

DOI: 10.19595/j.cnki.1000-6753.tces.241116

介质阻挡放电对 SF₆ 降解产物 SO₂F₂ 的无害化处理

李亚龙¹ 杨照迪¹ 张英² 王明伟² 张晓星¹

(1. 湖北工业大学新能源及电网装备安全监测湖北省工程研究中心 武汉 430068

2. 贵州电网有限责任公司电力科学研究院 贵阳 550002)

摘要 该文采用介质阻挡放电 (DBD) 等离子体协同填充材料对 SF₆ 降解产物 SO₂F₂ 进行降解, 探究了 γ -Al₂O₃、ZSM-5 和玻璃珠在不同输入功率下对 SO₂F₂ 降解的影响规律。实验发现, 填充材料的加入可改善体系的放电情况, 增强放电电压和放电电流; 填充材料还可有效地提高 SO₂F₂ 的降解率和能量效率 (降解率: 玻璃珠 > γ -Al₂O₃ > ZSM-5 > 无填充), 改变 SO₂F₂ 的分解路径和产物选择性, 使其生成易于处理的 SO₂。2%SO₂F₂ 在流速为 150 mL/min、功率为 100 W 的情况下, 使用玻璃珠填充时 SO₂F₂ 的降解率和能量效率分别为 99.5% 和 7.69 g/(kW·h), SO₂ 产物含量为 $9.27856 \times 10^{-4}\%$; 在同等实验条件下, ZSM-5 填充时 SO₂F₂ 的降解率低于 γ -Al₂O₃ 和玻璃珠填充, 但 ZSM-5 填充时几乎可使 SO₂F₂ 定向分解为 SO₂, 产物中 SO₂ 的含量可达 $16.908 \times 10^{-4}\%$ 。

关键词: 填充材料 介质阻挡放电 (DBD) SO₂F₂ 降解 降解率 产物选择性

中图分类号: TM206

0 引言

六氟化硫 (SF₆) 是一种无色无味的惰性气体, 因其卓越的绝缘性能和灭弧能力被广泛应用于高压电力绝缘领域^[1-3]。但 SF₆ 是一种强温室效应气体, 其温室效应潜在值 (Global Warming Potential, GWP) 约为 CO₂ 的 23 500 倍, 在大气中的寿命为 3 200 年^[4]。随着“双碳”目标的提出, 我国推出减污降碳协同增效等一系列相关准则对温室效应气体进行管控^[5-6]。对 SF₆ 进行降解可极大地减少 SF₆ 对大气的危害, 然而 SF₆ 降解产物多种多样 (如 SO₂F₂、SO₂、SOF₂、H₂S 等), 且均为有毒有害物质, 需要采用碱液对其进行吸收转化处理, 其中硫酸氟 (SO₂F₂) 作为 SF₆ 的重要分解产物之一^[7], 具有较强的温室效应和毒性; 此外, SO₂F₂ 与碱液反应过程缓慢, 很难被碱液完全吸收。因此, 对 SF₆ 降解产生的 SO₂F₂ 进行二次降解可完善 SF₆ 的无害化处理流程。

目前, 国内外针对 SO₂F₂ 废气的处理方法有碱液处理法^[8]、吸附法^[9-10]、低温等离子体法^[11-12]等。其中低温等离子体法因其结构简单、易于控制、效率高等优点, 被广泛应用于固氮、CO₂ 转化、挥发性有机物 (Volatile Organic Compounds, VOCs) 处理、SF₆ 降解^[13-18]等废气处理领域, 但产物选择性差是等离子体法存在的共性问题。等离子体技术协同催化剂可极大地改善产物的选择性, 同时可在一定程度上提高待降解物的降解率和能量效率。催化剂材料可分为单原子催化剂、金属催化剂、分子筛和金属氧化物等。其中分子筛因其多孔结构、较大比表面积等优点被广泛应用于 VOCs 降解中^[19]。分子筛孔径内大量的吸附位点可使降解分子在等离子体区域内停留更长的时间, 进而使降解分子充分分解。王乾浩等^[20]探究了不同 Si/Al 比的 ZSM-5 分子筛对 CO₂-H₂S 重整成气的影响规律, 发现 Si/Al 比为 80 的 ZSM-5 催化剂表现出最优的催化性能, H₂ 和 CO 的最高产率分别达到 56.1% 和 10.0%。金属氧化物催化剂因其表面晶格氧而表现出强氧化性, 晶格氧在低温等离子体的作用下释放出来形成表面活性氧原子, 有助于气体氧化降解^[21]。本课题组探究了 γ -Al₂O₃、玻璃珠和 ZrO₂ 对 SF₆ 降解的影响

国家自然科学基金 (52307170)、国家自然科学基金联合基金 (U24B2096)、湖北省自然科学基金 (2023AFB382) 和贵州省科技支撑项目 (黔科合支撑[2022]一般 207) 资助。

收稿日期 2024-06-27 改稿日期 2024-07-22

规律^[22-24], 发现玻璃珠参与下 SF₆ 的降解率最高, γ -Al₂O₃ 次之, 但玻璃珠降解产物中主要为 SO₂F₂, 而在 γ -Al₂O₃ 填充体系下, 产物主要为易于处理的 SO₂, 但仍存在大量 SO₂F₂。郑其锋等^[25]探究了石英玻璃球对 SO₂F₂ 脱除效率的影响规律, 当放电电压为 11.4 kV 时, 体积分数为 0.7% 的 SO₂F₂ 气体经过填充石英玻璃球的等离子体反应器处理后, SO₂F₂ 的脱除效率达到 100%, 降解产物为 SO₂、SiF₄ 及 S, 该文主要检测了 SO₂F₂ 的降解率, 对 SO₂F₂ 的分解产物和分解机理并无详细分析, 且对 SO₂F₂ 的处理效率较低。

为探究对 SO₂F₂ 降解更优异的填充催化剂材料, 本文采用 ZSM-5、 γ -Al₂O₃ 和玻璃珠作为填充催化剂, 协同介质阻挡放电 (Dielectric Barrier Discharge, DBD) 等离子体对 SO₂F₂ 进行降解, 计算不同填充材料下的降解率和能量效率, 对降解后主要产物的含量进行检测, 并分析各填充材料对 SO₂F₂ 降解的作用机理。

