

# ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ ИССЛЕДОВАНИЯ ПЛАЗМЫ МНОЖЕСТВЕННЫХ МИКРОРАЗРЯДОВ В ЗАГРУЗКЕ ИЗ ПРОВОДЯЩИХ ГРАНУЛ

М. С. Родионова, Д. Д. Медведев

Национальный исследовательский центр «Курчатовский институт»

Для проведения химических реакций с высоким активационным барьером используют комбинацию плазмы и каталитической поверхности. Плазма, в этом случае, не только генерирует исходные активные частицы, запускающие требующуюся последовательность химических реакций и позволяющие селективно получать целевые продукты, но и взаимодействует с катализатором, активируя и/или регенерируя активные центры на его поверхности. Эффективность плазменного катализа зависит от выбранной комбинации используемого электрического разряда и типа катализатора, а реализуется процесс в реакторах со слоем загрузки. Наиболее распространено использование поверхностного и диэлектрического барьерного разрядов – типичные схемы таких реакторов представлены на рис. 1.

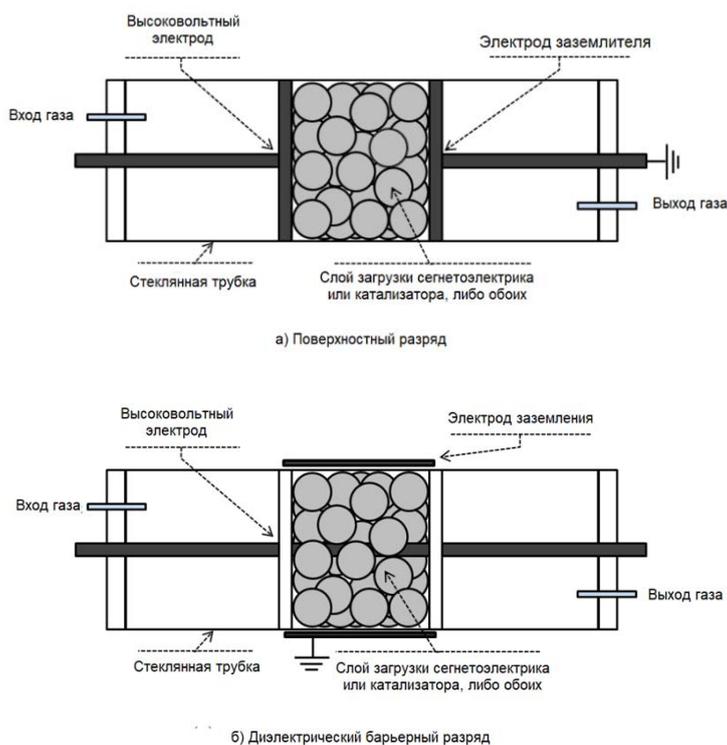


Рис. 1. Типичные схемы реакторов, использующихся для проведения реакций плазменного катализа [1]

Как видно из рисунка, в качестве загрузки используются гранулы, или катализатора, или сегнетоэлектрика или их комбинация. В обоих случаях (для поверхностного и для диэлектрического барьерного разрядов) существенную роль играют диэлектрические свойства материала гранул, способствующие формированию скользящего разряда вдоль их поверхности.

Согласно исследованию [2] производительность реактора с загрузкой из сегнетоэлектрика ( $\text{BaTiO}_3$ ), в котором использовался диэлектрический барьерный разряд, зависит от диэлектрической проницаемости и материала гранул загрузки. Удельная диэлектрическая проницаемость напрямую

влияет на потребляемую мощность, начальное напряжение микроразряда и собственно количество микроразрядов, зажигающихся между гранулами.

В другом исследовании [3] влияния диэлектрических свойств гранул на свойства разряда в реакторе со слоем загрузки на примере гранул иттрий стабилизированного циркония в реакторе с единичным катализатором было показано, что при взаимодействии плазмы с гранулами загрузки имеет место изменение разряда. В эксперименте разряд переходил от стабильного стримерного в полярный при постоянном напряжении в продолжительном временном промежутке. Это сопровождалось разрушением поверхности гранул из-за электрохимического окисления, проявляющегося как появление черного кольца (рис. 2). При первичном включении плазмы разряд зажигается в режиме стабильного стримерного разряда, а при повторном включении той же загрузки разряд становится полярным.

