 SCR 촉매 전단에 장착하여 사용한다.⁽¹¹⁾ 식 (8)에 있는 세 번째 반응은 Slow SCR 으로 바나듐계열의 SCR 촉매에서 매우

느린 반응속도를 보인다.

2.1.4 NH₃ 산화반응

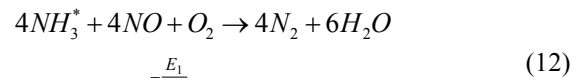
위에서 언급한 주요 3 가지 반응뿐만 아니라 SCR 촉매는 특정 가스에 대해 산화촉매반응을 이끌어내는 역할을 한다. SCR 촉매에서 발생할 수 있는 산화반응은 다음 식들과 같다.^(10,12)



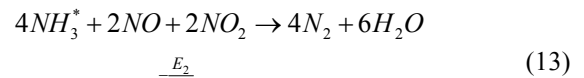
산화촉매반응에서 NH₃ 만이 소비되고 NO 와 NO₂ 는 반응에 참여하지 않기 때문에, 이 반응은 NO_x 저감효율을 떨어뜨리는 역할을 한다. 또한, 배기가스 온도의 상승이나 저하는 식 (10), (11)과 같이 NO 또는 지구온난화의 원인이 되는 N₂O 를 생성한다. 따라서 원치 않는 불순물의 생성을 막기 위해 촉매가 요구하는 일정범위의 온도를 유지하거나 NO_x 와 반응성이 높은 금속을 사용한 촉매를 사용해야 한다.

2.2 SCR 시스템 모델 설계

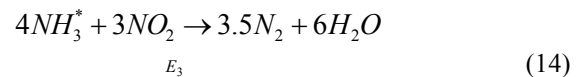
반응속도는 Arrhenius 식에 기반으로 모델링하였다. 다음 식들은 SCR 시스템 모델에 대한 반응속도식이다.



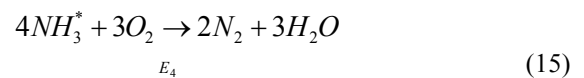
$$\Rightarrow R_1 = K_1 e^{-\frac{E_1}{RT}} C_{NO} C_{O_2} \theta \Omega V^2$$



$$\Rightarrow R_2 = K_2 e^{-\frac{E_2}{RT}} C_{NO} C_{NO_2} \theta \Omega V^2$$



$$\Rightarrow R_3 = K_3 e^{-\frac{E_3}{RT}} C_{NO_2} \theta \Omega V$$



$$\Rightarrow R_4 = K_4 e^{-\frac{E_4}{RT}} C_{O_2} \theta \Omega V$$



$$\Rightarrow R_5 = K_5 e^{-\frac{E_5}{RT}} (1-\theta) C_{NH_3} \Omega V$$

$$NH_3^* \rightarrow NH_3 + \theta_{free} \quad (17)$$

$$\Rightarrow R_6 = K_6 e^{-\frac{E_6}{RT}} \theta \Omega$$

R_i 는 반응속도이고, T 는 온도, C_x 는 x 종의 몰 농도를 나타내고, E_i 와 K_i 는 Arrhenius 식의 활성화 에너지와 빈도계수, V 는 촉매의 부피, θ 는 암모니아 흡장률을 나타내며, $\theta = M_{NH_3}^* / \Omega$ 와 같다. $M_{NH_3}^*$ 는 SCR 촉매에 흡장된 암모니아의 몰수를 의미하며, Ω 는 촉매의 암모니아 저장공간을 나타낸다. Ω 는 온도에 따라 변화하며 이를 온도의 함수로서 다음 식 (18)과 같이 나타내었다.

$$\Omega = S_1 e^{-S_2 T} \quad (18)$$

S_1 과 S_2 는 암모니아 흡장공간을 온도에 따른 비례상수 파라미터 값이며 이는 흡장실험을 통하여 값을 검증하였다.

