

## 유전체 장벽 방전-광촉매 복합공정에 의한 NO와 SO<sub>2</sub> 제거

김동주, Nasonova Anna, 김교선\*

강원대학교 공과대학 화학공학과  
200-701 강원도 춘천시 효자동 192-1번지

(2007년 6월 1일 접수; 2007년 6월 14일 채택)

### NO and SO<sub>2</sub> Removal by Dielectric Barrier Discharge-Photocatalysts Hybrid Process

Dong-Joo Kim, Anna Nasonova, and Kyo-Seon Kim\*

Department of Chemical Engineering, Kangwon National University,  
192-1 Hyoza-dong, Chuncheon, Kangwon-Do 200-701, Korea

(Received for review June 1, 2007; Revision accepted June 14, 2007)

#### 요 약

본 연구에서는 유전체 장벽 방전-광촉매 복합 공정에 의한 NO 및 SO<sub>2</sub> 제거를 실험적으로 분석하였다. 유전체 장벽 방전을 위해 유전체로서 유리구가 사용되었고 TiO<sub>2</sub> 광촉매 입자는 딥코팅(dip-coating) 방법에 의해 높은 비표면적을 가지는 스펀지 형태로 유리구에 코팅되었다. 플라즈마 반응기에 인가된 전압이나 펄스 주파수, 혹은 기체의 체류시간이 증가함에 따라, NO 및 SO<sub>2</sub>의 제거효율은 증가하였다. NO 및 SO<sub>2</sub> 공급농도 증가하면 NO 및 SO<sub>2</sub> 제거에 더 많은 에너지가 요구되어 NO 및 SO<sub>2</sub>의 제거효율이 감소하였다. 본 연구의 실험 결과들은 NO와 SO<sub>2</sub>를 제거하기 위한 유전체 장벽 방전-광촉매 복합 공정 설계의 기초 자료로 사용될 수 있다.

**주제어** : 유전체 장벽 방전, NO와 SO<sub>2</sub> 제거, TiO<sub>2</sub> 광촉매, 딥코팅

**Abstract**—In this study, we analyzed experimentally the NO and SO<sub>2</sub> removal by the dielectric barrier discharge-photocatalysts hybrid process. The glass spheres were used as a dielectric material for dielectric barrier discharge and the TiO<sub>2</sub> photocatalysts were coated onto those spheres by the dip-coating method. The TiO<sub>2</sub> particles were coated in the sponge-shape, which has the larger surface area. As the voltage applied to the plasma reactor, the pulse frequency of applied voltage, or the residence time increases, the NO and SO<sub>2</sub> removal efficiencies increase. The increase in the supplied concentrations of NO and SO<sub>2</sub> leads to the higher energy for NO and SO<sub>2</sub> removal and the NO and SO<sub>2</sub> removal efficiencies decrease. These experimental results can be used as a basis to design the dielectric barrier discharge-photocatalysts hybrid process to remove NO and SO<sub>2</sub>.

**Keywords** : Dielectric barrier discharge, NO and SO<sub>2</sub> removal, TiO<sub>2</sub> photocatalysts, Dip-coating

#### 1. 서 론

최근 선진국을 중심으로 환경규제가 크게 강화되면서 환경 산업이 21세기의 최대 고부가가치 산업으로 떠오르고 있다. 특히 환경산업은 다른 산업분야와의 연관성이 커 환경산업에서의 경쟁력이 세계경제질서에 직접적인 영향을 줄 정도가 되

었다. 배가스 중 산성비의 주된 요인인 NO<sub>x</sub>나 SO<sub>x</sub>는 그 배출량에 대한 심각성이 고려되어 선진국들을 중심으로 그 배출원에 대한 규제가 강화되고 있다. 이에 많은 NO<sub>x</sub>나 SO<sub>x</sub>와 같은 대기오염 물질을 동시에 효율적이고 경제적으로 처리할 수 있는 기술 개발이 요구되어 왔으며 저온 플라즈마를 이용한 배가스 처리 기술이 기존의 여러 방법들의 기술적, 경제적, 환경

\* To whom correspondence should be addressed.  
E-mail address : kkyoseon@kangwon.ac.kr

오염의 문제점을 보완해 줄 수 있는 기술로 평가되고 있다. 저온 플라즈마를 이용한  $\text{NO}_x$ 와  $\text{SO}_x$  제거 공정의 장점으로 1) 초기 투자비용이 기존 공정 대비 약 40%에 불과한 건식 공정이고 2) 부산물로 유안/초안 비료가 생성되며 3)  $\text{NO}_x$ 나  $\text{SO}_x$  이외에도 비휘발성 유기물(VOC), 악취, 암모니아, 다이옥신 등의 여타 유해 가스처리에도 효과적이어서 기술의 응용범위가 다양하다는 점을 들 수 있다[1-11].

대기오염 물질 제거를 위한 저온 플라즈마 공정에는 플라즈마 발생 방법에 따라 펄스 코로나 방전 공정과 유전체 장벽 방전 공정 등으로 나눌 수 있다. 유전체 장벽 방전 공정은 펄스 코로나 방전 공정에 비해 아크 방전으로의 전이 없이 안정적으로 스트리머(streamer)를 발생시킬 수 있다는 장점을 가지고 있다. 유전체 장벽 방전에는 전극과 유전체를 배치하는 방식에 따라 1) 전극들과 유전체 사이의 공간에서 방전을 일으키는 무성방전, 2) 유전체에 전극을 붙여 유전체 표면에서 방전을 일으키는 표면 방전, 3) 전극 사이에 구형의 유전체 펠렛(pelet)을 채워 넣어 유전체 펠렛들 사이에서 방전을 일으키는 펠렛 방전 등이 있다[12-16].

