



防蝕工程學會

防蝕工程

期刊網址：<http://www.anticorr.org.tw>



10.6376/JCCE.202003\_34(1).0004

## 應用氫氧化鈉活化多壁奈米碳管複合碳氈電極之性能研究 Study on the performance of multi-wall carbon nanotube composite carbon felt electrode activated by sodium hydroxide

王宜達<sup>\*1</sup>、游承諭<sup>1</sup>

Yi-Ta Wang <sup>\*1</sup>, Cheng-Yu Yu <sup>1</sup>

### 中文摘要

電-芬頓(Electro-Fenton)系統為處理有機汙廢水最有效的高級氧化程序；燃料電池陽極產電，陰極結合電-芬頓系統並具系統自我保持之功效，而電極材料性能為影響效能之重要因素，可透過表面修飾進行優化。本研究以氫氧化鈉(NaOH)對奈米碳管進行活化處理，冀能製備不亞於石墨烯性能之電極材料。實驗包含：(1) 過氧化氫產能評估；(2) 接觸角量測；(3) 傅立葉轉換紅外線光譜量測；(4) 掃描式電子顯微鏡觀察；(5) 電-芬頓系統脫色試驗。

顯示，經活化後奈米碳管產生似石墨烯片狀結構，同時含氧官能基與親水性皆能獲得提升，其響應電流為  $1.30 \text{ mA/cm}^2$ ；陰極系統染劑脫色效能相較於活化前，其反應速率可提升 2.16 倍，證實奈米碳管經活化後可有效提升電-芬頓系統處理效能，具燃料電池材料發展之潛力。

**關鍵詞：**電-芬頓、奈米碳管、氫氧化鈉、電極、活化處理。

### Abstract

Electro-Fenton system is the most effective advanced oxidation process for the treatment of organic wastewater. Anode of fuel cell produces electricity and the cathode combines with the Electro-Fenton system possess the function of self-maintenance. The performance of the electrode affects the efficiency of the system, and it can be optimized by surface modification. In this study, sodium hydroxide (NaOH) was used to activate the carbon nanotubes (CNT) in order to prepare electrode with a performance as good as graphene (GR). The experiment includes: (1) The production of  $\text{H}_2\text{O}_2$ ; (2) Contact angle measurement; (3) Fourier transform infrared spectrum measurement; (4) Scanning electron microscope observation; (5) The efficiency for Electro-Fenton

收到日期：108年10月21日

修訂日期：108年12月15日

接受日期：109年01月10日

<sup>1</sup> 國立宜蘭大學機械與機電工程學系

<sup>1</sup> Department of Mechanical and Electro-Mechanical Engineering, National Ilan University

\*聯絡作者：ytwang@niu.edu.tw

system.

It was shown that the carbon nanotubes exhibited sheet-like structures after activation, and oxygen-containing functional groups and hydrophilicity property were improved; the response current was 1.30 mA/cm<sup>2</sup>; the efficiency of the cathode system was compared with that before activation, its reaction rate can be increased by 2.16 times. In summary, the activated carbon nanotubes can effectively improve the processing efficiency in the electro-Fenton system, which has the potential for the development of fuel cell.

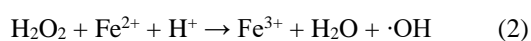
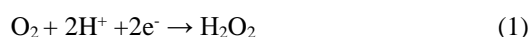
**Keywords:** Electro-Fenton; Carbon nanotubes; Sodium hydroxide; Electrode; Activation.

## 1. 前言

### 1.1 研究背景與目的

近年來能源問題與工業污染受到各方學者所關注，而工業排放大量的廢水及有機汙染物，導致其透過水循環進入食物鏈中，逐漸影響著生物與人類的飲食健康，成為環境的一大浩劫。

芬頓反應(Fenton)為處理汙廢水之高級氧化程序(Advanced Oxidation Processes, AOPs)，其結合燃料電池可具有陽極產電暨陰極淨化汙染物之功效。然而芬頓反應過程中會產生大量的鐵汙泥，因此，透過改良後便發展為電-芬頓反應(Electro-Fenton, EF)，而二次反應接受電子還原成二價鐵離子(Fe<sup>2+</sup>)，能減少鐵汙泥產生，其化學反應式如(1)~(3)所示<sup>[1]</sup>。電極材料為系統降速率之主要影響因素，而材料的選用指標為良好的耐蝕性、導電性、穩定性及高比表面積等<sup>[2]</sup>。

