



移动扫码阅读

姚雨亨,钱锐,马长文. BiVO_4 光催化降解废水中高浓度磺胺嘧啶的研究[J]. 能源环境保护, 2020, 34(2): 30-36.

YAO Yuheng, QIAN Rui, MA Changwen. Study on photocatalytic treatment of sulfadiazine in water by BiVO_4 [J]. Energy Environmental Protection, 2020, 34(2): 30-36.

BiVO_4 光催化降解废水中高浓度磺胺嘧啶的研究

姚雨亨, 钱锐, 马长文*

(上海第二工业大学 环境与材料工程学院, 上海 201209)

摘要:以五水合硝酸铋与偏钒酸铵为原料,采用水热反应法制备了不同晶体结构的钒酸铋(BiVO_4)光催化剂,分析了该催化剂对废水中高浓度磺胺嘧啶的处理效果。结果显示: BiVO_4 光催化剂为单斜白钨矿型和四方锆石型,呈片状结构且颗粒分散性较好;磺胺嘧啶的光催化降解率与 BiVO_4 投加量、光照强度和反应时间呈正相关性,与磺胺嘧啶的初始浓度呈负相关性,随着 BiVO_4 合成pH值的增大呈先升高后下降的趋势;采用 BiVO_4 光催化剂处理磺胺嘧啶的最优条件为磺胺嘧啶初始浓度10 mg/L、合成pH=5,投加量0.25 g/L、10 000 lux紫外光照下反应4 h,最优条件下的磺胺嘧啶平均去除率达到90.97%。

关键词:光催化处理;水热法; BiVO_4 ;磺胺嘧啶

中图分类号:X703

文献标识码:A

文章编号:1006-8759(2020)02-0030-07

Study on photocatalytic treatment of sulfadiazine in water by BiVO_4

YAO Yuheng, QIAN Rui, MA Changwen*

(College of Environmental and Material Engineering, Shanghai Polytechnic University, Shanghai 201209, China)

Abstract: A kind of photocatalyst BiVO_4 with different crystal structures was prepared by the hydrothermal method using bismuth nitrate pentahydrate and ammonium metavanadate as raw materials to analyze the photocatalytic effect of BiVO_4 on medium and high concentration sulfadiazine polluted wastewater. The results showed that BiVO_4 photocatalyst was monoclinic scheelite type and quadrate zircon type with flake structure and great particle dispersity. The photocatalyst rate of sulfadiazine was positively correlated with BiVO_4 dosage, UV light intensity and reaction time, but negatively correlated with initial sulfadiazine concentration, and first increased and then decreased with the increase of BiVO_4 synthesis pH. The optimal conditions for the photocatalytic treatment of sulfadiazine by BiVO_4 were initial sulfadiazine concentration of 10 mg/L, synthesis pH of 5, sulfadiazine dosage of 0.25 g/L, UV light intensity of 10 000 lux, and reaction time of 4 hour. The removal rate of sulfadiazine under such conditions reached 90.97%.

Key Words: Photocatalytic treatment; Hydrothermal method; BiVO_4 ; Sulfadiazine

0 引言

抗生素广泛用于预防或治疗细菌感染的人、牲畜和养殖鱼类。我国是抗生素使用大国,每年

抗生素使用量约16.2万吨,其中超过5万吨抗生素排入环境(兽用占84%,人用占16%)^[1-2],废水排放是其主要途径。由于目前我国污水处理基础设施有限且不完善,常规污水处理技术亦不能有

收稿时间:2019-12-30

基金项目:上海第二工业大学培育学科建设项目(EGD18YJ0008)

第一作者简介:姚雨亨(1995-),男,江苏徐州人,硕士研究生,研究方向为水污染控制与修复。E-mail:1553253066@qq.com

通信作者简介:马长文(1979-),女,江苏宿迁人,博士,副教授,研究方向为水污染控制与修复、电子废弃物管理与资源化。E-mail:cwma@sspu.edu.cn

