



文章栏目：大气污染防治

DOI 10.12030/j.cjee.202206130 中图分类号 X701 文献标识码 A

苏晓锋, 夏张, 高康宁, 等. NaCl 电解氧化吸收液脱除烟气中的 NO_x [J]. 环境工程学报, 2023, 17(1): 165-172. [SU Xiaofeng, XIA Zhang, GAO Kangning, et al. NO_x removal from flue gas by NaCl electrolytic oxidation absorption solution[J]. Chinese Journal of Environmental Engineering, 2023, 17(1): 165-172.]

NaCl 电解氧化吸收液脱除烟气中的 NO_x

苏晓锋¹, 夏张², 高康宁², 朱宏艺², 郭蔓², 李登新^{2,3}, 许士洪^{2,3,✉}

1. 上海市材料工程学校, 上海 200231; 2. 东华大学环境科学与工程学院, 上海 201620; 3. 东华大学国家环境保护纺织污染防治工程技术中心, 上海 201620

摘要 研究了 NaCl 质量浓度、电解时间对电解生成有效氯组分的影响, 并以 NaCl 电解液作为氧化吸收液在自制的小型鼓泡喷淋吸收塔中进行模拟烟气脱硝实验, 进一步研究了有效氯质量浓度、反应体系 pH 和温度对脱硝效果的影响, 同时分析了脱硝机理。结果表明: 有效氯质量浓度随着 NaCl 质量浓度和电解时间的增加逐渐增加, 电解反应的主产物是 ClO^- 。 NO_x 去除率随着有效氯质量浓度增加而升高; 氧化体系酸度和温度增高有利于 NO 氧化, 但不利于 NO_x 吸收去除。当烟气流量为 $2 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$, NO 初始质量浓度为 $1340 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-3}$, 吸收液有效氯初始质量浓度为 $2.5 \text{ g} \cdot \text{L}^{-1}$, 反应体系 pH 为 5, 温度为 $30 \text{ }^\circ\text{C}$ 时, NO 的转化率可达 91.1%, NO_x 去除率可达 78.9%, 且能在该条件下长时间保持较高的烟气脱硝效果。本研究结果可为低温湿法氧化脱硝技术的工业化应用提供参考。

关键词 电解氧化; 有效氯; 烟气脱硝; 氮氧化物

近年来, 电力行业已率先完成电站锅炉超低排放改造工作, 氮氧化物 (NO_x) 固定源排放控制任务的重心转移到焦化、钢铁等行业^[1]。当前, 烟气净化领域中应用较多的脱硝技术有选择性催化还原法 (selective catalytic reduction, SCR) 和选择性非催化还原法 (selective non-catalytic reduction, SNCR) 等。然而, 由于投资运行成本高、系统复杂和氨易泄漏会造成二次污染等问题, 这部分行业的超净排放任务实现难度较大^[2-4]。湿法氧化脱硝技术具有操作管理简便、烟气条件适应性强和可实现多污染物同时脱除等优点, 有望实现超净排放, 故成为众多学者研究的热点^[5]。当前研究较多的是采用向液相中投加氧化剂的形式氧化脱除烟气中的 NO_x , 其效果虽好, 但氧化剂为一次性消耗品, 产生的废液需要处理。

采用电解 NaCl 溶液产生强氧化性的有效氯组分可用于烟气脱硝, 并通过现场制备的方式可有效解决众多湿法脱硝氧化剂 (H_2O_2 、 KMnO_4 和 NaClO_2 等) 储存运输过程的安全隐患及氧化成分分解消耗问题, 同时脱硝液可循环电解使用, 从而可有效减少氧化剂的投加成本^[6]。

基于以上思路, 本研究采用无隔膜法电解 NaCl 制备有效氯溶液, 考察 NaCl 质量浓度、电解时间对有效氯组分生成的影响, 并在自制的小型湿法鼓泡喷淋反应器中以 NaCl 电解液作为氧化吸收液进行模拟烟气脱硝实验, 对电解氧化吸收液脱硝机理进行分析, 同时考察氧化吸收体系因素

收稿日期: 2022-06-13; 录用日期: 2022-11-15

基金项目: 国家自然科学基金钢铁联合研究基金资助项目 (U1660107); 上海市生态环境局资助项目 (沪环科 [2019] 第 10 号); 中央高校基本科研业务费专项资金 (2232020A-10)

第一作者: 苏晓锋 (1976 —), 男, 工程硕士, 副高级讲师, sxf_2022_1976@163.com; ✉通信作者: 许士洪 (1976 —), 男, 博士, 副教授, shxu@dhu.edu.cn

