

铁改性钙钛矿耦合等离子体降解二甲苯的研究

陈 淼, 潘 华*, 葛舒培, 方雅恬, 郑余凡

浙江树人大学, 生物与环境工程学院, 浙江 杭州
Email: 1677456225@qq.com, panhua.7@163.com

收稿日期: 2020年10月21日; 录用日期: 2020年11月3日; 发布日期: 2020年11月10日

摘 要

本文以有机废气中二甲苯为目标污染物, 采用低温等离子体技术耦合铁改性钙钛矿催化剂($\text{LaMn}_x\text{Fe}_{1-x}\text{O}_3$)降解二甲苯, 研究了低温等离子体放电过程中不同电压, 铁改性钙钛矿催化剂中不同铁掺杂比例对二甲苯处理效率、 CO_x 选择性和副产物 O_3 产生量的影响。结果表明: 在仅低温等离子体放电时, 放电电压在24~40 kV区间时, 提高放电电压对二甲苯的降解效率有明显的促进作用, 当放电电压达到40 kV时, 二甲苯的降解效率可达50.6%。当低温等离子体耦合铁改性钙钛矿催化剂时, 催化剂也可进一步提高二甲苯的去除效率, 催化剂中不同铁掺杂比例对二甲苯去除率有较大的影响, 其中 $\text{LaMn}_{0.9}\text{Fe}_{0.1}\text{O}_3$ 具有最强的催化活性, 其耦合低温等离子体去除二甲苯的效率在电压为40 kV和二甲苯进口浓度为455 ppm时, 二甲苯的降解效率可达84.1%, 同时也表现出较好的 CO_x 选择性(CO_2 和 CO 的选择性分别为78.0%和22.0%)和较高副产物 O_3 的抑制效率(66.9%)。

关键词

低温等离子体, 二甲苯, 铁改性钙钛矿, 选择性, 臭氧

Degradation of Xylene by Plasma Coupled with Perovskite Catalysts Modified by Iron

Miao Chen, Hua Pan*, Shupe Ge, Yatian Fang, Yufan Zheng

College of Biology and Environmental Engineering, Zhejiang Shuren University, Hangzhou Zhejiang
Email: 1677456225@qq.com, panhua.7@163.com

Received: Oct. 21st, 2020; accepted: Nov. 3rd, 2020; published: Nov. 10th, 2020

Abstract

Xylene as one of the important organic waste gas was used as the target pollutant in this paper. Non-thermal plasma technology coupled with iron-modified perovskite catalysts ($\text{LaMn}_x\text{Fe}_{1-x}\text{O}_3$) was

*通讯作者。

文章引用: 陈淼, 潘华, 葛舒培, 方雅恬, 郑余凡. 铁改性钙钛矿耦合等离子体降解二甲苯的研究[J]. 化学工程与技术, 2020, 10(6): 407-415. DOI: 10.12677/hjct.2020.106052

carried out to degrade xylene. The effects of input voltages, and iron doping ratios of perovskite catalysts on the efficiency of xylene treatment, CO_x selectivity, and ozone yield were investigated. The results show that increase of the discharge voltage can obviously promote the degradation efficiency of xylene, when the discharge voltage is in the range of 24 - 40 kV. When the discharge voltage is at 40 kV, the removal efficient of xylene can reach 50.6%. When non-thermal plasma is coupled with iron-modified perovskite catalyst, the catalyst can further improve the removal efficiency of xylene. The different iron doping ratio of the catalysts has great influence on the removal of xylene. $\text{LaMn}_{0.9}\text{Fe}_{0.1}\text{O}_3$ exhibited the strongest catalytic activity with removal efficiency of 84.1% for xylene, when non-thermal plasma coupled with $\text{LaMn}_{0.9}\text{Fe}_{0.1}\text{O}_3$ catalyst was operated at input voltage of 40 kV and inlet xylene concentration of 455 ppm. It also showed good selectivity of CO_x (78% and 22% for CO_2 and CO, respectively) and high inhibition efficiency of by-product O_3 (66.9%).

Keywords

Non-Thermal Plasma, Xylene, Iron Modified Perovskite, Selectivity, Ozone

Copyright © 2020 by author(s) and Hans Publishers Inc.

This work is licensed under the Creative Commons Attribution International License (CC BY 4.0).

