

О.В. Блага<sup>1</sup>, І.В. Божко<sup>2</sup>, канд.техн.наук

<sup>1</sup> – Національний технічний університет України «Київський політехнічний інститут»,  
пр. Перемоги, 37, Київ, 03056, Україна,

<sup>2</sup> – Інститут електродинаміки НАН України,  
пр. Перемоги, 56, Київ-57, 03680, Україна.  
e-mail: ws77@ukr.net

*Проведено дослідження генерації озону імпульсним бар'єрним розрядом у неосушеному та осушеному атмосферному повітрі, при їхніх абсолютних вологостях 17 та 0,1 мг/л, відповідно. При крутизні імпульсу напруги 0,8 кВ/нс, що подавалася на розрядну камеру з електродною геометрією «циліндр-циліндр», амплітудні значення густини розрядного струму досягали 1,1 А/см<sup>2</sup>. Встановлено, що мінімальні питомі енерговитрати на утворення озону в такому розряді можуть складати 11 та 6 кВт·год/кг для неосушеного та осушеного повітря, відповідно. Найбільші концентрації озону, які були отримані для вологого та сухого повітря, становлять 16 та 24 мг/л, відповідно. Бібл. 10, рис. 5.*

**Ключові слова:** імпульсний бар'єрний розряд, озон, енергія імпульсу, питомі енерговитрати, концентрація озону.

Озон є одним із сильних окислювачів і тому він широко використовується при очищенні питної та стічної води, повітря, дезінфекції тощо. При отриманні озону будь-яким способом першочергове значення мають такі параметри як питомі енерговитрати, що йдуть на утворення 1 кг озону, та концентрація озону. Для генерації озону вже протягом довгого часу в основному використовуються озонатори, що традиційно працюють на бар'єрному розряді (БР) змінного струму (до 20 кГц) [1–3,5]. Для такого розряду при генерації озону з осушеного повітря характерними значеннями [1,9] є концентрація озону 20 мг/л та питомі енерговитрати 11...12 кВт·год/кг. Однак дослідження по підвищенню ефективності БР безупинно продовжуються [2, 4–10]. Вони ведуться у різних напрямках, серед яких головними є оптимізація виду напруги живлення [6,7], геометрії розрядної камери [5] та матеріалу діелектричного бар'єру [5]. Так у роботі [2] наводяться дані, які свідчать, що завдяки збільшенню крутизни фронту імпульсу напруги на розрядному проміжку генератора озону з 0,02 до 0,25 кВ/нс питомі енерговитрати зменшуються майже у п'ять разів (від 13,3 до 2,8 кВт·год/кг). Пізніше було показано [9], що завдяки використанню імпульсної напруги також зростає ефективність утворення озону і в коронному розряді. Проте в інших роботах повідомляється, що форма напруги не впливає на енергоефективність бар'єрного розряду при генерації озону [7], очищенні повітря [4] та конверсії метану [10]. Враховуючи те, що роботи [2, 4–10] певною мірою мають протиріччя у висновках, постає питання: чи доцільно використовувати імпульсний бар'єрний розряд? Тому метою цієї роботи є дослідження ефективності генерації озону в імпульсному бар'єрному розряді (ІБР).

**Експериментальна установка.** Експериментальна установка для досліджень ІБР складалася з розрядної камери (РК), джерела живлення та пристроїв для вимірювання параметрів розряду і концентрації озону.

