

# PDS/CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>活化体系在四环素废水处理中的应用

刘佳露<sup>1,2</sup>, 朱 彧<sup>3</sup>, 刘兆熒<sup>4</sup>, 胡亭尹<sup>1</sup>, 肖调兵<sup>1</sup>

(1. 中核武汉核电运行技术股份有限公司, 湖北武汉 430223; 2. 吉林大学地下水资源与环境教育部重点实验室, 吉林长春 130021; 3. 吉林省环境应急指挥中心, 吉林长春 130000; 4. 吉林省长春生态环境监测中心, 吉林长春 130000)

**[摘要]** 将自制铁酸钴(CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>)颗粒投入含过二硫酸盐(PDS)的溶液中, 构建PDS/CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>催化氧化体系, 处理四环素(TCH)有机废水。X射线衍射(XRD)和傅里叶红外光谱(FT-IR)表征结果显示成功制备出CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>颗粒。在PDS/CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>/TCH体系中, 重点考察了PDS投加量、CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>投加量、TCH初始浓度和初始pH等因素对CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>活化过硫酸盐催化氧化水中四环素的影响, 以及自制CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>颗粒的重复利用性。实验结果表明: 四环素的去除率与PDS和CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>的投加量呈正相关, 与TCH初始浓度呈负相关; 酸性条件有利于TCH的去除, 中性和碱性条件下TCH的去除率略有下降; 自制CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>颗粒在活化过硫酸盐体系中重复利用10次后, 对TCH仍表现出很好的去除效果, 说明自制CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>颗粒具有较高且持续稳定的催化活性。CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>颗粒活化PDS催化氧化去除TCH有机废水的体系以非均相催化反应为主。此外, 将CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>催化剂应用于自制的连续流管式反应器中, 利用CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>颗粒自身磁性可实现催化剂的快速固定化。水力停留时间为31 min时, 25 mg/L四环素废水的去除率稳定在90%以上。

**[关键词]** CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>; 过硫酸盐; 四环素; 抗生素; 高级氧化

**[中图分类号]** X703 **[文献标识码]** A **[文章编号]** 1005-829X(2023)04-0139-05

## Application of PDS/CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> activation system in the treatment of tetracycline wastewater

LIU Jialu<sup>1,2</sup>, ZHU Yu<sup>3</sup>, LIU Zhaoying<sup>4</sup>, HU Ningyin<sup>1</sup>, XIAO Diaobing<sup>1</sup>

(1. China Nuclear Power Operation Technology Corporation, Co., Ltd., Wuhan 430223, China; 2. Key Laboratory of Groundwater Resources and Environment, Ministry of Education, Jilin University, Changchun 130021, China; 3. Jilin Environmental Emergency Command Center, Changchun 130000, China; 4. Changchun Ecological Environment Monitoring Center, Changchun 130000, China)

**Abstract:** Cobalt ferrate (CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>) particles were added into solution containing peroxodisulfate (PDS) to construct a PDS/CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> catalytic oxidation system, for treating tetracycline (TCH) organic wastewater. X-ray diffraction (XRD) and Fourier infrared spectroscopy (FT-IR) results showed the successful preparation of CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> particles. In the PDS/CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>/TCH system, the effects of PDS dosage, CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> dosage, initial concentration of TCH and initial pH on the catalytic oxidation of TCH by CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>-activated persulfate and the reusability of the CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> particles were focused on. The experimental results showed that the removal rate of TCH was positively correlated with the dosage of PDS and CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>, and negatively correlated with the initial concentration of TCH. Acidic conditions favored the removal of TCH, and the removal rate of TCH slightly decreased under neutral and alkaline conditions. The CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> particles showed good removal effect on TCH after 10 times of reuse in the PDS/CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> system, indicating that the CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> have high stability and continuous catalytic activity. CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> activated persulfate oxidation of TCH was mainly a heterogeneous reaction. In addition, the CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> catalyst was applied to continuous flow tubular reactor, and the catalyst could be immobilized rapidly by using CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> particles' magnetism. The removal rate of 25 mg/L TCH wastewater was above 90% at a hydraulic retention time of 31 min.

