

doi: 10.11835/j.issn.1000-582X.2022.267

# 过硫酸盐协同电化学体系去除渗滤液中富里酸

于志鹏, 王以茜, 曾晓岚

(重庆大学 教育部三峡库区生态环境重点实验室, 重庆 400045)

**摘要:** 中国多数焚烧厂采用“MBR+反渗透”工艺处理渗滤液, 该工艺的反渗透膜进水富里酸含量偏高, 是导致反渗透膜结垢污染的原因之一。为降低反渗透膜进水中富里酸含量, 研究以过硫酸盐协同电化学体系处理自配富里酸废水, 讨论体系中去富里酸的主要活性物质, 并考察了初始 pH 值、过硫酸盐投加量、电流密度、极板间距、NaCl 质量浓度对富里酸去除率的影响。在此基础上, 考察协同体系处理实际焚烧厂渗滤液 MBR 出水的效果。结果表明: 过硫酸盐协同电化学体系对富里酸的去除能力主要由  $\text{SO}_4^{\cdot-}$ 、 $\cdot\text{OH}$  和  $\text{Cl}^-$  生成的  $\text{HClO}$  提供, 其中  $\text{HClO}$  有着较大的贡献, 其次是  $\cdot\text{OH}$ ,  $\text{SO}_4^{\cdot-}$  贡献最小。初始 pH 及极板间距对富里酸去除率的影响不大; 富里酸去除率随初始过硫酸盐浓度的增大先升高后降低; 随电流密度增加先增加后不变; 随  $\text{Cl}^-$  质量浓度增大而略微降低。其中, 过硫酸盐投加量、电流密度是主要的影响因素。采用过硫酸盐协同电化学体系处理实际焚烧厂渗滤液 MBR 出水, 在电流密度  $30 \text{ mA/cm}^2$ 、过硫酸钾  $9 \text{ g/L}$  的条件下反应 6 h, 三维荧光光谱结果显示, 可见光及紫外光区富里酸的去除率分别达到 98.65% 和 97.80%。过硫酸盐协同电化学体系能够有效去除实际废水中的富里酸。

**关键词:** 富里酸; 过硫酸盐; 活性物质; 影响因素; 垃圾渗滤液 MBR 出水; 电化学

中图分类号: X703.1

文献标志码: A

文章编号: 1000-582X(2023)12-034-09

## Electrochemistry and persulfate synergistic action to remove fulvic acid from leachate

YU Zhipeng, WANG Yiqian, ZENG Xiaolan

(Key Laboratory of the Ministry of education of the Three Gorges Reservoir Area, Chongqing University, Chongqing 400045, P. R. China)

**Abstract:** The treatment of leachate from most incineration plants in China often involves the use of “membrane bioreactor (MBR) + reverse osmosis” technology. However, this process faces challenges due to the high concentration of fulvic acid in the reverse osmosis system influent, resulting in membrane fouling. In this study, a persulfate synergistic electrochemical system (EC+PS system) was used to reduce the fulvic acid concentration. The study focused on identifying the main active substances responsible for removing fulvic acid in the system.

收稿日期: 2022-03-29 网络出版日期: 2022-06-07

基金项目: 重庆市建委科技计划资助项目(城科字第 {2015-1-31} 号); 重庆大学大型仪器设备开放基金资助项目(202103150126)。

Supported by Science and Technology Plan Project of Chongqing Housing and Urban Rural Construction Commission (City Technology No. {2015-1-31}) and Sharing Fund of Chongqing University's Large-Scale Equipment (202103150126).

作者简介: 于志鹏(1995—), 男, 硕士研究生, 主要从事水污染控制技术方向的研究。

通信作者: 曾晓岚, 女, 副教授, 博士生导师, (E-mail)wendyzeng@cqu.edu.cn。

The effect of initial pH value, persulfate dosage(PS), current density, plate space, NaCl concentration on the degradation of fulvic acid was investigated. The results showed that fulvic acid removal mainly relied on  $\text{Cl}^-$  provided by  $\text{HClO}$ ,  $\cdot\text{OH}$  and  $\text{SO}_4\cdot^-$  in succession. The fulvic acid removal rate decreased slightly with increasing initial pH and plate spacing, exhibited an initial increase followed by a decrease with rising initial PS concentration, showed an initial increase followed by stability with increasing current density, and slightly decreased with the increase of  $\text{Cl}^-$  concentration. Both current density and persulfate dosage were identified as the main influencing factors for fulvic acid removal. In practical applications, the leachate effluent from the MBR of an actual incinerator was treated using the EC+PS system under a current density  $30 \text{ mA/cm}^2$ , potassium persulfate  $9 \text{ g/L}$  and reaction time  $6 \text{ h}$ . Three-dimensional fluorescence spectrum analysis showed that the removal rate of fulvic acid in both visible and ultraviolet regions reached  $98.65\%$  and  $97.80\%$ , respectively, indicating the effectiveness of the EC+PS system in removing fulvic acid from real wastewater samples.

