



现代化工
Modern Chemical Industry
ISSN 0253-4320, CN 11-2172/TQ

《现代化工》网络首发论文

题目: 沸石填料电化学反应器处理低浓度氨氮的影响因素和机理
作者: 林学聪, 汤培炜, 吴欣霓, 蔡娟娟, 黄隽萍, 谢芳, 潘涌璋
收稿日期: 2018-08-07
网络首发日期: 2019-02-25
引用格式: 林学聪, 汤培炜, 吴欣霓, 蔡娟娟, 黄隽萍, 谢芳, 潘涌璋. 沸石填料电化学反应器处理低浓度氨氮的影响因素和机理[J/OL]. 现代化工.
<http://kns.cnki.net/kcms/detail/11.2172.tq.20190222.1409.018.html>



网络首发: 在编辑部工作流程中, 稿件从录用到出版要经历录用定稿、排版定稿、整期汇编定稿等阶段。录用定稿指内容已经确定, 且通过同行评议、主编终审同意刊用的稿件。排版定稿指录用定稿按照期刊特定版式(包括网络呈现版式)排版后的稿件, 可暂不确定出版年、卷、期和页码。整期汇编定稿指出版年、卷、期、页码均已确定的印刷或数字出版的整期汇编稿件。录用定稿网络首发稿件内容必须符合《出版管理条例》和《期刊出版管理规定》的有关规定; 学术研究成果具有创新性、科学性和先进性, 符合编辑部对刊文的录用要求, 不存在学术不端行为及其他侵权行为; 稿件内容应基本符合国家有关书刊编辑、出版的技术标准, 正确使用和统一规范语言文字、符号、数字、外文字母、法定计量单位及地图标注等。为确保录用定稿网络首发的严肃性, 录用定稿一经发布, 不得修改论文题目、作者、机构名称和学术内容, 只可基于编辑规范进行少量文字的修改。

出版确认: 纸质期刊编辑部通过与《中国学术期刊(光盘版)》电子杂志社有限公司签约, 在《中国学术期刊(网络版)》出版传播平台上创办与纸质期刊内容一致的网络版, 以单篇或整期出版形式, 在印刷出版之前刊发论文的录用定稿、排版定稿、整期汇编定稿。因为《中国学术期刊(网络版)》是国家新闻出版广电总局批准的网络连续型出版物(ISSN 2096-4188, CN 11-6037/Z), 所以签约期刊的网络版上网络首发论文视为正式出版。

沸石填料电化学反应器处理低浓度氨氮的影响因素和机理

林学聪, 汤培炜, 吴欣霓, 蔡娟娟, 黄隽萍, 谢芳, 潘涌璋*
(暨南大学环境学院, 广东 广州 510630)

摘要: 采用沸石填料电化学反应器处理低浓度氨氮废水, 研究了阳极材料、粒子电极、阴极材料、电流密度、初始pH、曝气对氨氮去除效果的影响。结果表明, 在钉铈锡阳极板(DSA)为阳极、活性碳纤维(ACF)为阴极、载铁斜发沸石为填料、电流密度为 $6\text{mA}/\text{cm}^2$ 、pH为5、曝气量为 $5\text{L}/\text{min}$ 条件下, 质量浓度为 $20\text{mg}/\text{L}$ 的模拟氨氮废水经处理后出水氨氮质量浓度为 $3\text{mg}/\text{L}$ 左右, 且出水水质清澈。 NH_4^+ 在直流电场作用下向阴极定向移动, 曝气对阳极处理氨氮没有影响, $\cdot\text{OH}$ 氧化氨氮可使氨氮质量浓度降低一半左右, 氨氮降低至一定质量浓度时, $\cdot\text{OH}$ 无法继续对其氧化, 阴极附近氨氮质量浓度在 20min 后基本保持不变。

关键词: 氨氮; 沸石; 羟基自由基; 电化学氧化

中图分类号: U664.9+2 **文献标志码:** A

The factors and mechanism of ammonia removal by electrochemical reactor packed with zeolite

LIN Xuecong, TANG Peiwei, WU Xinni, CAI Juanjuan, HUANG Junping, XIE Fang, PAN Yongzhang*

(School of Environmental, Jinan University, Guangzhou 510630, China)

Abstract: Low-concentration ammonia wastewater was treated by electrochemical reactor packed with zeolite. The effects of anode material, particle electrode, cathode material, current density, initial pH and aeration on the remove of ammonia were studied. Simulated ammonia wastewater could be treated at the concentration of $20\text{mg}/\text{L}$ to about $3\text{mg}/\text{L}$ under the experimental conditions of DSA as anode, ACF as cathode, Clinoptilolite loaded Fe^{2+} as filler, $6\text{mA}/\text{cm}^2$ current density, pH 5, $5\text{L}/\text{min}$ aeration rate. NH_4^+ moves toward to cathode under the action of DC electric field. Aeration has no effect on the anode treatment of ammonia. About one half of ammonia can be removed by oxidation of $\cdot\text{OH}$. $\cdot\text{OH}$ cannot continue to oxidize ammonia when ammonia is reduced to a certain concentration. The concentration of ammonia near the cathode was unchanged basically after 20 minutes.

