

DBD 等离子体反应器高频电源下的放热研究

竹 涛^{1,2}, 李 坚², 万艳东¹, 梁文俊², 金毓峯²

(1. 中国矿业大学 化学与环境工程学院, 北京 100083; 2. 北京工业大学 环境与能源工程学院, 北京 100124)

摘 要: 通过实验监测 DBD(dielectric barrier discharge) 温度变化情况, 探讨了温升所引起的热转移机理, 得出 DBD 热变化表达式, 并推导出相应的能量分配式及 ΔT_{avg} 计算式. 实验结果表明: 高频放电过程中, DBD 反应器温度随电压升高和时间延长而上升, 它们之间呈非线性关系; DBD 反应器温度随频率提高和时间延长而升高, 随气体速度的提高而降低, 温度变化与时间、频率及气体速度均呈现出线性关系.

关键词: 介质阻挡放电; 温度; 能量模型; 高频

中图分类号: X 51

文献标志码: A

文章编号: 0254-0037(2010)07-0981-05

介质阻挡放电(dielectric barrier discharge, DBD) 通常工作在大气压强下, 它至少有一个电极被介质所覆盖, 阻挡介质与另一电极之间的空气间隙被高频高压电场激励, 进而可产生非平衡态气体放电^[1]. 这种放电仅能工作在交流电源的情况下, 其频率可从几十赫兹到几百千赫. 当击穿电压超过 Paschen 击穿电压时, 大量随机分布的微放电就会出现在放电间隙中. 微放电持续 10 ns 左右, 其放电通道几乎是圆柱对称的, 即等离子体通道.

介质阻挡放电是一种典型的非平衡态交流气体放电过程. 当两极间加上足够高的交流电压时, 电极间的气体被击穿形成放电, 在压强为大气压或高于大气压时, 放电模式为流光模式, 即放电电流是由大量快脉冲放电细丝——微放电通道组成. 在适当条件下, 这些放电微通道自组织形成空间斑图, 如条纹斑图、六边形斑图及正方形斑图等^[2-7].

放电丝的发光强度正比于微放电电流密度, 因此照相机记录的照片可表示放电的分布情况. 在不同的条件下得到了不同的斑图结构的照片. 照片中的亮点对应于 DBD 中微放电丝. 利用 Photoshop 取照片中放电区域部分, 经锐化、调节对比度等方法处理, 使其更清晰. 经验证明, 这些处理不但不会影响空间频谱分布, 而且可使频谱更清晰^[8].

常压下 DBD 非平衡等离子体耗能所产生的热量, 是引起不必要的反应器温度升高的因素之一. 尤其是现在等离子体反应器形式更为紧凑, 而且多采用能量较高频率的电源, 等离子体发热的问题就更为严重. 从粒子角度考虑, 巨大的温升将会影响到电子及化学过程, 进而影响到反应降解效果. 采取措施以减少能量的浪费, 避免过度的温升, 这已成为广泛的共识, 但是目前几乎没有人试图探讨这一热转移机理. 因此本文将针对这一问题进行一些分析和探讨.

1 实验装置及方法^[9-11]

实验装置见图 1. 实验流程由气体发生、气体反应和气体检测 3 部分组成. 空气由空气钢瓶或压缩机进入管路, 经过缓冲瓶、流量计后分流: 一路被鼓入甲苯液瓶中, 带动污染物气体分子的挥发进而进入混合瓶; 另一路直接进入混合瓶, 当 2 路气流在混合瓶混合趋于稳定后进入管-线式等离子体反应器. 反应后

收稿日期: 2009-01-21.

基金项目: 高等学校博士学科点专项科研基金资助项目(20040005009); 北京市属市管高等学校人才强教计划资助项目(05005013200605); 中央高校基本科研业务费专项基金资助项目(2009QH03); 国家环保部公益项目(201009052-02); 中国矿业大学(北京)青年科研基金资助项目.

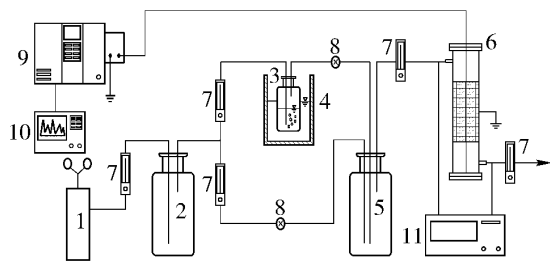
作者简介: 竹 涛(1979—), 男, 山西临猗人, 讲师.

的气体进入气相色谱仪进行分析. 实验在常温常压条件下进行.

