

# Preparation of Biochar Loaded Sulfur-Modified Iron Oxide and Optimal Removal of Sulfamethoxazole by Persulfate Activation

Ziqi Tang\*, Lili Yan#, Jun Li, Jie Yang, Yangyang Liu, Tingting Hu, Ruishui Guo, Xin Guo

School of Chemistry and Chemical Engineering, Shanghai University of Engineering Science, Shanghai  
Email: #liliyan@sues.edu.cn, 13655637072@163.com

Received: Mar. 28<sup>th</sup>, 2020; accepted: Apr. 22<sup>nd</sup>, 2020; published: Apr. 29<sup>th</sup>, 2020

## Abstract

In order to explore the influence of the factors on antibiotic removal when using the S-Fe biochar activated the persulfate (PS). Sulfur modified iron oxide was loaded on peanut shell biochar by limited oxygen pyrolysis and chemical precipitation. Characterization by XRD and SEM proved the successful loading of pyrite compounds. It can be concluded that the removal efficiency of sulfamethoxazole is the best with 400°C, through the effect of biochar pyrolysis temperature on persulfate (PS) activation. With the increase of the pyrite biochar dosage and PS addition, the removal efficiency of sulfamethoxazole increased and PS addition played the most significance. When the dosage of pyrite biochar was 1.5 mg·mL<sup>-1</sup>, the dosage of PS was 0.97 mg·mL<sup>-1</sup> and the pH value was 5, the removal efficiency could obtain the maximum value. Therefore, the response surface method can be successfully applied to optimize the optimal conditions of sulfonamide antibiotic solution removal.

## Keywords

Biochar, Ferric Sulfate, Persulfate, Sulfonamide Antibiotics, Response Surface Methodology

# S-Fe改性生物炭的制备及其活化过硫酸盐优化去除磺胺甲噁唑

汤梓琪\*, 严丽丽#, 李俊, 杨洁, 刘杨阳, 胡婷蕊, 郭锐税, 郭鑫

上海工程技术大学化学化工学院, 上海

\*第一作者。

#通讯作者。

文章引用: 汤梓琪, 严丽丽, 李俊, 杨洁, 刘杨阳, 胡婷蕊, 郭锐税, 郭鑫. S-Fe 改性生物炭的制备及其活化过硫酸盐优化去除磺胺甲噁唑[J]. 环境保护前沿, 2020, 10(2): 259-268. DOI: 10.12677/aep.2020.102030

## 摘要

为探讨硫改性氧化铁(S-Fe)生物炭制备及其活化过硫酸盐(PS)时去除抗生素的影响因素, 采用限氧热解法和化学沉淀法将S-Fe负载于花生壳生物炭(硫铁生物炭), 并通过XRD和SEM进行表征, 证明了S-Fe化合物的成功负载。随着生物炭制备温度的变化, 在400℃热解条件下的硫铁生物炭对磺胺甲噁唑的去除效果最佳。运用三因素三水平响应面优化法, 磺胺甲噁唑的去除率随着硫铁生物炭投加量和PS添加量的增加而增加, 且PS添加量对其影响最大。去除率最大时的条件为硫铁生物炭投加量1.5 mg·mL<sup>-1</sup>, PS添加量0.97 mg·mL<sup>-1</sup>和pH值5。因此, 响应面法可成功用于优化磺胺类抗生素溶液去除的最佳条件。

## 关键词

生物炭, 硫氧化铁, 过硫酸钠, 磺胺类抗生素, 响应面法

Copyright © 2020 by author(s) and Hans Publishers Inc.

This work is licensed under the Creative Commons Attribution International License (CC BY 4.0).

<http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>



Open Access

## 1. 引言

磺胺类抗生素是一类具有对氨基苯磺酰胺结构的药物的总称, 但由于该类药物会对环境和人体健康产生长期潜在的危害[1]。因此, 抗生素的治理迫在眉睫, 对保障生态环境人类安全具有重要意义。

