

PE8) 플라즈마 촉매 복합공정에서 질소산화물 저감 연구

Study on the Reduction of NO_x in Plasma-Catalytic Hybrid Reactor

정원석 · 이용환 · 최유리 · 정재우¹⁾ · 조무현 · 남궁원

포항공과대학교 환경공학부/가속기 연구소, ¹⁾진주산업대학교 환경공학과

1. 서 론

산성비의 원인이자 주요 대기오염물질로 규제되고 있는 질소산화물은 주로 이동오염원, 발전소 및 산업시설에서 배출되고 있으며 전 세계적으로 배출 기준이 점차 강화되고 있는 추세이다. 따라서 질소산화물을 효과적으로 제어하기 위한 기술도 다양하게 연구되고 있는데, 이중 플라즈마와 촉매를 동시에 이용할 경우 상승효과가 있음이 보고된 이후 복합공정에 관한 연구가 활발하게 진행되고 있다. 플라즈마 공정은 NO를 NO₂로 매우 효율적으로 전환시켜주며, 대부분의 NO_x용 촉매는 NO₂의 형태로 유입될 때 전환율이나 수명이 증가한다. 본 연구에서는 플라즈마 공정의 하나인 유전체 장벽 방전(Dielectric Barrier Discharge : DBD)공정과 SCR촉매(V₂O₅/WO₃-TiO₂)를 결합하여 플라즈마와 촉매의 복합공정이 NO_x 전환에 미치는 영향을 알아보고자 하였다.

2. 연구 방법

그림 1은 실험장치의 개략도를 보여주고 있다. 전체 장치는 기체유입부, 전원공급부, DBD 반응기와 촉매부 및 분석장치로 이루어져 있다. 파이렉스로 만들어진 반응기의 내경과 두께는 각각 44 mm, 3 mm이고 반응기 외벽에 400 mm 길이의 구리테이프를 부착하여 접지전극으로 사용하였다. 직경이 40 mm인 스테인레스 스틸로 만들어진 봉을 중심전극으로 사용하여 반응기내 gap distance가 2 mm 가 되게 하였다. NO와 NH₃ gas는 각각 9.98%, 4.09%의 불배기체를 사용하였으며 MFC를 이용하여 유입 농도를 조절하였고 건조공기를 포함한 전체 유입 가스 유량은 10 LPM으로 고정하였다. 반응기로 고전압을 인가하기 위해 220 V, 60 Hz의 교류전압을 슬라이드스와 네온트랜스를 이용해 승압하였다. 교류 고전압과 전류는 P6015A 1000X 고전압 프로브와 1 μF capacitor에 연결된 100X 프로브를 통해 측정되는 신호를 디지털 오실로스코프(TDS 744A)로 측정하여 방전특성을 분석하였다. 촉매 밀변과 높이가 각각 4.2-4.2-5.0 cm 로 6800 hr⁻¹의 space velocity를 가졌다. NO_x 농도는 화학발광법을 이용한 분석기(Thermo-Electron Chemilumin- escent NO_x Analyzer, Model 42C)를 사용하여 촉매 후단부에서 측정하였다. 표 1에 본 연구에서 수행한 실험 조건과 실험 인자들을 나타내었다.

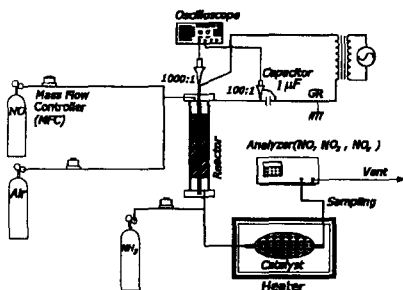


Fig. 1. Experimental setup of plasma-catalytic hybrid process

Table 1. Experimental parameters and range

Parameter	Range
NO concentration	200 ~ 400 ppm
NH ₃ concentration	0 ~ 400 ppm
Temperature	room temp. ~ 300. C
Peak Voltage	0 ~ 20 kV (60 Hz)
Peak Current	0 ~ 450 mA

3. 결과 및 고찰

그림 2는 DBD 반응기에서 주입 에너지밀도에 따른 NO 전환특성을 보여주고 있다. 에너지밀도는 반응기로 전되는 전력을 유량으로 나누어준 값이다. 그림에 나타나듯이 주입 에너지밀도가 증가함에 따라 NO 농도는 감소하고 NO₂ 농도는 증가하여 전체 NO_x의 양은 거의 일정하였는데 이는 줄어드는 NO 대부

분이 NO₂로 전환됨을 의미한다. 에너지밀도가 50 J/L 부근에서 초기 NO농도의 50%가 NO₂로 전환되었다.

