

DOI:10.3969/j.issn.1003-5060.2024.03.017

# 等离子体活化过硫酸盐降解对乙酰氨基酚机理研究

叶朝兵<sup>1</sup>, 许子牧<sup>1</sup>, 胡淑恒<sup>1</sup>, 兰彦<sup>2</sup>, 程诚<sup>2</sup>

(1. 合肥工业大学 资源与环境工程学院, 安徽 合肥 230009; 2. 中国科学院等离子体物理研究所, 安徽 合肥 230031)

**摘要:**过硫酸盐(persulfate, PS)可被活化产生具有强氧化性的硫酸根自由基( $\text{SO}_4^{\cdot-}$ ), 利用介质阻挡放电(dielectric barrier discharge, DBD)等离子体活化 PS 降解水中对乙酰氨基酚(acetaminophen, AP), 研究 AP 初始质量浓度、工作气体流量和 PS 投加量对降解效果的影响, 利用高效液相色谱-质谱联用仪对可能的降解产物和降解路径进行分析和推测。实验结果表明, 等离子体/PS 能有效去除水中 AP, AP 的去除率随着初始质量浓度的增加而降低, 气体流量对降解效果影响较大, 适当增加流量可促进 AP 的降解, 当流量超过 50 L/h 后, 促进效果逐渐减弱, PS 的加入能加速 AP 的降解, 当 PS 投加量为 0.75 g/L 时, 处理效果最佳。实验处理废水过程中, AP 会被分解为小分子物质、 $\text{CO}_2$  和  $\text{H}_2\text{O}$ , 在添加 PS 后, 矿化率是单独等离子体处理的 2.1 倍。

**关键词:**介质阻挡放电(DBD); 对乙酰氨基酚(AP); 过硫酸盐(PS); 降解; 低温等离子体

中图分类号: X506

文献标志码: A

文章编号: 1003-5060(2024)03-0392-06

## Study on the mechanism of degradation of acetaminophen by persulfate activated by plasma

YE Chaobing<sup>1</sup>, XU Zimu<sup>1</sup>, HU Shuheng<sup>1</sup>, LAN Yan<sup>2</sup>, CHENG Cheng<sup>2</sup>

(1. School of Resources and Environmental Engineering, Hefei University of Technology, Hefei 230009, China; 2. Institute of Plasma Physics, Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031, China)

**Abstract:** Persulfate(PS) can be activated to produce strong oxidizing sulfate radical( $\text{SO}_4^{\cdot-}$ ), the dielectric barrier discharge(DBD) plasma activated PS was used to degrade acetaminophen(AP) in water. The effects of initial concentration of AP, working gas flow rate and dosage of PS on the degradation effect were studied, and the possible degradation products and degradation paths were analyzed and speculated by mass spectrometry. The experimental results show that plasma/PS can effectively remove AP from water, and the removal rate of AP decreases with the increase of its initial concentration. The gas flow rate has a great influence on the degradation effect, and increasing the flow rate appropriately can promote the degradation of AP. When the flow rate exceeds 50 L/h, the promoting effect is gradually weakened, and the addition of PS can accelerate the degradation of AP. When the dosage of PS is 0.75 g/L, the treatment effect is the best. In the process of experimental treatment of wastewater, AP will be decomposed into small molecules,  $\text{CO}_2$  and  $\text{H}_2\text{O}$ , and the mineralization rate after adding PS is 2.1 times that of plasma treatment alone.

**Key words:** dielectric barrier discharge(DBD); acetaminophen(AP); persulfate(PS); degradation; non-thermal plasma

收稿日期: 2021-04-19; 修回日期: 2021-07-05

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(51777206; 51807046; 51877208); 安徽省医学物理与技术重点实验室基金资助项目(LMPT2017Y7BP0U1581)和合肥工业大学博士点专项研究基金资助项目(JZ2017HGBZ0944)

作者简介: 叶朝兵(1994—), 男, 安徽安庆人, 合肥工业大学硕士生;

许子牧(1988—), 男, 安徽合肥人, 博士, 合肥工业大学副教授, 硕士生导师, 通信作者, E-mail: xzm666@hfut.edu.cn.

