[Article]

doi: 10.3866/PKU.WHXB201508212

www.whxb.pku.edu.cn

孔结构对活性炭吸附水溶液中铅离子的影响

杨洁扬 黄张根* 韩小金 景文 曾泽泉

(中国科学院山西煤炭化学研究所, 煤转化国家重点实验室, 太原 030001)

摘要: 选取三种表面化学性质相近的活性炭(AC), 通过等温吸附实验考察活性炭对水溶液中铅离子的吸附性能, 利用扫描电子显微镜(SEM)观察活性炭的表面微观形貌, 通过低温(77 K)液氮吸附测定活性炭的比表面积和孔容, 并分别以密度泛函理论(DFT)和Barrett-Joyner-Halenda (BJH)法计算微孔和中孔的孔径分布. 结果表明: 选用的三种活性炭AC1、AC2、AC3在比表面积和总孔容上呈依次下降的趋势, 但表面开放孔均匀分布的AC2, 具有最高的饱和吸附量, 孔结构类似颗粒堆积孔的AC3, 具有与表面开放孔分布集中的AC1相近的饱和吸附量; 通过对孔结构与吸附量的关联分析可知, 在活性炭吸附铅离子的过程中, 0.4–0.6 nm的孔是有效吸附孔, 10.5–20.6 nm、20.6–55.6 nm、5.2–10.5 nm三个区间的孔则会对吸附产生阻碍作用.

关键词: 活性炭; 孔结构; 吸附; 铅离子

中图分类号: O647

Effect of Activated Carbon Pore Structure on the Adsorption of Pb(II) from Aqueous Solution

YANG Jie-Yang HUANG Zhang-Gen* HAN Xiao-Jin JING Wen ZENG Ze-Quan

(State Key Laboratory of Coal Conversion, Institute of Coal Chemistry, Chinese Academy of Sciences, Taiyuan 030001, P. R. China)

Abstract: Pb(II) adsorption by three activated carbons (ACs) with similar surface chemistry but different pore distributions was investigated by isothermal adsorption experiments. The ACs were characterized by scanning electron microscopy (SEM) and N₂ adsorption at 77 K, while the micropore and mesopore size distributions were obtained from the density functional theory (DFT) and the Barrett-Joyner-Halenda (BJH) method, respectively. The specific surface area and total volume were ranked in order of AC1, AC2, and AC3. The AC2 sample had a uniform distribution of open pores on the surface and the highest saturating adsorption capacity, while the capacity of AC3, which had more aggregated pores, was similar to that of AC1, which had a concentrated distribution of open pores on the surface. A correlation analysis of pore structure and adsorption capacity indicated that pores with diameters in the range of 0.4–0.6 nm were favorable for Pb(II) adsorption, whereas pores with diameters in the ranges of 10.5–20.6 nm, 20.6–55.6 nm, and 5.2–10.5 nm had an adverse effect.

Key Words: Activated carbon; Pore structure; Adsorption; Pb(II)

1 引言

重金属不能像有机物那样通过生物降解转化为无害的物质, 且会在生物体内累积并通过食物链产生放大效应. 铅作为三种重金属环境激素类物质(铅、汞、镉)之一, 广泛存在于蓄电池生产、电

镀、采矿等工业领域的排放废水中.^[1] 过量的铅, 会对人体的神经、造血、消化等多个系统产生危害作用, 并影响机体正常的生理活动. 因此, 对含铅废水的处理一直是环境污染控制领域工作者的关注点.

Received: July 2, 2015; Revised: August 21, 2015; Published on Web: August 21, 2015.