(有效氯初始质量浓度、反应体系初始 pH 和温度) 对烟气脱硝效果的影响, 以期为低温湿法氧化脱硝技术工业化应用提供参考。

1 材料与amp;方法

1.1 材料与amp;装置

实验采用 NaCl、HCl、NaOH、C₂H₄O₂、KI、Na₂S₂O₃·5H₂O、Na₂HPO₄、KH₂PO₄ 等药品均为分析纯。本实验装置示意图如图 1 所示。装置可分为模拟烟气系统、有效氯溶液发生系统、氧化吸收系统及烟气分析系统。

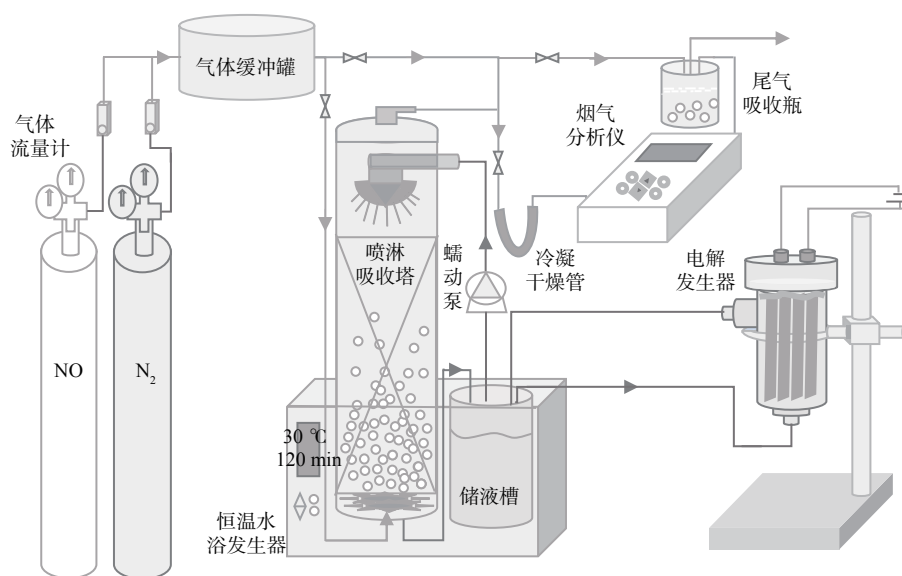


图 1 实验系统示意图

Fig. 1 Schematic diagram of the experimental system

在气体缓冲罐中, 通入 N₂ (纯度为 99.99%) 将 NO (10%NO, N₂ 为平衡气) 稀释至所需浓度, 形成模拟烟气。本实验中, 模拟烟气中的 NO 初始质量浓度设置为 1 340 mg·m⁻³, 烟气流量为 2 L·min⁻¹。有效氯溶液在电解发生器中产生, 电解发生器槽电压电流可直接由直流恒压横流电源 (DQYY5-80, 南通鼎麒电器有限公司) 进行调节。电解发生器阳极选用表面涂覆有钌铱等贵金属氧化物的纯钛板, 阴极选用不锈钢板, 电极板尺寸为 80 mm×60mm×2 mm, 并以 3 mm 的板间距并联均匀分布在发生装置内。氧化吸收过程是在实验室规模的底部带有砂芯布气器的鼓泡反应器 ($d=45$ mm, $h=500$ mm, $V=500$ mL) 中进行。取 300 mL NaCl 电解液作为循环氧化吸收液, 用蠕动泵 (WT600-2J, 保定兰格恒流泵有限公司) 进行输送, 在氧化吸收系统内采用单级喷淋循环, 液体循环流量为 200 ml·min⁻¹。模拟烟气经鼓泡反应器底部布气器均匀分布并与氧化吸收液接触反应, 且在上生过程与反应器顶部经喷嘴雾化的吸收液逆流接触, 强化相间传质以提高烟气脱硝率。

实验采用烟气分析仪 (Testo 350, 德国德图公司) 分析进出口烟气中各组分的质量浓度, 每次稳定采样时间为 5 s。多余烟气通入 5% HNO₃ 和 10% H₂O₂ 的混合液吸收瓶中, 以吸收未被完全吸收的污染物。每次实验的循环保持 15 min, 所有实验重复 3 次。反应体系温度由恒温水浴锅 (HH-24, 金坛市鑫鑫实验仪器有限公司) 控制; pH 用 pH 计 (PHSJ-3F, 上海雷磁科学仪器厂) 测定; 有效氯质量浓度采用碘量法 (GB·T 5750.11-2006)^[7] 测定; 电解液中各种氯氧化物的含量采用“五布碘量法”间接测定^[8-9]。

1.2 数据处理

电流效率 (current efficiency, CE) 计算定义式^[10] 见式 (1)。

$$CE = \frac{zFVC_{\text{FAC}}}{6.00 \times 10^4 ItM_{\text{Cl}_2}} \times 100\% \quad (1)$$

