

# 介质阻挡放电低温等离子体降解甲基红模拟染料废水的研究

李海霞<sup>1</sup> 周玉洁<sup>1</sup> 吴莹<sup>1</sup> 魏驰原<sup>1</sup> 解静静<sup>1</sup> 史培鑫<sup>1</sup> 周保昌<sup>2</sup>

<sup>1</sup>(南京工业大学浦江学院 南京 211134)

<sup>2</sup>(南京瑞洁特膜分离科技有限公司 南京 210008)

**摘要** 利用介质阻挡放电低温等离子体技术对甲基红模拟染料废水进行降解研究,降解反应在同心管式反应器中进行。考察了放电功率、溶液初始浓度、初始 pH、处理时间、气氛条件等单因素的改变对甲基红降解效果的影响,通过测定甲基红 521 nm 处的吸光度值、溶液 pH 及颜色变化,分析了甲基红降解历程,并推测了降解机理。研究表明:在本实验中,溶液在 115 W 低放电功率下的处理效果更好,由于处理效果受温度、湿度等影响,放电功率与处理效果间并不呈正相关关系;溶液的初始浓度越高,达到同样的降解效果所需的时间越长;相同条件下,模拟废水的初始 pH 越低,其处理后的降解效果越好,即酸性条件下更有利于甲基红断键降解。

**关键词** 低温等离子体, 介质阻挡放电, 染料废水, 甲基红, 降解

**中图分类号** R818.74, R852.7

**DOI:** 10.11889/j.1000-3436.2022-0072

**引用该文:**

李海霞,周玉洁,吴莹,等. 介质阻挡放电低温等离子体降解甲基红模拟染料废水的研究[J]. 辐射研究与辐射工艺学报, 2023, 41(4): 040205. DOI: 10.11889/j.1000-3436.2022-0072.

LI Haixia, ZHOU Yujie, WU Ying, *et al.* Study on degradation of methyl red dye wastewater by dielectric barrier discharge low temperature plasma[J]. Journal of Radiation Research and Radiation Processing, 2023, 41(4): 040205. DOI: 10.11889/j.1000-3436.2022-0072.



## Study on degradation of methyl red dye wastewater by dielectric barrier discharge low temperature plasma

LI Haixia<sup>1</sup> ZHOU Yujie<sup>1</sup> WU Ying<sup>1</sup> WEI Chiyuan<sup>1</sup> XIE Jingjing<sup>1</sup> SHI Peixin<sup>1</sup> ZHOU Baochang<sup>2</sup>

<sup>1</sup>(Nanjing Tech University Pujiang Institute, Nanjing 211134, China)

<sup>2</sup>(Nanjing RGE Membrane Separation Technology Co., Ltd., Nanjing 210008, China)

**ABSTRACT** The degradation of simulated methyl red dye wastewater in a concentric tubular reactor using dielectric barrier discharge low-temperature plasma technology was studied. The effects of discharge power, initial solution concentration, initial pH, treatment time, and atmospheric conditions on the degradation efficiency were studied. The color, pH, and absorbance of methyl red at 521 nm were used to detect the dye concentration, analyze

第一作者: 李海霞,女,1983年4月出生,2013年于中国科学院上海应用物理研究所获博士学位,现为南京工业大学浦江学院土木与建筑工程学院副教授

通信作者: 周保昌,硕士,高级工程师, E-mail: 442060704@qq.com

收稿日期: 初稿 2022-08-13; 修回 2022-11-10

First author: LI Haixia (female) was born in April 1983, and obtained her doctoral degree from Shanghai Institute of Applied Physics, Chinese Academy of Science in 2013. Now she works at Nanjing Tech University Pujiang Institute, College of Civil and Architectural Engineering as an associate professor

Corresponding author: ZHOU Baochang, master's degree, senior engineer, E-mail: 442060704@qq.com

Received 13 August 2022; accepted 10 November 2022

the degradation process, and propose a degradation mechanism for methyl red. The results indicate that (1) in this experiment, the discharge power affects the degradation of methyl red but is limited by temperature and humidity, such that there is no positive correlation between the discharge power and the treatment effect. Therefore, the treatment of the solution at a low discharge power of 115 W is preferable; (2) the higher the initial concentration, the longer the time needed to achieve the same degradation rate as that achieved at lower concentrations; and (3) under the same conditions, a low pH is conducive to the degradation of methyl red, and acidic conditions are conducive to the bond breaking of methyl red.