本实验采用99瓷管线式反应器完成等离子体发生,反应管外径为32 mm,内径为26 mm,内电极为1.25 mm的钨丝,外电极为铜箔,有效长度为200 mm. 反应器沿气流方向分为①区、②区和③区,温度分别为 T_1 、 T_2 和 T_3 ,如图2所示. 气体放电时,每间隔1 min分别用TES-1327型红外温度测定仪(准确度为 $\pm 2\%$,感应光谱范围为6~14 μm ,放射率修正范围为0.17~1.00,照准:单束辐射光 $< 1 \text{ mW}$)测量以上3个区域的温度,之后取平均值得到

$$\bar{T} = \frac{T_1 + T_2 + T_3}{3} \tag{1}$$

式中,取放射率修正系数 $\xi = 1.2$,因此最后温度 $T = \bar{T} \times 1.2$.



1. 空气钢瓶 2. 缓冲瓶 3. 甲苯液瓶 4. 恒温水浴 5. 混合瓶 6. 等离子体反应器 7. 质量流量计 8. 针阀 9. 高频电源 10. 示波器 11. 气相色谱仪

图1 实验装置示意

Fig. 1 Schematic diagram of the experimental system

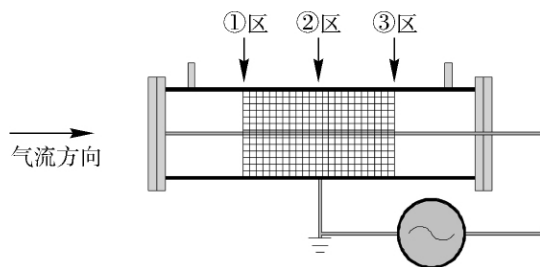


图2 反应器温度测点布置

Fig. 2 Sketch map of detected points of reactor temperature

实验所用高压高频交流电源由中国科学院等离子体物理研究所研制(升压范围为0~30 kV,变频范围为0~10 kHz). 实验过程中放电参数由美国泰克TDS2014型示波器进行测量.

2 实验结果

由图3可见,频率固定的情况下,DBD反应器温度随电压升高和时间延长而上升. 尤其当电压 $\geq 15 \text{ kV}$ 时,温度上升趋势明显;当电压为20 kV时,温度呈明显上升趋势,在4 min后,温度高达约 180°C ,之后随着监测时间继续延长,温度缓慢上升,并于12 min后达到 200°C . 在图4等温线平面图中,亦清楚地显示了温度随电压和时间变化趋势,这是一种非线性的关系.

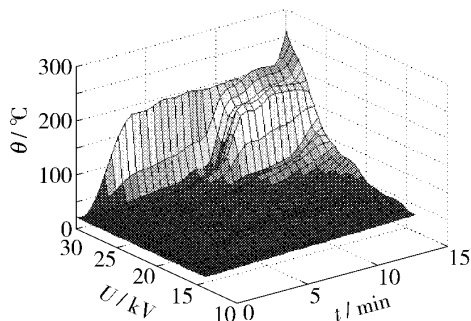


图3 温度分布(4~5 kHz)

Fig. 3 Temperature distribution chart

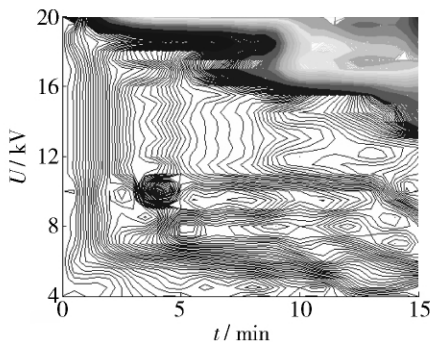


图4 等温线平面图(4~5 kHz)

Fig. 4 Ichnography isotherm

由图5可见,电压固定的情况下,DBD反应器温度随频率提高和时间延长而升高. 当频率 $\geq 4 \text{ kHz}$,随着监测时间延长,温度上升趋势明显,频率为8 kHz且时间为13 min时,温度达到 180°C 左右. 图6等温线

平面图显示,温度变化与时间和频率呈现出一种线性关系.

