

硝基甲苯废水处理技术研究

贾军芳 毛兵 郝震 黄国龙 金理财

(浙江奇彩环境科技股份有限公司, 绍兴 312000)

摘要: 本文详细介绍了硝基甲苯废水的处理技术研究, 阐述了物理法、化学法、生物法以及多种水处理技术组合法的特点及对硝基甲苯废水的处理效果, 并结合多个实际工程案例详细介绍了单个或多个水处理技术在硝基甲苯废水中的应用效果。

关键词: 硝基甲苯; 物理法; 化学法; 生物法

中图分类号: TQ610.9

文献标识码: A

文章编号: 1672-1179 (2021) 05-57-05

硝基甲苯是以甲苯为原料, 先经混酸 (硝酸和硫酸) 硝化, 然后经液碱洗涤制得。由于在生成硝基甲苯的同时还会生成少量过氧化产物及酚类等物质, 需用液碱洗涤, 将酚类物质转化为酚钠盐使其溶于水而除去。因此, 硝基甲苯的生产工艺过程会产生部分酚钠废水, 内含酚钠盐和中和残酸后生成的无机盐。硝基甲苯经分离后可以得到对、间、邻三种同分异构体, 这三种异构体是有机化工中的重要化工中间体和精细化工原料, 在医药、染料、农药、有机溶剂、印染、多聚体以及其它多种化工产品的生产等领域均有广泛用途^[1,2]。

伴随现代化学工业技术的飞速发展, 硝基甲苯的产量与日俱增^[3]。据统计, 全球每年排入环境中的硝基甲苯超过 10000t^[4]。硝基甲苯对人和动物有较强的毒害作用, 能引起紫绀, 刺激皮肤和眼睛, 影响中枢神经系统, 使人感到疲劳, 头痛, 轻度头晕和眩晕, 以及恶心呕吐, 持续接触将危及生命, 出现黄疸和引起贫血。人类若长时间饮用含有硝基甲苯的废水会导致血红蛋白变性, 引发神经衰弱、皮肤炎症、肝脏损坏和贫血等一系列疾病^[5]。

由于硝基甲苯具有化学性质稳定、毒性高、难以生物降解及环境富集趋势等特质, 硝基甲苯已被列为严格控制的环境污染物^[6], 在工业排水中有严格控制。另外, 由于该有机物多数由人工合成, 不仅对微生物有抑制作用, 而且难以被微生物的酶系统识别, 常规的生化处理措施作用甚微。目前, 国内外处理硝基甲苯废水的技术发展迅速, 主要包括物理、化学、生物及各种生物化学手段联合应用的复合处理等方法。本文对硝基甲苯废水的处理技术

研究在近年来的发展进行详细介绍。

1 硝基甲苯废水的处理方法

1.1 物理法

对于浓度较高的硝基甲苯废水, 采用物理处理手段不仅可以降低硝基甲苯浓度, 提高废水的可生化性, 而且可回收硝基甲苯, 实现废物的资源化利用。目前常用的物理处理手段主要包含吸附、萃取和汽提法。

在处理硝基甲苯废水的研究中, 炉渣、粒状活性炭、大孔树脂、膨润土等均是工业废水中常用的吸附剂。吸附法是利用吸附剂的多孔性及高比表面积对有机物进行吸附作用, 将有机物从废水中转移出去, 然后采用适当的脱附剂对吸附剂进行解析, 在回收有机物同时实现吸附剂的循环利用。

在使用活性炭吸附处理含芳香族硝基化合物染料废水的工程应用中, 赵钰等^[7]发现 COD 由平均值 209 mg/L 稳定下降至 119 mg/L。另外, 有研究表明, 弱碱树脂对硝基甲苯废水吸附速率快, 室温下对硝基甲苯的吸附容量可达 5.02 mg/g, 有较好的吸附效果^[8]。

虽然吸附法处理工艺投资少、操作简便, 但吸附法仍存在二次污染等问题, 寻找高效、低廉的吸附剂仍是今后的研究方向。

对于萃取法处理硝基甲苯废水, 多采用多级萃取与其它方法协同使用。用 $N_3O_3^-$ 做萃取剂对硝基苯废水进行处理, 经过两级萃取, 出水中硝基苯含量可达到国家一级排放标准^[9]。崔榕^[10]等自制的 YH-4 络合萃取剂, 可在酸性或中性条件下处理含硝基苯的废水, 并可通过蒸汽气提实现萃取剂再生。陆嘉昂^[11]等用 20% 三烷基胺+80% 加氢煤油作为萃取剂, 对苯胺-硝基苯废水进行四级萃取, 废

