

刘强, 李杰, 鲁娜, 等. 2009 新型介质阻挡放电反应器同时处理废气和废液研究[J]. 环境科学学报, 29(7): 1400-1404

Liu Q, Li J, Lu N, et al. 2009. Design of a novel DBD reactor for simultaneous decomposition of exhaust gas and wastewater[J]. Acta Scientiae Circumstantiae 29(7): 1400-1404

新型介质阻挡放电反应器同时处理废气和废液研究

刘强, 李杰*, 鲁娜, 吴彦

大连理工大学静电与特种电源研究所, 大连 116024

收稿日期: 2008-11-04 修回日期: 2009-02-12 录用日期: 2009-05-15

摘要: 为了充分发挥介质阻挡放电处理污染物的能力, 本研究依据介质阻挡放电降解废气和废液的原理, 设计了一种介质阻挡放电同时处理废液和废气的反应器, 并对模拟废气甲苯和染料废水进行处理. 实验过程中对甲苯和染料废水分别单独处理和两者同时处理的效果进行了比较. 结果表明, 甲苯在单独处理和同染料废水同时处理时都可达到较高的降解效果, 两者同时处理时甲苯的降解效率可达 88.6%. 并且在甲苯降解效率基本保持不变的情况下, 本反应器可以实现对染料废水的同步降解, 其中处理 50 mg L⁻¹ 活性艳蓝 60m in 时, 降解率可达 95.4%, 每小时处理量为 35.8 mg 通过同时处理甲苯和染料废水提高了反应器的能量利用效率.

关键词: 介质阻挡放电; 甲苯; 染料废水; 同时降解

文章编号: 0253-2468(2009)07-1400-05 中图分类号: TM 89 文献标识码: A

Design of a novel DBD reactor for simultaneous decomposition of exhaust gas and wastewater

LIU Qiang, LI Jie*, LU Na, WU Yan

Received 4 November 2008 received in revised form 12 February 2009; accepted 15 May 2009

Abstract In order to make full use of the ability of dielectric barrier discharge (DBD) to decompose pollutants, a reactor was designed to remove toluene and dye wastewater simultaneously according to the principles of treating wastewater and exhaust gas with DBD plasma. The effects of treating toluene and dye wastewater alone and together in the reactor are compared. The results show that the toluene can be effectively decomposed no matter whether it is treated alone or together with dye wastewater. The degradation efficiency of toluene was 88.6% when toluene and dye wastewater were treated together. Furthermore, dye wastewater can be decomposed at the same time while the decomposition rate of toluene remains essentially invariant. In this process, the decomposition of 50 mg L⁻¹ reactive brilliant blue can reach 95.4% after 60 min, representing a removal rate of 35.8 mg per hour. Accordingly, the energy efficiency of this reactor is increased through simultaneously decomposing toluene and dye wastewater and thus overall energy consumption is reduced.

Keywords dielectric barrier discharge; toluene; dye wastewater; simultaneous decomposition

1 引言 (Introduction)

甲苯是目前排放到大气中的挥发性有机化合物 (VOCs) 的主要成分之一, 具有易挥发和致毒性等特点 (李坚等, 2000; 杜长明等, 2008; 聂勇等, 2004). 染料废水是工业废水中主要来源之一, 一般含有苯环类有机物. 由于两者结构稳定, 传统的生物法很难对其进行快速有效的降解. 介质阻挡放电 (DBD) 可在常温下处理污染物, 并具有处理效率

高、范围广和操作简单等优点, 被认为是一种很有应用前景的污染物治理方法. 但目前的介质阻挡放电反应器多为对单一状态污染物的处理, 如气态中对有机挥发性化合物 (VOCs) 的处理 (Futanura et al., 2001; Oda et al., 2002; Holzer et al., 2002; Ogata et al., 2003; Michael et al., 2004; Subrahmanyam et al., 2007), 液态中对苯酚或染料废水的处理, 虽然处理效率高, 但能耗也很高, 从而降低了能量效率 (Lang et al., 1998; Aplin et al., 2000; Lourenco et al.,

