

介质阻挡放电的大气固氮应用

汤红卫 韩云峰 仲崇山

(中国农业大学信息与电气工程学院, 北京 100083)

摘要: 在常温常压下,利用空气介质阻挡放电形成低温等离子体,使游离态氮、氧化合形成氮氧化物,再通过吸收装置实现大气固氮,辅助农业氮肥生产。在前期研究放电时间、频率、电压峰峰值对固氮效率影响的基础上,以介质材料、介质厚度、放电间隙、电压峰峰值为试验因素展开进一步研究,并采用氮氧化物气体质量浓度为检测指标,以排除吸收系统误差。正交试验结果表明,介质材料对氮氧化物气体质量浓度影响最大;石英材料、介质厚度 5 mm、放电间隙 2 mm、电压峰峰值 30 kV 为试验最优水平。在试验最优水平下,放电持续 5 min,氮氧化物气体质量浓度可达 1 004.20 mg/m³,产出/能耗比为 2.21 g/(kW·h)。

关键词: 大气固氮; 介质阻挡; 低温等离子体

中图分类号: S24 **文献标识码:** A **文章编号:** 1000-1298(2016)08-0060-05

Ambient Nitrogen Fixation Application of Dielectric Barrier Discharge

Tang Hongwei Han Yunfeng Zhong Chongshan

(College of Information and Electrical Engineering, China Agricultural University, Beijing 100083, China)

Abstract: At room temperature, dielectric barrier discharge in air can produce non-thermal plasma with atmospheric pressure. Among the existed particles, there must be nitrogen and oxygen free radicals which combined as nitrogen oxides. The technology of non-thermal plasma nitrogen fixation was studied. Nitrogen oxides can be absorbed by water, and the nitrate solution can assist production of nitrogen fertilizer. In previous studies, The effects of time, voltage and frequency on nitrogen fixation were presented, and the subsequent discussion would be shown in this study. To eliminate error of absorption system, nitrogen oxide gas concentration was chosen as experiment detection index. Experimental factors included dielectric materials, dielectric thickness, discharge gap and peak to peak voltage. A four factors and three levels orthogonal experiment design method was used. Through range analysis of the experimental data, it showed that dielectric materials had the biggest effect on nitrogen oxide gas concentration. Through analyzing the average value of each factor, it showed that the optimal level for this experiment was quartz material, 5 mm medium thickness, 2 mm discharge gap and 30 kV peak to peak voltage. Under the optimal level and discharge for 5 min, gas concentration of nitrogen oxide was detected as 1 004.20 mg/m³ and the efficiency of nitrogen fixation was 2.21 g/(kW·h).

Key words: ambient nitrogen fixation; dielectric barrier; non-thermal plasma

引言

植物主要吸收 NO₃⁻、NH₄⁺ 合成氨基酸、蛋白质、核酸和叶绿素以满足生命需要。而大气中含氮

量高达 78%,是理想的天然肥厂。因此,将空气中游离态氮最大限度的转化为含氮化合物并应用于农业固氮具有研究意义。

目前,固氮方式主要包括:闪电固氮、生物固氮、

化学模拟固氮、工业固氮和低温等离子体固氮^[1]。其中工业固氮是主流方式,其技术成熟、应用广泛,但“高污染、高能耗”问题日益突出,不利于农业可持续发展。低温等离子体固氮作为固氮环保技术,受到国内外学者的高度关注^[2-5]。能耗方面,工业固氮几乎不存在改进空间,而低温等离子体固氮具有比工业固氮更低的能耗理论值,具有大幅节能空间^[6]。除此之外,低温等离子体技术还广泛应用于废气处理、植物培育、消毒杀菌等诸多领域^[7-12]。

国外有关低温等离子体固氮的研究起步较早。1903 年,挪威的 CHRISTIAN BIRKELAND 和 SAMUEL EYDE 实现电弧固氮,但因技术受限导致电能消耗大、固氮效率低以及工业固氮的出现而停止生产^[6]。直至目前,提高电能利用率和引入新能源发电仍是低温等离子体固氮的研究热点,相关催化剂、智能装置、电极结构、放电条件的研究均有报道^[4-5, 13-14]。国外介质阻挡放电固氮研究多结合废气治理,应用选择性催化还原技术将柴油废气中的含氮污染物转换成氨气^[7-8]。研究的放电相态包括气相、气液相;放电气体为空气、氮氧混合气、氮氢混合气;气相放电的含氮产物为氮氧化物、氨气,气液相、液相放电的含氮产物为亚硝酸根、硝酸根离子。这些研究表明介质阻挡放电是产生低温等离子体最为稳定的方式之一,也使人们对介质阻挡放电的物理化学过程有了较为清晰的认识。