1 实验平台与计算方法

本文搭建的填充床式 DBD 实验平台如图 1 所示, 主要包括配气系统、DBD 电源及反应系统、尾气检测和处理系统。采用 GC500 型四通道智能动态配气仪控制输入 SO₂F₂ 气体体积分数和流速。本文实验中使用的 SO₂F₂ 气体体积分数为 2%, 背景气体为 Ar, 气体总流量为 150 mL/min。采用快速傅里叶红外 (Fourier Transform Infrared Spectrophotometer, FTIR) 光谱分析仪对 SO₂F₂ 气体分解产物进行定性分析, 确定分解产物的种类和变化趋势; 使用气相色谱质谱联用仪 (Gas Chromatography-Mass Spectrometer, GC-MS) 对 SO₂F₂ 及其主要分解产物 SO₂、SOF₂、SiF₄ 进行定量检测, 分析 SO₂F₂ 的主要分解路径。本文通过李萨如图形法测量 DBD 的放电功率。

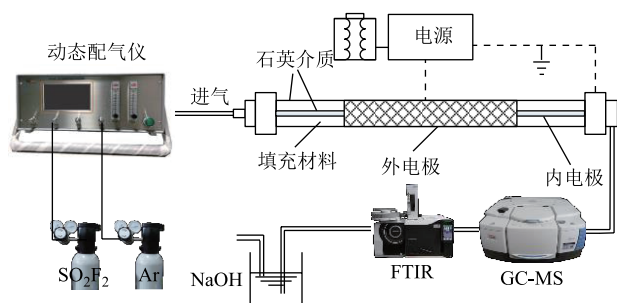


图 1 实验平台

Fig.1 Experimental platform

本文采用的 γ -Al₂O₃、ZSM-5 和玻璃珠均为直径为 2.5 mm 的球状颗粒。其中玻璃珠成分为 99%SiO₂; γ -Al₂O₃ 为纯度大于 92% 的活性 Al₂O₃; ZSM-5 组分为 [Na+n(H₂O)₁₆][Al_nSi_{96-n}O₁₉₂]-MFI (mobile five)。

SO₂F₂ 降解率 R_{DRE} 计算公式为

$$R_{DRE} = \frac{C_{in} - C_{out}}{C_{in}} \times 100\% \quad (1)$$

式中, C_{in} 为降解前 SO₂F₂ 体积分分数; C_{out} 为降解反应后 SO₂F₂ 剩余体积分分数。

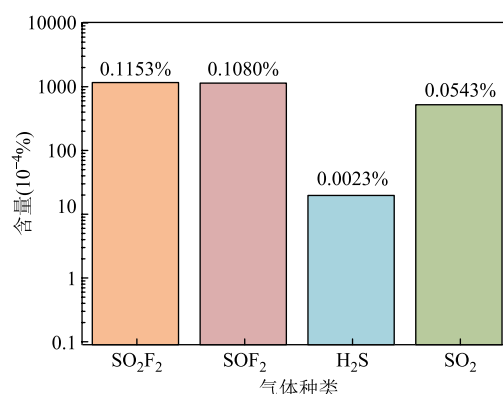
SO₂F₂ 的能量效率 η_{EY} (g/(kW·h)) 定义为单位输入能量下降解 SO₂F₂ 的质量, 计算公式为

$$\eta_{EY} = \frac{M_{SO_2F_2}}{3.6Pt} \times 1000 \quad (2)$$

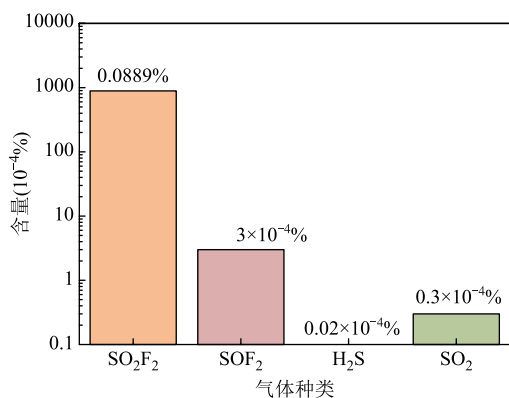
式中, $M_{SO_2F_2}$ 为 t 时间 (h) 内降解 SO₂F₂ 气体的质量, g; P 为放电功率, W。

2 SF₆ 降解产物处理

本文首先探究了 SF₆ 经过 DBD 降解后降解产物的含量 (体积分分数) 分布 (实验条件: 气体组成为 2%SF₆/98%Ar, 气体流速为 150 mL/min, 输入功率为 90 W), 结果如图 2a 所示。SF₆ 降解产物中 SO₂F₂ 和 SOF₂ 含量最高, 分别为 1.153×10⁻⁴%、1.080×10⁻⁴%, H₂S 和 SO₂ 含量相对较少。为使 SF₆ 无害化排放, 需采用碱液对降解后的气体进行处理, 本文采用 1%NaOH 溶液对 SF₆ 的降解尾气进行处理, 处理后各气体含量如图 2b 所示。可发现 SOF₂、H₂S、SO₂ 等产物被有效地处理, 而 SO₂F₂ 因性质稳定, 不易与碱液反应, 经处理后含量仍有 889×10⁻⁴%, 碱液吸收率仅为 22.9%, 处理效率较低。为实现 SF₆ 无害化降解, 本文采用等离子体协同催化技术对 SF₆ 降解产物 SO₂F₂ 进行二次降解。首先通过第一级反应器使 SF₆ 分解为 SO₂F₂、SOF₂、



