

# 废弃荧光灯处置技术研究进展

李鹏辉<sup>1,2</sup>, 邹晓燕<sup>1</sup>, 张洪武<sup>1</sup>

1. 中国科学院城市环境研究所, 厦门 361021

2. 中国科学院大学, 北京 100049

**摘要** 汞是对人体毒害最大的5种重金属之一,由废弃荧光灯引起的汞污染问题日益严重。目前,国内外废弃荧光灯的处理方式以填埋和焚烧法为主,这两种处理方式都对周围环境和人类健康造成巨大的潜在威胁。此外,废弃荧光灯含有稀土元素以及铜、铅、汞等可重复利用的二次资源。本文总结了国内外废弃荧光灯的主要处置技术及存在的优缺点,着重阐述了废弃荧光灯资源化、汞的无害化以及从废弃荧光灯中回收稀土金属的方法。分析表明,采用回收利用法,利用新型的纳米材料(如纳米硒等)对汞进行无害化处理、绿色环保的稀土回收方法在未来具有良好的发展前景。

**关键词** 废弃荧光灯; 荧光粉回收; 汞无害化; 稀土金属

为了应对能源短缺的挑战,节约能源和减少温室气体排放,中国政府启动了“绿色照明”工程<sup>[1]</sup>,高效直管荧光灯、节能灯和紧凑型荧光灯逐渐取代传统白炽灯,成为照明用量最大的光源<sup>[2-4]</sup>。作为世界最大的荧光灯生产国和出口国<sup>[5]</sup>,废弃荧光灯的处置仍旧是中国城市固体废物管理面临的长期而持久问题。

典型的荧光灯由电极、铝盖、玻璃管、稀土三基色荧光粉、汞和惰性气体及铜导电材料组成,有害物质主要包括汞、铅和砷<sup>[6-9]</sup>。大多数废弃荧光灯随生活垃圾直接进入垃圾填埋场或焚烧厂,每年释放数百吨的汞及其化合物,严重污染周围土壤和地下水资源,威胁着人类的健康<sup>[10-12]</sup>。然而,从资源回收的角度而言,从废弃荧光灯中回收铅、铝等金属所消耗的能量比从金属矿中冶炼少30%<sup>[13]</sup>。此外,稀土作为不可再生资源,将成为全球重要的战略物资<sup>[14-17]</sup>,含有贵重稀土元素(如钇、铈、镨、铽等)的荧光粉具有良好的经济效益。因

此,目前各国政府均在致力于废弃荧光灯回收处置利用技术研究。

## 1 废弃荧光灯无害化处置技术

目前,国内外废弃荧光灯的处理方式主要有加硫填埋法、焚烧法和回收利用法<sup>[18]</sup>。加硫填埋法和焚烧法均属于传统方法,回收利用法是基于“3R(Reduce, Reuse, Recycle)”原则,对废弃荧光灯的处理达到资源化、无害化的方法(表1<sup>[19-21]</sup>)。

加硫填埋法是在填埋的过程中加硫,将不稳定的汞转化为稳定的硫化汞而被固定下来,降低汞的直接危害<sup>[19]</sup>;焚烧法是将废弃荧光灯作为生活垃圾直接焚烧<sup>[20]</sup>。上述两种方法均不能彻底解决汞污染问题。而回收利用法具有填埋法和焚烧法无可比拟的优势<sup>[21]</sup>,不仅可以保护环境,减少污染,而且稀土资源更是宝贵的

收稿日期:2017-11-24;修回日期:2018-04-26

基金项目:环保公益性行业科研专项(201509054)

作者简介:李鹏辉,博士,研究方向为固体废物资源化,电子信箱:phli@iue.ac.cn;张洪武(通信作者),研究员,研究方向为纳米材料生物成像应用,电子信箱:hwzhang@iue.ac.cn

引用格式:李鹏辉,邹晓燕,张洪武. 废弃荧光灯处置技术研究进展[J]. 科技导报, 2018, 36(13): 50-57; doi: 10.3981/j.issn.1000-7857.2018.13.007

“二次原料库”,是未来发展的主流趋势,主要工艺流程见图1。

表1 废弃荧光灯的不同处理方法  
Table 1 Different disposal methods of waste fluorescent lamps

处理方法	优点	缺点
加硫填埋法	形成稳定的硫化汞,方法简单,周期短	不能有效消除汞的污染
焚烧法	处理时间短,成本低	汞直接排放,有二噁英生成
回收利用法	解除汞的毒性,达到资源回收	处理时间长,投资大,成本高,技术不太成熟

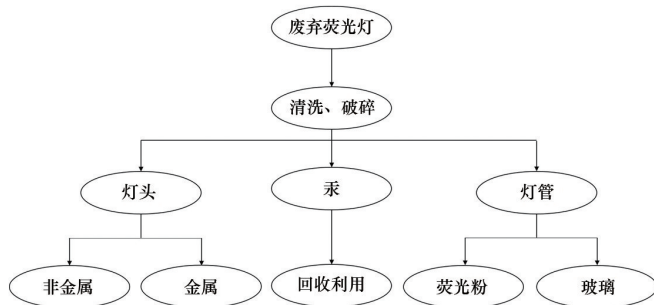


图1 废弃荧光灯回收处理工艺主要流程  
Fig. 1 Main flow sheet for the recovery disposal of waste fluorescent lamps

