creative commons
COMMONS DEED

저작자표시-비영리-변경금지 2.0 대한민국

이용자는 아래의 조건을 따르는 경우에 한하여 자유롭게

- 이 저작물을 복제, 배포, 전송, 전시, 공연 및 방송할 수 있습니다.

다음과 같은 조건을 따라야 합니다:

저작자표시. 귀하는 원저작자를 표시하여야 합니다.

비영리. 귀하는 이 저작물을 영리 목적으로 이용할 수 없습니다.

변경금지. 귀하는 이 저작물을 개작, 변형 또는 가공할 수 없습니다.

- 귀하는, 이 저작물의 재이용이나 배포의 경우, 이 저작물에 적용된 이용허락조건을 명확하게 나타내어야 합니다.
- 저작권자로부터 별도의 허가를 받으면 이러한 조건들은 적용되지 않습니다.

저작권법에 따른 이용자의 권리는 위의 내용에 의하여 영향을 받지 않습니다.

이것은 이용허락규약(Legal Code)을 이해하기 쉽게 요약한 것입니다.

Disclaimer

dCollection

석사학위논문

열플라즈마를 이용한 메탄 열분해 공정의 광학진단

고 혜 영

제주대학교 대학원

에너지화학공학전공

2024년 2월

제주대학교 중앙도서관
JEJU NATIONAL UNIVERSITY LIBRARY

열플라즈마를 이용한
메탄 열분해 공정의 광학진단

이 논문을 공학석사 학위논문으로 제출함

고 혜 영

제주대학교 대학원

에너지화학공학전공

지도교수 최 수 석

고혜영의 공학석사 학위논문을 인준함

2023년 11월

심사위원장 정 만 희 ㊞

위 원 이 연 건 ㊞

위 원 최 수 석 ㊞

제주대학교 중앙도서관
JEJU NATIONAL UNIVERSITY LIBRARY

목 차

Ⅰ. 서론 ····· 1

1. 열플라즈마 특성 및 진단방법 ····· 1

2. 메탄 열분해 ····· 3

Ⅱ. 진단 방법 ····· 5

1. 열플라즈마 광학진단 방법론 개발 ····· 5

1) Boltzmann plot법 ····· 5

2) N_2^+ 회전에너지 준위에 기반한 온도진단 ····· 7

2. 단일 토치 진단 및 전산해석을 통한 방법론 타당성 검증 ····· 9

1) 광학진단 시스템 ····· 9

2) 개발된 광학진단 방법론 타당성 검증 ····· 11

3. 메탄 열분해 공정을 위한 삼중 열플라즈마 시스템 진단 시스템 ··· 15

Ⅲ. 결과 및 고찰 ····· 17

1. 삼중 열플라즈마 시스템 진단 결과 ····· 17

1) 질소 플라즈마 제트의 활성종 변화 ····· 17

2) 질소 플라즈마 제트의 온도 변화 ····· 21

2. 메탄 주입 후 삼중 열플라즈마 시스템 진단 결과 ····· 23

1) 메탄 주입 후 플라즈마 제트의 활성종 변화 ····· 23

2) 메탄 주입 후 플라즈마 제트의 온도 변화 ····· 28

Ⅳ. 결론 ····· 30

참 고 문 헌 ····· 35

제주대학교 중앙도서관
JEJU NATIONAL UNIVERSITY LIBRARY

표 목 차

[표 1] 진단 계측법에 따른 플라즈마 측정 변수 ····· 2
[표 2] First Negative System으로부터 선택된 파장 ····· 8
[표 3] 열플라즈마 발생기 전산해석 및 광학진단 결과 ····· 14

제주대학교 중앙도서관
JEJU NATIONAL UNIVERSITY LIBRARY

그 림 목 차

[그림 1] 1 mol의 메탄 분해 화학평형 조성 계산 결과 ····· 4
[그림 2] N_2^+ 회전 에너지 준위에 따른 선택된 파장에 대한 Boltzmann plot ····· 8
[그림 3] 단일 토치 광학진단 시스템 ····· 10
[그림 4] 질소 열플라즈마 토치 전산해석을 위한 2차원 격자계 ····· 12
[그림 5] 방전기체 질소 유량 변화에 따른 열플라즈마 토치 전산해석 결과 (a) 10 L/min, (b) 12 L/min, (c) 14 L/min, (d) 16 L/min ····· 12
[그림 6] 메탄 열분해 공정을 위한 삼중 열플라즈마 시스템 ····· 16
[그림 7] 질소 플라즈마 제트 위치 변화에 따른 파장 별 세기 ····· 18
[그림 8] 방전기체 질소 유량 변화에 따른 파장 별 세기 ····· 18
[그림 9] 질소 플라즈마 제트 위치 변화에 따른 화학종 변화 ····· 20
[그림 10] 방전기체 질소 유량 변화에 따른 화학종 변화 ····· 20
[그림 11] 열플라즈마 제트 위치 변화에 따른 온도 변화 ····· 22
[그림 12] 방전기체 질소 유량 변화에 따른 온도 변화 ····· 22
[그림 13] 메탄 주입 후 열플라즈마 제트 위치 변화에 따른 파장 별 세기 ····· 24
[그림 14] 주입된 메탄 유량 변화에 따른 파장 별 세기 ····· 24
[그림 15] 열플라즈마 제트의 위치의 변화에 따른 화학종 변화 ····· 27
[그림 16] 주입된 메탄 유량 변화에 따른 화학종의 변화 ····· 27
[그림 17] 메탄 주입 후 열플라즈마 제트 위치 변화에 따른 온도 변화 ····· 29
[그림 18] 주입된 메탄 유량 변화에 따른 온도 변화 ····· 29

제주대학교 중앙도서관
JEJU NATIONAL UNIVERSITY LIBRARY

열플라즈마를 이용한
메탄 열분해 공정의 광학진단

고 혜 영

제주대학교 대학원 에너지화학공학전공

열플라즈마는 이산화탄소를 배출하지 않는 청록 수소를 생산하는 메탄 열분해 공정에서 주목받고 있다. 공정을 효과적으로 운영하기 위해서는 열플라즈마의 상태를 정확히 진단할 필요가 있다. 플라즈마를 진단하는 방법에는 전기적 진단 방법과 광학적 진단 방법이 있다. 전기적 진단 방법의 경우 플라즈마 내부로 탐침을 삽입하기 때문에 공정에 직접적인 영향을 끼치며, 고온의 열플라즈마 제트 중심부의 온도를 진단하기에는 적합하지 않다. 그러나 광학적 진단 방법의 경우 플라즈마가 방출하는 빛을 분석하여 진단하기 때문에 공정에 직접적인 영향을 끼치지 않는다. 뿐만 아니라 플라즈마 제트 중심부의 고온의 영역도 진단이 가능하며, 플라즈마 제트 내부의 활성종에 대한 진단이 가능하다는 장점을 가지고 있다. 본 연구에서는 광학적 진단 방법을 채택하여 열플라즈마의 온도와 화학종을 분석하였다. 특히 N_2^+ 회전에너지 준위의 파장대를 이용한 Boltzmann plot법을 도입하여 열플라즈마 제트의 온도를 진단하였다. 개발한 광학진단 방법론의 타당성을 검증하기위해 자체 개발한 자기유체역학 코드(DCTPUN)를 활용한 전산해석을 진행하였다. 단일 열플라즈마 토치의 전산해석 결과와 진단결과의 비교에서 약 10% 내외의 오차율로 타당성을 보였다. 본 연구에서 개발된 광학 진단 방법론을 삼중 열플라즈마 반응기에 적용하여, 방전기체 유량별 및 플라즈마 제트 위치별로 질소 플라즈마 제트의 내부 화학종 분포와 온도 변화를 성공적으로 확인하였다. 또한, 메탄 주입 유량별 및 플라즈마 제트 위치별로

제주대학교 중앙도서관
JEJU NATIONAL UNIVERSITY LIBRARY

메탄 열분해 공정 중의 플라즈마 제트 내부 화학종 분포와 온도 변화를 확인하였다.

제주대학교 중앙도서관
JEJU NATIONAL UNIVERSITY LIBRARY

Ⅰ. 서론

1. 열플라즈마 특성 및 진단 방법

열플라즈마란 고온의 이온화된 기체 상태를 의미한다. 열플라즈마는 높은 온도, 빠른 냉각속도, 다양한 활성종을 포함하고 있다는 주요 세 가지 특성을 갖고 있다[1,2]. 또한, 이러한 특성에 의해 변화하는 밀도, 속도, 전자 온도 등의 다양한 변수들을 가지고 있다. 이 변수들은 열플라즈마를 활용한 공정에 많은 영향을 끼치며[3], 각 변수들을 진단할 수 있는 적합한 여러 방법들에 대해 연구되어지고 있다[4~6].

플라즈마를 진단하는 방법에는 전기적 진단과 광학적 진단 2가지로 나뉜다. 전기적 진단법은 전기적 탐침을 사용하는 방법으로 플라즈마 내로 직접 탐침을 삽입시켜 전기적 물리량을 측정하는 방식으로 주로 저온 플라즈마 진단에 사용되며[7, 8., 약 10,000 K의 고온의 열플라즈마에서는 중심부에 탐침을 접촉시키는 것이 불가능하기 때문에 전기적 진단이 어렵다. 또한 플라즈마와의 간섭이 발생하여 측정 신호가 왜곡되는 현상이 발생할 수 있다는 단점이 있다.

광학적 진단 방법은 플라즈마가 방출하는 빛을 통해 현재 상태를 측정하는 방법으로 플라즈마와 직접 접촉하지 않기 때문에 고온의 플라즈마 중심부의 물리량 진단이 가능하다. 또한, 플라즈마 공정 시스템 외부에 광학계를 설치하기 때문에 공정에 영향을 미치지 않는다는 장점이 있다. 광학 진단을 위해서는 분광기가 사용된다. 분광기를 통해 얻어진 파장, 강도 등을 통해 플라즈마 내의 활성종의 종류, 플라즈마 가스의 온도 진단이 가능하다[9,10].

표 1은 진단법에 따른 플라즈마의 측정 변수에 대해 정리하여 나타냈으며[11], 본 연구에서는 광학적 진단 방법을 활용하여 메탄 열분해 공정에서의 열플라즈마 제트 내에 포함된 활성종 및 온도를 측정하였다.

제주대학교 중앙도서관
JEJU NATIONAL UNIVERSITY LIBRARY

표 1. 진단 계측법에 따른 플라즈마 측정 변수

진단 계측법	측정 변수
방출 분광 분석법 (Optical Emission Spectroscopy)	이온 온도(T_h), 이온 밀도(n_i), 회전 온도(T_r)
정전 탐침법 (Langmuir Probe Method)	전자 온도(T_e), 전자 밀도(n_e), 플라즈마 속도(V_{plasma})
엔탈피 탐침법 (Enthalpy Probe Method)	플라즈마 속도(V_{plasma}), 플라즈마 열함유량(H_{plasma})
고속카메라 측정법 (High Speed Camera Measurement)	플라즈마 안정성, 열플라즈마 불꽃 크기

제주대학교 중앙도서관
JEJU NATIONAL UNIVERSITY LIBRARY

2. 메탄 열분해

플라즈마를 이용한 가스 열분해 방식은 메탄으로 수소와 고체 탄소를 생산할 수 있으며 기존의 천연가스에서 수소를 생산하는 방법에 대한 환경 친화적인 대안으로 제안되었다[12~14]. 이 방법의 경우 2가지 가치 있는 생성물을 공동 생산하여 공정 경제성을 향상시킬 수 있을 뿐만 아니라 이산화탄소를 배출하지 않으면서 메탄에서 직접 수소를 생산해낼 수 있다는 장점을 갖고 있다[14].

