

# 低温等离子体降低柴油机颗粒物排放的试验<sup>\*</sup>

蔡忆昔 赵卫东 李小华 吴江霞 王军 刘志楠

**【摘要】** 采用基于介质阻挡放电原理的低温等离子体试验装置及反应器,进行了低温等离子体处理柴油机排气中颗粒物的模拟和台架试验。结果表明,通过介质阻挡放电产生等离子体可有效分解柴油机排气中的颗粒物,并且相关的化学反应主要集中在介质阻挡放电微放电通道之中,颗粒物的分解率随能量密度的增加而增加。同时,介质阻挡放电所生成的低温等离子体使排气中的NO转化为NO<sub>2</sub>,但不能减少排气中NO<sub>x</sub>的总量。在同等能量密度下,排气中颗粒物含量的增加使低温等离子体转化排气中HC、NO的效率下降。

**关键词:** 柴油机 微粒 排放 试验 低温等离子体

**中图分类号:** TK421<sup>+</sup>.5; TK417<sup>+</sup>.126

**文献标识码:** A

## Experimental Study on Non-thermal Plasma Aftertreatment of Particulates Matter in Diesel Engine Exhaust

Cai Yixi Zhao Weidong Li Xiaohua Wu Jiangxia Wang Jun Liu Zhinan  
(Jiangsu University)

### Abstract

Using non-thermal plasma devices and reactor based on dielectric barrier discharge principles, simulation experiment and bench test were carried out. Experimental result indicated that non-thermal plasma produced by dielectric barrier discharge could decompose particulate matter in diesel exhaust effectively, and correlative chemical reaction mainly took place in the channels of micro discharge, decomposition rate of particulate matter increased with the energy density. The non-thermal plasma reactor could transform NO in the exhaust to NO<sub>2</sub>, but could not reduce the total amount of nitric oxides. Decomposition and conversion rate of HC and NO in diesel exhaust when treated with non-thermal plasma descend along with the quantity of particulate matter in the exhaust.

**Key words** Diesel engine, Particulate matter, Emission, Experiment, Non-thermal plasma

### 引言

柴油机排气中的主要污染物为氮氧化物(NO<sub>x</sub>)及微粒(particulate matter, 简称PM),机内净化技术对降低NO<sub>x</sub>和PM的作用是相互制约的。NO<sub>x</sub>的生成条件为高温富氧,而PM的生成条件为燃油不完全燃烧。因此,很难通过机内净化措施,同时降低NO<sub>x</sub>和PM来满足严格的排放法规要求。相关

研究表明,在机内净化的基础上,结合排气后处理技术可有效地控制柴油机的有害排放<sup>[1]</sup>。如通过废气再循环技术降低柴油机NO<sub>x</sub>的排放,而对于排气中的PM则通过后处理装置进行控制。

目前,柴油机PM后处理装置主要为微粒过滤器<sup>[2]</sup>。在加装颗粒物过滤器(diesel particulate filter, 简称DPF)等技术措施的情况下,其再生需要300℃以上的高温,这对于经常在部分负荷下工作,相应排

收稿日期: 2006-11-06

<sup>\*</sup> 国家自然科学基金资助项目(项目编号:50776041)和江苏省高校自然科学基金重大基础研究项目(项目编号:06KJA47004)

