



文章栏目：大气污染防治

DOI 10.12030/j.cjee.201909143

中图分类号 X701

文献标识码 A

姜媛媛, 王俊峰, 陈扬, 等. 参数对脉冲电晕等离子体同时去除汞和三氯苯的影响[J]. 环境工程学报, 2020, 14(7): 1878-1885.

JIANG Yuanyuan, WANG Junfeng, CHEN Yang, et al. Effect of parameters on mercury and dioxins simultaneous removal by pulse corona plasma[J]. Chinese Journal of Environmental Engineering, 2020, 14(7): 1878-1885.

## 参数对脉冲电晕等离子体同时去除汞和三氯苯的影响

姜媛媛<sup>1</sup>, 王俊峰<sup>2</sup>, 陈扬<sup>2</sup>, 梁美生<sup>1,\*</sup>

1. 太原理工大学环境科学与工程学院, 晋中 030600

2. 中国科学院北京综合研究中心, 北京 101407

第一作者: 姜媛媛 (1995—), 女, 硕士。研究方向: 大气污染控制。E-mail: 986461297@qq.com

\*通信作者: 梁美生 (1968—), 女, 博士, 教授。研究方向: 气体净化脱硫等。E-mail: liangms88888@163.com

**摘要** 医疗垃圾焚烧排放烟气中含有汞和二恶英污染物, 这两者均具有高毒性和较强的环境危害性。通常使用活性炭喷射法同时去除汞和二恶英, 但该方法耗材高、成本大、存在着二次污染。为了解决上述问题, 采用脉冲电晕低温等离子体技术处理汞和三氯苯(二恶英的模拟物), 通过等离子体放电实现汞的氧化和三氯苯的降解, 研究了电压、频率、脉宽、上升沿(即上升时间)对脉冲电晕等离子体同时去除汞和三氯苯的影响。结果表明: 电压、频率对等离子体去除  $Hg^0$  和 TCB 有重要影响, 在电压为 17 kV 时, 最高可实现约 65% 的  $Hg^0$  氧化去除率, 约 70% 的 TCB 去除率; 脉宽、上升沿变化对二者的去除无明显影响; 检测产物的主要物质为产生酮类、苯衍生物。综合上述结果, 脉冲电晕等离子体去除  $Hg^0$  和 TCB 的去除机制包括能量竞争和自由基反应, 在能量竞争中, TCB 具有明显优势。研究结果可为低温等离子体技术同时去除汞和二恶英的工业化应用提供参考。

**关键词** 脉冲电晕; 等离子体;  $Hg^0$ ; TCB; 同时去除

焚烧法作为一种垃圾处理技术被世界各国广泛采用。垃圾焚烧产生并排放一系列污染物, 尤其是医疗垃圾焚烧, 很容易产生汞 ( $Hg^T$ ) 和二恶英 (PCDD/Fs) 等特别难处理的高毒高害物质, 严重威胁环境和人类健康。近几年, 我国的医疗条件有很大改善, 造成大量医疗垃圾的产生和堆积, 且其产量也在不断增加<sup>[1]</sup>, 相应的垃圾焚烧排放的  $Hg^T$  和 PCDD/Fs 也日益增多。

关于垃圾焚烧烟气中  $Hg^T$  的去除, 颗粒态汞 ( $Hg^P$ ) 和价态汞 ( $Hg^{2+}$ ) 可通过传统的大气污染控制手段(如湿法脱硫、布袋除尘)高效去除<sup>[2]</sup>。但是气态单质汞 ( $Hg^0$ ) 的去除相对困难许多, 这是因为其蒸汽压高、水溶性低<sup>[3]</sup>。因此, 更好地控制汞排放的关键在于单质汞的去除<sup>[4]</sup>。常见的气态单质汞的去除方法包括活性炭注射 (PAC)<sup>[5]</sup>、投加催化剂催化法<sup>[6]</sup>等, 二者需要投入很大的成本。而针对气态污染物的处理, 低温等离子体技术成本较低且已有较好的实验研究成果。

关于垃圾焚烧烟气中的 PCDD/Fs, 同样需要另外安装大气污染控制设备, 使其达到排放标准<sup>[7]</sup>。

收稿日期: 2019-09-25; 录用日期: 2019-12-05

基金项目: 北京市科技怀柔科学城专项 (Z181100003818009); 国家重点研发计划 (2016YFC0209204)

目前，国内垃圾焚烧行业主要使用的是活性炭注射法+布袋除尘组合技术。也有研究<sup>[8]</sup>表明，SCR技术中用到的催化剂对PCDD/Fs的去除有效果，此技术需要的烟气温度为240~260℃，但实际工厂的温度低于210℃，这给实际应用带来很大阻碍。