위 반응속도 식들을 질량보존의 법칙을 적용하여 각각의 상태변수로 나타내면 다음 식들과 같다.

$$V \dot{C}_{NO} = QC_{NO,in} - QC_{NO} - R_1 - R_2 \quad (19)$$

$$V \dot{C}_{NO_2} = QC_{NO_2,in} - QC_{NO_2} - R_2 - R_3 \quad (20)$$

$$\dot{M}_{NH_3}^* = R_5 - R_1 - R_2 - R_3 - R_4 - R_6 \quad (21)$$

$$V \dot{C}_{NH_3} = QC_{NH_3,in} - QC_{NH_3} - R_5 + R_6 \quad (22)$$

위 식에서 Q 는 촉매로 유입되는 배기가스 유량이며 배기관 밖으로 유출되는 유량과 같다고 가정하였다. $C_{x,in}$ 는 촉매로 유입되기 전에서의 농도를 나타낸다. 위 각각의 상태변수에 대한 식을 재배열하여 다음 식 (23)과 같이 상태방정식으로 나타낼 수 있다.

$$\begin{bmatrix} \dot{C}_{NO} \\ \dot{C}_{NO_2} \\ \dot{\theta}_{NH_3} \\ \dot{C}_{NH_3} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \frac{Q}{V} C_{NO,in} - \frac{Q}{V} C_{NO} - k_1 C_{NO} C_{O_2} \theta \Omega V - k_2 C_{NO} C_{NO_2} \theta \Omega V \\ \frac{Q}{V} C_{NO_2,in} - \frac{Q}{V} C_{NO_2} - k_2 C_{NO} C_{NO_2} \theta \Omega V - k_3 C_{NO_2} \theta \Omega \\ k_5 C_{NH_3} V - \theta (k_1 C_{NO} C_{O_2} V^2 + k_2 C_{NO} C_{NO_2} V^2 + k_3 C_{NO_2} V + k_4 C_{O_2} V + k_5 C_{NH_3} V + k_6) \\ \frac{Q}{V} C_{NH_3,in} - \frac{Q}{V} C_{NH_3} - k_5 (1 - \theta) C_{NH_3} \Omega + \frac{1}{V} k_6 \theta \Omega \end{bmatrix} \quad (23)$$

Table 1 Exhaust gas composition

N ₂	Balance
O ₂	10 %
NH ₃	400 ppm

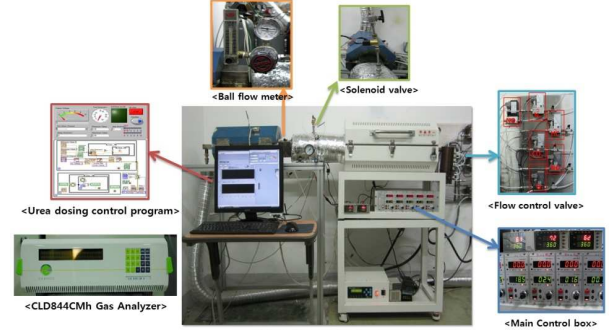


Fig. 2 SCR rig setup

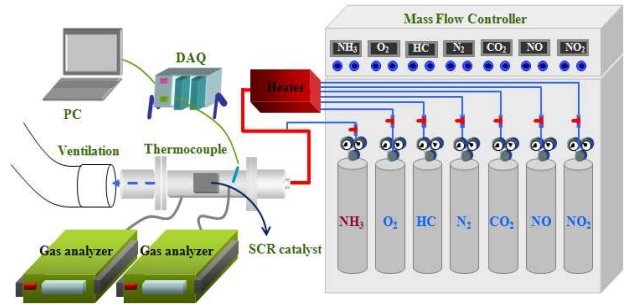


Fig. 3 Schematic of the test rig for the SCR system

3. SCR Rig 실험

3.1 실험 장치

Fig. 2는 앞 절에서 제안된 SCR 시스템 모델을 검증하기 위한 Rig 실험장치이며 Fig. 3은 실험장치의 개략도를 나타낸다. SCR Rig 실험장치는 유량계를 통해 N₂, O₂, CO₂, HC, NO, NO₂ 등의 가스성분을 실제 디젤기관 배출가스의 조성 및 유량

