

超重力法制备 Al_2O_3 及其吸附刚果红性能研究

付艺婷^{1,2}, 袁志国^{1,2}, 张雅倩^{1,2}, 贾正娜^{1,2}, 孔哲^{1,2}

(1. 中北大学 化学与化工学院, 山西 太原 030051;

2. 中北大学 化工过程强化山西省重点实验室, 山西 太原 030051)

摘要: 氧化铝因其优异的吸附性能成为处理有机染料废水的理想材料。本文采用撞击流-旋转填料床(IS-RPB)成功制备了具有大孔和高比表面积($332\text{ m}^2/\text{g}$)的氧化铝。研究发现: 煅烧温度、超重力因子等因素对氧化铝结构有着显著的影响, 煅烧温度从 $900\text{ }^\circ\text{C}$ 降至 $500\text{ }^\circ\text{C}$ 时, 所制备氧化铝的比表面积从 $171\text{ m}^2/\text{g}$ 显著提高至 $332.3\text{ m}^2/\text{g}$ 。应用于刚果红染料废水吸附时, 最大吸附容量达到 800 mg/g , 去除率增加了 10% , 达 99% ; 溶液pH值从2至8时吸附性能略降, 超过8时, 呈现断崖式下降。去除率最高达 99.71% ; 其吸附过程符合Langmuir等温线模型, 相关系数 R_1^2 达到了 0.9991 。通过对比分析, IS-RPB制备的氧化铝比表面积和吸附能力均优于搅拌釜制备的氧化铝, 且前者制备的氧化铝结构稳定, 具有良好的重复性, 在染料分离和环境净化等领域具有较大的应用潜力。

关键词: 超重力; 撞击流-旋转填料床; 氧化铝; 刚果红; 吸附

中图分类号: TQ424.2 **文献标识码:** A **doi:** 10.62756/jnuc.issn.1673-3193.2024.10.0009

引用格式: 付艺婷, 袁志国, 张雅倩, 等. 超重力法制备 Al_2O_3 及其吸附刚果红性能研究[J]. 中北大学学报(自然科学版), 2025, 46(4): 480-488.

FU Yiting, YUAN Zhiguo, ZHANG Yaqian, et al. Preparation of Al_2O_3 by high-gravity method and its adsorption performance for congo red[J]. Journal of North University of China(Natural Science Edition), 2025, 46(4): 480-488.

Preparation of Al_2O_3 by High-Gravity Method and Its Adsorption Performance for Congo Red

FU Yiting^{1,2}, YUAN Zhiguo^{1,2}, ZHANG Yaqian^{1,2}, JIA Zhengna^{1,2}, KONG Zhe^{1,2}

(1. School of Chemistry and Chemical Engineering, North University of China, Taiyuan 030051, China;

2. Shanxi Province Key Laboratory of Chemical Process Intensification, North University of China, Taiyuan 030051, China)

Abstract: Alumina is an ideal material for the treatment of organic dye wastewater due to its excellent adsorption properties. In this study, alumina with large pores and a high specific surface area ($332\text{ m}^2/\text{g}$) was successfully prepared using an impinging stream-rotating packed bed (IS-RPB). It was observed that factors such as calcination temperature and high-gravity factor significantly influenced the structure of the alumina. The specific surface area of the prepared alumina was significantly increased from $171\text{ m}^2/\text{g}$ to $332.3\text{ m}^2/\text{g}$ when the calcination temperature was decreased from $900\text{ }^\circ\text{C}$ to $500\text{ }^\circ\text{C}$. When applied to the

收稿日期: 2024-10-14

基金项目: 山西省自然科学研究面上项目(202203021211098); 山西省科技成果转化引导专项(202104021301054); 中北大学研究生科技立项(20231925)

作者简介: 付艺婷(2000—), 女, 硕士生, 主要从事化学工程与技术的研究。

通信作者: 袁志国(1978—), 男, 教授, 博士, 主要从事超重力化工过程强化、纳米材料制备的研究。E-mail: ncityzg@163.com。

adsorption of Congo red dye wastewater, the maximal adsorption capacity reached 800 mg/g, and the removal rate increased by 10% to 99%. The adsorption performance slightly decreased as the pH value of the solution increased from 2 to 8 and showed a cliff-like decrease when exceeding 8. The maximum removal rate was 99.71%; the adsorption process was in accordance with the Langmuir isotherm model, and the correlation coefficient R_L^2 reached 0.999 1. Through comparative analysis, the specific surface area and adsorption capacity of alumina prepared by IS-RPB are better than those prepared by stirred kettle, and the alumina prepared by the former is structurally stable with good reproducibility, which has a greater potential for application in the fields of dye separation and environmental purification.

Key words: high-gravity; impinging stream-rotating packed bed; activated alumina; Congo red; adsorption

0 引言

中国作为染料生产和出口大国,染料产能占世界总产能的2/3以上,出口量接近全球的70%,这同时也给染料废水的处理带来了严峻挑战,特别是像刚果红(CR)这类具有水溶性和难生物降解特性的染料,它们在溶于水后不仅会导致溶解氧浓度下降,还会因其复杂的芳香杂环结构对水生生物造成重大影响^[1-2]。刚果红作为染料废水中的代表性污染物之一,其处理和去除是染料废水治理的关键环节,对于保护水资源和生态环境安全具有重要意义^[3-4]。因此,去除或降解废水中的刚果红成为了一个重要的环保课题。在众多处理方法中,吸附法有着操作简单、环境友好及吸附剂来源广等优点而备受关注^[5-7]。然而,大多数吸附剂在水处理中因吸附容量低、重复性差而受到限制^[8]。为了解决这一难题,研究人员探索了多种吸附剂材料,如金属有机框架 MOFs、分子筛、氧化铝、活性炭和石墨烯等^[9-11]。

