

SnO₂-Sb₂O₃-RuO₂/Ti 电极制备及其性能研究

钟登杰, 胡芝悦, 徐云兰

(重庆理工大学, 重庆 400054)

摘要: 采用热分解法制备了 SnO₂-Sb₂O₃-RuO₂/Ti 电极, 并将其用于苋菜红模拟染料废水处理。实验表明电极制备的最佳条件为: 烧结温度为 500 °C, 涂层数为 6 层, $n(\text{Sn}):n(\text{Sb}):n(\text{Ru})=10:1:1$ 。通过 XRD、SEM 和 CV 对电极表面形貌、表面微观结构和电化学性能进行测试, 结果表明: SnO₂-Sb₂O₃-RuO₂/Ti 电极表面晶体为四方金红石结构且晶型单一; 表面晶粒细小平整, 晶粒间结合紧密; 具有较好的电催化活性和较长的强化试验寿命。

关键词: SnO₂-Sb₂O₃-RuO₂/Ti 电极; 制备; 表征; 电催化性能

中图分类号: O646.542

文献标识码: A

文章编号: 1002-185X(2017)08-2294-06

电催化氧化技术用于染料降解, 具有处理效率高, 兼容性强, 环境友好等优点^[1]。该技术的核心是催化电极的研究与制备。近年来, 关于不同电极材料降解有机废水的研究报道较多, 其中包括钛基 DSA 电极^[2], 贵金属铂电极^[3], 新兴的金刚石薄膜电极^[4]及不同电极材料耦合处理技术^[5]。然而电催化氧化技术因为析氧电位低, 副反应多, 能源利用率低及处理成本高等问题而得不到普遍应用。Ti/RuO₂-Sb₂O₃-SnO₂ 电极具有较高的析氧过电位和电催化活性, 并且价格较低^[6]。Ru, Sn 能够与 Ti 基体紧密结合并形成固溶体结构, 可有效地提高电极催化活性及耐腐蚀性能, 在水处理中表现出良好的应用性能, 具有很高的工业应用价值。

陈晟颖曾利用 Sn, Sb, Ru 元素制备出 Ti/RuO₂-Sb₂O₃-SnO₂ 电极, 并成功将其应用于海水析氯^[7], 但将该类电极应用于有机废水处理却鲜见报道。电极中组分 Sb₂O₃ 使槽电压升高从而导致该电极的稳定性及电流效率降低。并且 Sb₂O₃ 中 Sb 呈最高价态, 只能夺得电子使有机物氧化, 而不能给出电子使之还原^[8], 因此降解效率将会受到影响。而 Sb₂O₃ 处于中间价态, 既能夺得电子使有机物氧化, 又能给出电子使之还原, 得失电子的反应均能进行。另外还可以提高 O₂ 的析出电位, 减少副反应的发生, 提高活性自由基向内层扩散的阻力, 从而提高电极的催化活性和稳定性^[9]。因此本研究通过改进前驱体溶液组成及实验条件制备了 SnO₂-Sb₂O₃-RuO₂/Ti 电极, 将其应用于染料废水处理, 优化了制备条件, 并对该电极的表面形貌、涂层的晶体类型, 电化学性能和寿命进行了考察。

1 实验

取 62 mm×70 mm×0.5 mm 钛板分别用 200 目和 600 目粗、细砂纸进行打磨, 直至钛板表面出现金属光泽。自来水清洗后置于质量分数为 10% 的微沸草酸溶液中刻蚀至基板表面出现均匀麻面。超声波清洗 10 min, 置于 1% 的草酸溶液中待用。

SnCl₄·5H₂O、SbCl₃、RuCl₃·xH₂O (37% Ru) 溶于盐酸、乙醇混合溶液中, 配置 Sn=0.5M, $n(\text{Sn}):n(\text{Sb}):n(\text{Ru})=10:1:0.5, 10:1:1, 10:1:1.5$ 的前驱体溶液, 磁力搅拌器上搅拌 30 min, 静置陈化 1 h 后待用。

