

DOI:10.19853/j.zgjsps.1000-4602.2022.13.011

过一硫酸盐直接氧化降解吡啶的反应条件和机制

王鹏莹^{1,2}, 苏冰琴^{1,2}, 彭娅娅¹, 温宇涛^{1,2}, 郭越^{1,2}, 李瑞¹

(1. 太原理工大学 环境科学与工程学院, 山西 太原 030024; 2. 山西省市政工程研究生教育创新中心, 山西 太原 030024)

摘要: 采用过一硫酸盐(PMS)直接氧化降解废水中的氮杂环化合物吡啶,考察了PMS投加量、pH、共存阴离子(Cl^- 、 HCO_3^- 、 NO_3^-)和腐殖酸(HA)对吡啶降解效果的影响。结果表明,PMS直接氧化去除吡啶的过程符合拟一级反应动力学。当吡啶初始浓度为8.0 mg/L、pH为7.0、反应温度为25℃、PMS投加量为4.0 mmol/L时,反应150 min后对吡啶的降解率可达到93.66%。水中 Cl^- 、 HCO_3^- 、 NO_3^- 和HA的存在均对吡啶的降解没有明显影响。自由基鉴定实验结果显示,PMS体系中未产生硫酸根自由基($\text{SO}_4^{\cdot-}$)和羟基自由基($\cdot\text{OH}$),有少量单线态氧($^1\text{O}_2$)生成,PMS的直接氧化作用是吡啶降解的主要因素。通过GC-MS分析检测到PMS直接氧化降解吡啶的中间产物为N,N-二甲基丙烯酰胺、草酸、乙酸等低毒性有机化合物。

关键词: 过一硫酸盐; 直接氧化; 吡啶; 氮杂环化合物; 反应机制

中图分类号: TU992 **文献标识码:** A **文章编号:** 1000-4602(2022)13-0064-07

Reaction Conditions and Mechanism of Peroxymonosulfate for Direct Oxidative Degradation of Pyridine

WANG Peng-ying^{1,2}, SU Bing-qin^{1,2}, PENG Ya-ya¹, WEN Yu-tao^{1,2}, GUO Yue^{1,2}, LI Rui¹

(1. College of Environmental Science and Engineering, Taiyuan University of Technology, Taiyuan 030024, China; 2. Municipal Engineering Graduate Education Innovation Center of Shanxi Province, Taiyuan 030024, China)

Abstract: Peroxymonosulfate (PMS) was directly applied to oxidize nitrogen heterocyclic compound pyridine in wastewater. The effects of PMS dosage, pH, coexisting anions (Cl^- , HCO_3^- , NO_3^-) and humic acid (HA) on degradation of pyridine were investigated. The direct oxidation of pyridine by PMS conformed to pseudo first-order reaction kinetics. When the initial concentration of pyridine was 8.0 mg/L, the pH was 7.0, the reaction temperature was 25℃, and PMS dosage was 4.0 mmol/L, the removal efficiency of pyridine reached 93.66% after 150 minutes of reaction. The presence of Cl^- , HCO_3^- , NO_3^- and HA in water had no significant effect on pyridine degradation. Free radical identification showed that no sulfate radical ($\text{SO}_4^{\cdot-}$) and hydroxyl radical ($\cdot\text{OH}$) were generated, and a small amount of singlet oxygen ($^1\text{O}_2$) was formed in the PMS system. The direct oxidation of PMS was the main mechanism of pyridine degradation. GC-MS analysis showed that the intermediate products of pyridine directly oxidized by PMS

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(22008167); 山西省自然科学基金资助项目(201801D121274)

通信作者: 苏冰琴 E-mail: subingqin@tyut.edu.cn

were N, N-dimethylacrylamide, oxalic acid, acetic acid, and other low-toxic organic compounds.

Key words: peroxymonosulfate; direct oxidation; pyridine; nitrogen heterocyclic compound; reaction mechanism