蔡忆昔 江苏大学汽车与交通工程学院 教授 博士生导师, 212013 镇江市

赵卫东 江苏大学汽车与交通工程学院 讲师

李小华 江苏大学汽车与交通工程学院 讲师

吴江霞 江苏大学汽车与交通工程学院 讲师

王军 江苏大学汽车与交通工程学院 硕士生

刘志楠 江苏大学汽车与交通工程学院 硕士生

气温度通常小于 200℃ 的车用柴油机<sup>[3]</sup>,在实际应用中不可避免地会遇到再生困难、再生成本高、装置复杂、工作可靠性低等问题。

低温等离子体(non-thermal plasma,简称 NTP)柴油机排气后处理技术因理论上具备能同时转化 NO<sub>x</sub> 及 PM,装置简单、成本低、转化效率高等优点而引起国内外研究者的关注。目前 NTP 降低柴油机排气中 PM 含量的技术路线主要有:①利用电晕放电产生 NTP,使柴油机排气中的 PM 荷电,并通过电场驱进捕获微粒。②利用介质阻挡放电所产生 NTP 的化学活性,引发柴油机排气中通常很难进行的化学反应将 PM 氧化分解。相关研究表明,荷电捕集 PM 的效率可达到 90% 以上,但在研究中也发现随 PM 在电极上的积聚对 PM 的捕集效率下降很快,以致装置不能正常工作,且存在装置再生困难的问题<sup>[4-5]</sup>。本文通过自行设计的基于介质阻挡放电原理的 NTP 反应器,开展产生 NTP 活性基团使 PM 氧化分解的模拟及试验研究。

## 1 NTP 的生成及其转化 PM 的机理

### 1.1 NTP 产生方式的选择

NTP 是通过气体放电而产生的,按照机理、设备构造及气体击穿类型的不同,可分为辉光放电、电晕放电、介质阻挡放电、微波放电、射频放电等。其中,电晕放电和介质阻挡放电(dielectric barrier discharge,简称 DBD)具有在常压下工作、设备结构简便、系统造价低等优点,2 种放电的特性参数如表 1 所示<sup>[6]</sup>。可以看出:在大气压强下,介质阻挡放电的折合电场强度、电子能量等主要特性参数均优于电晕放电;DBD 具有比电晕放电高出 1~3 个数量级的泵送能量能力,使 NTP 反应器体积紧凑,工作稳定<sup>[7]</sup>。因此,可利用 NTP 的化学活性氧化 PM。在降低柴油机排气中 PM 含量的研究中,一般采用介质阻挡放电类型的 NTP 反应器。

表 1 电晕放电及介质阻挡放电的低温等离子体特性参数

Tab.1 Characteristic parameters of non-thermal plasma produced by corona and DBD

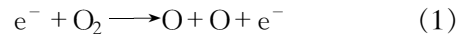
参数	电晕放电	介质阻挡放电
气体压强/Pa	10 <sup>5</sup>	10 <sup>5</sup>
电场强度/V·cm <sup>-1</sup>	500~5×10 <sup>4</sup>	10 <sup>2</sup> ~10 <sup>5</sup>
折合电场强度/Td	2~200	1~500
电子能量/eV	5,可变化	1~10
电子密度/cm <sup>-3</sup>	10 <sup>11</sup> ,可变化	10 <sup>14</sup>
电离度	小,可变化	10 <sup>-4</sup>

### 1.2 NTP 转化 PM 的机理

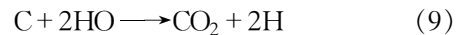
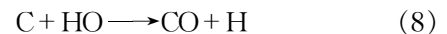
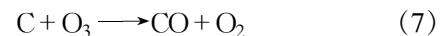
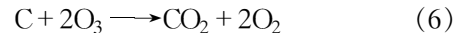
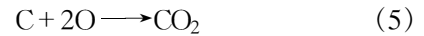
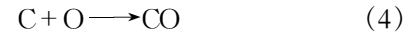
微粒主要由未燃的碳烟(soot carbon)、表面上

吸附的有机可溶性物质(SOF,主要为分子量各异的直链或环链碳氢化合物)和无机盐 3 部分组成,利用 NTP 产生的活性物质可分解转化 PM 及吸附的有机成分。下述定性反应过程已经被确认为该项研究的化学反应动力学模型<sup>[8-9]</sup>:

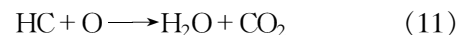
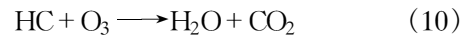
(1) NTP 中参与反应的主要活性成分的生成