对于医疗垃圾焚烧烟气中的 $\text{Hg}^0$ 和PCDD/Fs的去除，通常采用水洗+吸收塔脱酸+活性炭喷射+布袋除尘工艺<sup>[9]</sup>。这种组合式烟气净化技术虽然可达到较好的去除效果，但是活性炭的耗用量相当巨大。而使用活性炭吸附污染物，存在着吸附饱和后的再生和后续处置问题，大幅增加了污染物的处理成本<sup>[10]</sup>。

低温等离子体技术是一种高效安全的污染物处理技术。它按照放电形式不同可分为介质阻挡放电、脉冲电晕放电、滑动电弧放电等<sup>[11]</sup>。其中脉冲电晕低温等离子体有如下优点：系统占地空间小，单位体积对污染物的处理成本小，产生的活性粒子较多<sup>[12]</sup>。

二恶英是混合物，在实验条件下很难获取。氯苯与二恶英有类似的氯代结构，且研究<sup>[13]</sup>表明氯苯是二恶英生成的主要前驱物。贺鹏等<sup>[14]</sup>曾采用1,2,4-三氯苯作为二恶英的替代物进行模拟研究。关于低温等离子体去除汞和1,2,4-三氯苯，已有不少报道。郝硕硕<sup>[15]</sup>研究了电压、频率对低温等离子体氧化汞的影响，得出电压、频率与汞去除率几乎呈线性正相关关系；张丽军<sup>[16]</sup>、马铭峰<sup>[17]</sup>研究了电源电压、频率、酸性烟气成分等对低温等离子体同时去除汞和TCB的影响，结果表明，电压、频率的升高均使二者的去除率增大。已有研究多侧重于电压、频率及烟气成分对低温等离子体同时去除汞和TCB的影响，未对脉宽、上升沿（指上升时间）进行探讨，未对能量作相应的分析，对机理的考察不明确。

本研究以取材较易且同样具有多氯代苯环的1,2,4-三氯苯作为实验对象，使用低温等离子体技术同时去除气态的 $\text{Hg}^0$ 和二恶英的模拟物1,2,4-三氯苯（TCB），在已有研究的基础上，探讨了电压、频率、脉宽、上升沿各参数对二者同时去除的影响，通过对反应中的能量及反应产物的分析，探讨了脉冲电晕等离子体对 $\text{Hg}^0$ 及TCB的脱除机制，为脉冲电晕等离子体同时去除汞和二恶英的工业化提供参考。

## 1 实验部分

### 1.1 实验系统

本研究自行搭建了脉冲电晕放电低温等离子体实验平台，系统流程如图1所示。整个系统由气路系统、供电系统、放电系统、吸附检测系统组成。实验中 $\text{Hg}^0$ 由蒸发产生，氮气载入气路中。1,2,4-三氯苯由注射器注射，并用氮气载入汽化器，气化后进入混气瓶。TCB的沸点为213.5℃，系统全程伴热240℃，保证TCB能完全汽化且不在过程中冷凝。供电系统由电源和相应的示波器及探头组成，电源为反应系统提供能量，示波器监测波形及能量数据。实验采用参数化高压脉冲电源，电压最高可调到20kV。采用线-筒式反应器，具体参数如下：内电极为钛丝，直径为1mm；外电极为304不锈钢材料圆筒，内直径为47.7mm，外直径为50mm；整个反应筒体实际放电长度为400mm，筒体两端为聚四氟乙烯材料。实际中垃圾焚烧烟气中氧气体积分数为12%~15%，本实验设定氧的体积分数为15%。整个气路系统总气体流量为4L·min<sup>-1</sup>。实验用氮气作为载气和平衡气，载 $\text{Hg}^0$ 流量为1L·min<sup>-1</sup>，载TCB流量为1L·min<sup>-1</sup>，平衡气流量为1.4L·min<sup>-1</sup>。气路系统中氧气流量为0.6L·min<sup>-1</sup>。控制初始浓度：TCB约为10mg·m<sup>-3</sup>， $\text{Hg}^0$ 约为300μg·m<sup>-3</sup>。用气相色谱-质谱仪（GC-MS）对TCB的浓度进行分析测定，使用《固定污染源废气-汞的测定 冷原子吸收分光光度法》（HJ 543-2009）中的方法对汞的浓度进行测定。