Key words: ammonia; zeolite; hydroxyl radical; electrochemical

氨氮是水体中重要的常见污染物之一, 具有来源广泛、危害大的特点, 对水中生物和人体都具有危害性。目前, 国内外氨氮废水的处理方法主要有气浮法^[1]、生物脱氨法^[2]、折点加氯法^[3]、离子交换法^[4]、物理吸附法^[5]和电化学氧化法^[6-9]等。其中, 电化学氧化法由于具有占地面积少、操作简单、不用外加电解质、不造成二次污染等优点而引起广泛关注^[10-11]。

收稿日期: 2018-08-07; **修回日期:** 2019-01-29

基金项目: 2017年度广东省大学生创新创业训练计划项目(1055917050)

作者简介: 林学聪(1992-), 男, 硕士研究生, 研究方向为水污染控制与技术, 1225190762@qq.com; 潘涌璋(1964-), 男, 博士, 教授, 主要研究方向为水污染防治技术, 通讯联系人, tpyz@jnu.edu.cn.

三维电极法是一种较新型的电化学处理方法，相对传统的二维电极电化学氧化法，有较高的面体比、电流效率高、时空产率大^[12-13]。目前，三维电极在有机废水^[14]、含酚废水^[15]、印染废水^[16]、生活污水^[17]等方面应用广泛，并取得较好的处理效果。常用的粒子电极材料主要有金属导体、导电陶瓷、铁氧体、玻璃球、塑料球、石墨及活性炭等。填料的功能是在电场中由于感应而形成复极性粒子电极，因此三维电极的填料必须具备一定的导电性，但同时要避免反应器中因填料直接接触而引起的短路电流。考虑到沸石对氨氮具有良好的吸附性能，电化学氧化法可以让沸石再生的过程中同时处理氨氮^[18-20]，沸石对氨氮的吸附能力在电解前后无明显区别^[21]。在前人研究的基础上结合处理效果高效快速的电 Fenton 法，笔者采用沸石填料电化学反应器进行低浓度氨氮废水的处理研究，考察粒子电极、阳极材料、阴极材料、电流密度、初始 pH、曝气等因素对氨氮去除效果的影响。

1 实验部分

1.1 实验装置

实验装置如图 1 所示。实验装置主要由直流稳压电源、电解槽和曝气设备组成。电解槽由有机玻璃制成，槽内尺寸为 150 mm×80mm×150 mm，有效容积为 1.5 L。阳极材料采用钌铱锡阳极板（DSA），阴极采用 4 种常见的阴极材料，阴阳极板尺寸均为 150 mm×150mm×1.5 mm。沸石颗粒填充在阴阳极板之间，填料底部均匀通入压缩空气，通过空气压缩机与流量计控制气量。直流稳压电源可提供 0~60 V/0~15 A 的直流电。

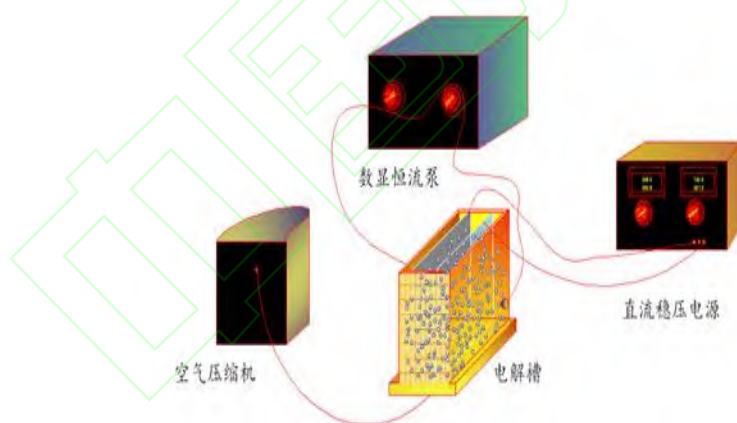


图1 实验装置图

1.2 沸石的预处理

以市购的斜发沸石和丝光沸石为电解槽填料，粒径为 20-40 目（约 0.90-0.45 mm）。为了避免因沸石对氨氮的吸附而引起氨氮去除效率的计算误差，首先将沸石颗粒经过氨氮废水吸附饱和处理。为了提高沸石颗粒的导电性，对沸石颗粒进行载铁处理：在一定浓度的 FeSO_4 溶液中浸泡 24 h 后，用蒸馏水洗净放于 105 °C 的烘箱中烘干，使用前再进行氨氮饱和吸附处理。