*Corresponding author. Email: zg Huang@sxicc.ac.cn; Tel: +86-351-4043727

© Editorial office of *Acta Physico-Chimica Sinica*

上世纪八十年代, Netzer和Hughes²发现活性炭能够有效吸附水溶液中的铅离子, 自此, 国内外的科研工作者都对此展开了相关的研究. 早期的研究集中于考察活性炭的吸附性能和通过序批实验确立最佳吸附反应条件这两方面. 在普遍认识到活性炭是良好的铅离子吸附剂之后, 科研工作者对吸附过程进行了动力学和热力学分析, 并开始选用工、农业废弃物等低成本原料制备新基活性炭, 用于含铅废水的处理.³⁻⁷

活性炭对铅离子的吸附性能同时受到表面化学性质和物理性质的影响. 以前的研究阐述了表面官能团和 pH_{PZC} (PZC: 零电荷点)值对活性炭吸附铅离子的影响.⁸⁻¹² 而有关活性炭表面物理性质的研究, 则局限于对表面微观形貌的观察和比表面积、孔容等结构参数的测定, 未将其与活性炭对铅离子的吸附性能进行关联分析.¹³⁻¹⁵ 这部分研究的缺失, 不利于对吸附过程的整体认识和对吸附机理的探究. 因此, 本文选择了三种表面化学性质相近但孔隙结构不同的活性炭, 通过吸附实验、表征测定和关联分析, 对孔结构在活性炭吸附铅离子的过程中的影响进行了分析研究.

2 实验部分

2.1 实验材料

本次研究选用了三种活性炭, 分别为: AC1, 颗粒状煤基活性炭, 山西新华化工厂提供; AC2, 颗粒状椰壳活性炭, 唐山联合炭业科技有限公司提供; AC3, 直径5 mm柱状煤基活性炭, 山西玄中活性炭厂提供. 实验用活性炭均以去离子水洗涤并煮沸1 h, 110 °C干燥24 h, 研磨至20–40目后再于110 °C干燥24 h, 储于干燥器中备用.

试剂: 铅粉(GR), 溴化钾(GR), 浓硝酸(GR), 硝酸铅(AR), 氯化钠(AR), 氢氧化钠(AR), 盐酸(AR).

2.2 实验方法

2.2.1 吸附实验

以硝酸铅配制一定浓度的铅溶液, 并调节溶液 $\text{pH} = 5.5 \pm 0.1$ (根据预实验结果, 该 pH 范围最有利于活性炭对水溶液中铅离子的吸附, 且低于铅离子生成沉淀的 pH 值); 称取0.3 g (根据预实验确定的适宜投加量)预处理过的活性炭于250 mL锥形瓶中, 再倒入150 mL硝酸铅溶液, 置于恒温振荡器中; 在恒定温度(25 °C)下, 以150 $\text{r} \cdot \text{min}^{-1}$ 振荡48 h, 以达到吸附平衡. 由北京瑞利WFX120B型原子吸收分光光

度计(AAS), 测定溶液中铅离子的浓度(以铅粉配制标准曲线溶液). 根据振荡液中铅离子浓度的变化, 计算活性炭对铅离子的吸附量, 并将吸附结果与等温吸附模型进行拟合.

2.2.2 表征测试

pH_{PZC} 的测定: 活性炭的 pH_{PZC} 值采用酸碱趋势法¹⁶测定, 方法如下: 配制0.01 $\text{mol} \cdot \text{L}^{-1}$ 的氯化钠溶液, 分为6份, 通过加入盐酸或氢氧化钠溶液将其 pH 值分别调节为 5.0 ± 0.5 、 6.0 ± 0.5 、 7.0 ± 0.5 、 8.0 ± 0.5 、 9.0 ± 0.5 和 10.0 ± 0.5 (该范围根据预实验结果确定); 向调节好 pH 值的氯化钠溶液中通入氮气以去除溶解于其中的二氧化碳, 至溶液 pH 值稳定, 记录, 作为溶液的初始 pH 值; 6个100 mL锥形瓶中依次放入不同 pH 值的氯化钠溶液25 mL和0.15 g的活性炭, 恒温(25 °C)下密闭振荡24 h, 至溶液 pH 值稳定, 记录最终的溶液 pH 值; 将最终的溶液 pH 值与初始 pH 值进行比较, 两者数值最为接近的溶液 pH 值即为该活性炭样品的 pH_{PZC} 值.

