

DOI:10.3969/j.issn.1003-5060.2024.04.003

DBD 等离子体协同 $MnFe_2O_4$ 降解氢氯噻嗪性能研究

叶晓冬¹, 胡淑恒¹, 许子牧¹, 兰彦², 程诚²

(1. 合肥工业大学 资源与环境工程学院, 安徽 合肥 230009; 2. 中国科学院合肥物质科学研究院 等离子体物理研究所, 安徽 合肥 230031)

摘要: 文章研究介质阻挡放电 (dielectric barrier discharge, DBD) 等离子体协同 $MnFe_2O_4$ 对常用药物氢氯噻嗪 (hydrochlorothiazide, HCTZ) 在水中的降解性能。通过溶剂热法制备磁性锰铁氧体 $MnFe_2O_4$ 作为非均相芬顿催化剂, 采用 X 射线衍射 (X-ray diffraction, XRD)、X 射线光电子能谱 (X-ray photoelectron spectroscopy, XPS) 和扫描电子显微镜 (scanning electron microscope, SEM) 分析手段对其结构进行表征。利用 HCTZ 模拟目标废水, 分别研究不同的 HCTZ 初始质量浓度、溶液初始 pH 值、电源输入功率和 $MnFe_2O_4$ 投放剂量等因素对体系降解性能的影响, 结果显示随着药物初始质量浓度的提高会使降解效率持续下降, 不断提升放电功率将更利于 HCTZ 的降解, 且碱性环境会对处理过程产生抑制效应。同时研究发现, DBD/ $MnFe_2O_4$ 体系下的最佳 $MnFe_2O_4$ 投放剂量是 50 mg, 并且经 5 次循环使用后, 体系仍能在 25 min 内将 99% 的 HCTZ 去除, 表现出良好的重复使用性能。

关键词: 介质阻挡放电 (DBD); $MnFe_2O_4$; 氢氯噻嗪 (HCTZ); 芬顿反应; 高级氧化工艺
中图分类号: X592 **文献标志码:** A **文章编号:** 1003-5060(2024)04-0447-06

Degradation of hydrochlorothiazide by dielectric barrier discharge plasma combined with $MnFe_2O_4$

YE Xiaodong¹, HU Shuheng¹, XU Zimu¹, LAN Yan², CHENG Cheng²

(1. School of Resources and Environmental Engineering, Hefei University of Technology, Hefei 230009, China; 2. Institute of Plasma Physics, Hefei Institutes of Physical Science, Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031, China)

Abstract: The degradation of the commonly used drug hydrochlorothiazide (HCTZ) in water was studied using dielectric barrier discharge (DBD) in collaboration with $MnFe_2O_4$. Magnetic manganese ferrite $MnFe_2O_4$ was prepared by solvothermal method as heterogeneous Fenton catalyst, and its structure was characterized using X-ray diffraction (XRD), X-ray photoelectron spectroscopy (XPS) and scanning electron microscope (SEM). The target wastewater was simulated using HCTZ, and the effects of different initial mass concentration of HCTZ, initial pH value of solution, input power of power supply and dosage of $MnFe_2O_4$ on the degradation performance of the system were respectively studied. The results show that the degradation efficiency will continue to decline with the increase of initial concentration of the drug, and the continuous increase of discharge power will be more conducive to the degradation of HCTZ. And the alkaline environment will have an inhibiting effect on the treatment process. It is also found that the optimal $MnFe_2O_4$ dosage under DBD/ $MnFe_2O_4$ system is 50 mg, and after five cycles of use, the system can still remove 99% of HCTZ within 25 min, showing good reuse performance.

收稿日期: 2021-04-19; **修回日期:** 2021-05-28

基金项目: 国家自然科学基金资助项目 (51777206; 51807046; 51877208); 安徽省医学物理与技术重点实验室基金资助项目 (LMP2017Y7BP0U1581) 和合肥工业大学博士点专项研究基金资助项目 (JZ2017HGBZ0944)

作者简介: 叶晓冬 (1996—), 男, 安徽合肥人, 合肥工业大学硕士生;

胡淑恒 (1975—), 女, 安徽合肥人, 博士, 合肥工业大学副教授, 硕士生导师, 通信作者, E-mail: shuheng.hu@163.com.