<http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>



Open Access

1. 引言

挥发性有机物(VOCs)已经成为继 SO_2 和 NO_x 后目前最受关注的大气污染物,其主要包含烃类、氧烃类、含卤烃类、氮烃及硫烃类化合物,其不但会诱导产生光化学烟雾等大气污染现象,而且具有较强的致癌、致突变等生物毒性,对人体健康有显著的毒害作用。而其中二甲苯因在家居,电子化工行业中广泛存在而被格外关注[1]。在2017年10月27日,世界卫生组织国际癌症研究机构公布的致癌物清单中,二甲苯在3类致癌物清单中[2]。

传统的VOCs治理技术主要有:吸附法、吸收法、膜分离法、冷凝法、热力燃烧技术、催化燃烧技术、生物降解法等,但是由于大部分工业过程中产生的二甲苯浓度较低,以上传统的处理方法处理难以有效地去除二甲苯。同时上述传统技术因存在运行费用高,运行管理麻烦等缺点难以被广泛使用。而低温等离子体有机废气处理技术被认为是高效、节能和环境友好的低浓度有机废气处理技术[3]。

低温等离子体(non-thermal plasma, NTP)技术是一项利用气体因电离而产生的等离子体对污染物进行处理的技术。其处理VOCs原理可简述为空气在高压电场下因电离而产生高能电子,这些高能电子轰击反应器内气体,通过复杂的反应可以得到具有强氧化性的臭氧,氧自由基,羟基等,这些强氧化物能够氧化分解VOCs分子,最终氧化为无害的 H_2O 和 CO_2 。NTP处理的方法虽然具有快速引发,且在常温常压下就可以工作等优点。早在1992年Yamamoto等人[4]就将脉冲电晕放电反应器用于甲苯、二氯甲烷和三氯三氟乙烷的处理上,得出了在脉冲带电压22 kV、停留时间为7.9 s时,二氯甲烷的脱除率可达90%以上。Chang等人[5]将无声放电反应器应用于甲苯的去除,当放电电压升高或者气体湿度降低时甲苯的去除率会呈上升趋势;进口气体中甲苯浓度升高反而会使去除效率下降,但是甲苯的去除量是增加的,其解释为甲苯的降解主要是通过高能电子直接轰击甲苯分子与因背景气电离产生的强氧化性自由基氧化甲苯而实现的。虽然低温等离子体处理方法有其独特的优势,但是也存在许多缺点,所以低温等离子体与催化剂联用这一方法被提出。但其依然具有能耗高,处理效率较低等缺点[6]。为了弥补以上缺点,学者们进行了低温等离子体技术与催化剂联合处理VOCs的研究,并获得了较好的处理效果。

低温等离子体-催化技术是单一的低温等离子体技术的发展,此方法是在常规 NTP 处理中加入催化剂来提高 NTP 反应器的能量利用效率,明显改善常规低温等离子技术的能耗问题,同时也扩展了其应用场景。李党生等[7]就采用介质阻挡放电与催化剂(MnO_2 , TiO_2)联用降解空气中低浓度的苯,苯的降解效率得到较大的提高,且苯的转化率随输入能量密度的增加而增加,其降解产物主要为 CO_2 和 H_2O 。韩姚其等人[8]将低温等离子体联合催化剂(纳米 TiO_2)技术用于去除二甲苯,得到了当纳米 TiO_2 催化剂的负载量为 0.5 ml,放电电压为 45 kV 时有最高的催化效率(93.57%)。

近年来低温等离子体联合催化剂技术所研究的催化剂重点被放在了光催化剂(TiO_2)上,对于钙钛矿这种高效的新型催化剂鲜有研究,而本文则研究了通过介质阻挡放电耦合钙钛矿及铁改性钙钛矿催化剂对二甲苯进行降解处理,通过对反应产物的分析研究了改性催化剂中不同的铁掺杂比例对反应活性的影响,同时考察了不同的放电电压下对二甲苯去除效率的影响,利用了 CO_x 选择性和副产物 O_3 的抑制效率等指标分析了低温等离子体耦合催化剂降解二甲苯降解的影响。