傅里叶变换红外(FTIR)光谱分析: 将充分研细的活性炭粉末和溴化钾粉末, 按1 : 300混合、压片, 以纯溴化钾片为背景, 由德国BRUKER TENSOR 27傅里叶变换红外光谱仪以4 cm^{-1} 的分辨率, 在4000–600 cm^{-1} 范围内扫描分析.

微观形貌分析: 将少量活性炭样品通过导电胶固定于观察台上, 由日本JSM-7001F热场发射扫描电子显微镜(SEM)对表面形貌进行扫描分析.

能谱(EDS)分析: 能谱分析与SEM分析联合进行, 在SEM成像中选定需要分析的点, 并选择需分析的元素种类, 由德国BRUKER QX200 X射线能谱仪测定分析.

比表面积和孔结构分析: 采用美国Micromeritics ASAP 2020物理吸附仪, 在77 K的液氮温度下, 以高纯氮为吸附介质, 对样品进行测定分析. 通过Brunauer-Emmett-Teller (BET)、 t -plot和Dubinin-Astakhov方程计算活性炭的比表面积和孔容, 通过密度泛函理论(DFT)和Barrett-Joyner-Halenda (BJH)法计算活性炭的孔径分布.

3 结果与讨论

3.1 活性炭的吸附性能

三种活性炭对水溶液中铅离子的吸附等温线如图1所示. 从图1中可知, 三种活性炭对铅离子的吸附量均随平衡浓度的增加而增大, 其中, AC1和

图1 三种活性炭对铅(II)离子的吸附等温线

Fig.1 Adsorption isotherms of Pb(II) on the three activated carbons (ACs)

AC1: granular coal-based activated carbon, AC2: granular coconut shell derived activated carbon, AC3: columnar coal-based activated carbon; C_e : equilibrium concentration of Pb(II); q_e : equilibrium adsorption capacity

AC3对铅离子的吸附性能相近, AC2则明显优于两者. 应用Langmuir和Freundlich等温吸附模型对实验数据进行拟合, 拟合结果见图2和表1.

上述拟合结果表明, 三种活性炭对铅离子的吸附均以Langmuir模型的拟合结果更好, 拟合相关系数达到了0.99以上. 由拟合计算得到的饱和吸附量 q_0 可知, AC1与AC3的饱和吸附量相近, AC2的饱和吸附量则是它们的1.4倍. 拟合参数 b 反映吸附剂与吸附质之间相互作用的强弱,^{17,18} 按其数值大小的排序为AC3 > AC1 > AC2, 这与三种活性炭按饱和吸附量的排序刚好相反, 3.4节中将结合活性炭的表征结果对此作出分析.

3.2 活性炭的FTIR光谱分析及 pH_{PZC} 值

三种活性炭的FTIR吸光度谱图如图3所示, 从图中可看出: 三种活性炭在1630–1760 cm^{-1} 范围内均无明显的吸收峰, 而通常在这一范围内出现的C=O吸收峰具有很高的特征性, 在炭材料的红外谱图上很容易辨认, 因此, 三种活性炭表面均没有含C=O的醛、酮、醌、酯、羧酸等官能团;^{19–21} 位于

