

배리어 유전체 방전형 2 단 전기집진기의 나노입자 집진 및 잔류 오존 제거 특성

변정훈* · 지준호** · 윤기영* · 황정호†

Characteristics of Nano Particle Precipitation and Residual Ozone Decomposition for Two-Stage ESP with DBD

Jeong-Hoon Byeon, Jun-Ho Ji, Ki-Young Yoon and Jungho Hwang

Key Words : Dielectric Barrier Discharge(배리어 유전체 방전), ESP(Electrostatic Precipitator, 전기 집진기), Particle Precipitation(입자 집진), Ozone Decomposition(오존 제거)

Abstract

DBD(Dielectric Barrier Discharge) plasma in air is well established for the production of large quantities of ozone and is more recently being applied to aftertreatment processes for HAPs(Hazardous Air Pollutants). Although DBD high electron density and energy, its potential use as nano and sub-micron sized particle charging are not well known. Aim of this work is to determine design and operating parameters of a two-stage ESP with DBD. DBD and ESP are used as particle charger and precipitator, respectively. We measured particle precipitation efficiency of two-stage ESP and estimated ozone decomposition of both pelletized MnO₂ catalyst and pelletized activated carbon. To examine the particle precipitation efficiency, nano and sub-micron sized particles were generated by a tube furnace and an atomizer. AC voltage of 7~10 kV(rms) and 60 Hz is used as DBD plasma source. DC -8 kV is applied to the ESP for particle precipitation. The overall particle collection efficiency for the two-stage ESP with DBD is over 85 % under 0.64 m/s face velocity. Ozone decomposition efficiency with pelletized MnO₂ catalyst or pelletized activated carbon packed bed is over 90 % when the face velocity is under 0.4 m/s in dry air.

1. 서 론

상압 저온플라즈마(non-thermal plasma) 기술 중 하나인 DBD(dielectric barrier discharge) 플라즈마는 현재 공간 플라즈마(volume plasma) 기술로서 유해 가스 처리에 많이 응용되고 있다.^(1, 2) 이는 글로우 방전(glow discharge)의 대공간 여기(larger volume excitation)와 코로나 방전(corona discharge)의 고전압이 혼합된 형태로 효과적인 고에너지 전자의

발생원이 된다. 이러한 고에너지는 물질의 화학구조를 깨뜨려 플라즈마 내에 무수히 많은 이온들과 라디칼들이 존재하게 만든다.⁽¹⁾ Table 1 에는 공기정화에 있어서 일반화된 전기적 기술 중 하나인 코로나 방전을 DBD 와 함께 특성인자를 비교하여 나타내었다.⁽¹⁾

DBD 플라즈마에 의해 생성되는 전자의 에너지는 코로나 방전 기술보다 높기⁽¹⁾ 때문에 근래에 와서는 HAPs 로 불리우는 VOCs, NO_x, CFCs, SO_x 등의 물질을 단시간에 정화시키는데 유용한 기술로서 많이 연구되고 있다. 하지만, 이러한 기술은 입자의 집진에는 아직 응용된 바가 거의 없으며, 최근 Sano⁽³⁾ 등에 의해 DBD 기술을 이용해서 전기적 조건 변화에 따른 입자의 집진을 시도한 적이 있는 정도이다.

DBD 플라즈마는 높은 전자에너지를 갖는 동시

* 연세대학교 기계공학과

** 연세대학교 NT 사업단

† 책임저자, 회원, 연세대학교 기계공학과

E-mail : hwangjh@yonseil.ac.kr

TEL : (02)2123-2821 FAX : (02)312-2159

Table 1 Characteristics Parameters of Corona and Dielectric Barrier Discharge

	Corona Discharge	DBD
pressure(bar)	1	1
electric field(kV/cm)	0.5-50	0.1-100
reduced field(Td)	2-200	1-500
electron energy(eV)	5	1-10
electron density(cm ⁻³)	10 ¹³	10 ¹⁴
degree of ionization	small	10 ⁻⁴