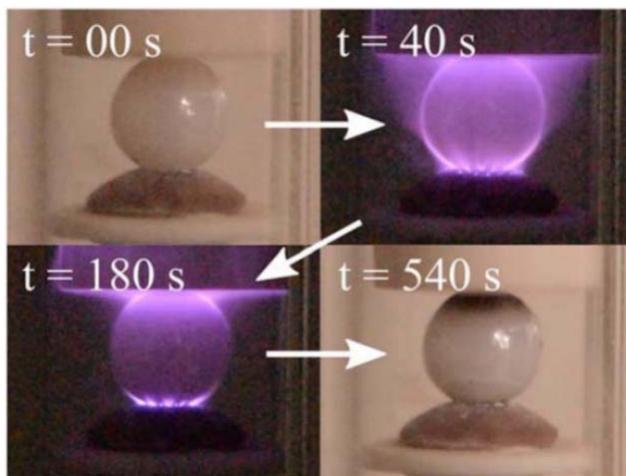


Рис. 2. Разрушение поверхности гранулы иттрий стабилизированного циркония [3]

Неизбежная деградация поверхности является существенным недостатком реакторов, производительность которых зависит в первую очередь от диэлектрической проницаемости гранул. Она быстро снижает эффективность работы реактора и приводит к остановке необходимого процесса.

Другой способ для проведения реакций плазменного катализа – это генерация разряда в непосредственной близости к поверхности [4]. На рисунке 3 показана серия изображений тлеющего разряда в воздухе при увеличении зазора между электродами.

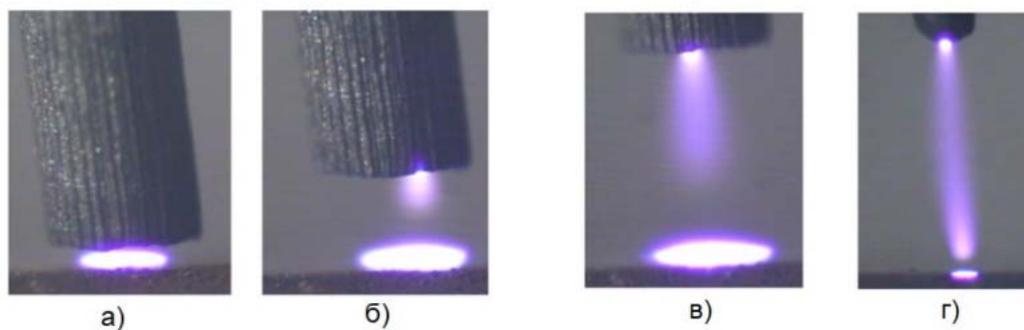


Рис. 3. Изображения тлеющего разряда при атмосферном давлении при зазоре между электродами в а – 0,1 мм б – 0,5 мм, в – 1 мм и г – 3 мм [4]

На изображениях а-в были взяты при одинаковом увеличении, для изображения г увеличение уменьшили. При условиях эксперимента – подача высокого напряжения (385, 340, 505 и 780 соответственно), ограничения тока резистором, – и постепенном уменьшении зазора между электродами, тлеющий разряд вырождается в микроразряд, состоящий практически из одного катодного слоя

в отличие от других разрядов, где ясно видны яркие и темные области тлеющего разряда низкого давления. Самым серьезным ограничением применения этого подхода на практике является малая мощность микроразряда. Однако, возможно его дальнейшее масштабирование за счет организации множественных микро-разрядов в среде из проводящих гранул, что и является целью настоящей работы.

В отличие от упомянутых выше исследований, где производительность реактора зависела от диэлектрических свойств и тока смещения, в настоящей работе таковым фактором является проводимость гранул. Т. о. протекание тока и зажигание микро-разрядов в точках контакта и в малых зазорах между гранулами, а балластным резистором выступало эффективное сопротивление гранул.

Первые эксперименты были проведены для реактора, в котором электродная система состояла из двух параллельных проволок, погруженных в среду из проводящих гранул (рис. 4).

Длина проволок составляла 5 см и расстояние между ними 4 см. Загрузка реактора – гранулы  $Al_2O_3$ , покрытые пленкой молотого активированного угля, со средним диаметром – 3 мм. Результаты эксперименты представлены на рис. 5.



