

УДК:537.527.9

Д.В. Кудін, В.І. Голота, С.В. Родіонов, С.Ю. Горбенко, О.О. Замурієв
Національний науковий центр „Харківський фізико-технічний Інститут” НАН України
61108, м. Харків, вул. Академічна, 1
e-mail: kudin@kipt.kharkov.ua

БЕЗБАР'ЄРНИЙ РОЗРЯД У ПРОПАН-БУТАНОВІЙ ГАЗОВІЙ СУМІШІ

Безбар'єрні газові розряди негативної полярності досліджуються у пропан-бутановій газовій суміші. Досліджено стабільні режими горіння розряду для системи електродів типу голка-площина з маленьким радіусом закруглення. Вивчено електродинамічні характеристики розряду субмікросекундної тривалості. Показано, що якісний склад вуглеводнів не змінюється, в той же час на плоскому електроді спостерігалось утворення сажоподібного нальоту, що свідчить про утворення складних полімерів, як результату плазмохімічних перетворень, і є можливим доказом інтенсивного напрацювання водню у безбар'єрному газовому розряді.

Ключові слова: безбар'єрний газовий розряд, пропан-бутанова суміш, полімер.

Вступ

Протягом останніх десятиліть у світі зростає інтерес до застосування низькотемпературної плазми газових розрядів для активації хімічних процесів. Це зумовлено можливістю прямого збудження коливальних та обертальних рівнів молекул при низькій температурі газу, що суттєво підвищує селективність хімічних перетворень та знижує енерговитрати на проведення хімічних реакцій [1]. Особливу увагу викликають технології, пов'язанні з напрацюванням водню, який вважається найбільш ймовірним енергоносієм майбутнього [2]. Одним з можливих напрямків напрацювання водню є його отримання внаслідок плазмохімічних перетворень у вуглеводневному середовищі вільному від кисню [3].

Перспективним методом створення низькотемпературної нерівноважної плазми є використання безбар'єрного газового розряду [4, 5], але це потребує детального вивчення електродинамічних характеристик горіння розряду у вуглеводневих газових сумішах та оптимізації електродної системи з метою отримання стабільних режимів горіння розряду без переходу в

режим іскрового пробою.

Експериментальний стенд

Для дослідження безбар'єрного розряду використовувався експериментальний стенд, розроблений для дослідження конверсії вуглеводнів при підвищених тисках у безповітряному середовищі та кінетики плазмохімічних реакцій у вуглеводневих, вуглеводнево-азотних та вуглеводнево-повітряних газових сумішах. Принципова схема експериментального стенда приведена на рис. 1. Стенд складається з плазмохімічного реактора (рис. 2.), системи контролю електродинамічних параметрів розряду та системи контролю продуктів плазмохімічних реакцій. Конструкція плазмохімічного реактора складалась з системи електродів типу голка-площина (17 вістрійних електродів), розташованих у герметичній камері об'ємом 500 см³. Камера дозволяє проводити експерименти в діапазоні робочих тисків 0,1-3 атм. Відстань між верхівками вістрійних електродів та поверхнею плоского електроду могла змінюватись у межах 2-10 мм.

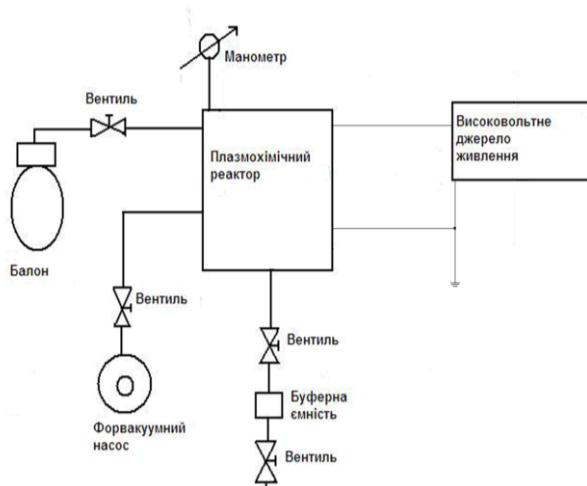


Рис. 1. Принципова схема експериментального стенда.

Для забезпечення безпечного режиму роботи з вуглеводневими сполуками, стенд оснащено системою вакуумної відкачки і відводу продуктів плазмохімічних реакцій, запобіжними клапанами і контрольними приладами. Система відкачки складається з форвакуумного насоса НВР 2Д, з'єднаних шлангів та вентилів. В плазмохімічний реактор вбудовано манометр, що реєструє тиск від 0,1 до 2,5 атм. Напуск газових сумішей здійснюється від балону з вуглеводневою сумішшю, який оснащено редуктором.