实验药剂及生产商如表1所示。实验仪器及生产商如表2所示。

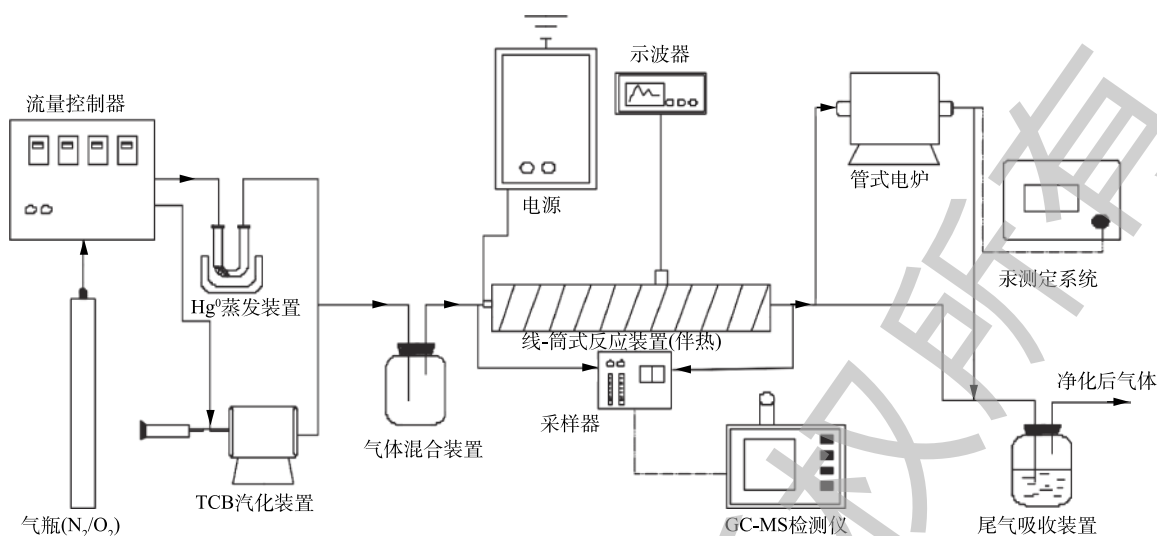


图1 实验系统流程图

Fig. 1 System flow chart of experiment

## 1.2 分析方法

本实验以汞的氧化率、三氯苯的去除率作为脉冲电晕等离子体处理效果的评价指标。

$$e(\text{Hg}) = \frac{c_0 - c_1}{c_0} \times 100\% \quad (1)$$

$$e(\text{TCB}) = \frac{c_{\text{in}} - c_{\text{out}}}{c_{\text{in}}} \times 100\% \quad (2)$$

$$c(\text{TCB}) = \frac{c_{\text{液}} V_{\text{液}}}{T_{\text{采样}} V_{\text{采样}}} \quad (3)$$

$$P = \int_0^T U(t)I(t)f dt \quad (4)$$

式中： $e(\text{Hg})$ 为 $\text{Hg}^0$ 氧化效率； $c_{\text{in}}$ 为反应前 $\text{Hg}^0$ 浓度， $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ； $c_1$ 为反应后 $\text{Hg}^0$ 浓度， $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ； $e(\text{TCB})$ 为三氯苯去除率； $c_{\text{in}}$ 为进口浓度， $\text{mg}\cdot\text{m}^{-3}$ ； $c_{\text{out}}$ 为出口浓度， $\text{mg}\cdot\text{m}^{-3}$ ； $c(\text{TCB})$ 为三氯苯浓度， $\text{mg}\cdot\text{m}^{-3}$ ； $c_{\text{液}}$ 为吸收液中三氯苯浓度， $\text{mg}\cdot\text{m}^{-3}$ ； $V_{\text{液}}$ 为吸收液体积，mL； $T_{\text{采样}}$ 为采样时间，min； $V_{\text{采样}}$ 为采样体积，L； $P$ 为能量，J； $U$ 为电压，kV； $I$ 为电流，A； $f$ 为频率，Hz； $T$ 为周期时间，ns。根据式(4)并结合Origin软件，计算处理并得到能量数据。

## 2 结果与讨论

### 2.1 电压变化对脉冲电晕低温等离子体同时去除 $\text{Hg}^0$ 和TCB的影响

设定实验条件(实验条件均为输入值)：频率为500 Hz，脉宽为100 ns，上升/下降沿为100 ns，脉冲电压调节为13~17 kV，步长为1 kV，实验结果如图2所示。参考实验现象，结合图2中的实验结果，可以看出：在脉冲电压为13 kV时，未听到反应器有放电嘶嘶声，体系基本未起晕；电

表1 实验药剂及生产商

Table 1 Experimental reagents and manufacturers

序号	药剂名称	生产商
1	$\text{N}_2$ 、 $\text{O}_2$ (纯度>99.5%)	北京佳诚气体配送中心
2	汞渗透管	自行研制
3	1, 2, 4-三氯苯	南京化学试剂股份有限公司
4	2, 2, 4-三甲基戊烷	南京化学试剂股份有限公司
5	正己烷	南京化学试剂股份有限公司

表2 实验仪器及生产商

Table 2 Laboratory equipment and manufacturers

序号	仪器名称	生产商
1	参数化高压脉冲电源	西安灵枫源电子科技有限公司
2	反应器	自制
3	ZXP-703型动态配气仪	北京紫馨科技有限公司
4	MDO3024示波器	Tektronix
5	P6015A高压探头	Tektronix
6	崂应2050型空气综合采样器	青岛崂山应用技术研究所
7	Agilent 7890B-5977A气质联用仪	德国安捷伦/Agilent Tech
8	旋转蒸发仪	上海亚荣生化仪器厂

