

活性碳纤维负载喹啉铁活化 PMS 氧化染料的研究

柏青海¹, 苏健², 解忍杰¹, 柳秀丹¹, 姚玉元¹

(1. 浙江理工大学先进纺织材料制备技术教育部重点实验室, 杭州 310018; 2. 通标标准技术服务有限公司, 杭州 310018)

摘要:以活性碳纤维(Activated carbon fibers, ACFs)为催化载体,制备出负载喹啉铁(8-hydroxyquinoline iron, QuFe)的催化材料 QuFe@ACFs。采用活性艳红 195(RR 195)染料为探针化合物,以过一硫酸氢盐(Peroxymonosulfate, PMS)为氧化剂进行催化氧化实验,探究 QuFe@ACFs 在不同因素对催化活性的影响。实验结果表明:QuFe 负载到活性碳纤维上,极大地提高其催化活性;在 PMS 存在时,QuFe@ACFs 具有良好的持续催化性能;当 PMS 用量为 0.5 mmol/L 时,QuFe@ACFs/PMS 体系的催化活性增加,但是当 PMS 用量低于或者高于 0.5 mmol/L 时,QuFe@ACFs/PMS 催化活性降低;随着反应温度的升高,对染料 RR 195 去除效率增快。利用醇类捕获技术检测到 QuFe@ACFs/PMS 体系中的活性氧种是羟自由基($\cdot\text{OH}$)和硫酸根自由基($\text{SO}_4^{\cdot-}$),并推测可能的催化氧化反应机理。QuFe@ACFs 合成方法简单、实用性强,拓宽传统芬顿催化剂活化 PMS 的 pH 使用范围,解决传统铁离子活化 PMS 技术中存在的二次污染问题。

关键词: 8-羟基喹啉铁;活性碳纤维;PMS 活化

中图分类号: TS195.644

文献标志码: A

文章编号: 1673-3851(2018)03-0145-07

0 引言

近十多年来,在处理难降解有机废水领域中,硫酸根自由基($\text{SO}_4^{\cdot-}$)受到越来越多的关注^[1-2]。与传统的高级氧化技术中产生羟基自由基($\cdot\text{OH}$, $E^0 = +1.8 \sim +2.7 \text{ V/NHE}$)相比,硫酸根自由基($\text{SO}_4^{\cdot-}$, $E^0 = +2.5 \sim +3.1 \text{ V/NHE}$)具有更高的氧化能力,能以近似于扩散的速度与大多数的有机物发生氧化反应,并且 $\text{SO}_4^{\cdot-}$ 可以通过各种方式活化过一硫酸氢盐而产生^[3]。过硫酸氢盐(Peroxymonosulfate, PMS)在常温下一般是固体,易于储存和运输,在环境中相对比较稳定,水溶性好,且其氧化还原电位(1.82 V)比 H_2O_2 (1.776 V)高,因此 PMS 在处理难降解有机废水领域中越来越受重视。在未活化的情况下 PMS 对其他有机物的氧化能力是有限的,在活化的条件下, PMS 分解产生 $\text{SO}_4^{\cdot-}$ 或者是其他

强的活性种氧化能力,能快速氧化降解污染物^[4-6]。因此,寻找经济、高效且环境友好的 PMS 活化方式是当前研究的热点之一。目前研究较多的 PMS 活化方式有紫外光活化、过渡金属活化^[7-10]。紫外光活化是一种相对比较绿色的活化方式,能快速的活化 PMS 产生强的活性氧种 $\text{SO}_4^{\cdot-}$ 和 $\cdot\text{OH}$ ^[7],也可以跟其他活化方式联合来提高活化 PMS 的效率^[8],但是紫外光的加入不可避免地会增加降解成本^[9]。很多过渡金属,如钴、铁、锰、镍等都可活化 PMS 产生一些氧化性强的活性种,其中, Co^{2+} 对 PMS 催化效果最好^[7],但是 Co^{2+} /PMS 催化体系中存在钴离子无法回收利用,容易造成二次污染等缺点,且由于钴离子毒性大,若进入人体会严重危害人体健康^[10]。

铁是最常见的金属元素之一,由于其廉价、无毒且高效等特点而被广泛应用于各类催化反应^[10]。

收稿日期: 2016-08-19 网络出版日期: 2017-12-11

基金项目: 国家自然科学基金重点项目(51133006);浙江省公益技术研究项目(2016C31076)