国内有关低温等离子体固氮的研究鲜有报道。苏州大学对放电固氮有一定研究,分别在气相介质阻挡放电^[15]和气液相电晕放电^[16]下试验,讨论了载气流速、放电电压、放电电流等因素对固氮的影响。前期对空气介质阻挡放电固氮的已有研究认为:施加的电压越高,得到的含氮产物浓度越高^[17]。

本试验采用气相介质阻挡放电。试验因素根据电磁场理论公式选取,具有指导性。试验采用正交设计法,综合考虑介质材料、介质厚度、放电间隙、电压峰峰值间的相互影响,具有客观性。本文通过分析各因素对氮氧化物气体浓度(全文均指质量浓度,mg/m³)的影响,改进反应条件以提高电能利用率、增加固氮量,为进一步实现大气固氮并辅助农业发展提供基础。

1 试验装置和方案

1.1 试验装置

试验采用介质阻挡放电产生低温等离子体,试验装置如图 1 所示。装置包括:TDGC2-1 型接触

式调压器、CTP-2000K 型等离子体电源、介质阻挡放电反应室、气泵、P6015A 型高压探头、TDS2012C 型示波器和氮氧化物气体检测仪。

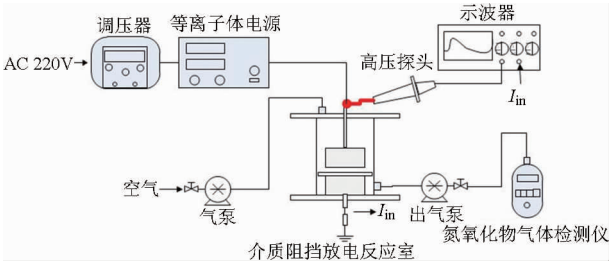


图 1 试验装置图

Fig. 1 Figure of experiment apparatus

TDGC2-1 型接触式调压器是匝比可调的自耦变压器,保证输出电压在 0~220 V 连续可调。CTP-2000K 型等离子体电源(南京苏曼公司),输入电压 AC 220 V,输出电压 0~40 kV,输出频率在 5~20 kHz 之间可调。气泵为真空泵,额定电压 DC 12 V,额定电流 150 mA,直径 27 mm,长 64 mm;其进/出气口,直径 4 mm,速率 2 L/min,压力 80 kPa。氮氧化物气体检测仪为泵吸式氮氧化物气体检测报警仪。

介质阻挡放电反应室如图 2 所示。上下底座由聚四氟乙烯制成,长 240 mm,宽 140 mm,高度可调。外壳由有机玻璃制成,长 300 mm,宽 200 mm,高 130 mm。进气口、出气口分别位于外壳前后,直径 18 mm。内部电极为不锈钢材质,平板结构,直径 60 mm,高 25 mm。

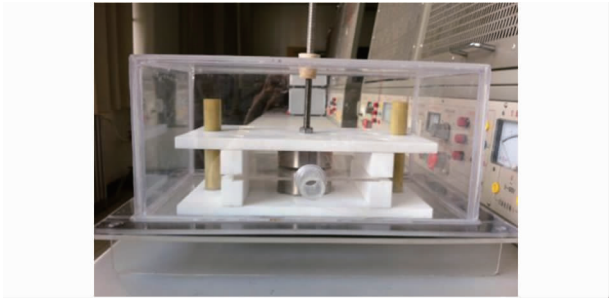


图 2 介质阻挡放电反应室

Fig. 2 Reaction chamber of dielectric barrier discharge

1.2 试验方案

本文研究的氮氧化物气体浓度影响因素包括:介质材料、介质厚度、放电间隙、电压峰峰值。采用正交试验研究各因素对介质阻挡放电固氮的影响。

1.2.1 试验因素选取

由静电场边界条件可知电位移矢量法向分量连续^[18],即

$$D_{1n} = D_{2n} \tag{1}$$

其中

$$D_{1n} = D_1 = D_g$$

$$D_{2n} = D_2 = D_d$$

式中 D_{1n} ——介质 1 电位移矢量法向分量
 D_{2n} ——介质 2 电位移矢量法向分量
 D_g ——空气电位移矢量法向分量
 D_d ——介质电位移矢量法向分量