## 2 废弃荧光灯回收利用技术

目前,国内外废弃荧光灯回收利用技术主要有拆分回收技术和破碎回收技术<sup>[22]</sup>,其中破碎回收技术又分为干法回收技术和湿法回收技术(表2)。

拆分回收技术是先将荧光灯的灯头(或底座)等组件与灯管(灯泡)拆分开,经高速气流吹扫、蒸馏和活性炭净化吸收后,实现了汞与荧光粉的分离回收,该技术能使废弃荧光灯组件的回收率达到99%<sup>[23]</sup>。目前,该技术已在德国的WEREC GmbH Berlin公司、日本NKK公

表2 废弃荧光灯主要的回收利用技术

Table 2 Main recycling technology of spent fluorescent lamps

工艺	优点	缺点	应用
直接破碎	结构紧凑,占地面积小,投资小	荧光粉难被利用	非稀土荧光灯
切端吹扫分离	有效回收汞和荧光粉	设备复杂,投资大	稀土荧光灯

司的子公司NKK环境、神户制钢的子公司神钢朋太克和九州电力公司的子公司丁利拉依及瑞典的MRT公司等废弃荧光灯处理公司得到应用<sup>[24-25]</sup>。

破碎回收技术是先将废弃荧光灯整个破碎,然后通过分离设备将汞、荧光粉、金属和玻璃进行分离回收<sup>[26]</sup>。其中,干法回收技术是将荧光灯在密闭甚至真空环境下破碎,而湿法回收技术是基于水银可以水封保存的特性,在液下进行的破碎方法。湿法回收技术因采用水作为介质清洗破碎组分,需要含汞废水处理循环设备,成本较高,实际工程中已很少使用<sup>[27]</sup>。

随着稀土荧光灯产量的与日剧增,拆分回收技术能够有效回收汞和荧光粉,具有良好的发展前景。但是,该技术还存在成本高,设备复杂等缺点,仍需要进一步的改进。

## 3 汞的无害化技术

荧光灯中汞的主要形态为 $Hg^0$ 、 $Hg^+$ 和 $Hg^{2+}$ ,还含有部分的 $Hg_2Cl_2$ 、 $HgCl_2$ 和 $HgO$ <sup>[28]</sup>。不同荧光灯的含汞量和汞的形态存在较大差异,例如,与新灯相比,废弃荧光灯中气态汞的含量明显减少,而含汞的化合物增多<sup>[29]</sup>。废弃荧光灯破碎后, $Hg^0$ 极易挥发,而 $Hg^+$ 和 $Hg^{2+}$ 主要与荧光粉和玻璃结合,难以分离<sup>[30]</sup>。目前,国内外汞的无害化方法主要有浸出法、高温气化法和吸附法,主要流程如图2<sup>[31-34]</sup>所示。

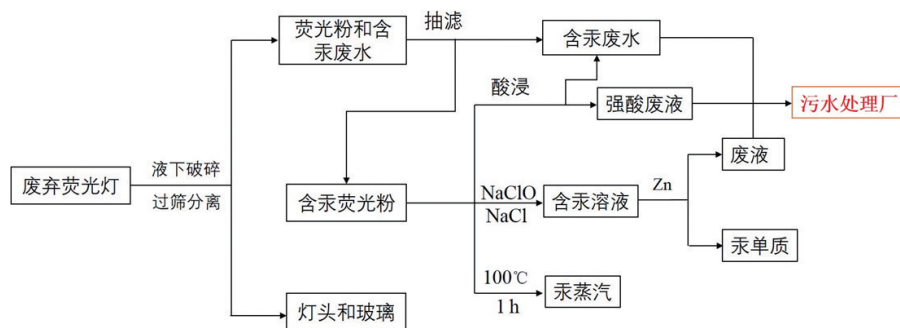


图2 汞的无害化主要流程  
Fig. 2 Disposal process of harmless treatment for mercury

浸出法可分为水洗法、酸浸法、氧化浸出法等。基于汞可以水封保存的特性,以水为介质形成闭路循环净化系统,使含汞废弃荧光灯破碎时排放的废气低于排放标准,这种方法汞的回收率低<sup>[31]</sup>。为了提高回收率,将酸浸法应用于废弃荧光灯中汞的回收,回收效率虽然有所提高,但耗酸量大,产生的强酸废液也难以处理<sup>[32]</sup>。Sezen Coskun 等用 NaClO/NaCl 混合液代替强酸浸出汞,浸出效率达到 96%,再通过还原剂 Zn 置换出 Hg<sup>0</sup>,置换效率高达 99%<sup>[33]</sup>。虽然大量研究对浸出法进行技术改进,但其最大的缺点是需要建立含汞废水处理厂,成本大大增加。

有研究发现,即使在最佳的实验条件下,酸浸法对汞的回收率也只能达到 36%,耗酸量大,而高温气化法在 100℃ 下加热 1 h,汞的残留量小于 1%<sup>[34]</sup>。为了进一步降低高温气化法的能耗,Walter 等利用硼氢化钠对荧光粉进行还原处理后,再进行高温气化,汞的残留量从 103 mg/kg 降到 6.6 mg/kg<sup>[35]</sup>。