РК зображена на рис. 1. Як оболонка РК використовувалася труба 6 з нержавіючої сталі, що мала внутрішній діаметр 39,5 мм. В середині цієї труби концентрично розташована скляна труба 7, яка виконувала роль діелектричного бар'єру. Зовнішній діаметр скляної труби складає 38 мм. Таким чином, розрядний проміжок між скляною трубою 7 і трубою 6 становить 0,75 мм. В середині скляної труби розміщено внутрішній електрод 8 з мідної фольги. Надійний контакт між електродом 8 та скляною трубою 7 створювався завдяки тонкому шару провідної пасти, який був нанесений на скляну поверхню. Подача високої напруги на електрод 8, площа якого становила 260 см<sup>2</sup>, здійснювалася за допомогою провідника 13. РК охолоджувалася зсередини та ззовні. Для внутрішнього охолодження використовувалася металева трубка 10 з отворами 11 і заглушкою 12. На кінцях трубки розміщені фланці 4, які притискалися до труби 7 гайками 9. Повітря, що подавалося від компресора до лівого кінця трубки, проходило через отвори 11 у ній й охолоджувало внутрішній електрод під час роботи РК, а потім виходило через отвори у фланцях 14. Ззовні РК охолоджувалася вентилятором. Для герметизації РК використовувалися прокладки 15 із силіконової гуми, яка стійка до озону, а також су-

цільні шви 5 з силіконового герметику. Подача повітря у розрядний проміжок здійснювалася через штуцер 1 у лівому фланці 3, а вихід озono-повітряної суміші з РК відбувався через такий самий штуцер в правому фланці. Штуцери у фланцях фіксувалися за допомогою контргайок 2. Штуцери у фланцях фіксувалися за допомогою контргайок 2.

Дослідження у РК проводилися в осушеному та неосушеному атмосферному повітрі при температурі 25°C. Для прокачування повітря використовувався мембранний компресор, витрати якого вимірювалися ротаметром. Відносна вологість атмосферного повітря визначалась психрометричним гігрометром. Для отримання сухого повітря застосовувався силікагелевий осушувач. Вологість осушеного повітря знаходилась по точці роси на спеціально сконструйованому пристрої. Для всіх досліджень вологість неосушеного повітря складала  $\approx 17$  мг/л, а осушеного – 0,1 мг/л. Концентрація озону на виході з РК визначалась по абсорбції ультрафіолетового випромінювання на довжинах хвиль 290 та 300 нм.

Електричну схему джерела живлення показано на рис. 2. При дослідженнях використовувалось імпульсне джерело високої напруги, що побудоване на основі заряджання конденсатора  $C$  через опір  $R_3$  від джерела постійної напруги  $U_0$  з наступною розрядкою на опір  $R$  та РК. Як швидкодіючий комутуючий елемент використовувався газонаповнений розрядник  $P$ . Записи осцилограм струму та напруги здійснювалися за допомогою приладів фірми Tektronix: двоканального осцилографа TDS 1012, індуктивного датчика струму (ДС) P6021 і резистивно-ємнісного датчика напруги (ДН) P6015A. Електрична схема забезпечувала імпульси напруги з амплітудою до 27 кВ і фронтами 10...20 нс. Регулювання частоти слідування імпульсів  $f_i = 50 \dots 800$  Гц проводилося за рахунок зміни величини напруги  $U_0$ , яка визначала швидкість зарядки конденсатора  $C_0$ .

**Результати досліджень.** Залежність концентрації озону  $C$  від частоти  $f_i$  проілюстровано на рис. 3, а. Криві 1-3 відносяться до сухого повітря при його витратах  $Q = 1,5; 5; 10$  л/хв, а криві 4-6 – до неосушеного повітря при  $Q = 1,5; 5; 10$  л/хв, відповідно. З рисунку видно, що при великих витратах ( $Q \geq 10$  л/хв) зі збільшенням частоти  $f_i$  концентрація озону  $C$  лінійно наростає.