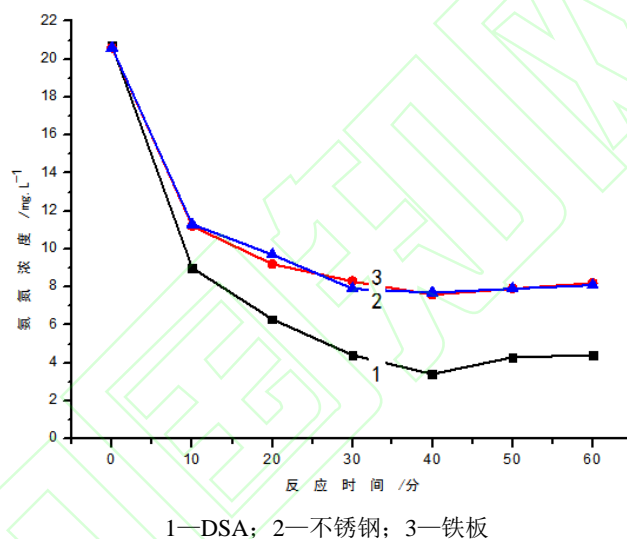
1.3 实验方法

利用 $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ 和去离子水配制成初始质量浓度为 20 mg/L 的模拟污水。在相同条件下，通过改变单因素的方法来考察各影响因素对氨氮去除效果的影响。实验过程中，每隔 10min 取样 1 次，定型滤纸过滤后再进行氨氮浓度检测，氨氮浓度用纳氏试剂分光光度法测定。反应完成后，洗净电极板浸泡在一定浓度的硫酸溶液中，沸石颗粒用水洗净再进行饱和处理。pH 采用 pHS-25C 型酸度计测定。pH 采用 1 mol/L H_2SO_4 或者 1 mol/L NaOH 进行调节。实验过程中使用的试剂均为分析纯。

2 结果与讨论

2.1 阳极材料对氨氮去除效果的影响

在活性炭纤维 (ACF) 为阴极，载铁斜发沸石为填料，电流密度为 $6\text{mA}/\text{cm}^2$ ，pH 为 5，曝气量为 $5\text{L}/\text{min}$ 的条件下，改变阳极材料进行实验。阳极材料对氨氮去除效果的影响如图 2 所示。

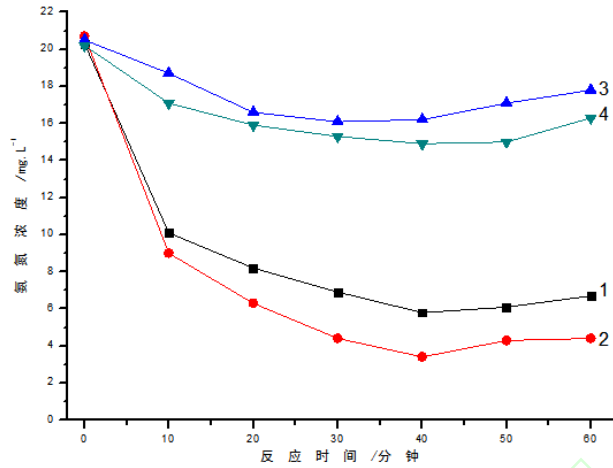


1—DSA; 2—不锈钢; 3—铁板
图 2 阳极材料对氨氮去除效果的影响

由图 2 可以看出，以 ACF 为阴极，DSA、铁和不锈钢为阳极的氨氮去除率分别为 83.6%、61.0%和 62.6%。DSA 极板对工作电压要求低、能耗小、析氧电位高、氧化膜层能够提高电极和基体的附着力，具有良好的稳定性和电催化活性，对氨氮的氧化具有非常好的效果。随着反应时间的延长，采用铁板作为阳极的电解体系中污水的颜色由最初的无色逐渐变成了红褐色，底部产生很多絮状物，絮状物覆盖在极板上使得极板氧化性降低。反应过程中，沸石在反应一段时间后逐渐趋于饱和，部分吸附不牢固的氨氮从沸石上脱附，导致 40 min 后浓度逐渐回升。不锈钢阳极和铁板阳极对氨氮处理效果相差不大，DSA 阳极效果最佳，接下来其他实验因素的考察均采用 DSA 作为阳极。