2. 材料与方法

2.1. 主要试剂与仪器

试剂:二甲苯(纯度:98%,用途:模拟 VOCs),空气(纯度:99.99%,用途:载气), LaMnO_3 催化剂(自制备), $\text{LaMn}_{1-x}\text{Fe}_x\text{O}_3$ 催化剂(自制备)。仪器设备:DBD 反应器(NTP 放电),高压脉冲电源(供电),高压探头(测电压),质量流量控制器(控制流量),鼓泡瓶(配气),水浴锅(配气),缓冲罐(混合气体),气相色谱仪(测二甲苯浓度),色谱进样针(采样进样),甲烷转化炉(测 CO 和 CO_2 浓度),臭氧分析仪(测量 O_3 浓度)。

2.2. 催化剂的制备

粉末钙钛矿催化剂的共沉淀制备主要通过 3 个单元操作来实现即沉淀、洗涤、干燥/焙烧。其制备过程示意图可简单归纳为图 1。具体操作为,在去离子水中溶解符合化学计量比的 $\text{La}(\text{NO}_3)_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 、 $\text{Mn}(\text{NO}_3)_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ 。沉淀剂为 2:1 摩尔比的 NaOH 和 Na_2CO_3 ,称取 NaOH 和 Na_2CO_3 溶解于去离子水中,配成浓度为 0.5 mol/L 的碱液溶液。然后碱液以 5 mol/min 的速度开始滴加到硝酸盐的混合溶液中,并不断搅拌。滴定终点为 $\text{pH} = 10$,放慢滴加速度,控制 $\text{pH} = 10$ 保持 30 min 不变即可停止滴加。室温下老化 10 h 后抽滤,去离子水洗涤三次,之后用乙醇洗涤两次,110℃ 下干燥 10 h,所得样品程序升温,在 270℃ 停留 2 小时,然后在一定温度下焙烧 4 小时得到钙钛矿粉体。 $\text{LaMn}_{1-x}\text{Fe}_x\text{O}_3$ 的制作需要用 Fe 部分取代 LaMnO_3 催化剂 B 位的 Mn,在催化剂的制备过程中,加入不同量的硝酸铁,就可以得到不同的取代量($\text{LaMn}_{0.95}\text{Fe}_{0.05}\text{O}_3$, $\text{LaMn}_{0.9}\text{Fe}_{0.1}\text{O}_3$ 和 $\text{LaMn}_{0.8}\text{Fe}_{0.2}\text{O}_3$)。

2.3. 实验装置与流程

实验流程图如图 2 所示。载气为含 21% 氧气和 79% 氮气的模拟空气,不含水汽。由鼓泡装置产生二甲苯,其浓度由鼓泡气体流量和水浴温度控制,本实验中使用的二甲苯进口浓度被控制在 455 ppm 左右。等离子体由表面介质阻挡放电反应器产生。通过高压探头测量放电电压。实验中二甲苯浓度用气相色谱测定,为减小实验误差每组实验进行三次平行测试,色谱柱采用半极性毛细管柱,检测器为 FID 氢离子火焰检测器,气相色谱参数设定柱温 100℃,进样器 150℃,检测器 180℃。二甲苯的转化率通过式(1)计算得到。为了更好的反应催化剂对产物中 CO_x 选择性的影响引入了 C 转换率这一概念,通过甲烷转化炉测 CO 和 CO_2 浓度。C 转换率越高 CO_x 选择性也就越好,其计算公式为式(2)。通过臭氧分析仪测量主要副产物 O_3 浓度,考察该技术的 O_3 抑制效率。

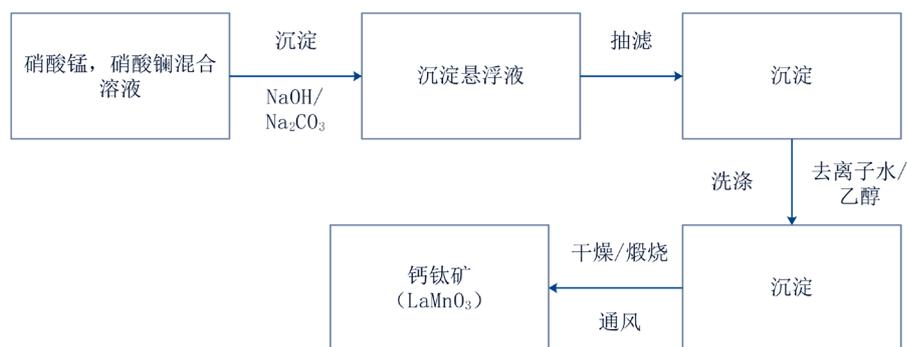


Figure 1. Schematic diagram of perovskite catalyst preparation

图 1. 钙钛矿催化剂制备示意图

$$\text{二甲苯转化率} = \frac{\text{进口二甲苯浓度} - \text{出口二甲苯浓度}}{\text{进口二甲苯浓度}} \quad (1)$$