(2) 微粒干碳烟(carbon soot)成分的氧化



(3) 微粒可溶性有机成分(主要为 HC)及排气中 HC 的氧化



## 2 模拟试验

为验证 NTP 对 PM 的转化效果,分析探索 NTP 对 PM 的转化过程,同时为设计适用于柴油机排气处理的 NTP 反应器积累经验,研究中采用 DBD 装置进行了模拟试验,如图 1 所示。试验中使用取样系统将柴油机排气中的 PM 吸附于玻璃纤维滤纸上,通过调节 NTP 电源的输出电压控制 DBD 的功率(亦即放电过程的强弱),使 NTP 作用于滤纸上的 PM。利用示波器通过 1:1 000 的分压电路测量电源输出电压,电源输出频率为 14 kHz。

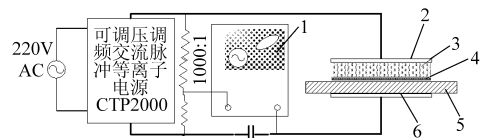


图 1 低温等离子体处理 PM 模拟试验装置

Fig.1 Diagrams of devices used in simulated experiment of treating PM with NTP

1.示波器 2.高压极板 3.放电区 4.吸附 PM 的滤纸 5.石英板 6.低压极板

图 2 为利用 DBD 产生 NTP 对吸附滤纸上 PM 的作用过程。在放电气隙为 2.5 mm 时,逐步加大电源的输出电压,当放电区场强超过空气击穿场强后,大量的微放电通道无规则地分布于放电空间内,均匀、漫散且稳定。在有微放电通道分布的区域,滤纸上吸附的 PM 迅速分解,形成黑白相间的点状图

案,白色为微放电通道作用于 PM 之后的滤纸底色;无微放电通道经过的滤纸区域变化不明显,如图 2b

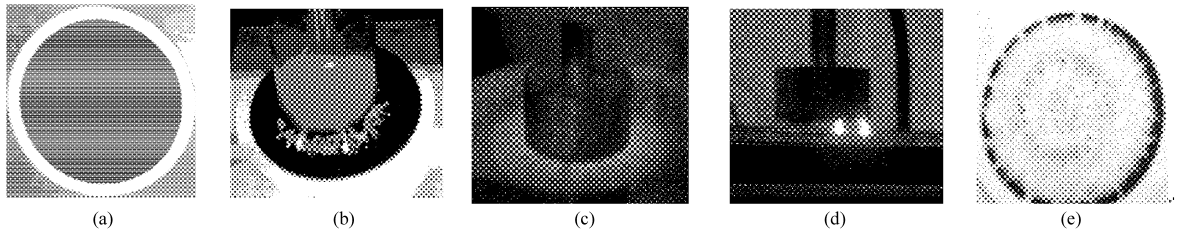


图2 低温等离子体分解 PM 模拟试验过程

Fig.2 Photos of non-thermal plasma de-PM processing

- (a) NTP作用前 (b) 放电气隙 2.5 mm, 电压 9 kV (c) 放电气隙 2.5 mm, 电压 16 kV  
(d) 放电气隙 5 mm, 电压 16 kV (e) 放电气隙 2.5 mm, 电压 16 kV 作用后

电压的增加而增加,滤纸上 PM 的分解速度更快,如图 2c 所示。由此可见,介质阻挡放电过程中产生的大量等离子态活性离子和自由基主要分布于微放电通道之中,NTP 诱发的化学反应也主要在微放电通道区域快速进行;放电电压升高导致放电区场强变大,电子能量升高,所形成的活性粒子和自由基也越多,使较低温度下难以进行的 PM 氧化过程在 NTP 作用下得以迅速地完成。

