

02;04;12

©1993

## УДАЛЕНИЕ ОКИСЛОВ СЕРЫ В НЕСАМОСТОЯТЕЛЬНОМ ОБЪЕМНОМ РАЗРЯДЕ

*Д.Л.Кузнецов, Ю.Н.Новоселов, М.Ю.Старовойтов*

Применение импульсных электрических разрядов для удаления токсичных окислов серы и азота из воздуха является одним из перспективных подходов для создания электрофизической технологии очистки дымовых газов тепловых электростанций [1,2]. Удаление окислов происходит в ионизованном с помощью разрядов газе в результате протекания комплекса плазмохимических реакций с участием свободных радикалов и заряженных частиц. Конечным продуктом являются соответствующие кислоты, либо (при добавлении аммиака) соли аммония.

Основное внимание при исследовании электроразрядных процессов очистки уделяется импульсной стримерной короне и барьерному разряду [2]. Показано, что при относительно небольших затратах мощности  $\sim 10\text{--}12 \text{ Вт/м}^3$  возможна очистка воздуха от  $\text{SO}_2$  и  $\text{NO}_x$  до 80–95 %, при этом затраты энергии на удаление одной токсичной молекулы, например  $\text{SO}_2$ , составляют 8–12 эВ/мол. В то же время использование импульсных электронных пучков с оптимальной плотностью тока позволяет снизить эту величину до 1.0 – 0.7 эВ/мол [3,4]. Одной из причин столь значительного различия, на наш взгляд, может быть существенная пространственная неоднородность ионизации газа контрагированными нитевидными каналами в случае стримерных или барьерных разрядов. В связи с этим представляет интерес исследование объемных разрядов, в частности, несамостоятельных, инициируемых электронным пучком. В настоящем сообщении приведены результаты экспериментов по очистке воздуха от примесей  $\text{SO}_2$  в несамостоятельном разряде, горящем в режиме без ионизационного размножения.

Для инициирования разряда использовался малогабаритный ускоритель электронов "РАДАН" [5], генерирующий пучок с энергией электронов  $\sim 180 \text{ кэВ}$ , током  $\sim 800 \text{ А}$ , длительностью импульса  $\sim 3 \text{ нс}$  и частотой их следования 10 Гц. Разряд зажигался в смеси атмосферного давления в зазоре длиной 1 см между плоским стальным анодом и катодом из мелкоячеистой сетки, через которую инжектировался пучок. Объем, занимаемый разрядом, составлял

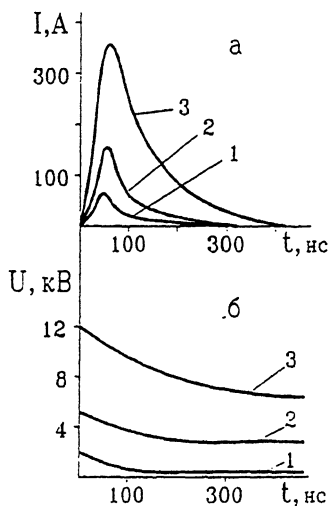


Рис. 1. Типичные осциллограммы тока (а) и напряжения (б) несамостоятельного разряда при  $c = 5.2$  нФ и зарядном напряжении 1 — 1.4 кВ, 2 — 5, 3 — 12.

$\sim 8$  см<sup>3</sup>. Для питания разряда использовалась батарея конденсаторов с емкостью от 1.0 до 13.2 нФ, заряжаемая до напряжения  $U_0 = 1.4 - 15$  кВ. Опыты проводились в смеси  $N_2 : O_2 : SO_2 : H_2O = 88.5 : 10 : 1 : 0.5$ , состав которой регистрировался масс-спектрометром МХ-7304. Ток и напряжение разряда регистрировались цифровым осциллографом С9-27.

На рис. 1 представлены типичные осциллограммы тока разряда и напряжения на нем. Максимум тока достигается за  $\sim 40$  нс, это время обусловлено параметрами разрядного контура. Спад тока во времени связан с процессами релаксации в плазме разряда. Оценочные расчеты показали, что наиболее точно экспериментальные осциллограммы при  $U_0 \leq 10$  кВ описываются процессом прилипания электронов к молекулам кислорода с константой скорости  $(1 - 3) \cdot 10^{-30}$  см<sup>6</sup>/с. Эта константа характерна для реакции трехчастичного прилипания, когда третьей частицей является молекула  $O_2$  [6].