그림 1은 1 mol의 메탄 분해 화학평형 조성 계산 다이어그램이다. 그림 1을 통해 메탄은 약 500 K에서 해리가 시작되며 1,500 K에서 완료되는 것을 확인할 수 있다. 또한, 1,500 K에서 3,500 K 사이의 평형 생성물은 고체 탄소와 분자 수소이며, 3,500 K 이상부터는 분자수소와 고체탄소만이 존재한다.

메탄의 열분해 공정 과정에서 열원의 온도는 매우 중요한 변수 중 하나이다. 메탄이 수소와 고체 탄소로 전환되기 위해서는 평행조건에서 약 1,000~3,500 K의 온도대를 형성해야한다. 그러나 DC 열플라즈마의 경우 매우 높은 고온을 유지하나, 방전기체의 유량, 종류, 처리 기체의 유량, 종류 등에 따라 온도는 크게 변화한다. 따라서 메탄 열분해 공정 시 플라즈마 내부의 온도 변화에 대한 진단은 꼭 필요한 연구 분야 중 하나이다[15,16].

또한, 열플라즈마는 제트 내의 화학종들을 화학적으로 활성화시켜 발생하는 반응들을 활발히 일어나도록 하는 특성을 가지고 있다. 플라즈마 내의 분자와 전자가 충돌하는 경우 충돌에너지가 커짐에 따라 비탄성 충돌을 하게 된다. 그 결과, 충돌하는 전자의 에너지가 전자의 구속에너지보다 높게 되면 분자 내의 전자가 분자에서 빠져나오게 되어 이온화가 일어난다. 분자 내의 결합이 끊어지는 해리 반응도 일어날 수 있다. 이와 같은 반응들로 분자들은 결합하지 않은 전자를 갖고 있는 상태가 되어 다양한 화학반응을 일으키기 쉽다. 이를 화학 활성종 또는 라디칼이라 부르며, 플라즈마 제트에 포함된 화학종을 진단하는 것은 공정의 중요한 변수에 대한 를 확인할 수

제주대학교 중앙도서관
JEJU NATIONAL UNIVERSITY LIBRARY

있는 방법이다[16,17].

제주대학교 중앙도서관
JEJU NATIONAL UNIVERSITY LIBRARY

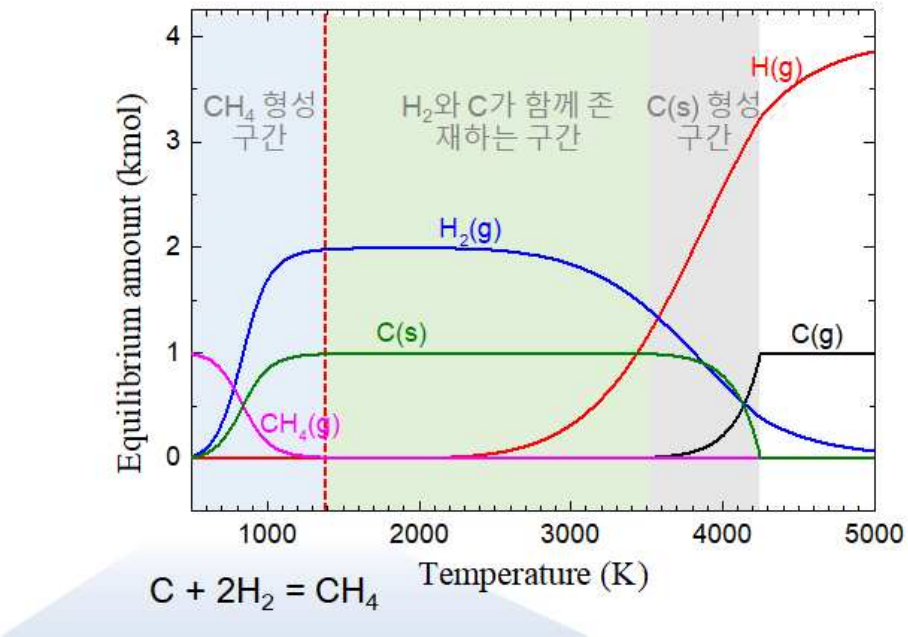

그림 1. 1 mol의 메탄 분해 화학평형 조성 계산 결과

제주대학교 중앙도서관
JEJU NATIONAL UNIVERSITY LIBRARY

Ⅱ. 진단 방법론 개발

1. 열플라즈마 광학 진단 방법론 개발

1) Boltzmann Plot법

본 연구에서는 열플라즈마를 진단하기 위하여 2가지 광학진단 방법인 광 방출, 흡수 진단법 중 광 방출 진단법을 활용하였다. 광 방출 진단법은 플라즈마로부터 방출되는 빛(파장)을 측정하며, 이를 통해 플라즈마의 밀도, 온도, 활성종에 대한 진단이 가능하다. 또한, 플라즈마 공정에 직접적인 영향을 주지 않고 측정이 가능하며, 분광기의 발달로 가시광 영역을 한 번에 측정하여 그 자료를 처리함으로써 공정 중의 실시간 온도와 밀도의 진단이 가능하다[4~6].

Boltzmann plot 방법은 분광 측정을 위해 간단하고 널리 사용되는 방법이며, 특히 에너지 차이가 비교적 큰 둘 이상의 선 스펙트럼의 상대 강도를 측정하여 플라즈마의 전자온도를 측정하는데 널리 사용된다. 플라즈마가 국소열평형상태(Local Thermodynamic Equilibrium)에 있고 광학적으로 얇다는 가정하에 몇 개의 여기된 레벨에서 방출선의 세기에 대한 정보를 가지고 있다면 플라즈마의 온도를 결정할 수 있다[18].

아래의 식(1.1)은 Boltzmann plot equation으로 N_2^+회전 에너지 준위를 기반으로 플라즈마의 기체 온도를 계산할 수 있다[19].

$$\ln\frac{I\lambda^4}{N' + N'' + 1} = -\frac{2.983}{T_r}N'(N'^{+1}) + C \quad (1.1)$$

식(1.1)에서 I는 파장의 세기, λ는 파장, N', N"는 회전 양자수, C는 상수이다. 피팅 라인을 얻어 기울기를 통해 온도를 계산하기 위해서는 방출선은 3개의 점 이상이 있어야 하며, 여기 에너지 레벨이 서로 다른 방출선을 사용해야 한다[18].

제주대학교 중앙도서관
JEJU NATIONAL UNIVERSITY LIBRARY

회전 온도를 구하기 위해서는 Boltzmann plot법 뿐만 아니라 LIFBASE와 같은 상용 소프트웨어를 사용할 수도 있으나, 이 경우 오차의 원인이 모호하여 측정 정확도가 저하된다[20]. 그러나 Boltzmann plot법에서는 회전 레벨의 분포가 볼츠만 분포에서 벗어나는 경우 쉽게 식별할 수 있으며, T_r(회전 온도)의 측정 불확도 또한 정량적으로 계산할 수 있다. 그러나 이 방법의 경우 스펙트럼의 중첩을 피하기 위하여 분광기의 분해능이 충분히 높아야 한다[18~21]. 본 연구에서는 0.05 nm의 분해능을 가지는 분광기를 가지고 온도 진단을 진행하였다.

제주대학교 중앙도서관
JEJU NATIONAL UNIVERSITY LIBRARY

2) N_2^+ 회전에너지 준위에 기반한 온도진단

질소 분자의 경우 전자보다 무거운 입자와 빠르게 회전에너지를 교환하기 때문에, 플라즈마에서 질소의 회전 분포는 빠르게 열평형 상태를 달성할 수 있다. 이를 통해 질소 스펙트럼으로부터 플라즈마 기체의 온도를 구할 수 있다. 회전 진동 준위 밴드의 스펙트럼을 활용할 경우 소량의 질소를 원하는 가스에 첨가하여 질소를 방전기체로 사용하지 않은 플라즈마의 온도 또한 구할 수 있다[19,22].

질소(N_2) 플라즈마의 경우 주로 First Positive System(FPS), Second Positive System(SPS), First Negative System(FNS) 등의 스펙트럼 선을 방출한다[21]. 각각의 분광학적 정보는 T_g(가스 온도)를 도출하는데 사용할 수 있다. 그러나 각 방법의 타당성을 검사하고 확인해야 하며 특정 조건을 고려하여 측정오류를 추정해야 한다. 본 연구에서는 Boltzmann plot법을 통해 회전 온도를 결정하는데 N_2^+의 0-0 band의 First Negative Band를 사용하였다. 표 2는 본 연구에서 가스의 온도를 측정하기 위해 선택된 First Negative System의 스펙트럼 라인선이다[19,21].

그림 2는 방전기체 질소 유량 16 L/min 조건에서 플라즈마 토치 출구로부터 0 mm 지점에서 측정된 회전 에너지 준위에 따른 선택된 파장에 대해 Boltzmann plot법을 통해 추산한 결과를 나타내었다. Boltzmann plot법을 통해 추산한 기울기가 진단된 플라즈마 기체 온도에 해당하며, R^2 값은 진단 온도 값의 오차를 의미한다.

제주대학교 중앙도서관
JEJU NATIONAL UNIVERSITY LIBRARY

표 2. First Negative System에서 선택된 스펙트럼 선

N ″	λ(nm)	(N ′+N ″+1)	N ′(N ′+1)
26	391.04	52	650
28	390.91	56	756
29	390.76	60	870
30	390.60	64	992
34	390.41	68	1122
36	390.21	72	1260
38	389.99	76	1406

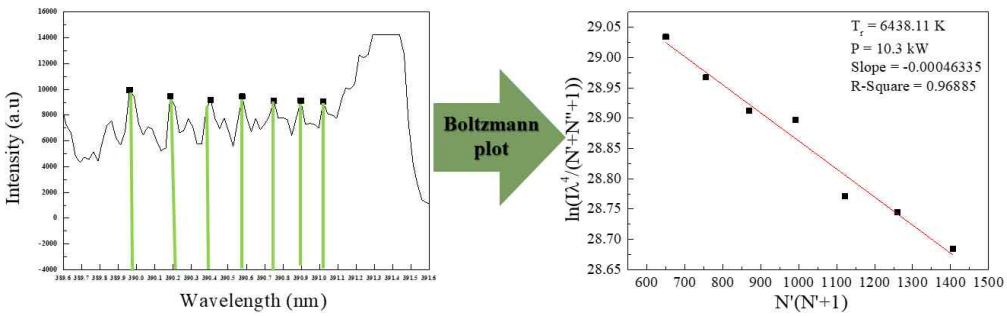

그림 2. N_2^+ 회전 에너지 준위에 따른 선택된 파장에 대한 Boltzmann plot

제주대학교 중앙도서관
JEJU NATIONAL UNIVERSITY LIBRARY

2. 단일 토치 진단 및 전산해석을 통한 방법론 타당성 검증

1) 광학진단 시스템

그림 3은 개발된 광학진단 방법론의 보다 정밀한 측정을 통해 타당성 검증을 위한 단일토치 광학진단 시스템이다. 광학진단의 경우 미세한 진동에도 영향을 받을 수 있기 때문에 광학테이블 위에 각각의 시스템들을 설치하였다. 열플라즈마 단일 토치를 수평으로 설치하고, Mount와 Post, Holder를 사용하여 빛을 받아들이는 Optical fiber head를 광학테이블 위 Track에 고정시켜, 흔들림에 영향을 받지 않고 플라즈마의 일부분을 측정하고자 하였다. 본 연구에서는 토치 입구로부터 0 mm지점의 플라즈마 제트와 토치 입구로부터 10 mm 떨어진 플라즈마 제트의 온도를 측정하였다.

