

新型多电极并联介质阻挡放电反应器的放电特性研究

沈舟, 胡坤, 宋世林, 王慧娟

(江苏大学环境与安全工程学院, 江苏 镇江 212013)

摘要: 为了提高单一放电电极介质阻挡放电 (DBD) 反应器的能量利用率, 该研究建立了多电极并联 DBD 水处理体系, 考察该反应器的放电特性及其对甲基橙 (MO) 的脱色效果。结果表明, 与单一高压电极的 DBD 反应器相比, 多电极并联的电极形式有效地降低了能量传输过程中的损耗, 提高了系统的能量利用效率, 进而促进了体系中 MO 的脱色, 且相应的臭氧 (O_3) 生成量增加。在实验考察的相同系统操作参数条件下, MO 的脱色效果可由单一电极条件下的 73.71% 提高到 5 个电极条件下的 96.11%; 5 个高压电极并联的 DBD 反应器产生的 O_3 浓度是单个高压电极 DBD 反应器的 2.13 倍。

关键词: 多电极; 介质阻挡放电; 甲基橙脱色; 臭氧生成

中图分类号: X703.3

文献标志码: A

DOI: 10.16803/j.cnki.issn.1004-6216.2021090035

Discharge characteristics of a novel multi-electrode paralleling DBD reactor

SHEN Zhou, HU Kun, SONG Shilin, WANG Huijuan

(School of the Environment and Safety Engineering, Jiangsu University, Zhenjiang 212013, China)

Abstract: In order to enhance the energy utilization efficiency of the Dielectric Barrier Discharge (DBD) with one discharge electrode, a DBD water treatment system with paralleling multi-electrode was set up in the research. The discharge characteristics and the decolorization ability for the methyl orange (MO) was investigated. The results showed that the DBD system with multiple electrodes could alleviate the energy loss, enhance the energy utilization efficiency and then improve the decolorization of the MO and the ozone formation in the reaction system. Under the same experimental conditions, the decolorization rate of the MO increased from 73.71% in the DBD system with one electrode to 96.11% with five electrodes. Furthermore, the ozone concentration formed in the five-electrodes DBD system was 2.13 times of that generated in the one-electrode DBD system.

Keywords: multiple electrodes; dielectric barrier discharge (DBD); methyl orange decolorization; ozone formation

CLC number: X703.3

介质阻挡放电 (DBD) 是一种非平衡气体放电过程, 其中 2 个电极被固体介质材料隔开^[1]。DBD 的 2 个电极之间的介电层使得稳定的灯丝电流均匀地分布在放电区域, 并防止电弧放电^[2]。DBD 的这种特性使其能够在大气压下工作, 并具有放大的可能性, 利于大规模应用。当在 DBD 等离子体反应器的 2 个电极之间施加高压交流电时, 气体分子可以电离产生高能电子, 并通过一系列的反应产生各种活性离子 (H^+ 、 H_3O^+ 、 O^+ 、 H^- 、 O^- 、 OH 和 N_2^+)、分子 (O_3 、 H_2O_2) 和自由基 ($\cdot O$ 、 $\cdot H$ 、 $\cdot OH$ 和 $\cdot NO$) 等^[3]。此外, DBD 放电过程中会产生诸多物理

效应, 包括紫外线、冲击波和高温热解等^[4]。基于此, DBD 技术已被应用于材料改性、污染物处理和消毒抑菌等领域。传统的 DBD 水处理过程由于存在能量利用效率较低且易产生降解不完全的副产物等缺点, 导致其只有较低的实际应用效率。因此, 如何增加 DBD 作用过程中活性物质产量, 充分利用放电产生的各种活性组分, 提高能量利用率, 是 DBD 技术发展的重要方向。

为了提高 DBD 的能量利用效率, 科学家们通过优化 DBD 反应器结构来实现这个目标。BAHRI et al^[5] 通过对非热等离子体的研究发现, 电极结构

收稿日期: 2021-09-19

基金项目: 国家自然科学基金资助项目 (21876070)