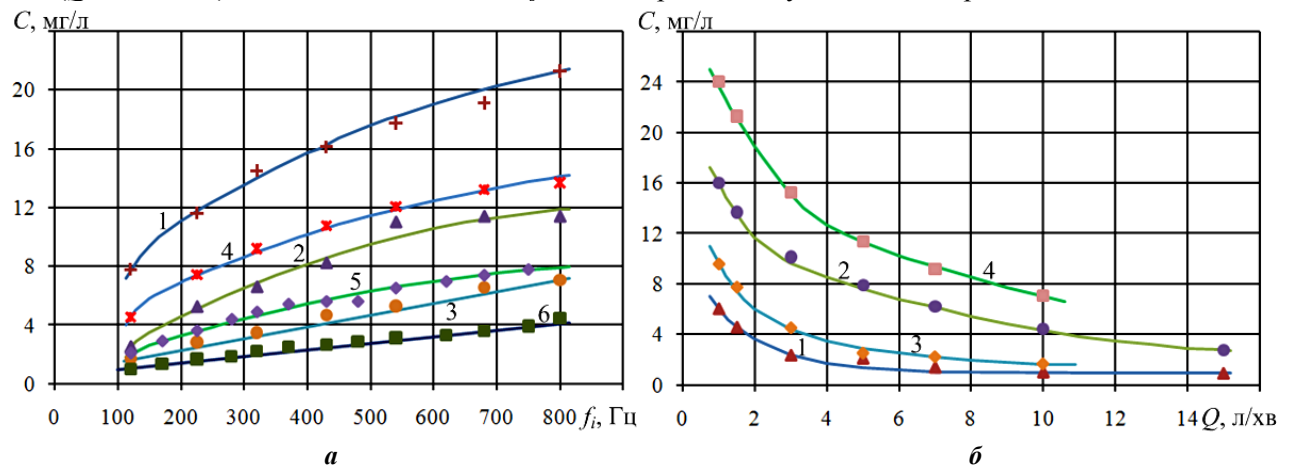


Рис. 3

При малих витратах ( $Q \leq 5$  л/хв) залежності  $C(f_i)$  мають нелінійний характер: їхня крутизна зі збільшенням частоти  $f_i$  зменшується. За одних і тих самих умов у сухому повітрі генерується значно

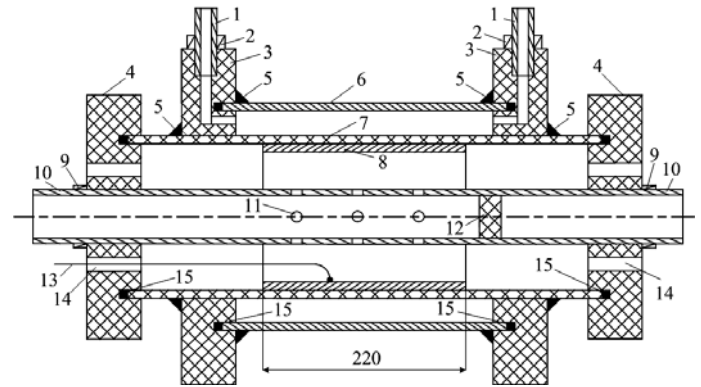


Рис. 1

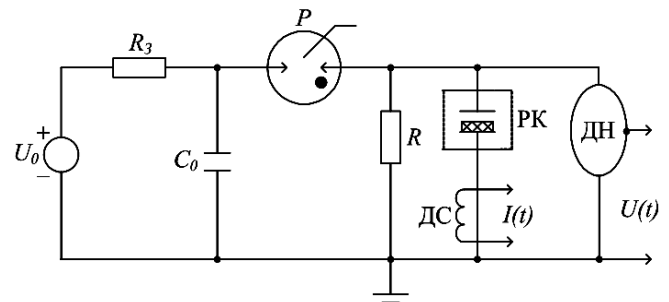


Рис. 2

більше озону, ніж у неосушеному. Так, наприклад, при  $f_i = 600$  Гц та  $Q = 1,5$  л/хв концентрація озону у сухому повітрі у півтора рази вища, ніж у неосушеному.