吸附法是应用较为广泛的汞净化方法之一。活性炭是最常用的吸附剂,对 Hg<sup>0</sup> 具有一定的吸附能力,通过硫(S)的修饰作用,可以显著提高活性炭的吸附能力,但费用昂贵<sup>[36-38]</sup>。通过氧化剂(如 O<sub>2</sub>、O<sub>3</sub>、H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>、HNO<sub>3</sub> 和高锰酸盐等)修饰的活性炭可以增加其亲水性<sup>[39]</sup>,有利于汞的吸附,费用显著降低,但实际样品成分复杂,需要深入的研究。此外,Johnson 等选用不同的纳米材料(如 S、Se、Ni、Zn、Ag 和 WS<sub>2</sub>)作为吸附剂对荧光灯中的汞的吸附作用进行了研究,发现纳米硒的吸附效果最好,吸附 1 mg 的汞蒸气,只需要 10 mg 的纳米硒,其他纳米材料的用量远大于 10 mg<sup>[40]</sup>。但是,纳米硒不稳定,其对环境 and 人类健康的危害有待进一步研究。

总体来说,汞的无害化处理技术中,浸出法是广泛应用的方法,但存在二次污染问题;高温气化法和吸附法处理过程中,污染较少,但技术还不太成熟,工业应用较少。浸出条件的优化,新型优良吸附剂的选取,均属于未来的热门研究领域之一。

## 4 荧光粉回收技术

废弃荧光灯中的荧光粉主要通过物理法、化学法和综合法,实现荧光粉的分离及稀土元素的提取,最终达到废弃荧光灯的循环利用。

### 4.1 物理法

物理法是基于不同类型荧光粉的物理性质的差异

(如密度、尺寸、形状、电位等)和相似相容原理等,通过重力作用、离心、浮选或者萃取等方法将卤磷酸钙、红粉、蓝粉和绿粉分开。根据分离方式的不同,可分为风力分选法、离心分离法、浮选法和液液萃取法。

卤磷酸钙与三基色荧光粉的密度不同,在重力作用下两者具有不同的末速度,从而成功地将密度大的三基色荧光粉与密度小的卤磷酸钙荧光粉分离<sup>[41]</sup>,但是此方法分离效率较低。为了提高分离效率,Hirajima 等将荧光粉颗粒的尺寸和形状考虑在内,采用密度大的二碘甲烷(CH<sub>2</sub>I<sub>2</sub>, 3.3 g/cm<sup>3</sup>)作为溶剂,90%白色卤磷酸钙进入上层悬浮液被回收,三基色稀土荧光粉进入底层,回收率和牛顿分离效率分别达到 97.34%和 0.84,回收率大大提高,并且 CH<sub>2</sub>I<sub>2</sub> 的回收率高达 99.8%<sup>[42]</sup>。为了进一步将三基色荧光粉(红粉、蓝粉和绿粉)分开,Hirajima 从浮选角度对荧光粉的分离做了进一步的研究,发现当材料所带的电荷与捕收剂相反时,两者之间的吸附得到加强,在不同 pH 值条件下,卤磷酸钙、红色、绿色和蓝色荧光粉有不同的 Zeta 电位,以十二烷基醋酸铵(DAA)、十二烷基硫酸钠(SDS)和油酸钠(NaOI)为捕收剂,其中以 SDS 作为捕收剂时,白粉、红粉、绿粉和蓝粉的回收率均可达到 90%以上,但牛顿效率和纯度较低<sup>[43]</sup>。为了提高红粉、绿粉和蓝粉的纯度,Akira Otsuki 等采用液液萃取法在碱性条件下分离人工合成的荧光粉,利用螯合剂 2-噻吩甲酰三氟丙酮(HTTA)将蓝粉萃取到上层的庚烷有机相中,红粉则在抑制剂四水酒石酸钾钠(PST)的作用下保留在水溶液中,绿粉则进入上层的氯仿有机相中(图 3<sup>[44]</sup>)。这种方法使蓝粉、绿粉和红粉三者的回收率分别达到 98.7%、74.1%和 76.0%,纯度分别达到 94.6%、94.1%和 96.9%,但该工艺有机溶剂使用量大,需要后续处理,成本较高<sup>[44]</sup>。

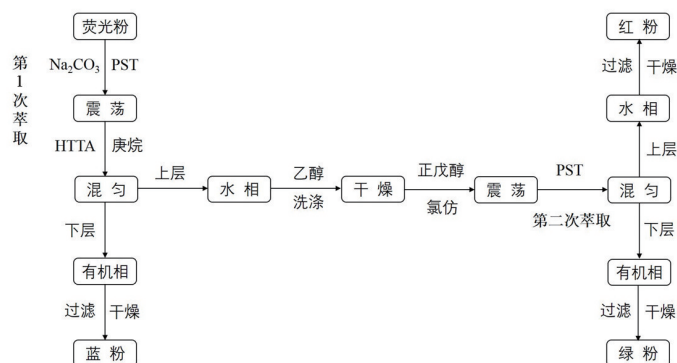


图3 液液萃取工艺流程

Fig. 3 Flow sheet of liquid-liquid extraction process

## 4.2 化学法

化学法是基于一定的化学反应(如氧化还原反应、络合反应、化合反应和沉淀反应等),最终分离得到纯净荧光粉或者稀土的方法。目前,国内外主要有酸浸法、沉降法、碱熔法和电位法等。