试验中发现,DBD 产生 NTP 对 PM 转化的过程中,放电气隙对放电形貌及 PM 的转化效果有较大的影响。当放电气隙较大时,放电区不易形成数量众多、分布均匀、稳定的微放电通道,放电能量将更多地集中在几条粗大、明亮的类似电弧放电通道之中。图 2d 为放电气体间隙 5 mm 时的处理过程,即在较大气体间隙时,中低频 DBD 的形貌有向电弧放电过渡的趋势,导致了 PM 转化速度的降低,能量利用率的急剧下降。

综上所述,利用 DBD 产生 NTP 可有效转化柴油机排气中的 PM,相关化学反应过程主要存在于微放电通道通过的区域,放电电压越高相关化学反应的速度越快。采用中、低频 DBD 产生 NTP 对 PM 进行转化时,不宜选择较大的气体间隙。

### 3 台架试验与结果分析

在总结前述模拟试验及台架试验<sup>[10]</sup>结果的基础上,设计了如图 3 所示的基于 DBD 原理的 NTP 反应器,并进行了试验研究。NTP 反应器电极结构为层叠柱面式,阻挡介质采用厚 3.5 mm 的石英玻璃,放电气隙为 2.5 mm,电源输出频率为 14 kHz。试验样机为 186F 型风冷柴油机。由于微粒质量浓度的测量比较困难,而有关研究表明排气微粒的质量浓度与滤纸式烟度之间有一定的指数变化规律<sup>[11]</sup>,因此采用 FBY-1 型波许烟度计测量排气波许烟度的变化来研究 NTP 对排气中微粒的作用效

所示。

气体击穿后,放电区微放电通道密度随着放电

果。用 Horiba CVS7400T 型排气分析仪,测试排气中 HC、O<sub>2</sub>、NO<sub>x</sub>、CO、CO<sub>2</sub> 等气体组分含量的变化规律。试验装置如图 4 所示。

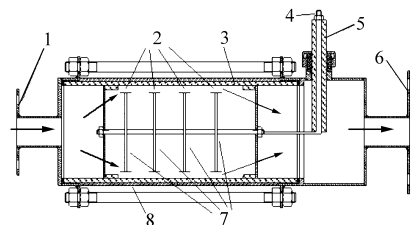


图3 低温等离子反应器结构

Fig.3 Structural diagrams of NTP reactor

- 1.接排气管 2.放电区 3.阻挡介质 4.接电源高压端 5.绝缘陶瓷 6.接排气管 7.高压电极 8.低压电极

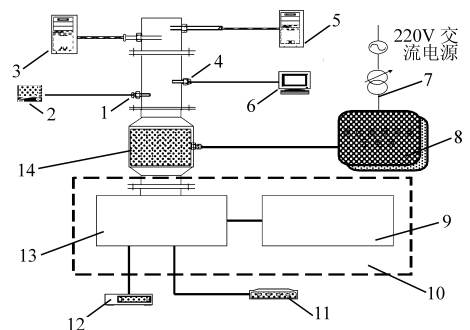


图4 试验装置系统

Fig.4 Arrangement diagram of bench test

- 1.2.压力传感器 3.波许烟度计 4.测排温热电偶 5. Horiba 排气分析仪 6.数据采集计算机 7.可调变压器 8.高压高频等离子电源 9.电涡流测功机 10.发动机台架 11.转速测量仪 12.油耗测量仪 13. CF186F 型柴油机 14. 等离子体反应器

试验中以能量密度(energy density,单位 J/L,为 NTP 反应器功率和所处理废气流量的比值)为标准,研究 NTP 反应器在不同的能量密度下对发动机排气各成分的作用规律,通过控制反应器电源的输入电压来控制能量密度。

考虑 NTP 反应器过流截面积、发动机稳定转速、波许烟度计测量精度范围等因素,选定工况 1 转速  $n$  为 1720 r/min、转矩  $T$  为 14.0 N·m;工况 2 转