基金项目: 高等学校博士学科点专项科研基金资助 (No. 20070141004)

Supported by the Ministry of Education of the People's Republic of China (No. 20070141004)

作者简介: 刘强 (1983-), 男, E-mail: liuqiang27@163.com; * 通讯作者 (责任作者), E-mail: lijie@dlut.edu.cn

Biography: LIU Qiang (1983-), E-mail: liuqiang27@163.com; * Corresponding author E-mail: lijie@dlut.edu.cn

2001; Sugiarto *et al.*, 2003; Lee *et al.*, 2006; 胡祺昊等, 2002; 储金宇等, 2007).

为了提高介质阻挡放电处理污染物的能量效率, 综合处理各种污染物, 本文设计了一种可同时处理废气和废液的介质阻挡放电反应器, 以甲苯和染料废水为处理对象, 对反应器的处理效果和各个影响因素进行考察和分析.

2 实验部分 (Experimental)

2.1 实验流程

本实验流程如图 1 所示, 主要包括放电反应器、高压电源与电气参数测试系统, 模拟废气发生装置与色谱分析仪等部分. 该反应器是采用气相介质阻挡放电形成等离子体生成活性物质, 如臭氧、原子氧和羟基自由基等, 被处理的废气首先从气相等离子体通过与活性物质发生反应, 然后混合气体 (包括一些长寿命的活性物质, 主要臭氧) 从曝气头喷出进入染料废水中, 臭氧与染料分子发生脱色反应, 实现染料废水的脱色目的. 氮气钢瓶中的氮气经甲苯液体鼓泡瓶再经气体流量计进入缓冲瓶, 与空气压缩机鼓出的空气在缓冲瓶中混和均匀, 形成模拟废气, 然后进入到反应器中进行处理. 通过调节空气和氮气的流量控制模拟废气的流量与浓度. 反应器的进、出口分别设置采样口, 用于气体的取样分析. 染料废水通过溶液进、出口进入反应器内部进行降解.

实验中采用气相色谱仪 (8610C, 美国 SRI 公司) 和分光光度计 (UV-2102C, 上海尤尼科) 检测甲苯和染料废水浓度, 采用电压探头 (P6015A, 美国 Tektronix 公司) 和数字存储示波器 (TDS2024, 美国 Tektronix 公司) 进行电参数测试, 采用工业用氮气, 纯度为 99%. 高压电源是频率为 50 Hz 的交流高压

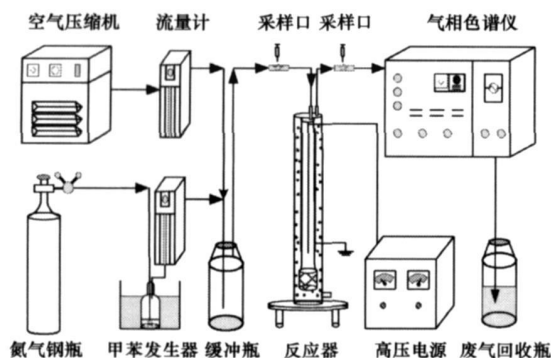


图 1 实验系统示意图

Fig. 1 Setup of the experimental system

电源, 电压峰-峰值为 ± 50 kV.

2.2 反应器

为了同时综合处理废气和废液, 充分发挥染料废水的吸收作用和对整个放电系统的冷却作用, 本实验中的介质阻挡放电系统采用线-筒式结构, 并完全浸没在废液中 (见图 2). 反应器外壳体为有机玻璃管, 长为 60 cm, 内径为 10 cm, 壁厚为 1 cm; 介质管为石英玻璃管, 长为 40 cm, 内径为 2 cm, 壁厚为 0.2 cm; 高压电极采用螺杆电极, 长 35 cm, 外径 0.5 cm; 低压电极是由长为 25 cm, 宽为 8 cm, 厚为 0.05 cm 的矩形不锈钢铁网围成的柱型网筒, 紧套在石英玻璃管的外壁, 并和电线相连接地. 在本反应器中废气首先由进气口进到介质阻挡放电系统中与放电产生的活性物质发生反应, 然后未反应完全的废气和剩余的活性物质经过微孔曝气头进入介质阻挡放电系统和外壳体之间的废液中, 与废液发生反应, 以达到同时处理废气和废液的目的.