压大于 14 kV 时, 反应器有明显的放电嘶嘶声, 证明体系已经起晕, 有 30%~40% 的处理效果; 电压大于 17 kV 时, 反应器嘶嘶声强烈, 且发生打火现象, 即击穿电压为 17 kV。

由图 2 可知, 电压升高,  $\text{Hg}^0$  和 TCB 的去除率增大, 电压与二者的去除率均呈正相关关系。随着电压的升高, 体系能量随之增大; 在初始能量一致增加时, TCB 和  $\text{Hg}^0$  去除率的升高趋势几乎是同步的。在脉冲电压为 17 kV 时, 对应的体系能量约为 28 J, 而此时  $\text{Hg}^0$  的氧化率约为 65%, TCB 去除率约为 70%。

## 2.2 频率变化对脉冲电晕低温等离子体同时去除 $\text{Hg}^0$ 和 TCB 的影响

当气体成分不变时, 设定实验条件: 脉冲电压为 16 kV, 脉宽为 100 ns, 上升/下降沿 100 ns, 频率调节为 0~800 Hz, 实验结果如图 3 所示。可以看出, 频率增大带来体系能量的升高,  $\text{Hg}^0$  和 TCB 的去除率随之增大。脉冲电压为 16 kV, 频率为 800 Hz, 脉宽为 100 ns, 上升/下降沿为 100 ns 时, 对应计算得到的能量为 30 J 左右, 此时,  $\text{Hg}^0$  氧化去除率约为 60%, TCB 的去除率可达 80% 左右。

增大频率, 体系能量随之增加。同时频率的增大意味着单位时间内脉冲的释放次数增多, 等离子体中电子密度增加, 相应地产生大量的活性基团。当频率大于 500 Hz 时, 体系内会有大量的高能电子聚集, 而 TCB 反应速率较  $\text{Hg}^0$  有明显的加快, 说明此时 TCB 在与  $\text{Hg}^0$  的能量竞争中处于优势地位。

## 2.3 脉宽及上升时间变化对脉冲电晕低温等离子体同时去除 $\text{Hg}^0$ 和 TCB 的影响

在脉冲电压为 16 kV, 频率为 700 Hz, 上升/下降沿为 100 ns, 调节脉宽为 100~700 ns 时, 其他条件同上, 实验结果如图 4 所示。

在脉冲电压为 16 kV, 频率为 700 Hz, 脉宽为 100 ns, 调节上升时间为 50、100、150、250、300 和 400 ns 时, 其他条件同上, 结果如图 5 所示。

由图 4 和图 5 可知, 在实验可调节的参数范围内, 利用等离子体同时处理  $\text{Hg}^0$  和 TCB, 脉宽和上升时间的变化对二者的去除率的影响均不大。由表 3 可知, 改变脉宽/上升沿, 单脉冲能量变化相当微小。根据式 (4) 推算, 脉宽/上升沿对总能量的影响也较小, 因而对去除率的影响较小。