作者简介: 贾军芳, 硕士研究生毕业, 中级工程师, 从事工业废水的研究工作。电话: 18257570395, 邮箱 jjf121800@126.com, 通讯地址: 浙江省绍兴市越城区迪荡街道水岸香堤人才公寓。

水 COD 去除率达到了 96% 以上。

使用萃取法处理硝基甲苯废水处理周期短, 可处理水量大, 但可用于工业废水中的硝基甲苯类物质的萃取剂种类有限, 且废水中的有机物在两相内有一定分配比例, 因此仅依靠萃取法去除废水中硝基甲苯类化合物难以实现, 需辅以其它工艺手段。

应用汽提法处理高浓度硝基甲苯类化合物废水, 工艺原理上比较可行。实验表明, 应用汽提法处理硝基苯类废水, 硝基苯类化合物的去除率可达到 90% 以上^[12]。汽提后的废水再经过活性炭的吸附作用, 废水中的硝基苯类化合物的含量可降至 10 mg/L 以下。

1.2 化学法

处理硝基甲苯类化合物的化学方法主要有电化学氧化法和高级氧化法。电化学氧化包含直接电化学氧化和间接电化学氧化两种。直接电化学氧化是指利用阳极氧化使有机或者无机污染物在电极上降解, 将有毒污染物转变为低毒或者无毒物质, 或将非生物相容性的物质转变为生物相容性的物质, 比如芳香有机物的开环断链等。间接电化学氧化是指通过利用电极表面产生的强氧化性活性物质使有机物发生氧化还原转变。宋卫健等^[13]自行配置硝基苯类废水, 以 DSA 类电极作为阳极, 在电流密度为 15 mA/cm² 的环境下, 进行降解实验, 结果表明, COD 的去除率可达到 90%。樊红金等^[14]对电化学氧化法处理硝基苯类废水的降解性质进行研究的表明, 电化学法降解硝基苯类化合物的过程符合准一级动力学, 进水 pH、有机物浓度和反应温度都影响硝基苯类化合物的降解速率。

高级氧化技术主要包括芬顿氧化, 臭氧氧化, 湿式 (催化) 氧化, 光催化氧化等。芬顿氧化是在酸性条件下, 氧化剂在催化剂存在下生成强氧化能力的羟基自由基 ($\cdot\text{OH}$), 并引发生成更多的活性氧, 羟基自由基进攻大分子有机物并与之反应, 从而破坏有机物分子结构以达到降解去除有机物的目的。芬顿氧化过程为链式反应, 其中以 $\cdot\text{OH}$ 的产生为链的开始, 活性氧和反应中间体构成了链的节点, 活性氧被消耗, 反应链终止。其反应机理较为复杂, 这些活性氧仅供有机物分子消耗并使其矿化为 CO_2 和 H_2O 等无机物。余宗学^[15]采用芬顿氧化手段对间硝基苯生产废水进行处理, 结果表明, 经处理后, 硝基苯类化合物的降解率达到 89% 以上, COD 去除率可达 60% 以上, 并且, 经处理后, 废水

由红棕色变为了淡黄色, 废水色度显著降低, 预处理后废水的 $\text{B/C} \geq 0.3$ 。

臭氧在废水中可分解为原子氧和氧气, 产生具有强氧化活性的羟基自由基, 羟基自由基可进攻有机物分子, 使有机物分子开环断链, 从而达到破坏有机物分子结构的目的。童少平^[16]等利用 O_3/UV 处理含硝基苯类化合物的废水, 研究表明, 该处理手段对硝基苯类有机物与具有良好的降解能力。

光催化氧化是在紫外光的照射下, 催化剂表面产生电子-空穴对。光催化剂表面的溶解氧俘获电子形成 O_2^- , 吸附在空穴表面的 OH^- 和 H_2O 被氧化成羟基自由基。吕坤等^[17]采用锐钛型 TiO_2 光催化剂, 对废水中的硝基苯类化合物进行光催化降解, 结果表明, 催化剂投放量控制在 3 g/L, 废水的初始 pH 对硝基苯的处理效果影响不大, 紫外光照射 6.5 h, 降解效率基本稳定在 78%。董娅伟^[18]等采用溶胶-凝胶法制备的系列金属离子掺杂纳米 TiO_2 为光催化剂, 对含硝基苯类化合物废水进行光催化降解, 实验结果表明, 在进水 pH 为 3.0, 铜掺杂纳米 TiO_2 的用量为 0.75%、紫外灯功率为 30 W、光照时间为 4 h 的条件下, 废水中硝基苯类化合物的含量由 100 mg/L 降至 2.59 mg/L, 去除率达 97.41%。

