

CiteSpace 分析石墨烯基材料在甲醛吸附方面的研究进展



赵媛, 牛世元, 耿赛*

青岛科技大学化工学院, 山东青岛 266061

摘要: 以 Web of Science 核心合集数据库, 以 2013—2023 年间所发表的有关石墨烯基材料在甲醛吸附方面的研究进展的 454 篇文献为分析对象, 使用 CiteSpace 进行可视化分析。从发文量, 发文作者、机构、国家等之间联系分析该研究领域的外部特征。从关键词的聚类、时间线谱图和突显分析该领域的研究现状、研究热点以及预测未来该领域可能的研究趋势。石墨烯基材料在甲醛吸附方面的相关发文量总体较少, 且文章所属的作者、机构、国家等之间关于石墨烯基材料在甲醛吸附方面的研究联系不密切。发文量第一的机构为中国科学院, 发文量第一的国家为中国, 表明中国在该领域的贡献程度相对较大。石墨烯基材料应用于甲醛吸附的相关文献量很少, 而石墨烯基材料在甲醛吸附方面利用电催化较多。同时, 石墨烯基材料吸附范围进一步扩大到多种挥发性有机化合物, 可以利用该性能来提升石墨烯基材料的实用性。

关键词: 甲醛吸附; 石墨烯基材料; CiteSpace; 可视化分析

DOI: [10.57237/j.cse.2023.03.004](https://doi.org/10.57237/j.cse.2023.03.004)

Research Progress of Graphene Based Materials in Formaldehyde Adsorption by CiteSpace Analysis

Yuan Zhao, Shiyuan Niu, Sai Geng*

Chemical Engineering Institute, Qingdao University of Science and Technology, Qingdao 266061, China

Abstract: Based on the Web of Science core collection database, 454 papers published from 2013 to 2023 on the research progress of Graphene based materials in formaldehyde adsorption were analyzed, and CiteSpace was used for visual analysis. Analyze the external characteristics of this research field from the perspectives of publication volume, author, institution, country, etc. Analyze the current research status, hotspots, and predict possible future research trends in this field through keyword clustering, time-line spectrograms, and highlighting. The number of papers related to the adsorption of formaldehyde by graphene-based materials is generally small, and the researches on the adsorption of formaldehyde by graphene-based materials are not closely related among the authors, institutions and countries of the articles. The Chinese Academy of Sciences has the largest organization and the Chinese country that has the largest number of publications, indicating that China makes a relatively large contribution to this field. There are few documents on graphene-based materials used in formaldehyde adsorption, while graphene-based materials use more electrocatalysis in formaldehyde adsorption. At the same time, the adsorption range of graphene-based materials is further expanded to a variety of volatile organic compounds, which can be used to improve the practicability of graphene-based materials.

*通信作者: 耿赛, gengsai@qust.edu.cn

Keywords: Formaldehyde Adsorption; Graphene Based Materials; CiteSpace; Visualization Analysis

1 引言

甲醛作为一类致癌物,其在室内具有的极大的危害性,为此如何吸附甲醛的研究持续进行,现有的甲醛治理技术可以归纳为物理法、化学法和生物法,其中碳基材料吸附甲醛是热门的研究方向。在已研究的碳基材料吸附甲醛领域中,化学性能差异的活性炭对同一吸附质甲醛的吸附行为有很大不同[1]。同时甲醛脱附测试表明,中微孔炭的脱附量远小于中孔炭,对比两种活性炭的孔容,可以认为,微孔孔容有助于低浓度甲醛的吸附和锁定[2]。

现阶段,有关石墨烯基材料在甲醛吸附方面的研究进展较慢,研究文献很少,特别是综述类文献更少,而石墨烯基材料在甲醛吸附方面有很强的应用空间。基于此,文章基于 CiteSpace 文献可视化软件,利用 WOS 文献库总结分析近十年石墨烯基材料在甲醛吸附方面的研究,旨在梳理该领域的研究热点与研究不足,预测石墨烯基材料在甲醛吸附领域的未来发展方向,从而推进中国相关的研究。

2 数据来源和研究分析方法

2.1 数据来源

本文数据基于 Web of Science 核心合集数据库,设置检索时间为出版日期的 2013 年 1 月 1 日至 2023 年 1 月 1 日,检索式为(((TS=(formaldehyde adsorption) OR TS=(formaldehyde removal) OR TS=(formaldehyde sorption)) AND TS=(graphene))),共检索得到 454 篇相关文献。以记录内容为“全记录与引用的参考文献”的纯文本文件格式进行导出。

