

特约专栏

退役 NCM333 正极材料热化学还原转化过程研究

闫姝璇¹, 刘洪博¹, 陈湘萍², 杨 鹰¹, 周 涛¹

(1. 中南大学化学化工学院, 湖南 长沙 410083)

(2. 湖南师范大学化学化工学院, 湖南 长沙 410081)

摘 要: 锂离子电池日前的爆发式增长使之将在未来的 3~5 年内面临大量的“退役”问题。退役锂离子电池尤其是退役正极材料的高效、可持续的回收利用, 是实现新能源产业碳达峰和碳中和目标的关键。主要研究了玉米秸秆对退役正极材料 $\text{LiNi}_{1/3}\text{Co}_{1/3}\text{Mn}_{1/3}\text{O}_2$ (NCM333) 中有价金属的热化学还原过程, 通过调控转化高价金属, 选择性回收金属盐及单质, 避免传统回收过程中化学试剂的添加, 同时利用退役正极材料中的过渡金属特性, 对玉米秸秆进行催化重整产气。使用 X 射线衍射仪、X 射线光电子能谱等仪器分析热解后的正极材料和玉米秸秆, 结果表明, 玉米秸秆热解、气化产生的还原性气体和生物碳破坏了正极材料 $\text{LiNi}_{1/3}\text{Co}_{1/3}\text{Mn}_{1/3}\text{O}_2$ 中的高价金属—氧键, 降低 Ni、Co 和 Mn 的金属价态, 同时将 Li 转化为 Li_2CO_3 。不同的热解温度得到了不同的热解产物, 较高的温度更易得到 Ni-Co 合金及 MnO。热解还原过程中正极材料中的过渡金属对玉米秸秆热解来说是良好的催化剂, 可以降低热解反应的所需温度, 提升碳热反应的可能性, 从而实现“废物+废物=资源”的目的。该工艺可以在不外加还原剂的情况下高效、高选择性和无污染地梯度回收有价金属, 不仅提供了一条绿色可持续发展的退役锂离子电池回收路径, 也为生物质的催化重整提供了一种成本低廉的催化剂的选择。

关键词: 退役锂离子电池; 生物质裂解; 热化学过程; 有价金属; 选择性分离

中图分类号: TF803; TQ09 **文献标识码:** A **文章编号:** 1674-3962(2024)05-0369-05

引用格式: 闫姝璇, 刘洪博, 陈湘萍, 等. 退役 NCM333 正极材料热化学还原转化过程研究[J]. 中国材料进展, 2024, 43(5): 369-373.

YAN S X, LIU H B, CHEN X P, *et al.* Thermochemically Regulated Conversion Recovery Processes of NCM333 in Spent Lithium-Ion Batteries[J]. Materials China, 2024, 43(5): 369-373.

Thermochemically Regulated Conversion Recovery Processes of NCM333 in Spent Lithium-Ion Batteries

YAN Shuxuan¹, LIU Hongbo¹, CHEN Xiangping², YANG Ying¹, ZHOU Tao¹

(1. College of Chemistry and Chemical Engineering, Central South University, Changsha 410083, China)

(2. College of Chemistry and Chemical Engineering, Hunan Normal University, Changsha 410081, China)

Abstract: The recent explosive growth of lithium-ion batteries will face a large number of “decommissioning” problems in the next 3 to 5 years. The efficient and sustainable recycling of spent lithium-ion batteries, especially waste cathode materials, is the key to achieving the goal of carbon peak and carbon neutrality in the new energy industry. This paper mainly studies the thermochemical reduction process of valuable metals in waste cathode materials $\text{LiNi}_{1/3}\text{Co}_{1/3}\text{Mn}_{1/3}\text{O}_2$ by corn stalks. Through regulating and transforming high-valence metals, selective recovery of metal salts and elemental substances avoids the addition of reducing agents in the traditional process and utilizes the transition metal characteristics in waste cathode materials for catalytic reforming of corn stalk to produce gas. During the reaction process, X-ray diffraction and X-ray photoelectron spectroscopy were used to analyze the cathode material and corn straw after pyrolysis. It was found that the reducing