基于强酸能浸出大部分金属离子的性质,工业上常用酸浸法回收废弃稀土荧光粉中的稀土元素。Zhang等以盐酸作为浸出剂(图4<sup>[45]</sup>),通过两步酸浸法回收稀土三基色荧光粉中的Y、Eu、Ce和Tb<sup>[45]</sup>。杨幼明等采用盐酸法从稀土荧光粉废料中提取稀土元素后,采用碳酸钠焙烧法提取废渣中较难浸出的Ce、Tb,最后通过中和法对酸浸液进行除杂<sup>[46]</sup>。通过比较盐酸、硝酸和硫酸3种浸出剂,李洪枚认为硫酸对废稀土荧光粉中的稀土的浸出率较高<sup>[47]</sup>。解科峰等<sup>[48]</sup>采用氨水-草酸组合沉淀法,通过高温煅烧得到形貌为片层结构的高纯度立方晶系 $Y_2O_3$ 。为了解决酸浸法耗酸量大的问题,Wu等以 $Na_2O_2$ 作为提取剂,经过高温煅烧,得到的最终产物为 $NaYO_2$ 、 $CaO$ 、 $La_2O_3$ 、 $Tb_4O_7$ 、 $Ce_2O_3$ 和 $Na_4SiO_4$ ,且回收率均超过99.5%<sup>[49]</sup>。此外,杨剑等采用选择性氧化还原法从废弃稀土荧光粉中回收Y、Eu,经过一系列的步骤,最终获得了品质较优的 $Y_2O_3$ 和 $Eu_2O_3$ 产品<sup>[50]</sup>。

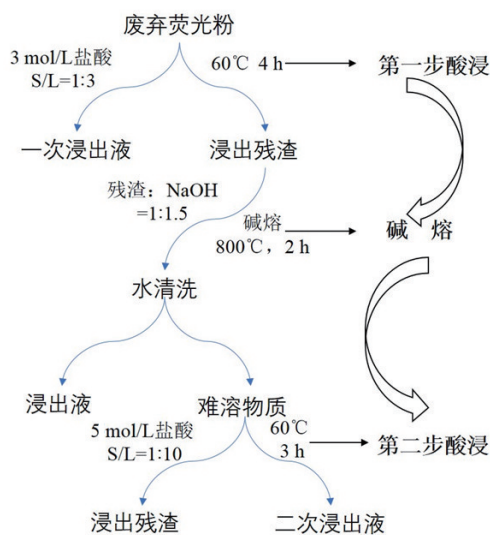


图4 两步酸浸法工艺流程

Fig. 4 Flow diagram of two-step acid leaching method

## 4.3 综合法

综合法是汇聚不同分离提取方法的优点而形成的一种复杂的分离提取方法。Rabah等<sup>[51]</sup>在酸浸法的基础上,利用有机溶剂萃取、乙醇分离和 $H_2$ 热还原等过程

实现稀土元素的资源回收,直接制备出金属Y和Eu。为了克服酸浸法耗酸量大,能耗高等缺点,在酸浸之前Tan等通过球磨机机械研磨荧光粉,使荧光粉的尺寸从 $20.65\ \mu\text{m}$ 减小 $7.20\ \mu\text{m}$ ,比表面积增加13倍,酸浸反应所需的活化能由 $52.82\ \text{kJ/mol}$ 降低到 $10.96\ \text{kJ/mol}$ ,大大减少了酸的能源消耗<sup>[52]</sup>。Shimizu等采用超临界 $CO_2$ 萃取法从废弃稀土荧光粉中回收稀土,将废弃荧光粉溶于磷酸三丁酯(TBP)、硝酸和水的混合液,在超临界 $CO_2$ 的作用下,温度和压力分别控制在 $333\ \text{K}$ 和 $15\ \text{MPa}$ ,静态萃取2 h,Y和Eu的萃取率分别达到99.7%和99.8%,以磷酸盐形式存在于萃取液中的La和Ce则通过萃取法进一步分离<sup>[53]</sup>。该工艺通过超临界条件大大提高了萃取效率,分离后的 $CO_2$ 在常压下气化,易与溶剂快速分离,但该方法操作条件严格,需消耗大量 $CO_2$ ,安全系数低。

虽然红粉仅占荧光粉的20%,但其回收价值很高<sup>[54]</sup>。David等利用多功能性离子液体替代有污染的浸出剂(如HTTA、DAA等),发现了一种绿色环保的提取红粉的新方法<sup>[55]</sup>,主要流程见图5<sup>[55]</sup>。这种方法选择性极高,得到的红粉纯度可以达到99.9%,而利用价值不高的卤磷酸钙荧光粉的含量还不到0.05%。整个过程只需消耗草酸,离子液体可以重复利用,并且没有多余的污染物(除 $CO_2$ )产生,明显减少了处理成本。