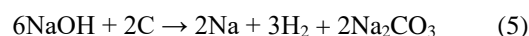


### 1.2 研究動機

目前電-芬頓系統最常使用之陰極材料為碳氈(Carbon Felt, CF)<sup>[3]</sup>，其有著良好化學穩定性與抗氧化能力，為電-芬頓法之良好電極；若透過表面改質以改善其導電性極比表面積，可提升其電極氧化還原反應活性，進一步優化系統之運行效能。多壁奈米碳管(Multi-walled Carbon Nanotube, MWCNT)與石墨烯(Graphene, GR)皆具優異電導性及耐蝕性等優點，廣泛用於電化學電

極塗層之改質；Wang 等人<sup>[4]</sup>透過石墨烯及奈米碳管進行碳氈表面之修飾處理，發現石墨烯相較於奈米碳管有較高之比表面積(Specific Surface Area, SSA)，促使其於三極式電-芬頓系統中可獲得較高之染劑脫色效能。Albero 等人<sup>[5]</sup>亦指出，使用石墨烯作為觸媒應用於燃料電池中，可改善其氫離子吸附特性，使燃料電池進行反應時能獲得良好之質傳效果。然而，高品質之石墨烯材料其成本相對昂貴，不易於大量製造與應用。

相關文獻<sup>[6-8]</sup>指出若透過氫氧化合物對奈米碳管進行活化處理，於高溫時因鉀(K)、鈉(Na)原子對奈米碳管發生化學嵌入作用(Etching)，促使奈米碳管之管壁生成不同尺寸之微孔結構，其可改變奈米碳管之表面形貌及比表面積。本研究透過氫氧化鈉(NaOH)進行活化處理，並藉由浸漬法(Dip-coating)將經活化之奈米碳管附著於碳氈電極表面，藉此改善電極材料其比表面積及親水性，以製備電化學特性不亞於石墨烯複合電極材料。氫氧化鈉活化奈米碳管之反應機制，如式(4)、(5)所示<sup>[9]</sup>。



## 2. 實驗方法

### 2.1 實驗架構

本研究分別將未活化之奈米碳管(CNT)、經活化之奈米碳管(ACNT)與石墨烯(GR)複合於碳氈基材，作為電-芬頓系統之陰極電極並進行性能測試，以探討奈米碳管經活化後對系統之優化

效果。實驗包含：(1) 電極過氧化氫生成能力之評估；(2) 接觸角量測儀檢測電極之親水性；(3) 傅立葉轉換紅外線光譜儀鑑定電極表面之含氧官能基；(4) 掃描式電子顯微鏡觀察電極表面形貌；(5)電-芬頓系統脫色效率試驗系統之染劑降解效能。實驗流程圖如圖 1 所示。

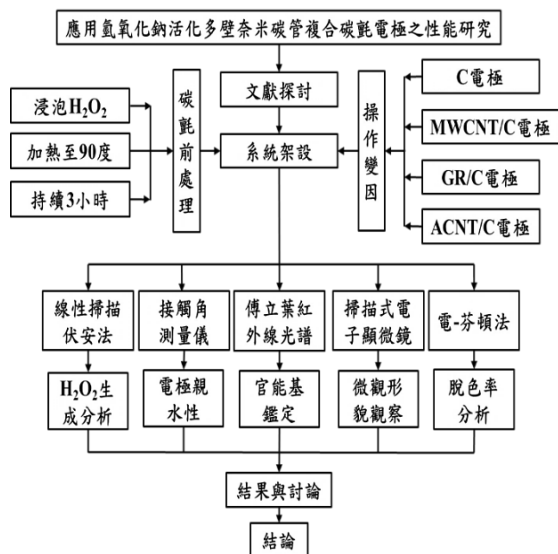


圖 1 實驗流程圖。  
Figure 1 Experimental flowchart.

## 2.2 碳氈基材前處理

碳質材料需進行前處理以減少內部雜質對實驗結果之影響，首先將碳氈浸泡於重量比 9 : 1 之去離子水與過氧化氫(H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>)混合液中，並隔水加熱至 90 °C 持續 3 小時；接著進行超音波震盪清洗，而後使用真空烘箱 200 °C 烘烤 7 小時，以去除殘留之過氧化氫，即完成碳氈基材之前處理。

## 2.3 活化奈米碳管之粉末製備

首先將奈米碳管與氫氧化鈉以重量比 1 : 4 進行混合，將其置放於水平管式爐中，通入氫氣 200 sccm，以升溫速率每分鐘 10 °C 加熱至 750 °C，並恆溫 1 小時，完成活化程序。待活化粉末爐冷至室溫後，藉由去離子水與氯化氫