Залежність концентрації озону  $C$  від витрат повітря  $Q$  показана на рис. 3, б. Криві 1-2 відносяться до неосушеного повітря (при частотах  $f_i = 120; 800$  Гц, відповідно), а криві 3-4 – до осушеного повітря ( $f_i = 120; 800$  Гц, відповідно). З кривої 1 видно, що при збільшенні витрат повітря у діапазоні  $Q = 1 \dots 4$  л/хв. концентрація озону знижується у 3 рази (від 6 до 2 мг/л). При подальшому збільшенні витрат повітря ( $Q = 4 \dots 15$  л/хв.) значення  $C$  зменшуються значно повільніше. Подібний характер залежностей  $C(Q)$  також спостерігається і при більших значеннях  $f_i$  (крива 2), а також і для сухого повітря (криві 3,4). Найбільші концентрації озону, які були отримані за умов  $f_i = 800$  Гц та  $Q = 1$  л/хв, складають, відповідно, 16 та 24 мг/л для вологого та сухого повітря.

**Аналіз результатів.** Приклад типових осцилограм напруги  $U(t)$  (крива 1) та струму  $I(t)$  (крива 2) ІБР показано на рис. 4, а. На початку розряду амплітуда імпульсу напруги за  $\approx 18$  нс досягає 14,4 кВ, що відповідає середній швидкості наростання напруги  $\Delta U/\Delta t = 0,8$  кВ/нс. Ця величина є значно більшою, ніж та, при якій (0,25 кВ/нс) починається вплив крутизни імпульсу напруги на властивості БР [1]. Струм досягає свого амплітудного значення 280 А в момент  $t = 27$  нс. В цей час середня (по площі електродів) густина струму складає  $1,1$  А/см<sup>2</sup>, що на порядок більше, ніж у БР змінного струму ( $\approx 0,1$  А/см<sup>2</sup>) [8]. Імпеданс РК в момент амплітуди розрядного струму становить 51 Ом. На подальшому етапі проходження розряду ( $t = 27 \dots 50$  нс) він зменшується до 25 Ом. В цілому загальна довжина імпульсу струму дорівнює приблизно 450 нс і має характер згасаючих коливань з періодом  $\approx 100$  нс. Це свідчить про те, що на струм впливають паразитні індуктивності, які присутні у розрядному колі. Оцінки показують, що загальна величина цих індуктивностей складає  $\approx 0,8$  мкГн.

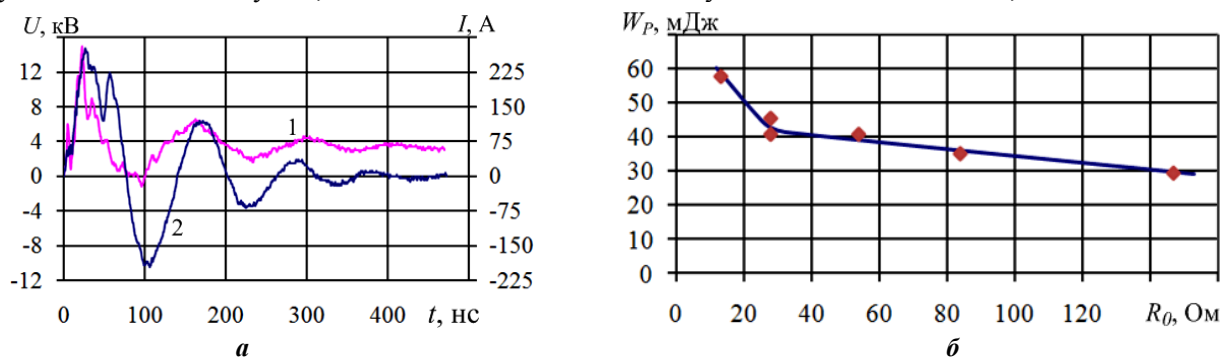


Рис. 4

Через коливальний характер розрядних параметрів досить складно безпосередньо з осцилограм обчислити енергію імпульсу  $W_i$ , яка витрачається на генерацію озону в ІБР. Тому ця величина визначалась з балансу енергій, які були накопичені у зарядженому до напруги  $U_c$  конденсаторі  $C_0$  ( $W_C = C_0 U_c^2/2$ ), енергії  $W_R$ , яка виділилася в опорі  $R$ , та витрат енергії  $W_p$  у комутуючому розряднику Р

