



文章栏目: 文献计量分析

DOI 10.12030/j.cjee.201911102

中图分类号 X53; X52; X505

文献标识码 A

蒲生彦, 吕雪, 张颖. 基于文献计量的全球活化过硫酸盐氧化技术研究趋势分析[J]. 环境工程学报, 2020, 14(10): 2895-2908.

PU Shengyan, LYU Xue, ZHANG Ying. Global trends of activated persulfate oxidation technology based on bibliometric analysis[J]. Chinese Journal of Environmental Engineering, 2020, 14(10): 2895-2908.

## 基于文献计量的全球活化过硫酸盐氧化技术研究趋势分析

蒲生彦<sup>1,2,3,\*</sup>, 吕雪<sup>1,2</sup>, 张颖<sup>1,2</sup>

1. 成都理工大学生态环境学院, 成都 610059

2. 国家环境保护水土污染协同控制与联合修复重点实验室, 成都 610059

3. 中国环境科学研究院, 环境基准与风险评估国家重点实验室, 北京 100012

第一作者: 蒲生彦(1981—), 男, 博士, 教授。研究方向: 土壤地下水污染协同修复等。E-mail: [pushengyan@cdu.edu.cn](mailto:pushengyan@cdu.edu.cn)

\*通信作者

**摘要** 通过激活过硫酸盐(persulfate, PS)产生硫酸根自由基是一种新兴的高级氧化技术, 该方法由于无毒、高效、经济且环境友好等优势在水土污染修复中得到广泛关注。基于文献计量学和网络图分析方法, 利用 Web of Science 核心数据库对 1986—2019 年以来有关过硫酸盐的文献进行回顾和梳理。使用 VOSviewer(1.6.13 版)软件, 分析全球对过硫酸盐研究的国家、机构、作者、期刊、共引用文献及关键词等数据, 并且绘制出关键词共现图谱和密度图, 以分析过硫酸盐的研究历史、目前的研究热点以及发展前景。结果显示, 研究热点集中在过硫酸盐的高级氧化技术、活化方法、氧化动力学和机理以及在修复土壤和地下水中的应用等。同时, 基于研究热点系统归纳了过硫酸盐的活化方法及其降解污染物的实际应用, 提出了当前活化过硫酸盐研究所存在的问题, 并对未来的研究方向进行了展望, 以期对活化过硫酸盐氧化技术在环境修复领域进一步发展和研究提供参考。  
**关键词** 活化过硫酸盐; 硫酸根自由基; 高级氧化; 研究趋势; 文献计量学

近年来, 基于硫酸根自由基氧化原理的活化过硫酸盐高级氧化技术受到研究人员的广泛关注<sup>[1]</sup>。相较于其他常见的氧化剂, 如过氧化氢(H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>)<sup>[2]</sup>、高锰酸盐(MnO<sub>4</sub><sup>-</sup>)<sup>[3]</sup>和臭氧(O<sub>3</sub>)<sup>[4]</sup>等, 过硫酸盐(S<sub>2</sub>O<sub>8</sub><sup>2-</sup>)<sup>[5]</sup>因其成本低廉、高效稳定、持续时间长等优点在降解有机污染物的研究中得到越来越多的应用<sup>[6]</sup>。通过活化过硫酸盐产生更高氧化还原电位的高级氧化技术可以大幅提高污染物的去除率, 在土壤地下水有机污染修复方面具有不可忽略的优势<sup>[7]</sup>, 尤其是针对多氯联苯(PCBs)<sup>[8]</sup>、多环芳烃(PAHs)<sup>[9]</sup>、石油烃(TPH)<sup>[10]</sup>等有机污染场地, 其优势更加明显。

由于过硫酸盐自身对污染物的氧化能力有限, 探索不同活化方法提高过硫酸盐的污染物去除率成为研究发展的热点。有研究<sup>[7]</sup>表明, 通过热<sup>[11]</sup>、碱<sup>[12]</sup>、电力<sup>[13]</sup>、超声<sup>[14]</sup>、过渡金属<sup>[15]</sup>以及紫外光<sup>[16]</sup>等手段激活过硫酸盐, 体系中可以同时产生 2 种强氧化剂: 硫酸根自由基(SO<sub>4</sub><sup>-</sup>·, E<sup>0</sup>=2.5~3.1 V)和羟基自由基(OH·, E<sup>0</sup>=2.8 V)<sup>[1]</sup>。与羟基自由基不同的是, 硫酸根自由基更加稳定, 它的半衰期(40 μs)远大于羟基自由基(<1 μs), 可以在复杂多变环境中获得更持久的存留时间, 特别是在土壤-地

收稿日期: 2019-11-18; 录用日期: 2020-03-17

基金项目: 国家水体污染控制与治理科技重大专项(2018ZX07109); 国家自然科学基金资助项目(41772264)

下水有机污染修复中,可以实现多介质输移且保持其强氧化活性<sup>[17]</sup>。

为了更好地跟踪活化过硫酸盐氧化技术在全球范围内的研究趋势,本研究通过对1986—2019年以来Web of Science核心数据库中相关刊物的数量、发展趋势、研究团队(国家、机构、期刊和作者)以及文献被引频次等进行了回顾与分析;结合关键词共现关系图谱,梳理了过硫酸盐的研究热点及未来发展趋势,总结了过硫酸盐不同活化方法的特点,并系统归纳了33年以来有关过硫酸盐高级氧化法的研究动态及面临的挑战,以期为今后的相关研究提供有益参考。

## 1 数据来源与统计方法

所有数据来源于Web of Science核心合集,数据检索策略为:TS=(“persulfate” OR “persulfates” OR “persulphate” OR “persulphates” OR “S<sub>2</sub>O<sub>8</sub><sup>2-</sup>” OR “perdisulfate” OR “peroxysulfate” OR “peroxydisulfate”),所有的搜索截至2019年10月14日,以避免数据库每日更新导致文献数量偏差。限制文献类型为Article(论文)和Review(综述),并将出版时间在2020年的3篇文章进行了剔除,对语言和数据类别没有限制,并在检索结果中筛选与过硫酸盐研究有关的文章,共得到文献7734篇(系统时间范围为1986—2019年)。

使用Microsoft Excel 2010分析出版数量的趋势,采用多项式模型<sup>[18]</sup>(三项式模型)预测下一年发表量的增长趋势。同时,使用VOSviewer(1.6.13版)(引文网络分析软件)进行文献、关键词共现频次和可视化分析,揭示我国对于过硫酸盐研究的热点以及趋势。网络图中每个节点代表一个关键词,节点的大小表示关键词出现的频次,节点之间连线的粗细表示关键词共现强度的高低,彼此邻近的关键词表示他们通常出现在相似的文献中。本研究中,英格兰、北爱尔兰、苏格兰和威尔士的文章归类到英国,中国香港、澳门和台湾的文章归类入中国。VOSviewer的计数方法采用分数计数,限制每篇文章最大作者数量为25个。

## 2 结果与讨论

### 2.1 发表文献数量及增长趋势

图1为全球每年发表过硫酸盐研究文献的数量以及增长趋势。结果显示,在1996年之前,文献数量增长缓慢。这一阶段是过硫酸盐研究的初级阶段,主要关注点在于过硫酸盐性质的探索及其在氧化过程中的反应机理。但从1996年开始,过硫酸盐的应用研究突然猛增,仅这一年的文献数量达到139篇,此后保持均匀上升的趋势。2007年文献发表数量超过300篇,且增长趋势仍在继续。值得关注的是,仅在2019年(截至10月)发表文献数量达到904篇。

