

曲面响应法优化电化学氧化工艺 深度处理垃圾渗滤液生化出水的研究

陶仁杰^{1,2}, 李祥^{1,2}, 黄勇^{1,2*}

(1. 苏州科技大学环境科学与工程学院, 江苏 苏州 215009;
2. 苏州科技大学环境生物技术研究所, 江苏 苏州 215009)

摘要:以 Ti/RuO₂-IrO₂ 电极为阳极、不锈钢电极为阴极构建电化学氧化工艺,用于前置反硝化/PN/Anammox 混凝后的垃圾渗滤液脱氮除碳处理的研究。采用响应曲面法的 BBD 法考察电流密度、极板间距、初始 pH、反应时间对 COD 去除率的交互影响,并建立相关的数学模型,分析电化学氧化过程中总氮的转化。结果表明,各个影响因素显著,模型回归线性好,预测 COD 去除率最大值为 89.38%。最佳实验条件为:电流密度为 350 mA/cm²、极板间距为 24 mm、初始 pH 为 7.0、反应时间为 3.2 h。实际测得的 COD 去除率为 90.12%,对腐殖酸、腐殖质类物质去除效果好,总氮中的氨氮被完全去除,部分氨氮转化为硝氮。

关键词: Ti/RuO₂-IrO₂ 电极;电化学氧化;垃圾渗滤液生化出水;曲面响应法

中图分类号: X703

文献标志码: A

文章编号: 0253-4320(2023)08-0213-06

DOI: 10.16606/j.cnki.issn0253-4320.2023.08.040

Response surface methodology for optimizing electrochemical oxidation process in deep treatment of biochemical effluent of landfill leachate

TAO Ren-jie^{1,2}, LI Xiang^{1,2}, HUANG Yong^{1,2*}

(1. School of Environmental Science and Engineering, Suzhou University of Science and Technology, Suzhou 215009, China; 2. Institute of Environmental Biotechnology, Suzhou University of Science and Technology, Suzhou 215009, China)

Abstract: Taking Ti/RuO₂-IrO₂ electrode as the anode and stainless steel electrode as the cathode, an electrochemical oxidation process is constructed for the denitrification and decarbonization of waste leachate after pre-denitrification/PN/Anammox coagulation. The BBD method of response surface methodology is employed to investigate the interactive effects of current density, electrode plate spacing, initial pH and reaction time on the COD removal rate. A relevant mathematical model is established to analyze the conversion of total nitrogen during the electrochemical oxidation process. The results show that each factor has significant impact, the model regression is linear, and the predicted maximum COD removal rate is 89.38%. The best experimental conditions are as follows: current density is 350 mA · cm⁻², pole plate spacing is 24 mm, initial pH is 7.0 and the reaction has performed for 3.2 h. The actual measured COD removal rate is 90.12%, and a good effect is achieved in removing humic acid and humic substances. Ammoniacal nitrogen in total nitrogen is completely removed, and part of ammoniacal nitrogen is converted into nitrates.

Key words: Ti/RuO₂-IrO₂ electrode; electrochemical oxidation; biochemical effluent of waste leachate; response surface methodology

垃圾渗滤液组成成分复杂^[1],且随填埋时间的延长不断变化,处理难度较大^[2],处理不当会对环境造成很大的危害^[3]。随着填埋场场龄的增长,中晚期垃圾渗滤液中的大量有机物被降解,高氨氮、低碳氮比,可生化性变差,经过生物处理的垃圾渗滤液生化出水中仍含有较高的 COD 和 TN,其中大部分有机污染物为难降解有机物^[4]。因此,如何高效、经济地处理垃圾渗滤液一直是水污染领域面临的主要难题^[5]。