作者简介: 沈舟 (1997-), 男, 硕士研究生。研究方向: 介质阻挡放电等离子体水处理技术。E-mail: 1259746870@qq.com

通信作者: 王慧娟 (1980-), 女, 博士、教授。研究方向: 低温等离子体高级氧化技术。E-mail: hjwang@ujs.edu.cn

引用格式: 沈舟, 胡坤, 宋世林, 等. 新型多电极并联介质阻挡放电反应器的放电特性研究 [J]. 环境保护科学, 2022, 48(5): 95-99.

是提高等离子体反应器能量的主要参数。KIM et al^[6]研究了双介质 DBD 反应器中乙二胺四乙酸 (EDTA) 的降解, 该反应器比普通平行板 DBD 反应器增加了额外的介质层。在放电频率 30 kHz、电压 14 kV 和放电 60 min 后, EDTA 的降解率可达 90% 以上, TOC 去除率达 40% 以上。WANG et al^[7]设计了多管并联表面放电等离子体反应器降解硝基苯酚 (PNP), 处理 1 h 后 COD 去除率达到 97%。HAFEEZ et al^[8]设计了一种多路 O₃ 发生器, 包含 6 个并联电晕 DBD 混合填充床等离子体微反应器, 在 5.8 kV、20 kHz 和 76 mA 条件下, O₃ 产量增加了 4.8 倍。上述研究证实了 DBD 的电极结构和形式对其作用体系中有有机化合物降解的关键影响。

本研究设计了一种双介质 DBD 反应器, 其并联多个高压电极, 用于甲基橙 (MO) 的脱色。为了说明多电极 DBD 反应器的优势, 本研究分析了并联高压电极数目对放电特性、能量注入、MO 脱色和 O₃ 生成的影响, 为 DBD 反应器电极结构的改进和优化提供了可能的方向。

1 实验内容

1.1 实验装置

本研究在传统的单个放电电极的基础上, 增加了 4 根形状、大小、材料相同的放电电极, 形成 5 根放电电极并联的结构, 见图 1。

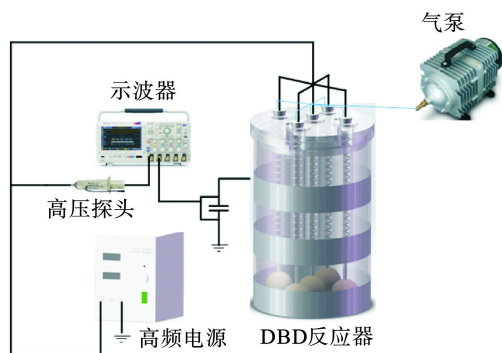


图 1 实验系统整体结构

图 1 可知, 整个实验系统系统由高频电源 (CTP-2000K, 南京苏曼等离子体技术有限公司)、电参数监测设备 (示波器、高压探头) 和 DBD 反应器组成。DBD 反应器的主体是一个石英玻璃圆筒, 被称为 I 介电层 (内径 114 mm, 厚度 3 mm, 高度 200 mm)。使用 5 根石英玻璃管作为 II 介电层 (内径 11 mm, 厚度 2 mm, 高度 155 mm), 在石英玻璃管内分别设置 5 根不锈钢弹簧 (线径 1 mm, 外径

11 mm, 长度 122 mm) 作为高压电极, 将包裹在石英玻璃圆筒外壁上的铝箔用作接地电极。空气通过石英玻璃管流入 DBD 反应系统, 由空气电离形成的活性物质通过与石英玻璃管连接的曝气装置进入目标溶液。

1.2 放电参数测量

实验中使用数字示波器 (Tektronix DPO 2014b) 结合电压探针和电流探针监测 DBD 等离子体系统的电压和电流波形, 放电功率由电压-电荷 ($Q-V$) 利萨如 (Lissajous) 图计算。