**Key words:** CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>; persulfate; tetracycline; antibiotic; advanced oxidation

四环素类抗生素常用于临床治疗和畜牧业,因大量使用或处置不当导致其在环境中的残留越来越严重,潜在危害水土生态系统和人体健康<sup>[1]</sup>。亟须寻找能快速、高效处理四环素类有机废水的技术。

近年来,基于硫酸根自由基的高级氧化技术(SR-AOPs)常用于难降解有机废水的治理<sup>[2]</sup>。过二硫酸钠( $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_8$ )具有常温下的高度稳定性、低廉的价格和良好的水溶性,逐渐发展为一种典型AOPs氧化剂<sup>[3]</sup>。 $\text{S}_2\text{O}_8^{2-}$ 自身结构对称且稳定,但在过渡金属离子(如 $\text{Fe}^{2+}$ 、 $\text{Co}^{2+}$ 、 $\text{Ag}^+$ 等)存在、加热、紫外照射、微波辐射等特定条件<sup>[4]</sup>下可被活化产生硫酸根自由基( $\text{SO}_4^{\cdot-}$ )<sup>[4]</sup>,理论上能降解大部分有机物。均相 $\text{Fe}^{2+}/\text{S}_2\text{O}_8^{2-}$ 、 $\text{Co}^{2+}/\text{S}_2\text{O}_8^{2-}$ 体系已被广泛研究,但 $\text{Fe}^{2+}/\text{Co}^{2+}$ 存在条件苛刻且仅在酸性条件下起作用,以及低价态金属离子( $\text{Fe}^{2+}/\text{Co}^{2+}$ )向高价态金属离子( $\text{Fe}^{3+}/\text{Co}^{3+}$ )快速转化随即失活等现象<sup>[5]</sup>,限制了均相体系的应用,并逐渐发展出以铁氧体等固体催化剂为主的非均相体系。

具有尖晶石结构稳定性的 $\text{Fe}_3\text{O}_4$ 颗粒受到关注,此类催化剂还可利用自身磁性解决常规催化剂颗粒或粉末流失严重及难以收集再利用的问题。但有报道指出 $\text{Fe}_3\text{O}_4$ 颗粒表面的低价态 $\text{Fe}^{2+}$ 存在消耗完毕催化剂即失活的问题<sup>[6]</sup>。将过渡金属(如Co、Cu、Zn、Mn等)引入 $\text{Fe}_3\text{O}_4$ 取代其反尖晶石结构中的 $\text{Fe}^{2+}$ ,制备多金属铁氧体催化剂,使金属离子之间发生协同作用,有利于低价态金属离子的再生<sup>[7]</sup>,从而解决催化剂易失活的问题。笔者采用自制铁酸钴( $\text{CoFe}_2\text{O}_4$ )颗粒,构建了非均相PDS/ $\text{CoFe}_2\text{O}_4$ 催化氧化体系,考察其对四环素废水的去除效果。

## 1 材料与方法

### 1.1 材料与试剂

材料:自制磁性 $\text{CoFe}_2\text{O}_4$ 颗粒(制备方法见文献[8]),用X射线衍射仪、傅里叶红外光谱仪对材料的物相和表面官能团进行分析。

试剂:过二硫酸钠(PDS)、盐酸四环素(TCH)、氢氧化钠、浓硫酸、浓盐酸,均为分析纯;实验用水采用超纯水。

仪器:XD6型X射线衍射仪(XRD),北京普析通用仪器有限责任公司;Nicolet500型傅里叶红外光谱仪(FT-IR),美国尼高力;76-Sa型恒温水浴锅、JB90-SH型机械搅拌器,上海标本模型厂;752型紫外可见分光光度计,上海舜宇恒平科学仪器有限公

司;AA-6300C型原子吸收分光光度计,日本岛津公司;DZF-6050型真空干燥箱,上海博迅医疗生物仪器股份有限公司。

### 1.2 实验方法

静态模拟实验在附带控温和搅拌功能的装置中进行,如图1(a)所示。事先将水浴温度调至设定值,向圆柱形玻璃容器中加入定量TCH溶液并调节pH至设定值,将反应容器转移至水浴锅中并设定转速300 r/min搅拌,依次加入定量的 $\text{CoFe}_2\text{O}_4$ 颗粒和PDS溶液,计时开始。每隔一段时间取样并立即用0.22  $\mu\text{m}$ 膜过滤,用紫外分光光度法于358 nm处测定滤液中的TCH,剩余滤液4  $^{\circ}\text{C}$ 下保存,用于后续原子吸收分光光度法测定金属离子含量。每组实验至少做2个平行,结果取平均值。每批实验结束后,用磁铁对催化剂颗粒(饱和磁化强度53.7 emu/g)进行分离回收,用超纯水反复清洗后于真空干燥箱中烘干再利用。