速  $n$  为 1716 r/min、转矩  $T$  为 9.82 N·m 为试验工况点,测量排气中各成分随能量密度的变化规律。

### 3.1 NTP 作用下排气中波许烟度的变化

NTP 作用下发动机排气中波许烟度及  $O_2$ 、 $CO_2$ 、 $CO$  随能量密度的变化规律如图 5~8 所示。由图可见,波许烟度均呈现随能量密度增加而不断下降的趋势,在 80 J/L 的能量密度下,可使排气波许烟度值降低 60.3%、68.6%。排气中的  $O_2$  体积分数亦随能量密度增加不断减少,而  $CO$  及  $CO_2$  的体积分数却在不断增加。由此可见,NTP 可显著降低柴油机排气中的 PM 含量,其对 PM 中干碳烟的作用主要是依靠 NTP 反应器产生的活性物质  $O$ 、 $O_3$ 、 $OH$  完成化学反应过程的。

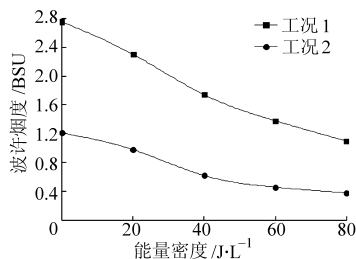


图 5 排气中波许烟度随能量密度的变化曲线

Fig.5 Bosch smoke in exhaust vs. energy density

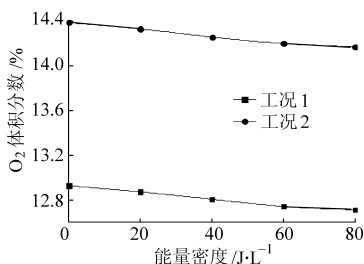


图 6 排气中  $O_2$  体积分数随能量密度的变化曲线

Fig.6  $O_2$  concentration in exhaust vs. energy density

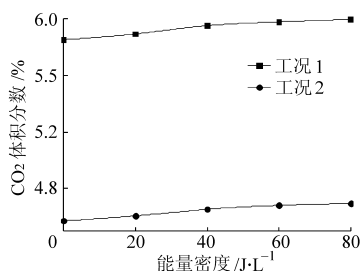


图 7 排气中  $CO_2$  体积分数随能量密度的变化曲线

Fig.7  $CO_2$  concentration in exhaust vs. energy density

### 3.2 NTP 作用对排气中 HC、 $NO_x$ 排放量的影响

排气中 HC 排放量随能量密度的变化规律如图 9 所示。排气中 HC 的排放量随能量密度增加呈现先增加而后下降的趋势。HC 排放量变化曲线的最大值,试验工况 1 出现在能量密度 37 J/L 附近,试验工况 2 出现在 20 J/L 左右,两试验工况下最大值处 HC 排放量分别约增加 17%、6%。而在能量密

