

# Experimental Study on the Removal of NO<sub>x</sub> from Flue Gas by Dielectric Barrier Discharge

Junjie Zhang, Kaikai Zhu, Haiwen Wang, Jianxing Ren

College of Energy and Mechanical Engineering, Shanghai University of Electric Power, Shanghai  
Email: 598276151@qq.com

Received: Dec. 2<sup>nd</sup>, 2016; accepted: Dec. 19<sup>th</sup>, 2016; published: Dec. 26<sup>th</sup>, 2016

Copyright © 2016 by authors and Hans Publishers Inc.

This work is licensed under the Creative Commons Attribution International License (CC BY).

<http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>



Open Access

---

## Abstract

The influence of NO concentration and oxygen content on the removal efficiency of NO by low temperature plasma technique with dielectric barrier discharge was studied and analyzed. NO removal efficiency was analyzed. Experimental results show that at 20 KV, O<sub>2</sub> content increased from 0% to 8%, NO removal efficiency at each voltage decreased, and NO removal efficiency of dielectric barrier discharges dropped from 60% to 33.8%. With NO initial concentration increases, NO removal efficiency has dropped from 83% to 33%. NO initial concentration of O<sub>2</sub> and removal of content increase will result in the decrease of NO rate significantly.

## Keywords

Dielectric Barrier Discharge, Plasmas, Denitration Efficiency

---

# 介质阻挡放电烟气脱硝的实验研究

张俊杰, 朱锴锴, 王海文, 任建兴

上海电力学院能源与机械工程学院, 上海  
Email: 598276151@qq.com

收稿日期: 2016年12月2日; 录用日期: 2016年12月19日; 发布日期: 2016年12月26日

## 摘要

研究分析了介质阻挡放电低温等离子技术脱除NO机理、NO初始浓度和氧气含量对NO脱除效率的影响。实验结果表明,在20 kV时, O<sub>2</sub>含量从0%增加到8%, NO在各个电压下的脱除效率均下降,介质阻挡放电脱除NO的效率也由60%下降到33.8%。随着NO初始浓度的增加, NO脱除效率也由83%下降到33%。NO初始浓度的提高、O<sub>2</sub>含量的增加都会导致NO的脱除率的明显降低。

## 关键词

介质阻挡放电, 等离子体, 脱硝效率

## 1. 引言

随着电力行业的高速发展,各种污染物的排放也越来越多。其中,煤燃烧是我国大气污染严重的主要原因之一,而我国是煤炭消费大国,以煤炭为主要能源的消费结构在很长时间内难以改变,这就使得我国环境污染问题尤为严重[1]。燃烧生成的氮氧化物既污染环境也会对人体造成危害。NO<sub>x</sub>的过量排放是导致酸雨的原因之一,另一方面NO<sub>x</sub>与碳氢化合物反应会造成光化学烟雾。

目前电厂中主要使用的脱硝方法有选择性催化还原法(SCR)和选择性非催化还原法(SNCR)[2]。然而SCR技术存在着催化剂中毒、氨泄漏,费用投资比较高等问题,SNCR技术对NO还原效率较低,需要使用大量的还原剂,成本较高。与传统的脱硝技术相比,介质阻挡放电低温等离子体烟气脱硝技术,设备质量轻,体积小,运行费用低,运行过程中,不会导致二次污染。

随着高速发展的微电子科学、环境科学、能源与材料科学等,也为介质阻挡放电低温等离子体技术的发展带来了新的机遇和挑战。现在,介质阻挡电低温等离子体技术已经是一个具有全球影响的重要的科学与工程,对高科技经济的发展及传统工业的改造有着巨大的影响。介质阻挡放电生成低温等离子体技术在紫外光远、臭氧的合成、材料表面改性等放电已经得到广泛使用,近年来,在环境工程方面的运用也收到越来越多的关注,其中对烟气脱硫脱硝方面的研究已经进入应用阶段。该法不仅可以脱除烟气中的NO,而且可以同时脱除硫化物和粉尘,有望成为一种脱硫、脱氮、除尘一体化的新工艺技术,该法具有显著的脱氮脱硫效果,去除率可达到80%以上[3]。