$$W_i = W_C - W_R - W_p, \quad (1)$$

$W_C = 138$  мДж ( $C_0 = 380$  пФ,  $U_c = 27$  кВ). Енергія  $W_R$  визначалася чисельним інтегруванням рівняння

$$W_R = R \int_0^T I_R^2(t) dt, \quad (2)$$

де  $I_R(t)$  – струм, який протікає через опір  $R$  (947 Ом);  $T$  – час проходження струму через опір  $R$ . Інтегрування за формулою (2) дало  $W_R = 36$  мДж.

Щоб визначити енергію, що витрачається у розряднику, були виконані окремі дослідження. Для цього замість РК та опорі  $R$  до електричної схеми (рис. 2) підключався опір  $R_0$ . Для того щоб визначити характер залежності  $W_p(R_0)$ , діапазон змін  $R_0$  становив  $15 \dots 150$  Ом і був ширше за діапазон змін імпедансу РК під час ІБР. З метою мінімізації впливу на результати вимірювань індуктивностей, які вносять в розрядне коло опори  $R_0$ , при дослідженнях застосовувалися малоіндуктивні опори ( $\leq 0,4$  мкГн). Потім проводилися виміри струму в опорі  $R_0$  та по (2) розраховувалися витрати енергії  $W_0$  в ньому. Після цього за виразом

$$W_p = W_C - W_0 \quad (3)$$

обчислювалися витрати енергії в розряднику. Залежність  $W_p(R_0)$  показана на рис. 4, б. З нього видно, що зі зменшенням  $R_0$  від 150 до 25 Ом значення  $W_p$  лінійно наростають. При подальшому зменшенні  $R_0$  до 15 Ом темп наростання  $W_p$  значно збільшується. З рис. 4, б також слідує, що при зміні імпедансу РК в межах  $25 \dots 51$  Ом витрати енергії в розряднику майже не змінюються і складають  $W_p \approx 40$  мДж.

Отже за (1) значення енергії  $W_i = 62$  мДж. Тепер, маючи значення енергії імпульсу, можна визначити питомі енерговитрати на генерацію озону

$$W_n = W_i \cdot f_i / (C \cdot Q). \quad (4)$$

Залежність величини  $W_n$  від частоти слідування імпульсів  $f_i$  показана на рис. 5, а. Криві 1,2 відносяться до неосушеного повітря при  $Q = 1,5; 15$  л/хв, відповідно, а криві 3,4 – до сухого повітря при  $Q = 1,5; 10$  л/хв, відповідно. З рисунка видно, що при збільшенні частоти  $f_i$  в межах 100...800 Гц енерговитрати  $W_n$  лінійно зростають в 1,5...3 рази. Більший темп наростання (криві 1,3) відповідає малим витратам повітря. За однакових умов значення  $W_n$  для сухого повітря приблизно в півтора рази менш ніж для вологого.

