

DOI:10.19853/j.zgjsps.1000-4602.2025.19.007

活性炭/臭氧协同体系对渗滤液中DOM去除机制

刘健^{1,2}, 陈少华¹, 楼耀尹¹, 黄建枝¹

(1. 中国科学院城市环境研究所 先进环境装备与污染防治技术全国重点实验室, 福建厦门 361021; 2. 中国科学院大学, 北京 100049)

摘要: 为阐明活性炭/臭氧(AC/O₃)协同体系对垃圾渗滤液膜生物反应器(MBR)处理出水中溶解性有机物(DOM)的降解机制,利用傅里叶变换离子回旋共振质谱(FT-ICR MS)对单一AC吸附、单一O₃氧化及AC/O₃协同体系中分子反应活性的差异进行分析。结果表明,在优化条件(pH=7.7,温度为50℃,O₃/COD为2)下,AC/O₃协同体系对UV₂₅₄和DOC的去除率分别达到86.9%和61.7%,显著高于单一AC及单一O₃体系。质谱分析结果表明,AC/O₃协同体系不仅提高了单一AC及单一O₃体系难以去除的高氧高不饱和及酚类化合物(HOHUPC)的降解效果,同时有效抑制了氧化过程中间产物的生成。在循环使用5次后AC介孔体积下降73.2%、缺陷密度(I_D/I_C值)降低19.4%,导致第5次循环时DOC去除率降至单独臭氧氧化水平。该研究揭示了吸附-催化的协同作用机制,为优化AC/O₃协同催化体系提供了重要理论依据。

关键词: 垃圾渗滤液; 溶解性有机物; 活性炭/臭氧; 分子特性; 傅里叶变换离子回旋共振质谱

中图分类号: TU992 文献标识码: A 文章编号: 1000-4602(2025)19-0046-07

Unveiling Removal Mechanism of Dissolved Organic Matter Molecules by Activated Carbon/Ozone Synergistic System

LIU Jian^{1,2}, CHEN Shao-hua¹, LOU Yao-yin¹, HUANG Jian-zhi¹

(1. State Key Laboratory of Advanced Environmental Technology, Institute of Urban Environment, Chinese Academy of Sciences, Xiamen 361021, China; 2. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

Abstract: To elucidate the molecular degradation mechanism of dissolved organic matter (DOM) in membrane bioreactor (MBR) effluent from landfill leachate by the activated carbon/ozone (AC/O₃) synergistic system, Fourier transformation-ion cyclotron resonance mass spectrometry (FT-ICR MS) was employed to analyze the differences in molecular reactivity among the single AC adsorption, single O₃ oxidation, and AC/O₃ synergistic systems. Experimental results demonstrated that under optimized conditions (pH 7.7, 50 °C, O₃/COD=2), the removal efficiencies of UV₂₅₄ and DOC reached 86.9% and 61.7%, respectively, representing a significant improvements compared to the single AC adsorption and single O₃ oxidation system. The mass spectrometry analysis results indicated that the AC/O₃ synergistic system not only enhanced the degradation of highly oxygenated highly unsaturated and phenolic compounds (HOHUPC), which were difficult to be removed by single AC system and single ozone system.

基金项目: 福建省自然科学基金资助项目(2023J01221)

通信作者: 黄建枝 E-mail: jzhuang@iue.ac.cn; 楼耀尹 E-mail: yylou@iue.ac.cn

Meanwhile, AC/O₃ synergistic system could effectively inhibit the generation of intermediate products of the ozonation process. The AC characterization results showed that the mesopore volume of AC decreased by 73.2% and the defect density (I_D/I_C value) decreased by 19.4% after the fifth recycling, resulting in the DOC removal rate dropping to the level of ozone treatment alone at the fifth cycle. This study reveals the mechanism of adsorption-catalysis synergism and provides an important theoretical basis for optimizing the AC/O₃ synergistic catalytic system.