$$\text{C转换率} = \frac{\text{出口CO}_2\text{浓度} + \text{出口CO浓度}}{8 \times (\text{进口二甲苯浓度} - \text{出口二甲苯浓度})} \quad (2)$$

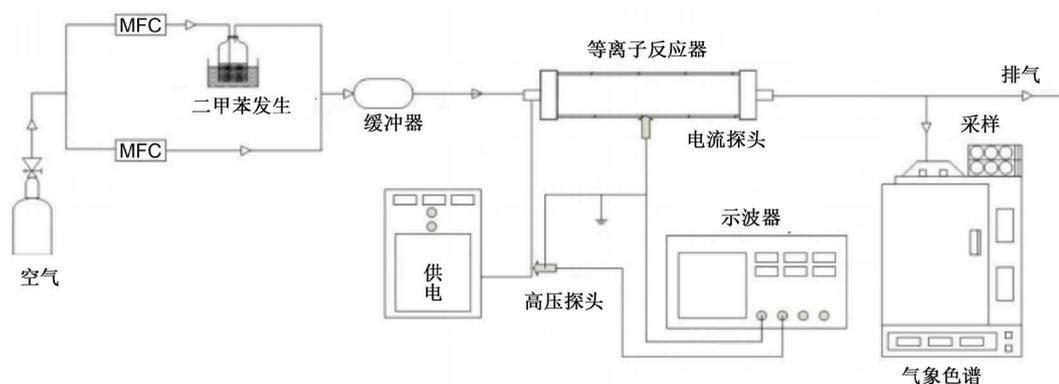


Figure 2. Flow chart of experimental setup

图 2. 实验装置流程图

3. 结果与讨论

3.1. 二甲苯去除率

图 3 是添加催化剂(三种改性催化剂与原催化剂)和无催化剂的情况下低温等离子体去除二甲苯中去除率与电压的关系图, 从图中我们可以很明显的看出无论是添加催化剂还是没有添加催化剂, 二甲苯的去除率均随着放电电压的增强而增加。这是由于低温等离子体在电场的加速作用下会形成了具有高活性的粒子, 而电压的增加加强了电场的强度, 含能量的电子以及电子的能量都被加强, 这就使被电子碰撞分解的气体分子增加, 高活性分子的增加也就加强了对二甲苯分子的降解反应[9]。

与单纯的电低温等离子体技术相比, 等离子体与催化剂联用可进一步提高二甲苯的去除率。相同的电压下, 未改性的钙钛矿催化剂(LaMnO_3)虽然可以提高二甲苯去除效率, 但无十分明显的促进作用。然而, 铁改性催化剂($\text{LaMn}_x\text{Fe}_{1-x}\text{O}_3$)对二甲苯的去除效率提高有显著的促进作用。由此可见, 钙钛矿催化剂中 Fe 取代了部分 Mn 后, 可提高催化剂的活性。当 Fe 的取代量为 0.1 时, 在放电电压为 40 kV 时, 二甲苯的降解效率可达 84.1%。继续增大 Fe 的取代量, 二甲苯转化效率有所下降, 由此我们可得 Fe 的 B 位