gas and biological carbon generated by the pyrolysis and gasification of corn straw destroyed the high-value metal-oxygen bond in the cathode material $\text{LiNi}_{1/3}\text{Co}_{1/3}\text{Mn}_{1/3}\text{O}_2$, and reduced the metal valence states of Ni, Co and Mn. It also converts Li to Li_2CO_3 . Different pyrolysis products are obtained at different pyrolysis temperatures, and Ni-Co alloy and MnO are easier to be obtained at higher temperatures. In the process of pyrolysis and reduction, the transition metal in the positive electrode material is a good catalyst for

收稿日期: 2023-08-04 修回日期: 2023-10-30

基金项目: 国家自然科学基金面上项目(52174391)

第一作者: 闫姝璇, 女, 1996 年生, 博士研究生

通讯作者: 周 涛, 男, 1963 年生, 教授, 博士生导师,

Email: zhoutao@csu.edu.cn

DOI: 10.7502/j.issn.1674-3962.202308002

the pyrolysis of corn straw, which can reduce the required temperature of the pyrolysis reaction, improve the possibility of carbothermal reaction, and regulate the gas composition generated by pyrolysis, so as to achieve the purpose of “waste+waste=resources”. The process can recover valuable metals in an efficient, highly selective and pollution-free gradient without reducing agents addition, which not only provides a green and sustainable recycling path for spent lithium-ion batteries, but also provides a low-cost catalyst for the catalytic reforming process of biomass.

Key words: spent lithium-ion batteries; biomass pyrolysis; thermochemical process; valuable metal; selective separation

1 前言

自 1995 年, 索尼公司首先将锂离子电池 (lithium-ion batteries, LIBs) 商业化以来, LIBs 因具有较高的能量密度、较低的成本等特性, 广泛应用于便携电子设备和电动汽车等领域的能量存储系统。LIBs 的巨大产量以及有限的寿命, 使得目前已经产生大量的退役 LIBs^[1]。目前全球只有 6% 左右的退役 LIBs 被回收, 大部分都进入垃圾填埋场^[2]。一方面 LIBs 中含有的有机电解质和重金属等会危害环境和人类安全, 另一方面其中含有的锂 (Li)、钴 (Co) 等战略性金属价值较高。为了实现环境和资源的可持续发展, 退役 LIBs 的回收变得十分必要^[3, 4]。

目前, 对 LIBs 的回收已引起越来越多研究人员的兴趣^[5]。退役 LIBs 的电池结构较为复杂, 不同组分的回收价值差异较大, 需要结合多种技术进行处理。其中正极材料 (例如: LiCoO_2 、 $\text{LiNi}_x\text{Co}_y\text{Mn}_{1-x-y}\text{O}_2$ ($0 < x < 1$, $0 < y < 1$)、 LiFePO_4 等) 由于较高的价值而被广泛研究^[3]。从退役正极材料中回收得到有价金属通常需要经历 3 个步骤: 预处理、金属提取和产品的纯化回收过程^[6]。其中金属提取过程由于价值较高而被广泛研究^[7, 8]。目前常用的金属提取技术包括火法冶炼^[9]、湿法冶炼^[10, 11]及综合工艺^[12, 13]。其中火法冶炼主要是通过热化学过程处理退役正极材料中的金属, 对层状的三元正极材料, 通常需要加入还原剂或金属盐类, 在高温下转化为易于回收的低价态或水溶性金属化合物。其优点是处理量大、操作简单。目前常用的还原剂有石墨粉、煤粉等^[14], 常用的金属盐有硫酸盐、氯化盐等^[15]。然而高温冶炼过程处理能耗过高, 反应过程中会产生大量含氟气体, 需要尾气处理装置。为了降低过程能耗, 实现绿色回收, 越来越多的研究集中在中低温冶炼过程。目前主要通过微波辅助加热、真空热解等方式进行还原/焙烧^[16, 17]。Xiao 等^[18]利用尿素作为还原剂, 采用热还原法将废 LiCoO_2 热还原为水溶性 Li_2CO_3 和不溶性的金属 Co, 接着通过水浸提取可得到 99.96% 的 Li, 选择性接近 100%^[10, 11, 19-22]。