Key words: landfill leachate; dissolved organic matter; AC/O₃; molecular characteristics; Fourier transformation-ion cyclotron resonance mass spectrometry (FT-ICR MS)

垃圾渗滤液经膜生物反应器(MBR)处理后的出水中含有高浓度的溶解性有机物(DOM),这些物质具有组分复杂、可生化性差等特点,其去除已成为水处理领域的一大技术难题^[1]。传统的臭氧(O₃)氧化技术能有效破坏芳香类化合物的共轭结构,对特定DOM具有较强的降解能力。但其单一体系存在矿化程度不足、易生成中间产物等问题,难以满足日益严格的水质标准要求。活性炭(AC)作为典型的吸附材料,比表面积高且孔隙结构丰富,不仅能够容纳大量污染物,实现高效的吸附效果,还为催化反应提供了丰富的活性位点,显著提升了催化效率^[2]。

利用AC的优点形成的AC/O₃协同体系,为解决臭氧氧化问题提供了新的思路。这一体系因其独特的“吸附-催化”双重作用备受关注,一方面通过表面富集效应提升污染物局部浓度,另一方面促进臭氧转化为羟基自由基($\cdot\text{OH}$)等活性物种,从而实现DOM的深度矿化^[3]。然而,当前对AC在臭氧催化体系中的作用尚未得到充分了解,关于AC、O₃单独作用与AC/O₃协同体系之间在DOM分子反应活性层面的差异仍未得到系统阐明^[4]。基于此,利用傅里叶变换离子回旋共振质谱(FT-ICR MS)方法,通过分子层面的精细表征,分析有机物分子在三种体系中反应活性的差异,从而加深对AC/O₃体系去除有机物机制的理解,为其在水处理领域的优化应用提供理论依据。

1 材料与方 法

1.1 原水来源及水质

水样取自厦门某卫生填埋场的渗滤液 MBR 处理出水,使用 0.45 μm 玻璃纤维滤膜过滤后于 4 °C 下避光保存。水样的 pH 为 7.7, COD 为 605 mg/L, DOC 为 187 mg/L。

1.2 活性炭性质

实验所用 AC 为煤质粉末活性炭,使用前用纯水洗涤数遍,105 °C 烘干后置于干燥器保存。利用自动吸附系统(ASAP 2020 PLUS, Micromeritics)表征 AC 比表面积和孔体积分布,使用 Nicolet iS10 傅里叶变换红外光谱(FT-IR)和拉曼光谱(HORIBA, Jobin-Yvon)测定其表面官能团和缺陷结构。AC 的比表面积为 730 m²/g, 平均孔径为 3.44 nm, 微孔体积为 0.04 cm³/g, 介孔体积为 1.23 cm³/g。

1.3 AC催化臭氧氧化实验

采用 1 L 硼硅玻璃套管反应器进行 AC 催化臭氧氧化实验。向反应器中加入 600 mL 原水并启动磁力搅拌,通过臭氧发生器(EX120, Longevity)产生 80 mg/L 的 O₃, 以 0.4 L/min 流量通入,并投加 600 mg AC 启动反应。20 min 后采集水样,加入 0.4 mL、1 mol/L 硫代硫酸钠淬灭水中残余 O₃, 再经 0.45 μm 玻璃纤维膜过滤后,使用 TOC 分析仪(TOC-LCPH, Shimadzu)和紫外可见光谱仪(TU-1810, Persee)测定溶液 DOC 浓度和 UV₂₅₄ 值。采用单因素变量法研究 AC/O₃ 体系降解 DOM 的关键参数(pH、温度和臭氧投加量),并设置单一 AC 吸附和单一臭氧氧化实验作为对照,以明确 AC 与 O₃ 的协同作用。

1.4 AC催化寿命评价实验

采用循环实验方法评估 AC 的重复使用性能。每次催化实验结束后,对 AC 进行过滤处理,并在 105 °C 条件下烘干至恒质量,记录 AC 的质量损失。为确保实验条件的一致性,使用原始 AC 补充损失的质量并开展下一轮催化实验,催化实验共循环 5 次。此外,为明确 AC 的吸附作用,同步设置单一 AC 吸附实验作为对照。

1.5 FT-ICR MS分析

根据文献[2]中 DOM 样品的处理方法,分别对

原水以及单一 AC 体系、单一 O_3 体系和 AC/ O_3 体系处理后的水样进行固相萃取。并使用配备 ESI 电离源的 Bruker 9.4 T Solarix FT-ICR MS 质谱仪对不同体系反应前后水样中 DOM 的分子组成进行表征。参考之前的文献进行分子式分配^[1], 并根据元素比例 O/C 和 H/C, 结合修正后的芳香性指数 (AI_{mod}), 将得到的 DOM 分子分为 5 类^[5]: 脂肪类化合物 (Al_i, $H/C \geq 1.5$)、低氧高不饱和及酚类化合物 (LOHUPC, $H/C < 1.5$, $O/C < 0.5$, $AI_{mod} \leq 0.5$)、高氧高不饱和及酚类化合物 (HOHUPC, $H/C < 1.5$, $O/C \geq 0.5$, $AI_{mod} \leq 0.5$)、多酚类化合物 (PolyPh, $H/C < 1.5$, $0.5 < AI_{mod} \leq 0.66$) 和多环芳烃类化合物 (PolyAro, $H/C < 1.5$, $AI_{mod} > 0.66$)。

