

· 研究报告 ·

# 介质阻挡放电 – 光催化净化汽车尾气中的 NO

田晓梅, 何翔, 王喜眉

(中南民族大学电子信息工程学院, 湖北 武汉 430074)

**摘要:** 利用介质阻挡放电 (DBD) 和光催化相结合可以净化汽车尾气中的 NO。介绍了 DBD 及其与  $\text{TiO}_2$  联合作用时 NO 初始体积分数、混合气体流量和放电参数对 NO 净化的影响。实验结果表明, 无论有无  $\text{TiO}_2$  催化剂, NO 的净化率都随着 NO 初始体积分数的增加而降低, 随着混合气体流量的增大而减小, 也随着放电电压的升高而升高。在相同条件下, 加入光催化剂后, NO 的净化率有了不同程度的提高, 而且初始体积分数越低、气体流量越小、放电电压越高, 光催化效果越明显。

**关键词:** 介质阻挡放电; 光催化; 汽车尾气; NO; 净化率

中图分类号: X831 文献标识码: A 文章编号: 1006-2009(2006)02-0011-04

## DBD Links with Light Catalyze to Reduce the NO from Vehicle's Tail-gas

TIAN Xiaomei HE Xiang WANG Ximei

(Electronic Information Engineering School of National University of Mil-South  
China, Wuhan, Hubei 430074 China)

**Abstract** DBD linking with light catalyze can reduce the NO from vehicle's tail-gas. This article introduced the purification effect on the NO from initial concentration, mixed gas flow and the discharge parameters when DBD and its joint role with  $\text{TiO}_2$ . The results had shown, with or without  $\text{TiO}_2$  as the medium, the purification rates would increased with lower initial concentrations of NO, and would reduced with the increased mixed gas flow, and would increased with the rise of discharge voltage. In the same conditions, to optical catalyst, no purification rate with varying degrees of improvement, when the light catalyze can be into the tail gas, the purification rate has some increased, and with the lower initial concentration and the smaller gas flow and the higher discharge voltage the light catalytic effect will be more and more obvious.

**Key words** DBD; Light catalyze; Vehicle's tail-gas; NO; Purification rate

随着我国经济的快速发展, 作为现代交通工具的汽车数量也在与日俱增, 但由于燃料燃烧不充分, 汽车排放尾气中的污染物也在不断增加<sup>[1]</sup>。由此采取的机内和机外的各种净化措施如电喷系统 (EFI)、曲轴箱强制通风 (PCV)、废气再循环 (EGR)、三元催化法等都得到了广泛的研究和应用, 但这些技术都存在不足。

近年来, 非平衡等离子体在废气治理方面的应用逐渐引起了人们的重视<sup>[2]</sup>。这种方法对于 VOC、NO<sub>x</sub>、SO<sub>2</sub>、氯氟烃类, 以及含硫恶臭化合物等的净化处理都有一定的效果<sup>[3-6]</sup>。介质阻挡放电是一种可以在常压下产生非平衡等离子体的放电

方式。它有绝缘介质插入放电空间, 其介质可以覆盖在电极上或者悬挂在放电空间里。在介质阻挡放电产生的等离子体中, 其电子的平均能量要远远高于离子或中性粒子的能量, 在去除污染物的过程中起重要作用<sup>[7]</sup>。

非平衡等离子体通常采用电晕放电、沿面放电

收稿日期: 2005-11-08 修订日期: 2005-12-10

基金项目: 国家民委科研基金资助项目 (05ZN03); 湖北省等离子体化学与新材料重点实验室开放课题基金资助项目 (PCAM0503)

作者简介: 田晓梅 (1970-), 女, 湖北巴东人, 讲师, 硕士, 从事等离子体应用与工艺研究。

或介质阻挡放电产生。现利用介质阻挡放电产生非平衡等离子体, 进行净化汽车尾气中 NO 的实验研究。

### 1 实验装置及方法

#### 1.1 实验装置

实验装置见图 1。

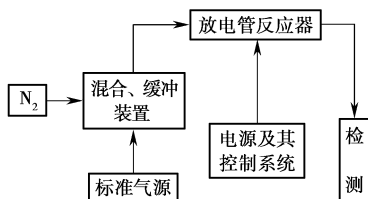


图 1 实验装置结构

整个实验装置由供气系统、电源及其控制系统、放电管反应器和气体检测等部分组成。

供气系统包括 NO 标准气 (含 9.9% NO, 以 N<sub>2</sub> 为本底气)、N<sub>2</sub> 气 (99.99%)、混合缓冲装置和流量调节装置, 通过调节两个气瓶的流量, 可以得到各种流量下不同 NO 浓度的 N<sub>2</sub> 和 NO 混合气体, 以及由于采用常压 DBD 放电, 放电气氛中还存在着少量的 O<sub>3</sub>。