药品及个人护理产品 (pharmaceutical and personal care products, PPCPs) 包括激素、止痛药、抗生素、细胞抑制剂和消炎药等。由于在环境中普遍存在的包括医用活性化合物、个人护理产品、人工甜味剂和内分泌干扰物质在内的新兴污染物可能会对生态环境造成不良效应,这些新兴污染物已经引起了国内外学者的广泛关注<sup>[1]</sup>。数千种 PPCPs 在被生物体使用后会通过多种途径进入水环境,包括从城市直接排放未经处理或处理过的废水,再经过多种降解反应(例如化学氧化、生物降解和光降解等)会转化成为多种其他降解产物<sup>[2]</sup>。中国作为世界上最大的 PPCPs 生产量和消耗量国家之一<sup>[3]</sup>,2001 年排放进入环境中的抗生素<sup>[4]</sup> 预计达到了 180 000 t。对乙酰氨基酚 (acetaminophen, AP) 又名扑热息痛,是最常见的 PPCPs 之一,同时也是最常见的非抗炎解热镇痛药之一,由于 AP 的广泛应用导致其产量的增加及在环境中被频繁检出。这些越来越常见的药物对全球水质来说都是一个巨大的挑战,对人类健康和生态系统都可能构成严重威胁<sup>[5-6]</sup>。然而 AP 在污水处理厂的去除率有限,甚至导致二次污染,文献<sup>[7]</sup>在废水排放口附近的海水中检测到质量浓度高达 200  $\mu\text{g/L}$  的药物。这些污染物质在水中的持续存在会导致水生生物中毒,毒性作用通常包括慢性和急性<sup>[8]</sup>。

传统污水处理厂的处理工艺在去除抗生素药物等 PPCPs 时能力效率有限,研究新型高级氧化技术去除新兴污染物成为热点<sup>[9-10]</sup>,介电阻挡放电 (dielectric barrier discharge, DBD) 低温等离子体是一种新型的高级氧化技术,能与反应液面直接接触,通过放电反应产生活性氧 (reactive oxygen species, ROS)<sup>[11]</sup>,与常规的高级氧化技术相比较,低温等离子体处理工艺会伴随产生紫外光辐射、高能电子轰击作用、氧化活性粒子等多因素的协同作用,这就成为集合光催化氧化法、紫外光催化氧化法、电化学催化氧化法和超临界水氧化法一体的新型水处理技术,具有很多独特优势<sup>[12-13]</sup>。因此利用大气压低温等离子体在降解难处理水体中的 PPCPs,甚至是难降解有机污染物和提高废水的可生化性等方面具有明显的优势。

在等离子体体系中添加其他氧化剂或者别的催化剂,能够进一步促进有机污染物的降解,从而提高整个体系的降解效率,文献<sup>[14]</sup>将过硫酸盐 (persulfate, PS) 加入到等离子体实验体系中,研

究协同降解效果,PS( $E_0=2.01\text{ V}$ )相较于传统高级氧化工艺有诸多优点,例如 PS 在水中有较高的溶解度,在室温下能稳定存在等<sup>[15-17]</sup>,因此被认为是降解有机污染物的潜在可替代方案,且等离子体会活化过硫酸根阴离子 ( $\text{S}_2\text{O}_8^{2-}$ ) 产生硫酸根自由基 ( $\text{SO}_4^{\cdot-}$ ),这些产生的活性基团具有强氧化性,相比于  $\cdot\text{OH}$ ,  $\text{SO}_4^{\cdot-}$  存在时间相对较长,具有更高的半衰期,且更具有反应选择性<sup>[18-19]</sup>,可代替或增强羟基自由基的活性。

活化过硫酸盐需要补充外部能量、物质才能反应生成具有氧化性的活性基团,因此,本文采用一种等离子体放电装置协同 PS 对 AP 进行降解效果研究。通过改变污染物初始质量浓度、工作气体流量和过硫酸盐投加量等参数来探究其对 AP 降解的影响,并通过高效液相色谱-飞行时间质谱联用仪分析可能的降解路径。

