

# 介质阻挡放电去除 NO 的实验研究

赵文华, 张旭东 (清华大学工程力学系, 北京 100084)

**摘要:** 设计了一套高压电源和同轴圆柱-筒介质阻挡放电反应器装置, 进行了冷等离子体去除 NO 的实验研究, 结果表明该方法是有用的。研究了气体流量、NO 初始浓度、放电电压、O<sub>2</sub> 含量以及中心电极尺寸对 NO 去除效率的影响。当流量较小或 NO 初始浓度较低时, 有较高的去除率; 流量变大和 NO 初始浓度增加时, NO 的去除率将下降。放电电压升高, NO 去除率将增大。O<sub>2</sub> 的存在会降低 NO 的去除率。放电管其它特征尺寸给定条件下, 中心电极存在一个最佳直径, 使得 NO 的去除效果最为理想。

**关键词:** 介质阻挡放电; 冷等离子体; NO 去除

## The experimental research of NO removal with the dielectric barrier discharge non-thermal plasma

ZHAO Wenhua, ZHANG Xudong (Department of Engineering Mechanics Tsinghua University, Beijing 100084)

**Abstract:** A set of experimental setup of the high voltage power and coaxial cylinder tube dielectric barrier discharge reaction vessel is designed to investigate NO removal with non-thermal plasma produced by barrier discharges. The method is proved to be effective. The influences of the gas flow rate, NO initial concentration, applied voltage, contents of O<sub>2</sub> and the diameter of the central electrode on the NO removal rate are also investigated respectively. The NO removal rate is high at small gas flow rate or low NO initial concentration, while it will decrease remarkably with the gas flow rate or NO initial concentration increasing. Moreover, the removal rate will increase with the discharge voltage increasing. The existence of O<sub>2</sub> can lead to the decreasing of the NO removal rate. The diameter of the central electrode will also influence the NO removal rate, and when the other conditions are given, the optimal NO removal rate can be obtained through the optimization of the diameter of the central electrode.

**Keywords:** dielectric barrier discharge; non-thermal plasma; NO removal

汽车排气现已成为继煤烟之后城市主要的污染源, 控制汽车排气污染成为各国竞相研究的重要课题。目前, 有许多种汽车尾气排放控制的技术, 如废气再循环(EGR)、燃油添加剂、附加催化反应装置等, 这些技术各有优缺点。相比 CO 和 HC, NO<sub>x</sub> 的去除更为困难<sup>[1]</sup>。因此有待研究能够高效去除 NO<sub>x</sub> 的新技术。作为一种独特的方法, 近些年来, 冷等离子体(non-thermal plasma)在空气污染净化, 尤其是 NO<sub>x</sub> 去除方面的应用逐渐引起了人们的重视<sup>[2]</sup>。产生冷等离子体的方法有多种, 例如电晕放电、介质阻挡放电等。这两种方法所用设备均非常简单, 具有实用价值。本文设计了一套工频高压电源和同轴圆柱-筒电极介质阻挡放电装置, 对介质阻挡放电去除 NO (汽车尾气中 NO<sub>x</sub> 的 80% 是 NO<sup>[3]</sup>) 进行了初步的研究。

### 1 实验系统

实验系统如图 1 所示。整个系统可以分为 4 部分: 供气系统、电源及其控制系统、放电管反应器与气体检测系统。供气系统包括 NO 标准气气瓶(9.9%NO+N<sub>2</sub>)和 N<sub>2</sub>/O<sub>2</sub> 混合气气瓶(99.5%N<sub>2</sub>+0.5%O<sub>2</sub>)(研究 O<sub>2</sub> 含量对 NO 去除的影响除外), 以及配套的流量调节装置。调节

收稿日期: 2003-02-24; 修订日期: 2003-05-29

作者简介: 赵文华(1938-), 男, 教授, zhaowh@tsinghua.edu.cn

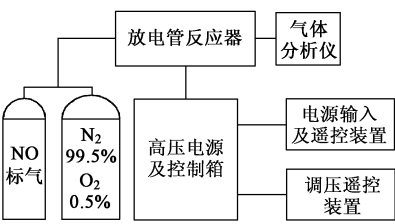


图1 实验系统示意图

Fig. 1 Schematic diagram of the experimental system

两种混合气的流量,可得到不同 NO 浓度的 NO /N<sub>2</sub>/O<sub>2</sub> 混合气体.实验所用的电源由以下几部分组成:电源控制箱、1 : 250 升压变压器、电源输入遥控装置以及调压遥控装置.电源控制箱将输入的工频(50 Hz)电经调压后输入变压器,同时显示电压及电流信号.当回路中电流超过设定值时,控制箱自动切断电源.为安全和操作方便起见,电源开关和电压调节均采用遥控装置进行操作.

