

УДК 533.9.02

Исследование энергетической цены синтеза озона в ячейках поверхностного диэлектрического барьерного разряда

В.В. Андреев, Л.А. Васильева, Ю.П. Пичугин

Исследована энергетическая цена синтеза озона в ячейке поверхностного диэлектрического барьерного разряда (ДБР). Разряд возникает на поверхности пластины из стеклотекстолита размерами 100x100 мм вдоль границ расположенных с определённым шагом параллельно друг другу прямоугольных полос-электродов. Проведены исследования с пластинами с различным шагом следования прямоугольных полос-электродов. Результаты исследования показывают важность учёта геометрии ячейки поверхностного ДБР для получения оптимальной с точки зрения минимизации энергозатрат пространственно-временной конфигурации электрического поля.

PACS: 52.80.Tn

Ключевые слова: микроразряд, диэлектрический барьерный разряд, плазмохимический генератор, синтез озона, оптимальная пространственно-временная конфигурация электрического поля.

Введение

Целью работы является исследование возможности снижения энергетической цены синтеза озона в поверхностном диэлектрическом барьерном разряде (ДБР) за счёт создания в разрядной ячейке оптимальной для реакции синтеза озона конфигурации электрического поля путём подбора геометрических размеров электродов. Следует отметить, что ДБР представляет интерес не только с точки зрения синтеза озона. В настоящее время интенсивно развивается целый ряд технологий, основанных на применении приповерхностной плазмы, генерируемой в разрядных ячейках ДБР [1–9].

При генерировании приповерхностной плазмы в поверхностном диэлектрическом барьерном разряде важное значение имеет создание такой пространственной конфигурации электрического поля, которая оптимальна с точки зрения минимизации энергозатрат на осуществление соответствующего плазменного или плазмохимического процесса [10–12]. Например, в работе [10] отмечено, что в случае синтеза озона в электрическом разряде в чистом кислороде или в воздухе необходимы свободные электроны лишь определённых энергий, а именно, от 6 до 12 эВ.

Динамика процессов пробоя и формирования канала микроразряда в поверхностном барьерном разряде в чистом кислороде при атмосферном давлении проанализирована в работе [13]. Здесь показано, что пробой газо-

вого промежутка завершается формированием катодного слоя, который как источник электронов поддерживает формирование канала микроразряда над диэлектриком.

Важность геометрии разрядного электрода в виде ряда параллельных полос была отмечена ранее также в работе [14]. В указанной работе в случае высокочастотного поверхностного разряда показано, если расстояние между отдельными металлическими полосами в сетке превышает 5 мм, то возникает инфракрасное излучение. Это свидетельствует о наличии излучения тепла. В то же время в процессах генерации озона, например, выделение тепла крайне нежелательно, так как с повышением температуры возрастает скорость реакций разложения озона [5, 8].

Экспериментальные исследования

В работе исследования проведены с разрядной ячейкой поверхностного ДБР, представляющей собой герметически закрытый прямоугольный параллелепипед размерами 100x100x5 мм, в котором имеются входной патрубок для подачи воздушного потока и выходной патрубок для вывода воздушного потока обратно в атмосферу. В разрядной ячейке размещена пластина из стеклотекстолита размерами 100x100 мм, схематический вид которой представлен на рис. 1. Поверхностный барьерный разряд возникает и развивается на одной из поверхностей пластины из стеклотекстолита вдоль границ расположенных на ней с определённым шагом параллельно друг другу прямоугольных полос – электродов из фольги толщиной 35 мкм. Таким образом, электроды из фольги шириной r_0 на поверхности стеклотекстолита толщиной d представляют собой параллельный ряд одноимённо заряженных полос, т.е. все полосы подсоединены к одной и той клемме высоковольтного источника переменного напряжения. Расстояние между центрами соседних полос равно a . Противоположная поверхность стеклотекстолита облицована фольгой толщиной 35 мкм, которая подсоединена к другой клемме высоковольтного источника переменного напряжения.

Андреев Всеволод Владимирович, доцент, заведующий кафедрой.

Васильева Людмила Анатольевна, старший преподаватель.

Пичугин Юрий Петрович, доцент.

Чувашский государственный университет имени И.Н. Ульянова.

Россия. 428015, г. Чебоксары, Московский пр., 15.

Тел.: 8-9022870512.

E-mail: andreev_vsevolod@mail.ru

Статья поступила в редакцию 21 мая 2014 г.

