

文章编号: 1005-8893 (2006) 01-0031-03

放电等离子体处理室内甲醛的研究

曹蓉^{1,2}, 何正浩¹, 郭丽娜¹, 瞿晶晶¹, 李劲¹

(1. 华中科技大学环境工程学院, 湖北武汉 430074; 2. 江苏省常州建设高等职业技术学校, 江苏常州 213016)

摘要: 居室装修引起的室内甲醛污染带来诸多健康安全隐患, 已经受到越来越广泛的关注。针对该问题, 模拟室内甲醛污染的情况, 利用放电等离子体对其进行处理。设计了甲醛污染空气模拟室及介质阻挡放电处理装置, 研究了甲醛浓度、外加电压、处理时间等条件与甲醛降解率的关系。实验结果表明, 采用放电等离子体技术处理模拟室内甲醛气体具有较好效果, 可以快速有效地降解甲醛。

关键词: 放电等离子体; 甲醛; 降解率

中图分类号: X 51

文献标识码: A

Indoor Formaldehyde Decomposition by Dielectric Barrier Discharge

CAO Rong^{1,2}, HE Zheng-hao¹, GUO Li-na¹, XU Jing-jing¹, LI Jin¹

(1. College of Environmental Engineering, Huazhong University of Science and Technology, Wuhan 430074; 2. Jiangsu Changzhou Higher Vocational School of Construction, Changzhou 213016, China)

Abstract: The indoor formaldehyde from house decoration may cause serious harm to people's health. In order to solve this problem, plasma of air discharge was used to treat it. A chamber was designed to simulate this pollution and a dielectric-block discharge device. This paper studied the influence of formaldehyde concentration, discharge voltage, treatment time, etc. on the disposed rate of formaldehyde. The results showed that plasma is an effect way for the indoor formaldehyde disposal.

Key words: discharge plasma; formaldehyde; degradation

甲醛 (Formaldehyde, HCHO) 属于高挥发性有机化合物, 在常温常压条件下极易挥发, 成为具有强烈刺激性气味的无色气体。从 19 世纪甲醛作为消毒剂问世以来, 化工合成的甲醛产量日益增加, 它被广泛应用于工业, 是制造树脂、油漆、塑料、合成纤维和各种粘合剂的主要原料, 也是室内的建筑装潢过程中甲醛气体释放的主要来源^[1~3], 现代科学研究表明, 甲醛对人体健康有负面的影响, 当室内含量为 0.1 mg/m³ 时就有异味和不适感; 0.5 mg/m³ 时可刺激眼睛引起流泪; 0.6 mg/m³ 时引起咽喉不适应或疼痛; 质量浓度再高可引

起恶心、呕吐、咳嗽、胸闷、气喘甚至肺气肿; 当空气中达到 230 mg/m³ 时可当即导致死亡^[4,5]。可见室内甲醛对人类的身体健康日益造成严重的危害, 如何去除室内甲醛成为有意义的研究课题。

在 K. Hensel 等人的文章中提到单独的针一孔放电就能使甲醛的去除达到 80% 以上。为了进一步研究介质阻挡放电等离子体技术对甲醛处理的效果及规律, 本文模拟室内甲醛污染的情况, 研究了多种因素对放电试验结果的影响。

1 实验部分

收稿日期: 2005-07-08

作者简介: 曹蓉 (1968-), 女, 江苏扬州人, 硕士, 副教授。

1.1 实验设备及流程

对主要的反应器本研究采用介质阻挡的方式, 电源采用自制 LC 振荡高频电路和 CQSB (JZ) 型单相试验变压器及高频变压包进行调压; 对电压的检测采用 TDS754D 型四频道数字示波器。实验装置流程图见图 1。

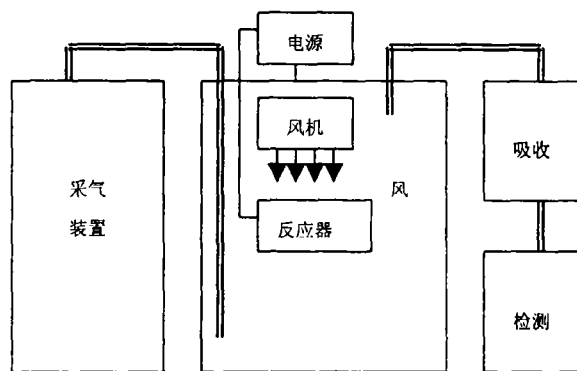


图 1 实验流程示意图

Fig. 1 The device of experiment

如图 1 所示, 实验中利用福尔马林溶液挥发产生甲醛气体, 并将其鼓入一密闭容器内, 通过通气时间的长短来控制甲醛的初始质量浓度; 反应器置于容器中, 反应器上方安装风机, 使产生的等离子体与密闭室内气体均匀混合; 每隔一定时间采样, 测量容器中甲醛的质量浓度。