氧化铝因其大比表面积和适宜的孔隙结构而展现出优良的吸附性能。大比表面积意味着可以提供更多的活性位点,同时较大的孔径促进了孔道内部物质的运输速度,从而增加了吸附量^[12-13]。Li等^[14]合成了具有分级多孔结构的超细氧化铝纤维,在800℃煅烧后,所得材料表现出显著的多孔结构和高比表面积(226.94 m²/g),具有良好的吸附性能。Sara等^[15]利用氧化铝和炭黑复合,成功制备了多孔 $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 纳米壳,其比表面积为217.7 m²/g,与炭黑复合后其比表面积增至290.1 m²/g,比表面积的增加显著提高了其对染料的吸附能力,使得CR染料去除效率高达98.6%,最大吸附能力达到370.4 mg/g。Zhang等^[16]采用无溶剂水热-煅烧工艺合成了约为20 nm的 $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 纳米颗粒,对CR的吸附容量约为

465.8 mg/g。Liu等^[17]则利用表面活性剂和成孔剂,通过分段加热合成了具有优异吸附性能的 $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 微球,得到的介孔氧化铝比表面积为267 m²/g,其最大吸附量为461 mg/g。这些研究结果说明了制备具有大比表面积和大孔结构的氧化铝在提升染料吸附性能方面至关重要。

碳酸铝铵(AACH)作为氧化铝众多前驱体之一,在高温煅烧时会释放二氧化碳和水蒸汽。这一独特的分解行为伴随着气体的持续逸出,留下多孔结构,为合成具有大比表面积和特殊孔道结构的氧化铝提供了可能^[18-20]。为解决沉淀法中混合不均匀导致的晶核尺寸不均一问题,引入撞击流-旋转填料床(IS-RPB),即在撞击流-旋转填料床反应器中两股液体首先发生剧烈撞击,使液体形成细小的液滴,然后进入旋转的填料中,液体多次不断地分散、聚并和破碎,这种相互作用使得反应体系的浓度分布更加均匀,更容易达到均匀的过饱和状态,从而实现更好的微观混合效果,促进快速反应和高效传热,同时在制备过程中表现出较高的重复性^[21-23]。与搅拌反应器相比,前者可有效规避局部过饱和度,为制备晶核尺寸均一的AACH前驱体创造条件和场所^[24]。经高温煅烧后,AACH前驱体分解的 CO_2 和 H_2O 逸出,从而进一步构建了具有孔道结构和比表面积大的 Al_2O_3 。

综上所述,通过使用IS-RPB技术制备大孔、高比表面积的氧化铝,可以更高效地吸附刚果红。本文系统地研究了pH、吸附剂投加量等参数对刚果红吸附行为的影响,可以为染料废水的高效吸附处理提供一种高效吸附剂的制备方法和基础数据。

1 实验

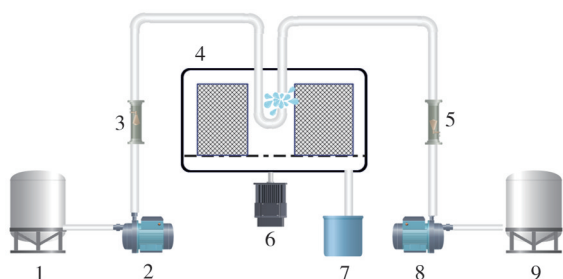
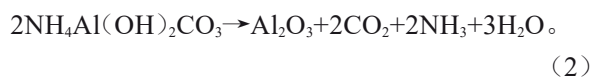
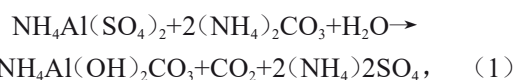
1.1 材料与试剂

十二水硫酸铝铵($\text{NH}_4\text{Al}(\text{SO}_4)_2 \cdot 12\text{H}_2\text{O}$)、碳

酸铵 $(\text{NH}_4)_2\text{CO}_3$ 、氨水 $(\text{NH}_3\cdot\text{H}_2\text{O})$ 、盐酸 (HCl) 、氢氧化钠 (NaOH) 、刚果红 (CR) ，所有化学品均为分析纯。

1.2 氧化铝的制备

在室温下将硫酸铝铵、碳酸铵分别置于烧杯中溶解，并用氨水将碳酸铵溶液pH调至10，将上述溶液分别放于原料罐1和9中，由泵送入撞击流-旋转填料床4中，两股物料进入旋转填料后，经过快速的化学反应，在重力作用下流入储料罐7中，流程如图1所示。陈化后将所得的前驱体用去离子水和无水乙醇洗涤。随后，将其在 $80\text{ }^\circ\text{C}$ 的烘箱中干燥12 h，以除去前驱体中的水分。将研磨后的前驱体在马弗炉中一定温度下煅烧2 h，得到 Al_2O_3 粉体。该过程主要产生以下反应：



1, 9—原料罐; 2, 8—泵; 3, 5—液体流量计; 4—撞击流-旋转填料床; 6—电机; 7—储料罐

图1 IS-RPB制备氧化铝前驱体的流程示意图

Fig. 1 Flow diagram of IS-RPB for alumina precursor production

1.3 样品及性能表征

使用X射线粉末衍射仪(XRD, Rigaku Ultima IV型)对前驱体和产品进行XRD表征,扫描范围为 $10^\circ\sim 80^\circ$,扫描速度为 $8^\circ/\text{min}$ 。采用全自动比表面积分析仪(Autosorb-iQ2-M)收集氮气吸附-脱附等温线,用Brunauer-Emmett-Teller(BET)法计算比表面积。使用马尔文电位分析仪(Malvern sizer Nano ZS)进行Zeta电位的测定,测定3次结果并进行平均。采用紫外可见分光光度计(Agilent Cary 5000)测试溶液的吸光度,完全光谱扫描CR的最大吸收波长 (λ) 为 500 nm 。

