

放电电场对 SO₂ 气相传质过程的影响

王祖武¹, 曾汉才¹, 梅欢², 吴冲²

(1 华中科技大学煤燃烧国家重点实验室, 湖北省武汉市 430074;

2 武汉大学资源环境学院环境工程系, 湖北省武汉市 430072)

The Influence of Electric Field with Discharge on the Gas Transfer Process of SO₂

WANG Zu-wu¹, ZENG Han-cai¹, MEI Huan², WU Chong²

(1. State Key Lab of Coal Combustion, Huazhong University of Science and Technology, Wuhan 430074, Hubei Province, China; 2. Department of Environmental Engineering, Wuhan University, Wuhan 430072, Hubei Province, China)

ABSTRACT: The gas transfer process of SO₂ in the corona discharging electric field is studied. The simulated experiment were conducted to research the main factors affecting the electric transfer of SO₂ and the desulfurization efficiency such as applied voltage, length and high of discharging area, etc.. The experimental results indicate that corona discharge can facilitate the gas transfer process of SO₂. The facilitation and the desulfurization efficiency go up with the increase of applied voltage, length of discharging area and unit energy consumption. Assistant uniform electric field below the corona discharging electric field helps to improve the effect of SO₂ electric transfer. The desulfurization efficiency may be over 95% and the increase of the desulfurization efficiency caused by corona discharge is nearly 50% under the test condition.

KEY WORDS: Flue gas desulfurization; Corona discharge; Electric transfer; SO₂ negative ion; Gas transfer

摘要: 研究了 SO₂ 在放电电场中的气相传质过程。通过模拟试验, 研究了外加电压、放电区长度、放电空间大小等与放电电场相关的参数对 SO₂ 电迁移和脱硫效率的影响。试验结果表明: 放电电场对 SO₂ 传质过程具有促进作用, 这种促进作用和系统脱硫效率随电压升高、放电区长度和单位能耗增加、放电空间减小而增加。放电电场之后的辅助匀强电场有助于改善 SO₂ 的电迁移效果。系统脱硫效率可达 95% 以上, 由放电电场促进 SO₂ 传质而引起的脱硫效率增量接近 50%。

关键词: 烟气脱硫; 电晕放电; 电迁移; SO₂ 负离子; 气相传质

1 引言

放电等离子体脱硫是目前干法脱硫技术研究的前沿。从电子束辐射、窄脉冲放电等离子体到电

基金项目: 国家自然科学基金项目 (50278072)。

Project Supported by National Natural Science Foundation of China(50278072)。

介质阻挡放电强电离等离子体, 国内外对等离子体加氨脱硫机理及其影响因素等作了大量深入的研究^[1-11], 但这些研究主要围绕高电子能量下的等离子体化学脱硫过程进行, 没有考虑 SO₂ 在低电子能量下的行为特性, 而正是由于脉冲电源性能及相对高的脱硫能耗限制了脉冲放电等离子体脱硫技术的实际应用。

本文旨在改变高能等离子体加氨脱硫的思路, 将等离子体和湿式水膜结合起来, 研究强电场放电对 SO₂ 传质过程的影响, 为实现低能耗等离子体脱硫提供一种新的思维方式。

2 SO₂ 在放电电场中的气相传质过程

2.1 SO₂ 扩散传质过程

在湿式液膜脱硫反应器中, SO₂ 在气体中的运动表现为热扩散运动, 遵守气体扩散规律, SO₂ 从浓度高的地方向浓度低的地方移动。扩散过程受气体状态的影响, 气体压力越高、温度越低, 扩散过程越弱; 浓度差越大, 扩散过程越强。如图 1 所示, 在没有电晕放电的 SO₂ 迁移过程中, SO₂ 完全通过扩散作用到达气液界面。由于气相主体中的 SO₂

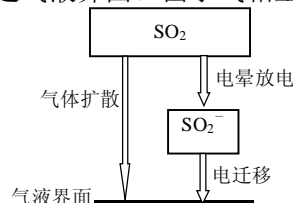


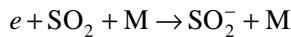
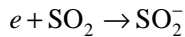
图 1 SO₂ 在放电电场中的气相传质过程