制备系列 SnO₂-Sb₂O₃-RuO₂/Ti 电极, 焙烧温度分别为 400, 450, 500, 550 °C, $n(\text{Sn}):n(\text{Sb}):n(\text{Ru})=10:1:0.5, 10:1:1, 10:1:1.5$; 涂覆层数分别为 3, 6, 9 层。具体制备工艺: 用毛刷将上述前驱体溶液均匀涂覆在钛基体表面, 80 °C 条件下保温 10 min, 马弗炉中焙烧 10 min, 取出后空冷至室温。如此反复涂刷、烘干、焙烧, 最后一次置于马弗炉中恒温焙烧 1 h。便于电极在高温条件下彻底氧化, 取出后冷却至室温, 得到一系列钛基体表面沉积的复合氧化物电极。

考察 SnO₂-Sb₂O₃-RuO₂/Ti 电极的电催化氧化性能, 本实验以苋菜红 (分子式见图 1) 模拟染料废水的脱色率为评价指标。具体条件为: 电极有效面积为 30 cm², 电流密度为 20 mA/cm², 支持电解质为 Na₂SO₄ (4 g/L), 苋菜红模拟染料废水的初始浓度为 20 mg/L, 实验阳极为自制的 SnO₂-Sb₂O₃-RuO₂/Ti 电极。

收稿日期: 2016-08-20

基金项目: 国家自然科学基金 (21077140); 重庆市科委自然科学基金 (cstc2011jjA20003, cstc2011jjA20011)

作者简介: 钟登杰, 男, 1974 年生, 博士, 副教授, 重庆理工大学化学化工学院, 重庆 400054, E-mail: djzhong@cqut.edu.cn

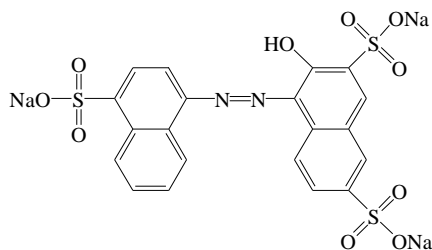


图 1 苋菜红的分子结构式

Fig.1 Molecular structure of Amaranth

晶体结构及组成: 采用日本津岛 Shimadzu XRD-7000X 射线衍射仪测定电极表面晶体结构。测试条件: 辐射源为 Cu 靶, 采用石墨单色器, 管电压为 40 kV, 管电流为 40 mA, 扫描范围为 $10^\circ\sim 60^\circ$, 扫描速度为 $2^\circ/\text{min}$ 。

表面形貌: 采用日本日立 Hitachi S-4800 型扫描电镜。测试条件: 加速电压 5000 V, 减速电压 0 V, 发射电流 9.4 mA。

电化学性能测试: 利用 CHI650E 型电化学工作站对电极进行循环伏安测试, 采取传统的三电极体系, 以自制的 $\text{SnO}_2\text{-Sb}_2\text{O}_3\text{-RuO}_2/\text{Ti}$ 电极为工作电极, 甘汞电极为辅助电极, 钛板为参比电极。电解质溶液为 3% NaCl 溶液和 0.5 mol/L Na_2SO_4 溶液, 扫描电位为 0~1.5 V, 扫描速度为 0.01 V/s, 采样间隔为 0.001 V, 静置时间为 2 s。

强化寿命试验: 本试验以有效面积为 $1\text{ mm}\times 1\text{ mm}\times 0.5\text{ mm}$ 的 $\text{SnO}_2\text{-Sb}_2\text{O}_3\text{-RuO}_2/\text{Ti}$ 电极作为阳极, 钛板为阴极, 极板间距为 1 cm, 电解液为 0.5 mol/L H_2SO_4 溶液, 实验温度保持 40°C 左右, 外加电流密度为 $10\ 000\ \text{A}/\text{m}^2$, 当槽电压高于初期槽电压 5 V 时, 可以认为电极已经完全失效^[10], 其对应的电解反应时间即为阳极涂层的强化电极寿命值。