吡啶(C_5H_5N)是一种典型的氮杂环化合物,广泛存在于焦化废水中,具有高溶解性、高毒性、难降解等特点,会对微生物产生很强的毒害作用,致使生物法对吡啶的降解作用受到极大抑制。近年来,基于硫酸根自由基($SO_4^{\cdot-}$)的高级氧化技术在处理难降解有机污染物方面得到了越来越多的研究和应用^[1-2]。过硫酸盐(PS)和过一硫酸盐(PMS)可通过热^[3]、紫外光^[4]、过渡金属(Fe^{2+} 、 Co^{2+} 、 Ag^+ 等)^[2]、碱^[5]等激活产生 $SO_4^{\cdot-}$ ^[6]或羟基自由基($\cdot OH$),从而使有机污染物得以降解。然而,活化过硫酸盐的高级氧化技术普遍存在能耗大、产生二次污染等缺点,为寻求更加经济高效的高级氧化技术,已有学者关注直接利用过硫酸盐的氧化能力去除水中的污染物^[7-9],例如,Zhou等人^[8-9]首次报道了未活化的PMS对环丙沙星和恩诺沙星有高效的降解性。但目前采用PMS直接氧化技术降解氮杂环化合物的研究尚未见报道。笔者选取典型氮杂环化合物吡啶作为目标污染物,探究PMS直接氧化降解吡啶的可行性,考察降解吡啶的影响因素,鉴别反应过程的主导自由基,利用气相色谱-质谱联用(GC-MS)技术分析吡啶降解的中间产物并推测其可能的降解路径,旨在为PMS直接氧化技术降解氮杂环化合物的研究与应用提供一定的理论依据。

1 实验部分

1.1 试剂与仪器

主要试剂:吡啶($\geq 99\%$)、过一硫酸氢钾复合盐($\geq 47\%$)、 H_2SO_4 ($\geq 98\%$)、 $NaOH$ ($\geq 98\%$)、二氯甲烷、无水硫酸钠、硫代硫酸钠、邻苯二甲酸氢钾、硼酸、硼砂、氯化钾、乙醇、叔丁醇、L-组氨酸、氯化钠、硝酸钠、碳酸氢钠和磷酸二氢钾。实验中配制溶液所用的超纯水均由Milli-Q纯化系统制备。

主要仪器:精密pH计、分析天平、安捷伦1260型高效液相色谱仪、UV5500型紫外-可见分光光度计、岛津TOC-VCPH型总有机碳分析仪、THZ-C型恒温振荡器、岛津2020型气相色谱-质谱联用仪、Bruker EMXPLUS型电子顺磁共振光谱仪。

1.2 实验方法

采用超纯水配制0.4 g/L的吡啶储备液,定容于100 mL容量瓶中。所有实验均在室温、150 mL的锥形瓶中进行,采用磷酸盐缓冲溶液调控pH。将盛有吡啶溶液的锥形瓶置于转速为200 r/min的恒温振荡器中,加入一定浓度的PMS,每隔一定时间取出1 mL反应液并加入0.1 mL硫代硫酸钠淬灭剂终止反应,采用0.45 mm针式过滤器过滤水样,测定吡啶浓度。每组实验进行3次,取平均值。

1.3 分析方法

吡啶浓度采用高效液相色谱仪测定。采用Poroshell 120 EC-C18色谱柱(46 mm×150 mm, 4 μm),检测条件:柱温为30 $^{\circ}C$ 、流动相为甲醇:水=6:4、流速为1.0 mL/min,进样量为10 μL 。

TOC采用总有机碳分析仪测定;PMS残余量采用紫外-可见分光光度计测定;电子顺磁共振检测实验采用电子顺磁共振光谱仪进行;吡啶中间产物采用气相色谱-质谱联用仪分析。

2 结果与讨论

2.1 PMS和PS直接氧化降解吡啶的效果

将相同浓度(4.0 mmol/L)的PMS和PS分别加入到8.0 mg/L吡啶溶液中,考察过硫酸盐的直接氧化作用,结果如图1所示。

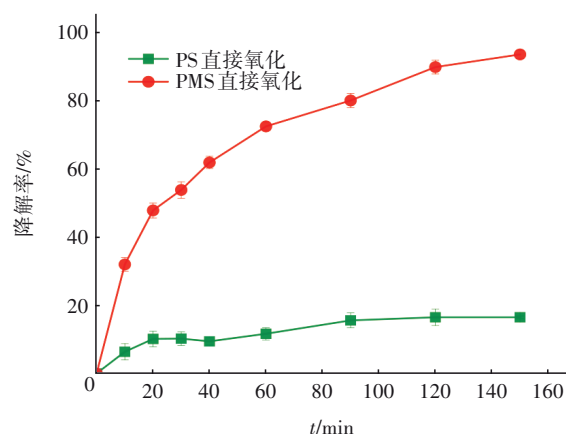


图1 PS和PMS直接氧化降解吡啶的效果

Fig.1 Direct oxidative degradation of pyridine by PS and PMS

PS直接氧化降解吡啶的效率很低,吡啶降解率最高只有16.49%。而PMS对吡啶的直接氧化降解效率较高,反应开始20 min内,近50%的吡啶已被PMS氧化去除;当反应150 min后,吡啶的降解率高达93.66%。说明PMS相比PS的氧化能力更强,这与Wang等的研究结果一致^[10]。这可能是PMS和PS不同的化学结构所致,PMS是非对称化学结构,一侧存在过氧键,而PS是对称结构,两侧均存在过氧键,因此PMS具有较低的空间位阻,反应过程中PMS的过氧键更容易断裂,表现出更高的活性^[11]。