(a) SF₆ 降解产物含量分布

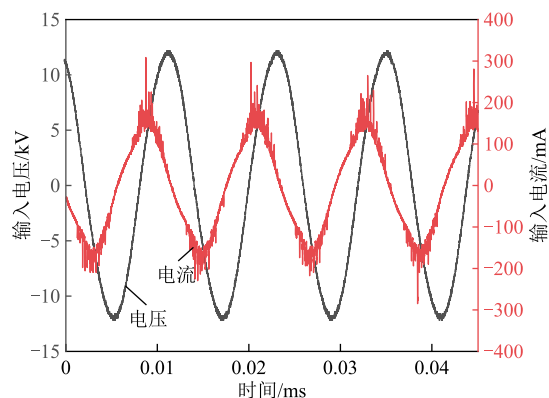
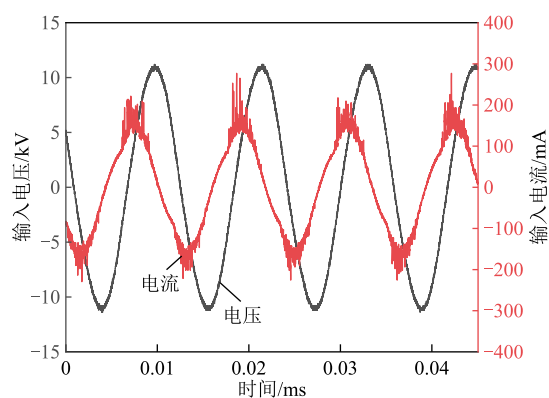
(b) SF₆降解产物经NaOH溶液处理后各气体含量图2 SF₆降解产物经碱液处理前后各气体含量Fig.2 The gas content of SF₆ degradation products before and after lye treatment

SO₂等物质,经过碱液处理后,气体中剩余不易与碱液反应的SO₂F₂;然后采用等离子体协同催化技术对SO₂F₂进行二次降解,使其转化为易于处理的SO₂;最后碱液处理实现SF₆的无害化降解。关于SF₆的降解技术已开展了较多研究,本文主要研究针对SO₂F₂的二次降解。

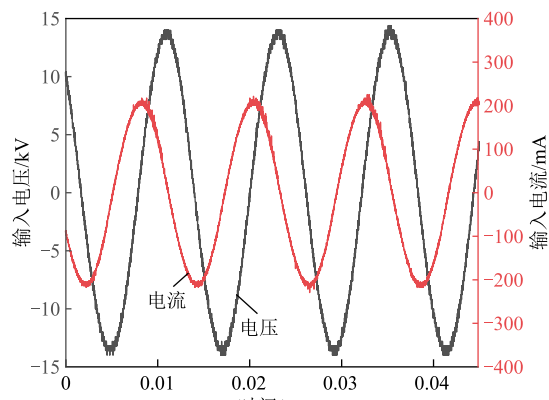
3 SO₂F₂降解结果分析

3.1 电学参数

为了分析不同填充材料下放电体系的放电情况,本文采集了不同填充材料下放电体系的电压和电流。不同填充材料在输入功率为70 W时的电压、电流波形如图3所示。在同一输入功率下,填充材料的加入可有效地提高放电电压和电流,γ-Al₂O₃和ZSM-5填充体系下的放电电压和电流值较为接近,其中γ-Al₂O₃填充体系的放电电压和电流分别为11.99 kV、181 mA;填充玻璃珠后反应体系的放电电压和电流值最大,分别为13.59 kV、210 mA。在空管体系下有明显的细丝放电,γ-Al₂O₃和ZSM-5填充体系下细丝放电显著减少,玻璃珠填充体系下未

(b) γ-Al₂O₃

(c) ZSM-5



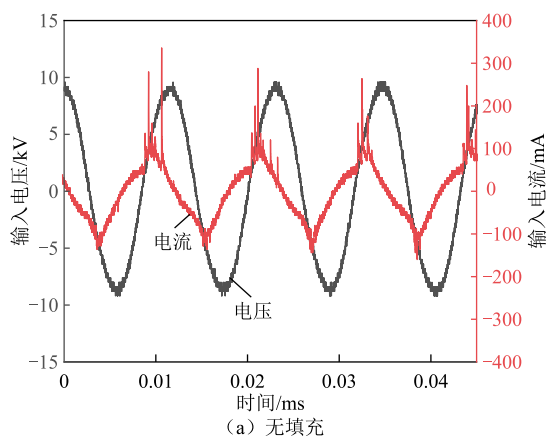
(d) 玻璃珠

图3 不同填充材料下的电压、电流波形
(输入功率70 W)

Fig.3 Waveforms of voltage and current under different filling materials (input power: 70 W)

见明显细丝放电,表明催化剂的加入可改善放电情况,使放电更均匀。

不同填充材料下放电体系的李萨茹图形如图4所示。填充材料的加入使得放电李萨茹图形从空管体系的平行四边形变得接近椭圆形,同时填充材料加入后李萨茹图形面积增大,表明填充材料加入后单个放电周期内的放电功率增加,从而使更多的能量用于活化分解SO₂F₂。填充γ-Al₂O₃和ZSM-5的李萨茹图形面积基本一致,填充玻璃珠的李萨茹图



(a) 无填充

形面积最大,表明在同一输入功率下,填充玻璃珠体系的放电功率最大。不同填充材料体系下绝缘介质等效电容见表 1。ZSM-5 和玻璃珠填充时放电体系的 AB 段斜率大于 γ -Al₂O₃,这得益于 ZSM-5 和玻璃珠具有较高的相对介电常数。ZSM-5 和玻璃珠填充时放电体系绝缘介质等效电容分别为 82.47 pF 和 75.54 pF,显著高于空管时的 57.63 pF。