式中: z 为析氯反应转移的电荷数, $z=2$; F 为法拉第常数, $F=96\,486\text{ C}\cdot\text{mol}^{-1}$; C_{FAC} 为电解溶液中有效氯 (free available chlorine, FAC) 质量浓度, 以 Cl_2 计, $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$; V 为电解溶液体积, 取 2.20 L ; I 为电解电流, A ; t 为电解时间, min ; M_{Cl_2} 为 Cl_2 分子量, $M_{\text{Cl}_2}=71\text{ g}\cdot\text{mol}^{-1}$ 。

NO 转化率、NO_x 去除率的计算公式见式 (2)。

$$\eta = \frac{C_1 - C_2}{C_1} \times 100\% \quad (2)$$

式中: η 为气体污染物 NO 转化率、NO_x 去除率; C_1 为气体污染物进口质量浓度, $\text{mg}\cdot\text{m}^{-3}$; C_2 为气体污染物出口质量浓度, $\text{mg}\cdot\text{m}^{-3}$ 。

2 结果与讨论

2.1 NaCl 质量浓度对有效氯组分生成的影响

在电流密度为 $250\text{ mA}\cdot\text{cm}^{-2}$ 、电解时间为 5 min 的条件下, 研究了 NaCl 质量浓度对电解 NaCl 溶液制备有效氯质量浓度的影响, 结果如图 2 所示。当电解时间一定时, 电解液中有效氯质量浓度和电流效率随 NaCl 质量浓度增加而逐渐增加, 而增幅不断减小。当 NaCl 质量浓度小于 $30\text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ 时, 电解液中 Cl^- 质量浓度较低, 有效氯生成速率主要受 Cl^- 扩散速率的制约。同时, 随着 NaCl 质量浓度增加, 离子浓度也会增加, 会使更多的离子参与电流传导, 电导率随之增加, 从而提高了电解过程的电流效率。当 NaCl 质量浓度大于 $30\text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ 时, NaCl

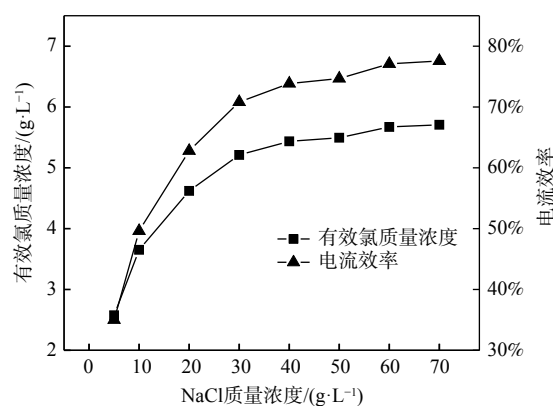


图 2 NaCl 质量浓度对电解的影响

Fig. 2 Effect of NaCl mass concentration on electrolysis

质量浓度继续增加对有效氯生成和电流效率影响较小。此时, 电化学反应与电荷转移过程占主导作用。随着 NaCl 质量浓度继续增大, 离子间距会缩小, 离子间相互作用增强, 离子运动阻力的增大会降低有效氯的生成速率^[7]。综上所述, 考虑到 NaCl 质量浓度超过 $30\text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ 时, 有效氯质量浓度增加量较少且会增大电解原料成本, 将 NaCl 质量浓度定为 $30\text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ 较合适。

2.2 电解时间对有效氯组分生成的影响

在 NaCl 质量浓度为 $30\text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ 、电流密度为 $250\text{ mA}\cdot\text{cm}^{-2}$ 的条件下, 研究了有效氯的生成随电解时间变化的关系, 结果如图 3 所示。图 3 (a) 表明, 随着电解时间延长, 有效氯质量浓度逐渐增加而最终保持相对稳定, 电流效率随电解时间的延长几乎呈线性下降。这是由于单位时间内参与阳极反应的 Cl^- 因电解反应的发生不断消耗使得浓度降低; 同时, 在非恒温电解实验过程中, 电流热效应会持续发生, 温度升高会降低 Cl_2 在电解液中的溶解度并促使有效氯组分扩散至阴极发生副反应, 从而造成有效氯的分解^[11]。图 3 (b) 表明, 当电解时间小于 10 min 时, ClO^- 质量浓度和副产物 ClO_3^- 质量浓度逐渐增高; 当电解时间大于 10 min 后, ClO^- 质量浓度开始缓慢下降, 而副产物 ClO_3^- 质量浓度持续增长。这是由于随着电解反应的发生, ClO^- 积累到一定浓度会加剧副反应的发生, ClO^- 进一步在阳极放电, 产生 ClO_3^- 。电解过程 ClO_2^- 和 ClO_2 的质量浓度始终不高, 是由于电