用多项式趋势线模型模拟了33年中发表年份与发表文献数量之间的关系。发文量随年份的增加而持续增多,且增加幅度越来越大。根据目前的线性趋势,预测2020年发表文献数量将会突破1000篇,表明对于过硫酸盐的研究仍然在持续发展中。趋势线方程见式(1)。

$$y = 0.9514x^2 + 8.1574x + 29.446 \quad (1)$$

式中: $y$ 为发文数量,篇; $x$ 为年份;决定系数 $R^2=0.9734$ ,且其趋势线模型拟合结果良好。

### 2.2 主要发文国家与机构

共有100个国家参与了过硫酸盐的相关研究。表1总结了过硫酸盐研究最多的10个国家。可

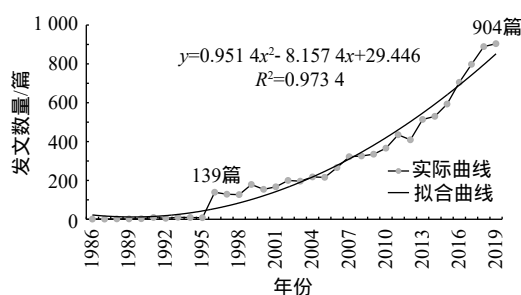


图1 过硫酸盐研究文献数量变化趋势图

Fig. 1 Trends in the number of literatures on persulfate research

以看出, 中国发表的研究论文最多 (3 508 篇, 45.36%), 说明中国对过硫酸盐的研究方面高度关注。研究表明, 我国土壤和地下水均受到不同程度的有机污染, 如, 土壤中六六六、DDT、多环芳烃 3 类有机污染物点位超标率分别为 0.5%、1.9%、1.4%<sup>[19]</sup>; 地下水的开采量以每年  $2.6 \times 10^9 \text{ m}^3$  的速度迅猛增加, 其所带来的潜在有机污染问题也越来越严重。目前, 北京的浅层地下水中监测中已检出六六六、DDT、多环芳烃、单环芳烃等多种有机污染物<sup>[20]</sup>, 而通过研究新型高级氧化技术达到对有机污染场地的高效修复就显得尤为重要。

全球范围内有 4 272 家机构在过硫酸盐的研究中做出贡献。如表 2 所示, 在前 10 的研究机构中, 中国科学院以发表相关文献 311 篇位居第一, 占比为 4.02%; 排名第二的机构是同济大学, 发文数量为 134 篇, 占比 1.73%; 第三是哈尔滨工业大学, 发文数量为 120 篇, 占比为 1.56%。结果表明, 对本领域的研究主要集中在高等院校, 这些机构不仅发文数量多, 且文章所属期刊分区主要集中在 Q1(《Chemical Engineering Journal》《Chemosphere》《Water Research》等)。在综合总被引次数以及篇均被引次数方面, 中国科学院、同济大学、哈尔滨工业大学以及印度理工大学在过硫酸盐的应用研究领域具备较强的实力。

### 2.3 主要发文期刊与作者

这些过硫酸盐的研究文献共涉及 25 703 名作者, 其中发文数量在 10 篇及以上的作者有 225 位, 20 篇及以上有 34 位, 排在前 10 位的作者发文数量均大于 35 篇 (表 3)。辛辛那提大学的 DIONYSIOU Dionysio Dion 的篇均被引次数居于榜首 (65.25),  $h$  指数也位居前列; 阿德莱德大学的 WANG Shaobin 的  $h$  指数高达 96, 篇均被引次数位列第二, 由此展现出他们对于过硫酸盐研究实力较强, 其文章具有影响意义。同时, 排在前 10 的作者都对本领域的研究做出了杰出的贡献, 其中, 哈尔滨工业大学马军教授影响力尤为突出。

本研究检索出关于过硫酸盐的研究期刊共有 1 100 种。按照发表文章的数量, 选取了排名前 10 的期刊, 并依次罗列了该期刊的引用数量、出版国家和 2018 年的影响因子 (表 4)。发表论文章数超过 60 篇的期刊共有 24 种, 超过 100 篇的有 12 种。其中, 最为突出的是《Journal of Applied Polymer Science》, 共发表了 495 篇有关过硫酸盐研究的文章, 占所纳入刊物数量的 5.3%; 《Chemical Engineering Journal》上发表的有关过硫酸盐研究的文章引用次数高达 13 040 次, 以其影响因子 8.355 居于榜首, 是本领域研究最具影响力的期刊。另外, 在排名前 10 的期刊中, 发文较多的期刊多属于英国, 总体影响因子较高, 这说明英国在本领域的研究综合实力较强。

表 1 过硫酸盐研究国家 (Top 10)  
Table 1 Top 10 countries of persulfate study

排名	国家	发文数量/篇	占比/%
1	中国	3 508	45.36
2	印度	993	12.84
3	美国	954	12.34
4	伊朗	536	6.93
5	韩国	363	4.69
6	日本	297	3.84
7	西班牙	275	3.56
8	法国	274	3.54
9	土耳其	264	3.41
10	埃及	236	3.05

表 2 过硫酸盐研究机构 (Top 10)  
Table 2 Top 10 institutions of persulfate study

排名	机构	发文数量/篇	占比/%	总被引次数	篇均被引次数
1	中国科学院	311	4.02	8 892	28.59
2	同济大学	134	1.73	3 991	29.78
3	哈尔滨工业大学	120	1.55	3 018	25.15
4	埃及国家研究中心	99	1.28	1 166	11.78
5	伊斯兰阿扎德大学	98	1.27	1 185	12.09
6	四川大学	89	1.15	1 026	11.53
7	俄罗斯科学院	85	1.10	1 972	23.2
8	武汉大学	85	1.10	1 809	21.28
9	印度理工大学	83	1.07	2 239	26.98
10	湖南大学	76	0.98	1 317	17.33

表3 过硫酸盐研究作者 (Top 10)  
Table 3 Top 10 authors of persulfate study

排名	作者	发文数量	总被引次数	篇均被引次数	h指数	所属机构
1	STEJSKAL Jaroslav	53	2 773	52.32	68	捷克科学院
2	MA Jun(马军)	53	2 388	45.06	77	哈尔滨工业大学
3	TRCHOVA Miroslava	45	2 628	58.4	54	捷克科学院
4	DIONYSIOU Dionysios Dion	44	2 871	65.25	98	辛辛那提大学
5	YUAN Ruo(袁若)	43	1 070	24.88	64	西南大学
6	GAO Naiyun(高乃云)	43	1 725	40.12	53	同济大学
7	WANG Yan(王艳)	43	698	16.23	18	华南理工大学
8	WANG Aiqin(王爱勤)	41	1 731	42.22	65	中国科学院
9	ZHANG Hui(张晖)	41	1 537	37.49	53	武汉大学
10	WANG Shaobin(王少彬)	37	2 223	60.08	96	阿德莱德大学

表4 过硫酸盐研究期刊 (Top 10)  
Table 4 Top 10 journals of persulfate study

排名	期刊	文献数量/篇	引用次数	国家	影响因子(IF)
1	Journal of Applied Polymer Science	495	8 160	美国	2.188
2	Chemical Engineering Journal	475	13 040	瑞士	8.355
3	Chemosphere	182	6 388	英国	5.108
4	RSC Advances	179	1 962	英国	3.049
5	Journal of Hazardous Materials	171	7 574	荷兰	7.65
6	Water Research	132	5 454	英国	7.913
7	Carbohydrate Polymers	119	4 829	英国	6.044
8	Environmental Science & Technology	114	8 088	美国	7.149
9	Synthetic Metals	111	4 435	瑞士	2.526
10	Journal of Polymer Science Part A: Polymer Chemistry	103	2 735	澳大利亚	2.591

