

# 常压微波等离子体微波功率对硫化氢分解效率的影响

汪建华<sup>1</sup>, 徐 尧<sup>1</sup>, 高建保<sup>2</sup>, 薛垂庆<sup>2</sup>

(1. 武汉工程大学材料科学与工程学院, 湖北省等离子体化学与新材料重点实验室,  
湖北 武汉 430074; 2. 中国石油大学(北京)化学工程学院, 北京 102249)

**摘 要:**为了除去石油加工过程中所产生的含有大量有毒气体硫化氢的尾气,采用常压微波等离子体法研究了在纯氩、纯二氧化碳及氩与二氧化碳混合气体三种载气条件下,微波功率对硫化氢分解效率的影响。含有硫化氢的源气在微波的作用下形成等离子体射流从而被分解成氢气和单质硫。结果表明:一定范围内(400~1 100 W)增加微波功率有利于提高硫化氢的分解效率,当微波功率继续增加时,不同的载气(纯氩气、纯二氧化碳、氩气与二氧化碳混合气体)条件下,其分解效率变化趋势不同。在纯氩载气条件下,微波功率继续增加,硫化氢的分解效率会下降;在纯二氧化碳载气和氩气与二氧化碳混合载气条件下,硫化氢的分解效率随微波的继续增加而不变。相同微波功率条件下,载气为氩气和二氧化碳混合气体时,硫化氢分解效率最高,说明二氧化碳载气有利于促进硫化氢的分解。当气源为二氧化碳、氩气及硫化氢混合气体,且流量比为 8:1:1,总流量为 1 000 mL/min,微波功率为 1 300 W 时,硫化氢转化率最高达 98.64%。从节能方面考虑,在实际应用中微波功率可设定为 900 W。

**关键词:**微波等离子体;常压;硫化氢

**中图分类号:**O539

**文献标识码:**A

**doi:**10.3969/j.issn.1674-2869.2013.03.007

## 0 引 言

随着中国工业现代化的不断进步和发展,石油的需求量也逐渐增加,而石油加工过程中所产生的尾气包含大量的有毒气体硫化氢( $H_2S$ )<sup>[1]</sup>。若直接排放则会造成大气污染,同时也危害人的身体健康。为了达到环保要求,必须对其进行分解处理。目前,分解硫化氢气体的方法有很多,大多炼油厂采用传统的克劳斯工艺处理含  $H_2S$  的尾气<sup>[1-2]</sup>。但该方法不能回收有利用价值的氢气<sup>[2]</sup>。而等离子体技术作为一种新兴的污染物处理技术,具有流程短、效率高、能耗低、适用范围广等特点<sup>[3]</sup>。因此,其处理各类环境污染物已成为当前国内外的热门研究之一。本研究利用常压微波等离子体射流设备分解  $H_2S$ ,不仅可以得到单质 S,而且可以回收氢气。该设备成本低、效果好、操作简单,不需要昂贵的真空设备,且能长时间的持续进行气体处理<sup>[4-5]</sup>。所以微波等离子体法分解  $H_2S$  比克劳斯法更加有优势、也更加经济<sup>[6-8]</sup>。

本文利用自制的常压微波等离子体设备,分别在纯氩(99.999%)、纯二氧化碳(99.8%)及氩气与二氧化碳混合气体三种载气条件下,探讨了

微波功率对  $H_2S$  分解效率的影响。

## 1 实 验

### 1.1 实验设备与流程

实验采用自制的常压微波等离子体射流(MPJ)装置进行气体处理的研究。该设备在前人基础上进行了改进,其主要由微波源(磁控管)、波导管、环形器、水负载、谐振腔、耦合天线、短路活塞及冷却水系统连接而成,外接 3 kW 微波电源,如图 1 所示。微波源工作频率为 2.45 GHz。波导管采用 BJ26 型,输出功率从 0~3 kW 可调。采用气相色谱仪(GC9890A)检测。图 2 为实验流程示意图。