另外, 有很多关于利用微电解反应和芬顿氧化降解硝基苯类化合物废水的工程案例。徐续等^[19]利用微电解和芬顿试剂, 将进水 COD 为 5 000 mg/L 的硝基苯废水降至 150 mg/L 左右, 可达标排放。李欣等^[20]利用微电解和芬顿试剂处理硝基苯制药废水, 进水的 pH 为 2~3、双氧水的投加量为 500~600 mg/L, 芬顿氧化后调节废水的 pH 为 7~8, 经絮凝沉淀处理后, 对 COD 和硝基苯类有机物的去除率分别为 47% 和 92%。

1.3 生物法

硝基甲苯类化合物被公认为是极难生物降解的物质。近年来一些学者利用生物的变异性筛选出了一些特异性菌种, 用于处理含硝基甲苯类化合物废水。王竞等^[21]在研究假单胞菌 JX165 对硝基甲苯类化合物的降解时发现, 在废水 pH 为 7、环境温度为 30 ℃、反应时间为 2 h、摇床转速为 100 r/min、废水中菌落浓度为 9 mg/L 的条件下, 在以硝基甲苯为唯一碳源和氮源的培养基中, 硝基甲苯的去除率 98.5%。

1.4 多种水处理工艺组合法

硝基甲苯硝化废水原水 COD 较高, 且含有一定量的苯酚钠盐、硝基苯酚钠、硝基甲苯和甲苯, 其中苯酚、硝基甲苯属难生物降解化合物, 处理难度较大, 单靠一种物理或者化学处理手段很难做到使废水达标排放, 因此, 目前大都采用多种水处理工艺组合处理硝基甲苯废水。类似硝基甲苯废水有河南某化工厂的硝基氯苯、硝基苯废水, 采用酸析、微电解、生化处理法, 其中微电解法处理工段选用了“海绵铁”作为载体。

2 硝基甲苯废水处理案例介绍

(1) 某公司硝基甲苯生产废水, 其工艺思路首先是考虑酚的去除, 然后将硝基物还原为胺基物, 并通过氧化反应来降低污染物浓度。该公司硝基甲苯生产废水先经酸析、还原、氧化, 然后与其它废水一起进入生化处理系统。由于该公司所在地气温较低, 生化系统还设有加温系统, 确保冬季生化处理效果。

(2) 某化工厂的二氧化氯氧化和催化氧化法。某化工厂引进二氧化氯氧化和催化氧化技术, 先对硝基酚进行预处理, 使原水经酸化, 析出大量酚钠(酚钠送固废焚烧中心集中处理); 经沉淀后的清液通过强氧化剂二氧化氯对废水中有机分子的作用, 使大分子转化为小分子, 再通过催化氧化, 使小分子进一步降解; 最终该废水与冷却水配水后一起进入总排放口, 总排放口废水达标排放。该处理工艺已经过三年运行, 出水效果良好, COD 一般在(100~300) mg/L, 但运行过程中产生刺鼻的气体, 每吨废水处理运行成本在 60 元以上。

(3) 某化工厂的微电解+催化氧化+生化法。该厂对硝基甲苯生产废水的处理工艺是: 酸析→微电解→催化氧化→厌氧水解→好氧生物处理。

硝基甲苯生产废水的处理装置设计日处理能力 200 吨。先对硝基苯酚进行预处理, 原水经酸化, 析出大量酚钠盐(送当地环保固废焚烧中心集中处理), 经沉淀后的清液进入微电解和催化氧化反应塔, 经还原、氧化后的废水与其它生产废水一起进入厌氧水解池, 经厌氧水解后的废水进入接触氧化池和表面曝气池, 废水处理达标排放。该厂在生化处理上做了大胆的尝试, 目前处理效果良好。

(4) 某化工厂的隔油+酸析除酚+微电解+芬顿氧化+厌氧水解+好氧生物处理。该厂对硝基甲苯生产废水的处理工艺是: 隔油→酸析→微电解→电解

催化氧化→厌氧水解→好氧生物处理。

生产废水中的甲苯不溶于水, 可通过隔油池将大部分的甲苯去除, 去除率为 75% 左右。

隔油后的废水经加酸调整 pH 至 3~4 后有苯酚和硝基酚析出, 用泵打入沉淀池进行沉淀除酚, 上层清液经箱式压滤机压滤, 酸化压滤可去除 65% 左右的酚钠盐, 酚渣由固体废弃物安全处置中心处置。