**Keywords:** fulvic acid; persulfate; active substances; influence factor; leachate effluent of MBR; electrochemical

“膜生物反应器(membrane bioreactor, MBR)+反渗透技术”在中国垃圾焚烧厂渗滤液的处理中应用较多。相关文献表明,焚烧厂 MBR 出水中富里酸质量浓度较高<sup>[1,2]</sup>,且类富里酸是反渗透膜污垢的主要有机成分<sup>[2]</sup>,因此,降低 MBR 出水中富里酸含量能有效缓解反渗透膜结垢。

过硫酸盐高级氧化技术因其对难降解有机物有较强的去除能力,近年来被广泛研究<sup>[3]</sup>。过硫酸盐(persulfate, PS)在外界条件的激发下,生成的  $\text{SO}_4\cdot^-$  ( $E_0=2.5\sim 3.1 \text{ V}$ ) 的寿命比  $\cdot\text{OH}$  ( $E_0=1.98\sim 2.72 \text{ V}$ ) 长<sup>[4]</sup>,因此  $\text{SO}_4\cdot^-$  有更多的时间迁移到有机污染物表面并与其充分接触,更加有利于有机污染物降解。电化学法(electrochemical, EC)的装置简单可靠,并能在投入较少运行成本的情况下更高效地降解水中污染物<sup>[5]</sup>。当采用过硫酸盐协同电化学体系(EC+PS)体系处理有机物时,体系中可产生多种途径降解有机物,两种方法联用时可显著增加污染物的降解效率<sup>[6-8]</sup>。现有 EC+PS 法处理渗滤液的研究,主要集中在对垃圾填埋场渗滤液以及填埋场纳滤膜浓缩液的处理应用方面,大多以考察 COD 的达标排放为目标,如:Cui 等<sup>[9]</sup>采用额外投加  $\text{Fe}^{3+}$  的 EC+PS 体系处理垃圾填埋场超滤浓缩液,探究了该体系对 COD<sub>Cr</sub> 的去除效果以及电流密度、过硫酸盐投加量、 $\text{Fe}^{3+}$  投加量对 COD<sub>Cr</sub> 氧化去除率和絮凝去除率的影响;郭晓磊<sup>[10]</sup>采用阴阳极隔开的 EC+PS 体系处理垃圾填埋场超滤浓缩液,探究了该体系对 COD<sub>Cr</sub>、BOD<sub>5</sub> 以及  $\text{NO}_3^-$ -N 等水质指标的处理效果;Zhang 等<sup>[11]</sup>采用额外投加  $\text{Fe}^{2+}$  的 EC+PS 体系处理垃圾填埋场渗滤液,探究了该体系对填埋场渗滤液中 COD<sub>Cr</sub> 的去除效果,以及电流密度、过硫酸盐投加量、 $\text{Fe}^{2+}$  投加量对渗滤液 COD<sub>Cr</sub> 氧化去除率和絮凝去除率的影响等。

考虑到垃圾焚烧厂与填埋场产生的渗滤液水质不同,焚烧厂 MBR 工艺处理出水与填埋场渗滤液、纳滤膜浓缩液中所含污染物以及  $\text{Cl}^-$  等影响 EC+PS 体系作用效果的物质浓度也差异显著,本研究以减缓反渗透膜结垢为目标,采用 UV254、三维荧光光谱类富里酸区体积分值为考察富里酸降解的指标参数,研究采用 EC+PS 体系处理垃圾焚烧厂渗滤液 MBR 出水富里酸的作用机理和去除效果,即首先通过在自配富里酸废水中投加不同的自由基捕获剂探明体系中的活性物质及其贡献,其次考察初始 pH、过硫酸盐投加量、电流密度、极板间距、NaCl 质量浓度对富里酸去除率的影响,最后在上述单因素实验的基础上,选取较优的操作参数,对实际焚烧厂渗滤液 MBR 出水中富里酸的去除效果进行了验证,为减缓焚烧厂渗滤液处理反渗透膜污染提供技术支持。

## 1 材料与方法

### 1.1 试验材料与仪器

本研究实验用水为自配  $400 \text{ mg/L}$  的富里酸废水以及重庆丰盛垃圾焚烧厂 MBR 出水。

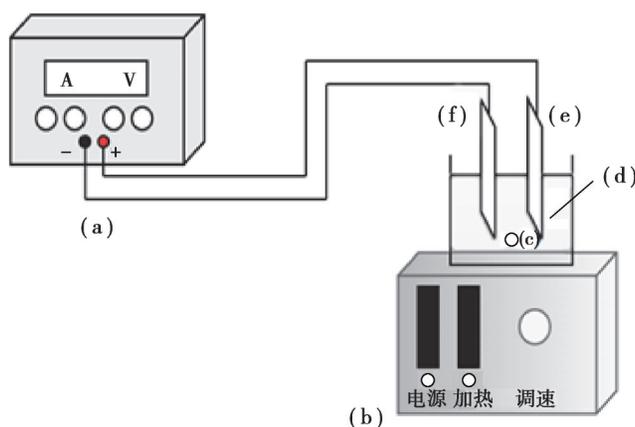
实验试剂:富里酸(FA,  $\geq$ 质量分数 90%),购自上海阿拉丁生化科技股份有限公司;过硫酸钾( $\text{K}_2\text{S}_2\text{O}_8$ , AR)、甲醇( $\text{CH}_3\text{OH}$ , AR)、氯化钠( $\text{NaCl}$ , AR)、浓硫酸( $\text{H}_2\text{SO}_4$ , AR)、硫酸铵( $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ , AR)均购自重庆川东化工(集团)有限公司;硝酸钠( $\text{NaNO}_3$ , AR)、氢氧化钠( $\text{NaOH}$ , AR)、叔丁醇( $\text{C}_4\text{H}_{10}\text{O}$ , AR)均购自成都市科隆

