

DOI:10.19853/j.zgjsps.1000-4602.2022.07.014

MgFe-LDHs改性无烟煤及其对Sb(V)的去除研究

刘 阳¹, 赵 丹¹, 李大鹏¹, 陈雪文², 董延茂³, 杨雨杰¹

(1. 苏州科技大学 环境科学与工程学院, 江苏 苏州 215009; 2. 苏州高新区狮山街道建设局, 江苏 苏州 215009; 3. 苏州科技大学 化学生物与材料工程学院, 江苏 苏州 215009)

摘 要: 为提高无烟煤对Sb(V)的吸附性能,采用碱性水热-共沉淀法原位合成镁铁类水滑石化合物表面改性无烟煤(Anthr/MgFe-LDHs)。采用扫描电子显微镜(SEM)、X-射线衍射仪(XRD)、傅里叶变换红外光谱仪(FTIR)等对产物进行表征,研究了Anthr/MgFe-LDHs对Sb(V)的吸附性能。结果表明,当镁与铁物质的量之比为2:1时,Anthr/MgFe-LDHs对Sb(V)的吸附性能最佳,最大吸附量为6.77 mg/g;当水溶液pH值为5~11时,随着pH值的升高,Sb(V)去除率逐渐降低。热力学参数表明,Anthr/MgFe-LDHs对Sb(V)的吸附是自发的吸热过程,吸附机理符合Langmuir模型和准二级动力学方程。Anthr/MgFe-LDHs经过4次循环使用后对Sb(V)的去除率仍接近80%,具有良好的应用前景。

关键词: 无烟煤; Sb(V); 镁铁类水滑石化合物; 改性; 吸附性能

中图分类号: TU992 **文献标识码:** A **文章编号:** 1000-4602(2022)07-0090-07

Modification of Anthracite by MgFe-LDHs for Sb(V) Removal

LIU Yang¹, ZHAO Dan¹, LI Da-peng¹, CHEN Xue-wen², DONG Yan-mao³,
YANG Yu-jie¹

(1. School of Environmental Science and Engineering, Suzhou University of Science and Technology, Suzhou 215009, China; 2. Shishan Sub-district Construction Bureau of Suzhou High-tech Zone, Suzhou 215009, China; 3. School of Chemical Biology and Materials Engineering, Suzhou University of Science and Technology, Suzhou 215009, China)

Abstract: Magnesium iron hydroxalite-like compounds were synthesized *in situ* by alkaline hydrothermal coprecipitation method for modification of anthracite(Anthr/MgFe-LDHs) to improve the Sb(V) adsorption performance of anthracite. The products were characterized by scanning electron microscopy (SEM), X-ray diffractometer (XRD) and Fourier transform infrared spectrometer (FTIR), and the adsorption performance of Anthr/MgFe-LDHs for Sb(V) was investigated. Anthr/MgFe-LDHs had the best adsorption performance for Sb(V) when the molar ratio of magnesium and iron was 2:1, and the maximum adsorption capacity was 6.77 mg/g. With the increase of pH, the removal efficiency of Sb(V) decreased gradually when the pH of aqueous solution was in the range of 5-11. The thermodynamic parameters showed that the adsorption of Sb(V) by Anthr/MgFe-LDHs was a spontaneous endothermic process, and the adsorption mechanism conformed to Langmuir model and quasi-second-order kinetic equation. After

基金项目: 国家水体污染控制与治理科技重大专项(2017ZX07205001)

通信作者: 赵丹 E-mail: danny1972820@163.com

four cycles of adsorption and desorption, Anthr/MgFe-LDHs still had a high Sb(V) removal efficiency that was close to 80%, indicating that it has a promising application prospect.

Key words: anthracite; Sb(V); magnesium iron hydrotalcite-like compound(MgFe-LDHs); modification; adsorption performance

锑(Sb)是一种典型的重金属污染物,在环境中的存在形式主要为Sb(Ⅲ)和Sb(V),Sb(Ⅲ)的毒性高于Sb(V),所以人们对Sb(Ⅲ)的去除更加关注,而对Sb(V)的去除研究相对较少^[1]。然而,Sb在水环境中的存在形式主要为Sb(V),其主要种类为可存在于比较宽泛pH值范围的Sb(OH)₆⁻,并且Sb(V)的迁移率和溶解度大于Sb(Ⅲ)^[2]。因此,研究从水环境中去除Sb(V)的有效方法同样重要。水处理中对Sb的处理方法主要有沉降法、离子交换法和吸附法等,吸附法由于操作简便、效率高、成本低,近年来受到广泛关注。