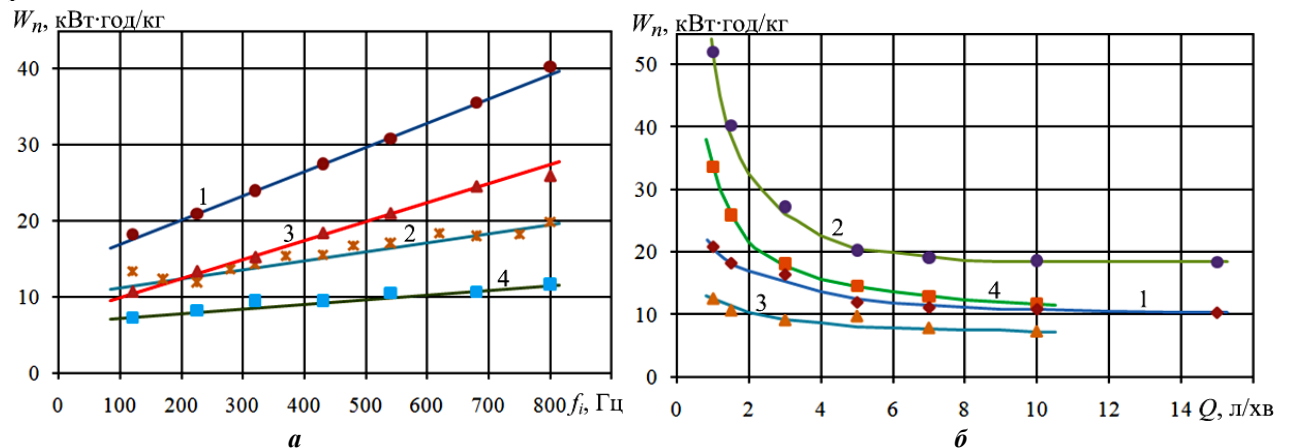


Рис. 5

Вплив витрат повітря на питомі енерговитрати віддзеркалює рис. 5, б, де показані залежності  $W_n(Q)$  для вологого (криві 1,2) та сухого повітря при  $f_i = 120$  Гц (криві 1,3) та 800 Гц (криві 2,4), звідки видно, що зі зменшенням величин  $Q$  значення  $W_n$  збільшуються. Особливо круте наростання  $W_n$  відбувається при витратах повітря  $Q \leq 7$  л/хв. ( $f_i = 800$  Гц) та при  $Q \leq 1,5$  л/хв ( $f_i = 120$  Гц). Така поведінка залежностей  $W_n(Q)$ , перш за все, свідчить [1] про те, що за цих умов нагрів газу в розрядній зоні зростає до критичних температур (понад  $70^\circ\text{C}$ ), за яких починається стрімке збільшення швидкості термічного розкладання озону. Цей процес (за експериментальних умов цієї роботи) починається при питомих енерговкладах у газ  $W_e = f_i W_i / Q \geq 0,4$  Дж/см<sup>3</sup>.

**Висновки.** Дослідження імпульсного бар'єрного розряду при крутизні фронту імпульсу напруги, яка подається на розрядну камеру, на рівні 0,8 кВ/нс показали, що густина струму в такому розряді більш, ніж на порядок перевищує густину струму в низькочастотному бар'єрному розряді змінного струму і складає понад 1 А/см<sup>2</sup>. Найбільші значення концентрації озону, які були отримані у цій роботі, дорівнюють 16 та 24 мг/л, відповідно, для неосушеного та осушеного атмосферного повітря. Ці величини на 20...25 % вищі, ніж при використанні бар'єрного розряду змінного струму. Мінімальні питомі енерговитрати на генерацію озону в імпульсному бар'єрному розряді складають 6 та 11 кВт·год/кг, відповідно, для сухого та вологого атмосферного повітря, що на 30...40 % менше, ніж для бар'єрного розряду змінного струму.

Таким чином, виконані дослідження свідчать про відчутні переваги використання імпульсного бар'єрного розряду для генерації озону замість традиційного бар'єрного розряду змінного струму. Уявляється, що наступним кроком у розвитку цієї роботи мають бути дослідження, що пов'язані з оптимізацією розрядної камери, її охолодженням та параметрами електричної схеми живлення.