2.2 PMS直接氧化降解吡啶的反应条件

2.2.1 PMS投加量

控制pH为7.0,向初始浓度为8.0 mg/L的吡啶溶液中分别加入2.0、3.0、4.0、5.0、6.0 mmol/L的PMS,考察PMS投加量对吡啶降解效果的影响,结果如图2所示。吡啶的降解效果随着PMS投加量的增加而不断提高。当PMS投加量为4.0 mmol/L时,吡啶得到有效降解,反应150 min后降解率可达93.66%;当PMS投加量为5.0 mmol/L时,反应150 min后吡啶降解率可达100%;当PMS投加量为6.0 mmol/L时,能够在更短的时间内(120 min)使吡啶完全降解。由此可见,吡啶的降解效率与氧化剂PMS的投加量成正比,这与其他研究结果一致^[12]。对不同PMS投加量下吡啶的降解过程进行动力学拟合,结果表明,吡啶的降解符合拟一级反应动力学,拟合曲线的 R^2 值均在0.98以上。当PMS投加量从2.0 mmol/L增加到6.0 mmol/L时,一级反应速率常数(k_{obs})从0.011 9 min⁻¹逐渐增大到0.029 8 min⁻¹,呈近似线性增加趋势。

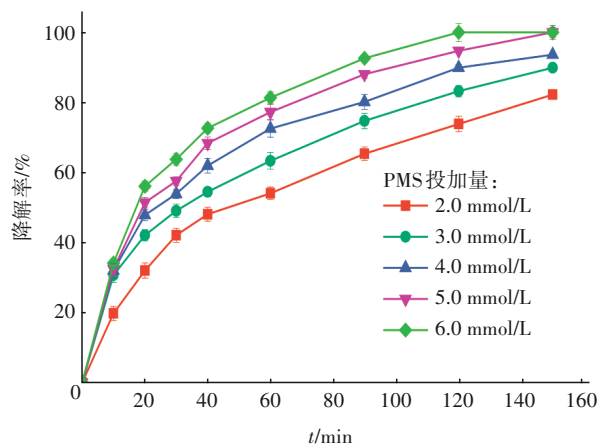


图2 PMS投加量对吡啶降解的影响

Fig.2 Effect of PMS dosage on degradation of pyridine

2.2.2 pH

在PMS投加量为4.0 mmol/L、吡啶初始浓度为8.0 mg/L的条件下,当反应pH分别为5.0、6.0、7.0、8.0、9.0、10.0时,考察其对吡啶降解效果的影响,结果如图3所示。当pH从8.0升至10.0时,吡啶降解率由86.8%逐渐降至64.6%, k_{obs} 值从0.014 8 min⁻¹降至0.007 9 min⁻¹;当pH从5.0升至7.0时,吡啶降解率由47.93%增至93.66%, k_{obs} 值从0.003 8 min⁻¹增至0.019 2 min⁻¹,在pH=7.0时吡啶降解效果最佳。原因可能是,在酸性条件下吡啶带正电荷成盐,氮的吸电子诱导效应增强,环上的电子云密度降低^[13],导致其游离的自由电子变少,物质稳定性增强,被氧化去除的难度增大;同时,吡啶的电离常数 $\text{p}K_{\text{b}}=8.75$,PMS表现出两个电离常数($\text{p}K_{\text{a}1}<0$, $\text{p}K_{\text{a}2}=9.4$ ^[14]),在所研究的pH范围内,PMS以 HSO_5^- 和 SO_5^{2-} 形式存在,且 SO_5^{2-} 比 HSO_5^- 反应活性低^[15]。在碱性条件下由于静电斥力的作用,吡啶可能会排斥PMS使两者之间的碰撞几率下降,从而使得吡啶的降解速率下降。