无烟煤(Anthr)是一种价格低廉、吸附能力强且耐腐蚀的吸附剂,在去除Sb(V)方面也有较好的效果^[3]。对吸附剂进行改性是将某种有良好吸附性能的物质通过物理化学反应附着在吸附剂表面,以提高吸附剂的吸附性能。金属氧化物、金属氢氧化物、有机化合物改性等都是常用的改性方法^[4]。层状双金属氢氧化物(LDHs)由八面体结构组成,Mg²⁺、Zn²⁺、Ca²⁺常见于LDHs结构中^[5-6],Al³⁺、Fe³⁺等是最常见的三价阳离子^[7-8]。LDHs具有热稳定性、层间阴离子可交换性和结构记忆性等特征,在水处理领域受到越来越多的关注^[9-10]。Hudcová等^[11]发现,LDHs对水中的Sb具有良好的去除效果。但是LDHs单体主要为晶末状,如果直接应用在水处理工程中后期则难以进行固液分离,将造成二次污染等问题^[12]。有研究表明^[12-14],麦饭石、二氧化硅、氧化石墨烯等吸附剂经LDHs改性后对重金属具有更好的吸附性能。根据之前的研究^[3],在所筛选的多种填料中,无烟煤对水中Sb的去除具有更出色的效果,但是尚无以无烟煤作为基质去除Sb(V)的研究报道。

笔者借助LDHs改性无烟煤,采用不同物质的量之比的Mg²⁺和Fe³⁺结合为镁铁类水滑石化合物(MgFe-LDHs),通过一系列吸附实验,探究对Sb(V)的吸附性能,并与无烟煤对比,筛选出最佳改性配比。

1 材料与方法

1.1 材料与试剂

实验所用吸附剂为无烟煤,粒径为3~5 mm,孔隙率约为50%。六水三氯化铁、六水氯化镁、焦锑酸钾均为化学纯,氢氧化钠为分析纯。实验采用去离子水配制溶液。

1.2 制备方法

将一定量无烟煤置于1 L烧杯中,并在水浴恒温锅中加热,环境温度保持在90℃左右。配制好2份镁与铁物质的量之比为2:1的溶液各100 mL,分别加入装有无烟煤的烧杯和空烧杯中,用10%的NaOH溶液调节pH值至11,采用电动搅拌器在600 r/min条件下搅拌4 h,将所得混合物放入微型高压反应釜中,并在180℃下陈化4 h,将陈化后的产物进行洗涤、过滤、干燥,即得到Anthr/MgFe-LDHs_{2:1}和纯MgFe-LDHs_{2:1}。采用相同的方法制备镁与铁物质的量之比分别为3:1、4:1的Anthr/MgFe-LDHs和纯MgFe-LDHs。

1.3 实验方法

不同pH值吸附实验:研究表明^[15],受污染地区的Sb浓度高达4.58~86.5 mg/L,是自然水平的数千倍。本实验中,选取4种无烟煤放入锥形瓶中,再加入100 mL浓度为50 mg/L的Sb(V)模拟废水。同时用稀H₂SO₄和NaOH调节pH值分别为4、5、6、7、8、9、10、11。将锥形瓶置于水浴恒温振荡器中,在25℃、转速为140 r/min的条件下振荡24 h。取出后过滤,测定上清液中Sb(V)浓度。

等温吸附实验:分别配制5、10、20、30、40、50、100、200 mg/L的Sb(V)溶液各100 mL,同时取上述4种无烟煤各2 g分别放入250 mL锥形瓶中,调节溶液pH值为7,其余步骤与不同pH值吸附实验相同。

吸附动力学实验:配制50 mg/L的Sb(V)溶液,将4种无烟煤各2 g放入250 mL锥形瓶中,加入100 mL的Sb(V)溶液,调节溶液pH值为7,其余步骤与不同pH值吸附实验相同。分别在5、10、20、35、50、90、180、300、480、1 020、1 440 min时取样,过滤后测

定上清液中Sb(V)浓度。

吸附热力学实验:将温度设定为25、35、45℃,Sb(V)初始浓度为50 mg/L,重复等温吸附实验。

再生吸附实验:用去离子水将等温吸附实验结束后的4种无烟煤振荡清洗4次。分别配制0.01 mol/L的NaCl溶液100 mL,放入250 mL锥形瓶中,在25℃、pH值=7、转速为140 r/min的条件下,于水浴恒温振荡器中振荡12 h。取出后过滤,测定上清液中Sb(V)浓度。将每次解吸后的无烟煤重复进行再生吸附实验3次。

1.4 分析项目及方法

采用PHS-3C型pH计测定pH值;采用原子荧光光谱仪测定Sb(V)浓度;采用扫描电子显微镜(SEM)、X-射线衍射仪器(XRD)和傅里叶变换红外光谱仪(FIR)对吸附材料进行表征。