2 结果与讨论

2.1 AC/ O_3 体系反应条件优化

在 pH 为 5、7、9 的条件下, AC/ O_3 体系对 UV_{254} 的去除率分别为 76.4%、77.4%、78.3%, 对 DOC 的去除率分别为 39.1%、38.9%、39.5%, 即在不同 pH 条件下, UV_{254} 去除率始终高于 DOC 去除率, 说明 O_3 对芳香类化合物的降解能力更强^[6]。这主要是因为臭氧对芳香类化合物有较高的活性, 可与芳香结构发生亲电取代反应^[7-8]。值得注意的是, AC/ O_3 体系对 DOM 的去除效果受 pH 波动的影响较小, pH 在 5~9 时 DOM 去除率的变化不显著 (ANOVA, $p > 0.05$)。

温度对 DOM 的去除效果影响显著, 当温度为 30、40、50 °C 时, UV_{254} 和 DOC 去除率分别为 76.8%、80.3%、86.9% 和 35.1%、48.6%、61.7%。这可能是因为温度升高增加了活化分子的比例, 加速了臭氧向 $\cdot OH$ 的转化过程^[9-10]。

此外, 基于原水 COD 浓度, 考察了 O_3 投加量与 COD 质量比 (O_3/COD) 对 DOM 去除效果的影响。当 O_3/COD 为 2、4、6 时, UV_{254} 去除率和 DOC 去除率分别为 87.2%、82.1%、81.5% 和 61.7%、42.5%、41.1%。即 O_3/COD 从 2 增至 6 时, UV_{254} 去除率显著下降了 5.7% (ANOVA, $p < 0.05$), DOC 去除率显著下降了 20.6% (ANOVA, $p < 0.05$)。这可能是因为过量 O_3 引发了自由基的淬灭, 导致自由基浓度降低^[4]。因此, 确定 AC/ O_3 体系最佳的反应条件如下: pH 为 7.7 (原水 pH), 温度为 50 °C, O_3/COD 为 2。同时, 在优化条件的基础上, 系统评估了单一 AC 体系和单一 O_3 体系对 DOM 的降解性能。其中, 单一 AC 体系对 UV_{254} 和 DOC 的去除率分别为 60.6% 和 49.3%, 而单一 O_3