시야각을 줄여 축 방향으로의 분해능을 높이기 위하여 Collimating lens를 Optical fiber head 앞에 부착하여 진단을 진행하였다. 그림 3의 (b)는 Collimating lens를 활용할 경우 Optical fiber가 받아들이는 빛을 표현하였다. Collimating lens를 사용할 경우 시야각을 이론적으로는 0 °로 만들 수 있다. 그림 3의 (b)에서 파란색으로 표현된 것처럼 제트 중심부의 빛만 아니라 렌즈와 일직선상의 플라즈마 제트의 모든 빛이 흡수된다.

본 연구에서는 화학종과 온도를 측정하기 위하여 2가지의 분광기를 사용하였다. 다양한 화학종을 분석하기 위해서는 측정 가능 파장대가 넓은 분광기를 사용하였으며, 측정 가능 파장대는 250~850 nm이다. 온도를 진단하기 위해서 측정해야하는 파장대는 N_2^+ First Negative Band의 388.5~391.5 nm이며, 이를 위해 분해능이 높고 측정 파장대가 350~440 nm인 분광기를 사용하였다. 구축된 시스템을 통해 측정된 빛은 Oceanview, software를 사용하여 분석되었다.

제주대학교 중앙도서관
JEJU NATIONAL UNIVERSITY LIBRARY

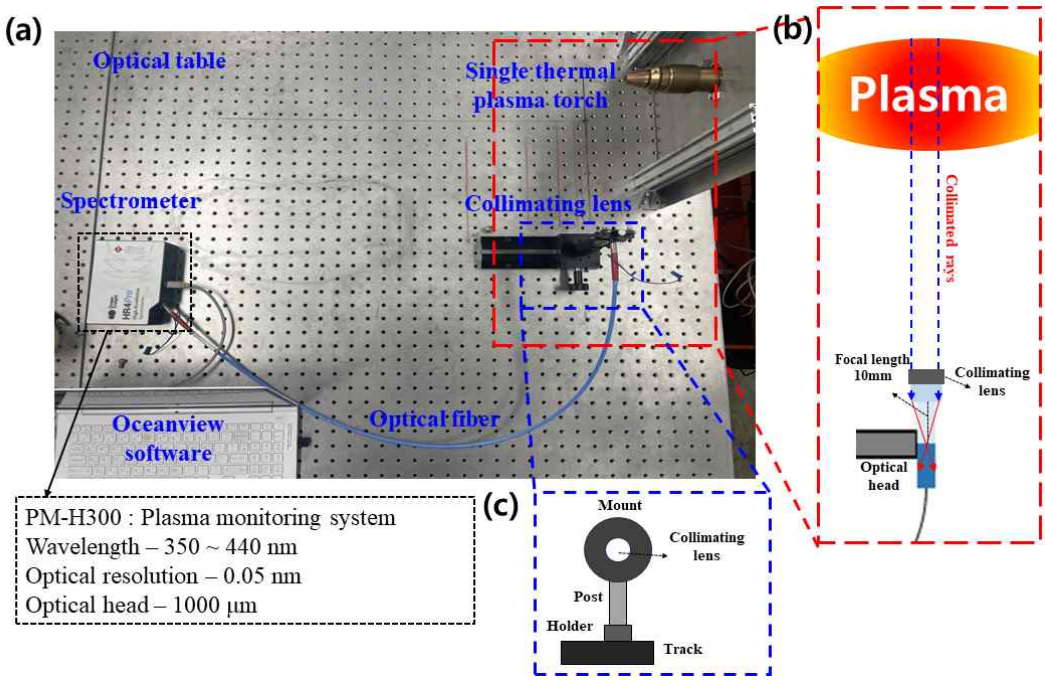

그림 3. (a) 단일 토치 광학진단 시스템, (b) 분광 도식, (c) 분광 장비 도식

제주대학교 중앙도서관
JEJU NATIONAL UNIVERSITY LIBRARY

2) 개발된 광학 진단 방법론 타당성 검증

본 연구에서 개발된 열플라즈마 광학 진단 방법론의 타당성을 검증하기 위해 전산해석을 진행하였고, 이를 광학 진단 결과와 비교하여 신뢰성을 확보하였다. 전산해석은 자체 개발한 자기유체역학 (Magnetohydrodynamics, MHD) 코드인 DCPTUN을 활용하여 진행되었다. 해석시 열플라즈마의 온도, 속도 등을 계산하기 위하여 국소열평형을 가정하였으며, 질량 연속방정식, 운동량 보존식 전류방정식을 사용하였다. 또한 암페어 법칙을 이용하여 아크로부터 유기되는 자기장의 세기를 구하며, 플라즈마의 난류 형상을 계산하기 위하여 k-ε 난류 모델의 지배방정식을 고려하여 계산하였다[23~25]. 단일 DC 열플라즈마 토치의 경우 축 대칭 형태를 갖고 있으므로 2차원 격자 형태를 활용하여 계산하였다. 그림 4는 전산해석을 위해 형성된 2차원 격자계이다. 효율적인 계산을 위해 정렬 격자계를 활용하였다. 그림과 같이 격자계의 경계조건을 방전기체 주입구(Gas inlet), 음극(Cathode), 양극(Anode), 축(Axis)으로 지정하여 계산을 진행하였다. 계산 조건으로는 방전기체 N2의 유량과 측정 위치에 변화를 주었다. 방전기체 질소 유량 조건은 10, 12, 14, 16 L/min, 측정 위치 변화는 토치 출구(Torch exit)로부터 0 mm, 10 mm 지점이며 이곳에서의 플라즈마 제트의 온도를 측정하였다.

그림 5는 열플라즈마 토치 내부 열유동 전산해석 결과이다. 계산 결과, 플라즈마 토치 출구 0 mm 지점에서 플라즈마 제트 중심부의 온도는 방전기체 유량이 10~16 L/min으로 증가하여도 약 6,900 K대 임을 확인되었다. 플라즈마 토치 출구 10 mm 지점에서는 플라즈마 제트 중심부의 온도는 약 6,400 K대에 분포하는 것으로 확인되었다.

제주대학교 중앙도서관
JEJU NATIONAL UNIVERSITY LIBRARY

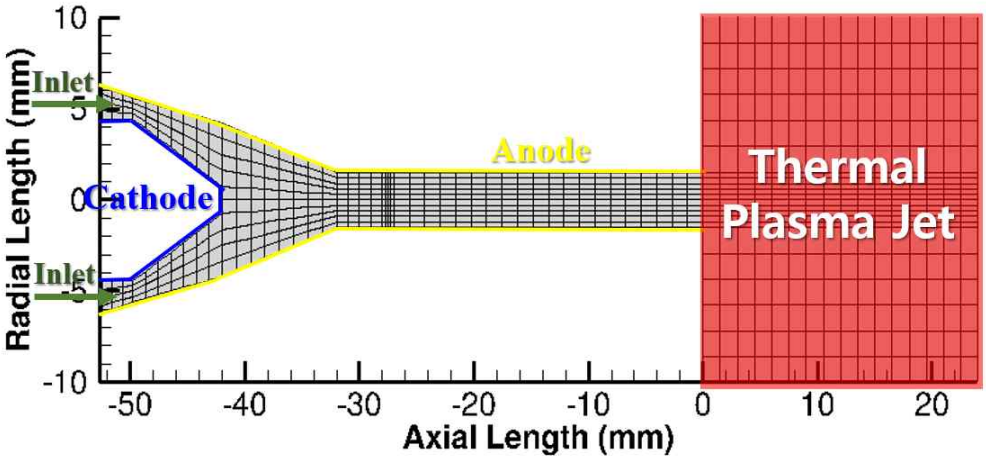

그림 4. 질소 열플라즈마 토치 전산해석을 위한 2차원 격자계

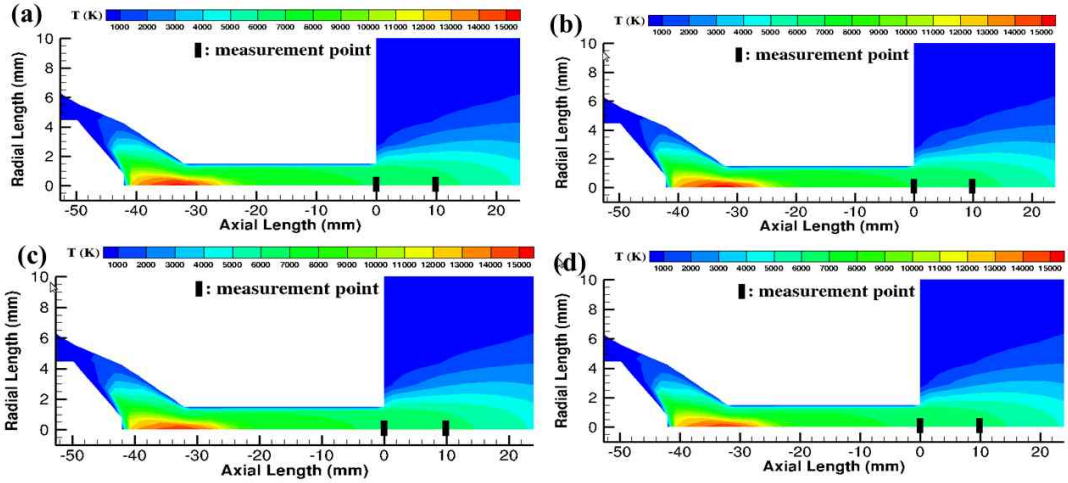

그림 5. 방전기체 질소 유량 변화에 따른 열플라즈마 토치 전산해석 결과
(a) 10 L/min, (b) 12 L/min, (c) 14 L/min, (d) 16 L/min

제주대학교 중앙도서관
JEJU NATIONAL UNIVERSITY LIBRARY

동일한 조건에서의 열플라즈마 제트의 온도 광학진단 측정값과 전산해석 계산값의 오차율을 비교하여 광학진단 방법에 대한 타당성을 확보하였다. 전산해석 시 열플라즈마 발생기의 조건은 입력 전류 100 A로 고정하였으며, 방전기체 N_2의 유량이 10, 12, 14, 16 L/min 주입된 경우에 대해 측정하였다. 표 3는 열플라즈마 토치의 플라즈마 발생 조건 및 시뮬레이션을 통해 계산된 온도와 진단을 통해 측정된 온도를 비교하여 정리한 표이다.

진단 결과, 플라즈마 토치 출구로부터 0 mm 지점에서의 플라즈마 제트의 온도는 방전기체 N_2의 유량이 10~16 L/min로 증가할수록 6,029에서 6,438 K으로 점차 증가하는 것으로 측정되었다. 플라즈마 토치로부터 10 mm인 지점에서는 방전기체 N_2 10~16 L/min으로 증가할수록 5,315~6,128 K으로 증가되는 것이 확인되었다.

진단 값과 계산 값을 비교한 결과, 측정 지점 10 mm의 경우, 방전기체의 유량이 증가할수록 전산해석과의 온도 오차가 커지는 경향을 보인다. 이는 방전기체의 유량이 커짐에 따른 플라즈마 방전의 안정성이 떨어져난류의 정도가 심해지기 때문으로 판단된다.