作者简介: 柏青海(1990-),男,湖南道县人,硕士研究生,主要从事催化纤维方面的研究。

通信作者: 姚玉元, E-mail: yyy0571@126.com

近年来,铁离子也被广泛用于活化 PMS 催化氧化有机污染物^[10-11]。然而,活化 PMS 极易受环境中 pH 的影响,只能在酸性条件下进行,但当环境中的 pH 接近中性或者达到碱性时铁离子会和水中氢氧根发生水解反应而形成沉淀,致使催化剂活性降低甚至失去活性。此外,反应后溶液中残留有大量的铁离子淤泥,容易造成二次污染,这限制二价铁离子活化 PMS 的进一步发展。

与碳纤维和纤维素纤维等其他纤维相比,活性碳纤维(Activated carbon fibers, ACFs)具有比表面积大、孔径分布均匀的特点,而且 ACFs 为纤维结构,易于加工成型更具实用性,是喹啉铁(QuFe)非均相化的理想载体^[12]。本文选择以活性碳纤维为载体负载 8-羟基喹啉铁,制备负载型催化材料 QuFe@ACF,探究 QuFe@ACFs 活化 PMS 去除活性艳红 195(RR 195)的性能及影响因素,并且初步研究 QuFe@ACFs 催化反应的机理。

1 实验部分

1.1 实验与仪器

活性碳纤维(1600 m²/g,江苏苏通碳纤维有限公司);氢氧化钠(AR,上海麦克林生化有限公司);染料活性艳红 195(RR 195)(工业品,河北鸿泽县淄泽染料化工有限公司);5,5-二甲基-1-氧化吡咯啉(5,5-Dimethyl-1-pyrrolineN-oxide, DMPO)(AR,百灵威科技有限公司);六水合氯化铁和过一硫酸氢钾(KHSO₅·0.5KHSO₄·0.5K₂SO₄),均为 AR,由阿拉丁试剂有限公司(中国上海)提供;无水乙醇、异丙醇、甲醇,均为 AR,天津永大化学试剂有限公司提供;实验用水为自制去离子水。

场发射扫描电镜(JSM-5610LV,日本 JEOL 公司);原子吸收光谱仪(Sollar M6,美国热电(Thermo)公司);紫外可见光谱仪(Hitachi U-3010,日本 Hitachi 公司);电热恒温鼓风干燥箱(DHG-9038A,上海精宏实验设备有限公司);水浴恒温振荡器(DSHZ-300 A,江苏培英实验设备有限公司);pH 计(FE20-FiveEasy PlusTM,瑞士 Mettler Toledo 公司);磁力搅拌器(SH23-2,上海梅颖浦仪器仪表制造有限公司)。

1.2 QuFe@ACFs 的制备

将 1.35 g FeCl₃·6H₂O 和 2.18 g 8-羟基喹啉(Qu)分别溶解在 50 mL 和 250 mL 无水乙醇中。将配好的溶解有 FeCl₃·6H₂O 的乙醇溶液逐滴加入到 Qu 溶液中,并不断搅拌,得到 QuFe(C₂₇H₁₈

FeN₃O₃)溶液;称取 5 g 活性碳纤维,将其浸没于 QuFe 溶液中静置吸附 24 h,再取出活性碳纤维,用无水乙醇、去离子水洗涤数次,置于 60 ℃干燥箱中烘干获得催化活性碳纤维(QuFe@ACFs)。

1.3 QuFe@ACFs 的表征

1.3.1 原子吸收光谱

本文采原子吸收光谱测定 QuFe@ACFs 中 Fe 的含量。

准确称量 0.5 g QuFe@ACFs 样品,置于 10 mL 浓硝酸溶液中,静置 24 h,取 1 mL 溶液转移至 25 mL 容量瓶中定容待测,用原子吸收光谱测试铁元素的含量。