에 오존의 생성량이 크므로 오존 생성 기술로써도 이용된다.⁽²⁾ 반면에 공기정화의 측면에서는 잔류 오존량 문제를 가진다. 현재 코로나 방전을 이용한 공기청정기에서도 잔류 오존량에 대한 내용이 여러 논문에서 이미 언급되어 있다.⁽⁴⁻⁵⁾ 비교적 고농도의 HAPs의 처리에 DBD가 응용될 수 있는 분야의 경우, 산업공정 및 자동차 터널 등의 잔류 오존은 크게 문제가 되지 않을 수 있지만, 일반 실내공기와 같은 저농도의 HAPs(Hazardous Air Pollutants)가 존재할 경우에는 잔류오존의 제거는 반드시 필요하다. 이미 미국에서는 실내용 공기청정기의 경우 발생하는 오존량을 0.05 ppm 이하로 규제하고 있으나,⁽⁴⁾ 국내에서는 아직 이러한 문제에 대한 구체적인 방안이 마련되어 있지 않은 상황이다.

본 연구에서는 궁극적으로는 DBD 플라즈마를 이용해서 입자상 및 가스상 오염 물질에 대한 동시 저감을 목표로 하지만 우선 이에 대한 기초연구로서 DBD 플라즈마 기술이 입자 하전장치로서의 성능평가를 실험적으로 수행하였다. 또한 DBD 플라즈마를 통해 생성되는 잔류 오존의 제거에 대한 방법으로 DBD 후단에 조립상 MnO₂ 촉매 또는 활성탄 층(bed)을 설치하여 초기 제거성능 및 시간에 따른 제거성능 변화에 대한 실험을 수행하였다.

2. 실험

DBD 하전부를 이용한 직경 1 μm 크기 이하의 나노 입자의 집진 성능 평가와 함께 DBD 하전부 내에서 형성되는 플라즈마에 의한 잔류 오존을 제거하는 실험을 나누어 실시하였다.

2.1 집진실험

Fig. 1에 입자 집진 실험에 대한 장치를 나타내었다. 청정공기 공급부(clean air supply)를 통과한 공기 중 일부는 20 nm 부터 1 μm 크기 영역의 입

자를 DBD 하전기 내로 유입시키기 위해 전기 가열 튜브로(tube furnace, Lenton Furnaces model GTF12/25/364)와, 분무형 입자 발생기(atomizer)로 공급되며 나머지는 발생 입자의 회석과 실험덕트 내의 유량 조절을 위해서 사용된다. 전기 가열 튜브로에서 NaCl(크기분포 20-100 nm)을 발생시키고, 분무형 입자 발생기에서는 DOS(dioctyl sebacate, 크기분포 80-800 nm) 입자를 발생시킨 후 이들을 함께 혼합시켜 이중 모드의 크기 분포를 가지는 입자를 실험덕트 내로 유입시켰다. 이때의 유입공기의 단면유속은 0.64 m/s 이었다. 실험덕트에서 DBD 하전부와 전기집진부를 통과한 입자의 수농도 변화는 설치된 샘플링 프로브를 통해 입자 계측 장비인 SMPS(scanning mobility particle sizer, TSI 3936) 시스템으로 유입되어 측정된다.

유입되는 입자의 수농도를 C₀, DBD 하전부만 on 되었을 때의 수농도를 C_D, DBD 하전부와 집진부 모두 on 되었을 때의 농도를 C_{DE}로 하여, 집진효율을 아래의 식으로 나타내었다.

$$\eta_D = 1 - \frac{C_D}{C_0} \quad (1)$$

$$\eta_{DE} = 1 - \frac{C_{DE}}{C_0} \quad (2)$$

DBD 하전부의 전극은 동박(copper foil)을 사용하였고, 가로, 세로 및 두께는 30×80×0.03(mm³) 이었다. 유전체 전극간 간격은 4 mm 이고 4 단으로 구성하였다. DBD 발생 전압-전류 조건은 AC 10 kV-1.1 mA(rms)이며, 주파수는 60 Hz로 하였다. DBD 하전부를 통과하여 하전된 입자는 고전압(DC -8 kV)이 가해지는 평판형 전기집진부에서 포집된다. DBD 하전부와 집진부의 전압인가 유무에 따라 DMA(TSI 3081)와 CPC(TSI 3022A)를 통해 입자 크기 분포가 측정된다.