(HCl)將其洗滌至酸鹼值為中性之溶液，而後將溶液透過離心機分離 ACNT 粉末與雜質；最後將其粉體進行 200 °C 乾燥 24 小時，即完成本實驗之 ACNT 粉末製備。

## 2.4 電極製備

首先利用精密微量天秤量取 0.025 公克的 MWCNT、GR 及 ACNT 粉末，分別加入 N-甲基吡咯烷酮溶劑中攪拌均勻，即完成本研究之漿料。而後，以浸漬法將電極置於漿料中，重複進行三次後，以製備多壁奈米碳管、經 NaOH 活化之奈米碳管及石墨烯複合電極 (MWCNT/C、ACNT/C 及 GR/C)，並放入真空烘箱於 200 °C 烘烤 7 小時使粉末穩固附著於碳氈基材表面，待爐冷至室溫後取出，即完成本研究之複合電極。

## 2.5 過氧化氫產能評估

為評估經改質碳氈電極之過氧化氫(H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>)生成能力，本研究先以線性掃描伏安法(Linear Sweep Voltammetry, LSV)分析電極之氧氣還原反應(Oxygen Reduction Reaction, ORR)活性，實驗調配 0.1 M 硝酸鉀(KNO<sub>3</sub>)水溶液，並使用 0.1 M 硝酸(HNO<sub>3</sub>)將酸鹼值調配至 3.0，以作為本研究之場域。實驗為三極式系統配置，分別架設銀/氯化銀(Ag/AgCl)參考電極、白金片(Pt)對極與工作電極，實驗前以流量為 150 sccm 之純氧曝氣 10 min；透過電化學工作站進行動電位掃描，掃描範圍為 0 至 -1 V，掃描速率則以 0.01 V/s 進行掃描。實驗後續藉由比色法(Colorimetric method)量測各電極其過氧化氫(H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>)生產量，以 5 % 之硫酸鈦溶液(Titanium (IV) sulfate, Ti(SO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>)為檢測試劑；將其滴定於反應溶液中，並使用可見光分光光度計進行吸光值量測，而後以檢量線(Calibration curve)擬合各電極之過氧化氫(H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>)產量，其中可見光分光光度計之波長設定為 410

nm<sup>[10]</sup>。

## 2.6 接觸角量測

接觸角(Contact Angle)為衡量材料本身親水性能之重要指標；其中，越小之接觸角代表其具有越佳之親水性；本實驗使用接觸角分析儀於電極上滴落 10  $\mu\text{L}$  之蒸餾水，並於不同位置重複進行 5 次，以檢測電極表面之接觸角。

## 2.7 傅立葉轉換紅外線光譜儀

本實驗藉由傅立葉紅外光譜 (Fourier Transform Infrared Spectroscopy, FTIR)，針對奈米碳管粉體活化與否以檢測表面之含氧官能基；紅外線掃描區間為  $4000\text{ cm}^{-1} \sim 800\text{ cm}^{-1}$ 。

## 2.8 掃描式電子顯微鏡

於實驗進行前，先將經改質之電極以碳膠黏著於載台上，而後透過掃描式電子顯微鏡 (Scanning Electron Microscope, SEM) 之二次電子成像 (Secondary Electron Image, SEI) 進行拍攝，其掃描電壓設定為 20 kV，以觀測改質電極表面形貌。

## 2.9 電-芬頓系統脫色效率試

本實驗場域為 0.1 M 硝酸鉀( $\text{KNO}_3$ )水溶液作為系統反應之電解質，並於反應槽中加入 20 ppm 之七水硫酸亞鐵( $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ )作為反應之鐵源，滴定 5 ppm 之羅丹明 B (Rhodamine B, RhB) 染劑作為系統之檢測試劑，並透過電化學工作站提供電-芬頓系統所需之運作電壓，同時藉由分光光度計以吸收波長 550 nm 量測反應溶液吸光值，藉此分析不同複合電極之染劑脫色效能。圖 2 為電-芬頓場域架設圖，而實驗過程中使用分光光度計每 3 min 量測一次吸光值，持續 30 min。後續以一階動力學方程式(first-order kinetics)進行擬

合，以檢測不同電極之反應速率，如方程式(6)所示，其中  $k$  為反應速率( $\text{cm}^{-1}$ )。

$$\ln\left(\frac{[\text{Rh B}]}{[\text{Rh B}]_0}\right) = -kt \quad (6)$$

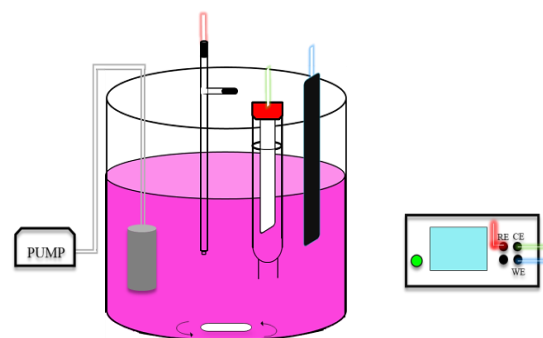


圖 2 電-芬頓場域架設圖。  
Figure 2 Schematic diagram of the Electro-Fenton reaction principle.