## 1 材料与方法

### 1.1 主要材料和试剂

AP(分析纯)、过硫酸钠(分析纯)、甲醇(色谱级)和乙腈(色谱级)均购于上海阿拉丁试剂有限公司。

### 1.2 实验仪器

CTP-2000K 等离子体高频高压电源(南京苏克曼等离子体科技有限公司);1260 Infinity 高效液相色谱(安捷伦);分析天平;UPR-II-10TNZ 纯水机(优普超纯科技有限公司);LZB-4 玻璃转子流量计(振兴流量仪表厂);ACQUITY UPLC LCT Premier XE 高效液相色谱-飞行时间质谱联用仪(Waters)。

### 1.3 等离子体放电装置

等离子体放电装置如图 1 所示。图 1 中,反应器高压电极是由一根直径为 2.5 mm 的铜棒嵌套于内管内径为 2.5 mm 的石英管中所组成,其中石英管一头封闭,作为绝缘介质层。铜棒与等离子体高压电源相连,作为高压电极。该高压电极密封固定于与其同轴的石英管中,石英管底端开有直径为 2 mm 的小孔,工作气流可以将放电产生的等离子体和反应气体吹出,石英管外部还与一根外径为 6 mm 的石英管相通,反应器在工作时工作气体从进气口被鼓入,该等离子体装置固定于与其同轴的反应容器中,整个反应容器内径为 50 mm,高 300 mm。被绝缘层包裹的铜制导线与位于反应器底部直径为 40 mm 的铜片直接相连接,同时与螺旋缠绕于石英管上的铜丝连

接,铜丝和铜片为等离子体反应器的地电极,高压电极与铜丝之间的放电为气相放电,在实验过程中,高压电极与铜片之间由于存在持续被鼓入的气体和反应器内的溶液混合,因此这部分的放电为气液相放电。反应容器设置有一个出气口,实验过程需要排出的气体从出气口排出。与反应器底端相连通的石英玻璃管为实验体系出水口,反应器中上部分的石英玻璃管为进水口。

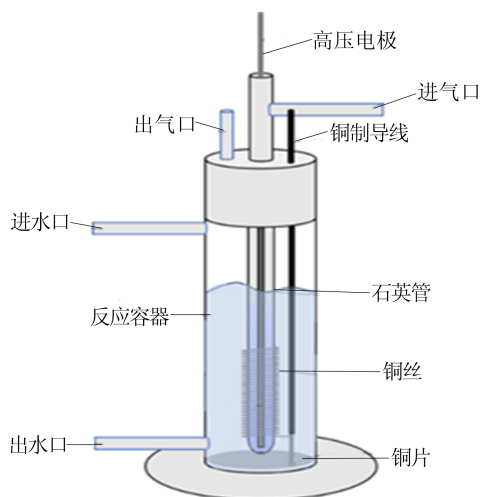


图 1 等离子体放电装置

#### 1.4 实验方法

AP 溶液定量通过高效液相色谱测定,用标准储备液分别配置质量浓度为 0.3、3.0、7.5、15.0、30.0、50.0、100.0 mg/L 的 AP 待测溶液,使用高效液相色谱检测,可得的标准曲线回归方程为  $y=80.22052x+55.79376$ ,相关系数为  $R^2=0.99963$ ,拟合结果表明在一定范围内,液体中 AP 质量浓度与其特征峰吸收面积呈现良好的线性关系。AP 降解率计算公式为:

$$\eta = (\rho_0 - \rho_1) / \rho_0 \times 100\% \quad (1)$$

其中: $\eta$  为 AP 降解率; $\rho_0$  为 AP 溶液初始质量浓度; $\rho_1$  为实验结束后液体中 AP 的质量浓度。

高效液相色谱具体实验条件:色谱柱为  $C_{18}$  (250 nm $\times$ 4.6 nm $\times$ 5 m);流动相为甲醇和超纯水,两者体积比为 30:70;柱温设置为 30 $^{\circ}$ C;流动相流速为 0.8 mL/min;检测波长为 243 nm;每次进样 20 L;检测时间为 10 min。