Table 2 Experimental conditions

Temperature	200 °C
	300 °C
	400 °C
Space Velocity	15,000 h ⁻¹

Table 3 S₁, S₂ Parameter Values

S ₁	39.935
S ₂	6.584*10 ⁻³

조건과 동일하도록 제어하였다. SCR 촉매로 유입되는 모사가스의 온도는 가열기를 사용하여 제어하였다. 또한 NH₃ 를 가열기 후단에 주입시킨 후 모사가스와 혼합되어 SCR 촉매로 유입되도록 하였다. 솔레노이드 밸브, 불 유량미터, 그리고 암모니아 분사제어 프로그램을 사용하여 환원제인 NH₃ 의 분사 시기와 양을 제어하였다. 그리고 SCR 촉매로 유입되는 모사가스의 온도를 측정하기 위해 촉매 전단에 열전대를 설치하였으며, 촉매 환원반응 시 SCR 전·후단의 가스 농도 변화를 파악하기 위하여 샘플가스를 추출하고 가스분석기를 이용하여 SCR 촉매 전·후단의 배기관에서 NO_x와 NH₃의 농도를 측정하였다.

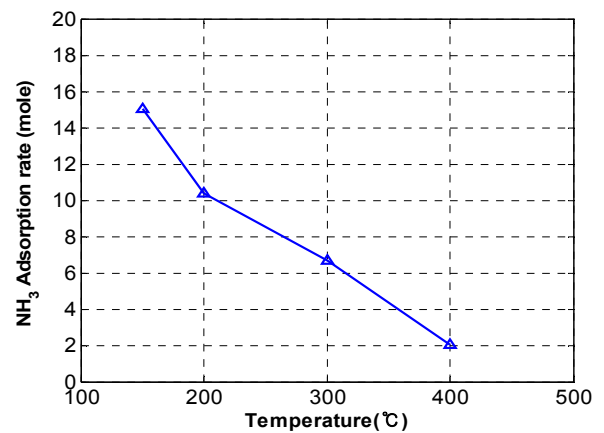
3.2 NH₃ 흡장 실험결과

실험에 사용한 SCR 촉매는 V₂O₅/WO₃-TiO₂ 재질로 만들어 졌으며, 암모니아 흡장량 범위와 촉매의 특징을 알기 위해 온도 변화에 따른 암모니아 흡장량 실험을 하였다. NH₃ 흡착 특성에 영향을 미치는 인자로는 촉매의 온도, 공간속도가 있다.

본 실험에서는 온도에 따른 NH₃의 흡착 특성을 파악하고자 하였으며 공간속도는 15,000 h⁻¹으로 고정하였다. 이 공간속도는 촉매에서 느린 속도로 실제 촉매에서 흡장되었던 NH₃가 빠른 유속에 의해 누출되는 것을 방지할 수 있어 NH₃ 흡착성을 온도에 관한 함수로 평가할 수 있다. Table 1과 Table 2에 실험 시 사용된 가스 조성 및 실험 조건을 나타내었다. Fig. 4는 온도의 변화에 따른 NH₃ 흡장량의 변화를 그래프로 나타내었다. NH₃ 흡장 실험 결과로부터 낮은 온도에서 흡장이 잘 일어나는 반면 온도가 높아짐에 따라 흡장이 줄어드는 것을 알 수 있다. 촉매표면온도가 증가할수록 표면에 흡장된 NH₃의 양이 감소하는 이유는 상대적

Table 4 Exhaust gas composition

N ₂	Balance
O ₂	10 %
CO ₂	6.2 %
NO _x	400 ppm
NH ₃	400 ppm

**Fig. 4** NH₃ Adsorption Rate of SCR catalyst

으로 안정한 흡착상(adsorbed-phase)에 구속되어 있던 NH₃가 기체상으로 더 많이 빠져 나오기 때문이다. 흡장 실험결과로부터 앞서 제시한 암모니아 흡착 공간 식 (18)에 필요한 상수값 S₁과 S₂를 구하여 Table 3에 나타내었다. 흡착공간을 온도의 함수로서 표현하여 SCR 시스템 모델을 수치 해석하는데 신뢰성을 확보하였다.