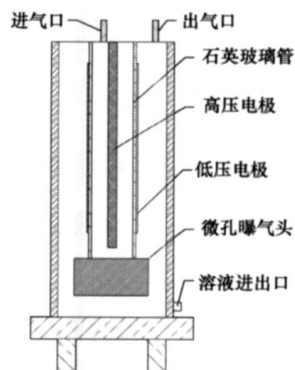


图 2 反应器结构图

Fig. 2 Structure of the dielectric barrier discharge (DBD) reactor

3 结果 (Results)

3.1 甲苯和染料废水降解率的比较

实验中考察了单独放电处理甲苯、同时放电处理甲苯和染料废水时的甲苯降解率. 染料废水为 750 mL, $50 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 的活性艳蓝 (Reactive brilliant blue), 在甲苯初始浓度 114×10^{-6} 、总流量为 $0.18 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ 条件下, 单独处理甲苯与同时处理甲苯和染料废水时甲苯的降解率如图 3 所示. 从图 3 中可以看出, 甲苯的降解率随着放电电压的增大而增加, 当电压为 15.9 kV 时, 甲苯被单独处理时的降解率为 87.3%, 同时处理甲苯和染料废水时甲苯的降解率为 88.6%, 两者相差不大. 其原因是随着放电电压的增大, 伴随放电过程产生的各种活性物质增

多,与甲苯分子发生反应,导致甲苯的降解率升高.此外,单独处理甲苯时反应器中有水,和染料废水共同处理时反应器中有染料废水,这样整个介质阻挡放电系统浸没在溶液中.液体与低压电极直接接触,共同作为低压电极并与石英玻璃介质紧密接触,促使电极放电更均匀.另外,液体对整个介质阻挡放电系统起到一定的冷却作用.表 1 给出了不同放电电压下放电 10 min 后水温的变化情况,从表 1 可看出,放电后水温升高,并且放电电压越高水温越高.

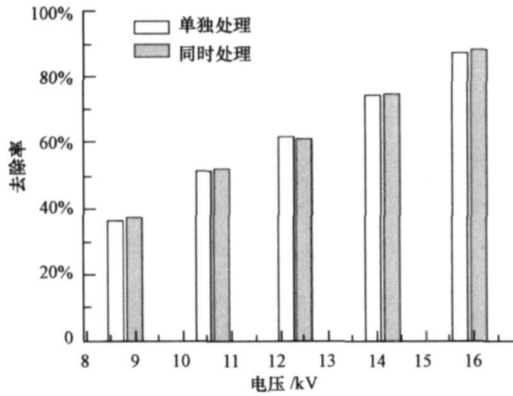


图 3 单独处理甲苯与同时处理甲苯和染料废水时甲苯的降解率比较

Fig 3 Comparison of toluene disposal alone and with dyes present

表 1 水温随电压的变化

电压 /kV	0	8.8	10.6	12.3	14.1	15.9
水温 /℃	13.5	14.3	15.0	15.6	16.4	17.3

实验分别用 750 mL、50 mg·L⁻¹ 的活性艳蓝、活性红 (Reactive red)、阳离子红 (Cationic red)、阳离子蓝 (Cationic blue) 和苋菜红 (Amaranth) 模拟不同的染料废水,在通入空气和甲苯废气后比较不同染料废水的降解率.在甲苯初始浓度为 114 × 10⁻⁶、总流量为 0.18 m³·h⁻¹、放电电压为 15.9 kV 的条件下,放电 60 min 后,不同染料废水在单独处理和与甲苯同时处理时的降解率如图 4 所示.从图 4 中可以看出,反应器通入空气(即单独废液处理)和甲苯废气(即废液与废气同时处理)都能够对染料废水进行降解.其中活性艳蓝的脱色率最高,为 95%,活性红、阳离子红、阳离子蓝和苋菜红的脱色率分别为 84%、85%、80% 和 76%,并且染料废水的脱色率在单独处理和同甲苯一起处理时相差较小.因此,

在处理染料废水时可以通入甲苯废气,对甲苯和染料废水同时进行降解,从而提高处理能量效率.