1.4 吸附实验

称取不同质量(10, 30, 50, 70和 100 mg)氧化

铝样品分别放入含有不同初始质量浓度(50, 100, 200, 300和 500 mg/L)的CR溶液的烧杯中,进行搅拌。每间隔一段时间后取样,离心后取澄清液用紫外分光光度计测量溶液的质量浓度。吸附剂对刚果红的吸附能力以及吸附率的计算公式为

$$q_t = (C_0 - C_t)V/m, \quad (3)$$

$$q_e = (C_0 - C_e)V/m, \quad (4)$$

$$R = (C_0 - C_t)/C_0 \times 100\%, \quad (5)$$

式中: q_t 、 q_e 分别为氧化铝的瞬时吸附量和平衡吸附量, mg/g ; C_0 、 C_t 、 C_e 分别为CR溶液的初始质量浓度、任意时间 t 的质量浓度及吸附平衡时的质量浓度, mg/L ; V 为CR溶液的体积, L ; m 为吸附剂的质量, g ; R 为吸附剂对CR溶液的去除率, %。

为分析平衡状态下的吸附过程,本文采用了两种经典的吸附等温线模型:Langmuir模型和Freundlich模型,分别为

$$q_e = K_L q_m C_e / (1 + K_L C_e), \quad (6)$$

$$q_e = K_F \cdot C_e^{1/n}, \quad (7)$$

式中: q_m 为最大吸附量, mg/g ; C_e 为CR溶液的平衡质量浓度, mg/L ; K_L 、 K_F 分别为Langmuir常数和Freundlich常数。

2 结果与讨论

2.1 氧化铝的制备条件对吸附性能的影响

2.1.1 煅烧温度对吸附的影响

为考察不同煅烧温度制备得到的氧化铝对CR去除性能的影响,在保持前驱体一致的情况下,分别在温度为 500 、 600 、 700 、 800 和 $900\text{ }^\circ\text{C}$ 时进行煅烧。由图2(a)可以看出,不同煅烧温度下合成的氧化铝样品在 2θ 为 31.9° 、 45.7° 和 66.7° 左右出现衍射峰,与PDF卡片中 $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 的特征峰相吻合,但煅烧温度升至 $900\text{ }^\circ\text{C}$ 生成的氧化铝样品在 32.8° 左右出现了新的衍射峰,此外,原本对应于 $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 的衍射峰在 44.8° 及 67.4° 的位置出现了明显的偏移,分别向左和向右移动,通过与标准PDF卡片中的谱图进行比较分析,可以确定这些新的衍射峰和偏移现象是由于在 $900\text{ }^\circ\text{C}$ 煅烧温度下生成了 $\theta\text{-Al}_2\text{O}_3$ 。

由图3可以看出,氧化铝对刚果红的去除效果随煅烧温度的升高而下降,煅烧温度为 $500\text{ }^\circ\text{C}$ 时,去除率可达到 97.18% ,这是由于在 $500\text{ }^\circ\text{C}$

下,前驱体晶体结构中含有的表面吸附水和结晶水,在焙烧过程中随着蒸发而消失,生成了大量的气体,使得粉体内部形成了丰富的孔隙结构,因而增大了比表面积;温度升高至 900 °C 时,煅烧温度的大幅提升使得低温煅烧形成的孔隙减小,导致比表面积减小,从而减小了与 CR 的有效接触面积,在相同时间下,去除率仅仅达到 91.27%。煅烧温度对氧化铝的比表面积和孔径的影响,也可在图 2(b) 和表 1 中得到证实。

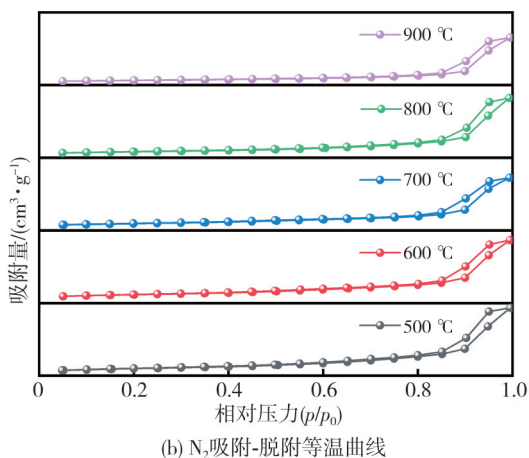
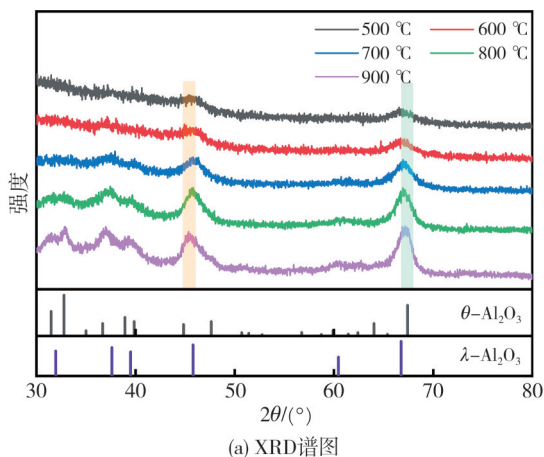