유전체 장벽 방전 공정에서는 대기압 상태에서 방전 전극에 인가된 고전압에 의해 전극 주변에 높은 전기장이 형성된다. 반응기 내에서 전자들은 높은 전기장에 의해 가속되어 높은 에너지를 가지게 되는 반면 질량이 큰 이온과 분자들은 가속되지 않아 낮은 에너지를 가지게 되므로 저온 플라즈마가 발생하게 된다. 전자들은 반응기 내로 공급되는 기체들 ( $\text{N}_2$ ,  $\text{O}_2$ ,  $\text{H}_2\text{O}$ ) 과 충돌하여 반응성이 강한 라디칼들 ( $\text{H}$ ,  $\text{N}$ ,  $\text{O}$ ,  $\text{O}_3$ ,  $\text{OH}$ ,  $\text{HO}_2$ ,  $\text{O}^{\cdot-}$  등) 과 2차 전자들을 생성하게 된다. 방전 반응기 내에서 플라즈마 화학반응에 의해 생성된 라디칼들은 산화성 라디칼( $\text{O}$ ,  $\text{O}_3$ ,  $\text{OH}$ ,  $\text{HO}_2$ ) 과 환원성 라디칼( $\text{N}$ ,  $\text{H}$ ) 로 구분되며  $\text{NO}_x$ 나  $\text{SO}_x$ 와 이들 라디칼들과 반응하여  $\text{N}_2$ ,  $\text{N}_2\text{O}$ ,  $\text{N}_2\text{O}_5$ ,  $\text{HNO}_3$ ,  $\text{HNO}_2$ ,  $\text{SO}_3$ ,  $\text{HOSO}_2$  등으로 산화·환원된다[6,9-12].

$\text{TiO}_2$ 와 같은 광촉매에 일정한 영역의 빛 에너지가 가해지면 전자가 가전자대(valence band)에서 전도대(conduction band)로 여기되며 이때 전도대와 가전자대에는 전자( $e^-$ )와 정공( $h^+$ )이 각각 형성된다. 전자와 정공은 강한 산화·환원력을 가지고 있어 유해물질을 산화·환원 반응에 의해 무해한 물질로 분해시킨다. 플라즈마 방전에 의해 발생된 방전광은 광촉매 활성화에 필요한 에너지원이 되며 광촉매의 활성화로 전자와 정공이 형성된다. 전자는 광촉매에 흡착되어 있는 산소( $\text{O}_2$ )를 산소이온( $\text{O}_2^-$ )으로 환원시키고 정공은 수산화물( $\text{OH}$ )을 형성하며 유해물질은 산소이온 및 수산화물과의 산화·환원 반응에 의해 분해된다[13-18].

$\text{NO}_x$ 나  $\text{SO}_x$  등은 광촉매를 이용한 광분해법에 의해서도 제거될 수 있으며 광분해법은 저온 플라즈마 공정과 함께 2차 오염물질 생성의 문제점을 극복한 건식방법으로서 다른 유해물질 처리도 가능하여 광분해법을 이용한 유해가스 처리 연구가 중요시 되고 있다. 최근에는 벤젠,  $\text{NO}_x$ ,  $\text{SO}_x$  등의 유해가스 처리에 플라즈마와 촉매를 결합한 공정을 이용한 연구가 진행되고 있다. Kim 등[13]은 유전체 장벽 방전과 광촉매( $\text{TiO}_2$ ,

$\text{BaTiO}_3$ ,  $\text{Pt/TiO}_2$ ,  $\text{Ag/TiO}_2$ )를 결합한 반응기를 사용하여 벤젠을 제거하였으며  $\text{Pt/TiO}_2$  촉매가 벤젠 제거 활성이 제일 높은 것으로 보고하였다. Ogata 등[14]은 벤젠 제거를 위해 유전체 장벽 방전과 광촉매를 결합한 반응기를 이용하였고 흡착제의 사용으로 벤젠의 제거효율을 향상시킬 수 있었음을 보고하였다. Lee 등[15]은 유전체 장벽 방전과 광촉매를 결합한 공정에서 유전체로서 유리구보다  $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 를 사용했을 때 벤젠의 제거효율과  $\text{CO}_2$ 의 선택도가 향상되었음을 보고하였다. Mok 등[16,17]은 선택적 촉매환원법을 이용한 질소산화물 제거 공정에서 플라즈마 방전의 영향을 연구하였으며, 플라즈마-촉매 시스템의 사용으로 플라즈마나 촉매 반응기를 개별적으로 사용한 경우보다  $\text{NO}_x$  제거효율을 약 35%정도 상승시킬 수 있음을 보고하였다. Kim 등[18]은 유전체 장벽 방전- $\text{TiO}_2$  광촉매 복합 공정에서  $\text{NO}$ 와  $\text{SO}_2$  제거효율이 유전체 장벽 방전 공정만을 사용하였을 때보다 향상되었음을 보고하였다.