#### 1.2 介质阻挡放电电源

介质阻挡放电电源结构见图 2。

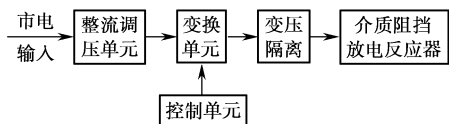


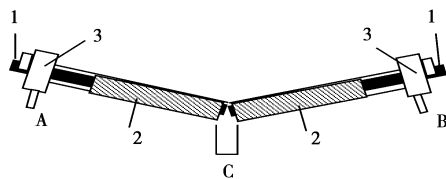
图 2 电源设备结构

电源采用大连无线电九厂的 SDCD 16-2-10 塑料表面电火花处理电源, 其技术指标为: 输出电压 0 kV ~ 16 kV 可调, 工作频率 10 kHz 输出功率 1.6 kW。

#### 1.3 放电管反应器

放电管反应器结构见图 3。

图 3 中 A、B 为进气口, 与气体管路相连, C 为出气口。中心电极与高压电源的高压端相连, Y 型管材料为石英玻璃, 放电时作为介质阻挡层, 管外



1——中心电极; 2——锡箔接地电极;  
3——聚四氟乙烯套管

图 3 Y 型放电管反应器结构

层均匀包裹一层锡箔, 与高压电源的地端相连。放电区长度即为锡箔接地极的长度。

#### 1.4 分析方法

采用盐酸萘乙二胺分光光度法分析混合气中 NO<sub>x</sub> 浓度。处理后的混合气体由出气口和管路相连排出, 利用多孔玻板和氧化管氧化、收集后检测, 测定流程见图 4。吸收液 1 用于检测 NO<sub>2</sub> 浓度, 吸收液 2 检测 NO 浓度。

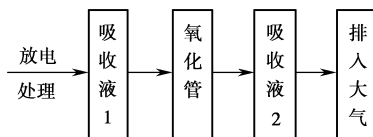


图 4 NO<sub>x</sub> 测定流程

#### 1.5 光催化剂制备

将粒度 ≤ 20 nm 的锐钛矿结构的 TiO<sub>2</sub> 纳米粉 (南京海泰纳米公司) 涂覆在电极及介质表面, 注意尽量使 TiO<sub>2</sub> 易于接受放电区的光辐射。

### 2 结果与分析

定义 NO 的净化率:

$$\eta = \frac{C_{in} - C_{out}}{C_{in}} \times 100\%$$

式中: C<sub>in</sub>——NO 的初始体积分数, mL/m<sup>3</sup>;

C<sub>out</sub>——经 DBD-光催化处理后的 NO 残余体积分数。

#### 2.1 初始体积分数对 NO 净化的影响

中心电极电压范围为 8 kV ~ 14 kV, 气体流量 Q = 1.5 L/min 在不同 NO 初始体积分数 (C<sub>in</sub> = 200 mL/m<sup>3</sup>、400 mL/m<sup>3</sup>、600 mL/m<sup>3</sup>) 下实验。结果见图 5—图 7。