目前,大部分已经建成的垃圾渗滤液处理工艺的主要处理方式生物处理法和膜处理法^[6-7],传统的生物处理工艺处理低碳氮比的中晚期垃圾渗滤液时,面临着碳源不足、脱氮效率低等问题^[8]。膜处理法对垃圾渗滤液的处理效果较好且稳定,但是其处理成本较高且会产生膜浓缩液,浓缩液处理和回灌会逐步增加渗滤液的处理难度,因此多用于垃圾渗滤液生化处理之后的深度处理阶段。部分亚硝化(Partial nitrification, PN)和厌氧氨氧化(Anaerobic

收稿日期:2022-09-27;修回日期:2023-05-26

基金项目:苏州市民生科技项目(SS201804-02)

作者简介:陶仁杰(1995-),男,硕士研究生,研究方向为废水处理与资源化利用,648758479@qq.com;黄勇(1958-),男,博士,教授,研究方向为废水生物处理及资源化,通讯联系人,yhuang@mail.usts.edu.cn。

ammonia oxidation, ANAMMOX) 是新型的自养生物脱氮技术, 具有脱氮效率较高等优点^[9], 在老龄垃圾渗滤液行业获得广泛研究。本课题组 Li 等^[10]采用 DN-PN-ANAMMOX 工艺对老龄垃圾渗滤液进行处理发现其具有较高的脱氮效能。陆明羽^[11]发现厌氧氨氧化工艺对垃圾渗滤液中难降解有机物具有一定的生化降解能力, 但该生化工艺出水水质的 COD、总氮等仍未达到排放标准。盛贵尚^[12]采用 BBD 电极电化学氧化晚期垃圾渗滤液发现, 电化学氧化可以有效去除渗滤液中的富里酸、腐殖酸类有机物, 氨氮去除效果较好。Ti/RuO₂-IrO₂ 电极作为 DSA 电极的一种, 导电性好、耐腐蚀性强, 对难降解有机物处理效果较好^[13]。无膜化处理渗滤液中难降解有机物的研究还尚未展开。

因此, 笔者选用钛基钌铱 (Ti/RuO₂-IrO₂) 电极作阳极和不锈钢 (304) 作阴极构建电化学系统, 采用响应曲面法 (Response surface methodology, RSM) 中 Box-Behnken 设计 (BBD) 探究深度处理的最佳实验条件^[14], 研究电流密度、极板间距、初始 pH 和反应时间 4 因素对垃圾渗滤液处理过程中 COD 去除率的影响。

1 材料与方法

1.1 试验水质

中晚期垃圾渗滤液取自苏州市七子山生活垃圾填埋场的前置反硝化/PN/ANAMMOX 的混凝出水。渗滤液的主要水质指标如下: COD_{Cr} 为 470~506 mg/L, TN 为 36.0~43.1 mg/L; TOC 为 84.7~105.47 mg/L, pH 为 2.91~3.35, 其中大部分有机物为难降解有机物。

1.2 试验方法

电化学反应器由直流电源 (电源电流可调范围为 0~10 A)、电解池 (容量为 500 mL) 和阴阳极板构成。在恒电流条件下进行电化学反应, 垃圾渗滤液生化混凝出水 450 mL, 磁力搅拌器上放置电解池, 通过磁力搅拌转子持续旋转搅拌以确保溶液混合均匀。阳极板为 30 mm×30 mm×3 mm 的钛基钌铱 (昆山义万临电子科技有限公司生产), 阴极板为 35 mm×30 mm×3 mm 的不锈钢 (昆山义万临电子科技有限公司生产)。阳极与阴极的极板间距为 25 mm。

1.3 测定方法

根据标准方法^[15], COD 采用重铬酸盐快速消解法测定, TN 采用碱性过硫酸钾消解紫外分光光度法。将水样稀释 50 倍后通过荧光分光光度计进行

光谱分析, 采用 EFC 进行分析^[16-19]。

1.4 响应面法实验设计

采用 BBD 对影响垃圾渗滤液的 COD 去除率的电流密度、极板间距、初始 pH 和反应时间 4 个因素进行优化, 并用响应曲面回归拟合, 运用 ANOVA 对拟合数据进行回归、显著性和方差分析^[20]。实验中各变量范围如下: 电流密度为 325~375 mA/cm², 极板间距为 20~30 mm, 初始 pH 为 5~9, 反应时间为 1~4 h。将电流密度、极板间距、初始 pH 和反应时间分别记为变量 A、B、C 和 D, COD 去除率作为响应值, 记为变量 Y。设计因素水平及编码如表 1 所示。

