



(12) 发明专利

(10) 授权公告号 CN 110127624 B

(45) 授权公告日 2023. 08. 15

(21) 申请号 201810136023.3

C01B 3/04 (2006.01)

(22) 申请日 2018.02.09

(56) 对比文件

(65) 同一申请的已公布的文献号

KR 20170050121 A, 2017.05.11

申请公布号 CN 110127624 A

RU 2127400 C1, 1999.03.10

(43) 申请公布日 2019.08.16

US 2008173534 A1, 2008.07.24

(73) 专利权人 中国石油化工股份有限公司

US 2003024806 A1, 2003.02.06

地址 100728 北京市朝阳区朝阳门北大街
22号

US 2009238750 A1, 2009.09.24

专利权人 中石化安全工程研究院有限公司

CN 107051198 A, 2017.08.18

(72) 发明人 牟善军 张婧 任君朋 张铁

CN 105858617 A, 2016.08.17

石宁 徐伟 李亚辉

CN 1594713 A, 2005.03.16

(74) 专利代理机构 北京润平知识产权代理有限
公司 11283

CN 205603215 U, 2016.09.28

专利代理师 陈静 严政

CN 206597461 U, 2017.10.31

(51) Int. Cl.

CN 103759275 A, 2014.04.30

H05H 1/24 (2006.01)

CN 105228328 A, 2016.01.06

C01B 17/04 (2006.01)

CN 106686873 A, 2017.05.17

CN 103204466 A, 2013.07.17

US 2009208387 A1, 2009.08.20

审查员 刘璐

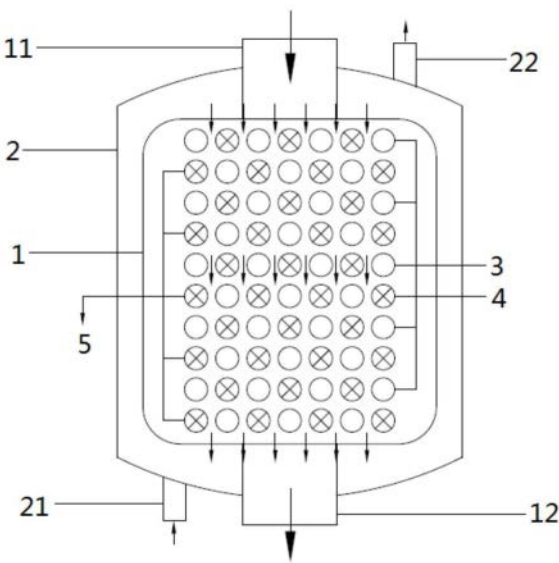
权利要求书2页 说明书13页 附图2页

(54) 发明名称

格栅式高通量等离子体反应器和分解硫化氢的方法

(57) 摘要

本发明涉及等离子体化学领域,公开了一种格栅式高通量等离子体反应器和分解硫化氢的方法,包括:内筒(1);外筒(2);设置在所述内筒(1)中的高压电极(3)和接地电极(4);阻挡介质(6),所述阻挡介质(6)设置在所述高压电极(3)和/或所述接地电极(4)的外表面;其中,各个所述高压电极层与各个所述接地电极层交错设置,使得各个所述高压电极层中的相邻两个高压电极之间插入有一个接地电极,从而形成交替含有高压电极和接地电极的高压-接地混合层。本发明提供的格栅式高通量等离子体反应器具有硫化氢转化率高、能耗低以及能够实现大流量硫化氢处理的优点。



1. 一种格栅式高通量等离子体反应器,该反应器具具有套筒式结构,且该反应器包括:

内筒(1),所述内筒(1)上分别设置有反应物入口(11)和产物出口(12);

外筒(2),所述外筒(2)嵌套在所述内筒(1)的外部,且所述外筒(2)上分别设置有导热介质入口(21)和导热介质出口(22),由所述导热介质入口(21)引入的导热介质能够包围在所述内筒(1)的外周,并且所述导热介质能够由所述导热介质出口(22)引出;

高压电极(3),所述高压电极(3)设置在所述内筒(1)中,且所述高压电极(3)在所述内筒(1)中设置有至少两层;在各个高压电极层中,所述高压电极(3)的个数为两个以上,各个所述高压电极(3)彼此平行;

接地电极(4),形成所述接地电极(4)的材料为固体导电材料,所述接地电极(4)设置在所述内筒(1)中,且所述接地电极(4)在所述内筒(1)中设置有至少两层;在各个接地电极层中,所述接地电极(4)的个数为两个以上,各个所述接地电极(4)彼此平行;

阻挡介质(6),所述阻挡介质(6)设置在所述高压电极(3)和/或所述接地电极(4)的外表面;

其中,各个所述高压电极层中的高压电极与各个所述接地电极层中的接地电极交错设置,使得各个所述高压电极层中的相邻两个高压电极之间插入有一个接地电极,且各个所述接地电极层中的相邻两个接地电极之间插入有一个高压电极,从而形成交替含有高压电极和接地电极的高压-接地混合层;所述高压-接地混合层的层数为至少两层,且各个所述高压-接地混合层平行设置;在各个所述高压-接地混合层中,相邻的高压电极和接地电极之间有间隙 r_1 ,所述 $r_1 > 0$;以及相邻两个所述高压-接地混合层之间有间隙 r_2 ,所述 $r_2 > 0$; r_1 和 r_2 各自独立地小于等于100mm; r_1 和 r_2 与所述阻挡介质(6)的厚度 D_1 之比各自独立地为 $(0.1 \sim 150):1$ 。

2. 根据权利要求1所述的格栅式高通量等离子体反应器,其中, r_1 和 r_2 与所述阻挡介质(6)的厚度 D_1 之比各自独立地为 $(0.2 \sim 100):1$ 。

3. 根据权利要求1或2所述的格栅式高通量等离子体反应器,其中, r_1 和 r_2 与所述阻挡介质(6)的厚度 D_1 之比各自独立地为 $(0.5 \sim 80):1$ 。

4. 根据权利要求1或2所述的格栅式高通量等离子体反应器,其中, r_1 和 r_2 与放电区域的长度 L_1 之间的比例关系各自独立地为 $1:(2 \sim 1500)$;所述放电区域的长度 L_1 为反应物开始进入由所述高压电极和接地电极产生的放电场至离开所述放电场的垂直距离。

5. 根据权利要求1或2所述的格栅式高通量等离子体反应器,其中, r_1 和 r_2 与放电区域的长度 L_1 之间的比例关系各自独立地为 $1:(20 \sim 500)$;所述放电区域的长度 L_1 为反应物开始进入由所述高压电极和接地电极产生的放电场至离开所述放电场的垂直距离。

6. 根据权利要求1或2所述的格栅式高通量等离子体反应器,其中,各个所述高压电极(3)彼此并联连接。

7. 根据权利要求1或2所述的格栅式高通量等离子体反应器,其中,各个所述接地电极(4)彼此并联连接。

8. 根据权利要求1或2所述的格栅式高通量等离子体反应器,其中,形成所述阻挡介质(6)的材料为电绝缘材料。

9. 根据权利要求8所述的格栅式高通量等离子体反应器,其中,形成所述阻挡介质的材料选自玻璃、陶瓷、搪瓷、聚四氟乙烯和云母中的至少一种。

10. 根据权利要求1或2所述的格栅式高通量等离子体反应器,其中,该反应器还包括接地线(5),所述接地线设置在所述外筒(2)的外侧壁上,且一端与所述接地电极(4)电连接。

11. 根据权利要求1或2所述的格栅式高通量等离子体反应器,其中,所述反应物入口(11)设置在所述内筒(1)的上部,以及所述产物出口(12)设置在所述内筒(1)的底部。