Key words: dielectric barrier discharge(DBD); MnFe_2O_4 ; hydrochlorothiazide(HCTZ); Fenton reaction; advanced oxidation process

0 引 言

近年来在我国经济社会迅速发展之时,人口老龄化形势正在不断加剧,高龄人群中各类疾病的发病率也持续攀升,从而导致国内各类医疗药品的生产量和消耗量一直逐年增加^[1]。而氢氯噻嗪(hydrochlorothiazide, HCTZ)作为噻嗪类药物的一种,凭借其高药代动力学特性被广泛用于治疗高血压、心血管疾病、肾结石、糖尿病等^[2]。然而随着这类药品被频繁地使用消耗,城市污水处理厂的传统处理工艺在面对该物质时也很难做到有效去除,致使在一些河流、湖泊以及地下水等收纳场所中均检测出药物残留^[3-4]。同时,这些药物成分在环境中富集后会进一步引发耐药性病原体增多、饮用水源污染等各类环境问题,进而危及人类的身体健康,因此探索一种高效去除这类新兴污染物的方法刻不容缓^[5-6]。

高级氧化工艺是净化废水的有效方法,目前主要的高级氧化技术有臭氧法、光催化法和芬顿法等^[7-9]。臭氧氧化技术对大部分的药品及个人护理用品(pharmaceutical and personal care products, PPCPs)污染物都有着出色的降解效果,但因其选择降解性,在面对一些特定污染物时的去除能力较低,并且工艺成本较高^[10]。光催化技术易实施,在存在光源的条件下就能对污染物进行分解从而达到去除的目的,并且随着紫外发光二极管技术不断取代传统汞灯激发紫外线,在光化学领域有着广阔的发展前景,但由于本身依然存在光效能转换力低,反应时间长的缺陷,在降解结构复杂的污染物时仍有局限^[11]。芬顿氧化体系具备强氧化性,在应对结构复杂的有机污染物时效果突出,而且反应易发生,运行操作简单,但其处理过程中芬顿试剂的投放剂量不易控制,容易造成物料浪费,并且在反应后期往往会伴随着污泥的产生^[12]。

介质阻挡放电(dielectric barrier discharge, DBD)属于低温等离子体技术,是一种新兴高级氧化工艺,其利用绝缘介质包裹电极后放入反应空间,在气液相交界面放电产生具有强氧化性的 $\cdot\text{OH}$ 、 $\cdot\text{O}$ 、 $\text{O}_2^{\cdot-}$ 、 O_3 、 H_2O_2 等活性物质,进而作用于污染物达到降解目的^[13-14]。而 MnFe_2O_4 作为常用的非均相芬顿催化剂目前的应用已十分

广泛,其含铁双金属的结构能极大地促进 H_2O_2 分解生成强氧化性的 $\cdot\text{OH}$ 进而去除污染物,同时 MnFe_2O_4 凭借其磁性可在反应后进行回收,避免了均相芬顿中的铁泥污染,有利于降低工艺成本^[15]。因此将 MnFe_2O_4 添加至DBD反应器中可实现对体系中 H_2O_2 的进一步利用,激发芬顿效应以获得更好的污染物降解效果。

氢氯噻嗪是现在治疗高血压、尿崩症、心血管等疾病的关键药品^[16]。据报道,人体服用该药物24 h后仍有近六成药物未被吸收,而最终这些未被消化的药物成分都将进入环境中,对生态和人类健康造成危害^[17-18]。

因此,本研究将氢氯噻嗪作为一种典型污染物,构建了DBD/ MnFe_2O_4 复合降解体系,通过考察氢氯噻嗪溶液初始质量浓度、溶液初始pH值、输入功率和催化剂投放量这些条件对降解效率的影响获取该体系下的最佳实验参数,并多次对实验后的 MnFe_2O_4 进行回收再利用以探究该催化剂的循环性能,为探索绿色高效治理PPCPs类污染的工艺提供一种新思路。

