脉冲电晕放电烟气脱硫的影响因素

李杰,吴彦,王宁会,李国锋,张彦彬(大连理工大学静电与特种电源研究所,大连 116024)

摘要: 脉冲放电脱硫反应器电极结构采用线-板式电极, 正极性窄脉冲高电压供电, 试验烟气流量为 $1000 \sim 3000 \text{m}^3/\text{h}$. 主要研究了脉冲放电脱硫的运行参数对脱硫效果的影响, 目的是为脉冲放电烟气脱硫工业应用提供科学依据. 得出的试验结果: 烟气中 SO_2 浓度在 $1000 \sim 2000 \text{ml/m}^3$ 范围内, 烟气温度在 60° $\sim 80^{\circ}$ 范围内, 氨加入量按摩尔比 NH_3 : SO_2 = 2 · 1 加入,能耗 $3 \sim 5$ W ° h / Nm^3 · SO_2 脱除率达到 80% 以上.

关键词: 脉冲电晕放电: 脱硫: 运行参数

中图分类号: X701. 3 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2001)05-03-0038

The Influence Factors of SO₂ Removal in Flue Gas with a Pulsed Corona Discharge

Li Jie, Wu Yan, Wang Ninghui, Li Guofeng, Zhang Yanbin (Institute of Electrostatics & Specific Power, Dalian University of Technology, Dalian 116024, China)

Abstract The influence of the operation parameters on SO_2 removal rate with a pulsed corona discharge was studied in this paper, in order to promote the industrial applications of this technology. The flow rate of the flue gas was $1000 \sim 3000 \text{ m}^3/\text{h}$. The SO_2 removal rate reached 80%. The range of SO_2 concentration in flue gas was $1000 \sim 2000 \text{ m}/\text{m}^3$. The flue gas temperature was $60\,^{\circ}\text{C} \sim 80\,^{\circ}\text{C}$. The molecule ratio of NH_3 to SO_2 was 2. The energy consumption was $3 \sim 5\,\text{W}\,^{\circ}\text{h}/\text{Nm}^3$. The wire-plane electrode structure and a positive high voltage pulse power supply were used in the experiment.

Keywords: pulsed corona discharge; SO₂ removal; operation parameters

脉冲电晕放电脱硫脱硝自日本增田闪一教授^[1]提出后,被广泛的研究,并在实验室里得到一些好的结果^[2~3].该种烟气脱硫方法是属干法,与湿式石灰石石膏法相比,具有投资少和占地面积小,没有二次污染,产物可作为农用化肥回收利用,可实现同时脱硫脱硝,并可与除尘相结合等优点.日本、意大利等国家虽然进行这方面的研究工作,但他们的实验规模比较小,且能耗比较高.笔者在原有研究的基础上,设计了1000~3000 m^3 /h 脱硫反应器、15kW 火花隙式脉冲高压电源^[3],进行了大量的试验研究,得到一些试验结果.本文对1000~3000 m^3 /h 脱硫效果的影响因素进行试验研究.

1 脉冲电晕放电脱硫原理

脉冲电晕放电烟气脱硫的主要工作原理是利用高压脉冲放电产生非平衡等离子体中的高能电子($5\sim20 \,\mathrm{eV}$)。与中性的气体分子如 0_2 、 H_2O 、 N_2 等发生非弹

性碰撞。产生一些具有氧化性强的自由基和活性分子如 $0.0H_1HO_2.O_3.O_2^*.N_2^+.N_2^*$ 等,它们再与 SO_2 分子碰撞,引发化学反应,在有 NH_3 存在的条件下,生成 $(NH_4)_2SO_4$. 其可能发生的化学反应如下:

$$O_2 N_2, H_2O + e \rightarrow O, OH, HO_2 O_3 \cdots$$

 $SO_2 + O \rightarrow SO_3$
 $SO_2 + OH \rightarrow HSO_3$
 $SO_2 + HO_2 \rightarrow SO_3 + OH$
 $HSO_3 + O_2 \rightarrow SO_3 + HO_2$
 $SO_3 + H_2O \rightarrow H_2SO_4$
 $2N H_3 + SO_2 + H_2O \rightarrow (NH_4)_2SO_3$
 $2N H_3 + SO_3 + H_2O \rightarrow (NH_4)_2SO_4$

基金项目: 国家"九五"重点科技攻关项目(96-910-02-01). 作者简介: 李杰(1964~), 男, 在职博士研究生, 副教授. 现主 要从事利用非热等离子体去除有害气体的研究工作.

| 地稿日期:2001701-09 | All rights reserved. http://www.cnl

 $(NH_4)_2SO_3 + O \rightarrow (NH_4)_2SO_4$

 $(NH_4)_2SO_3 + 2OH \rightarrow (NH_4)_2SO_4 + H_2O$

 $(NH_4)_2SO_4$ 是固态颗粒物,可通过收集器进行副产物收集,由此来达到脱除烟气中 SO_2 的目的.

2 试验装置及参数测试

脉冲电晕放电烟气脱硫工艺流程见图 1 所示,即烟气首先经过电除尘器去除烟气中的粉尘,再经过热交换器降低烟气温度,然后再进入到脉冲电晕放电反应器,经过反应器处理的烟气进入产物回收装置. 氨气是在反应器的入口处加入.