#### 2.4 文献被引频次分析

由表5中统计的前10篇被引文献和被引量可以看出,来自辛辛那提大学的ANIPSITAKIS G P于2004年发表的文章《Radical generation by the interaction of transition metals with common oxidants》被引次数最多,达到610次,位居第一。此文章主要是研究不同过渡金属对氧化剂的活化作用之间的比较,以此来探索最有效的活化方式,为活化技术在土壤-地下水有机污染物修复应用奠定基础。来自中国台湾中兴大学的梁晨居(LIANG C J)2007年发表的《Influence of pH on persulfate oxidation of TCE at ambient temperatures》、2008年发表的《A rapid spectrophotometric determination of persulfate anion in ISCO》和2009年发表的《Identification of sulfate and hydroxyl radicals in thermally activated persulfate》3篇文章均为前10高被引参考文献。余下的6篇文章的共同被引用量均超过了300次。这说明过硫酸盐的应用研究已经成为当前的研究热点问题。

排名前10的被引文献分布在8种期刊上,其中被引次数最高的前3篇文章分别刊登在《Environmental Science & Technology》和《Journal of Physical and Chemical Reference Data》上,这2种期刊均有2篇文章上榜。同时,《Environmental Science & Technology》还上榜了过硫酸盐研究



表 5 被引文献及其被引量 (Top 10)  
Table 5 Top 10 cited references and citations

排名	论文作者	发表年份	被引文献	所属期刊	作者机构	被引次数
1	ANIPSITAKIS G P	2004	Radical generation by the interaction of transition metals with common oxidants	Environmental Science & Technology	辛辛那提大学	610
2	BUXTON G V	1988	Critical review of rate constants for reactions of hydrated electrons, hydrogen atoms and hydroxyl radicals ( $\cdot\text{OH}/\cdot\text{O}$ ) in aqueous solution	Journal of Physical and Chemical Reference Data	利兹大学	501
3	NETA P	1988	Rate constants for reactions of inorganic radicals in aqueous solution	Journal of Physical and Chemical Reference Data	美国国家标准局	495
4	FURMAN O S	2010	Mechanism of base activation of persulfate	Environmental Science & Technology	华盛顿州立大学	412
5	LIANG C J(梁晨居)	2007	Influence of pH on persulfate oxidation of TCE at ambient temperatures	Chemosphere	中国台湾中兴大学	380
6	TSITONAKI A	2010	In situ chemical oxidation of contaminated soil and groundwater using persulfate: A review	Critical Reviews in Environmental Science and Technology	丹麦技术大学	379
7	HOUSE D A	1962	Kinetics and mechanism of oxidations by peroxydisulfate	Chemical Reviews	惠灵顿维多利亚大学	364
8	LIANG C J(梁晨居)	2008	A rapid spectrophotometric determination of persulfate anion in ISCO	Chemosphere	中国台湾中兴大学	349
9	LIANG C J(梁晨居)	2009	Identification of sulfate and hydroxyl radicals in thermally activated persulfate	Industrial & Engineering Chemistry Research	中国台湾中兴大学	335
10	KOLTHOFF I M	1951	The chemistry of persulfate. I. The kinetics and mechanism of the decomposition of the persulfate ion in aqueous medium	Journal of the American Chemical Society	明尼苏达大学	334

的前 10 期刊。该刊位于环境科学类期刊 Q1 区，影响因子 7.149，这也说明其刊登的文章具有一定的影响力和权威性。

## 2.5 关键词分析

对检索出的 7 734 篇文章中出现的 24 270 个关键词进行可视化分析，关键词出现频率大于 300 次的共有 29 个。图 2 显示，常见关键词有过硫酸盐、氧化、降解、动力学、水、机理、硫酸根、过一硫酸盐、效率、芬顿反应、释放、原位修复、热、紫外线、pH、温度等，可为分析过硫酸盐的研究方向提供参考。

图 3 反映了出现频率大于 60 的关键词聚类分析的结果，210 个关键词被分为 3 个聚类。聚类 1 的主要关注点在于聚合反应、聚苯胺、酸性、温度、纳米微粒、过硫酸铵、过硫酸钾。这一部分学者们主要研究了过硫酸盐最初在工业方面的应用和影响因素，如过硫酸盐引发甲基丙烯酸甲酯的乳液聚合、过硫酸钾引发苯乙烯的乳液聚合。聚类 2 中的常见关键词主要是过二硫酸盐、性能、还原反应、效率、碳、催化剂、电化学和复合物。这一部分主要描述了活化过硫酸盐的过程中涉及到的相关反应、对有机污染物的去除率以及不同反应过程中催化剂对于整个反应的影响。聚类 3 关注过硫酸盐、机理、降解、化学氧化、活化、废水处理、土壤、原位修复、动力学、硫酸根自由基和羟基自由基。该部分主要归纳了活化过硫酸盐的各种方法及其反应机理。

关键词热点现象的出现也将代表过硫酸盐的未来研究趋势和发展方向。通过对图 4 中的共现关键词出现时间进行分析发现，1995 年之后，关键词聚合反应、纳米微粒、过硫酸铵、过硫酸钾

