高等学校化学学报
CHEMICAL JOURNAL OF CHINESE UNIVERSITIES
研究论文

超疏水多孔有机聚合物的制备及油-水分离性能

高昌源[1]，向婷婷[1]，陈士欣[1]，孙琪琪[1]，王佳乐[1]，郑桂月[2]，赵子谊[1]，
刘子煜[1]，崔　博[2]，闫卓君[2]，布乃顺[1]，武　悦[3]
（1. 辽宁大学环境学院, 2. 化学院, 沈阳 110036;
3. 辽宁省地质勘探矿业集团有限责任公司, 沈阳 110032）

摘要　以四(三苯基膦)钯为催化剂，*N*,*N*-二甲基甲酰胺为溶剂，通过三(4-硼酸频呢醇酯苯基)胺与3,6-二溴咔唑的Suzuki偶联反应合成了一种超疏水多孔有机聚合物LNU-40. 该聚合物的比表面积为32 m^2/g, 具有良好的热稳定性且在常见有机溶剂中不溶解或分解. LNU-40具有较低的表面能和152.4°的水接触角, 表现出较好的酸碱环境抵御能力, 能够制备具有优异自清洁性能的超疏水表面. 使用LNU-40制成的超疏水柔性织物对有机溶剂的分离效率可达90%以上, 对油的吸附能力可达其自身质量的3~8倍, 吸附分离性能优越, 可用于石油化工、食品及制药等行业含油等有机溶剂废水的油-水分离处理.

关键词　超疏水多孔有机聚合物; 共轭结构; 油-水分离性能
中图分类号　O631　　**文献标志码**　A　　doi: 10.7503/cjcu20240061

Preparation and Oil-water Separation Performance of Superhydrophobic Porous Organic Polymers

GAO Changyuan[1], XIANG Tingting[1], CHEN Shixin[1], SUN Qiqi[1], WANG Jiale[1], ZHENG Guiyue[2], ZHAO Ziyi[1], LIU Ziyu[1], CUI Bo[2], YAN Zhuojun[2], BU Naishun[1*], WU Yue[3*]
(*1. School of Environmental Science, 2. College of Chemistry, Liaoning University, Shenyang* 110036, *China*;
3. Liaoning Geological Exploration and Mining Group, Shenyang 110032, *China*)

Abstract　A superhydrophobic porous organic polymer denominated as LNU-40 was synthesized *via* a Suzuki coupling reaction of 4-(4,4,5,5-tetramethyl-1,3,2-dioxaborolan-2-yl)-*N*,*N*-bis[4-(4,4,5,5-tetramethyl-1,3,2-dioxaborolan-2-yl) phenyl] aniline, 3, 6-dibromocarbazole, tetrakis (triphenylphosphine) -palladium, and *N*,*N*-dimethyl-2-(piperazin-1-yl)benzamide oxalate. LNU-40 possesses a specific surface area of 32 m^2/g and manifests thermal stability. Dissolution or decomposition does not occur when it is dispersed in commonly encountered organic solvents. LNU-40 is characterized by a low surface energy and a water contact angle of 152.4°, demonstrating excellent resistance to acidic and alkaline environments. This property enables the fabrication of a superhydrophobic

收稿日期: 2024-02-02. 网络首发日期: 2024-04-08.
联系人简介: 布乃顺, 男, 博士, 教授, 主要从事环境功能材料方面的研究. E-mail: bunaishun@lnu.edu.cn
武　悦, 男, 硕士, 高级工程师, 主要从事环境污染控制化学方面的研究. E-mail: 792153056@qq.com
基金项目: 国家自然科学基金(批准号: 31972522)、辽宁省自然科学基金(批准号: 2021-MS-149)、“兴辽英才计划”青年拔尖人才项目(批准号: XLYC2007032)、辽宁润中供水有限责任公司课题、黑龙江省寒区湿地生态与环境研究重点实验室开放基金和辽宁大学大学生创新创业训练计划项目资助.
Supported by the National Science Foundation of China(No.31972522), the Liaoning Provincial Natural Science Foundation, China(No.2021-MS-149), the Liaoning Revitalization Talents Program, China(No.XLYC2007032), the Project of Liaoning Runzhong Water Supply Co., Ltd., China, the Open Research Fund of Key Laboratory of Wetland Ecology and Environment Research in Cold Regions of Heilongjiang Province, China and the College Students' Innovative Entrepreneurial Training Plan Program of Liaoning University, China.

surface with outstanding self-cleaning capabilities. The superhydrophobic flexible fabric prepared with LNU-40 achieves a separation efficiency of over 90% for organic solvents and exhibits an oil adsorption capacity ranging from 3 to 8 times of its own mass. The superior adsorption and separation performance make it suitable for the treatment of oily wastewater containing organic solvents in industries such as petrochemicals, food, and pharmaceuticals.

Keywords Superhydrophobic porous organic polymer; Conjugated structure; Oil-water separation

随着石油的不断生产和开采，在运输和使用过程中发生的溢油事故以及含油废水的工业排放成为水体污染的重要原因. 除水体污染外，溢油事故还会影响沿岸生态系统和海洋生态系统. 石油中的化合物在泄漏后可能会释放挥发性有机物，这些物质在空气中形成有害气体或颗粒，严重影响空气质量，威胁人体健康. 此外，石油泄漏还可能对渔业和旅游业等行业造成重大影响[1~4]. 修复石油污染水体的关键在于研发能够高效分离石油和水体的技术或材料. 早期的重力分离、脱脂、浮选、混凝和原位燃烧等分离技术[4,5]存在修复时间长、能耗大、效率低以及易造成二次污染等缺点[6]. 吸附法是一种利用多孔固态物质使油-水分离的技术，但传统吸附材料的吸附能力差，难以选择性吸收，且不可再生[7,8]. 近年来，超疏水材料被设计并应用于石油污染水体的修复[9,10]，但复杂环境会导致超疏水材料的表面超疏水性丧失，严重降低油-水分离的效率. 因此，亟待开发一种低成本、可操控、可实际应用的油-水分离材料[11~13].