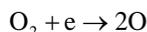
## 2. 介质阻挡放电低温等离子体脱硝的原理

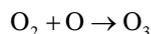
低气压下或常压下,电子温度远远大于气体温度的等离子体,此时电子与离子或中性粒子的碰撞过程中几乎不损失能量,这样的等离子体称为低温等离子体。低温等离子体可以通过辉光放电,电晕放电,介质阻挡放电,射频低温等离子体放电,滑动电弧放电等方法来获得[4]。

低温等离子体是继固态、液态、气态之后的物质第四态,当外加电压达到气体的放电电压时,气体被击穿,产生包括电子、各种离子、原子和自由基在内的混合物[5]。低温等离子体脱硝就是利用这些高能电子、自由基等活性粒子和废气中的NO<sub>x</sub>作用,使污染物分子在极短的时间内发生分解,并发生后续的各种反应以达到氮氧化物的脱除的目的[6]。

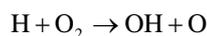
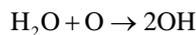
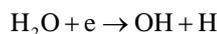
等离子体去除NO<sub>x</sub>的基本过程第一阶段为氧化性活性粒子的生成阶段,具体过程如下[7][8]:

O 原子或臭氧的氧化

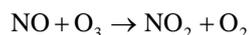
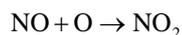




OH 自由基的氧化



等离子体脱氮的基本过程第二阶段为这些反应中产生的活性粒子与 NO 发生反应阶段，具体过程如下：



通过上述等离子体脱除  $\text{NO}_x$  的过程可以看出， $\text{NO}_x$  主要与 DBD 放电过程产生的氧化性活性粒子(O、OH)和生成的  $\text{O}_3$  反应，达到脱除 NO 的目的。在实验中应该更好的控制 DBD 的放电过程，使其产生更多的活性粒子，促进反应的发生，提高 NO 的脱除效率。

### 3. 实验系统

实验系统如图 1 所示，实验过程中所使用的 NO 由气瓶提供，系统主要由 NO 发生装置，介质阻挡放电低温等离子体发生装置，烟气分析测量装置和尾气处理吸收装置等几部分组成。

为了排除空气中  $\text{O}_2$  对 NO 氧化的影响，不使用引风机，使用  $\text{N}_2$  体系进行试验，将配比的  $\text{N}_2$ 、NO 与  $\text{O}_2$  先在橡皮囊内进行混合，再用泵吸入混气瓶。气体进入混气瓶进行混合后经过蒸汽发生器混合水蒸气以提高湿度，与发尘装置注入的烟尘混合后进入 DBD 反应器。DBD 反应器采用单介质阻挡放电同轴反应器，等离子放电宽度 150 mm，单边放电间隙 3 mm，外电极为外径 25 mm，内径 20 mm 的陶瓷管，内电极为齿状不锈钢电极，凹槽直径 11 mm，凸起直径 14 mm。高频电源采用 CTP-2000K 电源，电压可调范围为 0~30 kv，频率为 0~10 kHz。示波器采用 DS1104Z 数字示波器，使用 JSA9-M3 烟气分析仪进行气体的检测，加入烟尘的粒径分布使用 Better-size2000LD 仪进行测量。反应器尾部接入质量分数为 30% 的 NaOH 液对尾气进行吸收净化[9]。通过烟气分析仪测量反应器进出口 NO 浓度，定义 NO 脱除效率为：

$$\eta_{\text{NO}} = \frac{C_{\text{入口NO}} - C_{\text{出口NO}}}{C_{\text{入口NO}}}$$

其中  $\eta$  代表 NO 脱除效率，C 代表 NO 浓度。

## 4. 实验结果与分析

### 4.1. 初始浓度对介质阻挡放电脱除 NO 效率的影响

实际生产过程中不同电厂烟气排出的 NO 浓度各不相同，所以对不同初始浓度的烟气与其脱除效率之间的关系进行实验。以  $\text{N}_2$  作为背景，排除空气中  $\text{O}_2$  氧化的影响，流量控制 2 L/min，电压 16 KV，频率 10 KHz，常温常压下进行介质阻挡放电脱除 NO 的实验，初始浓度在 200 PPM~900 PPM 之间，进行多组实验取平均值，得出初始浓度与 NO 脱除效率的关系如图 2 所示。

初始浓度从 200 PPM 逐渐增加到 900 PPM 的过程中，以  $\text{N}_2$  作为背景， $\text{O}_2$  含量为 0，NO 的脱除效率从 83% 下降到 33%。