化学品有限公司。

实验仪器:直流电源(MP3010DS),深圳迈盛电子仪器设备厂;磁力搅拌器(SH-2),常州市亿能实验仪器厂;pH计(PHS-3C),上海雷磁电科学仪器股份有限公司;紫外可见分光光度计(Model721),上海菁华仪器有限公司;荧光分光光度计(日立F-7000型),日立高新技术公司;电化学工作站(CHI660E),上海辰华仪器有限公司。

## 1.2 实验装置

本研究采用的有机玻璃矩形槽反应器(100 mm×40 mm×100 mm)如图1所示,配直流电源、磁力搅拌器。阳极材料为Ti/IrO<sub>2</sub>(100 mm×40 mm×1 mm,宝鸡先卓金属科技有限公司),阴极材料为不锈钢(100 mm×40 mm×1 mm,宝鸡先卓金属科技有限公司)。



a—直流电源;b—磁力搅拌器;c—转子;d—目标废水;e—阳极;f—阴极

图1 试验装置示意图

Fig. 1 Schematic diagram of experimental device

## 1.3 分析方法

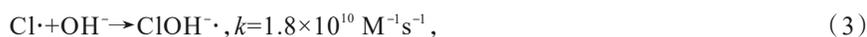
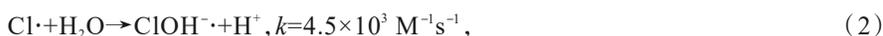
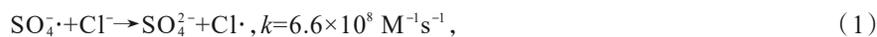
在采用自配富里酸废水的试验中,通过测定UV254以研究富里酸质量浓度变化。在处理实际渗滤液的研究中,因天然有机物等的存在影响了UV254对富里酸的准确反映,故通过测定三维荧光光谱并计算体积积分值以研究富里酸质量浓度变化。

## 2 结果与讨论

### 2.1 EC+PS协同体系的作用机理

固定初始PS质量浓度为6 g/L,NaCl质量浓度为3 g/L,极板间距为3 cm,电流密度30 mA/cm<sup>2</sup>,当不添加自由基捕获剂与分别添加2 mol/L甲醇、叔丁醇、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>时,EC+PS反应体系对富里酸的去除率如图2所示。

从图2可以看出,在分别添加MA、TBA和NH<sub>4</sub><sup>+</sup>三种捕获剂条件下,反应180 min后富里酸的去除率由68.13%降为51.30%、53.55%和25.79%,其中添加NH<sub>4</sub><sup>+</sup>的体系富里酸去除率的下降幅度最大,达到42.34%,其次是添加MA捕获剂的体系,达到16.83%,而添加TBA的体系,富里酸去除率的下降幅度为14.58%。由于MA对·OH和SO<sub>4</sub><sup>-</sup>·均具有捕获能力,TBA仅对·OH有捕获能力,而NH<sub>4</sub><sup>+</sup>是HClO的捕获剂<sup>[12]</sup>,与·OH、SO<sub>4</sub><sup>-</sup>·均不发生作用,说明体系中存在HClO、·OH和SO<sub>4</sub><sup>-</sup>·,这三种活性物质对富里酸去除率的贡献分别为42.34%、14.58%、2.25%。SO<sub>4</sub><sup>-</sup>·贡献最小,这可能是因为在高浓度Cl<sup>-</sup>存在时,SO<sub>4</sub><sup>-</sup>·与Cl<sup>-</sup>反应,转化为·OH<sup>[13-14]</sup>,如式(1)~(4)所示<sup>[14]</sup>。



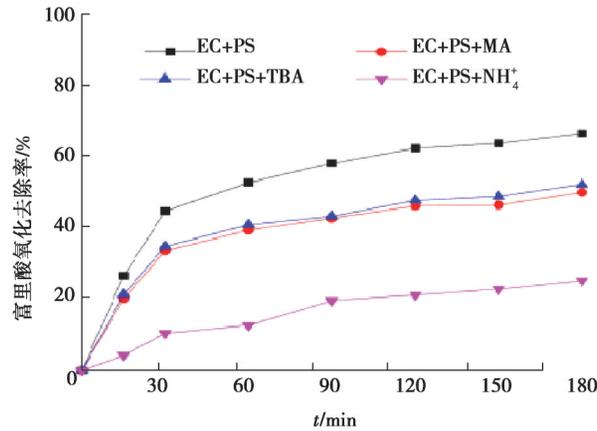
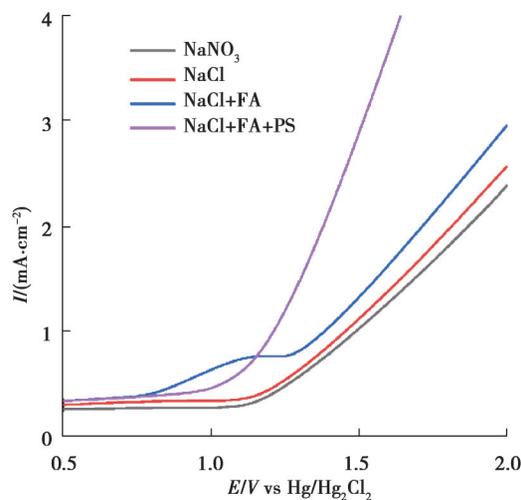