Fig. 1 Gas transfer process of SO₂ in corona discharge electric field

分压不高, 扩散传质速率低, 使得脱硫效果不好, 气膜阻力是 SO_2 吸收过程中的一个制约因素。

2.2 SO_2 电迁移传质过程

在湿式电晕放电脱硫系统中, 由于电晕放电, 在反应器气流空间中充满了大量的电子。这些电子与烟气分子碰撞, SO_2 分子俘获电子成为 SO_2^- 负离子。其形成过程可以表示为



其中, M 为第三体, 可以是 O_2 、 N_2 等。

由于反应器中电晕放电电场的存在, SO_2^- 在电场的作用下发生定向迁移, 从气流主体中分离出来而富积在充满吸收液的正极附近 (如图 1 所示), 从而改善了 SO_2 气相传质过程, 减小了 SO_2 传质的气膜阻力, 使气液界面上 SO_2 分压提高, 促进 SO_2 向液膜的传质。

SO_2^- 的迁移速度 w 与外加电场强度 E 有关, 可以表示为

$$w = kE$$

其中, k 为离子迁移率, 表示单位电场强度下的迁移速度。在标准状态下, SO_2^- 负离子的迁移率为 $0.41 \text{ cm} \cdot \text{s}^{-1} / \text{V} \cdot \text{cm}^{-1}$ 。

在电场中, SO_2^- 负离子的迁移运动和扩散运动同时存在, 根据爱因斯坦关系式^[12]

$$k/D = e/kT$$

可以得到

$$k/D = (1.16 \times 10^4) / T$$

式中 D 为扩散系数; T 为气体温度, K ; e 为电子电量, $1.6 \times 10^{-19} \text{ C}$; k 为玻耳兹曼常数, $1.38 \times 10^{-23} \text{ J/K}$ 。

因此, 在实验温度下, 离子迁移率比扩散系数大得多, SO_2^- 的主要运动形式为电场作用下的迁移运动。

(1) SO_2 电迁移量

SO_2 电迁移量 $Q_{e,t}$ 为放电条件下系统去除 SO_2 的量 Q_{e,SO_2} 和无放电条件下系统去除 SO_2 的量 Q_{d,SO_2} 的差, 即

$$Q_{e,t} = Q_{e,\text{SO}_2} - Q_{d,\text{SO}_2}$$

(2) 脱硫效率

脱硫效率 h 为反应器除去的 SO_2 量和进入反应器的 SO_2 量的比, 在试验条件下反应器的进出口气体量相同, 因此 h 可表达为

$$h = 1 - C_{o,\text{SO}_2} / C_{i,\text{SO}_2}$$

式中 C_{i,SO_2} 、 C_{o,SO_2} 分别为反应器进口、出口的 SO_2 浓度。

(3) 单位能耗

反应器的单位能耗 P 定义为

$$P = VI / Q_g$$

式中 V 为外加电压; I 为电晕电流; Q_g 为气体量。

3 试验装置

试验装置如图 2 所示。反应器是用有机玻璃做成的长方体结构, 反应器大小为 $940 \text{ mm} \times 40 \text{ mm} \times 90 \text{ mm}$ 。其上表面平行、均匀地布置有针状电极, 接地正极布置在有机玻璃反应器的外侧。由空气和 SO_2 配置的模拟烟气经流量计后进入反应器, 在反应器中 SO_2 在放电电场的作用下迁移到接地正极, 从反应器出来的尾气经尾气吸收装置后排放。为了减少 SO_2 的液膜传质阻力, 在接地极表面利用一定浓度的 NaOH 吸收液将扩散迁移到正极的 SO_2 吸收。吸收液用 PKs60-1 型自吸泵循环使用。试验电源为负高压电源。 SO_2 浓度采用德国 MRU 95/3 CD 型烟气分析仪进行测量。