2 结果与讨论

2.1 电极的电催化性能评价

2.1.1 电极的烧结温度对电催化性能的影响

热处理温度是影响电极电催化性能的重要因素之一, 将直接影响到晶粒成核, 长大速率及晶格的相结构, 进而影响涂层的电催化活性, 真实表面积及涂层的寿命^[11]。不同热加工条件下的 $\text{SnO}_2\text{-Sb}_2\text{O}_3\text{-RuO}_2/\text{Ti}$ 电极处理苋菜红模拟染料废水的脱色效率见图 2: 当煅烧温度低于 500°C 时, 苋菜红模拟染料废水脱色率随着温度的升高而提高, 之后煅烧温度升高, 苋菜红

的脱色率反而下降。主要原因为低温条件下氧化物晶

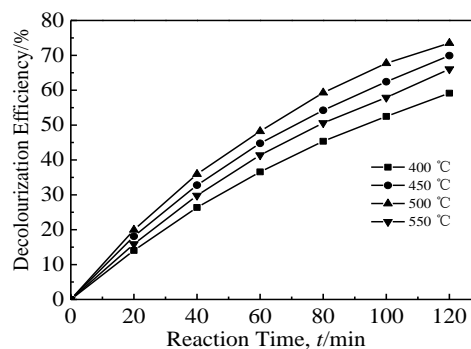


图 2 煅烧温度对脱色效率的影响

Fig.2 Influence of calcination temperature on decolourization efficiency

体结晶度较差, 而温度过高也可能导致氧化物晶型发生变化, 对电催化氧化过程产生消极影响。图 2 中电极电催化脱色效率顺序为 $500^\circ\text{C} > 450^\circ\text{C} > 550^\circ\text{C} > 400^\circ\text{C}$, 因此选择最佳的制备温度为 500°C 。

2.1.2 涂覆层数对电极电催化性能的影响

图 3 为不同涂覆层数与苋菜红脱色率之间的关系。由此可以看出, 随着涂层层数增加, 苋菜红脱色率呈现出先增加后减小的趋势, 当电极涂层层数达到 6 层时, 苋菜红脱色效率达到最大。这是由于电极涂覆层数较少时, 钛基板表面的活性位点覆盖率较低, 因此脱色效率较低; 当涂覆层数较大时, 涂层由与钛基体之间契合转移到活性涂层之间的契合, 导致活性涂层表面结构发生变化, 表面活性位点减少, 将间接导致苋菜红脱色率下降; 另外结合电极制备工艺及成本等问题, 活性涂层的层数不能过多。在本实验中, 选择最佳电极制备层数为 6 层。活性涂层的涂覆层数在一定的范围内对苋菜红脱色效率影响并不大, 因此可以推断电极涂覆量并不是影响苋菜红电解效率的关键因素。

2.1.3 Ru 添加比例对电极电催化性能的影响

RuO_2 是重要的活性组分, Ru 添加比例直接影响到电极的电催化能力, 同时, Ru 又是一种良好的分散剂, 可以增强电极的抗烧结能力^[8]。图 4 为 Ru 含量对苋菜红脱色效果的影响, 一定范围内, 苋菜红脱色率随 Ru 含量增大而增大, 并且在 Sn:Sb:Ru=10:1:1 的条件下达到最大, 继续增加 Ru 元素比例, 苋菜红脱色率反而下降, 这是因为 Ru 含量过低时, Ru 元素不能达到掺杂的固溶极限; 单位面积上的活性位点不能达到饱和状态。当 Ru 含量较高时, Ru 元素会破坏现有