表 1 COD 去除率实验因素及编码水平

因素		编码及水平		
		-1	0	1
电流密度/(mA·cm ⁻²)	A	325	350	375
极板间距/mm	B	20	25	30
初始 pH	C	5	7	9
反应时间/h	D	1	2.5	4

注: -1 表示低水平, 0 表示中心点, 1 表示高水平。

2 结果与讨论

采用 Design-Export (10.0.1) 对实验数据进行分析, 建立 BBD 响应曲面法实验设计。通过进行多次平行实验得到 COD 去除率, 将其平均值作为 COD 去除率, COD 响应曲面法实验设计及结果如表 2 所示, 电流密度、极板间距、初始 pH 和反应时间分别记为变量 A、B、C 和 D, COD 去除率作为响应值, 记为变量 Y。

表 2 COD 去除率响应曲面实验设计及结果

编号	电流密度 (A)/ (mA·cm ⁻²)	极板 间距 (B)/mm	初始 pH (C)	反应 时间 (D)/h	COD 去除率 (Y)/%
1	350	30	5	2.5	72.92
2	350	30	7	4.0	78.17
3	350	25	9	1.0	67.67
4	375	25	7	4.0	75.69
5	350	20	9	2.5	72.73
6	350	20	7	4.0	85.11
7	375	25	5	2.5	63.83
8	350	25	7	2.5	87.45
9	350	25	5	4.0	76.79
10	325	25	7	4.0	75.30
11	375	30	7	2.5	70.16
12	375	25	7	1.0	66.01

续表

编号	电流密度 (A)/ (mA·cm ⁻²)	极板 间距 (B)/mm	初始 pH (C)	反应 时间 (D)/h	COD 去除率 (Y)/%
13	350	25	7	2.5	87.66
14	375	20	7	2.5	72.92
15	350	25	7	2.5	87.45
16	350	25	7	2.5	88.30
17	350	25	5	1.0	59.92
18	325	20	7	2.5	71.15
19	350	30	5	2.5	66.21
20	325	30	7	2.5	67.57
21	350	25	7	2.5	87.66
22	375	25	9	2.5	66.80
23	350	30	9	2.5	69.37
24	325	25	5	2.5	60.87
25	350	20	7	1.0	72.77
26	325	25	7	1.0	61.07
27	350	25	9	4.0	74.50
28	350	30	7	1.0	67.86
29	325	25	9	2.5	65.22

2.1 COD 去除率响应曲面分析

2.1.1 COD 去除率回归拟合

Box-Behnken Design 设计 COD 去除率方差分析表如表 3 所示。

表 3 COD 去除率方差分析结果

类型	平方和	自由度	均方	F 值	P 值	
模型	2124.24	14	151.73	289.50	<0.0001	显著
A-电流密度	16.87	1	16.87	32.20	<0.0001	
B-极板间距	66.55	1	66.55	126.98	<0.0001	
C-初始 pH	20.67	1	20.67	39.44	<0.0001	
D-反应时间	411.37	1	411.37	784.90	<0.0001	
AB	0.17	1	0.17	0.32	0.5801	
AC	0.48	1	0.48	0.91	0.3567	
AD	5.18	1	5.18	9.88	0.0072	
BC	2.81	1	2.81	5.35	0.0364	
BD	1.03	1	1.03	1.97	0.1872	
CD	25.20	1	25.20	48.08	<0.0001	
A ²	903.74	1	903.74	1724.33	<0.0001	
B ²	196.92	1	196.92	375.73	<0.0001	
C ²	899.15	1	899.15	1715.58	<0.0001	
D ²	255.00	1	255.00	486.23	<0.0001	
残差	7.34	14	0.52			
失拟项	6.85	10	0.68	5.61	0.0555	不显著
纯误差	0.49	4	0.12			
总商差	2131.58	28				