放电管反应器结构如图 2 所示.管外层均匀包裹一层锡箔,和高压电源的地端相连.处理后的气体经出气口和

管路相连排出,接受气体分析仪器检测.

放电区长度(即为锡箔层接地电极的长度): $L=250\text{ mm}$ .中心电极直径 $D_1=14.8\text{ mm}$ (研究中心电极直径对 NO 去除的影响除外).石英玻璃管介质层内径 $D_2=20.0\text{ mm}$ .

采用 KM900 型便携式烟气分析仪来分析气体组分.该仪器可自动分析混合气体中的多种组分(如 N<sub>2</sub>、O<sub>2</sub>、NO、NO<sub>x</sub>、SO<sub>x</sub> 等)的含量.

2 实验结果

采用上述系统进行了初步实验,混合气体经过放电处理后,NO 浓度会降低.对放电处理后的混合气体进行成份分析,其成份仍然是 N<sub>2</sub>、O<sub>2</sub> 和 NO.说明冷等离子体去除 NO 的反应产物主要是 N<sub>2</sub> 和 O<sub>2</sub>,这和文献<sup>[4]</sup>中给出的冷等离子体还原 NO 的机理是相一致的.

在此基础上,本文进一步研究了气体流量、NO 初始浓度、施加电压、O<sub>2</sub> 含量以及中心电极直径对 NO 去除效果的影响.为叙述方便,定义如下符号:混合气体流量: $Q(\text{m}^3/\text{h})$ ;NO 初始浓度: $C_{\text{in}}(10^{-6})$ ;NO 残余浓度: $C_{\text{out}}(10^{-6})$ ;NO 去除率: $\eta=\frac{C_{\text{in}}-C_{\text{out}}}{C_{\text{in}}}\times 100\%$ .

2.1 气体流量和 NO 初始浓度对去除率的影响

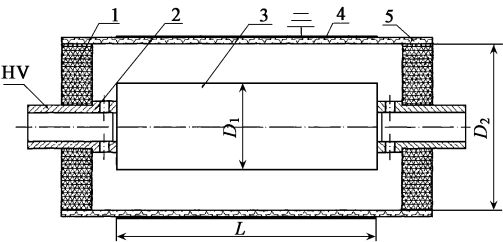
中心电极施加电压固定( $U=16\text{ kV}$ ),改变混合气体流量( $Q=0.05,0.06,0.08,0.10,0.12,0.15,0.20,0.25\text{ m}^3/\text{h}$ ),在不同 NO 初始浓度( $C_{\text{in}}=100\times 10^{-6},200\times 10^{-6},300\times 10^{-6},400\times 10^{-6},500\times 10^{-6},600\times 10^{-6}$ )下进行实验.结果见图 3.从图 3 看出,流量较小、NO 初始浓度较低的情况下,均可取得比较好的去除效果.

2.2 电压对去除率的影响

给定初始浓度 $C_{\text{in}}=400\times 10^{-6}$ ,在不同混合气体流量下改变中心电极电压进行了实验.结果如图 4 所示.实验发现,当中心电极电压 $U$ 升至 $6.5\text{ kV}$ 时,放电管排出的混合气的 NO 浓度突然减小.电压增加,NO 去除率随之增加.

2.3 O<sub>2</sub> 对 NO 去除率的影响

固定混合气体流量( $Q=0.1\text{ m}^3/\text{h}$ )(加入 O<sub>2</sub> 后的流量)情况下,在不同 NO 入口浓度 $C_{\text{in}}$ 下,



1. 绝缘塞子 2 进(出)气口 3 中心电极  
4 接地电极 5 石英玻璃套管

图2 同轴圆柱-筒电极介质阻挡放电管反应器结构图

Fig. 2 Schematic of coaxial cylinder-tube electrode dielectric barrier discharge reaction vessel