结构的完整性和有序性，或者 Ru 元素直接以 RuO₂ 晶体形式析出，覆盖在活性涂层的表面，导致析氧过电位降低，副反应反而增加，造成脱色效率下降。

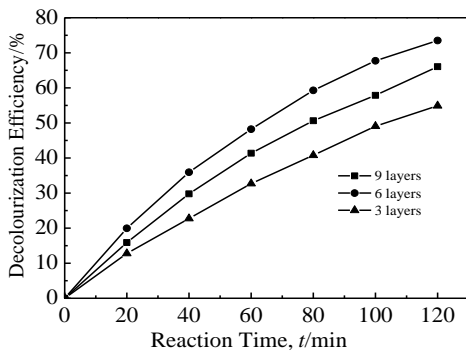


图 3 涂覆层数对脱色效率的影响

Fig.3 Influence of depositing layers on decolourization efficiency

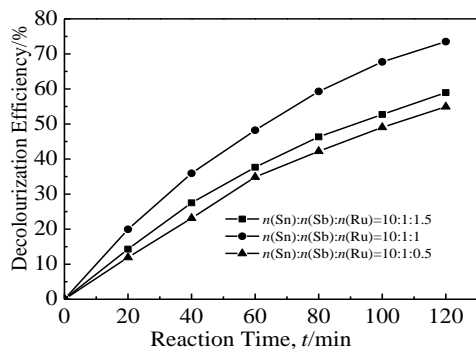


图 4 Ru 添加比例对脱色效率的影响

Fig.4 Influence of the doping ratio of Ru on decolourization efficiency

通过上述实验可知：SnO₂-Sb₂O₃-RuO₂/Ti 电极的最佳制备条件为：煅烧温度为 500 °C，涂覆层数为 6 层，Sn:Sb:Ru 比例为 10:1:1。

2.2 电极的表面形貌与电化学性能测试

2.2.1 电极涂层的组成及晶体结构分析

图 5 为不同煅烧温度条件下的 SnO₂-Sb₂O₃-RuO₂/Ti 电极 XRD 图谱。随着煅烧温度的升高，RuO₂ 衍射峰强度逐渐增强，峰形略有宽化，并且“杂峰”数目逐渐减少，当温度达到 500 °C 时尤为明显，说明 500 °C 条件下有利于氧化物晶体形成。当煅烧温度继续升高至 550 °C 时，衍射峰数量急剧增加，说明该条件下出现了不同种类的晶体。所以煅烧温度为 500 °C 时，所得的氧化物晶粒更细小，晶型更加单一。因此

500 °C 为最佳煅烧温度，该结论与上述不同煅烧温度条件下电极处理苋菜红模拟染料废水的结果一致。

观察最佳热处理条件下 XRD 图谱可以发现：图谱中出现了 Ti 衍射峰，这是由于活性涂层的厚度较

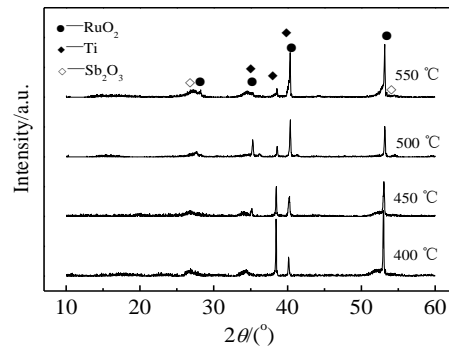


图 5 不同煅烧温度下 SnO₂-Sb₂O₃-RuO₂/Ti 电极的 XRD 图谱
Fig.5 XRD patterns of SnO₂-Sb₂O₃-RuO₂/Ti electrodes at different temperatures