1.2 实验方法

甲醛质量浓度的测定采用乙酰丙酮法^[6]。该方法是利用甲醛与乙酰丙酮及氨生成黄色化合物二乙酰基二氢卢剔啶后, 进行分光光度测定。此法最大的优点是不受乙醛的干扰, 而且方法简便、稳定性好、误差小。

甲醛去除率 = (放电处理前甲醛气体的质量浓度 - 放电处理后甲醛气体的质量浓度) / 放电处理前甲醛气体的质量浓度。

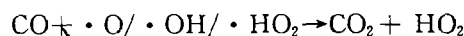
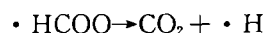
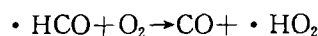
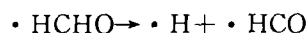
1.3 反应机理讨论

介质阻挡放电 (DBD) 是一种高压气体下的非平衡放电^[7]。放电过程中要产生自由基和准分子, 如 $\cdot\text{OH}$ 、 $\cdot\text{O}$ 、 $\cdot\text{HO}_2$ 等, 它们的化学性质非常活泼, 很容易和其它原子、分子或其它自由基起反应而形成稳定的原子或分子。

甲醛的分子在 DBD 下形成非平衡态等离子体经历以下过程: 由于受高能电子的碰撞、传能, 甲醛分子会形成激发态的甲醛分子 CH_2O^* ; 同时甲

醛分子中的 C-H 键比 C=C 键容易断裂, 因而形成 $\cdot\text{CHO}$ 自由基, 并发生一系列反应。

气体中的氧气在放电过程中能形成激发态的氧原子, 与 $\cdot\text{CHO}$ 自由基或其它原子、分子发生碰撞, 以生成各种含氧自由基, 这些自由基之间再进一步发生反应。体系中产生的 $\cdot\text{OH}$ 、 $\cdot\text{O}$ 、 $\cdot\text{HO}_2$ 自由基将参与一系列反应, 生成一系列烷氧自由基和不饱和醛类^[8], 但在本次实验中并未有检测得出此类物质, 可能因为这些都是中间产物, 存在的时间相当短, 而且和体系中的 O_2 反应发生分解, 因此实验中主要检测到产生 CO 、 CO_2 和水。反应生成 CO 、 CO_2 和水的机理如下:



2 实验结果与分析

2.1 电源电压对甲醛气体处理效果的影响

在甲醛气体的初始质量浓度为 268.54 mg/m^3 时, 甲醛气体的降解率与电源电压的关系见图 2。从图 2 中看出, 甲醛气体的降解率随电源电压的升高而有所提高, 当电压达到一定值时, 甲醛气体的降解率达到 85%, 电压继续升高则影响不大。从理论上可以推证出, 甲醛气体的降解率受电压继续升高的影响将开始减小, 因为电压的升高并不能无限地增加自由基, 其结果导致甲醛氧化的平衡。

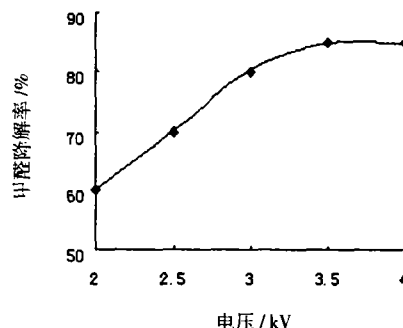


图 2 甲醛气体的去除率与电源电压的关系

Fig. 2 The curve of formaldehyde's degradation with applied voltage

2.2 ρ (甲醛) 对甲醛气体处理效果的影响

在甲醛气体的初始质量浓度为 241.70 mg/m^3 时, 采用 3.5 kV 的电源电压, 采取了放电 1 min

立即采样监测和甲醛气体的初始质量浓度为 268.54 mg/m^3 时, 采用同一电源电压, 放电 3 min 立即采样监测, 得到甲醛气体的降解率与质量浓度的关系如图 3 所示。从图 3 中可以看出, 随着质量浓度的减小, 降解率逐渐增大, 当质量浓度小于 50 mg/m^3 的时候, 降解率大于 85%。主要原因可能是当甲醛气体的质量浓度由于放电有所降低时, 继续放电产生的等离子体浓度几乎不变, 去除的甲醛相对来说增加, 导致整体降解率的上升。在图 3 中还可以看到, 在处理时间不变的情况下, 单次放电时间的增长, 降解率有一定的升高。可见增长放电时间对降解甲醛有一定好处, 但其反应机理尚不明确, 在此基础上还需进一步研究。