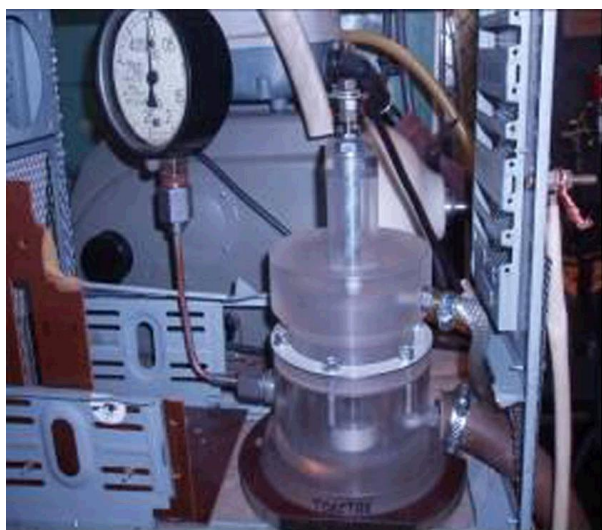


Рис. 2. Фото плазмохімічного реактора.

Високовольтне живлення плазмохімічного реактора здійснювалось від

імпульсного високовольтного джерела живлення з амплітудою високовольтного імпульсу 4-15 кВ, частотою повторення імпульсів 1-15 кГц і тривалістю субмікросекундного імпульсу 800-2200 нс. Час зростання переднього фронту імпульсу складає 300-1200 нс.

Вимірювання електродинамічних характеристик розряду здійснювалось цифровим осцилографом Tektronix TDS-2024 з половою пропускання 200 МГц та частотою дискретизації 2 ГГц, за допомогою струмового шунта СТ-1 фірми Tektronix з чутливістю 5 мВ/мА та вихідним опором 50 Ом, з половою пропускання 25кГц...1 ГГц, та високовольтного щупа Р6015А з коефіцієнтом ділення 1000:1 та половою пропускання 10 Гц...75МГц. Сигнал з осцилографа Tektronix TDS-2024 через цифровий паралельний вхід RS232 подавався на РС та оброблявся спеціалізованою програмою WaveStar for Oscilloscopes. Струм, що протікає у колі плазмохімічного реактора, складається зі струму газового розряду та струму зарядки ємності плазмохімічного реактора. Для коректного вимірювання струму розряду за допомогою пояса Роговського здійснювалось віднімання струму заряджання ємності, що еквівалентна ємності плазмохімічного реактора та зібрана з набору каліброваних високовольтних конденсаторів, від струму, що протікає у колі плазмохімічного реактора.

Відбір проби продуктів плазмохімічних реакцій здійснювався з буферного об'єму в системі відводу продуктів плазмохімічних реакцій. Аналіз продуктів плазмохімічних реакцій здійснювався за допомогою газового хроматографа НР 5890. Використовувалась хроматографічна газова колонка НР-АІ/5 (50m*0,53mm*15.0um), призначена для аналізу вуглеводнів гомологічного ряду С1-С4. Була проведена калібрівка хроматографічної газової колонки перевірочними газовими сумішами відомого складу (етан – 15%, бутан – 14,9%, метан – 70%; пропан – 18,8%, бутан – 5,2%, ізобутан – 76%). Розроблено методику якісного та

кількісного аналізу складу вуглеводневих газових сумішей C1-C4.

Результати

Для пропан-бутанової газової суміші складу (етан – 7,8% (об), пропан – 70,9% (об), пропилен – 2,7% (об), ізобутан – 9,4% (об), бутан – 9,2% (об)), визначеного хроматографічними методами, встановлено, що використання електродів з великим радіусом закруглення (прямокутні) вістря не дозволяє реалізувати стабільні режими горіння розряду у діапазоні тисків пропан-бутанової газової суміші 1-2,5 атм та для міжелектродних проміжків 3, 4, 5 мм. Реалізується тільки іскровий режим роботи плазмохімічного реактора.

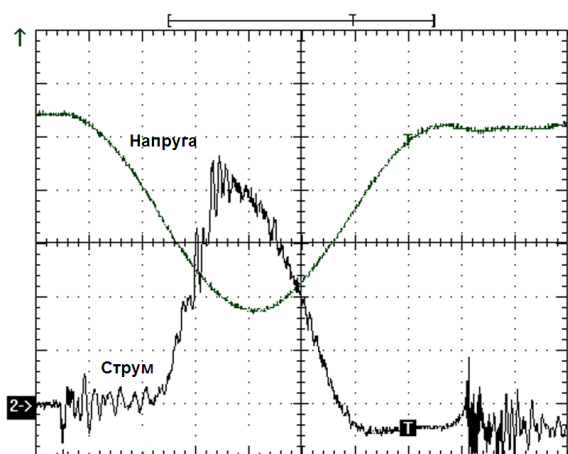


Рис. 3. Осцилограма (250 нс/кліт.) імпульсів струму (знизу, 100 мА/кліт.) та напруги (2 кВ/кліт.) стабільного режиму горіння безбар'єрного розряду при тиску пропан-бутанової газової суміші 2 атм.