측정지점이 0 mm의 경우 10 mm에 비해 난류의 강도가 줄어들지만 오히려 오차가 커지는 경향을 보인다. 이는 10 mm의 측정 위치에서의 플라즈마 화염의 단면적이 넓어지며, 온도 진단의 영향을 끼치는 중심부보다 광량이 적기 때문에 진단에 어려움을 주는 것으로 판단된다. 또한, N_2 플라즈마 방전기체의 유량이 증가할수록 계산값과 측정값의 오차율이 감소하는 경향을 보인다. 이는 실제 광학 진단에 사용된 토치의 효율과 전산해석 상에서의 토치의 효율이 비슷한 값을 가지기 때문에 오차율이 줄어드는 것으로 판단된다.

측정 지점 0 mm, 10 mm에서의 플라즈마 제트의 온도 진단 결과와 전산해석 결과의 평균 오차율은 10% 내외로 개발된 열플라즈마 광학 진단 방법론의 타당성이 확보되었다. 개발된 방법론을 통해 메탄 열분해 공정에서의 삼중 열플라즈마 시스템에 적용하여 질소 열플라즈마 제트의 온도와 메탄 주입 후 변화된 열플라즈마 제트의 온도를 진단하였다.

제주대학교 중앙도서관
JEJU NATIONAL UNIVERSITY LIBRARY

표 3. 열플라즈마 발생기 전산해석 및 광학진단 조건

Measurement point: 0 mm from torch exit				
Discharge gas flow rate (L/min)	10	12	14	16
Measurement temperature (K)	6,029 ±461	6,160 ±211	6,201 ±159	6,438 ±200
Calculation temperature (K)	6,946	6,982	6,916	6,904
Difference (%)	13	12	10	7
Measurement point: 10 mm from torch exit				
Discharge gas flow rate (L/min)	10	12	14	16
Measurement temperature (K)	5,315 ±579	5,627 ±625	5,929 ±1,074	6,128 ±1,079
Calculation temperature (K)	6,392	6,449	6,406	6,413
Difference (%)	12	14	13	4

제주대학교 중앙도서관
JEJU NATIONAL UNIVERSITY LIBRARY

3. 메탄 열분해 공정을 위한 삼중 토치 진단 시스템

열플라즈마의 경우 제트의 속도와 온도가 높아짐에 따라 점성도 함께 높아지는 특성을 가지는 열유체이다. 이 특성으로인해 열플라즈마 제트 중심부에 메탄을 주입하는 것은 어렵다. 본 연구에서는 이러한 단점을 개선하기 위하여 삼중 DC 열플라즈마 시스템을 활용하였다. 그림 6은 메탄 열분해 공정을 위한 삼중 열플라즈마 시스템이다. 본 시스템은 세 개의 토치가 120°의 간격으로 위치하고 있으며, 지면으로부터 45°로 기울어져 배치되어있다. 그리고 3개의 플라즈마 제트가 합쳐지는 지점에 메탄이 주입되어질 수 있도록 설계되었다. 이 시스템의 경우 빠른 유속과 높은 점성을 가진 열플라즈마 제트의 고온부 영역에도 메탄을 주입하기 용이하다는 장점을 갖는다.

그림 6에 표시된 삼중점은 세 개의 플라즈마 토치에서 발생하는 세 개의 열플라즈마 제트가 모이는 한 지점을 의미한다. 삼중점은 처리하고자 하는 물질이 열플라즈마와 가장 먼저 만나는 지점으로 물질과 플라즈마의 반응이 시작되는 지점으로 이 영역의 진단은 중요하다. 메탄 열분해 공정 시 열플라즈마 제트의 온도 및 화학종을 측정하기 위하여 Collimating lens가 부착된 Optical fiber head를 지그를 통해 시창구에 고정시켜 광학 진단 실험을 진행하였다.

본 연구에서는 단일 토치 진단 실험을 통해 신뢰성을 확보한 N_2^+ 회전 준위를 이용한 광학 진단 방법론을 활용하여 삼중 열플라즈마 공정 시의 열플라즈마 제트의 상태를 진단하였다.

제주대학교 중앙도서관
JEJU NATIONAL UNIVERSITY LIBRARY

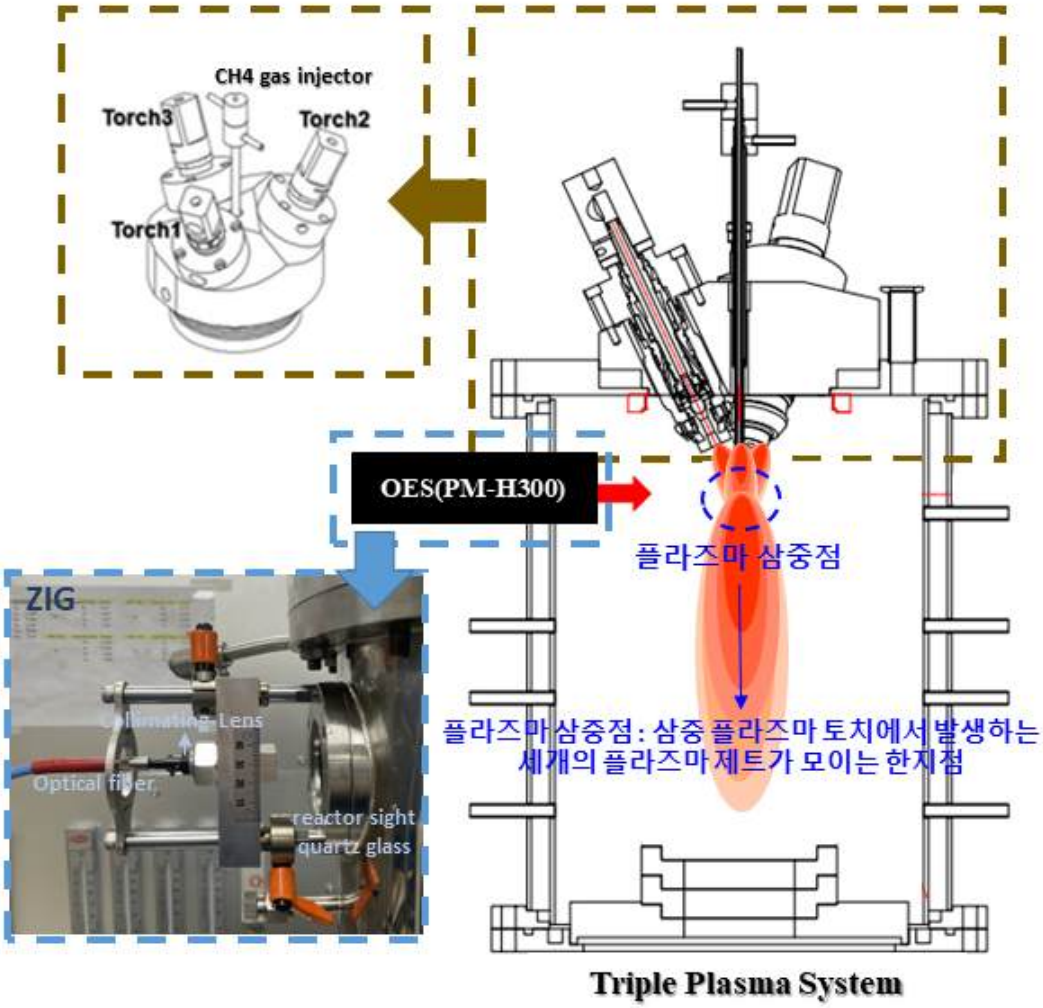

그림 6. 메탄 열분해 공정을 위한 삼중 열플라즈마 시스템

제주대학교 중앙도서관
JEJU NATIONAL UNIVERSITY LIBRARY

Ⅲ. 결과 및 고찰

1. 삼중 열플라즈마 시스템 진단 결과

1) 질소 플라즈마 제트의 화학종

메탄 열분해 공정에 사용되는 질소 플라즈마에 대한 특성을 진단하기 위하여 먼저 질소 플라즈마 제트 내에 포함되어 있는 화학종에 대하여 진단을 진행하였다. 질소 플라즈마는 다른 방전기체를 사용한 플라즈마에 비해 더 높은 온도와 더 긴 체류시간을 가지는 플라즈마로서 고정 입력전력에서 상대적으로 낮은 유량의 질소를 필요로 하기 때문에 다양한 산업 공정에서 사용된다[25]. 본 연구에서는 열플라즈마 방전기체 N_2의 유량을 15 L/min으로 고정시킨 후 열플라즈마 제트의 측정 위치를 변화시키며 위치별 화학종의 변화를 살펴보았다. 또한, 열플라즈마 제트의 측정 위치를 고정시킨 후 방전기체 N_2의 유량을 10~20 L/min까지 2 L/min씩 추가하며 방전기체 유량별 화학종의 변화를 살펴보았다.

그림 7은 열플라즈마 제트 위치의 변화에 따른 파장 별 측정 세기를 나타내었으며, 그림 8은 방전기체 유량 변화에 따른 파장 별 측정 세기를 타나내었다. 그림을 통해 알 수 있듯이 열플라즈마 제트의 위치의 변화에 따라 파장 별 세기는 뚜렷한 차이가 있는 것을 확인할 수 있다. 그러나 방전기체 유량에 따른 파장 별 세기에서는 차이가 미미하여 파장 별 세기가 거의 일치하는 경향을 확인할 수 있었다.