© Андреев В.В., Васильева Л.А., Пичугин Ю.П., 2014

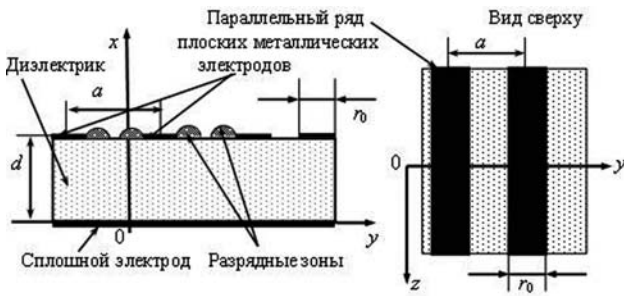


Рис. 1. Разрядная ячейка поверхностного барьерного разряда. Ось z направлена к нам.

Полосы-электроды получены путём химического травления фольгированной поверхности стеклотекстолита. Поэтому края полос-электродов на поверхности стеклотекстолита были ровные. В экспериментах был использован стеклотекстолит с толщинами d 0,5 и 1 мм. Ширина отдельной полосы-электрода r_0 в разных экспериментах была равна 1 и 2 мм. В экспериментах использовались стеклотекстолиты с расстояниями между центрами соседних полос-электродов на их поверхности от 1,3 до 8,5 мм.

В ходе экспериментов на электроды подавались напряжения с действующими значениями от 1 кВ до 7,5 кВ от высоковольтного источника переменного напряжения частотой 50 Гц.

Эксперименты проводились в воздухе при атмосферном давлении. Температура в помещении составляла 18 °С, а относительная влажность воздуха – 67%. Через разрядную камеру прогонялся атмосферный воздух компрессором через патрубки (поток составлял 100 л/ч). После его обработки поверхностным ДБР образовавшаяся озono-воздушная смесь прокачивалась через измеритель концентрации озона и выводилась в окружающую атмосферу.

Измерение концентрации озона в выходном воздушном потоке осуществлялась ультрафиолетовым оптическим газоанализатором фона модели «Циклон-5.11».

Напряжения измерялись высоковольтным вольтметром системы С-196 класса точности 1. Измерения силы тока осуществлялись милливольтметром марки ВЗ-42/45.

Вольт-амперные характеристики разрядной ячейки ДБР, а также количество синтезируемого озона на выходе камеры измерялись после выхода системы на устойчивый установившийся режим.

Вдоль границ полос-электродов, где напряжённость электрического поля достигает наибольших значений, возникает поверхностный ДБР, если напряжённость электрического поля превзойдёт критическую величину. Для воздуха при нормальных условиях эта величина равна $E_{кор} = 3,1 \cdot 10^6$ В/м [15].

Результаты и их анализ

Существенным фактором, определяющим эффективность плазмохимического процесса, является пространственно-временная конфигурация электрического поля. Для каждой плазмохимической реакции существует оптимальный электрический режим, соответствующий минимальным энергозатратам. Так, реакция синтеза озона протекает наиболее эффективно в электрических полях с напряжённостями от $E_1 = 1,5 \cdot 10^6$ В/м до $E_2 = 2,5 \cdot 10^6$ В/м [16]. Такие электрические поля соответствуют условиям наиболее эффективной диссоциации молекул кислорода.

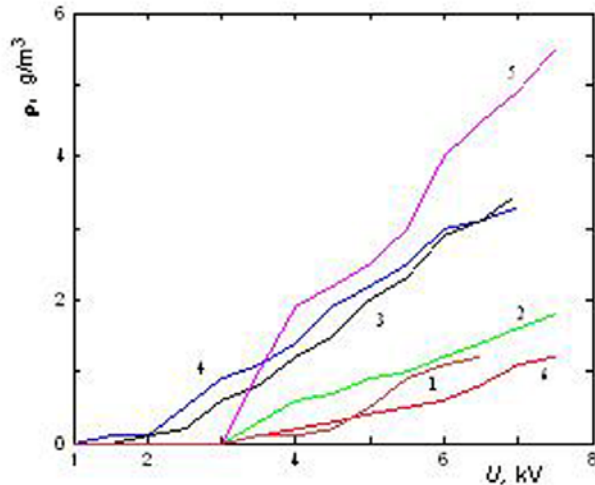
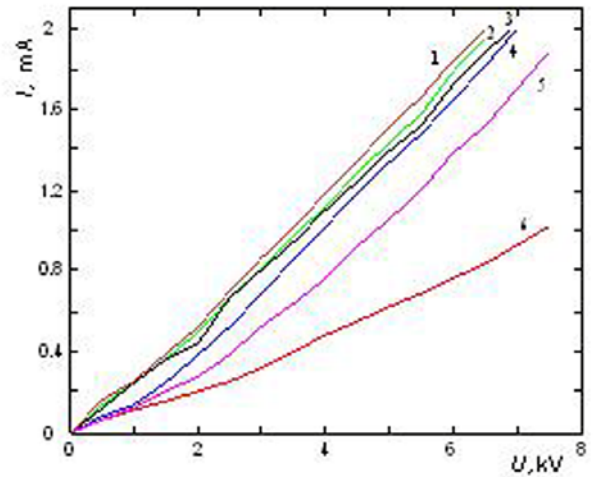