生物质被认为是除了传统化石能源 (煤炭、石油、天然气) 外的第四大能源^[23, 24]。合适的利用不仅可以实现“零”碳排放, 还可以收获具有经济价值的产物^[25]。生物质的利用方式具有化学转化和生物转化 2 种, 通过将其转化为燃料或其他化学染料和产品实现其高值化利用。

在较多的生物质种类中, 农业废弃物及其资源化由于来源广泛且成本低廉而受到越来越多的重视。生物质的转化过程较为复杂, 过程涉及发酵、气化、液化、热解、燃烧等技术。其中热解过程由于转化效率高、原料功能性多, 成为了生物质能源化的主要手段^[26]。与传统的煤还原过程相比, 生物质热解可以有效降低酸性气体和温室气体的排放。热解过程中添加催化剂可降低反应所需的活化能, 且对生物质的产物组成也会产生一定影响。由于退役 LIBs 中含有大量的过渡金属 (Ni, Co, Mn 等), 具有良好的催化特性, 近年来, 用退役 LIBs 做催化剂来处理废弃生物质引起了越来越多的注意。Zhou 等^[27]使用松木屑为生物质原料, 在热解过程中提供还原性气体和碳, 驱动 LiCoO_2 转化为 Co/CoO 和 Li_2CO_3 , 可回收 94% 以上的 Li 和 97% 以上的 Co。与普通碳热过程相比, 生物质热解还原实现更低的转变温度, 在一定程度上减少了能源消耗并扩大了可再生能源的使用。也有研究人员^[28]以豆渣为绿色还原剂, 探索生物质还原焙烧与水浸过程相结合的回收策略。焙烧过程中, 豆渣的热解促进了正极材料的分解, 转化为 Ni、Co、MnO 和 Li_2CO_3 。Chen 等^[15]使用废弃 LiCoO_2 催化热解玉米秸秆、锯末和稻草, 系统分析了热解后退役正极材料的组分, 通过对不同温度的产物分析, 调控过渡金属及其氧化物的生成, 并通过水浸选择性提取 Li_2CO_3 。

本文提出了一种利用废弃玉米秸秆作为还原剂梯度回收不同有价金属的热化学工艺。退役正极材料存在高价态过渡金属, 例如 Co^{3+} 和 Mn^{4+} , 使用废玉米秸秆作为还原剂, 梯度还原不同有价金属。突破传统火法冶炼过程能耗高、污染大的问题, 反应过程利用生物质热解产生的还原性气体以及碳热还原过程还原 $\text{LiNi}_{1/3}\text{Co}_{1/3}\text{Mn}_{1/3}\text{O}_2$ (NCM333), 通过气-固和固-固还原反应降低火法冶炼温度与时间, 实现金属的梯度还原, 同时退役 $\text{LiNi}_{1/3}\text{Co}_{1/3}\text{Mn}_{1/3}\text{O}_2$ 的催化特性影响玉米秸秆的热解产物, 通过“以废制废”实现农副产品的低值化利用, 同时达到退役 LIBs 正极材料分离回收的目的。