取代并不是取代量越高就越能提高催化剂的催化性能,而是存在一个最佳的取代量。这是由于 Fe 离子与 Mn 离子在形成晶胞时存在一定的差异。虽然 Fe 与 Mn 离子在离子半径及电负性方面差异很小,但由于 Mn 易形成体心晶胞,而 Fe 易形成面心晶胞,两类晶胞中各种缺陷本身存在差异。现将 Fe 掺入到含 Mn 的钙钛矿型催化剂,将导致催化剂存在更多的晶格缺陷,有助于提高氧化气体成分与二甲苯接触的可能性,从而提高催化剂的性能。而当 Fe 的掺入量过高时可能导致催化剂晶格缺陷偏向 Fe 的晶格缺陷,而 Fe 的晶格缺陷在催化处理二甲苯时效果没有 Mn 强[10]。以上原因也就解释了为什么在同一电压下,三种 Fe 掺杂催化剂对二甲苯转化率依次为: $\text{LaMn}_{0.9}\text{Fe}_{0.1}\text{O}_3 > \text{LaMn}_{0.8}\text{Fe}_{0.2}\text{O}_3 > \text{LaMn}_{0.95}\text{Fe}_{0.05}\text{O}_3$ 这一现象。

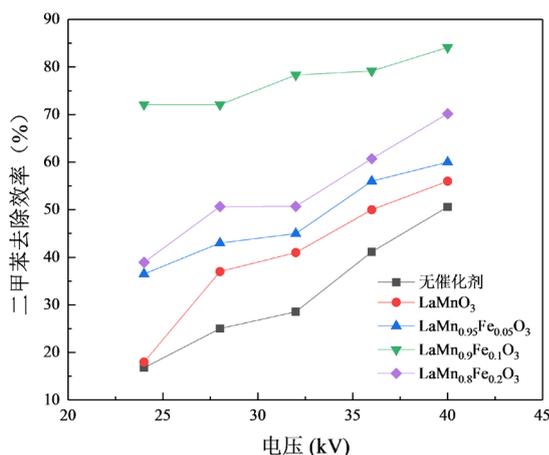


Figure 3. The effect of discharge voltage on xylene conversion in non-thermal plasma coupled with catalysts

图 3. 不同放电电压下催化剂对等离子体耦合催化系统降解二甲苯的影响

3.2. CO_x 选择性

二甲苯在放电等离子体和催化剂联合作用下,生成的产物主要包括:① 苯环未断裂,生成苯甲酸、苯甲醛、苯甲醇、苯酚、苯、甲烷;② 苯环断裂生成 CO_2 、 CO 、 H_2O 以及丙烯、1,3-丁二烯等[11]。其中 CO_x 是表征有机污染物降解程度的重要指标。图 4 为四种催化剂的 C 转换率与放电电压之间的关系图,从图 4 中我们可以看出在相同的放电电压下,四种催化剂的 CO_x 选择性遵循以下顺序: $\text{LaMn}_{0.8}\text{Fe}_{0.2}\text{O}_3 > \text{LaMn}_{0.9}\text{Fe}_{0.1}\text{O}_3 > \text{LaMn}_{0.95}\text{Fe}_{0.05}\text{O}_3 > \text{LaMnO}_3$ 。

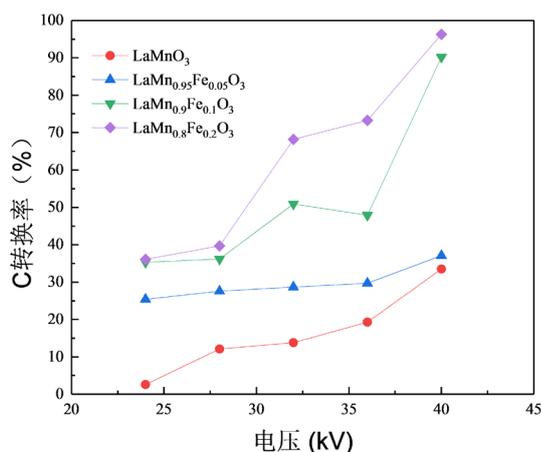


Figure 4. Effect of iron doping on C conversion at different discharge voltages

图 4. 不同放电电压下铁掺杂量对 C 转换率的影响

图 5 进一步分析了在放电电压为 40 kV 时, 钙钛矿催化剂中铁掺杂量对 C 转化率的影响。通过图 5 我们可以看出, 在放电电压为 40 kV 时, $\text{LaMn}_{0.8}\text{Fe}_{0.2}\text{O}_3$ 、 $\text{LaMn}_{0.9}\text{Fe}_{0.1}\text{O}_3$ 、 $\text{LaMn}_{0.95}\text{Fe}_{0.05}\text{O}_3$ 、 LaMnO_3 催化剂上的 C 转化率分别为 96.3%、90.2%、37.1%、33.5%。说明 Fe 掺杂后可以明显的增强 C 转换率。在铁掺杂量为 0.05 到 0.2 范围内, Fe 掺杂量越大 C 转换率就越高, 当 Fe 掺杂量从 0.05 增加到 0.1 时, C 转化率有明显的增加, 提高了 53.1%, 而当 Fe 掺杂量从 0.1 增加到 0.2 时, C 转化率略有增加, 从 90.2% 提高到 96.3%, 仅增加 6.1%。这说明了 Fe 的掺杂量在对 C 转换率影响中也存在一个适中量。