Контроль очистки воздуха в наших экспериментах осуществлялся забором проб смеси вблизи стенки камеры, удаленной от оси разряда на 10 см. Поэтому нами оценивалась степень очистки именно в этой области в относительных единицах. Отбор проб осуществлялся через каждые 200 импульсов разряда. Степень очистки  $\eta$  определялась как от-

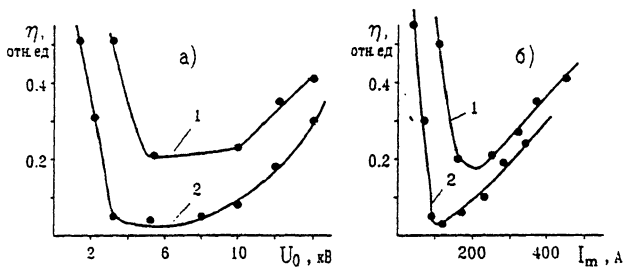


Рис. 2. Зависимости степени очистки газа  $\eta$  от зарядного напряжения  $U_0$  (а) и максимума разрядного тока  $I_m$  (б). 1 —  $c = 5.2$  нФ 2 — 1.2 нФ.

ношение разности начальной и конечной концентрации  $SO_2$  к начальной концентрации  $SO_2$  в смеси.

Представленные на рис. 2 зависимости  $\eta$  от зарядного напряжения на конденсаторе  $U_0$  и максимального разрядного тока  $I_m$  получены в серии за 1800 импульсов. Эти зависимости имеют ярко выраженный немонотонный характер. При зарядных напряжениях 3–5 кВ и токах разряда 100–200 А наблюдается минимум степени очистки. Такой же минимум характерен и для зависимости  $\eta$  от удельной вкладываемой в газ энергии и мощности, вводимой в разряд. Характерно, что увеличение разрядной емкости повышает степень очистки.

Качественно немонотонный характер зависимостей  $\eta$  может быть объяснен в рамках следующей модели. При высоких концентрациях электронов, создаваемых в газе импульсным электронным пучком, возможен цепной механизм окисления  $SO_2$  до  $H_2SO_4$  [3,4]. Возникновение цепного механизма связано с наличием в газе отрицательных ионов кислорода, которые в наших экспериментах образуются в основном за счет трехчастичного прилипания. Основным звеном плазмохимической цепочки являются реакции с участием иона  $O_3^-$  [3,4]. К его образованию могут вести реакции с участием колебательно возбужденных молекул кислорода  $O_2^*$  [3], либо реакции диссоциативного прилипания  $O_2 + e \rightarrow O^- + O$  и трехчастичной ассоциации [6,7]  $O^- + O_2 + O_2 \rightarrow O_3^- + O_2$ .

При малых напряжениях  $U_0$  ввод энергии в газ происходит при невысоком напряжении горения разряда (рис. 1). В этом случае возбуждение колебательных уровней молекул кислорода происходит довольно эффективно [8], что приводит к интенсивной наработке иона  $O_3^-$  и протеканию цепной реакции окисления  $SO_2$ . С ростом  $U_0$  эффективность колебательного возбуждения  $O_2$  снижается, энергия разряда рас

ходуетея в основном на возбуждение колебаний молекулы  $N_2$  [8]. При этом, хотя ток разряда и увеличивается, степень очистки газа снижается. С ростом  $U_0 \geq 10$  кВ и напряженности поля на плазме разряда увеличивается средняя энергия электронов и заметно возрастает сечение реакции диссоциативного прилипания [7]. Концентрация ионов  $O^-$  и  $O_3^-$  возрастает, что приводит к увеличению степени очистки. Изменение степени очистки с возрастанием величины разрядной емкости (рис. 2), вероятно, связано с увеличением длительности импульса тока разряда.

Предложенное объяснение экспериментальных зависимостей  $\eta$  носит качественный характер и требует дополнительных исследований с учетом всего комплекса плазмохимических реакций.

### Список литературы

- [1] *Валуев А.А., Каклюгин А.С., Норман Г.Э. и др. // ТВТ. 1990. Т. 28. № 5. С. 995-1008.*
- [2] *McCulla W.H., Rosocha L.A., Neely W.C. et al. // In Proc.: 1 INEL Plasma Appl. to Treatment Workshop. Idaho Falls. Idaho. January 16-17. 1991.*
- [3] *Баранчиков Е.И., Беленький Г.С., Деминский М.А. и др. // ХВЭ. 1991. Т. 25. № 5. С. 460-465.*
- [4] *Игнатьев А.В., Кузнецов Д.Л., Месяц Г.А., Новоселов Ю.Н. // Письма в ЖТФ. 1992. Т. 18. В. 22. С. 53-56.*
- [5] *Ельчанинов А.С., Котов А.С., Шпак В.Г. и др. // Электронная техника. Серия 4. 1987. В. 2. С. 33-37.*
- [6] *Смирнов Б.М. Отрицательные ионы. М.: Атомиздат, 1978. 176 с.*
- [7] *Месси Г. Отрицательные ионы. М.: Мир, 1979. 754 с.*
- [8] *Александров Н.Л., Высилайло Ф.И., Исламов Р.Ш. и др. // ТВТ. 1981. Т. 19. В. 1. С. 22-27.*

Институт электрофизики  
Уральское отделение  
РАН,  
Екатеринбург

Поступило в Редакцию  
30 июня 1993 г.