**KEYWORDS** Low temperature plasma, Dielectric barrier discharge, Dye wastewater, Methyl red, Degradation

**CLC** R818.74, R852.7

随着社会和科技的发展,为满足人们日益丰富的审美需求,涌现出许多难降解、难光解且难氧化的新型化学染料,传统水处理技术无法对其所含结构复杂的大分子化合物进行处理,若未经处理或处理不达标排放不仅会导致环境污染,还会在食物链中累积,最终对人类健康造成不可逆转的危害。染料废水主要来源于印染工业和染料的生产,可分为两个部分:一部分来自原料自身所带的污染物;另一部分是生产中所用的助剂等。印染废水的主要特点:(1)具有一定的毒性,部分印染废水具有较强毒性,且较难降解;(2)色度高;(3)可生化性较差,化学需氧量(Chemical oxygen demand, COD)较高;(4)pH波动较大;(5)废水中无机盐含量较高。直接排放印染废水会给环境和人类健康造成较大不利影响。对于染料废水的处理,其主要任务是色度的去除和有机物的降解。现阶段,针对色度去除主要有两种处理方式:一是吸附或富集发色物质,将其分离除去;另一种方式是破坏发色基团或发色物质,以达到脱色和降解有机物的目的。常用工艺包含生化法、物化法、化学法、高级氧化法以及几种工艺联合处理。低温等离子体技术是一种集高能电子轰击、臭氧氧化、紫外光、冲击波及 $\cdot\text{O}$ ,  $\cdot\text{OH}$ ,  $\cdot\text{H}$ 等自由基于一体的高级氧化技术<sup>[1]</sup>。高能电子会无选择性地轰击水中污染物,致使污染物分解,转化为水分子与小分子物质,因而,该技术对新型染料废水的降解具有良好的处理效果。等离子体技术发展至今已有近百年历史,期间国内外各学者以各种方式产生低温等离子体并对各种染料进行处理,如高压脉冲放电等离子体技术<sup>[2]</sup>、辉光放电等离子体技术<sup>[3]</sup>、介质阻挡放电等离子体技术<sup>[4]</sup>和滑动电弧放电等离子体技术<sup>[5]</sup>,亦有增加催化剂<sup>[6]</sup>或反应器外增设磁场<sup>[7]</sup>等操作改变低温等离子反应过程的相应参数。本研究以甲基红作

为处理对象,采用同心管式介质阻挡放电低温等离子体反应器降解处理甲基红模拟染料废水。

## 1 实验装置、仪器与材料

### 1.1 实验装置

本实验采用石英玻璃材质的同心管式反应器(图1),外管外直径25 mm,内直径20 mm,管壁厚2.5 mm;内管外直径8 mm,内直径5.5 mm,内外管间空气间隙为6 mm,同心管由外部铁架固定,铁架上下两铁板用于导电,内管处金属棒与外管处金属网为反应器的两个电极,金属网包裹部分为反应器的放电区间,长为200 mm。



图1 同心管式介质阻挡放电低温等离子体反应器  
Fig.1 Concentric tubular dielectric barrier discharge low-temperature plasma reactor

石英玻璃作为介质阻隔电极与等离子体的直接接触,防止反应过程中产生的气体与等离子体腐蚀和损坏电极<sup>[8]</sup>。反应器通过介质阻挡放电产生低温等离子体,其在放电过程中会产生高能电子、臭氧、紫外光及 $\cdot\text{O}$ ,  $\cdot\text{OH}$ ,  $\cdot\text{H}$ 等自由基,污染物经过高能电子的轰击发生断键,并与自由

基结合生成安全性更高的小分子物质。放电过程中反应器放电区间段的气相内会产生许多微放电丝，其在时间与空间上随机分布，这些放电细丝实际上是一些较为均匀的圆柱形微放电通道，每一个这样的放电通道均代表发生了一次放电击穿<sup>[9]</sup>。实验过程中利用蠕动泵将待处理模拟废水溶液通入反应器内，电源采用由南京苏曼等离子体科技有限公司生产的CTO-2000K/P脉冲低温等离子体实验电源，可调节范围为0~200 W，脉冲频率为200 Hz。

## 1.2 仪器与材料

**分析检测仪器：**采用UV754N型号的紫外可见分光光度计对反应过程中所取的样液进行吸光度检测，采用PHS-3C pH计对样液进行pH检测。

**溶液配置仪器：**采用EX2242H型号的分析天平对甲基红粉末进行称量，采用JP-010T超声波清洗机对甲基红粉末进行辅助溶解，采用Plus-E3 TS实验室超纯水系统所制纯水进行溶液配制。

在改变溶液气氛条件后采用HQ30D溶解氧仪对其进行检测。

**改变溶液pH所使用的材料：**pH为4.00的邻苯二甲酸氢钾缓冲溶剂包，pH为6.86的磷酸盐缓冲溶剂包，pH为9.18的四硼酸钠缓冲溶剂包。

## 2 方法

### 2.1 配置甲基红溶液

偶氮染料甲基红微溶于水，因此以1:9的乙醇水溶液制备溶液（无水乙醇：水=1:9），将2.5 mg充分研磨后的甲基红粉末溶于50 mL无水乙醇中，并利用超声清洗机对其进行3 min振荡辅助溶解，待甲基红固体溶解完全后使用500 mL的容量瓶定容，得到5 mg/L的甲基红溶液作为实验的处理对象，即模拟甲基红染料废水。以相同方法配置不同浓度的甲基红溶液。