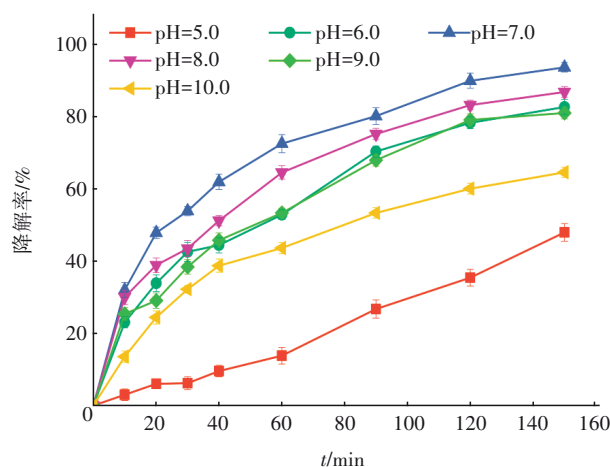


图3 pH对PMS降解吡啶的影响

Fig.3 Effect of pH on degradation of pyridine by PMS

2.2.3 吡啶初始浓度

据文献报道,实际工业废水中的吡啶浓度在20~300 mg/L之间^[16]。为了方便测定,实验设置吡啶的初始浓度分别为8.0、24.0、40.0和80.0 mg/L,在pH为7.0、PMS投加量为4.0 mmol/L的条件下,考察不同吡啶初始浓度对PMS直接氧化降解吡啶的影响,结果如图4所示。可知,随着吡啶初始浓度的增加,PMS对吡啶的直接氧化降解速率逐渐降低,但在反应150 min之后,对吡啶的降解率均可达

到90%以上。这说明在其他反应条件不变的情况下,适当增大吡啶初始浓度不会影响其最终的降解效果,这也说明PMS直接氧化法的容量很大,能够持续产生活性物质,与目标物质充分接触从而高效降解。

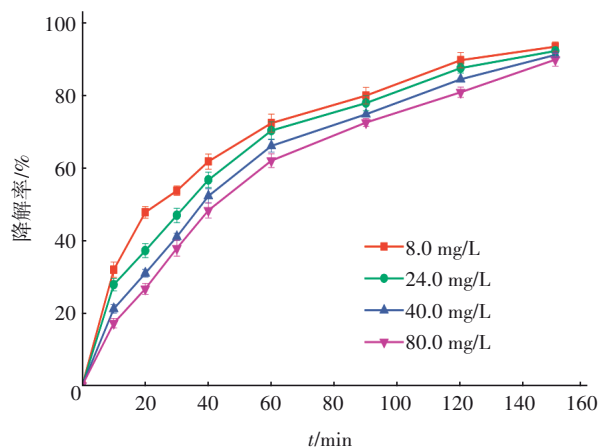


图4 吡啶初始浓度对其降解效果的影响

Fig.4 Effect of initial pyridine concentration on degradation of pyridine

2.3 水中共存物质对吡啶降解的影响

在实际水体中存在着大量的阴离子和天然有机物(NOM),它们可能会消耗体系中的活性物质从而影响污染物的降解效率。在pH为7.0、PMS投加量为4.0 mmol/L、吡啶初始浓度为8.0 mg/L的条件下,考察了 Cl^- 、 HCO_3^- 、 NO_3^- 这3种常见阴离子以及NOM的重要组成物质腐殖酸(HA)对PMS直接氧化吡啶的影响,结果如图5所示。

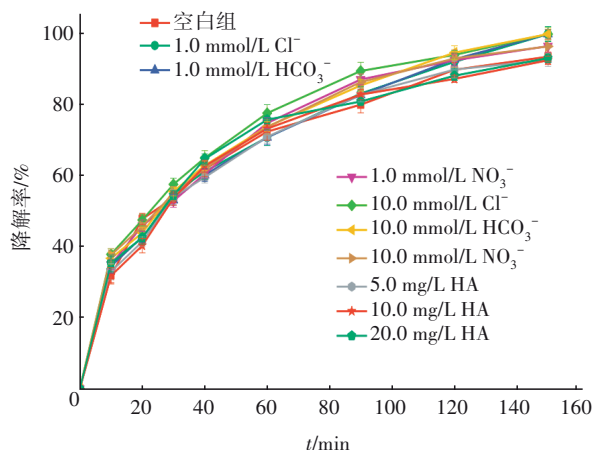


图5 水中共存物质对PMS降解吡啶的影响

Fig.5 Effect of coexisting substances in water on degradation of pyridine by PMS

由图5可知,将1.0 mmol/L的 Cl^- 、 HCO_3^- 和 NO_3^- 加入到反应体系中,吡啶降解率均略有升高。继续增大 Cl^- 、 HCO_3^- 和 NO_3^- 的投加量至10.0 mmol/L,吡啶的降解率没有发生明显的变化。当在反应体系中分别加入5.0、10.0、20.0 mg/L的HA时,吡啶的降解率仍未受到明显影响。这说明 Cl^- 、 HCO_3^- 、 NO_3^- 等无机阴离子以及HA对PMS直接氧化吡啶的能力基本没有影响。这可能是由于PMS的直接氧化机理与传统的基于硫酸根自由基的高级氧化法不同,传统的过硫酸盐活化主要是产生强氧化性的自由基($\text{SO}_4^{\cdot-}$ 或 $\cdot\text{OH}$),这些共存物质通过与 $\text{SO}_4^{\cdot-}$ 或 $\cdot\text{OH}$ 发生反应从而抑制或促进体系中有有机污染物的降解;而PMS体系降解吡啶是由于PMS分子的直接氧化作用,上述共存物质与PMS的反应速率均较低,因此对PMS降解吡啶的能力影响很小。