2.2 研究分析方法

将数据导入 CiteSpace 后,利用“Remove Duplicates”进行文献去重分析,可得 454 篇均独立的来源于 WOS 的文献,其中据统计独立的实体 (Unique Entities) 如表 1 所示。再利用所得数据,通过 Excel 进行年发文量柱状图的绘制 (表 1 统计的独立实体的及数量)。作者的发文量、作者合作关系等分析均以论文中所列出的全部作者为准,即将同一篇论文中所有作者列入分析。国家、地区和机构的归属按照论文标注的所有位置进行统计。使用 CiteSpace 6.2. R3 (64-bit) Advanced 版本进行可视化分析。通过“Author”、“Institution”、“Country”、“Keyword”、“Cited Author”以及“Cited Journal”等节点,进行作者、机构、国家、关键词、作者共被引、期刊共被引的可视化分析。

表 1 统计的独立实体的及数量

类别	数量
Articles 文章	454
Journals 期刊	203
Authors 作者	2012
Institutions 机构	994
Countries/Regions 国家/地区	76

3 结果和讨论

3.1 发文量

统计 2013~2023 年 Web of Science 核心合集数据库中石墨烯基材料在甲醛吸附方面研究的年发文量 (图 1),结果显示年论文发文量呈先上升后下降的趋势。其中 2020 年发表的相关文章达到最多,从 2013 年 11 篇/年到 2020 年 69 篇/年。但总体相关发文量较少。

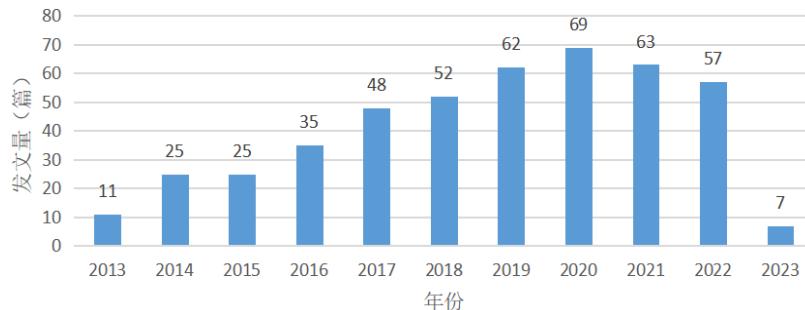


图 1 2013-2023 年石墨烯基材料在甲醛吸附相关研究文献年发文量

3.2 机构与国家的发文情况

通过 CiteSpace 软件对发文作者的所属机构进行分析, 发现在 2013-2023 年间发文作者分布在 248 个机构中。发文数量排名前 10 的机构如表 2 所示, 其中中国

科学院总发文量最多, 在排名前 10 的机构中有 7 所来自于中国。由研究机构合作关系图 (图 2) 可得到 240 个节点, 280 条连线, 且中心度较小, 表明机构之间关于石墨烯基材料在甲醛吸附方面研究合作较少。

表 2 发文量前 10 机构

排名	机构	数量	占比/%
1	Chinese Academy of Sciences 中国科学院	33	6.46
2	Sichuan University 四川大学	12	2.35
3	Egyptian Knowledge Bank (EKB) 埃及知识库	12	2.35
4	University of Chinese Academy of Sciences 中国科学院大学	10	1.96
5	Islamic Azad University 伊斯兰阿扎德大学	9	1.76
6	Beijing University of Chemical Technology 北京化工大学	9	1.76
7	China University of Petroleum 中国石油大学	8	1.57
8	East China University of Science & Technology 华东理工大学	8	1.57
9	Indian Institute of Technology System (IIT System) 印度理工学院	8	1.57
10	Dalian University of Technology 大连理工大学	7	1.37