2 实验

2.1 实验原料

实验采用的退役 LIBs 来自长沙某电池回收机构。玉米秸秆采购于长沙县春华镇某玉米种植基地。实验采用

的化学试剂氯化钠(NaCl)、N-甲基吡咯烷酮(NMP)、乙醇(C₂H₅OH)均购于国药集团化学试剂有限公司。

2.2 实验过程

2.2.1 退役 LIBs 的预处理过程

在进行拆解之前,将退役 LIBs 置于 10% NaCl(质量分数)溶液浸泡 12 h,使其完全放电,避免后续操作过程发生自燃甚至爆炸。接着在通风橱内对完全放电的电池进行手工拆解,得到正极、负极、隔膜和金属外壳等组分。将正极极片浸入 NMP 溶液,超声(KQ5200DE, 昆山舒美)剥离 2 h,过滤,得到极片和正极材料,NMP 溶剂经蒸发后可循环使用。将过滤得到的正极材料在 50 ℃烘箱中烘干 10 h,研磨后即可得到热解过程所需的原料。

2.2.2 废旧玉米秸秆的预处理过程

将购买的玉米秸秆研磨均匀,将研磨后的玉米秸秆过孔径为 48 μm 的筛子,将过筛后的材料置于干燥塔中备用。

2.2.3 退役 NCM333 与玉米秸秆的还原转化过程

热解反应开始前,将一定量的 NCM333 与过筛后的玉米秸秆粉末分别置于 105 ℃鼓风干燥箱中烘干 2 h,以完全去除自由水和结合水。热解还原过程在管式炉(OTF-1200X, 合肥科晶)中进行,实验过程采用部分原位热解还原法。

称取 4 g NCM333 与 1.2 g 玉米秸秆通过玛瑙研钵混合均匀,接着置于管式炉中进行热解,反应开始前先以 550 mL/min 的氮气流吹扫 20 min,使反应处于高纯氮气气氛中,避免氧气的干扰。反应设定的升温速率为 10 ℃/min,升至不同的热解温度,并保持 20 min,设定的降温速率为 10 ℃/min,温度降至 50 ℃以下时,反应结束,收集热解后的固体样品,用于后续表征分析。实验探究了不同热解温度(400, 450, 500, 550, 600, 650, 700 ℃)对热解产物的影响,具体的实验流程如图 1 所示。

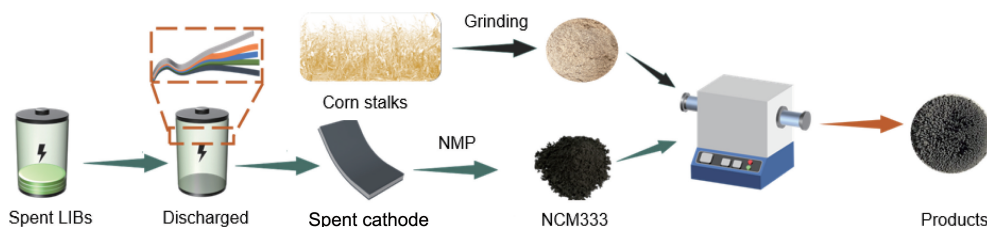


图 1 热化学还原转化过程实验流程图

Fig. 1 Experimental flow chart of thermochemical reduction transformation process

2.3 分析与检测

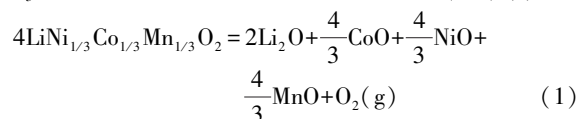
实验采用 X-射线衍射分析(XRD)对所得产物进行物相分析,分析固体产物的组成情况。测试的扫描范围为 10°~80°,扫描速度 10(°)/min,仪器型号为 Empyrean 股份有限公司。XRD 数据通过 Jade 6.0 进行分析。实验所得的固体产物也进行了 X-射线光电子能谱(XPS)分析,定量分析了固体产物的各成分含量,分析固体产物在管式炉中的变化情况,仪器型号为 ESCALAB Xi+。所得到的数据采用 Advantage 软件进行分析。金属离子浓度通过电感耦合等离子体发射光谱仪(ICP-OES)进行确定,仪器型号为 PerkinElmer Avio500。使用元素分析仪分析玉米秸秆中的元素含量,型号为 vario MACRO cube。

