

02;10;12

Удаление оксидов азота из воздуха при воздействии микросекундного пучка электронов

© Г.В. Денисов, Ю.Н. Новоселов, Р.М. Ткаченко

Институт электрофизики УрО РАН, Екатеринбург

Поступило в Редакцию 10 сентября 1997 г.

Приведены результаты экспериментальных исследований процесса окисления оксидов азота в модельной смеси при ее ионизации импульсным пучком электронов микросекундной длительности. Показано, что при высоком содержании примеси в смеси затраты энергии на удаления одной токсичной молекулы существенно ниже энергий диссоциации монооксида азота и молекулярного кислорода и составляют величину ~ 2 eV.

Оксиды азота NO_x , в больших количествах присутствующие в дымовых газах тепловых электростанций, являются причиной возникновения кислотных дождей. В настоящее время интенсивно исследуются электрофизические методы очистки дымовых газов. В их основе лежит использование для ионизации газа различного рода электрических разрядов и электронных пучков. В ионизованном с их помощью влажном газе протекают реакции образования свободных радикалов типа O, OH, O_2H . Эти радикалы вступают в реакции с оксидами азота, в результате чего образуется азотная кислота. При добавлении аммиака кислота образует соли аммония NH_4NO_3 в виде твердого порошка, которые улавливаются с помощью различного рода фильтров [1,2].

С точки зрения получения низких энергозатрат эффективно использование электронных пучков [3]. В связи с достаточной технологической проработкой для этих целей применяются непрерывные ускорители, формирующие электронные пучки с плотностью тока $10^{-9} - 10^{-5}$ A/cm². При этом достигаются высокая степень очистки от оксидов азота — до 98–100%, затраты энергии на удаление одной токсичной молекулы составляют величину 15–20 eV [4]. На примере оксидов серы и сероуглерода нами ранее было показано [5,6], что применение импульсных пучков позволяет значительно, в несколько раз, снизить затраты

энергии. В связи с этим представляет интерес вопрос о возможности использования импульсных пучков и для удаления оксидов азота.

В настоящем сообщении приведены результаты экспериментов по удалению молекул NO и NO₂ из модельной смеси, облучаемой импульсным электронным пучком микросекундной длительности. Исследовались характеристики очистки воздушной смеси от примеси в зависимости от ее концентрации. Опыты выполнялись на установке, аналогичной [5]. Использовался ускоритель электронов с радиально расходящимся пучком с длительностью импульса 40 μs, энергией электронов 250–300 keV и максимальной плотностью тока ~ 10⁻³ A/cm². Сечение пучка при выводе за фольгу составляло 1.44 m², облучаемый объем равен 170 l.

Облучению подвергалась модельная смесь, содержащая 10% кислорода, до 87% азота, 3% паров воды и оксидов азота от 500 до 6000 ppm. Измерения концентрации примеси осуществлялись кондуктометрическим методом, аналогично [5]. Погрешность измерений не превышала 1%.

При проведении экспериментов определялись как абсолютное изменение концентрации оксидов азота, так и степень очистки, а также затраты энергии на удаление одной токсичной молекулы. Степень очистки η и затраты энергии ε на удаление одной токсичной молекулы NO вычислялись как

$$\eta = \Delta[\text{NO}]/[\text{NO}]_0,$$

$$\varepsilon = jD\tau n/e\Delta[\text{NO}](\text{eV/molecule}).$$

Здесь $\Delta[\text{NO}]$ — изменение концентрации оксидов азота за серию импульсов облучения (cm⁻³), $[\text{NO}]_0$ — начальная концентрация примеси в исследуемой смеси (cm⁻³), j и τ — плотность тока пучка (A/cm²) и его длительность (s), D — доза поглощенной газом энергии на единице длины (eV/cm), n — количество импульсов в серии облучения, e — заряд электрона (C).

Произведение $j\tau$ определялось интегрированием осциллограмм импульсов тока пучка, величина D измерялась экспериментально с помощью пленочных дозиметров по стандартной методике. Измеренное таким образом значение D сравнивалось с рассчитанным по методу Монте-Карло. Результаты измерений и расчетов отличаются не более чем на 10%. Общая погрешность измерения величины ε не превышала 0.3.

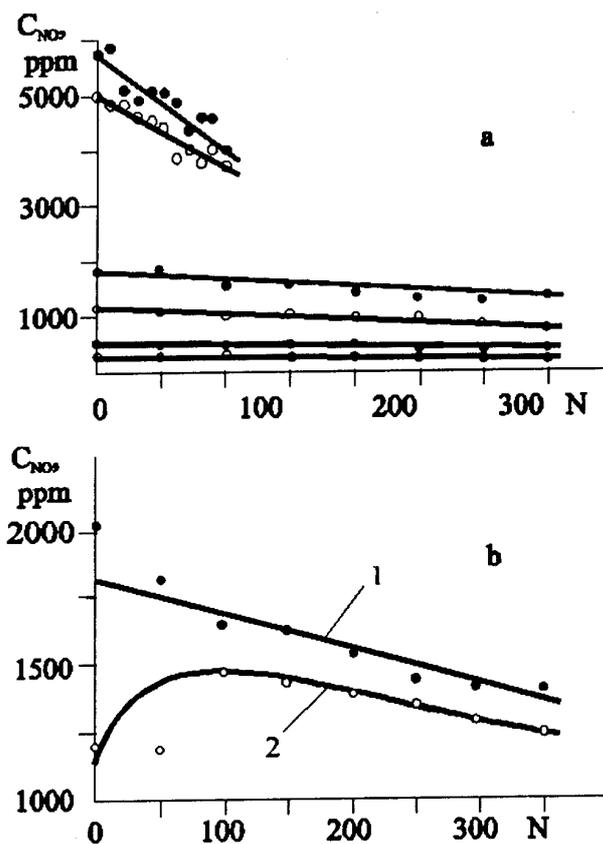


Рис. 1. *a* — зависимости изменения концентрации NO от количества N импульсов облучения смеси; *b* — изменение концентраций NO (1) и NO₂ (2) в зависимости от количества N импульсов облучения смеси.