지금까지 유전체 장벽 방전과 광촉매를 이용한 유기오염물 제거 연구는 많이 수행되었으나 본 연구에서처럼 유전체 장벽 방전과 광촉매의 조합을 이용한  $\text{NO}$ 와  $\text{SO}_2$  제거에 대한 체계적인 연구는 아직 부족한 상태이다. 본 연구에서는 유전체 장벽 방전- $\text{TiO}_2$  광촉매 복합 공정에서의  $\text{NO}/\text{SO}_2$  제거효율을 실험 변수를 변화시키면서 체계적으로 조사하였다.

## 2. 실험

유전체 장벽 방전- $\text{TiO}_2$  광촉매 복합 공정에서  $\text{NO}$ 와  $\text{SO}_2$  제거효율에 대한 공정 변수의 영향을 분석하기 위해 본 연구에서 사용한 실험장치의 개략도는 Figure 1과 같다[18]. 실험장치는 반응물질의 주입 및 제어부, 반응기, 전력공급 및 제어부, 반응 부산물 측정부로 구성되어 있다. 반응가스들의 유량은 MFC(Mass Flow Controller; Tylan, Model FC-280S)에 의해 반응기내로 정량 공급되도록 하였다. 본 연구에서 사용한 반응기는 cylinder-wire 형으로서 반응기 내부가 유전체구로 충전된 유전체 펠렛 방전 반응기이다. cylinder의 직경은 2.5 cm이고 길이는 38cm이며 재질은 Pyrex이다. 방전극으로는 직경이 0.5 cm인 구리 봉을 사용하였으며 접지극은 반응기 외벽에 설치된 길이가 30 cm인 stainless steel sieve를 사용하였다. 유전체 펠렛 방전을 위한 유전체로서 직경인 3 mm인 유리구를 사용하였다[18].  $\text{NO}/\text{SO}_2$  제거에 광촉매의 영향을 분석하기 위해 광촉매로서  $\text{TiO}_2$  광촉매(Degussa, P-25)를 사용하였으며 dip-coating 방법으로  $\text{TiO}_2$  광촉매를 유리구에 코팅시켰다[19]. 100 ml 증류수에  $\text{TiO}_2$  입자 2 g을 첨가한  $\text{TiO}_2$  슬러리 용액을 만든 후 유리구를  $\text{TiO}_2$  슬러리 용액에 담지시켰다.  $\text{TiO}_2$  입자가 유리구에 안전적으로 붙어 있도록 하기 위해  $120^\circ\text{C}$ 에서 1 시간 동안 건조시켰다. 플라즈마 방전을 일으키기 위해 AC 고전압발생기를 사용하였고 공급전력의 주파수는 펄스 발생기를 사용하여 조절하였다. 실험 동안에 플라즈마 발생 전극에 공급되는 전압의 크기와 주파수는 오실로스코프(Tektronix TDS 220)를 사용하여 측정하였다. 플라즈마 방전 후  $\text{NO}$  및  $\text{SO}_2$ 의 농도 변화는 반응기 배출구에 설치된

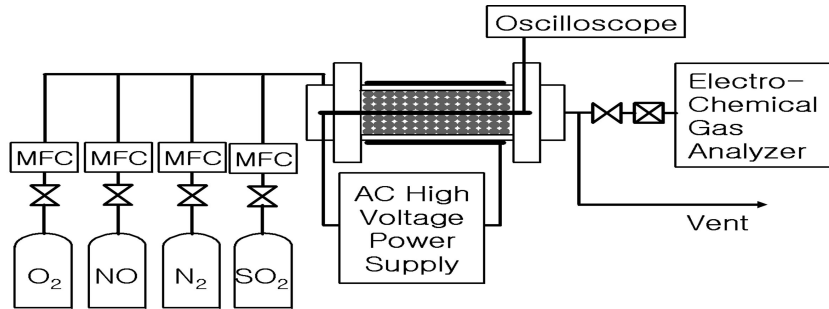


Figure 1. Schematic diagram of dielectric barrier discharge-photocatalysts hybrid process for NO and SO<sub>2</sub> removal.

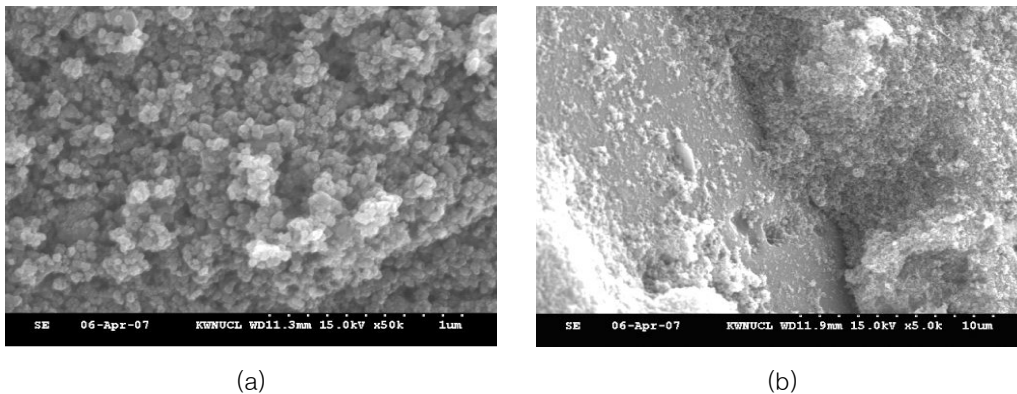


Figure 2. SEM images of TiO<sub>2</sub> particles coated on glass bead (a) and surface of glass bead (b).