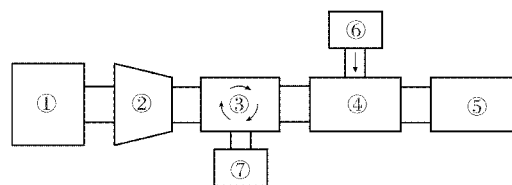


图 1 常压微波等离子体射流装置结构示意图

Fig. 1 Schematic diagram of atmospheric pressure microwave plasma jet apparatus

注: ①微波源 ②渐变波导 ③环形器 ④谐振腔  
⑤短路活塞 ⑥气源 ⑦水负载

收稿日期:2013-03-08

基金项目:国家自然科学基金项目(11175137);武汉工程大学研究生教育创新基金项目(NO: CX201141)

作者简介:汪建华(1955-),男,湖北武汉人,教授,博士,研究方向:等离子体技术及应用研究。

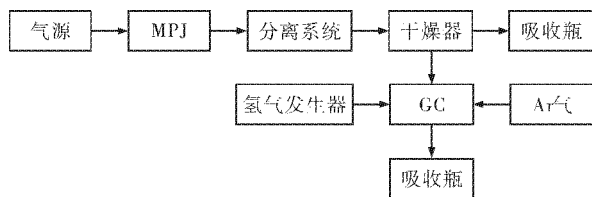


图2 实验流程示意图

Fig. 2 Schematic diagram of experimental system

### 1.2 实验工作原理及方法

打开水冷系统,开启MPJ设备,调节功率,打开气源.一定流量的源气经过等离子体谐振腔到达喷嘴处,当微波功率达到足够大时,喷嘴尖端处的微波能量能够激发该区域的气体放电,形成等离子体射流.图3所示为氩等离子体射流照片.气体被处理过后得到的固体物质单质硫将储存于分离系统的产物瓶中.产生的气体物质通过干燥器之后,一部分通过气相色谱仪进行检测,另一部分气体和检测后的气体均通入到装有三氯化铁和二氯化铜的吸收瓶中.使未被处理的 $\text{H}_2\text{S}$ 与吸收瓶中的三氯化铁和二氯化铜发生化学反应而被吸收,避免直接排放造成环境污染.

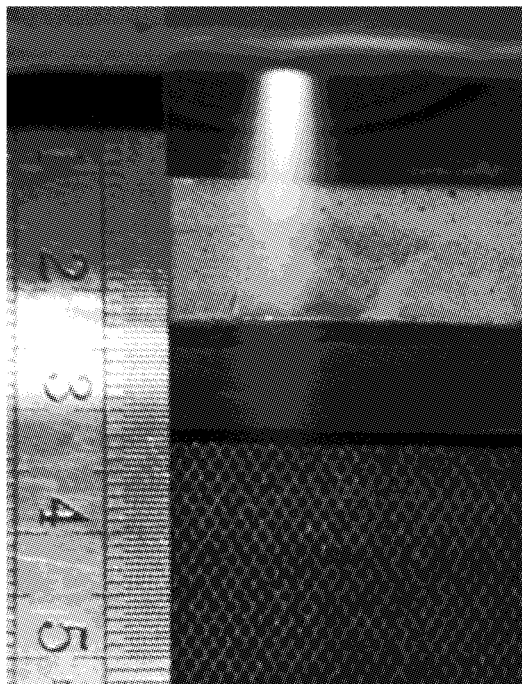


图3 氩等离子体射流图

Fig. 3 Visual view of the plasma jet in pure argon

## 2 结果与讨论

图4为总流量均为 $1\,000\text{ mL/min}$ 的不同载气等离子体射流长度随微波功率的变化.其中曲线(1)为纯Ar载气;曲线(2)为纯 $\text{CO}_2$ 载气;曲线(3)为 $\text{CO}_2$ 与Ar的混合载气.从图中可以发现,随着微波功率的增大,3种等离子体射流长度均不

断增大.产生这一现象的原因是当微波功率较低时,喷嘴尖端电场强度较小,不能完全激发通过喷嘴的气体,而且功率较低时,有时会产生拉弧放电现象,因此射流长度较小,如图5所示.当功率继续增大时,喷嘴处的电场强度随之增大,气体电离度增加,射流长度相应变大.当射流长度不再变化时,说明产生的能量足以完全电离喷嘴处的气体,而继续增大微波功率,射流长度将不再发生变化.