1.3.2 场发射扫描电镜和能谱仪

将 ACFs 和 QuFe@ACFs 用导电胶粘在干净的硅片上,通过场发射扫描电镜观察它们的形貌,工作电压为 1 kV。EDS 能谱制样方法与扫描电镜相同。

1.4 催化性能测试

1.4.1 QuFe@ACFs 催化去除染料的性能测试

QuFe@ACFs 催化去除染料的性能测试如下,催化反应是在 40 mL 的试剂瓶中进行,向其中加入一定量的 RR 195(RR 195 的初始量为 56.75 mg/L)、催化剂和 PMS 等物质,在自然光条件下并采用恒温水浴振荡器控制反应温度,通过紫外-可见分光光度计测试 RR 195 在其特征峰 531 nm 处的吸光度的变化。在催化反应过程每隔 1 min 取样,然后测其吸光度。结合 Lambert-Bill 定律,溶液中的 RR 195 的剩余率(C/C₀)可以通过以下公式(1)^[13]得到:

$$C/C_0 = A/A_0 \quad (1)$$

其中:C₀为 RR 195 的初始浓度;C 为反应一定时间的 RR 195 浓度;A₀为 RR 195 初始吸光度,A 为反应一定时间的 RR 195 的吸光度。

2 结果与讨论

2.1 催化剂的表面形貌表征

利用场发射扫描电镜观察到 ACFs 和 QuFe@ACFs 的表面形貌,结果如图 1 所示。图 1(a)中 ACFs 表面比较光滑,而图 1(b)中纤维表面变得粗糙,表面有许多不规则的小颗粒附着。ACFs 和 QuFe@ACFs 中元素分析结果如表 1 所示,QuFe@ACFs 的表面有 Fe 元素存在,这表明 QuFe 已经负载到 ACFs 上。采用原子吸收光谱法测定 QuFe@ACFs 中铁元素的负载量为 99.30 μmol/g。

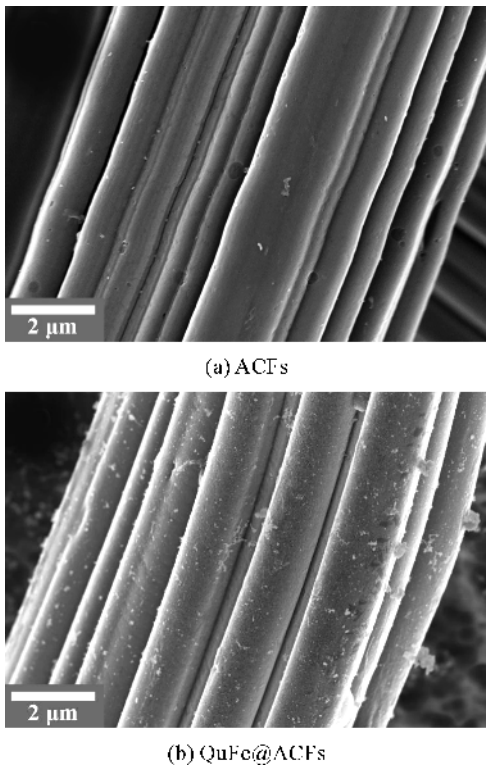


图 1 ACFs 和 QuFe@ACFs 的 FE-SEM 图像

表 1 ACFs 和 QuFe@ACFs 的 EDS 能谱数据表

物质	元素	重量百分比/%	原子百分比/%
ACFs	C	91.76	93.69
	O	8.24	6.31
QuFe@ACFs	C	83.18	89.00
	O	12.46	10.00
	Fe	4.36	1.00

2.2 QuFe@ACFs 对 RR 195 的催化性能

以 RR 195 为探针化合物,考察 QuFe@ACFs 的催化性能。在仅有 QuFe@ACFs 或者 ACFs 存在的条件下,30 min 内只有大约 10.2%和 8.9%的 RR 195 被去除(图 2),其原因可能是由于 ACFs 的吸附作用,将染料 RR 195 分子从水溶液转移到纤维上。而在仅有 PMS 存在时,30 min 内只有 7.4%的 RR 195 被去除(图 2),说明单独的 PMS 并不能去除 RR 195。当 PMS 和 ACFs 共同存在时,30 min 内 RR 195 的去除率为 11.1%,这表明单独的 ACFs 几乎不能活化 PMS 不能去除 RR 195(图 2)。当 QuFe 和 PMS 共同存在时,30 min 内染料 RR 195 的去除率达到 24.6%,表明 QuFe 在一定程度上能活化 PMS 去除染料 RR 195。而当 QuFe@ACFs 和 PMS 共同存在时,8 min 内 RR 195 的去除率高达 97.4%(图 2),表明 QuFe 负载到活性碳纤维上,其催化性能大大提高。其原因可能是 QuFe 负载到活性碳纤维上,相比均相 QuFe,通过活性碳纤维的

引入,大大提高 QuFe 的分散性,增强催化性能;ACFs 上的自由电子传递给 QuFe,从而加快了 QuFe^{III}到 QuFe^{II}的转化,进而提高铁催化循环速率,增强其催化活性^[13]。