### 2.2 分析方法

使用紫外-可见分光光度计，设置 $\lambda=521$  nm对质量浓度2 mg/L、3 mg/L、4 mg/L、5 mg/L和6 mg/L的溶液在521 nm处进行吸光度检测，将所得数据绘制成标准曲线，得到图2以及标准曲线方程式(1)。

$$y = 0.09459x + 0.0045 \quad (1)$$

式中： $y$ 是溶液在521 nm处所测得的吸光度值； $x$ 是甲基红溶液的质量浓度，mg/L。

两式的回归系数 $R^2$ 接近1，说明甲基红浓度与吸光度间具有良好的相关性。将所测样品溶液的吸光度值代入标准曲线方程，得到放电处理 $t$  min溶液中的甲基红浓度。

将样品溶液中的甲基红浓度值代入式(2)，得到处理 $t$  min时溶液的甲基红去除率。

$$\eta = \frac{C_0 - C_t}{C_0} \times 100\% \quad (2)$$

式中： $C_0$ 是处理前的模拟甲基红染料废水的初始浓度，mg/L； $C_t$ 是处理 $t$  min后溶液中的剩余甲基红浓度，mg/L； $\eta$ 是甲基红染料的去除率，%。

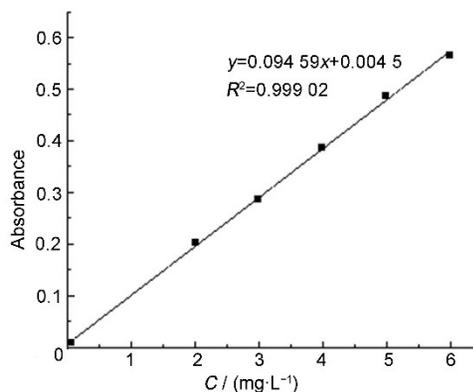


图2 521 nm处甲基红溶液的标准曲线  
Fig.2 Standard curve of methyl red solution at 521 nm

## 3 结果与讨论

本实验分别改变了反应的放电功率、初始浓度、初始pH、溶液的气氛条件，观察单一因素的改变对等离子体降解甲基红效果的影响，并通过反应过程中处理对象吸光度、pH及颜色的变化，观测甲基红的降解效果并对其降解历程进行分析，得出最终结论。

### 3.1 不同pH条件下甲基红溶液的可见吸收光谱

实验测定了不同pH缓冲溶液条件下甲基红溶液的可见吸收光谱。采用1:9醇水比配置pH=4.00的邻苯二甲酸氢钾，pH=6.86的磷酸盐，pH=9.18的四硼酸钠作为缓冲溶液，并配置相同浓度(5 mg/L)、不同pH条件下的甲基红溶液。检测不同pH条件下，5 mg/L甲基红溶液的可见吸收光谱(图3)。

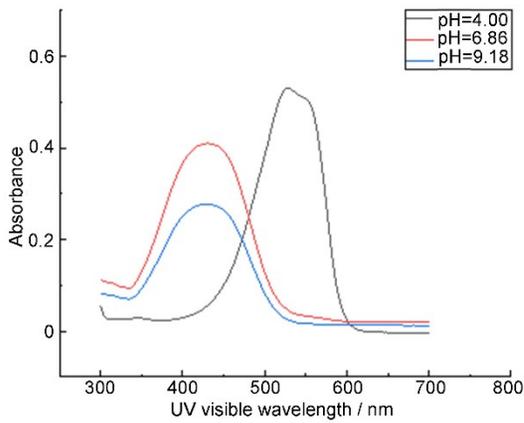


图3 不同pH甲基红溶液可见吸收光谱(彩色见网络版)  
Fig.3 UV visible absorption spectra of methyl red solutions at different pHs (color online)

由图3可得,随着pH的改变,甲基红可见吸收光谱的特征吸收峰从428 nm (pH=9.18)红移到431 nm (pH=6.86),再由431 nm (pH=6.86)红移到521 nm (pH=4.00)。这主要由于在不同的pH条件下甲基红的酸碱解离平衡发生移动,导致在不同pH条件下甲基红结构不一样,从而造成其吸收峰

位置不同。在本研究中选择521 nm的吸收峰表征甲基红的浓度是因为等离子放电会使溶液pH减小,若以428 nm或431 nm特征吸收峰表征浓度,则无法判定吸光度的降低到底是因为甲基红浓度降低引起的还是因为溶液pH降低引起的。由于放电处理时解离出氢离子会使溶液pH降低,故为准确表征降解后溶液中甲基红的浓度变化,本实验选择酸性条件下的特征吸收峰521 nm作为测定标准。