薄，X 射线强度很大，能够直接穿透活性涂层而达到基体表面。图谱中并没有出现 TiO₂ 衍射峰，说明在该处理条件下可以避免形成高阻型 TiO₂。在 27.32°，35.18°，40.28°，53.1° 位置分别对应着 RuO₂ 的 (110)，(101)，(200)，(211) 晶面峰，在 27.689°，54.539° 处对应着 Sb₂O₃ 的晶面峰。但衍射峰位置却略有偏移，主要原因除涂层中各氧化物衍射峰发生叠加外，Sn，Ti，Ru 等元素彼此间晶格数非常接近，Ru⁴⁺ (0.067 nm)，Ti⁴⁺ (0.068 nm) 等元素在高温条件下能够发生置换，沉积等过程而掺杂到 Sn⁴⁺ (0.071 nm) 晶格中与 Sn 形成固溶体^[12,13]。这将导致晶格发生畸变，存在缺陷的晶体能够较容易地进行电子得失与转移反应，这也是催化电极具有活性的主要原因之一。关于 SnO₂ 衍射峰并没有被完整地检测出来，其主要原因为：(1) Sn，Sb，Ru 等元素在煅烧过程中得到了充分融合，以固溶体的形式出现；(2) 在热加工过程中，有大部分 Sn 元素发生挥发^[14]。通过 Debye-sherrer (德拜-谢乐) 公式及 XRD 分析结果可以得出：活性涂层中各氧化物的平均粒径均处于纳米级，因此采用该方法制备的活性涂层可以得到纳米涂层。

2.2.2 电极表面形貌分析

图 6 为最佳焙烧条件下电极的表面 SEM 图。整个电极表面呈现出凹凸不平的沙粒状结构，并没有出现热分解过程中由于活性涂层与基体之间热应力不同而造成的高密度碎片结构。只是在局部区域出现了零星

的“裂缝”，说明涂层间具有较强机械楔力，该结构减少了涂层脱落几率，有效阻止新生态氧原子的扩散，减少对活性涂层的腐蚀，利于延长电极寿命。凹凸不平的结构及细小的裂纹增加了电极表面的缺陷，从而增加了活性位的产生及暴露机会，对电催化活性的提

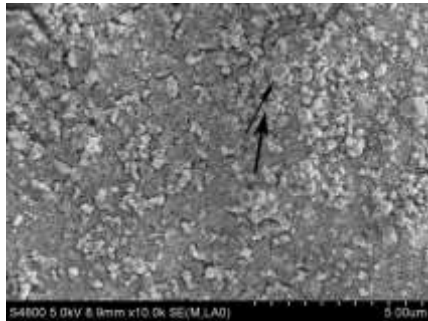


图 6 SnO₂-Sb₂O₃-RuO₂/Ti 电极形貌

Fig.6 SEM image of SnO₂-Sb₂O₃-RuO₂/Ti electrode

高十分有利。由图 5 可知涂层主体为 Sn, Sb, Ru, Ti 等形成的氧化固溶体。由于各元素的固溶极限并不能达到 100%，因此会在固溶体之外析出单一的金属氧化物晶体，电极表面所分布的圆珠状突起，就可能是析出的 RuO₂ 晶体^[15]。活性涂层表面的晶体粒径大小不一，这和 XRD 得出的结论相吻合。

2.2.3 循环伏安曲线

图 7 为 SnO₂-Sb₂O₃-RuO₂/Ti 电极在 3% NaCl 和 0.5 mol/L Na₂SO₄ 溶液内伏安循环曲线，5 次循环伏安曲线基本重合，表明该电极具有较好的电化学稳定性。

图 7a 为 SnO₂-Sb₂O₃-RuO₂/Ti 电极在 NaCl 溶液中的循环伏安曲线，该曲线具备活 Ru 元素与贵金属氧化物阳极涂层典型的循环伏安曲线特征，扫描过程中响应电流 *i* 为电化学反应电流 *i_r* 和双电层充电电流 *i_c* 之和，即 $i=i_c+i_r$ ^[16,17]。正向扫描过程中，在 0~1.1 V 范围内，呈现出惰性行为，说明电极表面并没有发生任何与析氯或析氧有关的反应，即处于双电层区。曲线在 1.1 V 处开始出现转折，说明吸附于电极表面的 Cl⁻发生了明显的充放电过程。电极表面发生了析氯反应，方程式为： $2Cl^- - 2e \rightarrow Cl_2$ ，该电极电势和理论的析氯电位 1.13 V 十分接近^[14]，析氯过电位较低，主要原因是活性涂层中的 RuO₂ 具有很高的析氯性能，反向扫描时，在 1.0 V 位置上出现 1 个还原峰，这可能是在该电位条件下发生了活性氯的还原反应。