12. 根据权利要求1或2所述的格栅式高通量等离子体反应器,其中,各个所述高压电极(3)的尺寸相同,以及各个所述接地电极(4)的尺寸相同,且各个所述高压电极(3)和各个所述接地电极(4)均为圆柱体形。

13. 根据权利要求12所述的格栅式高通量等离子体反应器,其中,所述高压电极(3)和所述接地电极(4)的直径各自独立地为0.1~100mm。

14. 根据权利要求12所述的格栅式高通量等离子体反应器,其中,所述高压电极(3)和所述接地电极(4)的直径各自独立地为0.5~50mm。

15. 根据权利要求12所述的格栅式高通量等离子体反应器,其中,所述高压电极(3)和所述接地电极(4)的直径与相应的高压电极(3)和接地电极(4)的长度之比各自独立地为1:(10~600)。

16. 根据权利要求12所述的格栅式高通量等离子体反应器,其中,所述高压电极(3)和所述接地电极(4)的直径与相应的高压电极(3)和接地电极(4)的长度之比各自独立地为1:(100~500)。

17. 根据权利要求1或2所述的格栅式高通量等离子体反应器,其中,所述导热介质入口(21)和所述导热介质出口(22)分别设置在所述外筒(2)的下部和上部。

18. 根据权利要求1所述的格栅式高通量等离子体反应器,其中,形成所述接地电极(4)的材料和形成所述高压电极(3)的材料各自独立地选自石墨管、石墨粉、金属管、金属棒、金属粉、合金管、合金棒、合金粉和石墨棒。

19. 一种分解硫化氢的方法,该方法在权利要求1-18中任意一项所述的格栅式高通量等离子体反应器中实施,该方法包括:在介质阻挡放电条件下,将含有硫化氢的原料气从反应器入口引入至所述格栅式高通量等离子体反应器的内筒中进行硫化氢的分解反应,分解后获得的物流由产物出口引出,并且,通过持续由导热介质入口向所述格栅式高通量等离子体反应器的外筒中引入导热介质以及由导热介质出口引出所述导热介质而维持所述格栅式高通量等离子体反应器所需的温度,所述介质阻挡放电由接地电极、阻挡介质和高压电极形成。

格栅式高通量等离子体反应器和分解硫化氢的方法

技术领域

[0001] 本发明涉及等离子体化学领域,具体涉及一种格栅式高通量等离子体反应器和一种分解硫化氢的方法。

背景技术

[0002] 硫化氢(H_2S)是一种剧毒、恶臭的酸性气体,不仅会引起金属等材料的腐蚀,而且会危害人体健康,污染环境。目前我国大中型炼油厂均采用传统的克劳斯法(Claus)处理含 H_2S 的尾气,并回收硫磺。该方法只回收了硫化氢中的硫,却将宝贵的氢转化为水。从资源的综合利用角度考虑,在传统的硫化氢回收工艺中,氢资源并没有得到有效的利用。因此,将硫化氢分解为硫磺和氢气逐渐成为了国内外科研工作者重点关注的技术领域。

[0003] 目前,硫化氢分解方法主要包括:高温分解法、电化学法、光催化法和低温等离子体法等。在前述多种方法中,高温热分解法在工业技术上相对成熟,但硫化氢热分解强烈地依赖于反应温度,并且受热力学平衡限制,即使反应温度在 $1000^{\circ}C$ 以上,硫化氢的转化率也仅为20%。另外,高温条件对反应器材质的要求较高,这也会增加运行成本。此外,由于硫化氢热分解转化率低,需要将大量的硫化氢气体从尾气中分离并在系统中循环,因此也降低了装置效率并且增加了能耗,这些均给其大型工业化应用带来困难。采用膜技术虽然可以有效地分离产物从而打破平衡限制,提高硫化氢转化率,但热分解温度往往会超过膜的极限耐热温度,使膜材料结构遭到破坏。电化学法则存在操作步骤多、设备腐蚀严重、反应稳定性差和效率低等缺点。光催化法分解硫化氢主要借鉴光催化分解水的研究,研究重点集中在开发高效半导体光催化剂等方面。利用太阳能来分解硫化氢,具有能耗低、反应条件温和、操作简单等优点,是较为经济的方法。但这种方法存在处理量小、催化效率低并且催化剂容易失活等问题。

[0004] 与其他分解方法相比,低温等离子体方法具有操作简单,装置体积小,能量效率高等优点,而且其中涉及的反应具有高度的可控性,可在小处理量、难以集中处理情况下灵活地被应用。此外,由于其具有高能量密度和可缩短反应时间的特点,能够实现在较低温度下将硫化氢进行有效的分解,适合于不同规模、布局分散、生产条件多变的场合。而且,在回收硫磺的同时,低温等离子体方法将氢资源回收,能够实现硫化氢资源化的利用。

[0005] 目前,国内外研究人员对低温等离子体分解硫化氢技术进行了广泛的研究,使用的放电形式主要包括辉光放电、电晕放电、滑动电弧放电、微波等离子体、射频等离子体和介质阻挡放电等。

[0006] 文献《International journal of hydrogen energy》,2012,37:1335-1347.采用收缩正常辉光放电的方法分解硫化氢,在压强0.02Mpa、温度2000~4000K条件下得到硫化氢最低分解能耗为 $2.35eV/H_2S$ 。但此反应温度高、压强低,条件苛刻不易于实现。

[0007] 文献《International journal of hydrogen energy》,2012,37:10010-10019采用微波等离子体分解硫化氢,在大气压、温度2400K条件下可将硫化氢完全分解,但分解后的氢和硫会在高温下迅速复合重新生成硫化氢,目前尚未有相应的淬冷措施。

[0008] 文献《Chemical Engineering Science》,2009,64(23):4826-4834.采用脉冲电晕放电进行了 H_2S 分解制取氢气和硫磺的研究,反应器采用线管式结构,在固定功率100W条件下考察了脉冲形成电容、放电电压以及脉冲频率对 H_2S 转化率和分解能效的影响。结果表明,在功率一定的条件下,低脉冲形成电容、低放电电压以及高脉冲频率有利于获得高 H_2S 分解能效;另外,与Ar和 N_2 作为平衡气相比,以Ar- N_2 混合气作为平衡气时可以得到更高的 H_2S 转化率,在Ar/ N_2 / H_2S 体积分数为46%/46%/8%、放电功率60W、脉冲形成电容720pF时,获得的 H_2S 最低分解能耗为4.9eV/ H_2S ,但此时 H_2S 转化率仅为30%左右。另外,此反应体系的流量仅为 $1.18 \times 10^{-4} \text{SCMs}^{-1}$,这种低流量、低浓度、低转化率的反应效果在工业生产中没有实际意义。

[0009] 文献《Journal of applied physics》,1998,84(3):1215-1221使用滑动弧光放电对 H_2S 分解反应进行了研究,其方法是将 H_2S 用空气稀释至浓度为0~100ppm,在气体总流速为0~100L/min条件下考察了气体流动速率、反应腔体尺寸和频率对 H_2S 分解反应的影响。实验结果表明低气体流速、小盘间距及低频率有利于获得较高的 H_2S 转化率,在优化的放电条件下得到的 H_2S 转化率可达75~80%,但 H_2S 分解能耗高达500eV/ H_2S ,这种浓度低、能耗高反应效果同样没有工业应用前景。

[0010] 介质阻挡放电通常可在大气压下产生,并且放电温度较低。此外,由于介质的存在限制了放电电流的增长,从而避免了气体完全击穿形成火花或电弧,这有利于大体积、稳定等离子体的产生,具有较好的工业应用前景。