电位移矢量 $\boldsymbol{D}$ 可表示为

$$\boldsymbol{D} = \varepsilon \boldsymbol{E} \tag{2}$$

式中 ε ——介电常数 E ——场强

由式(1)、(2)可得

$$\varepsilon_d E_d = \varepsilon_g E_g \tag{3}$$

式中 ε_d ——介质介电常数

ε_g ——气隙介电常数

E_d ——介质场强 E_g ——空气场强

极间电压 U 由气隙两端电压 U_g 与介质两端电压 U_d 之和表示,即

$$U = U_g + U_d = l_g E_g + l_d E_d \tag{4}$$

式中 l_g ——放电间隙

l_d ——介质厚度

将式(3)代入式(4)可得气隙场强、介质场强表达式,分别为

$$E_g = \frac{\varepsilon_d U}{\varepsilon_g l_d + \varepsilon_d l_g} \tag{5}$$

$$E_d = \frac{\varepsilon_g U}{\varepsilon_g l_d + \varepsilon_d l_g} \tag{6}$$

介质阻挡模型如图 3 所示,当气隙场强大于 30 kV/cm 时,空气被击穿,产生放电现象。由式(5)、(6)可知,极间电压、介电常数、放电间隙、介质厚度直接影响放电,所以本文选取上述 4 因素进行研究。

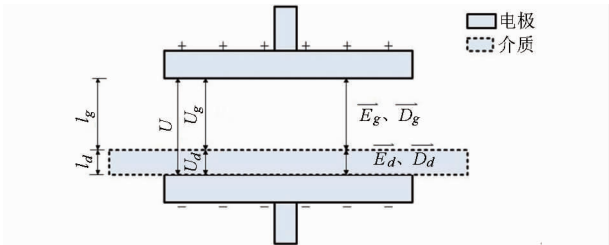


图 3 介质阻挡模型
Fig. 3 Dielectric barrier model

1.2.2 正交设计方案

正交试验设计是根据正交表来安排与分析多因素试验的一种方法,具有正交性、代表性、综合可比性。正交试验设计的特点是:用部分试验代替全部试验,其具体做法是挑选出部分有代表性的水平组合进行试验,并通过对这部分试验结果的分析了解全面试验的情况,找出最优水平组合。

为保证多因素试验的高效性、全面性,采用四因素三水平正交试验设计,因素与水平如表 1 所示,正交设计如表 2 所示。

表 1 因素与水平
Tab.1 Factors and levels

水平	因素			介质材料
	U/kV	l_d/mm	l_g/mm	
1	25	2.5	1.0	石英
2	28	3.5	1.5	亚克力
3	30	5.0	2.0	环氧树脂

表 2 正交试验设计

Tab.2 Orthogonal test design

序号	U/kV	l_d/mm	l_g/mm	介质材料
1	25	2.5	1.0	石英
2	25	3.5	1.5	亚克力
3	25	5.0	2.0	环氧树脂
4	28	2.5	1.5	环氧树脂
5	28	3.5	2.0	石英
6	28	5.0	1.0	亚克力
7	30	2.5	2.0	亚克力
8	30	3.5	1.0	环氧树脂
9	30	5.0	1.5	石英

2 试验结果和分析

2.1 正交试验结果

根据正交表中的因素、水平组合进行试验,放电时间持续 5 min 时,由氮氧化物检测仪检测得到的氮氧化物质量浓度如表 3 所示。

表 3 放电 5 min 所测氮氧化物质量浓度

Tab.3 Nitrogen gas concentration of discharge after 5 min

序号	U/kV	l_d/mm	l_g/mm	介质材料	氮氧化物质量浓度/($\text{mg}\cdot\text{m}^{-3}$)
1	25	2.5	1.0	石英	611.96
2	25	3.5	1.5	亚克力	755.71
3	25	5.0	2.0	环氧树脂	353.21
4	28	2.5	1.5	环氧树脂	197.14
5	28	3.5	2.0	石英	788.57
6	28	5.0	1.0	亚克力	739.29
7	30	2.5	2.0	亚克力	880.98
8	30	3.5	1.0	环氧树脂	203.30
9	30	5.0	1.5	石英	1004.20