图 7b 曲线为电极在 0.5 mol/L Na₂SO₄ 溶液中伏安循环曲线，扫描过程既没有出现氧化峰也没有出现还

原峰，在大约 1.2 V 位置上出现了 1 个转折点。这可能是在电极表面发生了析氧反应，方程式为： $4H_2O - 4e \rightarrow O_2 + 4OH^-$ 。然而与中性溶液内理论上的析氧电位 0.57 V 相比，具有较大的偏差，可推断该电极具有较高的析氧过电位。这主要与 Sn, Sb 元素所表现出的高氯氧选择性有关。

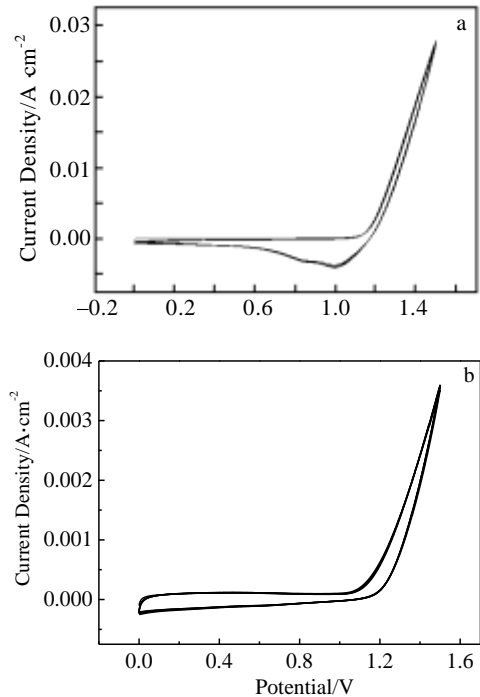


图 7 SnO₂-Sb₂O₃-RuO₂/Ti 电极在 3% NaCl 和 0.5 mol/L Na₂SO₄ 溶液中的循环伏安曲线

Fig.7 Cyclic voltammograms of SnO₂-Sb₂O₃-RuO₂/Ti electrode obtained in 3% NaCl (a) and 0.5 mol/L Na₂SO₄ solution (b)

曲线的积分面积即代表伏安电量，伏安电量是表征涂层表面活性位点数量的参数，其大小反映了阳极涂层催化活性，析氯曲线积分面积约为 2.57 mC/cm²，而析氧涂层的积分面积仅为 0.163 mC/cm²，对比可知该电极的析氯活性远大于析氧活性。

2.2.4 强化电极寿命试验

一般情况下，电极工业寿命可达到几个月甚至几年。研究电极的实际使用寿命周期往往较长，由于电极在强酸和大电流密度条件下会呈现出不稳定的状态，电极失效时槽电压在短时间内会急剧升高。因此可通过考察电极在强酸环境，高电流密度条件下电极的寿命判断其失效规律。

图 8 为强化电极寿命测试中槽电压变化曲线，电解初始阶段，槽电压出现了小幅度下降，主要原因是电解液渗入电极表面的缝隙中，电极有效面积增加，电极表面真实的电流密度减小。试验中期槽电压出现小幅度波动但基本保持稳定，主要原因是电极表面析氧导致了电极表面电压出现波动。试验后期槽电压在短时间内迅速升高，直至完全失效。强化试验过程中电极的寿命为 30 h^[18]。结合图 6 与图 9 测试前后电极