效去除抗生素,尾水中残留的抗生素最终排入环境,对水生生物产生毒性^[3-4],并加剧细菌的耐药性^[5-6]。因此,如何有效去除污水中的抗生素是亟待解决的问题。

磺胺嘧啶是目前我国临床治疗(或者兽用)中常用的一种磺胺类抗生素药物,其本身及衍生物进入环境后,不易被生物降解,且会诱导耐药菌株的产生^[7],易在环境中富集,严重危害人体健康。目前去除废水中磺胺嘧啶的方法主要有臭氧氧化法^[8]、光催化法^[9-11]、超声降解法^[12]等,其中光催化技术因反应条件温和、去除效果好而备受关注。研究发现诸多含铋元素的复合氧化物具有可见光催化活性^[13-15],其中 BiVO₄有着优异的光催化活性,纳米尺寸的八面体 BiVO₄在氙灯照射下,对环丙沙星的降解率可达 79%^[16];BiVO₄/BiPO₄复合材料 2 h 对甲硝唑的降解效率可达 89%^[17]。但是,至今尚未有用 BiVO₄光催化降解高浓度磺胺嘧啶的相关研究。因此,本研究采用水热法,通过控制反应液的 pH 值,合成具有不同晶体结构的 BiVO₄光催化剂,同时改变光催化条件,对其在紫外光下的催化活性进行研究,优化提出 BiVO₄光催化去除废水中磺胺嘧啶的最佳参数,为废水中磺胺嘧啶的高效去除提供理论依据和技术支撑。

1 材料和方法

1.1 光催化材料的制备

BiVO₄可使用水热反应法制得^[18-20],按照摩尔比 Bi : V = 1 将 Bi(NO₃)₃ · 5H₂O (5.82 g) 和 NH₄VO₃ (1.4 g) 分别溶于 30 mL HNO₃ 溶液 (2 mol/L) 和 30 mL NaOH 溶液 (2 mol/L)。在磁力搅拌下,将 NH₄VO₃溶液滴加进 Bi(NO₃)₃,调节

溶液 pH 值分别为 1、3、5、7、9、11(当溶液 pH < 7, 用 0.5 mol/L HNO₃ 溶液调节,当溶液 pH > 7, 用 0.5 mol/L NaOH 溶液调节)。反应釜 180 ℃ 加热 12 h,洗涤干燥。转移至烘箱 105 ℃ 烘干。

1.2 实验方法

1.2.1 材料表征

为了探究不同 pH 值条件下制备的 BiVO₄晶体结构上的区别,本研究使用 X 射线衍射 (Diffraction of X-rays, XRD) 对所制备的 BiVO₄粉末进行表征,根据 XRD 图在衍射峰数目、角度位置、相对强度次序展现出的特点,分析所合成光催化材料的物相组成及结构特征。同时,为了观察所制备 BiVO₄的微观形貌,使用扫描电子显微镜 (Scanning Electron Microscope, SEM) 对样品进行微观成像。判断所制备的 BiVO₄粉末的粒径大小及形状特征。X 射线衍射表征结果与扫描电镜表征结果分别见图 1 和图 2。

1.2.2 磺胺嘧啶母液配制

实验采用含磺胺嘧啶的模拟废水,称取磺胺嘧啶溶于甲醇配制浓度为 1 000 mg/L 的母液。根据实验需要,量取不同体积的磺胺嘧啶,使用蒸馏水稀释,配制成不同浓度的磺胺嘧啶模拟废水。

1.2.3 探究各反应条件对光催化效果的影响

取一定量模拟废水置于反应器中,根据实验条件调整 BiVO₄合成 pH 值、投加量、磺胺嘧啶初始浓度、紫外光照强度与反应时间,在磁力搅拌器搅拌、紫外光照射下,进行反应。反应结束后,取上清液用高效液相色谱仪在 265 nm 波长下测量吸光度,计算磺胺嘧啶的去除率。实验设置详见表 1。

表 1 实验参数设置

因素	A 合成 pH 值	B 投加量/(g · L ⁻¹)	C 反应时间/h	D 光强/lux	E 抗生素浓度/(mg · L ⁻¹)
BiVO ₄ 合成 pH 值	1~11	0.3	2	10 000	30
BiVO ₄ 投加量	5	0.10~0.35	2	10 000	10
胺嘧啶初始浓度	5	0.3	2	10 000	10~60
光照强度	5	0.3	2	1 000~10 000	10
反应时间	5	0.3	1.5~4.0	6 000	10