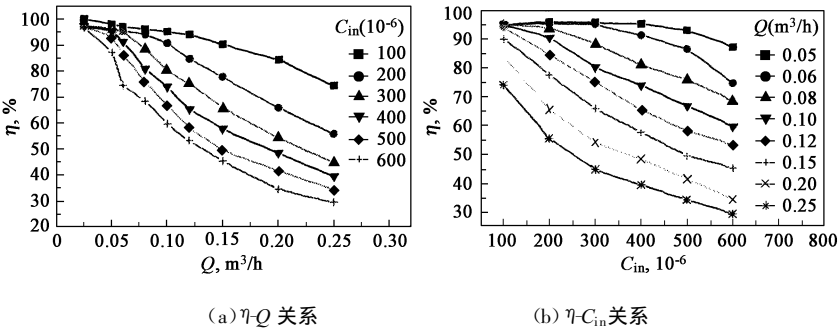


图 3 NO 初始浓度和混合气体流量对 NO 去除率的影响

Fig. 3 Influences on the NO removal rate of NO initial concentration and gas flow rate

加入不同比率的  $O_2$  (2%、4%、6%、8%), 进行实验. 结果如图 5 所示. 从图中可以看出,  $O_2$  的加入会导致相同情况下 NO 去除率降低,  $O_2$  加入的量越多, 去除率降低得也越多. 当  $O_2$  含量达到 8% 时, NO 去除率降低不到 10%.

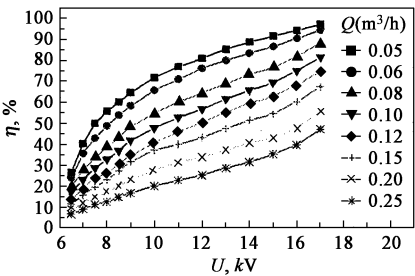


图 4  $C_{in}=400 \times 10^{-6}$  时不同流量下 NO 去除率随中心电极电压的变化关系

Fig. 4 Curves of  $\eta$ - $U$  at different gas flow rates and  $C_{in}=400$  ppm

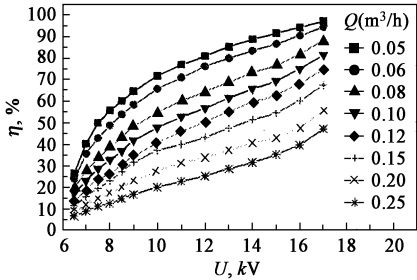
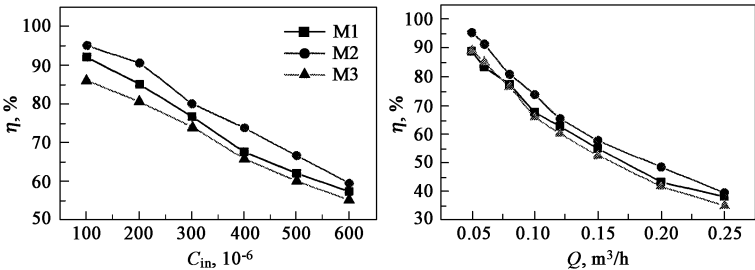


图 5  $Q=0.1 \text{ m}^3/\text{h}$  不同  $O_2$  含量下的  $\eta$ - $C_{in}$  曲线

Fig. 5 Curves of  $\eta$ - $C_{in}$  with different  $O_2$  contents at  $Q=0.10 \text{ m}^3/\text{h}$

2.4 中心电极直径对去除率的影响

保持放电管其它特征参数不变, 采用 3 支直径分别为 12 mm (M1)、14.8 mm (M2) 与 16 mm (M3) 的不同中心电极, 进行了 2 组实验. 图 6(a) 是混合气体流量一定 ( $Q=0.10 \text{ m}^3/\text{h}$ ) 时, NO 去除率随初始浓度的变化曲线. 图 6(b) 是 NO 初始浓度一定 ( $C_{in}=400 \times 10^{-6}$ ) 时, 去除率随混合气体流量的变化曲线. 实验结果显示, 中心电极直径变化对 NO 的去除有着显著的影响. 采用 M2 电极时 NO 的去除率在 3 种情况里最高, 这说明在放电管其他特征参数给定的条件下, 中心电极直径既非



(a)  $Q=0.10 \text{ m}^3/\text{h}$  的  $\eta$ - $C_{in}$  关系

(b)  $C_{in}=400 \times 10^{-6}$  的  $\eta$ - $Q$  关系

图 6 中心电极直径对 NO 去除率的影响

Fig. 6 Influences on the NO removal rate of the diameter of the central electrode

越大越好, 也非越小越好, 存在一个最佳值, 使得 NO 的去除率最高.