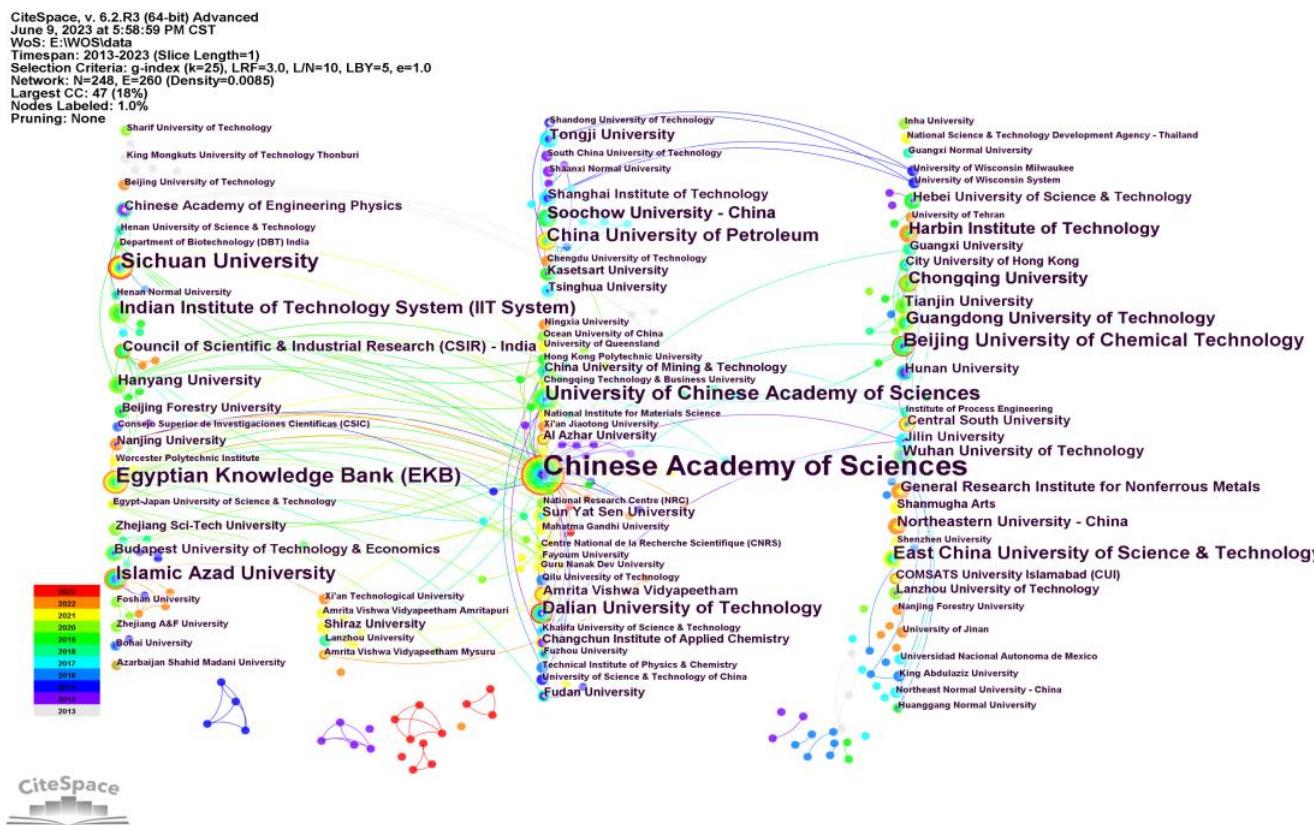


图 2 研究机构合作关系图

经 CiteSpace 统计相关发文所属国家/地区共 50 个, 发文量排名前 10 的国家/地区如表 3 所示。中国在石墨烯基材料在甲醛吸附方面研究发文量最多, 占比 50%, 这与中国高校、科研机构众多以及从事相关方向的科

研人员多有较大关系。在作者合作关系图 (图 3) 中可得 $N=50$, $E=103$, 且中心度相比于研究机构合作关系的中心度大很多, 表明国家/地区之间对于石墨烯基材料在甲醛吸附方面研究联系比机构之间的联系要密切。

表 3 发文量前 10 的国家/地区

排名	国家	数量	占比/%
1	PEOPLES R CHINA 中华人民共和国	288	0.50
2	INDIA 印度	42	0.07
3	IRAN 伊朗	37	0.06
4	USA 美国	23	0.04
5	SOUTH KOREA 韩国	20	0.03
6	AUSTRALIA 澳大利亚	13	0.02
7	EGYPT 埃及	12	0.02
8	SAUDI ARABIA 沙特阿拉伯	11	0.02
9	THAILAND 泰国	10	0.02
10	CANADA 加拿大	8	0.01