图 2 不同煅烧温度下 Al₂O₃ 的 XRD 谱图及 N₂ 吸附-脱附等温曲线
Fig. 2 XRD spectra and N₂ adsorption/desorption isothermal curves of Al₂O₃ at different calcination temperatures

表 1 不同煅烧温度下 Al₂O₃ 的比表面积及孔径
Tab. 1 Specific surface area and pore size of Al₂O₃ at different calcination temperatures

煅烧温度/°C	比表面积/(m ² ·g ⁻¹)	孔径/nm
500	332.3	17.749
600	312.7	17.659
700	236.1	17.580
800	248.1	17.410
900	171.0	17.309

如图 2(b) 所示,氮气吸附-脱附等温曲线揭示了 γ-Al₂O₃ 呈现出典型的 IV 型等温线,并且其滞后回环在较高相对压力处没有明显的饱和吸附平台,类似于 H3 型等温线。这表明所制备的 γ-Al₂O₃ 具有介孔结构,较大的比表面积有利于污染物分子的吸附,而较大的孔径有利于刚果红分子的扩散,这两个特性共同作用,对提升吸附性能起到了积极的影响。

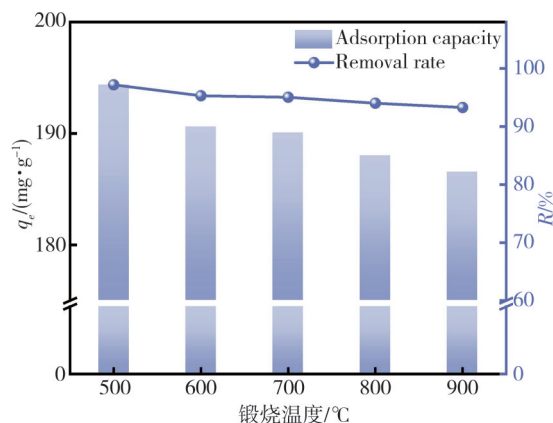
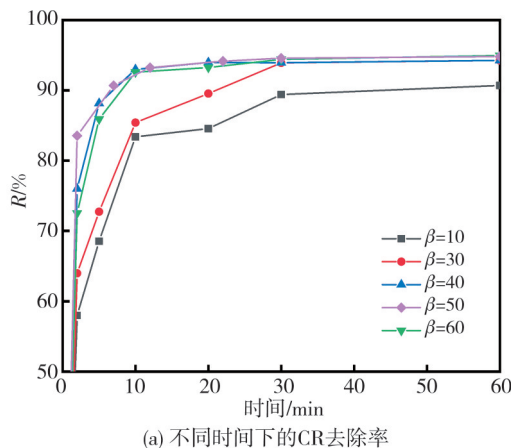


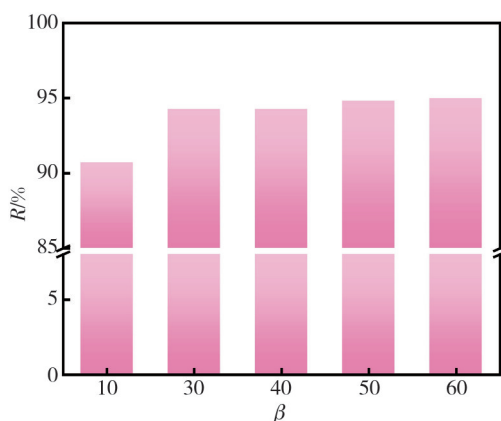
图 3 不同煅烧温度下 Al₂O₃ 的吸附性能
Fig. 3 Adsorption properties of Al₂O₃ at different calcination temperatures

2.1.2 超重力因子对吸附性能的影响

为考察不同超重力因子(β)下生成的氧化铝对 CR 去除性能的影响,在保持其他制备及吸附条件一致的情况下,吸附 1 h 后对其进行分析。由图 4 可以看出,β 由 10 增加到 60 时,吸附率从 90.71% 上升到 95.76%,且超重力因子越大,吸附速率越快,达到吸附平衡的时间越短。随着超重力因子的增大,产物的吸附性能越好,这可能是由于超重力因子增大后,液体停留时间变短,微观混合程度增大,原料在短时间内快速成核生长,使得产物粒径更小更均匀,比表面积越大,提供的接触面积越大,吸附位点越多,去除率越来越高。



(a) 不同时间下的 CR 去除率



(b) 吸附平衡时的CR去除率

图4 不同超重力因子对CR去除率的影响

Fig. 4 Effect of different high-gravity factors on CR removal rate

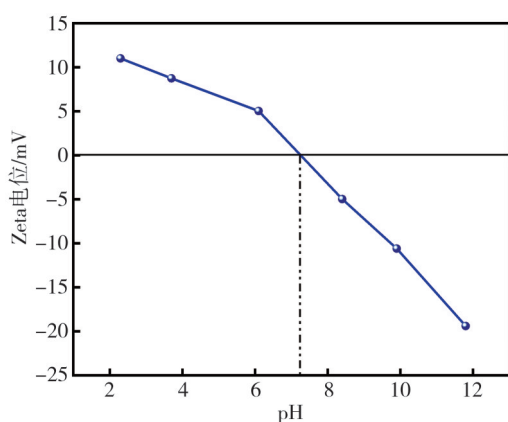
当超重力因子增大到一定程度时,去除率将逐渐平稳,可能是因为超重力因子增大的程度已经使液膜小到液体间微观混合均匀,从而使其在反应结晶过程中得到细小的晶核,去除率逐渐稳定。结合前期的吸附速率、吸附平衡时的去除率以及节能要求,确定超重力因子 β 为50,煅烧温度为 $500\text{ }^\circ\text{C}$ 为氧化铝最佳制备条件。

