

H₂-SCR 촉매의 질소산화물과 일산화탄소의 저감 성능에 관한 수소와 산소농도의 영향

서 충 길

호원대학교 자동차기계공학과

Effect of H₂ and O₂ concentration on the NO_x and CO Reduction Performance of H₂-SCR Catalysts

Choong-Kil Seo

Department of Automotive & Mechanical engineering, Howon University, Howondae 3 gil, 64, Impi, Gunsan-si, Jeollabuk-do, 573-718, Korea

Abstract : Regulations on automobiles, construction machinery, ships and domestic boilers are being strengthened. This study is to improve the reduction performance of NO_x and CO harmful gases, and to investigate effect of H₂ and O₂ and concentration on the NO_x and CO reduction performance of H₂-SCR catalyst. The larger the H₂ concentration, the widow of NO_x conversion was formed up to 250°C. As the reducing agent H₂ concentration increased, the number of collisions between H₂ molecules and NO_x molecules increased, and thus the NO_x reduction ability was improved. In the NO_x reduction reaction, a large amount of O₂ concentration oxidized the reducing agent H₂ and affected H₂O production. Therefore, the lower the O₂ concentration, the better the NO_x reduction ability.

Key words : Catalyst(촉매), Nitrogen Oxide(질소산화물), Selective Catalytic Reduction(선택적인촉매환원), Carbon Monoxide(일산화탄소), Hydrogen(수소), Oxygen(산소)

1. 서 론

화석연료에서 배출되는 가스로 인한 지구온난화 가속화와 인체의 유해성 등으로 글로벌적으로 탄소중립 정책을 추진하고 있으며 친환경자동차의 시장 점유율이 상승하고 있다. 아직까지 내연기관이 차지하는 비중은 약 90%를 넘는 상황이며 자동차, 건설기계, 선박 및 가정용 보일러에 대한 규제가 강화되고 있다.

이 연구는 청정에너지 H₂를 이용하여 내연기

관에서 배출되는 NO_x와 CO를 저감시키기 위한 H₂-SCR^{1,4)} 촉매 개발에 관한 연구이며, 그 중 환원제 H₂와 O₂ 농도가 H₂-SCR 촉매의 NO_x와 CO 가스의 저감 성능에 미치는 영향을 파악하는 것이다.

2. 실험장치 및 방법

이 연구에 제조된 H₂-SCR(0.5Pt-2CeO₂/TiO₂, 0.91g, 중으로 코팅, 212g/L) 촉매는 함침법(impregnation method)을 이용하여 제조하였다. SCR 촉매의 코팅량은 212g/L이며, 담체(substrate, 400CPSI: Cell Per Square Inch)에 소정의 촉매와 조촉매 물질을 담지하였다. 500°C에서 3hr 동안 공기

* 서충길, E-mail: ckseo@howon.ac.kr

로 조성하였고, H₂ 5%, 400℃에서 1hr 환원 처리하였다. Table 1은 H₂-SCR 촉매의 de-NO_x/CO 성능 평가를 위한 모델가스조건이다⁵⁾. Fig. 1은 H₂-SCR 촉매의 유해가스 성능을 파악하기 위한 모델가스 반응장치이다. 가스 공급부, 유량 제어부, 촉매 반응부 및 분석부로 구성된다. 촉매온도는 75~350℃ 정상상태(steady state) 조건에서 5분을 유지하면서 de-NO_x/CO 성능을 측정하였다. SCR 촉매의 유해가스 정화성능은 아래 식 (1)과 같이 계산하였으며, 촉매 반응 후의 가스 성분은 가스분석기(VarioPlus Industrial, MRU Instruments, Inc.)를 이용하여 1초 간격으로 정량적으로 측정하였다.