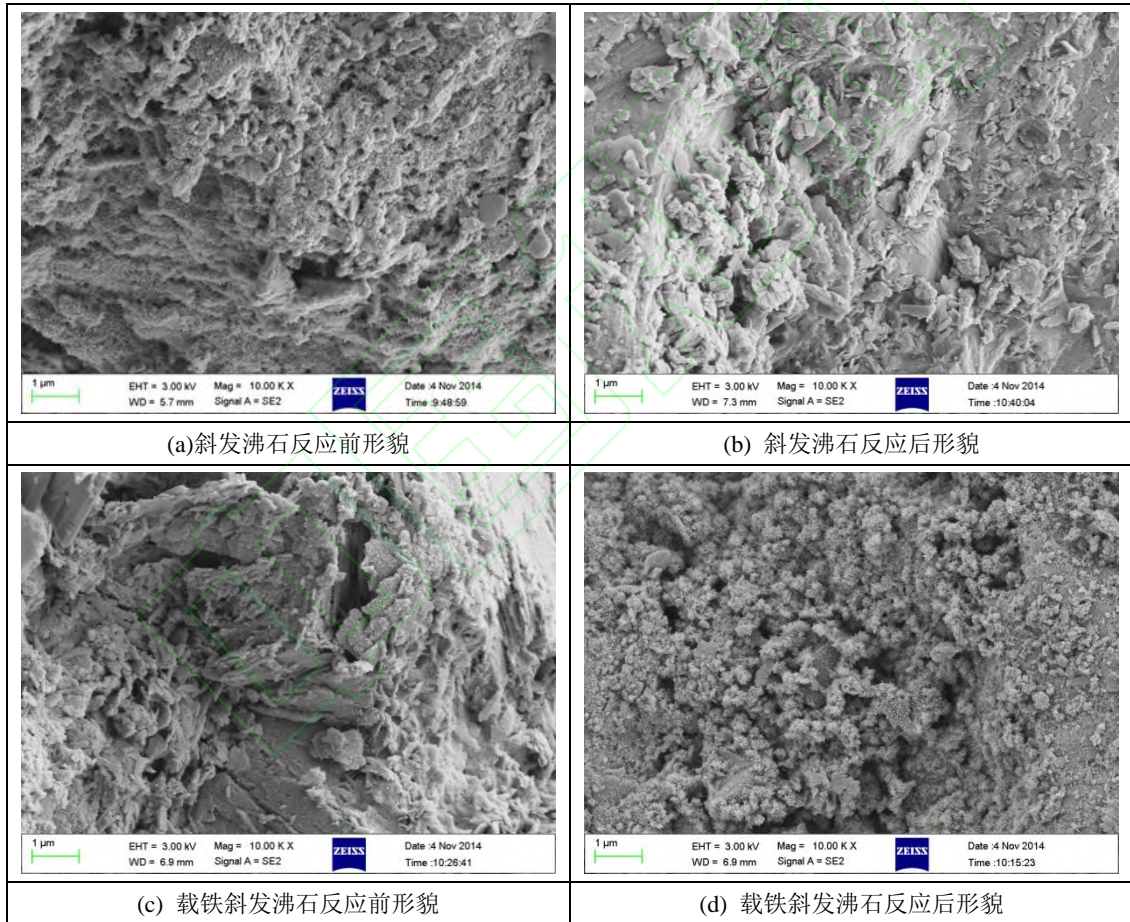
2.2 填充粒子种类对氨氮去除效果的影响

在 DSA 为阳极，ACF 为阴极，电流密度为 $6\text{mA}/\text{cm}^2$ ，pH 为 5，曝气量为 $5\text{L}/\text{min}$ 的条件下，改变填充粒子种类进行实验。填充粒子种类对氨氮去除效果的影响如图 3、图 4 及表 1 所示。



1—斜发沸石；2—载铁斜发沸石；3—丝光沸石；4—载铁丝光沸石

图3 填充粒子种类对氨氮去除效果的影响



(a)斜发沸石反应前形貌

(b)斜发沸石反应后形貌

(c)载铁斜发沸石反应前形貌

(d)载铁斜发沸石反应后形貌

图4 反应前后的斜发沸石、载铁斜发沸石的形貌

表1 ACF极板的BET分析

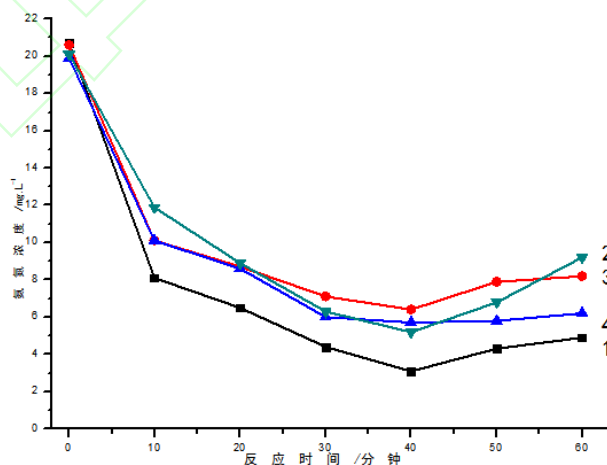
材料	测定内容	反应前	反应后
ACF	比表面积/ ($\text{m}^2 \text{g}^{-1}$)	1780.4682	1688.4453
	孔径/nm	2.21410	2.33212

	孔容积/($\text{cm}^2 \text{g}^{-1}$)	0.985534	0.999675
	比表面积/($\text{m}^2 \text{g}^{-1}$)	64.2250	50.5466
丝光沸石	孔径/nm	24.64938	27.77432
	孔容积/($\text{cm}^2 \text{g}^{-1}$)	0.395776	0.399976
	比表面积/($\text{m}^2 \text{g}^{-1}$)	6.1782	5.7089
斜发沸石	孔径/nm	70.6143	74.8865
	孔容积/($\text{cm}^2 \text{g}^{-1}$)	0.109067	0.177608
载铁	比表面积/($\text{m}^2 \text{g}^{-1}$)	6.9904	6.1704
斜发沸石	孔径/nm	11.73861	12.00436
	孔容积/($\text{cm}^2 \text{g}^{-1}$)	0.020514	0.087654

图 3、图 4 及表 1 可以看出，斜发沸石对氨氮的处理效果要好于丝光沸石，且载铁斜发沸石对氨氮的处理效果最好。斜发沸石和丝光沸石相比，斜发沸石具有更大孔径，但是比表面积、孔容积更小。载铁斜发沸石和天然斜发沸石相比，表面层状结构更明显，整体结构更蓬松。电化学反应器中填充的天然沸石表面杂质增多，部分孔洞出现坍塌的现象，晶体结构遭到破坏。载铁沸石反应后表面杂质也有增多的现象，但晶体结构基本没有遭到破坏。这是由于沸石载铁后，铁离子的存在使得氨氮在沸石上被集中去除，减轻了氨氮对沸石孔洞的挤压，降低了空洞的吸附压力，因而延长了沸石的使用寿命。