1 实验部分

1.1 实验装置

本研究的实验装置如图1所示,实验系统主要由气泵、等离子体反应器、液体蠕动泵、副反应器等组成。

其中主体反应器部分采用9支圆头空心玻璃管(外径5 mm,内径2.5 mm)作为绝缘介质层包裹铜棒后插入溶液少许,9根铜棒并联接入高压作为等离子体发生器的高压电极,溶液部分连接地极,主反应器与副反应器用橡胶管连接组成液体循环和气体流通。

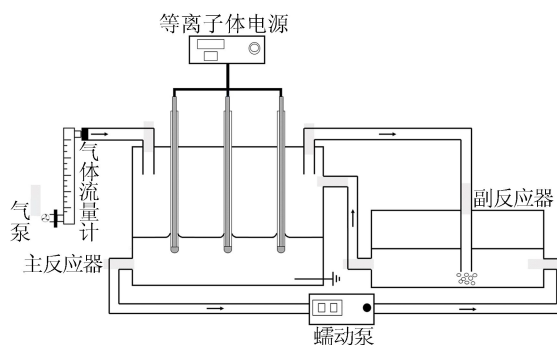


图1 实验装置

1.2 试剂与仪器

实验所用试剂如下:氢氯噻嗪、四水合氯化锰、六水合氯化铁、乙二醇、聚乙二醇等均为分析纯,均购于上海阿拉丁生化科技股份有限公司;醋酸钠、氢氧化钠、浓硝酸、无水乙醇等均为分析纯,均购于国药集团化学试剂有限公司。

仪器如下:CTP-2000K 等离子体高频高压电源(南京苏曼等离子科技有限公司);液体蠕动泵(保定兰格恒流泵有限公司);无油空气压缩机(台州市奥突斯工贸有限公司);KQ3200DE 型数控超声波清洗器(昆山市超声仪器有限公司);Agilent 1200 高效液相色谱分析仪(安捷伦科技有限公司)。

1.3 MnFe₂O₄ 的制备

本实验采用溶剂热法^[19]制备 MnFe₂O₄。具体如下:将 MnCl₂·4H₂O (0.50 g, 2.5 mmol) 和 FeCl₃·6H₂O (1.25 g, 5.0 mmol) 添加到装有 40 mL 乙二醇的烧杯中,搅拌至完全溶解;然后将 3.6 g 的 NaAc 和 1.0 g 的聚乙二醇倒入混合溶液中,放置在磁力搅拌器上剧烈搅拌 30 min;待搅拌结束后,将混合溶液倒入含有聚四氟乙烯内衬的不锈钢高压釜并置于电加热炉中,200 °C 下加热 10 h;待自然冷却至室温,用去离子水和乙醇反复交替洗涤后,放入 60 °C 恒温箱中干燥,得到最终产物 MnFe₂O₄。

1.4 实验方法

取一定质量的 HCTZ 溶解于 200 mL 去离子水中制备目标溶液,将配制好的目标溶液倒入主反应器中,打开并调节蠕动泵和气泵使实验系统中气体流动和液体循环达到稳定;然后打开等离子体电源,调节电压和电流控制输入功率,开始进行放电,每次实验放电时间设定为 60 min,并每隔一定时间取 1 mL 样品用于物质质量浓度的检测;HCTZ 的质量浓度采用高效液相色谱仪进行测定,仪器运行条件设置为:甲酸溶液(0.1%)与乙腈(色谱级)以 3:1 的体积比组成流动相,在 30 °C 柱温、流速 1 mL/min 的条件下通过 C18 色谱柱,最后用微量注射器吸取 20 μL 样品在 271 nm 波长下进行分析。每组实验均进行 3 次平行实验,分析计算后的结果取平均值。