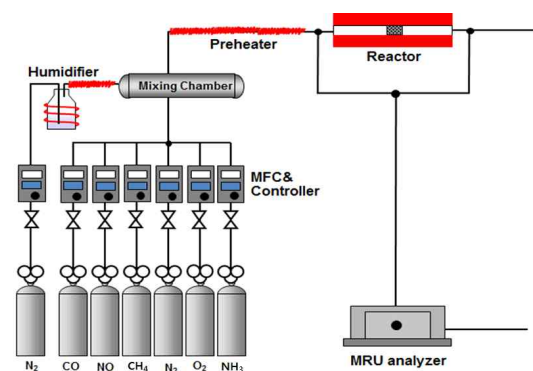


Fig. 1 Schematic diagram of experimental apparatus

$$\text{NO}_x \text{ conversion}(\%) = (\text{NO}_x \text{ in} - \text{NO}_x \text{ out}) \times 100 / (\text{NO}_x \text{ in}) \quad (1)$$

Table 1 Model gas components for evaluating performance of SCR catalysts

Gas components	Composition
NO(ppm)	500
CO(ppm)	700
O ₂ (%)	2, 5, 10
H ₂ (%)	0.3, 1, 2.5
H ₂ O(%)	1.5
N ₂	Balance
SV(h ⁻¹)	28,000

3. 실험결과 및 고찰

Fig. 2는 H₂-SCR 촉매의 유해가스 동시저감 메커니즘을 나타내고 있으며, NO 환원 반응은 식 (2), (3), CO 저감 반응은 식 (4), (5)에 나타내었다.

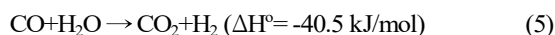
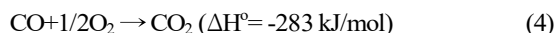
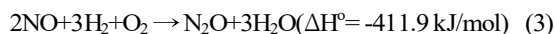
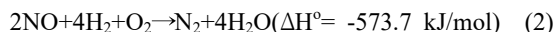


Fig. 3은 환원제 H₂ 농도에 따른 de-NO_x 저감 성능을 나타내고 있다. H₂ 0.3% 농도가 공급 될 경우 촉매 온도 150℃에서 NO_x 저감율은 약 18% 수준이며, 윈도우(window)가 좁고 NO_x 저감 성능이 급격히 저감되고 있다. H₂ 농도 1%가 공급 될 때 H₂-SCR 촉매의 NO_x 저감 성능은 향상되며 125℃에서 약 45%를 나타내고 있다. 윈도우 또한 H₂ 농도가 낮은 0.3% 보다 넓게 형성되고 있다. H₂ 농도 2.5%가 H₂-SCR 촉매에 공급될 때, 75℃에서 약 39%, 175℃에서 약 57%의 NO_x 저감 성능을 나타내고 있다. 또한 H₂ 농도가 클수록 NO_x 저감 윈도우가 250℃ 까지 넓게 형성되고 있다. 이는 환원제 H₂ 농도가 클수록 H₂ 분자와 NO_x 분자간의 충돌 횟수가 커짐에 따라 질산염(nitrate)으로 흡장된 NO_x 환원 능력을 향상시켰기 때문이다.

Fig. 4는 H₂-SCR 촉매의 O₂ 농도에 따른 de-NO_x 성능을 나타내고 있다. 0.5pt-2CeO₂/TiO₂(O₂ 2%) SCR 촉매는 75℃에서 NO_x 저감율은 22%, 150℃에서 52%를 나타내고 있다. O₂ 농도가 2%로써 가장 작은 조건에서 NO_x 전환율이 가장 높고 윈도우가 넓게 분포하고 있다. 0.5pt-2CeO₂/TiO₂(O₂ 10%) SCR 촉매는 O₂ 농도가 10%의 가장 큰 조건에서 NO_x 전환율은 촉매온도 75℃에서 20%, 150℃에서 45%를 나타내고 있다. 또한 NO_x 전환 윈도우도 O₂ 농도가 작은 조건보다도 작게 분포하고 있다. O₂는 산화 및 환원 반응에 참여할 때 중요한 가스이며, 특히 NO_x 환원 반응에는 많은 양의 O₂ 농도는 환원제 H₂ 산화시켜 H₂O 생성에 영향을 미치기 때문에 O₂ 농도가 작은 양 일수록 NO_x 환원반응에는 유리하다.

