



(12)发明专利申请

(10)申请公布号 CN 109364706 A

(43)申请公布日 2019.02.22

(21)申请号 201811525811.8

B01D 53/86(2006.01)

(22)申请日 2018.12.13

C02F 1/00(2006.01)

C02F 103/06(2006.01)

(71)申请人 浙江省环境保护科学设计研究院
地址 310007 浙江省杭州市西湖区天目山路109号

(72)发明人 管政 邵卫伟 吴建 陆建海
周荣 周敏捷

(74)专利代理机构 杭州天勤知识产权代理有限公司 33224

代理人 黄平英

(51)Int.Cl.

B01D 53/32(2006.01)

B01D 53/44(2006.01)

B01D 53/72(2006.01)

B01D 53/76(2006.01)

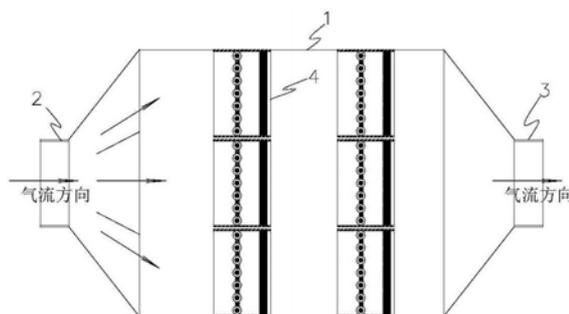
权利要求书1页 说明书6页 附图5页

(54)发明名称

双介质阻挡放电等离子体激励催化气相反应处理有机废气的装置及方法

(57)摘要

本发明公开了一种双介质阻挡放电等离子体激励催化气相反应处理有机废气的装置及方法,装置包括反应器筒体,所述反应器筒体一端带有气体进口、另一端带有气体出口;还包括设于所述反应器筒体内气路上的至少一个反应单元,所述反应单元包括沿气路依次设置的等离子体放电单元和催化剂单元;所述等离子体放电单元与催化剂单元之间的间距为5~10cm。将待处理有机废气依次经等离子体放电单元和催化剂单元处理或交替经等离子体放电单元和催化剂单元处理,净化后的废气排出。本发明解决现有单一等离子体废气治理技术和等离子体协同催化废气治理设备净化效率较低,能耗较大的问题。



1. 一种双介质阻挡放电等离子体激励催化气相反应处理有机废气的装置,包括反应器筒体,所述反应器筒体一端带有气体进口、另一端带有气体出口;其特征在于,还包括设于所述反应器筒体内气路上的至少一个反应单元,所述反应单元包括沿气路依次设置的等离子体放电单元和催化剂单元;所述等离子体放电单元与催化剂单元之间的间距为5~10cm。

2. 根据权利要求1所述装置,其特征在于,所述反应器筒体内气体沿筒体轴向流动;所述反应单元设置在与气流方向相垂直的截面上,若干个反应单元沿与气流方向相垂直的方向依次叠置。

3. 根据权利要求2所述装置,其特征在于,沿气体流向的至少两个径向截面上设置依次叠置的反应单元。

4. 根据权利要求1所述装置,其特征在于,所述等离子体放电单元为若干个沿垂直于气体流向方向依次叠置的管式电极组件或为若干个沿垂直于气体流向方向依次叠置的板式电极组件。

5. 根据权利要求4所述装置,其特征在于,;所述管式电极组件包括位于同一竖直平面内平行布置的接地电极芯棒和高压电极芯棒以及分别包覆在接地电极芯棒和高压电极芯棒外的阻挡介质管;单个管式电极组件内阻挡介质管之间区域以及相邻管式电极组件的阻挡介质管之间区域均为放电区域,放电区域供气体穿过;所有的接地电极芯棒并联后接地,所有的高压电极芯棒并联后外接高频高压电源。

6. 根据权利要求4所述装置,其特征在于,所述等离子体放电单元所述板式电极组件包括相平行且水平设置的高压电极板和接地电极板以及分别设置在高压电极板两侧和接地电极板两侧的阻挡介质层;单个板式电极组件的阻挡介质层之间以及相邻板式电极组件的阻挡介质层之间为放电区域,放电区域供气体穿过;所有的接地电极板并联后接地;所有的高压电极板并联后外接高频高压电源。

