

GO-LDH 复合材料对水中铅离子的吸附性能

周博秋, 李慧强, 廖维, 杨平
(四川大学 建筑与环境学院, 四川 成都 610207)

摘要: 在 Hummers 法制备氧化石墨烯(GO)的基础上,采用共沉淀法制备氧化石墨烯-镁铝双层氢氧化物(GO-LDH)复合材料,并通过改变原料中GO的使用量获得3种不同组成比例的GO-LDH材料。利用Langmuir和Freundlich模型对材料的等温吸附过程进行分析,结果表明其对铅离子的最大吸附量可达387.7 mg/g。同时,对吸附效率和接触时间进行了研究,当铅离子浓度为20 mg/L时,可在10 min左右达到吸附平衡,并且使用准一级和准二级动力学模型对吸附过程进行拟合。使用红外光谱和X射线衍射光谱对复合材料进行表征发现,其表面存在的大量含氧官能团是铅离子吸附的活性位点,而铅离子在被吸附后主要以 PbCO_3 的形式附着在GO-LDH材料表面上。

关键词: 铅离子; 氧化石墨烯; 镁铝双层氢氧化物; 吸附效率; 接触时间

中图分类号: TU992 **文献标识码:** A **文章编号:** 1000-4602(2019)17-0105-07

Adsorption Properties of GO-LDH Composite Materials to Lead Ion in Water

ZHOU Bo-qiu, LI Hui-qiang, LIAO Wei, YANG Ping

(College of Architecture & Environment, Sichuan University, Chengdu 610207, China)

Abstract: Based on preparation of graphene oxide (GO) by Hummers method, a graphene oxide-double layer magnesium & aluminum hydroxide (GO-LDH) composite materials were prepared by coprecipitation method. Three kinds of GO-LDH materials with different proportions of GO were obtained by changing the amount of GO used in the materials. Langmuir and Freundlich models were used to analyze the isothermal adsorption process of the material, and it was found that its maximum adsorption capacity to lead was 387.7 mg/g. Meanwhile, the adsorption efficiency and contract time were studied. The results showed that adsorption equilibrium could be achieved in about 10 minutes when the initial lead ion concentration was 20 mg/L. The adsorption process conformed to quasi-first order and quasi-second order kinetic models. The material was characterized by infrared and X-ray diffraction spectra. It was found that there were a large number of oxygen-containing functional groups on the surface of the materials which were the active sites for lead ion adsorption, and lead ion mainly attached on the surface of GO-LDH with the form of PbCO_3 after adsorption.

Key words: lead ion; graphene oxide; double layer magnesium & aluminum hydroxide; adsorption efficiency; contract time

基金项目: 四川省国际科技创新合作/港澳台科技创新合作项目(2019YFH0170)

通信作者: 李慧强 E-mail: lhq_scu@163.com

水体重金属离子污染一直是人们密切关注的对象,其中对 Pb(II) 在水中的去除尤为重视。目前,在对含铅废水进行处理的过程中,已经摸索出了许多方法,例如:混凝^[1]、吸附、过滤^[2]、植物富集^[3]等。由于吸附法的成本效益较高、用途广泛、操作简单,因此被认为是最具潜力的方法之一^[4]。近年来关于吸附剂开发的研究中,氧化石墨烯(GO)和镁铝双层氢氧化物(LDH)这两种新型纳米材料在众多吸附材料中脱颖而出。氧化石墨烯作为一种新型的碳基材料,拥有碳原子 sp^2 杂化所构成的片状蜂窝结构,具有极高的比表面积,并且机械强度和热稳定性高,是一种良好的基体材料,也易于和其他物质合成复合材料^[5]。已有研究指出,处理过的氧化石墨烯对于多种重金属离子有良好的吸附效果^[6-7]。镁铝双层氢氧化物也是一类重要的无机层状材料,这种吸附材料具有独特的层间结构,能够吸附水溶液中带正电荷的金属阳离子,是一种优秀的离子交换剂,并且相较于氧化石墨烯,其还具有成本低廉的优势^[8]。