1.2.4 优化条件的确定

为探究不同因素对磺胺嘧啶光催化效果影响

程度的区别,并得出 BiVO₄处理磺胺嘧啶的最佳工况,选取 BiVO₄的合成 pH 值、投加量、磺胺嘧啶

初始浓度、紫外光照射强度与反应时间 5 个因素 变量进行正交实验,各详细条件设置见表 2。

表 2 紫外光下正交实验

因素	A 合成 pH 值	B 投加量/(g · L ⁻¹)	C 反应时间/h	D 光强/lux	E 抗生素浓度/mg · L ⁻¹
1	1(1)	0.1(1)	1.5 (1)	1 000(1)	10(1)
2	1	0.15(2)	2.0 (2)	2 000(2)	20(2)
3	1	0.2(3)	2.5 (3)	4 000(3)	30(3)
4	1	0.25(4)	3.0 (4)	6 000(4)	40(4)
5	1	0.3(5)	3.5 (5)	8 000(5)	50(5)
6	1	0.35(6)	4.0 (6)	10 000(6)	60(6)
7	3(2)	1	2	3	4
8	2	2	3	4	5
9	2	3	4	5	6
10	2	4	5	6	1
11	2	5	6	1	2
12	2	6	1	2	3
13	5(3)	1	3	5	1
14	3	2	4	6	2
15	3	3	5	1	3
16	3	4	6	2	4
17	3	5	1	3	5
18	3	6	2	4	6
19	7(4)	1	4	1	4
20	4	2	5	2	5
21	4	3	6	3	6
22	4	4	1	4	1
23	4	5	2	5	2
24	4	6	3	6	3
25	9(5)	1	5	3	1
26	5	2	6	4	2
27	5	3	1	5	3
28	5	4	2	6	4
29	5	5	3	1	5
30	5	6	4	2	6
31	11(6)	1	6	5	4
32	6	2	1	6	5
33	6	3	2	1	6
34	6	4	3	2	1
35	6	5	4	3	2
36	6	6	5	4	3

1.3 实验仪器和检测方法

 KQ-100 数控超声波清洗器(昆山市超声仪器有限公司);YZPR-100 反应釜(上海岩征实验

仪器有限公司);SIGMA-4-16KS 离心机(德国 SIGMA 公司);1010-1B 型电热鼓风干燥箱(上海一恒科学仪器有限公司);磁力搅拌器(江苏麦普

龙仪器制造有限公司);岛津超高效液相色谱仪 LC-20AT(日本岛津公司);SU8010 扫描电子显微镜(日本日立公司);D/MAX-2500 X 射线衍射仪(德国布鲁克公司);光化学反应仪(上海比朗仪器制造有限公司)。

磺胺嘧啶的浓度测定参照 EPA 标准方法^[21-23],色谱柱为 SHIMADZU InerSustain C18 (100 mm×2.1 mm, 2 μm),流动相为 A(甲醇),B (0.2%甲酸水溶液)。等度洗脱,流动相比例 A:B = 20:80,进样量 20 μL ,流速 1 $\text{mL} \cdot \text{min}^{-1}$,分析时间 20 min,检测波长为 265 nm。

2 结果与讨论

2.1 不同 pH 值条件下制备的 BiVO_4 晶体结构特征

不同晶型的 BiVO_4 表现出的光催化性能有显著区别,由于单斜相 BiVO_4 相对于四方相 BiVO_4 有较窄的禁带宽度,电子从价带到导带的跃迁所需能量更小,光生电子-空穴对的产生更为容易,所以单斜白钨矿相 BiVO_4 具有更好的光催化效果。单斜白钨矿相和四方锆石相 BiVO_4 衍射峰不同,两种不同晶系判断条件是单斜晶系 BiVO_4 在衍射角 2θ 为 29° 的区域有较为强烈的特征峰,四方晶系 BiVO_4 在衍射角为 20.36° 有强的特征峰存在。从图 1 中可以看出,前驱体在 pH=11 条件下制得的 BiVO_4 粉体,其 XRD 图谱在衍射角 2θ 为 20.36° 出现一个四方锆石相 BiVO_4 的衍射特征峰,说明此条件下生成的粉体是四方锆石相 BiVO_4 粉体。调节制备的 pH 条件,当制备 pH 值为 3、5、9 时,四方锆石相特征峰完全消失,在衍射角 2θ 为 18.9° 、 28.8° 、 30.56° 、 34.7° 出现单斜白钨相的特征峰,与单斜白钨矿型 BiVO_4 标准卡片(JPCDS 14-0688)完全吻合^[24]。