为了进一步研究在实际水体中PMS直接氧化降解吡啶的可行性,本实验使用过滤后的自来水和太原市汾河水作为实际水体,在pH为7.0、PMS投加量为4.0 mmol/L、吡啶初始浓度为8.0 mg/L的条件下,考察PMS对吡啶的降解效能,结果如图6所示。吡啶在自来水和汾河水中均能被PMS有效去除,且与超纯水中的降解效能相近。这进一步说明PMS直接氧化体系不易受到环境的干扰,在实际水体中的应用性较强。

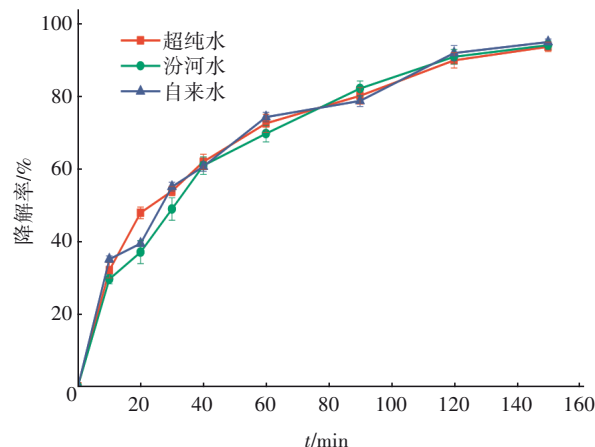


图6 实际水体中PMS降解吡啶的效能

Fig.6 Degradation efficiency of pyridine by PMS in actual water

2.4 反应自由基的鉴定

实验选择叔丁醇(TBA)、乙醇(EtOH)和L-组氨酸鉴定反应体系中的主要活性物种,结果见图7(pH为7.0、PMS投加量为4.0 mmol/L、吡啶初始浓度为

8.0 mg/L)。在PMS体系中分别加入500 mmol/L的TBA和EtOH,对吡啶的降解效能几乎没有影响,这表明 $\cdot\text{OH}$ 和 $\text{SO}_4\cdot^-$ 未在PMS体系中生成。

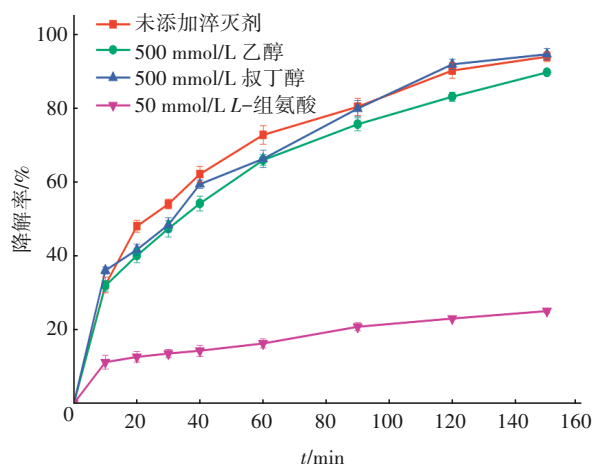


图7 PMS体系降解吡啶的自由基淬灭实验结果

Fig.7 Radical quenching test results of pyridine degradation in PMS system

有学者研究发现,磷酸盐缓冲溶液中的磷酸根离子会激活PMS产生 $\cdot\text{OH}$ 和 $\text{SO}_4\cdot^-$ 作为活性物质促进有机物的降解^[17],为了验证这一结果,实验通过改变磷酸盐缓冲溶液浓度考察激活产生的不同浓度的 $\cdot\text{OH}$ 和 $\text{SO}_4\cdot^-$ 对吡啶的降解是否产生影响,结果见图8(pH为7.0、PMS投加量为4.0 mmol/L、吡啶初始浓度为8.0 mg/L)。