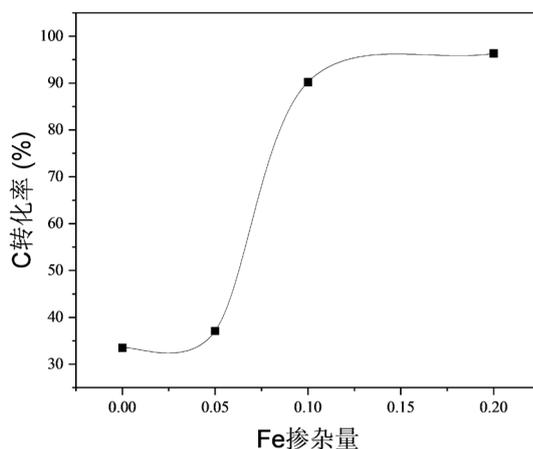


Figure 5. Effect of iron doping on C conversion at 40 kV
图 5. 40 kV 放电电压下 Fe 掺杂量对 C 转化率的影响

图 6 表示不同放电电压下出口 CO_2 浓度, 由图可以看出当放电电压为 40 kV 时未改性钙钛矿催化剂与三种改性催化剂($\text{LaMn}_{0.95}\text{Fe}_{0.05}\text{O}_3$, $\text{LaMn}_{0.9}\text{Fe}_{0.1}\text{O}_3$, $\text{LaMn}_{0.8}\text{Fe}_{0.2}\text{O}_3$) 的出口 CO_2 浓度分别为 356 ppm, 389 ppm, 502 ppm, 789 ppm, 可以看出总体上 Fe 掺杂量越多 CO_2 出口浓度也就越大, 而随着电压的增加出口的二氧化碳的浓度也会增加。

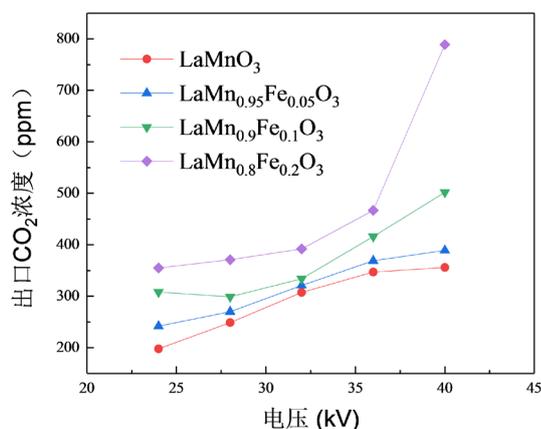


Figure 6. Effect of Fe doping on outlet CO_2 concentration at different discharge voltages
图 6. 不同放电电压下 Fe 掺杂量对出口 CO_2 浓度的影响

考虑到单纯的出口 CO_2 浓度并不能准确的表现出各催化剂的 CO_2 选择性, 引入了出口 CO_2 浓度与 CO_x 浓度的比值这一指标, 并绘制了图 7 来表示不同放电电压下四种催化剂的 CO_2 选择性。从图 7 中可以看到四种催化剂的 CO_2 选择性依次为: $\text{LaMn}_{0.8}\text{Fe}_{0.2}\text{O}_3 > \text{LaMn}_{0.9}\text{Fe}_{0.1}\text{O}_3 > \text{LaMn}_{0.95}\text{Fe}_{0.05}\text{O}_3 > \text{LaMnO}_3$,

表明随着催化剂中 Fe 掺杂量的增加, 出口 CO_x 中 CO_2 的占比也随着增高, 也就是说铁掺杂量增加有助于二甲苯的完全矿化。同时从图中可见, CO_2 选择性与放电电压并没有明显的相关性。