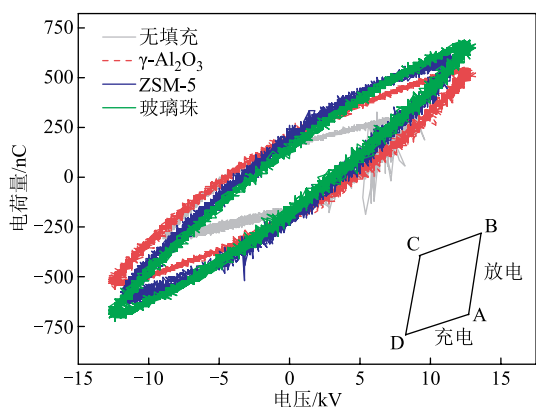


图 4 不同填充材料下李萨茹图形

Fig.4 Lissajous figure under different filling materials

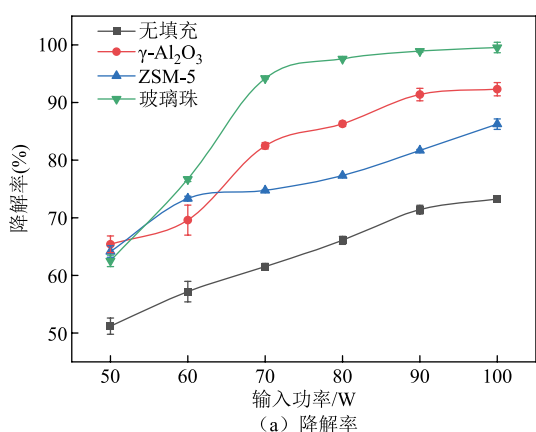
表 1 不同填充材料体系下绝缘介质等效电容

Tab.1 Equivalent capacitance of insulating dielectric under different filler material systems

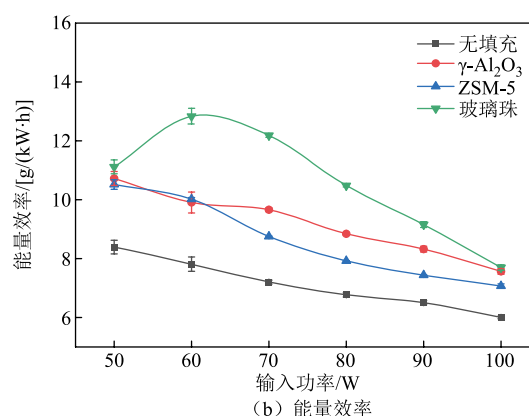
填充材料	等效电容/pF
空管	57.63
γ -Al ₂ O ₃	66.55
ZSM-5	82.47
玻璃珠	75.54

3.2 降解率和能量效率

不同填充材料下 SO₂F₂ 的降解率和能量效率如图 5 所示。由图 5 可知,随着输入功率的增加,不同填充体系下 SO₂F₂ 的降解率均逐渐增加;玻璃珠填充体系下的能量效率呈现先增加后降低的趋势,其余体系下 SO₂F₂ 的能量效率均逐渐下降。这是由



(a) 降解率



(b) 能量效率

图 5 不同填充材料下的降解率和能量效率

Fig.5 Destruction and removal efficiency and energy yield of different filling materials

于当输入功率由 50 W 增加到 60 W 时,玻璃珠体系下 SO₂F₂ 的降解率显著增加,更多的 SO₂F₂ 发生降解导致能量效率增加,而随着输入功率继续增加,SO₂F₂ 降解率增加缓慢,从而导致能量效率降低;在其他填充材料体系下,随着输入功率的增加,SO₂F₂ 降解率均缓慢增加,促使 SO₂F₂ 能量效率呈现逐渐降低的趋势。

在输入功率为 50~60 W 时, γ -Al₂O₃、ZSM-5 和玻璃珠填充时的 SO₂F₂ 降解率基本一致;而在输入功率为 60~80 W 时, γ -Al₂O₃ 和玻璃珠填充时的降解率显著增加,ZSM-5 的降解率缓慢增加。这是由于在低功率时,电子能量密度较低, γ -Al₂O₃ 中激发态晶格氧较少,降解率较低,当能量密度增加到 γ -Al₂O₃ 中的晶格氧阈值时,大量氧原子被激发,从而促进 SO₂F₂ 分解,使 SO₂F₂ 降解率快速提升;当功率增加到一定值时,玻璃珠填充体系更容易被击穿放电,增加放电功率进而提高 SO₂F₂ 降解率;ZSM-5 主要通过自身结构的吸附位点对 SO₂F₂ 进行吸附,并在吸附位点上协同等离子体使其断键分解,分解后的产物在其表面脱吸附,而随着输入功率的增加,吸附位点数量并没有变化,仅放电能量增加,电荷密度增加,进而提高 SO₂F₂ 降解率。在输入功率为 100 W 时,玻璃珠填充体系下 SO₂F₂ 降解率最高,降解率和能量效率分别为 99.5%、7.69 g/(kW·h)。可见,填充材料的加入使 SO₂F₂ 的降解率和能量效率均显著提高。

3.3 产物分析

为了探究 SO₂F₂ 在不同填充材料下的产物种类,本文采用 FTIR 对不同填充材料下的降解产物进行分析,结果如图 6 所示。

SO₂F₂ 分解产物有 SOF₂、SOF₄、OF₂、SO₂ 等。

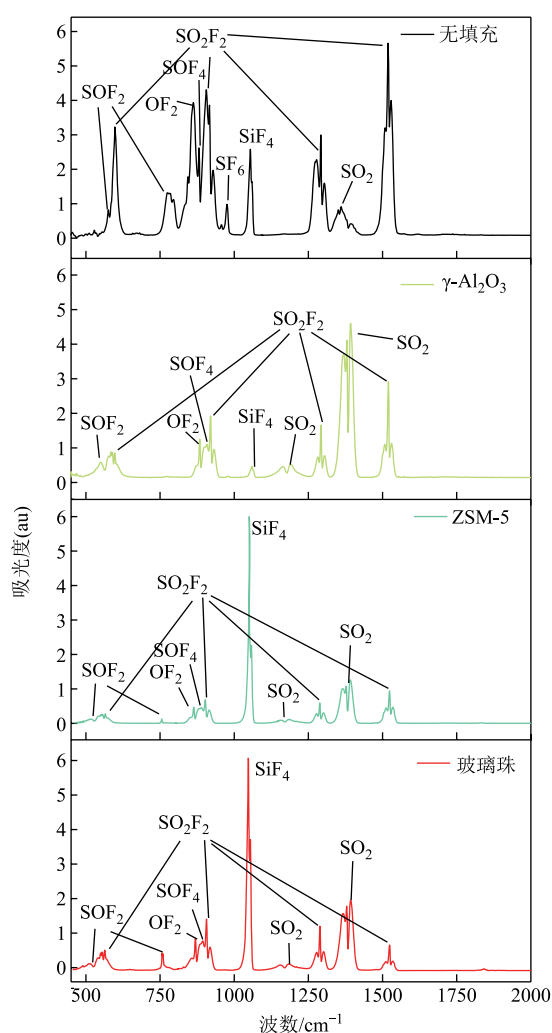


图6 70 W时不同填充材料下降解产物的红外光谱

Fig.6 FTIR spectrum of degradation products of different filling materials at 70 W