1.3 O₃ 浓度测量

DBD 体系中液相 O₃ 的浓度通过 O₃ 测试仪 (中国海恒 CY-1A) 来检测。根据测得的 O₃ 浓度, 确定单位 O₃ 生成所消耗的能量, 见式 (1):

$$EY = \frac{60 \times \rho \times q}{P} \quad (1)$$

式中: ρ 为 O₃ 浓度, mg/L; q 为气体流速, L/min; P 为放电功率, W。

1.4 分析方法

为了分析高压电极数目对有机物降解的影响, 实验室制备了浓度为 30 mg/L 的 1 000 mL MO 溶液作为模拟目标废水。紫外分光光度计 (UV-9600) 分析溶液吸光度, 记录不同电极数和处理时间条件下的 MO 浓度, 相应的脱色率 (η , %) 和 MO 脱色的能量利用效率, 见式 (2~6):

$$\eta = \frac{c_0 - c_t}{c_0} \quad (2)$$

$$G_{50} = \frac{0.5 c_0}{SED \times t_{50}} \quad (3)$$

$$SED = \frac{P}{V} \quad (4)$$

$$t_{50} = \frac{\ln 2}{k} \quad (5)$$

$$P = f \times C \times S \quad (6)$$

式中, c_0 和 c_t 为处理 0 min 和 t min 时 MO 的浓度, mg/L; G_{50} 为 MO 脱色的能量利用效率, g/(kWh); t_{50} 为 50% MO 脱色的时间, h; SED 是比能密度的缩写, 它是放电反应器每单位体积的注入能量, kW/L; k 为 MO 动力学降解的反应速率常数; P 为放电时注入反应器的功率, W; V 为目标溶液的体积, L; f 为放电时施加的频率, Hz; C 为内部采样电容, 0.47 μ F; S 为 Lissajous 图的计算面积。

2 实验结果和讨论

2.1 高压电极数目对 DBD 放电特性的影响

2.1.1 电压电流波形 5 kV 外加电压下,具有不同数量高压电极(从 1 到 5)的 DBD 反应器的电压和电流波形,见图 2。

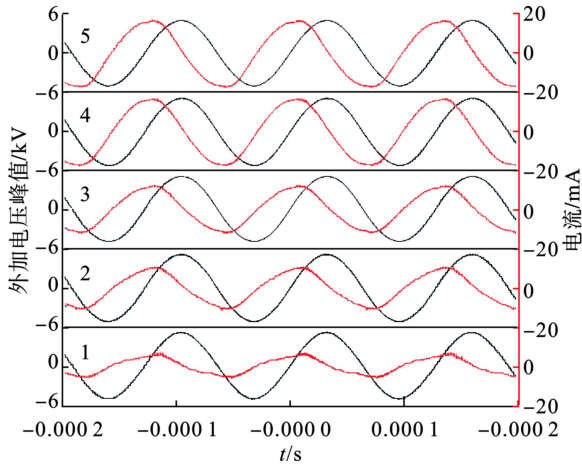


图 2 不同高压电极数 DBD 反应器的电压电流波形

在施加电压的相同条件下,通过改变并联高压电极的数量,电压波形保持稳定的正弦波,而高压电极数较多的 DBD 系统的电流强度高于高压电极数较少的 DBD 系统。结果表明,高压电极并联较多的 DBD 系统平均电场强度较强,有利于减少电能损耗。