3.3 Rig 실험 결과

배기가스 온도는 deNO_x 촉매의 변환효율에 높은 영향을 미치는 중요한 인자 중 하나로서 일반적으로 기관의 부하에 비례한다. 따라서 배기가스 온도가 높으면 부하도 높기 때문에 결국 기관에서 배출되는 NO_x의 양도 증가하는 것을 알 수 있다. deNO_x 촉매가 활성화되기 위해서는 기본적으로 SCR 촉매 표면에 환원제인 NH₃가 흡착되어야만 한다. 많은 인자들이 NH₃의 촉매 흡착에 영향을 주지만 가장 중요한 인자가 촉매의 표면 온도와 공간속도이다. 본 연구에서는 바나듐 계열 촉매를 사용한 결과 NH₃는 약 300 °C~400 °C 사이에서 NO_x와 반응하는데 매우 안정화되어 있으며 이를 기반으로 실험의 온도 조건을 설정하였다. 공간속

Table 5 Experimental conditions

Catalyst Temperature	300 °C
	400 °C
Space Velocity	15,000 h ⁻¹
	30,000 h ⁻¹
	45,000 h ⁻¹
NH ₃ Injection Period	On/Off Control for 150s

Table 6 Catalyst Size

W x H x D (cm)	15000 h ⁻¹	1.8 x 1.8 x 7.5
	30000 h ⁻¹	2.7 x 2.7 x 7.5
	45000 h ⁻¹	

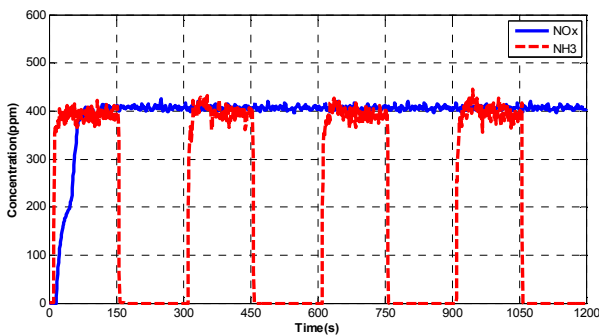


Fig. 5 NO_x and NH₃ concentration measured before SCR catalyst

도는 기관의 배기유속을 의미하며 실제 소형디젤 엔진의 배기유속에 맞춰 15,000 h⁻¹ ~ 45,000 h⁻¹ 사이에서 공간속도의 조건을 설정하였다. 또한 배기가스의 공간속도와 온도가 NO_x 저감 효율에 미치는 영향을 알기 위해 Table 6의 값들에서 실험을 하였다.

NO_x 저감특성을 파악하기 위해 실험은 NO_x/NH₃의 화학량론적 비율인 1:1로 주었을 때 NO_x 저감 효율을 측정하였으며 NO_x가 지속적으로 주입이 되는 동안 NH₃는 on/off 신호에 의해 150 초마다 분사 제어하였다. Fig. 5는 SCR 촉매 전단에 측정된 NO_x와 NH₃ 가스의 농도이다. 이 전단에서 측정된 데이터는 모든 조건과 동일하다.