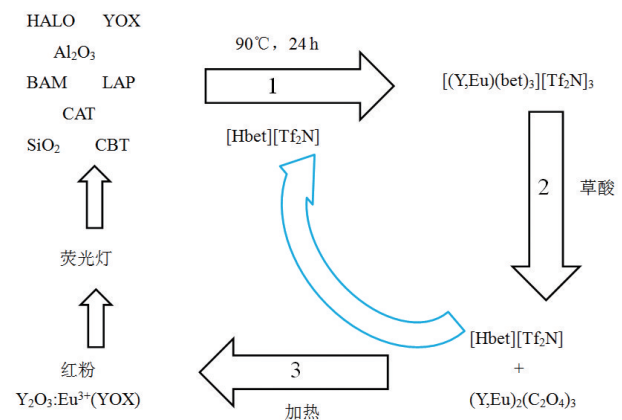


图5 多功能性离子液体提取红粉流程

Fig. 5 Flow sheet of multifunctional ionic liquid extraction method

## 4.4 不同分离提取方法比较

通过比较荧光粉的不同分离提取方法发现(表3),物理法方法简单,易于操作,成本相对较低,但是这种方法只能将卤磷酸钙荧光粉与三基色荧光粉分开或者是将红粉、蓝粉、绿粉分离,没有提取稀土元素或其氧

表3 不同提取方法的比较  
Table 3 Comparison of different extraction methods

方法	终产物	优点	缺点	
			表现	共性
物理法	风力分选法 <sup>[41]</sup>	方法简单易行	分离效率低	没有提取出稀土元素或者氧化物,应用范围较窄
	离心分离法 <sup>[42]</sup>	回收率较高,CH <sub>2</sub> I <sub>2</sub> 可循环利用	能耗高,CH <sub>2</sub> I <sub>2</sub> 有毒,易造成环境污染	
	浮选法 <sup>[43]</sup>	分离效率高	牛顿分离效率低,浮选废水易造成二次污染	
	液液萃取法 <sup>[44]</sup>	回收率纯度较高,酸的用量减少	有机溶使用量大,需要后续处理,成本增加	
化学法	两步酸浸法 <sup>[45]</sup>	工艺简单,容易操作,适合工业大规模生产	耗酸量大,回收率低,环境污染严重	效率低、产物纯度低,不能直接作为工业的原料,成本高,污染严重
	沉降法 <sup>[48]</sup>	选择性高,分离效率高	步骤繁琐,操作复杂,废液产生多,污染严重	
	碱熔法 <sup>[49]</sup>	操作简单,分离效率高	能耗高,没有完全分离稀土元素	
综合法	混合法 <sup>[51]</sup>	有机溶剂可循环利用,废液产生量少	热还原温度较高,成本高,存在酸污染	步骤繁琐,技术还不太成熟,工业化困难
	机械活化法 <sup>[52]</sup>	能耗低,酸用量少,成本低,分离效率高	处于起步阶段,技术不太成熟	
	超临界CO <sub>2</sub> 法 <sup>[53]</sup>	分离效率高,提取效果好,CO <sub>2</sub> 能够在常压下气化,无污染	体系复杂、操作条件严格,消耗大量的CO <sub>2</sub> 气体,安全系数低,成本高	
	离子液体法 <sup>[55]</sup>	选择性高,分离效率高,只消耗草酸,离子液体可循环利用	技术还不太成熟	

化物,产物的应用价值较低,属于不彻底的提取方法。而化学法和综合法的分离较彻底,产物为纯度较高的金属或者金属氧化物,可以直接作为原材料进行工业生产。

总之,目前虽然已对废弃荧光粉的资源化进行了大量研究,但仍存在许多问题。例如,研究中所用的废弃荧光粉,多数为人工合成的或者仅仅是几种类型灯用荧光粉的混合物,而实际的废弃荧光粉成分更加复杂,纯化更加困难;回收技术大多处于试验阶段,存在二次污染,经济效益低,工业化困难;处理过程中仍有废气、废液、废渣等污染物的产生,回收处理的技术标准不够完善;目前对红粉中Y、Eu的回收研究相对较多,缺乏对其他稀土元素(如Ce、Tb)和常量元素(如Al、Ba等)回收技术的研究。因此,废弃荧光粉未来的研究方向主要为:1)改进分离提纯的方法,开发高效的萃取

剂或提取剂;2)建立完善的回收处理的技术标准;3)研究多种元素的分离提取方法;4)绿色环保的资源化工艺是未来发展的趋势。

## 5 结论

随着荧光灯使用数量的日益增加以及全球可持续发展战略的实施,废弃荧光灯的资源化和无害化处置已经成为全球普遍关注的问题。笔者认为废弃荧光灯的资源化过程中,还存在如下问题,废弃荧光灯分类收集困难,处理成本较高,回收利用率较低,多数技术研究仍处于试验阶段,工业化生产还有一定的困难。建议以下5个方面值得思考:1)提高公众的环保意识,促进废弃荧光灯的分类收集;2)建立完善的废弃荧光灯回收处理的技术标准;3)研究新型的吸附材料(如纳米

材料)对汞进行无害化处理,具有良好的发展前景;4)进一步研究新的萃取剂、改善萃取分离技术,优化浸出、沉淀等反应条件,减少二次污染;5)绿色环保的提取稀土方法(如离子液体法)是未来的主要发展趋势,需要进一步深入研究。因此,废弃荧光灯的资源化处置仍是各国面临的严峻问题,解决废弃荧光灯管资源化处置的技术瓶颈问题,进而促进稀土资源的循环利用,也有效地减少了环境污染,体现了可持续发展的理念,符合当今世界的发展潮流。