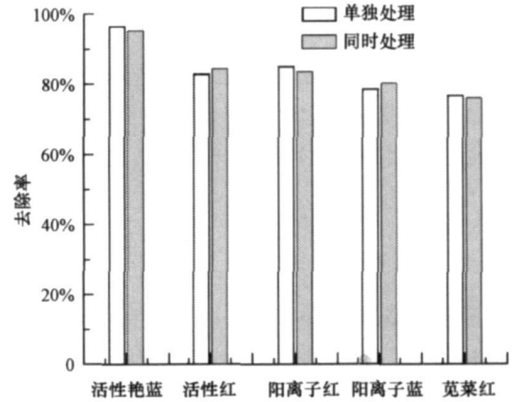


图 4 不同染料废水在单独处理和与甲苯同时处理时的降解率比较

Fig 4 Comparison of disposal results for different dyes alone and with toluene

3.2 甲苯和染料废水的同时降解

图 5 是在放电电压为 15.9 kV, 气体总流量为 0.18 m³·h⁻¹, 甲苯的初始浓度为 114 × 10⁻⁶, 活性艳蓝初始浓度为 50 mg·L⁻¹, 体积为 750 mL 的情况下, 甲苯和活性艳蓝共同降解的曲线图.从图 5 中可以看出, 放电 10 min 后, 甲苯的降解率可达到 83.2%, 活性艳蓝脱色率为 13.4%; 随着放电时间的延长, 甲苯的降解率增幅很小, 而活性艳蓝的脱色率大幅提升, 放电 60 min 后活性艳蓝脱色率可达 95.4%. 这说明放电处理甲苯所需时间较短, 而活性艳蓝则需要较长的时间. 因此, 本实验中, 在甲苯降解率基本保持不变的情况下, 可以实现对染料废水

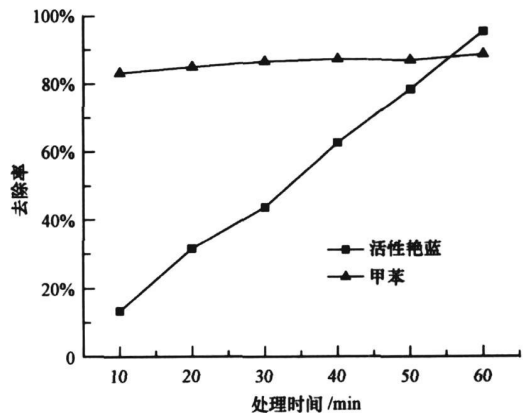


图 5 甲苯和活性艳蓝共同降解

Fig 5 The decomposition of toluene and reactive brilliant blue together

的同步降解. 对 $50 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 的活性艳蓝处理 60 min 时, 脱色率可达 95.4%, 处理量为 35.8 mg . 这部分污染物处理量是废气处理的同时增加的污染物处理量. 由此可见, 采用本研究的反应器, 在不增加能耗的前提下, 同时达到了甲苯和染料废水单独处理时的降解效果, 从而使单位电能处理污染物的数量增加, 提高了处理污染物的能量利用效率.

图 6 是在放电电压为 15.9 kV, 气体总量为 $0.18 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$, 甲苯的初始浓度为 114×10^{-6} 条件下, 分别用 750 mL , $50 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 的活性艳蓝、活性红、阳离子红、阳离子蓝和苋菜红模拟染料废水时, 不同类型染料的脱色效果. 从图 6 可以看出, 不同染料废水的脱色率都随着处理时间的延长而增加.