1. Лунин В.В., Попович М.П., Ткаченко С.Н. Физическая химия озона. – М.: Изд-во МГУ, 1998. – 480 с.
2. Самойлович В.Г., Гибалов В.И., Козлов К.В. Физическая химия барьерного разряда. – М.: Изд-во МГУ, 1989. – 176 с.
3. Филипов Ю.В., Вобликова В.А., Пантелеев В.И. Электросинтез озона. – М.: Изд-во МГУ, 1987. – 237 с.
4. Korzekwa R., Rosocha L., Falkenstei Z. Experimental results comparing pulsed corona and dielectric barrier discharges for pollution control // 11<sup>th</sup> IEEE International Pulsed Power Conference, Baltimore, MD, 1997. – P. 7.
5. Krasnyj V.V., Gubareb S.P., Kotsubanov V.D., Pogozhev D.P., Taran V.S., Tereshin V.I., Svets O.M. Investigation of plate-type barrier ozonizers with ac and pulse power supplies // Problems of Atomic Science and Technology. Series: «Plasma physics» (8). – 2002. – №5. – Pp. 121-123.
6. Masuda S., Sato M. and Seki T. High-efficiency ozonizer using traveling wave pulse voltage // IEEE Trans. Ind. Appl. – 1986. – Vol. IA-22. – No 5. – Pp. 886-891.

7. Mericam-Bourdet N., Kirkpatrick M.J., Tuvache F., Frochot D. and Odic E. Effect of voltage waveform on dielectric barrier discharge ozone production efficiency // Eur. Phys. J. Appl. Phys. – 2012. – No 57. – P. 30801 (Pp.1-10).
8. Walsh J.L. and Kong M.G. 10 ns pulsed atmospheric air plasma for uniform treatment of polymeric surfaces // Appl. Phys. Lett. – 2007. – No 91. – Pp. 251504 (1 – 3).
9. Wang D., Matsumoto T., Namihira T., Akiyama H. Development of Higher Yield Ozonizer Based on Nano-Seconds Pulsed Discharge // J. Adv. Oxid. Technol. – 2010. – N.13. – Pp. 71 – 78.
10. Yao S.L., Suzuki E., Meng N., Nakayama A. Influence of Rise Time of Pulse Voltage on the Pulsed Plasma Conversion of Methane // Energy Fuels. – 2001. – N. 15. – Pp. 1300 - 1303.

УДК 537.523.3

#### ИССЛЕДОВАНИЕ ГЕНЕРАЦИИ ОЗОНА В ИМПУЛЬСНОМ БАРЬЕРНОМ РАЗРЯДЕ

А.В.Блага<sup>1</sup>, И.В.Божко<sup>2</sup>, канд. техн.наук

<sup>1</sup> – Национальный технический университет Украины «Киевский политехнический институт», пр. Победы, 37, Киев, 03056, Украина,

<sup>2</sup> – Институт электродинамики НАН Украины, пр. Победы, 56, Киев-57, 03680, Украина.

e-mail: ws77@ukr.net

Проведены исследования генерации озона импульсным барьерным разрядом в неосушенном и осушенном атмосферном воздухе при их абсолютной влажности 17 и 0,1 мг/л, соответственно. При крутизне импульса напряжения 0,8 кВ/нс, который подается на разрядную камеру с геометрией электродов «цилиндр-цилиндр», амплитудные значения плотности разрядного тока достигают 1,1 А/см<sup>2</sup>. Установлено, что минимальные удельные энергозатраты на образование озона в таком разряде могут составлять 11 и 6 кВт·ч/кг для неосушенного и осушенного воздуха, соответственно. Наибольшие концентрации озона, которые были получены для влажного и сухого воздуха, равны 16 и 24 мг/л, соответственно. Библ. 10, рис. 5.

