

高效能活性炭基底石墨烯粒子电极制备及表征

傅金祥, 李晓溪, 何 祥, 孟海停

(沈阳建筑大学市政与环境工程学院, 辽宁 沈阳 110168)

摘 要 目的 制备和筛选出一种高效、稳定的新型石墨烯复合负载型粒子电极. 方法 采用溶胶凝胶法制备了一系列不同基底的石墨烯负载型粒子电极, 以苯酚为目标污染物考察粒子电极的催化活性, 确定最优粒子电极, 通过正交试验优化其制备条件. 最后采用 SEM、EDS、BET、XRD、LSV、CV 手段对粒子电极的结构、表面形貌及电化学性能等进行表征. 结果 筛选出 Ti-rGO/GAC-S(椰壳活性炭)为最优粒子电极, 对苯酚去除率为 85.26%; 正交试验优化其制备条件为钛酸丁酯投加量 75 mL、rGO 投加量 0.2 g、煅烧温度 400 °C、煅烧时间 1 h; 负载 Ti 和 rGO 后表面积、析氧电位增大, 对苯酚直接氧化能力提高. 结论 筛选出的 Ti-rGO/GAC-S 粒子电极电催化活性最高, 表面积大, 活性点位多, 对苯酚的直接氧化能力高.

关键词 石墨烯; 粒子电极; 苯酚; 活性炭

中图分类号 X703.1 文献标志码 A

Preparation and Characterization of High-performance Activated Carbon Base Graphene Particle Electrode

FU Jinxiang, LI Xiaoxi, HE Xiang, MENG Haiting

(School of Municipal and Environmental Engineering, Shenyang Jianzhu University, Shenyang, China, 110168)

Abstract: To prepare and screen a new type of graphene composite supported particle electrode with high efficiency and stability. A series of graphene-loaded particle electrodes with different substrates were prepared by sol-gel method. The catalytic activity of the particle electrode was investigated with phenol as the target contaminant. The optimal particle electrode was determined and the preparation conditions were optimized by orthogonal test. Finally, SEM, EDS, BET, XRD, LSV, and CV methods were used to characterize the structure, surface morphology and electrochemical properties of the particle electrode. The results showed that Ti-rGO/GAC-S (coconut activated carbon) was selected as the best particle electrode, and the removal rate of phenol was 85.26%. Orthogonal experiments optimize the preparation conditions as follows: the dosage of butyl titanate is 75 mL, the dosage of rGO is 0.2 g, the calcination temperature is 400 °C, the calcination time is 1 h; surface area and oxygen evolution potential increase after loading Ti and rGO, and the direct oxidation ability of phenol is improved. The conclusion is that the selected Ti-rGO/

收稿日期: 2018-05-10

基金项目: 国家水体污染控制与治理科技重大专项项目(2015ZX07202-012)

作者简介: 傅金祥(1955—), 男, 教授, 主要从事污水处理与资源化技术等方面研究.

GAC-S particle electrode has the highest electrocatalytic activity, large surface area, many active sites, and high direct oxidation ability to phenol.

Key words: graphene; particle electrode; phenol; activated carbon

石墨烯是一种具有比表面积大、载流子迁移率高、机械强度高、优异特性的二维纳米材料^[1-2]。石墨烯及其复合材料因其优异性能在水处理领域中常被用于光催化、海水淡化、吸附和电化学传感器等方面^[3-5]。三维电极体系是在传统二维电催化系统中加入粒子电极,通过提高体系的相对反应面积来增加活性点位而提高系统的处理效率^[6]。粒子电极是三维电极体系中的核心部分,常用粒子电极有活性炭、多孔陶瓷、氧化铝等^[7-9]。现阶段,国内外对三维电极体系的研究主要集中在新型粒子电极的制备方面,而将石墨烯及其复合材料应用于三维电极体系中作为粒子电极的研究报道较少。Chen Z 等^[10]制备出氮掺杂的石墨烯气凝胶(NGAs),并首次提出将其作为粒子电极来处理双酚 A (BPA)模拟废水,研究表明其对 BPA 的去除率为 88%。

单独粒子电极存在电催化活性不高、孔径易堵塞、使反应器易形成短路电流而导致去除效果下降等问题^[11],而石墨烯由于其疏水性且其质轻而不易于电催化体系中回收。为了从本质上改变常规粒子表面特征,提高其电催化活性与稳定性,利用石墨烯比表面积大、吸附点位丰富、导电性强等优点,笔者研发了一种高效、稳定、便于回收的最优复合负载型粒子电极,采用 SEM 等表征手段对其形貌及结构等进行对比研究,结果表明筛选出的 Ti-rGO/GAC-S 粒子电极电催化活性最高、表面积大、活性点位多,对苯酚的去除效果最好。