Fig. 6, 7, 8은 공간속도에 온도변화를 주었을 때 NO_x 저감 효율을 나타낸 실험결과 그래프이다. 이 그래프 결과와 같이 모사가스의 온도가 300 °C에서의 변환효율은 약 70~90%로, 400 °C 조건에 비해 약간 성능이 낮게 나오는 것을 알 수 있다. 이

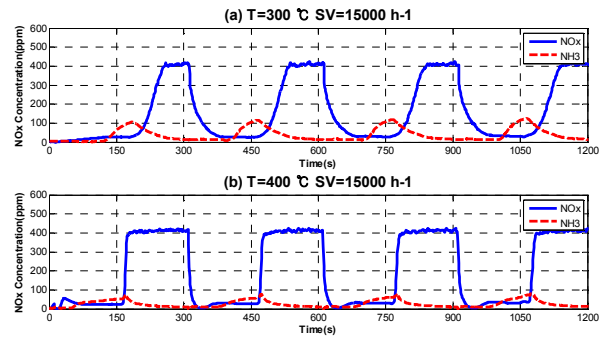


Fig. 6 NO_x and NH₃ concentration measured after SCR catalyst

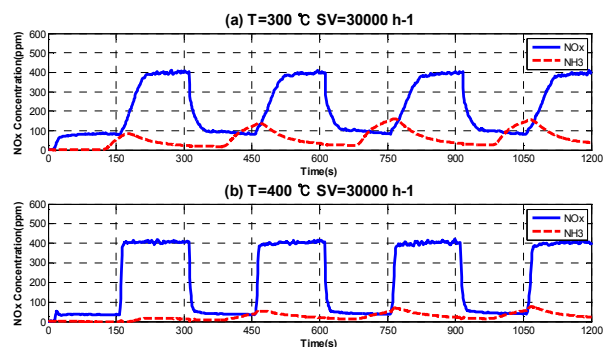


Fig. 7 NO_x and NH₃ concentration measured after SCR catalyst

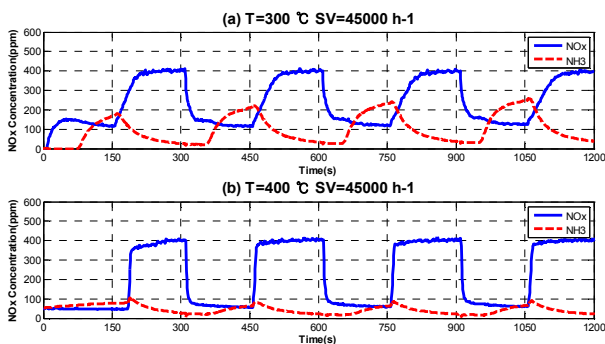


Fig. 8 NO_x and NH₃ concentration measured after SCR catalyst

는 일반적인 SCR 시스템에서 400 °C 부근에서 가장 높은 NO_x 변환효율을 나타내기 때문이다. 실험 결과는 전반적으로 높은 수준의 변환효율을 보여주기 때문에 300 °C에서의 결과 또한 문제가 되지 않을 것이다. 300 °C에서 최대 NO_x 저감 효율은 약 70~90%이다. 400 °C에서는 최대 85% 이상의 NO_x 저감 효율을 보였으며, 300 °C에서의 결과 보다 높은 효율을 보여주었다. 각 조건에서 NO_x 저감 효율은 높은 결과를 얻었지만, NH₃ slip이 약 50~200 ppm 정도 발생하였다. NH₃ slip을 줄이기 위해서는 각 조건에 맞는 NO_x/NH₃ 비율과 NH₃

주입시기를 개선해야 한다. 또한 모든 조건에서 공간속도가 증가함에 따라 SCR 촉매의 NO_x 저감 효율이 감소하는 것을 알 수 있다. 공간속도가 증가하면 SCR 내부에서 모사가스 중 NO_x 가 촉매 내부에 NH₃ 와 반응하기 위해 머무르는 시간이 줄어들게 되고 그에 따라 촉매 내부에서 NO_x 와 NH₃ 가 반응할 수 있는 시간이 줄어들게 되어 결과적으로 NO_x 저감효율이 저감된다.