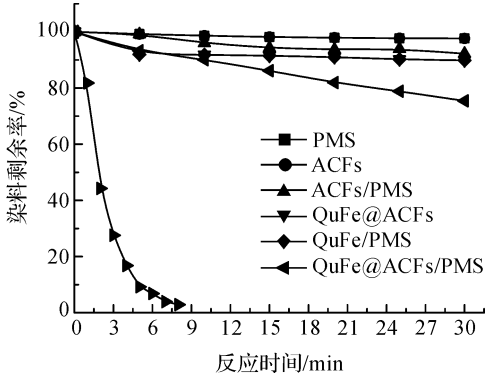


图 2 不同实验条件下 RR 195 的剩余率随时间的变化曲线

2.3 QuFe@ACFs 催化性能的影响因素分析

2.3.1 PMS 用量的影响

氧化剂 PMS 的用量对催化材料的催化性能有重要的影响^[12]。因此,本文考察 PMS 的用量从 0.05 mmol/L 到 5.0 mmol/L 对 QuFe@ACFs 催化性能的影响,结果如图 3 所示。从图 3 中可知,PMS 用量从 0.05 mmol/L 增加到 0.5 mmol/L 的过程中,8 min 测定时间内 RR 195 的去除率逐渐增大,而当 PMS 的用量大于 0.5 mmol/L 时,随着 PMS 用量的增大,8 min 测定时间内 RR 195 的去除率逐渐减小,这是因为产生的 SO₄^{·-}会和 PMS 反应,消耗了部分 SO₄^{·-},导致体系的染料 RR 195 去除率降低。为进一步说明 PMS 用量对催化性能的影响,在图 3 的基础上,求得 QuFe@ACFs/PMS 体系在不同 PMS 用量下的反应速率,结果如图 4 所示。由图 4 可知,在 QuFe@ACFs/PMS 体系中,PMS 用量为 0.5 mmol/L 时去除 RR 195 反应速率达到最高,为 0.46847 min⁻¹。因此,在 QuFe@ACFs/PMS 体系中,选取氧化剂 PMS 用量为 0.5 mmol/L。

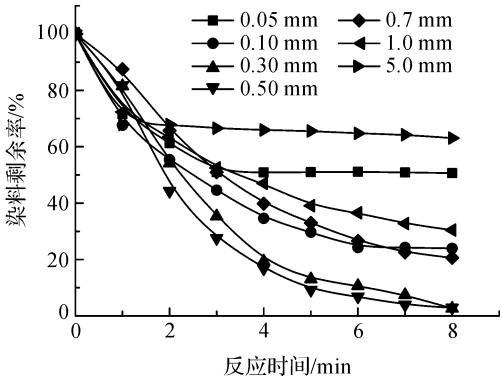


图 3 不同 PMS 用量下对 RR 195 的去除率

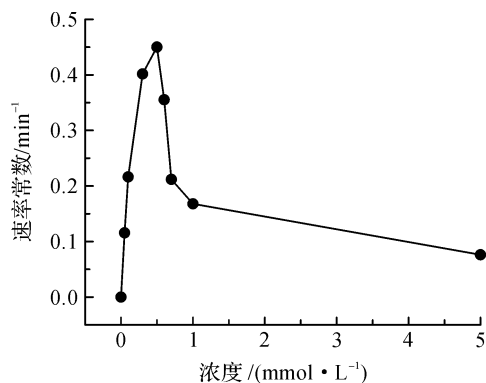


图4 不同PMS用量下对RR 195去除的速率

2.3.2 反应温度的影响

温度对催化剂的催化性能起着至关重要的作用^[14],本文进一步考察温度对QuFe@ACFs/PMS体系的影响,结果如图5所示。从图5可知,当温度为25℃时,RR 195在8 min测定时间内几乎被完全去除;当温度升高到为35℃时,RR 195在5 min内几乎被完全去除;当温度进一步升高到45℃时,RR 195在4 min内被完全去除;当温度达到55℃,RR 195能在3 min内被完全去除。实验结果表明,随着温度的升高,RR 195的去除速率加快。如图6所示,根据阿伦尼乌斯方程^[15](方程(2)),计算得到QuFe@ACFs/PMS体系的催化反应活化能为32.5 kJ/mol。