开始实验前配制 200 mL 待处理液,调节气体流速和放电电压。使用不同条件处理对乙酰氨基酚溶液,初始质量浓度分别为 10、30、60 mg/L;空气流量分别为 25、50、75、100 L/h;PS 投加量分别为 0、0.75、5.00 g/L,处理 60 min,每 10 min

取样测定质量浓度,计算降解率。

AP 的降解产物可通过高效液相色谱-飞行时间质谱联用仪来分析,色谱柱为  $C_{18}$  (250 nm $\times$ 4.6 nm $\times$ 5  $\mu$ m);流动相为甲醇和超纯水,体积比为 30:70;毛细管温度为 375 $^{\circ}$ C;流动相流速为 0.8 mL/min; $m/z$  扫描范围为 50~750;采用全扫描模式;喷雾电压为 3.5 kV。

## 2 结果与讨论

### 2.1 初始质量浓度对降解效率的影响

AP 初始质量浓度对降解率的影响如图 2 所示。从图 2 可以看出,当实际放电功率为 35 W 且空气流量(50 L/h)相同时,随着 AP 初始质量浓度的增加,对 AP 的降解效果逐渐减弱;当使用等离子体处理对乙酰氨基酚 40 min 时,初始质量浓度为 10、30、60 mg/L 的实验体系降解率分别为 100%、89%、74%。等离子体在放电过程中能产生 ROS,ROS 的存在会有利于水中 AP 的降解,实验体系其他各种影响因子不变,每组实验中单位时间内放电区域产生的活性粒子数量差别不大,因此在单位时间内能与溶液中有有机物反应碰撞的活性粒子是有限的,随着反应时间的增加,AP 逐渐减少,其他降解产物会持续增加,这些降解产物同时会与放电产生的活性粒子发生反应,即会与溶液中 AP 存在竞争关系<sup>[20]</sup>。随着溶液中 AP 质量浓度的增加,在放电区域里存在的副产物浓度也随之增大,降解产物与 AP 之间的竞争关系更强,最终导致高质量浓度 AP 溶液的降解率降低。

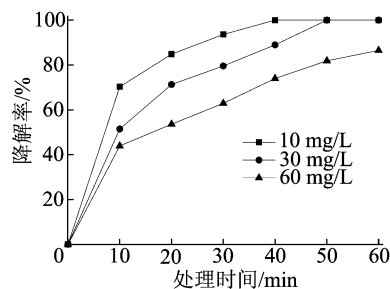


图 2 AP 初始质量浓度对降解效率的影响

### 2.2 空气流量对降解效率的影响

空气流量对 AP 降解效果的影响如图 3 所示。由图 3 可知:在实际放电功率为 35 W 且 AP 初始质量浓度为 30 mg/L 的情况下,适当增加空气流量有利于 AP 的降解;流量为 25 L/h 时降解率达到 100%所需要的时间为 60 min,然而当流

量为 50 L/h 时降解率达到 100% 所需要的时间减少 10 min, 这由于在一定范围内提高空气的流量会导致放电产生的活性物质增加<sup>[21]</sup>, 同时其流量的增加也会导致活性物质与溶液中有机的碰撞机率增加, 从而导致降解率的增加。

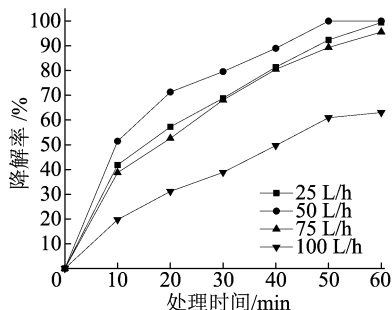
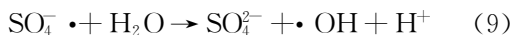
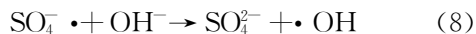