吴淑群等<sup>[18]</sup>定量研究了脉冲上升沿变化

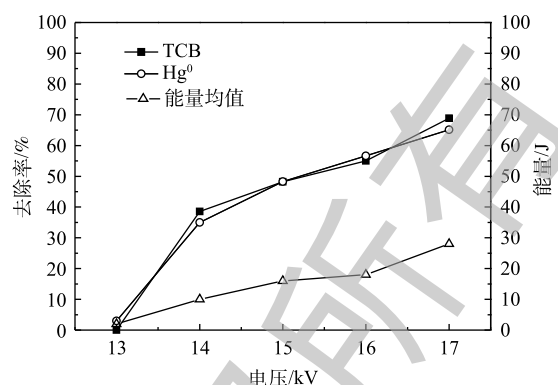


图 2 电压对  $\text{Hg}^0$ +TCB 去除率的影响

Fig. 2 Effect of voltage on the removal rate of  $\text{Hg}^0$ +TCB

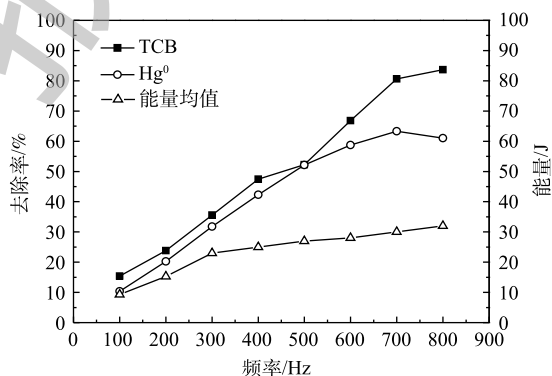


图 3 频率对  $\text{Hg}^0$ +TCB 去除率的影响

Fig. 3 Effect of frequency on the removal rate of  $\text{Hg}^0$ +TCB

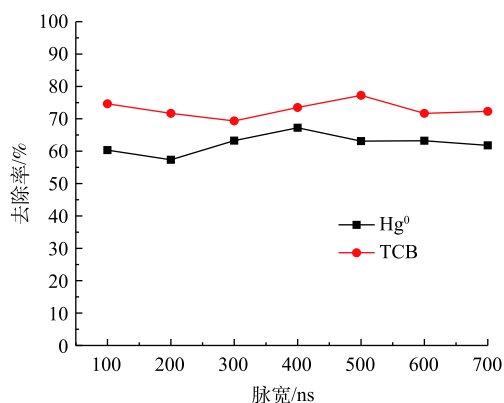


图 4 脉宽对  $\text{Hg}^0$ +TCB 去除率的影响

Fig. 4 Effect of pulse width on the removal rate of  $\text{Hg}^0$ +TCB

(4  $\mu\text{s}$ ~100 ns)对等离子体特性的影响,结果表明,当脉冲上升沿由4  $\mu\text{s}$ 下降至100 ns时,电子能量从1.25 eV上升至1.55 eV。本实验中随着上升沿由50 ns升至400 ns,电子能量降低,但其能量变化较小,因此,  $\text{Hg}^0$ +TCB 的去除率并无明显变化。李威等<sup>[19]</sup>也对脉宽等参数对离子体发射光谱特性的影响做了研究,表明窄脉宽比宽脉宽得到的电子能量略高。本实验中脉宽变化对体系  $\text{Hg}^0$ +TCB 的去除的影响较小,可能是由于实验脉冲调节范围较小导致的。

#### 2.4 产物分析及机理探讨

为更好地了解降解机理,设定频率为500 Hz,脉宽为100 ns,上升沿/下降沿为100 ns。分别在电压为14 kV和电压为16 kV的条件下,利用GC-MS仪器,分析脉冲电晕等离子体同时去除  $\text{Hg}^0$  和 TCB 的过程中产生的产物。

实验时设定的GC条件:采用HP-5ms色谱柱,程序升温,全扫方式,不分流进样,初始温度为50  $^{\circ}\text{C}$ 并保持1 min,以15  $^{\circ}\text{C}\cdot\text{min}^{-1}$ 的速度上升到170  $^{\circ}\text{C}$ ,并保持10 min。气化室温度为280  $^{\circ}\text{C}$ ,氦气以1 mL  $\text{min}^{-1}$ 的流速吹载样品,电子电离EI源70 eV,温度为230  $^{\circ}\text{C}$ ,前进样口温度为170  $^{\circ}\text{C}$ ,检测分析结果如图6和图7所示(匹配度均在90%以上)。

由图6和图7可知,在脉冲电晕低温等离子体同时去除  $\text{Hg}^0$  和 TCB 时,利用GC-MS进行分析,得到的产物多是  $\text{C}_5$ ~ $\text{C}_{10}$  的有机物碎片分子。在脉冲电压为14 kV的条件下,结果中有酮、苯环的衍生物;在脉冲电压为16 kV下,结果中检测到有酮等的化合物和含氮物质。这在一定程度上说明了TCB的降解途径。

在等离子体同时去除  $\text{Hg}^0$  和 TCB 时,会产生酮类中间产物,说明等离子体放电产生的电子能量可使氧气中的氧双键断裂。而降解物质中有含氮物质,说明尽管  $\text{N}_2$ (9.8 eV)的键能很大,但体系内仍有电子可达到这个能级,致使该键断裂。在脉冲电压为16 kV的条件下,注入反应器的能量足够高,未检测到含苯环物质,几乎实现了苯系化合物的全部降解。根据上述结果,可推测TCB的降解过程如下。在反应体系中,存在大量高能电子及 $\cdot\text{O}$ 、 $\cdot\text{H}$ 、 $\cdot\text{OH}$ ( $\text{OH}-\text{H}$ 键能为5.10 eV,低于 $\text{O}-\text{O}$ 键能,推断可发生 $\text{H}_2\text{O}+\text{e}^{-}\rightarrow\cdot\text{OH}+\cdot\text{H}$ 的反应)、 $\text{HO}_2\cdot$ 等自由基。整个降解过程主要包括TCB断键开环和自由基发生结合反应2个环节。