7. 根据权利要求1所述装置,其特征在于,所述催化剂单元采用负载型催化剂,分布于与等离子体放电单元相平行的截面上;所述催化剂单元与反应器筒体的内壁滑动安装。

8. 一种双介质阻挡放电等离子体激励催化气相反应处理有机废气的方法,其特征在于,包括如下步骤:

在同一反应器设备中,将待处理有机废气依次经等离子体放电单元和催化剂单元处理或交替经等离子体放电单元和催化剂单元处理,净化后的废气排出;所述等离子体放电单元和催化剂单元处理之间的间距为5~10cm。

9. 根据权利要求8所述方法,其特征在于,待处理有机废气经过等离子体放电单元和催化剂单元处理的流速为0.5~1.0m/s。

10. 根据权利要求8所述方法,其特征在于,所述待处理有机废气中的有机污染物为乙酸乙酯、甲苯或甲硫醇。

双介质阻挡放电等离子体激励催化气相反应处理有机废气的装置及方法

技术领域

[0001] 本发明涉及有机废气治理技术领域,具体涉及一种双介质阻挡放电等离子体激励催化气相反应处理有机废气的装置。

背景技术

[0002] 低温等离子体处理有机废气,在常温常压下即可利用高能电子以及活性物质破坏污染物分子,但存在很多问题,比如矿化率低、能量消耗大、存在NO_x和臭氧副产物。而这些年国内外研究人员将等离子体与催化剂协同工作,提高了处理效果和能量利用率,降低了副产物的产生。研究数据表明,一定能量密度下,针对不同污染物种类,采用不同的反应器类型及催化剂参数,较单独低温等离子体技术,低温等离子体协同催化技术的能量效率大幅度提高。

[0003] 例如,公开号为CN 105457488A的中国发明专利文献公开了一种催化剂联合等离子体脱除氮氧化物的装置及方法。烟气与氨气混合后通至反应器下部的的气体入口,反应器为双介质层结构,外介质管外侧包裹一层金属网作为外电极,内介质管内部设有金属内电极,内电极连接电源正极,外电极连接电源负极,形成等离子体发生器;反应器中部,外介质管和内介质管之间的腔内设有带通气孔的隔板,隔板上填加催化剂Fe-Cu/CNTs;混合气体在反应器内通过催化剂和等离子体的共同作用,联合脱硝。

[0004] 催化剂在等离子体技术中的作用主要体现为:当催化剂在等离子场中时,被称作一段式等离子体协同催化反应器,催化剂表面极化会增强放电,在表面形成场强加强区;催化剂会吸附挥发性有机物,这样就会延长协同降解作用的时间,有利于污染物去除;当催化剂在等离子场外部,被称作两段式等离子体协同催化反应器,该反应器中,废气分子在催化剂上反应,可以降低等离子体中高能活性粒子反应的活化能,同时放电模块放电参数稳定,系统工程化设计较为方便。

[0005] 尽管低温等离子体技术处理有机废气研究已经取得了显著进展,但该技术还存在能耗高、较低功耗下VOCs处理效率低等问题。为此,目前研究主要集中于等离子体协同催化方式,利用等离子体模块产生的高能活性物质,在催化剂中对VOCs物质进行深度氧化分解,以满足工程化应用所需求的安全、高效、经济要求。由于目前等离子体协同催化技术主要研究催化氧化过程,主要利用臭氧副产物的氧化作用,使用臭氧催化剂以构成臭氧协同催化反应,为达到废气治理的目标效率,系统能耗较高。

发明内容

[0006] 本发明提供一种双介质阻挡放电等离子体激励催化气相反应处理有机废气的装置,解决现有单一等离子体废气治理技术和等离子体协同催化废气治理设备净化效率较低,能耗较大的问题。

[0007] 一种双介质阻挡放电等离子体激励催化气相反应处理有机废气的装置,包括反应

器筒体,所述反应器筒体一端带有气体进口、另一端带有气体出口;还包括设于所述反应器筒体内气路上的至少一个反应单元,所述反应单元包括沿气路依次设置的等离子体放电单元和催化剂单元;所述等离子体放电单元与催化剂单元之间的间距为5~10cm。