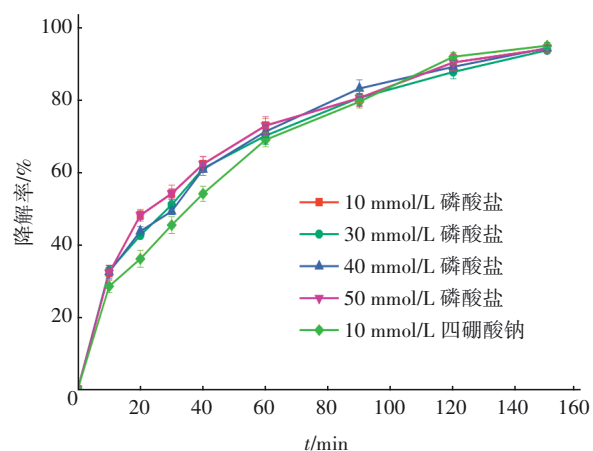


图8 离子强度对吡啶降解的影响

Fig.8 Effect of ionic strength on degradation of pyridine

从图8可以看出,改变体系中磷酸盐的浓度对吡啶的降解趋势没有太大影响。另外,当体系中的离子强度由10 mmol/L的四硼酸钠提供时,吡啶仍能够被高效降解,这进一步确定了吡啶的降解不

是 $\cdot\text{OH}$ 和 $\text{SO}_4\cdot^-$ 作用的结果。将50 mmol/L的L-组氨酸加入到PMS体系中,此时吡啶的降解受到极大的抑制,降解率由93.66%骤减到24.92%,说明体系中可能存在单线态氧($^1\text{O}_2$)。

在已有研究中2,2,6,6-四甲基-4-哌啶醇(TEMP)常被用作 $^1\text{O}_2$ 的捕获剂,它与 $^1\text{O}_2$ 可形成一个g值为2.0056的1:1:1三重特征峰^[18]。因此,利用电子顺磁共振光谱进一步确定反应体系中的主导活性物种,如图9所示(pH为7.0、PMS投加量为4.0 mmol/L、吡啶初始浓度为8.0 mg/L、TEMP为100 mmol/L)。可以看出,光谱中有明显的三重峰出现,由此证实体系中存在 $^1\text{O}_2$ 。

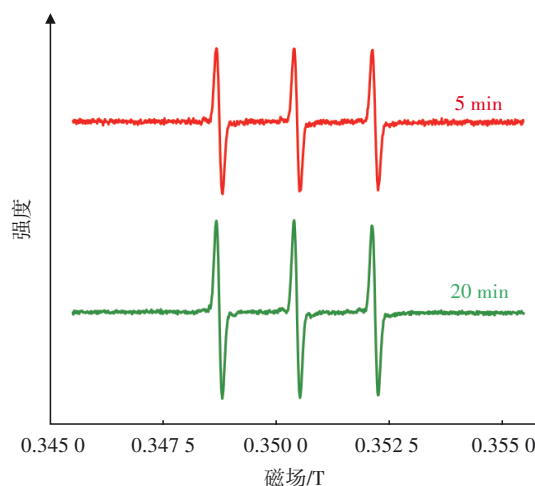


图9 TEMP捕获PMS体系中活性物种的电子顺磁共振光谱

Fig.9 EPR spectra of active species in PMS system captured by TEMP

为进一步推测 $^1\text{O}_2$ 在氧化过程中的贡献率,测定了PMS在吡啶溶液及纯水中的残留率,从而考察PMS的分解速率,结果如图10所示(pH为7.0、PMS投加量为4.0 mmol/L、吡啶初始浓度为8.0 mg/L)。PMS在纯水中的自分解速率为0.016 L/(mol·s),吡啶的加入使PMS分解速率达到0.027 L/(mol·s),是PMS在水中分解速率的1.7倍。Zhou等^[19]研究发现苯醌/PMS体系高效降解苯酚过程中的活性物种是 $^1\text{O}_2$,所以在原体系中加入苯酚,通过探究其去除率来验证体系中 $^1\text{O}_2$ 的贡献程度,如图10所示,经过150 min后76.8%的苯酚被去除,从而推测在PMS体系中有一定的 $^1\text{O}_2$ 参与有机污染物的降解。进一步说明了PMS对吡啶的降解是依靠PMS自身的氧化作用,同时反应过程中生成的少量 $^1\text{O}_2$ 也会参与反应。这与PMS体系降解酚类、糠醇等有机物的研究