2 结果与讨论

2.1 Anthr/MgFe-LDHs的表征

图1为无烟煤和Anthr/MgFe-LDHs_{2:1}的SEM照片和EDS能谱。可以看出,无烟煤表面非常光滑,仅有少许细小颗粒物,经过负载处理后,其表面明显变得粗糙,且有层状结构存在并含有大量晶状物质,这也与Li等^[16]得到的结果类似。SEM结果表明,MgFe-LDHs已成功负载到无烟煤表面,且大幅增加了无烟煤表面的粗糙度。

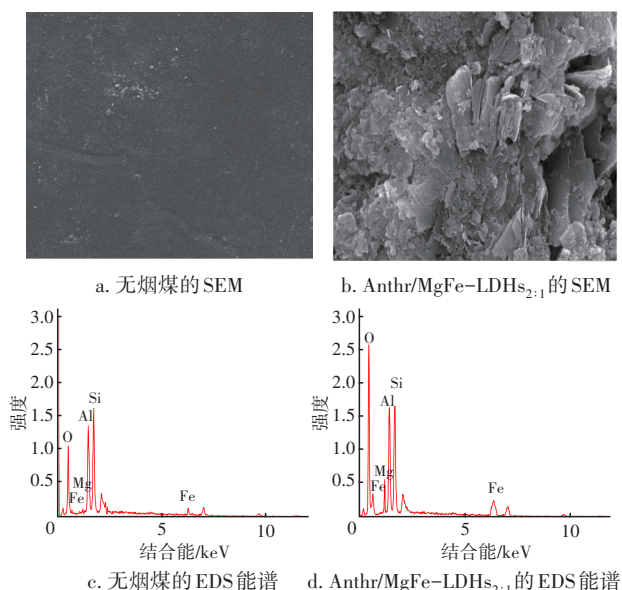


图1 无烟煤和Anthr/MgFe-LDHs_{2:1}的SEM照片和EDS能谱

Fig.1 SEM photograph and EDS spectra of anthracite and Anthr/MgFe-LDHs_{2:1}

从EDS能谱可知,改性后无烟煤O含量明显增

加,说明有金属-氧键加入^[16]。同时改性后无烟煤表面Fe、Mg元素明显增多,这也说明MgFe-LDHs已成功负载到无烟煤表面。改性前后,产物中的元素种类没有发生改变,说明Anthr/MgFe-LDHs的合成主要依靠物理吸附。

图2为研磨成粉后的无烟煤、Anthr/MgFe-LDHs_{2:1}和MgFe-LDHs_{2:1}(JCPDS No.14-0365)的XRD图谱。可以看出,改性后的无烟煤在 2θ 为11.2°、22.8°、34.3°、38.3°、45.9°、59.5°、60.7°处出现MgFe-LDHs特征衍射峰,分别对应于(003)、(006)、(012)、(015)、(018)、(110)、(113)等7个晶面^[17],这也表明MgFe-LDHs已成功负载于无烟煤表面,改性后的无烟煤表面官能团更加丰富。

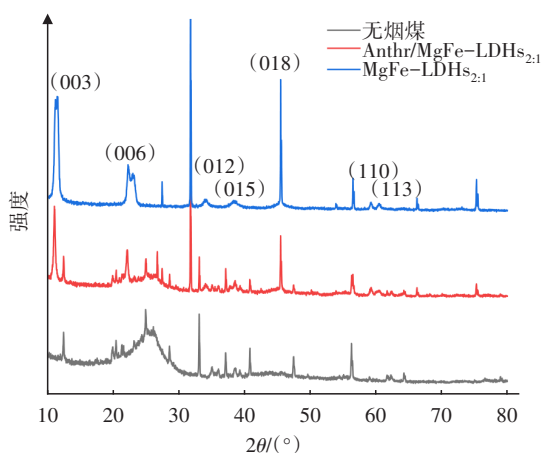


图2 无烟煤、Anthr/MgFe-LDHs_{2:1}和MgFe-LDHs_{2:1}的XRD图谱

Fig.2 XRD patterns of anthracite, Anthr/MgFe-LDHs_{2:1} and MgFe-LDHs_{2:1}

采用FTIR对Anthr/MgFe-LDHs_{2:1}吸附Sb(V)前后的样品进行分析,结果见图3。3 726、3 650 cm⁻¹处的强重叠带是由晶格水和—OH基团的拉伸振动引起的^[18];3 447 cm⁻¹处的宽峰属于LDHs层中羟基的拉伸振动,吸附前后三处峰值几乎没有变化,说明在吸附Sb(V)的过程中羟基并没有过多参与反应。1 574 cm⁻¹处的吸收峰归因于LDHs层吸附水的弯曲振动^[19],吸附后峰的强度减弱,可能是在吸附过程中产生一定的相互作用。1 100 cm⁻¹附近的峰为Si—O—Si特征峰;1 207、910 cm⁻¹处的峰与LDHs层中CO₃²⁻的不对称振动拉伸有关^[20-21],吸附后两处峰值明显减弱,说明CO₃²⁻可能参与了Sb(V)在样品表面的吸附过程。但实验中未有CO₃²⁻加入,这可能是由于在离子交换过程中,空气中的CO₂进