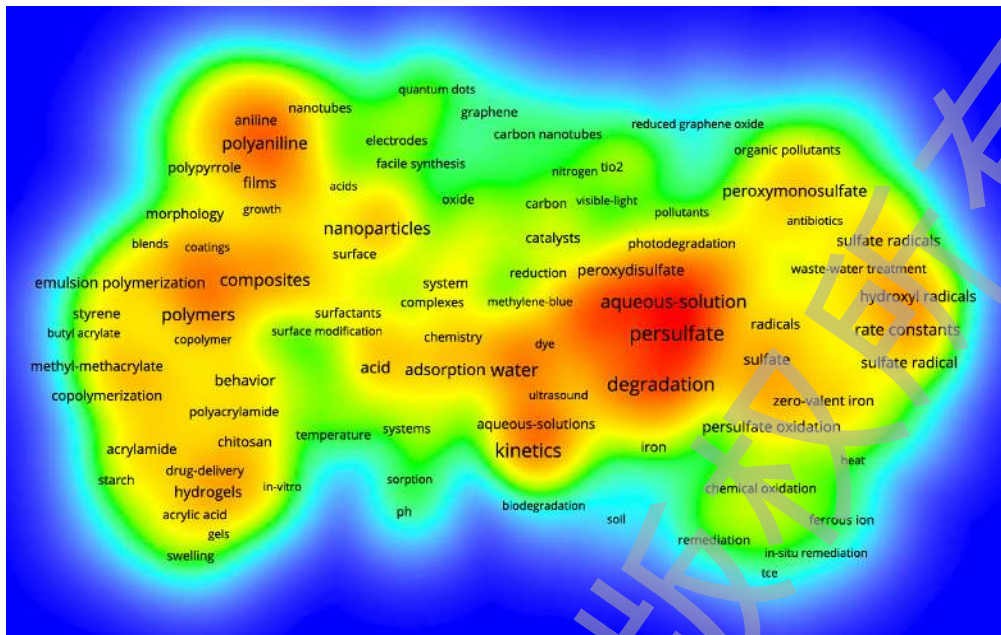


图 2 关键词共现频次密度图

Fig. 2 Keywords co-occurrence frequency density map

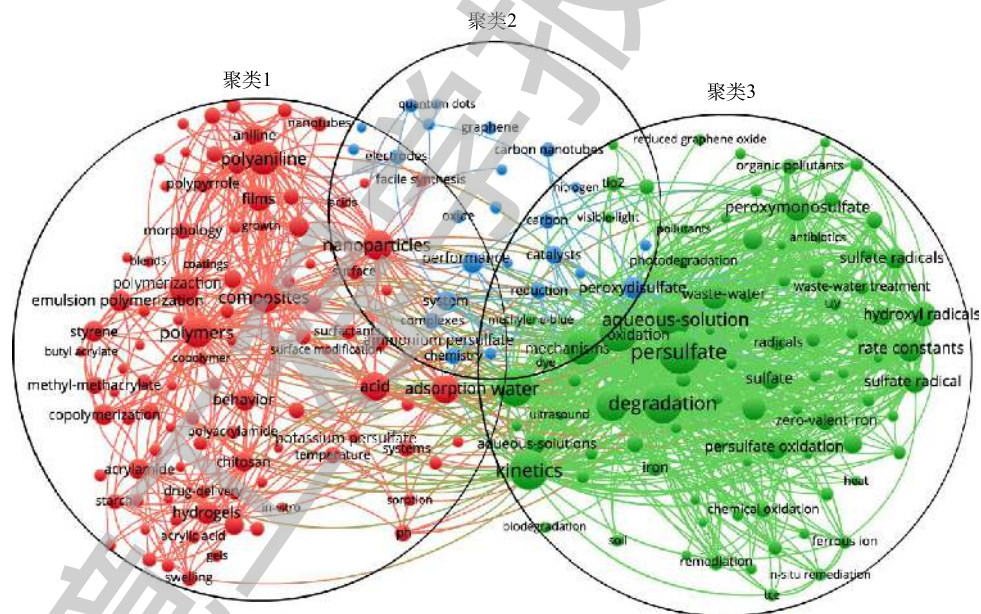


图 3 关键词聚类网络图

Fig. 3 Keywords clustering network map

等关键词显示出过硫酸盐在工业领域中的研究概况，如工业生产过硫酸铵、过硫酸钾的原理与技术。随着时间的推移，研究人员开始转向过硫酸盐在环境污染治理中的应用研究。高级氧化、活化过硫酸盐、原位化学氧化等关键词逐渐成为了过硫酸盐的研究热点。其中，过硫酸盐的活化方法、活化过硫酸盐的反应动力学机理、过硫酸盐高级氧化技术在原位场地污染修复应用以及过硫酸盐纳米复合材料对于反应过程的影响成为研究的重要关注点。



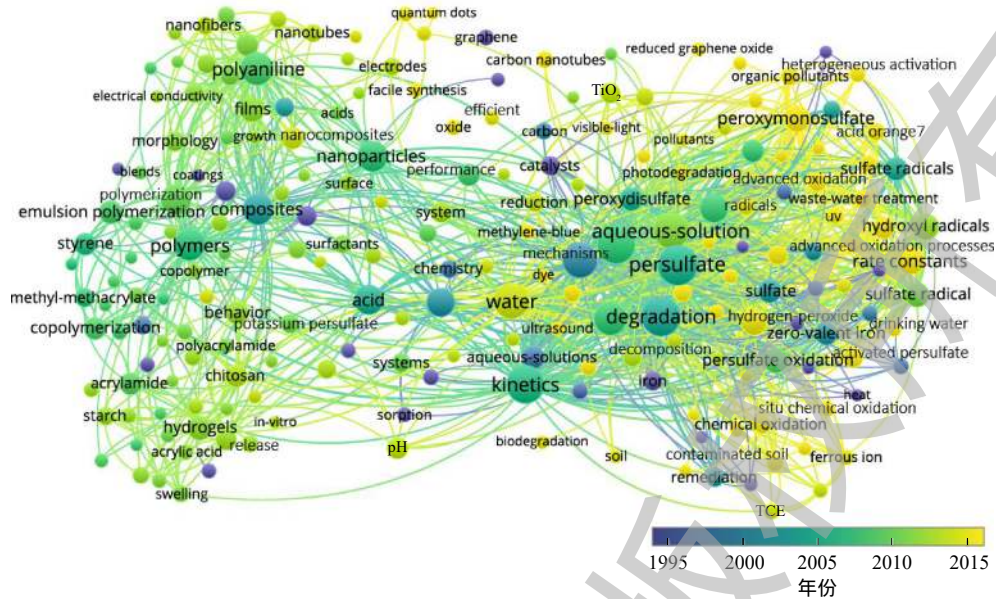


图 4 过硫酸盐研究热点图

Fig. 4 Hot spots in persulfate research

## 2.6 基于关键词分析的研究热点与发展趋势

1) 关于过硫酸盐活化方法的文献分析。活化过硫酸盐是指使用活化助剂生成活性中间体(如硫酸根自由基、羟基自由基等)，以此降解环境介质中的有机污染物。未活化的过硫酸根阴离子也会和其他有机化学物质发生反应，但由于其氧化电位较低( $E^0=2.01\text{ V}$ )，对污染物的去除率远不如活化后的过硫酸盐<sup>[21]</sup>。因此，研究者们致力于探索不同的活化方法，以期达到经济可行、技术可行、环境友好的目的。

过硫酸盐吸收热能后过氧键断裂，形成 2 个硫酸盐自由基<sup>[22]</sup>。一般来说，热活化过硫酸盐的方法对去除有机物是十分高效的，且不存在催化剂分散和失活等问题，尤其是针对土壤中高浓度难降解的有机污染物<sup>[23]</sup>。但适当的热源限制了土壤系统的实际应用，反应温度是最关键的因素。在控制温度范围内，污染物的反应速率随着温度的升高而增大，并且适当提高反应温度可以大大降低氧化剂的用量<sup>[24]</sup>。与热活化法不同的是，碱活化过硫酸盐除了可以产生硫酸根自由基以外，还可以产生羟基自由基<sup>[25]</sup>。通常，使用氢氧化钾和氢氧化钠来提高 pH，当 pH 大于 12 时，羟基自由基占主导作用，从而可以更广泛地用于原位降解各类污染物<sup>[26]</sup>。此外，过硫酸盐还可被银、铜、铁、钒、钛、钴、锰等过渡金属有效活化，通过单电子转移生成硫酸根自由基，这是有关过硫酸盐活化方法中最普遍的方法之一<sup>[27]</sup>。该方法没有特殊的环境要求，其中  $\text{Fe}^{2+}$  和  $\text{Fe}^{3+}$  是最常见的过渡金属离子活化剂，但过量的  $\text{Fe}^{2+}$  与  $\text{SO}_4^{2-}$  和  $\text{S}_2\text{O}_8^{2-}$  发生快速反应，从而使反应停止，导致污染物去除效率较低，并且在环境 pH 为 5 时还会转化为  $\text{Fe}(\text{OH})_3$  沉淀<sup>[28]</sup>。

电活化过硫酸盐是在阴极产生硫酸根自由基，然后在电流作用下，通过电迁移、电渗透和电泳去除环境中的污染物，是一种可行且有效的原位修复技术<sup>[29]</sup>。其机理与过渡金属活化过硫酸盐的单电子转移氧化还原反应类似，电迁移和电渗透流动可以克服低渗透土壤中氧化剂传递差的问题。一般情况下，选择合适的氧化剂注射部位，可以减少原位修复中氧化剂消耗、提高污染物去除率<sup>[7]</sup>。紫外光可显著促进过硫酸盐分解成硫酸根自由基，与热活化过硫酸盐的机理类似。在众多影响因素中，波长和紫外辐射率在过硫酸盐的激活和有机降解中起着重要的作用<sup>[30]</sup>。此外，太阳光中含有约 5% 的紫外光，足已活化过硫酸盐<sup>[31]</sup>，该技术具有经济成本低、环境友好的优点。但紫