2.1.2 放电功率 不同高压电极数的 DBD 反应器在施加 5 kV 电压条件下的 Lissajous 图和相应的输入功率,见图 3 和表 1。

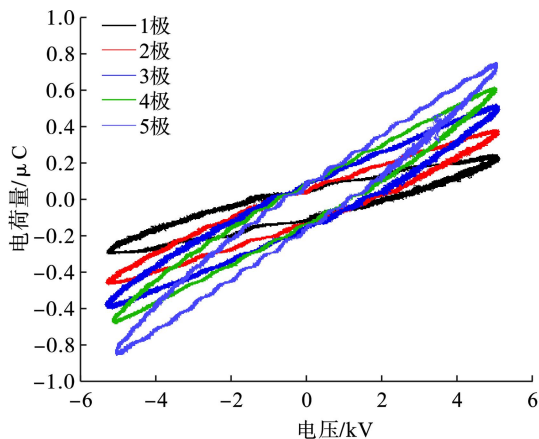


图 3 电压-电荷 Lissajous 图形

表 1 可知,5 个高压电极的反应系统中的放电功率高于电极数较少的 DBD 反应器中的输入功率。5 个高压电极 DBD 反应器的输入功率值是一个高压电极 DBD 反应器的 1.6~5.9 倍。实验结果表明,随着并联高压电极数目的增加,输入 DBD 反

应器的放电功率增加。

表 1 不同高压电极数 DBD 反应器的输入功率

放电电极数/个	放电功率/W
1	4.35
2	5.37
3	6.30
4	6.47
5	7.12

2.2 MO 的脱色

为了进一步证明多电极并联 DBD 反应器用于水体处理的优势,研究对不同电极数条件下的 MO 的脱色效果进行了考察。MO 脱色比率、动力学分析和能量利用效率的结果,见图 4。实验中 MO 的初始浓度为 30 mg/L,处理时间控制在 1 h。不同高压电极数 DBD 反应器处理 MO 的脱色效果和能量利用效率,见表 2。

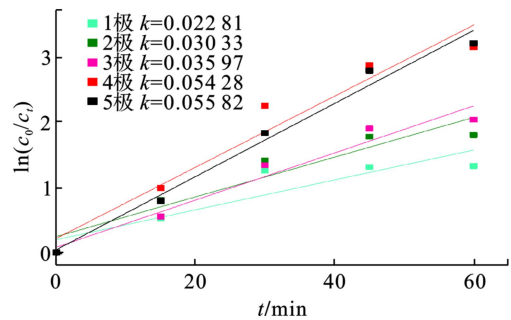


图 4 不同高压电极数 DBD 反应器处理 MO 的动力学分析

表 2 不同高压电极数 DBD 反应器处理 MO 的脱色效果和能量利用效率

放电电极数/个	MO 的脱色率/%	能量利用效率/g·kW·h ⁻¹
1	73.71	1.56
2	83.30	1.64
3	86.80	1.78
4	95.46	2.57
5	96.10	2.67

图 4 可知,具有多个高压电极的 DBD 等离子体水处理体系中 MO 的脱色效果更好。在 5 个高压电极的 DBD 等离子体水处理反应器中,放电处理 60 min 后,MO 的脱色率可达 96.11%;而在 1 个高压电极的反应器中,MO 的脱色率为 73.71%。5 个高压电极 DBD 等离子体水处理反应器中,MO 脱色的 k 值约为 1 个高压电极 DBD 反应器中 k 值的 2.45 倍,随着高压电极数目的增加,MO 脱色能量利用率从 1.56 增加到 2.67 g/kW·h。结果表明,采用高压电极并联的 DBD 水处理反应器有利