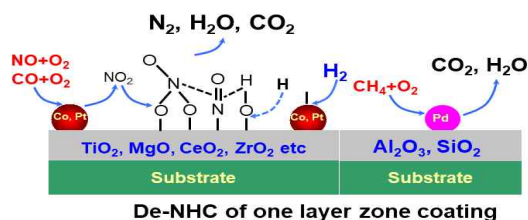


Fig. 2 Mechanism of simultaneous harmful gas reduction of H₂-SCR catalyst

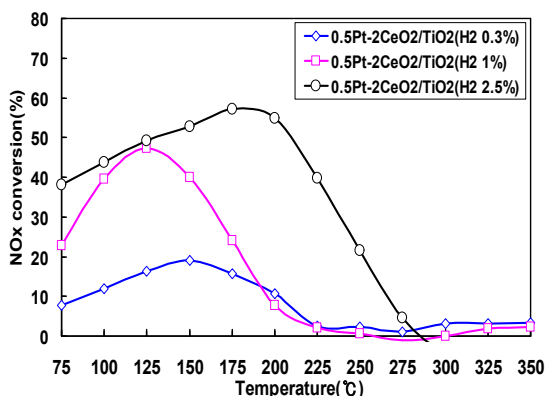


Fig. 3 De-NO_x performance according to CeO₂ loading amount of H₂-SCR catalysts

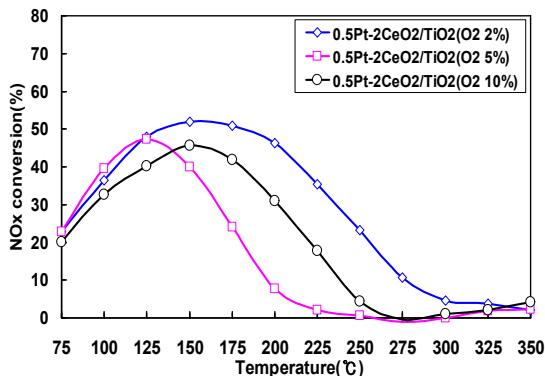


Fig. 4 De-NO_x and CO performance according to CeO₂ loading amount of H₂-SCR catalysts

4. 결론

H₂와 O₂ 농도가 H₂-SCR 촉매의 NO_x와 CO 저감 성능에 미치는 영향을 파악한 결과는 다음과 같다.

1) H₂ 농도가 클수록 NO_x 전환율 윈도우가 250°C까지 넓게 형성되었다. 이는 환원제 H₂ 농도가 클수록

H₂ 분자와 NO_x 분자간의 충돌 횟수가 커짐에 따라 NO_x 환원 능력이 향상되었다.

2) H₂ 농도가 클수록 NO와 H₂가 반응하여 N₂O로 전환 및 H₂가 O₂와 반응하여 H₂O가 생성되기 때문에 O₂ 감소량이 컸다.

3) NO_x 환원 반응에는 많은 양의 O₂ 농도는 환원제 H₂를 산화시켜 H₂O 생성에 영향을 미쳤기 때문에 O₂ 농도가 작은 양 일수록 NO_x 저감 능력이 향상되었다.

후 기

이 연구는 호원대학교 교내연구비로 수행되었으며 연구비 지원에 감사드립니다.

References

- 1) C. K. Seo, "Characteristics of Harmful Gases of H₂-SCR Catalysts for Domestic and Industrial", Journal of Power System Engineering, Vol. 25, No. 4, pp. 62-68. 2021.
- 2) Patel, V. K, "Effect of oxide support on palladium based catalysts for NO reduction by H₂-SCR, Catalysis Today, Vol. 375, No. 4. pp. 591-600, 2021.
- 3) Y. Xue, W. Sun, Q. Wang, L. Cao and J. Yang, "Sparsely Loaded Pt/MIL-96(Al) MOFs Catalyst with Enhanced Activity for H₂-SCR in a Gas Diffusion Reactor under 80°C", Chemical Engineering Journal, Vol. 335, No. 11. pp. 612-620.
- 4) J. Kim, K. Ha and G. Seo. 2014, "Selective Catalytic Reduction of NO by H₂ over Pt-MnOx/ZrO₂-SiO₂ Catalyst", Korean Chem. Eng. Res., Vol. 52, No. 4, pp. 443-450.
- 5) C. K. Seo and K. S. Lee, "CHARACTERISTICS OF HARMFUL GASES OF COMMERCIAL CU AND FE-SCR CATALYSTS", International Journal of Automotive Technology, Vol. 21, No. 6, pp. 1401-1408.