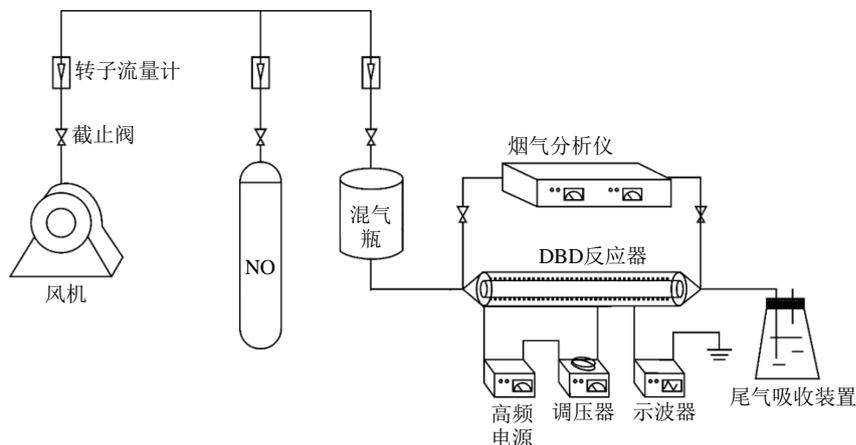


Figure 1. The experimental system  
图 1. 实验系统

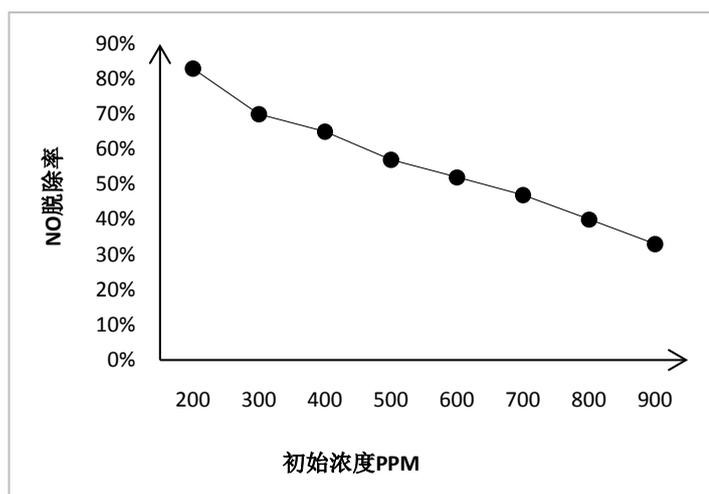


Figure 2. Effect of initial concentration of NO on removal efficiency  
图 2. NO 初始浓度对脱除效率的影响

由于介质阻挡放电的放电电压和频率确定后,输入到 DBD 反应器中的能量值一定,其放电产生的活性粒子也是一定的,所能反应脱除的 NO 分子也是一定得。随着 NO 入口初始浓度的增加,其中含有的 NO 分子数会随着增加,而介质阻挡放电产生的活性粒子只能与其中相应的 NO 分子反应。所以污染物浓度升高后,NO 脱除效率就降低了。随着初始浓度每增加 100 PPM,NO 脱除效率都会下降 10%左右。

#### 4.2. O<sub>2</sub> 浓度对介质阻挡放电脱除 NO 效率的影响

电厂中为了保证燃烧完全,燃烧时都会供应过量空气,这样的燃烧条件有利于提高锅炉效率,尾部烟气中测得的 O<sub>2</sub> 含量为 6%,因此需要对不同 O<sub>2</sub> 浓度下介质阻挡放电脱除 NO 进行实验。以 N<sub>2</sub> 作为背景,排除空气中 O<sub>2</sub> 氧化的影响,流量控制 2 L/min,频率 10 KHz,调节 NO 初始浓度为 550 PPM,通过 O<sub>2</sub> 瓶配置体积分数分别为 0%, 4%, 6%, 10% 的模拟气体,常温常压下进行介质阻挡放电脱除 NO 的实验,得出 O<sub>2</sub> 与 NO 脱除效率的关系如图 3 所示。

O<sub>2</sub> 对介质阻挡放电脱除 NO 效率的影响很大,随着 O<sub>2</sub> 含量由 0% 增加到 10%,NO 在各个电压点的脱除效率都在下降。电压在 8 KV 之前,O<sub>2</sub> 对 NO 脱除效率影响不明显;电压在 8 KV 以后,随着 O<sub>2</sub> 浓