[0011] 文献《Plasma chemistry and plasma processing》,1992,12(3):275-285使用改进的臭氧发生器考察了 H_2S 在130~560℃范围内的放电特性,并研究了反应温度、 H_2S 进料浓度、注入功率以及添加 H_2 、Ar、 N_2 等对 H_2S 转化率和能量效率的影响,实验发现添加Ar能够促进 H_2S 的分解,在总流量50~100mL/min、 H_2S 浓度为20~100%条件下得到转化率为0.5~12%,最低产氢能耗约为0.75mol/kWh(50eV/ H_2),然而,此过程依然存在转化率低和能耗高的缺点。

[0012] CN102408095A使用介质阻挡放电和光催化剂协同分解硫化氢,其方法是将具有光催化活性的固体催化剂填充在等离子体区,然而该方法存在硫化氢分解产生的硫磺会沉积在催化剂床层下方的缺点。

[0013] 文献《International Journal of Energy Research》,2013,37(11):1280-1286.将 Al_2O_3 、 $\text{MoO}_x/\text{Al}_2\text{O}_3$ 、 $\text{CoO}_x/\text{Al}_2\text{O}_3$ 和 $\text{NiO}/\text{Al}_2\text{O}_3$ 催化剂填充在放电区,使用介质阻挡放电和催化剂进行了 H_2S 分解研究。反应结果表明 $\text{MoO}_x/\text{Al}_2\text{O}_3$ 和 $\text{CoO}_x/\text{Al}_2\text{O}_3$ 催化剂具有较好效果;其中当填充 $\text{MoO}_x/\text{Al}_2\text{O}_3$ 催化剂,在 $\text{H}_2\text{S}/\text{Ar}$ 总流量150mL/min、 H_2S 浓度5体积%、注入比能SIE为0.92kJ/L、催化剂填充长度为床层10%时,得到的 H_2S 最高转化率约为48%。但此反应过程硫化氢浓度较低,分解产生的硫磺沉积在反应器内部,随着时间的延长,催化剂活性下降、放电稳定性降低,导致硫化氢的转化率逐渐降低。

[0014] CN103204466A公开了一种控温式硫化氢分解装置和方法,该装置的特点是中心电极为金属、接地电极为温度可控的循环液体,通过液体接地电极的温度控制,使得硫化氢分解过程能够连续稳定的进行。另外,CN103204467A公开了一种硫化氢持续稳定分解制取氢气的装置和方法,该现有技术的特点是以中心电极为金属、接地电极为温度可控的循环液体,通过液体接地电极进行温度控制,原料进气方向为周向进气、并以螺旋模式沿轴向逆向

通过放电区,使得产生的硫磺被及时离心分离出来。然而,CN103204466A和CN103204467A公开的方法中为了保证硫化氢尽可能充分地被分解,需要控制硫化氢的流速使得其在反应器内筒中的停留时间更长以及控制内筒的尺寸使得内筒中单位体积的气体获得的电能更多,并且,由于目前的现有技术无法提供功率更大的电源,使得采用CN103204466A和CN103204467A公开的方法即便是控制硫化氢的停留时间更长以及控制内筒的尺寸以使得内筒中单位体积的气体获得的电能更多也仅仅能够使得硫化氢的最高转化率达到20%左右,并且,当硫化氢的最高转化率达到20%左右时,硫化氢分解反应的能耗相当高,并不适合于大型工业应用。进一步地,CN103204466A和CN103204467A公开的方法中还存在可用液体接地电极的种类极少的缺陷,其所公开的盐溶液等一般仅能维持反应器的温度为100℃以下,而在100℃以下,单质硫一般为固态,容易造成反应器的堵塞。

发明内容

[0015] 本发明的目的是为了克服现有技术在将硫化氢分解为氢气和单质硫时存在的硫化氢转化率低、能耗高以及无法实现大流量硫化氢处理的缺陷,提供一种新的格栅式高通量等离子体反应器及应用该反应器分解硫化氢的方法。

[0016] 为了实现上述目的,本发明提供一种格栅式高通量等离子体反应器,该反应器具有套筒式结构,且该反应器包括:

[0017] 内筒,所述内筒上分别设置有反应物入口和产物出口;

[0018] 外筒,所述外筒嵌套在所述内筒的外部,且所述外筒上分别设置有导热介质入口和导热介质出口,由所述导热介质入口引入的导热介质能够包围在所述内筒的外周,并且所述导热介质能够由所述导热介质出口引出;

[0019] 高压电极,所述高压电极设置在所述内筒中,且所述高压电极在所述内筒中设置有至少两层;在各个高压电极层中,所述高压电极的个数为两个以上,各个所述高压电极彼此平行;

[0020] 接地电极,形成所述接地电极的材料为固体导电材料,所述接地电极设置在所述内筒中,且所述接地电极在所述内筒中设置有至少两层;在各个接地电极层中,所述接地电极的个数为两个以上,各个所述接地电极彼此平行;

[0021] 阻挡介质,所述阻挡介质设置在所述高压电极和/或所述接地电极的外表面;

[0022] 其中,各个所述高压电极层中的高压电极与各个所述接地电极层中的接地电极交错设置,使得各个所述高压电极层中的相邻两个高压电极之间插入有一个接地电极,从而形成交替含有高压电极和接地电极的高压-接地混合层;所述高压-接地混合层的层数为至少两层,且各个所述高压-接地混合层平行设置;在各个所述高压-接地混合层中,相邻的高压电极和接地电极之间有间隙 r_1 ,所述 $r_1 > 0$;以及相邻两个所述高压-接地混合层之间有间隙 r_2 ,所述 $r_2 > 0$ 。

[0023] 本发明的第二方面提供一种分解硫化氢的方法,该方法在本发明第一方面所述的格栅式高通量等离子体反应器中实施,该方法包括:在介质阻挡放电条件下,将含有硫化氢的原料气从反应器入口引入至所述格栅式高通量等离子体反应器的内筒中进行硫化氢的分解反应,分解后获得的物流由产物出口引出,并且,通过持续由导热介质入口向所述格栅式高通量等离子体反应器的外筒中引入导热介质以及由导热介质出口引出所述导热介质

而维持所述格栅式高通量等离子体反应器所需的温度,所述介质阻挡放电由接地电极、阻挡介质和高压电极形成。

[0024] 本发明提供的前述等离子体反应器为具有格栅式结构的夹套型介质阻挡放电反应器,其基本结构主要包括高压电极、固体接地电极及阻挡介质等,该夹套式结构能够使得导热介质对放电反应器进行循环加热或冷却,从而实现对放电区域的灵活温度控制。特别地,具有本发明上述特定结构的等离子体反应器能够相对于现有技术显著地提高硫化氢的转化率。

[0025] 本发明提供的格栅式高通量等离子体反应器还具有硫化氢转化率高、能耗低以及能够实现大流量硫化氢处理的优点。

[0026] 并且,本发明提供的格栅式高通量等离子体反应器能够产生均匀、高效的介质阻挡放电,从而高效率地将硫化氢直接分解生成氢气和硫磺。

[0027] 另外,本发明提供的格栅式高通量等离子体反应器能够在明显较高的硫化氢转化率下实现硫化氢分解过程的持续和稳定进行,并且装置能够实现长周期运行。另外,本发明提供的格栅式高通量等离子体反应器还能够用于大流量、各种浓度的硫化氢处理过程。

附图说明

[0028] 图1是本发明提供的格栅式高通量等离子体反应器的一种优选的具体实施方式的截面结构示意图;

[0029] 图2是本发明提供的格栅式高通量等离子体反应器的一种优选的具体实施方式的截面结构示意图;

[0030] 图3是本发明提供的格栅式高通量等离子体反应器的一种优选的具体实施方式的内筒内部的立体结构示意图;