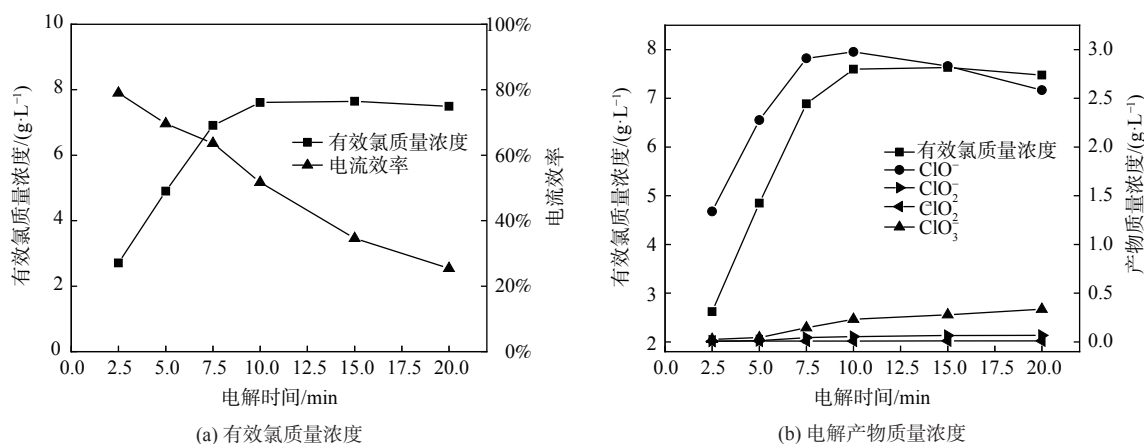


图 3 电解时间对有效氯的生成影响

Fig. 3 Effect of electrolysis time on the production of effective chlorine

解反应主要以生成 ClO⁻为主, 生成 ClO₂⁻和 ClO₃⁻的副反应不易发生。综上所述, 为获得理想的电流效率(效率大于 60%)和较高的有效氯质量浓度, 电解时间可定为 7.5 min。

2.3 NaCl 电解氧化吸收液脱硝原理分析

烟气中 95% 以上的 NO_x 是 NO, 而 NO 的溶解度极低^[12]。湿法氧化脱硝技术是将烟气中的 NO 氧化为溶解度高、利于吸收的 NO₂, 再进行下一步吸收反应。已知 NO₂/NO 电对的标准电位为 1.049 eV, 故所采用的氧化剂电对的电势应大于该值^[13]。表 1 为 NaCl 电解液中氧化成分、反应式及标准电位。NaCl 电解液中氧化成分的电势高于 1.049 eV 的物质有 Cl₂、HClO、ClO₂ 和 NaClO₃。

由 2.2 可知, 电解反应主产物是 ClO⁻, 可推测有效氯溶液与烟气中的 NO_x 发生氧化吸收的反应过程(图 4)^[14-15]。NO 的氧化吸收过程是从气相到液相的传质过程。由双膜理论可知, NO 先由气膜进入液膜, 在此过程中部分逸出 Cl₂ 可与 NO 反应结合, 而在液膜中 NO、NO₂ 与有效氯组分反应, 逐步被氧化为 NO₂⁻和 NO₃⁻, 部分未被氧化的 NO 和 NO₂ 将以气态形式重新释放。

2.4 有效氯初始质量浓度对 NO_x 脱除效果的影响

在反应体系温度为 20 °C、pH 为 9 的实验条件下, 研究了有效氯初始质量浓度对 NO_x 脱除效果的影响, 结果如图 5 所示。图 5 (a) 是不同有效氯质量浓度对 NO_x 脱除效果影响曲线图; 图 5 (b) 是不同有效氯质量浓度条件下的烟

表 1 NaCl 电解液中氧化成分、反应式以及标准电位

Table 1 Oxidation components, reaction equations and standard potentials in NaCl electrolyte

氧化成分	反应式	标准电位/eV
Cl ₂	Cl ₂ (aq)+2e=2Cl ⁻	1.358
HClO	HClO+H ⁺ +2e=Cl ⁻ +H ₂ O	1.482
NaClO	ClO ⁻ +H ₂ O+2e=Cl ⁻ +2OH ⁻	0.890
NaClO ₂	ClO ₂ ⁻ +2H ₂ O+4e=Cl ⁻ +4OH ⁻	0.760
ClO ₂	ClO ₂ +4H ⁺ +5e=Cl ⁻ +2H ₂ O	1.511
NaClO ₃	ClO ₃ ⁻ +6H ⁺ +6e=Cl ⁻ +3H ₂ O	1.451