## 3. 結果與討論

### 3.1 過氧化氫產能評估

本研究透過線性掃描伏安法測得系統電位-電流曲線，以進行電極其響應電流及過氧化氫生成能力量測。圖 3 為各電極之線性掃描伏安曲線，相關文獻指出以碳質材料為電-芬頓系統之陰極電極，於 -0.6 V 為最合適之工作電位<sup>[11]</sup>；而表 1 為各電極於 -0.6 V 之響應電流及過氧化氫 ( $\text{H}_2\text{O}_2$ ) 生產量。其中奈米碳管與石墨烯複合電極之響應電流值分別為  $0.92\text{ mA/cm}^2$  與  $1.92\text{ mA/cm}^2$ ，而經活化之奈米碳管複合電極為  $1.30\text{ mA/cm}^2$ ，且均優於碳氈基材之  $0.32\text{ mA/cm}^2$ 。經比色法測試後，顯示電極之過氧化氫( $\text{H}_2\text{O}_2$ )產量與響應電流呈正相關，且經活化後之奈米碳管複合電極其過氧化氫生成量為  $0.56 \pm 0.03\text{ mM}$ ，相較於碳氈基材及奈米碳管複合電極，可提升達 64.7 % 及 30.2 %。實驗結果佐證 Wang 等人<sup>[4]</sup>之研究成果，響應電流越大代表系統之過氧化氫生產量越高，而較高之過氧化氫產量，則能使系統整體反應效能提升。

顯示，電極經表面修飾可顯著改善其響應電流值，進而提高過氧化氫生產量。其中奈米碳管透過活化處理之響應電流值相較於未活化前可提升 1.42 倍，證實經活化程序可供其過氧化氫生成效率獲得提升。

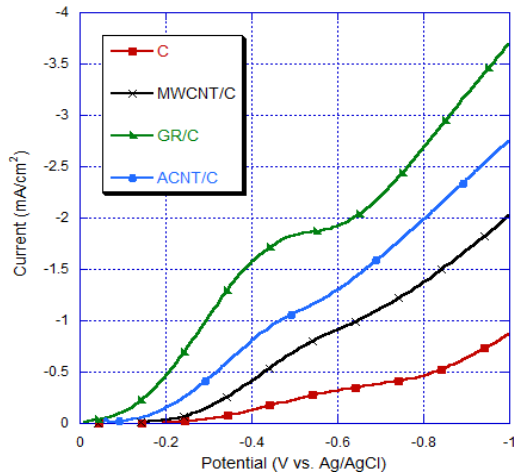


圖 3 不同電極之線性掃描伏安曲線圖。  
Figure 3 The linear sweep voltammetry curve of different electrodes.

表 1 不同電極之響應電流與過氧化氫產量數值表。  
Table 1 The response current and production of hydrogen peroxide (H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>) for each electrodes.

陰極電極	響應電流 (mA/cm <sup>2</sup> )	過氧化氫產量 (mM)
C	-3.21	0.34 ± 0.02
MWCNT/C	-9.16	0.43 ± 0.02
GR/C	-19.21	0.67 ± 0.03
ACNT/C	-13.00	0.56 ± 0.03

### 3.2 接觸角量測

電極表面親水性決定其與反應溶液之降解反應速率，親水材料可增大化學反應面積；實驗結果如圖 4 所示，其中未修飾之電極水滴接觸角為 140.8°；而奈米碳管與石墨烯複合電極水滴接觸角分別為 129.5°與 137.9°；經活化之奈米碳管複合電極水滴接觸角為 118.6°，具有最佳親水性。Wang 等人<sup>[12]</sup>之研究中，透過碳氈經活化處理

後，因含氧官能基引入(introduced)碳氈表面，促使電極親水性獲得改善之研究成果，其具有相近之趨勢。有別於 MWCNT 圓柱狀結構，亦即不同之表面纖構有相對應之接觸角；Kozbial 等人<sup>[13]</sup>研究指出，石墨烯本質上為親水材料，但由於其易吸附空氣中之烴類污染物，因此轉為疏水。