2.2 吸附条件对吸附性能的影响

2.2.1 溶液pH对吸附的影响

一般来说,溶液的pH值对CR的吸附过程具有显著影响。溶液的酸碱性会改变其所含离子的电荷状态,进而影响吸附材料对染料的吸附性能。为了探究pH值对 Al_2O_3 吸附刚果红性能的影响,分别使用盐酸和氢氧化钠将溶液pH值调节到2~10范围内。

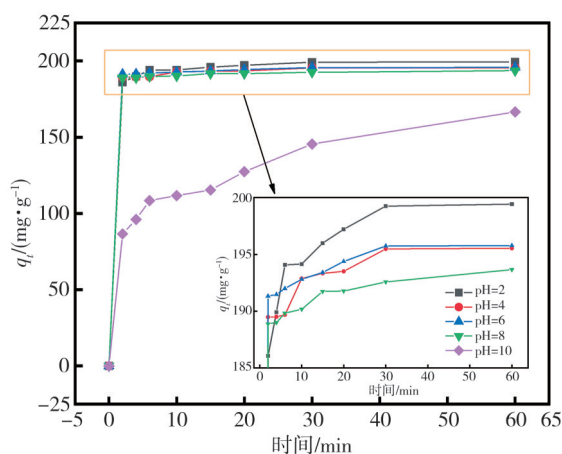
图5展示了 Al_2O_3 在不同的pH条件下的Zeta电位。

图5 不同pH条件下 $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 的Zeta电位Fig. 5 Zeta potential of $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ under different pH conditions

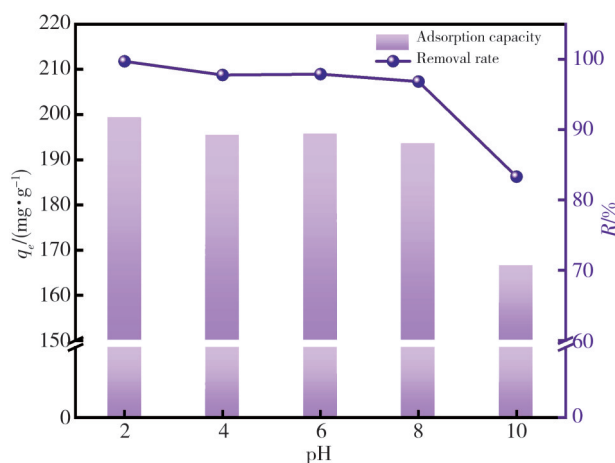
吸附剂的等电位(IEP)为 $\text{pH}=7.26$,当pH值偏离等电位点时,带电的吸附剂表面能够有效吸

引周围溶液中的相反电荷离子。 Al_2O_3 的Zeta电位绝对值较高,表明样品表面具有较高的电荷密度,且分散粒子较小。在酸性溶液中,吸附剂表面的正电荷对阴离子的吸引力超过了排斥力,这使得其对刚果红染料具有更强的吸附能力。

图6所示为溶液pH对 $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 吸附性能的影响。可以看出,pH值由2升至8时, $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 对CR的吸附性能呈现轻微降低的趋势,当pH超过8时, $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 对CR的吸附效果呈现断崖式下降,吸附容量从 199.42 mg/g 下降到 166.60 mg/g ,同时去除率从 99.71% 降低至 83.30% 。这一现象进一步证实了在酸性环境中, $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 对CR的吸附会更加高效。



(a) 不同时间下的CR吸附量



(b) 吸附1 h时的吸附量及去除率

图6 pH值对 $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 吸附CR的影响Fig. 6 Effect of pH on the adsorption of CR by $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$

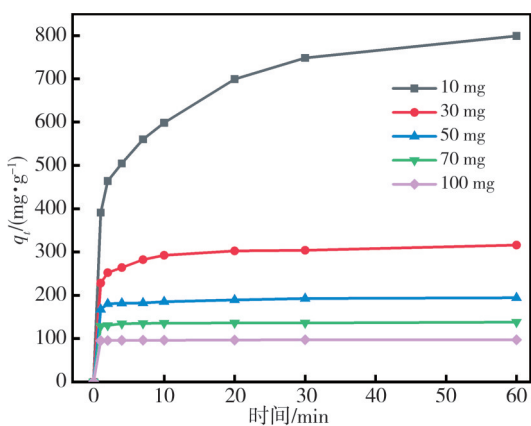
出现这种趋势的原因在于刚果红分子中含有磺酸基团,在酸性条件下更易电离,使其分子结构不稳定并形成可溶性的阴离子。在低pH条件下吸附剂表面聚集的 H^+ 离子增多,增强了对带负电的刚果红分子的静电吸引力。由于CR属于阴

离子染料,当pH值继续增加时,碱性溶液中OH⁻离子的增加与刚果红分子竞争,γ-Al₂O₃上所吸附的刚果红分子就会相对减少,因此会导致吸附容量和去除率下降。

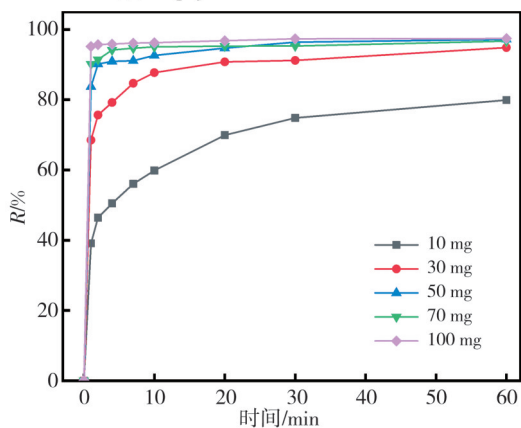
综上所述,当pH=2时,吸附材料对CR的吸附效果最为理想。但是由于实际染料废水呈弱酸性,因此采用pH=6进行后续实验。