生物炭作为一项新兴的环境功能材料, 在水土环境污染的修复方面发挥重要作用[2] [3] [4] [5]。生物炭不仅可以作为载体, 稳定纳米颗粒, 提高材料的环境应用, 还能活化过氧化物或过硫酸盐产生自由基, 降解污染物[6] [7] [8]。近年来, 以硫酸根为基础的高级氧化工艺在抗生素的去除上有越来越多的研究, 梁宇坤[9]等人进行了生物炭负载纳米零价铁镍(BC@nZVI/Ni)活化过硫酸盐(PS)降解废水中诺氟沙星(NOR)的研究, 结果表明, 在相同的用量条件下, BC@nZVI/Ni/PS体系比PS、BC、BC@nZVI/Ni、BC-PS、nZVI/Ni-PS体系对NOR的去除效果好。李瑞祥[10]等人以藻类中的剩余蛋白质组分进行生物炭的N-掺杂得到活化剂(SDBC), 并对二硫酸钠(PDS)进行活化, 经研究后发现, SDBC/PDS体系对大部分水体微污染物具有良好的氧化效率, 对磺胺甲噁唑在20~45 min内可使其完全去除。因此, 本文以磺胺甲噁唑为目标污染物, 以花生壳为生物质原料, 并将硫改性氧化铁(S-Fe)负载到生物炭(硫铁生物炭), 开展该硫铁生物炭活化过硫酸盐对磺胺甲噁唑的去除研究。

## 2. 材料与方法

### 2.1. 试剂与仪器

磺胺甲噁唑、过硫酸钠(PS)、乙二酸(二水合)、七水合硫酸亚铁、硫代硫酸钠等均为分析纯。溶液配置所需水均为超纯水。

日本理学 Rigaku Ultimate IV 型 X 射线衍射仪、日立 Hitachi S-4800 场发射扫描电子显微镜、岛津

LC-2030 型高效液相色谱仪(HPLC)、精宏 SXL-1216 马弗炉、梅特勒-托利多仪 AL104 电子天平、85-2 型恒温磁力搅拌器、THZ-82 恒温振荡器、400Y 粉碎机、DHG-9075A 恒温鼓风干燥箱。

## 2.2. 硫铁生物炭的制备

### 2.2.1. 生物炭的制备

花生壳来自于山东某农场。将花生壳依次用自来水、纯水洗净，风干后置于烘箱 60℃ 烘干，用粉碎机粉碎，经 100 目筛网过筛，再将其置于带盖的陶瓷坩埚中，放于马弗炉中，分别于 300、400、500℃ 下限氧热解，所得的生物炭，对应标记为 B300、B400、B500。

### 2.2.2. 硫铁生物炭的制备

1) 草酸盐溶液：将 0.02 mol 的  $C_2H_2O_4 \cdot 2H_2O$  溶解在 50 mL 超纯水中，在磁力搅拌下，加入 1 g 生物炭，搅拌均匀。

2) 亚铁溶液：将 0.02 mol 的  $FeSO_4 \cdot 7H_2O$  和 0.01 mol 的  $Na_2S_2O_3 \cdot 5H_2O$  溶解并混合在 50 mL 超纯水中。

3) 在强磁搅拌下，将亚铁溶液逐滴添加到上述草酸盐溶液中，待形成黄色沉淀后，对其进行降温，将悬浮液真空抽滤，获得的沉淀在 70℃ 的烘箱中干燥。

4) 将烘干的粉末置于马弗炉后，设置温度为 300℃，煅烧 1 h，待冷却后根据生物炭制备温度不同，分别标记 S-Fe/B300、S-Fe/B400、S-Fe/B500。

## 2.3. 硫铁生物炭活化 PS 去除磺胺甲噁唑

称取 20 mg 的生物炭或硫铁生物炭，10 mg 的 PS，依次加入 10 mL 浓度为  $0.02 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$ ，pH 值为 7 的磺胺甲噁唑溶液中。将溶液置于恒温振荡器里振荡，在反应时间为 5、15、30、60、90、120 min 取样，样品经  $0.22 \mu\text{m}$  聚四氟乙烯滤膜过滤，采用 HPLC 分析滤液中的磺胺甲噁唑，并计算磺胺甲噁唑的去除率。同时加入仅有生物炭/硫铁生物炭或 PS 的溶液作为空白对比。

## 2.4. 磺胺甲噁唑含量的分析

采用 HPLC 分析磺胺甲噁唑的含量，色谱柱为 Ultimate® AQ-C18 柱 ( $4.6 \text{ mm} \times 150 \text{ mm}, 5 \mu\text{m}$ )，流动相为乙腈/水 = 60/40，流速为  $1 \text{ mL} \cdot \text{min}^{-1}$ ，检测波长为 264 nm，柱温设置为 35℃，进样体积为 10  $\mu\text{L}$ ，采低压梯度洗脱程序，磺胺甲噁唑的保留时间为 3.7 min。