Electro-Chemical Gas Analyzer (Digitron, GreenLine MK II)을 사용하여 측정하였다.

### 3. 결과 및 토론

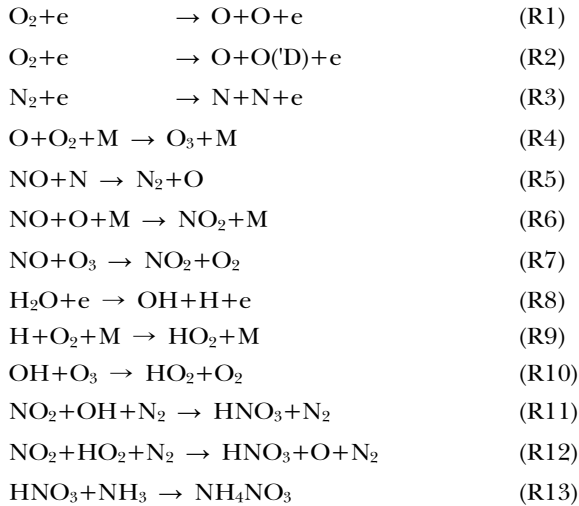
Figure 2는 동일 유리구에서 이미지 확대 배율을 변화시켰을 때 얻은 유리구에 코팅된 TiO<sub>2</sub> 입자 (a)와 유리구 표면 (b)의 SEM 사진을 나타낸다. Dip-coating 방법을 사용하여 TiO<sub>2</sub> 입자들을 유리구 표면에 잘 코팅할 수 있었으며 TiO<sub>2</sub> 입자들은 서로 잘 응집하여 응집체를 이룬 것을 보이고 있다 (Figure 2(a)). TiO<sub>2</sub> 입자들은 유리구 전체에 균일하게 코팅되지 않았으나 TiO<sub>2</sub> 입자 코팅층은 스펀지 형태를 보이고 있어 광촉매 반응에 중요한 높은 비표면적을 가지고 있다 (Figure 2(b)).

NO와 SO<sub>2</sub> 제거 실험은 상온 상압에서 수행하였으며 NO 및 SO<sub>2</sub> 제거 시 공정변수의 영향을 알아보기 위해 NO 공급 농도 ([NO]<sub>0</sub>), SO<sub>2</sub> 공급 농도 ([SO<sub>2</sub>]<sub>0</sub>), 반응기로 인가되는 전압, 인가전압 펄스 주파수 (f), 체류시간 (τ<sub>r</sub>) 등을 변화시켰다. 공정 변수에 대한 기준 조건으로 NO와 SO<sub>2</sub> 공급 농도는 각각 400 [ppm] (20 [sccm]), 인가전압 주기는 900 [Hz], 전체 기체 유량 (Q) 은 5,000 [sccm] (τ<sub>r</sub>=0.92 [s]) 를 각각 사용하였다. 기준조건에서의 N<sub>2</sub>와 O<sub>2</sub>의 유량은 각각 3,930 [sccm]와

1,050 [sccm]이다. NO와 SO<sub>2</sub>의 제거효율은 공급전력에 따라 변화하며 플라즈마 반응기에 인가된 공급전력은 인가전압, 펄스 주파수 및 전류에 의존한다[20,21]. 인가전압은 3-15 [kV]로, 인가전압 주기는 100~900 [Hz]로 각각 변화시켰다. NO 공급 농도는 200~600 [ppm]으로, SO<sub>2</sub> 공급 농도는 200~600 [ppm]으로, 체류시간은 0.3~0.92 [s]로 각각 변화시켰다. 체류시간은 분위기 가스인 N<sub>2</sub>와 O<sub>2</sub>의 유량을 변화시켜 가며 조절하였다.

#### 3.1. NO 제거

Figure 3에는 NO 농도 변화에 따른 NO 제거효율의 변화를 인가전압에 따라 나타냈다. 플라즈마 방전 후 높은 에너지를 가지는 전자와 분위기 가스 간의 전자 충돌반응(R1-R3) 및 라디칼반응(R4)에 의해 O, O(<sup>1</sup>D) (들뜬 상태의 O 원자), O<sub>3</sub>, N 등이 생성되고 NO는 이들 라디칼들과의 산화·환원반응(R5-R7)에 의해 N<sub>2</sub>, NO<sub>2</sub>로 전환된다. NO<sub>2</sub>는 H<sub>2</sub>O와 전자 간의 충돌반응(R8) 및 라디칼반응(R9 & R10)에 의해 생성된 OH 및 HO<sub>2</sub>와 반응하여 HNO<sub>3</sub>로 전환된다(R11 & R12). HNO<sub>3</sub>는 NH<sub>3</sub>와의 중성화 반응에 의해 질산암모늄염(NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>)과 같은 입자상 물질로 전환되며 질산암모늄염 입자는 비료용으로 사용될 수 있다(R13) [6-11].



반응기로 인가되는 전압이 증가할수록 전자들이 가지는 평균에너지가 증가하여 NO 제거반응에 중요한 활성라디칼들의 생성반응(R1-R3) 속도는 증가하므로 라디칼들과의 빠른 화학반응에 의한 NO의 제거효율은 증가하고 있다. 인가전압이 9 kV일 때 NO 공급농도가 800 ppm일 경우 NO 제거효율은 30%였으나 200 ppm일 경우는 100%를 보이고 있다. 이는 NO 공급농도가 감소할수록 NO 제거에 필요한 에너지가 감소하였기 때문이다.