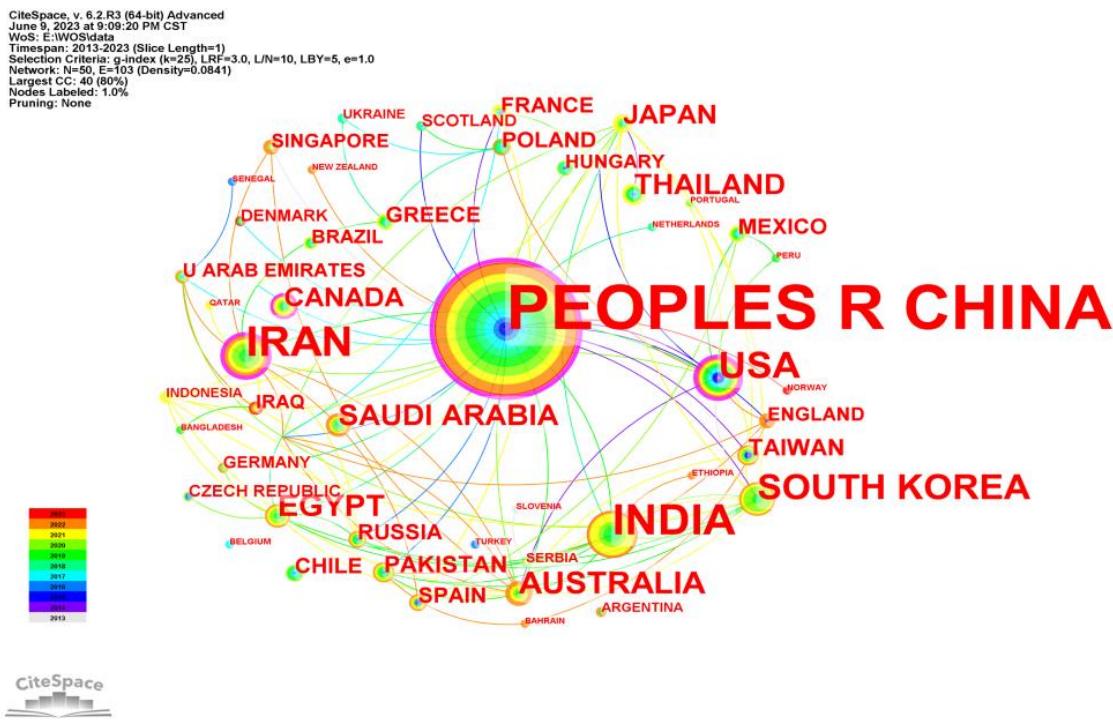


图 3 国家/地区合作关系图

3.3 研究领域作者的分析

通过对该领域发文作者统计分析, 可以得到对该领域有较大的贡献者和作者之间的联系情况。数据显示, 2013-2023 年该领域的发文作者形成 326 个节点和 282 条连线的合作网络, 密度 Density 为 0.0053。图 4 中节点的大小与发文量成正比, 节点间的连线代表作者之间的合作情况, 线段粗细与合作程度呈正相关关系[3]。这表明近 10 年来, 共有 326 位作者在该研究领域发表论文, 但作者之间的合作关系较分散, 处于独立研究的状态较多。

对发文量较多的几位作者进行分析, Wang Chaoyang 等主要从事密度泛函理论 (DFT) 方法的研

究、2014 年, 其团队对铬、锰和钴掺杂的 Stone Wales 缺陷石墨烯对甲醛分子的吸附进行了理论研究, 并对甲醛传感器的设计提供了一个有效思路。[4]MaJie、YuFei 等主要从事改性石墨基气凝胶的研究, 添加不同碳纳米管的氨基功能石墨烯气凝胶, 2017 年其研究团队合成了碳纳米管增强的石墨烯气凝胶 (GN/V) 和氨基功能化的石墨烯气凝胶 (G/E) 两种不同方法改性的石墨烯气凝胶, 并研究了其对气态甲醛的吸附性能。[5]同年, 其研究团队还制备了一种添加不同碳纳米管的氨基功能石墨烯气凝胶。[6]WangLigen 等人的研究集中在近两年, 其研究重点集中在甲醛气体传感材料的制备, 尤其是六氯环己烷团簇修饰的石墨烯材料, 有多次报道。