入反应体系中。 470 cm^{-1} 处的Mg—O和 540 cm^{-1} 处的Fe—O在吸附后伸缩振动程度也减弱了,说明可能在吸附过程中 Mg^{2+} 、 Fe^{3+} 离子也参与了反应^[22]。

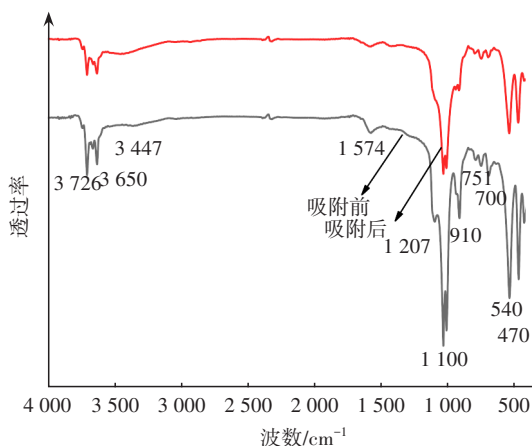


图3 吸附前后Anthr/MgFe-LDHs_{2:1}的FTIR图谱

Fig.3 FTIR spectra of Anthr/MgFe-LDHs_{2:1} before and after adsorption

2.2 pH值对吸附性能的影响

图4为pH值对无烟煤及Anthr/MgFe-LDHs吸附Sb(V)的影响。

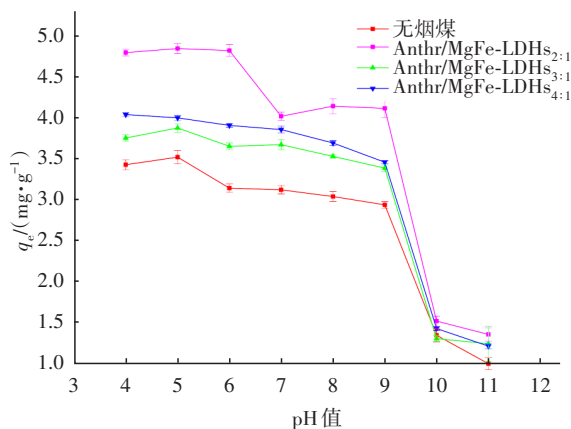


图4 pH值对无烟煤及Anthr/MgFe-LDHs吸附Sb(V)的影响

Fig.4 Effect of pH on Sb(V) removal by anthracite and Anthr/MgFe-LDHs

从图4可知,随着pH值的增大,无烟煤及Anthr/MgFe-LDHs对Sb(V)的吸附量不断下降。不同镁与铁物质的量之比条件下,Anthr/MgFe-LDHs吸附Sb(V)的性能由高到低的顺序为2:1>4:1>3:1。当Mg/Fe比例为2:1时,改性无烟煤吸附Sb(V)的性能最优;当pH值为4~6时,吸附量为 4.8 mg/g ;当pH值为10~11时,其对Sb(V)的吸附量降低到 1.39 mg/g 。这可能与MgFe-LDHs的表面零点电荷

(pH_{pzc})有关。在含锑废水中,当 $\text{pH}>2$ 时, $\text{Sb}(\text{OH})_6^-$ 是废水中的主要离子,当溶液 $\text{pH}<\text{pH}_{\text{pzc}}$ 时,MgFe-LDHs的羟基质子化形成正电势电子,进而产生静电作用吸附阴离子 $\text{Sb}(\text{OH})_6^-$ 。据报道^[23],MgFe-LDHs的 pH_{pzc} 约为8,因此当pH值在4~8时,2:1改性无烟煤具有不错的吸附性能。在溶液 $\text{pH}>\text{pH}_{\text{pzc}}$ 的条件下,由于带负电荷的表面位点与 $\text{Sb}(\text{OH})_6^-$ 之间的静电排斥以及与羟基的竞争作用,Sb(V)的吸附受到抑制。因此当pH值大于8时,吸附性能逐渐降低。

2.3 吸附时间对吸附性能的影响

图5为吸附时间对无烟煤及Anthr/MgFe-LDHs吸附Sb(V)的影响。可知,当吸附时间为0~400 min时,随着时间的增加,Sb(V)去除率也在不断增加,1000 min时吸附基本达到平衡。Anthr/MgFe-LDHs对Sb(V)的去除率最高可达86.2%,远高于无烟煤(约为67%)。