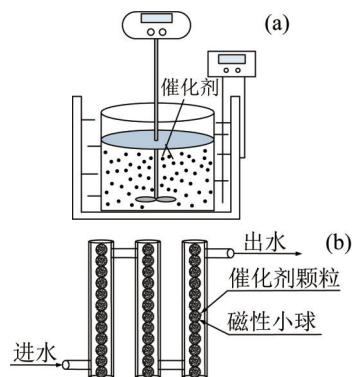


图1 静态模拟实验装置(a)和连续流管式反应装置(b)

Fig. 1 Static simulation experiment device (a) and continuous flow tubular reactor (b)

动态模拟实验在自制的连续流管式反应器中进行,如图1(b)所示。玻璃管尺寸为 $D 1 \text{ cm} \times 10 \text{ cm}$ ;磁性小球表面光滑,直径为0.5 cm;磁性催化剂颗粒均匀分布于磁性小球表面。TCH模拟废水从玻璃管底部被连续注入管式反应器中,通过蠕动泵调节进水流速,从末级玻璃管出口采样,立即用0.22  $\mu\text{m}$ 膜过滤,测定滤液中TCH含量。

## 2 结果与讨论

### 2.1 $\text{CoFe}_2\text{O}_4$ 颗粒活化过硫酸盐体系氧化去除TCH的效果

图2为 $\text{CoFe}_2\text{O}_4$ 颗粒的XRD和FT-IR图谱。

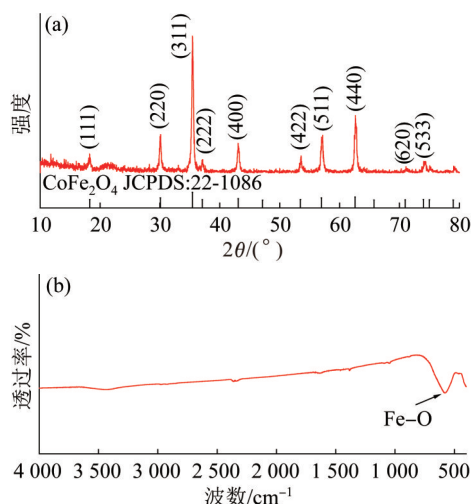


图2 催化剂样品的XRD(a)和FT-IR(b)图谱

Fig. 2 XRD spectra (a) and FT-IR spectra (b) of catalyst samples

由图2(a)可知,自制催化剂的特征峰与CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>标准卡片JCPDS 22-10086相符合;图2(b)中577 cm<sup>-1</sup>处特征峰(对应尖晶石型FeO<sub>6</sub>结构的四面体位置金属内在伸缩振动<sup>[9]</sup>)也佐证了反尖晶石结构CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>的形成。将0.5 g催化剂完全溶于热的浓盐酸进行元素含量分析,得知催化剂中Fe、Co的物质的量之比为1.92,且XRD图谱中几乎无其他杂峰,说明催化剂颗粒以反尖晶石结构的CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>为主。

将自制磁性CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>颗粒投入过硫酸盐溶液中,构建PDS/CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>体系,用于TCH的去除。实验条件:PDS初始质量浓度为1 g/L,CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> 1 g/L,TCH初始质量浓度为50 mg/L,20 ℃,初始pH为7.0。不同反应体系中TCH的去除效果如表1所示。

表1 不同体系中TCH的去除情况

Table 1 Removal of TCH in different systems				
反应体系	PDS	CoFe <sub>2</sub> O <sub>4</sub>	PDS/CoFe <sub>2</sub> O <sub>4</sub>	PDS/Fe-Co
TCH去除率/%	0	4.5	72.7	15.0

PDS和自制CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>颗粒单独存在于TCH溶液中时,TCH去除率分别为0、4.5%;PDS和CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>同时存在时,TCH去除率增至72.6%,说明PDS/CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>体系能够很好地去除溶液中的TCH。该体系中TCH的去除可能依靠以下作用:(1)CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>颗粒的吸附作用;(2)CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>颗粒中浸出游离金属离子Fe<sup>2+</sup>、Co<sup>2+</sup>等,活化PDS产生硫酸根自由基,本质上是均相催化反应;(3)CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>颗粒表面的低价态金