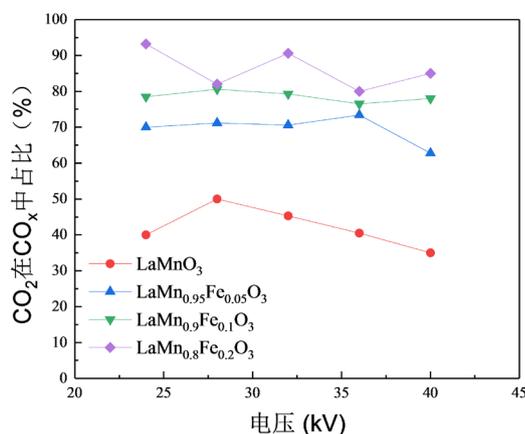


Figure 7. Proportion of CO_2 in CO_x at different discharge voltages

图 7. 不同放电电压下 CO_x 中 CO_2 的占比

3.3. 副产物 O_3 的控制

O_3 既是二甲苯等 VOCs 降解反应中的氧化剂, 又是空气放电产生的有害副产物之一[12]。图 8 和图 9 分别显示了不同放电电压下不同催化剂的 O_3 出口浓度与抑制效率。总体上来说随着放电电压的增加, O_3 出口浓度也会增加。在没有催化剂的反应体系中, O_3 出口浓度会大幅度增加, 在放电电压为 40 kV 时, O_3 出口浓度可高达 154 ppm。这主要是由于电场的加强导致空气分子被电离量增加进而导致 O_3 等高能粒子出现, 当没有催化剂时, 无法有效利用 O_3 氧化二甲苯, 从而导致较高 O_3 出口浓度。在添加 LaMnO_3 催化剂后 O_3 出口浓度有明显的降低, 结合添加催化剂后的二甲苯处理效率大幅增加说明了催化剂可以有效的促进 O_3 参与氧化二甲苯。而随着 Fe 掺杂量的增加此促进作用会进一步增强。在放电电压为 40 kV 时, 在耦合体系中加入 $\text{LaMn}_{0.8}\text{Fe}_{0.2}\text{O}_3$ 催化剂, O_3 出口浓度由 154 ppm 显著下降到 35 ppm, O_3 抑制效率高达 77.7%。从图 9 中可以看出臭氧抑制性能和放电电压没有很明显的相关性, 所以我们将同一催化剂在不同电压下的抑制效率取平均值来代替其臭氧抑制效率, 分别为 $\text{LaMn}_{0.95}\text{Fe}_{0.05}\text{O}_3$ (64.7%), $\text{LaMn}_{0.9}\text{Fe}_{0.1}\text{O}_3$ (71.4%), $\text{LaMn}_{0.8}\text{Fe}_{0.2}\text{O}_3$ (74.5%), LaMnFeO_3 (55.3%)。

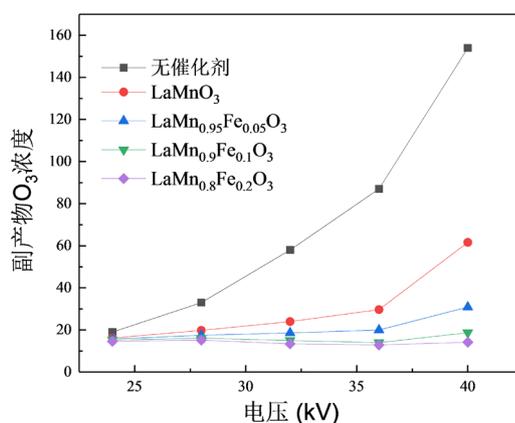


Figure 8. Emission concentrations of by-products O_3 NTP-catalytic systems at different discharge voltages