实验物质的降解效率计算公式为:

$$\omega = \frac{(\rho_0 - \rho_t)}{\rho_0} \times 100\% \quad (1)$$

其中: ρ_0 为 HCTZ 的初始质量浓度; ρ_t 为 HCTZ 在处理时间为 t 时的质量浓度。

2 结果讨论与分析

2.1 MnFe₂O₄ 的结构表征

MnFe₂O₄ 的结构表征结果如图 2 所示。

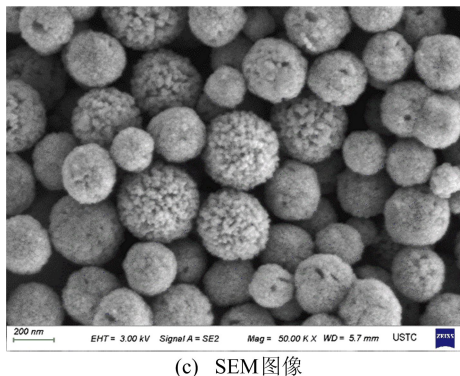
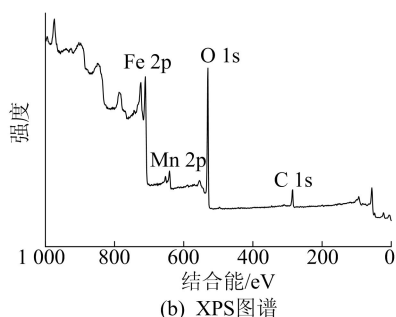
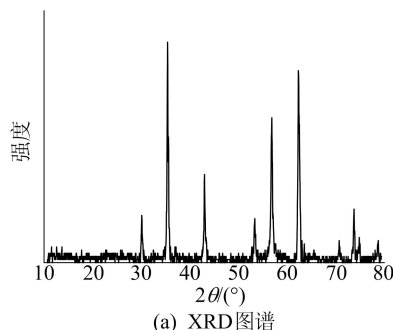


图 2 MnFe₂O₄ 的结构表征结果

图 2a 所示为该催化材料的 X 射线衍射(X-ray diffraction, XRD) 图谱。由图 2a 可知,在 2θ 为 30.16° 、 35.52° 、 43.16° 、 53.58° 、 57.08° 、 62.67° 、 74.19° 处的衍射峰分别对应了 (220) (311) (400) (422) (511) (440) (533) 晶面,表明其样品中存在 MnFe₂O₄ 成分,说明成功制备所需催化剂。

图 2b 所示为 MnFe₂O₄ 的 X 射线光电子能谱(X-ray photoelectron spectroscopy, XPS) 谱图。从图 2b 可以看出,该材料具有 C、O、Mn、Fe 的 4 个元素信号且没有发现其他的元素,说明制备出的锰铁氧体符合实验要求。其中在结合能约为 285、530、641、711 eV 处 4 个元素的光电子线分别对应 1s、1s、2p、2p。

图 2c 所示为 MnFe_2O_4 的扫描电子显微镜 (scanning electron microscope, SEM) 下微观形貌和结构。从图 2c 可以看出, MnFe_2O_4 纳米球的直径约为 200 nm, 在纳米球状物表面分布了许多尺寸大小在 10 nm 左右的纳米晶体, 呈现出多孔隙特点。

2.2 HCTZ 初始质量浓度的影响

为了解 HCTZ 不同初始质量浓度下的降解情况, 将等离子体装置输入功率设定为 45.6 W, 空气流量为 2.5 L/min, 溶液初始 pH 值为 8.1, 分处理初始质量浓度为 10、20、50、100 mg/L 的 HCTZ 溶液, 结果如图 3 所示。

