

介质特性对介质阻挡放电脱除 NO 影响试验研究

余 刚¹, 余 奇², 顾 耀, 徐益谦¹

(1. 东南大学 洁净煤发电及燃烧技术教育部重点实验室, 江苏 南京 210096;

2. 武汉科技学院 环境与化学工程系, 湖北 武汉 430074)

摘 要: 在介质阻挡气体放电等离子体条件下, 研究阻挡介质特性对 NO 脱除的影响规律。首先建立了介质阻挡放电等离子体脱硝试验系统, 实验研究了 Al_2O_3 、 CaO 、 MgO 和玻璃等不同介质阻挡下 NO 的脱除效果, 并对此影响规律进行了理论分析。实验结果及理论分析表明, 不同阻挡介质所形成的气体放电的电场强度不同, 提供给活性粒子的能量也不同, 从而对 NO 的脱除效果具有不同的影响。

关 键 词: NO; 介质阻挡放电; 介电常数; 等离子体

中图分类号: X701 文献标识码: A

1 引 言

目前世界各国有很多学者正在从各个方面研究气体放电。1930 年左右, 朗缪尔首次提出借用 Plasma(等离子体)这个名词来命名气体放电的主体——正负带电粒子和中性原子的混合体。1950 年以后, 气体放电等离子体技术得到了迅速的发展。几十年来, 气体放电等离子体的应用研究非常活跃, 尤其是在包括对 NO 等有害气体进行等离子体处理等环保领域的应用日趋活跃。

利用气体放电等离子体脱硝是一种颇具发展前景和应用前景的干法烟气脱硝新技术。其基本原理是: 利用气体放电过程中产生的高能电子把烟气中的 SO_2 、 NO_x 、 H_2O 、 O_2 、 N_2 等分子激活, 电离甚至裂解, 产生活性粒子和自由基, 如 O、OH、HO、N 等, 受激发的 NO 分子与活性粒子发生化学反应而被脱除。气体放电等离子体脱硝技术具有高效率、低成本的特点, 是国际上公认的最有发展前途的新一代脱硝技术。

等离子体脱除 NO 目前有 3 种有效的方法: 高能电子束等离子体脱硝、脉冲电晕等离子体脱硝和介质阻挡放电等离子体脱硝。介质阻挡放电是一种可以在常压下产生非平衡等离子体的放电方式, 早已成功应用于臭氧的大规模工业生产及其它等离子体工艺过程之中。将介质阻挡放电运用到 NO 脱除技术中首要研究讨论的是所采用的阻挡介质的材料

及其特性对介质阻挡放电的影响, 进而影响到 NO 的脱除效果, 为进一步深入研究 NO 的脱除机理以及如何更有效合理的利用能源、提高 NO 的脱除效果打下基础。

本文介绍不同介质阻挡气体放电条件下 NO 脱除的规律。实验研究了 Al_2O_3 、 CaO 、 MgO 和玻璃不同阻挡介质下 NO 的脱除效果, 并在此基础上对不同阻挡介质对 NO 脱除效果的影响进行了理论分析。实验结果及理论分析表明, 不同的阻挡介质所形成的电场强度不同, 提供的能量不一样, 从而对 NO 的脱除具有不同的影响。

2 介质阻挡放电

2.1 介质阻挡放电的一般性质

介质阻挡放电是有绝缘介质插入放电空间的一种气体放电。介质可以覆盖在电极上或者悬挂在放电空间里, 这样, 当在放电电极上施加足够高的交流电压时, 电极间的气体, 即使在很高气压下也会被击穿而形成所谓的介质阻挡放电。这种放电表现为很均匀、漫散和稳定, 貌似低气压下的辉光放电, 但实际上它是由大量细微的快脉冲放电通道构成的。

介质阻挡放电是一种高气压下的非平衡放电。这种放电的击穿和其它放电的相似之处是在外电场作用下电子从电场中获得能量, 通过电子与周围原子分子碰撞, 电子把自身的能量转移给它们, 使它们激发电离, 产生电子雪崩。当气体间隙上的外电场电压超过气体的击穿电压时, 气体被击穿。在气压为 10^5 Pa 或更高的情况下, 这里气体的击穿会造成大量的电流细丝通道, 每一个通道相当于一个单个击穿或是流光击穿, 形成微放电。微放电是介质阻挡放电的核心。单个微放电是在放电气体间隙里某个位置发生, 同时在其它位置上也会产生另外的微放电。正是由于介质绝缘性质, 这种微放电能够彼此独立地发生在很多位置上, 当微放电两端的电压

收稿日期: 2002-11-10

基金项目: 国家重点基础研究专项经费基金资助项目(G199902209)