1 材料和方法

1.1 试验用水

试验采用 300 mg/L 的模拟苯酚废水,

加入 15 g/L 的 Na_2SO_4 电解质来提高模拟苯酚废水的电导率,利用浓度 0.5 mol/L 的稀 H_2SO_4 调节 pH 值。

1.2 负载型粒子电极的制备

选取 Al_2O_3 、13X 分子筛、陶粒、GAC-C 和 GAC-S 作为复合型粒子电极的基底材料。先将这 5 种基底材料进行预处理:清洗后在质量分数为 2.5% 硝酸溶液中浸渍并搅拌 1h,过滤后再用蒸馏水反复清洗至中性,去除粒子电极表面携带的灰分杂质,然后将其置于电热恒温鼓风干燥箱中在 105 °C 条件下烘干,保存于干燥皿内备用。

采用溶胶凝胶法制备负载型粒子电极。将一定比例的蒸馏水、无水乙醇和乙酸分别加入钛酸丁酯、GO-钛酸丁酯、rGO-钛酸丁酯溶胶中,搅拌均匀后分别获得含有 Ti、Ti 和 GO、Ti 和 rGO 的溶胶液。将 50 g 经过预处理的基底材料分别加入上述溶胶液中,静置陈化 12 h 取出,在 105 °C 下烘干后在 300 °C 马弗炉下焙烧 2 h,冷却至室温,分别得到负载型粒子电极 Ti/a、Ti-GO/a 和 Ti-rGO/a,其中 a 代表上述基底材料。

1.3 三维电催化体系降解苯酚效果试验

试验装置如图 1 所示。自行设计的三维电极反应器由透明有机玻璃粘结而成,内部长宽高为 10 cm × 5 cm × 10 cm,有效容积为 200 mL。采用钛镀钉铍板作为反应器的阳极极板、不锈钢板作为阴极极板,长宽均为 10 cm,厚度为 2 mm。粒子电极填充在阴阳电极之间,为了使粒子电极能够均匀悬浮于反应器内,在反应器底部设有曝气管,其上部设有一块布满直径为 1 mm 孔洞的穿孔板,这样既能起到承托粒子电极的作用,又能进行均匀曝气。曝气管由软管与电解槽外的空气泵连接,通过气体流量计来调节控制曝气

量,由直流稳压电源为反应器的阴、阳两极施加电压. 试验前,提前将粒子电极浸泡在 300 mg/L 的模拟苯酚废水中 24 h,使粒子电极达到吸附饱和,排除吸附作用产生的影响. 试验中,首先将 200 mL 模拟苯酚废水加入三维电极反应器中,投加 15 g/L 的 Na_2SO_4 电解质来提高溶液的电导率;其次滴加 0.5 mol/L 稀硫酸或稀氢氧化钠来调节溶液的 pH 为 3 ± 0.1 ,再投加 125 g/L 已吸附饱和的粒子电极;最后在曝气量为 5 L/min、电压 15 V 下进行电化学反应. 电解时间 90 min,每隔 10 min 取样 3 mL 进行分析.

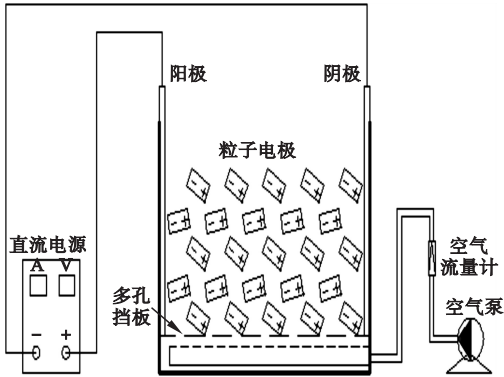


图1 三维电极试验装置示意图

Fig. 1 Experimental equipment of the three dimensional electrode

1.4 检测分析方法

试验参照《水和废水监测分析方法》(第四版)对主要水质指标进行测定. 苯酚采用 4-氨基安替比林分光光度法测定. 采用场发射扫描电子显微镜对负载型粒子电极的表面形貌进行表征分析,同时采用与场发射扫描电子显微镜配备的 X 射线能谱仪对负载型粒子电极中元素的含量进行检测分析. 采用 X 射线衍射仪对负载型粒子电极的物相组成和晶型结构等进行表征分析. 采用 BET 比表面积分析仪对负载型粒子电极的比表面积进行表征分析.