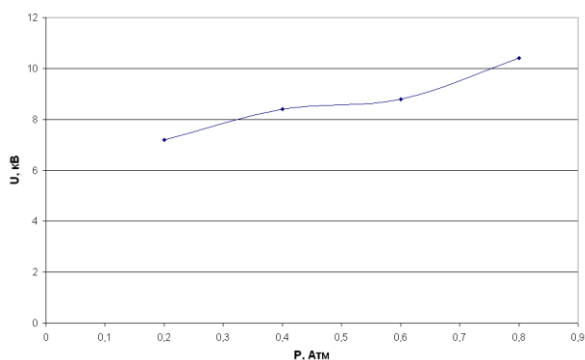


Рис. 4. Залежність напруги іскрового пробою від надатмасферного тиску пропан-бутанової газової суміші. Міжелектродний проміжок – 4 мм.

Було зменшено радіус кривизни вістря та отримано стабільні режими горіння розряду для міжелектродних проміжків 3, 4, 5 мм та тисків пропан-бутанової газової суміші 1-2 атм. На рис. 3 наведено осцилограму імпульсів струму та напруги для стабільного режиму горіння розряду негативної полярності. З аналізу осцилограми видно, що при зростанні напруги на міжелектродному проміжку до 6 кВ починається протікання струму розряду. Імпульс струму має тривалість 850 нс, тривалість переднього фронту імпульсу 350 нс.

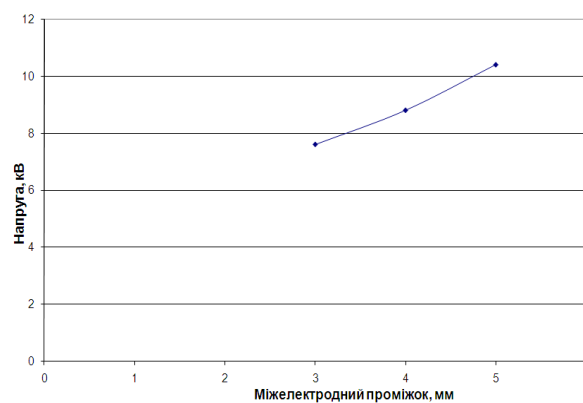


Рис. 5. Залежність напруги іскрового пробою від міжелектродного проміжку. Тиск = 1,6 атм.

На рис. 4 наведено графік залежності напруги, при якій відбувається перехід горіння розряду із стабільного режиму у режим іскрового пробою, від тиску газу у плазмохімічному реакторі. Для підвищених тисків пропан-бутанової газової суміші (1,4-1,8 атм) показано, що напруга іскрового пробою зростає при зростанні тиску і сягає 10,5 кВ для 1,8 атм.

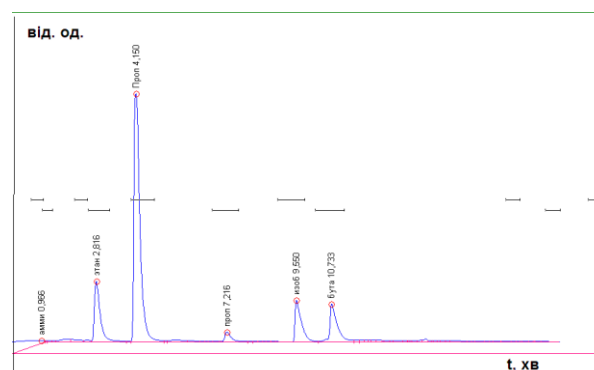


Рис. 6. Хроматограма пропан-бутанової газової суміші.

На рис. 5 наведено графік залежності напруги іскрового пробою від міжелектродного проміжку. Для підвищених тисків пропан-бутанової газової суміші (1,6 атм), показано, що напруга іскрового пробою зростає при зростанні міжелектродного проміжку.

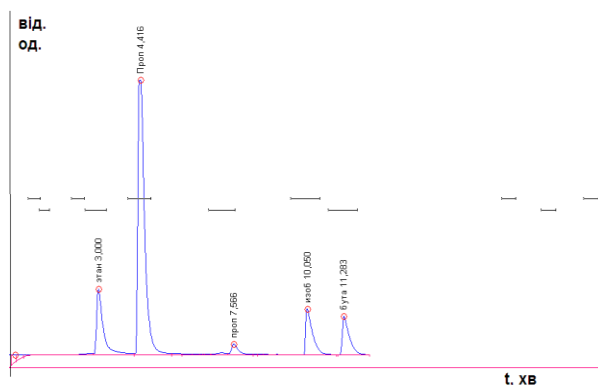


Рис. 7. Хроматограма пропан-бутанової газової суміші, відібраної з буферного об'єму після 30 хвилин обробки низькотемпературною плазмою газового розряду. Тиск=1,6 атм.