图 2 自由基捕获剂对 EC+PS 体系去除富里酸的影响

Fig. 2 Effects of free radical scavenger on the oxidation removal rate of fulvic acid in EC+PS system

为进一步验证 EC+PS 体系对富里酸的去除机理,在 NaCl 质量浓度为 3 g/L, NaNO<sub>3</sub> 质量浓度为 4.37 g/L, 初始 PS 质量浓度为 6 g/L, 扫描速度 0.005 V/s 的试验条件下,绘制了不同电解质溶液时的线性扫描伏安特性曲线。如图 3 所示,在只添加了惰性电解质 NaNO<sub>3</sub> 的试验中,曲线在 1.3 V 左右开始升高,这是电解水析出氧气的贡献。添加 Cl<sup>-</sup> 略微增加了电流响应,说明有析氯反应发生,虽然体系中会同时发生析氧反应,但据文献报导, IrO<sub>2</sub> 对析氯反应具有选择性,析氯电流占 88%<sup>[15]</sup>,故此时阳极主要反应为析氯反应。继续添加富里酸后发现,在 1.2 V 左右存在一个氧化峰,且响应电流增加,这说明 FA 在阳极能够直接氧化。在添加了 NaCl、FA、PS 的试验中,响应电流显著增加,FA 氧化峰消失,氧化峰消失是因为,析氯电位减小至 1.1 V 左右,小于了 FA 的氧化电位,响应电流显著增加可能是因为加入 PS 后体系中产生的 SO<sub>4</sub><sup>·-</sup> 转化生成的 ·OH 初步氧化了 FA,促进了 FA 及其降解中产物在阳极的氧化,产生了协同作用,故响应电流增加。上述实验表明, Ti/IrO<sub>2</sub> 阳极在目标废水中能够发生析氯反应,与 NH<sub>4</sub><sup>+</sup> 的淬灭实验结果一致,且 FA 能够一定程度在阳极直接氧化。

图 3 Ti/IrO<sub>2</sub> 阳极在不同溶液中的线性扫描伏安曲线Fig. 3 Linear sweep voltammetry curves of Ti/IrO<sub>2</sub> anode in different solutions

## 2.2 初始 pH 对 EC+PS 协同体系去除富里酸的影响

固定初始 PS 为 6 g/L, NaCl 质量浓度为 3 g/L, 极板间距为 3 cm, 电流密度 30 mA/cm<sup>2</sup>, 当初始 pH 分别为 3、5、7 和 9 时, EC+PS 反应体系对富里酸的去除率如图 4 所示。

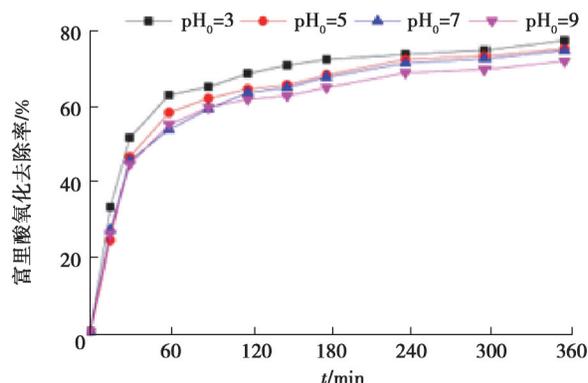
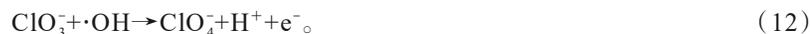
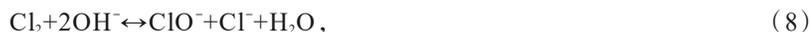


图4 不同初始pH下富里酸的去除率随时间的变化

Fig. 4 Fulvic acid removal rates with time change under different initial pH values

由图4可知,反应体系中初始pH分别为3、5、7和9时,对应的富里酸去除率分别达到77.95%、75.76%、75.25%和72.38%,总体呈降低的趋势。这是因为,在酸性条件下, $H^+$ 存在不利于阴极生成的 $SO_4^{\cdot-}$ 与水反应转化为 $\cdot OH$ ,如式(5)所示<sup>[16]</sup>,且不利于 $SO_4^{\cdot-}$ 与 $Cl^-$ 反应转化为 $\cdot OH$ ,如式(1)~(4)所示,更多的 $SO_4^{\cdot-}$ 参与有机物的氧化。另一方面,在阳极的 $Cl^-$ 在碱性条件下会与 $\cdot OH$ 发生反应,以 $ClO^-$ 、 $ClO_2^-$ 、 $ClO_3^-$ 和 $ClO_4^-$ 等氯的高价离子形式存在<sup>[17]</sup>,不利于次氯酸的生成,如式(6)~(12)所示<sup>[17-18]</sup>。因此结合以上两点分析结果得出,EC+PS体系对富里酸的去除率随初始pH的增大而减小。



### 2.3 初始PS质量浓度对EC+PS体系去除富里酸的影响

设定初始pH为7,电流密度为 $30 \text{ mA/cm}^2$ ,极板间距为3 cm,NaCl质量浓度为3 g/L,当初始PS质量浓度为3,6,9,12 g/L时,EC+PS体系对富里酸的去除率如图5所示。