作者简介: 余 刚(1971—), 男, 湖北京山人, 东南大学博士后, 现在南京航空航天大学工作。All rights reserved. <http://www.cnki.net>

稍小于气体击穿电压时, 电流就会截止。在同一位置上只有当电压重新升高到原来的击穿电压数值时才会发生再击穿和在原地产生第二个微放电, 这样就会在放电的一个半周期内出现大量时间短促的电流脉冲群, 大量的微放电无规则地分布在整个放电时间和空间内。

介质阻挡放电通常工作在大气压强下, 是一种至少有一个电极被介质所覆盖的空间中所激励的非平衡态气体放电。这种放电仅能工作在交流电源的情况下, 当击穿电压超过 Paschen 击穿电压时, 大量随机分布的微放电就会出现在放电间隙中, 微放电持续 10 ns 左右, 其放电通道几乎是圆柱对称的。大多数的物理过程和化学过程都发生在微放电中。

2.2 介质阻挡放电的等效电路图

由于电极间介质层的存在, 介质阻挡放电的工作电压一定要是交变电压。根据交变电压的频率差异, 放电的特性有所不同。通常可以分为低频介质阻挡放电和高频介质阻挡放电两种, 前者的频率范围为 50 Hz ~ 10 kHz, 后者的频率为 100 kHz 以上。其等效电路图如图 1 所示。

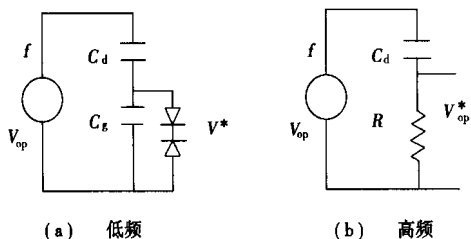


图 1 介质阻挡放电等效电路图

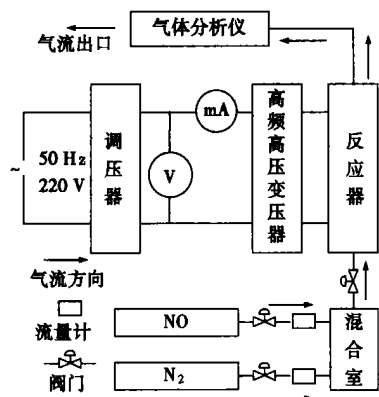


图 2 实验系统示意图

图中 C_d 是介质的电容量, C_g 是放电气隙的电容量, R 是放电的等效电阻。 V_{op} 是作用电压的峰值,

V^* 和 V_{op}^* 分别是低频和高频条件下回路中积分电流为零时的电压值。通常 C_g 远小于 C_d 。

3 实验

NO 与 N_2 按 $NO : N_2 = 1 : 10$ 的比例配比, 由各自的流量计调节流量, 经混合器混合后进入反应器反应, 反应器两端加经高频高压电源升压后的交变电压 (30 kHz, 10 kV)。气体在反应器中被气体放电等离子体净化处理后, 进入便携式气体分析仪 (德国 MRU 公司 SAE19) 进行分析, 数据结果如表 1 所示。实验系统示意图见图 2。

介质阻挡放电的放电景象如图 3 所示。

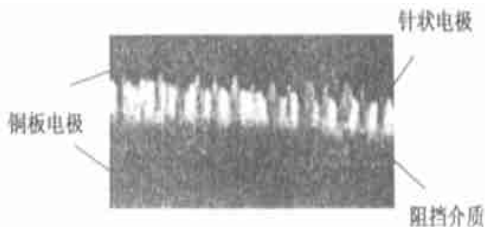


图 3 介质阻挡放电的放电景象

反应器采用两块铜板电极尖端放电的形式, 无尖端的铜板上放有电介质, 根据实验的需要将变换各种电介质材料。铜板与尖端之间距离为 2 mm。

实验中调压器示数保持在 60 V 不变, 高频变压器输出频率为 30 kHz, 电压峰值为 10 kV, 控制 NO 流量为 170 mL/min, N_2 流量为 100 L/h, 分别采用 Al_2O_3 、CaO、MgO 以及玻璃为阻挡电介质材料进行实验, 各放电时间为 15 min。

4 结果及分析

NO 脱除的反应动力学机理为^[2]:

从气体放电发射光谱测量结果分析, 以及由自洽场分子轨道从头计算法得到的 N_2 基态和激发态分子轨道的研究, 可以知道, NO 被脱除主要是通过基元反应 $e + N_2 \rightarrow N'_2(A^3\Sigma_u^+)$ 和 $e + N'_2(A^3\Sigma_u^+) \rightarrow 2N + e$ 和 $N + NO \rightarrow N_2 + O$ 进行的。因而, N_2 在气体放电状态下激发出活性 N 原子是 NO 还原的基础, NO 的脱除效率在很大程度上取决于活性 N 原子产生的多少。