3 结果与讨论

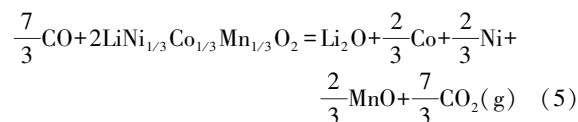
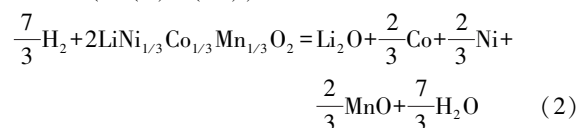
3.1 不同温度下热解产物的 XRD 表征分析

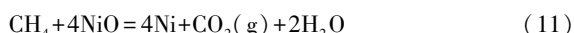
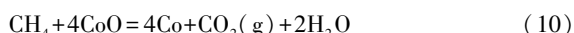
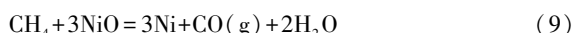
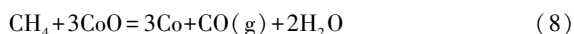
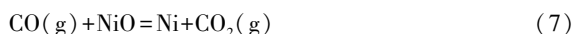
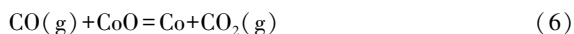
玉米秸秆的主要成分为纤维素、半纤维素和木质素(元素质量含量:41.98% C、5.45% H、35.81% O、1.23% N)^[29]。玉米秸秆热解会产生 H₂、CO、CO₂、CH₄ 等气体和生物炭,还原性气体和生物炭在一定温度下都有可能与加入的正极材料相反应。对不同温度热解后的固体产物进行了 XRD 表征(图 2),得到其物相组成,了

解正极材料随温度的变化规律,同时探究了热解产生的气体与固体的反应。当 NCM333 与玉米秸秆质量比为 1:0.3,氮气流量为 100 mL/min,升温速率为 10 ℃/min 时,得到了 400~700 ℃温度的产品组成。在较低的温度下(<400 ℃),正极材料的结构就已经被破坏,转化为 Li₂CO₃、MnO、NiO、CoO 及少量 Ni-Co 合金(式(1)):

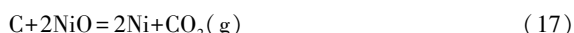
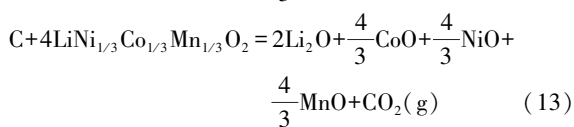
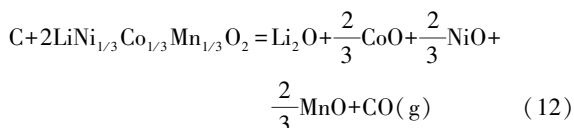


随着温度升高至 450 ℃,固体产物中已检测不到 NCM333 的特征峰的存在,与之相反,NiO、CoO 和 MnO 的峰强度增加。与此同时,热解后的固体产物中 Ni-Co 合金的峰逐渐增强(式(2)~(11)):





通常情况下, 碳热还原反应在 $>700\text{ }^\circ\text{C}$ 时才会发生, 这一结果证明了比碳热还原反应温度低的气-固还原反应的存在, 且随着温度的升高, 其参加反应的程度逐渐增强。随着温度进一步升高, 热解后固体产物 CoO 、 NiO 的峰进一步减弱而 Co 和 Ni 的峰进一步增强, 表明温度的升高使得 CoO 和 NiO 被进一步还原为 Co 和 Ni , 这个变化在 $600\text{ }^\circ\text{C}$ 开始变得更加明显。这是因为当温度升高至 $600\text{ }^\circ\text{C}$ 后, 生物质裂解产生的生物炭参与了还原过程, 与 CoO 和 NiO 反应(式(12)~(17)):