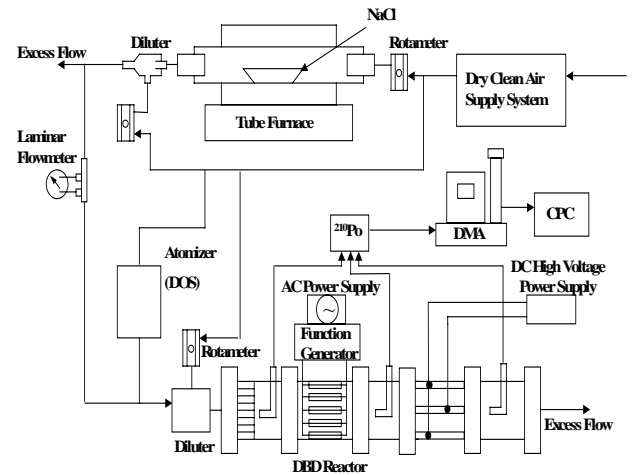


Fig. 1 Schematics of Particle Precipitation Experiment

2.2 잔류오존 제거실험

Fig. 2 와 같이 실험장치를 구성하였다. Fig. 1 의 DBD 하전부 부분을 1 단으로 축소하여 오존 발생의 정량화를 단순화하였다. DBD 하전부 내의 전극은 집진실험과 마찬가지로 0.03 mm 동박(copper foil)을 사용하였다. 운모(mica)로 구성된 환형 DBD 하전부에 청정공기 공급부를 통해 공기를 유입시켜 오존을 발생시켰다. 발생된 오존은 DBD 하전부의 후단에 설치한 조립상(pelletized) MnO₂ 촉매 혹은 활성탄 충전 층을 통과시켜 출구에서 오존측정기(PortaSens II, Ati, resol. 0 - ±2%)를 이용하여 측정하였다.

오존제거를 위해 사용된 방법은 크게 세 가지로 잔류오존을 공기에 일정한 체류시간을 둔 후에 초기와 나중의 농도차로 제거율을 확인하는 방법(자가제거)과, 잔류오존에 대해 일정 체류시간 동안 열을 인가하여 제거하는 방법(열제거), 마지막으로는 조립상 MnO₂ 와 활성탄을 DBD 하전부 후단에 추가로 설치하여 MnO₂ 촉매에 의한 화학적 제거와 활성탄의 흡착제거를 하는 방법을 실험에 적용하였다.

오존제거에 사용된 Bed(2×8×5 cm³) 충전물인 조립상 MnO₂(φ5 mm pellet, Carulite 200 Catalyst, Carus Chemical)와 활성탄(φ 4 mm pellet, 석탄조립활성탄느 동양탄소(주))을 모두 약 100 °C로 24 시간 건조 후 사용하였다.

3. 결 과

3.1 집진특성

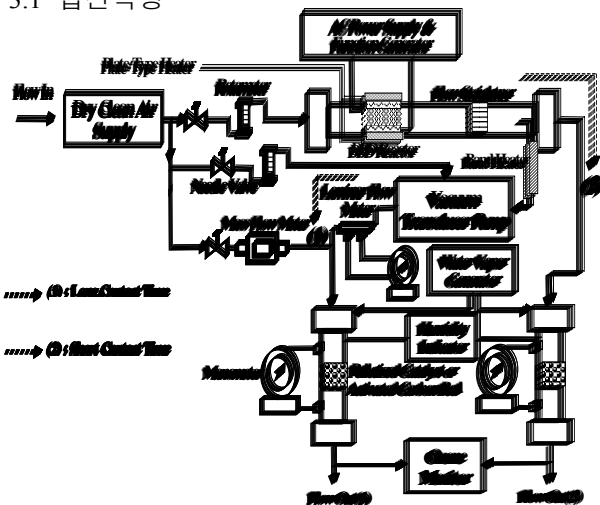


Fig. 2 Schematics of Ozone Decomposition Experiment

Fig. 3 에는 전기 가열 튜브로 발생시킨 NaCl 입자와 분무형 입자 발생기로 발생시킨 DOS 입자를 실험덕트로 동시에 유입시켜 입자 크기에 따른 개수분포를 나타내었다.