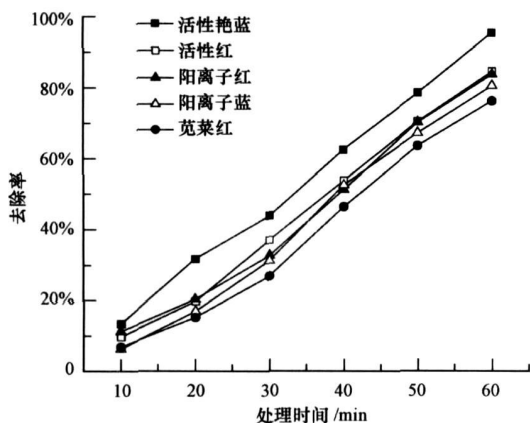


图 6 不同种类染料脱色效果

Fig. 6 The decoloration rates of different dyes

3.3 气体流量对甲苯和染料废水同时降解的影响

图 7 是在放电电压为 15.9 kV, 甲苯初始浓度 114×10^{-6} , 活性艳蓝和活性红的初始浓度分别为 $50 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$, 体积为 750 mL 的条件下, 不同气体流量下甲苯和染料废水的脱色率. 从图 7 中可以看出, 随着气体流量的增加, 甲苯和染料废水的降解效率均会下降. 其中, 甲苯的降幅较大, 由 $0.16 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ 时的 93.2% 下降到 $0.22 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ 时的 69.4%. 这可能是由于随着气体流量的增大, 污染物与放电过程中产生的活性物质发生反应的时间缩短, 反应不充分, 导致污染物降解效率下降. 而对于染料废水, 在反应器结构不变的条件下, 增加气体流量, 虽然放电系统产生臭氧等活性物质的总量增加, 但是由于流量增加, 致使从曝气头鼓出气泡的直径增加, 引发气泡中的活性物质向废水中的传质效果下降, 活性物质利用效率下降, 因此流量增加导致废水处理效率下降. 在今后的研究过程中有必要研究载气流量、

气泡尺寸、传质效果的关系.

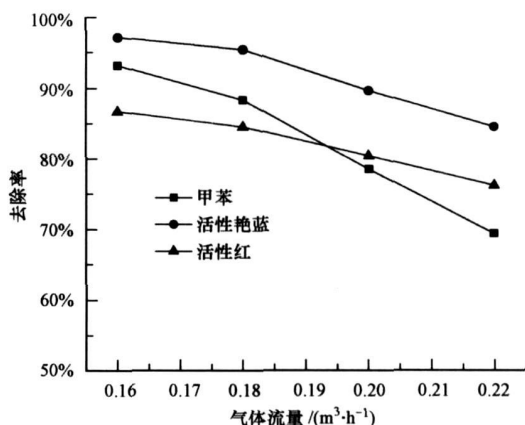


图 7 不同气体流量下甲苯和染料废水的降解率

Fig. 7 The decomposition rates of toluene and dye using different gas fluxes

4 结论 (Conclusions)

1) 本研究的介质阻挡放电反应器可以很好地实现对甲苯和染料废水的同时处理, 使单位电能处理污染物的量增加, 提高污染物处理的能量利用效率. 当甲苯和活性艳蓝废水同时处理时, 在甲苯降解效率保持基本不变的情况下, 每小时增加活性艳蓝的处理量为 35.8 mg .

2) 气体流量对甲苯和染料废水的降解率有较大影响, 随着气体流量的增大, 两种污染物的降解率都有所下降.

责任作者简介: 李杰 (1964—), 男, 教授. 主要从事环境等离子体技术与设备的研究工作, 完成国家自然科学基金 1 项, 承担国家“863”项目 1 项, 在国内外学术情况上发表相关研究论文 50 余篇.