## 3. 结果与讨论

### 3.1. 硫铁生物炭的表征

图 1 为硫铁生物炭的 SEM 图片。图 1(a) 为温度 400℃ 下制备的生物炭，生物炭主要呈片状结构，且表面光滑，有少量微孔。通过 S-Fe 负载后，在同等倍数 (2.5 k) 下，生物炭上的片状结构明显被破坏，且表面粗糙 (图 1(b))，在更大倍数下，可发现有絮状物质负载在生物炭表面或内部 (图 1(c))，采用 EDS 进一步分析复合材料表面的元素分布和成分，得到 Fe、S 的含量分别为 27.9% 和 3.2%，O 含量从 25.26% 增加至 44.72%，证明复合材料中含有 S 的成分，且主要由 Fe，S，O 和 C 组成。

负载的 S-Fe 化合物进一步采用 XRD 进行表征 (图 2)。图中可知，20~30° 的无定型宽峰为生物炭的峰 [11]。位于 17.2°、22.6°、37.5° 的尖锐的峰是生物炭改性后出现的新峰，这是由于掺入了 S-Fe 的缘故 [12]。因此，SEM 和 XRD 表征结果共同证明了 S-Fe 改性生物炭的成功合成。

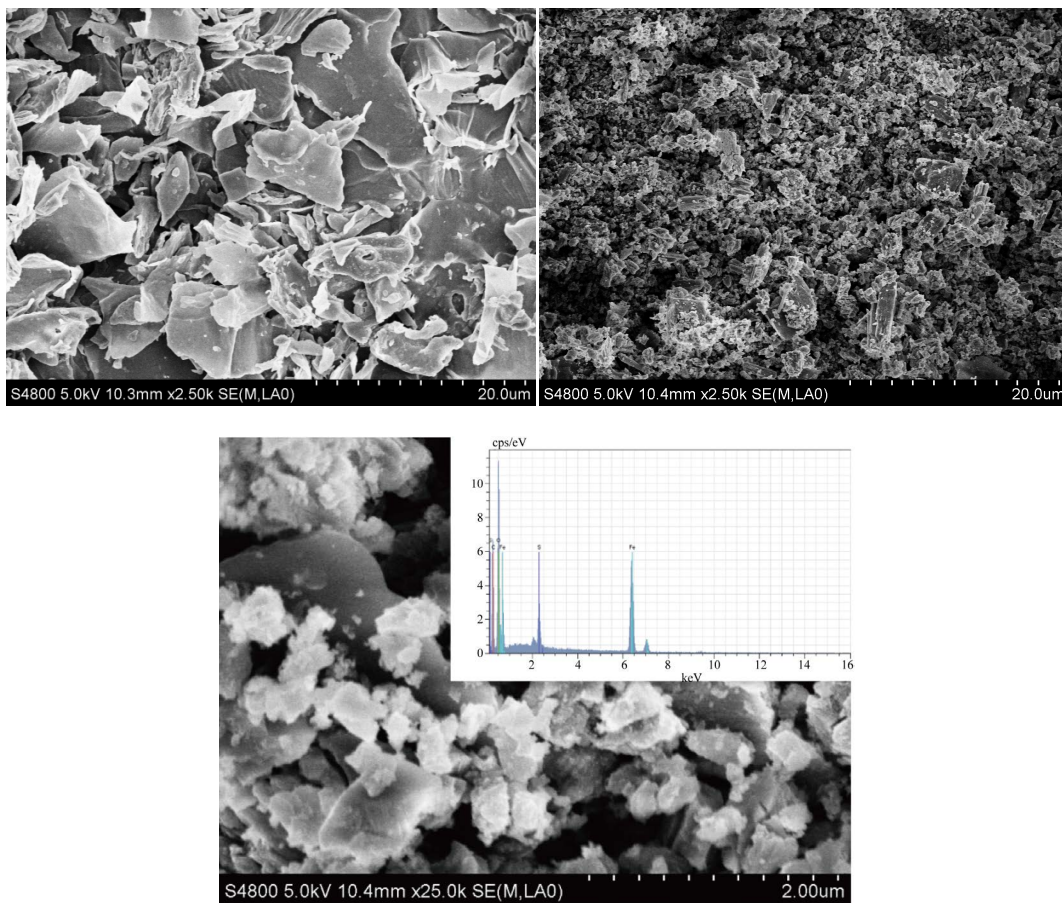