2.3 阴极材料对氨氮去除效果的影响

在 DSA 为阳极，载铁斜发沸石为填料，电流密度为 $6\text{mA}/\text{cm}^2$ ，pH 为 5，曝气量为 $5\text{L}/\text{min}$ 的条件下，改变阴极材料进行实验。阴极材料对氨氮去除效果的影响如图 5 所示。



1—活性炭纤维；2—铁；3—不锈钢；4—钛网

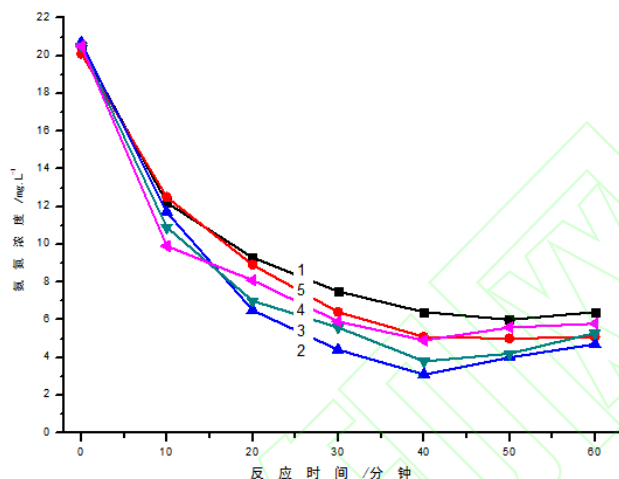
图 5 阴极材料对氨氮去除效果的影响

由图 5 可以看出，以 DSA 为阳极，ACF、铁、不锈钢、钛网为阴极的氨氮去除率分别为

83.6%、63.1%、71.4%、56.7%。反应前后 ACF 的比表面积、孔径及孔容积大小变化不大，说明电化学氧化氨氮过程中 ACF 的吸附性能几乎不受影响。ACF 兼具吸附和还原双重作用，溶液中可产生更多 H_2O_2 ， H_2O_2 在电场作用下发生反应产生更多的 $\cdot OH$ 。因此，ACF 作为阴极相较于铁、不锈钢、钛网的氨氮去除效果更好。

2.4 电流密度对氨氮去除效果的影响

在 DSA 为阳极，ACF 为阴极，载铁斜发沸石为填料，pH 为 5，曝气量为 5L/min 的条件下，改变电流密度进行实验。电流密度对氨氮去除效果的影响如图 6 所示。



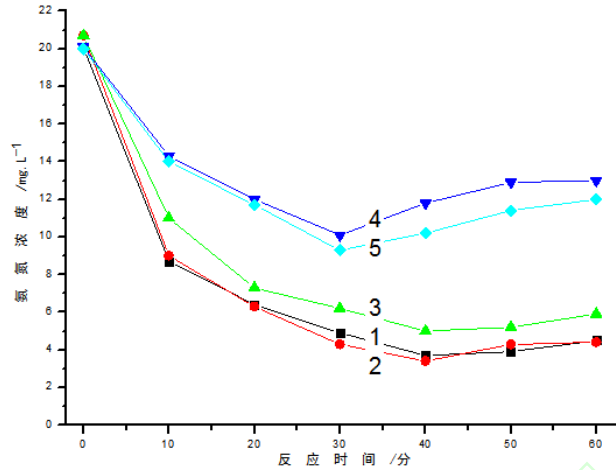
1—4 mA/cm²; 2—5 mA/cm²; 3—6 mA/cm²; 4—7 mA/cm²; 5—8 mA/cm²

图 6 电流密度对氨氮去除效果的影响

由图 6 可以看出，随着电流不断增大，氨氮去除率呈不断增加的趋势。在同种电解条件下，电流密度越大，则阳极的电流电位越高，由此产生的 $\cdot OH$ 和 H_2O_2 等强氧化物质增多，使得极板表面的电化学氧化和水样中间接反应程度增大， H_2O_2 与 Fe^{2+} 的 Fenton 反应增强，加快了电 Fenton 的链反应，从而提高了氨氮去除率。然而，过高的电流密度会造成阳极极化、加重析氧等副反应，引起短路电流与旁路电流，从而降低电解效率。综合考虑经济成本和氨氮的去除效果，选择电流密度为 6 mA/cm²。

2.5 pH 对氨氮去除效果的影响

在 DSA 为阳极，ACF 为阴极，载铁斜发沸石为填料，电流密度为 6mA/cm²，曝气量为 5L/min 的条件下，改变 pH 进行实验。pH 对氨氮去除效果的影响如图 7 所示。