图2 三种活性炭的等温吸附模型拟合

Fig.2 Isotherm model fitting for adsorption of Pb(II) on the three ACs

(a) Langmuir isotherm plots; (b) Freundlich isotherm plots

高频区3400 cm^{-1} 附近的吸收峰, 可归属于水分子和羟基中的O–H伸缩振动及含氮官能团中的N–H伸缩振动; 位于1500–1350 cm^{-1} 和1100–1030 cm^{-1} 附近的吸收峰, 可归属于醇羟基中的C–OH伸缩振动与COH面内弯曲振动耦合产生的两个谱带, 前者以弯曲振动为主, 后者以伸缩振动为主, 且通常后者强度高, 三种活性炭在1100–1030 cm^{-1} 范围内均表现为双峰, 且以AC1和AC3更为明显, 可认为表面醇类基团存在旋转异构体, 故产生双峰;^{22,23} 位于1500–1350 cm^{-1} 区间的吸收峰还可归属于CH₃和CH₂的变角振动, 相应的2970和2870 cm^{-1} 附近的吸收峰, 则是CH₃和CH₂的反对称和对称伸缩振动产生的;^{24–26} 位于1600–1350 cm^{-1} 区间的吸收峰可归属于芳环中C=C的伸缩振动, 通常会产生3–4个吸收谱带, 且位于高频端的吸收峰较强; 低频区的其他吸收峰则可归属于活性炭灰分中的Si–C、Si–O–Si、C–S、C–P等基团.^{27–29}

总体来看, 三种活性炭的FTIR谱图出峰区间一致, 峰形相近, 唯一较大的区别出现在1600–1350 cm^{-1} 区间内, 而这一区间是CH₃、CH₂、C–OH以及C=C的重叠出峰区间, 考虑到由酸碱趋势法测得的三种活性炭的 pH_{PZC} 值(AC1、AC1和AC3的测定结

表1 三种活性炭的模型拟合参数

Table 1 Model fitting parameters of the three ACs

	Langmuir				Freundlich			
	fitted equation	$q_0/(mg \cdot g^{-1})$	b	R^2	fitted equation	n	K	R^2
AC1	$C_e/q_e = 0.0302 C_e + 0.0743$	33.113	0.406	0.995	$lg q_e = 0.1889 lg C_e + 1.2080$	5.294	16.144	0.977
AC2	$C_e/q_e = 0.0213 C_e + 0.0621$	46.948	0.343	0.991	$lg q_e = 0.2912 lg C_e + 1.2038$	3.434	15.988	0.961
AC3	$C_e/q_e = 0.0303 C_e + 0.0496$	33.003	0.611	0.991	$lg q_e = 0.2047 lg C_e + 1.1812$	4.885	15.177	0.972

q_0 : saturating adsorption capacity; R^2 : correlation coefficient; b : Langmuir adsorption constant; n , K : Freundlich adsorption constants

图3 三种活性炭的傅里叶变换红外(FTIR)光谱图
Fig.3 Fourier transform infrared (FTIR) spectra of the three ACs

果依次为9.00, 9.03和9.43)均大于7且非常相近, 可认为上述区别主要是由 CH_3 、 CH_2 等基团造成的, 即三种活性炭在表面碱性含氧官能团中 $\text{C}-\text{OH}$ 上的差别不大. 综上所述, 三种活性炭的表面化学性质相近, 可以通过比较研究, 分析孔结构在活性炭吸附铅离子的过程中的影响.

3.3 活性炭的表面形貌分析

三种活性炭的表面微观形貌如图4所示, 从图中可看出: AC1和AC2的表面较为平滑, AC1表面有较多的开放大孔且分布较为集中, AC2表面的开放孔则相对较小且呈均匀分布;³⁰ AC3的表面较为粗糙, 表面开放孔没有明显的边界, 结构类似于颗粒堆积孔, 且孔道之间有相互连通之处;^{31,32} 吸附后, AC1和AC2的表面孔道口均被吸附物覆盖, AC3则因吸附物沿孔壁附着, 并未完全遮盖孔道的开口, 仍可看到孔道概貌.

吸附后, 三种活性炭上均附着了较规则的多边形片状物, 图4b中的AC2以放大10000倍的图片展示了此片状物的形貌. 对三种活性炭上的片状物进行定点能谱分析, 结果表明, 三种活性炭上的多边形片状物均是以Pb、C、O三种元素为主的化合物(没有检测到N元素), 其中Pb元素占比最大, 说明在活性炭吸附铅离子的过程中, 铅离子主要与表面含氧官能团发生反应, 最终以多边形片状物的形式附着在活性炭表面.