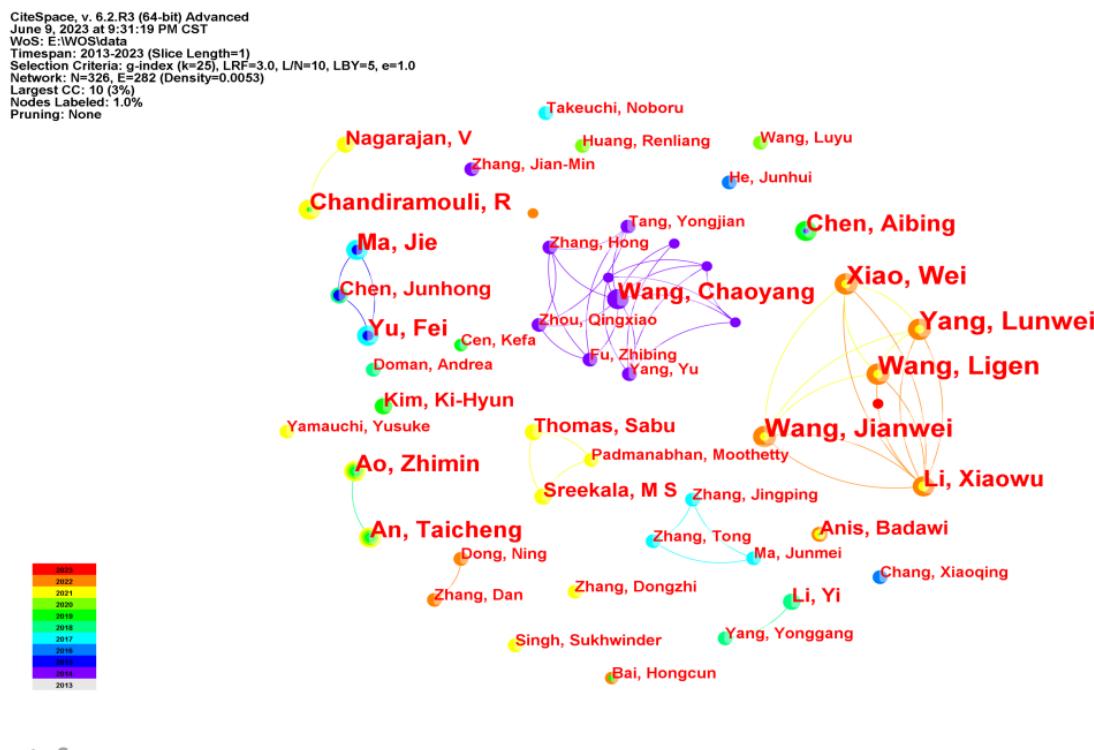


图 4 作者合作关系图

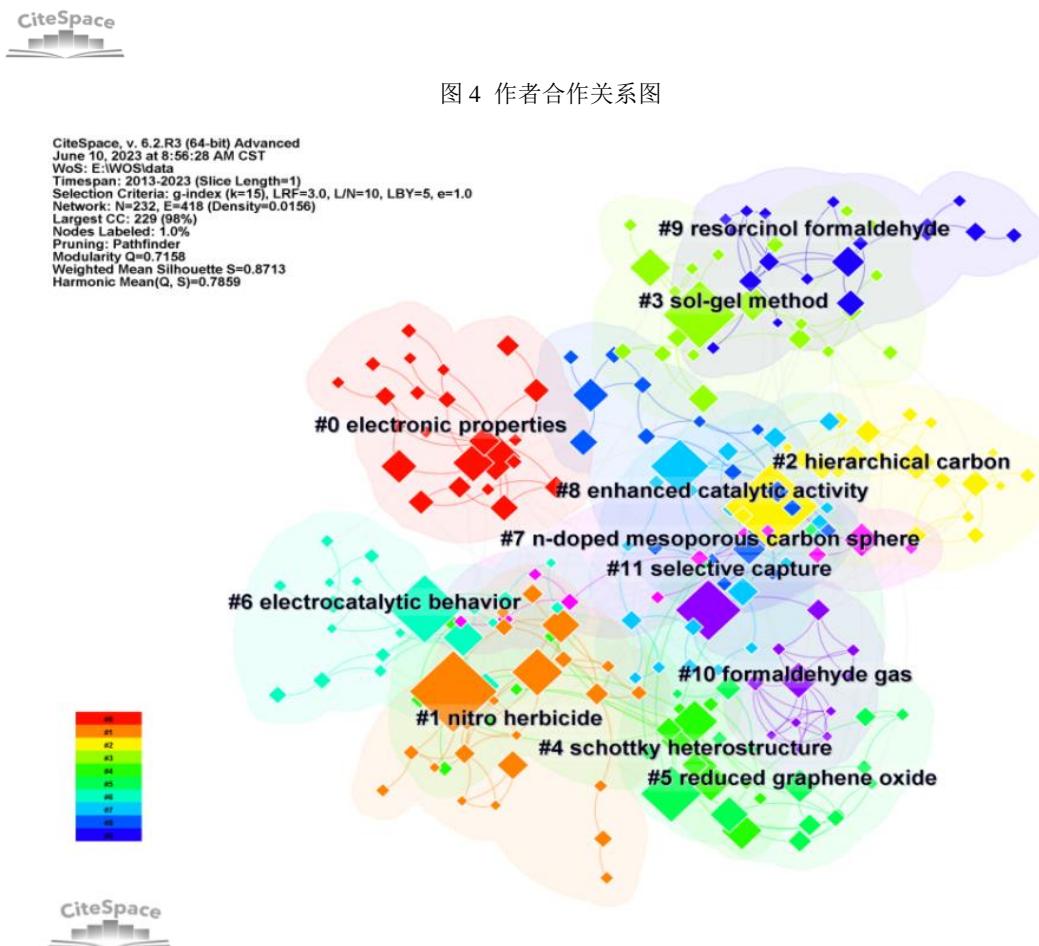


图 5 关键词聚类分析图

3.4 关键词聚类分析

首先来说, L. Egghe 提出 G 指数[7], 作为 H 指数的改进, 说明作者热门文章的表现等。g 指数对引频非常敏感。在关键词的聚类分析和时间线图谱分析, 采用将 Selection Criteria 中的 g-index 由默认值 25 改为 15 的方法照顾到了低被引文章, 同时控制了高被引文章的作用。