属离子活化PDS,产生硫酸根自由基,为非均相催化反应。非均相催化反应对TCH氧化去除的贡献比是验证CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>催化剂优劣的重要指标。这是因为若上述均相催化反应占比较高,同样会出现Fe<sup>2+</sup>/PDS均相催化体系的弊端(如催化剂利用率低,金属离子催化剂流失率高,无法回收再利用等)。因此,实验在同等条件(CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> 1 g/L,TCH 50 mg/L,20 ℃,pH为7.0)下浸泡CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>颗粒4 h,分离固体颗粒后,向浸出金属离子的液体中加入等量(1 g/L)PDS,反应4 h后TCH去除率仅为15.0%,说明浸出金属离子活化PDS的均相催化反应对TCH的去除贡献较低。因此,CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>颗粒活化PDS催化氧化去除TCH的体系是以非均相催化反应为主导的多相催化反应体系。

## 2.2 影响因素研究

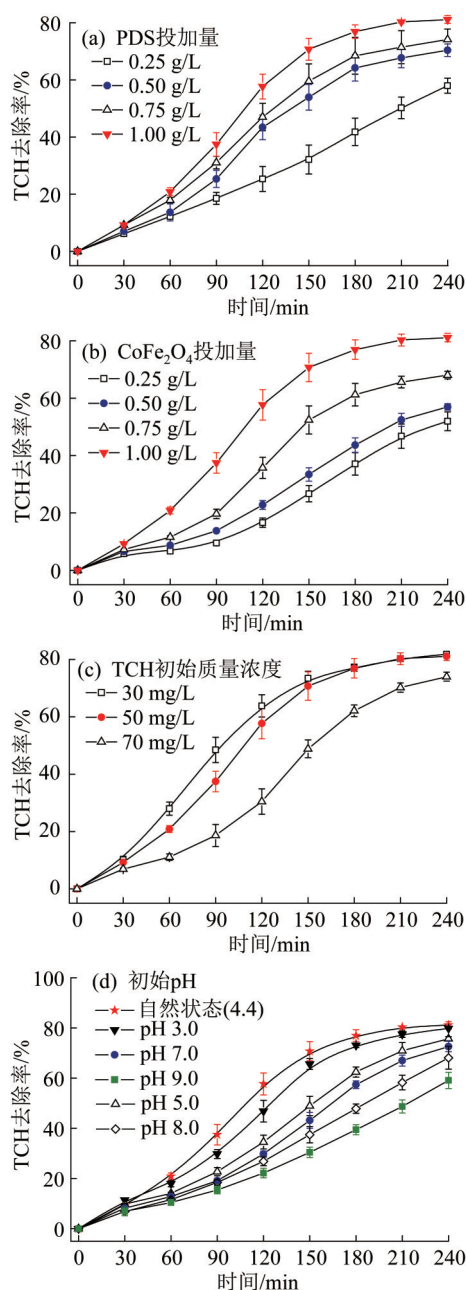
控制实验条件为CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> 1 g/L、TCH初始质量浓度50 mg/L、20 ℃、未调节pH(初始pH为4.4),考察不同PDS投加量下TCH的去除效果,见图3(a)。

由图3(a)可见,在PDS/CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>体系中,随着PDS投加量的增加,TCH去除率逐渐增大;PDS投加量从0.25 g/L增至1.00 g/L时,反应4 h后TCH去除率从58.0%增至82.0%;PDS投加量继续增加时,TCH去除率的增幅逐渐减小。PDS作为硫酸根自由基的来源,投加量增加会产生更多硫酸根自由基,进而氧化更多TCH。但体系中PDS过量投加也有一定副作用,如过硫酸根离子竞争消耗硫酸根自由基,或过多的硫酸根自由基自我消耗<sup>[4]</sup>,这些副反应均会消耗硫酸根自由基,影响TCH的氧化去除。

在PDS初始质量浓度为1 g/L、TCH初始质量浓度50 mg/L、20 ℃、未调节pH的实验条件下,考察不同CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>投加量下TCH的去除效果,如图3(b)所示。可见PDS/CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>体系中,TCH去除率随着CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>投加量的增加而增大。CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>投加量为0.25 g/L时,TCH去除率仅为52.0%;增加CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>投加量至1 g/L时,TCH去除率随之增至82.0%。增加催化剂的用量可为过硫酸盐的活化提供更多的接触位点和催化活性位点<sup>[10]</sup>,有利于硫酸根自由基的产生,进而促进TCH的去除。