度 80 J/L 下,两工况 HC 排放量分别降低 36.9%、44.2%。

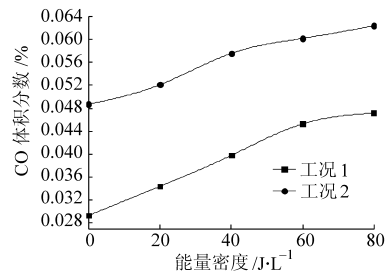


图 8 排气中  $CO$  体积分数随能量密度的变化曲线

Fig.8 CO concentration in exhaust vs. energy density

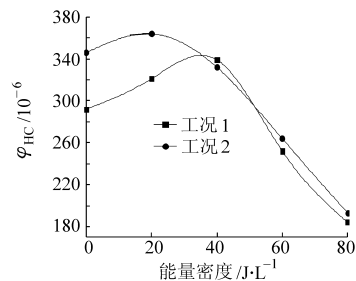


图 9 排气中 HC 排放量随能量密度的变化曲线

Fig.9 HC concentration in exhaust vs. energy density

排气中  $NO_x$  排放量随能量密度的变化规律如图 10 所示。随着能量密度的增加,排气中  $NO$  的排放量不断减少, $NO_2$  的排放量不断增加。在 80 J/L 的能量密度时, $NO$  的转化率在两工况下分别为 58.1%、67.5%;而排气中  $NO_x$  的总量并未因 NTP 的作用而减少,反而随能量密度的变大略有增加(80 J/L 能量密度下分别增加约 5.84%、2.96%)。可见,NTP 对柴油机排气中  $NO_x$  的作用,只能使  $NO_x$  的存在形态由  $NO$  向  $NO_2$  转变,而不能使  $NO_x$  总量减少。

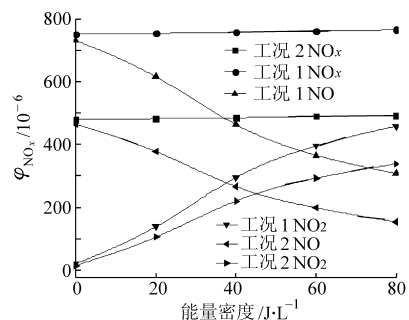


图 10 排气中  $NO_x$  排放量随能量密度的变化曲线

Fig.10  $NO_x$  concentration in exhaust vs. energy density

### 3.3 PM 含量对 NTP 处理排气中 HC、 $CO$ 、 $NO_x$ 效果的影响

根据 HC 的化学反应方程,排气中 HC 的排放量应随能量密度的增加而逐步降低,而试验结果是先增加后降低。试验中 HC 排放量的变化规律,与 NTP 对 PM 的作用过程紧密相关。由于 NTP 中高

能电子的冲击、干碳烟的不断氧化、NTP 反应器对排气的加热作用等因素,PM 中的 HC 气化溢出。在能量密度较小时,NTP 反应器的作用不足以遵循 HC 的化学反应过程而将气化溢出的 HC 分解,从而导致排气中 HC 排放量上升;随能量密度的增加,HC 的化学反应过程逐步得到加强,从而使 HC 的分解量逐步大于 PM 中的 HC 溢出量,使 HC 排放量逐步减少。

在尽可能减小排气温度、排气在 NTP 反应器中的滞留时间等因素影响的情况下,探讨 PM 含量对 NTP 处理排气中 HC、CO、NO<sub>x</sub> 等有害成分的影响。在试验工况 1,开展了如图 11 所示的对比试验研究。试验所用 DPF 为壁流式金属微粒捕集器,加装 DPF 后,波许烟度计读数接近为零。

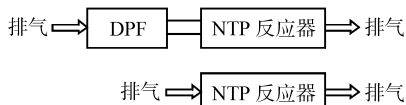


图 11 对比试验示意图

Fig. 11 Sketch map of comparative experiment

在加装 DPF 过滤掉柴油机排气中的大部分 PM 之后,排气中 HC 的排放量随能量密度的增加而下降,如图 12 所示。在能量密度为 80 J/L 时,HC 排放量降低 71.9%,证实了 HC 的化学反应过程的存在以及上述试验结论,即在 NTP 作用下分解 PM 的化学反应,PM 中吸附的 HC 发生了气化溢出的物理变化,在 NTP 反应器处理能力不足时,反而会造成柴油机排气中 HC 排放量的上升,排气中 PM 的存在使 NTP 分解 HC 的效率下降。

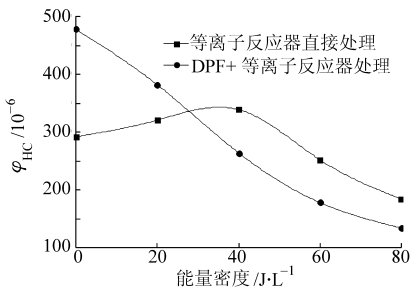


图 12 PM 对 NTP 作用下排气中 HC 排放量变化规律的影响

Fig. 12 HC concentration vs. energy density with/without DPF ahead of NTP reactor