### 3.2 不同放电功率对甲基红降解效果的影响

分别在115 W、150 W和180 W的放电功率下,对250 mL浓度为5 mg/L、pH=5的甲基红模拟染料废水进行放电处理,并在处理10 s、20 s、30 s、40 s、50 s、60 s、1 min、3 min、6 min、9 min、12 min、15 min、18 min、21 min和24 min时取样检测,绘制溶液吸光度随时间的变化曲线,降解率随时间的变化曲线,并记录其颜色变化,如图4所示。根据实验结果分析不同放电功率对等离子体降解甲基红效果的影响。

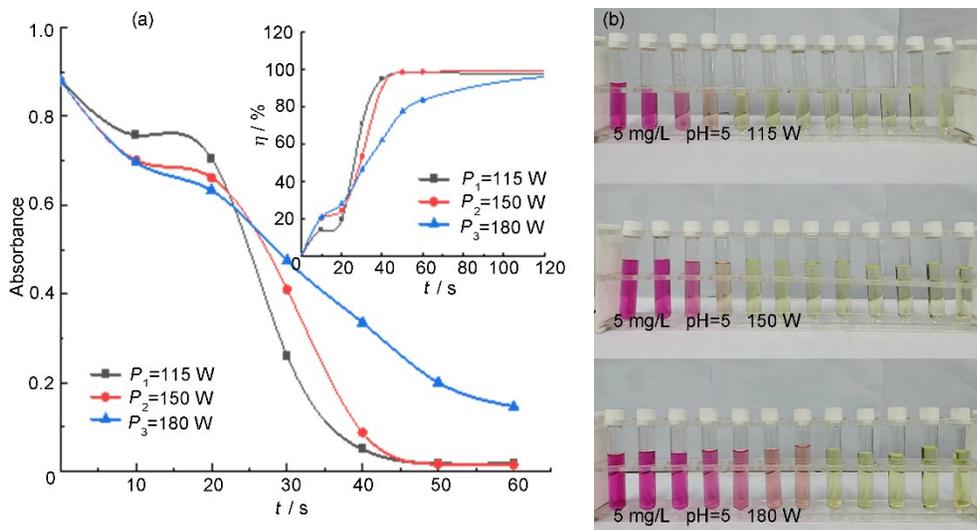


图4 不同放电功率下甲基红溶液在521 nm处的变化:  
(a) 吸光度随时间的变化曲线,插图为去除率随时间的变化曲线;(b) 颜色随时间的变化图  
Fig.4 Changes of methyl red solution at 521 nm under different discharge powers: (a) absorbance curves over time; illustration: curves of removal rate over time; (b) graph of color changes over time

将不同处理时间下样液的吸光度值代入甲基红标准曲线方程式(1),得到样液中甲基红浓度值,再将浓度值代入公式(2)得到去除率。图4(a)为不同放电功率下,低温等离子体对甲基红的降解效果,可见,并不是放电功率越高越有利于甲基红降解。其中,放电前20 s左右,放电功率越

高,其降解速率越快,降解率越高;放电处理20 s时,115 W、150 W和180 W放电功率下处理的溶液去除率分别为20%、24.91%和28.23%;随着放电时间的延长,相较于低放电功率,高放电功率下其降解速率慢,降解率低。放电处理40 s时,115 W放电功率下处理的溶液其甲基红去除率为

94.86%，150 W 和 180 W 条件下的去除率为 90.51% 和 62.29%；放电处理时间从 40 s 延长至 24 min 时，其去除率仅从 94.86% 上升到 99.66%，反应的能量利用率降低，因此，对 250 mL、5 mg/L、pH=5 的溶液放电处理 40 s，此时的能量利用率最高且处理效果佳，此时溶液颜色已发生改变。

从图 4 (b) 中 3 组溶液的颜色变化可以看出，180 W 高放电功率条件下，溶液的颜色变化最缓慢，色度处理也最缓慢。正常情况下，根据反应动力学推测，放电功率越高，电场中高能电子越多，微放电丝的产生频率越高，溶液中甲基红降解速率越快，降解效果越好<sup>[10]</sup>。但实验所得数据表明，并不是放电功率越高，降解率就越高，这是由于本实验所采用反应器为圆柱形，高放电功率易致使反应体系内温度迅速升高，产生大量水蒸气，阻碍微放电丝的产生效率，因此导致 115 W

低放电功率下的去除效果最好。根据以上实验结果可以得出，无论是针对色度处理，还是针对甲基红降解效率，在以上 3 种功率条件下，115 W 放电功率处理下的溶液效果均为最优，故推荐对 250 mL、5 mg/L、pH=5 的溶液在 115 W 放电功率下处理 40 s。