Fig. 4 에는 Fig. 3 에서 나타낸 이중모드(bimodal) 입자에 대한 집진 결과를 나타내었다. DBD 하전부와 전기집진부 모두를 on 했을 때의 집진성능은 입자의 크기가 커질수록 증가하는 경향을 나타내었고, DBD 하전부만 on 했을 때의 집진성능은 100 nm 을 기준으로 그 이상 및 이하의 크기영역에서 집진성능이 증가하는 경향을 나타내었다.

3.2 오존제거특성

Fig. 5 에 전기적 조건에 따른 오존의 생성특성을 나타내었다. DBD 하전부에 인가되는 주파수의 상승에 따라 방전 개시 전압-전류는 함께 증가하는데, 이 때 오존량이 증가⁽⁴⁾하는 결과를 보였다. 또한 DBD 하전부를 통과하는 공기의 단면유속의 증가로 DBD 에서의 체류시간을 줄어 오존량이 감소함을 확인하였다.

Fig. 6 에는 오존제거를 위해 사용된 세 가지 방법에 대한 결과들을 나타내었다. 수분의 영향을 배제하기 위해 건조조건(R.H. 25 %)하에서 오존제거율을 측정하였다. 자가제거를 제외한 방법들은 단면유속이 약 0.4 m/s 이하의 경우 오존 제거율이 90 % 이상임을 확인하였다. 그러나 단면유속이 0.4 m/s 보다 빠를 경우, 열제거보다 MnO₂ 촉매 또는 활성탄을 이용한 제거방법의 오존 제거율이 약 60 % 정도 높음을 확인하였다.

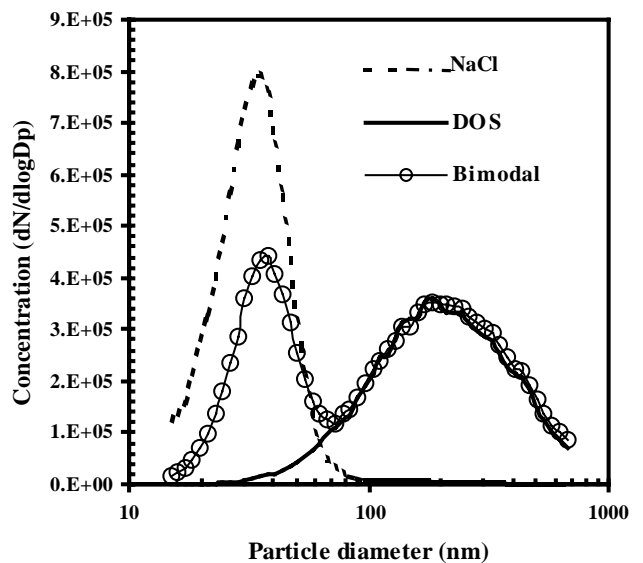


Fig. 3 Particle Size Distribution

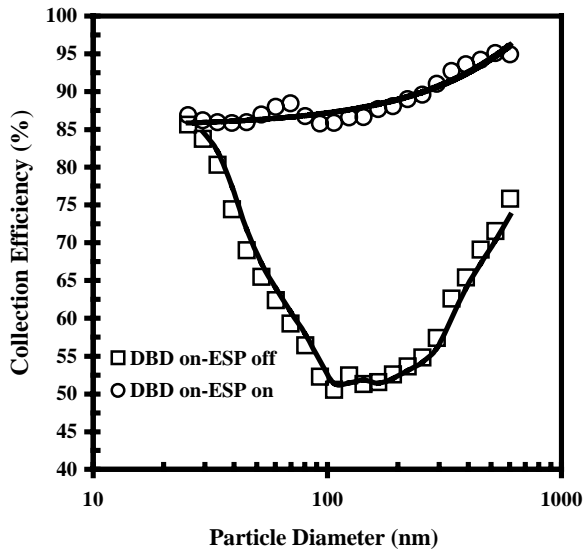


Fig. 4 Collection Efficiency
(60 Hz, 10 kV, Face Velocity = 0.64 m/s)