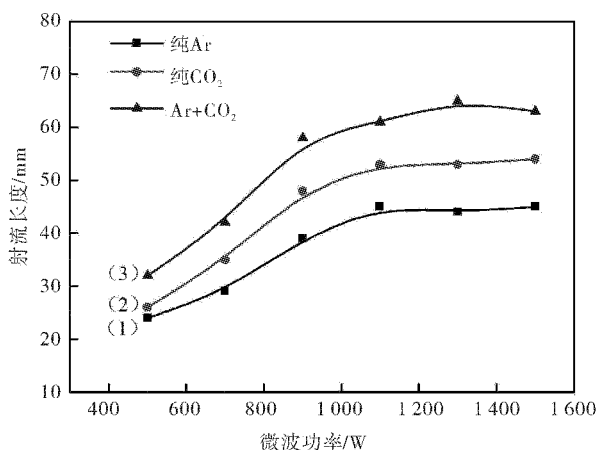


图4 微波功率对等离子体射流长度的影响

Fig. 4 The influence of microwave power on the length of plasma jet

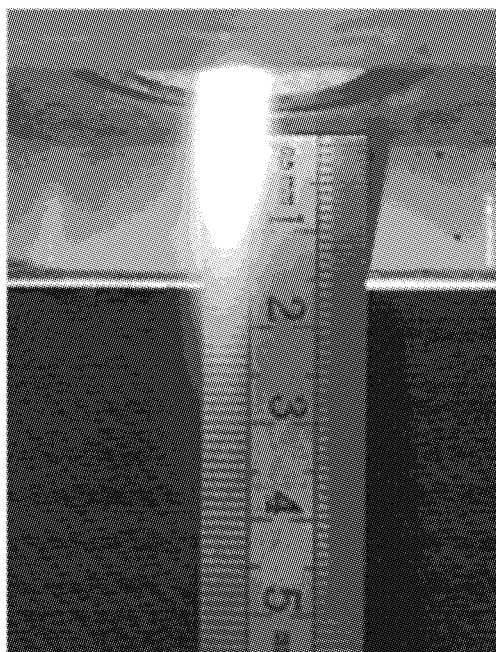
图5 微波功率500 W时 $\text{CO}_2$ 等离子体射流Fig. 5  $\text{CO}_2$  plasma jet with 500 W microwave power

图6是在总流量均为 $1\,000\text{ mL/min}$ 的不同载气类型条件下,微波功率对 $\text{H}_2\text{S}$ 转化率的影响.其中曲线(1)为纯Ar载气的条件下,流量比Ar: $\text{H}_2\text{S}$ 为9:1;曲线(2)以纯 $\text{CO}_2$ 为载气,流量比 $\text{CO}_2$ : $\text{H}_2\text{S}$ 为9:1;曲线(3)载气流量比为 $\text{CO}_2$ :

Ar : H<sub>2</sub>S 为 8 : 1 : 1. 比较图 6 和图 4 发现曲线变化趋势相近,随着微波功率的增加,H<sub>2</sub>S 转化率呈先上升后略下降或不变的趋势,且当功率一定时,载气中加入 CO<sub>2</sub> 之后,H<sub>2</sub>S 转换率变大.