### 3.3 不同溶液初始浓度对甲基红降解效果的影响

在 115 W 放电功率、溶液初始 pH=5 的条件下，分别对 250 mL、浓度为 5 mg/L、10 mg/L 和 15 mg/L 的甲基红模拟染料废水进行放电处理，并在处理 10 s、20 s、30 s、40 s、50 s、60 s、1 min、3 min、6 min、9 min、12 min、15 min、18 min、21 min 和 24 min 时取样检测溶液吸光度随时间的变化曲线图，不同浓度降解率随时间的变化曲线图，及溶液颜色随时间的变化图（图 5）。

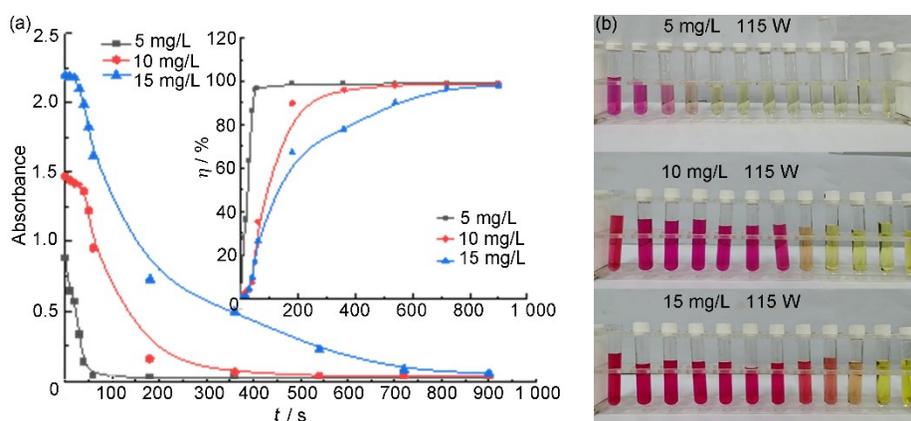


图5 不同初始浓度下甲基红溶液在 521 nm 处的变化：

(a) 吸光度随时间的变化曲线,插图去除率随时间的变化

Fig.5 Changes in methyl red solution at 521 nm under different initial concentrations: (a) absorbance curves over time; illustration: curves of removal rate over time; (b) graph of color changes over time

从图 5 可以看出，相同放电功率下，初始浓度越高的溶液其降解速率越慢，降解率达到峰值所需的时间越长。5 mg/L 的溶液在放电处理 50 s 时，其去除率便可达到 96.23%，而此时 10 mg/L 与 15 mg/L 的溶液其去除率仅为 35.2% 和 26.56%，其达到峰值的 96.24% 和 96.77% 所需的时间分别为 6 min 和 12 min。各溶液达到峰值后其去除率的变化非常缓慢，处理时间延长至 24 min，5 mg/L 溶液的去除率仅从 96.23% 上升到 99.31%；10 mg/L 溶液的去除率仅从 96.24% 上升到 98.97%；15 mg/L 溶液的去除率仅从 96.77% 上升到 98.54%，能量利用率随着时间的增加反而极大地降低了。因此，推荐对 5 mg/L、10 mg/L 和 15 mg/L 的甲基红模拟染料废

水放电处理分别为 50 s、6 min 和 12 min。由图 5 (b) 中甲基红颜色变化可以得到，溶液初始浓度越高，则溶液的颜色变化越缓慢，色度处理越缓慢。根据以上实验可以得到结论如下：低浓度的染料废水更易处理，且颜色变化越迅速，结合能量的利用率，降低处理能耗，5 mg/L、10 mg/L 和 15 mg/L 浓度的溶液建议处理时间分别为 50 s、6 min 和 12 min。

### 3.4 不同 pH 条件对甲基红溶液降解效果的影响

在放电功率 115 W 条件下，用 10% NaOH 与 10% HCl 调节 3 组 250 mL 浓度为 5 mg/L 的甲基红溶液的初始 pH，使其 pH 分别为 3、5、8，再分别对其进行放电处理，并在处理 10 s、20 s、30 s、

40 s、50 s、60 s、1 min、3 min、6 min、9 min、12 min、15 min、18 min、21 min 和 24 min 时取样检测溶液吸光度随时间变化曲线, 不同初始 pH 随时间变化曲线以及溶液颜色变化 (图6)。