体系的去除率分别为 78.6% 和 37.5%。

2.2 DOM 分子组成演变

基于 Van Krevelen (VK) 分子图谱探讨了 AC 与 O_3 协同体系对 DOM 分子转化的调控机制, 结果如图 1 所示。

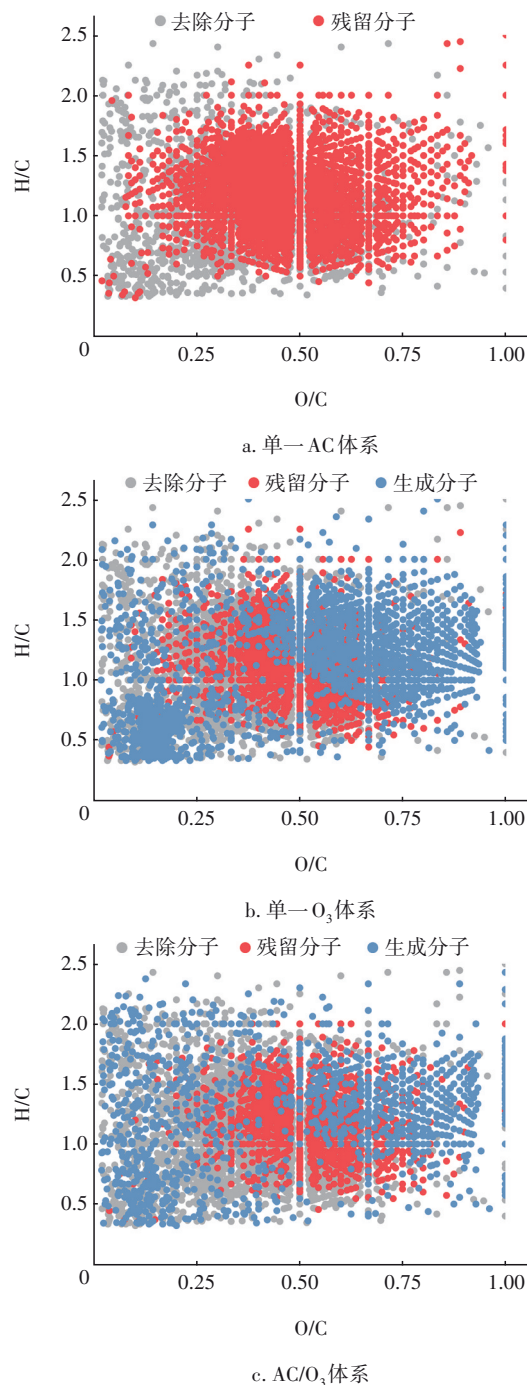


图1 不同体系的 Van Krevelen (VK) 分子图谱

Fig.1 Van Krevelen (VK) molecular spectra of different systems

相较于单一 AC 吸附 (去除 1 890 种分子) 和单

—O₃氧化(去除3 455种分子),AC/O₃耦合工艺展现出更优的分子去除效能(去除4 355种分子),其去除量分别提升了130.4%和26.1%,证实了AC对臭氧氧化反应的强化作用。

残留分子分析进一步显示,单一AC吸附导致4 264种分子残留,而单一O₃氧化(2 699种)和AC/O₃协同处理(1 799种)依次减少36.7%和58.9%,特别是在低氧化度区域(O/C<0.5),AC/O₃体系的残留量较单一O₃更低,表明AC可强化臭氧氧化对低O/C组分的深度去除。此外,协同体系的生成分子数量(1 270种)较单一O₃(2 323种)减少45.3%,这可能是因为AC增强了臭氧向高活性物种的转化^[11]。总的来看,AC/O₃体系的净去除分子数(去除分子数-生成分子数)为3 085,显著高于单一AC体系(1 890)和单一O₃体系(1 132),这一现象说明AC/O₃体系通过提升矿化效率有效抑制了中间产物的生成,这可能是其获得更高DOC去除率的关键机制。

此外,还对去除和生成的有机物进行了深入分析,结果如图2所示。三种体系共同去除了1 656种分子。此外,不考虑三种体系两两交集的部分,各处理体系去除的独特分子数量存在显著差异,单一AC吸附和单一O₃氧化分别去除了57种和69种独特分子,而AC/O₃体系去除的独特分子数量显著增加至850种。这一结果再次表明,AC/O₃体系的反应活性最高。具体而言,单一O₃体系对LOHUPC类组分具有选择性去除优势,而AC的加入不仅增强了O₃对LOHUPC组分的去除效果,更重要的是实现了对HOHUPC类难降解分子的高效去除,其去除效果分别比单一AC体系和单一O₃体系提高了1.6倍和70%,如图2(b)所示。

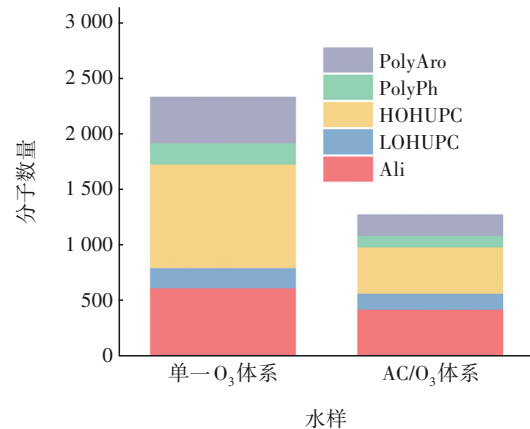
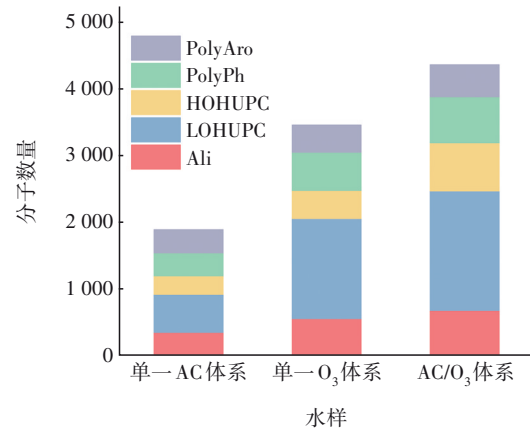
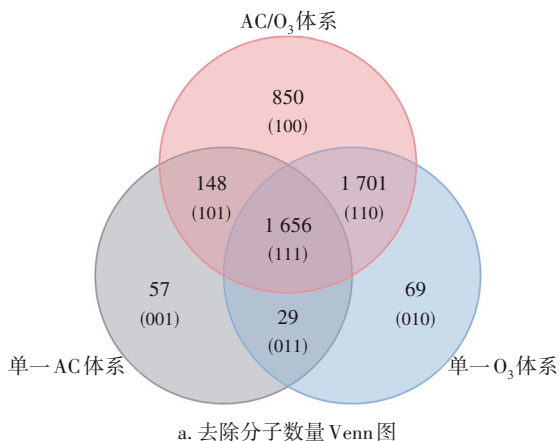