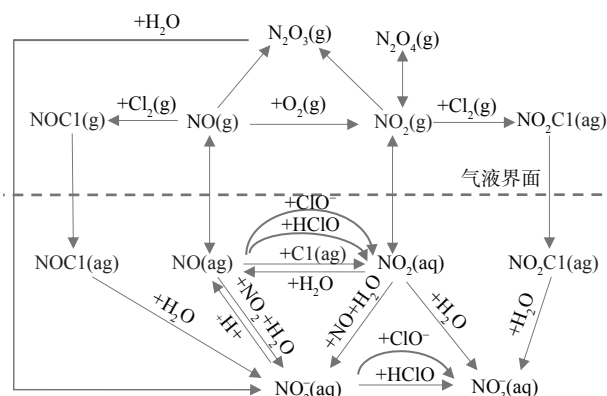


图 4 电解 NaCl 氧化吸收液脱除烟气 NO 过程传质-反应途径示意图

Fig. 4 Schematic diagram of the mass transfer-reaction pathway in the process of flue gas NO removal by electrolytic NaCl oxidation absorption solution

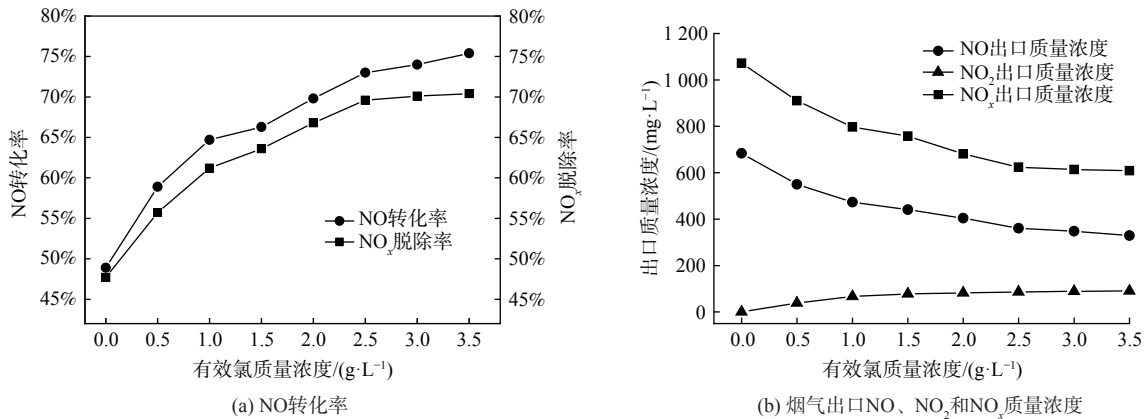


图 5 有效氯初始质量浓度对 NO_x 脱除效果的影响

Fig. 5 Effect of initial mass concentration of effective chlorine on NO_x removal

气出口 NO_x 各组分质量浓度曲线图。随着有效氯初始质量浓度的增加, NO 的转化率和 NO_x 的去除率都逐渐增加后趋于平缓, 烟气出口 NO_x 各组分的质量浓度变化值减小。这是由于 NO 在液相中的溶解度较低, 根据“双膜理论”, NO 的氧化与吸收属于液膜控制, 即由液相传质阻力控制。当溶液有效氯质量浓度从 0 增至 2.5 g·L⁻¹ 时, 有效氯组分与 NO 间的传质增强, 提高了 NO 的氧化率。当有效氯质量浓度达到 2.5 g·L⁻¹ 时, 电解液氧化能力已满足氧化需求, 继续提高质量浓度对 NO 氧化效果的提升较小^[16]。综合考虑 NO 的转化率、NO_x 的去除率以及有效氯溶液的经济性, 后续实验中有有效氯质量浓度定为 2.5 g·L⁻¹。

2.5 氧化吸收液 pH 值对 NO_x 脱除效果的影响

在有效氯初始质量浓度为 2.5 g·L⁻¹、反应体系温度为 20 °C 的条件下, 研究了 pH 对 NO_x 脱除效果的影响, 结果如图 6 所示。图 6 (a) 是有效氯溶液中的主要成分随 pH 的变化图。因吸收液中有有效组分随 pH 的不同发生改变, 使其对应的氧化脱硝能力也发生改变, 不同组分的氧化还原电位大小顺序为 $E(\text{HClO}/\text{Cl}^-) > E(\text{Cl}_2(\text{aq})/\text{Cl}^-) > E(\text{ClO}^-/\text{Cl}^-)$ ^[17-18]。因此, 本实验探讨了 NO_x 氧化脱除效果与反应体系 pH 的关系, 结果如图 6 (b) 所示。当 pH < 4 时, 溶液的氧化还原电位较高, 脱硝反应主要是 HClO 和 Cl₂ 的氧化吸收过程, 有较高 NO 的转化率, 但该酸性条件不利于氧化产物 NO₂ 的溶解吸收^[19]。当 4 < pH < 6 时, 吸收液中 Cl₂/HClO 摩尔比降低, 脱硝反应主要是 HClO 的氧化吸收过程, 此时 NO 的转化率逐渐下降, 氧化产物 NO₂ 的溶解度随 pH 的增加显著提高, 总 NO_x 去除率在