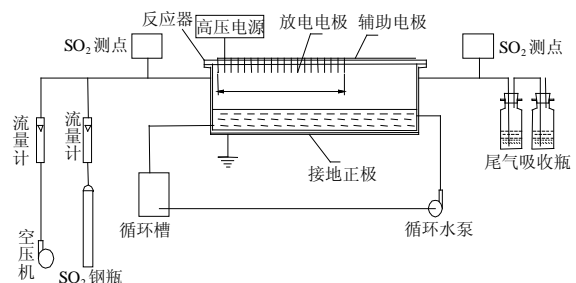


图 2 试验装置

Fig. 2 Experimental system

4 试验结果与分析

4.1 外加电压对 SO_2 传质过程的影响

外加电压 V 对脱硫效率 h 和 SO_2 电迁移量 $Q_{e,t}$ 的影响如图 3、图 4 所示。

由图 3、图 4 可以看出, 随电压的提高, 由于电晕放电作用而导致的 SO_2 电迁移量增加, 脱硫效率增加并达到 95%。由于电晕放电而增加的脱硫效率接近 50%。这是由于随电压的提高, 电场强度增加, 放电能力增强, 因此 SO_2 负离子数量增加, 库仑力增强, SO_2 向接地极移动速度增加, 从而使 SO_2 脱除量增加。当外加电压超过起晕电压后, 外加电压的增加使放电能力迅速增加, 外加电场对 SO_2 传质促进作用快速增长, SO_2 电迁移量增加迅速。这种增加, 在外加电压接近火花电压时, 达到最大。

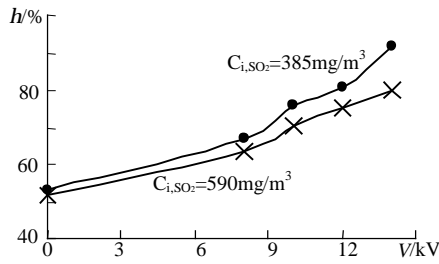


图3 外加电压对脱硫效率的影响
Fig. 3 Relation between applied voltage and desulfurization efficiency

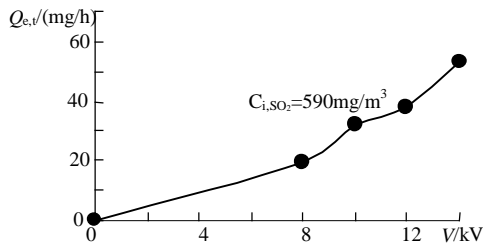


图4 外加电压对SO₂电迁移量的影响
Fig. 4 Relation between applied voltage and quality of SO₂ electric transfer

从图3可以看出,随着外加SO₂进口质量浓度增加,脱硫效率下降。在放电条件一定时,放电产生的电子数量维持不变;随着SO₂进口质量浓度增加,SO₂分子数增加,SO₂吸附电子形成的负离子增多,使SO₂电迁移量增大。另一方面,随着SO₂负离子增多,电场中空间电荷增加,反过来抑制电晕的发展,减小SO₂与电子作用形成负离子的几率。综合作用的结果,随SO₂进口浓度增加,脱硫效率下降。

4.2 放电区间长度对SO₂传质过程的影响

放电区间长度对脱硫效率 h 和SO₂电迁移量 $Q_{e,t}$ 的影响如图5、图6所示。

从图5、图6中可以看出,放电区间长度增加,从气体中电迁移出来的SO₂量大致呈线性增加,脱硫效率增加。这是因为放电区间长度增加,反应器内由于负高压放电产生的高能电子数增加,电子与SO₂碰撞结合的几率增加,SO₂⁻负离子量增加,从而使SO₂的电迁移量增加,脱硫效率增加;而在不

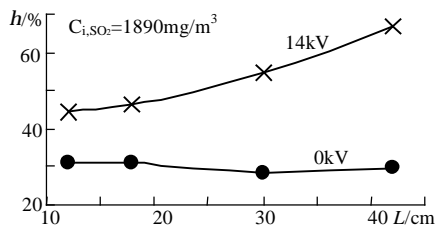


图5 放电区间长度对脱硫效率的影响
Fig. 5 Relation between length of discharging area and desulfurization efficiency

放电的情况下,由于SO₂主要依靠扩散向吸收液中传质,因而其传质量不随放电区段的长度发生变化。

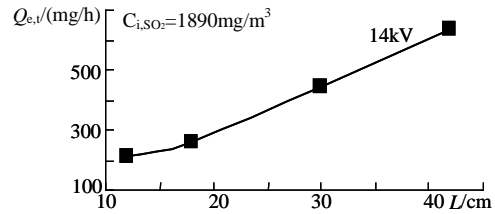


图6 放电区间长度对SO₂电迁移量的影响
Fig. 6 Relation between length of discharging area and quality of SO₂ electric transfer