因此,采用这两种材料合成的氧化石墨烯-镁铝双层氢氧化物(GO-LDH)吸附材料将是一种具有潜力的新型复合材料,该复合材料具有 GO 巨大比表面积的优势,同时也能充分发挥 LDH 的离子交换作用,使之兼具吸附能力强、强度高的特点^[9-11]。另外,两种材料的不同复合比例将显著影响其吸附性能。目前人们还不太了解这种复合材料的原料配比对吸附效果的影响,因此笔者对该种复合材料在不同组成比例下对铅离子的吸附性能和表面结构特征展开研究。

1 试验材料与方法

1.1 材料材料

试验试剂:硝酸铅、冰乙酸、乙酸钠、二甲酚橙、 $MgCl_2 \cdot 6H_2O$ 、 $AlCl_3 \cdot 9H_2O$ 、NaOH、 $KMnO_4$ 、 $NaNO_3$ 、 Na_2CO_3 均为分析纯,稀盐酸为常用的(1+9)稀盐酸,稀硝酸为(1+2)稀硝酸,所用的浓硫酸为 98% 的 H_2SO_4 。

铅离子储备液:准确称取 (1.5986 ± 0.0005) g 的硝酸铅,加水溶解后加入少量的稀硝酸,并定容至 1 L。

二甲酚橙(0.1%)溶液:准确称取 (0.2000 ± 0.0005) g 的二甲酚橙,加水溶解后加入 10 滴(1+9)稀盐酸,定容至 200 mL,储存于带活塞的锥形瓶

中,并避光放入冰箱中储存。此二甲酚橙溶液最多储存一个月,若超过一个月则需重新配制。

乙酸-乙酸钠缓冲溶液:称取 54.6 g 乙酸钠,溶解后加入 20 mL 冰乙酸,定容至 500 mL,转入棕色玻璃瓶中储存,此缓冲溶液的 pH 值为 6.0。

1.2 复合材料的制备

本试验中,氧化石墨烯(GO)采用 Hummers 法制取。而 GO-LDH 复合材料是采用共沉淀法合成的。具体步骤:先在 100 mL 去离子水中加入 0.5 g 氧化石墨烯粉末,经超声处理 1 h 后置于磁力搅拌器中持续搅拌。然后在 100 mL 去离子水中用 $MgCl_2 \cdot 6H_2O$ 和 $AlCl_3 \cdot 9H_2O$ 制备总金属离子浓度为 0.4 mol/L 的混合金属溶液,其中 Mg^{2+}/Al^{3+} 的物质的量之比为 3:1。另外,还需要制备 100 mL 碱性溶液(NaOH 浓度为 0.6 mol/L, Na_2CO_3 浓度为 0.2 mol/L)。在室温条件下搅拌混合金属溶液和碱性溶液,充分混合后滴加到之前制备的 GO 悬浮液中,操作过程中维持 pH 值在 10 ± 0.5 。之后将所得混合悬浮液在室温下搅拌 4 h,然后在 65 °C 水浴锅中加热 4 h。对悬浮液进行离心沉淀,所得沉淀物用去离子水彻底洗净直至洗液为中性,然后置于 65 °C 烘箱中,所获得的复合材料便为 GO-LDH(0.5)复合材料。改变加入的氧化石墨烯用量分别为 0.1 和 0.05 g,其他步骤与用量为 0.5 g 时的完全相同,得到 GO-LDH(0.1)和 GO-LDH(0.05)。

1.3 铅离子吸附试验

吸附等温线的测定:配制 200 mL 浓度分别为 20、50、100、200、350 和 500 mg/L 的铅离子溶液,使 pH 值为 5.2 左右。在水浴锅内将溶液加热至 25 °C,并用磁力搅拌子进行搅拌,然后向溶液中加入 0.1 g 的复合材料吸附剂。在温度为 25 °C 的条件下,以 300 r/min 的速度搅拌,持续 24 h。完成反应后,使用 0.45 μm 微孔过滤器过滤,采用 XO 分光光度法测定溶液中铅离子的浓度^[12]。

对铅离子的吸附效率和接触时间试验:由于大部分含铅废水的浓度一般在 10~150 mg/L 之间,因此本试验配制 200 mL 浓度分别为 20、50、100 mg/L 的铅离子溶液,向溶液中加入 0.1 g 的 GO-LDH,保持反应温度为 25 °C,在 pH 值为 5.2、转速为 300 r/min 的条件下搅拌,在第 1、5、10、20、30、45 和 60 分钟时取样,使用微孔过滤器过滤后测定溶液中铅离子的浓度。如果反应 60 min 后溶液中铅离子的