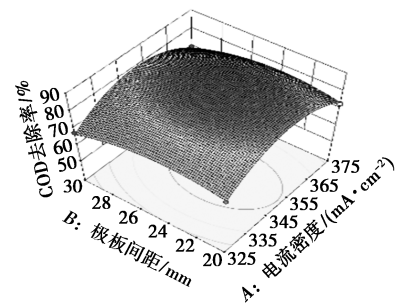
从表 3 中可以看出,通过二次多项式拟合出 COD 去除率的拟合方程 P 值 < 0.000 1, F 值为

289.50,说明拟合方程达到显著水平。失拟项 P 值为 0.055 5 > 0.05, F 值为 5.61,说明拟合方程的失拟项不显著。变异系数 (C.V. = 0.99%) 低于 10%,说明该拟合方程具有较好的重现性。拟合方程的多元相关系数 $R^2 = 0.996 6$,说明拟合方程具有较好的相关性。Adj R^2 与 Pre R^2 的差值为 0.012 0 < 0.2,说明拟合方程的可靠性。信噪比为 53.242,远远超过 4,说明该模型合理且精密度高。电流密度、极板间距、初始 pH 和反应时间 4 个因素对 COD 去除率的线性效应影响显著;极板间距与初始 pH、电流密度与反应时间和初始 pH 与反应时间对 COD 去除率的交互作用影响显著;电流密度、极板间距、初始 pH 和反应时间的平方项影响显著。在此基础上,剔除了影响因子较低的因子,并得到了修改后 COD 去除率的预测方程为:

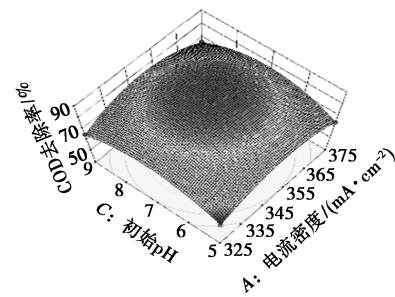
$$Y = 87.70 + 1.19A - 2.36B + 1.31C + 5.86D - 1.14AD + 0.84BC - 2.51CD - 11.80A^2 - 5.51B^2 - 1.77C^2 - 6.27D^2 \quad (1)$$

2.1.2 响应曲面分析交互作用对 COD 去除效果的影响

对表 2 中的数据进行降维分析,在 2 个因子不变的情况下,对另外 2 个因子对 COD 去除效果的影响进行研究。利用 Design-Expert (10.0.1) 软件对实验数据进行分析,响应曲面交互作用图如图 1~图 3 所示。

