

## PE12)

## 저온플라즈마-촉매의 상호작용과 VOC 분해로의 응용

### Interaction of Nonthermal Plasma With Catalyst and Its Application to VOC Decomposition

김현하 · 김종호<sup>1)</sup> · Atsushi Ogata

독립행정법인 산업기술융합연구소(AIST), <sup>1)</sup>한서대학교 환경공학과

#### 1. 서 론

상온과 대기압이라는 비교적 온화한 조건에서 운전 가능한 저온 플라즈마기술은 반응성이 뛰어난 활성종을 반응 매개체로 이용하기 때문에 짧은 처리시간으로 다양한 화학반응을 일으킬 수 있다. 이러한 기술적인 특징에 주목하여, 재료합성, 표면처리, 에너지, 바이오, 의료, 연료개질, 환경정화 등 광범위한 분야로의 응용 가능성이 검토되고 있다. 환경분야로의 응용에 있어서도 수처리, 살균, 자동차 배가스 처리, 실내공기 정화기, 연소공정에서 배출되는 SOx와 NOx의 동시처리 등, VOC 분해처리 등에 대해서 활발히 연구가 진행되고 있다. 저온 플라즈마기술의 고도화를 위해 해결해야 할 기술적 과제로서 에너지 효율의 개선, 반응 생성물의 안전성, 물질수지의 파악, 그리고 부산물의 생성억제 등이 제기되었다.

최근의 저온 플라즈마 기술의 연구동향을 살펴보면, 플라즈마 단독기술보다는 대부분 흡착이나 촉매 등 다른 기술과 접목한 하이브리드 기술이 주류를 이루고 있다. 플라즈마-촉매 하이브리드 시스템을 이용한 VOC 분해는 사용촉매와 운전조건에 따라 정도의 차이는 있으나, 플라즈마 단독공정에 비해, 에너지 효율과, 부산물의 선택성 그리고 탄소수지가 크게 개선되는 점에 대해서는 일치하는 결과가 보고되고 있다. 저자 등은 PDC 공정에서 VOC의 분해가 산소농도에 크게 영향을 받는 점과, 제올라이트 촉매에 나노미터 크기의 등 각종 활성금속(Ag, Pt, Cu, Mn)을 담지하면 반응기의 성능을 크게 개선할 수 있다고 보고하였다(Kim et al., 2009, 2006, 2004). 촉매공정에서 성능향상을 위한 가장 일반적인 접근방법으로 다양한 활성금속을 담지시켜, 필요한 반응에 대한 활성과 성능을 평가하고 있다. 플라즈마-촉매의 복합공정에서도 다양한 금속의 담지와 그 담지량의 영향에 대하여 많은 실험결과들이 보고되고 있다. 최적화를 위해서는 촉매의 개발과 플라즈마의 운전조건의 개선에 대한 연구가 필요하며, 특히 플라즈마와 촉매가 가지는 상승효과(synergy effect)의 메커니즘에 대한 이해가 대단히 중요하다 할 수 있을 것이다. 본 연구에서는 제올라이트 촉매에 담지시킨 나노미터 크기의 각종 금속촉매와 저온 플라즈마 사이의 상호작용에 있어서 촉매활성의 화학적인 관점의 평가와, 플라즈마의 물리적인 특성사이의 상호연관성에 대해서 검토한 결과를 보고하기로 한다.

#### 2. 연구 방법

그림 1에 본 실험에 사용한 실험장치를 나타내었다. 먼저 광학렌즈로 관찰 대상이 되는 제올라이트 표면에 초점을 맞추고, 플라즈마에서 방출되는 미약한 광을 ICCD 카메라로 관찰하였다. 리볼버에는 배율이 다른 4개의 렌즈를 장착하여 조건에 따라 관찰영역을 쉽게 선택할 수 있으며, 본 연구에서는 5X 렌즈를 주로 사용하였다. 5X 렌즈의 경우 관찰영역이 2.2mm×2mm로 하나의 촉매 펠렛상에서 생성되는 플라즈마를 관찰하는데 적합하다. 플라즈마 반응기는 두 장의 유리평판의 바깥면에 알루미늄 테이프를 발라 전극으로 한 유전체 장벽방전(이하 DBD) 형태로서, 유전체 사이의 공간에 촉매를 설치하였다. DBD 반응기내에 플라즈마를 발생시키기 위해서 주파수 50 Hz의 교류 고전압(~30kV<sub>pk-pk</sub>)을 인가하였다. 촉매로는 직경 1.8의 원통형의 펠렛으로 Mordenite(이하 MOR), MS-13X, 그리고 HY 등의 제올라이트에 나노미터 사이즈의 여러 활성금속을(Ag, Au, Cu, Pt, Pd) 담지한 것을 사용하였다. 각종 활성금속의 담지에는 함침법을 이용하였으며, 담지 금속의 형태와 크기는 투과형 전자현미경(이하 TEM)으로 관찰하였다.