3.4 活性炭的孔结构分析

三种活性炭的比表面积和孔结构参数列于表2中, 从表中可看出: 在比表面积和总孔容上, 三种活性炭呈依次下降的趋势, 且AC1的比表面积和总孔容均是AC3的2.5倍以上; 在微孔孔容上, 则以AC2

图4 三种活性炭的SEM图
Fig.4 Scanning electron microscopy (SEM) images of the three ACs

(a) before adsorption of Pb(II); (b) after adsorption of Pb(II)

最大, AC1略小, 但仍是AC3的2.4倍; 在微孔孔容占总孔容的百分比上, AC2高出AC1约38%, AC3也略大于AC1. 由3.2节中的计算结果可知, 在饱和吸附量方面, AC2最大, AC1和AC3相近, 且AC2比另两者高出约40%. 上述情况表明, 活性炭中微孔所占比例与其对铅离子的吸附性能密切相关.³³

采用DFT和BJH法分别对活性炭的微孔和中孔孔容进行计算, 并绘制相应的孔径分布图, 结果如图5和图6所示. 从图5和图6中可看出: AC1的孔径分布较为平均, 在各个区间均有一定的孔容累积; AC2则是微孔型活性炭, 孔径分布主要集中在0.4–1.4 nm这一区间; AC3的中孔分布与AC1相近,

表2 三种活性炭的比表面积和孔结构参数
Table 2 Specific surface areas and pore structure parameters of the three ACs

Sample	S_{BET} ($\text{m}^2 \cdot \text{g}^{-1}$)	V_{total} ($\text{cm}^3 \cdot \text{g}^{-1}$)	V_{mic} ($\text{cm}^3 \cdot \text{g}^{-1}$)	$(V_{\text{total}}/V_{\text{mic}})\%$	D/nm
AC1	1005.2245	0.5161	0.2485	48.15	2.0535
AC2	847.4684	0.3689	0.2897	78.53	1.7413
AC3	340.0403	0.1981	0.1044	52.70	2.3308

S_{BET} : BET specific surface area; V_{total} : total pore volume; V_{mic} : micropore volume; $V_{\text{total}}/V_{\text{mic}}$: ratio of micropore volume to total pore volume;

D : average pore diameter

图5 三种活性炭的微孔分布

Fig.5 Micropore size distribution of the three ACs

图6 三种活性炭的中孔分布

Fig.6 Mesopore size distribution of the three ACs

微孔部分则主要集中在0.4–0.9 nm这一小孔径区域. 分区间计算三种活性炭的孔容, 列于表3中.

将各区间的孔容与不同初始浓度下活性炭对铅离子的吸附量进行相关性分析,^{34,35} 结果如图7所示. 各相关系数曲线, 均在低浓度时出现波动, 之后则趋于平缓.

微孔分析结果(图7a)中的曲线走势表明, 0.4–0.6 nm区间的孔与吸附量的相关性最高且为正相关, 说明0.4–0.6 nm区间的孔是活性炭吸附水溶液中铅离子的有效孔. 中孔分析结果(图7b)中的曲线走势表明, 10.5–20.6 nm、20.6–55.6 nm、5.2–10.5 nm三个区间的孔与吸附量的相关性均很高, 但为负相关, 说明这三个区间的孔对活性炭吸附铅离子起阻碍作用.