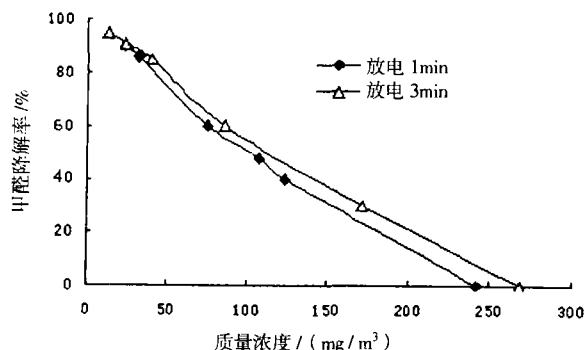


图 3 甲醛气体的降解率与放电时间的关系

Fig. 3 The curve of formaldehyde's degradation with time of discharge

2.3 采样间隔时间与甲醛气体去除率的关系

在实验条件下, 采用 3.5 kV 的电源电压, 采取放电 1 min 立即采样监测和放电 1 min 后间隔 10 min 采样监测, 结果表明间隔 10 min 采样所测得的甲醛气体的去除率要高于立即采样的那一组 (见图 4)。主要是因为放电处理甲醛的过程中, 有一个扩散、接触与混合的过程, 这个过程有可能持续很长一段时间。因此, 当耗能相同的情况下, 间断性的气体放电的去除率会有很大的提高, 尤其是在甲醛气体质量浓度较高时, 这种影响会更大, 因此确定放电时间间隔对甲醛的去除有很重要的作用。

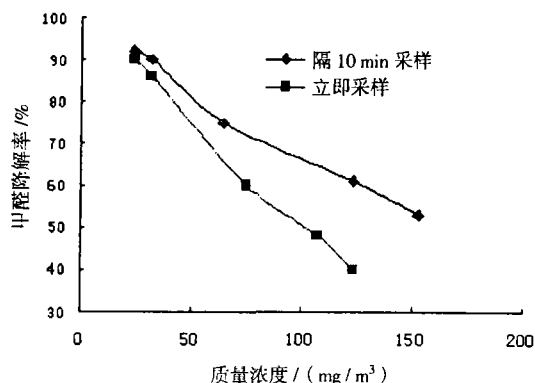


图 4 甲醛气体的降解率与采样间隔时间的关系

Fig. 4 The curve of formaldehyde's degradation with time of sample interval

3 结 论

本文在实验室模拟室内甲醛气体的污染条件下, 采用介质阻挡放电进行了甲醛气体处理的实验研究, 取得了一系列的实验数据, 得到如下结论: ①放电等离子体技术处理室内的甲醛气体是行之有效的一种方法, 从本次实验研究的数据可以发现, 无论在何种条件下的放电, 最终甲醛气体的降解率较好。②电压对放电处理室内甲醛气体是有影响的, 但并不是电压越高, 处理效果越好。就象前面所述的一样, 存在一个电压的最佳值。③等离子体处理甲醛有一个与扩散、接触与混合的过程, 因此, 在实际的情况下, 确定单次处理的时间, 放电的间隔在实际的工业设计中具有重要的意义。

参考文献:

- [1] 方光富. 室内甲醛污染及其防治 [J]. 池州师专学报, 2003, (6): 56.
- [2] Festy B, Petit-Coviaux F, Le Mcuttec Y. Current Data on Atmospheric Pollutions [J]. Ann Pharn Fr, 1991, 49 (1): 1-17.
- [3] 朱婷娟, 关联欣. 装饰材料所致室内空气污染对人体免疫系统的影响 [J]. 山西预防医学, 2001, (10): 134-135.
- [4] 白郁华. 室内环境质量调查 [M]. 北京: 北京大学出版社, 1998.
- [5] 张永福. 室内空气甲醛污染对人体健康影响及控制 [J]. 环境与健康杂志, 2001, (18): 41.
- [6] 杭世平. 空气中有害物质的检测方法 [M]. 第二版. 北京: 人民卫生出版社, 243-261.
- [7] 刘运年. 室内空气污染及其控制 [J]. 化学工程师, 2003, (2): 35.
- [8] Kamps R, Sommer S. Photooxidation of Exhaust Pollutants [J]. Chemosphere, 1993, 27 (11): 2 127-2 142.