Рис. 2. Вольт-амперная характеристика разрядной ячейки размером 10x10 см и зависимость концентрации озона от действующего значения напряжения на электродах: кривая 1 – $d = 0,5$ мм, $r_0 = 1$ мм, $a = 1,3$ мм; 2 – $d = 0,5$ мм, $r_0 = 1$ мм, $a = 1,7$ мм; 3 – $d = 0,5$ мм, $r_0 = 1$ мм, $a = 4,5$ мм; 4 – $d = 0,5$ мм, $r_0 = 1$ мм, $a = 3,7$ мм; 5 – $d = 0,5$ мм, $r_0 = 1$ мм, $a = 8,5$ мм; 6 – $d = 1$ мм, $r_0 = 2$ мм, $a = 3,5$ мм.

На рис. 2 представлены вольт-амперные характеристики ячейки ДБР, а также зависимости плотности ρ вырабатываемого озона в выходном воздушном потоке от действующего значения напряжения на электродах, полученные при питании разрядной ячейки от переменного источника напряжения частоты $\nu = 50$ Гц. При умножении величины ρ на множитель 0,1 получается количество озона в граммах, вырабатываемый установкой в течение часа. Вольт-амперные характеристики позволяют рассчитать активную мощность разряда по формуле [17]:

$$P = (\bar{I} - \bar{I}_1) \cdot U_d. \quad (1)$$

Здесь \bar{I} – средний ток, при котором рассчитывается мощность; \bar{I}_1 – средний ток зажигания разряда; U_d – напряжение горения разряда. В соответствии с работами [5, 17], в качестве величины напряжения необходимо брать его мгновенное значение. Следует отметить, на рис. 2 по осям отложены действующие значения напряжения и тока. В соответствии с выкладками, приведёнными в работе [5], средний и эффективный токи связаны так:

$$\bar{I} = \frac{2\sqrt{2}}{\pi} I. \quad (2)$$

Средний ток зажигания разряда \bar{I}_1 по вольт-амперной характеристике определяется так: находим величину тока I_1 , соответствующую ординате точки излома конкретной кривой, и подставляем её в формулу (2). Напряжение U_d , в соответствии с [5, 17], находится как точка пересечения с осью абсцисс продолжения прямой линии вольт-амперной характеристики, соответствующей горению разряда. Если по оси абсцисс отложены действующие значения напряжения, то найденная величина умножается на $\sqrt{2}$.

По экспериментальным данным, приведённым на рис. 2, на основе формулы (1) была рассчитана энергия, затрачиваемая на синтез одной молекулы озона. Результаты представлены на рис. 3. Звёздочками на кривых обозначены точки, соответствующие экспериментальным данным.

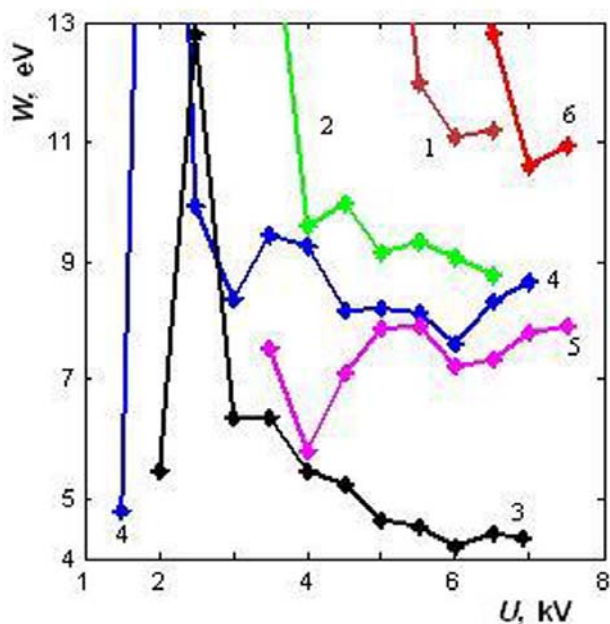


Рис. 3. Зависимость энергии, затрачиваемой на синтез одной молекулы озона, от действующего значения напряжения на электродах разрядной ячейки. Нумерация кривых соответствует нумерации кривых на рис. 2.