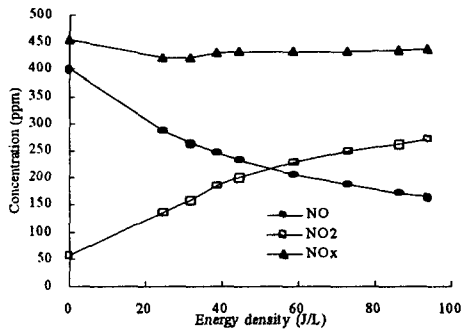


Fig. 2. The conversion characteristics of NOx in DBD reactor

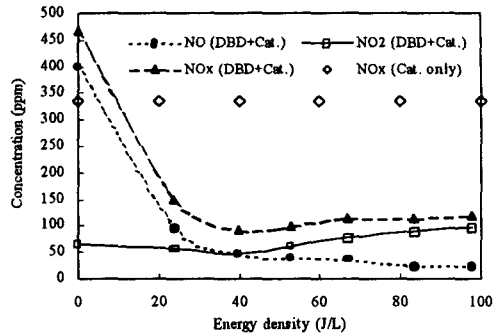
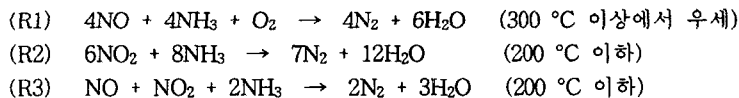


Fig. 3. The conversion characteristics of NOx in plasma catalytic hybrid process

그림 3.는 플라즈마-촉매 복합공정과 촉매 단독 공정에서의 NOx 전환특성을 비교해 나타내었다. 초기 NO와 NO₂ 농도가 각각 400 ppm, 66 ppm 으로 전체 NOx 농도는 466 ppm이었고, 주입된 암모니아 농도는 약 250 ppm 이었다. 본 실험에 사용된 NH₃ SCR촉매(V₂O₅/WO₃-TiO₂)는 300. C 이상에서 완전 활성화되며 반응1(R1)이 우세해 NO로 유입되어도 쉽게 NOx를 저감시킨다. 그림 3의 실험은 200. C에서 수행되었는데 이 온도에서 촉매는 완전히 활성화되지 않으므로, 촉매 단독공정만으로는 약 28% 정도의 NOx가 제거되었다. 반면 플라즈마-촉매 복합공정(DBD + SCR)에서는 200. C에서도 NOx 농도가 급격히 감소하였다.

앞서 언급한 바와 같이 플라즈마 반응기에서는 NO가 NO₂로 전환되는 반응이 주로 일어나므로 전체 NOx 농도는 거의 일정하나, 플라즈마 촉매복합공정에서는 NO와 NO₂가 동시에 제거되었다. 약 40 J/L의 주입에너지밀도에서 80 %의 NOx가 제거되었는데, 그림 3에 나타났듯이 복합공정에서 NOx 저감을 위한 최적의 에너지밀도가 존재함을 알 수 있었다. 낮은 에너지밀도영역에서는 에너지밀도가 증가함에 따라 NOx 농도가 감소하였다. NOx 농도는 30 J/L 에 이를 때까지 급감하였으며 50 J/L 이상 고에너지 밀도 영역에선 오히려 증가하였다. 이러한 현상이 발생하는 이유는 NO와 NO₂의 비율이 NOx 전환율에 영향을 주기 때문이라고 생각된다. 40 ~ 50 J/L 일 경우 DBD 반응기를 통과한 질소산화물 성분비는 NO와 NO₂가 대략 1:1이었다. 촉매온도가 200. C 이하인 경우 반응식 2, 3이 우세해지는데, 본 실험결과에 의하면 반응3(R3)과 같이 NO와 NO₂ 비율이 같은 경우가 보다 더 우세한 것으로 추정된다.



참고 문헌

- U. Kogelschatz and B. Eliasson, Handbook of Electrostatic Process, Ed. J. S. Chang, A. J. Kelly, J. M. Crowley, Marcel Dekker, Inc., New York, 1995, Chapter 26.
- H. Miessner, K. P. Francke, R. Rudolph and Th. Hammer, Catalysis Today, 75 (2002) 325.
- T. Hammer and S. Broer, Proc. 1998 Int. Fall Fuels and Lubricants Meeting (Society of Automotive Engineers, SP-1395), 1998, P. 7.
- B. M. Penetrante, R. M. Brusasco. B. T. Merritt, W. J. Pitz and G. E. Vogtlin, Proc. 1998 Int. Fall Fuels and Lubricants Meeting (Society of Automotive Engineers, SP-1395), 1998, P. 57.