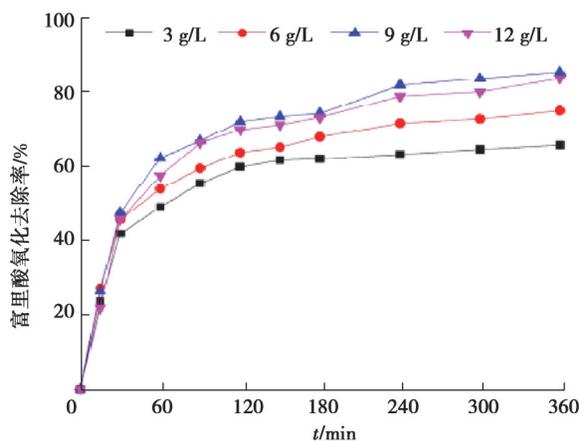


图5 不同初始PS下富里酸的去除率随时间的变化

Fig. 5 Fulvic acid removal rates with time change under different initial PS values

从图 5 可以看出,初始 PS 质量浓度由 3 g/L 增加到 12 g/L 时,富里酸的去除率分别为 65.97%、75.25%、85.72%、83.94%。当 PS 由 3 g/L 增加到 9 g/L 时,富里酸的去除率有明显的提高,而当 PS 的质量浓度从 9 g/L 增加至 12 g/L 时,富里酸的去除率反而降低。这是因为,在反应体系中的 PS 较低时, $S_2O_8^{2-}$  产生的  $SO_4^{\cdot-}$  的量不足,无法和富里酸充分反应,所以随着反应体系中过硫酸盐的质量浓度增大,反应体系中富里酸能参与更充分的去除反应,增强了体系对富里酸的去除率。而继续增大反应体系的 PS,阴极附近将会产生过量的  $SO_4^{\cdot-}$ , $SO_4^{\cdot-}$  会和自身及  $S_2O_8^{2-}$  反应,生成的  $SO_4^{\cdot-}$  在阴极附近消耗,未能和有机物有效反应<sup>[17]</sup>,如式(13)~(15)所示<sup>[17]</sup>。 $SO_4^{\cdot-}$  未达到富里酸表面就已经淬灭,这就导致了富里酸的去除率降低。



#### 2.4 电流密度对 EC+PS 体系去除富里酸的影响

固定初始 pH 为 7, PS 质量浓度 9 g/L, 极板间距 3 cm, NaCl 质量浓度为 3 g/L。当电流密度分别为 20、25、30、35 mA/cm<sup>2</sup> 时, EC+PS 体系对富里酸的去除率如图 6 所示。

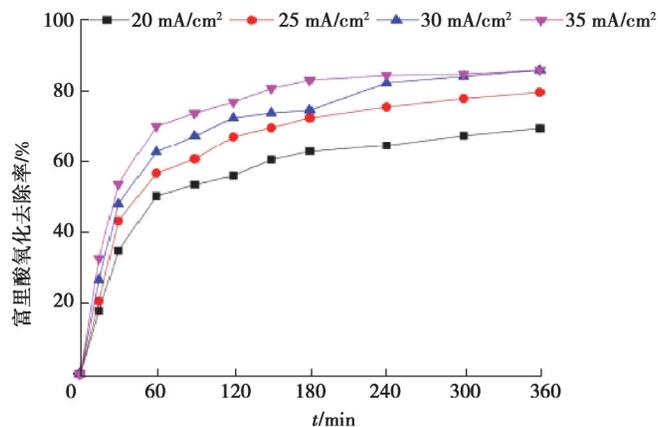


图 6 不同电流密度下富里酸的去除率随时间的变化

Fig. 6 Fulvic acid removal rates with time change under different current densities

由图 6 可知,在电流密度分别为 20、25、30、35 mA/cm<sup>2</sup> 时, EC+PS 协同体系对富里酸的去除率分别为 69.35%、79.45%、85.72%、85.77%。富里酸去除率呈递增趋势,而电流密度由 30 mA/cm<sup>2</sup> 增大至 35 mA/cm<sup>2</sup> 时,富里酸的去除率变化不大。最初富里酸去除率增强是因为,随着电流密度的增大,电解液中的反应电子数增多,导致传质加快,进而提高了反应体系中强氧化性基团和物质的量,增强了反应体系对富里酸的氧化作用。随后富里酸去除率增加变缓,这是因为,一方面反应体系中生成的 HClO、·OH 和  $SO_4^{\cdot-}$  已经全部参加了富里酸的氧化,另一方面阳极的析氧副反应剧烈,抑制了阳极·OH 的生成,这些原因导致反应体系无法有效提供更多强氧化性物质,因此即使提高电流密度,富里酸的去除率提高也并不明显<sup>[19]</sup>。

#### 2.5 极板间距对 EC+PS 体系去除富里酸的影响

固定初始 pH 为 7, PS 质量浓度 9 g/L, 电流密度为 30 mA/cm<sup>2</sup>, NaCl 质量浓度为 3 g/L, 当改变极板间距为 2、3、4、5 cm 时, EC+PS 体系对富里酸的去除率如图 7 所示。