多孔有机聚合物是一类高孔容、高比表面积且环境友好的新型高分子材料[14~16]，已在催化、气体储存、离子交换及环境污染控制等领域得到了广泛应用[17~19]. 多孔有机聚合物大多是疏水材料，其疏水特性取决于材料的化学组成和材料表面的粗糙程度[20,21]. 在油-水分离领域，多孔有机聚合物对改进上述技术问题可能具有显著促进作用[22~24]. 本文利用三(4-硼酸频呢醇酯苯基)胺和π共轭二溴咔唑单体作为构筑基元进行Suzuki偶联反应，成功制备了一种合成工艺简单、成本低廉、环境友好、可循环利用的超疏水多孔有机聚合物LNU-40. 通过简单浸泡将LNU-40负载于柔性织物表面，获得的超疏水柔性织物的水接触角均在150°以上，且能够在苛刻条件下保持疏水性能. 本文从简便性、可操控性和实际应用性等角度出发，为设计和开发新型的油-水分离材料提供了理论和技术支撑，为石油化工、冶金、食品和制药行业中的含油污水或含有机溶剂污水的污染物分离提供了可能[25~29].

1 实验部分

1.1 试剂与仪器

三(4-硼酸频呢醇酯苯基)胺，纯度97%，苏州苏凯路化学科技有限公司；3,6-二溴咔唑，纯度98%，阿拉丁试剂(上海)有限公司；四(三苯基膦)钯，纯度98%，美国西格玛奥德里奇公司；*N*,*N*-二甲基甲酰(DMF，纯度92%，使用前用氢化钙干燥)和煤油(分析纯)，沈阳莱博科贸有限公司；氢化钙、四氢呋喃、丙酮、二氯甲烷、三氯甲烷、溴丁烷、苯、四氯化碳、氯苯、甲苯和Span-80，分析纯，国药集团化学试剂有限公司；1,2-二氯乙烷和氯仿，分析纯，永华化学股份有限公司；二甲氧基硅油，分析纯，安徽艾约塔硅油有限公司；棉织物，取自市面所售普通棉质实验服；真空泵润滑油，型号金吉星J700，中国石化润滑油有限公司. 所有试剂使用前未经进一步纯化.

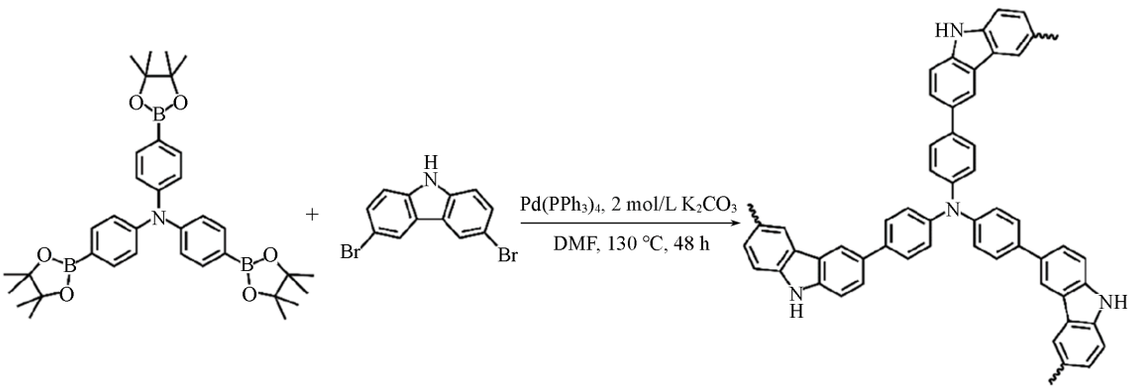
IR-Prestige 21型傅里叶变换红外光谱仪(FTIR)，日本岛津公司；Bruker Avance III Model 400 MHz固体核磁共振波谱仪(^{13}C CP/MAS NMR)和Bruker D8 Advance型X射线衍射仪(XRD)，瑞士Bruker公司；Q100型差示扫描量热仪(DSC)，美国TA公司；Su8010型扫描电子显微镜(SEM)，日本日立公司；JEM-2100型透射电子显微镜(TEM)，日本电子公司；Micromeritics ASAP 2020型气体吸附仪(Autosorb-IQ)，美国麦克公司；DSA1005型接触角测试仪(OCA)，德国KRÜSS Gmbh公司.

1.2 实验过程

1.2.1 LNU-40的合成 在溶剂热条件下，以四(三苯基膦)钯作为催化剂，三(4-硼酸频呢醇酯苯基)胺和3,6-二溴咔唑为原料，通过Suzuki偶联反应制备LNU-40.

将0.6418 mmol(400 mg)三(4-硼酸频呢醇酯苯基)胺和0.9627 mmol(312.89 mg)3,6-二溴咔唑用

60 mL *N*,*N*-二甲基甲酰胺溶解，置于100 mL圆底烧瓶中，利用液氮冷冻并用油泵反复抽真空3次，然后快速加入80 mg四(三苯基膦)钯和5 mL 2 mol/L的碳酸钾溶液，继续冷冻并通过真空泵反复脱气3次．将反应混合物加热至130 ℃并在N_2气保护下搅拌回流48 h[30,31]．反应结束后，将反应物冷却至室温，抽滤，所得固体不溶物分别用四氢呋喃、水和丙酮多次过滤洗涤，再用四氢呋喃、二氯甲烷和三氯甲烷进行索氏提取来对粗产品进一步纯化，除去可能残留的反应单体和催化剂．最后将产物于90 ℃下真空干燥12 h，得到灰色粉末状固体，即目标产物多孔有机聚合物LNU-40(Scheme 1)．