Из анализа рис. 3 можно сделать вывод, что среди исследованных случаев оптимальным является режим, соответствующий кривой 3. Здесь при действующих значениях напряжения, превышающих 4,5 кВ, энергия, затрачиваемая на синтез одной молекулы озона, приближается к величине 4 эВ. Анализ влияния разнообразных факторов на энергетическую цену образования молекулы озона имеется в работах [5, 8], в которых отмечено, что в барьерном разряде в воздухе энергетическая цена синтеза молекулы озона может достигать минимальных значений в 3–4 эВ. Так, в работе [5] отмечено: «Более правильно, на наш взгляд, говоря о теоретически минимальных затратах, никак не связывать их с механизмом, а считать, что они соответствуют теплоте образования озона, равной 1,48 эВ/молек.». В перечисленных работах [5, 8] отмечено также значительное влияние пространственно-временной конфигурации электрического поля на энергетическую цену синтеза озона.

Энергетическая цена W снижается по мере увеличения действующего значения напряжения на электродах, достигая ~9 эВ на молекулу озона при 6,5 кВ. В случае

условий, соответствующих кривой 5 на рис. 3, максимальная энергетическая цена синтеза молекулы озона составляет ~8 эВ при действующих значениях напряжения от 5 кВ до 7,5 кВ. Однако здесь наблюдаются провалы при напряжениях 4 кВ и 6 кВ, в которых энергетическая цена синтеза молекулы озона достигает ~5,8 эВ и ~7 эВ, соответственно. Кроме того, кривая 5 на зависимости $\rho(U)$ на рис. 2 показывает, что в этом режиме работы разрядной ячейки достигается наилучший результат по количеству вырабатываемого озона (0,55 г в течение часа при $U = 7,5$ кВ). В случае кривой 4 при действующем значении напряжения $U = 1,5$ кВ достигается энергетическая цена ~4,8 эВ на синтез молекулы озона. Затем по мере роста U величина W резко возрастает до значений ~27 эВ при $U = 2$ кВ. Затем наблюдается резкое падение W до величины ~8,5 эВ при $U = 3$ кВ. При дальнейшем повышении действующего значения напряжения U кривая 4 на рис. 3 ведёт себя аналогично кривой 5, но проходит чуть выше. Похожим образом с кривой 4 ведёт себя кривая 3 на рис. 3. Однако здесь величина скачка W при малых значениях U гораздо ниже (от величины ~5,5 эВ при $U = 2$ кВ до ~13 эВ при $U = 2,5$ кВ). Максимальная погрешность эксперимента не превышала 5%.

Заключение

Результаты исследования показывают важность учёта геометрии ячейки поверхностного барьерного разряда для генерации оптимальной пространственно-временной конфигурации электрического поля. В конечном итоге, можно добиться существенного снижения энергетической цены плазмохимического синтеза. Результаты представляют интерес, так как барьерный разряд является одним из эффективных способов создания неравновесной плазмы при высоких давлениях для разнообразных технологических применений.

Литература

1. Погребняк А.Д., Тюрин Ю.Н. // УФН. 2005. Т. 175. № 5. С. 515.
2. Погребняк А.Д., Кислицын С.Б., Комаров Ф.Ф. и др. // Поверхность. 2009. № 1. С. 96.
3. Шибков В.М., Александров А.Ф., Еришов А.П. и др. // Физика плазмы. 2005. Т. 31. № 9. С. 857.
4. Шибков В.М., Александров А.Ф., Еришов А.П. и др. // Вестник Московского университета. Серия 3. Физика. Астрономия. 2004. № 5. С. 67.
5. Лунин В.В., Попович М.П., Ткаченко С.Н. Физическая химия озона. – М.: Изд-во МГУ, 1998.
6. Андреев В.В., Васильева Л.А., Кравченко Г.А., Пичугин Ю.П., Филиппов В.Г. // Нелинейный мир. 2009. Т. 7. № 11. С. 811.
7. Андреев В.В., Васильева Л.А., Матюнин А.Н., Пичугин Ю.П. // Прикладная физика. 2011. № 1. С. 52.
8. Самойлович В.Г., Гибалов В.И., Козлов К.В. Физическая химия барьерного разряда. – М.: Изд-во МГУ, 1989.
9. Cieplak T., Yamabe C., Olchowik J.M., Ozonek J. // Materials Science- Poland. 2006. V. 24. No. 4. P. 1087.
10. Соколова М.В. // Электричество. 2011. № 7. С. 15.
11. Kogelschatz U. // IEEE Transactions on plasma science. 2002. V. 30. No. 4. P. 1400.
12. Кривов С.А., Ларин В.С., Соколова М.В. и др. // Письма в ЖТФ. 2010. Т. 36. № 3. С. 8.
13. Гибалов В.И., Ткаченко И.С., Лунин В.В. // Журн. Физ. химии. 2008. Т. 82. № 6. С. 1156.