Figure 1. SEM images of biochar and S-Fe/B400  
图 1. 生物炭与硫铁生物炭的 SEM 图

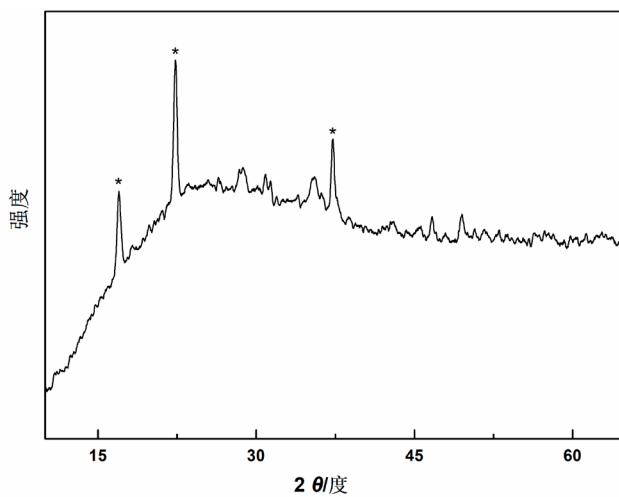
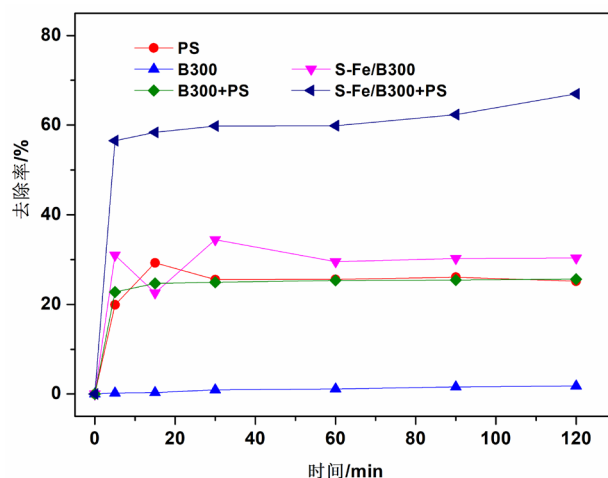


Figure 2. XRD spectrum of S-Fe/B400  
图 2. 硫铁生物炭的 XRD 谱图

### 3.2. 硫铁生物炭活化过硫酸盐降解磺胺甲噁唑

图 3 为硫铁生物炭活化 PS 降解磺胺甲噁唑的去除率。由图可知，单一 PS 对磺胺甲噁唑具有 25.1%

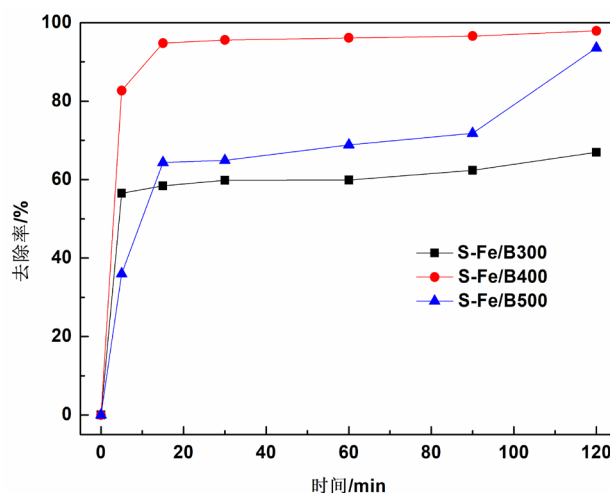
的去除率, 生物炭 B300 的加入并没有活化 PS 的作用。然而, 投加硫铁生物炭 S-Fe/B300 后, 磺胺甲噁唑的去除率可达 67.1%, 去除效果最佳。由于单一过硫酸盐只产生少量  $\text{SO}_4^-$ , 加入 S-Fe/B300 后, 其本身有一定的吸附能力, 还能促进体系产生更多的活性自由基, 使得磺胺甲噁唑的去除率可提高 2 倍多。因此, S-Fe/B300 具有活化 PS 的作用。