### 参考文献(References)

- [1] 陈大华. 绿色照明与环境保护[J]. 灯与照明, 2002, 26(6): 1-3.  
Chen Dahua. Health protecting lighting and environmental protection[J]. Light & Lighting, 2002, 26(6): 1-3.
- [2] 谭全银. 废荧光灯中稀土元素机械活化强化浸出机理及工艺研究[D]. 北京: 清华大学, 2016.  
Tan Quanyin. Study on mechanism and process of mechanical activation enhanced leaching of rare earth elements from waste fluorescent lamp[D]. Beijing: Tsinghua University, 2016.
- [3] 陈莎, 张嘉兴, Kim Junbeum. 基于生命周期的中国荧光灯的环境影响分析[J]. 环境工程学报, 2017, 11(7): 4285-4292.  
Chen Sha, Zhang Jiaying, Kim Junbeum. Environmental impacts of fluorescent lamps in mainland China based on life cycle assessment[J]. Chinese Journal of Environmental Engineering, 2017, 11(7): 4285-4292.
- [4] Chen S, Zhang J, Kim J. Life cycle analysis of greenhouse gas emissions for fluorescent lamps in mainland China[J]. Science of The Total Environment, 2017, 575: 467-473.
- [5] 叶欣, 王卓, 陈吟. 2011年我国气体放电光源生产及国内外市场情况分析[J]. 中国照明电器, 2013(12): 1-5.  
Ye Xin, Wang Zhuo, Chen Yin. Situation of discharge lamp production and market in 2011[J]. China Light & Lighting 2013(12): 1-5.
- [6] Fujisjiro F, Baba M, Yamamori S. Fluorescent lamp, fluorescent lamp unit, liquid crystal display device, and method of emitting light: U.S. 6917354[P]. 2005-7-12.
- [7] 王敬贤, 郑骥. 含汞废弃荧光灯管处理现状及分析[J]. 中国环保产业, 2010(10): 37-41.  
Wang Jingxian, Zheng Ji. Current situation and analysis of mercury-containing waste fluorescent lamp[J]. China Environmental Protection Industry, 2010(10): 37-41.
- [8] Alammari R, Islam M S, Chowdhury N A, et al. Impact on power quality due to large-scale adoption of compact fluorescent lamps- a review[J]. International Journal of Ambient Energy, 2017, 38(4): 435-442.
- [9] Rhee S W. Estimation on separation efficiency of aluminum from base-cap of spent fluorescent lamp in hammer crusher unit[J]. Waste Management, 2017, 67: 259-264.
- [10] Hobohm J, Krüger O, Basu S, et al. Recycling oriented comparison of mercury distribution in new and spent fluorescent lamps and their potential risk[J]. Chemosphere, 2017, 169: 618-626.
- [11] Peng L, Wang Y, Chang C T. Recycling research on spent fluorescent lamps on the basis of extended producer responsibility in China[J]. Journal of the Air & Waste Management Association, 2014, 64(11): 1299-1308.
- [12] Singhvi R, Taneja A, Patel J R, et al. Determination of total metallic mercury in compact fluorescent lamps (CFLs)[J]. Environmental Forensics, 2011, 12(2): 143-148.
- [13] 齐伍凯, 孙艳辉, 南俊民. 废弃荧光灯的回收处理方法及对策[J]. 环境污染与防治, 2009, 31(9): 95-98.  
Qi Wukai, Sun Yanhui, Nan Junmin. Progress in recycle and treatment of the spent fluorescent lamps[J]. Environmental Pollution and Control, 2009, 31(9): 95-98.
- [14] Tan Q, Li J, Zeng X. Rare earth elements recovery from waste fluorescent lamps: A review[J]. Critical Reviews in Environmental Science and Technology, 2015, 45(7): 749-776.
- [15] Meyer L, Bras B. Rare earth metal recycling[C]//Sustainable Systems and Technology (ISSST), 2011 IEEE International Symposium on Sustainable Systems and Technology, Chicago IEEE, 2011, 125(3): 1-6.
- [16] De Michelis I, Ferrelia F, Varella E F, et al. Treatment of exhaust fluorescent lamps to recover yttrium: Experimental and process analyses[J]. Waste Management, 2011, 31(12): 2559-2568.
- [17] 龙志奇, 王良士, 黄小卫, 等. 磷矿中微量稀土提取技术研究进展[J]. 稀有金属, 2009(3): 434-441.  
Long Zhiqi, Wang Liangshi, Huang Xiaowei, et al. Progress in extraction technique for trace rare earths from phosphorite [J]. Chinese Journal of Rare Metals, 2009(3): 434-441.
- [18] Binnemans K, Jones P T. Perspectives for the recovery of rare earths from end-of-life fluorescent lamps[J]. Journal of Rare Earths, 2014, 32(3): 195-200.
- [19] 王涛. 废旧荧光灯的回收利用及处理处置[J]. 中国环保产业, 2005(3): 26-28.  
Wang Tao. Recycle and treatment of fluorescent lamp[J]. China Environmental Protection Industry, 2005(3): 26-28.
- [20] 高敏, 王斌, 苑文仪, 等. 废弃含汞灯管中荧光粉分析及汞处理[J]. 安全与环境工程, 2016, 23(5): 80-84.  
Gao Min, Wang Bin, Yuan Wenyi, et al. Analysis of phosphor powder and removal of mercury from waste mercury-containing lamps[J]. Safety and Environmental Engineering, 2016, 23(5): 80-84.