14. Калинин А.В., Козлов М.В., Панюшкин В.В.// Известия Академии Наук. Энергетика. 1993. № 4. С. 45.
 15. Райзер Ю.П. Физика газового разряда. – М.: Наука, 1987.
 16. Соколова М.В.// Известия Академии Наук СССР. Энергетика

- и транспорт. 1983. № 6. С. 99.
 17. Емельянов Ю.М., Филиппов Ю.В.// Журн. физ. химии. 1959. Т. 33. № 5. С. 1042.

Investigation of the energy cost of ozone synthesis in the cells of surface dielectric barrier discharge

V. V. Andreev, L. A. Vasilyeva, and Yu. P. Pichugin

Chuvash State University,
 15 Moskovskii av., Cheboksary, 428015, Russia
 E-mail: andreev_vsevolod@mail.ru

Received May 21, 2014

The energy cost of ozone synthesis in the cells of surface dielectric barrier discharge (DBD) is investigated. The discharge occurs on surface of fiberglass laminate plate of 100x100 mm size along the boundaries of located with certain step of parallel rectangular strips-electrodes. Studies with plates with different step of following of rectangular strips-electrodes are made. Research results show the importance of geometry of surface DBD cells for obtaining of optimal in terms of minimizing of energy costs of spatio- temporal configuration of the electric field.

PACS: 52.80.Tn

Keywords: micro-discharge, dielectric barrier discharge, plasma-chemical generator, ozone synthesis, optimal spatio- temporal configuration of the electric field.

References

1. A. D. Pogrebnyak and Yu. N. Tyurin, Usp. Phys. **175**, 515 (2005).
2. A. D. Pogrebnyak, S. B. Kislitsin, F. F. Komarov, et al., J. Surf. Invest.: X-ray, Synchrotron Neutron Tech., No. 1, 96 (2009).
3. V. M. Shibkov, A. F. Aleksandrov, A. P. Ershov, et al., Plasma Phys. Rep. **31**, 857 (2005).
4. V. M. Shibkov, A. F. Aleksandrov, A. P. Ershov, et al., Plasma Phys. Rep. **31**, 857 (2005).
5. V. V. Lunin, M. P. Popovich, and S. N. Tkachenko, *Physical Chemistry of Ozone* (MGU, Moscow, 1998) [in Russian].
6. V. V. Andreev, L. A. Vasil'eva, G. A. Kravchenko, et al., Nelineinyi Mir, **7**, 811 (2009).
7. V. V. Andreev, L. A. Vasil'eva, A. N. Matyunin, et al., Prikladnaya Fizika, No. 1, 52 (2011).
8. V. G. Samoilovich, V. I. Gibalov, and K. V. Kozlov, *Physical Chemistry of a Barrier Discharge* (MGU, Moscow, 1989) [in Russian].
9. T. Cieplak, C. Yamabe, J. M. Olchowik, et al., Materials Science- Poland, **24**, 1087 (2006).
10. M. V. Sokolova, Elektrichestvo, No. 7, 15 (2011).
11. U. Kogelschatz, IEEE Transactions on Plasma Science **30**, 1400 (2002).
12. S. A. Krivov, V. S. Larin, M. V. Sokolova, et al., Tech. Phys. Lett. **36**, 68 (2010).
13. V. I. Gibalov, I. S. Tkachenko, and V. V. Lunin, Russ. J. Phys. Chem. A. **82**, 1156 (2008).
14. A. V. Kalinin, M. V. Kozlov, and V. V. Panyushkin, Izv. Akad. Nauk, Energetika, No. 4, 45 (1993).
15. Yu. P. Raizer, *Physics of Gas Discharge* (Nauka, Moscow, 1987) [in Russian].
16. M. V. Sokolova, Izv. Akad. Nauk, Energetika, No. 6, 99 (1983).
17. Yu. M. Emel'yanov and Yu. V. Filippov, Russ. J. Phys. Chem. A. **33**, 1042 (1959).