**Figure 3.** Degradation of sulfamethoxazole by S-Fe/B activated PS

**图 3.** 硫铁生物炭活化 PS 降解磺胺甲噁唑

生物炭制备温度的不同也会影响其性能[13], 因此, 进一步研究了制备温度对活化磺胺甲噁唑的影响(图 4)。从图中可知, 在短时间(20 min)内, S-Fe/B300 和 S-Fe/B500 的加入, 磺胺甲噁唑的去除率可达到 60~70%, 而后逐步增加, 随着反应时间的增加, 去除趋势平稳。随着制备温度的升高, 生物炭多孔结构逐渐形成, 有大量微孔出现, 比表面积变大, 是有助于 PS 的活化的[11]。与 S-Fe/B300 和 S-Fe/B500 不同, 在 10 min 时, S-Fe/B400 的加入可使得去除率达到 80% 以上, 2 h 后可达 97.9%。因此, 制备温度 400℃ 时, 磺胺甲噁唑的去除效果最好。



**Figure 4.** Effect of biochar pyrolysis temperature on activation

**图 4.** 生物炭制备温度对活化的影响

### 3.3. 响应面试验结果

通过单因素试验确定影响磺胺甲噁唑去除率的主要因素和最佳水平范围，根据响应面中的 Box-Behnken Designs (BBD)设计，选择(硫铁生物炭)投加量、PS 添加量和 pH 值 3 个因素，设计三因素三水平试验，响应面因素水平如表 1 所示。按照 1.3 的实验步骤，其中磺胺甲噁唑溶液浓度为 0.02 mol·L<sup>-1</sup>，体积 20 mL。

**Table 1.** Factors and levels of response surface methodology  
**表 1.** 响应面因素与水平

因素	水平		
	-1	0	1
投加量 $X_1$ /(mg·mL <sup>-1</sup> )	0.25	1.25	2.25
PS 添加量 $X_2$ /(mg·mL <sup>-1</sup> )	0.25	0.625	1
pH- $X_3$	5	7	9

根据 BBD 试验设计方案，选择上文最佳的硫铁生物炭 S-Fe/B400 用于磺胺甲噁唑的最优去除设计，主要研究了投加量、PS 添加量和 pH 对磺胺甲噁唑的去除的影响，其实验结果如表 2 所示。采用 Design-Expert 8.0.6 软件对实验结果进行分析，拟合的多元二次回归方程为：

$$Y = 119.47 + 10.94X_1 + 146.55X_2 - 31.40X_3 - 4.87X_1X_2 + 0.66X_1X_3 - 2.53X_2X_3 - 3.13X_1^2 - 64.77X_2^2 + 2.20X_3^2 \quad (1)$$

式中：

$Y$  为磺胺甲噁唑去除率；

$X_1$  为投加量；

$X_2$  为 PS 添加量；

$X_3$  为 pH。

**Table 2.** Experimental results of response surface analysis

**表 2.** 响应面分析实验结果

实验序号 No.	因素 $X_1$	因素 $X_2$	因素 $X_3$	响应值 $Y$
	投加量/(mg·mL <sup>-1</sup> )	PS 添加量/(mg·mL <sup>-1</sup> )	pH	去除率/%
1	1	0	-1	83.8
2	1	1	0	84.3
3	0	0	0	75.4
4	-1	0	1	71.6
5	0	1	1	81.8
6	0	1	-1	90.1
7	0	-1	1	59.8
8	0	-1	-1	60.5
9	-1	0	-1	80.8
10	0	0	0	78.5

## Continued

11	1	0	1	79.9
12	1	-1	0	51.1
13	-1	1	0	74.8
14	0	0	0	66.2
15	-1	-1	0	34.3

对拟合的模型进行方差分析及回归系数的显著性检验, 结果见表 3。模型 P 值为 0.0120, 小于 0.05, 即表明该模型显著, 失拟项不显著( $P = 0.6172 > 0.05$ ), 说明残差是由随机误差引起的; 此外, 模型的相关系数  $R^2$  为 0.9439, 校正决定系数(Adjusted  $R^2$ )为 0.8429, 说明模型对试验拟合程度较好, 能够真实地反映各影响因素与响应值之间的关系, 因此可以利用该方程对溶液中磺胺甲噁唑的去除率进行分析和预测 [14]。模型中 PS 添加量对响应值的影响显著( $P < 0.05$ ), 说明 PS 添加量是影响磺胺甲噁唑去除率的重要控制因素; 3 个因素对磺胺甲噁唑去除率的影响大小依次为 PS 添加量 > 投加量 > pH。