图 3 空气流量对降解效率的影响

当空气流量逐渐增大到 100 L/h 时, 降解效率大大降低, 这是由于大流量的气体通过孔径为 2 mm 的射流孔时伴随着高压电源显示电流大幅度减小, 说明气体流速的快速增大使得射流孔附近的放电区域放电不稳定, 减少放电产生的活性粒子, 使得与水中污染物碰撞反应的几率减小, 从而导致降解效果减弱。

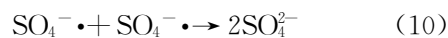
### 2.3 PS 对降解效率的影响

等离子体放电会活化过硫酸盐产生  $\cdot\text{OH}$  和  $\text{SO}_4^{\cdot-}$ , 相关反应方程式如下:



PS 投加量对降解效率的影响结果如图 4 所示, 从图 4 可以看出, 在添加 PS 后实验体系中  $\text{SO}_4^{\cdot-}$  的质量浓度大大增加<sup>[22]</sup>, 而强氧化性的  $\text{SO}_4^{\cdot-}$  的半衰期比  $\cdot\text{OH}$  长, 在水体中存在的时间能够直接影响活性物质与 AP 碰撞反应的几率。根据反应式(4)、式(6)、式(9), 在添加 PS 后溶液中  $\cdot\text{OH}$  的含量也相应增加, 因此在加入 PS 后 AP 的降解率大大增加, 相较于没有添加 PS 的实验组, 在 PS 质量浓度为 0.75 g/L 时降解 15 min 对乙酰氨基酚降解率即达到 100%, 提前了 25 min, 说明等离子体能够有效活化 PS 产生

有利于反应的自由基。但是当 PS 质量浓度过高时, 例如 PS 质量浓度为 5.00 g/L, AP 的降解开始减弱, 这是由于 PS 质量浓度过高时, 产生的硫酸根自由基之间会发生如下反应<sup>[23]</sup>:



活性物质减少不利于污染物的降解。同时从式(8)和式(9)可以看出, 添加 PS 后水中硫元素反应的最终产物为硫酸根离子, 而硫酸根离子则被认为对环境无害, 因此 PS 被用作催化剂氧化降解污染物是非常有潜力的。

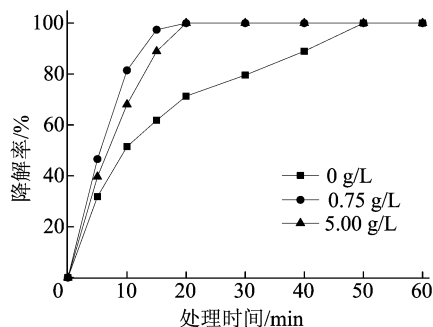


图 4 PS 投加量对降解效率的影响

### 2.4 AP 降解路径分析

高效液相色谱特征峰变化如图 5 所示, 由图 5 可知, 在 AP 初始质量浓度为 30 mg/L、气流量为 50 L/h 和 PS 投加量为 0.75 g/L 的条件下处理 60 min 的过程中会形成 4 个清晰峰, 在 DBD 等离子体/PS 降解 AP 20 min 后, AP 特征峰趋于平缓, 且难以积分, 从各个时间线上的峰图变化来看, 在处理 5 min 即有降解副产物特征峰出现时, 随着时间迁移, AP 主峰峰高开始降低, 副产物峰图开始变多, 峰高变高, 且至少有 4 种副产物。