由图 7 可知,当极板间距由 2 cm 逐渐增至 5 cm 时,富里酸的去除率变化趋势不明显,但总体上略微降低,分别为 85.78%、85.72%、84.36%、85.53%。由于极板间距的增大,电阻增大,溶液的传质能力减弱,导致电极附近的  $SO_4^{\cdot-}$ 、·OH 和 HClO 较难有效地与富里酸接触反应,但实验在磁力搅拌器的作用下进行,反应体系中溶液均匀混合,即使增大极板间距,强氧化性基团和物质仍能与富里酸分子有效接触,故各极板间距下反应体系对富里酸的氧化降解率相差不大。因为增加极板间距会带来能耗的增加,结合能耗与去除效果考虑,故选择极板间距为 2 cm。

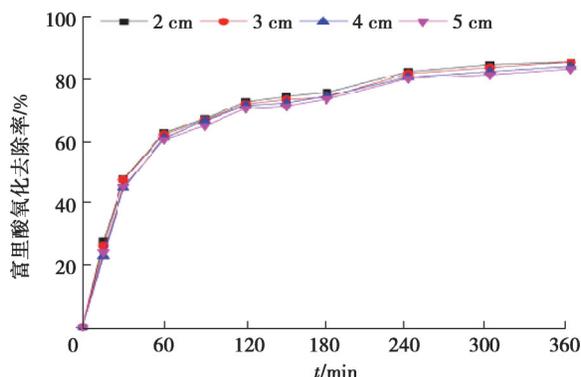


图7 不同极板间距下富里酸的去除率随时间的变化

Fig. 7 Fulvic acid removal rates with time change under different plate spacings

## 2.6 NaCl质量浓度对EC+PS体系去除富里酸的影响

固定初始pH为7,PS质量浓度9 g/L,电流密度为30 mA/cm<sup>2</sup>,极板间距为2 cm,当改变NaCl电解质质量浓度为0(以3 g/L的NaNO<sub>3</sub>作为电解质),1,2,3 g/L时,EC+PS体系对富里酸的去除率如图8所示。

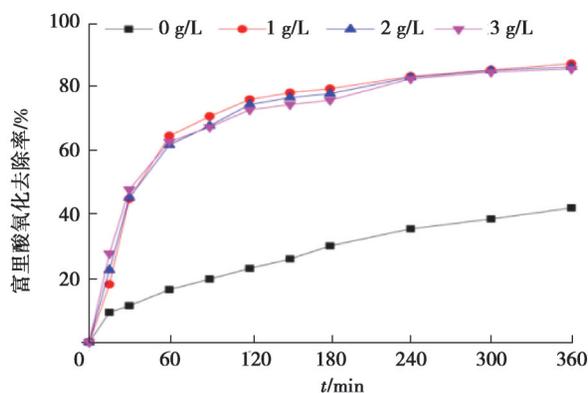


图8 不同电解质质量浓度下富里酸去除率随时间的变化

Fig. 8 Fulvic acid removal rates with time change under different electrolyte mass concentrations

由图8可知,当反应体系的电解质为相同质量浓度的NaNO<sub>3</sub>和NaCl时,富里酸的去除率分别为42.20%和85.78%,说明Cl<sup>-</sup>在反应体系氧化降解富里酸的过程中产生的HClO有较大的贡献。当NaCl质量浓度由1 g/L增至3 g/L时,富里酸去除率分别为87.45%、86.43%和85.78%,随NaCl质量浓度的增加受到微弱的抑制。这是因为,当Cl<sup>-</sup>质量浓度增加,促进了SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>·向·OH的转化。而阳极析氯反应受到析氧反应的抑制,增加Cl<sup>-</sup>质量浓度对HClO的产生影响不大。因此,随着电解质(NaCl)质量浓度的增大,反应体系中的富里酸去除率受到微弱的抑制。

## 2.7 EC+PS协同体系对实际渗滤液MBR出水中富里酸的去除效果

基于上述单因素实验,考察协同体系对实际渗滤液MBR出水中富里酸的处理效果,实验条件如下:PS质量浓度9 g/L,电流密度为30 mA/cm<sup>2</sup>,固定极板间距为2 cm,反应时间6 h。该体系处理渗滤液MBR出水前后的三维荧光光谱图如图9(a)和(b)所示。

由图9(a)可见,在MBR出水中存在2种类富里酸荧光峰,峰A为可见光区类富里酸( $E_x/E_m=320/400$ ),峰B为紫外光区类富里酸( $E_x/E_m=250/440$ )。由图9(b)可见,经协同体系处理后,2种富里酸的特征峰全部消失,仅在 $E_x/E_m=225\sim 250/325\sim 380$ 的区域内有微弱的荧光峰,而该处不属于类富里酸区域。

采用荧光区域积分法计算出上述图8(a)和(b)中可见光区和紫外光区类富里酸的荧光强度体积积分,如图10所示,协同体系对可见光区类富里酸和紫外光区类富里酸的荧光强度的体积积分的去除率分别为98.65%和97.80%,这表明,EC+PS协同体系对实际垃圾渗滤液MBR出水中的富里酸有较强的去除能力。