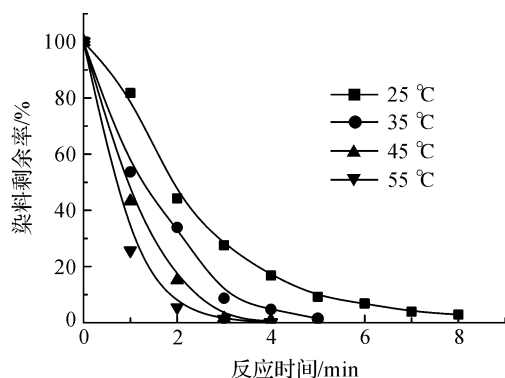


图5 温度对QuFe@ACFs催化去除RR 195的影响

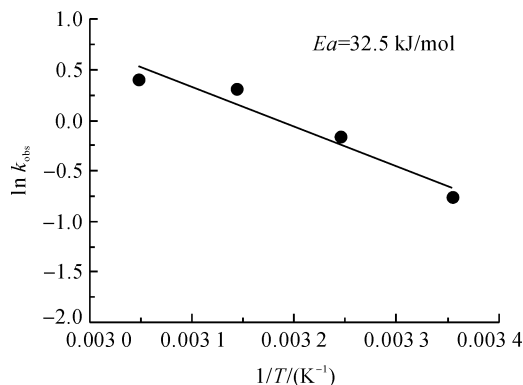
图6 QuFe@ACFs/PMS体系在不同温度下
 $\ln k_{\text{obs}}$ 随 $1/T$ 的变化

表2是不同催化体系的活化能,与表2中各金属和非金属催化体系^[16-20]相比,QuFe@ACFs/PMS体系活化能更低,表明QuFe@ACFs/PMS体系可以在相对更低的温度下进行。

$$\ln k = -\frac{Ea}{R} \frac{1}{T} + \ln A \quad (2)$$

其中: Ea 是反应活化能; R 是通用气体常数; T 是反应温度; A 是指前因子。

表2 不同体系的活化能

催化剂	有机物	活化能/(kJ · mol ⁻¹)	参考文献
Co ₃ O ₄	Phenol	66.20	[16]
CoFe ₂ O ₄ /TNTs	Rhodamine B	70.56	[17]
Mn ₃ O ₄ /rGO	Orange II	49.50	[18]
NG(N-rGO)	Phenol	96.65	[29]
Co ²⁺	Biphenol A	52.10	[20]
QuFe@ACFs	RR 195	32.50	本实验

2.4 QuFe@ACFs对RR 195的催化性能分析

2.4.1 QuFe@ACFs的持续催化性能

在工业用中,催化剂的持续催化性也是衡量一个催化剂重要的指标^[15]。因此,本文设计以下实验来考察QuFe@ACFs的持续催化性能。在每次反应结束后向反应体系中加入一定量的RR 195和PMS,使其与初始的RR 195和PMS浓度相同,依次重复8次。QuFe@ACFs持续催化去除RR 195的效果如图7所示,由图可知,QuFe@ACFs在7次循环后对染料RR 195去除率仍能达到80%以上,这表明在PMS存在的条件下QuFe@ACFs具有稳定的持续催化性能。

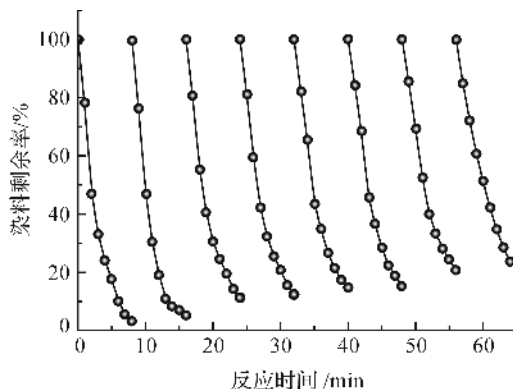


图7 QuFe@ACFs活化PMS去除RR195持续催化性能

2.4.2 QuFe@ACFs的原位再生性能

QuFe@ACFs在吸附染料RR 195到达饱和状态后再加入PMS的原位再生性能,结果如图8所示。由图8可知,在只加QuFe@ACFs时,10 min后RR 195的去除率远低于5%,随着时间的增加,RR 195去除率基本保持不变,这说明QuFe@ACFs