2 试验结果与分析

2.1 不同粒子电极的电催化性能

固定三维电极体系的反应条件如 1.3 中

所述. 将未负载和负载型粒子电极分别投加到三维电极反应器中,以苯酚的去除率 η_1 来评价负载型粒子电极的电催化性能. 试验结果见图 2.

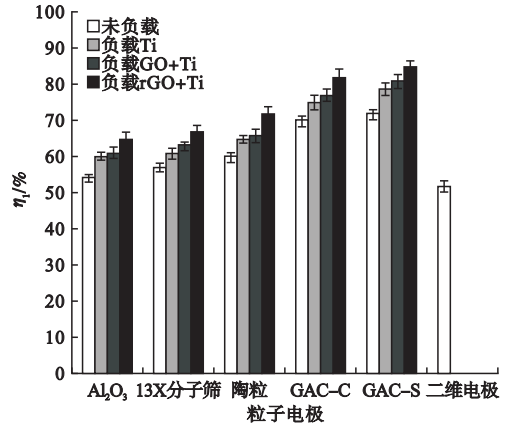


图2 不同常规粒子电极负载前后对苯酚的去除率

Fig. 2 Removal rate of phenol before and after loading by different conventional particle electrodes

由图 2 可知,无填充的传统二维电极对苯酚的去除率仅为 52.03%,三维电极对苯酚的去除率均比二维电极有所提升. 5 种常规粒子电极经单一负载和复合负载后对苯酚的电催化性能都得到提高,其中单一负载 Ti 后相对于原粒子电极的催化性能提高 5% 左右,对 GAC-S 提高 7.21% 较为明显. GO 与 TiO_2 进行复合负载时,相比于只负载 TiO_2 的催化性能并没有显著提高. rGO 与 TiO_2 进行复合负载时,比只负载 TiO_2 的催化性能提高 6% 左右. 5 种常规粒子电极中 GAC-S 的电催化性能最高,对苯酚去除率达到 72.15%,经 rGO 与 TiO_2 的复合负载之后, Ti-rGO/GAC-S 粒子电极相比于原 GAC-S 的催化性能提高了 13.11%, Ti-rGO/GAC-S 粒子电极对苯酚的去除率最高,达到 85.26%. 分析其原因为破碎状不规则 GAC-S 的比表面积较大且具有丰富的官能团,能更好地与 rGO 和 TiO_2 发生物理化学反应,吸附富集污染物,有利于下一步电催化降解苯酚的反应. 根据试验效果比较,筛选出 GAC-S 作为最佳复合型粒子电极的

载体材料.

2.2 Ti-rGO/GAC 粒子电极制备的正交试验

为了提高 Ti-rGO/GAC (GAC 表示椰壳活性炭 GAC-S) 粒子电极的电催化性能, 优化其制备条件, 笔者设计正交试验, 筛选出 Ti-rGO/GAC 粒子电极的最优因素水平组合. 固定三维电极体系的反应条件如 1.3 中所述, 苯酚去除率 η_1 作为评价指标, 固定 GAC-S 的质量为 50 g, 选取钛酸丁酯液体投加量、rGO 投加量、煅烧温度、煅烧时间 4 个因素, 每个因素取 3 水平值, 按 $L_9(3^4)$ 进行正交试验, 结果见表 1.

表 1 正交试验结果直观分析表

Table 1 Visual analysis table of orthogonal experiment results

试验序号	钛酸丁酯投加量/mL	rGO 投加量/g	煅烧温度/℃	煅烧时间/h	评价指标 $\eta_1/\%$
1	55	0.1	200	1	80.12
2	55	0.2	300	2	81.89
3	55	0.3	400	3	82.31
4	65	0.1	300	3	84.92
5	65	0.2	400	1	87.33
6	65	0.3	200	2	84.09
7	75	0.1	400	2	86.82
8	75	0.2	200	3	84.58
9	75	0.3	300	1	86.25

由表 1 可以看出, 9 组试验结果中 5 号试验的苯酚去除率最高, 为 87.33%. 但 5 号试验方案并不一定是最优方案, 需要通过进一步的数理分析来寻找可能存在的更好方案^[12].