外光的穿透能力有限,在实际应用中会受到诸多限制。超声波活化过硫酸盐是指通过超声空化产生的局部高温高压,使O—O键断裂,并产生2个硫酸根自由基,其能量诱导机制与热活化和紫外光活化产生自由基相同<sup>[17]</sup>。有研究<sup>[32]</sup>表明,超声波活化过硫酸盐可显著提高非生物降解污染物的降解率。

表6归纳总结了6种常见的过硫酸盐活化方法。通过对纳入过硫酸盐活化方法的文章进行筛选,共得到1107篇文章,并就其进行计量学分析,得到关键词的共现频次(表6),其中最常出现的关键词是过渡金属活化的相关方法(如 $\text{Fe}^{2+}$ 、 $\text{Fe}^{3+}$ 、 $\text{Cu}^{2+}$ 、 $\text{Ag}^{2+}$ 等),达到557次。由此可知,就活化过硫酸盐的方法而言,热活化、过渡金属活化和紫外光活化法是主要的研究焦点,而碱活化、超声波活化以及电活化方面的研究相对薄弱。

表6 过硫酸盐的不同活化方法比较  
Table 6 Comparison of different activation methods of persulfate

活化方法	活化反应式	优点	缺点	通常使用的条件	关键词共现频次	来源
热活化	$\text{S}_2\text{O}_8^{2-} + \text{热} \rightarrow 2\text{SO}_4^{\cdot-}$	应用广泛且不存在催化剂分散、污染回收和失活的问题	加热成本高、自由基产生率低	一般最适温度为40~50℃	206	[33]
碱活化	$\text{S}_2\text{O}_8^{2-} + 2\text{H}_2\text{O} \xrightarrow{\text{OH}^-} 2\text{SO}_4^{2-} + \text{SO}_4^{\cdot-} + \text{O}_2^{\cdot-} + 4\text{H}^+$ $\text{SO}_4^{\cdot-} + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{SO}_4^{2-} + \text{OH} + \text{H}^+$	拥有羟基自由基,使用范围更广泛	经济成本高(额外加碱),影响环境理化性质及生物活动,尚不成熟	常见物质为NaOH和KOH	29	[25]
过渡金属活化	$\text{S}_2\text{O}_8^{2-} + \text{Me}^{n+} \rightarrow \text{SO}_4^{\cdot-} + \text{SO}_4^{2-} + \text{Me}^{(n+1)+}$	对温度、pH没有特殊要求,简单易行,经济效益高(钒、铁等)、低能耗	部分过渡金属(铜、银等)成本高且具有潜在毒性	常见活化剂为 $\text{Fe}^{2+}$ 和 $\text{Fe}^{3+}$	557	[34]
电活化	$\text{S}_2\text{O}_8^{2-} + \text{e}^- \rightarrow \text{SO}_4^{\cdot-} + \text{SO}_4^{2-}$	去除率高、可电化学再生	耗电成本高,容易受外界干扰阻碍光源传播	—	145	[35]
紫外光活化	$\text{S}_2\text{O}_8^{2-} + \text{UV} \rightarrow 2\text{SO}_4^{\cdot-}$	经济成本低(太阳光)、高效、环境友好	成本高(额外能量),穿透能力有限	常用波长为254 nm	198	[36]
超声波活化	$\text{S}_2\text{O}_8^{2-} + \text{US} \rightarrow 2\text{SO}_4^{\cdot-}$	操作简单、不会产生有毒的副产物	容易引起局部温度和压力的大幅度升高	常用频率为28~40 kHz	53	[37]

2) 过硫酸盐高级氧化法的实际应用情况。结合图2和图3可知,关于过硫酸盐的研究应用常见于修复被污染的水、土壤、大气环境,相比之下,过硫酸盐降解废水中各类有机污染物(如,菲、蒽、芘等多环芳烃以及苯胺、三氯乙烯、双酚A等有机物)的研究进行得更为全面,而在土壤地下水修复中的应用显得尚未充分<sup>[38]</sup>。在对活化过硫酸盐不同方法(表6)进行比较的基础上,对不同活化方法的文献使用关键词进行分类,统计结果见表7。以此为依据梳理出关于过渡金属活化的文献466篇,紫外光活化的文献210篇、热活化的文献175篇、碱活化的文献101篇、超声波活化的文献89篇、电活化的文献35篇,同时还涉及不同活化方法间的联合修复的文献45篇以及少量关于磁性纳米颗粒活化、地下矿物活化和污泥生物炭活化等相关活化方法的文献。根据上述结果,表7归纳部分基于过硫酸盐的高级氧化法的实际应用,其中过渡金属活化的实际应用以 $\text{Fe}^{2+}$ 为例,联合修复以 $\text{S}_2\text{O}_8^{2-}/\text{Fe}^{2+}/\text{CA}$ 和电化学/环形铁皮/PS 2个应用为例。

除前面介绍各类活化过硫酸盐的方法外,为了获得更大污染物的去除效率,各活化方法之间可以相互结合使用。其中过渡金属和其他活化过硫酸盐方法的结合是迄今为止过硫酸盐领域最常见的应用技术,并已被证明可以有效去除内分泌干扰物、药物和个人护理品等污染物。有研究<sup>[39]</sup>报道,以硫酸亚铁和氢氧化钠为活化剂,共同激活过硫酸盐以减少长叶莴苣表面上的O157:H7大



肠杆菌和李斯特菌。这表明运用过渡金属和碱活化过硫酸盐可能成为一种可替代农产品去污消毒剂的友好方法。另有研究<sup>[40]</sup>证明, 将过渡金属与热活化法相结合后, 对酿酒厂废水 COD 的去除效率高于其中任意单一方法。KHANDARKAEVA 等<sup>[41]</sup>指出, 使用含有亚铁离子和过硫酸盐的太阳强化氧化体系去除农药阿特拉津的效率远远高于仅用亚铁离子或太阳光活化方法的效率。同时, 铁化合物被证明不仅是催化剂, 而且是光敏剂, 能够导致溶液的吸光度增加。

当然, 热、电力、碱、紫外、超声波等活化方法之间也可以相互结合使用。XUE 等<sup>[42]</sup>将电化学助剂引入到热活化过硫酸盐工艺中, 再与  $\text{Fe}^{3+}$  相结合, 用于超滤后的垃圾渗滤液纳滤浓缩液进行处理。对比有无电辅助前后的去除差别, 发现引入电辅助法可大大提高 COD 的去除率 (从 66% 到 87%) 且几乎完全消除其急性毒性, 使之有利于接下来的生物处理。紫外光和热活化也可以结合使用, 有研究<sup>[43]</sup>报道, 增加紫外辐射功率、提高活化温度将会促进吸收-氧化烟气中的 NO 和  $\text{SO}_2$ 。然而, 在实际的水和燃煤烟气中, 各种杂质、灰尘或污垢广泛存在, 并且会附着在石英管的