제주대학교 중앙도서관
JEJU NATIONAL UNIVERSITY LIBRARY

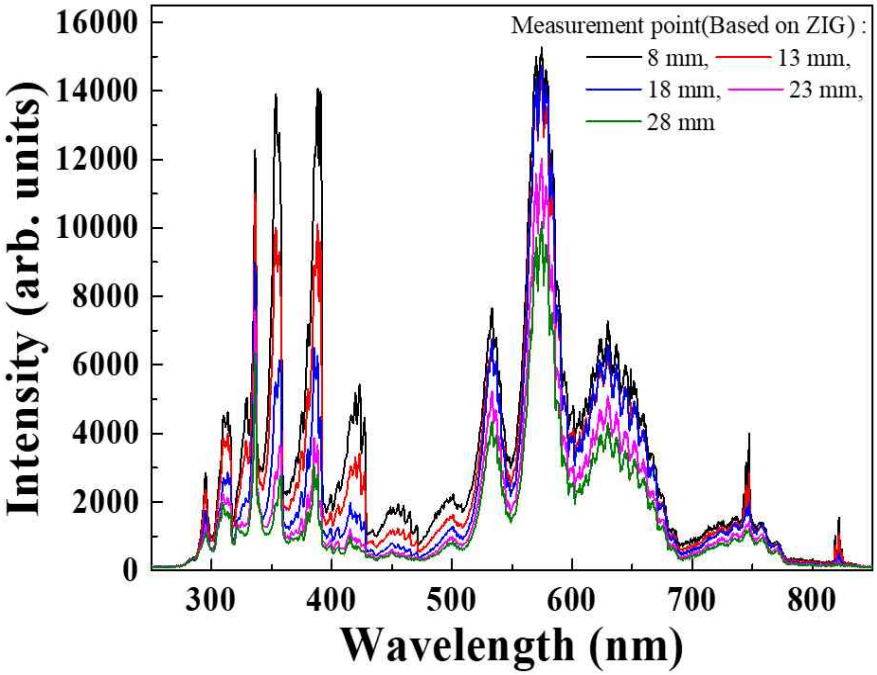

그림 7. 질소 플라즈마 제트 위치 변화에 따른 파장 별 세기

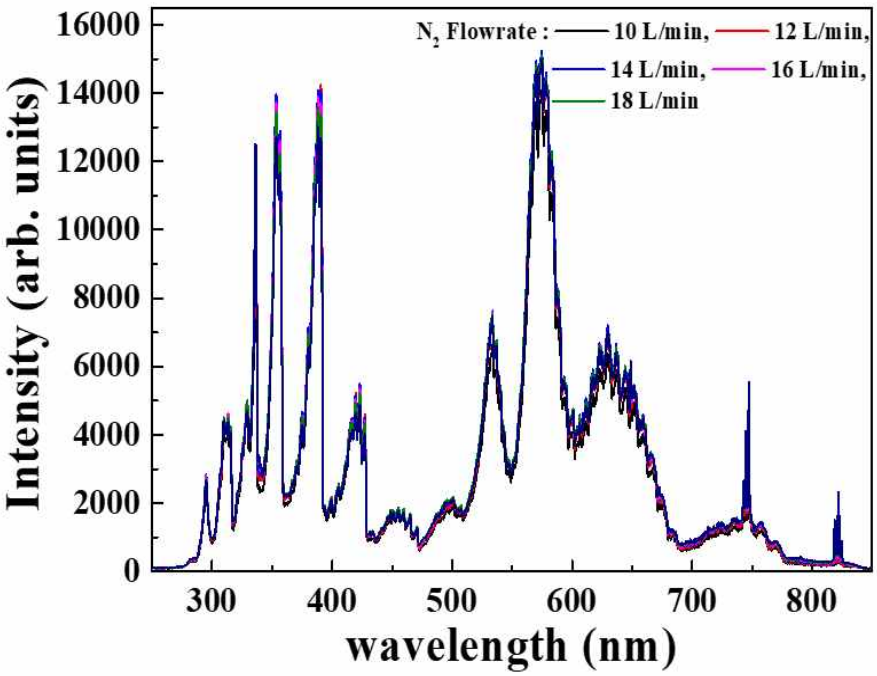

그림 8. 방전기체 질소 유량 변화에 따른 파장 별 세기

제주대학교 중앙도서관
JEJU NATIONAL UNIVERSITY LIBRARY

그림 9는 열플라즈마 제트 위치의 변화에 따른 열플라즈마 제트의 화학종의 상대적인 양의 변화를 확인할 수 있도록 주요 화학종의 파장 별 세기를 정리하여 나타내었다. 그림 10은 방전기체 유량 변화에 따른 열플라즈마 제트의 화학종의 세기 변화를 정리하였다. 질소 플라즈마 내부의 주요 화학종의 종류에는 N_2, N_2^+, N atom이 확인되었다. 각각의 화학종에 해당하는 파장은 각각 336.251, 390.859, 747.174 nm이다.

그림 9를 통해 플라즈마 토치 출구로부터 측정 지점이 멀어질수록 플라즈마 제트 내부의 화학종의 양이 상대적으로 줄어들며, 삼중점의 위치에서 가장 많은 양의 화학종이 분포하는 것이 확인되었다. 그림 10을 통해 플라즈마 방전기체의 유량이 증가할수록 N atom의 상대적인 양은 증가하나 N_2, N_2^+는 줄어드는 것을 확인할 수 있었다. 이는 플라즈마 방전기체의 유량이 증가할수록 출력이 증가하며 온도가 증가하기 때문에 N_2가 N atom으로 해리되었기 때문으로 판단된다. 또한, 제트의 측정 위치 변화에 비해 방전기체 유량이 변화함에 따른 화학종의 변화가 미미한 것을 확인할 수 있었다.

제주대학교 중앙도서관
JEJU NATIONAL UNIVERSITY LIBRARY

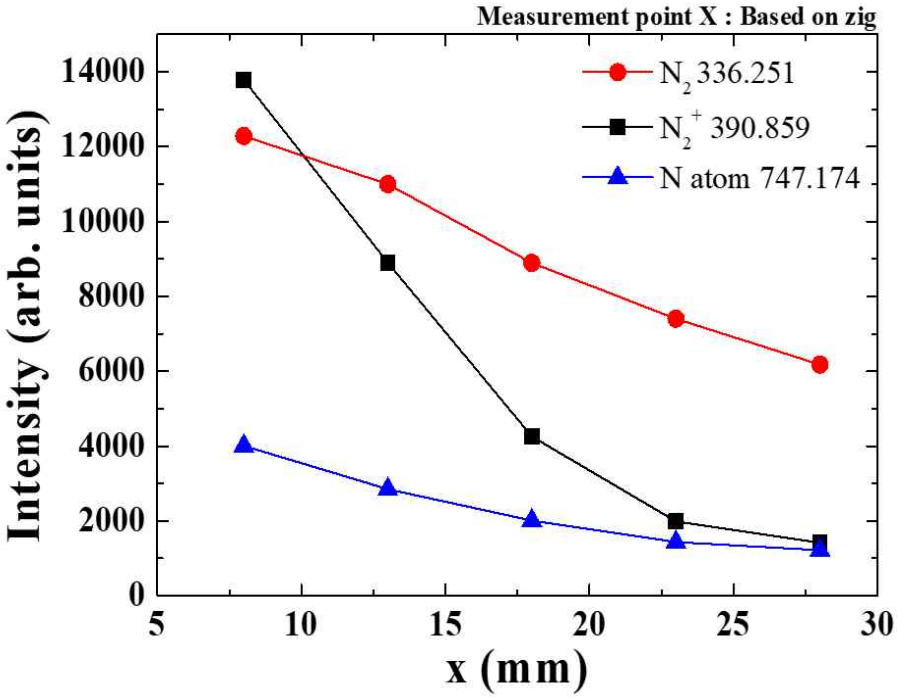

그림 9. 질소 플라즈마 제트 위치 변화에 따른 화학종 변화

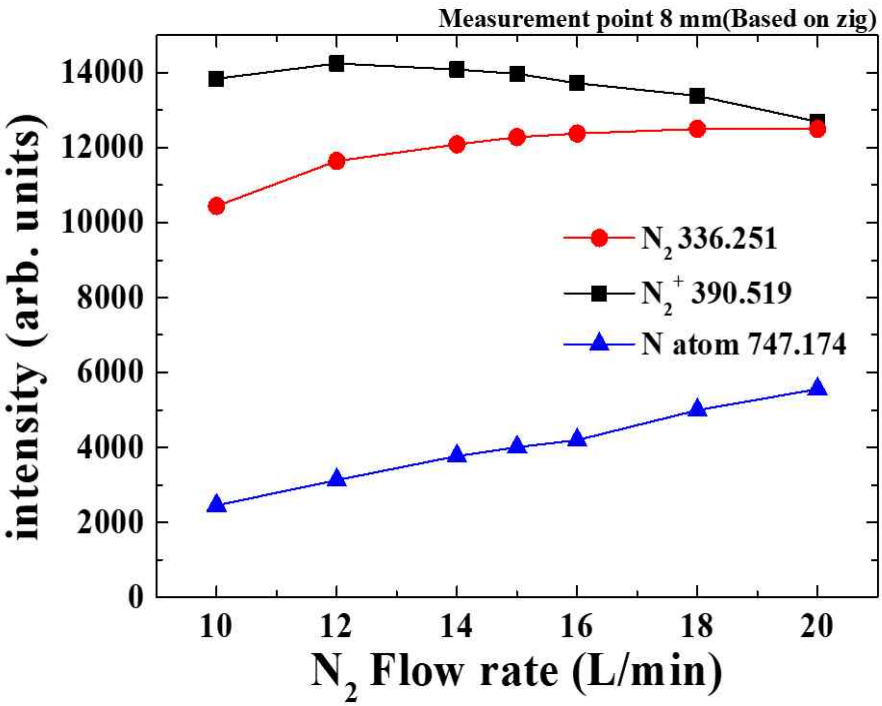

그림 10. 방전기체 질소 유량 변화에 따른 화학종의 변화

제주대학교 중앙도서관
JEJU NATIONAL UNIVERSITY LIBRARY

2) 질소 플라즈마 제트의 온도 변화

열플라즈마 방전기체 질소의 유량을 15 L/min으로 고정시킨 후 질소 열플라즈마 토치 출구로부터의 거리 변화에 따른 열플라즈마 제트 위치별 온도와 방전기체 유량의 변화에 따른 온도를 진단하였다. 그림 11은 열플라즈마 제트 위치 별 온도 변화를 나타내었으며, 그림 12는 방전기체 유량 변화에 따른 온도 변화를 정리하여 나타내었다.

측정 위치별 플라즈마 제트 온도 진단 결과, 플라즈마 제트의 하단부로 갈수록 온도가 감소하는 경향을 확인하였다. 이는 플라즈마 중심부로 벗어날수록 플라즈마 온도가 급격하게 감소하는 특성을 가지고 있기 때문으로 판단된다.

방전기체 질소 유량 변화에 따른 온도 진단 결과, 질소의 유량이 10 L/min에서 15 L/min 까지 증가할수록 온도가 증가하는 경향을 보인다. 그러나 15 L/min 이후 20 L/min까지 질소 유량이 증가하여도 온도는 오히려 감소하는 것을 확인 할 수 있었다. 이는 방전기체 유량이 15 L/min까지 증가할 플라즈마 제트의 온도가 증가한다. 반면에 유량이 15~20 L/min로 증가할 시 온도가 감소한다. 이는 15 L.min 이후로는 차가운 방전기체에 의한 영향이 출력에 의한 온도 증가 영향보다 크기 때문으로 판단된다.