在正交试验中, 为了判断出各因素对试验结果影响程度的主次顺序, 需要对正交试验结果进行极差分析. 计算各因素对应的极差, 确定其重要程度, 极差 R 值越大的因素对试验结果的影响程度越大^[12]. 表 1 中钛酸丁酯液体投加量、石墨烯投加量、煅烧温度和煅烧时间这 4 个因素对苯酚去除率的极差分别为 4.44、0.65、2.56 和 0.63, 由极差的大小可知, 影响苯酚去除率因素的主次顺序从大到小依次为钛酸丁酯液体投加量、煅烧温度、rGO 投加量、煅烧时间. 以上 4 个因素对苯酚去除率影响程度的主次顺序是保持一致的, 为了确定 Ti-rGO/GAC 粒子电极的最优因素水平组合, 在计算出各因素各水平试验结果的平均值后, 应选取苯酚最高平均去除率所对应的水平值, 所以从理论上计算出的 Ti-rGO/GAC 粒子电极最佳制备条件为钛酸丁酯投加量为 75 mL、rGO 投加量为 0.2 g、煅烧温度为 400 ℃、煅烧时间为 1 h.

2.3 粒子电极的表征与特征分析

2.3.1 SEM 和 EDS 分析

粒子电极 SEM 表征如图 3 所示.

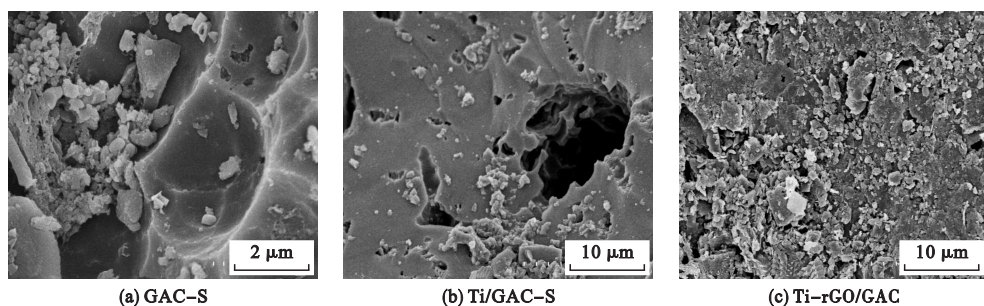


图 3 粒子电极 SEM 图

Fig. 3 SEM images of particulate electrodes

从图中可以看出, 未负载的 GAC-S 凹槽表面相对光滑 (见图 3(a)), 单独负载 Ti 后出现了结晶化的性状, 未掺入 rGO 的 Ti/GAC-S 粒子电极比表面积较小, 虽有明显

的晶粒生成, 但分布不均匀 (见图 3(b)), 且易脱落及活性位点少, 因而电催化性能不高. 而负载 rGO 后提高了金属的分散性 (见图 3(c)), 且存在于 GAC-S 凹槽及孔缝结构

中,比表面积进一步增大,粒子电极表面表现为均匀有序的微观结构,晶体结构牢固,粗糙度较大,为污染物的吸附以及电化学反应的进行提供丰富的活性位点,有利于电解质溶液在粒子电极内部的传质。

对最优条件下制备的 Ti - rGO/GAC 粒子电极的电镜图像上随机采集一块独立区的能谱进行 EDS 分析,结果如图 4 所示。

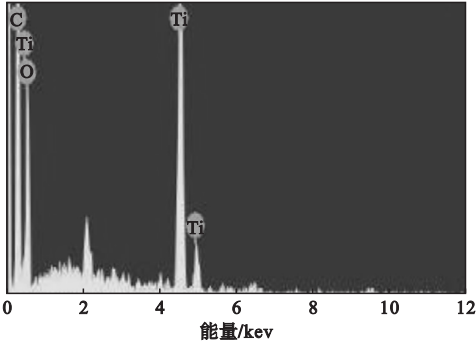


图 4 Ti - rGO/GAC 的能谱图

Fig. 4 EDS spectra of Ti - rGO/GAC

由图4可知,Ti - rGO/GAC粒子电极中

含有 C、Ti、O 等化学元素,说明复合型粒子电极中无其他元素的杂质,避免了试验中其他元素对试验效果的干扰。

2.3.2 BET 分析

为了比较 GAC - S 负载前后比表面积的变化情况,对 GAC - S、Ti - rGO/GAC 粒子电极进行 BET 分析,结果如图 5 所示。图中, P/P_0 为相对压强。

由图 5 可知,未负载 GAC - S 的比表面积为 $641.337 \text{ m}^2/\text{g}$,复合负载后 Ti - rGO/GAC 粒子电极的比表面积为 $680.006 \text{ m}^2/\text{g}$,即复合负载后粒子电极比表面积增大,有利于对污染物的吸附,增加了粒子电极与污染物的电化学反应活性位点,提高了对污染物的去除率。