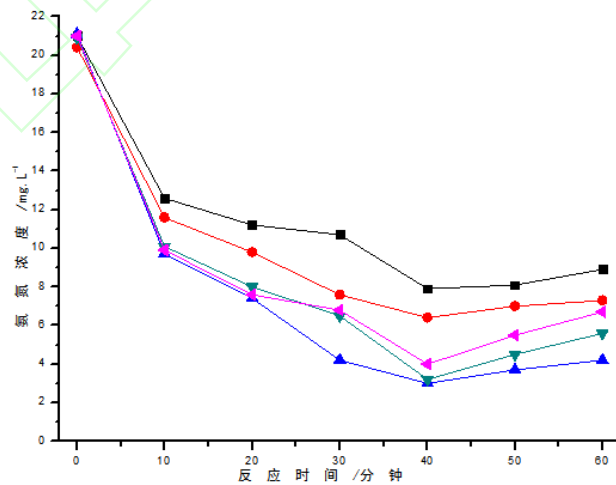
1—pH=3.1; 2—pH=5; 3—pH=7.1; 4—pH=9.2; 5—pH=11.1

图 7 pH 对氨氮去除效果的影响

由图 7 可以看出，酸性条件下的氨氮去除效果明显好于碱性。溶液 pH 不仅影响主电极和粒子电极对氨氮的吸附，也影响主电极和粒子电极表面的电荷，从而影响整个体系的电催化氧化效率。酸性条件下，大量的 Fe^{2+} 在构成电 Fenton 反应中起到了催化剂的作用，有利于氨氮去除。少量的 Fe^{2+} 和 Fe^{3+} 构成的铁的氢氧化物絮凝物对氨氮去除影响不大。但 pH 越低，越有利于 H^+ 在阴极板和粒子电极的阴极端还原成 H_2 ，减少了 H_2O_2 产率，从而减少羟基自由基的产率。在碱性条件下，铁的氢氧化物絮凝物的生成反应加速，絮凝物覆盖在粒子电极表面，使其失去催化活性，严重影响粒子电极的复极化过程和粒子电极电化学的氧化降解过程。在电解过程中，要想控制氨氮去除的主反应占据主导地位，减少副反应的发生，必须严格控制好反应体系的 pH。

2.6 曝气对氨氮去除效果的影响

在 DSA 为阳极，ACF 为阴极，载铁斜发沸石为填料，电流密度为 $6\text{mA}/\text{cm}^2$ ，pH 为 5 的条件下，改变曝气量进行实验。曝气对氨氮去除效果的影响如图 8 所示。



1—1 L/min; 2—3 L/min; 3—5 L/min; 4—7 L/min; 5—9 L/min

图 8 曝气对氨氮去除效果的影响

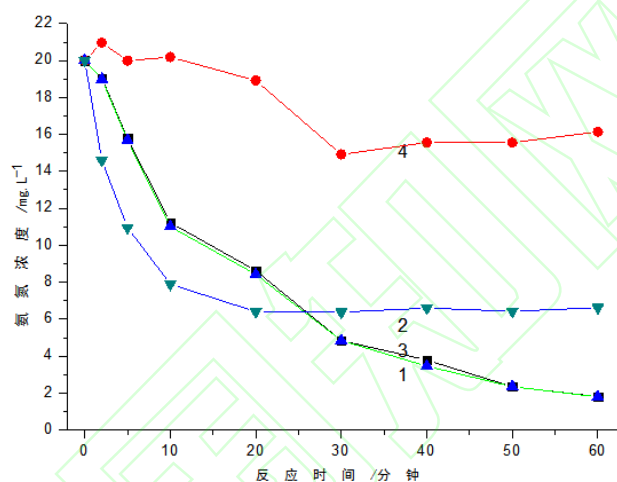
由图 8 可以看出，曝气可以加快反应器内液体传质速度，空气起到搅拌作用，使粒子电

极处于流化态，消除浓度极化现象，同时提供氧气，氧气在阴极上氧化成 H_2O_2 ，与 Fe^{2+} 发生电 Fenton 反应生成氧化性更强的 $\cdot OH$ ，氨氮去除效果加强。此外，空气中的曝气量增大到一定程度后，氧气的溶解达到饱和，曝气量过大，提供的氧气不能完全利用。过大的曝气量使得氨氮不能在粒子电极表面停留，来不及与电极表面产生的活化物反应便离开，不利于氨氮的去除。

2.7 反应器氧化机理的初步探讨

2.7.1 阴阳极附近氨氮浓度的变化

在 DSA 为阳极，ACF 为阴极，载铁斜发沸石为填料，电流密度为 $6mA/cm^2$ ，pH 为 5 的条件下，在阴阳极板之间加入阳离子交换膜，分别在曝气和不曝气的条件下取阴阳两极附近的水样测定，观察反应过程中阴阳两极附近氨氮浓度的变化情况，结果如图 9 所示。



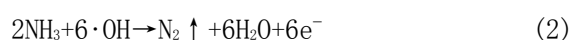
1—曝气阳极附近；2—曝气阴极附近；3—不曝气阳极附近；4—不曝气阴极附近

图 9 阴阳两极附近氨氮浓度

由图 9 可以看出，不曝气时，阳极附近的氨氮质量浓度下降效率一直高于阴极附近的氨氮质量浓度下降效率。曝气情况下，反应前 20 min，阴极附近的氨氮质量浓度下降效率高于阳极附近的氨氮质量浓度下降效率。曝气对阳极处理氨氮的效果没有影响。 NH_4^+ 在直流电场作用下通过阳离子交换膜向阴极定向移动，阴极附近浓度上升。