从图中可以看出, 无论在何种初始体积分数的

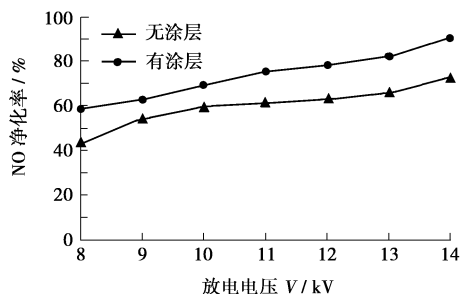


图 5 200 mL/m³ 时 NO 的净化率

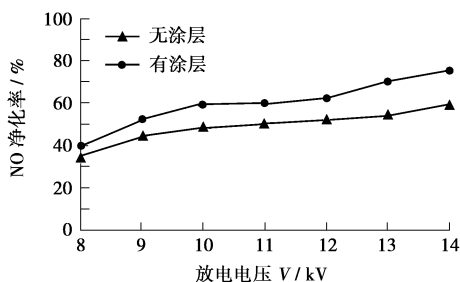


图 6 400 mL/m³ 时 NO 的净化率

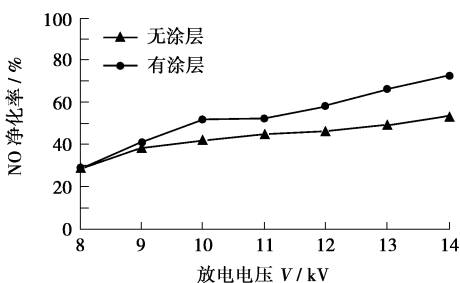


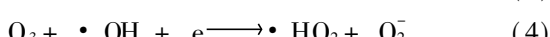
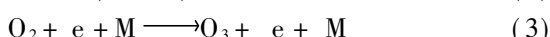
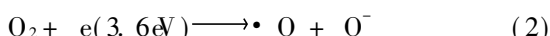
图 7 600 mL/m³ 时 NO 的净化率

情况下,电压相同、有涂层或无涂层时,NO 的净化率都随着 NO 初始体积分数的增加而降低。NO 的初始体积分数越高,其净化率越低,NO 的初始体积分数越低,其净化率越高。

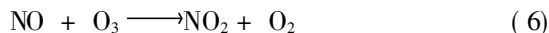
在放电状态下,分解 NO 的反应机理主要有两方面:一方面是直接电子作用的分解,主要反应为:



另一方面是放电所产生自由基的作用,主要反应如下:



式中 M 为第 3 体。NO 在多种活性粒子的作用下发生氧化还原反应:



对图 5—图 7 的结果作如下解释:其一,NO 的分解主要靠高能电子起作用,由于气压较高,自由程短,放电产生的自由电子中高能电子相对较少,与 NO 的碰撞反应截面是有限的;其二,在有光催化剂 TD<sub>2</sub> 存在时,由于 TD<sub>2</sub> 只有在波长短于 380 nm 的光照下才有明显的光催化作用,放电时,虽然存在紫外辐射,但短波成分相对较少,也就是说 TD<sub>2</sub> 的光催化作用也是有限的,从而是 NO 体积分数增加时,净化率下降。

从图 5—图 7 还可以看出,虽然有 TD<sub>2</sub> 涂层,NO 的净化率仍明显地受初始体积分数影响,但在相同外加电压的条件下,净化效率却有明显的提高,并且初始体积分数越低,光催化效果越明显。当初始体积分数为 200 mL/m³ 时,在外加电压为 14 kV 条件下,NO 净化率由 72.6% 提高到 90.6%。

### 2.2 气体流量对 NO 净化的影响

中心电极电压范围为 8 kV ~ 14 kV,NO 初始体积分数固定 ( $C_{i0} = 400 \text{ mL/m}^3$ ),在不同混合气体流量 ( $Q = 0.3 \text{ L/min}$ ,  $1.5 \text{ L/min}$ ,  $4.5 \text{ L/min}$ ) 下实验,结果见图 8—图 10。