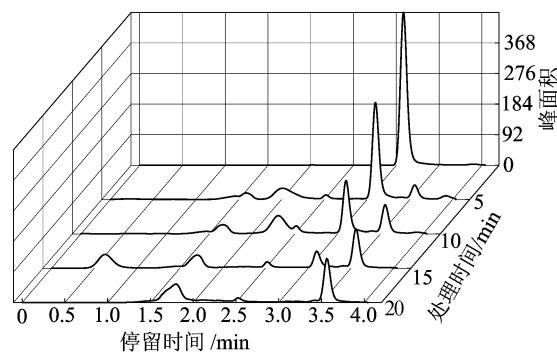


图 5 高效液相色谱特征峰变化

结合质谱图和相关的研究成果推测可能的降解产物见表 1 所列。

DBD 等离子体/PS 降解 AP 的降解路径如图 6 所示。等离子体放电产生的  $\cdot\text{OH}$  会在实验期间持续攻击 AP 分子, 污染物被氧化发生反应生成 3,4-二羟基-苯甲酰胺(P1,  $m/z=164$ ), 生成的 P1 会继续与溶液中的  $\cdot\text{OH}$  碰撞发生开环反应, 生成小分子物质, 苯环上的乙酰基( $-\text{C}_2\text{H}_4\text{NO}$ )会被氧化成乙酰胺(P5,  $m/z=59$ )和苯酚, 剩下的苯酚则会被氧化为小分子酸乙二酸(P4,  $m/z=104$ )。

表 1 AP 可能的降解产物

编号	分子式	$m/z$	名称
P1	$\text{C}_9\text{H}_{10}\text{NO}_2$	164	3,4-二羟基苯甲酰胺
P2	$\text{C}_6\text{H}_7\text{NO}$	109	4-氨基酚
P3	$\text{COOH}$	47	甲酸
P4	$\text{C}_3\text{H}_4\text{O}_4$	104	乙二酸
P5	$\text{C}_2\text{H}_5\text{NO}$	59	乙酰胺
P6	$\text{C}_3\text{H}_7\text{N}$	57	2-氨基丙烯

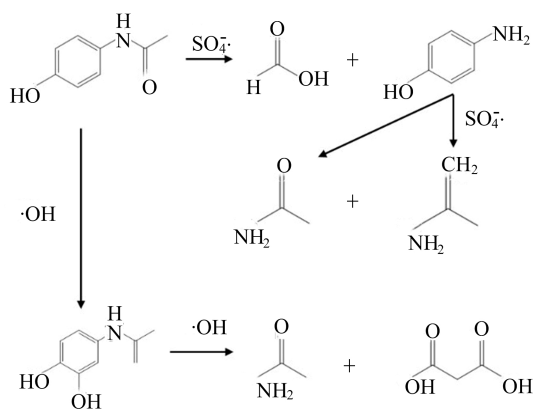


图 6 AP 可能的降解路径

经过等离子体放电活化的 PS 会产生  $\text{SO}_4^{\cdot-}$ , 水中已经存在的  $\cdot\text{OH}$  会和半衰期更长的  $\text{SO}_4^{\cdot-}$  首先攻击 AP 分子中乙酰基的碳氮键( $-\text{N}-\text{CH}=\text{O}$ ), 胺基的位置被羟基取代产生一元有机酸甲酸(P3,  $m/z=47$ ), 同时会生成 4-氨基酚(P2,  $m/z=109$ ), 4-氨基酚会在  $\cdot\text{OH}$  和  $\text{SO}_4^{\cdot-}$  的持续作用下发生开环反应, 生成乙酰胺(P5,  $m/z=59$ )和 2-氨基丙烯(P6,  $m/z=57$ ), 在等离子体持续放电作用下, 溶液中这些降解副产物会被继续氧化为  $\text{CO}_2$  和  $\text{H}_2\text{O}$ , 同时水中总有机碳(total organic carbon, TOC)也会相应降低, 降解产物与文献[24-25]的研究成果类似。

不同 PS 投加量对 TOC 去除率的影响如图 7 所示, 从图 7 可以看出, 不添加 PS 时, TOC 去除率为 5.62%, PS 的投加量为 0.75 g/L 时, TOC

去除率增加了 6.26%, 说明等离子体并不能在此实验体系下将 AP 完全矿化。等离子体活化 PS 降解废水后 TOC 去除率略有上升, 说明 PS 被等离子体活化后对 AP 的矿化起到促进作用。