图2 不同体系去除分子的差异

Fig.2 Difference of removed molecules in different treatment systems

在单一O₃体系和AC/O₃体系中,生成的相同分子有531种,单一O₃体系生成的独特分子有1 792种,而AC/O₃体系仅生成了739种独特分子。对比不同体系生成的分子组分,单一O₃体系主要生成了HOHUPC分子,占总生成分子数量的40%。这主要归因于O₃的氧加成反应^[12]。相比之下,AC/O₃体系展现出独特的协同效应,其生成分子以Ali组分为主,占比达33%。同时,HOHUPC分子的生成量较单一O₃体系降低了18%。相比于LOHUPC分子,HOHUPC分子的O/C值更高。先前研究表明,AC更倾向于去除低O/C分子^[11-12]。因此,在AC/O₃体系中,HOHUPC分子的去除可能与AC催化臭氧深度矿化中间产物有关,而非单纯的吸附作用^[3]。

此外,基于臭氧氧化的18种转化反应^[13-14],通过质量差异分析计算了可能存在的前体-产物对特征,探讨了单一O₃体系及AC/O₃体系中可能存在的

转化路径,结果如图3所示。在单一 O_3 体系中,双羟基化(+ H_2O_2)反应主导转化过程(181对),这与 O_3 对含不饱和键化合物的强氧化特性相符^[15-16]。同时,单一 O_3 体系还表现出其他的加氧特征,其中,双加氧(+2O)、甲基/氨基转化(- H_2+O_2)及水合反应(+ H_2O)的可能前体-产物对数量分别为128、87和62。这与单一 O_3 体系生成更多的HOHUPC分子相吻合。AC/ O_3 协同体系虽与单一 O_3 体系具有相似反应类型分布(双羟基化仍为主导,91对),但各反应路径的前体-产物对数量均明显减少(双加氧77对;甲基/氨基转化50对;水合反应35对)。该现象归因于AC的双重作用,一方面通过吸附富集污染物提高局部反应效率,另一方面通过催化臭氧分解产生高活性物种,促进有机物深度矿化,从而减少中间产物累积。

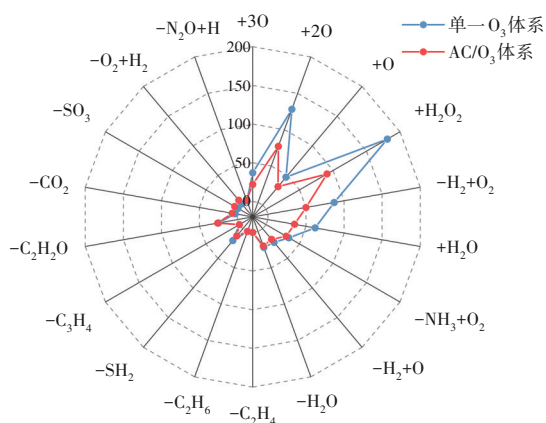


图3 不同处理过程中可能出现的前体-产物对数量雷达图

Fig.3 Radar diagram of the number of possible precursor-product pairs during different treatments