图 8. 不同放电电压下 NTP-催化系统副产物 O_3 的排放浓度

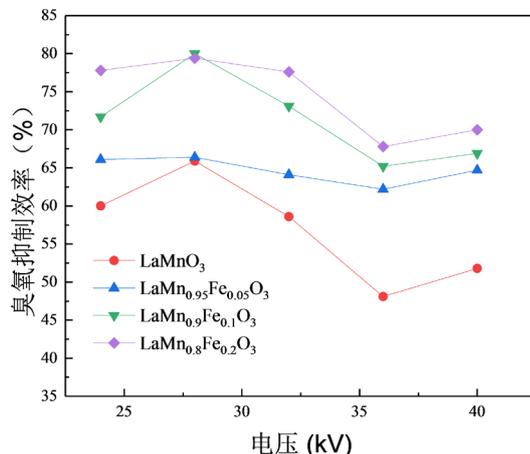


Figure 9. Effect of Fe doping amount on O₃ inhibition efficiency at different discharge voltages
图 9. 不同放电电压下 Fe 掺杂量对 O₃ 抑制效率的影响

4. 结论

在入口二甲苯浓度为 455 ppm, 低温等离子体放电的实验条件下, 测试不同电压下不同钙钛矿催化剂的二甲苯降解性能, 可以得到以下结论:

1) 低温放电等离子体法处理二甲苯, 提高电压可以有效提高二甲苯去除率。添加改性钙钛矿催化剂可大幅提高二甲苯去除率, 当 Fe 的取代量为 0.1, 放电电压为 40 kV 时, 二甲苯的去除率可达 84.1%。

2) 对于 CO_x 选择性, Fe 的掺杂量越高选择性也就越好, 也就越可以使二甲苯降解产物向 CO_x 方向生成, 当 Fe 掺杂量为 0.1 时, CO_x 选择性已达 90%。

对于副产物 O₃ 的控制, 较高的 Fe 的掺杂量有助于提高 O₃ 的抑制效率, 当 Fe 的掺杂量为 0.2 时, O₃ 抑制效率最高, 为 74.5%。电压升高会增加出口 O₃ 浓度, 但是并不会增加催化剂对于 O₃ 的抑制效率。

基金项目

浙江省自然科学基金(LY19E080023); 国家级大学生创新创业训练计划项目(202011842010)。

参考文献

- [1] 杨怀元, 李胜利. 催化剂对放电等离子体处理二甲苯效果的影响研究[J]. 工业安全与环保, 2011, 37(6): 32-33.
- [2] 张嘉妮, 陈小方, 梁小明, 柯云婷, 范丽雅, 叶代启. “十三五”挥发性有机物总量控制情景分析[J]. 环境科学, 2018, 39(8): 3544-3551.
- [3] 汪涵, 郭桂悦, 周玉莹, 梁忠越. 挥发性有机废气治理技术的现状与进展[J]. 化工进展, 2009, 28(10): 1833-1841.
- [4] Yamamoto, T., Ramanathan, K., Lawless, P.A., et al. (1992) Control of Volatile Organic Compounds by an AC Energized Ferroelectric Pellet Reactor and a Pulsed Corona Reactor. *IEEE Transactions on Industry Applications*, **28**, 528-534. <https://doi.org/10.1109/28.137430>
- [5] Chang, M.B. and Chang, C. (1997) Destruction and Removal of Toluene and MEK from Gas Streams with Silent Discharge Plasmas. *AIChE Journal*, **43**, 1325-1330. <https://doi.org/10.1002/aic.690430521>
- [6] 李明哲, 黄正宏, 康飞宇. 挥发性有机物的控制技术进展[J]. 化学工业与工程, 2015, 32(3): 2-9.
- [7] 李党生, 冯涛, 姚水良. 低温等离子体与催化剂联用降解空气中低浓度的苯[J]. 环境科学与技术, 2007, 30(10): 65-67.
- [8] 韩姚其, 邵波. 低温等离子体联合催化降解有机废气二甲苯[J]. 浙江树人大学学报(自然科学版), 2014, 14(4): 24-27
- [9] 魏长宽, 朱天乐, 樊星, 等. 非热等离子体与催化相结合去除气相低浓度苯系物[J]. 环境科学学报, 2008, 28(4):

676-680.

- [10] 卢晗锋. 低温催化燃烧 VOCs 的复合氧化物催化剂活性、稳定性及整体化研究[D]: [博士学位论文]. 杭州: 浙江工业大学, 2009.
- [11] 赵雷, 周中平. 低温等离子体技术净化空气中的甲苯[J]. 环境科学研究, 2006, 19(4): 70-73.
- [12] 高月华. 离子体催化脱除室内空气中甲醛及其副产物的研究[D]: [硕士学位论文]. 大连: 大连理工大学, 2008.