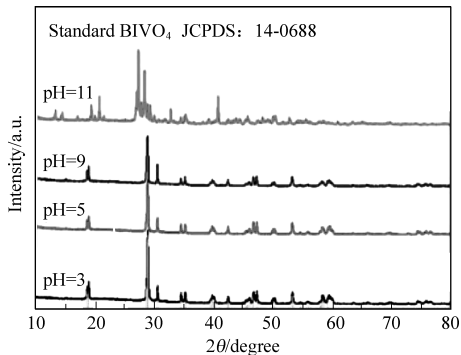
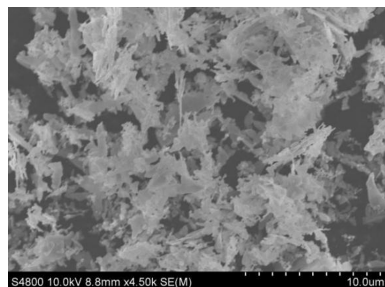
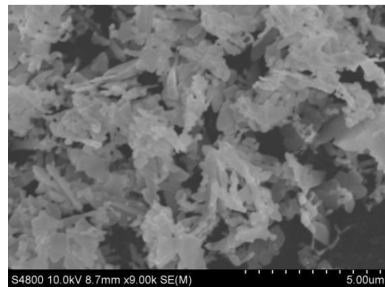


图 1 BiVO_4 X 射线衍射图

其表明该粉体为单斜白钨矿晶型 BiVO_4 ^[25-26]。同时,从图 2 扫描电镜图中可以看出,所制备的 BiVO_4 总体呈不均匀的片状,少部分为片状碎片,单斜白钨矿晶型 BiVO_4 (图 2a) 颗粒分散性较好,四方锆石晶型 BiVO_4 (图 2b) 颗粒出现部分团聚现象。



(a) pH=5



(b) pH=11

图 2 BiVO_4 扫描电镜图

2.2 BiVO_4 光催化剂处理废水中磺胺嘧啶污染研究

2.2.1 BiVO_4 光催化剂合成 pH 值的影响

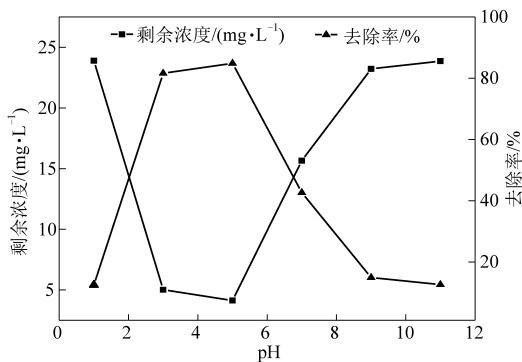


图 3 制备 pH 值对磺胺嘧啶去除率的影响

由图 3 可知,随着 BiVO_4 合成 pH 值的增大,磺胺嘧啶的去除率先增长后下降。说明在反应 pH 值较低时, BiVO_4 的晶相还没有完全成熟,由于单斜相 BiVO_4 相对于四方相 BiVO_4 有较窄的禁带宽度,电子从价带到导带的跃迁只需要较小能量,更易产生光生电子-空穴对。所以,单斜相 BiVO_4 对紫外光的响应更强,光催化效果优于四方相 BiVO_4 。随着合成 BiVO_4 控制的 pH 值的增大, BiVO_4

单斜白钨矿晶相不断成熟,对磺胺嘧啶的光敏吸附位点不断增多^[28],对磺胺嘧啶的光催化降解率不断增大,合成 BiVO_4 控制的 pH 值为 5 时,光催化降解率达到最大值 84.90%。合成 BiVO_4 控制的 pH 值继续增大,不利于单斜白钨矿相 BiVO_4 晶体的形成,减少了光催化材料对磺胺嘧啶的光敏吸附位点,磺胺嘧啶的光催化降解率降低。