浓度仍然保持较高水平,则之后每间隔 0.5 h 取样 1 次,测定溶液中铅离子的浓度,直至铅离子浓度接近于平衡浓度。

1.4 材料的表征方法

采用 FTIR 光谱仪分析 GO-LDH 的红外光谱,采用粉末 X 射线衍射仪测定其结构。

2 结果与讨论

2.1 吸附等温线

图 1 为不同原料配比下 GO-LDH 对铅离子的吸附结果。可知,在 3 种不同比例构成的吸附剂中,GO-LDH(0.5)对铅离子的吸附量最高,当平衡浓度为 153 mg/L 时,对铅离子的吸附量可达 (393 ± 20) mg/g。而 GO-LDH(0.1)和 GO-LDH(0.05)的最高吸附量分别为 353 和 323 mg/g。值得注意的是,随着材料中所含 GO 比例的增加,其吸附量也随之增大,说明 GO 在复合材料中的比例和材料的吸附能力具有相关性。

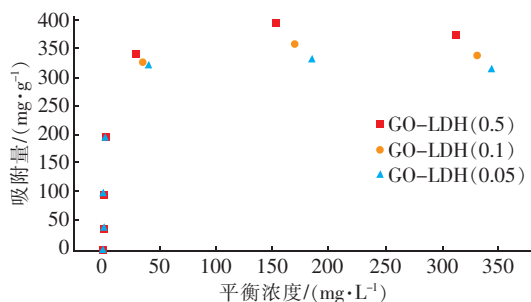


图 1 不同原料配比下 GO-LDH 对铅离子的吸附结果

Fig. 1 Adsorption result of lead ion by GO-LDH at different raw material ratios

利用 Langmuir 和 Freundlich 吸附等温线模型对该复合材料进行吸附效率分析,结果见表 1。

表 1 吸附等温线分析结果

Tab. 1 Adsorption isotherm analysis results

项 目	Langmuir 模型			Freundlich 模型		
	$q_{\max}/(\text{mg} \cdot \text{g}^{-1})$	b	R^2	K_F	n	R^2
GO-LDH (0.5)	387.7	0.317	0.946	111.37	4.234	0.781
GO-LDH (0.1)	356.1	0.309	0.945	122.25	5.037	0.738
GO-LDH (0.05)	333.1	0.303	0.947	117.97	5.256	0.707

从表 1 可以看出,采用 Langmuir 模型对 3 种材料的吸附等温线进行拟合后, R^2 接近 0.95,说明该

材料的吸附过程更符合 Langmuir 模型中表面单分子层吸附等特征,属于典型的化学吸附。另外,利用 Langmuir 模型推导出 GO-LDH(0.5)、GO-LDH(0.1)和 GO-LDH(0.05)对铅离子的理论最大吸附量分别为 387.7、356.1 和 333.1 mg/g,这与吸附试验的结果相吻合。

对比其他碳基铅离子吸附剂发现,GO-LDH 复合材料具有较大的优势,见表 2。可以看出,相对于某些传统的碳基吸附剂,如活性炭纤维、改性活性炭,GO-LDH 在常温和弱酸性环境下对铅离子的吸附量往往能超出这些材料两倍以上。MgAl-LDH 对铅离子的吸附量能够达到 224 mg/g,而 GO 单独作用时的吸附量为 328 mg/g,能够发现 GO-LDH 复合材料对铅离子的吸附比单独一种材料作用时更有优势,说明在 GO-LDH 复合材料中 GO 和 LDH 之间存在协同作用,从而使得吸附量上升。而这两种材料对铅离子的协同作用应当与氧化石墨烯表面丰富的含氧官能团以及离子交换作用有关,同时氧化石墨烯巨大的比表面积也能为铅离子提供足够多的附着位点。

表 2 不同吸附材料的吸附量

Tab. 2 Adsorption capacity of different adsorption materials

项 目	吸附量/ ($\text{mg} \cdot \text{g}^{-1}$)	试验条件	参考文献
GO-LDH(0.5)	393 ± 20	25 °C, pH 值为 5.2	—
活性炭纤维	75	20 °C, pH 值为 5.5	[13]
改性活性炭	141.8	25 °C, pH 值为 5.0	[14]
MgAl-LDH	224	25 °C, pH 值为 5.5	[15]
GO	328 ± 39	(25 ± 2) °C, pH 值为 6.8	[16]