- [21] Binnemans K, Jones P T, Blanpain B, et al. Recycling of rare earths: A critical review[J]. *Journal of Cleaner Production*, 2013, 5(1): 1–22.
- [22] 梅光军, 解科峰, 李刚, 等. 废弃荧光灯无害化、资源化处置研究进展[J]. *再生资源与循环经济*, 2007(6): 1–6.  
Mei Guangjun, Xie Kefeng, Li Gang, et al. Progress in study on spent fluorescent lamps' harmless disposal and resource utilization[J]. *Recycling Research*, 2007(6): 1–6.
- [23] 李厚铭, 李学军, 张福铭, 等. 国外油田钻井废弃物回注处理技术进展[J]. *科学技术与工程*, 2012, 12(28): 7318–7325.  
Li Houming, Li Xuejun, Zhang Fuming, et al. Application status of cutting injection for drilling waste treatment at abroad [J]. *Science Technology and Engineering*, 2012, 12(28): 7318–7325.
- [24] 郑响. 北京市废旧荧光灯管回收现状与综合利用对策[J]. *环境与发展*, 2010, 22(2): 24–27.  
Zheng Jun. Current recycling situation and the countermeasures to use of the old fluorescent tube in beijing[J]. *Inner Mongolia Environmental Sciences*, 2010, 22(2): 24–27.
- [25] 程鹏, 周斌. 废旧灯管回收处理的法制和设施建设[J]. *江苏环境科技*, 2005, 18(增刊1): 173–175.  
Cheng Peng, Zhou Bin. Facilities and legal system construction about recovery processing of waste fluorescent lamp[J]. *Jiangsu Environmental Science and Technology*, 2005, 18(Suppl 1): 173–175.
- [26] Zhang J, Chen S. The analysis of spent fluorescent lamps for disposal in China[J]. *Sustainable Development*. 2016, 6(2): 103–109.
- [27] 汪晖. 废旧荧光灯回收处理系统概述[J]. *中国照明电器*, 2012(7): 21–23.  
Wang Hui. Outline of waste fluorescent lamp recycling system [J]. *China Light & Lighting*, 2012(7): 21–23.
- [28] Massari S, Ruberti M. Rare earth elements as critical raw materials: Focus on international markets and future strategies [J]. *Resources Policy*, 2013, 38(1): 36–43.
- [29] Chen G H, Chen W Y, Yen Y C, et al. Detection of mercury (II) ions using colorimetric gold nanoparticles on paper-based analytical devices[J]. *Analytical Chemistry*, 2014, 86(14): 6843–6849.
- [30] Singhvi R, Turpin R, Kalnicky D J, et al. Comparison of field and laboratory methods for monitoring metallic mercury vapor in indoor air[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2001, 83(1–2): 1–10.
- [31] Raposo C, Roeser H M. Contamination of the environment by the current disposal methods of mercury-containing lamps in the state of Minas Gerais, Brazil[J]. *Waste Management*, 2001, 21(7): 661–670.
- [32] Rey-Raap N, Gallardo A. Removal of mercury bonded in residual glass from spent fluorescent lamps[J]. *Journal of Environmental Management*, 2013, 115: 175–178.
- [33] Coskun S, Civelekoglu G. Recovery of mercury from spent fluorescent lamps via oxidative leaching and cementation[J]. *Water, Air & Soil Pollution*, 2015, 226(6): 1–13.
- [34] Jang M, Hong S M, Park J K. Characterization and recovery of mercury from spent fluorescent lamps[J]. *Waste Management*, 2005, 25(1): 5–14.
- [35] Durão W A, De Castro C A, Windmöller C C. Mercury reduction studies to facilitate the thermal decontamination of phosphor powder residues from spent fluorescent lamps[J]. *Waste Management*, 2008, 28(11): 2311–2319.
- [36] Korpel J A, Vidic R D. Effect of sulfur impregnation method on activated carbon uptake of gas-phase mercury[J]. *Environmental Science & Technology*, 1997, 31(8): 2319–2325.
- [37] Hsi H C, Rood M J, Rostam A M, et al. Effects of sulfur impregnation temperature on the properties and mercury adsorption capacities of activated carbon fibers (ACFs)[J]. *Environmental Science & Technology*, 2001, 35(13): 2785–2791.
- [38] Li Y, Lee C, Gullett B. Importance of activated carbon's oxygen surface functional groups on elemental mercury adsorption [J]. *Fuel*, 2003, 82(4): 451–457.
- [39] Manchester S, Wang X, Kulaots I, et al. High capacity mercury adsorption on freshly ozone-treated carbon surfaces[J]. *Carbon*, 2008, 46(3): 518–524.
- [40] Johnson N C, Manchester S, Sarin L, et al. Mercury vapor release from broken compact fluorescent lamps and in situ capture by new nanomaterial sorbents[J]. *Environmental Science & Technology*, 2008, 42(15): 5772–5778.
- [41] Innocenzi V, De Michelis I, Kopacek B, et al. Yttrium recovery from primary and secondary sources: A review of main hydrometallurgical processes[J]. *Waste Management*, 2014, 34(7): 1237–1250.
- [42] Hirajima T, Sasaki K, Bissombolo A, et al. Feasibility of an efficient recovery of rare earth-activated phosphors from waste fluorescent lamps through dense-medium centrifugation[J]. *Separation and Purification Technology*, 2005, 44(3): 197–204.
- [43] Hirajima T, Bissombolo A, Sasaki K, et al. Floatability of rare earth phosphors from waste fluorescent lamps[J]. *International Journal of Mineral Processing*, 2005, 77(4): 187–198.
- [44] Otsuki A, Guangjun M, Jiang Y, et al. Solid-solid separation of fluorescent powders by liquid-liquid extraction using aqueous and organic phases[J]. *Resources Processing*, 2006, 53(3): 121–133.
- [45] Zhang S G, Yang M, Liu H, et al. Recovery of waste rare earth fluorescent powders by two steps acid leaching[J]. *Rare Metals*, 2013, 32(6): 609–615.
- [46] 杨幼明. 从荧光粉废料中提取稀土工艺研究[J]. *有色金属*