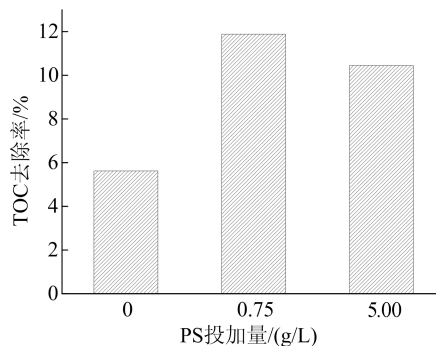


图 7 不同 PS 投加量对 TOC 去除率的影响

### 3 结 论

本文以 AP 作为研究对象, 利用介质阻挡放电等离子体活化 PS 对 AP 的降解效果进行研究, 分析降解产物, 推测可能的降解路径。探究初始质量浓度、空气流量和催化剂投加量对降解效果的影响。研究发现 DBD 等离子体协同 PS 可以实现对 AP 的高效降解。在 AP 的初始质量浓度为 30 mg/L、空气流量为 50 L/h、PS 的投加量为 0.75 g/L 时, 20 min 处理即可达到 100% 的降解率, 且水中的 AP 被降解为小分子物质。由于反应产生的副产物会在实验体系中与 AP 存在竞争关系, 因此在一定范围内, 增加初始质量浓度会影响降解效果, PS 的过量加入会影响水中的  $\text{SO}_4^{\cdot-}$  含量从而影响降解效果, 空气流量过大会影响等离子体放电且不利于 AP 的降解。PS 的加入能提升 AP 的矿化度。

### [参 考 文 献]

- [1] VERLICCHI P, ZAMBELLO E. Pharmaceuticals and personal care products in untreated and treated sewage sludge: occurrence and environmental risk in the case of application on soil—a critical review[J]. *Sci Total Environ*, 2015, 538: 750-767.
- [2] MENG Y, LIU W, LIU X, et al. A review on analytical methods for pharmaceutical and personal care products and their transformation products[J]. *J Environ Sci (China)*, 2021, 101: 260-281.
- [3] RICHARDSON B J, LAM P K, MARTIN M. Emerging chemicals of concern: pharmaceuticals and personal care products (PPCPs) in Asia, with particular reference to