2.2 试验结果分析

2.2.1 极差分析

对试验结果进行极差分析,比较各因素对系统固氮的影响程度。

分别计算各因素在水平 1、水平 2、水平 3 下的氮氧化物气体浓度之和为

$$T_j = \sum_{j=1}^3 C_{\text{NO}_x} \tag{7}$$

分别计算各因素在 3 水平下的氮氧化物气体浓度平均值为

$$K_j = \frac{1}{3}T_j$$

(8)

分别计算各因素氮氧化物气体浓度平均值的极差为

$$R_i = \max(K_j) - \min(K_j)$$

(9)

电压峰峰值、介质厚度、放电间隙、介质材料对应的 T_j 、 K_j 、 R_i 值如表 4 所示。

表 4 试验数据处理

Tab. 4 Experimental data processing

序号	U	l_d	l_g	介质材料
T_1	1 720. 88	1 690. 08	1 554. 55	2 404. 73
T_2	1 725. 00	1 747. 58	1 957. 05	2 375. 98
T_3	2 088. 48	2 096. 70	2 022. 76	753. 65
K_1	573. 63	563. 36	518. 18	801. 58
K_2	575. 00	582. 53	652. 35	791. 99
K_3	696. 16	698. 90	674. 25	251. 22
R_i	122. 53	135. 54	156. 07	550. 36

mg/m³

由表 4 极差 R_i 可知,介质材料对放电固氮的影响最大,为主要因素,电压峰峰值对放电固氮的影响最小。各因素对固氮效率的影响程度从大到小依次为:介质材料、放电间隙、介质厚度、电压峰峰值。

结合已有研究基础^[17],可得结论如下:对介质阻挡放电大气固氮系统而言,介质材料、放电间隙、介质厚度、电压峰峰值对固氮效率的影响程度依次减弱。

2. 2. 2 最优水平分析

根据表 4 中数据,以各因素的水平 1、水平 2、水平 3 为横坐标,以各个水平对应的氮氧化物气体质量浓度平均值 K_j 为纵坐标,绘制因素-指标趋势图,如图 4 所示。

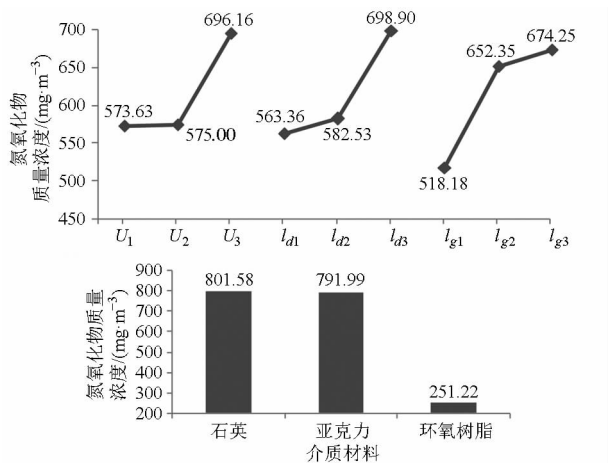


图 4 因素-指标趋势图
Fig. 4 Charts of factor-index trend

试验旨在改进反应条件以提高电能利用率、增加固氮量,指标为氮氧化物气体浓度,浓度越高越好。由图 4 可知氮氧化物气体浓度随各因素水平变

动有如下变化规律:

(1)电压峰峰值在 U_1 、 U_2 、 U_3 (25、28、30 kV) 3 水平之间变化,25 ~ 28 kV 之间的变化为阶段 1,氮氧化物气体浓度增长 0.24%;28 ~ 30 kV 之间的变化为阶段 2,氮氧化物气体浓度增长 21.1%。阶段 2 的氮氧化物浓度增长率高于阶段 1。电压峰峰值的最优水平为 30 kV,氮氧化气体质量浓度可达 696.16 mg/m³。