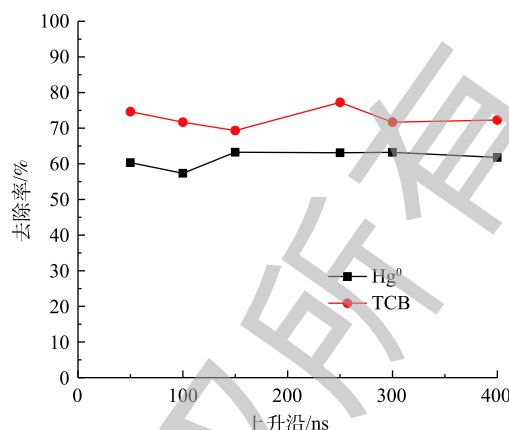


图5 上升沿对  $\text{Hg}^0$ +TCB 去除率的影响

Fig. 5 Effect of rising time on the removal rate of  $\text{Hg}^0$ +TCB

表3 不同脉宽、上升沿对应的能量

Table 3 Energies for different pulse width and rising time

脉宽/ ns	不同脉宽对应的 单脉冲能量/J	上升沿/ ns	不同上升沿对应的 单脉冲能量/J
100	0.047 8	100	0.050 2
300	0.048 2	300	0.047 3
500	0.046 9	500	0.048 1
700	0.045 3	700	0.046 0

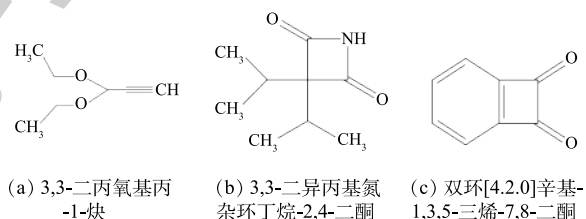


图6 电压14 kV下中间产物检出结果

Fig. 6 Detection results of intermediate products at 14 kV voltage

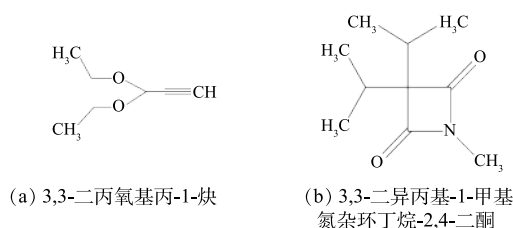


图7 电压16 kV下中间产物检出结果

Fig. 7 Detection results of intermediate products at 16 kV voltage

根据上述结果,可推测TCB的降解过程如下。在反应体系中,存在大量高能电子及 $\cdot\text{O}$ 、 $\cdot\text{H}$ 、 $\cdot\text{OH}$ ( $\text{OH}-\text{H}$ 键能为5.10 eV,低于 $\text{O}-\text{O}$ 键能,推断可发生 $\text{H}_2\text{O}+\text{e}^{-}\rightarrow\cdot\text{OH}+\cdot\text{H}$ 的反应)、 $\text{HO}_2\cdot$ 等自由基。整个降解过程主要包括TCB断键开环和自由基发生结合反应2个环节。

1) TCB 断键开环。TCB 的分子式为  $C_6H_3Cl_3$ ，其不同号位的 C—Cl 键能顺序为  $C-Cl(2) < C-Cl(1) < C-Cl(4)$ 。键能小的先断开，以此类推；其苯环上的大  $\pi$  键使得相邻的碳原子间存在着复杂的共轭关系，该键断裂主要是靠足够的电子能量与体系内的自由基反应开环<sup>[20]</sup>，最终形成碳链物质，如图 6 和图 7 所示。

2) 自由基结合。在断键开环的同时，体系内产生的各自由基粒子也会参与反应，发生氯原子的取代反应。进而活性粒子会进一步攻击各中间/瞬时产物，产生新的苯环衍生物，如图 6 中含有含苯环物质；另一种途径就是被  $HO_2\cdot$  取代，生成苯甲酸，而后在高能电子作用下继而生成各种醇、酮等，如图 6 和图 7 中有酮类物质，随着降解过程的继续，最终得到  $CO_2$ 、 $H_2O$ 、 $HCl$ 。推测 TCB 在脉冲电晕放电反应器中的降解过程如图 8 所示。

在低温等离子体单独去除  $Hg^0$  时，主要是通过将其氧化为  $Hg^{2+}$ ，实现其去除转化<sup>[21]</sup>。低温等离子体单独对 TCB 的去除，主要是通过高能断键实现其降解<sup>[22]</sup>。本研究采用脉冲电晕低温等离子体同时处理  $Hg^0$  和 TCB，通过电源参数影响研究和产物分析，推测其过程可能存在体系内的能量竞争和复杂的自由基反应 2 个环节。

1) 体系内的能量竞争。结合上文的能量分析，在  $Hg^0$  和 TCB 二者同时去除的过程中，在能量达到一定程度后，即至少在 25 J 以上，去除效果较为理想。通过分析认为，导致这一现象的原因是，在本实验中，两者共存将体系内能量分散。 $Hg^0$  及其他物质会分散作用于 TCB 断键的能量；同时 TCB 分散产生  $\cdot O$  等自由基的能量。由图 3 可知：随着频率的增大，二者的去除快慢程度基本相当；当频率  $> 500$  Hz (即能量大于 25 J) 时，频率继续增大， $Hg^0$  氧化率的提高呈现逐渐放缓的趋势，但 TCB 的降解反应速率可以保持在较高的水平。由此推断，在频率  $> 500$  Hz 时，TCB 在能量的争夺中明显占优势，更容易从体系中获取并利用更多的能量。