Figure 4는 펄스 주파수에 따른 NO 제거효율을 인가전압에 따라 나타낸 결과이다. 인가전압이 증가할수록 NO 제거에 더 많은 에너지가 공급되므로 NO 제거효율은 증가하고 있다. 펄스 주파수가 증가함에 따라 단위시간당 전자에 가해지는 평균에너지는 증가하여 전자 충돌반응(R1-R3)에 의해 생성되는 활성라디칼들의 양은 증가하므로 활성라디칼들과의 빠른 화학반응에 의한 NO 제거효율은 증가하고 있다. Figure 5에는 체류시간에 따른 NO 제거효율을 인가전압에 따라 나타냈다. Figure 3-4에서처럼 인가전압이 증가함에 따라 NO 제거

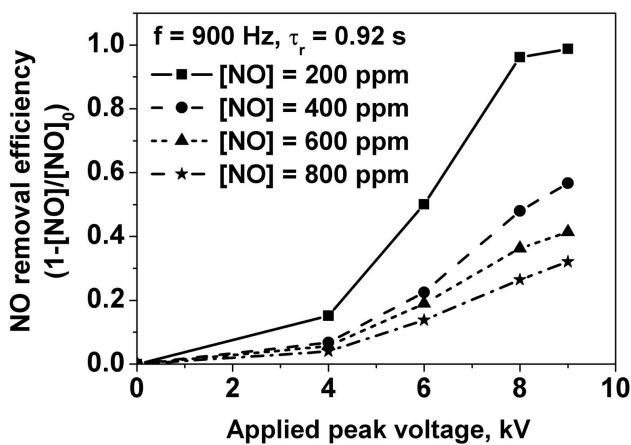


Figure 3. NO removal efficiencies for various initial NO concentrations as a function of applied peak voltage (f = 900 Hz, τr = 0.92 s).

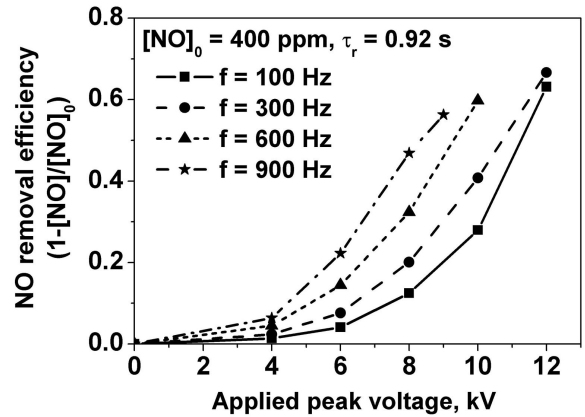


Figure 4. NO removal efficiencies for various pulse frequencies as a function of applied peak voltage ([NO]₀ = 400 ppm, τr = 0.92 s).

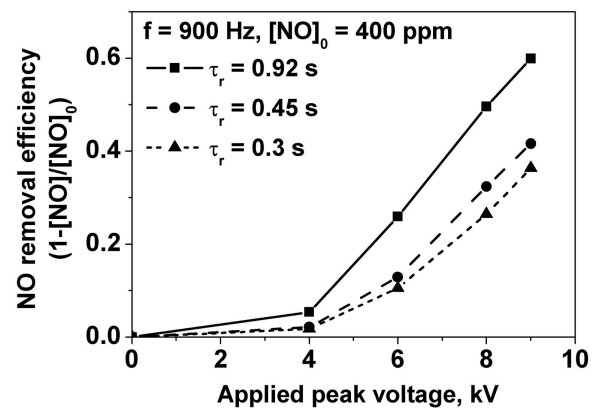
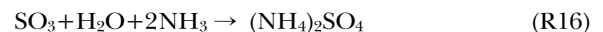
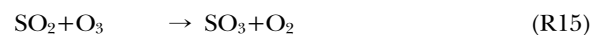


Figure 5. NO removal efficiencies for various residence times as a function of applied peak voltage ([NO]₀ = 400 ppm, f = 900 Hz).

효율은 증가하고 있다. 체류시간이 증가함에 따라 반응기 내에 형성된 방전 영역에서 NO가 더 오랜 시간동안 머물러 화학반응에 의해 전환되므로 NO의 제거효율이 증가하고 있다.

### 3.2. SO₂ 제거

Figure 6에는 인가전압에 따른 SO₂ 제거효율을 SO₂ 공급농도에 따라 나타냈다. SO₂는 주로 O와 O₃ 라디칼들과의 반응(R14 & R15)에 의해 SO₃로 전환된다. SO₃는 NH₃와 중성화 반응하여 황산암모늄염((NH₄)₂SO₄) 입자를 만들고 황산암모늄염 입자도 비료용으로 사용될 수 있다(R16)[1,2,8].



인가전압이 증가함에 따라 SO₂의 제거효율이 증가하는 것

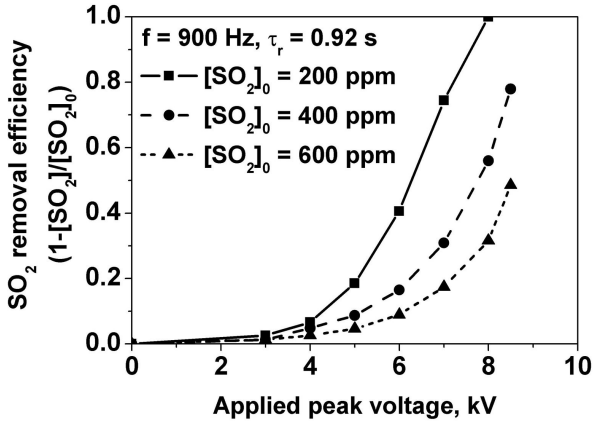


Figure 6. SO<sub>2</sub> removal efficiencies for various initial SO<sub>2</sub> concentrations as a function of applied peak voltage ( $f = 900 \text{ Hz}$ ,  $\tau_r = 0.92 \text{ s}$ ).