2.3 AC催化活性与结构稳定性

AC的结构稳定性是限制其长期使用的关键要素^[17]。通过5轮循环实验发现,首轮中AC/ O_3 体系对 UV_{254} 的初始去除率(86.9%)较单一 O_3 体系提升8.3%,但第5轮时去除率降至80.8%,仅比单一 O_3 体系高2.2%(见图4)。并且单一AC体系在循环5次后对 UV_{254} 的去除率从60.6%降至5.8%,这说明臭氧氧化在芳香类化合物的去除过程中占主导地位。如图4(b)所示,AC/ O_3 体系的DOC去除率始终高于单一AC吸附体系,但需要注意的是,在第5轮AC/ O_3 体系的DOC去除率降至39.1%,与单一 O_3 体系的DOC去除率相当,推测这可能是由于AC结构发生变化,从而影响了其催化活性^[18]。因此,对循环实验中AC/ O_3 体系的AC性质进行了深入解析。

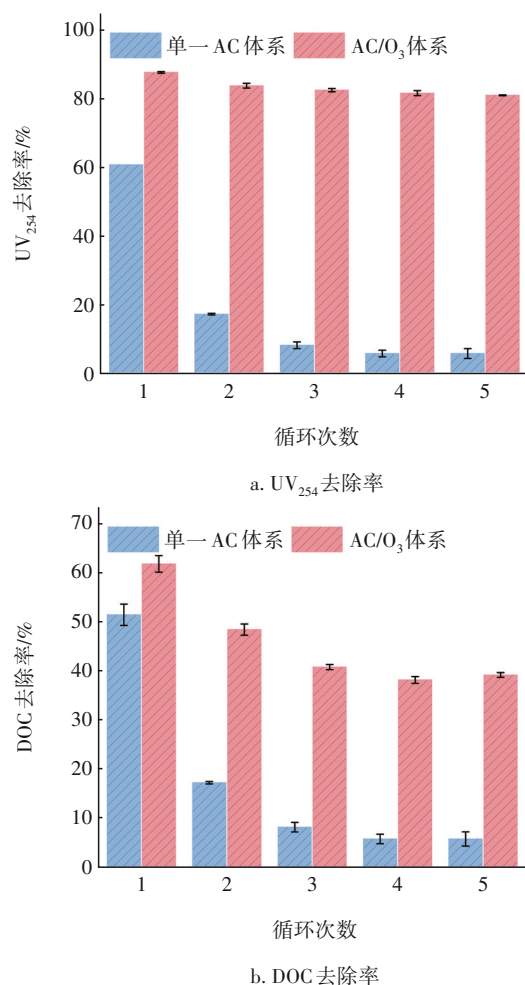


图4 重复性测试中AC和AC/ O_3 体系对 UV_{254} 和DOC的去除效果对比

Fig.4 Comparison of the removal effects of UV_{254} and DOC between AC and AC/ O_3 systems in repetitive test

研究表明,在催化臭氧循环过程中,AC结构遭受严重破坏。如图5(a)红外光谱分析所示,经过臭氧处理后,AC表面C—O官能团的特征峰强度显著增强,这可能与臭氧或其分解产生的强氧化性物质有关。这些氧化性物质通过电子转移机制攻击AC表面的碱性位点(如吡喃酮基、离域 π 电子),导致AC表面含氧基团的形成^[19]。此外,也有研究指出,AC表面含氧官能团的生成机制与臭氧的Criegee机制类似,即臭氧首先加成到AC表面的双键上,形成不稳定的初级臭氧氧化物,随后,该初级臭氧氧化物分解并产生表面氧化物^[20]。如图5(b)拉曼光谱分析所示,AC材料的缺陷结构在循环过程中发生明显退化,其关键缺陷指标 I_D/I_G 值由初始的1.24降至1.00。此外,进一步的孔隙结构表征结果表明,臭

氧处理对AC材料造成了更为显著的物理结构破坏,经过5次循环后,介孔体积由 $1.23\text{ cm}^3/\text{g}$ 降低至 $0.33\text{ cm}^3/\text{g}$,比表面积由 $730\text{ m}^2/\text{g}$ 降至 $260\text{ m}^2/\text{g}$,分别减少了73.2%和64.4%。这种结构破坏现象主要归因于臭氧对AC表面的氧化作用,具有高反应活性的边缘缺陷位点(如五元环和悬空键)优先与臭氧反应,导致缺陷结构发生不可逆的破坏。此外,反应过程中生成的中间产物在缺陷位点和孔道内的沉积,也进一步加剧了AC结构的破坏^[17,21]。综合表征结果表明,AC在臭氧催化过程中表现出较差的循环稳定性,5次循环后其催化效率显著降低,这主要是由于臭氧对AC表面的氧化以及中间产物对孔道的堵塞。这些因素相互作用,加速了AC孔结构和表面化学结构的劣化,最终导致其催化性能不可逆地下降。