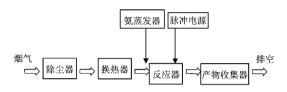


图 1 脱硫系统流程图

Fig. 1 System of desulfuration

脉冲电晕放电反应器电极结构如图 2 所示, 是线板式电极结构, 多通道并联, 每个通道宽 200mm, 长 3m, 反应器的高和宽均为 1m, 其电晕放电线是采用 4×4mm 的星型线, 板电极厚度为 1.5 mm. 脉冲高压电源采用旋转火花隙开关式电源³, 在反应器上测得的电压波形和电流波形见图 3.

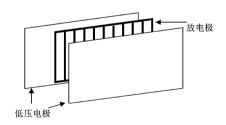


图 2 电极结构简图

Fig. 2 Schematic of electrode structure

烟气中 SO₂ 浓度测试采用 SOA-7000 型分析仪(日本岛津公司制), 温度采用热偶式温度测试仪测试, 烟气流量采用大气采样器测试. 电参数采用 EP-100K 电压探头(日本脉冲电子公司制)、TM502A 电流探头(美国泰克公司制)和 HP54810A 型数字存储示波器(美国惠普公司制)进行测试, 并计算出消耗的能量.

3 脱硫试验结果及讨论

3.1 烟气流量对脱硫效果的影响

烟气流量是脱硫反应器处理能力的一个指标. 本试验条件: SO₂ 初始浓度为 1650. ml/ m³, 烟气温度为

62 °C, 烟气含水量为 7.1%,脉冲能量消耗为 3.2 W° h/Nm³, 氨量是按摩尔比 N H₃ 'SO₂= 2·1 注入到烟气中,试验结果见图 4. 由图 4 曲线可知,在注入功率一定的条件下,SO₂ 脱除率随烟气量的增加而减少. 原因是烟气量增加,烟气在反应器中的停留时间减少,SO₂ 分子和自由基之间相互碰撞的概率少,导致 SO₂ 被氧化的分子数减少,脱硫率降低. 在本试验条件下,烟气量在1870 Nm³/h 时,此时烟气在反应器的停留时间约为 5.68 SO₂ 脱除率达到 80% 以上.

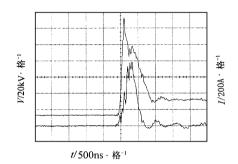


图 3 脉冲放电波形

Fig. 3 Waveforms of pulse discharge

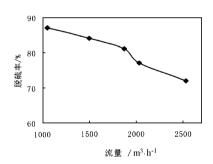


图 4 烟气量与脱硫效果的关系

Fig. 4 Flue gas flow VS de-SO₂ efficiency

3.2 烟气温度对脱硫效果的影响

表 1 给出温度对脉冲电晕放电引发的脱硫反应的影响. 本试 验条件 分别为 $1050 \, \mathrm{Nm}^3 / \, \mathrm{h} \cdot 1650 \, \, \mathrm{ml/m}^3 \cdot 5.1 \, \mathrm{W} \cdot \, \mathrm{h/Nm}^3 , \ 1458 \, \mathrm{Nm}^3 / \, \mathrm{h} \cdot 1570 \, \, \mathrm{ml/m}^3 \cdot 3.6 \, \mathrm{W} \cdot \, \mathrm{h/Nm}^3 , \ 1960 \, \, \mathrm{Nm}^3 / \, \mathrm{h} \cdot 1587 \, \, \mathrm{ml/m}^3 \cdot 2.7 \, \mathrm{W} \cdot \, \mathrm{h/Nm}^3 . \, \mathrm{d} \mathrm{at} \, 1$ 数据可知, 温度升高, SO_2 脱除率降低. 原因是由于温度对脱硫反应及产物成分有影响 $^{[6]}$, 温度升高, 对脱硫不利.

3.3 初始浓度对脱硫效果的影响

本试验条件: 烟气量 $1480 \text{Nm}^3/\text{h}$,烟气温度 62 °C,烟气含水量 4.5%,注入到反应器的电功率为 5250 W, 氨量是按摩尔比NH₃:SO₂= 2:1注入到烟气中,初始

表 1 烟气温度对脱硫效果的影响

Table 1 Influence of gas temperature on SO₂ removal

烟气量/ Nm 3 °h -1	温度/ ℃	脱硫率/ %
1050	61	87
1050	72	81
1485	65	84
1485	72	71
1960	73	82
1960	79	69

浓度对脱硫效果影响的试验结果见图 5. 由图 5 曲线可知,在注入功率一定的条件下, SO_2 初始浓度升高, SO_2 脱除率下降. 原因是 SO_2 初始浓度升高,烟气中 SO_2 分子增加,但是,自由基数量基本不变,导致 SO_2 脱硫率降低.