2.3.3 XRD 分析

对最优条件下制备的 Ti - rGO/GAC 粒子电极负载前后进行 XRD 表征,检测结果如图 6 所示。

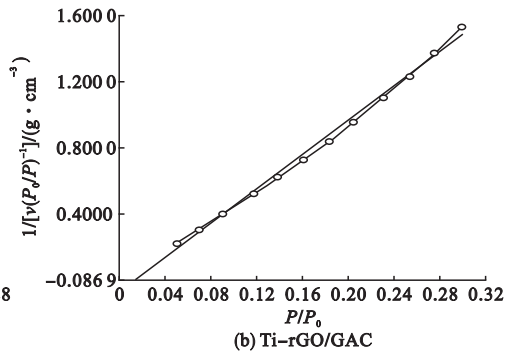
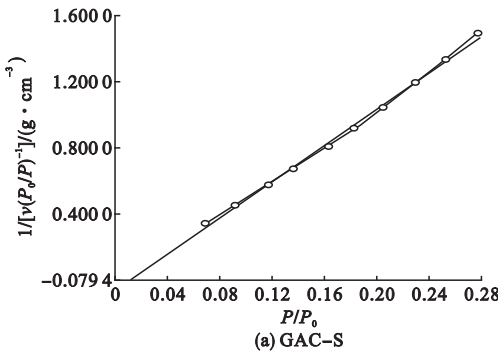


图 5 比表面积谱图

Fig. 5 Specific surface area spectra

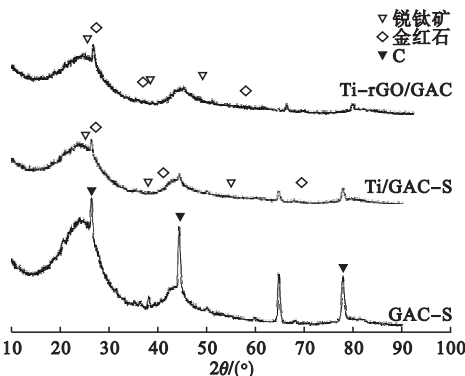


图 6 粒子电极的 XRD

Fig. 6 XRD of particle electrode

通过 Jade 软件对 XRD 数据分析可知,在原始 GAC - S 中主要检测到 C(PDF#26 - 1080),主要衍射角 2θ 为 26.603° 、 44.669° 、 77.697° ;在负载后的 Ti/GAC - S 和 Ti - rGO/GAC 粒子电极中同时检测到锐钛矿型(PDF#21 - 1272)和金红石型(PDF#21 - 1276)两种晶型的 TiO_2 ,主要衍射角分别为 25.281° 、 37.800° 、 55.060° , 27.446° 、 41.225° 、 69.008° 和 25.281° 、 37.800° 、 48.049° 、 27.446° 、 36.085° 、 56.640° 。说明负

载型粒子电极制备过程中均形成 TiO_2 覆盖在 GAC-S 表面,所以峰值比单独的 GAC-S 峰值降低,而出现的 TiO_2 衍射峰平缓,表明煅烧时并未发生严重烧结,有效提高了负载型粒子电极的电催化性能,证明金属氧化物成功负载于载体上。

2.3.4 LSV 分析

为了表征三维电极体系中粒子电极的电化学性能,电化学工作站测试体系如图 7 所示.使用 $10\text{ cm} \times 10\text{ cm}$ 的钛镀钌铱极板作为工作电极, $10\text{ cm} \times 10\text{ cm}$ 的不锈钢板作为辅助电极,Ti-rGO/GAC 粒子电极填充两极板之间,饱和甘汞电极 (SCE) 作为参比电极^[13].

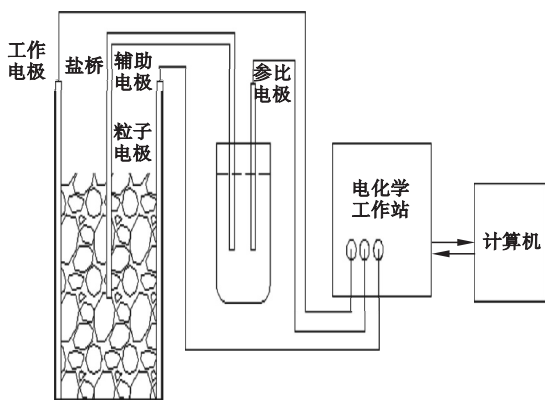


图 7 电化学工作站测试体系

Fig. 7 Schematic diagram of electrochemical test

如果析氧电位低,在较低电位下,则会有 O_2 生成,与电解污染物发生竞争反应,降低反应器的电流效率^[14].较高的析氧电位会减少析氧反应的发生,提高对污染物的降解效率。