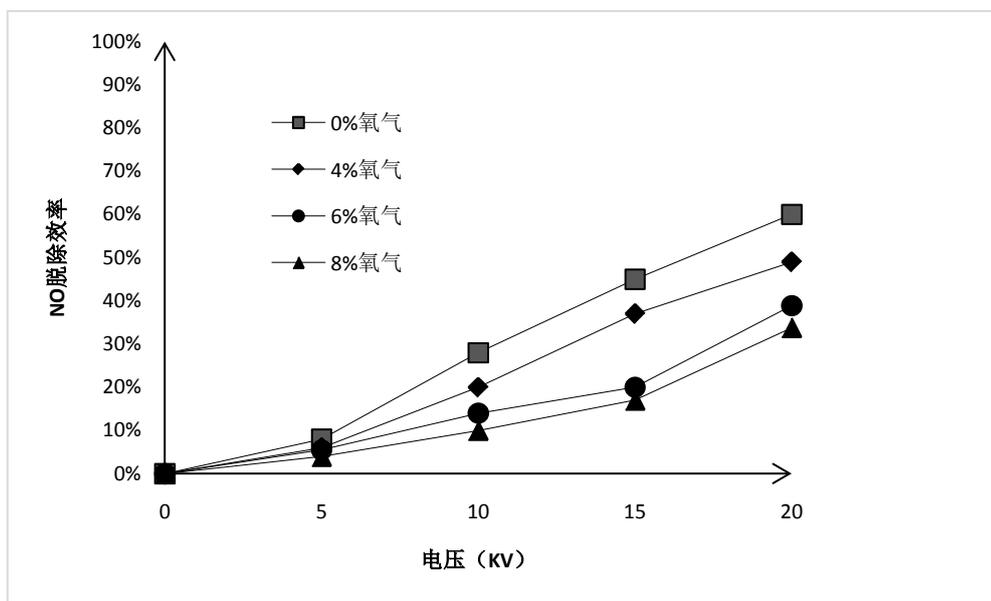


Figure 3. Effect of O<sub>2</sub> content on removal efficiency of NO in dielectric barrier discharge

图 3. O<sub>2</sub> 含量对介质阻挡放电脱除 NO 效率影响

度的增加,在同一电压下脱除 NO 的效率明显降低;电压在 20 KV 时,0%、4%、6%、8% O<sub>2</sub> 浓度下对应的 NO 脱除效率分别为 60%、49%、38.9%、和 33.8%。随着 O<sub>2</sub> 浓度的增加,系统中的高能电子与 O<sub>2</sub> 反应产生 O 活性粒子和 O<sub>3</sub> 等强氧化性的物质,将 NO 氧化为 NO<sub>2</sub>,同时,也会发生反应:  $O + NO_2 \rightarrow NO + O_2$ 。

NO<sub>2</sub> 又会被转化为 NO,这些反应对 NO 的分解有抑制作用,降低了介质阻挡放电对 NO 脱除效率。另一方面由于 O<sub>2</sub> 的存在,会吸附放电区的电,形成缓慢移动的负离子,使放电变得困难,从而降低放电产生高能电子的速度和密度,电子密度降低导致了 NO 脱除效率下降。在同一 O<sub>2</sub> 含量下,随着电压的增加,脱除效率也逐渐增加。当 O<sub>2</sub> 含量为 0,电压在 16 KV,初始浓度为 550 PPM 时,NO 的脱除效率为 54%,实验结果与 4.1 节中初始浓度对 NO 脱除效率研究相一致。

通过实验可以看出,随着 O<sub>2</sub> 含量逐渐增加,0%、4%、6%、8% 浓度下,NO 的脱除效率明显降低,氧气的加入抑制了 NO 的脱除,富氧条件下 NO<sub>x</sub> 很难被 DBD 脱除,在实际的脱除过程中可以考虑添加合适的低碳烃来促进反应的发生[10],提高 NO<sub>x</sub> 的脱除效率。随着 NO 初始浓度的增加,DBD 对 NO<sub>x</sub> 的脱除效率下降明显,在实际脱除过程中,可以考虑适当减小气体流量,使 DBD 在对 NO<sub>x</sub> 脱除工作过程中达到理想的效率。