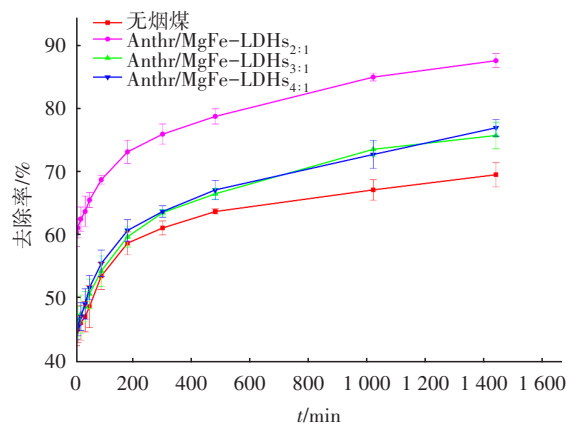


图5 吸附时间对无烟煤及Anthr/MgFe-LDHs吸附Sb(V)的影响

Fig.5 Effect of adsorption time on Sb(V) removal by anthracite and Anthr/MgFe-LDHs

2.4 吸附等温线

分别用Langmuir模型和Freundlich模型对4种吸附剂吸附Sb(V)进行了拟合,拟合参数见表1。可以看出,Langmuir模型拟合度更高($R^2>0.96$),即属于单层吸附。 K_L 代表被吸附物与吸附剂之间的亲和力或结合强度^[24],因此当镁与铁物质的量之比为2:1时,Anthr/MgFe-LDHs表面对Sb(V)有更高的亲和力。在Freundlich模型中,三种改性无烟煤的 $1/n$ 均小于无烟煤且都小于1,说明LDHs改性可以有效提高无烟煤的吸附性能。当Sb(V)初始浓

度为 50 mg/L 时, Anthr/MgFe-LDHs 对 Sb(V) 的最大吸附量为 6.77 mg/g, 优于相关报道^[25-26]。

表1 Anthr/MgFe-LDHs 和无烟煤对 Sb(V) 的吸附等温线拟合参数

Tab.1 Fitting parameters of adsorption isotherms of Sb(V) by Anthr/MgFe-LDHs and anthracite

项目	Langmuir 模型			Freundlich 模型		
	$q_m/(\text{mg} \cdot \text{g}^{-1})$	$K_L/(\text{L} \cdot \text{mg}^{-1})$	R^2	$K_F/(\text{mg} \cdot \text{g}^{-1})$	$1/n$	R^2
无烟煤	4.91	0.37	0.96	0.11	0.73	0.96
Anthr/MgFe-LDHs _{2:1}	6.77	6.62	0.97	1.12	0.44	0.93
Anthr/MgFe-LDHs _{3:1}	5.75	1.05	0.99	0.27	0.69	0.94
Anthr/MgFe-LDHs _{4:1}	6.21	1.41	0.99	0.34	0.56	0.96

注: q_m 为最大吸附量; K_L 、 K_F 分别为 Langmuir 模型和 Freundlich 模型的吸附常数; R^2 为拟合系数。

2.5 吸附热力学

表2为 Anthr/MgFe-LDHs 和无烟煤吸附 Sb(V) 的热力学参数。可以看出, 3 种温度下, ΔG° 始终为负值, 表明 Anthr/MgFe-LDHs 和无烟煤对 Sb(V) 的吸附是自发进行的, 且 ΔG° 随着温度的升高而降低, 说明提高温度更有利于对 Sb(V) 的吸附。 $\Delta H^\circ > 0$, 说明 4 种无烟煤吸附 Sb(V) 均是自发进行的吸热过程。 $\Delta S^\circ > 0$, 说明可能是锑离子与水结合为水合离子并与吸附剂表面的结合水相置换, 使得固液面上的混乱度增加, 继而熵值增大。

表2 Anthr/MgFe-LDHs 和无烟煤吸附 Sb(V) 的热力学参数

Tab.2 Thermodynamic parameters of Sb(V) adsorption by Anthr/MgFe-LDHs and anthracite

项目	$\Delta H^\circ/(\text{kJ} \cdot \text{mol}^{-1})$	$\Delta S^\circ/(\text{J} \cdot \text{mol}^{-1})$	$\Delta G^\circ/(\text{kJ} \cdot \text{mol}^{-1})$		
			25 °C	35 °C	45 °C
无烟煤	28.37	130.5	-10.54	-11.84	-13.15
Anthr/MgFe-LDHs _{2:1}	28.02	152.2	-17.36	-18.88	-20.40
Anthr/MgFe-LDHs _{3:1}	37.45	166.3	-12.13	-13.80	-15.46
Anthr/MgFe-LDHs _{4:1}	35.77	163.8	-13.06	-14.70	-16.34