綜上，經不同材料複合電極其親水性均優於碳氈基材，濕潤性皆得到提升，其中經活化之奈米碳管具複合電極具有最佳之親水性。

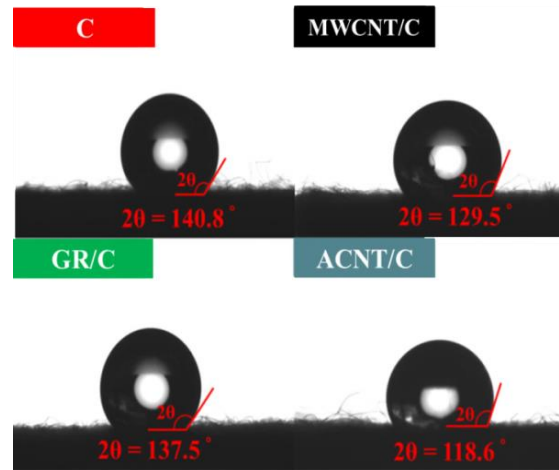


圖 4 不同電極之接觸角量測圖。  
Figure 4 The image for contact angle of different electrodes.

### 3.3 傅立葉轉換紅外線光譜儀

本研究以傅立葉轉換紅外線光譜儀 (FTIR) 檢測未經活化前之多壁奈米碳管 (MWCNT)，與經氫氧化鈉活化之奈米碳管 (ACNT) 其表面含氧官能基訊號，其結果如圖 5 所示。結果顯示，經活化後奈米碳管表面可於 3376 cm<sup>-1</sup>、1369 cm<sup>-1</sup> 處可檢測出特徵峰，分別為羥基 (Hydroxyl, -OH) 與羰基 (Carbonyl, C=O)。Dai 等人<sup>[14]</sup>研究指出，透過氫氧化鈉活化 CNT 可增強官能基之峰值強度。Le 等人<sup>[15]</sup>研究指出，含氧官能基 O-H，可使水溶液易於吸附，促進電極其親水性獲得改善。根據 3.2 章節之實驗結果，活化後之奈米碳管其含氧官能基生成可促使電極之親水性獲得改

善；另外，Mousset 等人<sup>[16]</sup>研究亦指出，碳質材料表面若具有含氧官能基(C=O)可提升氧氣還原反應(ORR)進行，進一步提供過氧化氫生成之優化機能。

綜上所述，透過活化成功將含氧官能基團引入奈米碳管複合電極表面，可提升溶氧(O<sub>2</sub>)之吸附能力。

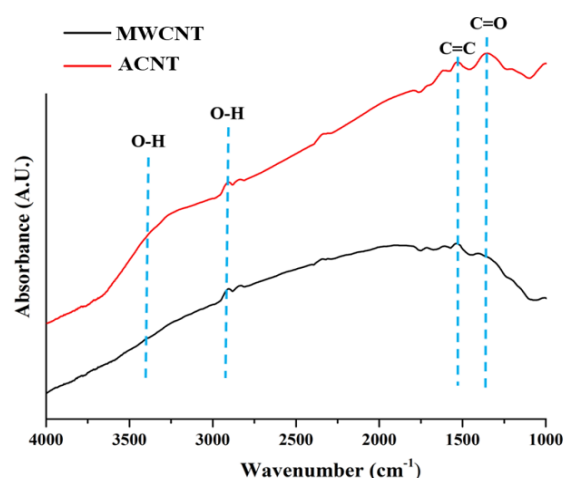


圖 5 未經活化與經活化奈米碳管粉體之傅立葉紅外線圖譜。

Figure 5 The FTIR spectra of unactivated and activated carbon nanotube powders.

### 3.4 掃描式電子顯微鏡

本研究針對不同複合電極之微觀形貌，並探討奈米碳管於活化前後之形貌；圖 6 為碳氈基材之微觀形貌，顯示碳氈經前處理後，可觀察出光滑且無雜質之形貌，將可有助於後續粉末附著；圖 7 ~ 8 分別為奈米碳管與石墨烯複合電極經放大倍率 10,000 倍之微觀形貌圖，其中，奈米碳管與石墨烯分別以管狀與片狀結構成功附著於碳氈表面。圖 9 為經氫氧化鈉(NaOH)活化處理之奈米碳管經放大倍率 50,000 倍其微觀形貌圖，可發現經由化學嵌入成功使其管狀結構產生橫向切開，並出現似石墨烯之片狀結構，其有利於改善其比表面積，進而增加其反應效率。Maciá-Agulló 等人<sup>[17]</sup>使用氫氧化合物活化碳纖維材料，發現透過