于提高 MO 的脱色效果和 DBD 体系能量利用率。

2.3 MO 脱色的紫外-可见全波段扫描

在不同电极数的 DBD 等离子体水处理体系中, 30 mg/L 的 MO 原液和放电 60 min 后的 MO 溶液的紫外-可见全波段扫描图, 见图 5。

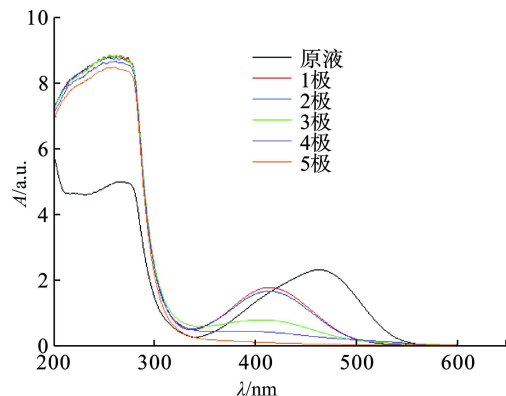


图 5 不同电极数 DBD 反应器处理 MO 溶液的紫外-可见全波段扫描图

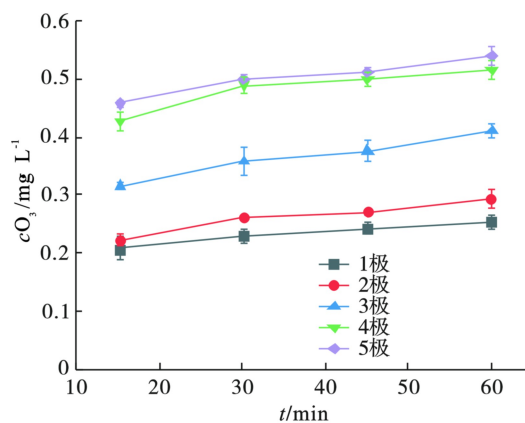
MO 在 200 ~ 600 nm 波长范围内有 2 个最大吸收峰, 一个是 273 nm 处对应的苯系吸收峰, 另一个是 465 nm 处对应偶氮结构的吸收峰^[9]。在放电过程中, MO 的偶氮结构对应的 465 nm 特征吸收峰的吸光度显著降低, 表明 MO 的偶氮结构被破坏; 当 DBD 反应器中并联高压电极数目较多时, 特征峰的衰减程度更为明显。在反应过程中, MO 的吸收光谱出现蓝移, 这是由于 MO 分子结构的破坏, 从而限制了 MO 共轭体系的 π 电子运动^[10]。

2.4 O₃ 生产

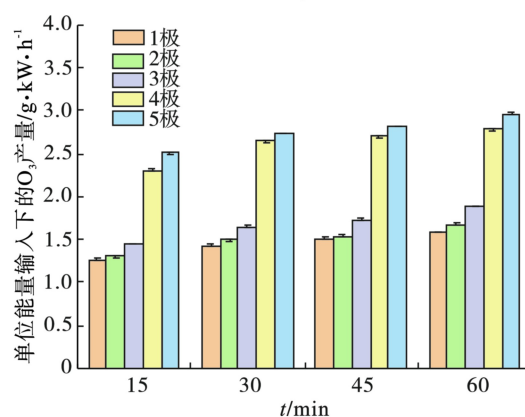
在非热等离子体系统中, O₃ 的产生通常遵循下面 R1 和 R2 的反应过程生成: 首先, 氧分子与电场中的高能电子碰撞形成氧原子; 其次, O₃ 是由氧分子和氧原子结合形成的^[11], 见式(7~8):



O₃ 是 DBD 系统中产生的主要活性氧物种 (ROS) 之一^[12], 对 DBD 系统中的自由基链式反应具有重要作用, 且 DBD 系统中 O₃ 能直接与目标污染物发生反应, 因此 O₃ 的生成量对 DBD 等离子体系统中有机物的降解至关重要。为了说明高压放电电极数量对 O₃ 生成量的影响, 研究考察了具有不同高压电极数目的 DBD 系统中液相 O₃ 的浓度。实验中每 15 min 抽取 1 次溶液样品, 总放电时间为 60 min, 见图 6(a); 同时, 研究计算了单位能量输入下的液相 O₃ 产量, 见图 6(b)。



a) O₃ 浓度



b) 单位能量输入下的液相 O₃ 浓度

图 6 不同高压电极数 DBD 反应器中 O₃ 的生成

图 6 可知, 在相同的空气流速下, 随着高压电极数量的增加, O₃ 的生成量增加, 相应的 O₃ 产生能量也增加。当并联高压电极的数量从 1 增加到 5 时, 液相 O₃ 浓度提高了 2.1 倍 (从 0.25 增加到 0.54 mg/L), 单位能量的 O₃ 生成量增加了 1.8 倍 (从 1.58 增加到 2.96 g/kWh)。O₃ 浓度的增加主要是由于高压电极数目的增加而增强了放电效应。