通过对关键词的研究, 可以得到文章的强调的核心内容与突出内容。CiteSpace 是通过算法将关系紧密的关键词进行聚类, 给每个关键词一个值, 同一聚类中值最大的为该类别的代表, 并给它进行标签。如图 5 所示关键词的聚类是利用 CiteSpace 在 pathfinder 剪切算法中简化关键词网络并凸显出其重要的结构特征绘制而成的。由图知 $Q=0.7158 > 0.3$ 的聚类结构是显著的, $S=0.8713 > 0.7$ 的聚类是高效率令人信服的[8], 分析可得, 关键词可分为 11 类, 分别为: 电子特性、硝基除草剂、分级碳、溶胶凝胶法、肖特基异质结、还原氧化石墨烯、电催化行

为、n-掺杂介孔球、增强催化的活性、间苯二酚甲醛、甲醛气体和选择性捕获。从中可以了解到石墨烯基材料在甲醛吸附方面利用的电催化是比较的, 并且围绕催化活性的增强和碳基的比表面积大小等来研究。

3.5 关键词时间线图谱

通过对时间线图谱的研究可以演绎石墨烯基材料在甲醛吸附方面的研究的演进脉络并预测未来发展趋势, 并且通过多维呈现聚类和关键词信息, 将同年份的热点按时间顺序进行排列并集合在指定区域, 有助于研究者了解重要关键词演进的时间路径[3]。在图谱中, 圆表示关键词节点, 圆越大说明对应主题出现的频次越高。节点年轮颜色及厚度表示出现时段, 即圆内色环越厚, 表明该颜色对应年份出现的频次越高[9]。由图 6 得到 #10 甲醛气体等近十年来一直有人研究, 其中“石墨烯”、“吸附”等关键词与其他聚类中的关键词联系密切。