活化程序可使鉀(K)及鈉(Na)等原子嵌入碳管結構中，促使微孔之生成，進一步提升其比表面積。

綜上所述，本研究成功將奈米碳管之管狀結構產生橫向切開，以利於提升其比表面積，亦可預期於電-芬頓系統反應效率之提升。

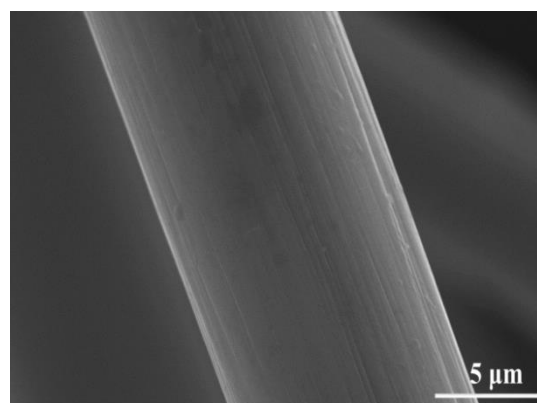


圖 6 碳氈基材電極之表面微觀形貌。  
Figure 6 The SEM image for the electrode of carbon felt.

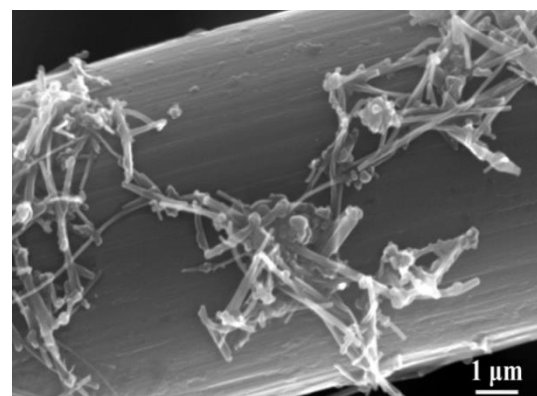


圖 7 奈米碳管複合碳氈電極之表面微觀形貌。  
Figure 7 The SEM image for the electrode of MWCNT/C.

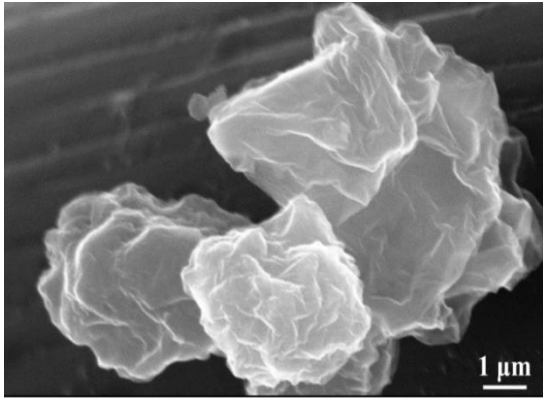


圖 8 石墨烯複合碳氈電極之表面微觀形貌。  
Figure 8 The SEM image for the electrode of GR/C.

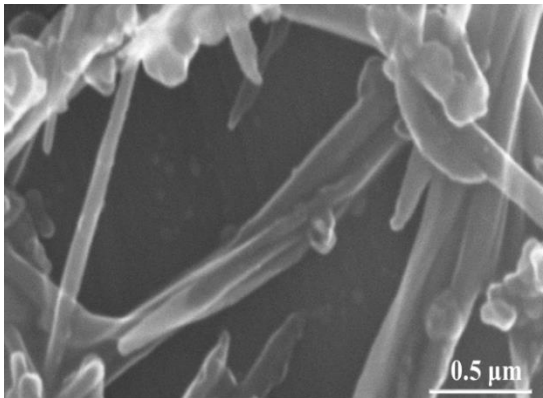


圖 9 經氫氧化鈉活化之碳氈複合電極之表面微觀形貌。  
Figure 9 The SEM image for the electrode of ACNT/C.