用 Design Expert 软件的优化模块对二次方程进行优化分析, 可以得到具有最佳磺胺甲噁唑去除率时的硫铁矿生物炭活化 PS 的去除条件, 即投加量  $1.5 \text{ mg}\cdot\text{mL}^{-1}$ 、PS 添加量  $0.97 \text{ mg}\cdot\text{mL}^{-1}$  和 pH 值为 5 时, 磺胺甲噁唑的去除率最大, 为 93.6%。

Table 3. Analysis of variance

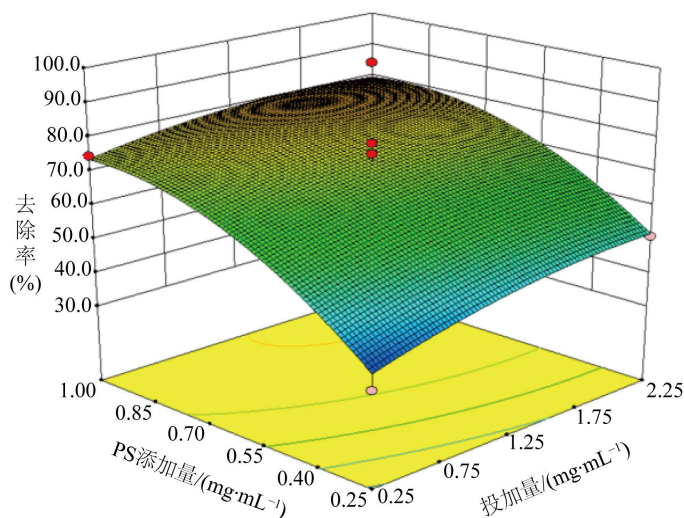
表 3. 方差分析

变异来源	总和	自由度	均方	F 值	P 值
模型	2912.19	9	323.58	9.35	0.0120
模型	2912.19	9	323.58	9.35	0.0120
$X_1$ -投加量	176.72	1	176.72	5.10	0.0734
$X_2$ -PS 添加量	1962.51	1	1962.51	56.68	0.0007
$X_3$ -pH	61.05	1	61.05	1.76	0.2416
$X_1X_2$	13.32	1	13.32	0.38	0.5622
$X_1X_3$	7.02	1	7.02	0.20	0.6713
$X_2X_3$	14.44	1	14.44	0.42	0.5469
$X_1^2$	36.25	1	36.25	1.05	0.3531
$X_2^2$	306.32	1	306.32	8.85	0.0310
$X_3^2$	285.39	1	285.39	8.24	0.0350
残差	173.12	5	34.62		
失拟项	91.28	3	30.43	0.74	0.6172
净误差	81.85	2	40.92		
$R^2$	0.9439				
Adjusted $R^2$	0.8429				

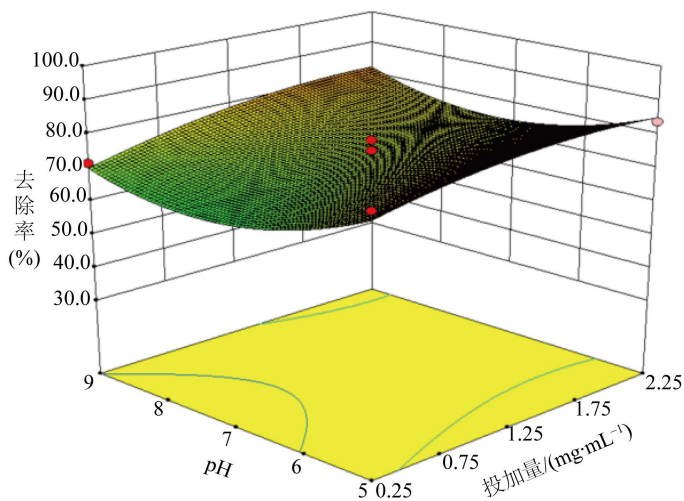
### 3.4. 交互作用分析

为了说明各因素对磺胺甲噁唑去除率的交互作用, 采用 Design expert 软件构建了影响因素对磺胺甲噁唑去除率的响应面图(图 5)。图 5(a)表示的是当 pH 值为 7 时, 投加量和 PS 添加量对磺胺甲噁唑去除率的影响。投加量与 PS 添加量的响应面坡度较小, 颜色变化也不大, 且等高线图近圆形形状, 说明两者交互作用对去除率影响不大, 这与表 3 中的 P 值一致[15]。磺胺甲噁唑去除率都是随着投加量增加而增加的, 从 34.3% 分别增加至 51.1%, 说明硫铁生物炭投加量的增加为磺胺甲噁唑的吸附提供了更多作用位点, PS 分解产生更多的活性部位。