제주대학교 중앙도서관
JEJU NATIONAL UNIVERSITY LIBRARY

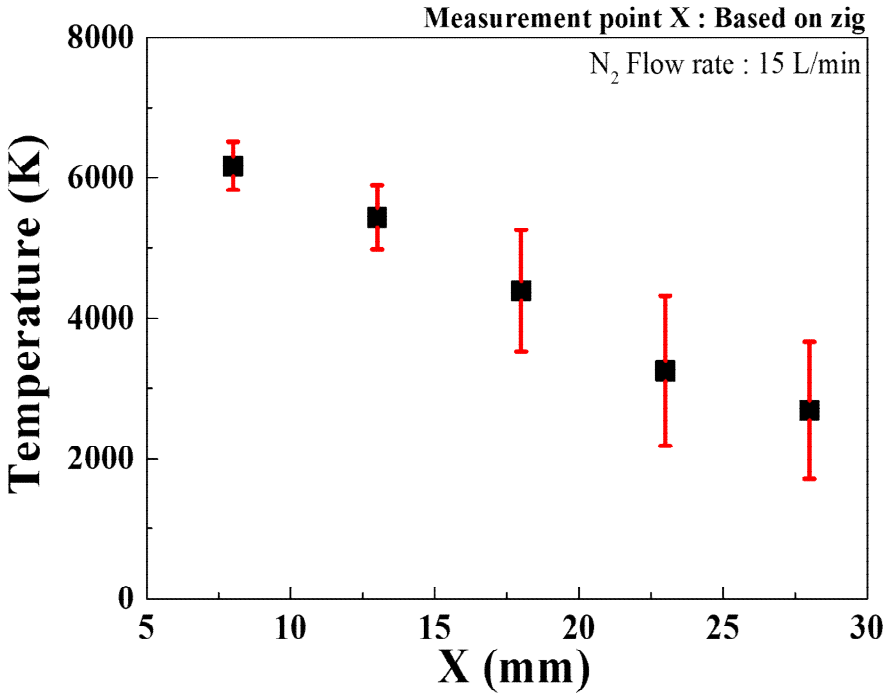

그림 11. 열플라즈마 제트 위치 변화에 따른 온도 변화

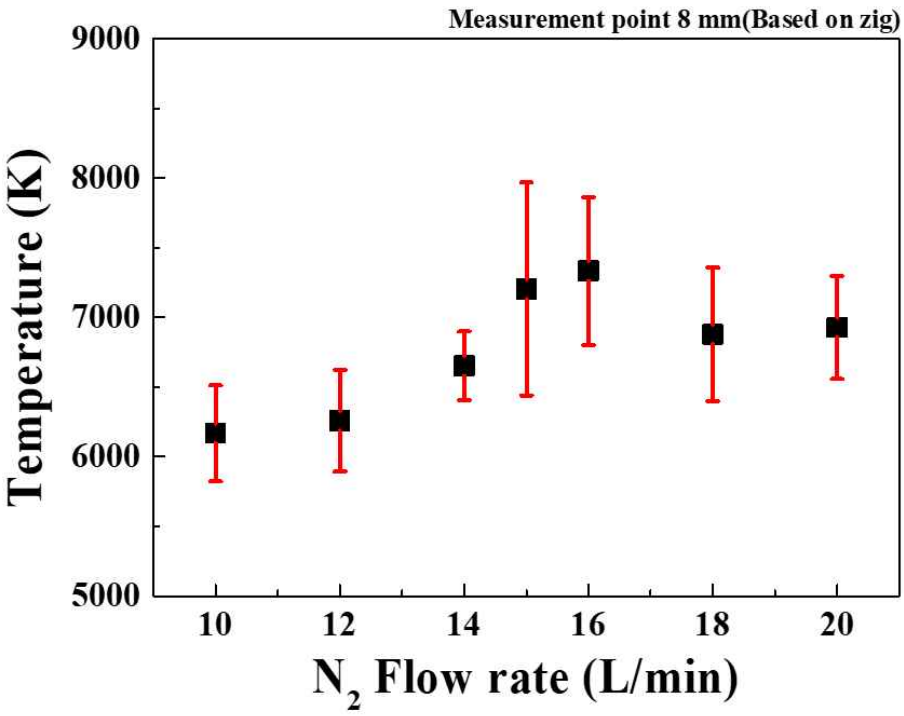

그림 12. 방전기체 질소 유량 변화에 따른 온도 변화

제주대학교 중앙도서관
JEJU NATIONAL UNIVERSITY LIBRARY

2. 메탄 주입 후 삼중 열플라즈마 시스템 진단 결과

1) 메탄 주입 후 화학종 변화

삼중 플라즈마 시스템에서 플라즈마 토치의 방전기체 질소 유량이 각 15 L/min 일 때, 삼중점에 메탄 5 L/min을 주입 시킨 경우의 열플라즈마 제트 위치 별 화학종의 변화를 확인하였다. 두번째는 삼중점에 측정 위치를 고정 시킨 후 메탄 유량을 5 L/min에서 20 L/min까지 5 L/min 씩 증가시켜가며 플라즈마 제트 내부의 화학종의 변화를 확인하였다.

그림 13은 열플라즈마 제트 위치별 파장의 세기를 나타내었으며, 그림 14는 메탄 유량 변화에 따른 파장 별 측정 세기를 나타내었다. 열플라즈마 제트의 측정 지점이 지그 기준 8~13 mm까지는 세기의 변화가 거의 동일하나, 측정 지점 28 mm에서 뚜렷한 차이가 있음을 확인 할 수 있다. 또한, 메탄 유량 변화에 따른 파장별 세기의 그래프를 통해서 약 700 nm 파장 대 이전에는 유량이 높아질수록 세기가 높으나 약 700 nm 파장 대 이후로는 반대의 경향을 확인할 수 있었다.

제주대학교 중앙도서관
JEJU NATIONAL UNIVERSITY LIBRARY

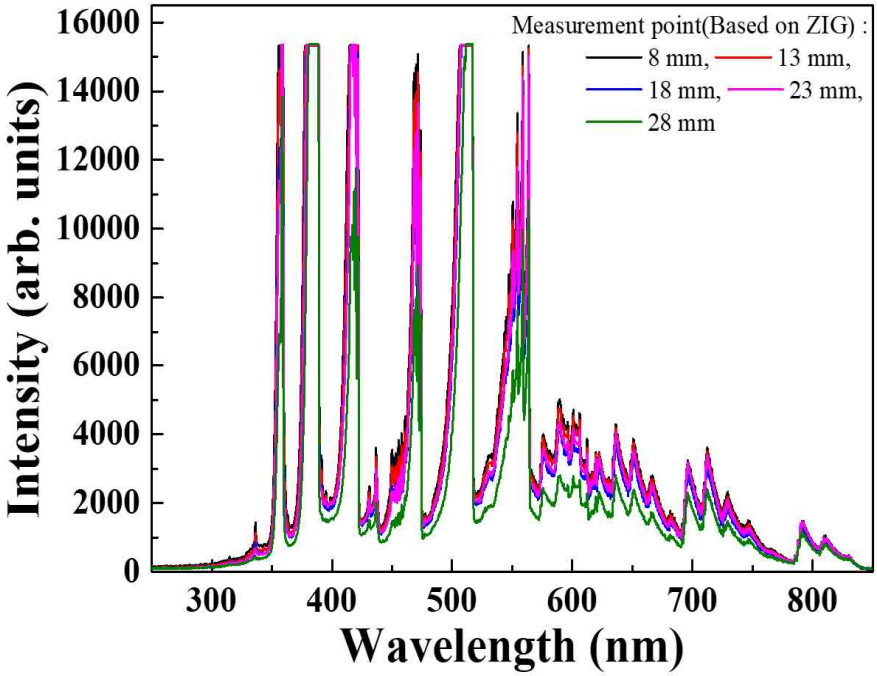

그림 13. 메탄 주입 후 열플라즈마 제트 위치 변화에 따른 파장 별 세기

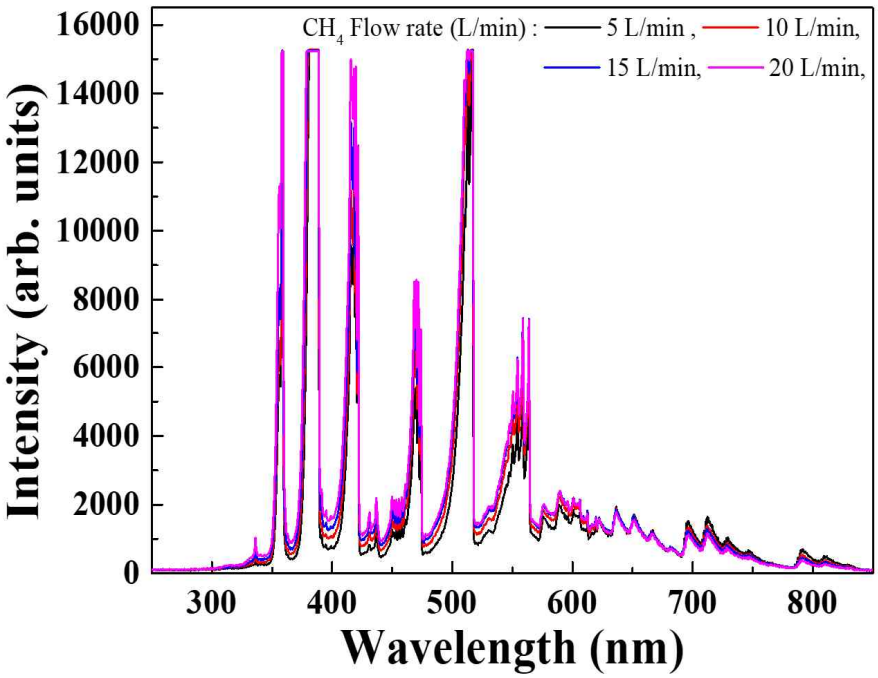

그림 14. 주입된 메탄 유량 변화에 따른 파장 별 세기

제주대학교 중앙도서관
JEJU NATIONAL UNIVERSITY LIBRARY

그림 15는 메탄 주입 후 열플라즈마 제트 위치 변화에 따른 열플라즈마 제트의 화학종의 세기 변화를 정리하였다. 그림 16은 주입된 메탄 유량 변화에 따른 열플라즈마 제트의 화학종의 세기 변화를 정리하였다. 질소 플라즈마 내부에 존재하는 화학종의 종류에는 N_2, N_2^+, N atom이 확인되었으나, 메탄이 주입된 이후 플라즈마 제트 내부에 더 다양한 화학종이 발견되었다. 그 종류에는 질소 플라즈마에서 발견되는 화학종과 더불어 CH_4 열분해 반응에 의해 생성된 C, C_2, CH, H, H_2가 추가로 발견되었다. 또한 CH_4와 N_2 사이의 화학반응에 의해 생성되는 CN, NH도 발견되었다.

그림 15를 통해 플라즈마 제트의 하단부로 갈수로 제트 내부의 화학종의 양이 상대적으로 줄어들며, 삼중점의 위치에서 가장 많은 양의 화학종이 분포하는 것이 확인되었다. 또한, 화학종 H, H_2, C의 경우 다른 화학종에 비해 제트 위치별 변화가 뚜렷하였다. 화학종 H_2의 경우 삼중점의 위치에서 화학종 H에 비해 더 적은 양이 존재하나 제트 하단부로 갈수록 상대적으로 더 많이 존재한다. 또한 화학종 H_2와 화학종 C의 세기 변화는 같은 경향을 가진다. 이는 제트 하단부로 갈수록 제트의 온도가 감소하며 더 안정한 분자 형태인 H_2의 양이 증가하는 것으로 확인된다. 메탄 분해의 가장 기본적인 화학반응 식은 CH_4 -> C + $2H_2$로 메탄 분해 메커니즘에서 메탄(CH_4)에서 C와 H_2로 분해되기 때문에 C와 H_2의 세기 변화가 같은 경향을 띠는 것으로 판단된다.

주입된 메탄 유량 변화에 따른 플라즈마 제트 내부의 화학종의 상대적인 양을 비교한 결과를 나타낸 그림 16을 통해서 이 경우에도 H_2와 C의 변화가 같은 경향을 띠는 것을 확인하였다. 이 경우도 위와 같은 이유로 판단된다. 그러나 메탄의 주입 유량이 5 L/min에서 20 L/min까지 4배로 증가한 것에 비해 화학종의 상대적인 양의 변화는 미미한 것이 확인되었다. 또한 본 연구에서 사용된 분광기의 최대 측정 가능 세기가 약 15000으로 화학종 CN과 N_2의 변화를 살펴보기에는 한계가 있다. 그러나 N_2와 CN이 다른 화학종에 비해 상대적으로 뚜렷하게 많은 양을 가지는 것은 확인할 수 있었다. 화학종 CN은 질소 플라즈마와 메탄의 화학반응에 의해 생성된 HCN이 해리하며 생성된 것으로 판단된다. 반면 메탄의 유량이 증가하며 대부분의

제주대학교 중앙도서관
JEJU NATIONAL UNIVERSITY LIBRARY

화학종이 미미한 변화를 보이거나 증가하는 것을 확인할 수 있지만, N atom의 경우 메탄의 유량이 증가할수록 감소하는 경향을 보인다. 이는 메탄 유량이 증가할수록 온도가 감소하기 때문에 N atom으로 N_2 분자가 해리되는 반응이 줄어들기 때문으로 판단된다.