[0031] 图4是本发明提供的阻挡介质与接地电极或与高压电极的一种优选的具体实施方式的结构示意图。

[0032] 附图标记说明

- | | | |
|--------|----------|-----------|
| [0033] | 1、内筒 | 2、外筒 |
| [0034] | 11、反应物入口 | 21、导热介质入口 |
| [0035] | 12、产物出口 | 22、导热介质出口 |
| [0036] | 3、高压电极 | |
| [0037] | 4、接地电极 | |
| [0038] | 5、接地线 | |
| [0039] | 6、阻挡介质 | |

具体实施方式

[0040] 在本文中所披露的范围的端点和任何值都不限于该精确的范围或值,这些范围或值应当理解为包含接近这些范围或值的值。对于数值范围来说,各个范围的端点值之间、各个范围的端点值和单独的点值之间,以及单独的点值之间可以彼此组合而得到一个或多个新的数值范围,这些数值范围应被视为在本文中具体公开。

[0041] 如前所述,本发明提供了一种格栅式高通量等离子体反应器,该反应器具有套筒

式结构,且该反应器包括:

[0042] 内筒,所述内筒上分别设置有反应物入口和产物出口;

[0043] 外筒,所述外筒嵌套在所述内筒的外部,且所述外筒上分别设置有导热介质入口和导热介质出口,由所述导热介质入口引入的导热介质能够包围在所述内筒的外周,并且所述导热介质能够由所述导热介质出口引出;

[0044] 高压电极,所述高压电极设置在所述内筒中,且所述高压电极在所述内筒中设置有至少两层;在各个高压电极层中,所述高压电极的个数为两个以上,各个所述高压电极彼此平行;

[0045] 接地电极,形成所述接地电极的材料为固体导电材料,所述接地电极设置在所述内筒中,且所述接地电极在所述内筒中设置有至少两层;在各个接地电极层中,所述接地电极的个数为两个以上,各个所述接地电极彼此平行;

[0046] 阻挡介质,所述阻挡介质设置在所述高压电极和/或所述接地电极的外表面;

[0047] 其中,各个所述高压电极层中的高压电极与各个所述接地电极层中的接地电极交错设置,使得各个所述高压电极层中的相邻两个高压电极之间插入有一个接地电极,从而形成交替含有高压电极和接地电极的高压-接地混合层;所述高压-接地混合层的层数为至少两层,且各个所述高压-接地混合层平行设置;在各个所述高压-接地混合层中,相邻的高压电极和接地电极之间有间隙 r_1 ,所述 $r_1 > 0$;以及相邻两个所述高压-接地混合层之间有间隙 r_2 ,所述 $r_2 > 0$ 。

[0048] 在本发明中,各个所述高压电极层中的高压电极与各个所述接地电极层中的接地电极交错设置,使得各个所述高压电极层中的相邻两个高压电极之间插入有一个接地电极,从而形成交替含有高压电极和接地电极的高压-接地混合层,表示:所述高压-接地混合层是由高压电极和接地电极相互间隔形成的层。

[0049] 所述高压-接地混合层的层数为至少两层,且各个所述高压-接地混合层平行设置,该设置包括三种不同的排列方式,第一种为:相邻两个所述高压-接地混合层中的接地电极之间相互平行;第二种为:相邻两个所述高压-接地混合层中的接地电极之间相互垂直;第三种为:相邻两个所述高压-接地混合层中的接地电极之间呈大于 0° 且小于 90° 的角度。只要所述设置能够在内筒中产生均匀的电场即可。特别优选情况下,本发明的相邻的两个高压-接地混合层中的接地电极相互平行或者相互垂直设置。

[0050] 特别优选情况下,本发明的相邻的两个高压-接地混合层中的接地电极相互平行;进一步优选地,相邻的两个所述高压-接地混合层的设置方式使得上层的所述高压-接地混合层中的接地电极的正下方为高压电极,或者使得上层的所述高压-接地混合层中的相邻一组高压电极和接地电极的中心线上具有相邻下层的所述高压-接地混合层中的一个高压电极或者一个接地电极。

[0051] 本发明优选所述反应物入口和所述产物出口的数量均为一个。

[0052] 本发明的外筒环绕在所述内筒的外壁周围,使得外筒中含有的导热介质能够维持所述内筒所需要的温度。具体地,本发明的所述套筒式结构设计,能够使得导热介质在壳层循环流动,在保证放电强度的同时可使整个反应器维持在一定温度范围内,使生成的硫磺以液态形式流出反应器,能够有效避免硫化氢分解生成的硫磺凝固,可在达到较高的转化率的同时使此分解过程持续、稳定的实现长周期运行。

[0053] 在本发明中,为了进一步提高硫化氢的转化率,优选 r_1 和 r_2 各自独立地小于等于100mm。

[0054] 特别地,本发明的发明人发现,控制 r_1 和 r_2 与所述阻挡介质的厚度 D_1 之比各自独立地为 $(0.1\sim 150):1$,优选为 $(0.2\sim 100):1$;更优选为 $(0.5\sim 80):1$ 时,利用本发明的格栅式高通量等离子体反应器进行硫化氢的分解时,能够在相对更低的分解能耗下实现更高的硫化氢分解转化率。

[0055] 特别优选情况下, r_1 和 r_2 与放电区域的长度 L_1 之间的比例关系各自独立地为 $1:(2\sim 1500)$,优选为 $1:(20\sim 500)$;所述放电区域的长度 L_1 为反应物开始进入由所述高压电极和接地电极产生的放电场至离开所述放电场的垂直距离。控制 r_1 和 r_2 与放电区域的长度 L_1 之间的比例关系各自独立地为 $1:(2\sim 1500)$,优选为 $1:(20\sim 500)$ 时,能够明显降低分解硫化氢气体的能耗。

[0056] 特别优选情况下, r_1 和 r_2 相同。

[0057] 在本发明中,所述 r_1 为一个所述高压-接地混合层中,相邻的一组高压电极与接地电极之间的距离,具体为该高压电极的外表面到该接地电极的外表面之间的距离。

[0058] 在本发明中,所述 r_2 为相邻的两个所述高压-接地混合层中的间隙,即为上层的高压-接地混合层中的电极的外表面至下层的高压-接地混合层中的电极的外表面之间的垂直距离。

[0059] 优选地,各个所述高压电极彼此并联连接。

[0060] 优选地,各个所述接地电极彼此并联连接。

[0061] 根据优选的具体实施方式1,所述阻挡介质设置在所述高压电极的外表面上。

[0062] 根据优选的具体实施方式2,所述阻挡介质设置在所述接地电极的外表面上。

[0063] 根据优选的具体实施方式3,所述阻挡介质设置在所述高压电极和所述接地电极的外表面上。

[0064] 在本发明的前述具体实施方式1和具体实施方式2中,本发明的反应器中能够实现单介质阻挡放电。当为单介质阻挡放电时,前述的阻挡介质的厚度 D_1 即为对应的高压电极或接地电极上的阻挡介质的厚度,需要进一步说明的是,因为电场存在于接地电极和高压电极之间,因此,此处的厚度表示的是对应的一个高压电极或一个接地电极上的阻挡介质的厚度。

[0065] 在本发明的前述具体实施方式3中,本发明的反应器中能够实现双介质阻挡放电。当为双介质阻挡放电时,前述的阻挡介质的厚度 D_1 即为对应的高压电极和接地电极上的阻挡介质的厚度之和,因为电场存在于接地电极和高压电极之间,因此,此处的厚度之和表示的是对应的一个高压电极和一个接地电极上的阻挡介质的厚度之和。

[0066] 本发明对阻挡介质与所述高压电极和/或所述接地电极的固定形式没有特别的限制,所述阻挡介质可以以任何能够固定的方式固定在所述高压电极和/或所述接地电极的外表面上,或者,所述阻挡介质也可以以涂层的形式涂覆于所述高压电极或者所述接地电极的外表面上。