实验结果表明, 在相同放电功率与初始浓度条件下, 溶液 pH 越低, 则甲基红降解速率越快。pH=3 的溶液在放电处理 40 s 时, 其去除率便可达到 90.67%, 此时 pH=5 的溶液其去除率仅为 86.06%。由图6可以发现, pH=8 的溶液因其 pH 呈碱性, 致使溶液中显色基团偶氮键的最大吸收峰发生改变<sup>[2]</sup>, 初始吸光度值较低, 随着放电的进行, pH=8 的溶液其 pH 迅速降低, 这是由于溶液中产生氢离子与  $\text{NO}_2^-$ 、 $\text{NO}_3^-$  产生酸效应<sup>[2]</sup>, 使溶液 pH 迅速降低, 在酸性条件下该溶液中显色基团偶氮键的最大吸收峰又回到 521 nm 处, 因此, 其在 521 nm 处的吸光度出现了上升现象。pH=8 的甲基红溶液去除速率慢, 处理 24 min 后其去除率也仅为 79.31%。因此可得, 溶液 pH 越低, 越有利于甲

基红的降解。

由图6中插图可以发现, 相同放电功率, 无论溶液的初始 pH 为多少, 溶液的 pH 在放电过程中一定会下降。这是由于在放电过程中空气中的氮在等离子体作用下, 形成了导电性好的  $\text{NO}_2^-$  与  $\text{NO}_3^-$ , 同时水中产生许多氢离子, 致使溶液的 pH 降低, 说明该等离子体技术能很好降解处理染料, 与 pH 的改变有一定的关系。

甲基红在酸性条件下为红色, 碱性条件下为黄色, 结合图6 (b) 观察3组溶液的颜色变化可以发现, pH=8 的溶液在放电处理 10 s 时就已迅速变为红色, 说明溶液的 pH 发生了改变, 且随着放电时间的延长, 20 s 和 30 s 时溶液的颜色逐渐变深, 即溶液在 521 nm 处的吸光度仍在上升, 从 40 s 时才开始逐渐下降。因此可以得出结论: 初始 pH 越高, 则溶液的降解速率越慢, 甲基红去除率越低, 颜色变化越缓慢, 处理时所需能耗越高。酸性条件下更有利于模拟染料废水中甲基红的降解。

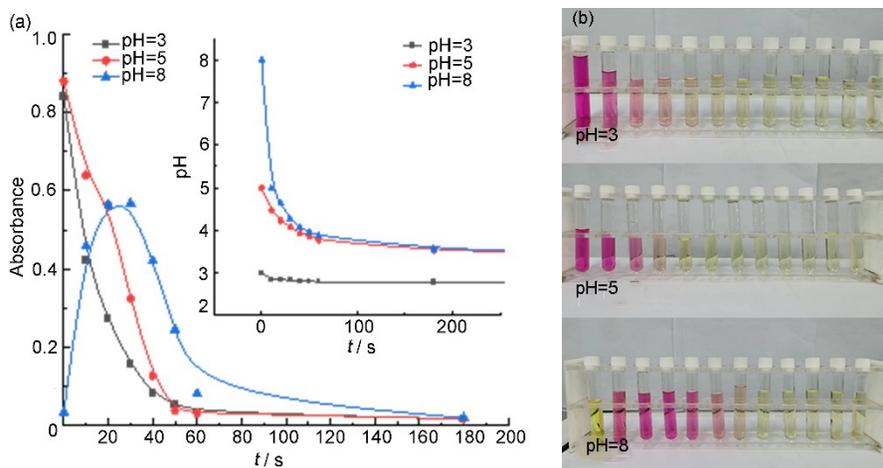


图6 不同初始pH条件下甲基红溶液在521 nm处的变化:(a)吸光度随时间的变化曲线;插图为pH随时间的变化曲线;(b)不同初始pH下放电处理的甲基红溶液的颜色随时间变化图

Fig.6 Changes in methyl red solution at 521 nm under different initial pHs: (a) absorbance curves over time; illustration: curves of different pHs over time; (b) graph of color changes over time

### 3.5 不同气氛条件对甲基红降解效果的影响

对3组250 mL、初始浓度为5 mg/L、初始pH=5的甲基红溶液进行30 min以上的通气, 使3组溶液分别处于氮气、空气和氧气气氛下, 并在115 W放电功率下, 分别对其进行放电处理, 并在处理10 s、20 s、30 s、40 s、50 s、60 s、1 min、3 min、6 min、9 min、12 min、15 min、18 min、21 min 和 24 min 时取

样检测溶液吸光度随时间的变化, 不同气氛条件下溶液 pH 随时间的变化以及溶液随时间的颜色变化 (图7), 分析不同气氛条件对溶液中甲基红降解效果的影响。

由图7可得, 对相同的甲基红溶液进行通气操作会改变溶液的初始吸光度与初始 pH, 通入氮气和氧气的甲基红溶液, 其初始 pH 由 5 上升到了 5.5

左右。pH发生改变可能是由于气体的通入影响了甲基红溶液的平衡，又因甲基红属于有机弱酸，当平衡发生移动时导致pH发生改变。由前文可知，pH的改变必然引起偶氮键最大吸收峰的改变，因此，图7中氮气和氧气气氛下的溶液在放电初期便产生了吸光度上升现象。总的来看，空气气氛下的溶液其去除速率最快，在放电处理50 s时去除率可达96.23%，而氮气和氧气气氛下处理的溶液