[0008] 本发明采用高频电源驱动的双介质阻挡放电为等离子体源和两段式的催化剂设置方式,调整催化剂和等离子体放电区域的间距,调整后间距为5~10cm,使气体经放电后,停留极短的时间(0.1s)即到达催化剂,此时气体中的高能量物质能量衰减较少,将主要净化反应转移至催化剂单元上,与催化剂碰撞后,导致催化剂出现电荷缺陷,激励催化反应,使系统催化氧化反应效率较高,废气治理的目标效率能耗大幅下降。间距进一步优选为5~8cm;最优选为5cm。

[0009] 本发明研究发现,放电区域和催化剂之间距离越近,放电产生的活性中间体到达催化剂上的时间就越短,活性中间体能量衰减越小,催化剂表面电子温度就会越高,催化剂的电子温度一旦提高,则产生更多的自由电子-空穴对,其催化活性也就会提高,从而进一步催化降解有机物质,提高降解效率。

[0010] 本发明通过调整等离子体单元和催化剂单元之间的间距,控制放电后废气停留时间,使其在0.1s内到达催化剂表面,废气分子的电子温度衰减较少,催化剂接触废气,产生更多的自由电子-空穴对,激励催化剂产生更高的催化活性,从而进一步催化降解有机物,提高降解效率。

[0011] 优选地,所述反应器筒体内气体沿筒体轴向流动;所述反应单元设置在与气流方向相垂直的截面上,若干个反应单元沿与气流方向相垂直的方向依次叠置。

[0012] 进一步优选地,沿气体流向的至少两个径向截面上设置依次叠置的反应单元。待处理气体可交替进行放电处理和催化剂处理。

[0013] 优选地,所述等离子体放电单元为若干个沿垂直于气体流向方向依次叠置的管式电极组件或为若干个沿垂直于气体流向方向依次叠置的板式电极组件。

[0014] 等离子体放电单元的一种优选方式,所述管式电极组件包括位于同一竖直平面内平行布置的接地电极芯棒和高压电极芯棒以及分别包覆在接地电极芯棒和高压电极芯棒外的阻挡介质管;单个管式电极组件内阻挡介质管之间区域以及相邻管式电极组件的阻挡介质管之间区域均为放电区域,放电区域供气体穿过;所有的接地电极芯棒并联后接地,所有的高压电极芯棒并联后外接高频高压电源。

[0015] 进一步地,所有的电极芯棒中,接地电极芯棒和高压电极芯棒交替排布,位于两边侧的电极芯棒均为接地电极芯棒。所述电极芯为金属导体电极、铜电极、导电石墨等中的一种;介质层为石英材质。

[0016] 等离子体放电单元的另一种优选方式,所述等离子体放电单元所述板式电极组件包括相平行且水平设置的高压电极板和接地电极板以及分别设置在高压电极板两侧和接地电极板两侧的阻挡介质层;单个板式电极组件的阻挡介质层之间以及相邻板式电极组件的阻挡介质层之间为放电区域,放电区域供气体穿过;所有的接地电极板并联后接地;所有的高压电极板并联后外接高频高压电源。

[0017] 进一步地,所有的电极板中,接地电极板和高压电极板交替排布,位于两边侧的电极板均为接地电极板。高压电极板为金属板、铜板、导电石墨板等中的一种;阻挡介质层为石英板。

[0018] 优选地,所述催化剂单元采用负载型催化剂,分布于与等离子体放电单元相平行的截面上;所述催化剂单元与反应器筒体的内壁滑动安装。实现催化剂位置可调,便于根据实际工况调整催化剂单元与等离子体放电单元之间的间距。催化剂切割为与电极单元尺寸相适应的板状,分布在于等离子体放电单元相平行的截面上,板面与筒体的轴线相垂直。

[0019] 本发明还提供一种双介质阻挡放电等离子体激励催化气相反应处理有机废气的方法,优选采用本发明装置实现,包括如下步骤:

[0020] 在反应器设备中,将待处理有机废气依次经等离子体放电单元和催化剂单元处理或交替经等离子体放电单元和催化剂单元处理,净化后的废气排出;所述等离子体放电单元和催化剂单元处理之间的间距为5~10cm。

[0021] 所述等离子体放电单元采用高频高压电源,放电电压为15000V及以上、频率为10kHz及以上。15000V、10kHz以上重复频率的高压交流电源驱动近似平面放电效果。