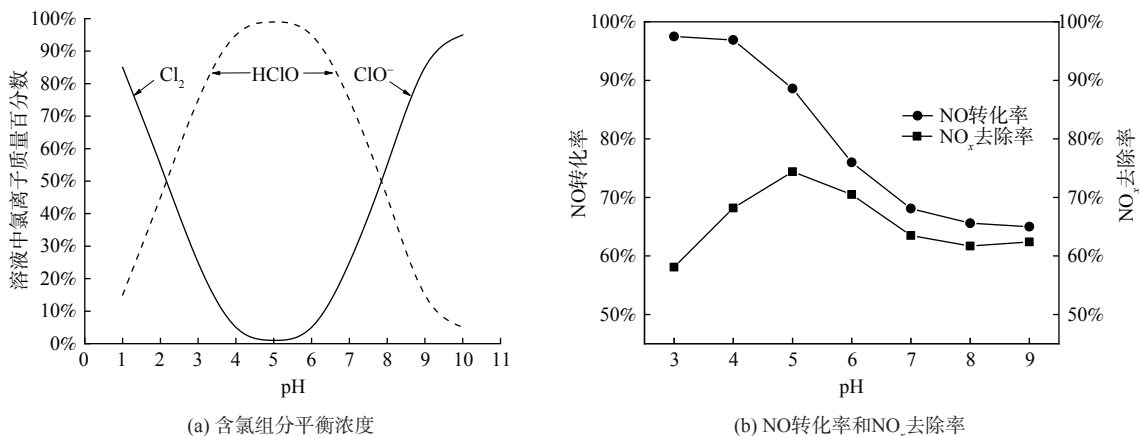


图 6 氧化吸收液 pH 对 NO_x 脱除效果的影响

Fig. 6 Effect of pH value of oxidizing absorption solution on NO_x removal

pH 为 5 时出现峰值。当 $\text{pH} > 7$ 时, 氧化吸收液中 HClO/ClO^- 摩尔比逐渐降低, 吸收液的氧化还原电位持续降低, NO 转化率下降使得 NO_x 的去除率随之下降。因此, 综合 NO 的转化率和 NO_x 的去除率, 并考虑酸性条件下设备腐蚀损耗, 吸收液 pH 为 5 时脱硝效果最佳。

2.6 氧化吸收液温度对 NO_x 脱除效果的影响

在有效氯初始质量浓度为 $2.5 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ 、反应体系 pH 为 5 的条件下, 研究了吸收体系温度对 NO_x 脱除效果的影响, 结果如图 7 所示。随着吸收体系温度升高, NO 转化率逐渐增加至稳定, 而 NO_x 去除率先增大后减少, 并在 $30 \text{ }^\circ\text{C}$ 时取得峰值 78.9% 。NaCl 电解氧化吸收液去除 NO 是气液传质反应, 温度升高有助于增强液相组分的扩散传质并加快化学反应速率, 从而促进 NO 的氧化^[20-21]; 但温度升高增大了气液传质阻力, 使得 NO 和氧化产物 NO_2 溶解度降低。为获得较高 NO_x 去除率, 反应体系的温度控制在 $30 \text{ }^\circ\text{C}$ 为最佳。

2.7 最优条件下的平行实验

根据上述探讨的氧化吸收体系因素对烟气脱硝效果产生影响的所得结果, 确定了最佳的反应条件: 烟气流量为 $2 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$, NO 初始质量浓度为 $1340 \text{ mg}\cdot\text{m}^{-3}$, 吸收液有效氯初始质量浓度为 $2.5 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$, 反应体系 pH 为 5, 温度为 $30 \text{ }^\circ\text{C}$ 时, NO 的转化率为 91.1% , NO_x 去除率为 78.9% 。在最佳的反应条件下进行平行实验, 结果如图 8 所示。在初始吸收液有效氯质量浓度一定的条件下, NO 转化率、 NO_x 去除率随时间的延长缓慢下降, 在较长时间内保持较高的脱硝效果, NO 的转化率从 91.0% 下降到 80.3% , NO_x 的去除率从 79% 下降到 60.5% 。发生上述现象的原因有: 一方面, 随着氧化吸收液中有有效成分与烟气中 NO 反应而被消耗, NO 的氧化速率受到影响, 同时溶液硝酸盐的累计也会影响 NO_x 的吸收速率; 另一方面, 烟气中存在一定比例的酸性气体 NO_2 , 经吸收后会造反应体系 pH 缓慢下降, 有利于 NO 的氧化, 但不利于氧化产物 NO_2 的吸收, 使得总 NO_x 去除率降低加快。