结果一致^[20]。

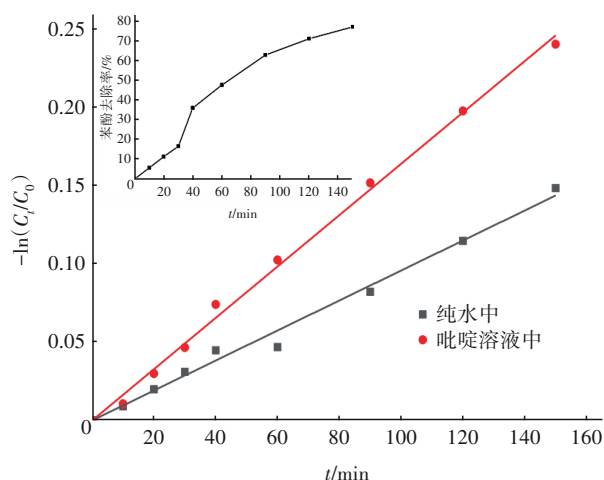


图10 PMS在不同溶液中的分解速率

Fig.10 Decomposition rate of PMS in different solutions

2.5 PMS直接氧化降解吡啶的反应机制

应用GC-MS技术对反应不同时间段的有机物进行定性分析,明确吡啶降解过程中生成的中间产物。分析结果表明,吡啶在降解过程中主要生成了N,N-二甲基丙烯酰胺低毒化合物以及草酸、乙酸、丙酮酸等小分子酸类化合物。在吡啶降解产物中,宋可可等^[21]检测到N,N-二甲基甲酰胺,李胜海等^[22]检测到乙酸,均有相似的研究结果。在反应150 min之后,出水中未检测到吡啶及其他复杂有机化合物,说明吡啶经过PMS直接氧化后被完全降解。PMS直接氧化体系中吡啶可能的降解途径如图11所示。

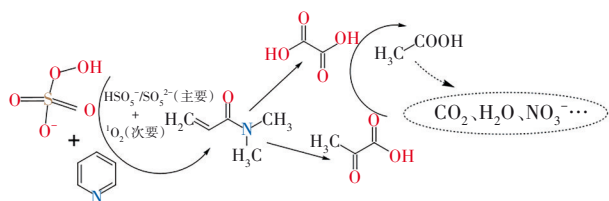


图11 PMS直接氧化吡啶可能的降解途径

Fig.11 Possible degradation paths of pyridine by PMS direct oxidation

3 结论

① PMS可以直接氧化降解废水中的氮杂环化合物吡啶,且降解过程符合拟一级反应动力学。在温度为25℃、吡啶初始浓度为8.0 mg/L、PMS投加量为4.0 mmol/L、pH为7.0的条件下,反应150 min后吡啶的降解率可达到93.66%。

② 水中共存的无机阴离子Cl⁻、HCO₃⁻、NO₃⁻以

及天然有机物HA对吡啶的降解反应均无明显促进或抑制作用。

③ 自由基淬灭和电子顺磁共振光谱实验结果表明,PMS氧化降解吡啶的反应过程中产生了¹O₂。吡啶的有效降解主要通过PMS的直接氧化作用来实现,同时产生的少量¹O₂也会参与反应。

④ PMS氧化降解吡啶过程中生成的中间产物为N,N-二甲基丙烯酰胺、草酸、乙酸及丙酮酸等低毒有机物。

参考文献:

- [1] 李静,吴钦,张资,等. Ce掺杂铁基催化剂活化过硫酸盐降解罗丹明B[J]. 中国给水排水, 2021, 37(15): 95-101.
- LI Jing, WU Qin, ZHANG Zi, et al. Persulfate activated by Ce-doped iron-based catalyst for degradation of rhodamine B [J]. China Water & Wastewater, 2021, 37(15): 95-101 (in Chinese).
- [2] 王盼新,郇歆飞,王昀鹏,等. 二价铁活化过二硫酸盐对As(Ⅲ)的去除效能与机理[J]. 中国给水排水, 2020, 36(23): 14-20.
- WANG Panxin, LI Xinfeng, WANG Yunpeng, et al. Removal efficiency and mechanism of As(Ⅲ) by ferrous activated peroxydisulfate [J]. China Water & Wastewater, 2020, 36(23): 14-20 (in Chinese).
- [3] POTAKIS N, FRONTISTIS Z, ANTONOPOULOU M, et al. Oxidation of bisphenol A in water by heat-activated persulfate [J]. Journal of Environmental Management, 2017, 195(Part 2): 125-132.
- [4] 徐彬焜,余韵,潘志刚,等. 紫外活化过硫酸盐工艺降解二苯甲酮-3效果研究[J]. 中国给水排水, 2020, 36(23): 69-74, 80.
- XU Binkun, YU Yun, PAN Zhigang, et al. Degradation of benzophenone-3 by UV-activated persulfate process [J]. China Water & Wastewater, 2020, 36(23): 69-74, 80 (in Chinese).
- [5] 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, 622/623: 41-48.
- [6] OH W D, DONG Z, LIM T T, et al. Generation of sulfate radical through heterogeneous catalysis for organic contaminants removal: current development, challenges and prospects [J]. Applied Catalysis B: Environmental, 2016, 194: 169-201.