[0022] 优选地,待处理有机废气经过等离子体放电单元和催化剂单元处理的流速为0.5~1.0m/s。

[0023] 优选地,所述待处理有机废气中的有机污染物为乙酸乙酯、甲苯或甲硫醇。

[0024] 本发明采用15000V、10kHz以上重复频率的高压交流电源驱动顺序排列的管式双介质阻挡放电反应器,使反应器得到全平面均匀放电的效果,废气经过反应器时可均匀地获取能量。电子作为轻粒子受高频交变电场驱动,被电场加速,部分电子与分子分离,此时废气分子电子温度较高,电子温度介于1~20eV,相当于10000~200000K(开尔文)。

[0025] 所述催化剂组件中所采用的催化剂为负载型催化剂。载体为使用泡沫金属、堇青石或其它类似结构材质作为催化剂载体,二氧化钛、二氧化锰或其它低温活性催化剂作为目标催化剂,负载在该载体上,催化剂本身为现有催化剂。

[0026] 本发明基于现有的等离子体协同催化技术,采用近似平面放电的低温等离子体驱动工艺,采用两段式催化剂设置方式,将平板型催化剂平行设置在放电平面后部距放电平面5~10cm处,空塔风速控制在0.5~1.0m/s,使催化剂保持高压放电安全保护距离的同时,废气放电后到达催化剂前的停留时间小于0.1s,利用经放电反应的废气携带的高能量物质接触催化剂,使催化剂电子结构出现缺陷,起到类似光催化剂的受紫外光辐射的效果,催化氧化有机物分子,使有机废气特征污染物(如乙酸乙酯、甲苯、甲硫醇等物质)降解率达到80~90%。

[0027] 与现有技术相比,本发明具有如下有益效果:

[0028] 该技术方案利用等离子体反应器产生的高能量,在极短时间内到达催化剂,活性中间体能量衰减越小,催化剂表面电子温度就会越高,催化剂的电子温度一旦提高,则产生更多的自由电子-空穴对,激励催化剂产生更高的催化活性,从而进一步催化降解有机物,提高降解效率。。在该反应体系下,废气治理系统可在2~5W/(m³/h废气),即每1000m³/h废气治理系统装机功率2~5kW条件下,达到乙酸乙酯、甲苯80~90%的降解率,垃圾渗滤液、污水站调节池等还原性恶臭废气95%以上去除率。

附图说明

[0029] 图1是本发明装置一种实施方式的结构示意图。

[0030] 图2是图1所示实施方式中反应器单元的结构示意图。

- [0031] 图3是图2所示反应器单元中单组电极结构示意图。
- [0032] 图4是图2所示反应器单元中排极结构示意图。
- [0033] 图5是本发明装置另一种实施方式的结构示意图。
- [0034] 图6图5所示实施方式中反应器单元的结构示意图。
- [0035] 图7是图6所示反应器单元中单组电极结构示意图。
- [0036] 图8是图6所示反应器单元中排极结构示意图。
- [0037] 图9是VOCs废气处理工艺流程图。
- [0038] 图10不同位置催化剂甲苯降解效率。
- [0039] 图11不同位置催化剂乙酸乙酯降解效率。
- [0040] 图1~图9中所示附图标记如下：
- | | | | |
|--------|-------------|----------|----------|
| [0041] | 1-反应器筒体 | 2-进气口 | 3-出气口 |
| [0042] | 4-反应单元 | | |
| [0043] | 41-等离子体放电单元 | 42-催化剂单元 | 43-外框体 |
| [0044] | 411-高压电极 | 412-接地电极 | 413-放电区域 |
| [0045] | 414-介质阻挡层 | | |

具体实施方式

[0046] 实施例1

[0047] 如图1~图4所示,一种两段式废气处理装置,包括反应器筒体1和设置在反应器筒体1内的若干个反应单元4,反应筒体沿轴向的一端带有进气口3、另一端带有出气口3,筒体内气体沿轴向流动。

[0048] 本实施例中反应单元4的结构如图2所示,包括外框体43、固定在外框体43内的等离子体放电单元41和催化剂单元42,等离子体放电单元41和催化剂单元42沿气体流向依次设置。