实验结果见表 1 所示。

表1 不同电介质材料的脱硝率

| 电介质材料 | 介电常数 ϵ | 反应前浓度/ mL/m^3 | 反应后浓度/ mL/m^3 | NO脱除率/% | 电极两端电压值/kV | 电场强度 $E/\text{V}\cdot\text{m}^{-1}$ |
|--------------------------------|-----------------|-------------------------------|-------------------------------|---------|------------|-------------------------------------|
| 玻璃 | 5~10 | 371 | 202 | 45.55 | 10 | 4166.666.7~4545.454.5 |
| CaO | 11.8 | 373 | 195 | 47.72 | 10 | 4609.375 |
| MgO | 8.2 | 373 | 233 | 37.53 | 10 | 4456.521.7 |
| Al ₂ O ₃ | 12.6 | 376 | 194 | 48.4 | 10 | 4632.352.9 |

由以上实验数据分析可知:

(1) 采用 Al₂O₃ 为阻挡介质时的 NO 脱除率最大。

介质阻挡强电离放电间隙电场强度表达式如下:

$$E_g = \frac{V_m \epsilon_d}{2l_d \epsilon_g + l_g \epsilon_d} \quad (1)$$

其中: l_d 为覆盖在电极上的介质薄片的厚度; l_g 为放电间隙; ϵ_d 、 ϵ_g 为介质和放电间隙上的电容率; V_m 为电极上所加电压。

由式(1)可见, 只有增加外加峰值电压 V_m 和介电常数 ϵ_d , 减小放电间隙 l_g 和电介质厚度 l_d , 才有可能得到强的放电电场强度。

Al₂O₃ 的介电常数最大, 由式(1)分析可知增大介电常数将使电场强度增大, 数据见表1。

电介质层在此的作用可被认为是物理作用过程, 通过介电常数这一特质, 对电场强度产生物理影响, 高介电常数将形成高电场强度。

(2) 在非平衡态等离子体里电子所获得的能量可用以下式表征:

$$T_e = \frac{\sigma m_h E_g^2}{3kn_e m_e \nu_e} \quad (2)$$

式中: n_e 为电子浓度, m_e 、 m_h 分别为电子和重粒子的质量; k 为波尔兹曼常数; ν_e 为电子碰撞频率, E_g 为放电电场强度。由式(2)可看出, 等离子体中的电子从外加电场取得的能量与电场强度、气体浓度有关, 电场强度和气体浓度对等离子体中电子取得的能量大小起决定性作用, 本实验中气体在高气压(高浓度)条件下产生, 所以通过提高放电电场强度, 可得到高能量密度的大能量电子。

(3) 从外界放电电场获得能量的电子与气体分子发生非弹性碰撞时, 电子把能量转移给气体分子, 气体

被激活, 发生电子雪崩, 出现了相当数量的空间电荷, 从而使分子历经激发、电离或解离过程后产生新的激发态、亚稳态、游离粒子、活性基及各种离子、电子和光子, 为化学反应提供丰富的活性粒子, 形成大量的活性分子和自由基。电子能量越高, 所形成的活性分子和自由基就越多, 这些大量的活性分子和自由基与 NO 发生化学反应, 使得更多的 NO 被脱除。

5 结 论

在介质阻挡气体放电中, 电介质层的材料及加工工艺成为技术关键, 直接影响到放电过程的电场强度, 因此采用具有高强度、高密度、高绝缘度、高介电常数、高均匀度的电介质将有利于整个放电过程, 进而有利于提高 NO 脱除效率及能源的有效合理利用。

实验中 Al₂O₃ 电介质, 具有强度大、不损害和介电常数高等特点, 采用 Al₂O₃ 作电介质层将使整个放电电场强度增大, 从而形成大量高能量的电子, 在这些高能电子的碰撞作用下, 更多的活性分子和自由基生成, 这些活性分子及自由基与 NO 发生化学反应, 提高了 NO 脱除效率。

参考文献:

- [1] YAN ZHENG, YU GANG, GU FAN, *et al.* The summarization of the removal of SO₂ and NO_x by plasma[J]. *Research and Utilization of Energy*, 2001, 3: 31-34.
- [2] YU GANG. A study on the NO removal mechanism through the plasma reaction of NO/N₂ system[J]. *Journal of Engineering Thermophysics* 2003 24(2): 354-356.
- [3] MASUDA S. Pulse corona induced plasma chemical process a horizon of new plasma a chemical technologies[J]. *Pure & Appl Chem*, 1988, 60: 727-731.
- [4] XU XUE-JI, ZHU DING-CHANG. *Physics of gas discharge*[M]. Shanghai: Fudan University press, 1996.
- [5] YANG JIN JI. *Gas discharge*[M]. Beijing: Science Press, 1983.
- [6] PENETRANTE B M. Comparison of electrical discharge techniques for nonthermal plasma processing of NO in N₂[J]. *IEEE Transactions on Plasma science*, 1995, 23(4): 679-687.
- [7] CHANG J S. Corona discharge processes[J]. *IEEE transactions on plasma science*, 1991, 19(6): 1152-1166.