Основной проблемой при удалении оксидов азота является окисление NO до NO₂, поскольку при добавлении в исследуемый газ паров воды молекула NO₂ достаточно быстро окисляется до азотной кислоты и без дополнительного воздействия на газ электронного пучка. На рис. 1, *a* приведены зависимости изменения концентрации монооксида азота от количества n импульсов облучения смеси. Видно, что концентрация NO

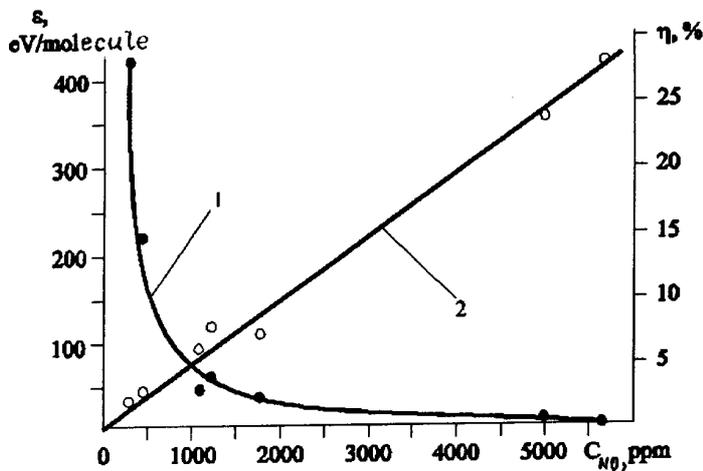


Рис. 2. Зависимости затрат энергии ϵ (1) и степени очистки η (2) от начального содержания примеси NO.

уменьшается линейно с увеличением количества импульсов облучения. В то же время обращает внимание тот факт, что скорость снижения концентрации NO зависит от начального содержания примеси. Изменение концентраций NO и NO₂ в зависимости от количества импульсов облучения смеси показано на рис. 1, *b*. Если для монооксида азота наблюдается линейная зависимость, то поведение концентрации NO₂ отличается от линейной. При воздействии на воздух электронного пучка происходит окисление NO до NO₂, при этом концентрация последнего возрастает с ростом числа импульсов облучения. В дальнейшем концентрация NO₂, так же как и NO, снижается. Это свидетельствует о том, что ионизация газа электронным пучком увеличивает интенсивность окисления NO.

Энергетической характеристикой процесса удаления оксидов азота являются затраты энергии на окисление одной молекулы примеси. На рис. 2 приведена зависимость величины ϵ от начальной концентрации NO в исследуемой смеси (1), здесь же показана зависимость степени очистки η (2). Количество импульсов облучения было равно 300 для каждой точки. Характер изменения затрат энергии ϵ отражает

зависимости, приведенные на рис. 1, а. При малых концентрациях NO величина ε значительна и составляет десятки электронвольт на одну молекулу. Например, для содержания $[\text{NO}]_0 \sim 1000$ ppm затраты энергии составляют ~ 50 eV/molecule. Увеличение $[\text{NO}]_0$ приводит к снижению затрат ε ; так, при начальной концентрации монооксида азота 5500 ppm величина ε снижается до ~ 2 eV. Для сравнения можно указать, что энергия диссоциации молекулы NO равна 6.5 eV, энергия диссоциации молекулярного кислорода — 5.12 eV [7].

Таким образом, в работе показано, что применение пучков электронов микросекундной длительности позволяет при значительном содержании примеси оксидов азота в воздушной смеси осуществлять процесс их окисления с малыми затратами энергии.

Работа выполнена в рамках проекта Международного научно-технического центра № 271.

Список литературы

- [1] Masuda S. // Pure & Appl. Chem. 1988. V. 60. N 5. P. 727–731.
- [2] Neau E.L. // IEEE Transaction on plasma science. 1994. V. 22. N 1. P. 2–10.
- [3] Frank N., Hirano S. // Radiat. Phys. Chem. 1990. V. 35. P. 416–421.
- [4] Person J.C., Ham D.O. // Rad. Phys. Chem. 1988. V. 31. N 1–3. P. 1–8.
- [5] Кузнецов Д.Л., Месяц Г.А., Новоселов Ю.Н. // Теплофизика высоких температур. 1996. Т. 34. № 6. С. 845–852.
- [6] Денисов Г.В., Новоселов Ю.Н. // Письма в ЖТФ. 1996. Т. 22. В. 7. С. 11–14.
- [7] Радциг А.А., Смирнов Б.М. Справочник по атомной и молекулярной физике. М.: Атомиздат, 1980. 240 с.