其去除率分别在6 min与3 min时达到95.7%左右。因此，针对甲基红去除效果来说，空气气氛更有利于溶液中甲基红的降解。结合图7(b)中3组溶液的颜色变化可以发现，相较于空气气氛，其他两组溶液的颜色变化缓慢，色度处理所需时间冗长。根据以上实验可以得到结论：无论是从甲基红的降解效果还是从色度处理效果来看，空气气氛下更有利于染料废水的处理。

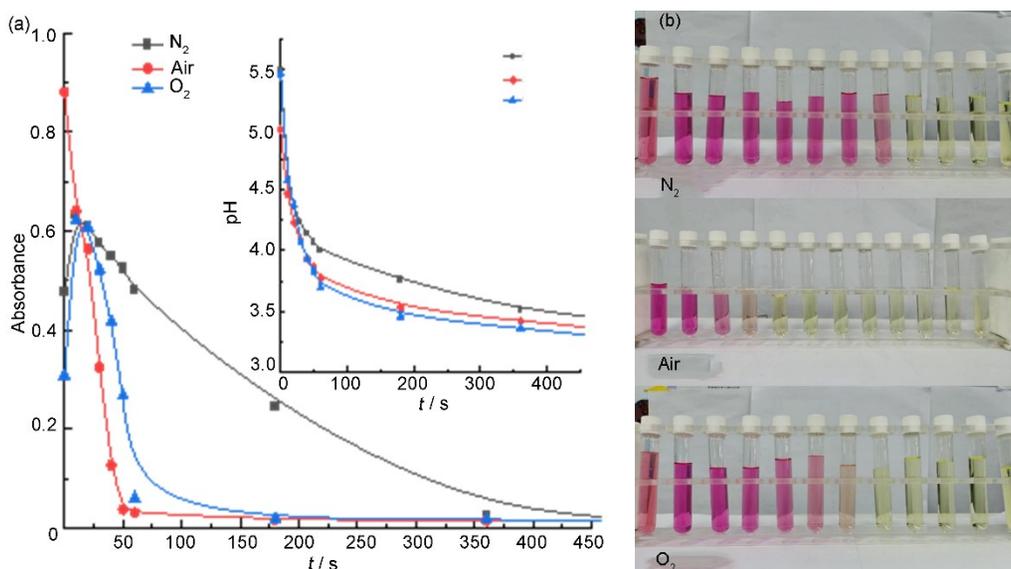


图7 (a)不同气氛条件下溶液在521 nm处的吸光度随时间的变化曲线图;插图:不同气氛条件下溶液降解过程中pH随时间的变化曲线图;(b)不同气氛条件下甲基红溶液颜色随时间的变化

Fig.7 (a) Changes in absorbance of solution at 521 nm under different atmosphere conditions; illustration: variation of pH during solution degradation under different atmosphere conditions; (b) color change of solution under different atmosphere conditions

### 3.6 甲基红溶液的降解历程

根据以上甲基红降解的实验结果，再结合放电处理过程中溶液在等离子体的作用下产生高能电子、微放电丝、臭氧、羟基等自由基，可以推测甲基红染料废水在高能电子组成的微放电丝的无规律无选择轰击下、臭氧氧化与羟基自由基的化学反应等种种因素的联合作用下，由于甲基红分子结构中的偶氮(-N=N-)双键为吸电子基团，在羟基等各种自由基的进攻下，偶氮键首先被打断，并由于显色集团偶氮键的断裂导致溶液颜色发生改变，即反应过程中染料废水发生褪色的主要原因。随着反应时间的延长，羟基自由基等的继续进攻会将甲基红由偶氮化合物转化为硝基苯类化合物，并随着反应时间的增加最终降解为二氧化碳和水。

## 4 结论

通过实验研究结果表明，介质阻挡放电低温等离子体技术可以有效降解甲基红模拟废水。在115 W的放电功率条件下，浓度为5 mg/L、初始pH=5的甲基红溶液去除率可达94.86%。模拟废水的初始浓度越高，其降解率达到最高值所需的时间越长，色度去除所需的时间也越长，5 mg/L的溶液经放电处理1 min，其去除率便可达到97.03%，而10 mg/L和15 mg/L的溶液去除率达到97%左右所需的时间为6 min和12 min。酸性条件下更有利于甲基红断键，对pH=3的溶液放电处理3 min左右，其去除率便可达到99%以上。不同的通气条件对甲基红的降解有一定影响，但影响甚微，空气条件下去除效果最佳。