在温度 25°C 条件下,采用线性扫描伏安法 (Linear Sweep Voltammetry, LSV). 参数设置:初始电位 $E_0 = 0\text{ V}$,终止电位 $E_1 = 2.5\text{ V}$,采样间隔为 0.01 V ,扫描速度为 50 mV/s ,在 0.25 mol/L 的 NaOH 、 Na_2SO_4 、 H_2SO_4 溶液中,分别测量二维电极和三维电极的线性扫描伏安曲线,结果见图 8,图中曲线 a 表示二维电极的线性扫描伏安曲线,曲线 b 表示三维电极的线性扫描伏安曲线。

通过对图 8 中线性扫描伏安曲线拟合可以计算出,在 0.25 mol/L 的 NaOH 、 Na_2SO_4 、 H_2SO_4 溶液中二维和三维电极体系的析氧电位分别为 1.28 V 、 1.30 V 、 1.31 V 、 1.36 V 及 1.43 V 、 1.45 V .可以看出二维和三维电极体系在相同测试溶液中的析氧电位没有出现显著变化,说明阳极材料的性能是决定析氧电位高低的主要因素^[7],投加的 Ti-rGO/GAC 粒子电极对析氧电位的影响较小.对比可知,二维和三维电极体系在 H_2SO_4 溶液中析氧电位最高,会减少析氧副反应的发生,而在

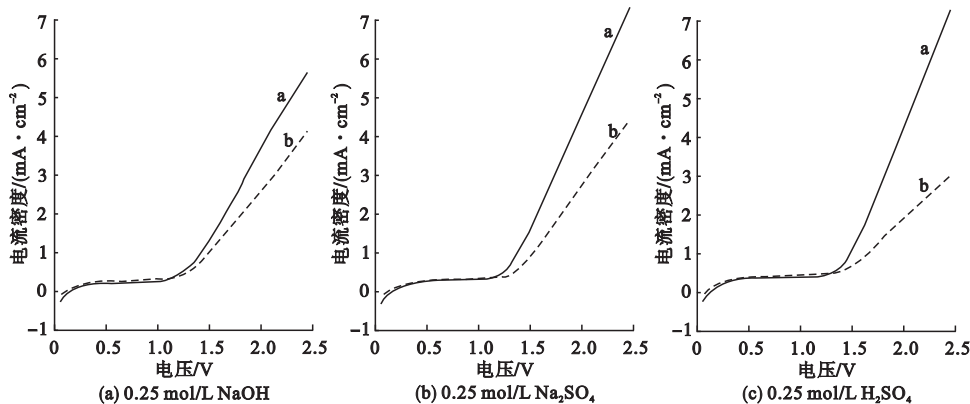


图 8 不同溶液中二维、三维电极体系的线性扫描伏安曲线图

Fig. 8 Linear sweep voltammetry curves of two and three dimensional electrode in different solutions

NaOH 溶液中的析氧电位最低,不利于反应器对污染物的电催化降解,酸碱溶液中析氧电位的高低与其对应的析氧方式不同有关。

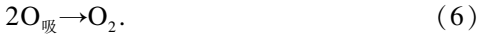
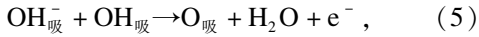
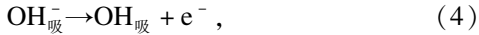
文献^[15]给出,酸性溶液中析氧机理为 $\text{H}_2\text{O}_{\text{吸}} \rightarrow \cdot\text{OH}_{\text{吸}} + \text{H}^+ + \text{e}^-$, (1)

$\text{gOH}_{\text{吸}} \rightarrow \text{O}_{\text{吸}} + \text{H}^+ + \text{e}^-$, (2)



其中反应式(1)为控制步骤.

碱性溶液中析氧机理为



当电流密度较高时,反应式(4)为控制步骤;当电流密度较低时,反应式(5)为控制步骤.

由酸碱溶液中的析氧方式可知,二维和三维电极体系中的酸性或中性溶液较有利于对污染物的电催化降解^[16-18].从图8中还可以看出,在相同溶液中二维和三维电极体系在析氧电位之前的电流密度非常相近,测试结果表明 Ti-rGO/GAC 粒子电极的绝缘性

良好,GAC-S 表面的负载层能有效地减少短路电流的形成.在析氧电位之后,与二维电极系统相比,三维电极系统的析氧电流密度低很多,是因为在电化学反应中,析氧反应主要发生在阳极表面,而投加的粒子电极覆盖了阳极表面空间,减少了析氧反应的区域,故三维电极系统的析氧电流密度比二维电极系统小^[7].

2.3.5 CV 分析

GAC-S 和 Ti-rGO/GAC 粒子电极在 25 °C、50 mV/s 的扫描速度下,分别在浓度 0.25 mol/L 的 Na₂SO₄ 溶液、质量浓度 300 mg/L 苯酚的溶液中测得三维电极体系的 CV 曲线(见图9).