图 13 为加装 DPF 前后,排气中 CO 体积分数随能量密度的变化规律。加装 DPF 后,随着能量密度的增加,排气中 CO 体积分数不断下降,在能量密度为 80 J/L 时,CO 体积分数降低约 67%。可见,在 NTP 反应器中伴随反应(4)、(7)、(8)的同时,存在以下化学反应过程

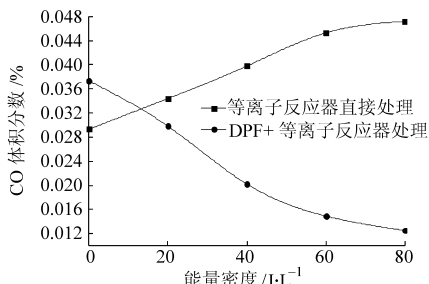
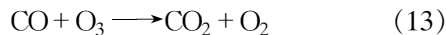


图 13 PM 对 NTP 作用下排气中 CO 体积分数变化规律的影响

Fig. 13 CO concentration vs. energy density with/without DPF ahead of NTP reactor

排气中 CO 体积分数的变化取决于反应式(4)、(7)、(8)与反应式(12)、(13)的共同作用,而排气中 PM 含量越高将使反应式(4)、(7)、(8)所示的化学反应速率越快。

加装 DPF 前后试验工况下排气中 NO 及 NO<sub>2</sub> 排放量的变化规律对比如图 14 所示。由图可见,排气中 PM 含量对排气中 NO 及 NO<sub>2</sub> 的变化趋势并无影响。不同 PM 含量的排气中,随能量密度的增加,均呈现 NO 排放量降低、NO<sub>2</sub> 排放量增加的趋势;随着排气中 PM 含量的增大,NO 的转化率降低;在较高能量密度下更为显著,如加装 DPF 后,在能量密度 80 J/L 时,NO 转化率约为 76%,较加装 DPF 前提高约 18%。

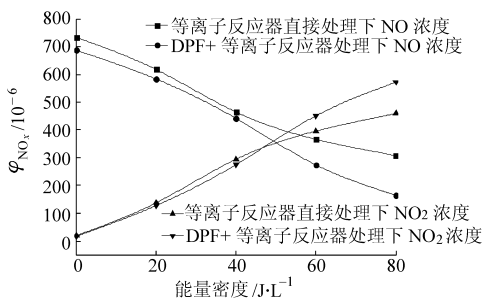


图 14 PM 对 NTP 作用下排气中 NO<sub>x</sub> 含量变化规律的影响

Fig. 14 NO<sub>x</sub> concentration vs. energy density with/without DPF ahead of NTP reactor

## 4 结论

(1) 采用基于介质阻挡放电原理的 NTP 反应器可有效分解柴油机排气中的 PM,相关化学反应主要集中在反应器微放电通道之中,PM 的转化率随能量密度的增加而增加。