### 3 分析与讨论

根据冷等离子体去除 NO 的反应机理<sup>[4]</sup>, 可知放电生成的高能电子数密度的大小对 NO 的去除效果有关键性的影响. 更深入的研究<sup>[5]</sup>指出, 对于介质阻挡放电管去除 NO 的情形, 影响去除率的还有 2 个关键因素: 气体在放电管内的停留时间与有效的放电时间. 气体的流量越小, 在放电管内的停留时间越长, 去除 NO 的反应发生得也就越多, 从而 NO 的去除率就越高.

文献<sup>[6]</sup>指出, O<sub>2</sub> 的加入会降低放电产生的高能电子数的密度, 这将导致 NO 去除率的降低. 除去外界加入的 O<sub>2</sub>, NO 被还原后生成的 O<sub>2</sub> 同样也会影响高能电子数的密度. NO 初始浓度越高, 反应生成的 O<sub>2</sub> 的浓度也越高, 因而 NO 去除率也越低. 对于介质阻挡放电进行数值模拟的结果表明<sup>[7]</sup>, 尽管外加电压在一个较大范围内变化, 但放电时由于空间电荷的屏蔽作用, 放电间隙内的电场强度基本保持不变, 也就是说, 电压的变化对高能电子数密度没有太大的影响. 但由于在交变电压变化的整个周期内, 并不都在放电<sup>[8]</sup>, 只有当施加电压达到起始击穿电压时, 才开始放电, 而当施加电压达到峰值电压时, 放电截止. 因此在一个周期内, 只有部分时间发生去除 NO 的反应. 施加电压提高, 将延长有效的放电时间, 从而会提高 NO 的去除效率. 中心电极直径的变化会影响起始击穿电压<sup>[9]</sup>, 进而影响有效的放电时间. 中心电极直径越大, 起始放电电压越低, 电源变化的一个周期内有效放电时间越长, 有助于提高 NO 的去除效率; 但同时, 气隙的截面积随着中心电极直径的增大而减小, 气体在放电管内的停留时间缩短了. 因此, 不需改变其他条件, 选择合适直径的中心电极, 即可使得 NO 的去除效率达到最佳.

### 4 结论

(1) 混合气体的流量以及 NO 的初始浓度对 NO 的去除有着明显的影响. 流量较小和初始浓度较低时, 可以达到很好的去除效果. 流量和初始浓度增加, NO 去除率都将下降. (2) 放电电压对 NO 去除率有显著的影响. 电压越高, 去除率越大. (3) O<sub>2</sub> 的存在会降低 NO 的去除率, O<sub>2</sub> 含量越高, NO 的去除率越低. (4) 保持其他条件不变, 改变中心电极的直径对 NO 的去除率也有影响. 中心电极直径存在一最佳值, 使得放电管去除 NO 的效率最高.

参考文献:

- [1] Sawyer R F, Harley R A, Cadle S H, *et al.* Mobile sources critical review; 1998 NARSTO assessment[J]. *Atmospheric Environment*, 2000, 34: 2161—2181
- [2] Hacham R, Akiyama H. Air pollution control by electrical discharges[J]. *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, 2000, 7(5): 654—683
- [3] Fujii Tomio, Rea Massimo. Treatment of NO<sub>x</sub> in exhaust gas by corona plasma over water surface[J]. *Vacuum*, 2000, 59: 228—235
- [4] Gal A, Kurahashi M, Kuzumoto M. An energy-consumption and byproduct-generation analysis of the discharge non-thermal plasma chemical NO-reduction process[J]. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 1999, 32: 1163—1168
- [5] 张旭东. 介质阻挡放电冷等离子体去除 NO 的研究[D]. 北京: 清华大学, 2003
- [6] 王文春, 吴彦, 李学初, 等. NO, N<sub>2</sub> 气体中电源放电高能电子密度分布的光谱实验研究[J]. *环境科学学报*, 1998, 18(1): 51—55
- [7] Penetrante Bernie M, Hsiao Mark C, Mernitt Bernard T, *et al.* Comparison of electrical discharge techniques for non-thermal plasma processing of NO in N<sub>2</sub>[J]. *IEEE Transactions on Plasma Science*, 1995, 23(4): 679—687
- [8] 徐学基, 诸定昌. 气体放电物理[M]. 上海: 复旦大学出版社, 1995, 309—335