2.2.2 吸附剂用量对吸附的影响

为了研究吸附剂用量对吸附效果的影响,保持溶液初始质量浓度不变,投加量分别为10~100 mg,吸附期间多次取样。图7显示了不同添加量的γ-Al₂O₃对溶液中CR的去除率及吸附容量的影响。



(a) γ-Al₂O₃的用量对吸附量的影响



(b) γ-Al₂O₃的用量对去除率的影响

图7 γ-Al₂O₃的用量对吸附CR的影响

Fig. 7 Effect of γ-Al₂O₃ addition on adsorption CR

由图7可以看出,添加量对去除率的影响较为明显,随着氧化铝用量的增加,溶液中增加了吸附位点,从而提高了材料对CR的去除率。具体而言,当用量为10 mg时,对CR的吸附容量最强,可达到799.96 mg/g,对应的去除效率为79.80%。当用量增加到100 mg时,吸附容量降至最低点,为97.41 mg/g,但此时去除率为

97.41%。可以看出,随着氧化铝用量的增加,单位吸附量有所下降,而去除效率则相应提高。当初始质量浓度不变时,较低的用量意味着有限的吸附位点,导致小的总吸附量,进而使得氧化铝对CR的去除率较低。相反,增加用量会提供更多的吸附位点,从而增加总吸附量,对CR的去除率升高;此时单位质量吸附剂的吸附量却有所减少,这是因为大量的活性位点在同时竞争有限的刚果红分子,导致吸附材料的部分吸附位点没有吸附刚果红分子,处于未饱和状态,因而导致吸附位点的利用率降低,吸附容量也就越低。

2.2.3 染料初始质量浓度对吸附的影响

为探究初始质量浓度对CR溶液吸附行为的影响,配制了一系列不同初始质量浓度的CR溶液,并在恒定的氧化铝投加量(50 mg)下进行了吸附实验,实验结果如图8所示。

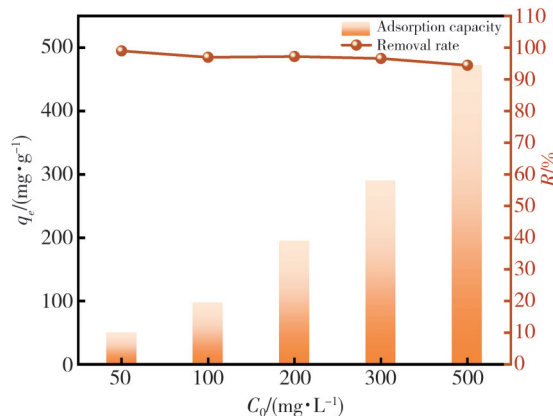


图8 不同初始质量浓度下Al₂O₃对CR的吸附量及去除率

Fig. 8 CR adsorption capacity and removal efficiency by Al₂O₃ at different initial mass concentrations

由图8可知,CR初始质量浓度对其吸附去除有一定的影响。当其它条件恒定,CR溶液的质量浓度从50 mg/L增加至500 mg/L时,氧化铝对CR的吸附容量由49.48 mg/g升高至472.11 mg/g,而去除率则从98.96%逐渐下降至94.42%。这是因为随着CR质量浓度逐渐升高,其与氧化铝的接触几率相应提高。此外,质量浓度的增加使固液两相之间的浓度梯度增大,从而为CR的净化提供了更强的吸附驱动力,促使更多的刚果红分子与吸附位点结合,导致吸附容量增加。然而,当质量浓度进一步增加时,氧化铝吸附位点的数量是固定的,对于增多的刚果红分子而言,可用的吸附位点相对减少,导致吸附位点的饱和度增加,进而使得CR的去除率下降。这一现象表明,尽管高质量浓度下吸附位点的利用率提高了,但

由于位点数量有限,最终会达到吸附平衡,导致去除率降低。同时,表2列举了不同形式 Al_2O_3 的各项性能,本文所制备的 Al_2O_3 比表面积较其它方

法增加20~285 m^2/g ,吸附容量增加了3倍左右,证明了其在吸附刚果红染料废水方面优于同类产品。

表2 不同形式 Al_2O_3 吸附CR性能的比较

Tab. 2 Comparison of adsorption properties on CR with different forms of Al_2O_3

吸附剂	比表面积/ $(\text{m}^2\cdot\text{g}^{-1})$	初始质量浓度/ $(\text{mg}\cdot\text{L}^{-1})$	吸附剂用量/ mg	最大吸附容量/ $(\text{mg}\cdot\text{g}^{-1})$	去除率/%	文献
氧化铝	332	200	50	799.96	99	本文
高纯介孔氧化铝	312.43	250	100	492.19	98.44	[25]
棒状 γ -氧化铝/火山岩基多孔材料	47	500	2000	243	96	[26]
多级介孔氧化铝	94.302	500	50	615	99	[27]