结合3.1节中反映吸附剂与吸附质间相互作用的参数 b 的数值大小和3.4节中的表面形貌分析, 可认为: 拥有最大比表面积和总孔容的AC1, 由于其与吸附质即水溶液中铅离子之间的相互作用较弱, 表面开放孔的分布又较为集中, 当吸附达到一定量时,

表3 三种活性炭的孔容

Table 3 Pore volumes of the three ACs

Pore	Pore diameter range/nm	Pore volume/(cm ³ ·g ⁻¹)		
		AC1	AC2	AC3
micropore	0.4–0.6	0.1081	0.1527	0.0770
	0.6–1.0	0.0729	0.0735	0.0202
	1.0–1.4	0.0655	0.0382	0.0057
	1.4–1.7	0.0480	0.0173	0.0040
	1.7–2.0	0.0263	0.0073	0.0015
mesopore	2.0–2.5	0.0410	0.0074	0.0039
	2.5–3.3	0.0354	0.0111	0.0088
	3.3–5.2	0.0580	0.0202	0.0228
	5.2–10.0	0.0309	0.0041	0.0191
	10.0–20.0	0.0142	0.0023	0.0143
	20.0–55.6	0.0082	0.0025	0.0104

表面孔道口即被吸附物覆盖, 影响了内部孔道的充分利用, 因此, AC1的饱和吸附量低于AC2, 而与AC3相近; 在比表面积和孔容上居中的AC2, 由于拥有最多的有效孔和最少的阻碍孔, 且表面开放孔均匀分布, 内部孔道能够得到充分利用, 而在饱和吸附量上具有最大值; AC3的比表面积和总孔容只有AC1的34%和38%, 但由于AC3不仅与铅离子间的相互作用最强(b 值最大), 而且拥有较多的有效孔和较少的阻碍孔, 同时, 其类似堆积孔的结构令吸附物沿孔壁附着而不覆盖孔道口, 使内部孔道可以得到充分利用, 因此, AC3拥有与AC1相近的饱和吸附量.

图7 相关系数随Pb(II)初始浓度(C_0)的变化曲线Fig.7 Curves of R^2 versus initial concentration of Pb(II) (C_0)

R^2 : correlation coefficients for the adsorption capacity of the ACs at different C_0 values and pore volumes with different pore diameter intervals; pore diameter range in figure a: —■— 0.4–0.6 nm, —●— 0.6–1.0 nm, —▲— 1.0–1.4 nm, —▼— 1.4–1.7 nm, —◆— 1.7–2.0 nm; pore diameter range in figure b: —■— 20.6–55.6 nm, —●— 10.5–20.6 nm, —▲— 5.2–10.5 nm, —▼— 3.3–5.2 nm, —◆— 2.5–3.3 nm, —◄— 2.0–2.5 nm

4 结 论

(1) AC1、AC2、AC3的FTIR谱图出峰区间一致, 峰形相近, 且三者的 pH_{PZC} 值数值相近, 表明AC1、AC2、AC3是三种表面化学性质相近的活性炭。

(2) 在活性炭吸附铅离子的过程中, 铅离子主要与表面含氧官能团发生反应, 最终以多边形片状物的形式附着在活性炭表面。活性炭的表面形貌会影响其对水溶液中铅离子的吸附量: 表面开放孔分布集中, 会在达到一定吸附量时, 因孔道口被吸附物覆盖而影响内部孔道的进一步利用, 使活性炭的吸附量降低; 表面开放孔均匀分布则有利于孔道的充分利用, 从而提高活性炭的吸附量; 表面开放孔以类似堆积孔的形式存在, 且孔道间相互连通, 可使吸附物沿孔壁附着而不遮蔽孔道口, 从而有利于内部孔道的充分利用, 使活性炭的吸附量增大。

(3) 在活性炭吸附水溶液中铅离子的过程中, 0.4–0.6 nm的孔是有效吸附孔, 10.5–20.6 nm、20.6–55.6 nm、5.2–10.5 nm三个区间的孔则会对吸附过程产生阻碍作用。