除酚后的废水进入微电解系统, 微电解系统是在含有酸性介质的废水中, 铁碳球中的铁粉和碳粉形成无数个微小的微电池系统, 阳极反应生成的亚铁离子具有较强的还原能力, 可以将硝基物还原为氨基物, 同时亚铁离子被氧化生成的三价铁离子, 具有良好的絮凝吸附活性, 可作为絮凝剂使用。阴极反应生成的新生态的氢和氧可与有机物发生氧化还原反应, 使有机物开环断链, 将大分子有机物降解为小分子有机物。微电解系统对硝基物的还原率可达 80% 以上。

芬顿氧化是本处理工艺中最关键的处理技术。芬顿氧化对某些高浓度化工废水具有良好的去除效果, 苯胺类化合物及其它有机物在芬顿氧化与絮凝的共同作用下继而再被氧化分解, 使废水的 COD 有较大幅度的下降。微电解过程产生的新生态亚铁离子与加入的强氧化剂双氧水形成的 Fenton 试剂具有极强的氧化能力, 可使废水中的苯环会打开, 并使部分有机物矿化, 成为 CO_2 、 H_2O 、 NH_3 等无机物。已有多个工程实例表明, 此法对硝基苯类、苯胺类废水具有非常好的处理效果。废水中的甲苯通过芬顿氧化一部分会被彻底氧化为无机物, 还有一部分甲苯被氧化为可生物降解的苯甲酸。通过微电解、芬顿氧化协同作用, 分解大部分硝基物、胺基物、色度、COD 等污染物。实践表明, 芬顿氧化硝基苯类的去除率在 95% 以上, 硝基酚的去除率在 95% 以上, 甲苯的去除率在 90% 以上, COD 的去除率在 80% 以上。

经上述四道工序处理的硝基甲苯废水与地面冲洗水、初期雨水及厂区生活污水混合后进入生化处理系统。生化系统采用厌氧—好氧处理工艺, 废水中的有机物首先在厌氧条件下得到初步降解, 大分子有机物发生水解和酸化。随后, 厌氧池出水流入好氧池进行好氧生物处理。好氧采用生物接触氧化工艺, 在好氧池内设置组合生物填料, 采用鼓风曝气方式, 风机输出的空气通过微孔曝气系统给填料

区充氧。废水在空气的搅拌下,与填料上的生物膜广泛接触,废水中的有机物被吸附并且被微生物氧化分解,污染物在此阶段得到进一步去处。经生化处理后包括 COD、硝基物、酚类和甲苯等各项指标

均能达到排放标准。脱落的微生物膜经泥水分离后进入污泥干化池,脱水后由固体废弃物安全处置中心处置。

该废水处理工艺流程见图 1。

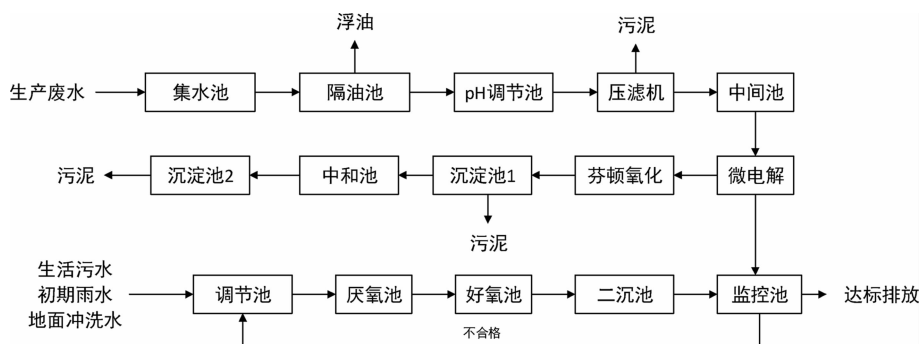


图 1 废水处理工艺流程

(5) 某树脂公司采用酸析+大孔树脂吸附法。酸析后废水调节 pH 后分别进入浙江争光 SD300 大孔树脂吸附柱,流速均为 1BV/h。结果显示,当吸附倍率为 50 时,COD 的去除率为 50%左右,但考虑到采用树脂吸附再生需要用甲醇解析,并且会产生一部分再生废水,后续处理工艺繁琐,因此,大多数情况下不推荐采用树脂吸附处理硝基甲苯废水。