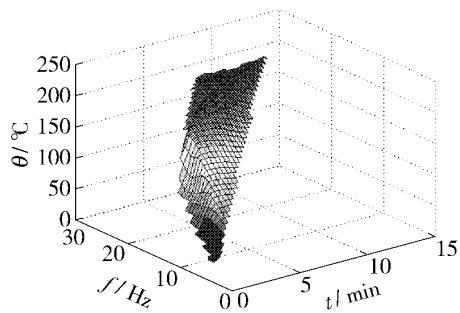


图 5 温度分布 (20 kV)

Fig. 5 Temperature distribution chart

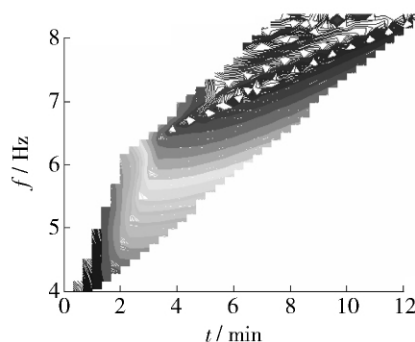


图 6 等温线平面图 (20 kV)

Fig. 6 Ichnography isotherm

由图 7 可见,在电压及频率均固定的情况下, DBD 反应器温度随气体速度的提高而呈现下降趋势. 按图 8 所显示的状态分析可知, DBD 反应器温度变化与气体速度呈现出明显的线性关系. 结合图 7 和图 8 可见, 气体速度小于 50 cm/s 时, 温度上升趋势减缓; 而气体速度大于 100 cm/s 时, 温度下降趋势亦减缓, 显然, 提高气体速度是 DBD 反应器降低温升的有效方法之一, 但势必会对非平衡等离子体降解效率提出更高的要求.

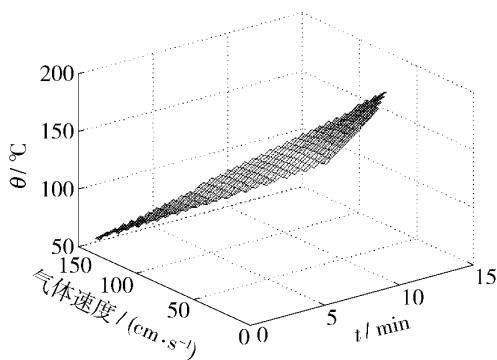


图 7 温度分布

Fig. 7 Temperature distribution chart

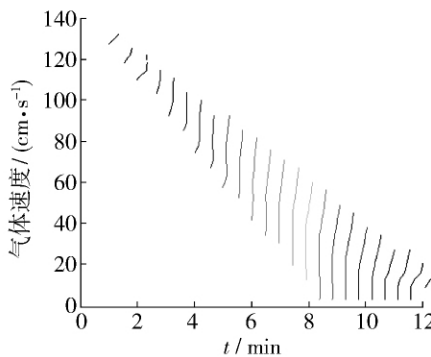


图 8 等温线平面图

Fig. 8 Ichnography isotherm

3 讨论

3.1 实验现象分析

在直流或中频下, 偶极子有充裕的时间跟随交变电场的变化, 束缚电荷的建立与消除都有充裕的时间. 放电的能量与存贮的能量是相等的, 不考虑电导损耗, 介质只是一个能量存贮机构, 并不在极化时额外损耗外加电源的能量, 介质材料基本没有温升. 随着频率的升高, 偶极子的旋转会跟不上电场的变化, 在场交替变化时, 偶极子不能完全恢复到原始的位置, 重新取向式极化开始失效, 随之而来的是介质中损耗的产生和增长, 此种损耗表现为介质材料温升. 温度的升高造成能量的浪费和电介质过快老化. 温度上升过高还容易出现电介质的热击穿现象. 所谓热击穿, 指由于介质损耗的存在, 固体电介质在电场中逐渐发热升温, 电老化引起电介质阻挡放电的能力下降, 电路中电流增大, 损耗发热也随之增加. 在介质材料升温发热的同时, 必然存在介质向外界不断散热的过程. 假设在一定时间内, 介质材料的发热量超过散热量, 引起介质温度持续上升, 最终将导致电介质击穿.

本实验过程中出现了高频交流电情况下的热击穿现象^[12-14]. 一方面, 低频可以有效地减少介质损耗, 但是, 要提高污染物的去除率, 必须提高电压, 电压过高易发生电击穿; 另一方面, 高频可以提高放电的重

复率,然而,频率过高会增大介质损耗,易造成能量的浪费和电介质的热击穿.同理可知,高频电源势必存在同样的问题.所以,综合上述2个方面,在实际工业应用中应适当选择中频电源作为DBD反应器的供能来源.