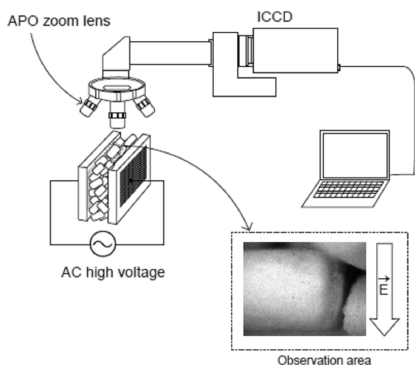


Fig. 1. ICCD camera system for the characterization of discharge plasma on the surface of zeolites.

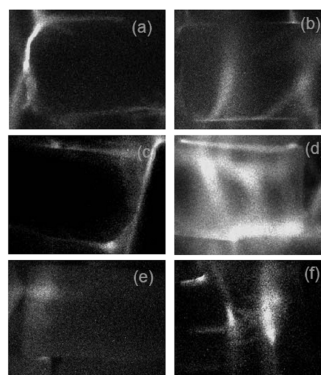


Fig. 2. ICCD camera images; (a) MS-13X, (b) Ag/MS-13X, (c) MOR, (d) Ag/MOR (e) HY, (f) Ag/HY.

### 3. 결과 및 고찰

그림 2에는 나노미터 크기의 은(Ag)을 담지한 각종 제올라이트 촉매를 충전한 플라즈마 반응기의 방전형태를 ICCD 카메라를 이용하여 관찰한 결과를 나타내었다. 우선, 활성금속을 담지하지 않은 (a) MS-13X 또는 (c) MOR (e) HY 등의 경우 주로 제올라이트 촉매펠릿이 서로 접촉하는 부분에서만 플라즈마가 생성되었다. 한편, 같은 인가전압 조건에서도(16.5kVmax) Ag를 담지한 제올라이트에서는 플라즈마의 발생이 보다 넓은 표면으로 확산되고 있는 것으로 관찰되었다. 이러한 경향은, 제올라이트뿐만 아니라, 산화티탄과  $\gamma$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$  촉매 모두에서, 그리고 은 이외의 활성금속(Pt, Cu, Zr)등에 대해서도 공통적으로 관찰되었다. ICCD 카메라를 이용한 촉매표면의 플라즈마 관찰결과로부터, 제올라이트에 담지한 활성금속이 가지는 촉매활성이라는 화학적인 측면이외에도, 플라즈마 생성 영역의 확대라는 물리적인 영향이 촉매활성에 중요한 역할을 담당하는 것을 확인하였다. 제올라이트는 종류에 관계없이 Ag를 담지한 촉매가 Cu를 한 것보다 뛰어난 VOC의 분해활성과  $\text{CO}_2$  선택성을 나타내었다. 또한 플라즈마 생성역의 확대라는 물리적인 측면에 있어서도 담지 제올라이트의 종류에 관계없이 Ag가 Cu보다 더 현저한 효과를 나타내는 것으로 확인되어, 플라즈마-촉매의 복합공정에서 화학적 요인(촉매성능)과 물리적인 요인(플라즈마 생성특성)이 서로 밀접하게 연관되어 있다는 것을 확인할 수 있었다.

### 사 사

본 연구는 NEDO(일본)의 산업기술연구조성사업의 지원으로 수행되었습니다(07A21202a).

### 참 고 문 헌

- Kim, H.H. (2004) Nonthermal Plasma Processing for Air Pollution Control: A Historical Review, Current Issues, and Future Prospects, *Plasma Processes and Polymers*, 1, 91-110.
- Kim, H.H., A. Ogata, and S. Futamura (2005) Atmospheric Plasma-Driven Catalysis For the Low Temperature Decomposition of Dilute Aromatic Compounds, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, 38, 1292-1300.
- Kim, H.H., A. Ogata, and S. Futamura (2006) Effect of Different Catalysts on the Decomposition of VOCs Using Flow-Type Plasma-Driven Catalysis, *IEEE Trans. Plasma Sci.*, 34, 984-995.
- Kim, H.H., J.H. Kim, and A. Ogata (2009) Microscopic observation of discharge plasma on the surface of zeolites supported metal nanoparticles, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, 42, 135210(10pp).