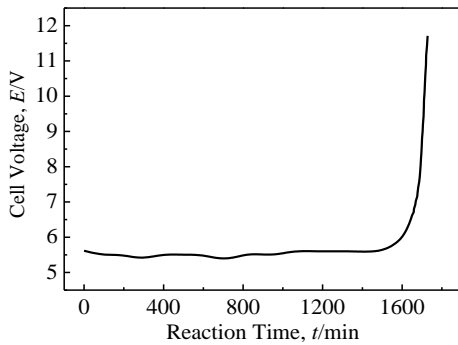


图 8 SnO₂-Sb₂O₃-RuO₂/Ti 电极强化寿命测试 E-t 曲线

Fig.8 E-t curve of SnO₂-Sb₂O₃-RuO₂/Ti electrode acceleration life time test

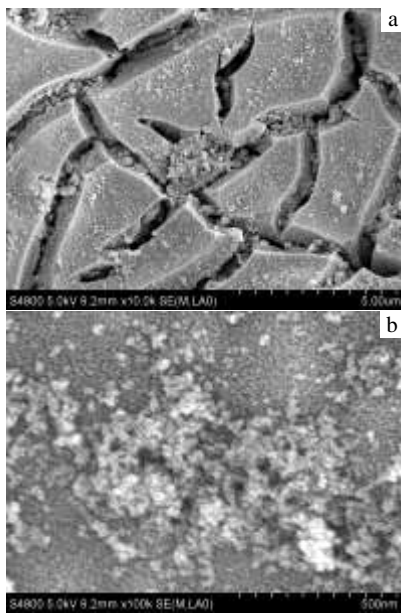


图 9 失效后 SnO₂-Sb₂O₃-RuO₂/Ti 电极的 SEM 照片

Fig.9 SEM images of SnO₂-Sb₂O₃-RuO₂/Ti electrode after acceleration life time test

形貌可以看出：活性涂层因过度电化学反应而引起了涂层结构的坍塌。图 9a 中，电极表面“龟裂纹”拓宽、

加深，电极表面出现了大面积纵横交错的沟壑，被分割为“孤岛”状并且“孤岛”呈现出“膏状”结构；图 9b 中，部分电极表面已经出现了裸露的钛基板，综合图 8 与 9 可得出造成 SnO₂-Sb₂O₃-RuO₂/Ti 电极失效的主要原因有：（1）电极表面的龟裂裂缝有利于电解液的渗入，成为该电极抗失效过程中最薄弱环节，电解生成的活性氧沿龟裂缝隙直接渗透到钛基体表面，进入金属晶格后可取代钛原子或占据金属空隙，形成畸变的 n 型混合晶，致使电阻增大从而导致电极失效^[19]；（2）电流边缘效应导致电流在电极表面分布不均，直接加速了电极部分涂层的剥落和溶解；（3）析氧、析氯等反应加速了活性涂层内部气体的生成、馈灭过程，导致涂层的机械剥落。

3 结 论

1) 采用热分解法制备了 SnO₂-Sb₂O₃-RuO₂/Ti 电极，优化的制备条件为：煅烧温度为 500 °C，涂覆层数为 6 层，n(Sn):n(Sb):n(Ru)=10:1:1。

2) 电极表面龟裂程度低，氧化物涂层晶粒结构细小，晶粒间结合紧密且晶体类型单一，具有较高的析氧过电位。将其应用于苋菜红染料废水处理，处理 120 min 后苋菜红脱色率可以达到 70% 以上。

参考文献 References

[1] El-Ashtoukhy E S Z, Amin N K. *Journal of Hazardous Materials*[J], 2010, 179(1-3): 113

[2] Song S, Fan J Q, He Z Q et al. *Electrochimica Acta*[J], 2010, 55(11): 3606

[3] Tavares M G, Silva L V A, Solano A M S et al. *Chemical Engineering Journal*[J], 2012, 204-206: 141

[4] Petrucci E, Palma L D, Lavecchia R et al. *Journal of Industrial and Engineering Chemistry*[J], 2015, 26: 116