(辉 编 辑)

增湿活化脱硫反应器内流动、蒸发与碰撞过程数值计算 = **Numerical Calculation of the Process of Flows, Evaporation and Collision in a Desulfurization Reactor Activated through Humidification** [刊, 汉] / WU Shu-zhi, ZHAO Chang-sui, DUAN Yu-feng, et al (Education Ministry Key Laboratory on Clean Coal Power Generation and Combustion Technology under the Southeastern University, Nanjing, China, Post Code: 210096) // Journal of Engineering for Thermal Energy & Power. — 2003, 18(5). — 471 ~ 474

Model study methods and numerical calculation results are described of the process in an activated (through spray water humidification) desulfurization reactor concerning the following: gas phase flows, water drop motion and evaporation, collision of water drops with particles of desulfurizing agents, as well as serious drops formed after the collision. The numerical simulation of a gas-phase turbulent flow model was conducted by the use of a $k-\epsilon$ dual-equation model. Water-drop motion and evaporation model was respectively simulated with the use of a random trajectory model and a water-drop evaporation model after a Ranz-Mashall modification. The collision between water drops and particles of desulfurizing agent was simulated by way of an inertia sedimentation model. The results of the numerical calculation indicate that the gas-phase velocity field in the activated reactor has evolved to a fully developed zone of turbulent flows. The atomized water drops injected into the reactor and the serious drops formed have completely evaporated within a short distance. The capture of desulfurizing agents mainly occurred in a section not far behind the location where water drops have been injected, followed by a drastic reduction of the capture efficiency. **Key words:** desulfurization, numerical simulation, evaporation, collision

介质特性对介质阻挡放电脱除 NO 影响试验研究 = **Experimental Research on the Impact of Dielectric Characteristics on NO Removal by a Dielectric-barrier Discharge** [刊, 汉] / YU Gang, GU Fan, XU Yi-qian, et al (Education Ministry Key Laboratory on Clean Coal Power Generation and Combustion Technology under the Southeastern University, Nanjing, China, Post Code: 210096) // Journal of Engineering for Thermal Energy & Power. — 2003, 18(5). — 475 ~ 477

The impact of dielectric characteristics on NO removal is studied under the presence of dielectric-barrier discharge plasma. First, a NO removal test system with the use of the dielectric-barrier discharge plasma was set up. An experimental study was conducted of the NO removal efficiency by using various dielectrics, such as Al_2O_3 , CaO, MgO and glass, etc. Then, a theoretical analysis was performed of the mechanism of such an impact. The results of experiment and theoretical analyses indicate that the electric field intensity of gas discharge formed by various barrier dielectrics are different with the energy provided to activated particles also being different. This results in a different influence on the NO removal rate. **Key words:** NO, dielectric-barrier discharge, dielectric constant, plasma

非对称渐开线直齿轮齿廓设计与有限元分析 = **Tooth Profile Design for and Finite Element Analysis of Asymmetrical Involute Spur Gears** [刊, 汉] / JIANG Li-dong, CHANG Shan, SHI Yu-quan, et al (Harbin No. 703 Research Institute, Harbin, China, Post Code: 150036) // Journal of Engineering for Thermal Energy & Power. — 2003, 18(5). — 478 ~ 481

Asymmetrical involute spur gears have different pressure angles on the drive side and coast side. A rational design of the tooth profile of such gears can lead to an increase in gear load capacity, a reduction in noise and vibration levels and a significant enhancement in bending strength. The authors have developed tooth-profile equations for the above-mentioned spur gears and relevant computer programs with calculation examples being given. In addition, a three-dimensional solid model of the spur gears was set up and a finite element analysis of the latter performed. **Key words:** asymmetrical involute spur gear, tooth profile design, finite element analysis

闭式内可逆中冷回热布雷顿循环的功率优化 = **Power Optimization of a Closed Brayton Cycle with Endo-reversible Intercooling and Regenerative Heating** [刊, 汉] / WANG Wen-hua, CHEN Lin-gen, SUN Feng-rui (Department of Nuclear Energy Science and Engineering, Naval Engineering University, Wuhan, China, Post Code: 430033) // Journal of Engineering for Thermal Energy & Power. — 2003, 18(5). — 482 ~ 485