Scheme 1　Synthesis method of LNU-40

1.2.2　*浸泡法制备负载LNU-40的超疏水织物*　将30 mg LNU-40和40 mL二氯甲烷混合于烧杯中，超声至LNU-40溶解后，加入2块洁净的棉织物(5 cm×5 cm)浸泡2 h．随后将负载LNU-40的棉织物于80 ℃干燥30 min，即得到负载了LNU-40的超疏水织物．

1.2.3　*超疏水织物的吸附性能与油-水分离效率测试*　使用二甲氧基硅油和煤油代表常见的油，使用二氯甲烷、1,2-二氯乙烷、溴丁烷、氯仿、苯、四氯化碳和氯苯代表有机溶剂分别进行吸附实验．将负载LNU-40的棉织物称重，然后将其浸泡在水和油(有机溶剂)的混合物中，当棉织物吸附达到饱和时，保持1 min，取出后再次称重．通过超疏水棉织物吸附前后的质量对比估算其吸附能力(K)计算公式如下：

$$K = \left(M_1 - M_0\right)/M_0 \tag{1}$$

式中：M_0(mg)为吸附前超疏水织物的质量；M_1(mg)为吸附达到饱和后超疏水织物的质量．

LNU-40的油-水分离效率(η，%)按下式计算：

$$\eta = m_1/m_0 \times 100\% \tag{2}$$

式中：m_0(mg)为初始有机溶剂质量；m_1(mg)为从混合液中收集到的有机溶剂质量．

1.2.4　*超疏水织物的乳液分离性能测试*　首先将200 μL表面活性剂Span-80溶解于99 mL甲苯中，然后加入1 mL水，以1000 r/min的转速在搅拌台上剧烈搅拌4 h，制得白色甲苯乳液．取一定质量的乳液，通过滴管过滤的方式将乳液置于超疏水织物上进行分离实验，然后称量分离后的液体的质量．

乳液分离效率(η_E，%)按下式计算：

$$\eta_E = m_T/m_E \times 100\% \tag{3}$$

式中：m_E(mg)为初始乳液质量；m_T(mg)为分离后收集到的乳液质量．

2　结果与讨论

2.1　LNU-40的结构表征

图1给出了LNU-40的结构表征结果．与三(4-硼酸频呢醇酯苯基)胺和3,6-二溴咔唑相比，LNU-40的FTIR谱图[图1(A)]中未出现500 cm^{-1}附近二溴咔唑C—Br的伸缩振动峰、1399 cm^{-1}处三(4-硼酸频呢醇酯苯基)胺的C—B伸缩振动峰和1359 cm^{-1}处B—O键的伸缩振动峰，初步证明了聚合反应的发生，且聚合程度较完全．^{13}C CP/MAS NMR谱图[图1(B)]进一步确定了LNU-40的合成．δ 110~150范围

内的信号峰归属于苯基和咔唑基上的碳，δ 110和139处的信号峰分别归于与咔唑氮相连邻位的芳香次甲基碳和与咔唑氮键合的芳香碳，δ 121~127范围内的信号峰代表未取代的苯基碳．以上结果进一步证明LNU-40聚合物已被成功制备．

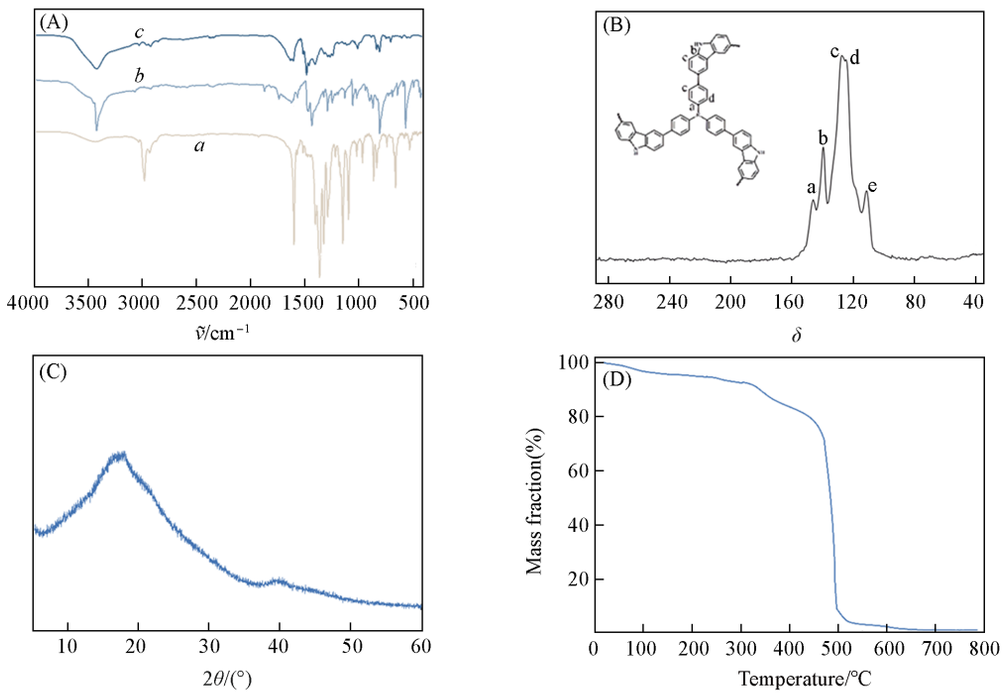


Fig. 1　FTIR spectra of tris(4-boronic acid pinacol ester phenyl)amine(*a*), 3,6-dibromocarbazole(*b*) and LNU-40(*c*)(A), ^{13}C CP/MAS NMR spectrum(B) and PXRD pattern(C) of LNU-40 and TGA curve of LNU-40 under ambient air atmosphere(D)