对 RR 195 的吸附能力已经到达饱和状态。因此,在 QuFe@ACFs 吸附 RR195 10 min 时加入一定量的 PMS,溶液中 RR 195 的浓度快速降低,18 min 后 RR 195 的去除率高达 99% 以上。上述结果表明在有 PMS 的情况下,QuFe@ACFs 能将吸附在纤维上的 RR 195 有效地催化氧化,并且将其几乎彻底去除,因此 QuFe@ACFs 具有良好的原位再生能力。

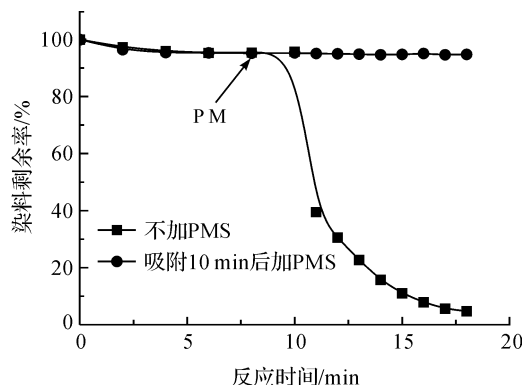


图8 加入 PMS 前后 RR 195 随时间的浓度变化

2.5 QuFe@ACFs/PMS 去除染料机理研究

为探究 QuFe@ACFs/PMS 体系去除 RR 195 的机理,本文选择甲醇(MA)和异丙醇(IPA)两种自由基捕获剂。IPA 是一种良好的 $\cdot\text{OH}$ 捕获剂,而相比 IPA,MA 能同时捕获 $\cdot\text{OH}$ 和 $\text{SO}_4^{\cdot-}$ [21-22]。图 9 为 IPA 对 QuFe@ACFs/PMS 体系的影响,当 IPA 加入到催化反应中,催化反应受到明显的抑制,并且随着 IPA 浓度的升高,抑制效果越明显,这表明 QuFe@ACFs/PMS 体系在催化去除 RR 195 的反应中可能产生 $\cdot\text{OH}$ 。MA 对 QuFe@ACFs/PMS 体系的影响,结果如图 10 所示。当该体系中加入 MA 后,相同浓度下,加入 MA 比加入 IPA 更能抑制催化反应的进行。由此可见,QuFe@ACFs/PMS 体系在催化去除 RR 195 的反应过程中也产生 $\text{SO}_4^{\cdot-}$ 。上述结果表明,QuFe@ACFs/PMS 体系产生 $\cdot\text{OH}$ 和 $\text{SO}_4^{\cdot-}$ 。

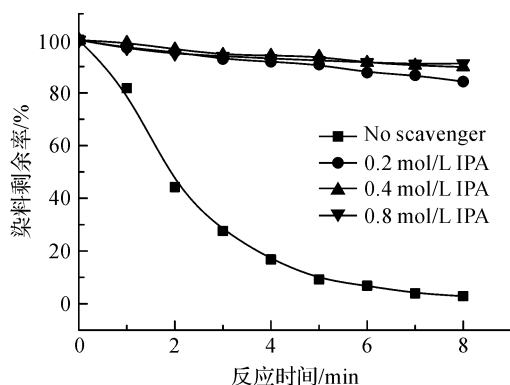


图9 异丙醇对去除 RR 195 的影响

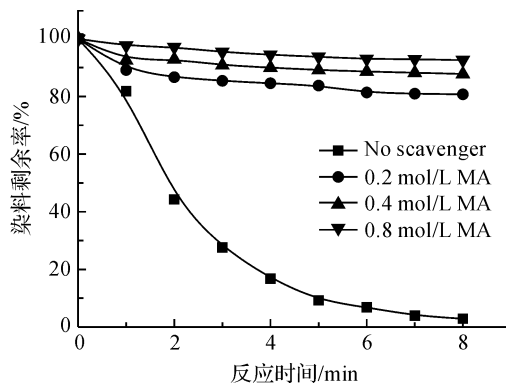


图10 甲醇对去除 RR 195 的影响

基于上述的醇捕获实验的结果与分析,推导一个可能的催化去除染料 RR 195 机理,如图 11 所示。首先染料 RR 195 从水溶液中被吸附到 QuFe@ACFs 上,QuFe@ACFs 有效活化 PMS 产生 $\cdot\text{OH}$ 和 $\text{SO}_4^{\cdot-}$,从而原位去除吸附在纤维上的染料 RR 195,这样 QuFe@ACFs 不断吸附并原位去除染料 RR 195。