3.2 模型建立

由上述实验结果可以得出, DBD 反应器随时间的热变化表达式为

$$\frac{\partial T}{\partial t} = \lambda \left(\frac{\partial^2 T}{\partial U \partial f} + \frac{\partial^2 T}{\partial u^2} \right) \tag{2}$$

式中, T 为气体温度 (K); t 为时间 (min); U 为电压 (kV); f 为频率 (kV); u 为气体速度 (m/s); λ 为系数.

图9中分析了DBD反应器中能量分配和热转移机理.根据以上情况,建立能量平衡关系式为

$$P_{in} = [C_2]G_g \Delta H_{C2} + C_{Pg}G_g \Delta T_{ave} + C_{Pg}G_g \Delta T_g + C_{Pg}G_g \Delta T_g + \text{辐射损失} + \text{结焦物放热} + Y \tag{3}$$

式中, C_{Pg} 为热容 (J/(K·m³)); C_p 为比热容 (J/(kg·K)); G_g 为质量流量 (kg/s); ΔT 为温度变化值 (K); $[C_2]$ 为产物的质量分数 (kg/kg).

表1总结了详细的输入能量分配的数学表达式,式(3)中辐射损失和结焦物放热可忽略,同时令 $Y = 0$,故有

$$P_{in} = [C_2]G_g \Delta H_{C2} + C_{Pg}G_g \Delta T_{ave} + C_{Pg}G_g \Delta T_g + C_{Pg}G_g \Delta T_g \tag{4}$$

用表1中代号代表式(4)中各热值或功率值,求 ΔT_{ave} 为

$$\Delta T_{ave} = \frac{\text{①} - \{\text{②} + \text{④} + \text{⑤}\}}{C_{Pg}G_g} \tag{5}$$

因此, ΔT_{ave} 可以作为衡量在高频高压交流电源下 DBD 等离子体反应器发热量的重要参数之一.

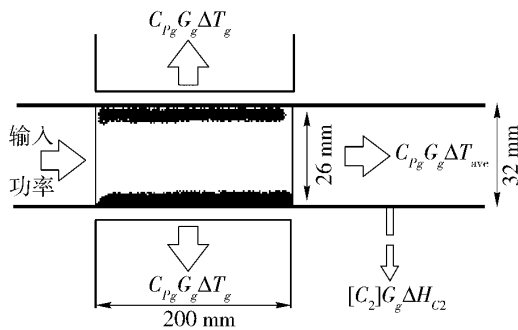


图9 输入能量分配

Fig. 9 Schematic description of input power distribution

表1 输入能量分配的数学表达式

Table 1 Summary of mathematical expressions of input power distribution

序号	名称	表达式
①	输入功率	P_{in}
②	反应热	$[C_2]G_g \Delta H_{C2}$
③	焓增加值	$C_{Pg}G_g \Delta T_{ave}$
④	金属传热	$C_{Pg}G_g \Delta T_g$
⑤	介质传热	$C_{Pg}G_g \Delta T_g$
⑥	辐射损失	可忽略
⑦	结焦物放热	可忽略
⑧	外界环境热损失	$Y = 0$ 或 $Y \neq 0$

4 结论

1) 常压下 DBD 非平衡等离子体耗能产生热量,是引起不必要的反应器温升的重要因素.尤其是现在等离子体反应器形式更为紧凑,而且多采用能量较高频率的电源,等离子体反应器发热的问题就更为严重.

2) 通过实验监测 DBD 温度变化情况,发现高频放电过程中, DBD 反应器温度随电压升高和时间延长而上升,它们之间呈非线性的关系; DBD 反应器温度随频率提高和时间延长而升高,温度变化与时间和频率呈现出一种线性关系; DBD 反应器温度随气体速度提高而降低,温度变化与气体速度变化呈现出一种线性关系.结果表明,高频交流高压电源并不适用于 DBD 反应器,由此可推知高频电源亦存在类似问题,故可考虑采用中频交流高压电源来作为 DBD 反应器的能量供给.

3) 探讨了温升所引起的热转移机理,得出 DBD 热变化表达式,建立了能量模型,并推导出 ΔT_{ave} 计算式.