为了探究聚合物的骨架结构，对多孔有机聚合物进行了粉末X射线衍射(PXRD)分析．聚合物在广角范围内只有一个宽的衍射峰[图1(C)]，表明聚合物为无定形结构，这可能是由于断裂伸长率的变化导致聚合物的结构转变，进而变为无定形结构[8]．对LNU-40在空气氛围下进行热重测试．由[图1(D)]可以看出，LNU-40在0~300 ℃下结构稳定，400 ℃后的急剧失重可能是因为聚合物骨架发生坍塌，说明LNU-40具有非常好的热稳定性，是一种理想的具有油-水分离潜力的吸附材料．

图2示出了LNU-40的微观形态和孔隙特性．从图2(A)可见，LNU-40呈现出类球形不规则小颗粒堆积的形貌，这种不规则的颗粒分布使得整个表面为粗糙的状态．根据Cassie-Baxter模型，这样的表面结构有利于在材料中产生疏水性，增强其油-水分离的性能[26,28,32,33]．图2(B)示出的明暗相间的多孔结构表明LNU-40具有无序蠕虫状孔道，这样的结构能够使多孔材料广泛应用于吸附、催化、分离及传递药物等领域，且在分离油-水混合物方面具有潜在的应用前景[13,29,34,35]．

孔隙性质是决定聚合物是否具有优秀的目标溶剂分离性能的关键因素之一[36]．为探究聚合物LNU-40的孔隙性能，测试了其在100000 Pa和77 K条件下的N_2气吸附-脱附等温线．LNU-40在较低压力区域(p/p_0<0.05)出现快速的气体吸附[图2(C)]，表明聚合物材料结构中存在微孔；吸附等温线在高压区域的滞后环暗示着结构中还存在一定量的介孔，这与SEM结果一致．根据国际纯粹与应用化学联合会(IUPAC)的规定，介孔通常上是指在2~50 nm范围内的孔径．基于非局域密度泛函理论(NLDFT)计算的孔径分布进一步证实了LNU-40的微-介孔结构[图2(D)]，孔径主要集中在0.680 nm，这种均匀的孔径有助于避免因孔道狭窄导致的堵塞问题，使得客体分子更易于进入骨架内部．BET模型的计算结果表明，LNU-40的比表面积为32 m^2/g，与其它同类型多孔材料，如COF-F8(29 m^2/g)、COF-F10(23 m^2/g)、LNU-41(49 m^2/g)、CPCMERI-2(86.147 m^2/g)和COF-F6(233 m^2/g)等相比并没有显著优势[18,22,37]，这可能与侧链中苯环的存在有关，苯环可能会堵塞孔隙，进而导致比表面积降低[28,38]．

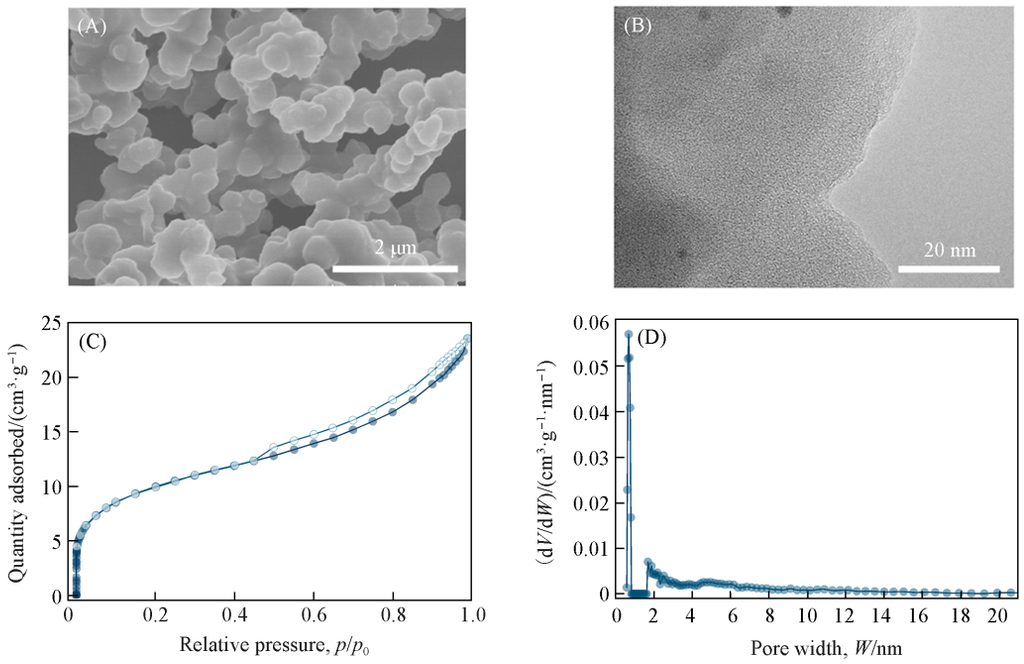


Fig. 2 SEM image(A), TEM image(B), nitrogen adsorption-desorption isotherms(C) and pore size distribution(D) of LNU-40

2.2 负载LNU-40的超疏水织物的性能

为了评估LNU-40的应用潜力，对其在油-水混合溶液中的亲油疏水特性进行测试，并探究其负载在织物上后的超疏水性能．向含煤油和水的混合溶液中加入5 mg LNU-40，振荡使其在溶液中均匀分散后静置3 min．由图3(A)可以看出，多孔有机聚合物LNU-40优先分散在上层油相中而不扩散到水相，证明该聚合物具有亲油疏水的性质．

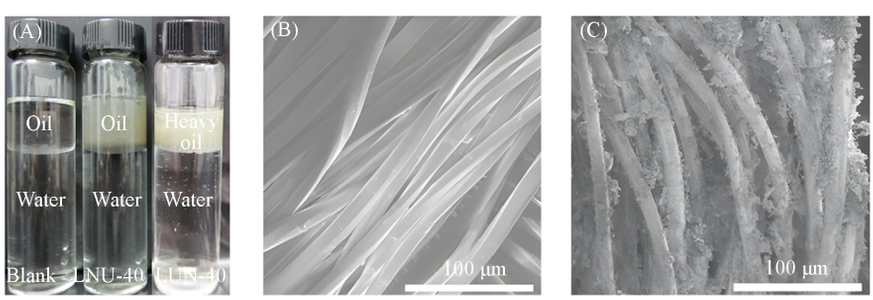


Fig. 3 Dispersion conditions in kerosene(oil), vacuum pump lubricating oil(heavy oil), and water(A) and SEM images of flexible fabrics before(B) and after(C) loading with LNU-40