图 5(b)表示的是当 PS 添加量  $0.625 \text{ mg}\cdot\text{mL}^{-1}$  时, 投加量和 pH 对磺胺甲噁唑去除率的影响, 图中等高线呈非椭圆形, 说明两者对磺胺甲噁唑去除率影响不大, 这与上文的显著性分析结果一致(表 3)。然而, 磺胺甲噁唑的去除率随着 pH 的增加先减小后增大, 与酸性条件相比, 在碱性条件下, 磺胺甲噁唑的去除率并没有明显提高, 是因为磺胺类抗生素是两性化合物, 磺胺甲噁唑在 pH 大于 6.50 时, 中性分子形态减少, 阴离子形态有所增加, 抗生素与生物炭表面之间的吸附力也减弱, 所以使得总去除率也降低了

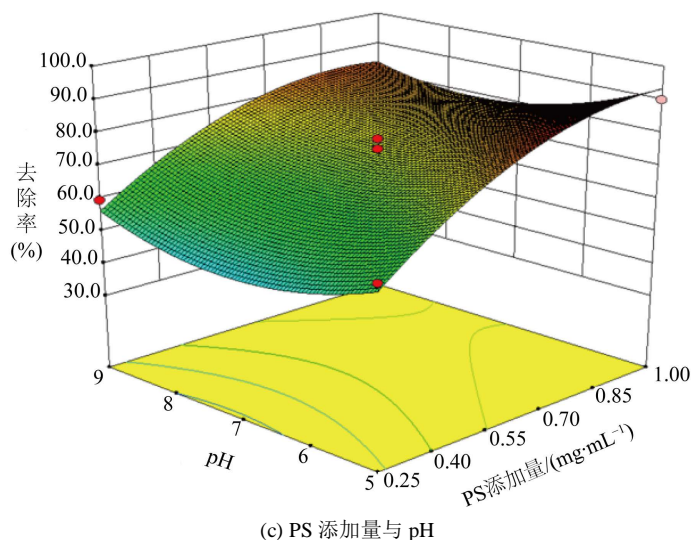


(a) 投加量与 PS 添加量



(b) 投加量与 pH





**Figure 5.** Response surface plots of the interaction of various factors on the removal efficiency of sulfamethoxazole

**图 5.** 各因素交互影响磺胺甲噁唑去除率的响应面图

[16]。说明 pH 对硫铁生物炭活化 PS 的影响并不大，这与上文的显著性分析结果一致(表 3)。图 5(c)表示的是当投加量  $1.25 \text{ mg}\cdot\text{mL}^{-1}$  时，PS 添加量和 pH 对磺胺甲噁唑去除率的影响。当 pH 为 5 时，去除率从 60.5% 增加至 90.1%，可见 PS 添加量对其影响较大，这与显著性分析的结果一致(表 3)，PS 添加量的 P 值最小，影响最显著。

为了检验响应面法所得结果的可靠性，结合实际操作条件，选择最佳条件用于磺胺甲噁唑的去除，在此条件下进行验证试验 3 次，平均去除率为 91.8%，接近预测值，表明了该响应面法优化去除一定浓度磺胺甲噁唑溶液的可行性，该结果对硫铁生物炭去除有机污染物的参数优化具有重要的参考价值。

#### 4. 结论

(1) 采用化学沉淀法可成功将 S-Fe 化合物负载在生物炭上，且对磺胺甲噁唑的去除效果明显高于单独的 PS、硫铁生物炭和生物炭，随着生物炭制备温度升高，硫铁生物炭对磺胺甲噁唑的去除先升高后降低，温度  $400^\circ\text{C}$  时磺胺甲噁唑的去除效果最佳。

(2) 根据 BBD 法试验设计，运用三因素三水平响应面优化法，明确了硫铁生物炭投加量  $1.5 \text{ mg}\cdot\text{mL}^{-1}$ ，PS 添加量  $0.97 \text{ mg}\cdot\text{mL}^{-1}$  和 pH 值为 5 时，抗生素磺胺甲噁唑(初始浓度为  $0.02 \text{ mol}\cdot\text{L}^{-1}$ ，体积为 20 mL)的去除率最大，为 93.6%。