表 7 过硫酸盐高级氧化技术的应用

Table 7 Application of advanced oxidation of persulfate

活化方法	目标污染物	降解条件				降解时间 $t$	研究领域	降解率/%	来源
		温度/ $^{\circ}\text{C}$	污染物浓度 $c$	PS浓度 $c$	pH				
热活化	香草醛、4-羟基苯甲醛、香草酸、4-羟基苯甲酸、紫丁香酸	80	$0.1 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$	$1.5 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$	6.0	1、2 h	废水	100	[45]
	双酚A	40、50、60、70	$20 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$	$4.38 \text{ mmol}\cdot\text{L}^{-1}$	7.0	1 h	水环境	2.65、19.21、40.98、98.38	[46]
	三氯生	50	$50 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$	$9.4 \text{ mmol}\cdot\text{L}^{-1}$	4.5	6 h	土壤	65	[47]
紫外光活化	异丙醇	20	$100 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$	$2.1 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$	7.0	20 min	工业废水	100	[48]
	土霉素	—	$10 \mu\text{mol}\cdot\text{L}^{-1}$	$1 \text{ mmol}\cdot\text{L}^{-1}$	7.0	10 h	水环境	100	[49]
	铜绿微囊藻	25	$1 \times 10^6 \text{ cell}\cdot\text{mL}^{-1}$	$6 \text{ mmol}\cdot\text{L}^{-1}$	7.0	2 h	水环境	98.2	[50]
$\text{Fe}^{2+}$ 活化	菲	$20 \pm 0.5$	$0.5 \text{ mmol}\cdot\text{L}^{-1}$	$0.5 \text{ mmol}\cdot\text{L}^{-1}$	3.0	20 min	水环境	100	[51]
	芘	30	$76.4 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$	$2.5 \text{ mmol}\cdot\text{g}^{-1}$	3.0	2 h	土壤	93.4	[52]
	甲苯	—	$1 \text{ mmol}\cdot\text{L}^{-1}$	$27.3 \text{ mmol}\cdot\text{L}^{-1}$	7.0	30 min	土壤	84.4	[53]
碱活化	柴油	50	$1 \times 10^4 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$	$0.5 \text{ mol}\cdot\text{L}^{-1}$	$>12$	14、28 d	土壤	30	[54]
	甲基叔丁基醚	—	$11.34 \text{ mmol}\cdot\text{L}^{-1}$	$170 \text{ mmol}\cdot\text{L}^{-1}$	$>12$	10 d	地下水	100	[55]
	苯酚	25	$10 \text{ mmol}\cdot\text{L}^{-1}$	$420 \text{ mmol}\cdot\text{L}^{-1}$	$>12$	168 h	土壤	100	[56]
超声波活化	1,1,1-三氯乙烷	$15 \pm 2$	$20 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$	$1.5 \text{ mmol}\cdot\text{L}^{-1}$	7.0	5 h	地下水	100	[57]
	1,4-二恶烷	$15 \pm 2$	$1.0 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$	$1.5 \text{ mmol}\cdot\text{L}^{-1}$	7.0	5 h	地下水	88	[57]
电活化	敌草隆	—	$10 \mu\text{mol}\cdot\text{L}^{-1}$	$0.5 \text{ mmol}\cdot\text{L}^{-1}$	7.0	15 min	工业废水	$>77$	[58]
	盐酸四环素 (TCH)	25	$50 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$	$12.6 \text{ mmol}\cdot\text{L}^{-1}$	4.42	4 h	工业废水	81.1	[35]
	六氯环己烷 (HCH)	—	$40 \mu\text{mol}\cdot\text{L}^{-1}$	$16 \text{ mmol}\cdot\text{L}^{-1}$	约6.8	6~8 h	地下水	约100	[59]
$\text{S}_2\text{O}_8^{2-}/\text{Fe}^{2+}/\text{CA}$	萘普生	$22 \pm 1$	$75 \mu\text{mol}\cdot\text{L}^{-1}$	$750 \mu\text{mol}\cdot\text{L}^{-1}$	5.0	45、120 min	地下水	$>99$	[60]
电化学/环形铁皮/PS	2,4-二硝基苯酚	$30 \pm 2$	$200 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$	$5 \text{ mmol}\cdot\text{L}^{-1}$	7.0	15 min	工业废水	63.4	[61]

表面,可能会阻碍紫外线的有效传输。为了克服这些问题,LIU等<sup>[44]</sup>使用超声波、二价铁与热共活化过硫酸盐体系也能达到吸收烟气中的NO和SO<sub>2</sub>的目的,实验表明28 kHz的超声波比40 kHz更有效。这是因为低频率超声波会产生更强的空化效应,导致更高的传质效率和自由基的产量。

总而言之,随着研究的不断深入,越来越多的活化方法、新型材料以及新兴污染物将会被研究者们探索发现。基于过硫酸盐的高级氧化法正在进行并持续朝着高效、经济、环境友好的方向不断发展。但是到目前为止,大量研究主要集中在水污染修复问题中。相对而言,成分更为复杂多变的土壤地下水环境污染修复中应用的挑战不容小觑,未来应给予更多关注。

### 3 结论

1) 从33年来过硫酸盐研究的文章数量增长趋势得出,研究初期发文数量少并且增长趋势较为波动,但随着对环境污染治理的不断重视,近些年增长趋势明显。同时,根据趋势线进一步预测未来对于过硫酸盐的研究将持续高涨。

2) 就发文国家和机构而言,我国对于过硫酸盐研究的重视程度在全球范围内居于榜首,中国的发文量在全球100个国家发表的7 734篇文章中约占一半(45.36%)。7个中国高等院校及机构排在了前10位,以997篇的发文量占纳入文献的12.89%。

3) 过硫酸盐研究主要的发文期刊集中在环境类影响因子较高的几种刊物,《Chemical Engineering Journal》引文频次达到13 040,影响因子也是前10期刊中最高(8.355),可见其在整个领域内的影响力以及对于活化过硫酸盐实际应用的重要性。主要的发文作者分布在中国,排名前10的作者中6位中国作者发文量达到264篇。

4) 关键词聚类分析聚焦为3类:第1类是关于过硫酸盐在工业领域的应用;第2类是在活化过硫酸盐过程中所涉及到不同阶段的相关反应,及其反应物对于整个体系的影响;第3类集中在活化过硫酸盐的氧化技术、活化方法和机理等,为其后的研究热点提供相关参考。

5) 从关键词的共现频次和出现的时间节点锁定过硫酸盐的研究热点主要集中在活化过硫酸盐的方法、在土壤-地下水等有机污染场地进行原位修复的应用研究。通过对不同的活化方法进行对比,活化过硫酸盐的氧化技术将随着对过渡金属活化和热活化的进一步研究而得到更有利的发展。同时,就不同的活化技术在反应过程中存在各种的缺陷,考虑将不同的活化方法进行结合使用,在反应过程中以优补缺提高活化效率。

### 参考文献

- [1] ZHOU Y Y, XIANG Y J, HE Y Z, et al. Applications and factors influencing of the persulfate-based advanced oxidation processes for the remediation of groundwater and soil contaminated with organic compounds[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2018, 359: 396-407.
- [2] WU Y, FAN L, HU S, et al. Role of dissolved iron ions in nanoparticulate zero-valent iron/H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> Fenton-like system[J]. *International Journal of Environmental Science and Technology*, 2019, 16(8): 4551-4562.
- [3] CHANG T Y, WANG Y, ZHANG Z C, et al. Critical roles of Fe<sup>2+</sup>/Fe<sup>3+</sup> in manipulating permanganate reactivity with zero-valent iron towards enhanced arsenite removal[J]. *Desalination and Water Treatment*, 2019, 162: 269-277.
- [4] SUN Q, ZHU G C, WANG C Y, et al. Removal characteristics of steroid estrogen in the mixed system through an ozone-based advanced oxidation process[J]. *Water, Air & Soil Pollution*, 2019, 230(9): 218-231.
- [5] LU C, YAO J, KNUDSEN T S, et al. Degradation of  $\alpha$ -nitroso- $\beta$ -naphthol by UVA-B activated peroxide, persulfate and