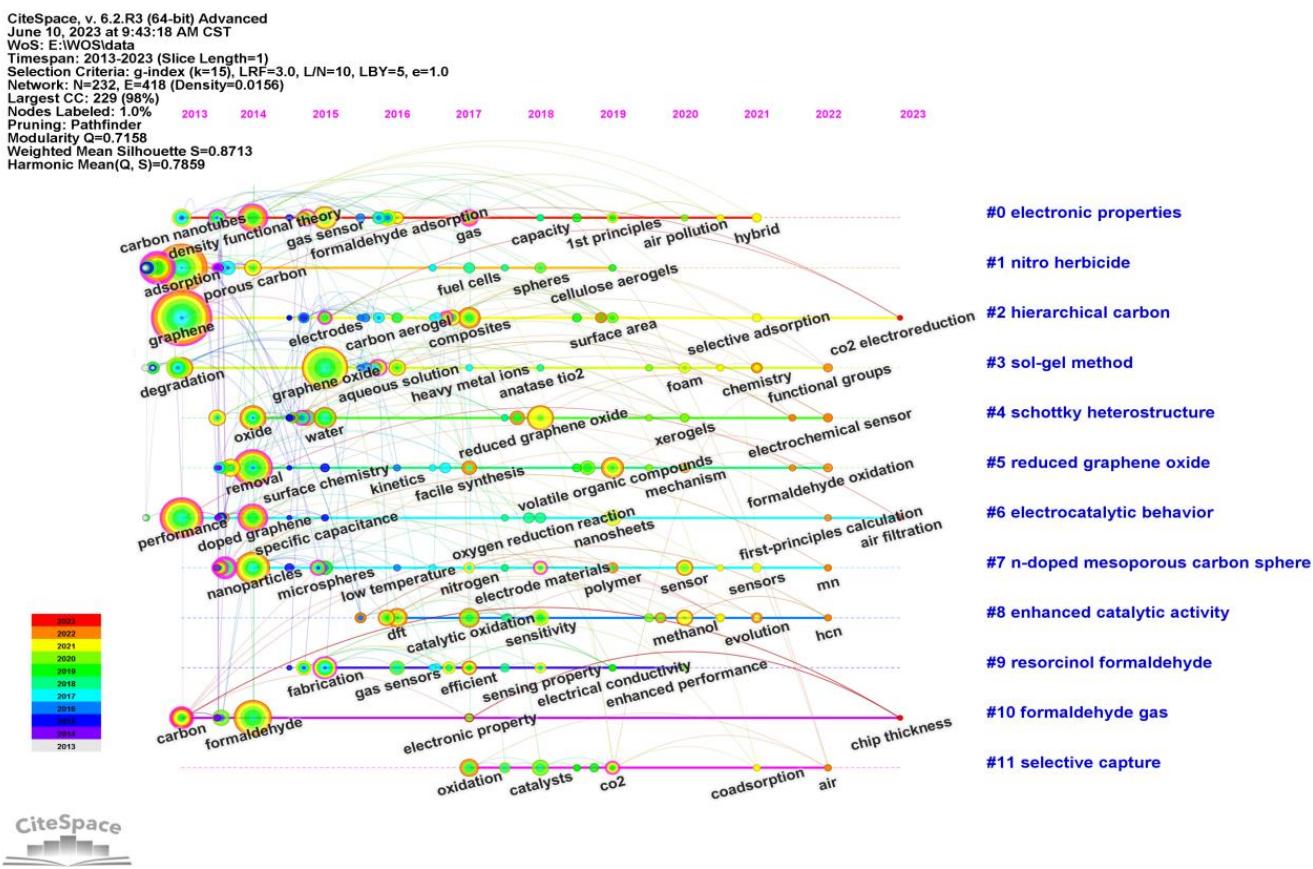


图 6 关键词时间线谱图

近些年出现的传感器、甲醇、挥发性有机物、纳米片等

关键词可能是未来研究的重点; Esrafil, MD 等进行了密度

泛函理论 (DFT) 计算, 以研究甲醛和甲醇在原始以及 Al 或 Si 修饰的氧化石墨烯上的吸附行为。并发现与甲醛相比, 甲醇在修饰的氧化石墨烯上具有更大的吸附能。[10] Zare, FD 等制备了一种超疏水萃取相, 并将其装入针阱微萃取装置中提取挥发性有机化合物, 然后用气相色谱法测定其含量。并采用还原氧化石墨烯 (rGO) 包埋三聚氰胺甲醛 (MF) 海绵进行表面改性, 制备了超疏水相。改性 MF 的总体性能及其高吸附能力和低成本的制造表明其高度适合于提取有机污染物的可行性。[11] Wei, Q 等使用水热方法在还原氧化石墨烯 (rGO) 层上制备了厚度接近 5nm 的超薄 SnO₂ 纳米片, 以构建片对片异质结构结构。经研究, rGO/SnO₂ 纳米片传感器表现出良好的选择性和快速响应/恢复性能。[12]

3.6 关键词突显分析

Top 25 Keywords with the Strongest Citation Bursts

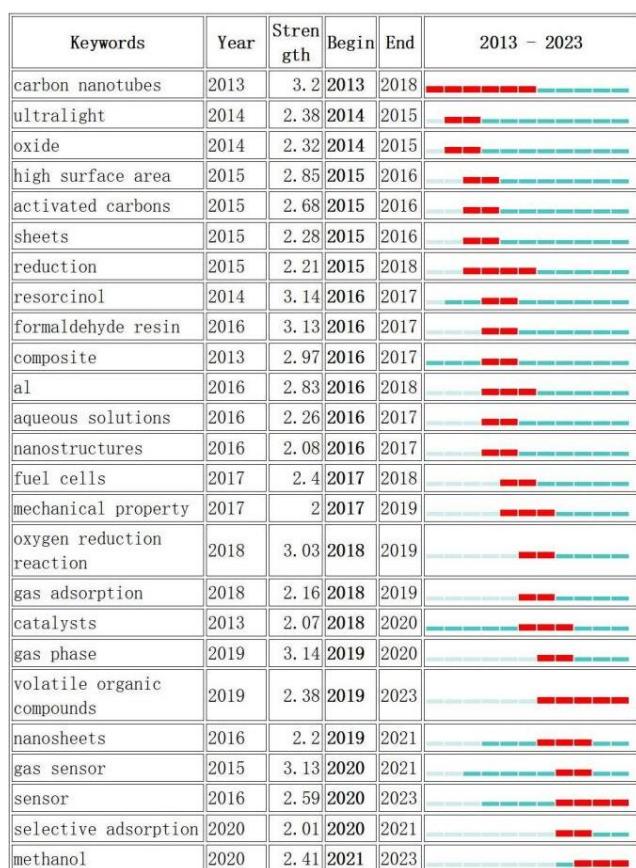


图 7 关键词突显分析图

通过关键词的突显分析，可以得到在统计时间内某个特定时间段内某个词的运用频次，反映该特定时间内的研究前沿和随时间发展的历史演变情况。如图 7 Top 25 Keywords with the Strongest Citation Bursts，分析引用爆发最强的前 25 个关键词可知碳纳米管

(carbon nanotubes) 的引用强度最大, 且作为研究前沿持续时间为 2013 年至 2018 年。Javad 等[13]利用密度泛函理论, 研究了甲醛在氮化碳纳米管的内外壁上的能量, 几何和电子特性。研究发现, 管外表面吸附更优先, 并且通过增加吸附分子的数量, 每个分子的吸附能增加。陈等[14]研究了甲醛与原始单壁碳纳米管 (SWCNT) 片段之间的相互作用, 模拟结果表明, 单壁碳纳米管和掺杂碳纳米管表面吸附较少, 且 HCOH 的吸附影响了 SWCNT 的电子导。近年的突显关键词围绕“挥发性有机化合物”与“传感器”, 表明吸附范围的进一步扩大与应用于传感器等的实用性更强。突现分析结果与关键词时间线图结果相同。