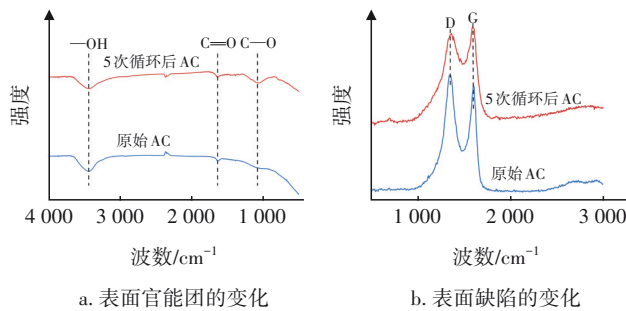


图5 不同循环前后AC性质的差异

Fig.5 Difference of the characteristics of AC after different cycles

有研究指出,碳基表面的碱性官能团(如C=O)的离域 π 电子系统会作为反应的催化中心促进臭氧分解成氧化性更强的活性物种^[17],但在本研究中,C=O的特征峰强度并无明显变化,这说明C=O可能不是主要的活性位点。值得注意的是,表示缺陷程度的指标 I_D/I_G 与DOM去除率经过反应后在降低,这说明AC缺陷位点可能发挥着关键催化作用^[17]。具体来讲,碳骨架中的缺陷结构会破坏石墨烯晶格的完整性,导致 π 电子云共轭体系断裂,形成电子局域化区域^[22]。因此,缺陷位点附近C原子的电荷分布可能会因未成对电子而偏置,从而增强对臭氧的亲合力,并进一步催化分解 O_3 产生强氧化性的活性物种。

3 结论

① AC/ O_3 耦合体系通过协同作用显著提升了DOM去除效率,UV₂₅₄与DOC去除率分别达86.9%

与61.7%,较单一AC体系分别提升26.3%与12.4%,较单一 O_3 体系分别提升8.3%与24.2%。

② 分子去除分析表明,AC/ O_3 体系较单一AC和 O_3 体系分别提升130.4%和26.1%。分子组分分析显示,AC/ O_3 体系对HOHUPC类组分的去除效率较单一AC和 O_3 体系分别提高1.6倍和70%。同时,AC/ O_3 体系生成分子数量较单一 O_3 体系减少48.7%,其中HOHUPC组分生成量减少18%。

③ AC表面缺陷点位在臭氧催化过程中起重要作用,但循环使用会造成介孔结构破坏(损失73.2%)与缺陷点位损失(I_D/I_G 值下降19.4%),导致催化效率显著降低。

参考文献:

- [1] YUAN Z, HE C, SHI Q, *et al.* Molecular insights into the transformation of dissolved organic matter in landfill leachate concentrate during biodegradation and coagulation processes using ESI FT-ICR MS [J]. *Environmental Science & Technology*, 2017, 51(14): 8110-8118.
- [2] LIU J, CHEN S, LIAO X, *et al.* Unveiling the molecular responses of dissolved organic matter in landfill leachate to activated carbon adsorption [J]. *Separation and Purification Technology*, 2024, 330: 125335.
- [3] 郑浩,许丹宁,代蓓蓓,等. 催化臭氧氧化联合BAC工艺深度处理石化废水[J]. *中国给水排水*, 2023, 39(1):73-79.
ZHENG Hao, XU Danning, DAI Beibei, *et al.* Catalytic ozonation combined with BAC process for advanced treatment of petrochemical wastewater [J]. *China Water & Wastewater*, 2023, 39(1): 73-79 (in Chinese).
- [4] YUAN Y, XING G, GARG S, *et al.* Mechanistic insights into the catalytic ozonation process using iron oxide-impregnated activated carbon [J]. *Water Research*, 2020, 177(15): 115785.
- [5] LIU J, GU Z, WANG X, *et al.* The molecular differences of young and mature landfill leachates: molecular composition, chemical property, and structural characteristic [J]. *Chemosphere*, 2022, 287: 132215.
- [6] WEISHAAR J L, AIKEN G R, BERGAMASCHI B A, *et al.* Evaluation of specific ultraviolet absorbance as an indicator of the chemical composition and reactivity of