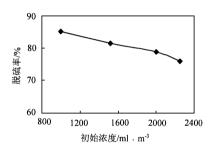


图 5 初始浓度与脱硫效率的关系

Fig. 5 Relation of the pre-concentration and De-SO₂ efficiency

3.4 氨硫比对脱硫效果的影响

表 2 给出氨硫比对脱硫效果影响的试验结果. 试验条件为 $1517 \, \mathrm{Nm}^3 / \, \mathrm{h}$ 、 $1640 \, \mathrm{ml/m}^3$ 、 $62 \, ^{\circ} \mathrm{C}$ 、 $3.5 \, \mathrm{W} \, ^{\circ} \, \mathrm{h} / \, \mathrm{Nm}^3$, $2000 \, \mathrm{Nm}^3 / \, \mathrm{h}$ 、 $1750 \, \mathrm{ml/m}^3$ 、 $71 \, ^{\circ} \mathrm{C}$ 、 $2.6 \, \mathrm{W} \, ^{\circ} \, \mathrm{h} / \, \mathrm{Nm}^3$. 试验结果表明, 在相同条件下, 脱硫率随着加氨量的增加而提高. 因此, 考虑到脱硫效果和氨的作用 2 方面因素, 在实际应用过程中, 加氨量保证脱硫效果的同时, 适当地减少氨的注入量, 一般 NH_3 和 SO_2 摩尔比不高于 2 · l ,以提高氨的脱硫作用和减少尾气中氨的排放量.

3.5 放电能量对脱硫效果的影响

表 3 给出脉冲电晕放电能量对脱硫效果影响的结果. 试验条件为 $1060\,\mathrm{Nm^3/h}$, $2000\,\mathrm{ml/m^3}$, $61\,^{\circ}\mathrm{C}$, $1550\,\mathrm{m^3/h}$, $1640\,\mathrm{Nml/m^3}$, $62\,^{\circ}\mathrm{C}$, $2050\,\mathrm{Nm^3/h}$, $1560\,\mathrm{ml/m^3}$, $72\,^{\circ}\mathrm{C}$. 氨量是按摩尔比 $\mathrm{NH_3}$: $\mathrm{SO_2}=2$:1 注入到烟气中. 从表 3 数据可知 脱硫率随单位烟气量注入功率的增加而提高. 原因是能量增加 脉冲电晕放电产生自由基等活性物种增加,氧化 $\mathrm{SO_2}$ 分子数增加,导致脱硫率增加.

表 2 氨硫比对脱硫效果的影响结果

Table 2 Influence of molecule ratio(NH₃ *SO₂) on the desulfuration effect

烟气量	NH3量	NH ₃ 'SO ₂	脱硫率
/ Nm $^{3\circ}$ h $^{-1}$	$/ \mathrm{Nm}^{3} \circ \mathrm{h}^{-1}$	(mol:mol)	/ %
1517	2. 3	1. 2:1	58
1517	3. 1	1. 6:1	74
1517	3. 9	2:1	88
2000	3. 4	1. 2:1	56
2000	4. 6	1. 6:1	71
2000	5. 8	2:1	82

表 3 放电能量对脱硫效果的影响

Table 3 Influence of discharge energy on the De-SO₂ efficiency

烟气量	含水量	能耗	脱硫率
$/\mathrm{Nm}^3 \cdot \mathrm{h}^{-1}$	/ %	$/ W^{\circ} h^{\circ} N m^{-3}$	/ %
1060	4. 5	2. 1	72
1060	4. 5	4. 8	79
1550	6. 1	1. 8	76
1550	6. 1	3. 9	85
2050	7. 1	2. 5	73
2050	7. 1	2. 9	79
2050	7. 1	3. 5	80

4 结论

(1)烟气中 SO_2 浓度 $1000 \sim 2000 \text{ m/m}^3$,烟气温度 $60^{\circ}\text{C} \sim 80^{\circ}\text{C}$,氨加入量按摩尔比 $NH_3:SO_2=2:1$ 加入,能耗 $3\sim 5$ W° h/ Nm^3 , SO_2 脱除率达到 80%.

(2)本研究为脉冲放电等离子体烟气脱硫技术的 工业应用提供了科学依据.

参考文献:

- 1 Masuda S, Wu Y, Urabe U and Ono Y. Pulse induced plasma chemical process for DeNO_x and mercury vapor control of combustion gases, proc. 3rd Int. Conf. On Electrostatic Precitation, Abano, Italy: October 1987, 667 ~ 676.
- Dinelli G, Rea M. Pulse power electrostatic technologies for the control of flue gas emissions. Journal of Electrostatics, 1990, 25: 23 ~ 40.
- Mizuno A, Sidney elements J, Davis R H. A method for the removal of sulfur dioxide from exhaust gas utilizing pulsed streamer corona for electron energization. IEEE Transaction on Industry Applications, 1986, 22(3): 516 ~ 521.
- 4 Chang J S, A Phil Toshiaki Yamamoto. Corona Discharge Processes. IEEE Transactions on Plasma Scinece 1991, 19 (6): 1152~1166.
- 5 Wu Yan, Wang Ninghui, Zhu Yimin, Zhang Yanbin. S $\rm O_2$ removal from industrial flue gases using puked corona dis-

charge. Journal of Electrostatics, 1998, 44: 11 ~ 16. nic Publishing House. All rights reserved. http://www.cnl