[0067] 优选地,形成所述阻挡介质的材料为电绝缘材料,更优选形成所述阻挡介质的材料选自玻璃、陶瓷、搪瓷、聚四氟乙烯和云母中的至少一种。所述玻璃可以为石英玻璃或硬质玻璃;形成所述阻挡介质的材料还可以为其它具有高压电绝缘设计的金属和非金属复合

材料等。所述陶瓷可以为氧化铝陶瓷。

[0068] 优选地,本发明的该反应器还包括接地线,所述接地线设置在所述外筒的外侧壁上,且一端与所述接地电极电连接。

[0069] 优选地,所述反应物入口设置在所述内筒的上部,以及所述产物出口设置在所述内筒的底部。

[0070] 本发明的各个所述高压电极的尺寸可以相同或不同,优选情况下,各个所述高压电极的尺寸相同。

[0071] 本发明的各个所述接地电极的尺寸可以相同或不同,优选情况下,各个所述接地电极的尺寸相同。

[0072] 本发明前述的尺寸相同表示大小及形状均完全相同。

[0073] 优选情况下,各个所述高压电极和各个所述接地电极均为圆柱体形。需要说明的是,本发明并不特别限制所述高压电极和所述接地电极仅为圆柱体形,所述高压电极和所述接地电极可以为任意的轴对称形状。

[0074] 根据一种优选的具体实施方式,本发明的所述高压电极与所述接地电极的尺寸完全相同。

[0075] 优选地,当各个所述高压电极和各个所述接地电极均为圆柱体形时,所述高压电极和所述接地电极的直径各自独立地为0.1~100mm,更优选为0.5~50mm。

[0076] 优选情况下,所述高压电极和所述接地电极的直径与相应的高压电极和接地电极的长度之比各自独立地为1:(10~600),优选为1:(100~500)。

[0077] 优选地,所述导热介质入口和所述导热介质出口分别设置在所述外筒的下部和上部。

[0078] 本发明的所述内径均表示直径。

[0079] 优选地,形成所述接地电极的材料选自石墨管、石墨粉、金属管、金属棒、金属粉或石墨棒。本发明的固体接地电极,在注入功率一定的条件下产生的微放电电流更大,更有利于硫化氢的断键分解反应。形成所述接地电极的材料中的金属管和金属棒可以包括单质金属管、单质金属棒、合金金属管、合金金属棒。本发明的发明人发现,采用固体导电材料作为本发明的反应器的接地电极,能够使得采用本发明提供的格栅式高通量等离子体反应器进行硫化氢分解反应时,硫化氢的转化率更显著地提高。

[0080] 形成所述高压电极的材料为导电材料,优选地,形成所述高压电极的材料选自石墨管、石墨粉、金属棒、金属管、金属粉、石墨棒和导电粉体的机械混合物中的至少一种。所述金属棒、金属管可以包括单质金属棒、合金金属棒、单质金属管、合金金属管。本发明的形成所述高压电极的材料有可以为其它具有导电性能的棒状及管状材料。

[0081] 本发明的所述金属粉表示,当接地电极和/或高压电极的外表面上包裹有阻挡介质时,可以将所述阻挡介质以空心的管状形式设置,并且在该阻挡介质中间填充金属粉以形成阻挡介质包裹的接地电极和/或高压电极;所述金属粉可以为单质金属粉也可以为合金金属粉。

[0082] 本发明能够通过所述内筒的外壁与所述外筒的内壁之间的区域引入导热介质而使得具有套筒结构的反应器的温度维持在例如119~444.6℃之间,以保证硫化氢分解产生的硫磺以液态形式流出放电区。

[0083] 本发明的所述格栅式高通量等离子体反应器中还可以装填能够催化硫化氢分解成单质硫和氢气的催化剂,所述催化剂可以装填在所述反应器的内筒中。本发明对所述催化剂的装填体积、装填方式以及装填种类没有特别的要求,关于催化剂的种类,例如可以为CN102408095A、CN101590410A和CN103495427A中公开的催化剂中的任意一种或者多种。

[0084] 本发明提供的所述格栅式高通量等离子体反应器对分解硫化氢所涉及的分解反应的条件没有特别的限制,可以为本领域内常规采用的等离子体分解硫化氢方法中所涉及的各种条件来进行分解,本发明的实施例部分示例性地列举了分解硫化氢的条件,本领域技术人员不应理解为对本发明的限制。

[0085] 本发明提供的所述格栅式高通量等离子体反应器对反应物入口处的气体中的硫化氢的浓度没有特别的限定,例如气体中硫化氢的浓度可以为0.01~100体积%。

[0086] 形成本发明的所述内筒的材质例如可以为:能够起到结构支撑作用并且耐高温的导电金属材料或电绝缘材料,其中优选电绝缘材料。

[0087] 在本发明中,对形成所述外筒的材质没有特别的限定,只要形成所述外筒的材质能够承受导热介质的设定温度即可。形成本发明的所述外筒的材质例如可以为:能够起到结构支撑作用并且耐高温的导电金属材料或电绝缘材料,其中优选电绝缘材料。

[0088] 如前所述,本发明的第二方面提供了一种分解硫化氢的方法,该方法在本发明第一方面所述的格栅式高通量等离子体反应器中实施,该方法包括:在介质阻挡放电条件下,将含有硫化氢的原料气从反应器入口引入至所述格栅式高通量等离子体反应器的内筒中进行硫化氢的分解反应,分解后获得的物流由产物出口引出,并且,通过持续由导热介质入口向所述格栅式高通量等离子体反应器的外筒中引入导热介质以及由导热介质出口引出所述导热介质而维持所述格栅式高通量等离子体反应器所需的温度,所述介质阻挡放电由接地电极、阻挡介质和高压电极形成。

[0089] 以下结合图1和图2提供本发明的格栅式高通量等离子体反应器的一种优选的具体实施方式的结构,具体地:

[0090] 该反应器具有套筒式结构,且该反应器包括:

[0091] 内筒1,所述内筒1上分别设置有反应物入口11和产物出口12;

[0092] 外筒2,所述外筒2嵌套在所述内筒1的外部,且所述外筒2上分别设置有导热介质入口21和导热介质出口22,由所述导热介质入口21引入的导热介质能够包围在所述内筒1的外周,并且所述导热介质能够由所述导热介质出口22引出;

[0093] 高压电极3,所述高压电极3设置在所述内筒1中,且所述高压电极3在所述内筒1中设置有至少两层;在各个高压电极层中,所述高压电极3的个数为两个以上,各个所述高压电极3彼此平行;

[0094] 接地电极4,形成所述接地电极4的材料为固体导电材料,所述接地电极4设置所述内筒1中,且所述接地电极4在所述内筒1中设置有至少两层;在各个接地电极层中,所述接地电极4的个数为两个以上,各个所述接地电极4彼此平行;

[0095] 阻挡介质6,所述阻挡介质6设置在所述高压电极3和/或所述接地电极4的外表面;

[0096] 其中,各个所述高压电极层中的高压电极与各个所述接地电极层中的接地电极交错设置,使得各个所述高压电极层中的相邻两个高压电极之间插入有一个接地电极,从而形成交替含有高压电极和接地电极的高压-接地混合层;所述高压-接地混合层的层数为至

少两层,且各个所述高压-接地混合层平行设置;在各个所述高压-接地混合层中,相邻的高压电极和接地电极之间有间隙 r_1 ,所述 $r_1 > 0$;以及相邻两个所述高压-接地混合层之间有间隙 r_2 ,所述 $r_2 > 0$ 。