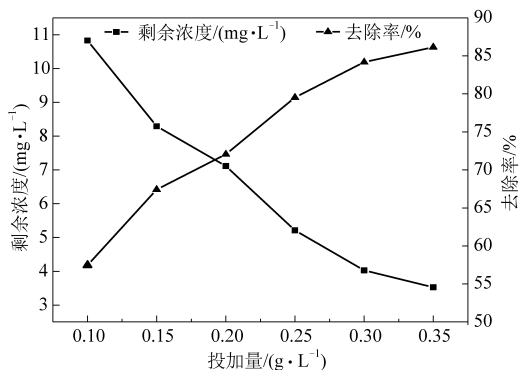


图4 BiVO_4 投加量对磺胺嘧啶去除率的影响

2.2.2 BiVO_4 光催化剂投加量的影响

吸附位点的多少不仅与 BiVO_4 晶相在水溶液中的表现方式有关,还与投加量具有较大关联,从而直接影响抗生素的去除效率。由图 4 可知,磺胺嘧啶的光催化降解率与 BiVO_4 的投加量呈现出正相关。在抗生素浓度一定的情况下,由于 BiVO_4 投加量的增加,紫外光的吸收位点与 BiVO_4 的光敏吸附位点也随之增多,光生电子利用率也随之升高^[28],促进了反应体系中羟基自由基的产生和氧化物质的生成,从而提高了磺胺嘧啶的光催化降解率。在 BiVO_4 的投加量增加到 0.3 g/L 时,磺胺嘧啶的光催化降解率达到了 84.2%。继续增大 BiVO_4 的投加量,磺胺嘧啶的光催化降解率继续升高,考虑到催化剂成本问题以及 BiVO_4 粉末对紫外光的遮蔽效应^[29],继续增大投加量会降低光催化剂的利用率。

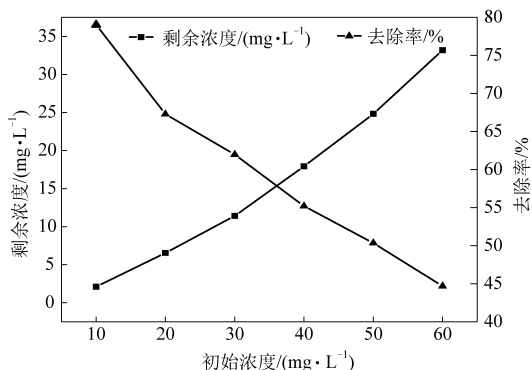


图5 初始浓度对磺胺嘧啶去除率的影响

2.2.3 磺胺嘧啶初始浓度的影响

由图 5 可知,磺胺嘧啶的去除率与磺胺嘧啶的初始浓度呈负相关。 BiVO_4 投加量保持不变,光催化剂表面的光敏吸附位点保持不变,磺胺嘧啶的初始浓度逐渐增加,光催化剂表面光敏吸附位点逐渐饱和,影响磺胺嘧啶的进一步去除;过多的磺胺嘧啶会覆盖在 BiVO_4 表面,对紫外光有一定的遮蔽作用与漫反射作用,影响光催化剂对紫外光的利用,减弱了对磺胺嘧啶的去除效果。

2.2.4 紫外光照强度的影响

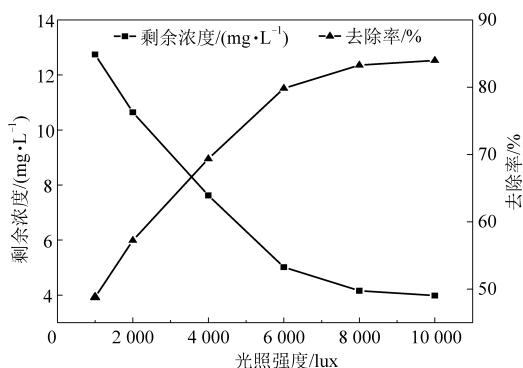


图6 紫外光强对磺胺嘧啶去除率的影响

光催化反应中紫外线光照强度是优化催化效果的关键因素,由图 6 可知,磺胺嘧啶的降解率与紫外灯的光照强度成正相关,磺胺嘧啶的初始浓度保持一致, BiVO_4 投加量保持不变,光催化剂表面的光敏吸附位点保持不变,随着紫外灯功率的增加,紫外光的强度增加,提高了光生电子利用率,促进了羟基自由基的产生和氧化物质的生成^[28],从而提高了磺胺嘧啶的光催化降解率。由于 BiVO_4 投加量一定,紫外光的吸收位点有限,紫外光强度继续增大, BiVO_4 的光敏吸附位点利用率很难继续升高,对磺胺嘧啶的去除效果难以进一步提高。

