

03;10;12

Удаление оксидов азота из дымовых газов с примесью диоксида серы импульсными пучками электронов

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

Институт электрофизики УрО РАН, Екатеринбург

Поступило в Редакцию 25 июля 2000 г.

Приведены результаты экспериментальных исследований процесса удаления оксидов азота в модельной смеси при ее ионизации импульсным пучком электронов микросекундной длительности в присутствии примеси диоксидов серы SO_2 . Показано, что при малом содержании примеси SO_2 в смеси происходит ее взаимодействие с молекулами оксидов азота, что вызывает значительное увеличение затрат энергии на удаление одной молекулы NO до ~ 80 eV. При примерном равенстве концентраций SO_2 и NO затраты энергии снижаются до величин, характерных для отсутствия в смеси диоксидов серы.

Очистка дымовых газов тепловых электростанций от оксидов серы и азота является важной экологической задачей, имеющей несколько способов решения. Одним из них является способ, основанный на облучении дымовых газов импульсными пучками электронов. В [1,2] приведены результаты исследований процесса удаления диоксида серы SO_2 с помощью импульсных электронных пучков. Было показано, что применение таких пучков с оптимальными параметрами позволяет реализовать цепной плазмохимический механизм удаления SO_2 . В [3,4] описаны подобные эксперименты по удалению оксидов азота NO_x . Однако опыты [1–4] выполнялись в модельных газовых смесях, содержащих в определенных пропорциях азот, кислород и исследуемую примесь, т. е. только SO_2 или NO_x . В настоящем сообщении приведены результаты экспериментов, целью которых являлось определение закономерностей удаления NO_x в смесях, моделирующих реальные дымовые газы с примесями SO_2 , при их облучении импульсным пучком электронов.

Эксперименты выполнялись с помощью ускорителя электронов, конструкция которого аналогична описанной в [5]. Электронный пучок, формируемый ускорителем, имел сечение 10×100 см, энергию 200 keV, длительность импульса на полувывсоте $5 \mu\text{s}$ и плотность тока пучка от 4.5

до $12.5 \cdot 10^{-3} \text{ A/cm}^2$. Облучению подвергался газовый объем 12 литров. Модельная газовая смесь готовилась в специальном смесителе, затем она напускалась в предварительно вакуумированную и дважды промытую чистым азотом плазмохимическую камеру. В камере исследуемая смесь принудительно прокачивалась по замкнутому контуру в течение всего времени эксперимента. Опыты по удалению оксидов азота при различных концентрациях оксидов серы проводились в модельной смеси, содержащей азота около 90%, кислорода 10% и примесных оксидов SO_2 и NO_x с концентрацией от 0 до 1000 ppm. Контроль качественного и количественного состава газовой смеси осуществлялся с помощью газоанализатора "TESTO-350". Ошибка измерений не превышала 3%.

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 вычислялись как:

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

$$\varepsilon = Wn/e\Delta[\text{NO}](\text{eV/mol}).$$

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}); W — поглощенная в газе энергия пучка за один импульс (J/cm^3); n — количество импульсов в серии облучения; e — заряд электрона (Coul).

В опытах было обнаружено, что с увеличением плотности тока пучка при прочих равных условиях степень очистки смеси η от NO_x уменьшается, а затраты энергии ε возрастают. В связи с этим в дальнейшем приведены данные при плотности тока $j = 4.5 \cdot 10^{-3} \text{ A/cm}^2$, минимальной для используемого ускорителя.

Снижение концентрации оксида азота $[\text{NO}]$ от количества импульсов облучения при различном содержании SO_2 приведены на рис. 1, а. Начальная концентрация $[\text{NO}]$, как видно из рисунка, составляла в этих опытах величину 260–295 ppm. Видно, что с увеличением количества импульсов облучения концентрация оксидов азота снижается. Следует отметить, что характер изменения подобных зависимостей примерно одинаков для различных плотностей тока пучка. Обращает внимание влияние на изменение $[\text{NO}]$ содержания в смеси оксидов серы.

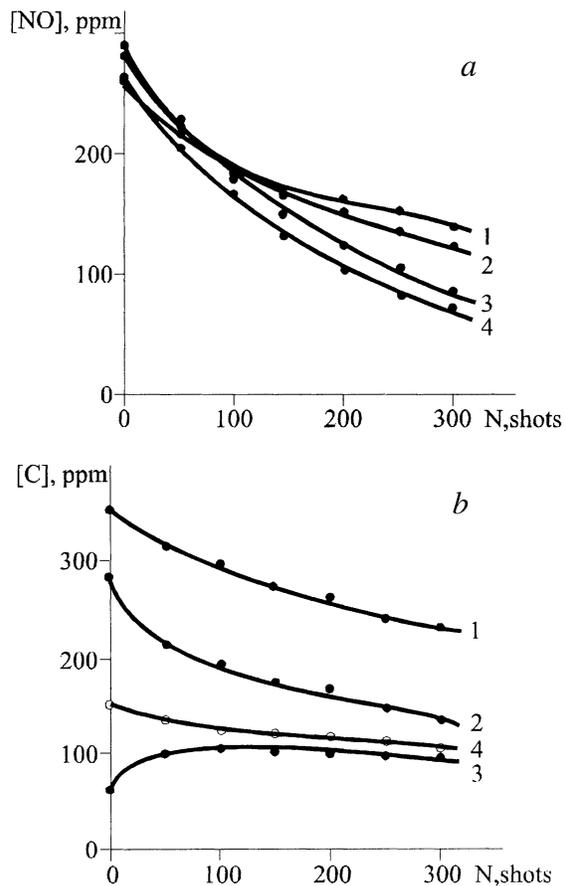


Рис. 1. Зависимости концентрации примесей от количества N импульсов облучения: a — монооксида азота NO при содержании $[\text{SO}_2]$, ppm: 1 — 100; 2 — 300; 3 — 500; 4 — 0; b — оксидов азота NO_x (1), NO (2), NO_2 (3) и оксидов серы SO_2 (4).