2.7.2 阳极对氨氮的氧化作用

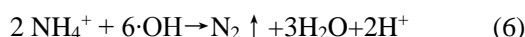
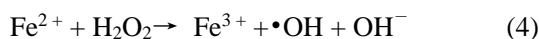
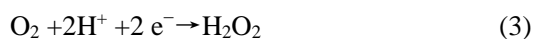
阳极附近氨氮质量浓度下降主要有 2 种原因：第 1 种是 NH_4^+ 在直流电场作用下通过阳离子交换膜向阴极定向迁移，氨氮质量浓度得以下降；第 2 种是酸性溶液中的 H_2O 在阳极表面放电并生成吸附的 $\cdot OH$ ，如式 (1) 所示。吸附的 $\cdot OH$ 在阳极上把氨氮氧化成氮气和水，如式 (2) 所示。



2.7.3 阴极对氨氮的氧化作用

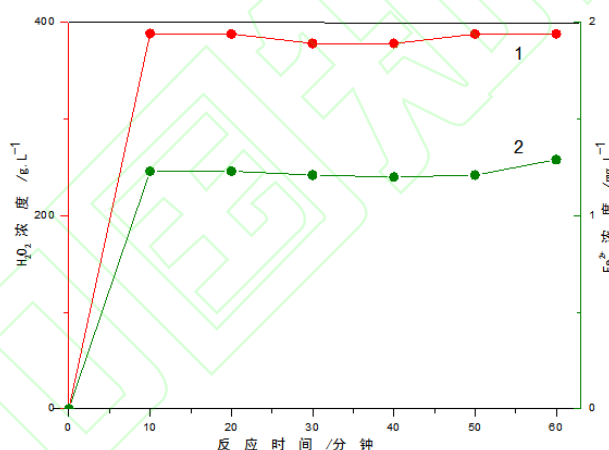
活性炭纤维 (ACF) 材料具有较大的比表面积和丰富的微孔结构，在通电情况下除了有较好的还原作用外，还具有较好的吸附作用，可以吸附部分氨氮。在曝气情况下，ACF 与

氨氮的接触机会增加,从而加强了对氨氮的吸附。通入的氧气或空气在阴极上被还原为 H_2O_2 , 如式(3)所示。由于体系中有 Fe^{2+} , 反应体系中将会发生 Fenton 反应, 如式(4)所示。 Fe^{3+} 的还原电位比 O_2 的初始还原电位高,因此 Fe^{3+} 于 O_2 还原的同时还原再生为 Fe^{2+} , 如式(5)所示。电解反应和 Fenton 反应生成 $\cdot\text{OH}$ 的氧化电位达 2.8 V, 具有很强的氧化能力。电解体系中的氨氮在 $\cdot\text{OH}$ 作用下发生快速氧化反应而去除。因此,曝气条件下反应前 20min, 阴极附近的氨氮质量浓度的下降效率要高于阳极附近的氨氮质量浓度下降效率。



2.7.4 沸石对氨氮的电吸附作用

沸石本身是一种良好的吸附材料,其较大的比表面积和较好的阳离子交换能力对溶液中的氨氮有良好的吸附作用。在 DSA 为阳极, ACF 为阴极, 载铁斜发沸石为填料, 电流密度为 $6\text{mA}/\text{cm}^2$, pH 为 5, 曝气量为 $5\text{L}/\text{min}$ 条件下, 检测 H_2O_2 和 Fe^{2+} 的质量浓度。结果如图 10 所示。



1— H_2O_2 的质量浓度; 2— Fe^{2+} 的质量浓度

图 10 H_2O_2 和 Fe^{2+} 的质量浓度

沸石填料在电场作用下,变成带电粒子,使溶液中的铵根离子强制性地朝沸石表面移动,得以在沸石表面集中被氧化。体系中的铁离子来源于载铁沸石。从图 10 中可以看出,溶液中检测到的铁离子质量浓度很低,且铁离子质量浓度随着氨氮质量浓度下降基本不变,说明少量铁离子在电场作用下从沸石中析出。但该部分铁离子没有参与氨氮的氧化反应,因此其质量浓度保持不变。实验结果表明,氨氮是被吸附到沸石上之后,在沸石中与铁离子接触并发生氧化反应而去除的。沸石填充电化学反应器处理氨氮污水的过程中涉及到的吸附主要是电吸附。

3 结论

以 DSA 为阳极, ACF 为阴极, 载铁斜发沸石为填充材料的三维电极反应器能短时高效地去除水中氨氮, 在最佳实验条件下, 40 min 内氨氮去除率可达 85%。阳极区域的氨氮电解过程中质量浓度一直下降, 阴极区域的氨氮质量浓度降低至 6.4mg/L 时便几乎保持不变。曝气对阳极处理氨氮没有影响。电 Fenton 反应主要发生在阴极区域, $\cdot\text{OH}$ 氧化氨氮可使氨氮质量浓度降低一半左右。电化学法和 Fenton 法相结合是一种有效去除城市废水中的氨氮的方法, 下一步将更为深入地探讨其机理。