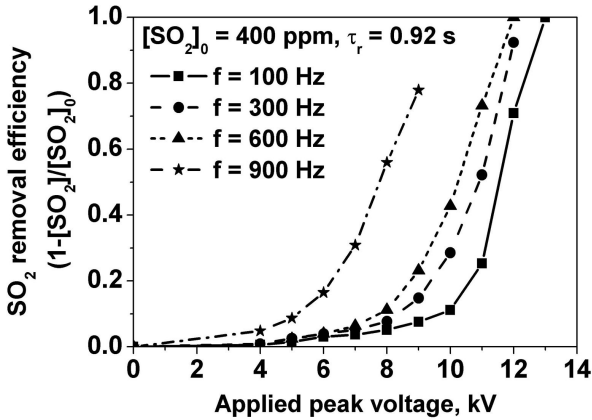


Figure 7. SO<sub>2</sub> removal efficiencies for various pulse frequencies as a function of applied peak voltage ( $[\text{SO}_2]_0 = 400 \text{ ppm}$ ,  $\tau_r = 0.92 \text{ s}$ ).

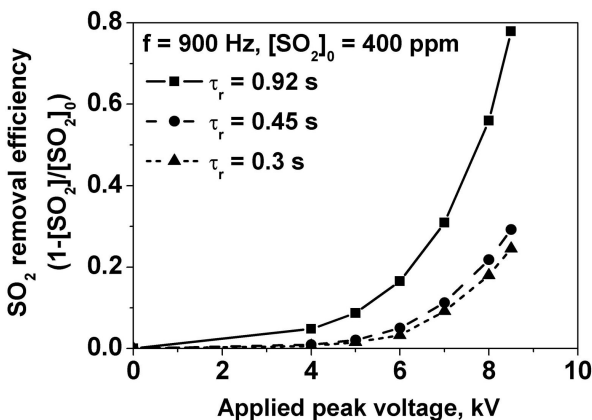


Figure 8. SO<sub>2</sub> removal efficiencies for various residence times as a function of applied peak voltage ( $[\text{SO}_2]_0 = 400 \text{ ppm}$ ,  $f = 900 \text{ Hz}$ ).

은 SO<sub>2</sub> 제거반응에 중요한 라디칼들의 생성속도가 증가하여 SO<sub>2</sub> 제거반응속도가 증가하였기 때문이다. SO<sub>2</sub> 공급 농도가 600 ppm에서 200 ppm으로 감소함에 따라 SO<sub>2</sub> 제거를 위한 에너지가 감소하여 인가전압이 8 kV일 때 SO<sub>2</sub>의 제거효율은 30%에서 100%로 증가하고 있다.

Figure 7과 8에는 인가전압에 따른 SO<sub>2</sub> 제거효율을 펄스 주파수와 체류시간에 따라 나타낸 결과를 각각 보여준다. Figure 6에서와 같은 이유로 인가전압의 증가로 SO<sub>2</sub>가 더 빠르게 제거되고 있다. Figure 7에서 펄스 주파수가 증가함에 따라 활성라디칼들의 생성에 더 많은 에너지가 공급되어 활성 라디칼들의 농도 증가에 따른 SO<sub>2</sub> 제거반응 속도는 증가하므로 SO<sub>2</sub>가 더 빠르게 제거되고 있다. Figure 8에서는 체류시간이 증가함에 따라 SO<sub>2</sub> 제거반응이 더 오랜 시간동안 진행되므로 SO<sub>2</sub>가 빠르게 제거되는 것을 보이고 있다.

### 3.3. NO와 SO<sub>2</sub> 동시 제거

Figure 9와 10은 NO와 SO<sub>2</sub>를 동시에 제거할 경우 펄스 주파수에 따른 NO와 SO<sub>2</sub>의 제거효율을 인가전압에 따라 각각 나타낸 결과이다. 인가전압이 증가할수록 NO와 SO<sub>2</sub>의 제거반응에 더 많은 에너지가 공급되므로 NO와 SO<sub>2</sub>의 제거효율이 증가하고 있다. 펄스 주파수가 증가함에 따라 단위시간당 공급전력이 증가하여 전자들이 가지는 평균에너지가 증가하므로 NO와 SO<sub>2</sub> 제거효율이 증가하고 있다. NO와 SO<sub>2</sub>를 동시에 제거할 경우 NO와 SO<sub>2</sub> 제거효율은 각각을 단독으로 제거했을 때보다 감소한 것을 보이고 있다. 이는 NO와 SO<sub>2</sub> 동시 제거의 경우에도 NO 혹은 SO<sub>2</sub> 농도가 높았을 때의 경우와 마찬가지로 (Figures 3과 6의 결과) 활성라디칼들이 NO와 SO<sub>2</sub> 제거반응에 모두 관여하여 NO와 SO<sub>2</sub> 동시 제거에 필요한 활성 라디칼들의 상대적인 양이 감소하였기 때문이다. NO와 SO<sub>2</sub>를 400 ppm 씩 동시에 공급하였을 때 NO의 제거효율이 Figure 3에서 NO를 800 ppm 주입한 결과보다 제거효율이 높게 나타났다. NO와 SO<sub>2</sub> 동시 제거에서 NO와 SO<sub>2</sub>의 제거