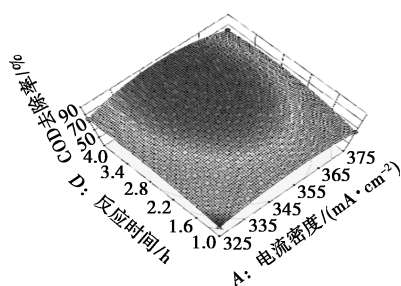


(a) 电流密度和极板间距的影响

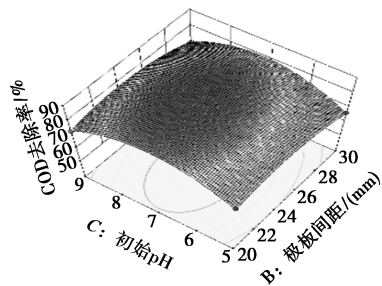


(b) 电流密度和初始 pH 的影响

图 1 电流密度和极板间距、电流密度和初始 pH 对 COD 去除率交互作用的影响

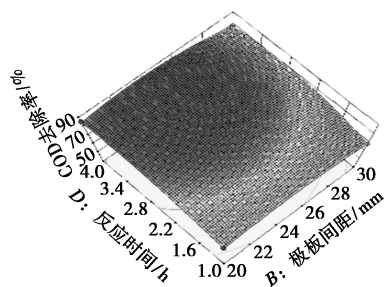


(a) 电流密度和反应时间的影响

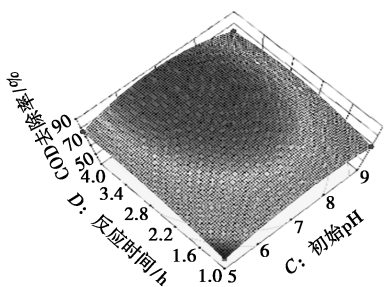


(b) 极板间距和初始 pH

图 2 电流密度和反应时间、极板间距和初始 pH 对 COD 去除率交互作用影响



(a) 极板间距和反应时间



(b) 初始 pH 和反应时间

图 3 极板间距和反应时间、初始 pH 和反应时间对 COD 去除率交互作用影响

从图 1(a)中可以看出,电流密度和极板间距的交互作用对 COD 去除率的影响不显著。研究电流密度和极板间距对 COD 去除率的影响,初始 pH 和反应时间分别为 7、2.5 h。在同电流密度时,随着电极极板间距的增大,COD 去除率呈先增加后减少的趋势。在同极板间距时,随着电流密度的增大,COD 去除率呈先增加后减少的趋势。随着电流密度的增

大,污染物去除率也在加快^[21];当电流密度过大,发生较强的析氢和析氧反应,电极极板产生了大量气泡并且吸附在极板上,发生较强的析氢和析氧反应,影响了羟基自由基的产生和传递,同时,部分电极表面出现钝化现象,从而降低了有机污染物的去除率^[22]。当电流密度为 345~355 mA/cm² 和极板间距为 22~26 mm 时,能够获得较好的 COD 去除率。

从图 1(b)中可以看出,电流密度和初始 pH 的交互作用对 COD 去除率的影响不显著。研究电流密度和初始 pH 对 COD 去除率的影响,极板间距、反应时间分别为 25 mm、2.5 h 时。在同电流密度时,随着初始 pH 的增大,COD 去除率呈先增加后减少的趋势。在电化学氧化时,CO₃²⁻、HCO₃⁻ 捕捉产生的羟基自由基对有机物污染物的去除效果有影响^[23]。在酸性条件下,渗滤液中 CO₃²⁻、HCO₃⁻ 含量降低使得其捕捉羟基自由基的活动被减弱,有利于污染物的去除。在碱性条件下,通过 Cl⁻→Cl₂→ClO⁻→Cl⁻ 的循环促进活性氯的生成,使有机污染物通过间接氧化反应被去除。当初始 pH 固定不变时,COD 去除率随电流密度增大呈先增加后减少的趋势。当电流密度为 345~355 mA/cm² 和极板间距为 6.5~7.5 mm 时,能够获得较好的 COD 去除率。

从图 2(a)中可以看出,电流密度和反应时间的交互作用对 COD 去除率的影响显著。研究电流密度和反应时间对 COD 去除率的影响,极板间距、初始 pH 分别为 25 mm、7。在同电流密度时,随反应时间的增长,COD 去除率呈增加的趋势。当电流密度为 345~355 mA/cm²、反应时间为 2.1 h 时,延迟反应时间能够获得较好的 COD 去除率。

从图 2(b)中可以看出,极板间距和初始 pH 的交互作用对 COD 去除率的影响显著。研究极板间距和初始 pH 对 COD 去除率的影响,电流密度、反应时间分别为 350 A/cm²、2.5 h。在同极板间距时,随着初始 pH 的增大,COD 去除率呈先增加后减少的趋势。在同初始 pH 时,随着极板间距的增大,COD 去除率呈先增加后减少的趋势。当极板间距为 22~26 mm、初始 pH 为 6.5~7.5 时,能够获得较好的 COD 去除率。