References

- (1) Qin, H. F.; Liu, T. F.; Zhou, J. B. *Chinese Journal of Environmental Engineering* **2011**, 5 (2), 306. [秦恒飞, 刘婷逢, 周建斌. 环境工程学报, **2011**, 5 (2), 306.]
- (2) Netzer, A.; Hughes, D. E. *Water Res.* **1984**, 18 (8), 927. doi: 10.1016/0043-1354(84)90241-0
- (3) Riverautila, J.; Ferrogarcia, M. A.; Mingorance, M. D.; Bautistatoledo, I. *J. Chem. Technol. Biotechnol.* **1986**, 36 (2), 47.
- (4) Ferrogarcia, M. A.; Riverautila, J.; Bautistatoledo, I.; Mingorance, M. D. *Carbon* **1990**, 28 (4), 545. doi: 10.1016/0008-6223(90)90051-Y
- (5) Cheng, J. G.; Subramanian, K. S.; Chakrabarti, C. L.; Guo, R. D.; Ma, X. J.; Lu, Y. J.; Pickering, W. F. *Journal of Environmental Science and Health Part A: Toxic/Hazardous Substances & Environmental Engineering* **1993**, A28 (1), 51.
- (6) Li, K. L.; Wang, X. H. *Bioresour. Technol.* **2009**, 100 (11), 2810. doi: 10.1016/j.biortech.2008.12.032
- (7) Sakthi, V.; Andal, N. M.; Rengaraj, S.; Sillanpaa, M. *Desalin. Water Treat.* **2010**, 16 (1–3), 262. doi: 10.5004/dwt.2010.1074
- (8) Jiang, L. Q.; Zhang, R. J.; Deng, H. P. *Environmental Science & Technology* **2014**, 37 (12), 178. [蒋立群, 张瑞金, 邓惠萍. 环境科学与技术, **2014**, 37 (12), 178.]
- (9) Fan, M. X.; Tong, S. T.; Chen, D. D. *Chinese Journal of Environmental Engineering* **2014**, 8 (12), 5197. [范明霞, 童仕唐, 陈东东. 环境工程学报, **2014**, 8 (12), 5197.]
- (10) Cechinel, M. A. P.; de Souza, S.; de Souza, A. A. U. *J. Cleaner Prod.* **2014**, 65, 342. doi: 10.1016/j.jclepro.2013.08.020
- (11) Machida, M.; Fotoohi, B.; Amamo, Y.; Mercier, L. *Appl. Surf. Sci.* **2012**, 258 (19), 7389. doi: 10.1016/j.apsusc.2012.04.042
- (12) Mu, G. N.; Yang, C. F. *Acta Phys.-Chim. Sin.* **1995**, 11 (2), 157. [木冠南, 杨春芬. 物理化学学报, **1995**, 11 (2), 157.] doi: 10.3866/PKU.WHXB19950212
- (13) Boudrahem, F.; Soualah, A.; Aissani-Benissad, F. *J. Chem. Eng. Data* **2011**, 56 (5), 1946. doi: 10.1021/je1009569
- (14) Momcilovic, M.; Purenovic, M.; Bojic, A.; Zarubica, A.; Randelovic, M. *Desalination* **2011**, 276 (1–3), 53. doi: 10.1016/j.desal.2011.03.013
- (15) Ghaedi, M.; Mazaheri, H.; Khodadoust, S.; Hajati, S.; Purkait, M. K. *Spectrochim. Acta Part A* **2015**, 135, 479.
- (16) Lopez-Ramon, M. V.; Stoeckli, F.; Moreno-Castilla, C.; Carrasco-Marin, F. *Carbon* **1999**, 37 (8), 1216.
- (17) Zhao, Z. G. *The Principle and Application of Adsorption*; Chemical Industry Press: Beijing, 2005; pp 91–193. [赵振国. 吸附作用应用原理. 北京: 化学工业出版社, 2005: 91–193.]
- (18) Konndou, S.; Ishikawa, T.; Abe, I. *Adsorption Science*; Chemical Industry Press: Beijing, 2006; pp 115–137; translated by Li, G. X. [近藤精一, 石川达雄, 安部郁夫. 吸附科学. 李国希, 译. 北京: 化学工业出版社, 2006: 115–137.]
- (19) Garcia-Bordeje, E.; Lazaro, M. J.; Moliner, R.; Alvarez, P. M.; Gomez-Serrano, V.; Fierro, J. L. G. *Carbon* **2006**, 44 (3), 410.
- (20) Liu, L. H.; Gu, M.; Xian, X. F. *Chinese Journal of Environmental Engineering* **2012**, 6 (4), 1301. [刘立恒, 辜敏, 鲜学福. 环境工程学报, **2012**, 6 (4), 1301.]
- (21) Zhang, Z.; Xu, M.; Wang, H.; Li, Z. *Chem. Eng. J.* **2010**, 160 (2), 574.
- (22) Tseng, H. H.; Wey, M. Y. *Chemosphere* **2006**, 62 (5), 764.
- (23) Wu, J. Study on the Activated Carbon Produced with Sewage Sludge. Master Dissertation. Shandong University, Jinan, 2006. [吴娟. 城市污水处理厂污泥制备活性炭的研究[D]. 济南: 山东大学, 2006.]
- (24) Karatepe, N.; Orbak, İ.; Yavuz, R.; Özyüğüran, A. *Fuel* **2008**, 87 (15–16), 3214.
- (25) Macías-García, A.; Díaz-Díez, M. A.; Cuerda-Correa, E. M.; Olivares-Marín, M.; Gañan-Gómez, J. *Appl. Surf. Sci.* **2006**, 252 (17), 5973.
- (26) Wu, M. B.; Zheng, J. T.; Qiu, J. S. *Chem. Online* **2011**, 74 (7), 622. [吴明铂, 郑经堂, 邱介山. 化学通报, **2011**, 74 (7), 622.]
- (27) Mohammadi, S. Z.; Karimi, M. A.; Afzali, D.; Mansouri, F. *Desalination* **2010**, 262 (1–3), 88.
- (28) Ahmad, F.; Daud, W.; Ahmad, M. A.; Radzi, R. *Chem. Eng. Res. Des.* **2013**, 91 (6), 1033.
- (29) Weng, S. F. *Fourier Transform Infrared Spectrometry*; Chemical Industry Press: Beijing, 2010; pp 291–358. [翁诗甫. 傅里叶变换红外光谱分析. 北京: 化学工业出版社, 2010: 291–358.]
- (30) Li, L. Q.; Song, J. F.; Yao, X. L.; Huang, G. J.; Liu, Z.; Tang, L. *J. Cent. South Univ.* **2012**, 19 (12), 3532.