- monopersulfate oxidants in water[J]. *Journal of Cleaner Production*, 2019, 238: 117942-117951.
- [6] XU S, WANG W, ZHU L Z. Enhanced microbial degradation of benzo[a]pyrene by chemical oxidation[J]. *Science of the Total Environment*, 2019, 653: 1293-1300.
- [7] ZHOU Z, LIU X T, SUN K, et al. Persulfate-based advanced oxidation processes (AOPs) for organic-contaminated soil remediation: A review[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2019, 372: 836-851.
- [8] FANG G D, WU W H, DENG Y M, et al. Homogenous activation of persulfate by different species of vanadium ions for PCBs degradation[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2017, 323: 84-95.
- [9] CHEN X W, YANG B, OLESZCZUK P, et al. Vanadium oxide activates persulfate for degradation of polycyclic aromatic hydrocarbons in aqueous system[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2019, 364: 79-88.
- [10] YOO J, JEON P, TSANG D C W, et al. Ferric-enhanced chemical remediation of dredged marine sediment contaminated by metals and petroleum hydrocarbons[J]. *Environmental Pollution*, 2018, 243: 87-93.
- [11] ZGOU L, YANG X R, JI Y F, et al. Sulfate radical-based oxidation of the antibiotics sulfamethoxazole, sulfisoxazole, sulfathiazole, and sulfamethizole: The role of five-membered heterocyclic rings[J]. *Science of the Total Environment*, 2019, 692: 201-208.
- [12] XU X M, LIU D, CHEN W M, et al. Waste control by waste: Efficient removal of bisphenol A with steel slag, a novel activator of peroxydisulfate[J]. *Environmental Chemistry Letters*, 2018, 16(4): 1435-1440.
- [13] LI W Y, REN R P, LIU Y X, et al. Improved bioelectricity production using potassium monopersulfate as cathode electron acceptor by novel bio-electrochemical activation in microbial fuel cell[J]. *Science of the Total Environment*, 2019, 690: 654-666.
- [14] LU X H, ZHAO J N, WANG Q, et al. Sonolytic degradation of bisphenol S: Effect of dissolved oxygen and peroxydisulfate, oxidation products and acute toxicity[J]. *Water Research*, 2019, 165: 114969-114979.
- [15] LIU Y, GUO W L, GUO H S, et al. Cu (II)-doped  $V_2O_5$  mediated persulfate activation for heterogeneous catalytic degradation of benzotriazole in aqueous solution[J]. *Separation and Purification Technology*, 2020, 230: 115848-115855.
- [16] SADEGHI M, SADEGHI R, GHASEMI B, et al. Removal of azithromycin from aqueous solution using UV- light alone and UV plus persulfate (UV/ $Na_2S_2O_8$ ) processes[J]. *Iranian Journal Pharmaceutical Research*, 2018, 17: 54-64.
- [17] MATZEK L W, CARTER K E. Activated persulfate for organic chemical degradation: A review[J]. *Chemosphere*, 2016, 151: 178-188.
- [18] GAO Y, GE L, SHI S, et al. Global trends and future prospects of e-waste research: A bibliometric analysis[J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2019, 26(17): 17809-17820.
- [19] 陈能场, 郑煜基, 何晓峰, 等. 《全国土壤污染状况调查公报》探析[J]. *中国环保产业*, 2014, 36(5): 1689-1692.
- [20] 王琪, 王佳旭. 我国地下水污染现状与防治对策研究[J]. *环境与发展*, 2017(3): 106-107.
- [21] TSITONAKI A, PETRI B, CRIMI M, et al. In situ chemical oxidation of contaminated soil and groundwater using persulfate: A review[J]. *Critical Reviews in Environmental Science and Technology*, 2010, 40(1): 55-91.
- [22] TAYLOR A, ZRINYI N, MEZYK S P, et al. In-situ chemical oxidation of chlorendic acid by persulfate: Elucidation of the roles of adsorption and oxidation on chlorendic acid removal[J]. *Water Research*, 2019, 162: 78-86.



- [23] LIU Y, WANG S, WU Y, et al. Degradation of ibuprofen by thermally activated persulfate in soil systems[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2019, 356: 799-810.
- [24] ZRINYI N, PHAM A L T. Oxidation of benzoic acid by heat-activated persulfate: Effect of temperature on transformation pathway and product distribution[J]. *Water Research*, 2017, 120: 43-51.
- [25] SANTOS A, FERNANDEZ J, RODRIGUEZ S, et al. Abatement of chlorinated compounds in groundwater contaminated by HCH wastes using ISCO with alkali activated persulfate[J]. *Science of the Total Environment*, 2018, 615: 1070-1077.
- [26] LOMINCHAR M A, SANTOS A, DE MIGUEL E, et al. Remediation of aged diesel contaminated soil by alkaline activated persulfate[J]. *Science of the Total Environment*, 2018, 622: 41-48.
- [27] WEI Z Q, GAO T, WANG J Z, et al. Mn(II)-activated persulfate for oxidative degradation of DDT[J]. *Fresenius Environmental Bulletin*, 2018, 27(7): 4598-4605.
- [28] ZHEN G Y, LU X Q, SU L H, et al. Unraveling the catalyzing behaviors of different iron species ( $\text{Fe}^{2+}$  vs.  $\text{Fe}$ ) in activating persulfate-based oxidation process with implications to waste activated sludge dewaterability[J]. *Water Research*, 2018, 134: 101-114.
- [29] CHEN F, LI X, MA J, et al. Remediation of soil co-contaminated with decabromodiphenyl ether (BDE-209) and copper by enhanced electrokinetics-persulfate process[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2019, 369: 448-455.
- [30] CHEN Y, GAO S, LIU Z, et al. Prolonged persulfate activation by UV irradiation of green rust for the degradation of organic pollutants[J]. *Environmental Chemistry Letters*, 2019, 17(2): 1017-1021.
- [31] WANG X, DONG W, BRIGANTE M, et al. Hydroxyl and sulfate radicals activated by Fe(III)-EDDS/UV: Comparison of their degradation efficiencies and influence of critical parameters[J]. *Applied Catalysis B: Environmental*, 2019, 245: 271-278.
- [32] WANG S, ZHOU N. Removal of carbamazepine from aqueous solution using sono-activated persulfate process[J]. *Ultrasonics Sonochemistry*, 2016, 29: 156-162.
- [33] WU Y Q, SONG K. Effect of thermal activated peroxydisulfate pretreatment on short-chain fatty acids production from waste activated sludge anaerobic fermentation[J]. *Bioresour Technol*, 2019, 292: 121977-121984.
- [34] LUO T, WAN J, MA Y, et al. Sulfamethoxazole degradation by an Fe(II)-activated persulfate process: insight into the reactive sites, product identification and degradation pathways[J]. *Environmental Science: Processes and Impacts*, 2019, 21(9): 1560-1569.
- [35] LIU J, ZHONG S, SONG Y, et al. Degradation of tetracycline hydrochloride by electro-activated persulfate oxidation[J]. *Journal of Electroanalytical Chemistry*, 2018, 809: 74-79.
- [36] CHEN T S, MA J S, ZHANG Q X, et al. Degradation of propranolol by UV-activated persulfate oxidation: Reaction kinetics, mechanisms, reactive sites, transformation pathways and Gaussian calculation[J]. *Science of the Total Environment*, 2019, 690: 878-890.
- [37] LIU L, YAN H, YANG C, et al. Dewatering of drilling sludge by ultrasound assisted Fe(II)-activated persulfate oxidation[J]. *RSC Advances*, 2018, 8(52): 29756-29766.
- [38] WACLAWEK S, LUTZE H V, GRUBEL K, et al. Chemistry of persulfates in water and wastewater treatment: A review[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2017, 330: 44-62.