当PDS初始质量浓度为1 g/L、CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>投加量为1 g/L、20 ℃、未调pH时,TCH初始质量浓度对TCH去除效果的影响如图3(c)所示。TCH由30 mg/L增



图3 PDS/CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>体系的不同因素对TCH去除效果的影响Fig. 3 Effect of factors on the removal of TCH in PDS/CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> systems

至50 mg/L,反应4 h后TCH去除率几乎相同(约82.0%),但从反应过程来看,反应速率有稍微降低的趋势;TCH继续增至70 mg/L,TCH去除率下降明显;这是由于过多TCH吸附在催化剂表面,与PDS竞争催化剂表面的活性位点,影响硫酸根自由基的产生,从而导致TCH去除率降低。

在PDS初始质量浓度为1 g/L、CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>投加量为1 g/L、TCH初始质量浓度为50 mg/L、20 °C的实验条

件下,调节溶液pH,TCH的去除效果如图3(d)所示。PDS/CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>体系自然状态下的pH约为4.4,反应4 h后,TCH去除率约为82.0%。调节体系pH为3.0时,TCH去除率略下降,至81.0%。添加碱液调节pH时,TCH去除率降幅相对较大;pH为5.0、7.0、8.0、9.0时,TCH去除率分别降至75.7%、72.6%、68.1%、60.0%。这表明对于PDS/CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>体系,碱性条件不利于TCH的氧化降解,但整体来看PDS/CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>体系能在较宽的pH范围(3~9)保持较高的TCH去除率(≥60%)。PDS/CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>体系中,PDS产生的硫酸根自由基在碱性条件下与氢氧根反应生成羟基自由基,形成双自由基系统,使得体系仍保持较高的氧化性,即使在碱性条件下TCH去除率仍较高。

### 2.3 催化剂的重复利用性能

以上表明,PDS/CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>体系在20 °C下对50 mg/L TCH保持较高去除率的优化条件为PDS初始质量浓度1 g/L、CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>投加量1 g/L、未调节pH。为探讨催化剂的稳定性和回收利用性能,对优化条件下反应4 h后的催化剂进行磁分离、收集、干燥、研磨,进行回收再利用。TCH的去除效果见表2。

表2 催化剂重复利用时对TCH的去除情况

Table 2 Removal of TCH during catalyst reuse

循环次数	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
TCH去除率/%	81.6	82.9	80.5	82.5	80.4	82.5	79.0	79.1	81.1	80.6

由表2可见,重复利用10次,催化剂的回收利用率在95%左右(对0.1 g催化剂进行磁分离回收,其损失量约为0.005 g)。TCH去除率波动较小,在79.0%~82.9%,平均为81.0%。催化剂重复利用第10次时,仍可保持较高的TCH去除率(80.6%),说明其具有较高且持续稳定的催化活性。

### 2.4 连续流管式反应器中的去除效果

利用催化剂自身良好磁性将其快速均匀地固定于磁性小球表面,置于自制的三级管式反应器中,用蠕动泵实现模拟TCH废水的连续进水和连续出水,考察TCH的去除效果。

控制催化剂用量为0.3 g、进水PDS质量浓度为1 g/L、进水TCH为25 mg/L,不同水力停留时间(HTR)下连续流管式反应器的运行效果如图4所示。

由图4可见,HRT设置为3 min时,运行60 min时出水TCH稳定在15.3 mg/L;改变HRT为8 min,前

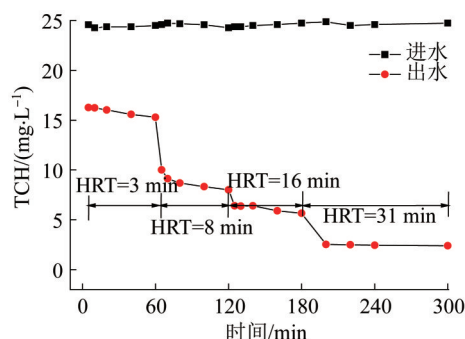


图4 连续流管式反应器的运行效果

Fig. 4 Operation effect in continuous flow tubular reactor

5 min 出水 TCH 快速下降,最终稳定于 8 mg/L;提高 HRT 至 16 min 继续运行,出水 TCH 继续下降,稳定至 5.6 mg/L;HRT 提高至 31 min 时,出水 TCH 稳定在 2.3~2.5 mg/L,此时 TCH 去除率在 90% 以上。由此可见,构建的 PDS/CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> 体系在连续流管式反应器中可实现对催化剂的快速固定化应用,并对模拟 TCH 废水表现出较高的去除效果。