2.3 IS-RPB制备氧化铝吸附剂的吸附等温线分析

为了深入理解吸附剂与染料分子之间的相互作用及其吸附机制,吸附等温线模型成为了一个重要的研究工具。图9直观地呈现了Langmuir和Freundlich模型对实验数据进行的非线性拟合的效果。显然,Langmuir模型展现了较好的拟合结果,而Freundlich模型的曲线拟合度相对较差。具体而言,Langmuir模型的相关系数 R_L^2 达到了0.9991,表明其能够精确地描述吸附过程;相比之下,Freundlich模型在各温度下的相关系数 R_F^2 为0.9629,显示出较低的拟合度。这些结果表明,在本实验条件下,Langmuir模型由于其假设的单层均匀吸附特性,更适合描述氧化铝对刚果红染料的吸附等温线,因此,本文选择Langmuir模型来阐释氧化铝对刚果红染料的吸附热力学行为。

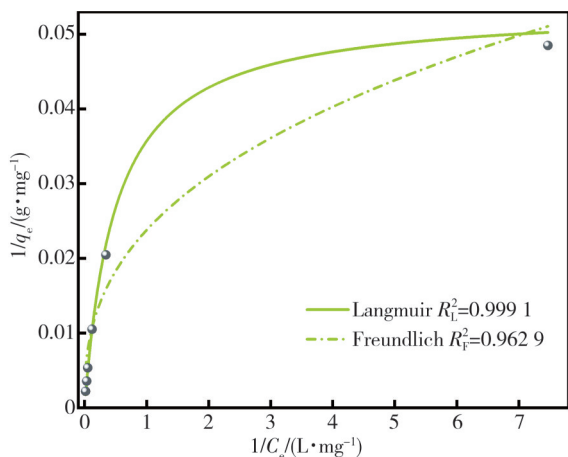


图9 Langmuir和Freundlich模型的非线性拟合结果

Fig. 9 Nonlinear fitting results of the Langmuir and Freundlich isotherm models

2.4 可重复性

在实际应用中,除了吸附性能外,吸附剂的可

重复性也是一个关键的评价指标。本文采用热处理对吸附剂进行再生处理,具体操作为:吸附过程结束后进行离心分离,随后使用去离子水洗涤,干燥后进行煅烧处理,最终将其自然冷却至室温供使用,以此检验氧化铝的循环使用性。图10的结果表明,随着再生次数的增加,吸附效率从97.2%逐渐下降至90.5%,呈现出一定的递减趋势。尽管如此,这一结果仍表明超重力法制备的氧化铝具有较好的可重复使用性能,可以作为处理刚果红染料废水的简单和高效的材料。

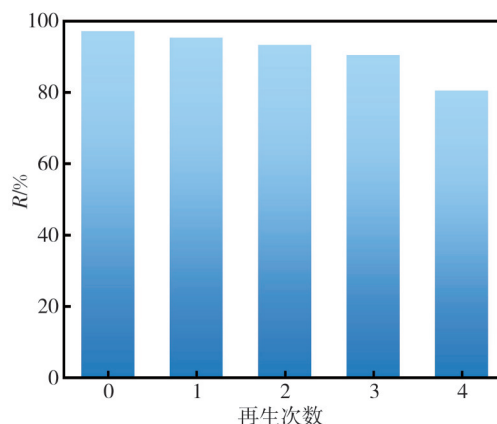


图10 超重力制备的 γ - Al_2O_3 的重复使用性能

Fig. 10 Reusability performance of γ - Al_2O_3 prepared by IS-RPB

3 结论

本文以硫酸铝铵、碳酸铵作为原料,使用IS-RPB合成了碳酸铝铵前驱体,通过煅烧制备了氧化铝吸附剂,用于吸附去除刚果红染料,得到以下结论:

1) 通过超重力沉淀法合成的碳酸铝铵前驱体,在经过 $500\text{ }^\circ\text{C}$ 煅烧处理后,可以制备出大比表面积和特殊孔道结构的氧化铝,其最大比表面积可达 $332\text{ m}^2/\text{g}$,较其它方法增加20~285 m^2/g 。

2) 所制备的氧化铝在吸附刚果红染料方面具有显著的优势,最大吸附容量可达 779 mg/g ,去

除率高达 99%，证明其在吸附刚果红染料废水方面优于同类产品。

3) Langmuir 等温吸附模型适合对氧化铝吸附刚果红的过程进行描述, 并具有较好的稳定性。

综上所述, 利用超重力沉淀法制备的氧化铝吸附剂在稳定性和吸附性能方面均表现出色, 在染料分离和环境净化等领域具有重要的应用前景。

参考文献:

- [1] SOLAYMAN H M, HOSSEN M A, ABD AZIZ A, et al. Performance evaluation of dye wastewater treatment technologies: A review[J]. *Journal of Environmental Chemical Engineering*, 2023, 11(3): 109610.
- [2] BEN SLAMA H, CHENARI BOUKET A, POURHASSAN Z, et al. Diversity of synthetic dyes from textile industries, discharge impacts and treatment methods[J]. *Applied Sciences*, 2021, 11(14): 6255.
- [3] ELGARAHY A M, ELWAKEEL K Z, MOHAMMAD S H, et al. A critical review of biosorption of dyes, heavy metals and metalloids from wastewater as an efficient and green process[J]. *Cleaner Engineering and Technology*, 2021, 4: 100209.
- [4] MANICKAM P, VIJAY D. *Chemical hazards in textiles*[M]. Sawston: Woodhead Publishing, 2021.
- [5] CHENG Z, ZHANG L, GUO X, et al. Adsorption behavior of direct Red 80 and Congo red onto activated carbon/surfactant: process optimization, kinetics and equilibrium[J]. *Spectrochimica Acta Part A: Molecular and Biomolecular Spectroscopy*, 2015, 137: 1126-1143.
- [6] LITEFTI K, FREIRE M S, STITOU M, et al. Adsorption of an anionic dye (Congo red) from aqueous solutions by pine bark [J]. *Scientific Reports*, 2019, 9(1): 16530.
- [7] ALI S, ABBAS Y, ZUHRA Z, et al. Synthesis of γ -alumina (Al_2O_3) nanoparticles and their potential for use as an adsorbent in the removal of methylene blue dye from industrial wastewater [J]. *Nanoscale Advances*, 2019, 1(1): 213-218.
- [8] LIU Z, GAO B, HAN H, et al. A green cross-linking method for the preparation of renewable three-dimensional graphene sponges for efficient adsorption of Congo red dye [J]. *Chinese Journal of Chemical Engineering*, 2024, 66: 84-93.
- [9] KHANJANI S, MORSALI A. Ultrasound-promoted coating of MOF-5 on silk fiber and study of adsorptive removal and recovery of hazardous anionic dye “congo red” [J]. *Ultrasonics sonochemistry*, 2014, 21(4): 1424-1429.
- [10] MARU K, KALLA S, JANGIR R. Dye contaminated wastewater treatment through metal - organic framework (MOF) based materials[J]. *New Journal of Chemistry*, 2022, 46(7): 3054-3072.
- [11] HAMEED B H, DIN A T M, AHMAD A L. Adsorption of methylene blue onto bamboo-based activated carbon: kinetics and equilibrium studies [J]. *Journal of hazardous materials*, 2007, 141(3): 819-825.
- [12] BANERJEE S, DUBEY S, GAUTAM R K, et al. Adsorption characteristics of alumina nanoparticles for the removal of hazardous dye, Orange G from aqueous solutions[J]. *Arabian Journal of Chemistry*, 2019, 12(8): 5339-5354.
- [13] CHINNAKOTI P, CHUNDURI A L A, VANKAYALA R K, et al. Enhanced fluoride adsorption by nano crystalline γ -alumina: adsorption kinetics, isotherm modeling and thermodynamic studies [J]. *Applied Water Science*, 2017, 7(5): 2413-2423.
- [14] LI L, REN H, LIU Y, et al. Facile construction of hierarchical porous ultrafine alumina fibers (HPAFs) and its application for dye adsorption[J]. *Microporous and Mesoporous Materials*, 2020, 308: 110544.
- [15] SARA A, JASIM A M, FIDALGO M M, et al. Removal of Congo red dyes from aqueous solutions by porous γ -alumina nanoshells[J]. *Chemosphere*, 2022, 286: 131769.
- [16] ZHANG H, RUAN Y, FENG Y, et al. Solvent-free hydrothermal synthesis of gamma-aluminum oxide nanoparticles with selective adsorption of Congo red [J]. *Journal of Colloid and Interface Science*, 2019, 536: 180-188.
- [17] LIU F, ZHENG X, CHEN J, et al. Controlling the synthesis and application of nanocrystalline spherical and ordered mesoporous alumina with high thermal stability [J]. *RSC Advances*, 2015, 5(114): 93917-93925.
- [18] LAFFICHER R, DIGNE M, SALVATORI F, et al. Ammonium aluminium carbonate hydroxide $\text{NH}_4\text{Al}(\text{OH})_2\text{CO}_3$ as an alternative route for alumina preparation: Comparison with the classical boehmite precursor [J]. *Powder Technology*, 2017, 320: 565-573.
- [19] MA C C, ZHOU X X, XU X, et al. Synthesis and thermal decomposition of ammonium aluminum carbonate hydroxide (AACH) [J]. *Materials Chemistry and*

- Physics, 2001, 72(3): 374-379.
- [20] LI G C, LIU Y Q, GUAN L L, et al. Meso/macroporous γ -Al₂O₃ fabricated by thermal decomposition of nanorods ammonium aluminium carbonate hydroxide [J]. Materials Research Bulletin, 2012, 47(4): 1073-1079.
- [21] BAO Z, LI K, WANG S, et al. Preparation and characterization of submicron-cerium oxide by hypergravity coprecipitation method [J]. Advanced Powder Technology, 2021, 32(5): 1611-1618.
- [22] WANG D G, GUO F, CHEN J F, et al. Preparation of nano aluminium trihydroxide by high gravity reactive precipitation [J]. Chemical Engineering Journal, 2006, 121(2/3): 109-114.
- [23] LIANG Y L, YUAN Z G, MA Y, et al. Preparation and properties of yttria-stabilized tetragonal phase zirconia nano-ceramics by high gravity[J]. Applied Physics A, 2023, 129(7): 491.
- [24] GHANIZADEH S, BAO X, VAIDHYANATHAN B, et al. Synthesis of nano α -alumina powders using hydrothermal and precipitation routes: A comparative study[J]. Ceramics International, 2014, 40(1): 1311-1319.
- [25] LI Z L, WANG D, LÜ F C, et al. Synthesis and characterization of high-purity mesoporous alumina with excellent adsorption capacity for congo red [J]. Materials, 2022, 15(3): 970-970.
- [26] JI H H, LING F X, WANG P, et al. Preparation of rod-like γ -alumina/volcanic rock porous material and the adsorption property of Congo red [J]. Journal of Fuel Chemistry and Technology, 2021, 49(7): 1049-1056.
- [27] MISHRA G, DAS S, JENA P, et al. Synthesis and characterization of template-mediated mesoporous alumina nanostructures with efficient and fast adsorption of Congo red from aqueous solutions [J]. Materials Advances, 2022, 3(8): 3490-3499.