2.2.5 紫外光照射下反应时间的影响

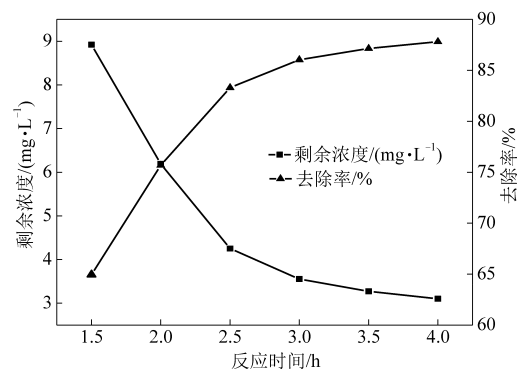


图7 反应时间对磺胺嘧啶去除率的影响

由图 7 可知,随着反应时间增长,磺胺嘧啶光

催化降解率逐渐增大,在反应进行的前 3 h,光催化降解率增加明显,在 3 h 时到达 86.04%,反应时间>3 h,光催化降解率趋于平缓。说明磺胺嘧啶剩余浓度很低时,与 BiVO₄ 的有效接触较低,BiVO₄ 的光催化动力比较弱,BiVO₄ 对很低浓度的磺胺嘧啶难以进一步去除,去除率趋于稳定。

2.3 光催化处理抗生素污染废水优化条件的确定

由于影响 BiVO₄ 光催化效果的因素众多,为探究不同因素对磺胺嘧啶光催化效果影响程度的区别,并得出 BiVO₄ 处理磺胺嘧啶的最佳工况,选取 BiVO₄ 的合成 pH 值、投加量、磺胺嘧啶初始浓度、紫外光照射强度与反应时间 5 个因素变量进行正交实验,结果见表 3。

表 3 紫外光下正交实验

因素	A 合成 pH 值	B 投加量	C 反应时间	D 光强	E 抗生素浓度
K1	304.27	303.86	327.10	326.11	364.46
K2	317.02	248.77	322.91	288.93	323.80
K3	470.18	317.83	333.76	323.00	323.74
K4	333.74	362.74	283.73	318.01	323.27
K5	248.29	312.99	307.84	328.58	302.14
K6	244.88	302.63	343.04	333.75	323.74
R	225.30	113.97	59.31	44.82	62.32

由正交实验结果可知,影响 BiVO₄ 光催化降解磺胺嘧啶各因素的关系是 A>B>E>C>D,即合成 pH 值>投加量>磺胺嘧啶初始浓度>反应时间>紫外光强度;BiVO₄ 光催化降解磺胺嘧啶的优化条件是 A3B4C6D6E1,磺胺嘧啶初始浓度 10 mg/L, BiVO₄ 的合成 pH 值为 5,投加量 0.25 g/L,在 10 000 lux 紫外光照下反应 4 h。在此条件下进行验证实验,结果见图 8。

由图 8(a)可知,模拟废水中磺胺嘧啶的平均去除率可达 90.97%,BiVO₄ 光催化剂比较适合处理含有较高浓度磺胺嘧啶的废水。在优化条件下进行 BiVO₄ 稳定性实验(见图 8(b)),重复利用第 5 次时,对磺胺嘧啶的去除率依然可达 76.26%,说明 BiVO₄ 去除磺胺嘧啶的稳定性良好。