[0049] 等离子体放电单元41的结构如图4所示,包括沿垂直于气流方向依次排开的若干单组电极,每个单组电极(图3)包括一个高压电极411和一个接地电极412,本实施例中,高压电极为棒状的金属电极芯,接地电极为管状的石英介质管,金属电极芯由石英介质管的中心穿过。单组电极的石英介质管之间以及相邻单组电极的石英介质管之间为放电间隙413,气体由放电间隙穿过。所有的金属电极芯中,接地电极芯和高压电极芯交替排布,位于最底层和最顶层的电极芯均为接地电极,所有的接地电极并联后接地,所有的高压电极并联后接高频高压电源。高频高压电源使用15000V、10kHz以上频率高压电源,可设置为频率、功率可调。催化剂单元使用泡沫金属、堇青石或其它类似结构材质作为催化剂载体,切割出与上述放电反应器平面相当的,厚度约为20mm的平板,二氧化钛、二氧化锰或其它低温活性催化剂作为目标催化剂,负载在该载体上。催化剂布置在放电组件后方,催化剂板的板面与筒体轴线相垂直设置于放电组件的沿气体流向的后方,气体从催化剂中穿过,催化剂与放电组件之间的间距1为5~10cm,此间距是指放电单元最右侧只催化剂单元最左侧之间的间距,催化剂板先固定于催化剂框架上,催化剂框架可通过滑动机构与反应器筒体内壁安装,可沿筒体轴向滑动一定距离,方便调节与放电组件之间的间距。

[0050] 对于小型或实验测试设备,可采用单个反应单元,安装于筒体的进出口之间气路

截面上通入调制浓度、风量大小的废气,并在设备的进出风口设置同步采样装置,用于废气及处理后的尾气成分、浓度、去除率的检测、分析。

[0051] 对于大型设备中,可采用如图1所示的排布方式,沿气体流向设置多段反应段,每一段反应段上采用多个反应单元叠置,此处的叠置是指反应器筒体的径向截面上,反应单元由下至上依次叠置,同一反应段内多个反应单元并联,相邻反应段的反应单元串联,可对废气进行反复净化。

[0052] 通入调制浓度、风量大小的废气,并在设备的进出风口设置同步采样装置,用于废气及处理后的尾气成分、浓度、去除率的检测、分析。

[0053] 实施例2

[0054] 如图5~图8所示,与实施例1的区别在于采用的等离子体放电单元结构不同,本实施方式中,采用板状双介质阻挡放电,如图6~图8所示。

[0055] 本实施例中反应单元4的结构如图5所示,包括外框体43、固定在外框体43内的等离子体放电单元41和催化剂单元42,等离子体放电单元41和催化剂单元42沿气体流向依次设置。

[0056] 等离子体放电单元41的结构如图8所示,包括沿垂直于气流方向依次排开的电极单元,每个电极单元(图7)包括一个高压电极411和一个接地电极412,本实施例中,高压电极和接地电极均采用板状的金属电极,两金属板相互平行且均水平设置,高压电极和接地电极的两侧均分别覆盖阻挡介质层414,介质阻挡层材质为石英。每个电极单元内的介质阻挡层之间以及相邻电极单元的介质阻挡层之间均为放电间隙413,气体由放电间隙穿过。所有的金属电极板中,接地电极板和高压电极板交替排布,位于最底层和最顶层的电极板均为接地电极,所有的接地电极并联后接地,所有的高压电极并联后接高频高压电源。高频高压电源使用15000V、10kHz以上频率高压电源,可设置为频率、功率可调。

[0057] 应用例1 VOCs废气处理工艺

[0058] 采用上述实施例1或实施例2的装置及方法处理VOCs废气的流程如图9所示,处理污水站调节池恶臭气体时,催化剂距离放电组件的间距1在5~10cm内调整,比如可调整为5cm、6cm、8cm或10cm等。

[0059] 如下图10所示为功率密度为7.2J/L时(2W/m³/h废气),催化剂TiO₂与放电盘不同间距下,甲苯降解效率随甲苯进口浓度的变化。据图可知,间距5cm的降解效果优于间距10cm,说明催化剂距离放电区越近,其降解效果将会越好。原因在于:距离越近,放电产生的活性中间体到达催化剂上的时间就越短,活性中间体能量衰减越小,催化剂表面电子温度就会越高,催化剂的电子温度一旦提高,则产生更多的自由电子-空穴对,其催化活性也就会提高,从而进一步催化降解甲苯,提高降解效率。

[0060] 如下图11所示为功率密度为10.8J/L(3W/m³/h废气)时,催化剂TiO₂与放电盘不同间距下,乙酸乙酯降解效率随进口浓度的变化。据图可知,间距5cm的降解效果优于间距10cm,说明催化剂距离放电区越近,其降解效果将会越好。原因在于:距离越近,放电产生的活性中间体到达催化剂上的时间就越短,活性中间体能量衰减越小,催化剂表面电子温度就会越高,催化剂的电子温度一旦提高,则产生更多的自由电子-空穴对,其催化活性也就会提高,从而进一步催化降解乙酸乙酯,提高降解效率。