Fig. 9 Schematic of Open-loop simulation

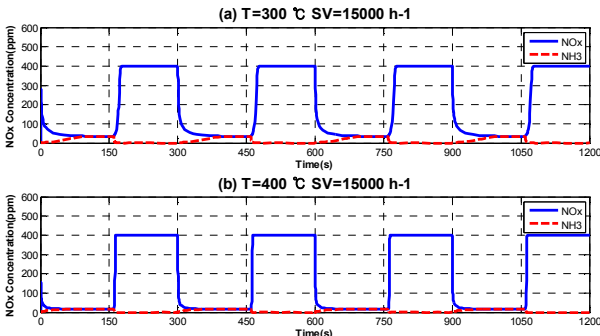


Fig. 10 NO_x and NH₃ concentration by simulation

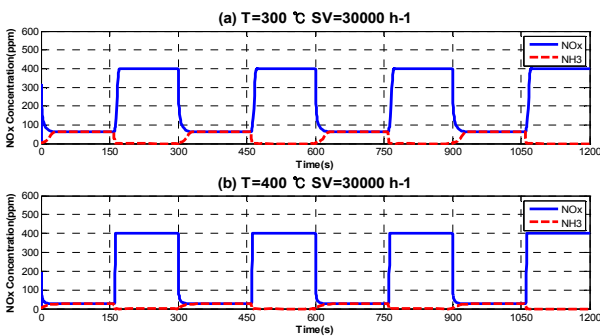


Fig. 11 NO_x and NH₃ concentration by simulation

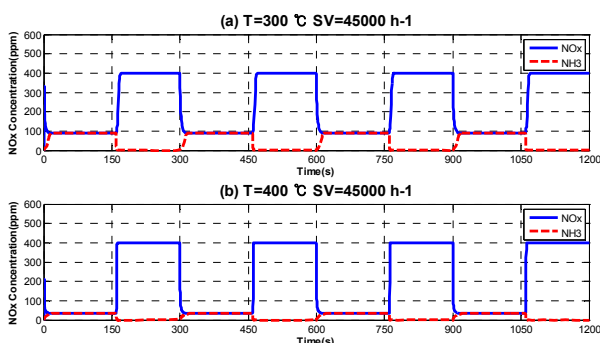


Fig. 12 NO_x and NH₃ concentration by simulation

4. 시뮬레이션을 통한 SCR 시스템 모델 검증

제안된 SCR 시스템 모델을 검증하기 위해 Rig 실험 결과를 바탕으로 Fig. 9 에 나타난 계략도와 같이 open-loop 시뮬레이션 하였으며 SCR Rig 실험 결과를 토대로 SCR 시스템 모델에서 NO_x 저감 효율에 가장 중요한 파라미터 값들을 추정하였다.

제안된 SCR 시스템 모델을 검증하기 위해 Rig 실험결과를 바탕으로 Matlab simulink 를 이용하여 시뮬레이션 하였다. Fig. 10, 11, 12 는 온도 300℃, 400℃에 대해 공간속도를 15,000 h⁻¹~45,000 h⁻¹ 으로 설정하였을 때의 시뮬레이션 결과이다. 각 조건에 대한 시뮬레이션 결과는 실험결과와 같이 높은 NO_x 저감률을 보여주었다. NH₃의 주입이 Off 되는 150s 구간에서 NO_x가 빠르게 400ppm 으로 증가하

Table 7 Activation energy and rate constant values for Arrhenius equation

Activation Energy	Values	Rate Constant	Values
E ₁ (KJ/mole)	105	K ₁ (m ³ /mole·s)	4.47 × 10 ¹⁴
E ₂ (KJ/mole)	74	K ₂ (m ⁶ /mole·s)	3.46 × 10 ⁶
E ₃ (KJ/mole)	85	K ₃ (m ³ /mole·s)	2.82 × 10 ⁸
E ₄ (KJ/mole)	108	K ₄ (m ³ /mole·s)	4.26 × 10 ⁶
E ₅ (KJ/mole)	47	K ₅ (1/s)	5.25 × 10 ⁶
E ₆ (KJ/mole)	112	K ₆ (1/s)	3.25 × 10 ⁹