(3) 响应面法可成功用于优化抗生素溶液去除的最优条件选择，3 个因素对磺胺甲噁唑去除率的影响大小依次为 PS 添加量 > 投加量 > pH，硫铁生物炭投加量的增加，为磺胺甲噁唑的吸附提供了更多作用位点，同时也促进了 PS 的活化。

#### 基金项目

国家自然科学基金青年科学基金(21707089); 大学生创新训练计划项目(cx1804008)。

#### 参考文献

- [1] Vieno, N.M., Härkki, H., Tuhkanen, T., *et al.* (2007) Occurrence of Pharmaceuticals in River Water and Their Elimination in a Pilot-Scale Drinking Water Treatment Plant. *Environmental Science & Technology*, **41**, 5077-5084.

<https://doi.org/10.1021/es062720x>

- [2] Smernik, R.J. (2009) Biochar and Sorption of Organic Compounds. In: Lehmann, J. and Joseph, S., Eds., *Biochar for Environmental Management: Science and Technology*, Earthscan, London, 289-230.
- [3] 张江, 孙宁宁, 张景环, 等. 改性石墨烯-生物炭复合材料对磺胺类抗生素的吸附[J]. 山东化工, 2017, 46(23): 39, 46.
- [4] 王开峰, 彭娜, 吴礼滨, 等. 水稻秸秆生物炭对磺胺类抗生素的吸附研究[J]. 环境科学与技术, 2017, 40(9): 61-67.
- [5] Klüpfel, L., Keiluweit, M., Kleber, M., et al. (2014) Redox Properties of Plant Biomass-Derived Black Carbon (Biochar). *Environmental Science & Technology*, **48**, 5601-5611. <https://doi.org/10.1021/es500906d>
- [6] 王艳, 李春花, 龚畏, 等. Fe/生物炭活化过硫酸盐降解偶氮染料金橙 II [J]. 应用化工, 2017, 46(12): 2328-2330.
- [7] Fang, G., Liu, C., Gao, J., et al. (2015) Manipulation of Persistent Free Radicals in Biochar to Activate Persulfate for Contaminant Degradation. *Environmental Science & Technology*, **49**, 5645-5653. <https://doi.org/10.1021/es5061512>
- [8] Fang, G., Gao, J., Liu, C., et al. (2014) Key Role of Persistent Free Radicals in Hydrogen Peroxide Activation by Biochar: Implications to Organic Contaminant Degradation. *Environmental Science & Technology*, **48**, 1902-1910. <https://doi.org/10.1021/es4048126>
- [9] Yan, L.L., Kong, L., Qu, Z., et al. (2014) Magnetic Biochar Decorated with ZnS Nanocrystals for Pb(II) Removal. *ACS Sustainable Chemistry Engineering*, **3**, 125-132. <https://doi.org/10.1021/sc500619r>
- [10] 梁宇坤. 生物炭负载纳米零价铁镍激活过硫酸盐降解诺氟沙星废水[D]: [硕士学位论文]. 太原: 太原理工大学, 2019.
- [11] 李瑞祥. 微藻生物炭活化过硫酸盐高效去除水中磺胺甲噁唑的研究[D]: [硕士学位论文]. 哈尔滨: 哈尔滨工业大学, 2019.
- [12] Xie, G., Xi, P., Liu, H., et al. (2012) A Facile Chemical Method to Produce Superparamagnetic Graphene Oxide-Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> Hybrid Composite and Its Application in the Removal of Dyes from Aqueous Solution. *Journal of Materials Chemistry*, **22**, 1033-1039. <https://doi.org/10.1039/C1JM13433G>
- [13] 李长欣, 吕严凤, 张梦迪, 等. 热解条件对茶叶渣生物炭特性及镉污染土壤钝化效果的影响[J]. 环境工程学报, 2017, 11(12): 6504-6510.
- [14] 胡静, 孙君社, 谭晓妍, 等. 响应面法优化柠檬酸去除香菇中镉工艺[J]. 食品科学, 2017, 38(14): 181-186.
- [15] 李美玲, 田瑜, 李赛, 等. 响应面法优化绿色合成纳米零价铁去除水中 Cr(VI)的条件及其动力学研究[J]. 中国农村水利水电, 2018(8): 113-122.
- [16] 赵涛, 蒋成爱, 丘锦荣, 等. 皇竹草生物炭对水中磺胺类抗生素吸附性能研究[J]. 水处理技术, 2017, 43(4): 56-65.