2) 复杂的自由基反应。系统发生放电后，体系内存在  $\cdot OH$ 、 $HO_2\cdot$ 、 $\cdot O$ 、 $O_3$  等多种活性基团的相互作用反应，体系内相当复杂。研究表明，对 TCB 降解起主要作用的是  $\cdot OH$  自由基<sup>[23]</sup>，对于  $Hg^0$  的氧化起主要作用的则是  $\cdot O$ 、 $O_3$ <sup>[24]</sup>，因此，在二者同时取出时，可认为几乎不存在自由基争夺反应。从理论上讲，TCB 降解产生的 Cl 也会氧化  $Hg^0$ ，促进其脱除。

可以看出，脉冲电晕低温等离子体去除汞和三氯苯，在共存体系下，存在着复杂的反应，且实际体系中会生成多种反应中间体及反应结合物质，它们之间的相互作用又会发生更加复杂的反应，具体的反应机理仍须进行深入研究。

### 3 结论

1) 电压、频率对脉冲电晕等离子体去除  $Hg^0$  和 TCB 有重要影响；脉宽、上升沿参数对脉冲电

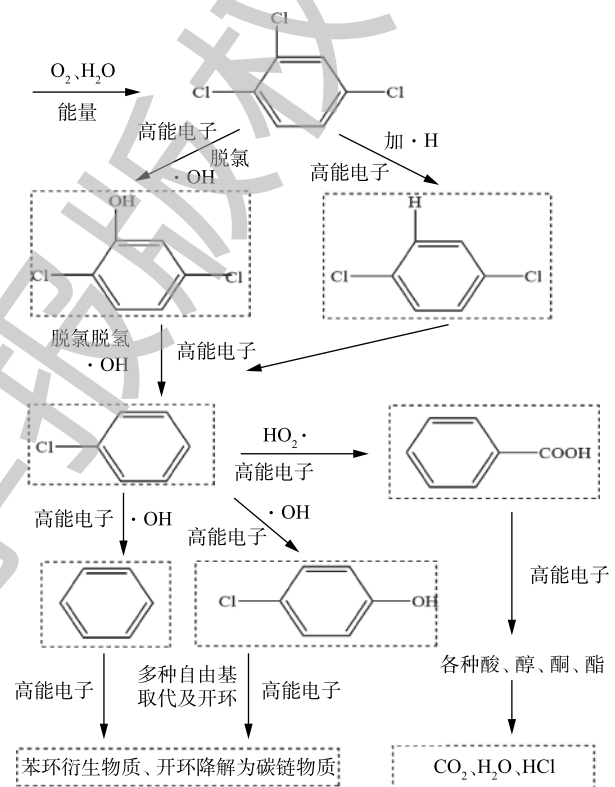


图 8 TCB 的降解过程

Fig. 8 Degradation process of TCB

晕等离子体去除  $\text{Hg}^0$  和 TCB 的影响不大。

2) 脉冲电晕等离子体同时去除  $\text{Hg}^0$  和 TCB 的去除了主要包括能量竞争和复杂的自由基反应。

3) 在能量竞争中, TCB 相对  $\text{Hg}^0$  具有明显的优势。

## 参 考 文 献

- [1] 陈红盛, 邹亮, 白庆中. 我国医疗废物处理处置技术及其应用前景[J]. 中国环保产业, 2004, 26(S1): 33-36.
- [2] 郑逸武, 段钰锋, 汤红健, 等. 燃煤烟气污染物控制装置协同脱汞特性研究[J]. 中国环境科学, 2018, 38(3): 862-870.
- [3] 陈元端. 改性活性炭吸附单质汞的研究现状[J]. 广州化工, 2010(9): 25-27.
- [4] ZHAO Y, MANN M D, PAVLISH J H, et al. Application of gold catalyst for mercury oxidation by chlorine[J]. Environmental Science & Technology, 2006, 40(5): 1603-1608.
- [5] TAN Z Q, SUN L, XIANG J, et al. Gas-phase elemental mercury removal by novel carbon-based sorbents[J]. Carbon, 2012, 50: 362-371.
- [6] ESWAREN S, STENGER H G. Understanding mercury conversion in selective catalytic reduction catalysts[J]. Energy Fuels, 2005, 19: 2328-2334.
- [7] CHI K H, CHANGS H, HUANG H C, et al. Partitioning and removal of dioxin-like congeners in flue gas treated with activated carbon adsorption[J]. Chemosphere, 2006, 64: 1489-1498.
- [8] LILJELIND P, UNSWORTH J, MAASKANT O, et al. Removal of dioxins and related aromatic hydrocarbons from flue gas streams by adsorption and catalytic destruction[J]. Chemosphere, 2001, 42: 615-623.
- [9] 刘辉, 向怡, 史学峰, 等. 某垃圾焚烧厂烟气净化工艺选择分析研究[J]. 环境科学与管理, 2016, 41(4): 101-104.
- [10] CHEN Z Y, MANNAVA D P, MATHUR V K. Mercury oxidation in dielectric barrier discharge plasma system[J]. Industrial & Engineering Chemistry Research, 2006, 45: 6050-6055.
- [11] 王承智, 胡筱敏, 石荣, 等. 等离子体技术应用于气相污染物治理综述[J]. 环境污染与防治, 2006, 28(3): 205-209.
- [12] 李琳. 等离子体反应器的优化设计[D]. 武汉: 华中科技大学, 2008.
- [13] 张杰. 焚烧处置危险废物产生二恶英的控制[J]. 探索科学, 2016(5): 238.
- [14] 贺鹏. 脱除烟气中二恶英类物质的实验研究[D]. 北京: 华北电力大学, 2011.
- [15] 郝硕硕. 低温等离子体处理含汞废气的研究[D]. 北京: 华北电力大学, 2016.
- [16] 张丽军. 低温等离子体协同处理含汞废气和二恶英的研究[D]. 北京: 华北电力大学, 2017.
- [17] 马铭峰. 等离子体技术协同控制汞和类二噁英物质研究[D]. 北京: 中国矿业大学, 2018.
- [18] 吴淑群, 许海涛, 卢新培, 等. 脉冲直流电压上升沿对大气压非平衡等离子体的影响[C]// 中国力学学会等离子体科学与技术专业委员会. 第十六届全国等离子体科学技术会议暨第一届全国等离子体医学研讨会, 2013: 1.