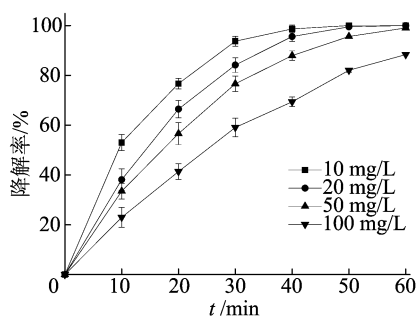


图 3 HCTZ 初始质量浓度对降解效率的影响

从图 3 可以看出, 在处理前 20 min 内每个质量浓度下的降解速率都很迅速, 在处理 60 min 后, 初始质量浓度为 10、20、50 mg/L 的 HCTZ 溶液均能完全降解, 而初始质量浓度为 100 mg/L 的溶液降解效率为 88.4%。根据 4 种质量浓度下的降解曲线可以看出, 随着初质量始浓度的不断提升, HCTZ 的降解效率和速率均发生下降, 这是由于在低质量浓度条件下, HCTZ 能充分与放电产生的活性物质进行接触反应达到去除; 而在高质量浓度时, 活性物质的数量有限, 加之反应过程中产生的副产物积累参与对溶液中活性物质的竞争, 因此导致去除效率变低的现象^[20]。

2.3 输入功率的影响

为考察等离子体输入功率对降解效率的影响, 将 HCTZ 的初始质量浓度设置为 20 mg/L, 空气流量设定为 2.5 L/min, 样品溶液的初始 pH 值为 8.1, MnFe_2O_4 的投加量为 50 mg, 电源的输入功率分别为 32.7、45.6、58.7 W, 所得的实验结果如图 4 所示。

从图 4 可以看出: 在 58.7 W 输入功率下降解 HCTZ 所需要的时间最短, 且在处理 15 min 内便能达到对物质 90% 以上的去除; 32.7 W 功

率下效率最慢, 在处理 25 min 后才达到近 90% 的去除率。高输入功率下优异的降解表现可归因于在这种条件下的溶液产生了更多的 O_3 、 H_2O_2 、 $\cdot\text{OH}$ 、 $\cdot\text{O}$ 等活性物质, 同时因为 MnFe_2O_4 的存在能与生成的 H_2O_2 进一步诱导芬顿反应, 极大地促进了对污染物质的氧化分解^[21]。但随着输入功率的提升, 实验过程中装置的发热量会相应增加, 并且注意到降解效率提升幅度也有所减小, 因此从能量利用效率的角度来看, 本研究将采用 45.6 W 作为常用输入功率。

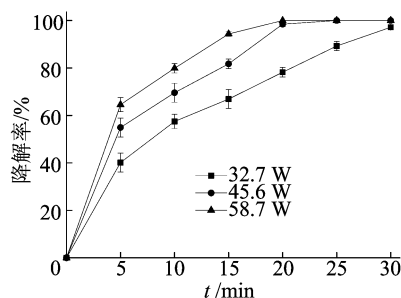


图 4 输入功率对降解效率的影响

2.4 HCTZ 溶液初始 pH 值的影响

为研究溶液初始 pH 值对降解效率的影响, 选择 20 mg/L 作为 HCTZ 的初始质量浓度, 电源输入功率为 45.6 W, 空气流量为 2.5 L/min, MnFe_2O_4 的投加量为 50 mg, 利用 NaOH/HNO_3 将溶液的初始 pH 值分别调至 11.3、8.1、3.4, 所得的降解结果如图 5 所示。由图 5 可知: 在中性和酸性条件下的降解效率更快, 并且大幅度领先碱性条件下的降解效率; 前两者在处理 20 min 内便将溶液中的 HCTZ 完全分解, 而碱性溶液下直至 25 min 时的降解效率也仅有 30.3%。

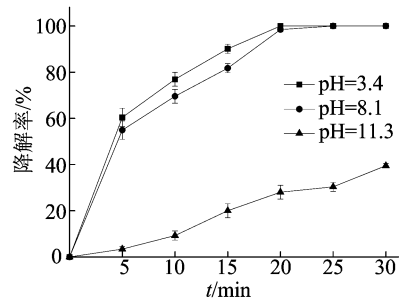


图 5 初始 pH 值对降解效率的影响

碱性条件下降解体系性能骤然降低的原因可以归结于溶液中的 Fe^{3+} 在碱性环境中易发生水解而形成沉淀, 导致溶液中该离子浓度不断下降而造成羟基自由基的生成速度极大变缓, 同时