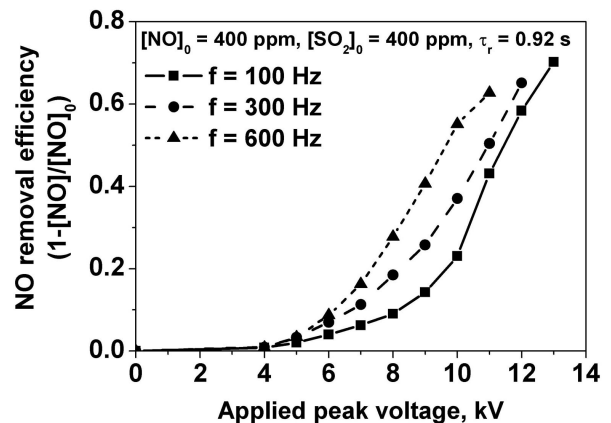


Figure 9. NO removal efficiencies for various pulse frequencies as a function of applied peak voltage ( $[\text{NO}]_0 = 400 \text{ ppm}$ ,  $[\text{SO}_2]_0 = 400 \text{ ppm}$ ,  $\tau_r = 0.92 \text{ s}$ ).

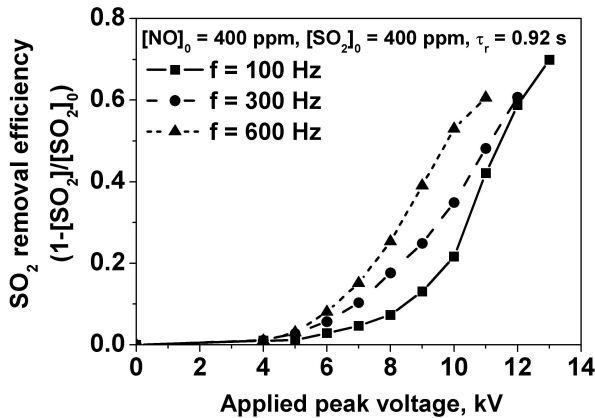


Figure 10. SO<sub>2</sub> removal efficiencies for various pulse frequencies as a function of applied peak voltage ([NO]<sub>0</sub> = 400 ppm, [SO<sub>2</sub>]<sub>0</sub> = 400 ppm, τ<sub>r</sub> = 0.92 s).

효율이 NO 혹은 SO<sub>2</sub>를 단독으로 제거하였을 때보다 높게 나타나는 실험결과가 발표된 바 있으나 이에 대한 정확한 메카니즘은 아직 규명된 바가 없으며 추후 근본적인 제거 메카니즘 규명이 요구된다[12,22].

#### 4. 결 론

본 연구에서는 유전체 장벽 방전-광촉매 복합공정에서 공정 변수 변화가 NO 및 SO<sub>2</sub> 제거효율에 미치는 영향을 체계적으로 분석하였다. 유전체 장벽 방전을 위해 유전체인 유리구에 의해 방전을 일으키는 유전체 펠렛 방전 반응기를 사용하였으며 TiO<sub>2</sub> 광촉매를 dip-coating 방법을 사용하여 유리구에 코팅하였다. 유리구에 코팅된 TiO<sub>2</sub> 입자들은 응집체를 이루었으며 코팅층은 스펀지 형태로 높은 비표면적을 가졌다. 플라즈마 방전 반응기에 인가된 전압이 증가함에 따라, 또는 인가 전압의 펄스 주파수가 증가함에 따라, NO 및 SO<sub>2</sub>의 제거효율은 증가하였다. 또한 반응기 내 기체의 체류시간이 증가하거나 NO 및 SO<sub>2</sub> 공급농도가 감소함에 따라 NO 및 SO<sub>2</sub>의 제거효율은 증가하였다. 본 연구의 결과들은 실제 NO<sub>x</sub> 및 SO<sub>x</sub> 제거 공정에 유전체 장벽 방전-광촉매 복합 공정을 대형화하여 적용함에 있어 효율적인 운전조건 및 전력 감소를 위한 장치개발에 중요한 정보를 제공할 수 있을 것으로 사료된다.

#### 감 사

본 결과물은 교육인적자원부와 산업자원부의 출연금 및 보조금으로 수행한 산학협력중심대학 육성사업의 연구결과입니다.

#### 참고문헌

1. Clements, J. S., Mizuno, A., Wright, C. F., and Davis, R. H., "Combined Removal of SO<sub>2</sub>, NO<sub>x</sub>, and Fly Ash

Simulated Flue Gas Using Pulsed Streamer Corona," *IEEE Trans. Ind. Appl.*, **25**(1), 63-69 (1989).

2. Dinelli, G. L., and Civitano, M., "Industrial Experiments on Pulsed Corona Simultaneous Removal of NO<sub>x</sub> and SO<sub>2</sub> from Flue Gas," *IEEE Trans. Ind. Appl.*, **26**(4), 535-541 (1990).