由图6可知,在四种体系下均出现了 SiF_4 的吸收峰,但在ZSM-5和玻璃珠体系下 SiF_4 的吸收峰强度最强。由于本文实验使用的反应器是 SiO_2 石英玻璃材质, SO_2F_2 解离产生的 F^- 会与 SiO_2 反应生成 SiF_4 ,而ZSM-5中也含有 SiO_2 ,导致ZSM-5和玻璃珠填充时 SiF_4 吸收峰强度最高;而在空管和 $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 填充时,仅DBD反应器中的 SiO_2 参与反应,因此 SiF_4 含量相对较少。空管体系下,在 945.4 cm^{-1} 处还发现了 SF_6 的吸收峰,这是因为 SO_2F_2 在断键分解过程中产生的 S^{6+} 与 F^- 结合生成了结构更为稳定的 SF_6 。而填充其他材料时没有发现 SF_6 的吸收峰,这是因为 S^{6+} 与 F^- 结合形成 SF_6 的反应是一个可逆反应,在 $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 填充时, $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 中的活性晶格氧被激发并与断键生成的S原子反应生成硫氧化物,从而抑制 SF_6 的生成;而在ZSM-5和玻璃珠填充时,内部的 SiO_2 在等离子体放电过程中会参与

SO_2F_2 的分解反应,阻断 S^{6+} 与 F^- 离子结合形成 SF_6 。在无填充催化剂体系下, SOF_2 在 750 cm^{-1} 处的吸收峰强度较强, 1339 cm^{-1} 处的 SO_2 吸收峰较弱;在 $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 和ZSM-5填充体系下,仅检测到微弱的 SOF_2 吸收峰,而 SO_2 吸收峰强度增强,表明填充 $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 、ZSM-5和玻璃珠催化剂后可改变 SO_2F_2 的分解路径,使其生成更稳定的 SO_2 。

为了探究 SO_2F_2 分解后各产物的含量,本文采用GC-MS对降解后气体中的 SO_2 、 SOF_2 、 SiF_4 进行定量分析,结果如图7所示;并分析了 SO_2F_2 潜在分解过程及其反应势能,见表2。从图7a可知,空管体系下, SO_2F_2 的分解产物中 SOF_2 含量最高,随着输入功率的增加, SO_2 、 SOF_2 含量均逐渐增加,这是由于随着输入功率的增加,产生了更多高能电子与Ar碰撞激发,大量 Ar^* 和 e^* 与 SO_2F_2 碰撞使其激发分解生成 SO_2 和 SOF_2 ,促进了反应①、②、③、⑤。而填充 $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 、ZSM-5和玻璃珠后,分解产物中主要为 SO_2 ,这是由于填充材料后, SO_2F_2 分解更充分,反应③中初步分解产物 SOF_2 也分解生成性质更稳定的 SO_2 ,促进反应⑤发生,可见填充材料可以改变 SO_2F_2 的分解路径。此外 SO_2F_2 直接分解为 SO_2 需要 -123.779 kcal/mol ($1\text{ kcal}=4.814\text{ kJ}$),而 SO_2F_2 先分解为 SOF_2 再分解为 SO_2 仅需 -88.549 kcal/mol ,表明催化剂的加入可降低 SO_2F_2 分解的反应势能,改变 SO_2F_2 分解路径。在ZSM-5填充体系下, SO_2 的含量更高,在输入功率为 100 W 时, SO_2 含量达到 $16\,908\times 10^{-4}\%$,几乎可使 SO_2F_2 完全定向分解为 SO_2 ,这得益于ZSM-5的多孔结构,ZSM-5可为 SO_2F_2 及其分解产物提供更多的吸附位点,使 SO_2F_2 在等离子体区域内停留时间更长,从而使得 SO_2F_2 分解更充分。玻璃珠填充下主要产物为 SO_2 ,且 SO_2 含量随着输入功率的增加而增加。此外,在各填充体系下均检测到大量 SiF_4 。在空管和 $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 填充体系下, SiF_4 含量几乎不随着输入功率的变化而变化,且填充 $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 后 SiF_4 含量低于空管体系。在空管体系下, SiF_4 含量稳定在 $2\,000\times 10^{-4}\%$ 左右,而 $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 填充时 SiF_4 含量稳定在 $1\,000\times 10^{-4}\%$ 左右,这是由于空管体系下等离子体反应主要发生在反应器表面,且反应器内的 SiO_2 参与 SO_2F_2 分解反应,反应过程为⑥; $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 填充时 SO_2F_2 的分解反应主要发生在 $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 表面,而在DBD反应器表面发生的 SO_2F_2 分解反应减少,从而使 SiF_4 含量减少;在ZSM-5和玻璃珠填充时,由于ZSM-5和玻璃珠内部的大量 SiO_2 参与 SO_2F_2 的分解反应,促进反应⑥进