3 结论

与传统的单电极 DBD 反应器相比, 多个高压电极并联的 DBD 反应体系可以减少能量损耗, 提高输入反应器的能量。将单电极并联扩展到多个电极, 可提高体系中 MO 脱色效果和其中活性物种 (O₃) 生成。该研究将为 DBD 等离子体技术的进一步应用提供了依据。

参考文献

- [1] ZHANG Y, CHEW S T Y, TE S H, et al. Removal of cyanobacteria from synthetic and real water by dielectric barrier discharge process[J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2015, 22(23): 18967 - 18976.
- [2] NGUYEN H P, PARK M J, KIM S B, et al. Effective dielectric

- barrier discharge reactor operation for decomposition of volatile organic compounds[J]. *Journal of Cleaner Production*, 2018, 198: 1232 – 1238.
- [3] LI J, ZHU S J, LU K, et al. CO₂ conversion in a coaxial dielectric barrier discharge plasma reactor in the presence of mixed ZrO₂-CeO₂[J]. *Journal of Environmental Chemical Engineering*, 2021, 9(1): 104654.
- [4] KRUGLY E, MARTUZEVICIUS D, TICHONOVAS M, et al. Decomposition of 2-naphthol in water using a non-thermal plasma reactor[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2015, 260: 188 – 198.
- [5] BAHRI M, HAGHIGHAT F, ROHANI S, et al. Impact of design parameters on the performance of non-thermal plasma air purification system[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2016, 302: 204 – 212.
- [6] KIM Y K, KIM S A, LEE S B, et al. Decomposition of Ethylenediaminetetraacetic acid using He-Ar-O₂ dielectric barrier discharge[J]. *Plasma Processes and Polymers*, 2005, 2(3): 252 – 255.
- [7] WANG T C, LU N, AN J T, et al. Multi-tube parallel surface discharge plasma reactor for wastewater treatment[J]. *Separation and Purification Technology*, 2012, 100: 9 – 14.
- [8] HAFEEZ A, SHEZAD N, JAVED F, et al. Developing multiplexed plasma micro-reactor for ozone intensification and wastewater treatment[J]. *Chemical Engineering and Processing-Process Intensification*, 2021, 162: 108337.
- [9] GUETTAÏ N, AMAR H A. Photocatalytic oxidation of methyl orange in presence of titanium dioxide in aqueous suspension. Part I: Parametric study[J]. *Desalination*, 2005, 185(1-3): 427 – 437.
- [10] WANG S H, ZHOU S Q. Photodegradation of methyl orange by photocatalyst of CNTs/P-TiO₂ under UV and visible-light irradiation[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2011, 185(1): 77 – 85.
- [11] WANG W Z, WANG H L, ZHU T L, et al. Removal of gas phase low-concentration toluene over Mn, Ag and Ce modified HZSM-5 catalysts by periodical operation of adsorption and non-thermal plasma regeneration[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2015, 292: 70 – 78.
- [12] HAFEEZ A, JAVED F, FAZAL T, et al. Intensification of ozone generation and degradation of azo dye in non-thermal hybrid corona-DBD plasma micro-reactor[J]. *Chemical Engineering and Processing-Process Intensification*, 2021, 159: 108205.