Fig. 7 에는 조립상 활성탄으로 충전된 Bed 의 상대습도 변화에 따른 오존제거 특성을 실험 초기와 5 시간 이후의 성능을 (a)와 (b)에 각각 나타내었다. 또한 Fig. 8 에는 조립상 MnO₂ 촉매로 충전된 Bed 의 상대습도 변화에 따른 오존 제거 성능을 실험 초기와 5 시간 이후의 성능변화 특성을 (a)와 (b)에 각각 나타내었다.

Fig. 9 에는 조립상 MnO₂ 촉매와 활성탄의 시간에 따른 성능변화 특성을 건조 및 습윤 상태에 대해서 그림 (a)와 (b)에 각각 나타내었다. 건조와

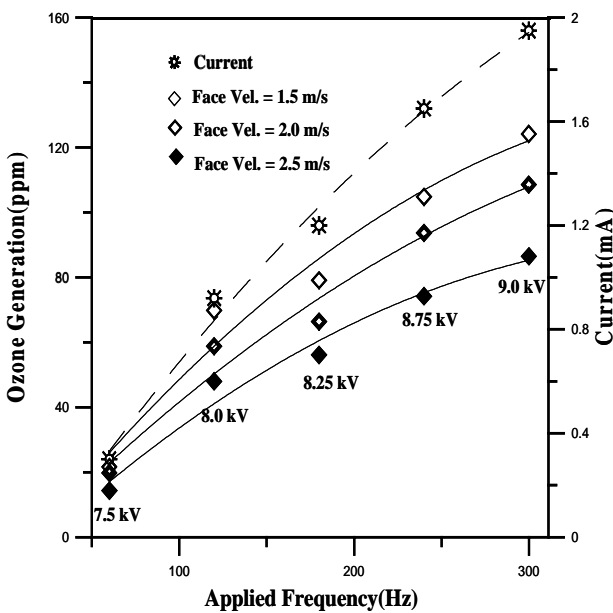


Fig. 5 Ozone Generation Characteristics

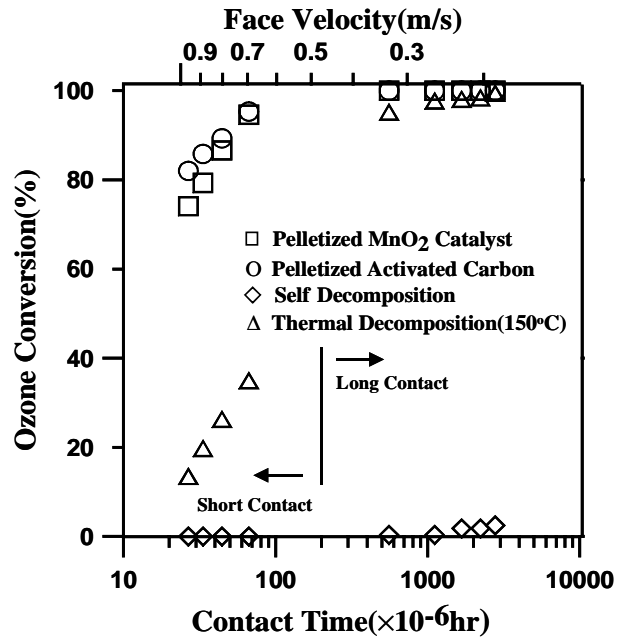


Fig. 6 Comparison of Ozone Decomposition

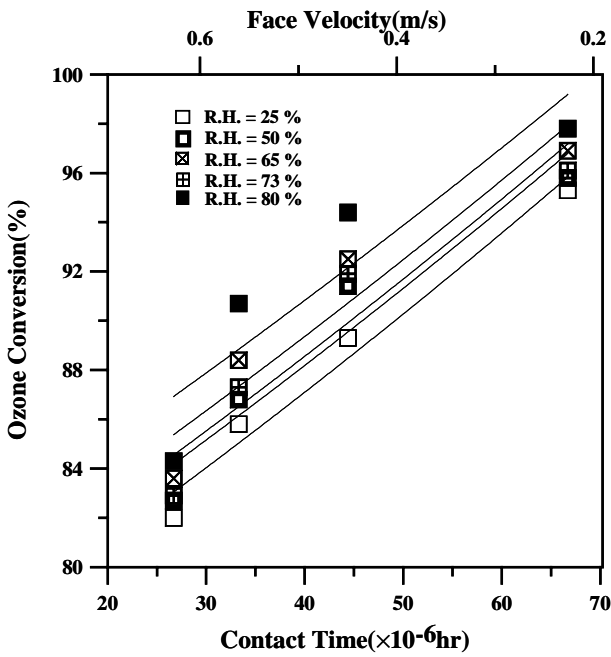
습윤의 조건은 상대습도가 각각 25 %와 85 %일 때로서 비교적 극단적으로 건조하고 습한 조건에서의 오존제거 성능의 시간에 대한 변화를 확인하기 위해 나누었다. 