Рис. 4. Геометрия «проволока на проволоку»

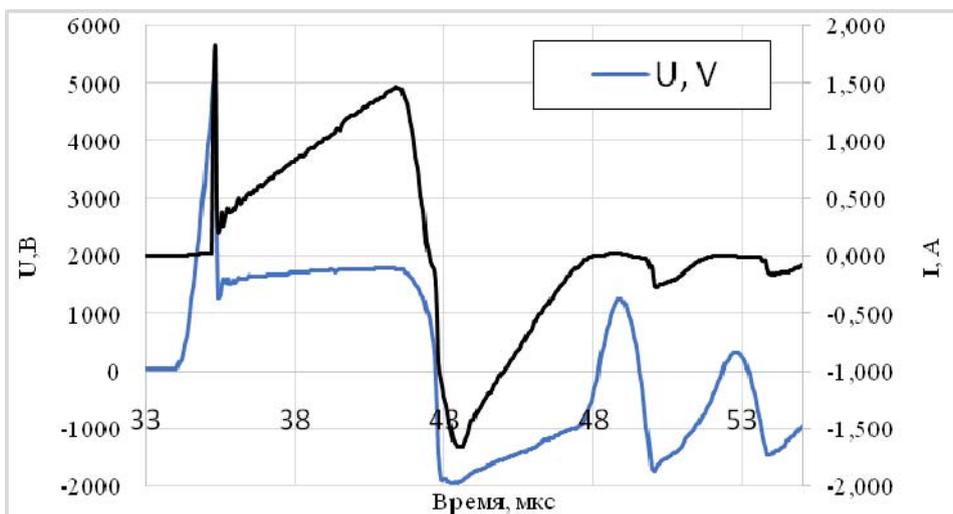


Рис. 5. Осциллограмма напряжения и тока для геометрии «проволока на проволоку»

Из осциллограммы следует, что в фазе горения разряда (время от пробоя – от 35 до 42 мкс) при быстром нарастании тока заметен лишь небольшой рост напряжения. Следовательно, можно сделать вывод о том, что основное падение напряжение приходится именно на плазменные зазоры, а не на проводящий слой угля.

В ходе эксперимента оказалось, что геометрия «проволока на проволоку» неоптимальна из-за образования углеродных дорожек между электродами, которые приводили к их закорачиванию. Для проведения дальнейших экспериментов использовался реактор с цилиндрической геометрией (рис. 6), в котором высоковольтный электрод располагается в центре кварцевой трубы, а заземленным служит нагревательная спираль, намотанная на поверхность трубы. Таким образом, образуемый диэлектрический барьер ограничивает локальную плотность тока и препятствует быстрой закоротке электродов наработанным проводящим слоем. В качестве системы теплоизоляции выступают два газовых зазора между кварцевыми трубами (внешний заполнен воздухом, внутренний – аргонном).

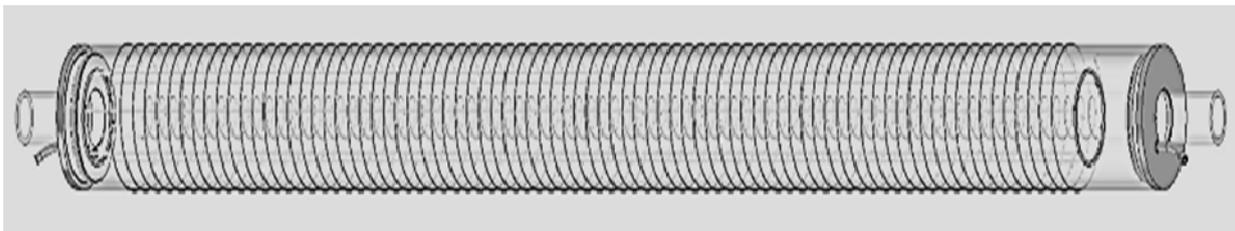


Рис. 6. Внешний вид реактора с цилиндрической геометрией

Особенностью реактора является подвижность высоковольтный электрода. Смещая электрод, возможно сместить гранулы и удалить наработанный проводящий слой выдуванием протоком газа и т. о. получить «относительно» свежую загрузку.