- (冶炼部分), 2012(10): 23–26.
- Yang Youming. Technical study on rare earth recovery from fluorescent powder scrap[J]. *Nonferrous Metals (Extractive Metallurgy)*, 2012(10): 23–26.
- [47] 李洪枚. 从废稀土荧光粉中酸浸回收稀土的研究[J]. *稀有金属*, 2010, 34(6): 110–116.
- Li Hongmei. Recovery of rare earths from phosphor sludge by acid leaching[J]. *Chinese Journal of Rare Metals*, 2010, 34(6): 110–116.
- [48] 解科峰. 废弃荧光灯无害化、资源化回收处理研究[D]. 武汉: 武汉理工大学, 2007.
- Xie Kefeng. Study on spent fluorescent lamps harmless disposal and resource utilization[D]. Wuhan: Wuhan University of Technology, 2007.
- [49] Wu Y, Wang B, Zhang Q, et al. Recovery of rare earth elements from waste fluorescent phosphors:  $\text{Na}_2\text{O}_2$  molten salt decomposition[J]. *Journal of Material Cycles and Waste Management*, 2014, 16(4): 635–641.
- [50] 杨剑, 曹建明. 一种从荧光粉废料中回收高纯度钇铕的制备方法: 中国, 201010520143.7[P]. 2010–10–26.
- Yang Jian, Cao Jianming. Preparation method for recovering high-purity yttrium europium from fluorescent powder scrap: China, 201010520143.7[P]. 2010–10–26.
- [51] Rabah M A. Recyclables recovery of europium and yttrium metals and some salts from spent fluorescent lamps[J]. *Waste Management*, 2008, 28(2): 318–325.
- [52] Tan Q, Deng C, Li J. Innovative application of mechanical activation for rare earth elements recovering: process optimization and mechanism exploration[J]. *Scientific Reports*, 2016, 6 (19961) : 1–10.
- [53] Shimizu R, Sawada K, Enokida Y, et al. Supercritical fluid extraction of rare earth elements from luminescent material in waste fluorescent lamps[J]. *The Journal of Supercritical Fluids*, 2005, 33(3): 235–241.
- [54] Tan Q, Li J. A study of waste fluorescent lamp generation in mainland China[J]. *Journal of Cleaner Production*, 2014, 81: 227–233.
- [55] Dupont D, Binnemans K. Rare-earth recycling using a functionalized ionic liquid for the selective dissolution and revalorization of  $\text{Y}_2\text{O}_3$ :  $\text{Eu}^{3+}$  from lamp phosphor waste[J]. *Green Chemistry*, 2015, 17(2): 856–868.

## Review on disposal technology of spent fluorescent lamps

LI Penghui<sup>1,2</sup>, ZOU Xiaoyan<sup>1</sup>, ZHANG Hongwu<sup>1</sup>

1. Institute of Urban Environment, Chinese Academy of Sciences, Xiamen 361021, China
2. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China

**Abstract** Mercury is one of the most toxic heavy metals to human beings. Meanwhile, mercury pollution which is triggered by waste fluorescent lamps widely used in our daily life is becoming a more and more serious problem. In recent years, landfill and incineration have been the main disposal methods for waste fluorescent lamps at home and abroad, posing a huge potential threat to the surrounding environment and human health. On the other hand, fluorescent lamps contain large amounts of reusable secondary resources, such as rare earth elements, copper and lead. Therefore, this review summarizes the major disposal technologies of waste fluorescent lamps at home and abroad, as well as their advantages and disadvantages, focusing on the recycling of waste fluorescent lamps, harmless disposal of mercury, and recovery methods of rare earth metals from waste fluorescent lamps. Finally, the article indicates that the recycling method, new type of nanomaterials (such as nano-selenium, etc.) for harmless treatment of mercury, and environment friendly recovery methods of rare earth all have good prospects in the future.

**Keywords** spent fluorescent lamps; phosphor recovery; harmless treatment for mercury; rare earth metals ●



(责任编辑 祝叶华)