### 3 结论

(1) 构建 PDS/CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> 体系,该体系对 TCH 的氧化过程主要依靠催化剂表面金属离子而非溶出金属离子对 PDS 的活化作用,是以非均相催化反应为主导的多相催化反应体系。

(2) PDS/CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> 体系对水中 TCH 有较高的去除效果,且受 PDS 投加量、CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> 投加量、初始 TCH 质量浓度和初始 pH 等因素的影响。在 PDS 为 1 g/L、CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> 投加量为 1 g/L、TCH 为 50 mg/L、20 °C、未调 pH 条件下,反应 4 h 后 TCH 去除率达到 82.0%。四环素的去除率与 PDS 和 CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> 投加量呈正相关,与 TCH 初始质量浓度呈负相关。PDS/CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> 体系在较宽的 pH 范围(3~9)对 TCH 均有较好的去除效果。

(3) CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> 催化剂在活化过硫酸盐体系中重复利用 10 次后对 TCH 仍表现出很好的去除效果,不易失活;依靠催化剂自身的良好磁性,磁分离效果良好,回收率达到 95% 以上,可回收重复利用。

(4) PDS/CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> 体系在自制连续流管式反应器中的运行情况表明,利用催化剂自身磁性可实现催化剂的快速固定化,且对 TCH 废水有良好的出水效

果。HRT 为 31 min 时,处理进水质量浓度为 25 mg/L 的四环素废水,去除率稳定在 90% 以上。

### 参考文献

- [1] CARVALHO I T, SANTOS L. Antibiotics in the aquatic environments: A review of the European scenario[J]. *Environment International*, 2016, 94: 736-757.
- [2] 张凌星,肖鹏飞.活化过硫酸盐氧化处理抗生素废水的研究进展[J]. *工业水处理*, 2021, 41(5): 29-35.  
ZHANG Lingxing, XIAO Pengfei. Research progress on treatment of antibiotic wastewater by activated persulfate oxidation[J]. *Industrial Water Treatment*, 2021, 41(5): 29-35.
- [3] LIU J, ZHONG S, SONG Y, et al. Degradation of tetracycline hydrochloride by electro-activated persulfate oxidation[J]. *Journal of Electroanalytical Chemistry*, 2018, 809: 74-79.
- [4] MATZEK L W, CARTER K E. Activated persulfate for organic chemical degradation: A review[J]. *Chemosphere*, 2016, 151: 178-188.
- [5] WANG J, WANG S. Activation of persulfate (PS) and peroxymonosulfate (PMS) and application for the degradation of emerging contaminants[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2018, 334: 1502-1517.
- [6] LIANG C, BRUELL C J, MARLEY M C, et al. Persulfate oxidation for in situ remediation of TCE. II. Activated by chelated ferrous ion[J]. *Chemosphere*, 2004, 55: 1225-1233.
- [7] MAGALHAES F, PEREIRA M C, BOTREL S E C, et al. Cr-containing magnetites Fe<sub>3-x</sub>Cr<sub>x</sub>O<sub>4</sub>: The role of Cr<sup>3+</sup> and Fe<sup>2+</sup> on the stability and reactivity towards H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> reactions[J]. *Applied Catalysis A: General*, 2007, 332: 115-123.
- [8] SAHOO B, SAHU S K, NAYAK S, et al. Fabrication of magnetic mesoporous manganese ferrite nanocomposites as efficient catalyst for degradation of dye pollutants[J]. *Catalysis Science & Technology*, 2012, 2: 1367-1374.
- [9] 刘佳露,张凤君,彭新晶.非均相活化剂磁性纳米CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>的制备及其活性评价[J]. *中国环境科学*, 2021, 41(5): 2179-2186.  
LIU Jialu, ZHANG Fengjun, PENG Xinjing. Preparation and activity evaluation of heterogeneous magnetic nano-CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> activators[J]. *China Environmental Science*, 2021, 41(5): 2179-2186.
- [10] LAOKUL P, AMORNKITBAMRUNG V, SERAPHIN S, et al. Characterization and magnetic properties of nanocrystalline CuFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>, NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>, ZnFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> powders prepared by the aloe vera extract solution[J]. *Current Applied Physics*, 2011, 11: 101-108.

[作者简介] 刘佳露(1990—),工学博士。E-mail: liujialusmile@163.com。

[收稿日期] 2023-03-21(修改稿)