Для сравнения «свежей» (индекс – 1) и «наработанной» (индекс – 2) загрузок использовалась цилиндрическая геометрия. Из осциллограмм по следующим формулам были выведены другие электрические параметры, важные для исследования микроарзряда:

– емкостной ток (где  $C$ , электрическая емкость электродной системы, равная 290 Пф для свежей загрузки и 440 Пф для наработанной).

$$I_c = C \cdot \frac{dU}{dt} \quad (1)$$

– ток разряда

$$I_p = I - I_c \quad (2)$$

– протекший заряд

$$Q = \int_0^t I_p dt \quad (3)$$

– напряжение на кварцевом зазоре, где  $C_{кв}$  – электрическая емкость кварцевого зазора

$$U_{кв} = \frac{Q}{C_{кв}} \quad (4)$$

– истинное напряжение разряда

$$U_{ист} = U - U_{кв} \quad (5)$$

– мгновенная проводимость загрузки

$$\bar{R} = \frac{I_p}{U_{ист}} \quad (6)$$

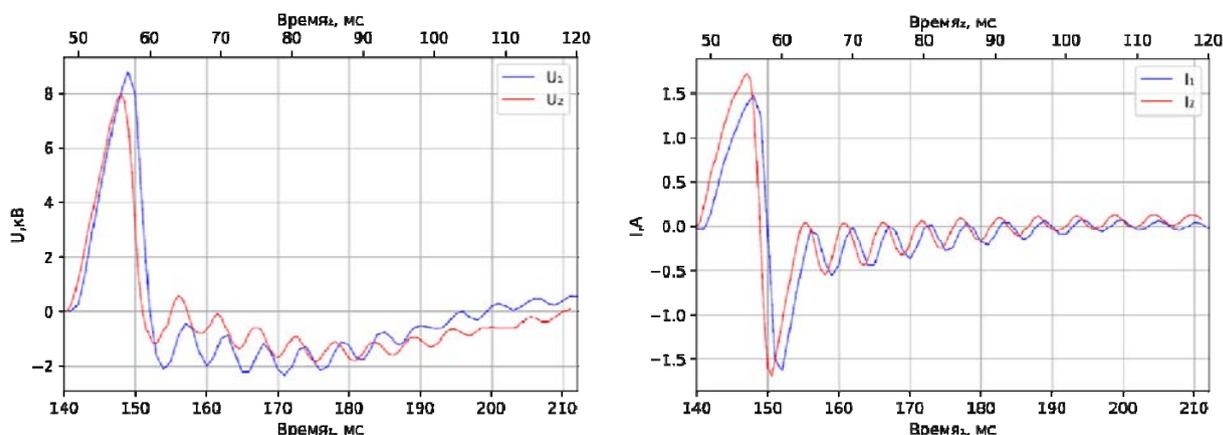


Рис. 7. Графики напряжения и тока для свежей и «наработанной» загрузок

Из рисунков следует, что в наработанной загрузке напряжение разряда уменьшается, а ток – увеличивается, что свидетельствует о каталитической активности наработанного углерода. Существенные результаты показаны на рисунке 9 – увеличился емкостной ток  $I_c$ , значительно уменьшились протекший разряд  $Q$  и истинное напряжение  $U_{ист}$ , возросла проводимость загрузки  $1/R$ . В следствие последнего можно предположить, что в процессе наработки углерода возникают проводящие углеродные каналы, которые и отвечают за резкий рост проводимости.