3 结论

1) 采用无隔膜法电解 NaCl 制备有效氯溶液, 随着 NaCl 质量浓度和电解时间的增加, 有效氯质量浓度逐渐增加, 其增量逐渐减少, 电解反应的主产物是 ClO^- , 副产物主要是 ClO_3^- 。

2) 较高的有效氯 NaCl 质量浓度有利于 NO 氧化并促使 NO_x 去除率升高; 较低的 pH 有利于 NO 氧化, 但不利于 NO_x 去除, 在弱酸条件下 NO_x 去除效果最好; 较高的温度有利于 NO 氧化, 但不利于 NO_x 去除。

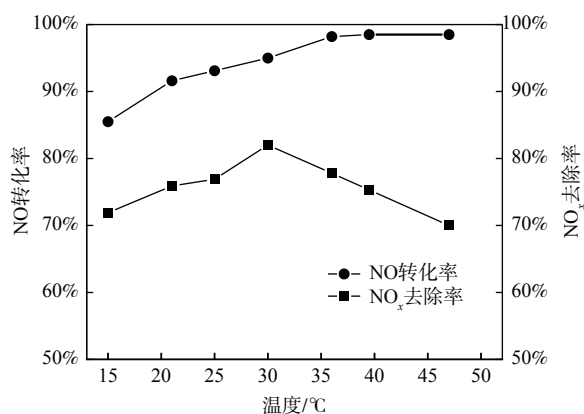


图 7 NO 转化率和 NO_x 脱除率与吸收液温度的关系
Fig. 7 The relationship between NO conversion rate, NO_x removal rate and absorption fluid temperature

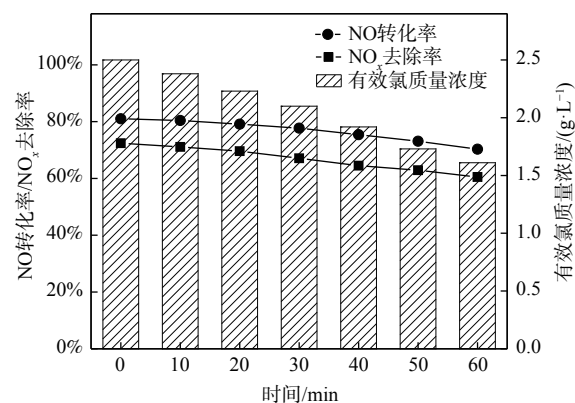


图 8 吸收液循环脱硝时 NO_x 脱除与持续时间的关系
Fig. 8 The relationship between NO_x removal and duration during circulation denitrification with absorbent solution

3) 在最佳反应条件(烟气流量为 $2\text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$, NO初始质量浓度为 $1\ 340\text{ mg}\cdot\text{m}^{-3}$, 吸收液有效氯初始NaCl质量浓度为 $2.5\text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$, 反应体系pH为5, 温度为 $30\text{ }^\circ\text{C}$)下, NO的转化率可达91.1%, NO_x去除率可达78.9%, 且能在较长时间内保持较高的烟气脱硝效果。

4) 基于研究结果, 后期还应探讨更多的因素(更加复杂的实际工业烟气、系统内氯气溢出逃逸、反应装置的氧化腐蚀等)对NaCl电解氧化脱硝系统的影响, 以期为其工业化应用提供更加全面的参考。