(2) 伴随 NTP 分解 PM 的化学反应过程,PM 中的 HC 在基于 DBD 工作原理的 NTP 反应器的作

通过优化缸套周围冷却介质的温度场分布,达到减小缸套变形、降低机油油耗和颗粒物排放的目的。

(2) 调整原机进气道、燃烧室及供油系统后,发

动机的排放除颗粒物外,其他气体排放满足国 II 标准;在此基础上采用优化冷却水腔的方案,颗粒物排放降低,全部满足国 II 标准排放要求。

#### 参 考 文 献

- 1 Frenklach M, Wang H. Detailed modeling of soot particle nucleation and growth[C]//23th Symp. (Intl.) Comb., The Combustion Institute, Pittsburgh, 1991: 1 559~1 562.
- 2 Johnson J H. A review of diesel particulate control technology and emissions effects—1992 horning memorial award lecture [C]. SAE Paper 940233, 1994.
- 3 毕玉华,申立中,杨永忠,等.柴油机气缸套应变的动态测量[J].农业机械学报,2006,37(5):163~165.
- 4 Yuzo Aoyagi, Yoshihide Takenaka, Satoshi Niino, et al. Numerical simulation and experimental observation of coolant flow around cylinder liner in V-8 engine[J]. SAE Trans., 1988,97(6):141~151.
- 5 Oner Arici, John H Johnson, Ajey J Kulkarni. The vehicle engine cooling system simulation part 1-model development[C]. SAE Paper 1999-01-0240, 1999.
- 6 Oner Arici, John H Johnson, Ajey J Kulkarni. The vehicle engine cooling system simulation part 2-model validation using transient data[C]. SAE Paper 1999-01-0241, 1999.
- 7 Ngy Srun A P. A simple engine cooling system simulation model[C]. SAE Paper 1999-01-0237, 1999.
- 8 王书义,王宪成,段初华,等.发动机冷却水流动三维数值模拟基础研究[J].内燃机学报,1994,12(1):57~63.
- 9 白敏丽,吕继祖,丁铁新,等.六缸柴油机冷却系统流动与传热的数值模拟研究[J].内燃机学报,2004,22(6):523~531.
- 10 陈红岩,李婷.柴油机活塞-缸套-冷却系统固流耦合传热研究[J].农业机械学报,2006,37(5):37~40.

(上接第 5 页)

用下存在气化溢出的物理变化过程,如 NTP 反应器处理能量不足,将可能导致排气中 HC 浓度的上升。

(3) NTP 只能使  $\text{NO}_x$  的存在形态由 NO 向

$\text{NO}_2$  转变,而不能使  $\text{NO}_x$  总量减少。

(4) 柴油机排气中 PM 含量的增加,将降低 NTP 反应器对排气中 HC 及 NO 的转化效果。

#### 参 考 文 献

- 1 Crosse J. Prepare to vanquish anti-diesel prejudice [J]. F. T. Automotive World, 1999(3):25.
- 2 刘志明,郝郑平,沈迪新,等.柴油机排放碳颗粒物和  $\text{NO}_x$  净化技术的研究进展[J].环境污染治理技术与设备, 2000,1(5):78~86.
- 3 Carberry B, Horrocks R, Backes R, et al. A focus on current and future particulate after-treatment systems[M]//IMEchE. particulate control. London: Professional Engineering Publishing, 1998:57~73.
- 4 刘圣华,肖福明,周龙保,等.低温等离子技术在柴油机颗粒排放控制中的应用[J].内燃机学报,2001,19(4):301~304.
- 5 曾科,龙学明,刘兵,等.低温等离子体技术降低柴油机有害排放物的研究[J].内燃机学报,2003,21(1):45~47.
- 6 Eliasson B, Kogelschatz U. Non-equilibrium volume plasma chemical processing[J]. IEEE Transaction on Plasma Science, 1991,19(6):1 063~1 076.
- 7 Rosocha L A. Development of non-thermal plasma reactor technology for control of atmospheric emissions: final report for surds project[R]. CP-1038. Washington: The Federation of American Scientists, 2000.
- 8 John Hoard. Plasma-catalysis for diesel exhaust treatment: current state of the art[C]. SAE Paper 2001-01-0185, 2001.
- 9 Penetrate. Plasma assisted catalytic storage reduction system: US, 6038853[P]. 2000-03-21.
- 10 蔡亿昔,赵卫东,吴江霞,等.低温等离子发生器工作特性及试验研究[J].农业机械学报,2005,36(10):117~120.
- 11 刘忠长,刘巽俊,阎淑芳.车用直喷柴油机稳定工况下排气微粒与烟度的关系[J].汽车工程,1997,19(4):206~209.