(上接第 73 页)

- [1] 刘红斌. 环境磁学对重金属污染监测的研究进展[J]. *山西冶金*, 2020, 43(3): 94 – 96.
- [2] 韩文堂, 陈学刚. 新疆喀纳斯景区表层土壤磁学特征及环境意义[J]. *土壤*, 2019, 51(1): 185 – 194.
- [3] ATTOUCHEIK L, JORDANOVA N, BAYOU B, et al. Soil metal pollution from former zn-pb mining assessed by geochemical and magnetic investigations: case study of the bou caid area (tissemsilt, algeria)[J]. *Environmental Earth Sciences*, 2017, 76(7): 298.
- [4] 陈裕颖, 王冠, 陈姣, 等. 上海市杨浦区表土重金属污染的磁学响应[J]. *水土保持通报*, 2017, 37(3): 28 – 34.
- [5] RACHWAŁ M, KARDEL K, MAGIERA T, et al. Application of magnetic susceptibility in assessment of heavy metal contamination of saxonian soil (germany) caused by industrial dust deposition[J]. *Geoderma*, 2017, 295: 10 – 21.
- [6] ZONG Y, XIAO Q, LU S. Magnetic signature and source identification of heavy metal contamination in urban soils of steel industrial city, northeast china[J]. *Journal of Soils and Sediments*, 2017, 17(1): 190 – 203.
- [7] BECKWITH P R, ELLIS J B, REVITT D M, et al. Heavy metal and magnetic relationships for urban source sediments[J]. *Physics of the Earth and Planetary Interiors*, 1986, 42(1-2): 67 – 75.
- [8] DANKOUB Z, AYOUBI S, KHADEMI H, et al. Spatial distribution of magnetic properties and selected heavy metals in calcareous soils as affected by land use in the isfahan region, central iran[J]. *Pedosphere*, 2012, 22(1): 33 – 47.
- [9] 吴丹, 欧阳婷萍, 匡耀求, 等. 佛山农业表层土壤磁化率特征及其与重金属含量的关系[J]. *生态环境学报*, 2014, 23(11): 1826 – 1831.
- [10] 陈亮, 陈克龙, 张志军. 青海湖周边地区表土磁化率与土壤重金属的相关性研究[J]. *中国人口·资源与环境*, 2017, 27(增 1): 51 – 54.
- [11] 段宁, 杨思言, 魏婉婷. 基于 BP 神经网络的铅酸蓄电池厂地下水重金属浓度预测[J]. *环境科学与技术*, 2016, 39(1): 194 – 198.
- [12] 杨咪, 徐盼盼, 钱会, 等. 基于人工蜂群算法的 BP 双隐层神经网络水质模型[J]. *环境监测管理与技术*, 2018, 30(1): 21 – 26.
- [13] 周开利. 神经网络模型及其 MATLAB 仿真程序设计[M]. 北京: 清华大学出版社, 2005: 10 – 35.
- [14] 马丰魁, 姜群鸥, 徐黎丹, 等. 基于 BP 神经网络算法的密云水库水质参数反演研究[J]. *生态环境学报*, 2020, 29(3): 569 – 579.
- [15] 陈珠琳, 王雪峰. 基于 ST-PCA-BP 神经网络的檀香叶片全氮含量无损检测[J]. *生态学报*, 2018, 29(5): 1551 – 1558.
- [16] 中国环境监测总站. 中国土壤元素背景值[M]. 北京: 中国环境科学出版社, 1990: 339 – 483.
- [17] HU X, SU Y, YE R, et al. Magnetic properties of the urban soils in shanghai and their environmental implications[J]. *Catena*, 2006, 70(3): 428 – 436.
- [18] 管孝艳, 王少丽, 高占义, 等. 盐渍化灌区土壤盐分的时空变异特征及其与地下水埋深的关系[J]. *生态学报*, 2012, 32(4): 198 – 206.
- [19] 谭洁, 周卫军, 陈恋, 等. 澧阳平原杉龙岗遗址埋藏古水稻土磁性矿物特性[J]. *土壤*, 2017, 49(5): 1032 – 1037.
- [20] 李琼琼, 柳云龙, 孙于然, 等. “城-郊-乡”土壤环境磁学特征及其空间分布研究[J]. *长江流域资源与环境*, 2020, 29(2): 442 – 448.
- [21] 成功, 李嘉璇, 戴之秀. BP 神经网络在土壤重金属污染分析中的应用[J]. *地质学刊*, 2017, 41(3): 394 – 400.