- (31) Li, X. Q.; Lan, L. J. *Jiangsu Agric. Sci.* **2013**, *41* (6), 288. [李晓强, 兰丽娟. 江苏农业科学, **2013**, *41* (6), 288.]
- (32) Tang, J.; Zeng, Q.; Chen, Z. D.; Huang, X. Q. *Acta Phys. -Chim. Sin.* **2012**, *28* (5), 1269. [汤 徽, 曾 峤, 陈振东, 黄向前. 物理化学学报, **2012**, *28* (5), 1269.] doi: 10.3866/PKU.WHXB201202242
- (33) Chen, Y. J.; Hu, Z. H.; Wang, X. J.; Zhao, G. H.; Liu, Y. F.; Liu, W. *Acta Phys. -Chim.Sin.* **2008**, *24* (9), 1592. [陈玉娟, 胡中华, 王晓静, 赵国华, 刘亚菲, 刘 巍. 物理化学学报, **2008**, *24* (9), 1592.] doi: 10.3866/PKU.WHXB20080911
- (34) Chen, Q. J.; Wang, Z.; Long, D. H.; Liu, X. J.; Zhan, L.; Liang, X. Y.; Qiao, W. M.; Ling, L. C. *Ind. Eng. Chem. Res.* **2010**, *49* (7), 3153.
- (35) Gun'ko, V. M.; Palijczuk, D.; Leboda, R.; Skubiszewska-Zieba, J.; Smigielski, R.; Zietek, S. *J. Colloid Interface Sci.* **2006**, *294* (1), 62.