参 考 文 献

- [1] 脱硫脱硝行业2015年发展综述[J]. 中国环保产业, 2017 (1): 6-21.
- [2] PATWARDHAN J A, JOSHI J B. Unified model for NO_x absorption in aqueous alkaline and dilute acidic solutions[J]. *AIChE Journal*, 2003, 49(11): 2728-2748.
- [3] LIANG Z, MA X, LIN H, et al. The energy consumption and environmental impacts of SCR technology in China[J]. *Applied Energy*, 2011, 88(4): 1120-1129.
- [4] ZHANG Z, LI J, TIAN J, et al. The effects of Mn-based catalysts on the selective catalytic reduction of NO_x with NH₃ at low temperature: A review[J]. *Fuel Processing Technology*, 2022, 230: 107213.
- [5] LI D, XIAO Z, AFTAB T B, et al. Flue gas denitration by wet oxidation absorption methods: current status and development[J]. *Environmental Engineering Science*, 2018, 35(11): 1151-1164.
- [6] GUO R T, HAO J K, PAN W G, et al. Liquid phase oxidation and absorption of NO from flue gas: A review[J]. *Separation Science and Technology*, 2015, 50(2): 310-321.
- [7] 国家市场监督管理总局, 中国国家标准化委员会. 含氯消毒剂卫生要求[S]. 北京: 中国标准出版社, 2018-09-17.
- [8] 张莲英, 朱琳, 董毅. 影响五步碘量法测定二氧化氯含量的因素探讨[J]. 中国卫生检验杂志, 2005, 15(4): 504-505.
- [9] 张现兰, 王长德. 五步碘量法测定二氧化氯含量的影响因素研究[J]. 中国消毒学杂志, 2014, 31(11): 1164-1166.
- [10] ABDEL-AAL H K, SULTAN S M, HUSSEIN I A. Parametric study for saline water electrolysis: Part II—Chlorine evolution, selectivity and determination[J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 1993, 18(7): 545-551.
- [11] SZPYRKOWICZ L, CHERBANSKI R, KELSALL G H. Hydrodynamic effects on the performance of an electrochemical reactor for destruction of disperse dyes[J]. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 2005, 44(7): 2058-2068.
- [12] ADEWUYI Y G, OWUSU S O. Aqueous absorption and oxidation of nitric oxide with oxone for the treatment of tail gases: process feasibility, stoichiometry, reaction pathways, and absorption rate[J]. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 2003, 42(17): 4084-4100.
- [13] 张浩, 党小庆, 于瑞, 等. NaClO₃电解液对工业废气中NO_x的去除[J]. 环境工程学报, 2021, 15(1): 236-244.
- [14] HAN Z, YANG S, PAN X, et al. New experimental results of NO removal from simulated flue gas by wet scrubbing using NaClO solution[J]. *Energy & Fuels*, 2017, 31(3): 3047-3054.
- [15] GUO R T, GAO X, PAN W G, et al. Absorption of NO into NaClO₃-NaOH solutions in a stirred tank reactor[J]. *Fuel*, 2010, 89(11): 3431-3435.
- [16] 何雷品, 武斌, 陈葵, 等. Fe³⁺强化NaClO₃溶液脱硝过程研究[J]. 化工环保, 2019, 39(6): 653-659.
- [17] POURMOHAMMADBAGHER A, JAMSHIDI E, ALE-EBRAHIM H, et al. Simultaneous removal of gaseous pollutants with a novel swirl wet scrubber[J]. *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification*, 2011, 50(8): 773-779.
- [18] 周相武, 汪晓军, 刘姣, 等. 次氯酸钠溶液的氧化性研究[J]. 氯碱工业, 2006(8): 28-30.
- [19] WANG J, ZHONG W. Simultaneous desulfurization and denitration of sintering flue gas via composite absorbent[J]. *Chinese Journal of Chemical Engineering*, 2016, 24(8): 1104-1111.
- [20] ADEWUYI Y G, KHAN M A, SAKYI N Y. Kinetics and Modeling of the removal of nitric oxide by aqueous sodium persulfate simultaneously activated by temperature and Fe²⁺[J]. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 2014, 53(2): 828-839.
- [21] KHAN N E, ADEWUYI Y G. Absorption and oxidation of nitric oxide (NO) by aqueous solutions of sodium persulfate in a bubble column reactor[J]. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 2010, 49(18): 8749-8760.

(责任编辑: 靳炜)

NO_x removal from flue gas by NaCl electrolytic oxidation absorption solution

SU Xiaofeng¹, XIA Zhang², GAO Kangning², ZHU Hongyi², GUO Man², LI Dengxin^{2,3}, XU Shihong^{2,3,*}

1. Shanghai Materials Engineering School, Shanghai 200231, China; 2. School of Environmental Science and Engineering, Donghua University, Shanghai 201620, China; 3. National Environmental Protection Textile Pollution Prevention Engineering Technology Center of Donghua University, Shanghai 201620, China

*Corresponding author, E-mail: shxu@dhu.edu.cn

Abstract An experiment simulating flue gas denitrification was conducted in a small bubble spray absorption tower using NaCl electrolyte as the oxidation and absorption solution. The effect of NaCl mass concentration and electrolysis time on the effective chlorine fraction generated by electrolysis was also investigated. The effects of effective chlorine mass concentration, pH and temperature of the reaction system on the denitrification effect were further studied, the denitrification mechanism was also analyzed. The results showed that the effective chlorine mass concentration increased gradually with the increase of NaCl mass concentration and electrolysis time, and the main product of the electrolysis reaction was ClO⁻. The removal rate of NO_x increased with the increase of available chlorine mass concentration. The increase of acidity and temperature of the oxidation system was beneficial to NO oxidation, but not to NO_x absorption and removal. At a flue gas flow rate of 2 L·min⁻¹, an initial NO mass concentration of 1 340 mg·m⁻³, an initial absorption solution effective chlorine mass concentration of 2.5 g·L⁻¹, a reaction system pH of 5 and a temperature of 30°C, the conversion rate of NO could reach 91.1% and the removal rate of NO_x could reach 78.9%, and the high flue gas denitrification effect could be maintained for a long time under these conditions.

Keywords electrolytic oxidation; effective chlorine; flue gas denitrification; NO_x emission