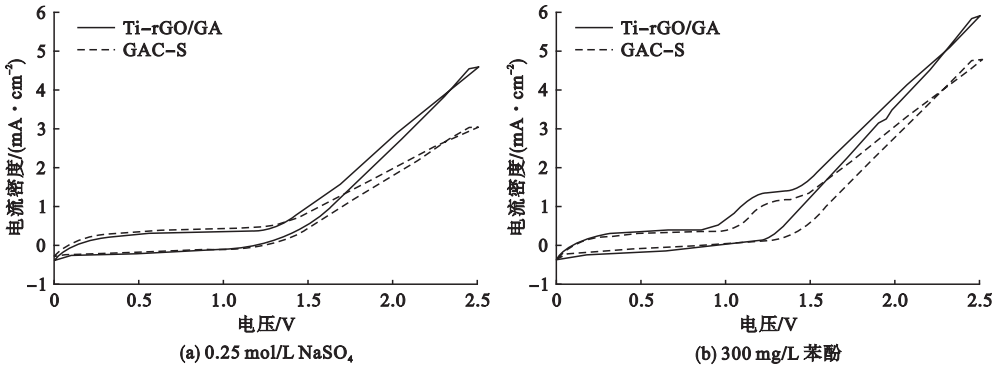


图9 改性前后粒子电极在不同溶液中的循环伏安曲线

Fig.9 Cyclic voltammetry curves of particle electrodes before and after modification in different solutions

由图9(a)可知,改性前 GAC-S 粒子电极的析氧电位为 1.34 V,由图8(b)已知改性后 Ti-rGO/GAC 粒子电极的析氧电位为 1.36 V,改性后的 Ti-rGO/GAC 与 GAC-S 粒子电极相比,析氧电位提高了 0.02 V,说明 TiO₂ 和 rGO 的引入能够提升三维电极体系的析氧电位.图9(a)中,无论投加的是 GAC-S 还是 Ti-rGO/GAC 粒子电极,在浓度 0.25 mol/L 的 Na₂SO₄ 溶液中都出现没有氧化峰,而在同时含有 300 mg/L 苯酚和 0.25 mol/L Na₂SO₄ 的溶液中都出现了不可逆的氧化峰,这是苯酚在电极上发生了直接氧化反应引起的.GAC-S 和 Ti-rGO/GAC 体系的循环伏安曲线氧化峰对应的电流密度

分别为 1.10 mA/cm² 和 1.23 mA/cm²,对应的氧化峰电位分别为 1.26 V 和 1.15 V,电位差值为 0.11 V,氧化峰电位差值大于 0.07 V,这充分表明改性后的 Ti-rGO/GAC 粒子电极提高了三维电极体系对苯酚的直接氧化能力.

3 结论

(1) 试验结果表明 Ti-rGO/GAC 粒子电极催化活性最好,对苯酚去除率为 85.26%.

(2) 通过正交试验优化 Ti-rGO/GAC 粒子电极的制备条件为钛酸丁酯投加量 75 mL、rGO 投加量 0.2 g、煅烧温度 400 °C、煅烧时间 1 h.

(3) 采用 SEM、EDS、BET、XRD、LSV、CV 表征发现,负载 rGO 后比表面积增大,具有丰富的孔结构,绝缘性好,在 GAC-S 上负载的 TiO₂ 晶型为锐钛矿型和金红石型。