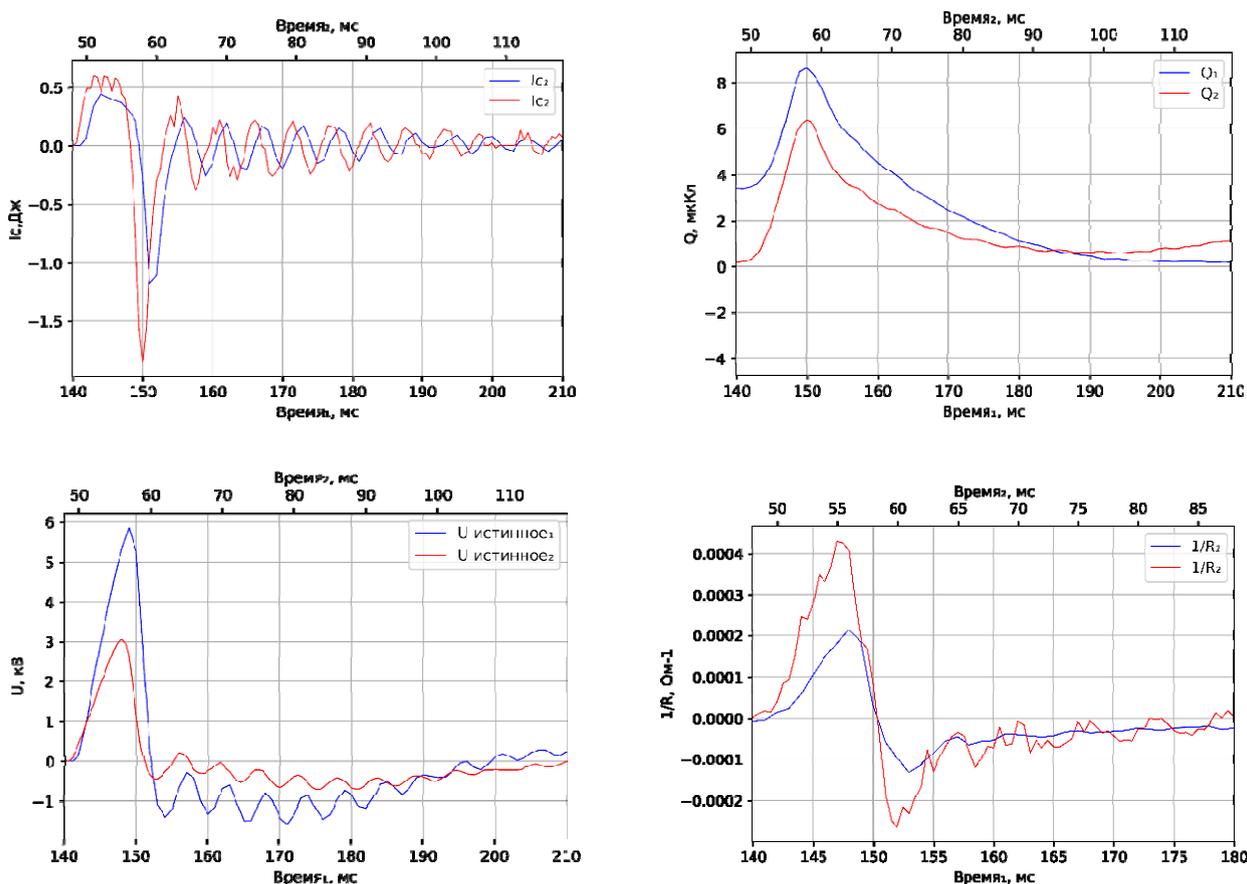


Рис. 8. Сравнение характеристик разряда в свежей и «наработанной» загрузках

## Заключение

Представлены результаты экспериментального определения основных свойств микроразряда в точках контакта с геометриями «проволока на проволоку» и цилиндрической. Во втором случае определение параметров было проведено с учетом возникшего емкостного тока.

Установлено, что при использовании «наработанной» загрузки увеличивается проводимость гранул, которая влияет и на другие характеристики разряда. Наблюдается рост тока, просадка напряжения. Полученные результаты являются важными для дальнейшего исследования микроразрядов в точках контакта гранул загрузки и могут быть использованы в процессах плазменного катализа.

## Список литературы

1. Xu, De, Tan, Min, Li, Yuan. «Visual Control System for Robotic Welding» In Industrial Robotics: Theory, Modelling and Control, edited by Sam Cubero. London: IntechOpen, 2006. 10.5772/5041
2. Takaki K., Takahashi S., Mukaigawa S., Fujiwara T., Sugawara K., Sugawara T. «Influence of Pellet Size of Packed Bed Plasma Reactor on Ozone Generation.» (2010).

3. Butterworth, Thomas D. and Ray W. K. Allen. «Plasma-catalyst interaction studied in a single pellet DBD reactor: dielectric constant effect on plasma dynamics.» *Plasma Sources Science and Technology* 26 (2017): n. pag.

4. Staack, David, Bakhtier Farouk, Alexander F. Gutsol and Alexander A. Fridman. «Characterization of a dc atmospheric pressure normal glow discharge.» *Plasma Sources Science and Technology* 14 (2005): 700–711.