参考文献 (References):

- Aplin R, Waite T D. 2000. Comparison of three advanced oxidation processes for degradation of textile dyes [J]. *Water Science and Technology*, 42: 345—354
- 储金宇, 曹凯杰, 吴春笃. 2007. 印染废水处理技术综述 [J]. *安徽农业科学*, 35(7): 2041—2042
- Chu J Y, Cao K J, Wu C D. 2007. Review of Printing and Dyeing Wastewater Processing Technique [J]. *Journal of Anhui Agricultural Sciences* 35(7): 2041—2042 (in Chinese)
- 杜长明, 李俊岭, 严建华. 2008. 滑动弧放电等离子体去除甲苯的实验研究 [J]. *高压电技术*, 34(3): 512—516
- Du C M, Li J L, Yan J H. 2008. Removal of toluene by gliding arc discharge plasma [J]. *High Voltage Engineering* 34(3): 512—

- 516 (in Chinese)
- Futamura S, Einaga H, Zhang A. 2001. Comparison of reactor performance in the non-thermal plasma chemical processing of hazardous air pollutants [J]. *IEEE Transactions on Industry Applications* 37: 978—985
- Hoker F, Roland U, Kopinke F D. 2002. Combination of non-thermal plasma and heterogeneous catalysis for oxidation of volatile organic compounds [J]. *Applied Catalysis B* 38: 163—181
- 胡祺昊, 王黎明, 黄兴华, 等. 2002. 高压脉冲放电降解染料废水的实验研究 [J]. *清华大学学报*, 42(9): 1148—1150
- Hu Q H, Wang L M, Huang X H, *et al*. 2002. Textile processing wastewater treatment by high voltage discharge [J]. *Journal of Tsinghua University (Science and Technology)*, 42(9): 1148—1150 (in Chinese)
- Lang P S, Ching W K, Willberg D M. 1998. Oxidative degradation of 2, 4, 6-trinitrotoluene by ozone in an electrohydraulic discharge reactor [J]. *Environmental Science Technology* 32: 3142—3148
- Lee C, Lee Y, Yoon J. 2006. Oxidative degradation of dimethylfoxide by locally concentrated hydroxyl radicals in streamer corona discharge process [J]. *Chemosphere* 65: 1163—1179
- 李坚, 马广大. 2000. 电晕法处理 VOCs 的机理分析与试验 [J]. *西安建筑科技大学学报*, 32(1): 24—27
- Li J M a G D. 2000. The mechanism analysis and experiment on controlling volatile organic compounds (VOCs) with corona discharge [J]. *Journal of Xi'an University of Architecture & Technology* 32(1): 24—27 (in Chinese)
- Lourenco N D, Novais J M, Pinheiro H M. 2001. Effect of some operational parameters on textile dye biodegradation [J]. *Isotope & Radiation* 37: 1465—1475
- Michael J K, Wright C F, Bruce R L. 2004. Plasma-catalyst interactions in the treatment of volatile organic compounds and NO_x with pulsed corona discharge and reticulated vitreous carbon Pt/Rh-coated electrodes [J]. *Catalysis Today* 89: 117—126
- 聂勇, 李伟, 施耀, 等. 2004. 脉冲放电等离子体治理甲苯废气放大试验研究 [J]. *环境科学*, 15(3): 30—34
- Nie Y, Li W, Shi Y, *et al*. 2004. Scale-up study on pulse corona discharge for the removal of toluene [J]. *Environmental Science* 15(3): 30—34 (in Chinese)
- Oda T, Takahashi T, Yanagi K. 2002. Nonthermal plasma processing for dilute VOCs decomposition [J]. *IEEE Transaction on Industry Applications* 38: 873—878
- Ogata A, Einaga H, Kabashima H, *et al*. 2003. Effective combination of nonthermal plasma and catalysts for decomposition of benzene in air [J]. *Applied Catalysis B: Environmental* 46: 87—95
- Subrahmanyam C H, Renken A, Kwi-Minsker L. 2007. Novel catalytic non-thermal plasma reactor for the abatement of VOCs [J]. *Chemical Engineering Journal* 134(1): 78—83
- Sugarto A T, Ito S, Ohshima T, *et al*. 2003. Oxidative decoloration of dyes by pulsed discharge plasma in water [J]. *Journal of Electrostatics* 58: 135—145