2.6 吸附动力学

为进一步探究吸附剂对 Sb(V) 的吸附行为, 采用准一级动力学、准二级动力学和颗粒内扩散动力

学模型对吸附过程进行拟合, 拟合参数见表3。可以看出, 当 Sb(V) 浓度为 50 mg/L 时, 与准一级动力学和颗粒内扩散模型相比, 准二级动力学模型的拟合系数较大, 可以更精确地描述吸附过程。此外, 准二级动力学模型计算的 q_e 值更接近实验值, 说明其吸附类型更趋向于化学吸附。类水滑石在高温或焙烧后可能会失去原有的层状结构, 但其具有记忆效应, 在离子交换过程中会恢复层状结构。制备 Anthr/MgFe-LDHs 过程中, 在 180 °C 条件下进行陈化, 可以推断 Sb(V) 阴离子通过离子交换作用置换进入 MgFe-LDHs 阴离子层, 在释放出 OH^- 的同时恢复其层状结构。同时, Anthr/MgFe-LDHs 的吸附量均比无烟煤有所增加, 表明改性可以提高其对 Sb(V) 的吸附能力。吸附速率与吸附剂表面未占用的活性位点数量成正比^[24], 同时吸附速率还与吸附剂的结构性质(即孔隙率、比表面积等)有关。改性后的无烟煤拥有更大的孔隙率和比表面积, 这意味着其也拥有更多的活性位点, 因此改性后无烟煤的吸附速率更快, 即改性提高了无烟煤对 Sb(V) 的吸附速率。

表3 Anthr/MgFe-LDHs 和无烟煤吸附 Sb(V) 的动力学拟合参数

Tab.3 Fitting parameters of adsorption kinetics of Sb(V) by Anthr/MgFe-LDHs and anthracite

项目	准一级动力学方程			准二级动力学方程			颗粒内扩散方程	
	$q_e/(\text{mg} \cdot \text{g}^{-1})$	$K_1/(\text{min}^{-1})$	R^2	$q_e/(\text{mg} \cdot \text{g}^{-1})$	$K_2/(\text{g} \cdot \text{mg}^{-1} \cdot \text{min}^{-1})$	R^2	$K_3/(\text{mg} \cdot \text{g}^{-1} \cdot \text{min}^{-1/2})$	R^2
无烟煤	0.94	6.87×10^{-4}	0.872	0.95	1.12×10^{-4}	0.959	1.12	0.935
Anthr/MgFe-LDHs _{2:1}	1.89	3.58×10^{-4}	0.932	1.92	2.45×10^{-4}	0.982	1.49	0.972
Anthr/MgFe-LDHs _{3:1}	1.51	4.36×10^{-4}	0.872	1.53	3.71×10^{-4}	0.952	1.13	0.944
Anthr/MgFe-LDHs _{4:1}	1.66	3.91×10^{-4}	0.858	1.67	2.94×10^{-4}	0.921	1.16	0.952

注: q_e 为平衡吸附量; K_1 、 K_2 、 K_3 分别为准一级动力学、准二级动力学和颗粒内扩散模型的速率常数; R^2 为拟合系数。

2.7 Anthr/MgFe-LDHs 的再生吸附性能

对于 LDHs, 高价阴离子容易进入层间, 而低价阴离子容易被置换出来。水环境中 $\text{Sb}(\text{OH})_6^-$ 易将

Cl⁻替换出来,且LDHs主体层和Cl⁻有着很强的氢键作用,当Cl⁻被重新加入后,因层间的总静电荷发生改变,所以主体层的电荷密度和层间距离也发生了变化。当水环境中再次出现大量Cl⁻时,Sb(OH)₆⁻又可被置换出来。实验用NaCl作为解吸附剂,分析了Anthr/MgFe-LDHs的再生吸附性能,结果见图6。经过4次循环吸附后,Anthr/MgFe-LDHs对Sb(V)的去除率仍接近80%,且镁与铁不同比例的改性无烟煤对Sb(V)的去除率均大于无烟煤。