参考文献

- [1] Ferraz F M, Povinelli J, Vieira E M. Ammonia removal from landfill leachate by air stripping and absorption[J]. *Environmental Technology*, 2013. **34**(15): 2317-2326.
- [2] Iliés P, Mavinic D S. The effect of decreased ambient temperature on the biological nitrification and denitrification of a high ammonia landfill leachate[J]. *Water Research*, 2001. **35**(8): 2065-2072.
- [3] Griffin A E, Chamberlin N S. Relation of Ammonia-Nitrogen to Break-Point Chlorination[J]. *American Journal of Public Health and the Nation's Health*, 1941. **31**(8): 803-808.
- [4] Jorgensen T C, Weatherley L R. Ammonia removal from wastewater by ion exchange in the presence of organic contaminants[J]. *Water Research*, 2003. **37**(8): 1723-1728.
- [5] Lind B B, Ban Z, Byden S. Nutrient recovery from human urine by struvite crystallization with ammonia adsorption on zeolite and wollastonite[J]. *Bioresource Technology*, 2000. **73**(2): 169-174.
- [6] 尚晓, 杨宇栋, 李晓婷, 王欣泽, 孔海南. 电解脱氮除磷整合工艺处理养猪废水的研究[J]. *中国给水排水*, 2010, 26(23): 101-104.
- [7] Qin Mohan, Molitor Hannah, Brazil Brian, Novak John T, He Zhen. Recovery of nitrogen and water from landfill leachate by a microbial electrolysis cell-forward osmosis system[J]. *Bioresource Technology*, 2016. **200**: 485-492.
- [8] Chen Junshui, Liu Meichuan, Zhang Li, Zhang Jidong, Jin Litong. *Application of nano TiO₂ towards polluted water treatment combined with electro-photochemical method.* [J]. *Water Research*, 2003. **37**(16): 3815-3820.
- [9] Hugo Olvera - Vargas Nihal Oturan Didier Buisson Eric D. van Hullebusch, *Electro-Oxidation of the Pharmaceutical Furosemide: Kinetics, Mechanism, and By-Products*[J]. *Clean-Soil Air Water*, 2015. **43**(11): 1455-1463.
- [10] Miao Li, Chuanping Feng, Zhenya Zhang, Zhaoli Shen, Norio Sugiura. Electrochemical reduction of nitrate using various anodes and a Cu/Zn cathode[J]. *Electrochemistry Communications*, 2009. **11**(10): 1853-1856.
- [11] Chakrabarti M H, Saleem M, Irfan M F, et al., *Application of Waste Derived Activated Carbon Felt Electrodes in Minimizing NaCl Use for Electrochemical Disinfection of Waste*[J]. *International Journal of Electrochemical Science*, 2011. **6**(10): 4470-4480.
- [12] Nageswara Rao Neti, Rohit Misra, Nitin Gedam, Parameswaran P N, Astik J K. Kinetics of electrooxidation of landfill leachate in a three-dimensional carbon bed electrochemical reactor[J]. *Chemosphere*, 2009. **76**(9): 1206.
- [13] 熊英健, 范娟, 朱锡海. 三维电极电化学水处理技术研究现状及方向[J]. *工业水处理*, 1998. **18**(1): 5-8.
- [14] 柴立元, 尤翔宇, 舒余德, 杨杰, 王云燕, 赵娜. 三维电极电化学反应器降解有机废水中的 EDTA[J]. *中南大学学报(自然科学版)*, 2010. **41**(4): 1240-1245.
- [15] 杨昌柱, 崔艳萍, 黄健, 郑燕琼. 三维电极反应器氧化降解苯酚[J]. *化工进展*, 2006. **25**(5): 551-556.

- [16] 张斌,刘井军,车玉泉.三维电极法处理印染废水的实验研究[J].吉林化工学院学报, 2005. **22**(4): 19-21.
- [17] 刘珊,孙宏亮,孙大鹏,曹雯雯.电化学氧化法处理生活污水的研究[J].应用化工, 2007. **36**(6): 567-569.
- [18] Miao Li,Chuanping Feng,Zhenya Zhang,Zhaoli Shen,Norio Sugiura. Electrochemical reduction of nitrate using various anodes and a Cu/Zn cathode[J]. Microporous and Mesoporous Materials, 2010. **127**(3): 161-166.
- [19] Lei Xiaohui,Li Miao,Zhang Zhenya,Feng Chuanping,Bai Wei,Sugiura Norio. Electrochemical regeneration of zeolites and the removal of ammonia.[J]. Journal of Hazardous Materials, 2009. **169**(1-3): 746-750.
- [20] Ding Jing,Zhao Qing-Liang,Wei Liang-Liang,Chen Yang,Shu Xin. Ammonium nitrogen removal from wastewater with a three-dimensional electrochemical oxidation system.[J].Water Science and Technology, 2013. **68**(3): 552-559.
- [21] HUANG Y,SONG C,LI L,et al.The mechanism and performance of zeolites for ammonia removal in the zeolite packed electrolysis reactor[J]. Electrochemistry, 2014. **82**(7): 557-560.