### 3.5 電-芬頓系統脫色效率試驗

本研究利用 RhB 染劑模擬汙廢水處理槽之反應機制，圖 10 為各電極之線性迴歸擬合圖，經擬合後各電極其  $R^2$  值皆 0.95 以上，表示各電極於 30 分鐘脫色試驗皆符合一階動力學反應<sup>[18]</sup>。經計算後顯示，經活化處理之奈米碳管複合電極其反應常數(k)為  $0.0627 \text{ min}^{-1}$ ，優於奈米碳管複合電極之  $0.0290 \text{ min}^{-1}$  與碳氈基材之  $0.0144 \text{ min}^{-1}$ ，且趨於石墨烯複合電極之  $0.0780 \text{ min}^{-1}$ ；而較高之反應常數表示電極於電-芬頓系統有較高的運行效能。於 3.1 章節結果顯示，奈米碳管經活化處理之過氧化氫產量相較於未活化前可提升 30.2%；於 3.2 與 3.3 章節顯示，經活化後之奈米碳管相較於活化前其含氧官能基有顯著的提升，

且其親水性獲得改善。其可驗證表面積及親水性之改善有助於電極其響應電流獲得提升，進一步優化電-芬頓系統運行效率。

綜上所述，透過活化之奈米碳管修飾電極其反應速率，相較活化前奈米碳管可提升 2.16 倍，且趨於石墨烯修飾碳氈電極。

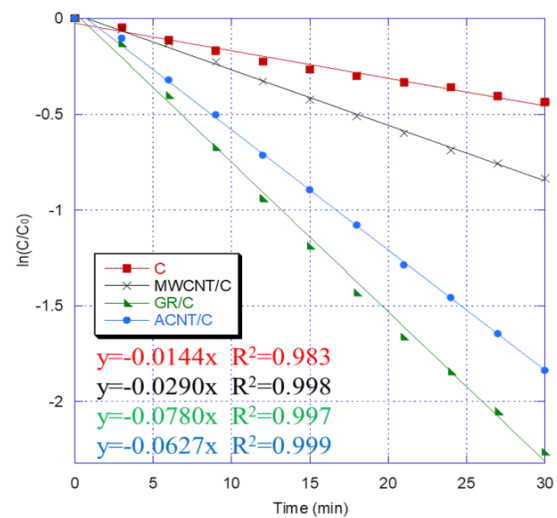


圖 10 不同電極之線性迴歸擬合圖。  
Figure 10 The first-order kinetic fits of different electrodes.

## 4. 結論

本研究應用氫氧化鈉活化多壁奈米碳管製備電極之特性研究，獲致結論如下：

1. 在線性掃描伏安法方面，於  $-0.6 \text{ V}$  之工作電位區間，經活化之奈米碳管複合電極其過氧化氫生成量相較活化前從  $0.43 \pm 0.02 \text{ mM}$ ，可提升至  $0.53 \pm 0.03 \text{ mM}$ ，其提供系統較高之過氧化氫生成效率。
2. 在接觸角量測方面，顯示，經不同材料複合電極其親水性均優於碳氈基材，濕潤性皆得到提升，其中經活化之奈米碳管可獲得最佳之親水性。
3. 在傅立葉轉換紅外線光譜分析方面，經活化之奈米碳管複合電極可增強官能基之峰值強度，並檢測出羥基(-OH)與羰基(C=O)含氧官

能基。

4. 在表面形貌觀察方面，其中奈米碳管與石墨烯分別以管狀與片狀結構成功披覆於碳氈表面；而奈米碳管透過氫氧化鈉活化處理後，其管狀結構產生橫向切開之形貌，且出現似石墨烯之片狀結構，有利於提升其比表面積。
5. 在電-芬頓系統脫色效率試驗方面，顯示，經線性回歸擬合後，皆符合一階動力學，代表其脫色率與時間呈正相關；且經活化之奈米碳管其反應速率，相較活化前可顯著提升2.16倍，且不亞於石墨烯複合電極，代表其具有相近之電-芬頓運行效能。

綜上所述，經表面改質之各電極，其響應電流、親水性與電-芬頓脫色性能皆優於碳氈基材；本研究成功製備經氫氧化鈉活化之奈米碳管複合電極，其性能可趨於石墨烯複合電極，且具有較低之成本，利於未來燃料電池陰極材料發展選用之潛力。

## 致謝

承蒙科技部研究計畫編號 MOST 108-2221-E-197-014 之支持，使本研究得以順利進行，特此致上感謝之意；並感謝國立宜蘭大學王宜達教授、國立台灣科技大學林岳陞博士生與協助本研究進行之相關人員。