图3(B)和(C)示出原始织物及负载LNU-40后织物的SEM照片．可以看出，原始柔性织物有着光滑平整的表面；负载LNU-40涂层后，能够清楚地看到有机聚合物在纤维表面的明显突起，同时织物纤维之间的缝隙被紧密附着的高分子材料LNU-40填充，这种结构能够显著增加织物表面的粗糙度，从而显著提高了材料表面的疏水性[39~41]．

以亚甲基蓝染色的水为水相，以甲基红染色的三氯甲烷为油相，考察了超疏水柔性织物与水相和油相的亲和性．在空白织物上滴加时，两种液滴均无法停留在织物表面，并被织物快速吸收[图4(A)]；将水和三氯甲烷滴加在负载LNU-40后的织物表面时，三氯甲烷可以渗入，而水滴则以球形停留在表面[图4(B)]，有效地验证了织物负载LNU-40后同时具有疏水性与亲油性．

为了进一步分析负载LNU-40的超疏水织物的疏水性能，测试了其水接触角．由图5(A)可以看出，超疏水织物的水接触角为152.4°(水接触角>150°为超疏水)，表明其具有超疏水性能．这可能是由于LNU-40的骨架中含有大量的芳香环，能够排斥水分子中的氢原子，使水分子难以接近亲水性氧原子，因此表现出优异的疏水性能．

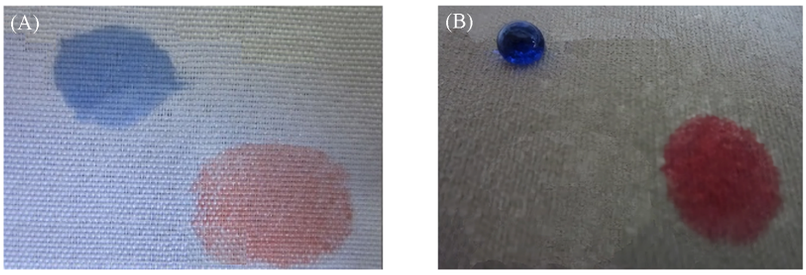


Fig. 4　Affinity effects of flexible fabrics with aqueous(up) and oil(down) phases before(A) and after (B) loading with LNU-40

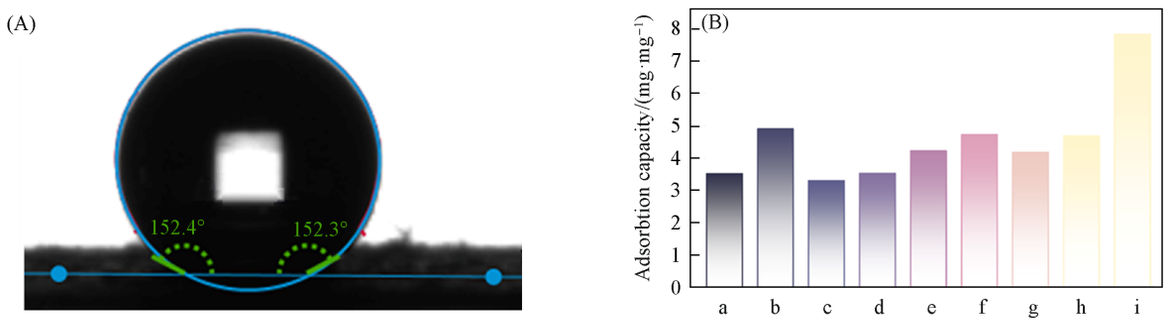


Fig. 5　Water contact angle of the LNU-40 coated fabric(A) and its adsorption capacity for different organic solvents(B)

(B) a. Chloroform; b. dichloromethane; c. kerosene; d. benzene; e. bromobutane; f. 1,2-dichloroethane; g. phenixin; h. chlorobenzene; i. dimethicone.

此外，还测试了超疏水织物对不同有机溶剂的吸附性能. 结果表明，负载了LNU-40的超疏水织物对不同有机溶剂的吸附量高达自身质量的3~8倍[图5(B)]，与已有的研究相比，吸附效果有明显的提高[42]. 这样的吸附分离性能保证了超疏水柔性织物在实际应用中能够实现优异的废水处理效果. 这是因为LNU-40的多孔结构提供了大量的表面积和孔隙，有机溶剂分子进入材料的孔隙中后，与非极性的碳-碳键所构建的框架和咔唑基团形成范德华力，进而固定在孔隙内表面. 负载LNU-40形成的粗糙表面也会截留空气，阻止水相在气-固复合界面上的润湿和进一步扩散，这样的特性使其能吸附水中的油相物质[7,43].

2.3　LNU-40的自清洁性能

为测试超疏水表面的自清洁性能，将表面涂覆LNU-40的玻璃片和原始玻璃片以15°的倾斜角放置在培养皿边缘，目的是使水滴能够在其表面自然滚落. 考虑到灰尘是超疏水表面主要的室外污染物，因此将灰尘作为目标污染物进行自清洁性能测试. 将水滴用亚甲基蓝染色，使其具有直观的观察效果，并在玻璃片上放置灰尘，模拟自清洁表面需清洁的状态. 当超疏水表面上有水流经过时，灰尘立即被水包裹起来，并随水滴滚落；而原始玻璃片上的灰尘仍附着在玻璃片表面(图6). 这归因于LNU-40具有低表面能和粗糙的表面结构，使覆盖LNU-40的物体表面具有显著的疏水性[8,32,44,45]，表现出良好的自清洁效果.