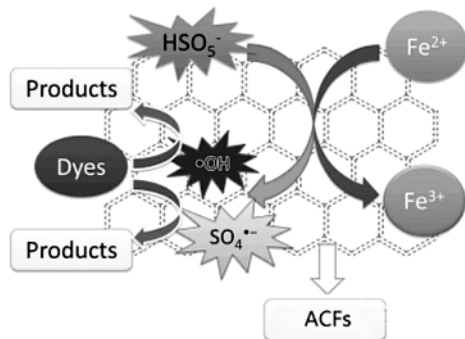


图11 QuFe@ACFs 催化去除 RR 195 可能的机理图

3 结论

本文通过一种简单的方法制备得到 QuFe@ACFs 催化剂,并用于活化 PMS 去除染料,探究一些因素对其催化性能的影响和分析其催化去除染料的机理,得出以下结论:

a) QuFe 负载到活性碳纤维上,提高 QuFe@ACFs/PMS 体系的催化活性,QuFe@ACFs 也具有良好的持续催化性能和原位再生能力。

b) 在 25 °C、pH 值为 10.0、QuFe@ACFs 用量为 2 g/L、PMS 用量为 0.5 mmol/L 的条件下,QuFe@ACFs 可快速去除染料,去除率高达 97.4%;QuFe@ACFs/PMS 体系的具有一个相对较低催化反应活化能 (32.5 kJ/mol),表明 QuFe@ACFs/PMS 体系可以在相对更低的温度下进行。

c) 由醇类捕获技术得到的实验结果可以表明 QuFe@ACFs/PMS 体系中的活性种为 $\cdot\text{OH}$ 和 $\text{SO}_4^{\cdot-}$ 。

参考文献:

- [1] Rosenfeldt E J, Linden K G. Degradation of endocrine disrupting chemicals bisphenol A, ethinyl estradiol, and estradiol during UV photolysis and advanced oxidation processes[J]. *Environmental Science & Technology*, 2004, 38(20):5476-5483.
- [2] Spanggard R J, Yao D, Mill T. Kinetics of aminodinitrotoluene oxidations with ozone and hydroxyl radical[J]. *Environmental science & technology*, 2000, 34(3):450-454.
- [3] 杨世迎, 陈友媛, 胥慧真, 等. 过硫酸盐活化高级氧化新技术[J]. *化学进展*, 2008, 20(9):1433-1438.
- [4] Gogate P R, Pandit A B. A review of imperative technologies for wastewater treatment I: oxidation technologies at ambient conditions [J]. *Advances in Environmental Research*, 2004, 8(3):501-551.
- [5] Anipsitake G P, Dinoysiou D D. Degradation of organic contaminants in water with sulfate radicals generated by the conjunction of peroxymonosulfate with cobalt [J]. *Environmental Science & Technology*, 2003, 37(20):4790-4797.
- [6] Bandala E R, Pelaez M A, Dinoysiou D D, et al. Degradation of 2, 4-dichlorophenoxyacetic acid (2, 4-D) using cobalt-peroxymonosulfate in Fenton-like process[J]. *Journal of Photochemistry and Photobiology A: Chemistry*, 2007, 186(2):357-363.
- [7] Anipsitake G P, Dinoysiou D D. Transition metal/UV-based advanced oxidation technologies for water decontamination[J]. *Applied Catalysis B: Environmental*, 2004, 54(3):155-163.
- [8] Subramanian B, Yang Q, et al. Photodegradation of pentachlorophenol in room temperature ionic liquids[J]. *Journal of Photochemistry and Photobiology A: Chemistry*, 2007, 192(2):114-121.
- [9] Chan K H, Chu W. Degradation of atrazine by cobalt-mediated activation of peroxymonosulfate: different cobalt counteranions in homogenous process and cobalt oxide catalysts in photolytic heterogeneous process[J]. *Water Research*, 2009, 43(9):2513-2521.
- [10] Rodriguez A, Ovegero G, Otelio J L, et al. Heterogeneous Fenton catalyst supports screening for mono azo dye degradation in contaminated wastewaters [J]. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 2009, 49(2):498-505.
- [11] Cheng M, Ma W, Li J, et al. Visible-light-assisted degradation of dye pollutants over Fe(III)-loaded resin in the presence of H₂O₂ at neutral pH values [J]. *Environmental science & technology*, 2004, 38(5):1569-1575.
- [12] Gong F, Wang L, Li D, et al. An effective heterogeneous iron-based catalyst to activate peroxymonosulfate for organic contaminants removal[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2015, 267:102-110.
- [13] 白志飞. 活性碳纤维负载喹啉铁催化降解染料的研究[D]. 杭州: 浙江理工大学, 2015.
- [14] 龙智勇. 催化氧化去除油品中二苯并噻吩的研究[D]. 长沙: 湖南大学, 2015.
- [15] 何生. 根据阿伦尼乌斯方程用时间-温度指数图模拟[J]. *地质科学译丛*, 1992, 9(3):37-45.
- [16] Saptutra E, Muhammalad S, Sun H, et al. A comparative study of spinel structured Mn₃O₄, Co₃O₄ and Fe₃O₄ nanoparticles in catalytic oxidation of phenolic contaminants in aqueous solutions[J]. *Journal of Colloid and Interface Science*, 2013, 407:467-473.
- [17] Du Y, Ma W, Liu P, et al. Magnetic CoFe₂O₄ nanoparticles supported on titanate nanotubes (CoFe₂O₄/TNTs) as a novel heterogeneous catalyst for peroxymonosulfate activation and degradation of organic pollutants[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2016, 308:58-66.
- [18] Yao Y, Xu C, Yu S, et al. Facile synthesis of Mn₃O₄-reduced graphene oxide hybrids for catalytic decomposition of aqueous organics [J]. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 2013, 52(10):3637-3645.
- [19] Wang C, Kang J, Sun H, et al. One-pot synthesis of N-doped graphene for metal-free advanced oxidation processes[J]. *Carbon*, 2016, 102:279-287.
- [20] Huang Y F, Huang Y H. Behavioral evidence of the dominant radicals and intermediates involved in bisphenol A degradation using an efficient Co²⁺/PMS oxidation process[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2009, 167(1):418-426.
- [21] Buxton G V, Greenstock C L, HELMANN W P, et al. Critical review of rate constants for reactions of hydrated electrons, hydrogen atoms and hydroxyl radicals ($\cdot\text{OH}$ / $\cdot\text{O}^-$) in aqueous solution [J]. *Journal of Physical and Chemical Reference Data*, 1988, 17(2):513-886.
- [22] Eibenberger H, Steenken S, O'Neill P, et al. Pulse radiolysis and electron spin resonance studies concerning the reaction of SO₄^{•-} with alcohols and ethers in aqueous solution[J]. *The Journal of Physical Chemistry*, 1978, 82(6):749-750.