在整个催化热解过程中, 随着温度的升高, Li_2CO_3 的峰逐渐增强(21.5° 和 30.6° 附近), 这是由于热解过程中 NCM333 被分解还原为各自的金属氧化物, CO_2 与 Li_2O 的结合生成 Li_2CO_3 (式(18)), 且随着温度的增加逐渐增大:

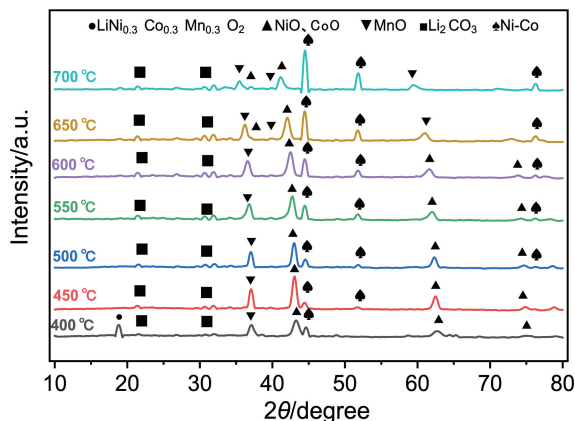


图2 不同温度下 NCM333 混合玉米秸秆固体产物的 XRD 图谱

Fig. 2 XRD patterns of NCM333 mixed corn stalk solid product at different temperatures

3.2 正极材料混合玉米秸秆的 XPS 分析

使用 XPS 分析探究在不同温度下玉米秸秆的化学键变化来推断反应过程的机理。图 3 为在 $400, 450, 500, 550, 600, 650$ 和 $700\text{ }^\circ\text{C}$ 下的热解产物的 $\text{C } 1\text{s}$ 图谱。通过 Avantage 软件进行了分峰拟合(如图 3 和表 1 所示), 玉米秸秆的热解残渣主要成分包含 $\text{C}-\text{C}$ (脂肪族碳和芳香族碳)、 $\text{C}=\text{O}$ 和 $\text{C}-\text{O}-\text{C}$ 。其中 284.7 和 286.0 eV 处的峰分别归因于芳香族、脂肪族的碳链。 287 和 288 eV 附近的峰分别归因于 $\text{C}-\text{O}-\text{C}$ 和 $\text{C}=\text{O}$ 结构。由图 3 可知, 在 290 eV 附近出现了较大的 CO_3^{2-} 的峰, 这是

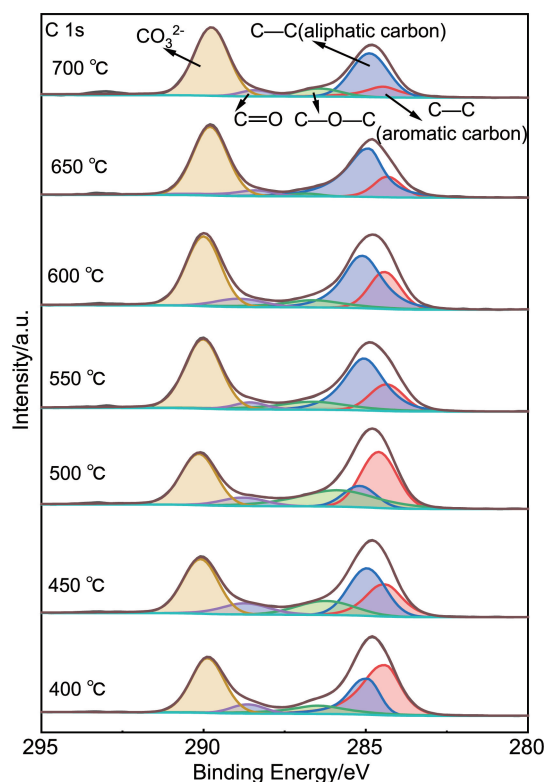


图3 NCM333 混合玉米秸秆固体产物在不同温度下的 XPS 图谱

Fig. 3 XPS spectra of NCM333 mixed corn stalk solid product at different temperatures