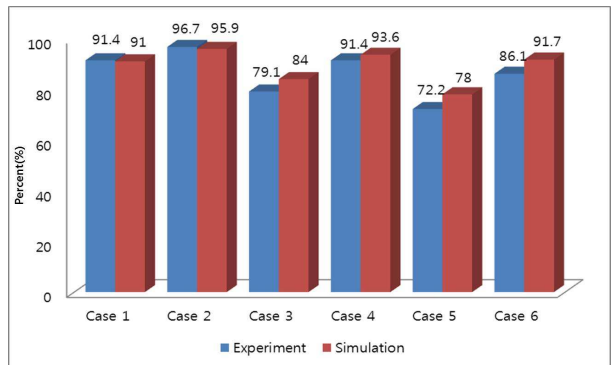


Fig. 13 Comparison of experimental and simulated NO_x conversion efficiency

는 것을 알 수 있다. 이는 NH_3 의 인젝터와 촉매까지의 거리가 시뮬레이션에서 적용이 되지 않아 생긴 현상으로 판단된다. 따라서, 시뮬레이션 시 모사가스 주입 시기에 대한 분사 지연 시간이 필요한 것으로 판단된다.

실험 데이터와 시뮬레이션을 통해 최적화된 활성화 에너지와 비례계수는 Table 7에 표기하였다. 파라미터 값들의 최적화 방법은 먼저 SCR 모델에서 Standard 반응이 NO_x 저감률에 미치는 영향을 판단하여 최적화하였다. Fast 및 Slow 반응에 대한 파라미터 값은 Standard 반응을 기반으로 반복적인 시뮬레이션을 통해 최적화 하였다. Fig. 13에 나타난 결과 비교 그래프는 시뮬레이션 결과와 실험 결과의 NO_x 저감 효율을 나타내고 있다. 공간속도가 낮은 Case1에서는 저감 효율의 결과 오차가 거의 없는 것을 알 수 있지만 공간속도가 높아질수록 결과의 오차를 확인하였다. 이는 시뮬레이션 시 SCR 내에서 발생하는 화학반응은 고려하였지만 파이프 길이, 모사가스 주입 위치, 그리고 가스 측정 위치 등과 같은 설계인자를 고려하지 않아 생긴 오차로 판단된다.

5. 결론

본 연구에서는 소형 경유차량을 대상으로 NO_x 를 저감하기 위한 배기 후처리 시스템 모델을 설계하기 위하여 SCR 시스템 모델링과 Rig 실험 및 Matlab을 이용하여 시뮬레이션 및 검증하였다.

SCR 시스템 모델은 암모니아 흡·탈착, 암모니아 산화, 그리고 주요 3가지 NO_x 환원반응을 고려하여 SCR 비선형 시스템 모델을 설계하였으며, 이 모델은 Arrhenius 방정식을 이용한 온도의 함수로서 설계하였다.

SCR Rig 실험은 디젤엔진에서 배출되는 배기가스와 같은 성분의 모사가스를 생성하는 시스템을 통해 실험하였다. 먼저 본 연구에서 사용한 촉매의 흡장률을 판단하기 위해 흡장 실험을 하였으며, $\text{NO}_x/\text{NH}_3 = 1:1$ 비율로 주입하였을 때 공간속도와 온도 조건의 변화에 의한 SCR의 NO_x 저감효율에 대한 실험 조건 및 데이터를 획득하였다.

제안된 모델은 Rig 실험에서 사용한 실험조건과 결과데이터를 이용하여 Matlab simulink를 통해 검증하였다. 먼저 NO_x 저감효율에 미치는 각 반응들에 대한 파라미터 값들을 최적화하였으며, 그중 Standard 반응을 기반으로 모델에 포함된 Fast, Slow 반응에 대한 파라미터 값들을 최적화하였다.