[0061] 从试验得到,对于甲苯,功率密度为7.2J/L时,折合单位废气处理功耗2W/(m³/h),

采用TiO₂催化剂,并将催化剂设置在距放电区域5cm的位置,对于浓度100mg/m³的低浓度甲苯废气,可得到85%以上的降解效率,特别在甲苯进口浓度>120mg/m³时,可得到90%以上的降解效率;对于乙酸乙酯,功率密度为10.8J/L时,折合单位废气处理功耗3W/(m³/h),采用TiO₂催化剂,并将催化剂设置在距放电区域5cm(废气停留时间0.05s)的位置,有望达到90%以上的降解效率。

[0062] 以上所述仅为本发明专利的具体实施案例,但本发明专利的技术特征并不局限于此,任何相关领域的技术人员在本发明的领域内,所作的变化或修饰皆涵盖在本发明的专利范围之内。

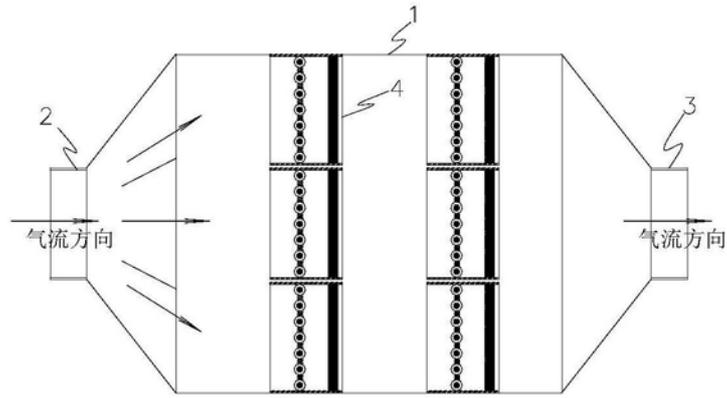


图1

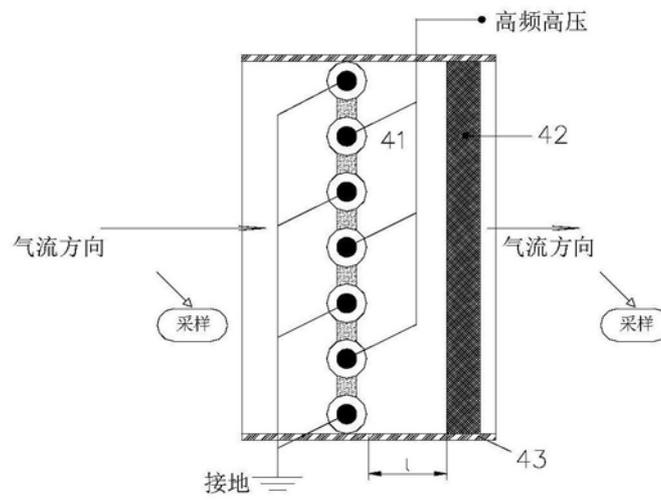


图2

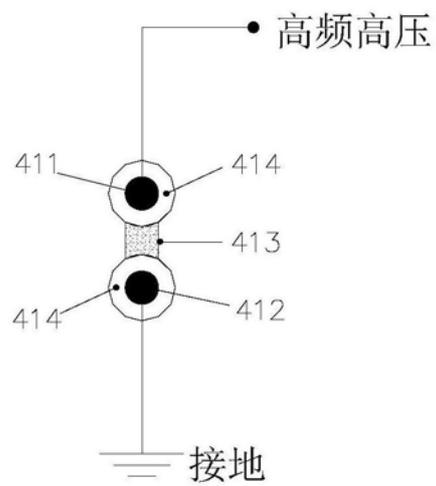


图3

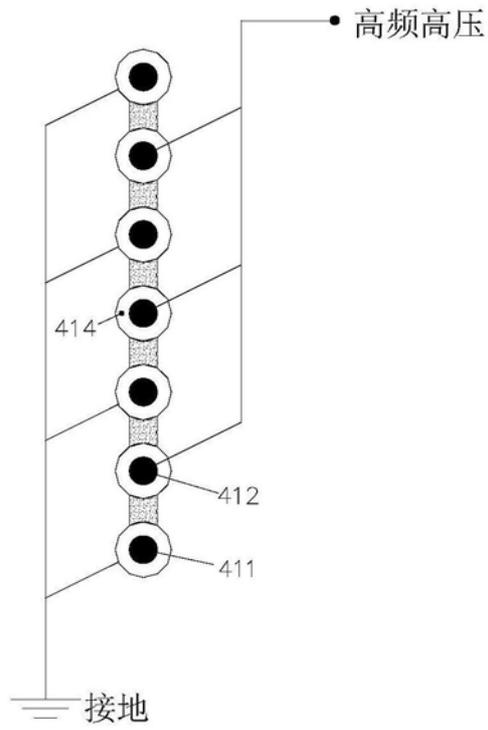


图4

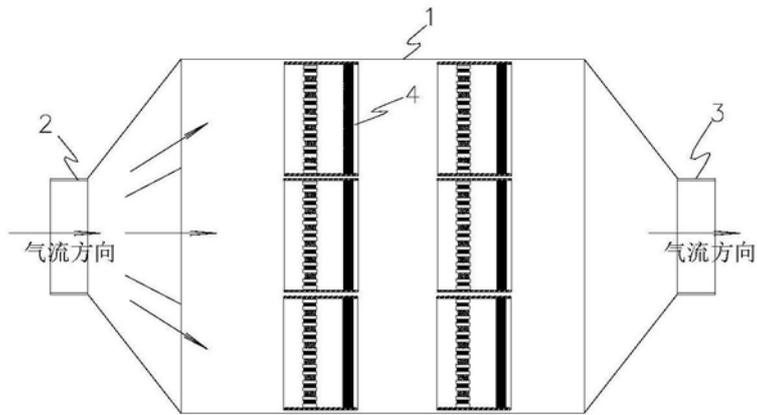