제주대학교 중앙도서관
JEJU NATIONAL UNIVERSITY LIBRARY

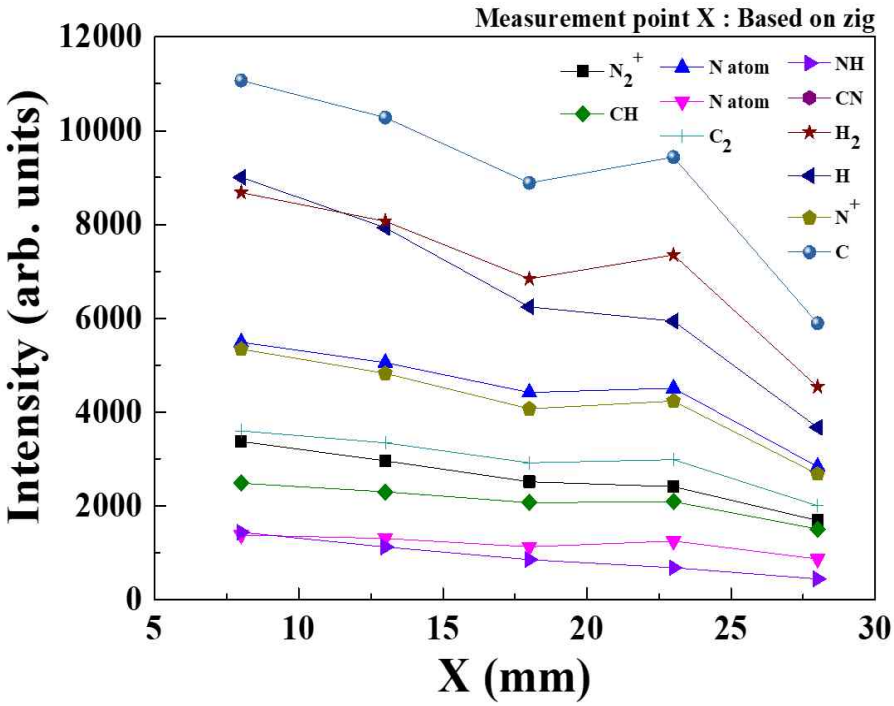

그림 15. 메탄 주입 후 열플라즈마 제트 위치 변화에 따른 화학종 변화

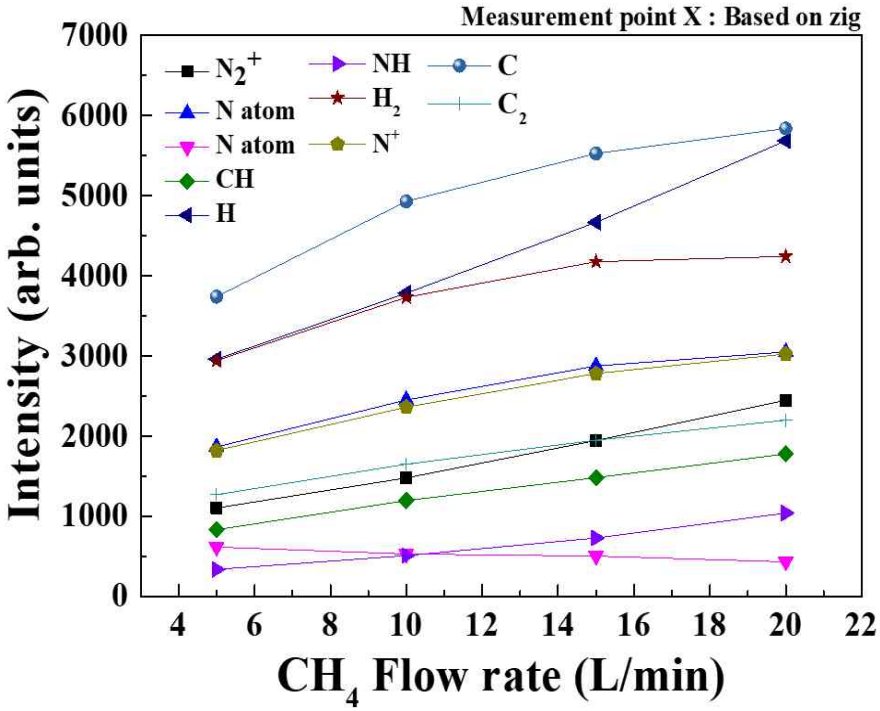

그림 16. 메탄 주입 유량 변화에 따른 화학종의 변화

제주대학교 중앙도서관
JEJU NATIONAL UNIVERSITY LIBRARY

2) 메탄 주입 후 열플라즈마 제트 온도 변화

메탄 분해 반응은 높은 반응온도를 필요로 하며, 열플라즈마의 고온의 특성은 메탄 열분해 공정에서 유용하게 사용될 수 있다. 따라서 메탄 주입 이후 열플라즈마 제트의 온도를 진단하는 것은 메탄 열분해 공정에서의 중요한 변수 진단 중 하나이다. 본 연구에서는 방전기체 N_2의 유량을 15 L/min, 주입되는 메탄의 유량을 5 L/min으로 고정 시킨 후 측정 지점의 변화에 따른 온도와 측정 지점을 고정시킨 후 메탄 주입 유량이 증가함에 따라 변화하는 열플라즈마 제트의 온도를 진단하였다.

그림 17은 열플라즈마 제트의 측정 지점 변화에 따른 온도 진단 변화를 나타내었다. 진단 결과, 플라즈마 제트의 하단부로 갈수록 온도가 감소하다 일정 지점 이후로부터 온도가 다시 증가하는 경향을 보이는 것을 확인하였다. 이는 제트의 하단부에서 메탄이 분해되는 HACA 메커니즘에 의해 발열반응인 탈수소반응이 일어나면서 오히려 온도가 상승하는 것으로 판단된다.

그림 18은 주입되는 메탄의 유량이 변화함에 따른 온도 변화를 나타내었다. 진단 결과, 메탄의 유량이 증가할수록 차가운 처리 기체인 메탄의 주입량이 증가하여 삼중점의 온도가 감소하는 것을 확인하였다. 메탄 주입량이 15 L/min에서 20 L/min으로 증가할 경우의 제트의 온도 변화 폭은 메탄 주입량이 5 L/min에서 10 L/min으로 증가할 경우의 제트의 온도 변화 폭에 비해 작은 것을 확인하였다. 이를 통해 메탄 유량이 증가하여도 플라즈마 제트의 온도대가 일정부분으로 수렴하는 경향을 띠는 것을 확인할 수 있었으며, 메탄 유량이 증가하여도 메탄 분해시 필요한 2,500 K보다 낮아지지 않는 것을 확인하였다. 이는 측정 지점 위치 변화에 따른 고찰과 비슷하게 메탄 유량이 증가할수록 발열반응인 탈수소 반응이 많이 일어나기 때문에 일정한 온도값 이하로 떨어지지 않고 수렴하는 경향을 띠는 것으로 판단된다.

제주대학교 중앙도서관
JEJU NATIONAL UNIVERSITY LIBRARY

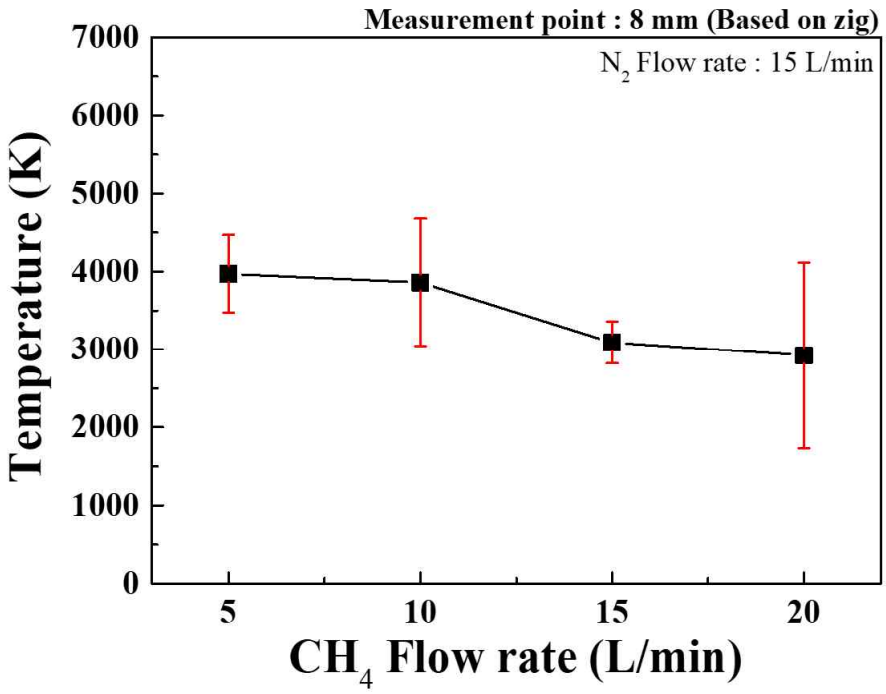

그림 17. 메탄 주입 후 열플라즈마 제트 위치 변화에 따른 온도변화

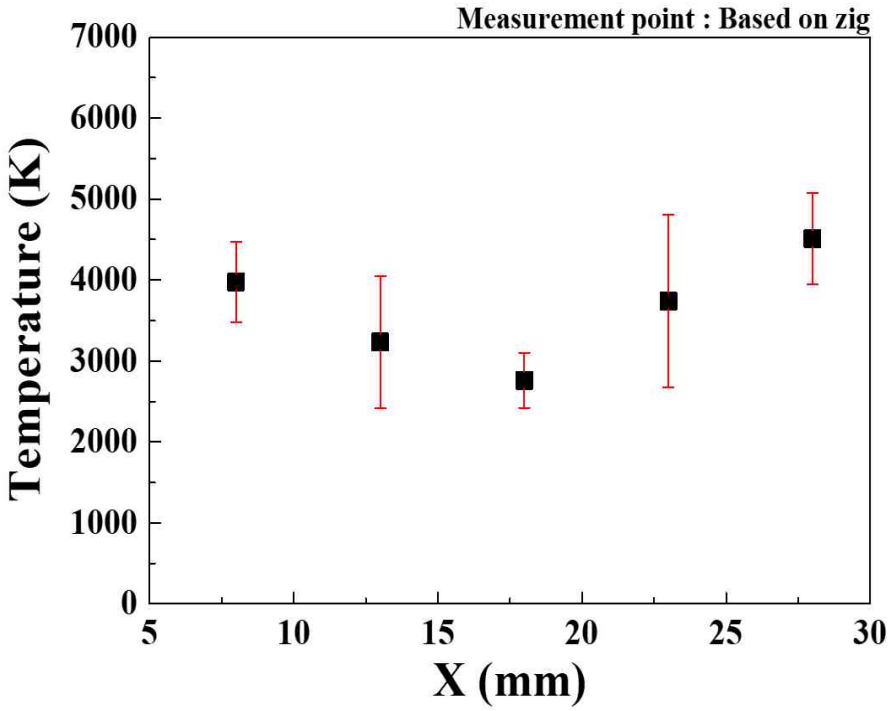

그림 18. 주입된 메탄 유량 변화에 따른 온도 변화

제주대학교 중앙도서관
JEJU NATIONAL UNIVERSITY LIBRARY

Ⅳ. 결론

본 연구에서는 질소 회전 에너지 준위를 활용한 Boltzmann plot법을 통한 열플라즈마 제트 온도 광학진단 방법론을 개발하였으며, 개발된 방법론의 타당성 검증을 위해 본 연구실 자체 개발 MHD 코드인 DCPTUN 코드를 활용한 전산해석 진행 후 계산값과 진단값의 오차율을 확인하였다. 비교 결과 평균 오차율이 약 10% 내외로 개발된 열플라즈마 광학 진단 방법론의 신뢰성을 확보하였다.