从图 3(a)中可以看出,极板间距和反应时间的交互作用对 COD 去除率的影响不显著。研究极板间距和反应时间对 COD 去除率的影响,电流密度、初始 pH 值分别为 350 A/cm²、7。在同极板间距时,COD 去除率随反应时间的增大而增加。当极板间距为 22~26 mm、反应时间为 2.2 h 时,延迟反应时

间能够获得较好的 COD 去除率。

从图 3(b)中可以看出,初始 pH 和反应时间的交互作用对 COD 去除率的影响显著。研究初始 pH 和反应时间对 COD 去除率的影响,电流密度、极板间距分别为 350 A/cm^2 、 25 mm 。

在同初始 pH 时,随着反应时间的增长,COD 去除率呈增加的趋势。当初始 pH 为 $6.5 \sim 7.5$ 和反应时间为 1.6 h 时,延迟反应时间能够获得较好的 COD 去除率。

2.1.3 验证回归拟合方程

COD 去除率的实际值与预测值如表 4 所示。

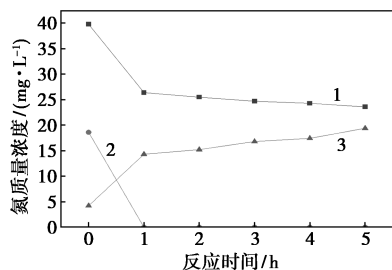
表 4 COD 去除率的实际值与预测值

编号	电流密度/ ($\text{mA} \cdot \text{cm}^{-2}$)	极板 间距/ mm	初始 pH	反应 时间/ h	COD 去除率 实际值/%	COD 去除率 预测值/%
实验 1	350	25	7	4.0	90.21	87.28
实验 2	350	20	9	4.0	73.71	70.83
实验 3	325	25	7	2.5	72.39	74.71
实验 4	350	24	7	3.2	90.12	89.38

从表 4 可知,在相同条件下,4 个实验的相对误差分别为 2.93% 、 3.90% 、 2.32% 、 0.74% ,实际值与模型预测结果非常接近,表明该响应曲面 COD 去除率的拟合方程对实际情况拟合效果较好。因此,通过响应曲面法对实验条件进行优化,可以得到最佳参数,为垃圾渗滤液生化处理后的深度处理提供借鉴。

2.2 电化学过程中总氮的转化

当电流密度为 350 mA/cm^2 、极板间距为 25 mm 、初始 pH 为 7 时,电化学过程中总氮的变化情况如图 4 所示。



1—TN 质量浓度;2— $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 质量浓度;3— $\text{NO}_3^-\text{-N}$

图 4 电化学过程中总氮的变化情况

从图 4 中可以看出,电化学氧化法对氨氮和有机氮的去除效果较好。在垃圾渗滤液混凝处理后,渗滤液中的氮主要是氨氮和有机氮,经过 1 h 的电

化学氧化处理后,渗滤液中的氨氮被完全去除,部分的氨氮被转化为硝氮,大部分有机氮也被去除。由于渗滤液中存在氯离子,在电化学处理过程中会生成活性氯^[24],活性氯将氨氮氧化成氮气和硝氮。因此,为了减少出水中的硝氮残留,需要对电化学处理进行进一步研究,减少硝氮的生成。

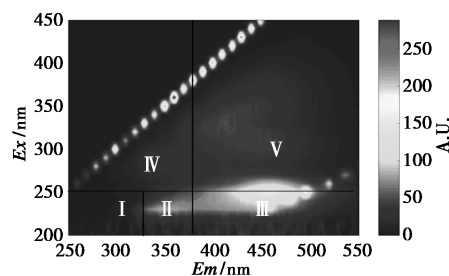
2.3 三维荧光光谱分析

三维荧光光谱法具有较高的精确度和灵敏度,能够很好地反映出垃圾渗滤液中含有的荧光物质的种类及相对应含量。由于不同的有机物具有特定的激发波长和发射波长,因此利用三维荧光光谱仪对其进行扫描,从而不同的有机物在三维荧光光谱呈现出不同的荧光峰^[25]。常见垃圾渗滤液的特征荧光峰如表 5 所示。