(2)介质厚度在 l_{d1} 、 l_{d2} 、 l_{d3} (2.5、3.5、5 mm) 3 水平之间变化,2.5 ~ 3.5 mm 之间的变化为阶段 1,氮氧化物气体浓度增长 3.4%;3.5 ~ 5 mm 之间的变化为阶段 2,氮氧化物气体浓度增长 20.0%。阶段 2 的氮氧化物浓度增长率高于阶段 1。介质厚度的最优水平为 5 mm,氮氧化气体质量浓度可达 698.9 mg/m³。

(3)放电间隙在 l_{g1} 、 l_{g2} 、 l_{g3} (1、1.5、2 mm) 3 水平之间变化,1 ~ 1.5 mm 之间的变化为阶段 1,氮氧化物气体浓度增长 25.9%;1.5 ~ 2 mm 之间的变化为阶段 2,氮氧化物气体浓度增长 3.4%;最优水平相对最低水平增长 30.1%。阶段 2 的氮氧化物浓度增长率低于阶段 1。放电间隙的最优水平为 2 mm,氮氧化气体质量浓度可达 674.25 mg/m³。

(4)介质材料为不定量因素,在石英、亚克力、环氧树脂 3 水平下变化。石英为最优水平,产生的氮氧化物气体质量浓度为 801.58 mg/m³。环氧树脂为最低水平,产生的氮氧化物气体质量浓度为 251.22 mg/m³。最优水平为最低水平产物浓度的 3.19 倍,趋势变化明显,对固氮效果影响最大。

根据以上分析,电压峰峰值 30 kV、介质厚度 5 mm、放电间隙 2 mm、石英介质材料为本试验所测最优水平,固氮效果最好。

2. 2. 3 产出/能耗比分析

各试验因素最优水平下,系统输入功率 50 W,气体流速 2 L/min,放电持续 5 min,系统产生的氮氧化物气体质量浓度为 1 004.20 mg/m³,与表 3 中第 9 组试验结果相同。

参照文献[14]提出的计算方法,可计算系统能耗为

$$E = \frac{CW}{X}$$

(10)

式中 W ——系统输入能量,J
 C ——温度 25℃、气压 1.01×10^5 Pa 下的气体摩尔体积,取常量 24.465 L/mol
 X ——氮氧化物气体百万分比浓度与进气体积的乘积
计算产出/能耗比为

$$n = \frac{AM}{E}$$

(11)

M ——氮氧化物气体摩尔质量

式中 A ——参数,取常量 3.6

将计算得到的产出/能耗比与已有研究进行比较,如表 5 所示。

表 5 产出/能耗比

Tab. 5 Ratio of output to energy

序号	放电方式	催化剂	温度/℃	放电气体	放电产物	产出/能耗比/(g·(kW·h) ⁻¹)	数据来源
1	介质阻挡	Cu-ZSM-5	350	氧气、氮气	NO	0.197	文献[19]
2	介质阻挡	无	室温	氮气、氢气	NH ₃	0.90	文献[7]
3	介质阻挡	无	室温	氮气、氢气	NH ₃	1.83	文献[20]
4	介质阻挡	无	室温	空气	NO _x	2.21	本研究

由表 5 可知,与其他已有研究相较,本试验装置的产出/能耗比明显较高。而且本文是在常温常压下,不借助任何催化剂进行空气介质阻挡放电。

文献[19]采用同轴圆柱型电极结构,对氮气、氧气混合气体进行介质阻挡放电,通过对 Cu-ZSM-5 和 Na-ZSM-5 两种催化剂的固氮效果比较,认为在 350℃ 高温、Cu-ZSM-5 催化剂下的氮氧化物气体浓度更高。经计算,文献[19]在高温、催化剂条件下的产出/能耗比为 0.197 g/(kW·h)。文献[7、20]分别采用针一板型、平行平板型电极结构,对氮气和氢气的混合气体进行介质阻挡放电,这需要更复杂、更耗能的制氢过程。经计算,文献[7]和文献[20]的产出/能耗比分别为 0.90 g/(kW·h) 和 1.83 g/(kW·h)。比较而言,本试验采用平行平板型电极结构,常温常压下对空气进行介质阻挡放电,产出/能耗比为 2.21 g/(kW·h),明显较高,更具应