表 1 不同温度下热解后 NCM333 的 XPS 图谱的 $\text{C } 1\text{s}$ 分峰结果

Table 1 $\text{C } 1\text{s}$ sub-peak results of XPS spectra of pyrolysed NCM333 at different temperatures

Temperature/ $^\circ\text{C}$	$\text{C}-\text{C}/\text{C}-\text{H}$ aliphatic hydrocarbons/%	$\text{C}-\text{C}/\text{C}-\text{H}$ aromatic hydrocarbons/%	$\text{C}-\text{O}-\text{C}$	$\text{C}=\text{O}$
400	50.13	28.33	14.33	7.21
450	28.6	40.27	18.53	12.6
500	45.19	15.66	30.71	8.43
550	22.22	56.22	15.6	5.96
600	26.39	52.01	12.47	9.13
650	18.78	67.21	2.60	11.41
700	17.7	62.05	12.95	7.31

由于热解产生的 CO_2 与 NCM333 中的 Li 相结合, 形成 Li_2CO_3 , 这也与之前 XRD 峰出现 Li_2CO_3 相吻合。

在热解还原实验中, 不同的热解温度会使得玉米秸秆的官能团的相对含量发生变化(例如: $\text{C}-\text{C}$ 、 $\text{C}-\text{O}-\text{C}$ 和 $\text{C}-\text{H}$ 等), 可以根据官能团含量的变化来推断 NCM333 催化热解玉米秸秆的气化转化机理。众所周知, 玉米秸秆的主要成分为纤维素、半纤维素和木质素。其中纤维素中的小分子结构由 $\text{C}-\text{O}-\text{C}$ 连接, 而 $\text{C}-\text{O}-\text{C}$ 键的断裂将导致纤维素结构的坍塌。脂肪族和芳香族碳的转变表明了环的开裂与形成。而 $\text{C}=\text{O}$ 结构的出现也表明反应过程中 CO 和 CO_2 的生成。

3.3 正极材料催化热解玉米秸秆的机理分析

根据表征结果及其分析推断可能的反应机理。选取玉米秸秆中的纤维素作为模型化合物。在 $400\sim 450\text{ }^\circ\text{C}$ 热解温度下, 芳香族碳热解生成 $\text{C}-\text{O}-\text{C}$ 、 $\text{C}-\text{H}$ 等官能团。在热解还原过程中, NCM333 主要转化为 NiO 、 CoO 、 MnO 和 Li_2O 。当温度升高至 $550\text{ }^\circ\text{C}$ 之后, 发现有 $\text{C}=\text{O}$ 键的形成, 表明纤维素断裂后, $\text{C}-\text{O}-\text{C}$ 再次成环, 继续参与环上裂解, 伴随 CO 和 CO_2 的排放。在此过程中, 金属氧化物被进一步还原为 Ni-Co 合金及生成 Li_2CO_3 , 最终实现正极材料的还原回收与玉米秸秆的裂解。

4 结 论

本文提出了一种使用退役锂离子电池(lithium-ion batteries, LIBs)正极材料 $\text{LiNi}_{1/3}\text{Co}_{1/3}\text{Mn}_{1/3}\text{O}_2$ (NCM333) 作为催化剂对玉米秸秆催化热解的方法。通过对热解过程及热解产物进行分析发现, 玉米秸秆的加入对正极材料的还原起积极作用, 反应过程涉及热解产气的气-固反应和固-固的碳热反应。在焙烧后 NCM333 可被还原为低价金属氧化物或单质: $500\text{ }^\circ\text{C}$ 下就可以被还原为 NiO 、 CoO 、 MnO 、 Ni 和 Co 。NCM333 可通过催化促进 $\text{C}-\text{O}-\text{C}$ 键的断裂实现生物质裂解产气。这是一种绿色、有效、以废制废的退役 LIBs 回收方法。

参考文献 References

- [1] LUO G, LI X, CHEN L, *et al.* Desalination[J], 2023, 548: 116228.
- [2] SHARMILI N, NAGI R, WANG P. Journal of Energy Storage[J], 2023, 68: 107622.
- [3] 张梦慧, 高超, 施磊, 等. 中国材料进展[J], 2023, 42(12): 985-992.
ZHANG M H, GAO C, SHI L, *et al.* Materials China[J], 2023, 42(12): 985-992.
- [4] CHAUDHARY V, LAKHERA P, KIM K, *et al.* Separation and Purification Reviews[J], 2023, 16(9): 1-18.
- [5] NEUMANN J, PETRANIKOVA M, MEEUS M, *et al.* Advanced Energy Materials[J], 2022, 12(17): 2102917.