3 结论

通过控制反应的 pH 值,用五水合硝酸铋与偏钒酸铵反应可制备单斜白钨矿型(pH<11)和四方锆石型(pH=11)BiVO₄ 光催化剂。

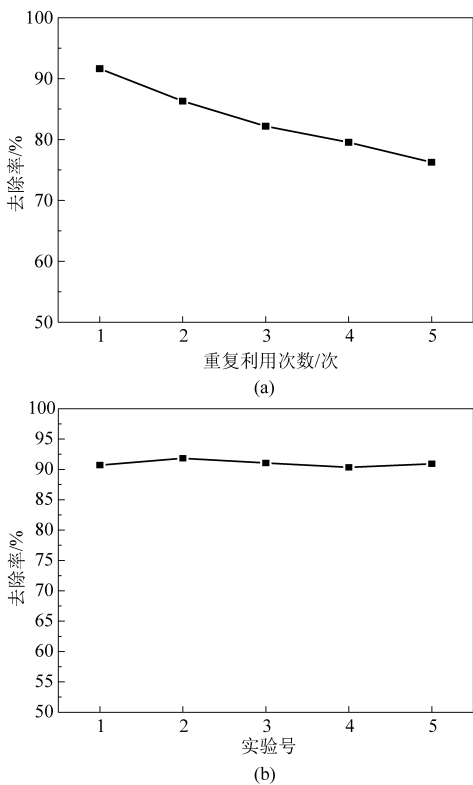


图 8 优化条件验证实验结果

磺胺嘧啶的光催化降解率与 BiVO₄ 的投加量、光照强度和反应时间呈正相关性,与磺胺嘧啶的初始浓度呈负相关性,光催化降解率随着 BiVO₄ 合成 pH 值的增大先增长后下降。

最佳工况条件为:BiVO₄ 的制备 pH 值为 5,投加量 0.25 g/L,在 10 000 lux 强度的紫外光照下反应 4 h。优化条件下,模拟废水中磺胺嘧啶的平均去除率可达 90.97%,有较好的稳定性和重复利用性。

参考文献

- [1] Zhang Q., Ying G., Pan C., et al. Comprehensive evaluation of antibiotics emission and fate in the river basins of China: Source analysis, multimedia modeling, and linkage to bacterial resistance [J]. Environmental Science & Technology, 2015, 49 (11): 6772–6782.
- [2] 应光国. 中国抗生素使用与流域污染 [C]. 中国化学会第 30 届学术年会摘要集-第二十六分会: 环境化学, 2016: 144.
- [3] Zounková R., Klimešová Z., Nepejchalová L., et al. Complex evaluation of ecotoxicity and genotoxicity of antimicrobials oxytetracycline and flumequine used in aquaculture [J]. Environmental Toxicology and Chemistry, 2011, 30 (5): 1184–1189.
- [4] Cai Q., Hu J.. Effect of UVA/LED/TiO₂ photocatalysis treated sulfamonomethoxazole and trimethoprim containing wastewater on antibiotic resistance development in sequencing batch reactors