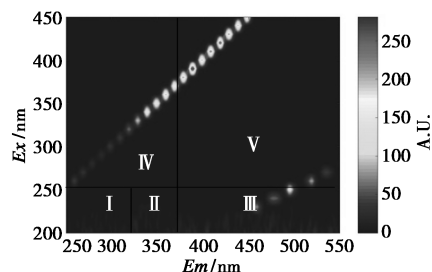
表 5 常见垃圾渗滤液的特征荧光峰

区域	有机物类型	发射波长 E_m/nm	激发波长 E_x/nm
I	芳香蛋白类物质 I	200~250	280~330
II	芳香蛋白类物质 II	220~250	330~380
III	富里酸类物质	220~250	380~500
IV	溶解性微生物代谢产物	250~280	280~380
V	腐殖酸类物质	250~400	380~500

各个处理阶段垃圾渗滤液三维荧光光谱图如图 5 所示。



(a) 混凝出水



(b) 电化学氧化出水

图 5 各个处理阶段垃圾渗滤液三维荧光光谱图

经过前置反硝化/PN/ANAMMOX 混凝出水的污染物由芳香蛋白类物质、富里酸类物质、溶解性微生物代谢产物、腐殖酸类物质组成,主要是以富里

酸、腐殖酸类物质为主,含有少量的芳香蛋白类物质、溶解性微生物代谢产物。在电化学氧化作用下,电化学氧化处理 5 h 时,富里酸和腐殖酸的光谱峰明显降低,说明电化学氧化能有效地去除富里酸、腐殖酸类物质。

3 结论

(1) 采用响应曲面法(RSM)中的 BBD 法,通过对该模型显著性进行分析,模型显著,可用于实验结果的预测,获得的最佳实验条件为:电流密度为 350 mA/cm²,极板间距为 24 mm,初始 pH 为 7.0,电解时间为 3.2 h,实际测得结果与模型预测结果非常接近,COD 去除率为 90.12%。因此,通过响应曲面法对实验条件进行优化,通过预测参数及结果为垃圾渗滤液生化处理后的深度处理提供借鉴。

(2) 在电化学处理中,适合的电流密度、极板间距和初始 pH 能够有效地提高 COD 和 TN 的去除效果,部分氨氮会转化成硝氮,有机氮大部分被去除,通过三维荧光光谱分析,渗滤液中的荧光类污染物基本被去除,大部分的腐殖酸、富里酸类物质被去除。