4 结论

本研究分析样本来源于 Web of Science 的核心合集数据库, 以 2013—2023 年间所发表的有关石墨烯基材料在甲醛吸附方面的研究进展的 454 篇文献为分析对象, 通过使用科学知识图谱, 将大量的数字和语言信息进行可视化, 形象直观明了的展示石墨烯基材料在甲醛吸附方面的研究进展。

首先，结果显示年论文发文量呈先上升后下降的趋势。其中 2020 年发表的相关文章达到最多，但总体相关发文量较少。其次，作者、机构、国家等之间联系不密切，关于石墨烯基材料在甲醛吸附方面研究合作较少，处于独立研究的状态较多。发文量第一的机构为中国科学院，发文量第一的国家为中国，表明中国在该领域的贡献程度相对较大。再次，碳纳米管用于甲醛吸附的研究明显突出，而石墨烯基材料应用于甲醛吸附的相关文献量很少。石墨烯基材料在甲醛吸附方面利用的电催化是比较的，并且围绕催化活性的增强和碳基的比表面积大小等来研究。最后，未来的研究方向可能为，石墨烯基材料吸附范围进一步扩大到多种挥发性有机化合物，并且将石墨烯基材料应用于传感器等检测装置，提升该材料的实用性。

参考文献

- [1] 蔡莹. 改性活性炭的表面化学性质对甲醛吸附行为影响的研究 [D]. 湖南农业大学, 2020.
- [2] 孟凡银, 任海冰, 蔡佳胜等. 不同孔径结构活性炭对低浓度甲醛的吸附性能研究 [J]. 化学工程与装备, 2023, No. 312 (01): 4-8.

[3] 宁宇新, 沈彬. ESG 研究热点与前沿趋势——基于 CiteSpace 的可视化分析 [J/OL]. 科学与管理: 1-12 [2023-06-13].

[4] Zhou, QX. Wang, CY. Fu, ZB. Tang, YJ. Zhang, H. Adsorption of formaldehyde molecule on Stone-Wales defected graphene doped with Cr, Mn, and Co: A theoretical study [J]. COMPUTATIONAL MATERIALS SCIENCE. 83. 398-402.

[5] Wu, LU. Qin, ZY. Zhang, LX. Meng, T. Yu, F. Ma, J. CNT-enhanced amino-functionalized graphene aerogel adsorbent for highly efficient removal of formaldehyde [J]. NEW JOURNAL OF CHEMISTRY. 41 (7). 2527-2533.

[6] Ma, J. Sun, YR. Yang, JH. Lin, ZC. Huang, QY. Ou, T. Yu, F. High-Performance Amino-Functional Graphene/CNT Aerogel Adsorbent for Formaldehyde Removal from Indoor Air [J]. AEROSOL AND AIR QUALITY RESEARCH. 17 (3). 913-922.

[7] Egghe, L. Theory and practise of the g-index [J]. Scientometrics 69, 131–152 (2006).

[8] 陈悦, 陈超美, 刘则渊, 胡志刚, 王贤文. CiteSpace 知识图谱的方法论功能 [J]. 科学学研究, 2015, 33 (02): 242-253.

[9] 王娟, 陈世超, 王林丽, 杨现民. 基于 CiteSpace 的教育大数据研究热点与趋势分析 [J]. 现代教育技术, 2016, 26 (02): 5-13.

[10] Esrafili, MD. Dinparast, L. The selective adsorption of formaldehyde and methanol over Al- or Si-decorated graphene oxide: A DFT study [J]. JOURNAL OF MOLECULAR GRAPHICS & MODELLING.80.25-31.

[11] Zare, FD. Allahdadlalouni, M. Baktash, MY. Bagheri, H. Reduced graphene oxide-melamine formaldehyde as a highly efficient platform for needle trap microextraction of volatile organic compounds [J]. MICROCHEMICAL JOURNAL. 2020.157.

[12] Wei, Q. Liu, SK. Song, P. Yang, ZX. Wang, Q. Reduced graphene oxide-SnO₂ nanosheets hybrid nanocomposite for improvement of formaldehyde sensing properties [J]. JOURNAL OF MATERIALS SCIENCE-MATERIALS IN ELECTRONICS. 30 (13). 12204-12214.

[13] Beheshtian, J., Peyghan, A. A. & Bagheri, Z. Formaldehyde adsorption on the interior and exterior surfaces of CN nanotubes [J]. Struct Chem 24, 1331–1337 (2013).

[14] Chen D, Yuan Y J. Formaldehyde adsorption on carbon nanotubes fragment by density functional theory [J]. International Journal of Modern Physics B, 2017, 31 (16-19): 1744074.