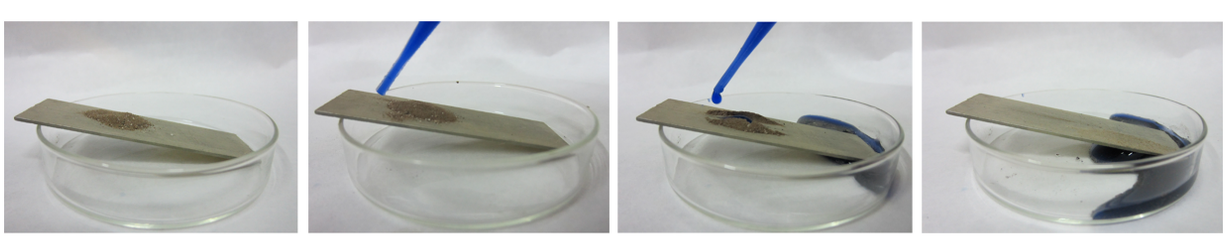


Fig. 6　Self-cleaning ability test of superhydrophobic surface

2.4 超疏水织物的油-水及乳液分离性能

面对溢油污染对水体环境造成的严重影响，迫切需要有效的油-水分离材料．为了评估LNU-40超疏水织物的油-水分离性能，搭建了一个简易的连续集油系统．在该系统中，一块负载LNU-40的超疏水织物被固定在锥形瓶和玻璃漏斗之间．通过对水和氯仿分别染色(亚甲蓝和甲基红)，以直观展示分离效果[图7(A)]．当将35 mL氯仿和35 mL水的混合液倒入玻璃漏斗时，密度较大的氯仿可迅速透过柔性织物进入下方的锥形瓶，水却无法穿透柔性织物，停留在玻璃漏斗内．进一步的测试表明，这种负载LNU-40的超疏水织物对水与其它有机溶剂(二氯甲烷、三氯甲烷、1,2-二溴乙烷、溴丁烷、氯苯和四氯化碳)的混合物也展现出超过90%的分离效率[图7(B)]，可见，本文制备的超疏水织物具有优异的油-水分离能力，具有处理工业溢油和有机溶剂溢油的良好前景．

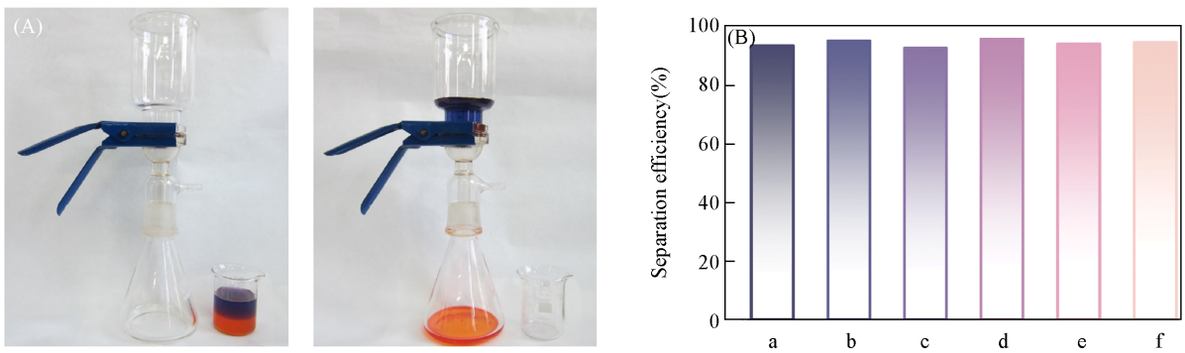


Fig. 7 Oil-water separation performance(A) and separation efficiency for different organic solvents(B) of superhydrophobic fabric loaded with LNU-40

(B) a. Dichloromethane; b. chloroform; c. 1,2-dichloroethane; d. bromobutane; e. chlorobenzene; f. phenixin.

除了分离简单的油-水混合物外，本文制备的超疏水织物在分离油包水乳液方面也显示出良好的效果．如图8(A)所示，以甲苯乳液作为模型乳液，分离前的乳剂呈乳白色，说明油相中分布着大量的水滴．经过超疏水织物分离后，溶液变得清澈透明，这表明油包水乳状液中的油相和水相分离成功．计算得到乳液分离效率为90.1%．说明本文制备的超疏水织物在油包水的乳液分离方面也有应用潜力．

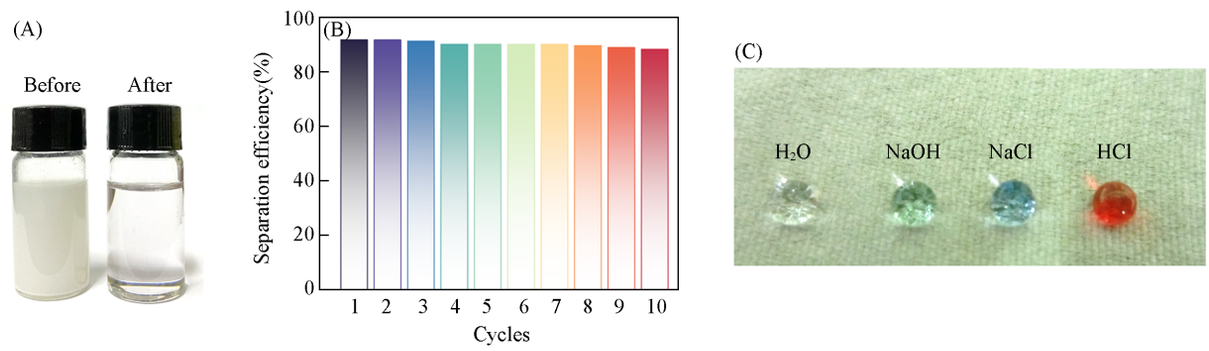


Fig. 8 Photograph of water-in-toluene emulsions before and after the separation by the superhydrophobic LNU-40 coated fabric(A), cycling performance for LNU-40 coated fabric(B) and photograph of water, NaCl, NaOH and HCl droplets on the LNU-40 coated fabric(C)