## 5. 结论

1) 介质阻挡放电脱除 NO 的效率在初始浓度较低时可以达到 80% 以上,随着 NO 初始浓度的增加,NO 脱除效率逐渐减小。在电压确定时,输入到 DBD 反应器中的能量是一定的,DBD 所能产生的活性粒子数量有限,随着初始浓度的增加,DBD 脱除 NO 的效率也随之降低。在初始 NO 浓度由 200 增加到 300 的过程中,NO 脱除效率下降幅度最大,在输入电压和频率确定后,NO 浓度增加,气体中含有的 NO 分子数目增加,虽然介质阻挡放电仍然可以脱除相应数量的 NO 分子,但是气体中总的 NO 分子的含量变大使得 NO 的脱除效率变低。在后续的 NO 初始浓度增加的过程中,气体中 NO 分子的越来越多,NO 脱除效率也逐渐降低。

2) 在  $O_2$  含量一定时, 提高 DBD 反应器电压, 介质阻挡放电脱除 NO 效率也相应增加。输入电压增加, 反应器内的能量密度增加, 气体被电力产生的高能粒子增加, NO 脱除效率增加。当电压达到 16 KV 以上时, 脱除效率曲线逐渐变缓, 空间中大多数气体被电离, 形成了稳定的放电通道, 继续增加的电压转化为热量, NO 脱除效率上升不再明显。

3) 在相同电压下, 提高  $O_2$  含量, 介质阻挡放电脱除 NO 效率降低, 在电压达到 15 KV 左右时,  $O_2$  含量由 0% 增加到 8%, NO 脱除效率降低了 30% 左右。随着  $O_2$  浓度的增加, 系统中的高能电子与  $O_2$  反应产生 O 活性粒子,  $NO_2$  又会被转化为 NO, 对 NO 的分解有抑制作用, 降低了介质阻挡放电对 NO 脱除效率。

### 参考文献 (References)

- [1] 徐学基, 诸定昌. 气体放电物理[M]. 上海: 复旦大学出版社, 1996.
- [2] Liang, L., Hui, S.E., Pan, S., Shang, T., Liu, C.C. and Wang, D.H. (2014) Influence of Mixing, Oxygen and Residence Time on the SNCR Process. *Fuel*, **120**, 38-45. <https://doi.org/10.1016/j.fuel.2013.11.050>
- [3] 周志培. 介质阻挡放电脱除烟气中 NO 的实验研究[D]: [硕士学位论文]. 北京: 华北电力大学, 2010: 10-42.
- [4] 赵青, 刘述章, 童洪辉. 等离子体技术及应用[M]. 北京: 国防工业出版社, 2009.
- [5] 刘彤, 宋志明. 介质阻挡放电等离子体直接分解  $NO_x$  的影响因素. 环境科学, 2010, 21(5): 80-82.
- [6] 王新辉. 介质阻挡放电等离子体去除柴油机中氮氧化物的研究[D]: [硕士学位论文]. 天津: 天津大学, 2010: 1-43.
- [7] 张健, 孙天宇, 王庆阳, 任建兴. 等离子电离技术烟气脱氮机理及电极结构参数对脱氮效率的影响[J]. 上海电力学报, 2015(4): 333-337
- [8] Jaroszyńska-Wolińska, J. (2010) The Reaction Mechanism of Ozone with the NO and  $NO_2$  Oxides. *Journal of Molecular Structure: THEOCHEM*, **952**, 74-83.
- [9] 王雪涛, 王沛迪, 刘予, 任建兴. 粉尘对介质阻挡放电脱硫脱销效率影响的研究[J]. 科学技术与工程, 2015(25): 178-182.
- [10] Redolfi, M., Touchard, S., Duten, X. and Hassouni, K. (2014) A Simplified Global Model to Describe the Oxidation of Acetylene under Nanosecond Pulsed Discharges in a Complex Corona Reactor. *Plasma Chemistry and Plasma Processing*, **34**, 343-359.

#### 期刊投稿者将享受如下服务:

1. 投稿前咨询服务 (QQ、微信、邮箱皆可)
2. 为您匹配最合适的期刊
3. 24 小时以内解答您的所有疑问
4. 友好的在线投稿界面
5. 专业的同行评审
6. 知网检索
7. 全网络覆盖式推广您的研究

投稿请点击: <http://www.hanspub.org/Submission.aspx>

期刊邮箱: [aep@hanspub.org](mailto:aep@hanspub.org)