실험 소요 시간을 줄이기 위해 Fig. 9 의 실험에서는 단면유속을 1.5 m/s 로 하였다. 건조 조건에서는 초기 3 시간 오존제거 성능이 MnO₂ 촉매가 평균 3 % 정도 높았지만, 5 시간 이후에는 MnO₂ 촉매보다 활성탄의 성능이 평균 2 % 정도 높았다. 그리고 습윤 조건에서는 초기 및 5 시간 이후의 성능이 모두 MnO₂ 촉매보다 활성탄의 제거율이 평균 5 % 정도 높았다.

4. 결론

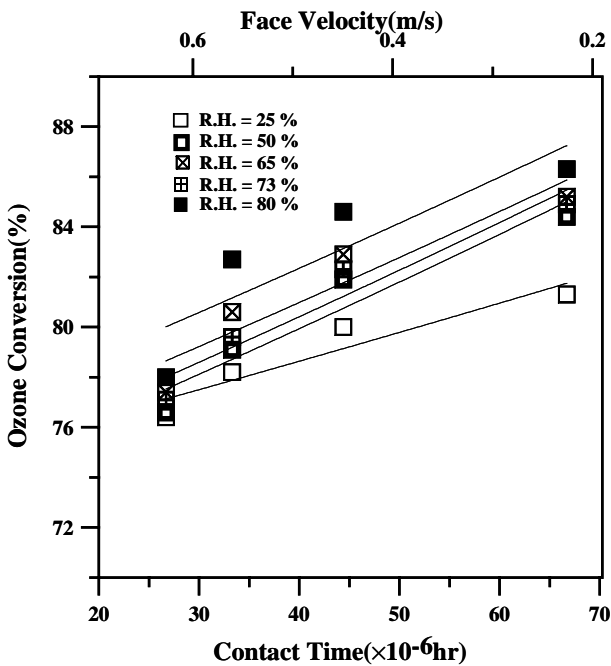
(1) DBD 를 이용한 2 단형 전기집진기의 입경 1 μm 이하의 집진효율은 약 85 % 이상이였다.

(2) 자가제거를 제외한 오존제거 방법들은 단면 유속이 0.4 m/s 이하에서는 모두 90 % 이상이였고, 단면유속이 0.4 m/s 이상일 경우에는 MnO₂ 촉매와 활성탄을 이용한 방법이 열제거 방법보다 오존제거 성능이 약 60 % 정도 높았다.

(3) MnO₂ 촉매와 활성탄의 상대습도에 대한 오존제거율을 비교할 때, MnO₂ 촉매는 상대습도가 25 %에서 85 %로 상승하면, 초기와 5 시간 이후에 각각 3 %와 6 % 정도 성능이 감소하였고, 반면에 활성탄의 경우는 초기와 5 시간 이후에 각각 3 %와 5 % 정도 성능이 증가하였다.