碱性条件也不利于H₂O₂的分解过程,这也是导致·OH数量减少的原因之一^[22]。

2.5 MnFe₂O₄剂量的影响

本节对DBD/MnFe₂O₄复合降解体系的最佳催化剂投放剂量进行了研究,将HCTZ的初始质量浓度设定在20 mg/L,空气流量为2.5 L/min,溶液的初始pH值为8.1,电源的输入功率为45.6 W,MnFe₂O₄的投加量分别为0、30、50、100、150 mg,实验所得结果如图6所示。

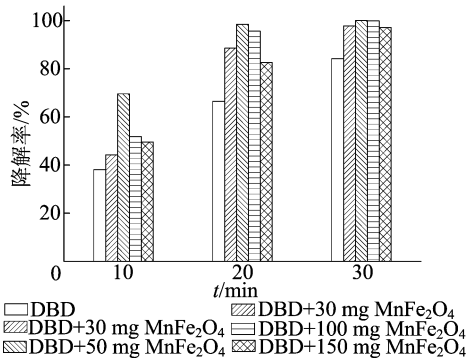


图6 催化剂投放剂量对降解效率的影响

从图6可以看出:相比不添加催化剂,所有存在MnFe₂O₄实验组的降解效率在各采样时间点均有所领先,并且在30 min时将HCTZ近乎完全的降解,证明MnFe₂O₄在该系统中具备良好的催化性能;同时还发现随着MnFe₂O₄投加量不断提高,目标药物的降解效率呈现先上升后又缓慢下降的趋势,可能是由于更多的MnFe₂O₄意味着能提供更多的催化活性位点,促进Mn³⁺/Mn²⁺和Fe³⁺/Fe²⁺的循环以催化生成更多的·OH,但随着反应器中催化剂质量浓度越来越高,催化剂积聚成团阻碍了活性物质与污染物分子的接触以及紫外光的照射,影响光电子的传输效率,最终导致降解效率缓慢下降^[23]。因此在本实验中,该体系下MnFe₂O₄的最佳剂量为50 mg。

2.6 MnFe₂O₄循环实验

为考察MnFe₂O₄催化剂的循环性能,在HCTZ初始质量浓度为20 mg/L,空气流量为2.5 L/min,溶液初始pH值为8.1,MnFe₂O₄的投加量为50 mg,电源输入功率为45.6 W条件下的每轮实验后对催化材料通过磁力进行分离回收,并用乙醇和去离子水反复洗涤后干燥以用于下一轮实验,最终得到的实验结果如图7所示。

从图7可以看出,在进行5次循环实验后,该体系仍能在25 min前将溶液中的药物成分基本

去除,而从每个时间点的降解效率来看,下降幅度也并不明显,以处理时间为20 min为例,循环5次后的效率仅下降6%左右,说明MnFe₂O₄具备稳定的催化性能,并能重复回收利用。

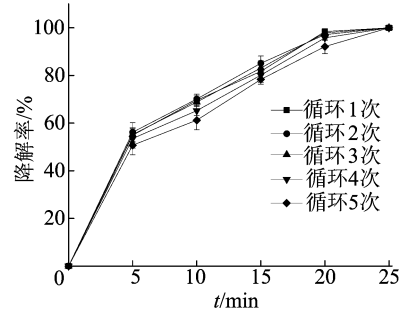


图7 催化剂循环实验

3 结 论

本文对DBD/MnFe₂O₄复合降解体系处理常用药物氢氯噻嗪的性能进行系统的研究。采用溶剂热法成功制备了所需催化剂,并与阵列式DBD结合对氢氯噻嗪具有良好的降解效果。在溶液初始pH值为8.1,输入功率为45.6 W,空气流量为2.5 L/min,MnFe₂O₄投放剂量为50 mg的最佳实验参数下,仅20 min内便将初始质量浓度为20 mg/L的HCTZ完全去除且MnFe₂O₄在经5次循环使用后仍维持近原始的催化性能,表现出材料的稳定性,说明DBD/MnFe₂O₄复合体系能有效降解水中的HCTZ药物,对未来处理各类PPCPs污染物具有一定的参考意义。