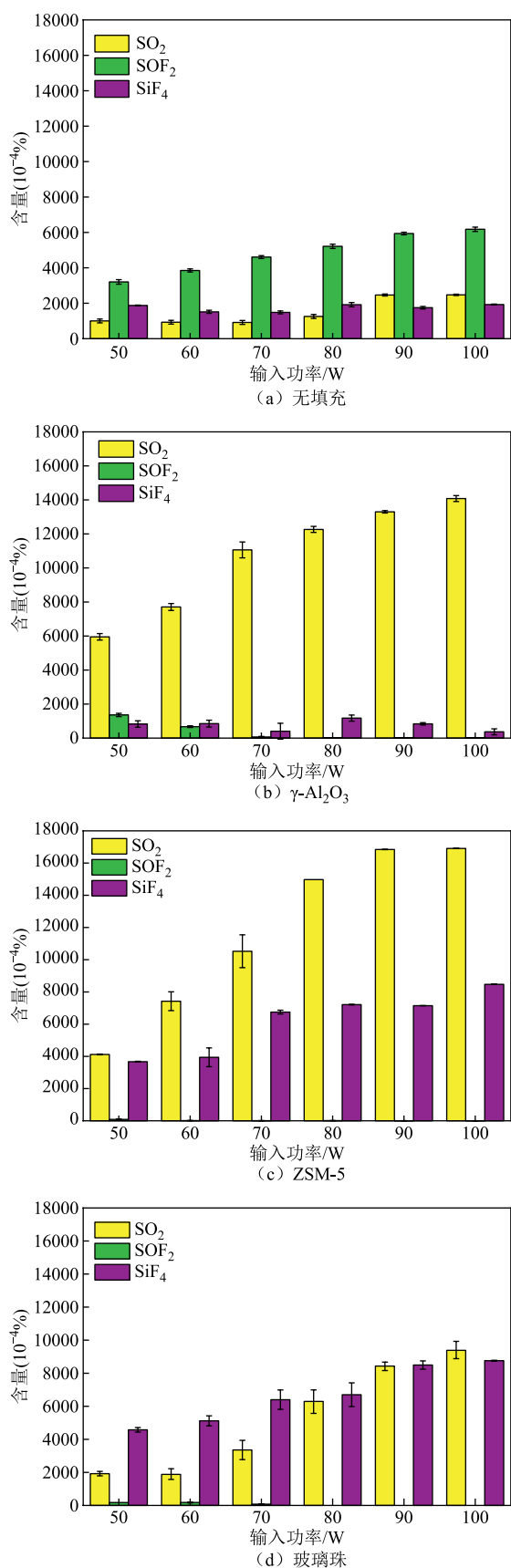


图 7 不同填充材料下降解产物含量

Fig.7 The content of degradation products decreased with different filling materials

表 2 SO₂F₂ 分解反应路径及其反应势能^[11,26]

Tab.2 The decomposition reaction pathway of SO₂F₂ and the reaction potential energy^[11,26]

编号	反应式	反应势能/(kcal/mol)
①	Ar + e [*] → Ar [*] + e	
②	SO ₂ F ₂ + Ar [*] → SO ₂ F ₂ [*] + Ar	
③	SO ₂ F ₂ [*] → SOF ₂ + O	-27.2
④	SOF ₂ + O → SO ₂ + 2F	-61.349
⑤	SO ₂ F ₂ → SO ₂ + 2F	-123.779
⑥	SiO ₂ + 4F → SiF ₄ + 2O	-310.916

行, 从而使 SiF₄ 含量显著增加。

玻璃珠填充体系下, SO₂F₂ 的降解率最高, 但该体系下易于处理的 SO₂ 含量较少。综合考虑 SO₂F₂ 的降解率、能量效率和各产物含量, ZSM-5 填充体系下 SO₂F₂ 的降解效果最优, 此时, 2%SO₂F₂/98%Ar 在输入功率为 100 W、气体流速为 150 mL/min 的实验条件下, SO₂F₂ 的降解率为 86.3%, SO₂ 的含量为 16 908×10⁻⁴%, 几乎可使 SO₂F₂ 定向分解为 SO₂。

4 结论

本文通过搭建介质阻挡放电实验平台探究了 γ -Al₂O₃、ZSM-5 和玻璃珠对 SO₂F₂ 降解的影响规律, 得到如下结论:

1) 填充玻璃珠时, SO₂F₂ 的降解率和能量效率最高, γ -Al₂O₃ 和 ZSM-5 次之。在玻璃珠填充体系下, 在输入功率为 100 W 时, SO₂F₂ 的降解率和能量效率分别为 99.5%和 7.69 g/(kW·h)。填充材料的加入可改变放电体系的等效电容, 不同材料下介质等效电容大小关系为: ZSM-5 > 玻璃珠 > γ -Al₂O₃ > 无填充。

2) 在输入功率为 70~100 W 时, SO₂F₂ 在 ZSM-5 填充体系下更倾向于生成 SO₂, 在功率为 100 W 时, SO₂ 的含量为 16 908×10⁻⁴%, SO₂F₂ 几乎可定向分解为 SO₂。同等实验条件下填充 γ -Al₂O₃ 时 SO₂ 含量为 14 078.56×10⁻⁴%。

3) SO₂F₂ 的主要分解产物为 SOF₂、SO₂、SOF₄、OF₂ 等, 加入催化剂可改变 SO₂F₂ 的分解路径, 使其生成易于处理的 SO₂。在降解产物中还含有大量 SiF₄, 表明发生了刻蚀反应, 其中 ZSM-5 中的 Si 元素来自 SO₂F₂ 分解反应。