추후 과제로는 제어알고리즘을 개발하기 위해

본 연구에서 제안하였던 SCR 시스템 모델과 더불어 비선형 관측기 및 제어를 개발할 것이다.

후 기

본 논문은 2013년도 산업통상자원부 산업원천기술개발사업의 지원(과제번호:10039673)으로 진행되었습니다. 이에 감사드립니다.

참고문헌 (References)

- (1) Qingwen, S. and George, Z., 2002, "Model-based Closed-loop Control of Urea SCR Exhaust Aftertreatment System for Diesel Engine," *SAE paper*, 2002-01-0287.
- (2) Park, C. W., Kim, Ch. G., Choi, Y. and Kang, K. Y., 2009, "Performance of LNT Catalyst according to the Supply Condition of Hydrogen Reductants for Diesel Engine," *KSAE*, Vol. 17, No. 3, pp. 142~148
- (3) Meisami-Azad, M., Mohammad-pour, J., Grigoriadis, K. M. and Harold, M. P., 2010, "An Adaptive Control Strategy for Urea-SCR Aftertreatment System," *American Control Conference*.
- (4) Piazzesi, G., Devadas, M., Krocher, O., Elsener, M. and Wokaun, A., 2006, "Isocyanic Acid Hydrolysis over Fe-ZSM5 in urea SCR", *Catalysis Communications*, Vol. 7, pp. 600~602.
- (5) Kim, J. Y., Ryu, S. H. and Ha, J. S., 2004, "Numerical Prediction on the Characteristics of Spray-induced Mixing and Thermal Decomposition of Urea Solution in SCR System," *Proceeding of ASME Internal Combustion Engine Division*.
- (6) Strots, V. O., Santhanam, S., Adelman, B. J., Griffin, G. A. and Derybowski, E. M., 2009, "Deposit Formation in Urea-SCR Systems," *SAE 2009 World Congress*, SAE paper 2009-01-2780.
- (7) Willems, F., Cloudt, R., Eijnden, E., Genderen, M. and Verbeek, R., 2007, "Is Closed-loop SCR Control Required to Meet Future Emission Targets?", *SAE paper* 2007-01-1574.
- (8) Grossale, A., Nova, I., Tronconi, E., Chatterjee, D. and Weibel, M., 2008, "The Chemistry of the $\text{NO}/\text{NO}_2\text{-NH}_3$ "fast" SCR Reaction Over Fe-ZSM5 Investigated by Transient Reaction Analysis," *Journal of Catalysts*, Vol. 256, pp. 312~322.
- (9) Chatterjee, D., Burkhardt, T., Weibel, M., Tronconi, E., Nova, I. and Ciardelli, C., 2006, "Numerical Simulation of $\text{NO}/\text{NO}_2\text{-NH}_3$ Reaction on SCR-catalytic Converters: Model Development and Applications," *SAE 2006 World Congress*, SAE 2006-01-0468.
- (10) Grossale, A., Nova, I. and Tronconi, E., 2008, "Study of a Fe-zeolite-based System as NH_3 -SCR Catalyst for

Diesel Exhaust Aftertreatment,” *Catalysis Today*, Vol. 136, pp. 18~27. (11) Nova, I., Ciardeli, C., Tronconi, E., Chatterjee, D. and Weibel, M., 2007, “NH₃-NO/NO₂ SCR for Diesel Exhausts After Treatment: Mechanism and Modeling of a Catalytic Converter,” *Topics in*

Catalysis, Vols. 42, pp. 43~46.

(12) Upadhyay, D. and Van Nieuwstadt, M., 2002, “Modeling of a Urea SCR Catalyst with Automotive Application,” *Proceedings of the ASME International Mechanical Engineering Congress & Exposition*.