用价值。

3 结论

(1) 试验表明,各因素对生成氮氧化物气体浓度的影响程度从大到小依次为:介质材料、放电间隙、介质厚度、电压峰峰值。结合已有研究基础,可得出结论:对于介质阻挡放电大气固氮系统,介质材料、放电间隙、介质厚度、电压峰峰值对固氮效率的影响程度依次减弱。

(2) 试验最优水平为电压峰峰值 30 kV、介质厚度 5 mm、放电间隙 2 mm、石英介质材料。每一因素的最优水平平均比最低水平增加至少 20% 固氮量,能够充分利用输入电能、提高固氮效率。

(3) 试验因素最优水平下,放电持续 5 min,产生的氮氧化物气体质量浓度可达 1 004.20 mg/m³,产出/能耗比为 2.21 g/(kW·h)。

参 考 文 献

1 沈世华,荆玉祥.中国生物固氮研究现状和展望[J].科学通报,2003(6):535-540.
SHEN Shihua, JING Yuxiang. China biological nitrogen fixation's present situation and prospect[J]. Chinese Science Bulletin, 2003(6): 535-540. (in Chinese)

2 ANASTAASOPOULOU A, WANG Q, HESSEL V, et al. Energy considerations for plasma-assisted N-fixation reactions[J]. Processes, 2014, 2(4): 694.

3 CHERKASOV N, IBHADON A O, FITZPATRICK P. A review of the existing and alternative methods for greener nitrogen fixation[J]. Chemical Engineering and Processing: Process Intensification, 2015, 90: 24-33.

4 HESSEL V, CRAVOTTO G, FITZPATRICK P, et al. Industrial applications of plasma, microwave and ultrasound techniques: nitrogen-fixation and hydrogenation reactions[J]. Chemical Engineering and Processing: Process Intensification, 2013, 71: 19-30.

5 HESSEL V, ANASTAASOPOULOU A, WANG Q, et al. Energy, catalyst and reactor considerations for (near)-industrial plasma processing and learning for nitrogen-fixation reactions[J]. Catalysis Today, 2013, 211: 9-28.

6 PATIL B S, WANG Q, HESSEL V, et al. Plasma N₂-fixation: 1900—2014[J]. Catalysis Today, 2015, 256: 49-66.

7 PRIETO G, TAKASHIMA K, MIZUNO A, et al. Dielectric barrier discharge for ammonia production[J]. Plasma Chemistry and Plasma Processing, 2013, 33(1): 337-353.

8 IITSUKA Y, YAMAUCHI H, SATO S, et al. Ammonia production from solid urea using nonthermal plasma[J]. IEEE Transactions on Industry Applications, 2012, 48(3): 872-877.

9 BHATTACHARYYA A, RAJANIKANTH B S. Discharge plasma combined with bauxite residue for biodiesel exhaust cleaning: a case study on NO_x removal[J]. IEEE Transactions on Plasma Science, 2015, 43(6): 1974-1982.

10 RANDENIYA L K, DE GROOT G J J B. Non-thermal plasma treatment of agricultural seeds for stimulation of germination, removal of surface contamination and other benefits: a review[J]. Plasma Processes and Polymers, 2015, 12(7): 608-623.

WU Xue, WANG Kunyuan, NIU Xiaoli, et al. Construction of comprehensive nutritional quality index for tomato and its response to water and fertilizer supply [J]. Transactions of the CSAE, 2014,30(7): 119 – 127. (in Chinese)

19 葛小光. 新编蔬菜育苗大全 [M]. 北京:中国农业出版社,2004.

20 王广龙,夏冬,杨泽恩,等. 幼苗质量对番茄植株生长发育和产量品质的影响 [J]. 江苏农业科学, 2014,42(5):140 – 144.

21 CUI N B, DU T S, KANG S Z, et al. Regulated deficit irrigation improved fruit quality and water use efficiency of pear-jujube trees [J]. Agricultural Water Management, 2008, 95(4): 489 – 497.

22 张芮,成自勇,王旺田,等. 不同生育期水分胁迫对延后栽培葡萄产量与品质的影响 [J]. 农业工程学报, 2014, 30(24): 105 – 113.