参考文献

[1] 张国治, 胡栩焜, 邓广宇, 等. SF₆ 及 SF₆ 故障分解气体与局部放电柔性特高频天线传感器基底相容性

- 实验研究[J]. 电工技术学报, 2023, 38(15): 4050-4062.
- Zhang Guozhi, Hu Xukun, Deng Guangyu, et al. Experimental study on substrate compatibility of SF₆ and SF₆ fault-decomposing gases with partial discharge flexible UHF antenna sensors[J]. Transactions of China Electrotechnical Society, 2023, 38(15): 4050-4062.
- [2] 蒋庆明,张艳妹,王明祥,等. SF₆分解组分的气体传感器检测方法综述[J]. 绝缘材料, 2024, 57(3): 1-14.
- Jiang Qingming, Zhang Yanmei, Wang Mingxiang, et al. Review of gas sensor detection methods for SF₆ decomposition components[J]. Insulating Materials, 2024, 57(3): 1-14.
- [3] 李昊天,曾福平,颜伊鸣,等. Ag表面对SF₆初级分解产物氧化反应的影响作用研究[J]. 电工技术学报, 2024, 39(9): 2841-2850.
- Li Haotian, Zeng Fuping, Yan Yiming, et al. Study on the effect of Ag surface on oxidation of SF₆ primary decomposition products[J]. Transactions of China Electrotechnical Society, 2024, 39(9): 2841-2850.
- [4] Sulbaek Andersen M P, Kyte M, Andersen S T, et al. Atmospheric chemistry of (CF₃)₂CF—C≡N: a replacement compound for the most potent industrial greenhouse gas, SF₆[J]. Environmental Science & Technology, 2017, 51(3): 1321-1329.
- [5] Zhang Dongzhi, Sun Yan'e, Li Peng, et al. Facile fabrication of MoS₂-modified SnO₂ hybrid nanocomposite for ultrasensitive humidity sensing[J]. ACS Applied Materials & Interfaces, 2016, 8(22): 14142-14149.
- [6] 向柳,陈明扬,文新茹. 面向“双碳”目标的温室气体排放数据体系建设路径研究[J]. 统计与咨询, 2023(2): 16-18.
- [7] 张晓星,周畅,崔兆仑,等. 填充颗粒尺寸对介质阻挡放电降解SF₆的影响[J]. 电工技术学报, 2022, 37(18): 4766-4776.
- Zhang Xiaoxing, Zhou Chang, Cui Zhaolun, et al. Effect of particle size on degradation of SF₆ by dielectric barrier discharge[J]. Transactions of China Electrotechnical Society, 2022, 37(18): 4766-4776.
- [8] Nie Yong, Liang Xiaojiang, Ji Jianbing, et al. Harmless treatment of sulfur fluoride by chemical absorption [J]. Environmental Engineering Science, 2015, 32(9): 789-795.
- [9] 曹国洲,华正江,朱晓艳,等. 一种硫酰氟的消除方法: CN104324704B[P]. 2016-08-17.
- [10] 张竹娇. 硫酰氟在生物基溶剂中的溶解特性研究[D]. 杭州: 浙江工业大学, 2020.
- Zhang Zhujiào. Study on the dissolution characteristics of sulfur fluoride in bio-based solvents[D]. Hangzhou: Zhejiang University of Technology, 2020.
- [11] 张国治,王文祥,张磊,等. 介质阻挡放电等离子体处理变压器废弃绝缘油的实验探究[J]. 电工技术学报, 2025, 40(1): 325-334.
- Zhang Guozhi, Wang Wenxiang, Zhang Lei, et al. Experimental exploration of dielectric barrier discharge plasma treatment of transformer waste insulating oil[J]. Transactions of China Electrotechnical Society, 2025, 40(1): 325-334.
- [12] 孙闵杰,付军辉,刘泓麟,等. 分段电极介质阻挡放电CO₂重整CH₄过程放电特性与反应性能研究[J]. 电工技术学报, 2023, 38(15): 3972-3983.
- Sun Minjie, Fu Junhui, Liu Honglin, et al. Discharge characteristics and reaction performance of CH₄ reforming with CO₂ in dielectric barrier discharge with segmented electrodes[J]. Transactions of China Electrotechnical Society, 2023, 38(15): 3972-3983.
- [13] Xia Ying, Yang Xin, Chang Lei, et al. Development of a compact helicon plasma source with two sets of ring array permanent magnets for the study of blue core plasma[J]. Review of Scientific Instruments, 2023, 94(12): 125110.
- [14] 商克峰,曹无敌,符梦辑. 电极结构对多孔陶瓷孔内微放电特性及苯降解的影响[J]. 电工技术学报, 2023, 38(6): 1687-1694.
- Shang Kefeng, Cao Wudi, Fu Mengji. Effect of electrode configuration on microdischarge characteristics in porous ceramics and benzene degradation[J]. Transactions of China Electrotechnical Society, 2023, 38(6): 1687-1694.
- [15] Yang Zhaodi, Li Yalong, Wang Yufei, et al. Experimental study on the effect of H₂ on the degradation of SF₆ by pulsed dielectric barrier discharge[J]. IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation, 2024, 31(1): 448-456.
- [16] Wu Yunjian, Gao Peng, Li Yalong, et al. Degradation of SF₆ by dielectric barrier discharge cooperating with TiO₂ photocatalysis: insights into the reaction mechanism[J]. Applied Surface Science, 2024, 660: 159957.

- [17] 方文睿, 唐雄民, 江天鸿, 等. 脉冲激励下介质阻挡放电负载的特性研究[J]. 高压电器, 2024, 60(5): 171-178, 188.
Fang Wenrui, Tang Xiongmin, Jiang Tianhong, et al. Research on characteristics of dielectric barrier discharge load under pulse excitation[J]. High Voltage Apparatus, 2024, 60(5): 171-178, 188.
- [18] 卢洪伟, 倪志娇, 查学军. 不同电极结构对 DBD 降解亚甲基蓝废水的影响[J]. 高压电器, 2023, 59(4): 62-69.
Lu Hongwei, Ni Zhijiao, Zha Xuejun. Effect of different electrode structures on degradation of methylene blue wastewater by DBD plasma[J]. High Voltage Apparatus, 2023, 59(4): 62-69.
- [19] Xu Yaxuan, Chen Xiaozhou, Qiao Congzhen, et al. Dynamics-driven tailoring of Zr-embedded hierarchical ZSM-5 zeolites for enhanced catalytic performance from furfural to alkyl levulinate[J]. Chemical Engineering Journal, 2024, 486: 150350.
- [20] 王乾浩, 赵璐, 孙付琳, 等. ZSM-5 催化剂与低温等离子体协同转化 H₂S-CO₂ 制合成气[J]. 化工学报, 2022, 73(1): 255-265.
Wang Qianhao, Zhao Lu, Sun Fulin, et al. Production of syngas derived from H₂S-CO₂ via synergy of ZSM-5 catalyst and non-thermal plasma[J]. CIESC Journal, 2022, 73(1): 255-265.
- [21] Plota-Pietrzak A, Masek A. Functionalized metal oxide particles with antioxidant as new carriers providing higher stability of polyolefin products[J]. Sustainable Materials and Technologies, 2024, 40: e00885.
- [22] Li Yalong, Wan Kun, Wang Yufei, et al. Experimental study on the effect of H₂O and O₂ on the degradation of SF₆ by pulsed dielectric barrier discharge[J]. Plasma Science and Technology, 2024, 26(2): 025506.
- [23] Cui Zhaolun, Zhou Chang, Jafarzadeh A, et al. SF₆ catalytic degradation in a γ -Al₂O₃ packed bed plasma system: a combined experimental and theoretical study[J]. High Voltage, 2022, 7(6): 1048-1058.
- [24] Zhou Chang, Wang Yufei, Zhang Guozhi, et al. Experimental study on SF₆ degradation by dielectric barrier discharge filled with zirconia[C]//The Proceedings of the 16th Annual Conference of China Electrotechnical Society, Beijing, China, 2021: 74-85.
- [25] 郑其锋, 聂勇, 顾大勇, 等. 填充式介质阻挡放电等离子体脱除硫酰氟的研究[J]. 高电压技术, 2012, 38(5): 1157-1162.
Zheng Qifeng, Nie Yong, Gu Dayong, et al. Removal of SO₂F₂ by the packed bed dielectric barrier discharge plasma[J]. High Voltage Engineering, 2012, 38(5): 1157-1162.
- [26] Cui Zhaolun, Zhang Xiaoxing, Tian Yuan, et al. Effects of glass beads packing on SF₆ abatement by packed bed plasma[J]. Plasma Chemistry and Plasma Processing, 2020, 40(1): 43-59.