**Ключевые слова:** импульсный барьерный разряд, озон, энергия импульса, удельные энергозатраты, концентрация озона.

#### RESEARCH OZONE GENERATION IN PULSED BARRIER DISCHARGE

O.V.Blaga<sup>1</sup>, I.V.Bozhko<sup>2</sup>

<sup>1</sup> – National Technical University of Ukraine «Kyiv Polytechnic Institute», pr. Peremohy, 37, Kiev-57, 03057, Ukraine,

<sup>2</sup> – Institute of Electrodynamics National Academy of Science of Ukraine, pr. Peremohy, 56, Kiev-57, 03680, Ukraine.

e-mail: ws77@ukr.net

Researches of generation of ozone by the pulsed barrier discharge were conducted in the wet and the dry atmospheric air, when their absolute humidity were 17 and 0,1 mg/l, respectively. This discharge was realized in chamber with electrode geometry «cylinder-cylinder» and dielectric barrier with glass. The steepness of voltage pulses that fed on the camera was 0.8 kV/ns, the pulse repetition rate varied in the range 50...800 Hz. The average value of the amplitude of the density current in the discharge reached more than 1,1 A/cm<sup>2</sup>. The largest concentration of ozone, which were obtained for wet and dry air, made up 16 and 24 mg/l, respectively. The concentration of ozone and the specific energy consumption for his generation almost linearly rose with increased pulse repetition rate. It was shown that the lowest values of the specific energy consumption for generation of ozone in this discharge do not exceed the of 11 and 6 kW · h/kg for the wet and the dry air, respectively. References 10, figures 5.

**Key words:** pulse barrier discharge, ozone, pulse energy, specific energy consumption, ozone concentration.

1. Lunin V.V., Popovich M.S., Tkachenko S.N. The physical chemistry of ozone. – Moskva: Izdatelstvo Moskovskogo Gosudarstvennogo Universiteta, 1998. – 480 p. (Rus)
2. Samoilovich V.G., Gibalov V.I., Kozlov K.V. The physical chemistry of the barrier discharge. – Moskva: Izdatelstvo Moskovskogo Gosudarstvennogo Universiteta, 1989. – 176 p. (Rus)
3. Filipov Yu.V., Voblikova V.A., Panteleev V.I. Electrosynthesis of ozone. – Moskva: Izdatelstvo Moskovskogo Gosudarstvennogo Universiteta, 1987. – 237 p. (Rus)
4. Korzekwa R., Rosocha L., Falkenstei Z. Experimental results comparing pulsed corona and dielectric barrier discharges for pollution control // 11<sup>th</sup> IEEE International Pulsed Power Conference, Baltimore, MD, 1997. – P. 7.
5. Krasnyj V.V., Gubareb S.P., Kotsubanov V.D., Pogozhev D.P., Taran V.S., Tereshin V.I., Svets O.M. Investigation of plate-type barrier ozonizers with ac and pulse power supplies // Problems of Atomic Science and Technology. Series: «Plasma physics» (8). – 2002. – №5. – Pp. 121-123.
6. Masuda S., Sato M. and Seki T. High-efficiency ozonizer using traveling wave pulse voltage // IEEE Trans. Ind. Appl. – 1986. – Vol. IA-22. – No. 5. – Pp. 886-891.
7. Mericam-Bourdet N., Kirkpatrick M.J., Tuvache F., Frochot D. and Odic E. Effect of voltage waveform on dielectric barrier discharge ozone production efficiency // Eur. Phys. J. Appl. Phys. – 2012. – No. 57. – P. 30801 (Pp.1-10).
8. Walsh J.L. and Kong M.G. 10 ns pulsed atmospheric air plasma for uniform treatment of polymeric surfaces // Appl. Phys. Lett. – 2007. – No. 91. – P. 251504 (Pp. 1-3).
9. Wang D., Matsumoto T., Namihira T., Akiyama H. Development of Higher Yield Ozonizer Based on Nano-Seconds Pulsed Discharge // J. Adv. Oxid. Technol. – 2010. – No. 13. – Pp. 71 – 78.
10. Yao S.L., Suzuki E., Meng N., Nakayama A. Influence of Rise Time of Pulse Voltage on the Pulsed Plasma Conversion of Methane // Energy Fuels. – 2001. – No. 15. – Pp. 1300 - 1303.

Надійшла 31.01.2013

Received 31.01.2013