개발된 광학진단 방법론을 활용하여 메탄 열분해 공정에 사용되는 질소 열플라즈마 제트 내의 온도와 메탄 주입 이후 제트의 온도 변화를 살펴보았다. 뿐만 아니라 플라즈마 제트 내의 분포하는 화학종의 종류와 상대적인 양을 진단하여 비교 분석하였다.

질소 플라즈마의 방전기체 유량별, 제트 위치별 분포하는 화학종과 온도를 진단하였다. 진단결과, 질소의 유량이 10~15 L/min까지 증가할수록 온도가 증가하고, 유량이 15~20 L/min로 증가할 때에 온도가 감소하는 것을 확인하였다. 이를 통해 방전기체 질소의 유량이 15 L/min의 경우 그 이상의 유량을 사용한 플라즈마 제트보다 더 적은 양의 방전기체의 양으로 메탄 열분해 공정에 유리한 고온을 가질 수 있다는 것을 확인하였다.

질소 플라즈마 제트의 화학종 분석 결과, N_2, N_2^+, N atom의 화학종이 확인되었으며, 방전기체 질소의 유량이 증가할수록 N_2, N_2^+의 상대적인 양은 줄어들며, N atom의 양은 증가하는 것을 확인할 수 있었다. 또한 제트 위치별 화학종들은 삼중점의 위치에서 상대적으로 가장 많이 분포했으며, 제트 하단부로 갈수록 줄어드는 것을 확인하였다.

주입된 메탄의 유량을 5 L/min으로 고정시킨 후, 방전기체 질소의 유량 15 L/min의 질소 플라즈마 제트의 위치별 온도 및 화학종의 변화를 살펴본 결과, 제트 하단부로 갈수록 온도가 감소하며, 일정 지점(지그 기준 18 mm 지점) 이후로 다시 온도가 증가하는 경향을 확인하였다. 이는 메탄 열

제주대학교 중앙도서관
JEJU NATIONAL UNIVERSITY LIBRARY

분해의 여러 화학반응 중 발열반응인 탈수소 반응이 발생하는 지점으로, 플라즈마 제트 내의 온도가 올라가는 것으로 판단된다. 이를 통하여 메탄 열분해 반응이 플라즈마 제트의 윗부분에서 일어나며 제트 내의 온도 분포가 메탄 열분해 과정 중 일어나는 반응에 의해 온도가 변화하는 것을 알 수 있다.

또한, 주입되는 메탄 유량을 증가시키며 열플라즈마 제트의 온도를 측정한 결과, 메탄 유량이 증가할수록 온도가 감소하는 경향을 보이나, 메탄 유량이 증가하는 폭에 비해 감소하는 온도 대의 폭이 점차 줄어드는 경향을 보인다. 이는 메탄 유량이 증가할수록 HACA 메커니즘의 발열반응인 탈수소 반응이 상대적으로 더 많이 일어나기 때문으로 판단된다. 이를 통해 메탄의 주입되는 양을 증가시켜도 열플라즈마 제트 내부의 온도는 메탄 분해가 가능한 2,500 K 이하로 감소하지 않을 것으로 예상된다.

화학종의 경우 메탄 열분해 공정을 통해 생성되는 예상 생성물인 수소(H_2)와 탄소(C)의 상대적인 양이 동일한 경향성을 띠며 제트 내에 분포하는 것을 확인할 수 있었다. 이를 통해 메탄 열분해 공정 중 많은 양의 수소를 생성하기 위해서는 많은 탈수소 반응이 일어나도록 해야 하며, 탄소가 생성되는 반응을 많이 일으키는 방향으로 공정 조건을 선택해야 함을 알 수 있다.

제주대학교 중앙도서관
JEJU NATIONAL UNIVERSITY LIBRARY

참 고 문 헌

[1] M. I. Boulos, “Thermal Plasma Processing”, IEEE Trans. Plasma Sci. 19, 1078 (1991).

[2] M. I. Boulos, P. Fauchais, and E. Pfender, “Thermal plasmas fundamentals and applications” volume 1 19 (1994).

[3] E. Pfender, “Thermal Plasma Technology: Where Do We Stand ans Where Are We Going?”, Plasma Chem. Plasma Process, 19, 1-31, (1999).

[4] I. H. Hutchinson, “Principles of Plasma Diagnostics: Second Edition I H Hutchinson”, Plasma Phys. Control. Fusion, 44(2603), (2002).

[5] H. J. Kunze, “Plasma Diagnostics”, Plasma Physics, 670, 349-373, (2005).

[6] A. J. H. Donné, “Introduction to Plasma Diagnostics”, Fusion Sci. Technol., 49, 349-356, (2006).

[7] M. Rahmane, G. Soucy, M. I. Boulos, “Analysis of the enthalpy probe technique for thermal plasma diagnostics”, Rev. Sci. Instrum. 66, 3424 - 3431, (1995).

[8] W. L. T. Chen, J. Heberlein and E. Pfender, “Diagnostics of a Thermal Plasma Jet by Optical Emission Spectroscopy and Enthalpy Probe Measurements”, Plasma Chem. Plasma Process., 14(3), 317-332, (1994).

[9] H. R. Griem, Plasma Spectroscopy (McGraw-Hill, New York, 1964).

[10] Nishi, Yoshio, "Lithium ion secondary batteries; past 10 years and the future", Journal of Power Sources, 100(1-2), 101-106, (2001).

[11] 최수석, “비이송식 플라즈마 토치에서 전극구조 및 자장인가의 열플라즈마 제트 특성에 미치는 영향”, 서울대학교 대학원, (2004).

[12] N. S. Bastardo, R. Schlogl, and H. Ruland, “Methane Pyrolysis for Zero-Emission Hydrogen Production: A Potential Bridge Technology from Fossil Fuels to a Renewable and Sustainable Hydrogen Economy”, 60,

제주대학교 중앙도서관
JEJU NATIONAL UNIVERSITY LIBRARY

11855-11881, (2021).

[13] J. Prabowo, L. Lai, B. Chivers, D. Burke, A. H. Dinh, L. Ye, Y. Wang, Y. Wang, L. Wei, and Y. Chen, “Solid carbon co-products from hydrogen production by methane pyrolysis: Current understandings and recent progress”, 216(5), 118507, (2024).

[14] Y. H. Lee, J. H. Oh, and S. Choi, “Evaluation of process conditions for methane pyrolysis applying the triple thermal plasma system”, Int. J. Hydrog. Energy, 48(70), 27127-27136, (2023).

[15] T. Li1, C. Rehmet1, Y. Cheng, Y. Jin, and Y. Cheng, “Experimental Comparison of Methane Pyrolysis in Thermal Plasma”, Plasma Chem. Plasma Process, 37(4), (2017).

[16] J. R. Fincke, R. P. Anderson, T. A. Hyde, and B. A. Detering, “Plasma Pyrolysis of Methane to Hydrogen and Carbon Black”, Ind. Eng. Chem, Res, 41(6), 1425-1435, (2002).

[17] S. Samal, “Thermal plasma technology: The prospective future in material processing”, J. Clean Prod., 142(4), 3131-3150, (2017).

[18] A. Mašláni, V. Sember, and M. Hrabovský, “Spectroscopic determination of temperatures in plasmas generated by arc torches”, Spectroc. Acta Pt. B-Atom. Spectr., 133, 14-20, (2017).

[19] S. B. Bayram and P. T. Arndt, “Rotational spectra of N2+ : An advanced undergraduate laboratory in atomic and molecular spectroscopy”, Am. J. Phys. Vol. 83, No. 10, 867-872 (2015).

[20] J. Luque and D. R. Crosley, “Gas temperature determination from rotational lines in non-equilibrium plasmas: a review”, Plasma Sources Sci. Technol., 23(2), (2014).

[21] S. R. Langhoff, and C. W. Bauschlicher, “Theoretical study of the first and second negative systems of N2+”, J. Chem. Phys, 88, 329-336, (1988).

[22] X. J. Huang, Y. Xin, L. Yang, Q. H.Yuan, and, Z. Y. Ning, “Spectroscopic study on rotational vibrational temperature of N_2 and N_2^+ in

제주대학교 중앙도서관
JEJU NATIONAL UNIVERSITY LIBRARY

dual frequency capacitively coupled plasma", Phys. Plasmas, 15, 113504, (2008).

[23] B. E. Launder and D. B. Spalding, "The numerical computation of turbulent flows" Comput. Meth. Appl. Mech. Eng., 3(2), 269-289 (1974).

[24] K. C. Karki, "A Calculation procedure for viscous flows at all speeds in complex geometries," Ph. D. Dissertation, University of Minnesota, USA, (1986).

[25] S. R. Mathur and J. Y. Murthy, "A pressure-based method for unstructured meshes", Numer. Heat Transf. B-Fundam., 31(2), 195-215 (1997).

제주대학교 중앙도서관
JEJU NATIONAL UNIVERSITY LIBRARY

Optical Diagnostics of Methane Pyrolysis Process Using Thermal Plasma

Hye Young Ko

Department of Energy and Chemical Engineering
The Graduate school
Jeju National University

Abstract

Thermal plasma, characterized by high temperatures and an abundance of reactive species, is garnering attention for its role in methane pyrolysis processes that produce turquoise hydrogen without emitting carbon dioxide. To effectively operate such processes, diagnostics of the thermal plasma state is crucial. There are two diagnostic methods: electrical and optical. Electrical diagnostics, using probes inserted into the plasma, directly affect the process and are unsuitable for high-temperature core diagnosis in the thermal plasma jet. on the contrary, optical methods diagnostics the light emitted by the plasma and do not affect the process. Optical diagnostics not only enable the diagnostics of the high-temperature region at the core of the plasma jet but also measure reactive species within the plasma jet. In this study, we applied optical diagnostic methods to analyze the temperature and reactive species of thermal plasma jets, specifically utilizing the

제주대학교 중앙도서관
JEJU NATIONAL UNIVERSITY LIBRARY

Boltzmann plot method using the wavelength range of N_2^+ rotational energy levels to calculate the temperature of the plasma jets. To validate the developed optical diagnostic method, numerical simulation using the magnetohydrodynamics code, DCPTUN code, was conducted. The results showed a difference of approximately 10% when comparing the measured and calculated temperatures for a single thermal plasma torch. The established optical diagnostic method was effectively utilized in a triple thermal plasma reactor during a methane pyrolysis process. It confirmed the internal distribution of nitrogen plasma jet reactive species and temperature variations based on discharge gas flow rates and plasma jet positions. Additionally, variations in reactive species distribution and temperature in the thermal plasma jet were investigated according to methane flow rate and plasma jet positions during the methane pyrolysis process.

제주대학교 중앙도서관
JEJU NATIONAL UNIVERSITY LIBRARY