参考文献

- [1] Li Z, Yuan S, Qiu C, *et al.* Effective degradation of refractory organic pollutants in landfill leachate by electro-peroxone treatment [J]. *Electrochimica Acta*, 2013, 102: 174-182.
- [2] Boonnorat J, Techkarnjanaruk S, Honda R, *et al.* Use of aged sludge bioaugmentation in two-stage activated sludge system to enhance the biodegradation of toxic organic compounds in high strength wastewater [J]. *Chemosphere*, 2018, 202: 208-217.
- [3] 张祥丹,王家民.城市垃圾渗滤液处理工艺介绍[J]. *给水排水*, 2000, (10): 9-14, 12.
- [4] Kulikowska D, Klimiuk E. The effect of landfill age on municipal leachate composition [J]. *Bioresour Technol*, 2008, 99(13): 5981-5985.
- [5] 王凯,武道吉,彭永臻,等.垃圾渗滤液处理工艺研究及应用现状浅析[J]. *北京工业大学学报*. 2018, 44(1): 1-12.
- [6] 龚魁彦.新化垃圾填埋场中晚期渗滤液处理工艺改造研究[D].湖南:湖南大学,2019.
- [7] 张晓杰.厌氧+MBR+NF+RO 工艺与两级 DTRO 工艺处理垃圾渗滤液的对比分析[J]. *水处理技术*, 2019, 45(9): 126-129, 132.
- [8] Yang Z, Zhou S. The biological treatment of landfill leachate using a simultaneous aerobic and anaerobic (SAA) bio-reactor system [J]. *Chemosphere*, 2008, 72(11): 1751-1756.
- [9] Coats E R, Mockos A, Loge F J. Post-anoxic denitrification driven by PHA and glycogen within enhanced biological phosphorus removal [J]. *Bioresour Technol*, 2011, 102(2): 1019-1027.
- [10] Li X, Yuan Y, Wang F, *et al.* Highly efficient of nitrogen removal from mature landfill leachate using a combined DN-PN-Anammox process with a dual recycling system [J]. *Bioresour Technol*, 2018, 265: 357-364.
- [11] 陆明羽.基于 ANAMMOX 脱氮的中晚期垃圾渗滤液生物处理系统中试研究[D].苏州:苏州科技大学,2020.
- [12] 盛贵尚.掺硼金刚石电极电化学氧化晚期垃圾渗滤液试验研究[D].重庆:重庆大学,2015.
- [13] 李娟.Ti/RuO₂-IrO₂ 和 Al 极板电化学处理垃圾渗滤液的优化及机理分析[D].长沙:湖南大学,2017.
- [14] Li M, Feng C, Zhang Z, *et al.* Optimization of electrochemical ammonia removal using Box-Behnken design [J]. *Journal of Electroanalytical Chemistry*, 2011, 657(1-2): 66-73.
- [15] 国家环境保护总局.水和废水监测分析方法[M].4 版.北京:中国环境科学出版社,2002.
- [16] Kathleen R M, Kenna D B, Robert G M S, *et al.* Measurement of dissolved organic matter fluorescence in aquatic environments: An interlaboratory comparison [J]. *Environmental Science & Technology*, 2010, 44(24): 9405-9412.
- [17] Stedmon C A, Bro R. Characterizing dissolved organic matter fluorescence with parallel factor analysis: A tutorial [J]. *Limnology and Oceanography: Methods*, 2008, 6(11): 572-579.
- [18] He W, Jin H. Conservative behavior of fluorescence EEM-PARAFAC components in resin fractionation processes and its applicability for characterizing dissolved organic matter [J]. *Water Research*, 2015, 83: 217-226.
- [19] Zepp R G, Sheldpn W M, Moran M A. Dissolved organic fluorophores in southeastern US coastal waters: Correction method for eliminating Rayleigh and Raman scattering peaks in excitation-emission matrices [J]. *Marine Chemistry*, 2004, 89(1-4): 15-36.
- [20] Nurshazwani B A, Mohammed J K B, Sumathi S, *et al.* Stabilized landfill leachate treatment by sugarcane bagasse derived activated carbon for removal of color, COD and NH₃-N-Optimization of preparation conditions by RSM [J]. *Journal of Environmental Chemical Engineering*, 2015, 3(2): 1287-1294.
- [21] Garcia S S, Ocon J D, Chong M N. Electrochemical oxidation remediation of real wastewater effluents—A review [J]. *Process Safety and Environmental Protection*, 2018, 113: 48-67.
- [22] 徐龙乾,刘树丽,徐晓军,等.电絮凝法在重金属废水处理中钝化机理的研究进展[J]. *现代化工*, 2017, 37(12): 33-37.
- [23] 王鹏,刘伟藻,方汉平.电化学氧化与厌氧技术联用处理垃圾渗滤液[J]. *环境科学*, 2001, (5): 70-73.
- [24] Deng Y, Englehardt J D. Electrochemical oxidation for landfill leachate treatment [J]. *Waste Management*, 2007, 27(3): 380-388.
- [25] 王敬博,张林楠,李振山.渗滤液生化出水 DOM 在深度混凝过程中的去除特征[J]. *北京大学学报(自然科学版)*, 2018, 54(3): 633-643. ■