- [19] 李威, 王志新, 史莉. 纳秒脉冲火花放电等离子体发射光谱特性研究[J]. *电工电能新技术*, 2016, 35(11): 29-36.
- [20] 竹涛, 万艳东, 李坚, 等. 低温等离子体-催化耦合降解甲苯的研究及机理探讨[J]. *高校化学工程学报*, 2011, 25(1): 161-167.
- [21] 范艳翔, 陈扬, 尹连庆. 低温等离子体对 $\text{Hg}^0$ 氧化效果研究[J]. *环境工程*, 2017, 35(3): 82-86.
- [22] 马名烽, 陈扬, 竹涛, 等. 等离子体净化TCB影响参数实验[J]. *环境工程*, 2019, 37(3): 142-145.
- [23] 胡胜. 新型脉冲电源研制及其处理六氯苯废水的研究[D]. 武汉: 华中科技大学, 2011.
- [24] 张优. 低温等离子体结合湿法过程氧化脱汞研究[D]. 北京: 华北电力大学, 2017.
- (本文编辑: 郑晓梅, 张利田)

## Effect of parameters on mercury and dioxins simultaneous removal by pulse corona plasma

JIANG Yuanyuan<sup>1</sup>, WANG Junfeng<sup>2</sup>, CHEN Yang<sup>2</sup>, LIANG Meisheng<sup>1,\*</sup>

1. College of Environmental Science and Engineering, Taiyuan University of Technology, Jinzhong 030600, China

2. Beijing Advanced Sciences and Innovation Centre, Chinese Academy of Sciences, Beijing 101407, China

\*Corresponding author, E-mail: liangms8888@163.com

**Abstract** There are mercury and dioxins pollutants in the flue gas from medical waste incineration, they are highly toxic and harmful to the environment and usually removed by the activated carbon injection method. This method is not conducive to long-term sustainable development due to its large consumable material, high cost and secondary pollution. In order to solve above problems, pulsed corona low temperature plasma was used to treat mercury and trichlorobenzene (the simulant of dioxins) in this study, the removal of these two pollutants will be achieved by plasma discharge. The effects of voltage, frequency, pulse width and rising time on the simultaneous removal of mercury and trichlorobenzene by pulse corona plasma were studied. The results showed that the voltage and frequency had significant influence on the removal of  $\text{Hg}^0$  and TCB, at the voltage of 17 kV, the highest removal rates of  $\text{Hg}^0$  and TCB reached about 65% and 70%, respectively. While the change of pulse width and rising edge had no obvious effect on the removal of  $\text{Hg}^0$  and TCB. The main components in the products were ketones and benzene derivatives. Through the analysis, the removal mechanism of  $\text{Hg}^0$  and TCB by pulsed corona plasma was determined as energy competition and free radical reaction. TCB had an obvious advantage in energy competition. The study provides a reference for the industrialization of the simultaneous removal of mercury and dioxins by low temperature plasma.

**Keywords** pulsed corona; plasma;  $\text{Hg}^0$ ; TCB; simultaneous removal