[0097] 具体地,本发明的图1与图2之间的区别主要在于相邻两个高压-接地混合层中的电极(包括高压电极和接地电极)之间的相对位置不同,图1中的各个高压-接地混合层中的电极与相邻的高压-接地混合层中的电极之间是对齐平整排列方式,使得反应物在进入内筒1中时,主要的流动方向为从上往下的直线方向;而图2中的相邻两个高压-接地混合层中的电极与相邻的高压-接地混合层中的电极之间是插空排列方式,使得反应物在进入内筒1中时,主要的流动方向为从上往下和水平方向的交替流动。从图1和图2中可以看出,在反应物流速不变的前提下,图2提供的反应器中的反应物的平均停留时间更长。

[0098] 优选 r_1 和 r_2 与所述阻挡介质6的厚度 D_1 之比各自独立地为 $(0.1 \sim 150) : 1$,优选为 $(0.2 \sim 100) : 1$;更优选为 $(0.5 \sim 80) : 1$ 。

[0099] 优选地,各个所述高压电极3彼此并联连接。

[0100] 优选地,各个所述接地电极4彼此并联连接。

[0101] 优选情况下,该反应器还包括接地线5,所述接地线5设置在所述外筒2的外侧壁上,且一端与所述接地电极4电连接。

[0102] 优选地,所述反应物入口11设置在所述内筒1的上部,以及所述产物出口12设置在所述内筒1的底部。

[0103] 优选情况下,各个所述高压电极3的尺寸相同,以及各个所述接地电极4的尺寸相同,且各个所述高压电极3和各个所述接地电极4均为圆柱体形。

[0104] 根据一种优选的具体实施方式,各个所述高压电极3的尺寸与各个所述接地电极4的尺寸完全相同。

[0105] 优选情况下,所述高压电极3和所述接地电极4的直径各自独立地为 $0.1 \sim 100\text{mm}$,更优选为 $0.5 \sim 50\text{mm}$ 。

[0106] 优选地,所述高压电极3和所述接地电极4的直径与相应的中心电3和接地电极4的长度之比各自独立地为 $1 : (10 \sim 600)$,优选为 $1 : (100 \sim 500)$ 。

[0107] 优选所述导热介质入口21和所述导热介质出口22分别设置在所述外筒2的下部和上部。

[0108] 以下提供一种应用本发明前述的格栅式高通量等离子体反应器分解硫化氢的优选的具体实施方式:

[0109] 从反应物入口向格栅式高通量等离子体反应器的内筒中通入氮气,以清除放电区域中的空气,并且气体从产物出口引出。同时,从导热介质入口向外筒中引入导热介质,引入的导热介质从导热介质出口引出。导热介质的温度保持为系统反应需要的温度。然后从反应物入口向格栅式高通量等离子体反应器的内筒中通入含有硫化氢的原料气,原料气充满各个反应管中,待原料气流平稳之后接通高压电源,通过调节电压和频率使高压电极和接地电极之间形成等离子体放电场。硫化氢气体在放电区域发生电离,分解为氢气和单质硫,放电产生的单质硫沿内筒壁缓缓流下,并从产物出口流出。

[0110] 为了更直观地描述本发明的反应器中的接地电极和高压电极的排列方式,本发明提供图3所示的内筒内部的立体结构示意图进行说明,图3中的高压电极3与接地电极4形成

和高压-接地混合层,各个高压-接地混合层平行设置。

[0111] 并且,在本发明的图4中,本发明提供了阻挡介质6与高压电极或接地电极的一种优选的相对位置。

[0112] 本发明提供的格栅式高通量等离子体反应器还具有如下具体的优点:

[0113] (1) 该格栅式高通量等离子体反应器使用导电固体材料作为接地电极,与液体接地电极相比,此种接地电极配合本发明的装置结构时,放电产生的微放电电流更大,更有利于硫化氢分子的放电分解反应。

[0114] (2) 该格栅式高通量等离子体反应器的接地电极外侧设置夹套结构,可通过控制夹套中导热介质温度来对反应器进行温度控制,可使硫化氢放电分解产生的硫磺顺利流出放电区,避免硫磺凝固堵塞反应器,使放电持续稳定的进行。

[0115] (3) 该格栅式高通量等离子体反应器优选通过控制控制r1和r2与所述阻挡介质的厚度D1之比各自独立地为(0.1~150):1,优选为(0.2~100):1;更优选为(0.5~80):1,配合本发明的反应器的结构,能够使得硫化氢的转化率明显提高且分解能耗降低。

[0116] 以下将通过实施例对本发明进行详细描述。以下实施例中,在没有特别说明的情况下,使用的各种原料均来自商购。

[0117] 以下实施例和对比例中的阻挡介质的厚度均相同。

[0118] 以下实例中硫化氢的转化率是根据下式计算得到的:

[0119] 硫化氢的转化率% = 转化的硫化氢的摩尔数/初始硫化氢的摩尔数 × 100%

[0120] 以下实例中分解硫化氢的能耗通过示波器检测以及采用利萨如图形计算获得。

[0121] 实施例1

[0122] 采用图1所示的格栅式高通量等离子体反应器进行硫化氢分解反应,格栅式高通量等离子体反应器的具体结构及结构参数如下所示:

[0123] 反应器包括:

[0124] 内筒,所述内筒上分别设置有反应物入口和产物出口;

[0125] 外筒,所述外筒嵌套在所述内筒的外部,且所述外筒上分别设置有导热介质入口和导热介质出口,由所述导热介质入口引入的导热介质能够包围在所述内筒的外周,并且所述导热介质能够由所述导热介质出口引出;

[0126] 高压电极,所述高压电极设置在所述内筒中,且所述高压电极在所述内筒中设置有10层;在各个高压电极层中,所述高压电极的个数为3个或4个,各个所述高压电极彼此平行,形成所述高压电极的材料为不锈钢金属棒,各个所述高压电极的尺寸相同;

[0127] 接地电极,所述接地电极设置所述内筒中,且所述接地电极在所述内筒中设置有10层;在各个接地电极层中,所述接地电极的个数为3个或4个,各个所述接地电极彼此平行,形成所述接地电极的材料为不锈钢金属棒,各个所述接地电极的尺寸相同;

[0128] 阻挡介质,所述阻挡介质包裹在各个高压电极上,形成所述阻挡介质的材料为硬质玻璃;

[0129] 各个所述高压电极层中的高压电极与各个所述接地电极层中的接地电极交错设置,使得各个所述高压电极层中的相邻两个高压电极之间插入有一个接地电极,从而形成交替含有高压电极和接地电极的高压-接地混合层,所述高压-接地混合层的层数为10层,且各个所述高压-接地混合层平行设置;在各个所述高压-接地混合层中,相邻的高压电极

和接地电极之间有间隙 r_1 ；以及相邻的两个所述高压-接地混合层之间有间隙 r_2 。

[0130] 本实施例中反应物从反应器内筒的上部进入反应器内筒中，且产物从位于反应器内筒下部的产物出口引出；以及本实施例的导热介质从反应器的外筒的下部引入，且从反应器的外筒的上部引出；

[0131] 其中， $r_1=r_2$ ，且 r_1 和 r_2 与所述阻挡介质的厚度 D_1 之比均为50:1；

[0132] 各个所述高压电极的尺寸与各个所述接地电极的尺寸相同，且直径和长度的比值均为1:220；

[0133] r_1 和 r_2 与放电区域的长度 L_1 之间的比值为1:300；

[0134] 本实施例的格栅式高通量等离子体反应器的内筒的容积为1.6L。

[0135] 格栅式高通量等离子体反应器的操作步骤：

[0136] 从反应物入口向反应器的内筒中通入氮气，以清除放电区域中的空气，并且气体从产物出口引出。同时，从导热介质入口向外筒中引入导热介质（具体为二甲基硅油），引入的导热介质从导热介质出口引出，导热介质的温度保持为145℃。