На рис. 6, 7 наведено характерні хроматограми пропан-бутанової газової суміші до обробки безбар'єрним газовим розрядом і на виході з плазмохімічного реактора. Показано, що якісний склад

вуглеводнів не змінюється, в той же час на плоскому електроді спостерігалось утворення сажеподібного нальоту, що свідчить про утворення складних полімерів, як результату плазмохімічних перетворень, і є можливим доказом інтенсивного напрацювання водню у безбар'єрному газовому розряді [1].

Висновки

Для отримання стабільного режиму горіння безбар'єрного газового розряду в системі електродів голка-площина необхідно використовувати електроди з вістрями з маленьким радіусом заокруглення (загострені).

Зі зростанням міжелектродного проміжку та тиску пропан-бутанової газової суміші напруга іскрового пробою зростає.

Не відбувається значної зміни складу пропан-бутанової газової суміші після обробки у безбар'єрному розряді, але утворення сажеподібного нальоту свідчить про інтенсивні процеси напрацювання водню.

СПИСОК ВИКОРИСТАНОЇ ЛІТЕРАТУРИ

1. Spinicchia N. Growth of thin hydrocarbon films and hydrogen production in a cusp plasma device // *Jorn. Surface & Coatings Technology*. v.200 (2006), P. 6434–6437.
2. Belen Sarmiento, J. Javier Brey, Victor J. Rico, Inmaculada G. Viera. Hydrogen production by reforming of hydrocarbons and alcohols in a dielectric barrier discharge // *Journal of Power Sources*. v.169 (2007), P. 140–143.
3. Kotsuspyros A., Yan S.-M., Beker K. Destruction of hydrocarbons in non-thermal, ambient-pressure, capillary discharge // *International Journal of Mass Spectrometry*. v.233 (2004), P. 305–315.
4. Голота В.И., Кудин Д.В., Родионов С.В. и др. Конверсия паров метанола и этанола в разряде с сильно неоднородным распределением электрического поля // *Журн. «Вопросы атомной науки и техники» серия «Плазменная электроника и новые методы ускорения»* № 4, 2010, С. 199–203.
5. Golota V.I., Kudin D.V., Rodionov S.V. et al. Decomposition of dichloroethane vapor in barrierless discharge // *Журн. «Вопросы атомной науки и техники» серия «Физика Плазмы»* № 6, 2010, С. 182–184.

Стаття надійшла до редакції 12.05.2011

D.V. Kudin, V.I. Golota, S.V. Rodionov, S.Yu. Gorbenko, O.O. Zamuriev
Scientific Centre “Kharkov Institute of Physics and Technology” Ukr. Nat. Acad. Sci.
61108, Kharkov, Academichna Str., 1
e-mail: kudin@kipt.kharkov.ua

BARRIERLESS DISCHARGE IN PROPANE-BUTANE GAS MIXTURE

Barrierless gas discharge of negative polarity in propane-butane gas mixture has been studied. High-voltage pulsed power source was used for the formation of the discharge. Stable discharge duties for the system of needle-plane type electrodes with a small rounding radius have been studied. The electrodynamic characteristics of the submicrosecond duration discharge have been investigated. The qualitative composition of hydrocarbons is shown not to change, while on the flat electrode a formation of soot was observed. It indicates the formation of complex polymers is a result of plasmachemical transformations, and it is possible evidence of intensive issue of hydrogen in barrierless gas discharge.

Key words: barrierless gas discharge, propane-butane gas mixture, polymers.

Д.В. Кудин, В.И. Голота, С.В. Родионов, С.Ю. Горбенко,
А.А. Замуриев

Национальный научный центр «Харьковский физико-технический институт» НАН Украины
61108, г. Харьков, ул. Академическая, 1
e-mail: kudin@kipt.kharkov.ua

БЕЗБАРЬЕРНЫЙ РАЗРЯД В ПРОПАНО-БУТАНОВОЙ ГАЗОВОЙ СМЕСИ

Безбарьерные газовые разряды отрицательной полярности исследовались в пропан-бутановой газовой смеси. Исследованы стабильные режимы горения разряда для системы электродов типа игла-плоскость с маленьким радиусом закругления. Изучены электродинамические характеристики разряда субмикросекундной продолжительности. Показано, что качественный состав углеводородов не изменяется, в то же время на плоском электроде наблюдалось образование сажеподобного налета, что свидетельствует об образовании сложных полимеров, как результата плазмохимических превращений, и есть возможным доказательством интенсивной наработки водорода в безбарьерной газовой разряде.

Ключевые слова: безбарьерный газовый разряд, пропан-бутановая смесь, полимер.