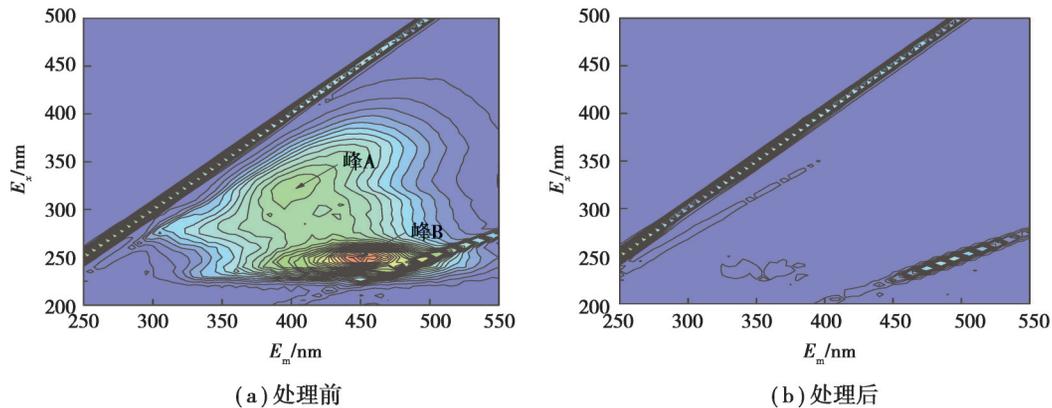


图 9 EC+PS 体系处理渗滤液 MBR 出水三维荧光光谱图

Fig. 9 Three-dimensional fluorescence spectra of MBR effluent leachate treated by EC+PS system

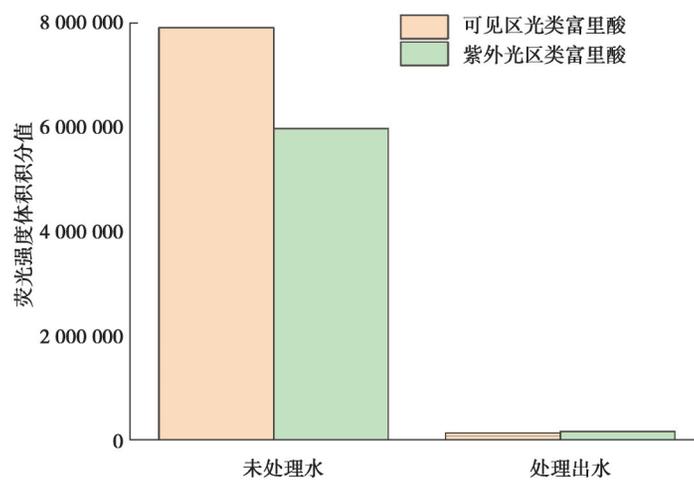


图 10 水样可见光区及紫外光区类富里酸区域积分

Fig. 10 Area integral value of fulvic acid-like in visible and ultraviolet regions of water samples

### 3 结 论

1)在 EC+PS 协同体系降解富里酸废水的过程中,提供氧化能力物质与基团主要为  $\text{HClO}$ 、 $\cdot\text{OH}$  和  $\text{SO}_4^{\cdot-}$ , 其中  $\text{HClO}$  有着较大的贡献,其次是  $\cdot\text{OH}$ ,  $\text{SO}_4^{\cdot-}$  贡献最小。

2)在 EC+PS 协同体系中,富里酸去除率随初始 pH 值的升高而略微降低,随过硫酸盐质量浓度的增大先上升后略有降低,随电流密度增加而增大,随极板间距升高而略有降低。在初始 pH=7, PS 为 9 g/L, 电流密度为  $30 \text{ mA/cm}^2$ , 极板间距为 2 cm, NaCl 的质量浓度为 1 g/L 的条件下,协同体系对富里酸的去除效果可以达到 87.45%。

3)EC+PS 协同体系对实际垃圾渗滤液 MBR 出水中的富里酸有较好的去除效果,在初始 PS 为 9 g/L, 电流密度为  $30 \text{ mA/cm}^2$ , 极板间距为 2 cm 的反应条件下,可见光区和紫外光区类富里酸的去除率达到了 98.65% 和 97.80%。

### 参考文献

- [ 1 ] 邓阳, 冯传平, 胡伟武, 等. 电化学氧化垃圾渗滤液生化出水过程中溶解性有机物形态及可生化性[J]. 环境化学, 2018, 37(7): 1647-1659.  
Deng Y, Feng C P, Hu W W, et al. DOM composition and biodegradability of biologically treated landfill leachate during electrochemical oxidation degradation[J]. Environmental Chemistry, 2018, 37(7): 1647-1659.(in Chinese)
- [ 2 ] 李堃宇. 反渗透膜处理垃圾焚烧厂与填埋场渗滤液结垢机理研究[D]. 重庆: 重庆大学, 2016.  
Li K Y. Study on fouling mechanism of RO membrane treatment for incinerators and landfill leachate[D]. Chongqing:

Chongqing University, 2016. (in Chinese)