[0137] 然后从反应物入口向反应器的内筒中通入 H_2S/Ar 混合气，其中 H_2S 体积分数为30%，控制反应物流速使得气体在放电区的平均停留时间为15.6s。 H_2S/Ar 混合气通入反应器30min后，接通交流高压电源，通过调节电压和频率使高压电极和接地电极之间形成等离子体放电场。其中放电条件为：电压为19.2kV、频率为8.8kHz、电流为1.85A。硫化氢气体在放电区域发生电离，分解为氢气和单质硫，放电产生的单质硫沿内筒壁缓缓流下，并从产物出口流出，以及反应后气体从产物出口引出。

[0138] 结果：本实施例的硫化氢分解反应持续进行20min后测得 H_2S 转化率为71.2%；且持续放电100h仍未见异常，放电状态和 H_2S 转化率均保持稳定。且本实施例的分解能耗为16.3eV/ H_2S 分子（每分解1分子 H_2S 需要的能量为16.3eV）。

[0139] 实施例2

[0140] 本实施例采用图2所示的格栅式高通量等离子体反应器进行硫化氢分解反应，格栅式高通量等离子体反应器的具体结构及结构参数如下所示：

[0141] 反应器包括：

[0142] 内筒，所述内筒上分别设置有反应物入口和产物出口；

[0143] 外筒，所述外筒嵌套在所述内筒的外部，且所述外筒上分别设置有导热介质入口和导热介质出口，由所述导热介质入口引入的导热介质能够包围在所述内筒的外周，并且所述导热介质能够由所述导热介质出口引出；

[0144] 高压电极，所述高压电极设置在所述内筒中，且所述高压电极在所述内筒中设置有10层；在各个高压电极层中，所述高压电极的个数为3个或4个，各个所述高压电极彼此平行，形成所述高压电极的材料为石墨棒，各个所述高压电极的尺寸相同；

[0145] 接地电极，所述接地电极设置所述内筒中，且所述接地电极在所述内筒中设置有10层；在各个接地电极层中，所述接地电极的个数为3个或4个，各个所述接地电极彼此平行，形成所述接地电极的材料为石墨棒，各个所述接地电极的尺寸相同；

[0146] 阻挡介质，所述阻挡介质包裹在各个接地电极上，形成所述阻挡介质的材料为聚四氟乙烯；

[0147] 各个所述高压电极层中的高压电极与各个所述接地电极层中的接地电极交错设

置,使得各个所述高压电极层中的相邻两个高压电极之间插入有一个接地电极,从而形成交替含有高压电极和接地电极的高压-接地混合层,所述高压-接地混合层的层数为10层,且各个所述高压-接地混合层平行设置;在各个所述高压-接地混合层中,相邻的高压电极和接地电极之间有间隙 r_1 ;以及相邻的两个所述高压-接地混合层之间有间隙 r_2 。

[0148] 本实施例中反应物从反应器内筒的上部进入反应器内筒中,且产物从位于反应器内筒下部的产物出口引出;以及本实施例的导热介质从反应器的外筒的下部引入,且从反应器的外筒的上部引出;

[0149] 其中, $r_1=r_2$,且 r_1 和 r_2 与所述阻挡介质的厚度 D_1 之比均为2:1;

[0150] 各个所述高压电极的尺寸与各个所述接地电极的尺寸相同,且直径和长度的比值均为1:355;

[0151] r_1 和 r_2 与放电区域的长度 L_1 之间的比值为1:350;

[0152] 本实施例的格栅式高通量等离子体反应器的内筒的容积为1.6L。

[0153] 格栅式高通量等离子体反应器的操作步骤:

[0154] 从反应物入口向反应器的内筒中通入氮气,以清除放电区域中的空气,并且气体从产物出口引出。同时,从导热介质入口向外筒中引入导热介质(具体为二甲基硅油),引入的导热介质从导热介质出口引出,导热介质的温度保持为120℃。

[0155] 然后从反应物入口向反应器的内筒中通入 H_2S/Ar 混合气,其中 H_2S 体积分数为30%,控制反应物流速使得气体在放电区的平均停留时间为16.3s。 H_2S/Ar 混合气通入反应器30min后,接通交流高压电源,通过调节电压和频率使高压电极和接地电极之间形成等离子体放电场。其中放电条件为:电压为15.3kV、频率为6.3kHz、电流为2.3A。硫化氢气体在放电区域发生电离,分解为氢气和单质硫,放电产生的单质硫沿内筒壁缓缓流下,并从产物出口流出,以及反应后气体从产物出口引出。

[0156] 结果:本实施例的硫化氢分解反应持续进行20min后测得 H_2S 转化率为71.8%;且持续放电100h仍未见异常,放电状态和 H_2S 转化率均保持稳定。且本实施例的分解能耗为16eV/ H_2S 分子。

[0157] 实施例3

[0158] 本实施例采用与实施例1相似的反应器进行,所不同的是,本实施例的反应器中的阻挡介质设置在所述高压电极和所述接地电极的外表面,也即为双介质阻挡放电。

[0159] 以及 $1.2r_1=r_2$, r_1 与所述阻挡介质的厚度 D_1 之比均为15:1;

[0160] 各个所述高压电极的尺寸与各个所述接地电极的尺寸相同,且直径和长度的比值均为1:100;

[0161] r_1 与放电区域的长度 L_1 之间的比值为1:50;

[0162] 本实施例的格栅式等离子体反应装置的内筒的容积为1.6L。

[0163] 从反应物入口向反应器的内筒中通入 H_2S/Ar 混合气,其中 H_2S 体积分数为30%,控制反应物流速使得气体在放电区的平均停留时间为14.7s。 H_2S/Ar 混合气通入反应器30min后,接通交流高压电源,通过调节电压和频率使高压电极和接地电极之间形成等离子体放电场。其中放电条件为:电压为16.1kV、频率为13.5kHz、电流为1.73A。硫化氢气体在放电区域发生电离,分解为氢气和单质硫,放电产生的单质硫沿内筒壁缓缓流下,并从产物出口流出,以及反应后气体从产物出口引出。

[0164] 其余均与实施例1中相同。

[0165] 结果:本实施例的硫化氢分解反应持续进行20min后测得 H_2S 转化率为71.4%;且持续放电100h仍未见异常,放电状态和 H_2S 转化率均保持稳定。且本实施例的分解能耗为17.1eV/ H_2S 分子。

[0166] 实施例4

[0167] 本实施例采用与实施例1相似的格栅式高通量等离子体反应器进行硫化氢的分解反应,所不同的是,本实施例中:

[0168] $r_1=r_2$,且 r_1 和 r_2 与所述阻挡介质的厚度 D_1 之比均为92:1;

[0169] 其余均与实施例1中相同。

[0170] 并且本实施例采用与实施例1相同的操作方法进行硫化氢分解反应。

[0171] 结果:本实施例的硫化氢分解反应持续进行20min后测得 H_2S 转化率为65.3%;且持续放电100h仍未见异常,放电状态和 H_2S 转化率均保持稳定。且本实施例的分解能耗为25.6eV/ H_2S 分子。

[0172] 实施例5

[0173] 本实施例采用与实施例1相似的格栅式高通量等离子体反应器进行硫化氢的分解反应,所不同的是,本实施例中:

[0174] $r_1=r_2$,且 r_1 和 r_2 与所述阻挡介质的厚度 D_1 之比均为125:1;

[0175] 其余均与实施例1中相同。

[0176] 并且本实施例采用与实施例1相同的操作方法进行硫化氢分解反应。

[0177] 结果:本实施例的硫化氢分解反应持续进行20min后测得 H_2S 转化率为62.7%;且持续放电100h仍未见异常,放电状态和 H_2S 转化率均保持稳定。且本实施例的分解能耗为29.1eV/ H_2S 分子。