- [J]. Water Research, 2018, 140 (sep. 1): 251-260.
- [5] Chen H., Liu S., Xu X., et al. Antibiotics in typical marine aquaculture farms surrounding Hailing Island, South China: Occurrence, bioaccumulation and human dietary exposure [J]. Marine Pollution Bulletin, 2015, 90 (1-2): 181-187.
- [6] Su C. Influence of amoxicillin after pre-treatment on the extracellular polymeric substances and microbial community of anaerobic granular sludge [J]. Bioresource Technology, 2019, 276: 81-90.
- [7] Hammesfahr U., Kotzerke A., Lamshöft M., et al. Effects of sulfadiazine contaminated fresh and stored manure on a soil microbial community [J]. European Journal of Soil Biology, 2011, 47 (1): 61-68.
- [8] Hansen K. M. S., Spiliotopoulou A., Chhetri R. K., et al. Ozonation for source treatment of pharmaceuticals in hospital wastewater-ozone lifetime and required ozone dose [J]. Chemical Engineering Journal, 2016, 290: 507-514.
- [9] Guan Z., Li Q., Shen B., et al. Fabrication of Co_3O_4 and Au co-modified BiOBr flower-like microspheres with high photocatalytic efficiency for sulfadiazine degradation [J]. Separation and Purification Technology, 2020, 234: 116100.
- [10] Xu X., Meng L., Dai Y., et al. Bi spheres SPR-coupled $\text{Cu}_2\text{O}/\text{Bi}_2\text{MoO}_6$ with hollow spheres forming Z-scheme $\text{Cu}_2\text{O}/\text{Bi}/\text{Bi}_2\text{MoO}_6$ heterostructure for simultaneous photocatalytic decontamination of sulfadiazine and Ni (II) [J]. Journal of Hazardous Materials, 2020, 381: 120953.
- [11] Pan Y., Zhang Y., Zhou M., et al. Enhanced removal of emerging contaminants using persulfate activated by UV and pre-magnetized Fe^0 [J]. Chemical Engineering Journal, 2019, 361: 908-918.
- [12] Lastre-Acosta A. M., Cruz-González G., Nuevas-Paz L., et al. Ultrasonic degradation of sulfadiazine in aqueous solutions [J]. Environmental Science and Pollution Research, 2015, 22 (2): 918-925.
- [13] Tang J., Zou Z., Ye J.. Efficient photocatalytic decomposition of organic contaminants over CaBi_2O_4 under visible-light irradiation [J]. Angewandte Chemie, 2004, 116 (34): 4563-4566.
- [14] Solarska R., Heel A., Ropka J., et al. Nanoscale calcium bismuth mixed oxide with enhanced photocatalytic performance under visible light [J]. Applied Catalysis A: General, 2010, 382 (2): 190-196.
- [15] Shtarev D. S., Shtareva A. V. Photocatalytic degradation of the diesel fuel by using the calcium bismuthate-bismuth oxide photocatalyst composition [J]. Applied Mechanics and Materials, 2013, 377: 204-208.
- [16] Kohtani S., Koshiko M., Kudo A., et al. Photodegradation of 4-alkylphenols using BiVO_4 photocatalyst under irradiation with visible light from a solar simulator [J]. Applied Catalysis B: Environmental, 2003, 46 (3): 573-586.
- [17] Yan Y., Ni T., Du J., et al. Green synthesis of balsam pear-shaped $\text{BiVO}_4/\text{BiPO}_4$ nanocomposite for degradation of organic dye and antibiotic metronidazole [J]. Dalton Transactions, 2018, 47 (17): 6089-6101.
- [18] Tan G., Zhang L., Ren H., et al. Effects of pH on the hierarchical structures and photocatalytic performance of BiVO_4 powders prepared via the microwave hydrothermal method [J]. ACS Applied Materials & Interfaces, 2013, 5 (11): 5186-5193.
- [19] Packiaraj R., Devendran P., Asath B S., et al. Structural and electrochemical studies of Scheelite type BiVO_4 nanoparticles: Synthesis by simple hydrothermal method [J]. Journal of Materials Science: Materials in Electronics, 2018, 29 (15): 13265-13276.
- [20] Kim T., Jo Y., Matsuoka M., et al. Effect of pH on the microwave hydrothermal synthesis of BiVO_4 photocatalysts and their photocatalytic activity under simulated solar light [J]. Journal of Nanoscience and Nanotechnology, 2016, 16 (11): 11148-11152.
- [21] Zhang J., Qu H. Low-temperature selective catalytic reduction of NO_x with NH_3 over Fe-Cu mixed oxide/ZSM-5 catalysts containing Fe_2CuO_4 phase [J]. Research on Chemical Intermediates, 2015, 41 (7): 4961-4975.
- [22] Zessel K., Mohring S., Hamscher G., et al. Biocompatibility and antibacterial activity of photolytic products of sulfonamides [J]. Chemosphere, 2014, 100: 167-174.
- [23] Fabiańska A., Białk-Bielińska A., Stepnowski P., et al. Electrochemical degradation of sulfonamides at BDD electrode: Kinetics, reaction pathway and eco-toxicity evaluation [J]. Journal of Hazardous Materials, 2014, 280: 579-587.
- [24] Yu Y., Yan L., Cheng J., et al. Mechanistic insights into TiO_2 thickness in Fe_3O_4 @ TiO_2 -GO composites for enrofloxacin photodegradation [J]. Chemical Engineering Journal, 2017, 325: 647-654.
- [25] 王海波, 孔勇, 徐江, 等. 一种钻井液用无荧光润滑剂的研究与应用 [J]. 应用化工. 2017, 46 (9): 1863-1866.
- [26] 负丽敏, 杨占旭, 单爽, 等. 不同形貌 BiVO_4 的制备及光催化性能研究 [J]. 化工新型材料. 2017, 45 (2): 165-167.
- [27] 刘利伟, 吴小莲, 莫测辉, 等. TiO_2 光催化降解水中喹诺酮类抗生素 [J]. 中南大学学报 (自然科学版). 2012, 43 (8): 3300-3307.
- [28] Parra S., Olivero J., Pulgarin C. Relationships between physicochemical properties and photoreactivity of four biorecalcitrant phenylurea herbicides in aqueous TiO_2 suspension [J]. Applied Catalysis B: Environmental, 2002, 36 (1): 75-85.
- [29] 李杰, 逢显娟, 宋晨飞. BiVO_4 的选择性合成及其光催化性能研究 [J]. 化工新型材料, 2018, 46 (8): 217-220.