[参 考 文 献]

- [1] 陆慧敏. 人口老龄化与老年人口健康及疾病问题的研究进展[J]. 世界最新医学信息文摘, 2016, 16(4): 39-40.
- [2] 魏新伟. 不同降压药物联合治疗对老年高血压合并慢性心衰患者血压变异性及心衰疗效的影响[J]. 中国医学工程, 2021, 29(5): 49-54.
- [3] 吕文静, 朱琳, 孔祥权, 等. 我国PPCPs污染与治理技术研究进展[J]. 化工新型材料, 2020, 575(8): 48-51.
- [4] 王建龙. 废水中药品及个人护理用品(PPCPs)的去除技术研究进展[J]. 四川师范大学学报, 2020, 43(2): 144-172.
- [5] 李金, 陆光华, 王莹. 水环境中药物及个人护理用品分布, 累积及营养级传递研究现状[J]. 高原农业, 2020, 20(6): 66-74.
- [6] 毕建培, 刘晨, 崔凡. 珠江流域重要饮用水水源地安全状况评估及对策研究[J]. 水利发展研究, 2019(8): 33-36, 61.
- [7] 陈晓轩, 李方旭, 杨敬坡, 等. 抗生素废水处理技术的研究进展[J]. 绿色科技, 2020(4): 23-24, 26.

(下转第463页)

[参 考 文 献]