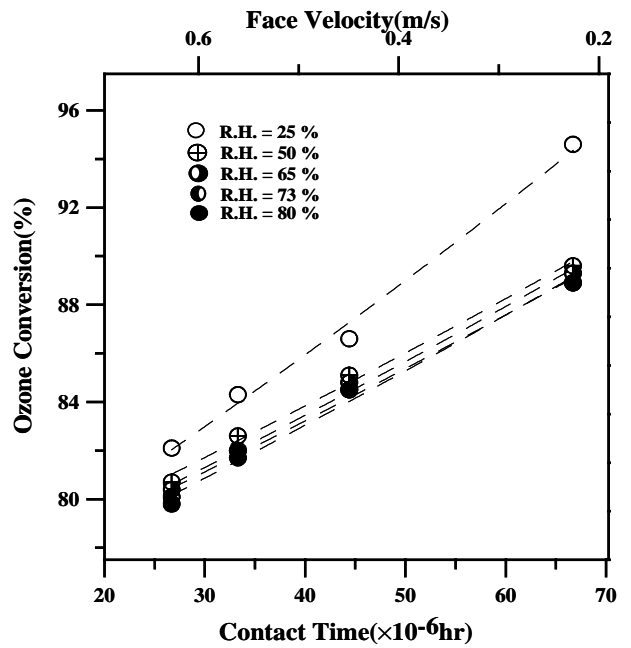
(a) Initial Condition



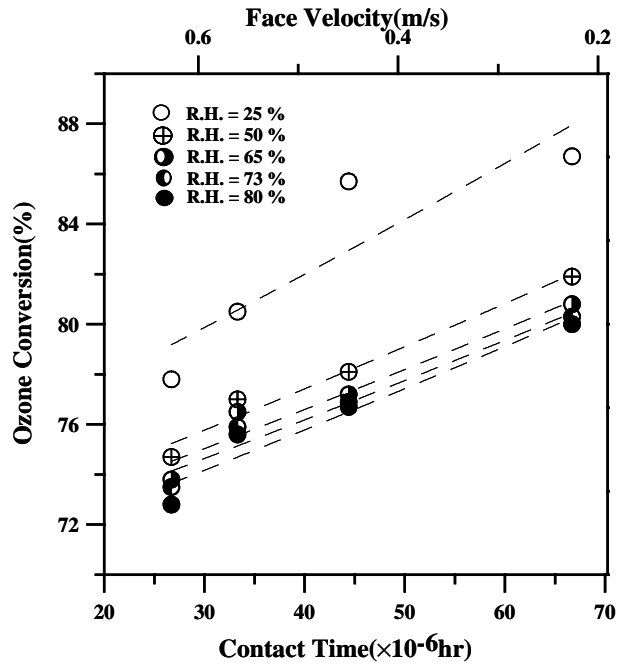
(b) After 5-hr Performance

Fig. 7 Effect of Relative Humidity on % Conversion of Ozone (Activated Carbon)

(4) 단면유속을 1.5 m/s 고정하였을 때의, 활성탄과 MnO₂ 촉매의 사용시간에 대한 성능변화 특성은 건조 조건에서는 초기 3 시간 오존 제거 성능이 MnO₂ 촉매가 평균 3 % 정도 우수함을 보였지만, 5 시간 이후에는 조립상 활성탄의 성능이 평균 2 % 정도 높았다. 그리고 습윤 조건에서는 초