- [6] ZHANG G, YUAN X, HE Y, *et al.* Journal of Hazardous Materials[J], 2021, 406: 124332.
- [7] CHEN J, MENG T, LENG E, *et al.* Journal of Hazardous Materials[J], 2022, 424: 127693.
- [8] ROY J J, SRINIVASAN M, CAO B. ACS Sustainable Chemistry & Engineering[J], 2021, 9(8): 3060-3069.
- [9] XIAO J, LI J, XU Z. Journal of Hazardous Materials[J], 2017, 338: 124-131.
- [10] SU F, ZHOU X, LIU X, *et al.* Chemical Engineering Journal[J], 2023, 455: 140914.
- [11] QI Y, MENG F, YI X, *et al.* Journal of Cleaner Production[J], 2020, 251: 119665.
- [12] 邓中莉, 吕卓赞, 范未峰, 等. 稀有金属材料与工程[J], 2023, 52(3): 1143-1154.
DENG Z L, LV Z Y, FAN W F, *et al.* Rare Materials and Engineering[J], 2023, 52(3): 1143-1154.
- [13] DU K, ANG E H, WU X, *et al.* Energy & Environmental Materials[J], 2022, 5(4): 1012-1036.
- [14] PARK S, JUNG S, KWON D, *et al.* Chemical Engineering Journal[J], 2022, 435: 135165.
- [15] CHEN X, WANG Y, LI S, *et al.* Chemical Engineering Journal[J], 2022, 434: 134542.
- [16] PARK J S, SEO S, HAN K, *et al.* Journal of Hazardous Materials[J], 2023, 448: 130952.
- [17] DENG L, XU Z, WANG M, *et al.* Green Chemistry[J], 2022, 24(2): 779-789.
- [18] XIAO J, NIU B, XU Z. Journal of Hazardous Materials[J], 2021, 418: 126319.
- [19] DAS D, R A, KAY P, *et al.* Journal of Hazardous Materials[J], 2022, 431: 128535.
- [20] ALIPANAH M, REED D, THOMPSON V, *et al.* Journal of Cleaner Production[J], 2023, 382: 135274.
- [21] LIAO X, YE M, LIANG J, *et al.* Journal of Hazardous Materials[J], 2023, 447: 130773.
- [22] JIANG Y, CHEN X, YAN S, *et al.* Chemical Engineering Journal[J], 2021, 426: 131637.
- [23] HUANG H, LIU C, SUN Z. Journal of Hazardous Materials[J], 2022, 435: 128974.
- [24] LOMBARDO G, EBIN B, FOREMAN M R S J, *et al.* ACS Sustainable Chemistry & Engineering[J], 2019, 7(16): 13668-13679.
- [25] TAO R, XING P, LI H, *et al.* Resources Conservation and Recycling[J], 2022, 176: 105921.
- [26] LIU W, ZHONG X, HAN J, *et al.* ACS Sustainable Chemistry & Engineering[J], 2019, 7(1): 1289-1299.
- [27] ZHOU F, QU X, WU Y, *et al.* ACS Sustainable Chemistry & Engineering[J], 2022, 10(3): 1287-1297.
- [28] LIN T, WANG Y, JIN S, *et al.* Green Chemistry[J], 2022, 24(24): 9552-9564.
- [29] XIA S, YANG H, LEI S, *et al.* Energy[J], 2023, 262: 125415.

(编辑 张雨明)