参考文献

- [1] KUMAR S, OJHA A K, PATRICE D, et al. One-step in situ synthesis of CeO₂ nano particles grown on reduced graphene oxide as an excellent fluorescent and photocatalyst material under sunlight irradiation[J]. Physical chemistry chemical physics, 2016, 18 (16): 11157 - 11167.
- [2] KUMAR D R, WANG Yan, VASILYEVA S V, et al. Extraordinary hydrogen evolution and oxidation reaction activity from carbon nano tubes and graphitic carbons [J]. Acsnano, 2014, 8(8): 8447 - 8456.
- [3] 唐朝春, 段先月, 叶鑫, 等. 石墨烯的制备及其在水处理中的应用研究进展[J]. 工业水处理, 2017, 37(3): 10 - 15.
(TANG Chaochun, Duan Xianyue, Ye Xin, et al. Progress in the preparation of graphene and its application to water treatment [J]. Industrial water treatment, 2017, 37 (3): 10 - 15.)
- [4] 吴诗德, 宋彦良, 李超, 等. 石墨烯材料的制备及其在电化学领域的应用[J]. 材料导报, 2011, 25(3): 55 - 59.
(WU Shide, SONG Yanliang, LI Chao, et al. Preparation and applications in electrochemistry of graphene-based materials [J]. Materials review, 2011, 25(3): 55 - 59.)
- [5] 傅金祥, 孟海停, 何祥, 等. 石墨烯及其复合材料在环境领域中的应用研究进展[J]. 环境污染与防治, 2018, 40(5): 609 - 615.
(FU Jinxiang, MENG Haiting, HE Xiang, et al. Research progress on environmental applications of graphene and its composites [J]. Environmental pollution and control, 2018, 40 (5): 609 - 615.)
- [6] 班福忱, 赵晓彤, 武玉萍, 等. 三维电极/电 Fenton 法处理苯酚废水机理研究[J]. 沈阳建筑大学学报(自然科学版), 2014, 30(1): 137 - 141.
(BAN Fuchen, ZHAO Xiaotong, WU Yuping, et al. Study on mechanism of phenol wastewater degradation by three-dimensional/electrical-fenton method [J]. Journal of Shenyang jianzhu university (natural science), 2014, 30(1): 137 - 141.)
- [7] ZHAO X, LI A, MAO R, et al. Electrochemical removal of haloacetic acids in a three-dimensional electrochemical reactor with Pd-GAC particles as fixed filler and Pd-modified carbon paper as cathode [J]. Water research, 2014, 51 (1): 134.
- [8] 张显峰, 王德军, 赵朝成, 等. 三维电极电催化氧化法处理废水的研究进展[J]. 物理化学学报, 2016, 36(3): 250 - 254.
(ZHANG Xianfeng, WANG Dejun, ZHAO Chaocheng, et al. Research progress in treatment of wastewater by three-dimensional electrode catalytic oxidation process [J]. Acta phys. sinica, 2016, 36(3): 250 - 254.)
- [9] HE Wenyan, MA Qingliang, WANG Jing, et al. Preparation of novel kaolin-based particle electrodes for treating methyl orange wastewater [J]. Applied clay science, 2014, 99: 178 - 186.
- [10] CHEN Z, ZHANG Y, ZHOU L, et al. Performance of nitrogen-doped graphene aerogel particle electrodes for electro-catalytic oxidation of simulated bisphenol a wastewaters [J]. Journal of hazardous materials, 2017, 332: 70 - 78.
- [11] 吴娜娜, 郑璐, 李亚峰, 等. 三维电极法处理有机废水的研究进展[J]. 工业水处理, 2016, 36(8): 840 - 846.
(WU Nana, ZHENG Lu, LI Yafeng, et al. Research progress in the treatment of organic wastewater by three-dimensional electrode method [J]. Industrial water treatment, 2016, 36(8): 840 - 846.)
- [12] 刘文卿. 实验设计 [M]. 北京: 清华大学出版社, 2002.
(LIU Wenqing. Experimental design [M]. Beijing: Tsinghua university press, 2002.)
- [13] 辛岳红, 魏刚, 魏云鹏, 等. 沸石负载复合氧化物粒子电极的制备及其电催化活性[J]. 北京化工大学学报(自然科学版), 2010, 37(2): 54 - 58.
(XIN Yuehong, WEI Gang, WEI Yunpeng, et al. Preparation of particle electrodes of zeolites loaded with composite oxides and a study of their electrocatalytic activity [J]. Journal of Beijing university of chemical technology (natural science edition), 2010, 37(2): 54 - 58.)
- [14] LI X Y, CUI Y H, FENG Y J, et al. Reaction pathways and mechanisms of the electrochemical degradation of phenol on different electrodes [J]. Water research, 2005, 39 (10): 1972 - 81.
- [15] 查全性. 电极过程动力学导论 [M]. 3 版. 北京: 科学出版社, 2002.
(CHA Quanxing. Introduction to electrode process dynamics [M]. 3rd ed. Beijing: Science Press, 2002.)
- [16] LIU Wei, AI Zhihui, ZHANG Lizhi. Design of a neutral three-dimensional electro-fenton system with foamnicketal as particle electrodes for wastewater treatment [J]. Journal of hazardous materials, 2012, 243: 257 - 264.
- [17] MOHAJERI S, AZIZ H A, ISA M H, et al. Statistical optimization of process parameters for landfill leachate treatment using electro-fenton technique [J]. Journal of hazardous materials, 2010, 176(1/2/3): 749 - 758.
- [18] NIDHEESH P V, GANDHIMATHIR. Trends in electro-fenton process for water and wastewater treatment: An overview [J]. Desalination, 2012, 299: 1 - 15.