(a) Initial Condition

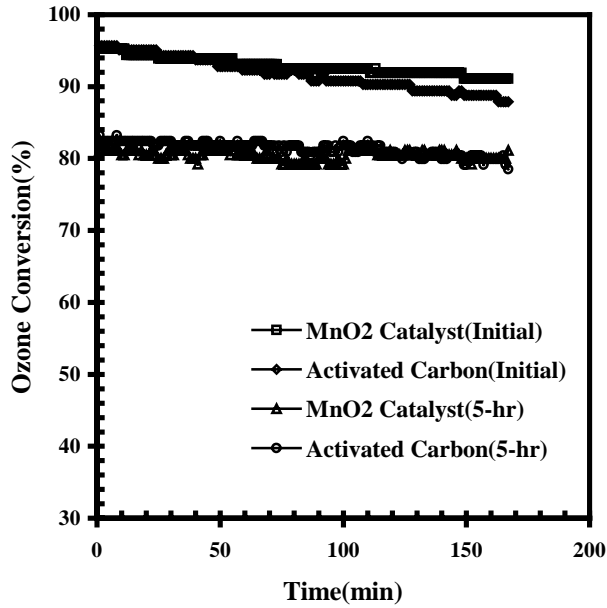


(b) After 5-hr Performance

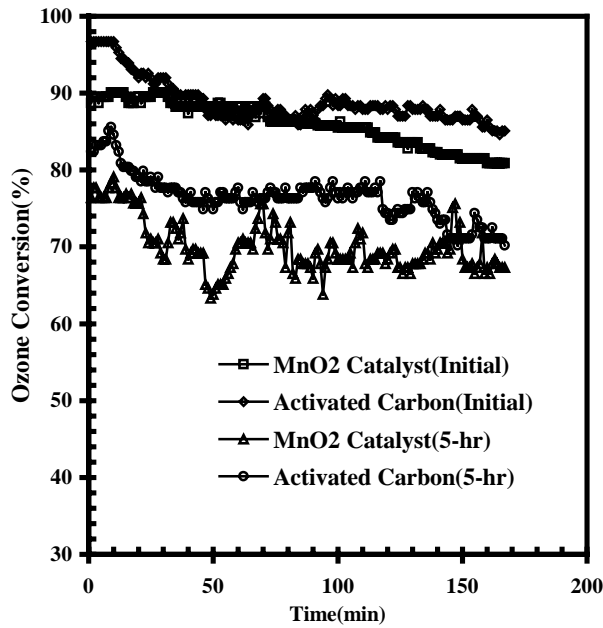
Fig. 8 Effect of Relative Humidity on % Conversion of Ozone (MnO₂ Catalyst)

기 및 5 시간 이후 성능이 모두 MnO₂ 촉매보다 활성탄의 제거율이 평균 5 % 정도 높았다.

후 기



(a) Dry Condition



(c) Wet Condition

Fig. 9 Change of Average Rate of the Decomposition of Ozone on MnO₂ Catalyst and Activated Carbon during 3-hr Running

참고문헌

- (1) Eliasson, B., 1991, Nonequilibrium Volume Plasma Chemical Processing, *IEEE Trans. Plasma Sci.*, Vol. 19, No. 6, pp. 1063-1077.
- (2) Falkenstein, Z., 1998, Application of Dielectric Barrier Discharges, *12th Int. Conf. High-Energy Particle Beams*, pp. 117-120.
- (3) Sano, Y., Kuroda, Y., Kawada, Y., Takahashi, T., Ehara, Y and Ito, T., 2001, Effect of Electric Source Frequency at ESP by Barrier Discharge System, *J. Aerosol Sci.*, Vol. 32, pp. 883-884.
- (4) Dorsey, J. A. and Davidson, J. H., 1994, Ozone Production in Electrostatic Air Cleaners with Contaminated Electrodes, *IEEE Trans. Industry Appl.*, Vol. 30, No. 2, pp. 370-376.
- (5) Boelter, K. J. and Davidson, J. H., 1997, Ozone Generation by Indoor, Electrostatic Air Cleaner, *Aerosol Sci. Technol.*, Vol. 27, No. 6, pp. 689-708.
- (6) Einaga, H., Ibusuki, T., and Futamura, S., 2001, Performance Evaluation of a Hybrid System Comprising Silent Discharge Plasma and Manganese Oxide Catalyst for Benzene Decomposition, *IEEE Trans. Industry Appl.*, Vol. 37, No. 5, pp. 1476-1482.

본 연구는 환경부에서 지원하는 차세대핵심환경기술 과제(과제번호: 2002-2-0498)에 의해 수행되었으며, 이에 관계자 여러분께 감사드립니다. 또한, 활성탄을 제공해 준 (주)동양탄소 관계자에게 감사드립니다.