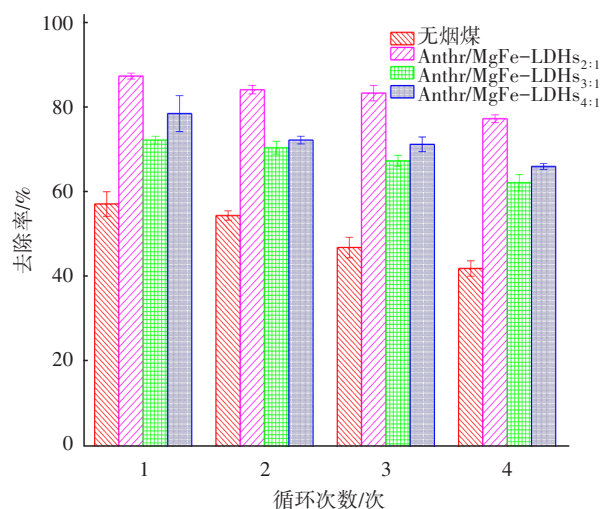


图6 Anthr/MgFe-LDHs和无烟煤再生吸附Sb(V)的性能

Fig.6 Adsorption performance of Sb(V) by regenerated Anthr/MgFe-LDHs and anthracite

3 结论

Anthr/MgFe-LDHs对水中Sb(V)的吸附性能最优,理论最大吸附量为6.77 mg/g;当pH值为4~6时,去除效果最好,吸附1 000 min左右达到吸附平衡;随着温度的升高,吸附速率增加;Langmuir模型和准二级动力学方程更适合描述Anthr/MgFe-LDHs对Sb(V)的吸附行为;经过4次循环使用后,Anthr/MgFe-LDHs对Sb(V)的去除率仍接近80%,可见该吸附剂具有良好的应用前景。

参考文献:

[1] WANG L, WAN C L, ZHANG Y, *et al.* Mechanism of enhanced Sb(V) removal from aqueous solution using chemically modified aerobic granules [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2015, 284: 43-49.

[2] SALARI K, HASHEMIAN S, BAEI M T. Sb(V) removal from copper electrorefining electrolyte: comparative study by different sorbents [J]. *Transactions*

of Nonferrous Metals Society of China, 2017, 27(2): 440-449.

- [3] 傅星宇, 赵丹, 董延茂, 等. 人工湿地对印染达标尾水中低浓度锑的再削减[J]. *工业水处理*, 2020, 40(1): 73-77.
- FU Xingyu, ZHAO Dan, DONG Yanmao, *et al.* Reduction of low-concentration antimony in the tail water of printing and dyeing by constructed wetlands [J]. *Industrial Water Treatment*, 2020, 40(1): 73-77 (in Chinese).
- [4] 李康, 郭劲松, 何靖, 等. 改性无烟煤去除水中内分泌干扰物的性能探究[J]. *安全与环境学报*, 2017, 17(2): 665-670.
- LI Kang, GUO Jinsong, HE Jing, *et al.* Adsorptive capacity of endocrine disrupt chemicals onto modified anthracites [J]. *Journal of Safety and Environment*, 2017, 17(2): 665-670 (in Chinese).
- [5] CHEN H, SUN Y, RUAN X X, *et al.* Advanced treatment of stabilized landfill leachate after biochemical process with hydrocalumite chloride (Ca/Al-Cl LDH) [J]. *Bioresource Technology*, 2016, 210: 131-137.
- [6] CHEN S X, HUANG Y F, HAN X X, *et al.* Simultaneous and efficient removal of Cr(VI) and methyl orange on LDHs decorated porous carbons [J]. *Chemical Engineering Journal*, 2018, 352: 306-315.
- [7] CHITRAKAR R, MAKITA Y, SONODA A, *et al.* Synthesis of a novel layered double hydroxides [MgAl₄(OH)₁₂]Cl₂·2.4H₂O and its anion-exchange properties [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2011, 185(2/3): 1435-1439.
- [8] BERNARDO M P, MOREIRA F K V, RIBEIRO C. Synthesis and characterization of eco-friendly Ca-Al-LDH loaded with phosphate for agricultural applications [J]. *Applied Clay Science*, 2017, 137: 143-150.
- [9] KANEKO S, OGAWA M. Effective concentration of dichromate anions using layered double hydroxides from acidic solutions [J]. *Applied Clay Science*, 2013, 75/76: 109-113.
- [10] CHUBAR N, GERDA V, MEGANTARI O, *et al.* Applications versus properties of Mg-Al layered double hydroxides provided by their syntheses methods: alkoxide and alkoxide-free sol-gel syntheses and hydrothermal precipitation [J]. *Chemical Engineering Journal*, 2013, 234: 284-299.
- [11] HUDCOVÁ B, ERBEN M, VÍTKOVÁ M, *et al.* Antimonate adsorption onto Mg-Fe layered double