出现以上现象的原因是当功率较低时,产生的微波能量较少,提供给激发气体的能量不足,使得气体电离程度较低,导致部分 H<sub>2</sub>S 气体未被分解. 而随着微波功率的增加,提供给激发气体的能量也逐渐增大,气体电离程度也增加,所以 H<sub>2</sub>S 转化率增大. 当功率继续增大时,在纯氩载气的条件下,功率的继续增加会产生额外的能量使得喷嘴周围局部温度升高,由于 H<sub>2</sub>S 的分解反应是可逆反应,在等离子体作用下,一定高温时会产生逆反应,于是 H<sub>2</sub>S 转化率会有所下降. 而对于纯二氧化碳载气,部分 CO<sub>2</sub> 气体与 H<sub>2</sub>S 分解得到的 H<sub>2</sub> 发生反应,阻碍了 H<sub>2</sub>S 分解反应的逆反应,促进其正反应,使得其转化率继续增大,最后几乎不变或者下降趋势不明显. 比较曲线(2)与(3)可推出,氩气与二氧化碳的混合气体更加有利于 H<sub>2</sub>S 的分解. 由于氩气的理论击穿电场强度比二氧化碳要低许多,氩气更容易被激发.

数据显示当功率为 1 300 W,流量比 CO<sub>2</sub> : Ar : H<sub>2</sub>S 为 8 : 1 : 1,气流总量为 1 000 mL/min 时,H<sub>2</sub>S 分解率最高为 98.64%. 而同样的载气条件下,功率为 900、1 100、1 500 W 时,H<sub>2</sub>S 分解率分别为 97.89%、98.45%、98.53%. 虽然功率从 900 W 增加至 1 500 W 时 H<sub>2</sub>S 分解率有所提高,但提高幅度并不大. 从节能上考虑,实际应用中功率大小选择可选 900 W.

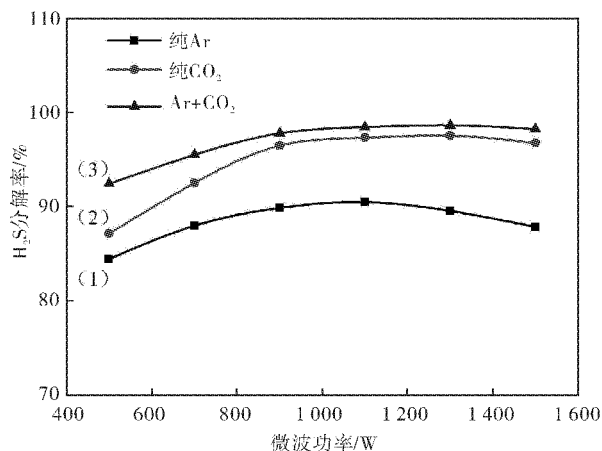


图 6 微波功率对 H<sub>2</sub>S 分解效率的影响

Fig. 6 The influence of microwave power on the decomposition efficiency of H<sub>2</sub>S

本研究也存在一些不足之处. 考虑到实用性和经济性,在后续实验研究中需要加入气体循环系统,充分利用源料气,使 H<sub>2</sub>S 分解更加充分.

### 3 结 语

a. 常压微波等离子体能有效处理 H<sub>2</sub>S 气体. 一定范围内增加微波功率有利于提高 H<sub>2</sub>S 的分解效率,当微波功率继续增加时,不同的载气(纯 Ar、纯 CO<sub>2</sub>、Ar 与 CO<sub>2</sub> 混合气体)条件下,其分解效率变化趋势不同. 在纯氩载气条件下,微波功率继续增加,H<sub>2</sub>S 的分解效率会下降;载气中含有 CO<sub>2</sub> 时,H<sub>2</sub>S 的分解效率随微波的继续增加而不变.

b. CO<sub>2</sub> 载气有利于促进 H<sub>2</sub>S 的分解,提高其分解效率. 相同微波功率条件下,载气为氩和二氧化碳混合气体时,H<sub>2</sub>S 分解效率最高. 且当微波功率为 1 300 W,气体流量比 CO<sub>2</sub> : Ar : H<sub>2</sub>S 为 8 : 1 : 1,总流量为 1 000 mL/min 时,H<sub>2</sub>S 转化率最高达 98.64%. 而从节能方面考虑,在实际应用过程中,微波功率选择 900 W 即可.