## 參考文獻

- [1] “Electro-Fenton degradation of rhodamine B based on a composite cathode of Cu<sub>2</sub>O nanocubes and carbon nanotubes”, Z. Ai, H. Xiao, T. Mei, J. Liu, L. Zhang, K. Deng, and J. Qiu, *The Journal of Physical Chemistry C*, 112 (2008) pp. 11929-11935.
- [2] “Biochar as a sustainable electrode material for electricity production in microbial fuel cells”, T. Huggins, H. Wang, J. Kearns, P. Jenkins, and Z. J. Ren, *Bioresource Technology*, 157 (2014) pp. 114-119.
- [3] “Trends in electro-Fenton process for water and wastewater treatment: An overview”, P. V. Nidheesh and R. Gandhimathi, *Desalination*, 299 (2012) pp. 1-15.
- [4] “Application of Graphene and Carbon Nanotubes on Carbon Felt Electrodes for the Electro-Fenton System”, Y. T. Wang, C. H. Tu, and Y. S. Lin, 12 (2019) p. 1698.
- [5] “Doped graphenes in catalysis”, J. Albero and H. Garcia, *Journal of Molecular Catalysis A: Chemical*, 408 (2015) pp. 296-309.
- [6] “High porous bio-nanocarbons prepared by carbonization and NaOH activation of polysaccharides for electrode material of EDLC”, K. Takeuchi, M. Fujishige, N. Ishida, Y. Kunieda, Y. Kato, Y. Tanaka, T. Ochi, H. Shirotori, Y. Uzuhashi, S. Ito, K. i. Oshida, and M. Endo, *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, 118 (2018) pp. 137-143.
- [7] “KOH and NaOH activation mechanisms of multiwalled carbon nanotubes with different structural organisation”, E. Raymundo-Piñero, P. Azais, T. Cacciaguerra, D. Cazorla-Amorós, A. Linares-Solano, and F. Béguin, *Carbon*, 43 (2005) pp. 786-795.
- [8] “The production of chemically-activated carbon”, M. J. B. Evans, E. Halliop, and J. A. F. MacDonald, *Carbon*, 37 (1999) pp. 269-274.
- [9] “About reactions occurring during chemical activation with hydroxides”, M. A. Lillo-Ródenas, J. Juan-Juan, D. Cazorla-Amorós, and A. Linares-Solano, *Carbon*, 42 (2004) pp. 1371-



- 1375.
- [10] “Electrogeneration of H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> using graphite cathode modified with electrochemically synthesized polypyrrole/MWCNT nano composite for electro-Fenton process”, R. Babaei-Sati and J. Basiri Parsa, *Journal of Industrial and Engineering Chemistry*, 52 (2017) pp. 270-276.
- [11] “Enhanced electro-Fenton performance by fluorine-doped porous carbon for removal of organic pollutants in wastewater”, K. Zhao, X. Quan, S. Chen, H. Yu, Y. Zhang, and H. Zhao, *Chemical Engineering Journal*, 354 (2018) pp. 606-615.
- [12] “Preparation and characterization of a novel KOH activated graphite felt cathode for the electro-Fenton process”, Y. Wang, Y. Liu, K. Wang, S. Song, P. Tsiakaras, and H. Liu, *Applied Catalysis B: Environmental*, 165 (2015) pp. 360-368.
- [13] “Are graphitic surfaces hydrophobic?”, A. Kozbial, F. Zhou, Z. Li, H. Liu, and L. Li, *Accounts of chemical research*, 49 (2016) pp. 2765-2773.
- [14] “Improving the electrocatalytic performance of carbon nanotubes for VO<sup>2+</sup>/VO<sub>2</sub><sup>+</sup> redox reaction by KOH activation”, L. Dai, Y. Jiang, W. Meng, H. Zhou, L. Wang, and Z. He, *Applied Surface Science*, 401 (2017) pp. 106-113.
- [15] “High removal efficiency of dye pollutants by electron-Fenton process using a graphene based cathode”, T. X. H. Le, M. Bechelany, S. Lacour, N. Oturan, M. A. Oturan, and M. Cretin, *Carbon*, 94 (2015) pp. 1003-1011.
- [16] “Physico-chemical properties of pristine graphene and its performance as electrode material for electro-Fenton treatment of wastewater”, E. Mousset, Z. Wang, J. Hammaker, and O. Lefebvre, *Electrochimica Acta*, 214 (2016) pp. 217-230.
- [17] “Influence of carbon fibres crystallinities on their chemical activation by KOH and NaOH”, J. A. Maciá-Agulló, B. C. Moore, D. Cazorla-Amorós, and A. Linares-Solano, *Microporous and Mesoporous Materials*, 101 (2007) pp. 397-405.
- [18] “Comparative Removal of Rhodamine B from Aqueous Solution by Electro-Fenton and Electro-Fenton-Like Processes”, P. V. Nidheesh and R. Gandhimathi, *CLEAN–Soil, Air, Water*, 42 (2014) pp. 779-784.