作者简介

李亚龙 男, 1989 年生, 博士, 讲师, 研究方向为气体放电等离子体和环保绝缘气体应用。

E-mail: liyalong@hbut.edu.cn

张晓星 男, 1972 年生, 教授, 博士生导师, 研究方向为电气设备在线检测与故障诊断、绝缘状态评估、SF₆ 替代气体及气体放电等离子体等应用。

E-mail: xiaoxing.zhang@outlook.com (通信作者)

Dielectric Barrier Discharge on SF₆ Degradation Products SO₂F₂ Free-Pollution Disposal

Li Yalong¹ Yang Zhaodi¹ Zhang Ying² Wang Mingwei² Zhang Xiaoxing¹

(1. Hubei Engineering Research Center for Safety Monitoring of New Energy and Power Grid Equipment
Hubei University of Technology Wuhan 430068 China

2. Scientific Research Institute of Electric Power Guizhou Power Grid Co. Ltd Guiyang 550002 China)

Abstract Sulfur hexafluoride (SF₆), which has strong electronegativity and self-recovery, exhibits excellent insulation and arc-extinguishing capabilities and is widely used in the field of power insulation. However, SF₆ is a strong greenhouse effect gas, and its global warming potential is 23 500 times that of CO₂, and its degradation can significantly reduce the pollution and harm of SF₆ to the atmosphere. Then, there are many kinds of toxic and harmful substances in SF₆ degradation products, among which sulfuranyl fluoride (SO₂F₂), as the main decomposition

product of SF₆, still has the greenhouse effect and huge toxicity and stable nature. The degradation of SO₂F₂ can improve the harmless degradation process of SF₆ and realize the harmless emission of SF₆. At present, many scholars at home and abroad for the treatment of SO₂F₂ waste gas treatment methods mainly include the alkali treatment method, adsorption method, Non-temperature plasma method, etc., in which the Non-temperature plasma method has the advantages of simple structure, ease of control, high efficiency, etc. Still, there is a problem of poor regulation of the product. By filling the catalyst, the degradation rate can be increased and the product selectivity can be improved. In this paper, the degradation of SO₂F₂ by dielectric barrier discharge (DBD) plasma synergistic filling materials was investigated, and the effects of γ -Al₂O₃, ZSM-5, and glass beads on the degradation of SO₂F₂ with different input powers were investigated.

The experimental platform for SO₂F₂ degradation by DBD plasma synergistic filler materials was first constructed. GC-MS was used to quantify SO₂F₂ and its degradation products, and the SO₂F₂ degradation rate and product content were calculated and detected. The experiments found that the addition of filling materials can improve the discharge conditions of the system, enhancing discharge voltage and current. Furthermore, the filling materials can effectively improve the SO₂F₂ degradation rate and energy efficiency (degradation rate: glass beads > γ -Al₂O₃ > ZSM-5 > no filler), and also change the decomposition path and product selectivity of SO₂F₂ to produce SO₂ that is easy to handle. 2% SO₂F₂ at a flow rate of 150 mL/min and a power of 100 W. As the input power increases, the degradation rate of SO₂F₂ gradually rises, while the energy efficiency shows an overall decreasing trend. With the filling of glass beads, the degradation rate and energy efficiency of SO₂F₂ were 99.5% and 7.69 g/(kW·h), respectively, and the concentration of SO₂ product was $9\,278.56 \times 10^{-4}\%$, under the same experimental conditions, the degradation rate of SO₂F₂ was lower than that of γ -Al₂O₃ and glass bead filling when ZSM-5 was filled, but the ZSM-5 filling could make SO₂F₂ decompose completely and directionally to SO₂, at which time the content of SO₂. The SO₂F₂ decomposition products are mainly SO₂, SOF₂, SOF₄ and SiF₄, etc. The results of the study show that the SO₂F₂ degradation rate is lower than that of γ -Al₂O₃ and γ -Al₂O₃ filling, but ZSM-5 filling can almost completely directional decomposition of SO₂F₂ to SO₂, at which time the content of SO₂ is $16\,908 \times 10^{-4}\%$. The results of the study provide reference solutions for the efficient degradation of SO₂F₂ and the harmless treatment of SF₆. The main decomposition products of SO₂F₂ include SOF₂, SO₂, SOF₄, and OF₂. The addition of a catalyst can alter the decomposition pathway of SO₂F₂, facilitating the generation of the more manageable SO₂. The degradation products also contain a significant amount of SiF₄, indicating that etching reactions have occurred.

Keywords: Filling material, dielectric barrier discharge (DBD), degradation of SO₂F₂, degradation rate, product selectivity

(编辑 李 冰)