4.3 放电空间 d 对SO₂传质过程的影响

放电空间 d 指反应器中吸收液的上表面和反应器上表面内侧之间的距离。放电空间的大小对脱硫效率的影响见图7。

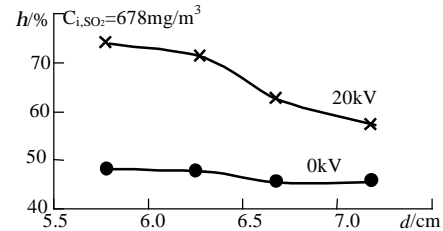


图7 放电空间对脱硫效率的影响
Fig. 7 Relation between high of discharging area and desulfurization efficiency

从图7中可以看出,反应器内放电空间减小,脱硫效率增加。反应器内放电空间减小,反应器中电场强度和电子浓度增大,形成的SO₂⁻浓度增加,电迁移作用增强,脱硫效率提高;同时,放电空间减小,气、液相传质距离缩短,也使脱硫效率增加;但放电空间过小,火花电压较低,电流和能耗较大,增加了操作控制的难度。

4.4 辅助匀强电场对SO₂传质过程的影响

为了证实荷电SO₂在强电场下的迁移行为,试验中在放电电场之后增加了由两平板电极组成的辅助匀强电场,平板电极一端与放电极同接在负高压电源,平板的另一端接地。其产生的SO₂电迁移结果如图8所示。

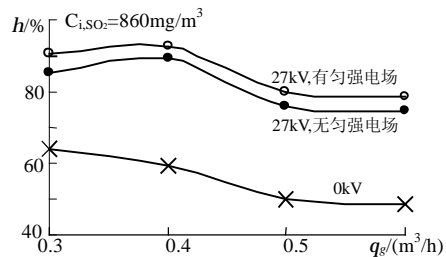


图8 辅助匀强电场对脱硫效率的影响
Fig. 8 Effect of assistant uniform electric field on desulfurization efficiency

如图8所示,在放电电场后增加的非放电电场可以提高SO₂迁移量和脱硫效率,这是因为在放电电场中已形成的SO₂负离子,在不放电的电场中仍然受到电场力的作用,电迁移到接地极后去除。

4.5 单位能耗对脱硫效率的影响

单位能耗对脱硫效率的影响如图9所示。

由图9可以看出,随着单位能耗增大,脱硫效率增加;当能耗低于1Wh/m³时,脱硫效率增加较快,脱硫效率可以达到81%;当能耗继续增加,脱硫效率的增长趋势减慢。这是因为输入的电功率增大,则两极间场强增强,电晕放电产生的电子数量增大,SO₂负离子数增加,使得SO₂向正极迁移能力增强,SO₂电迁移量增多,脱硫效率增加;当输入功率增加到一定程度后,放电产生的电子数量大大增加,由电子流动形成的电流增加很快,大部分能量消耗在迁移电子上,使得能耗增长很快,而脱硫效率增加缓慢;

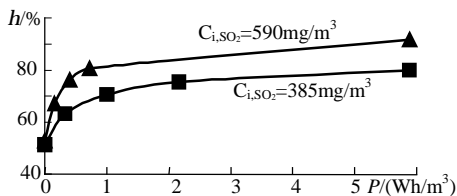


图9 单位能耗对脱硫效率的影响

Fig. 9 Relation between input power and desulfurization efficiency

由图9可以看出,脱硫效率达到80~85%时,其单位能耗为1~3Wh/m³,在可接受的3Wh/m³系统能耗水平内,低于高能等离子体处理时3~5Wh/m³的能耗^[13]。

5 结论

(1) 放电电场对SO₂的气相传质过程具有促进作用,可以通过电迁移的方式将SO₂从烟气中分离出来。

(2) 随外加电压的增加、放电区长度的增加、两极间放电空间的减小,脱硫效率增加,电晕放电对SO₂的传质促进作用增强。放电电场之后的辅助匀强电场有助于改善SO₂的电迁移效果。

(3) 单位能耗增加,脱硫效率增加。但能耗增加到一定程度后,脱硫效率增加减缓。

参考文献

[1] Young Sun Moka, In-Sik Namb. Modeling of pulsed corona discharge process for the removal of nitric oxide and sulfur dioxide[J]. Chemical

Engineering Journal, 2002, 85(1): 87-97.