- [39] QI H, HUNG Y C. Effectiveness of activated persulfate in removal of foodborne pathogens from romaine lettuce[J]. *Food Control*, 2019, 106: 106708-106712.
- [40] AMOR C, RODRIGUEZ-CHUECA J, FERNANDES J L, et al. Winery wastewater treatment by sulphate radical based-advanced oxidation processes (SR-AOP): Thermally vs UV-assisted persulfate activation[J]. *Process Safety and Environmental Protection*, 2019, 122: 94-101.
- [41] KHANDARKHAEVA M, BATOEVA A, ASEEV D, et al. Oxidation of atrazine in aqueous media by solar-enhanced Fenton-like process involving persulfate and ferrous ion[J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2017, 137: 35-41.
- [42] XUE W J, CUI Y H, LIU Z Q, et al. Treatment of landfill leachate nanofiltration concentrate after ultrafiltration by electrochemically assisted heat activation of peroxydisulfate[J]. *Separation and Purification Technology*, 2020, 231: 115928-115936.
- [43] LIU Y X, WANG Y, XU W, et al. Simultaneous absorption-oxidation of nitric oxide and sulfur dioxide using ammonium persulfate synergistically activated by UV-light and heat[J]. *Chemical Engineering Research and Design*, 2018, 130: 321-333.
- [44] LIU Y, LIU Z, WANG Y, et al. Simultaneous absorption of SO<sub>2</sub>, and NO from flue gas using ultrasound/Fe<sup>2+</sup>/heat coactivated persulfate system[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2018, 342: 326-334.
- [45] 荣亚运, 师林丽, 张晨, 等. 热活化过硫酸盐氧化去除木质素降解产物[J]. *化工学报*, 2016, 67(6): 2618-2624.
- [46] 朱思瑞, 高乃云, 鲁仙, 等. 热激活过硫酸盐氧化降解水中双酚A[J]. *中国环境科学*, 2017, 37(1): 188-194.
- [47] CHEN L W, HU X X, CAI T M, et al. Degradation of triclosan in soils by thermally activated persulfate under conditions representative of in situ chemical oxidation (ISCO)[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2019, 369: 344-352.
- [48] LIN C C, TSAI C W. Degradation of isopropyl alcohol using UV and persulfate in a large reactor[J]. *Separation and Purification Technology*, 2019, 209: 88-93.
- [49] LIU Y, HE X, FUY, et al. Kinetics and mechanism investigation on the destruction of oxytetracycline by UV<sub>254nm</sub> activation of persulfate[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2016, 305: 229-239.
- [50] WANG Z, CHEN Y, XIE P, et al. Removal of *Microcystis aeruginosa* by UV-activated persulfate: Performance and characteristics[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2016, 300: 245-253.
- [51] YU S X, GU X G, LU S G, et al. Degradation of phenanthrene in aqueous solution by a persulfate/percarbonate system activated with CA chelated-Fe(II)[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2018, 333: 122-131.
- [52] 张宏玲, 李森, 张杨, 等. 过渡金属离子活化过硫酸盐去除土壤中的砒[J]. *环境工程学报*, 2016, 10(10): 6009-6014.
- [53] LONG A, LEI Y, ZHANG H. Degradation of toluene by a selective ferrous ion activated persulfate oxidation process[J]. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 2014, 53(3): 1033-1039.
- [54] LIANG C, GUO Y Y. Remediation of diesel-contaminated soils using persulfate under alkaline condition[J]. *Water, Air & Soil Pollution*, 2012, 223(7): 4605-4614.
- [55] DENG D, PENG L, GUAN M, et al. Impact of activation methods on persulfate oxidation of methyl tert-butyl ether[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2014, 264(2): 521-528.
- [56] LOMINCHAR M A, RODRIGUEZ S, LORENZO D, et al. Phenol abatement using persulfate activated by nZVI, H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> and NaOH and development of a kinetic model for alkaline activation[J]. *Environmental Technology*, 2018, 39(1): 35-43.

- [57] LI B, ZHU J. Simultaneous degradation of 1,1,1-trichloroethane and solvent stabilizer 1,4-dioxane by a sono-activated persulfate process[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2016, 284: 750-763.
- [58] YU Y, ZHOU S, BU L, et al. Degradation of diuron by electrochemically activated persulfate[J]. *Water, Air & Soil Pollution*, 2016, 227(8): 279-287.
- [59] WACLAWEK S, ANTOS V, HRABAK P, et al. Remediation of hexachlorocyclohexanes by electrochemically activated persulfates[J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2016, 23(1): 765-773.
- [60] DULOVA N, KATTEL E, TRAPIDO M J C E J. Degradation of naproxen by ferrous ion-activated hydrogen peroxide, persulfate and combined hydrogen peroxide/persulfate processes: The effect of citric acid addition[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2016, 318: 254-263.
- [61] LI J, REN Y, LAI L, et al. Electrolysis assisted persulfate with annular iron sheet as anode for the enhanced degradation of 2,4-dinitrophenol in aqueous solution[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2018, 344: 778-787.

(本文编辑: 郑晓梅)

## Global trends of activated persulfate oxidation technology based on bibliometric analysis

PU Shengyan<sup>1,2,3,\*</sup>, LYU Xue<sup>1,2</sup>, ZHANG Ying<sup>1,2</sup>

1. School of Ecological and Environmental Sciences, Chengdu University of Technology, Chengdu 610059, China

2. State Environmental Protection Key Laboratory of Synergetic Control and Joint Remediation for Soil & Water Pollution, Chengdu University of Technology, Chengdu 610059, China

3. State Key Laboratory of Environmental Criteria and Risk Assessment, China Academy of Environmental Sciences, Beijing 100012, China

\*Corresponding author, E-mail: pushengyan@cduet.edu.cn

**Abstract** Formation of sulfate radicals via activation of persulfate (PS) is an emerging advanced oxidation technology, this method has received a wide attention in remediation for soil & water pollution for its low-toxic, high efficient, economic and environmental friendly properties. Based on bibliometrics and network graph analysis methods, this study reviewed and combed the academic literatures on persulfate from 1986 to 2019 using the Web of Science core database. VOSviewer (version 1.6.13) software was used to analyzes the countries, institutions, authors, journals, citations and keywords of persulfate related researches in the world, and the keywords network map and density map were drawn to analyze the study history of persulfate, current research focus and development prospects. The results showed that the research hotspots focused on the advanced oxidation technology, activation method, oxidation kinetics, mechanism, and application in remediation of soil and groundwater. Regarding on practical application of PS activation radicals, we also summarized the activation methods of persulfate and their actual application for degrading pollutants, raised the current research challenges and the prospects for future research directions, so as to provide reference for the further development and research of activated persulfate oxidation technology in environmental remediation.

**Keywords** activated persulfate; sulfate radical; advanced oxidation; research trend; bibliometric