- [ 3 ] 韩文亮,董林洋. 基于硫酸根自由基的先进氧化活化方法及其在有机污染物降解上的应用[J]. 化学进展, 2021(8): 1426-1439.  
Han W L, Dong L Y. Activation methods of advanced oxidation processes based on sulfate radical and their applications in the degradation of organic pollutants[J]. Progress in Chemistry, 2021(8): 1426-1439.(in Chinese)
- [ 4 ] Fernandes A, Nunes M J, Rodrigues A S, et al. Electro-persulfate processes for the treatment of complex wastewater matrices: present and future[J]. Molecules, 2021, 26(16): 4821.
- [ 5 ] Song H R, Yan L X, Ma J, et al. Nonradical oxidation from electrochemical activation of peroxydisulfate at Ti/Pt anode: efficiency, mechanism and influencing factors[J]. Water Research, 2017, 116: 182-193.
- [ 6 ] 吴娜娜,钱虹,王宇思,等. 电化学协同过硫酸盐处理有机废水的研究进展[J]. 建筑与预算, 2017(9): 29-33.  
Wu N N, Qian H, Wang Y S, et al. Recent advances in electro-persulfate processes in organic wastewater treatment[J]. Construction and Budget, 2017(9): 29-33.(in Chinese)
- [ 7 ] 陈希,纪志永,黄智辉,等. 电化学协同过硫酸盐氧化法处理含盐有机废水[J]. 化工进展, 2019, 38(12): 5572-5577.  
Chen X, Ji Z Y, Huang Z H, et al. Electrochemical synergistic persulfate oxidation process for treatment of salty organic wastewater[J]. Chemical Industry and Engineering Progress, 2019, 38(12): 5572-5577.(in Chinese)
- [ 8 ] 冯俊生,张郢,王晓红,等. 石墨烯电极电活化过硫酸盐降解含酚废水研究[J]. 安全与环境学报, 2021, 21(1): 404-410.  
Feng J S, Zhang Y, Wang X H, et al. Degrading phenolic sewage via the graphene electrodes through the electrically activated persulfate[J]. Journal of Safety and Environment, 2021, 21(1): 404-410.(in Chinese)
- [ 9 ] Cui Y H, Xue W J, Yang S Q, et al. Electrochemical/p peroxydisulfate/Fe<sup>3+</sup> treatment of landfill leachate nanofiltration concentrate after ultrafiltration[J]. Chemical Engineering Journal, 2018, 353: 208-217.
- [ 10 ] 郭晓磊. 过硫酸盐高级氧化技术处理垃圾渗滤液纳滤浓缩液的研究[D]. 武汉: 华中科技大学, 2017.  
Guo X L. Treatment of landfill leachate nanofiltration concentrate by persulfate advanced oxidation technology[D]. Wuhan: Huazhong University of Science and Technology, 2017. (in Chinese)
- [ 11 ] Zhang H, Wang Z, Liu C, et al. Removal of COD from landfill leachate by an electro/Fe<sup>2+</sup>/peroxydisulfate process[J]. Chemical Engineering Journal, 2014, 250: 76-82.
- [ 12 ] 谷永,闫志明,王兴,等. 氯离子对过硫酸盐氧化苯胺的影响[J]. 环境工程学报, 2021, 15(8): 2627-2638.  
Gu Y, Yan Z M, Wang X, et al. Effect of chloride ions on the oxidation of aniline using persulfate[J]. Chinese Journal of Environmental Engineering, 2021, 15(8): 2627-2638.(in Chinese)
- [ 13 ] Yu X Y, Bao Z C, Barker J R. Free radical reactions involving Cl<sup>·</sup>, and Cl<sub>2</sub><sup>·-</sup>, and SO<sub>4</sub><sup>·-</sup> in the 248 nm photolysis of aqueous solutions containing S<sub>2</sub>O<sub>8</sub><sup>2-</sup> and Cl<sup>-</sup>[J]. The Journal of Physical Chemistry A, 2004, 35(14): 108(2): 295-308.
- [ 14 ] Li W, Orozco R, Camargos N, et al. Mechanisms on the impacts of alkalinity, pH, and chloride on persulfate-based groundwater remediation[J]. Environmental Science & Technology, 2017, 51(7): 3948-3959.
- [ 15 ] le Luu T, Kim J, Yoon J. Physicochemical properties of RuO<sub>2</sub> and IrO<sub>2</sub> electrodes affecting chlorine evolutions[J]. Journal of Industrial and Engineering Chemistry, 2015, 21: 400-404.
- [ 16 ] Gholami M, Fard M B, Zabihzadeh M, et al. Sulphate radical-based advanced oxidation technologies for removal of COD and ammonia from hazardous landfill leachate: a review[J]. International Journal of Environmental Analytical Chemistry, 2021: 1-19.
- [ 17 ] Sirés I, Brillas E, Oturan M A, et al. Electrochemical advanced oxidation processes: today and tomorrow. A review[J]. Environmental Science and Pollution Research International, 2014, 21(14): 8336-8367.
- [ 18 ] Xue W J, Cui Y H, Liu Z Q, et al. Treatment of landfill leachate nanofiltration concentrate after ultrafiltration by electrochemically assisted heat activation of peroxydisulfate[J]. Separation and Purification Technology, 2020, 231: 115928.
- [ 19 ] 王维大,王丽丽,孙岩柏,等. 电化学氧化耦合铁感应电极激发过硫酸盐氧化处理焦化废水生化出水[J]. 环境化学, 2019, 38(11): 2563-2572.  
Wang W D, Wang L L, Sun Y B, et al. Electrochemical oxidation coupling iron plate induction electrode excited persulfate oxidation treatment of coking wastewater biochemical water[J]. Environmental Chemistry, 2019, 38(11): 2563-2572. (in Chinese)

(编辑 郑洁)