- Southern China[J]. Mar Pollut Bull, 2005, 50(9): 913-920.
- [4] SU C, CUI Y, LIU D, et al. Endocrine disrupting compounds, pharmaceuticals and personal care products in the aquatic environment of China: which chemicals are the prioritized ones? [J]. Sci Total Environ, 2020, 720: 137652.
- [5] VARELA A R, NUNES O C, MANAIA C M. Quinolone resistant *Aeromonas* spp. as carriers and potential tracers of acquired antibiotic resistance in hospital and municipal wastewater[J]. Sci Total Environ, 2016, 542 (Pt A): 665-671.
- [6] IVANOVA L, MACKULAK T, GRABIC R, et al. Pharmaceuticals and illicit drugs—a new threat to the application of sewage sludge in agriculture[J]. Sci Total Environ, 2018, 634: 606-615.
- [7] TOGOLA A, BUDZINSKI H. Multi-residue analysis of pharmaceutical compounds in aqueous samples[J]. J Chromatogr A, 2008, 1177(1): 150-158.
- [8] TROMBINI C, HAMPEL M, BLASCO J. Evaluation of acute effects of four pharmaceuticals and their mixtures on the copepod *Tisbe battagliai*[J]. Chemosphere, 2016, 155: 319-328.
- [9] IAKOVIDES I C, MICHAEL-KORDATOU I, MOREIRA N F F, et al. Continuous ozonation of urban wastewater: removal of antibiotics, antibiotic-resistant *Escherichia coli* and antibiotic resistance genes and phytotoxicity[J]. Water Res, 2019, 159: 333-347.
- [10] KANAKARAJU D, GLASS B D, OELGEMOLLER M. Advanced oxidation process-mediated removal of pharmaceuticals from water: a review[J]. J Environ Manage, 2018, 219: 189-207.
- [11] BRADU C, KUTASI K, MAGUREANU M, et al. Reactive nitrogen species in plasma-activated water: generation, chemistry and application in agriculture [J]. Journal of Physics D: Applied Physics, 2020, 53(22): 223001.
- [12] GUR-REZNIK S, AZERRAD S P, LEVINSON Y, et al. Iodinated contrast media oxidation by nonthermal plasma: the role of iodine as a tracer[J]. Water Res, 2011, 45(16): 5047-5057.
- [13] KRAUSE H, SCHWEIGER B, PRINZ E, et al. Degradation of persistent pharmaceuticals in aqueous solutions by a positive dielectric barrier discharge treatment[J]. Journal of Electrostatics, 2011, 69(4): 333-338.
- [14] LIU Y, QU G, SUN Q, et al. Endogenously activated persulfate by non-thermal plasma for Cu(II)-EDTA decomplexation: synergistic effect and mechanisms[J]. Chemical Engineering Journal, 2021, 406: 126774.
- [15] CRIQUET J, LEITNER N K V. Degradation of acetic acid with sulfate radical generated by persulfate ions photolysis [J]. Chemosphere, 2009, 77(2): 194-200.
- [16] LIN Y T, LIANG C, CHEN J H. Feasibility study of ultra-violet activated persulfate oxidation of phenol[J]. Chemosphere, 2011, 82(8): 1168-1172.
- [17] ANTONIOU M G, DE LA CRUZ A A, DIONYSIOU D D. Degradation of microcystin-LR using sulfate radicals generated through photolysis, thermolysis and e-transfer mechanisms [J]. Applied Catalysis B: Environmental, 2010, 96(3): 290-298.
- [18] JONIDI JAFARI A, KAKAVANDI B, JAAFARZADEH N, et al. Fenton-like catalytic oxidation of tetracycline by AC@Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> as a heterogeneous persulfate activator: adsorption and degradation studies[J]. Journal of Industrial and Engineering Chemistry, 2017, 45: 323-333.
- [19] CHAKMA S, PRANEETH S, MOHOLKAR V S. Mechanistic investigations in sono-hybrid (ultrasound/Fe<sup>2+</sup>/UVC) techniques of persulfate activation for degradation of Azorubine [J]. Ultrasonics Sonochemistry, 2017, 38: 652-663.
- [20] CHANDANA L, MANOJ KUMAR REDDY P, SUBRAHMANYAM C. Atmospheric pressure non-thermal plasma jet for the degradation of methylene blue in aqueous medium[J]. Chemical Engineering Journal, 2015, 282: 116-122.
- [21] 薛晓娟, 杨帆, 许子牧, 等. 线-筒式介质阻挡放电等离子体失活水华鱼腥藻和同步降解鱼腥藻毒素的效果[J]. 安徽农业大学学报, 2019, 171(5): 90-97.
- [22] SHANG K, WANG X, LI J, et al. Synergetic degradation of Acid Orange 7 (AO7) dye by DBD plasma and persulfate [J]. Chemical Engineering Journal, 2017, 311: 378-384.
- [23] MONTEAGUDO J M, DURAN A, GONZALEZ R, et al. In situ chemical oxidation of carbamazepine solutions using persulfate simultaneously activated by heat energy, UV light, Fe<sup>2+</sup> ions, and H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>[J]. Applied Catalysis B: Environmental, 2015, 176/177: 120-129.
- [24] KOHANTORABI M, MOUSSAVI G, MOHAMMADI S, et al. Photocatalytic activation of peroxymonosulfate (PMS) by novel mesoporous Ag/ZnO@NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> nanorods, inducing radical-mediated acetaminophen degradation under UVA irradiation[J]. Chemosphere, 2021, 277: 130271.
- [25] MORADI S, ISARI A A, HAYATI F, et al. Co-implanting of TiO<sub>2</sub> and liquid-phase-delaminated g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub> on multi-functional graphene nanobridges for enhancing photocatalytic degradation of acetaminophen [J]. Chemical Engineering Journal, 2021, 414: 128618.

(责任编辑 闫杏丽)