- [2] Hyun-Ha Kim, Chunxi Wu, Youhei Kmoshita, et al. The influence of reaction condition on SO₂ oxidation in a discharge plasma reactor[J]. IEEE Trans. Ind. App., March/April, 2001, 37(2): 480-487.
- [3] Mizuno A, Clements J S, Davis R H. Combined treatment of SO₂ and high resistivity fly ash using a pulse energized electron reactor[C]. Proc. Ind. Int. Conf., Electrostatic Precipitation, Tokyo, Japan, 1984. 879-885.
- [4] Kuroki T, Takahashi M, Okubo M, et al. Single-stage plasma-chemical process for particulates, NO_x and SO_x simultaneous removal[J]. IEEE Trans. Ind. App., 2002, 38 (5): 1204-1209.
- [5] Park J J Y, Chang J S. Simultaneous removal of NO_x and SO₂ from NO-SO₂-CO₂-N₂-O₂ gas mixtures by corona radical shower systems [J]. J. Phys. D: April. Phys., 1999, 32(9): 1007-1011.
- [6] Yan K, Higashi D, Kanazawa S, et al. NO_x removal from air streams by a superimposed AC/DC energized flow stabilized streamer corona[J]. Trans. IEE Japan, 1998, 118-A(9): 998-1011.
- [7] 林赫, 高翔, 骆仲决, 等. 直流电晕自由基簇射脱除烟气中的NO_x[J]. 中国电机工程学报, 2002, 22(8): 150-155.
Lin He, Gao Xiang, Luo Zhongyang, et al. Removing NO_x from flue gas by means of radical showering induced by DC corona [J]. Proceedings of the CSEE, 2002, 22(8): 150-155.
- [8] 杨亚平, 黄蕙芬, 张浩康, 等. 复合阴极材料电子发射特性的基础研究[J]. 中国电机工程学报, 2000, 20(3): 53-55.
Yang Yaping, Huang Huifen, Zhang Haokang, et al. Basic research on the emittance characteristics of synthetic cathode[J]. Proceedings of the CSEE, 2000, 20(3): 53-55.
- [9] 赵君科, 任先文, 王保健, 等. 脉冲电晕等离子体法烟气脱硫脱硝技术进展[J]. 四川环境, 2000, 19(4): 6-15.
Zhao Junke, Ren Xianwen, Wang Baojian, et al. Flue gas DeSO₂/DeNO_x progress by PPCP[J]. Sichuan Environment, 2000, 19(4): 6-15.
- [10] 白希尧, 张芝涛, 白敏. 气体放电非平衡等离子体化学脱硫脱硝理论基础研究[J]. 工业安全与防尘, 2000, (9): 14-17.
Bai Xiyao, Zhang Zhitao, Bai Min. Basic research to the chemical reaction process of the nonequilibrium plasma of removal of SO₂ and NO_x with ionization discharge[J]. Industrial Safety and Dust Control, 2000, (9): 14-17.
- [11] 李焕汤, 余岳辉, 胡乾, 等. RSD开关在脉冲电源中的应用研究[J]. 中国电机工程学报, 2003, 23(11): 23-28.
Li Huantang, Yu Yuehui, Hu Qian, et al. Research of applying the switch RSD to pulsed power supply[J]. Proceedings of the CSEE, 2003, 23(11): 23-28.
- [12] 杨津基. 气体放电[M]. 科学出版社, 1983.
- [13] 刘书海. 等离子体烟气脱硫现状与关键问题讨论[J]. 环境科学, 1996, 17 (2): 86-89.
Liu Shuhai. Discussions on key problems of plasma-catalysis flue gas desulfurization[J]. Environmental Science, 1996, 17 (2): 86-89.

收稿日期: 2005-09-08。

作者简介:

王祖武(1962-), 男, 博士研究生, 副教授, 研究方向烟气除尘、脱硫及脱氮。

(编辑 贾瑞君)