Наибольшее снижение концентрации $[\text{NO}]$ наблюдается в отсутствии примеси оксидов серы (кривая 4). Добавки небольшого количества SO_2 100–200 ppm приводят к заметному замедлению процесса удаления

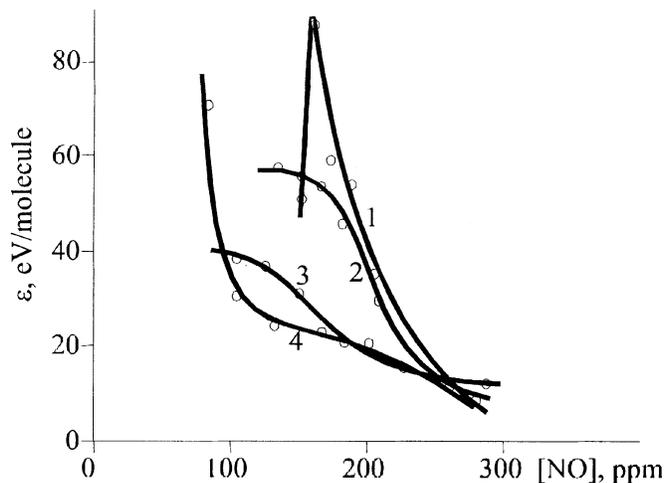


Рис. 2. Зависимости затрат энергии ε на удаление одной молекулы NO от начальной концентрации [NO] при содержании [SO₂], ppm: 1 — 200; 2 — 300; 3 — 400; 4 — 0.

оксидов азота (кривая 1). Увеличение содержания SO₂ в смеси до 500 ppm и более интенсифицирует процесс (кривая 3). На рис. 1, *b* представлены зависимости изменения концентраций оксидов азота NO_x, NO и NO₂, а также диоксида серы SO₂ от количества импульсов облучения в смеси, содержащей 150 ppm оксидов серы. Поведение зависимостей [NO] и [NO₂], а также [NO_x] = [NO] + [NO₂] аналогично подобным зависимостям в отсутствие примесей SO₂ [3]. Концентрация диоксида серы SO₂ плавно снижается, что также качественно соответствует ранее полученным результатам [2].

Наиболее ярко влияние примеси SO₂ на процесс удаления оксидов азота проявляется при определении затрат энергии ε на удаление одной молекулы NO. На рис. 2 представлены зависимости величины ε от начальной концентрации оксидов азота при различном содержании примеси SO₂. При нулевой концентрации примеси оксидов азота в диапазоне концентраций [NO] = 100 – 300 ppm реализуются минимальные затраты энергии ε (кривая 4), которые составляют величину 20–5 eV/mol. Добавление 200 ppm оксидов серы существенно увеличива-

ет значение ε (кривая 1), достигающее 80 eV/mol. При дальнейшем увеличении концентрации SO_2 (кривые 2, 3) происходит снижение затрат энергии до значений 20–8 eV/mol. Аналогичным образом при изменении концентрации SO_2 ведут себя и зависимости степени очистки η .

Причиной изменения параметров очистки является взаимодействие оксидов азота с примесными диоксидами серы в ионизованном воздухе. Из опытов видно, что молекулы SO_2 , присутствующие в смеси в малых количествах, замедляют реакции удаления оксидов азота. Реакциями, вызывающими этот эффект, могут быть следующие [6]:



При увеличении концентрации примеси SO_2 в исходной смеси она начинает заметно взаимодействовать с компонентами ионизованного воздуха, что приводит к ее удалению [2]. Для установления конкретного механизма влияния примеси SO_2 требуются дополнительные исследования, связанные с численным моделированием кинетики процессов в ионизованной смеси $\text{N}_2\text{--O}_2\text{--NO}_x\text{--SO}_2$.

Таким образом, в работе показано, что примеси SO_2 , присутствующие в реальных дымовых газах, оказывают существенное влияние на процесс очистки смеси от оксидов азота. Для уточнения механизмов влияния необходимо рассматривать весь комплекс плазмохимических процессов.

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

Список литературы

- [1] *Kuznetsov D.L., Mesyats G.A., Novoselov Yu.N.* // Novel Appl. of Lasers and Pulsed Power. USA San Jose. 1995. SPIE 2374. P. 142–144.
- [2] *Кузнецов Д.Л., Месяц Г.А., Новоселов Ю.Н.* // ТВТ. 1996. Т. 34. № 6. С. 845–852.
- [3] *Денисов Г.В., Новоселов Ю.Н., Ткаченко Р.М.* // Письма в ЖТФ. 1998. Т. 24. В. 4. С. 52–56.

- [4] *Nakagawa Y., Kawauchi H.* // Jpn. J. Appl. Phys. 1998. V. 37. P. 91–93.
- [5] *Гарусов К.А., Кузнецов Д.Л., Новоселов Ю.Н., Уварин В.В.* // ПТЭ. 1992. В. 3. С. 180–182.
- [6] *Кондратьев В.Н.* Константы скорости газофазных реакций. М.: Наука, 1970. 351 с.