- hydroxides in aqueous solutions at different pH values: coupling surface complexation modeling with solid-state analyses[J]. *Chemosphere*, 2019, 229: 236–246.
- [12] 张翔凌, 邓礼楚, 方晨佳, 等. 不同类型LDHs负载改性麦饭石对Cr(VI)吸附性能[J]. *环境科学*, 2019, 40(1): 300–309.
- ZHANG Xiangling, DENG Lichu, FANG Chenjia, *et al.* Adsorption of Cr(VI) in water by maifanite modified with different LDHs coatings [J]. *Environmental Science*, 2019, 40(1): 300–309 (in Chinese).
- [13] 李金花, 潘国祥, 沈辉. Mg₃Al-LDHs/SiO₂复合材料制备及其Cr(VI)吸附性能[J]. *材料导报*, 2015, 29(S1): 316–318.
- LI Jinhua, PAN Guoxiang, SHEN Hui. Preparation of Mg₃Al-LDHs/SiO₂ complex materials and properties for Cr(VI) adsorption [J]. *Materials Review*, 2015, 29(S1): 316–318 (in Chinese).
- [14] 周博秋, 李慧强, 廖维, 等. GO-LDH复合材料对水中铅离子的吸附性能[J]. *中国给水排水*, 2019, 35(17): 105–111.
- ZHOU Boqiu, LI Huiqiang, LIAO Wei, *et al.* Adsorption properties of GO-LDH composite materials lead ion in water[J]. *China Water & Wastewater*, 2019, 35(17): 105–111 (in Chinese).
- [15] HE M C, WANG X Q, WU F C, *et al.* Antimony pollution in China [J]. *Science of the Total Environment*, 2012, 421/422: 41–50.
- [16] LI P, CHEN P, LIU Z P, *et al.* Highly efficient elimination of uranium from wastewater with facilely synthesized Mg-Fe layered double hydroxides: optimum preparation conditions and adsorption kinetics [J]. *Annals of Nuclear Energy*, 2019, 140: 107140.
- [17] 王敦球, 张涛, 梁美娜, 等. 蔗渣炭/镁铝双金属氧化物的制备及其吸附As(V)的研究[J]. *环境污染与防治*, 2018, 40(8): 896–901.
- WANG Dunqiu, ZHANG Tao, LIANG Meina, *et al.* Preparation of bagasse charcoal/Mg-Al layered double oxide and its adsorption study of As(V) [J]. *Environmental Pollution & Control*, 2018, 40(8): 896–901 (in Chinese).
- [18] WANG J, WANG X X, TAN L Q, *et al.* Performances and mechanisms of Mg/Al and Ca/Al layered double hydroxides for graphene oxide removal from aqueous solution[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2016, 297: 106–115.
- [19] ZOU Y D, WANG X X, WU F, *et al.* Controllable synthesis of Ca-Mg-Al layered double hydroxides and calcined layered double oxides for the efficient removal of U(VI) from wastewater solutions [J]. *ACS Sustainable Chemistry & Engineering*, 2017, 5(1): 1173–1185.
- [20] XIE L X, ZHONG Y, XIANG R J, *et al.* Sono-assisted preparation of Fe(II)-Al(III) layered double hydroxides and their application for removing uranium(VI) [J]. *Chemical Engineering Journal*, 2017, 328: 574–584.
- [21] XIANG W, ZHANG G K, ZHANG Y L, *et al.* Synthesis and characterization of cotton-like Ca-Al-La composite as an adsorbent for fluoride removal [J]. *Chemical Engineering Journal*, 2014, 250: 423–430.
- [22] QI Z L, JOSHI T P, LIU R P, *et al.* Synthesis of Ce(III)-doped Fe₃O₄ magnetic particles for efficient removal of antimony from aqueous solution [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2017, 329: 193–204.
- [23] CARJA G, NAKAMURA R, AIDA T, *et al.* Textural properties of layered double hydroxides: effect of magnesium substitution by copper or iron [J]. *Microporous and Mesoporous Materials*, 2001, 47(2/3): 275–284.
- [24] SUN W L, JIANG B F, WANG F, *et al.* Effect of carbon nanotubes on Cd(II) adsorption by sediments [J]. *Chemical Engineering Journal*, 2015, 264: 645–653.
- [25] XI J H, HE M C, LIN C Y. Adsorption of antimony(V) on kaolinite as a function of pH, ionic strength and humic acid [J]. *Environmental Earth Sciences*, 2010, 60(4): 715–722.
- [26] LEUZ A K, MONCH H, JOHNSON C A. Sorption of Sb(III) and Sb(V) to goethite: influence on Sb(III) oxidation and mobilization [J]. *Environmental Science & Technology*, 2006, 40(23): 7277–7282.

作者简介: 刘阳(1995–), 男, 江苏徐州人, 硕士研究生, 研究方向为水污染控制与工程。

E-mail: 504741126@qq.com

收稿日期: 2020-11-28

修回日期: 2020-12-19

(编辑: 任莹莹)