图5

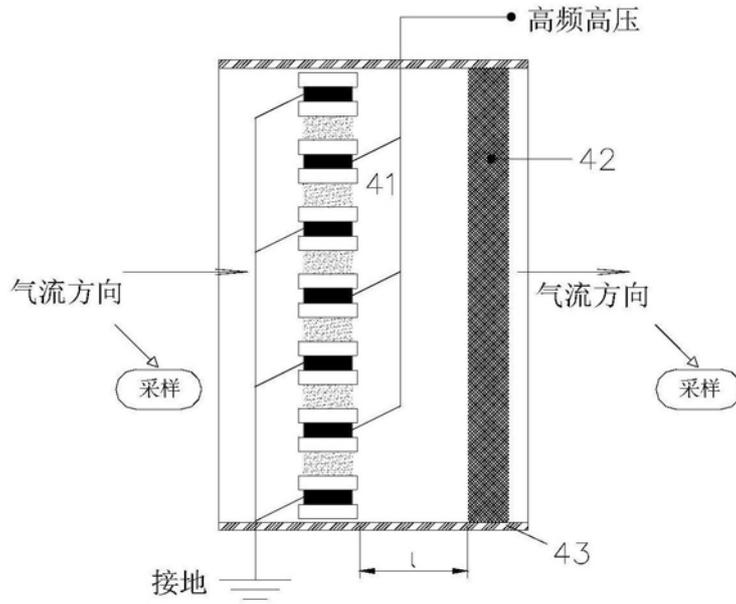


图6

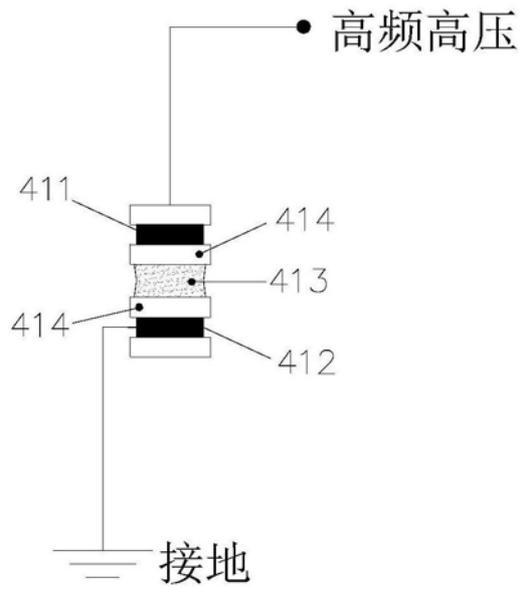


图7

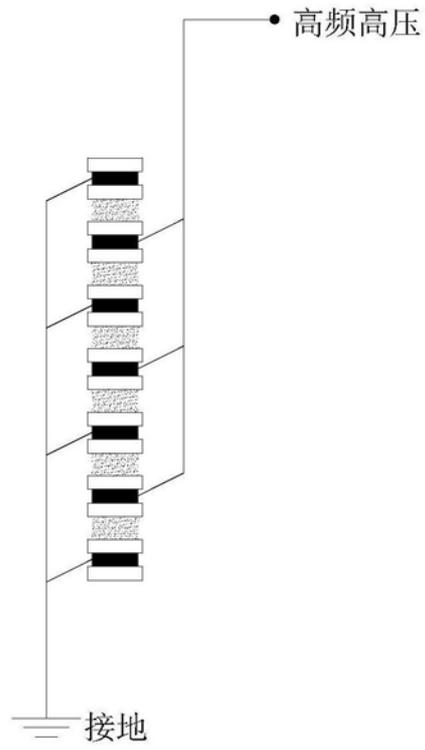


图8

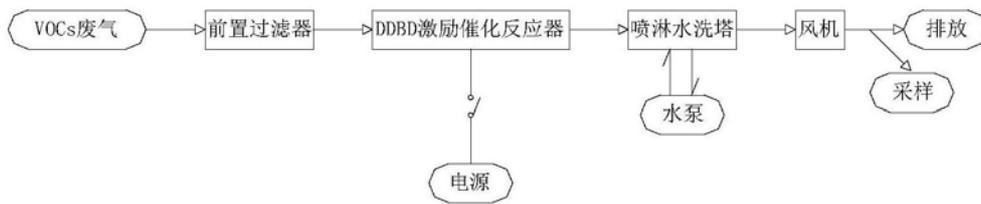


图9

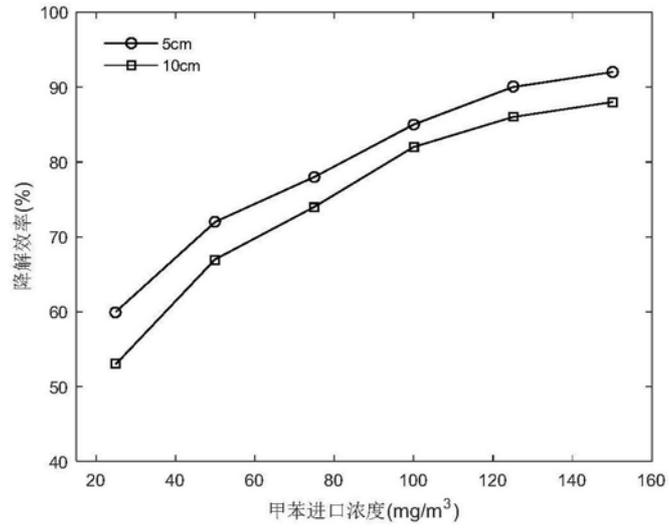


图10

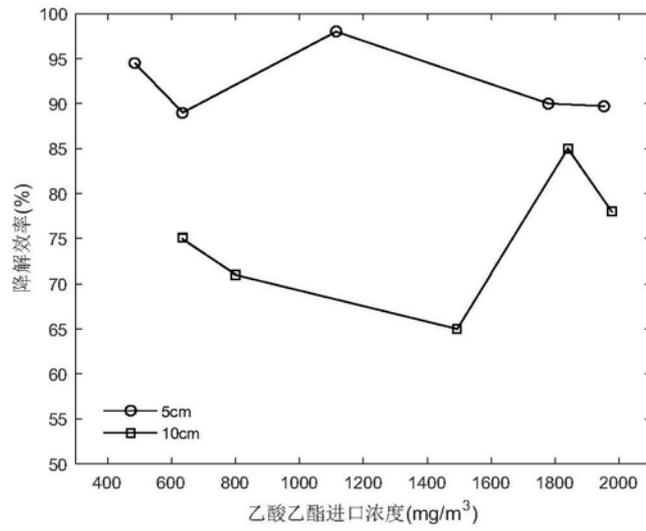


图11