2.5 负载LNU-40的超疏水织物的耐久度和耐腐蚀性能

考虑到实际使用环境的复杂性，为了测定负载LNU-40的超疏水织物是否具有稳定的超疏水性能，对超疏水织物的耐久度和耐腐蚀性进行了测试．将氯仿和水以体积比1∶1(20 mL∶20 mL)的比例混合，以图8(A)的方式在超疏水柔性织物上连续进行10次分离实验，结果表明超疏水柔性织物的分离效率仍大于88.3%[图8(B)]，具有优异的分离性能，表明该材料具有一定的可耐用性．

在耐腐蚀性能分析中，将水、1 mol/L盐酸、1 mol/L氯化钠和1 mol/L氢氧化钠的液体分别滴在超疏水织物上．为了便于观察，将氢氧化钠和氯化钠溶液及盐酸分别用孔雀石绿、亚甲基蓝和甲基红染色．结果表明，几种液滴在织物表面均能较长时间保持球形[图8(C)]．可见，负载LNU-40的超疏水柔性织物具有很好的耐腐蚀性，这可归因于LNU-40材料π-π堆叠的高刚性芳香骨架以及超疏水框架与腐蚀性水溶液的弱接触[46~48]．

3 结　　论

通过Suzuki偶联反应合成了一种超疏水多孔有机聚合物LNU-40；采用傅里叶变换红外光谱、固体核磁共振波谱、热重分析、扫描电子显微镜和透射电子显微镜等分析表征了其结构及性能；并使用简单浸泡法将其负载在织物表面后对其油-水分离的性能进行测试．结果表明，LNU-40的水接触角为152.4°，达到了超疏水效果，负载LNU-40后得到的超疏水柔性织物的油-水分离过程具有速度快和效率高的特点．负载LNU-40制成的超疏水表面自清洁性能优越，能够很容易地去除表面的灰尘且不被水滴湿润．使用不同的酸碱溶液对超疏水织物的耐腐蚀性进行测试，证明其在极端条件下具有超疏水能力．这种超疏水多孔有机聚合物的制备工艺简便、环境友好，并且在强酸强碱等苛刻环境下依然保持稳定的疏水性，在石油化工、食品和制药等行业处理含油或有机溶剂废水的油-水分离过程中具有广阔的应用前景．此外，该材料还可为特殊作业服装和建筑外墙材料的开发提供重要技术支持．

参　考　文　献

[1] Chu Z. L., Feng Y. J., Seeger S., *Angew. Chem. Int. Ed.*, **2015**, *54*(8), 2328—2338
[2] Qiao B. L., Song H., Qian H. Y., Kong Q. G., *Colloids Surf. A*: *Physicochem. Eng. Asp.*, **2023**, *660*, 130878
[3] Sun D. X., Liao X. L., Zhang N., Huang T., Lei Y. Z., Xu X. L., Wang Y., *Chin. J. Polym. Sci.*, **2022**, *40*(7), 738—753
[4] Tang Y., Huang H., Guo X., Zhong C., *Ind. Eng. Chem. Res.*, **2020**, *59*(29), 13228—13238
[5] Du X., You S. J., Wang X. H., Wang Q. R., Lu J. D., *Chem. Eng. J.*, **2017**, *313*, 398—403
[6] Xiao Z. Y., Zhang M. H., Fan W. D., Qian Y. Y., Yang Z. D., Xu B., Kang Z., Wang R. M., Sun D. F., *Chem. Eng. J.*, **2017**, *326*, 640—646
[7] Li J., Yan L., Li H. Y., Li W. J., Zha F., Lei Z. Q., *J. Mater. Chem. A*, **2015**, *3*(28), 14696—14702
[8] Ouyang Y. Q., Song L. H., Zhao X. D., Li Z. H., Liu S., Yan Z. F., *Sep. Purif. Technol.*, **2023**, *306*, 122600
[9] Zang Y., Sun H., Jing B. Y., Gao S., Wang J. J., Liu J., Jia H. G., Dong S. B., Xu L., *J. Mater. Sci.*, **2023**, *58*(6), 2935—2949
[10] Li G. B., Liu H. F., Li J. H., Zeng H., Li R., Li G. S., Jin J. C., *Polymer Mater. Sci. Eng.*, **2020**, *36*(12), 142—150(李国滨, 刘海峰, 李金辉, 曾晖, 李瑞, 黎根盛, 靳计灿. 高分子材料科学与工程, **2020**, *36*(12), 142—150)
[11] Zhang Q., Gao G., Lu G. X., Shao L., Shi F., Jiang L., Cheng M. J., *Chem. Eng. J.*, **2021**, *419*, 129766
[12] Yu C., Liang M., Yue X., Tian K., Liu D., Qiao X., *J. Chromatogr. A*, **2020**, *1631*, 461539
[13] Yu H. Y., Wu M., Duan G. G., Gong X., *Nanoscale*, **2022**, *14*(4), 1296—1309
[14] Jiang Y. Z., Liu C. Y., Li Y. H. , Huang A. S., *J. Membr. Sci.*, **2019**, *587*, 117177
[15] Su P. J., Wang J., Chu K., Luo Y. F., Sun Q. Q., Dong X., Zhang H. C., Cui B., Yan Z. J., Bu N. S., *China Environ. Sci.*, **2023**, *43*(2), 568—575(苏品杰, 王净, 褚阔, 罗亦夫, 孙琪琪, 董欣, 张红翠, 崔博, 闫卓君, 布乃顺. 中国环境科学, **2023**, *43*(2), 568—575)
[16] He J. Y., Jiang Y. B., Zhang A. M., Tang Z. Y., Li H. P., *Chem. J. Chinese Universities*, 2023, *44*(2), 20220535(何建云, 蒋云波, 张爱敏, 唐振艳, 李鸿鹏. 高等学校化学学报, **2023**, *44*(2), 20220535)
[17] Slater A. G. , Cooper A. I., *Science*, **2015**, *348*(6238), aaa8075
[18] Wu X., Hong Y. L., Xu B., Nishiyama Y., Jiang W., Zhu J., Zhang G., Kitagawa S., Horike S., *J. Am. Chem. Soc.*, **2020**, *142*(33), 14357—14364
[19] Ji W., Guo Y. S., Xie H. M., Wang X., Jiang X., Guo D. S., *J. Hazard. Mater.*, **2020**, *397*, 122793
[20] Zhou X., Zhang Z., Xu X., Guo F., Zhu X., Men X., Ge B., *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **2013**, *5*(15), 7208—7214
[21] Vengatesh P., Kulandainathan M. A., *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **2015**, *7*(3), 1516—1526
[22] Dey D., Chandra M. N., Banerjee P., *RSC Adv.*, **2019**, *9*(13), 7469—7478
[23] Han N., Zhang Z., Gao H., Qian Y., Tan L., Yang C., Zhang H., Cui Z., Li W., Zhang X., *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **2020**, *12*(2), 2926—2934
[24] Zheng M. Z., Huang H. L., Jiang Z. F., Zhao Y. L., Sun Y. X., Zhong C. L., *J. Porous Mater.*, **2022**, *29*(2), 433—444
[25] Gao J. F., Huang X. W., Xue H. G., Tang L. C., Li R. K. Y., *Chem. Eng. J.*, **2017**, *326*, 443—453
[26] Akbari Z., Hoseini S. J., Bahrami M., Hashemi F. R., Montazerozohori M., Nabavizadeh S. M., *Microporous Mesoporous Mater.*, **2022**,