[0178] 实施例6

[0179] 本实施例采用与实施例3相似的格栅式高通量等离子体反应器进行硫化氢的分解反应,所不同的是,本实施例中:

[0180] r_1 与放电区域的长度 L_1 之间的比值为1:700;

[0181] 其余均与实施例3中相同。

[0182] 并且本实施例采用与实施例3相同的操作方法进行硫化氢分解反应。

[0183] 结果:本实施例的硫化氢分解反应持续进行20min后测得 H_2S 转化率为71.2%;且持续放电100h仍未见异常,放电状态和 H_2S 转化率均保持稳定。且本实施例的分解能耗为26.3eV/ H_2S 分子。

[0184] 由上述结果可以看出,本发明提供的反应器能够实现高的硫化氢转化率,并且,硫化氢的转化率能够稳定维持在较高水平。

[0185] 以上详细描述了本发明的优选实施方式,但是,本发明并不限于此。在本发明的技术构思范围内,可以对本发明的技术方案进行多种简单变型,包括各个技术特征以任何其它的合适方式进行组合,这些简单变型和组合同样应当视为本发明所公开的内容,均属于本发明的保护范围。

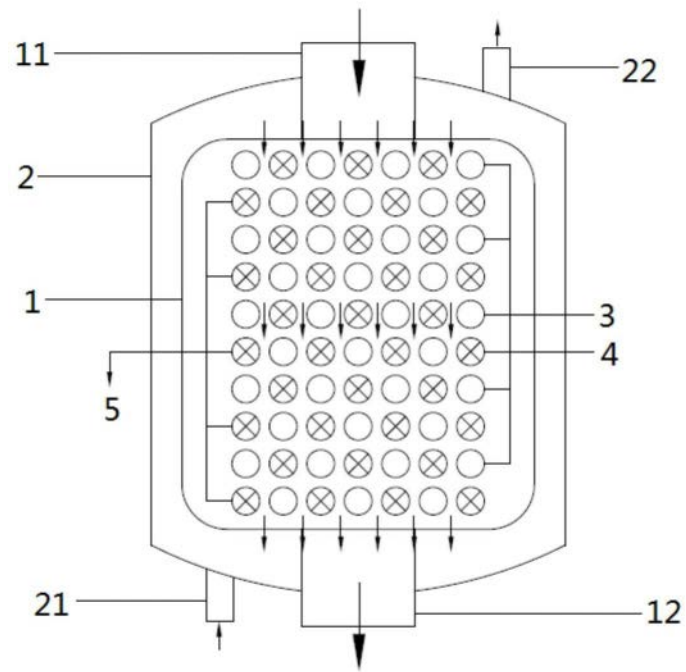


图1

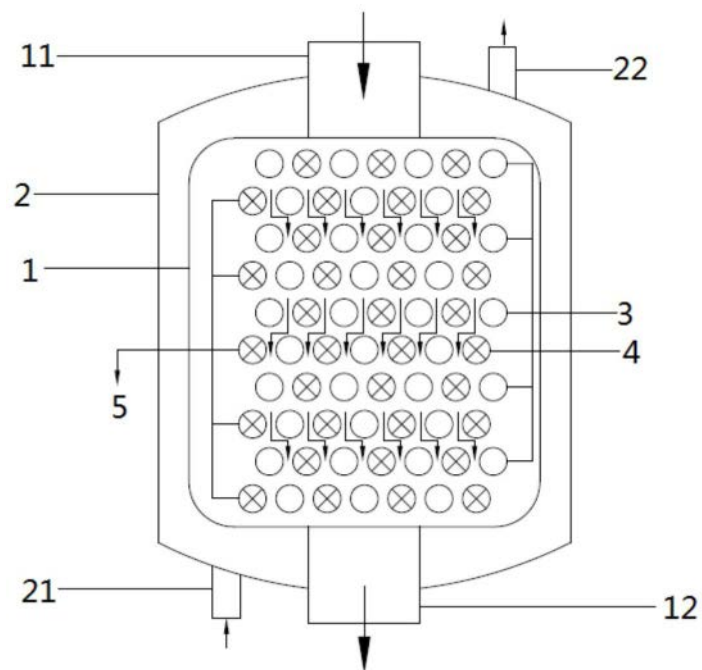


图2

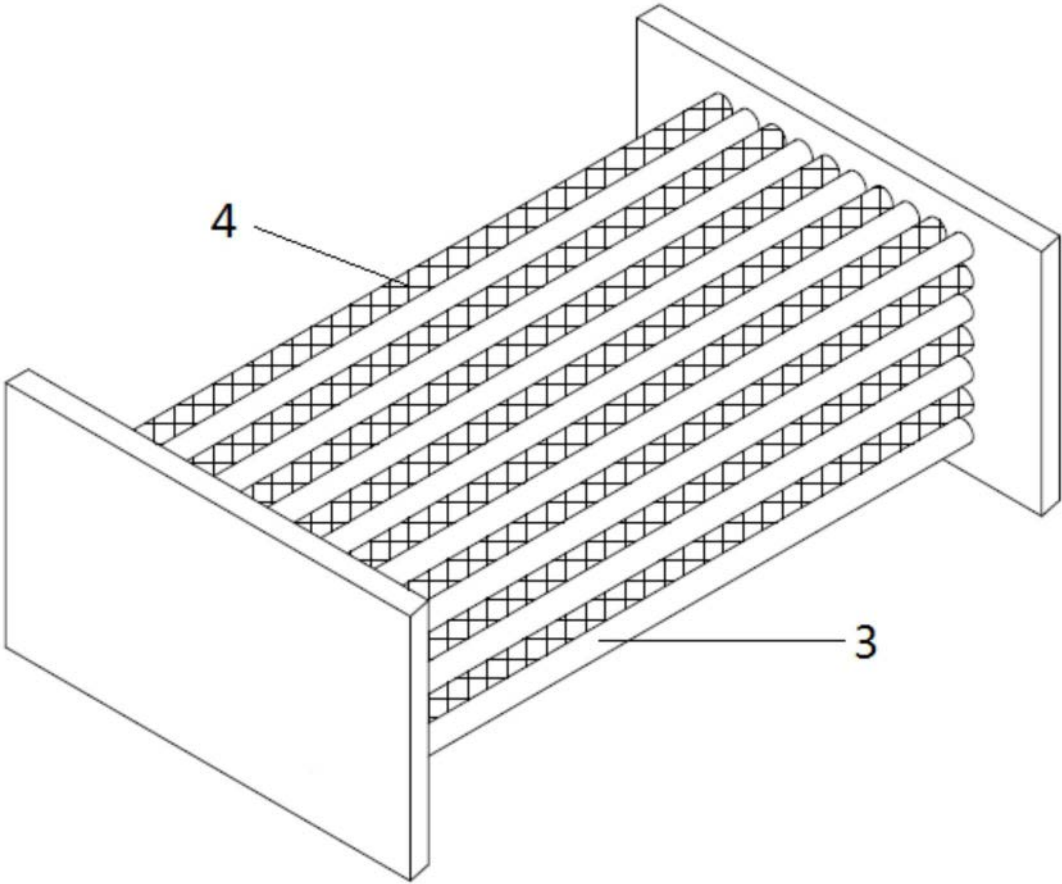


图3

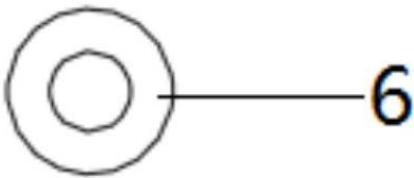


图4