- dissolved organic carbon [J]. *Environmental Science & Technology*, 2003, 37(20): 4702-4708.
- [7] LI W T, CAO M J, YOUNG T, *et al.* Application of UV absorbance and fluorescence indicators to assess the formation of biodegradable dissolved organic carbon and bromate during ozonation [J]. *Water Research*, 2017, 111(15): 154-162.
- [8] 王晓,何海洋,朱洪涛,等. 臭氧对PVDF膜抗污和组合工艺净水效能的提升作用[J]. *中国给水排水*, 2025,41(1):40-45.
WANG Xiao, HE Haiyang, ZHU Hongtao, *et al.* Enhancement of ozone on anti-fouling capability of PVDF membrane and water purification efficiency of combined process[J]. *China Water & Wastewater*, 2025, 41(1):40-45(in Chinese).
- [9] ELOVITZ M S, VON GUNTEN U, KAISER H P. Hydroxyl radical/ozone ratios during ozonation processes. II. The effect of temperature, pH, alkalinity, and DOM properties[J]. *Ozone: Science & Engineering*, 2000, 22(2): 123-150.
- [10] ZHAO L, MA J, SUN Z, *et al.* Influencing mechanism of temperature on the degradation of nitrobenzene in aqueous solution by ceramic honeycomb catalytic ozonation [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2009, 167(1/3): 1119-1125.
- [11] SÁNCHEZ-POLO M, SALHI E, RIVERA-UTRILLA J, *et al.* Combination of ozone with activated carbon as an alternative to conventional advanced oxidation processes [J]. *Ozone: Science & Engineering*, 2006, 28(4): 237-245.
- [12] ZHANG B, WANG X, FANG Z, *et al.* Unravelling molecular transformation of dissolved effluent organic matter in UV/H₂O₂, UV/persulfate, and UV/chlorine processes based on FT-ICR-MS analysis [J]. *Water Research*, 2021, 199: 117158.
- [13] SCHOLLÉE J E, BOURGIN M, VON GUNTEN U, *et al.* Non-target screening to trace ozonation transformation products in a wastewater treatment train including different post-treatments [J]. *Water Research*, 2018, 142(1): 267-278.
- [14] ZHANG B, SHAN C, WANG S, *et al.* Unveiling the transformation of dissolved organic matter during ozonation of municipal secondary effluent based on FT-ICR-MS and spectral analysis [J]. *Water Research*, 2021, 188(1): 116484.
- [15] PAN Y, CHENG S, YANG X, *et al.* UV/chlorine treatment of carbamazepine: transformation products and their formation kinetics [J]. *Water Research*, 2017, 116(1): 254-265.
- [16] YANG Y, LU X, JIANG J, *et al.* Degradation of sulfamethoxazole by UV, UV/H₂O₂ and UV/persulfate (PDS): formation of oxidation products and effect of bicarbonate [J]. *Water Research*, 2017, 118(1): 196-207.
- [17] WANG Y, DUAN X, XIE Y, *et al.* Nanocarbon-based catalytic ozonation for aqueous oxidation: engineering defects for active sites and tunable reaction pathways [J]. *ACS Catalysis*, 2020, 10(22): 13383-13414.
- [18] WANG Y, XI J, DUAN X, *et al.* The duet of surface and radical-based carbocatalysis for oxidative destructions of aqueous contaminants over built-in nanotubes of graphite [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2020, 384(15): 121486.
- [19] VALDÉS H, SÁNCHEZ-POLO M, RIVERA-UTRILLA J, *et al.* Effect of ozone treatment on surface properties of activated carbon [J]. *Langmuir*, 2002, 18(6): 2111-2116.
- [20] DEITZ V R, BITNER J L. Interaction of ozone with adsorbent charcoals [J]. *Carbon*, 1973, 11(4): 393-401.
- [21] WANG Z, SUN L, LOU X, *et al.* Chemical instability of graphene oxide following exposure to highly reactive radicals in advanced oxidation processes [J]. *Journal of Colloid and Interface Science*, 2017, 507(1): 51-58.
- [22] SKOWRON S T, LEBEDEVA I V, POPOV A M, *et al.* Energetics of atomic scale structure changes in graphene [J]. *Chemical Society Reviews*, 2015, 44(10): 3143-3176.

作者简介:刘健(1996-),男,河南鹤壁人,博士研究生,主要从事溶解性有机物去除研究。

E-mail:jliu@iue.ac.cn

收稿日期:2025-02-25

修回日期:2025-03-26

(编辑:李德强)