- [1] 汤蓉蓉,唐学帮. 铝合金汽车轻量化与焊接技术探究[J]. 机电工程技术,2021,50(12):105-107,121.
- [2] 吴雁,肖礼军,孙士学,等. 激光在铝合金焊接中的应用研究进展[J]. 热加工工艺,2021,50(15):1-5,11.
- [3] 陈亚斌,徐世兴,谭淑芹,等. 铝合金激光焊接技术研究[J]. 现代制造技术与装备,2020,56(8):36-37.
- [4] 王瑜舒,乐时,耿韶宁,等. 汽车车身激光焊接技术的现状与发展趋势[J]. 中国激光,2022,49(12):184-201.
- [5] 丁亚茹,陈芙蓉,杨帆,等. 响应面法分析 7075 铝合金激光焊接参数对焊接质量的影响规律[J]. 材料导报,2021,35(2):2103-2108,2114.
- [6] 续敏,李向荣,杨化林. 5052 铝合金激光焊接接头组织和性能研究[J]. 热加工工艺,2017,46(1):236-237,242.
- [7] RAMIARION H, BARKA N, MIRAKHORLI F, et al. Parameter optimization for laser welding of dissimilar aluminum alloy: 5052-H32 and 6061-T6 considering wobbling technique[J]. The International Journal of Advanced Manufacturing Technology, 2021, 118(11/12): 4195-4211.
- [8] DUGGIRALA A, KALVETTUKARA P, ACHERJEE B, et al. Numerical simulation of the temperature field, weld profile, and weld pool dynamics in laser welding of aluminium alloy[J]. Optik, 2021, 247: 167990.
- [9] 王前进. 6016-T4 铝合金板材激光焊接工艺及数值模拟研究[D]. 长沙:湖南大学,2020.
- [10] 陶亚平. 不同激光焊方法对 5A06 铝合金中厚板组织及性能的影响[J]. 焊接技术,2022,51(9):25-28,144.
- [11] 李莉,张赛,何强,等. 响应面法在试验设计与优化中的应用[J]. 实验室研究与探索,2015,34(8):41-45.
- [12] 余杰,蔡创,谢佳,等. 基于响应面法的低碳贝氏体钢激光电弧复合焊接工艺参数优化[J]. 中国激光,2022,49(16):179-188.
- [13] 汪磊,张彰,张宪忠,等. 污水处理厂中全氟化合物的污染研究[J]. 环境科学学报,2011(7):1363-1368.
- [14] 陈敏,徐师,张大超,等. 高级氧化工艺降解选矿废水应用研究进展[J]. 有色金属科学与工程,2017,8(6):86-91.
- [15] 尚红卫. 臭氧氧化技术在水处理中的应用研究[J]. 煤炭技术,2011(6):218-219.
- [16] 孙海杰,陈凌霄,李晓艳,等. BiOI/ZrO₂ 光催化降解甲基橙性能研究[J]. 河南科学,2019,37(1):54-58.
- [17] 张利强. 芬顿在污水处理中的应用现状及发展趋势[J]. 科技创新与应用,2017,12:115-116.
- [18] RUSSO M, IERVOLINO G, VAIANO V, et al. Non-thermal plasma coupled with catalyst for the degradation of water pollutants; a review[J]. Catalysts, 2020, 10(12): 1438-1457.
- [19] DENG R, HE Q, YANG D, et al. Enhanced synergistic performance of nano-Fe⁰-CeO₂ composites for the degradation of diclofenac in DBD plasma[J]. Chemical Engineering Journal, 2021, 406(15): 1-11.
- [20] VAN H T, NGUYEN L H, HOANG T K, et al. Heterogeneous Fenton oxidation of paracetamol in aqueous solution using iron slag as a catalyst; degradation mechanisms and kinetics [J]. Environmental Technology & Innovation, 2020, 18: 670-681.
- [21] BRIGANTE M, DELLAGRECA M, PREVITERA L, et al. Degradation of hydrochlorothiazide in water[J]. Environmental Chemistry Letters, 2005, 2(4): 195-198.
- [22] BUENO M J, GOMEZ M J, HERRERA S, et al. Occurrence and persistence of organic emerging contaminants and priority pollutants in five sewage treatment plants of Spain; two years pilot survey monitoring[J]. Environ Pollut, 2012, 164: 267-273.
- [23] ARMAKOVIC S J, ARMAKOVIC S, CETOJEVIC-SIMIN D D, et al. Photocatalytic degradation of 4-amino-6-chlorobenzene-1,3-disulfonamide stable hydrolysis product of hydrochlorothiazide; detection of intermediates and their toxicity[J]. Environ Pollut, 2018, 233: 916-924.
- [24] HUANG X, LIU L, XI Z, et al. One-pot solvothermal synthesis of magnetically separable rGO/MnFe₂O₄ hybrids as efficient photocatalysts for degradation of MB under visible light [J]. Materials Chemistry and Physics, 2019, 231: 68-74.
- [25] WU H, FAN J, LIU F, et al. Degradation of tetracycline in aqueous solution by persulphate assisted gas-liquid dielectric barrier discharge[J]. Water and Environment Journal, 2021, 1: 1-11.
- [26] SLAMANI S, ABDELMALEK F, GHEZZAR M R, et al. Initiation of Fenton process by plasma gliding arc discharge for the degradation of paracetamol in water [J]. Journal of Photochemistry and Photobiology A: Chemistry, 2018, 359: 1-10.
- [27] QIN H, YANG Y, SHI W, et al. Heterogeneous Fenton degradation of ofloxacin catalyzed by magnetic nanostructured MnFe₂O₄ with different morphologies [J]. Environ Sci Pollut Res Int, 2021, 125(48): 1-13.
- [28] ANSARI M, HOSSEIN MAHVI A, HOSSEIN SALMANI M, et al. Dielectric barrier discharge plasma combined with nano catalyst for aqueous amoxicillin removal; Performance modeling, kinetics and optimization study, energy yield, degradation pathway, and toxicity [J]. Separation and Purification Technology, 2020, 251(15): 253-270.

(责任编辑 吴亮)

(责任编辑 吴亮)

(上接第 451 页)