3. Masuda, S., and Nakao, H., "Control of NO<sub>x</sub> by Positive and Negative Pulsed Corona Discharges," *IEEE Trans. Ind. Appl.*, **26**(2), 374-382 (1990).

4. Masuda, S., Hosokawa, S., Tu, X.-L., Sakakibara, K., Kitoh, S., and Sakai, S., "Destruction of Gaseous Pollutants by Surface-Induced Plasma Chemical Process (SPCS)," *IEEE Trans. Ind. Appl.*, **29**(4), 781-786 (1993).

5. Mizuno, A., Shimizu, R., Chakrabarti, A., Dascalescu, L., and Furuta, S., "NO<sub>x</sub> Removal Process Using Pulsed Discharge Plasma," *IEEE Trans. Ind. Appl.*, **31**(5), 957-962 (1995).

6. Mok, Y. S., Ham, S. W., and Nam, I. S., "Mathematical Analysis of Positive Pulsed Corona Discharge Process Employed for Removal of Nitrogen Oxides," *IEEE Trans. Plasma Sci.*, **26**(5), 1566-1574 (1998).

7. Mok, Y. S., and Nam, I. S., "Removal of Nitric Oxide in a Pulsed Corona Discharge Reactor," *Chem. Eng. Technol.*, **22**(6), 527-532 (1999).

8. Mok, Y. S., Lee, H. W., Hyun, Y. J., Ham, S. W., Kim, J. H., and Nam, I. S., "Removal of NO and SO<sub>2</sub> by Pulsed Corona Discharge Process," *Korea J. Chem. Eng.*, **18**(3), 308-316 (2001).

9. Kim, D.-J., Choi, Y. R., and Kim, K.-S., "Effects of Process Variables on NO<sub>x</sub> Conversion by Pulsed Corona Discharge Process," *Plasma Chem. Plasma Process.*, **21**(4), 625-650 (2001).

10. Kim, K.-S., and Kim, D.-J., "Plug Flow Modeling of Particle Formation and Growth Combined with Plasma Chemistry in NO<sub>x</sub> Removal by a Pulsed Corona Discharge Process," *Aerosol Sci. & Technol.*, **36**(2), 178-190 (2002).

11. Kim, D.-J., and Kim, K.-S., "Analysis on Plasma Chemistry and Particle Growth in Corona Discharge Process for NO<sub>x</sub> Removal Using Discrete-Sectional Method," *IEEE Trans. Plasma Sci.*, **31**(2), 227-235 (2003).

12. Kim, S.-M., Kim, D.-J., and Kim, K.-S., "Efficient Desulfurization and Denitrification by Low Temperature Plasma Process," *Hwahak Konghak*, **43**(1), 129-135 (2005).

13. Kim, H.-H., Lee, Y.-H., Ogata, A., and Futamura, S., "Plasma-Driven Catalyst Processing Packed with Photocatalyst for Gas-Phase Benzene Decomposition," *Catal. Commun.*, **4**(7), 347-351 (2003).

14. Ogata, A., Einaga, H., Kabashima, H., Futamura, S., Kushiyama, S., and Kim, H.-H., "Effective Combination of Nonthermal Plasma and Catalysts for Decomposition of

- Benzene in Air," *Appl. Catal. B : Environ.*, **46**(1), 87-95 (2003).
15. Lee, B.-Y., Park, S.-H., Lee, S.-C., Kang, M., and Choung, S.-J., "Decomposition of Benzene by Using a Discharge Plasma-Photocatalyst Hybrid System," *Catal. Today*, **93-95**, 769-776 (2004).
  16. Mok, Y. S., Koh, D. J., Shin, D. N., and Kim, K. T., "Reduction of Nitrogen Oxides from Simulated Exhaust Gas by Using Plasma-Catalytic Process," *Fuel Process. Technol.*, **86**(3), 303-317 (2004).
  17. Mok, Y. S., Lee, H.-J., Dors, M., and Mizeraczyk, J., "Improvement in Selective Catalytic Reduction of Nitrogen Oxides by Using Dielectric Barrier Discharge," *Chem. Eng. J.*, **110**, 79-85 (2005).
  18. Kim, D.-J., Nasonova, A., Park, J.-H., Kang, J.-Y., and Kim, K.-S., "NO<sub>x</sub> and SO<sub>x</sub> Removal by Low Temperature Plasma-Photocatalysts Hybrid System," *Mater. Sci. Forum*, **544-545**, 91-94 (2006).
  19. Ao, C. H., and Lee, S. C., "Indoor air purification by photocatalyst TiO<sub>2</sub> immobilized on an activated carbon filter installed in an air cleaner," *Chem. Eng. Sci.*, **60**, 103 (2005).
  20. Kogelschatz, U., "Dielectric-barrier discharges : Their History, Discharge Physics, and Industrial Applications", *Plasma Chem. Plasma Process.*, **23**(1), 1-46 (2003).
  21. Park, B.-K., Kim, Y.-H., Jang, B.-C., Cho, J.-H., and Kim, G.-H., "The Operation Properties of DBD Reactors in Air Pressure with Varying the Capacitance of Reactors", *J. Korean Vac. Soc.*, **10**(4), 440-448 (2001).
  22. van Veldhuisen, E. M., Zhou, L. M., and Rutgers, W. R., "Combined Effects of Pulsed Discharge Removal of NO, SO<sub>2</sub> and NH<sub>3</sub> from Flue Gas", *Plasma Chem. Plasma Process.*, **18**(1), 91-111 (1998).