参考文献:

- [1] 邵建设, 严萍. 高频高压交流电源应用于介质阻挡放电特性的研究[J]. 高电压技术, 2006, 32(3): 78-80.
SHAO Jian-she, YAN Ping. Application of high voltage and high frequency AC power in the experimental research of the discharge characteristics of coaxial DBD device[J]. High Voltage Engineering, 2006, 32(3): 78-80. (in Chinese)
- [2] KLEIN M, MILLER N, WALHOUT M. Time-resolved imaging of spatiotemporal patterns in a one-dimensional dielectric-barrier discharge system[J]. Physical Review E, 2001, 64(2): 026402.
- [3] DONG Li-fang, LI Xue-chen, YIN Zeng-qian. Self-organized filaments in dielectric barrier discharge in air at atmospheric pressure[J]. Chinese Physics Letter, 2001, 18(10): 1380-1382.
- [4] YIN Zeng-qian, DONG Li-fang, CHAI Zhi-fang. The temporal behavior of micro-discharge in dielectric barrier discharges[J]. Chinese Physics Letter, 2002, 19(10): 1476-1479.
- [5] AMMELT E, ASTROV Y A, PURWINS H G. Hexagon structures in a two-dimensional dc-driven gas discharge system[J]. Physical review E, 1998, 58(6): 7109-7115.
- [6] RADEHAUS C, WILLEBRAND H, DOHMEN R. Spatially periodic patterns in a dc gas-discharge system[J]. Physical review A, 1992, 45(4): 2546-2553.
- [7] HUR M S, LEE J K, KANG B K. New chaotic patterns in pulsed discharges[J]. Physics letters A, 2000, 276(5-6): 286-293.
- [8] 贺亚峰, 董丽芳, 尹增谦, 等. 介质阻挡放电中斑图的傅立叶分析[J]. 河北大学学报, 2003, 23(2): 137-140.
HE Ya-feng, DONG Li-fang, YIN Zeng-qian, et al. Fourier transform of pattern formation obtained in dielectric barrier discharge[J]. Journal of Hebei University, 2003, 23(2): 137-140. (in Chinese)
- [9] 竹涛, 梁文俊, 李坚, 等. 等离子体联合纳米技术降解甲苯废气的研究[J]. 中国环境科学, 2008, 28(8): 699-703.
ZHU Tao, LIANG Wen-jun, LI Jian, et al. Degradation of toluene in exhaust gas with plasma and nano-materials[J]. China Environmental Science, 2008, 28(8): 699-703. (in Chinese)
- [10] 竹涛, 李坚, 梁文俊, 等. 低温等离子体净化甲醛气体的实验研究[J]. 北京工业大学学报, 2008, 34(9): 971-976.
ZHU Tao, LI Jian, LIANG Wen-jun, et al. Decomposition of formaldehyde with non-thermal plasma[J]. Journal of Beijing University of Technology, 2008, 34(9): 971-976. (in Chinese)
- [11] 竹涛, 李坚, 梁文俊, 等. 非平衡等离子体联合技术降解甲苯气体[J]. 环境科学学报, 2008, 28(11): 2299-2305.
ZHU Tao, LI Jian, LIANG Wen-jun, et al. Toluene decomposition in a non-equilibrium plasma[J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2008, 28(11): 2299-2305. (in Chinese)
- [12] ZHU T, LI J, JIN Y Q, et al. Decomposition of benzene by non-thermal plasma processing: photocatalyst and ozone effect[J]. International Journal of Environmental Science and Technology, 2008, 5(3): 375-384.
- [13] ZHU T, LI J, JIN Y Q, et al. Gaseous phase benzene decomposition by non-thermal plasma coupled with nano-titania catalyst[J]. International Journal of Environmental Science and Technology, 2009, 6(1): 141-148.
- [14] ZHU Tao, LI Jian, LIANG Wen-jun, et al. Synergistic effect of catalyst for oxidation removal of toluene[J]. Journal of Hazardous Materials, 2009, 165(1-3): 1258-1260.

Thermal Study on DBD Reactor With Intermediate Frequency Voltage

ZHU Tao^{1,2}, LI Jian², WAN Yan-dong¹, LIANG Wen-jun², JIN Yu-quan²

(1. School of Chemical and Environmental Engineering, China University of Mining & Technology, Beijing 100083, China;

2. College of Environmental & Energy Engineering, Beijing University of Technology, Beijing 100124, China)

Abstract: Temperature in Dielectric barrier discharge (DBD) reactor increased obviously under high frequency alternating current (AC). The change trends of DBD temperature were tested. Heat transfer mechanism was established, and formula of energy distribution and ΔT_{ave} were deduced. The experimental results show that DBD temperature increased with voltage and time increasing in high frequency discharge and their relationships were non-linear. DBD temperature increased with frequency and time increasing, and with gas influent rate decreasing. All of these factors and DBD temperature presented linearity. At the end, there was a better foreground for application to industry or family of low frequency AC in the future.

Key words: dielectric barrier discharge; temperature; energy model; high frequency

(责任编辑 刘 潇)