[5] Zhang L C, Xu L, He J et al. *Electrochimica Acta*[J], 2014, 117: 192

[6] Mao X H, Tian F, Gan F X et al. *Russian Journal of Electrochemistry*[J], 2008, 44(7): 802

[7] Chen Shengying(陈晟颖). *Thesis for Master*(硕士论文)[D]. Hangzhou: Zhejiang University, 2011

[8] Liu Chunqian(刘春前). *Thesis for Master*(硕士论文)[D]. Hangzhou: Zhejiang University of Technology, 2009

[9] Liang Zhenhai(梁镇海), Sun Yanping(孙彦平). *Journal of Inorganic Materials*(无机材料学报)[J], 2001,16(1): 183

[10] Jia Guangpeng(贾广鹏). *Thesis for Master*(硕士论文)[D]. Dalian: Dalian Maritime University, 2010

- [11] Li Shanping(李善评), Hu Zhen(胡 振), Cao Hanlin(曹翰林). *Journal of the Chinese Society of Rare Earths*(中国稀土学报)[J], 2008, 26(3): 291
- [12] Hu Xinfu(胡新发), Liu Quanbing(刘全兵), Liao Shijun(廖世军). *Materials Protection*(材料保护)[J], 2008, 41(8): 41
- [13] Zhang Qiang(张 强), Yao Zhangquan(姚章权), Zhou Rong(周 蓉) *et al. Acta Chimica Sinica*(化学学报)[J], 2012, 70(20): 2149
- [14] Chen S Y, Zheng Y H, Wang S W *et al. Chemical Engineering Journal*[J], 2011, 172(1): 47
- [15] Ding Haiyang(丁海洋), Feng Yujie(冯玉杰), Lv Jiangwei(吕江维) *et al. Chinese Journal of Analytical Chemistry*(分析化学)[J], 2007, 35(10): 1395
- [16] Wang Ke(王 科), Han Yan(韩 严), Wang Juntao(王均涛) *et al. Journal of Electrochemistry*(电化学)[J], 2006, 12(1): 74
- [17] Jia Zheng(贾 铮), Dai Changsong(戴长松), Chen Ling(陈玲). *Electrochemical Measurement Methods*(电化学测量方法)[M]. Beijing: Chemical Industry Press, 2006: 124
- [18] Liu Xiaojun(刘晓军), Liu Guichang(刘贵昌). *Rare Metal Materials and Engineering*(稀有金属材料与工程)[J], 2012, 41(1): 54
- [19] Yao Shudian(姚书典), Shen Jianian(沈嘉年), Sun Juan(孙娟). *Rare Metal Materials and Engineering*(稀有金属材料与工程)[J], 2006, 35(12): 1916

Preparation and Properties of SnO₂-Sb₂O₃-RuO₂/Ti Electrode

Zhong Dengjie, Hu Zhiyue, Xu Yunlan

(Chongqing University of Technology, Chongqing 400054, China)

Abstract: SnO₂-Sb₂O₃-RuO₂/Ti thin film electrode was prepared by a thermal decomposition method and it was used to treat Amaranth dye simulated wastewater. The decolourization efficiency of amaranth was studied. Results show that the optimal operating conditions of the electrode are as follows: the sintered temperature 500 °C, the optimal coating layer 6, and the coating oxides proportion $n(\text{Sn}):n(\text{Sb}):n(\text{Ru})=10:1:1$. The surface morphology, microstructure, electrochemical and accelerated test indicate that the surface of the SnO₂-Sb₂O₃-RuO₂/Ti electrode has the quartet rutile structure with single crystal form, good adhesion, low porosity and high catalytic-activity and a long service-life.

Key words: SnO₂-Sb₂O₃-RuO₂/Ti electrode; preparation; characterization; electro-catalytic property

Corresponding author: Xu Yunlan, Ph. D., Associate Professor, School of Chemistry and Chemical Engineering, Chongqing University of Technology, Chongqing 400054, P. R. China, E-mail: xyunlan@cqut.edu.cn