(6) 某环保公司采用光芬顿法处理硝基甲苯废水,详细研究了各因素对光芬顿反应降解硝基甲苯废水的影响。废水进水 COD 值为 9 200 mg/L,硝基苯类化合物含量为 40 mg/L,硝酸钠和硫酸钠盐分含量为 3.2%。研究表明,光照时间和双氧水用量对光芬顿反应降解硝基苯废水中的有机物有显著影响,当光照时间为 30 min,双氧水用量为 3%时,光芬顿反应对硝基苯废水中有机物的去除率可达到 83%,对硝基苯类化合物的去除率可达到 97.5%。pH 值对光芬顿反应降解硝基苯废水中有机物的影响不大,COD 的去除率稳定在 83%~85%之间,硝基苯类化合物的去除率稳定在 97%~99%之间。

3 结束语

硝基甲苯废水处理技术虽然目前已经取得了较大发展,在一定程度上减缓了硝基甲苯废水对环境的污染,但是目前尚未出现具有显著经济和环境优势的突破性技术。

国内外对硝基甲苯废水的处理技术更倾向于将多种水处理技术联合使用,在尽可能充分发挥某一单项水处理技术优点的同时,协同使用各项水处理技

术。例如,以吸附和萃取法为代表的物理处理方法,工艺流程相对简单,投资和运行成本也较低,可作为化学法和生物法的预处理或深度处理手段。生物降解法环境安全性高、运行成本低、操作简便、无二次污染,但因硝基甲苯的生物毒性较强,可将硝基甲苯废水与其他废水混合、稀释或作预处理后再采用此法处理。

从硝基甲苯废水处理的工程应用实例来看,采用物理/化学法+生物法,或将硝基苯废水与其他废水混匀进行综合处理具有较好的应用前景。

参考文献

- [1] 唐萍,周集体,王竞,等. 硝基苯废水治理的研究进展 [J]. 工业水处理, 2003, 23 (3): 16-19.
- [2] Cui S, Liu X Y, Liu Y, et al. Adsorption properties of nitrobenzene in wastewater with silica aerogels. [J]. SCIENCE CHINA Technological Sciences, 2010, 53 (9): 2367-2371. doi: 10. 1007/s11431-010-4047-8.
- [3] 张营,刘思惠,景逵,等. 硝基苯在不同类型土壤中的吸附特性研究 [J]. 广东农业科学, 2013 (4): 137-139.
- [4] 陈宜菲,张二华,陈少瑾,等. FeO 对土壤中硝基苯的还原作用 [J]. 环境保护科学, 2005, 31 (6): 56-58.
- [5] 刘守新,陈曦,张显权. 活性炭孔结构和表面化学性质对吸附硝基苯的影响 [J]. 环境科学, 2008, 29 (5): 1192-1196.
- [6] Hankenson K, Schaeffer D J. Microtox assay of trinitrotoluene, dinitromethyltoluene, and dinitromethylaniline mixtures [J]. Bulletin of Environmental Contamination and Toxicology, 1991, 46 (4): 550-553.
- [7] 赵钰,傅大放,曾苏. 硝基芳香烃废水处理技术研究进展 [J]. 环境污染治理技术与设备, 2002, 3 (5): 31-35.
- [8] 华英杰,王崇太,李天略,等. D301R 树脂对水溶液中硝基苯的吸附性质 [J]. 应用化学, 2011, 28 (9): 1067-1072.
- [9] 林中祥. 萃取法预处理间二硝基苯生产废水 [J]. 环境污染与防治, 2002, 24 (5): 279-281.