ZHANG Rui, CHENG Ziyong, WANG Wangtian, et al. Effect of water stress in different growth stages on grape yield and fruit quality under delayed cultivation facility [J]. Transactions of the CSAE, 2014,30(24): 105 – 113. (in Chinese)

23 曾向辉,王慧峰,戴建平,等. 温室西红柿滴灌灌水制度试验研究 [J]. 灌溉排水学报, 1999,18(4):23 – 26.

ZENG Xianghui, WANG Huifeng, DAI Jianping, et al. Study on irrigation regime for tomato under trickle irrigation in greenhouse [J]. Journal of Irrigation and Drainage, 1999, 18(4): 23 – 26. (in Chinese)

24 李建明,邹志荣. 灌溉土壤水分上限对温室番茄开花坐果期生理指标的影响 [J]. 西北农业学报, 2000,9(4):71 – 74.

LI Jianming, ZOU Zhirong. Effect of different soil water irrigation maximum on physiological indexes of greenhouse tomato at flowering and fruit-bearing periods [J]. Acta Agriculturae Boreali-occidentalis Sinica,2000,9(4): 71 – 74. (in Chinese)

25 刘浩. 温室番茄需水规律与优质高效灌溉指标研究 [D]. 北京:中国农业科学院, 2010.

LIU Hao. Water requirement and optimal irrigation index for effective water use and high-quality of tomato in greenhouse [D]. Beijing: Chinese Academy of Agricultural Sciences, 2010. (in Chinese)

~~~~~

(上接第 64 页)

11 PARK D P, DAVIS K, GILANI S, et al. Reactive nitrogen species produced in water by non-equilibrium plasma increase plant growth rate and nutritional yield[J]. Current Applied Physics, 2013, 13(Supp.): S19 – S29.

12 ITARASHIKI T, HAYASHI N, YONESU A. Sterilization effect of nitrogen oxide radicals generated by microwave plasma using air[J]. Vacuum, 2014, 110: 213 – 216.

13 ANAGHIZI S J, TALEBIZADEH P, RAHIMZADEH H, et al. The configuration effects of electrode on the performance of dielectric barrier discharge reactor for NO<sub>x</sub> removal[J]. IEEE Transactions on Plasma Science, 2015, 43(6): 1944 – 1953.

14 MALIK M A, JIANG C, HELLER R, et al. Ozone-free nitric oxide production using an atmospheric pressure surface discharge—a way to minimize nitrogen dioxide co-production[J]. Chemical Engineering Journal, 2016, 283: 631 – 638.

15 陈喜华. 介质阻挡放电及其应用[D]. 苏州:苏州大学, 2013.

CHEN Xihua. The applications on dielectric barrier discharge[D]. Suzhou: Suzhou University, 2013. (in Chinese)

16 史俊文. 高压脉冲放电等离子体固氮及其机理的研究[D]. 苏州:苏州大学, 2010.

SHI Junwen. Study on nitrogen fixation into water by the technique of pulsed high-voltage discharge plasma and the mechanism [D]. Suzhou: Suzhou University, 2010. (in Chinese)

17 王钰恒,汤红卫,仲崇山. 空气介质阻挡放电固氮的研究[J]. 高压电器, 2015(6): 81 – 85.

WANG Yuheng,TANG Hongwei,ZHONG Chongshan. Study on air dielectric barrier discharge ntrogen fixation[J]. High Voltage Apparatus,2015(6): 81 – 85. (in Chinese)

18 汤红卫,赵睿明. 电磁场理论基础[M]. 北京:中国电力出版社, 2009.

19 SUN Q, ZHU A, YANG X, et al. Formation of NO<sub>x</sub> from N<sub>2</sub> and O<sub>2</sub> in catalyst-pellet filled dielectric barrier discharges at atmospheric pressure[J]. Chemical Communications, 2003(12): 1418 – 1419.

20 BAI Mindong, ZHANG Zhitao, BAI Xiyao, et al. Plasma synthesis of ammonia with a microgap dielectric barrier discharge at ambient pressure[J]. IEEE Transactions on Plasma Science, 2003, 31(6): 1285 – 1291.