330, 111612
[27] Gong L., Zhu H. X., Wu W. H., Lin D. H., Yang K., *J. Hazard. Mater.*, **2022**, *425*, 127980
[28] Jing B. Y., Lei T. Y., Wang J. J., Xu L., Liu J., Sun H., Gao S., Miao F. J., Zang Y., *Microporous Mesoporous Mater.*, **2022**, *339*, 111990
[29] Liu Y. H., Li W., Yuan C., Jia L., Liu Y., Huang A. S., Cui Y., *Angew. Chem. Int. Ed.*, **2021**, *61*(2), e202113348
[30] Changmai S., Sultana S., Saikia A. K., *ChemistrySelect*, **2023**, *8*(11), e202203530
[31] Yan Z., Qiao Y., Wang J., Xie J., Cui B., Fu Y., Lu J., Yang Y., Bu N., Yuan Y., Xia L., *Molecules*, **2022**, *27*(19), 6297
[32] Osei Lartey P., Li D., Li J. D., Qin W., Guo K. P., Ma J., *Colloids Surf. A: Physicochem. Eng. Asp.*, **2022**, *650*, 129504
[33] Roy S., Suresh V. M., Maji T. K., *Chem. Sci.*, **2016**, *7*(3), 2251—2256
[34] Xu L., Zang Y., Xiao J. J., Wu Y. F., Pan Y. X., Wu T. T., Tang Y. S., Cui J., Jia H. G., Miao F. J., *Sep. Purif. Technol.*, **2021**, *261*, 118291
[35] Ye Q., Xu J. M., Zhang Y. J., Chen S. H., Zhan X. Q., Ni W., Tsai L. C., Jiang T., Ma N., Tsai F. C., *npj Clean Water*, **2022**, *5*(1), 23
[36] Gu C., Hosono N., Zheng J. J., Sato Y., Kusaka S., Sakaki S., Kitagawa S., *Science*, **2019**, *363*(6425), 387—391
[37] Yan Z. J., Qiao Y. M., Li N., Zheng G. Y., Cui B., Ruan X. H., Yang Y. J., Bu N. S., Yuan Y., Xia L. X., *Adv. Mater. Interfaces*, **2022**, *9*(18), 2101994
[38] Boyd P. G., Chidambaram A., García-Díez E., Ireland C. P., Daff T. D., Bounds R., Gładysiak A., Schouwink P., Moosavi S. M., Maroto V. M. M., Reimer J. A., Navarro J. A. R., Woo T. K., Garcia S., Stylianou K. C., Smit B., *Nature*, **2019**, *576*(7786), 253—256
[39] Quéré D., *Annu. Rev. Mater. Res.*, **2008**, *38*(1), 71—99
[40] Feng X. J., Jiang L., *Adv. Mater.*, **2006**, *18*(23), 3063—3078
[41] Bonn D., Eggers J., Indekeu J., Meunier J., Rolley E., *Rev. Mod. Phys.*, **2009**, *81*(2), 739—805
[42] Yu L., Fan Y., Li C., Liu C. L., Ren X. Y., Yang H. J., Lin S. D., *Polym. Bull.(Berlin)*, **2022**, *80*(4), 3571—3584
[43] Sheng X., Shi H., Yang L., Shao P., Yu K., Luo X., *Sci. Total Environ.*, **2021**, *750*, 141683
[44] Lu Z., Liu H. R., Cui X. L., Li Y., Lv Z. J., Chen W. J., *J. Appl. Polym. Sci.*, **2022**, *139*(26), e52428
[45] Lv C. J., Li H., Yasin A., Hao B., Yue X., Ma P. C., *Polymer*, **2022**, *258*, 125292
[46] Cataldi P., Bayer I. S., Cingolani R., Marras S., Chellali R., Athanassiou A., *Sci. Rep.*, **2016**, *6*, 27984
[47] Zhu Y., Li J. M., Wan M. X., Jiang L., *Macromol. Rapid Commun.*, **2008**, *29*(3), 239—243
[48] Zhu Y., Li J. M., Wan M. X., Jiang L., *Polymer*, **2008**, *49*(16), 3419—3423

(Ed.: W, K, M)