- [10] 崔榕, 向夕品, 殷钟意, 等. 固定相络合萃取技术回收处理水中硝基苯 [J]. 工业水处理, 2005, 25 (10): 59-61.
- [11] 陆嘉昂, 管国锋, 姚虎卿. 络合萃取技术在苯胺-硝基苯废水处理中的应用研究 [J]. 江苏环境科技, 2004, 17 (2): 16-17.
- [12] 于桂珍, 靳凛, 陈辽玲. 利用共沸吸附法处理硝基苯废水的研究 [J]. 辽宁城乡环境科技, 2000, 18 (4): 23-27.
- [13] 宋卫健, 谢光炎, 林美强. DSA 类电极催化降解硝基苯及其动力学研究 [J]. 上海环境科学, 2002, 21 (6): 353-355.
- [14] 樊金红, 徐文英, 高廷耀. 催化铁内电解法处理硝基苯废水的机理与动力学研究 [J]. 环境污染治理技术与设备, 2005, 11 (6): 5-9. 樊金红, 徐文英, 高廷耀. 催化铁内电解法处理硝基苯废水的机理与动力学研究 [J]. 环境污染治理技术与设备, 2005, 6 (11): 5-9.
- [15] 余宗学. 利用 Fenton 试剂预处理间二硝基苯生产废水 [J]. 环境污染与防治, 2002, 24 (5): 282-284.
- [16] 童少平, 褚有群, 马淳安, 等. O_3 /UV 降解水中的乙酸和硝基苯 [J]. 中国环境科学, 2005, 25 (3): 366-369.
- [17] 吕坤. 废水中硝基苯的光催化降解实验研究 [J]. 山西建筑, 2010, 36 (11): 183-184.
- [18] 董娅玮, 杨胜科, 王文科, 等. 掺杂纳米 TiO_2 光催化氧化处理硝基苯废水研究 [J]. 人民长江, 2008, 39 (18): 35-37.
- [19] 徐续, 操家顺, 常飞. 铁炭微电解-Fenton 试剂氧化-二级 A/O 工艺处理化工废水工程实例 [J]. 给水排水, 2004, 30 (5): 44-47.
- [20] 李欣, 祁佩时. 铁炭 Fenton/SBR 法处理硝基苯制药废水 [J]. 中国给水排水, 2006, 22 (19): 12-15.
- [21] 王竞, 周集体, 张劲松, 等. 假单细胞菌 JX165 及其完整细胞对硝基苯的好氧降解 [J]. 中国环境科学, 2001, 21 (2): 144-147.

Study on Treatment Technology of Nitrotoluene Wastewater

JIA Jun-fang MAO Bing HAO Zhen HUANG Guo-long JIN Li-cai

(Zhejiang Qicai Environmental Technology Co., Ltd., Shaoxing 312000, Zhejiang China)

Abstract: This paper introduces in detail the nitro toluene waste water treatment technology research, this paper expounds the physical method, chemical method, biological method and a variety of water treatment technology group legal features and the treatment effect of nitrotoluene wastewater, and combining with the engineering case are introduced in detail the multiple single or multiple effect of water treatment technology in the application of nitrotoluene wastewater.

Keywords: nitrotoluene; physical method; chemical method; biological methods

(收稿日期: 2021 年 7 月)

(上接第 56 页)

- [40] Nikolay Cherkasov, Ma'moun Al-Rawashdeh, Alex O Ibadon, et al. Scale up study of capillary microreactors in solvent-free semi-hydrogenation of 2-methyl-3-butyn-2-ol [J]. Catalysis Today, 2016, 273: 205-212.
- [41] Nikolay Cherkasov, Alex O Ibadon, Evgeny V Rebrov. Solvent-free semihydrogenation of acetylene alcohols in a capillary reactor coated with a Pd-Bi/ TiO_2 catalyst [J]. Applied Catalysis A: General, 2016, 515: 108-115.
- [42] Jensen Klavs F. Flow chemistry—Microreaction technology comes of age [J]. AIChE Journal, 2017, 63 (3): 858-869.
- [43] Weiwei Ouyang, Alfonso Yopez, Antonio A Romero, et al. Towards industrial furfural conversion: Selectivity and stability of palladium and platinum catalysts under continuous flow regime [J]. Catalysis Today, 2018, 308: 32-37.
- [44] Conor Waldron, Enhong Cao, Stefano Cattaneo, et al. Three step synthesis of benzylacetone and 4-(4-methoxyphenyl) butan-2-one in flow using micropacked bed reactors [J]. Chemical Engineering Journal, 2019, 377: 119976.

Application of Microreactor in Heterogeneous Catalytic Hydrogenation

SI Yang MING Wei-xing LIU Song GONG Dang-sheng YAN Dong-mao

(Shenyang Research Institute of Chemical Industry Co., Ltd., Shenyang 110021, Liaoning China)

Abstract: Continuous hydrogenation in microreactor can control the reaction conditions precisely, increase yield and selectivity, shorten the reaction time and reduce the separation cost. In this paper, the recent achievements in this field are reviewed, and the common microreactors for continuous hydrogenation are summarized. The advantages, limitations and future development of microreactors for continuous hydrogenation are emphasized.

Keywords: microreactor; continuous flow; heterogeneous hydrogenation; catalytic hydrogenation

(收稿日期: 2021 年 5 月)