**作者贡献声明** 李海霞提出了本文的研究思路和实验方案, 并对文章初稿进行了修改; 周玉洁完成了本文的标准溶液的配制, 标准曲线的绘制, 不同浓度条件下等离子体的降解研究, 不同时间条件下等离子体的降解研究, 不同 pH 条件下等离子体的降解研究, 不同气氛条件下等离子体的降解研究以及文章的初稿撰写工作; 周保昌参与了实验方案的制定以及实验过程的指导; 吴莹参与了溶液配制和初期不同浓度等离子体降解研究; 魏驰原和史培鑫参与了文章初期标准溶液配制的讨论以及论文思路的讨论。全体作者均已阅读并同意最终的文本。

## 参考文献

- 1 满卫东, 吴宇琼, 谢鹏. 等离子体技术: 一种处理废弃物的理想方法[J]. 化学与生物工程, 2009, **26**(5): 1-5. DOI: 10.3969/j.issn.1672-5425.2009.05.001.  
MAN Weidong, WU Yuqiong, XIE Peng. Plasma technology—an ideal method for waste treatment[J]. Chemistry & Bioengineering, 2009, **26**(5): 1-5. DOI: 10.3969/j.issn.1672-5425.2009.05.001.
- 2 孙建华, 刘自力, 杨红, 等. 高压放电降解甲基红废水的研究[J]. 广西大学学报(自然科学版), 2010, **35**(3): 483-487. DOI: 10.13624/j.cnki.issn.1001-7445.2010.03.020.  
SUN Jianhua, LIU Zili, YANG Hong, *et al.* Study on degradation of methyl red wastewater by high-voltage discharge[J]. Journal of Guangxi University (Natural Science Edition), 2010, **35**(3): 483-487. DOI: 10.13624/j.cnki.issn.1001-7445.2010.03.020.
- 3 Kim H J, Won C H, Kim H W. Pathogen deactivation of glow discharge cold plasma while treating organic and inorganic pollutants of slaughterhouse wastewater[J]. Water, Air, & Soil Pollution, 2018, **229**(7): 237. DOI: 10.1007/s11270-018-3895-x.
- 4 宋萌. 低温等离子体处理甲基橙染料废水实验研究[D]. 邯郸: 河北工程大学, 2016.  
SONG Meng. Experimental study on treatment of methyl orange dye wastewater by low temperature plasma[D]. Handan: Hebei University of Engineering, 2016.
- 5 Tarkwa J B, Acayanka E, Jiang B, *et al.* Highly efficient degradation of azo dye Orange G using laterite soil as catalyst under irradiation of non-thermal plasma[J]. Applied Catalysis B: Environmental, 2019, **246**: 211-220. DOI: 10.1016/j.apcatb.2019.01.066.
- 6 Wu H, Fan J W, Chen W, *et al.* Dielectric barrier discharge-coupled Fe-based zeolite to remove ammonia nitrogen and phenol pollutants from water[J]. Separation and Purification Technology, 2020, **243**: 116344. DOI: 10.1016/j.seppur.2019.116344.
- 7 金东翰, 卢洪伟, 查学军. 平行磁场对介质阻挡放电降解亚甲基蓝废水影响[J]. 水处理技术, 2021, **47**(3): 78-83. DOI: 10.16796/j.cnki.1000-3770.2021.03.016.  
JIN Donghan, LU Hongwei, ZHA Xuejun. Effect of parallel magnetic field on degradation of methylene blue wastewater by dielectric barrier discharge[J]. Technology of Water Treatment, 2021, **47**(3): 78-83. DOI: 10.16796/j.cnki.1000-3770.2021.03.016.
- 8 王春, 孟宪双, 李文涛, 等. 介质阻挡放电电离技术及其应用研究进展[J]. 质谱学报, 2018, **39**(4): 500-512. DOI: 10.7538/zpxb.2018.0003.  
WANG Chun, MENG Xianshuang, LI Wentao, *et al.* Research progress of dielectric barrier discharge ionization and its application[J]. Journal of Chinese Mass Spectrometry Society, 2018, **39**(4): 500-512. DOI: 10.7538/zpxb.2018.0003.
- 9 孙念念, 李冰洋, 孙岩洲. 不同电极结构介质阻挡放电的特性分析[J]. 电气应用, 2018, **37**(18): 60-64.  
SUN Niannian, LI Bingyang, SUN Yanzhou. Characteristic analysis of dielectric barrier discharge with different electrode structures[J]. Electrotechnical Application, 2018, **37**(18): 60-64.
- 10 罗婷. 高压针-板脉冲火花放电协同 Ag-BiVO<sub>4</sub> 处理盐酸盐四环素[D]. 赣州: 江西理工大学, 2021.  
LUO Ting. Treatment of tetracycline hydrochloride by high-voltage needle-plate pulsed spark discharge combined with Ag-BiVO<sub>4</sub>[D]. Ganzhou: Jiangxi University of Science and Technology, 2021.