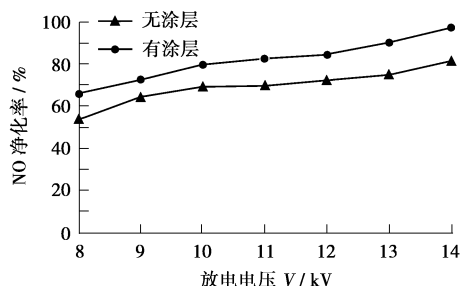


图 8 混合气体流量 0.3 L/min 时 NO 的净化率

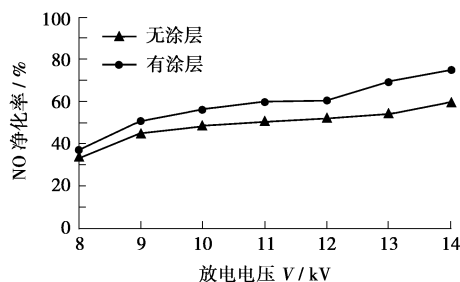


图 9 混合气体流量 1.5 L/min 时 NO 的净化率

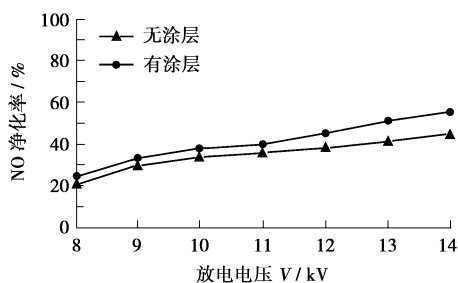


图 10 混合气体流量 4.5 L/min 时 NO 的净化率

从图 8—图 10 可以看出, 不管有无  $\text{TiO}_2$  涂层, 混合气体流量都明显地影响着净化效果。并且不论是在哪种混合气体流量情况下, 电压相同、有涂层或无涂层时, NO 的净化率都是随着混合气体流量的增大而减小。在初始体积分数不变情况下, 混合气体流量的增大意味着流速的增大。反应区间的有效长度一定时, 流速大小反映了气流在反应器中停留时间的长短, 流速越大, 气流在反应器中停留的时间越短, NO 分子随气流在反应器中停留时间也就越短。NO 分子与自由电子碰撞几率减少, NO 分子离解、电离的几率会相应地减少, 净化率就会下降。

在大流量时, 加入光催化剂, NO 的净化率提高了 10%, 小流量时, 加入光催化剂使 NO 净化率达到了 97.2%。这是因为光催化反应是在催化剂表面进行的, 只有当 NO 分子或分子碎片扩散附着在催化剂表面时才能被氧化。混合气体流量越小, NO 分子扩散附着的几率越大, 光催化所起的作用也就越明显。

### 2.3 放电电压对 NO 净化的影响

从图 5—图 10 可以看出, 无论在哪种 NO 初始体积分数和混合气体流量下, NO 的净化率都随着放电电压的升高而提高, 而且与无涂层相比, 有涂层时 NO 的净化率要高。

随着电压的增加, 放电区域沿电场方向扩散, 放电的空间增大, 放电强度增加, 产生的自由电子数量增加, 其中能量较高的电子数量也增加, 从而电子与混合气中分子非弹性碰撞的几率增大, 使 NO 的净化率增加。

另外, 通过观察放电过程发现, 当两极间的电压增加至 4 kV 时, 阴阳极间的气体就可以被击穿, 并伴随有稀疏的嘶嘶放电声, 同时在两极间可看到淡紫色的暗光。随着电压的增加, 这种放电的嘶嘶声越来越细密, 而且电极间紫色光的颜色逐渐加深, 即随着电压的增高, 放电强度加强, 放电所产生的光晕也增强, 光晕中的紫外线强度增大, 光照射催化剂产生的活性粒子就多, 有利于 NO 的去除。

### 3 结论

在介质阻挡放电产生非平衡等离子体净化汽车尾气中 NO 的过程中, 由于放电区间存在一定的高能量电子, NO 在这些高能电子的碰撞作用下发生裂解; 在等离子体中同时产生活性分子和自由基, 这些活性分子及自由基与 NO 发生化学反应, 有助于提高 NO 的净化率; 加入  $\text{TiO}_2$  后, 有效地利用等离子体中的紫外辐射, 可提高 NO 的净化效果。

#### [参考文献]

- [1] 瞿梅, 陈进富. 汽车尾气污染防治技术 [J]. 石油与天然气化工, 2001, 30(3): 153-156.
- [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] RUDOLPH R, FRANCKE K P, MIESSNER H. Concentration dependence of VOC decomposition by dielectric barrier discharges [J]. Plasma Chemistry and Plasma Processing, 2002, 22(3): 401-412.
- [4] LEE H M, CHANG M B. Gas-phase removal of acetaldehyde via packed-bed dielectric barrier discharge reactor [J]. Plasma Chemistry and Plasma Processing, 2001, 21(3): 329-343.
- [5] 侯健, 潘循哲, 赵太杰, 等. 常压非平衡等离子体降解挥发性烃类污染物 [J]. 中国环境科学, 1999, 19(3): 277-280.
- [6] 汤红, 白敏冬, 沈欣军. 强电离介质阻挡放电脱硫的实验研究 [J]. 中原工学院学报, 2003, 14(S1): 68-71.
- [7] 赵文华, 张旭东. 介质阻挡放电去除 NO 的实验研究 [J]. 环境科学学报, 2004, 24(1): 107-110.

本栏目责任编辑 张启萍