### 致谢

本研究得到国家自然科学基金委员会和武汉工程大学的资助,在此表示感谢!

### 参考文献:

- [1] 吴丹,白雪峰. 硫化氢分解制取氢气和硫的技术进展[J]. 石油与天然气化工, 2006, 35(4): 276-279.
- [2] 董永治,王涵慧,俞稼镛. 微波等离子体方法分解 H<sub>2</sub>S 制氢[J]. 太阳能学报, 1997, 18(2): 142-145.
- [3] 刘长林,汪建华,熊礼威,等. 大气微波等离子体炬装置设计及实验研究[J]. 低温物理学报, 2011, 33(3): 112-115.
- [4] 刘繁,汪建华,王秋良,等. 常压微波等离子体炬装置的模拟与设计[J]. 强激光与粒子束, 2011, 23(6): 1504-1508.
- [5] 何艾华,吴利峰,汪建华,等. 常压微波等离子射流脱碳处理有机工业废气[J]. 武汉工程大学学报, 2008, 30(1): 51-54.
- [6] Claire Tander, Christelle Tixier, Pascal Tristant, et al. Atmospheric pressure plasmas: A review[J]. Spectrochimica Acta Part B, 2006, 61(1): 2-30.
- [7] Gutsol K, Nunnally T, Rabinovich A, et al. Plasma assisted dissociation of hydrogen sulfide [J]. International Journal of Hydrogen Energy, 2012, 37(2): 1335-1347.
- [8] Linga Reddy E, Biju V M, Subrahmanyam Ch. Production of hydrogen and sulfur from hydrogen sulfide assisted by nonthermal plasma[J]. Applied Energy, 2012, 95(7): 87-92.

## Influence of microwave power on decomposition of hydrogen sulfide by atmospheric microwave plasma

WANG Jian-hua<sup>1</sup>, XU Yao<sup>1</sup>, GAO Jian-bao<sup>2</sup>, XUE Chui-qing<sup>2</sup>

(1. School of Material Science and Engineering, Key Laboratory of Plasma Chemical and Advanced Materials of Hubei Province, Wuhan Institute of Technology, Wuhan 430074, China;

2. College of Chemical Engineering, China University of Petroleum, Beijing 102249, China)

**Abstract:** To remove a large amount of poisonous gas ( $\text{H}_2\text{S}$ ) produced by oil processing, the effect of microwave power on the decomposition efficiency of  $\text{H}_2\text{S}$  was studied by atmospheric microwave plasma, in which the plasma was generated by the microwave with the carrier gas of Ar,  $\text{CO}_2$ , and the mixture of Ar and  $\text{CO}_2$ . The results show that the decomposition efficiency of  $\text{H}_2\text{S}$  is improved by the increase of microwave power in a certain range of 400 W to 1 100 W; when the microwave power continues to increase, the decomposition efficiency is changed unobviously with the different carrier gas. It is also found that the decomposition efficiency of  $\text{H}_2\text{S}$  decreases with the increase of power from 1 100~1 500 W when the carrier gas is pure argon, however, the decomposition efficiency keeps almost constant when  $\text{CO}_2$  is injected to the Ar. This phenomenon indicates that  $\text{CO}_2$ , in some degree, is benefit to promote the decomposition of  $\text{H}_2\text{S}$ . The decomposition rate of 98.64% is obtained with  $\text{H}_2\text{S}$  treatment of 1 300 W,  $\text{CO}_2/\text{Ar}/\text{H}_2\text{S}$  of 8/1/1, total flow of 1 000 mL/min. It is better to set the microwave power at 900 W to save energy.

**Key words:** microwave plasma; atmospheric;  $\text{H}_2\text{S}$

本文编辑:龚晓宁