- [7] 周扬. 过一硫酸盐氧化降解水中典型有机污染物的动力学及反应产物 [D]. 哈尔滨: 哈尔滨工业大学, 2018.
ZHOU Yang. Degradation Kinetics and Products of Typical Organic Pollutants by Peroxymonosulfate Oxidation [D]. Harbin: Harbin Institute of Technology, 2018 (in Chinese).
- [8] ZHOU Y, GAO Y, PANG S Y, *et al.* Oxidation of fluoroquinolone antibiotics by peroxymonosulfate without activation: kinetics, products, and antibacterial deactivation [J]. *Water Research*, 2018, 145: 210–219.
- [9] ZHOU Y, JIANG J, GAO Y, *et al.* Oxidation of steroid estrogens by peroxymonosulfate (PMS) and effect of bromide and chloride ions: kinetics, products, and modeling [J]. *Water Research*, 2018, 138: 56–66.
- [10] WANG J, WANG S. Activation of persulfate (PS) and peroxymonosulfate (PMS) and application for the degradation of emerging contaminants [J]. *Chemical Engineering Journal*, 2018, 334: 1502–1517.
- [11] 银仁莉. 过硫酸盐的非自由基氧化降解磺胺类抗生素的效能及机制 [D]. 哈尔滨: 哈尔滨工业大学, 2018.
YIN Renli. Performance and Mechanism of Sulfonamides Degradation by the Nonradical Oxidation of Persulfates [D]. Harbin: Harbin Institute of Technology, 2018 (in Chinese).
- [12] JI Y, LU J, WANG L, *et al.* Non-activated peroxymonosulfate oxidation of sulfonamide antibiotics in water: kinetics, mechanisms, and implications for water treatment [J]. *Water Research*, 2018, 147: 82–90.
- [13] 陈燕. 缺氧条件下吡啶的生物强化降解技术研究 [D]. 南京: 南京理工大学, 2015.
CHEN Yan. The Bioaugmentation Technology of Pyridine under Anoxic Conditions [D]. Nanjing: Nanjing University of Science and Technology, 2015 (in Chinese).
- [14] GUAN Y H, MA J, LI X C, *et al.* Influence of pH on the formation of sulfate and hydroxyl radicals in the UV/peroxymonosulfate system [J]. *Environmental Science & Technology*, 2011, 45(21): 9308–9314.
- [15] LEI Y, CHEN C S, AI J, *et al.* Selective decolorization of cationic dyes by peroxymonosulfate: non-radical mechanism and effect of chloride [J]. *RSC Advances*, 2016, 6(2): 866–871.
- [16] LATAYE D H, MISHRA I M, MALL I D. Pyridine sorption from aqueous solution by rice husk ash (RHA) and granular activated carbon (GAC): parametric, kinetic, equilibrium and thermodynamic aspects [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2008, 154 (1/3): 858–870.
- [17] WANG J, WANG S. Reactive species in advanced oxidation processes: formation, identification and reaction mechanism [J]. *Chemical Engineering Journal*, 2020, 401: 126158.
- [18] LOU X, WU L, GUO Y, *et al.* Peroxymonosulfate activation by phosphate anion for organics degradation in water [J]. *Chemosphere*, 2014, 117: 582–585.
- [19] ZHOU Y, JIANG J, GAO Y, *et al.* Activation of peroxymonosulfate by benzoquinone: a novel nonradical oxidation process [J]. *Environmental Science & Technology*, 2015, 49(21): 12941–12950.
- [20] YANG Y, BANERJEE G, BRUDVIG G W, *et al.* Oxidation of organic compounds in water by unactivated peroxymonosulfate [J]. *Environmental Science & Technology*, 2018, 52(10): 5911–5919.
- [21] 宋可可, 陈建铭, 宋云华. 锌镁铝类水滑石催化臭氧氧化降解吡啶废水的工艺研究 [J]. *北京化工大学学报(自然科学版)*, 2021, 48(2): 8–15.
SONG Keke, CHEN Jianming, SONG Yunhua. The degradation of pyridine wastewater by ozonation catalyzed by calcined zinc-magnesium-aluminum hydroxalates [J]. *Journal of Beijing University of Chemical Technology (Natural Science Edition)*, 2021, 48(2): 8–15 (in Chinese).
- [22] 李胜海, 程谣, 许晓毅, 等. 铁碳微电解预处理含吡啶的有机废水 [J]. *水处理技术*, 2017, 43(2): 98–101, 106.
LI Shenghai, CHENG Yao, XU Xiaoyi, *et al.* Pretreatment of organic wastewater containing pyridines by iron-carbon micro-electrolysis [J]. *Technology of Water Treatment*, 2017, 43(2): 98–101, 106 (in Chinese).

作者简介: 王鹏莺(1996–), 女, 山西阳泉人, 硕士研究生, 主要研究方向为水污染控制。

E-mail: 504242618@qq.com

收稿日期: 2021-08-08

修回日期: 2021-11-05

(编辑: 刘贵春)