Study on activation of PMS oxidation dyes by 8-hydroxyquinoline iron loaded by activated carbon fiber

BAI Qinghai¹, SU Jian², XIE Renjie¹, LIU Xiudan¹, YAO Yuyuan¹

(1. Key Laboratory of Advanced Textile Materials and Manufacturing Technology, Ministry of Education, Zhejiang Sci-Tech University, Hangzhou 310018, China; 2. SGS Hangzhou Inc., Hangzhou 310018, China)

Abstract: Activated carbon fibers (ACFs) was used as the catalytic carrier to prepare the catalytic material QuFe@ACFs of 8-hydroxyquinoline iron (QuFe). The reactive brilliant red 195 (RR 195) dye was used as the probe compound, and Peroxymonosulfate (PMS) was used as the oxidant to do the catalytic oxidation experiment so as to explore the catalytic activity of QuFe@ACFs under the influence of various factors. The experimental results show that QuFe was loaded onto activated carbon fibers, which greatly improved its catalytic activity. QuFe@ACFs had good sustained catalytic performance in the presence of PMS. The catalytic activity of the QuFe@ACFs/PMS system increased when the PMS was 0.5 mmol/L, but the catalytic activity of the QuFe@ACFs/PMS system lowered when the PMS usage was lower than or higher than 0.5 mmol/L. With the increase of reaction temperature, the removal efficiency of dye RR 195 was enhanced. Moreover, alcohol capturing technology was employed to confirm that hydroxyl radicals ($\cdot\text{OH}$) and sulfate radicals ($\text{SO}_4^{\cdot-}$) served as the active species in the QuFe@ACFs/PMS system. Meanwhile, the possible mechanism of catalytic oxidation was speculated. The synthesis method of QuFe@ACFs is simple, and it has strong practicability. At the same time, it broadens the pH range of the traditional Fenton catalyst activated PMS, and solves the secondary pollution problem in the traditional iron activated PMS technology.

Key words: 8-hydroxyquinoline iron; activated carbon fibers; PMS activation

(责任编辑: 廖乾生)