2.2 吸附效率与接触时间

图 2 为接触时间和铅离子去除率的关系。

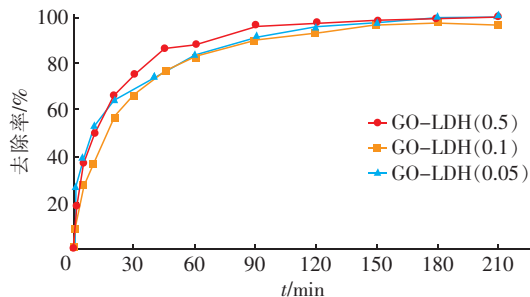


图 2 接触时间和铅离子去除率的关系

Fig. 2 Relationship between contract time and lead ion removal rate

从图2可以看出,0~60 min时,吸附量随着时间的增加而显著升高,60 min时GO-LDH(0.5)、GO-LDH(0.1)和GO-LDH(0.05)对铅离子的吸附量分别达到其平衡吸附量的88.05%、82.68%和83.08%。在60~120 min内吸附量增加的速度明显放缓,120 min时3种材料的吸附量均能达到平衡吸附量的95%左右,120 min后吸附量基本保持不变,在120~150 min内复合材料达到吸附平衡(认为吸附量达到最大吸附量的97%以上时即为吸附平衡)。3种复合材料中,GO-LDH(0.5)达到吸附平衡的速度最快,吸附量也更高,GO-LDH(0.1)达到平衡所需时间比GO-LDH(0.05)长。未达到吸附平衡时,相同接触时间下对铅离子的去除率由大到小依次为GO-LDH(0.5) > GO-LDH(0.05) > GO-LDH(0.1)。达到吸附平衡以后GO-LDH(0.5)、GO-LDH(0.05)和GO-LDH(0.1)对铅离

子的吸附量分别为199.3、194.3和195.7 mg/g。

表3为铅离子初始浓度对吸附效率的影响。可以看出,当水中的铅离子初始浓度为50 mg/L时,GO-LDH(0.5)达到最大吸附量的97%所需的接触时间为20 min,而另外两种复合材料的接触时间为45 min。当铅离子初始浓度为20 mg/L时,3种材料均在10~20 min内就能达到最大吸附量的97%以上,且水中铅离子的平衡浓度可控制在1 mg/L以下。因此,该复合材料在处理较低浓度的含铅离子废水时,可以达到很高的处理效率,但是对于铅离子浓度较高的废水则需要较长的反应时间。对比一些常用的吸附剂,如活性炭等材料,GO-LDH的吸附效率没有明显优势^[14],但是经过吸附处理后的铅离子平衡浓度会更低。同时在实际应用中也可以通过适当增加吸附剂投量来降低去除铅离子所需的时间。

表3 铅离子初始浓度对吸附效率的影响

Tab.3 Effect of initial lead ion concentration on adsorption efficiency

铅离子初始浓度/ (mg · L ⁻¹)	GO-LDH(0.5)		GO-LDH(0.1)		GO-LDH(0.05)	
	接触时间/ min	吸附量/ (mg · g ⁻¹)	接触时间/ min	吸附量/ (mg · g ⁻¹)	接触时间/ min	吸附量/ (mg · g ⁻¹)
100	120	194.7	180	190.5	150	190.0
50	20	96.5	45	96.4	45	95.4
20	10	38.4	20	37.8	15	37.7

注: 接触时间指达到最大吸附量的97%时的吸附时间。

采用准一级动力学方程和准二级动力学方程对吸附动力学过程进行分析,结果见表4。

表4 吸附动力学模型拟合结果

Tab.4 Adsorption kinetic model fitting results

项 目	准一级动力学模型			准二级动力学模型		
	$q_e/(\text{mg} \cdot \text{g}^{-1})$	k_1/min^{-1}	R^2	$q_e/(\text{mg} \cdot \text{g}^{-1})$	$k_2/(\text{g} \cdot \text{mg}^{-1} \cdot \text{L}^{-1})$	R^2
GO-LDH(0.5)	186.0	0.044	0.974	209.6	4.487×10^{-4}	0.996
GO-LDH(0.1)	148.4	0.020	0.975	207.4	2.849×10^{-4}	0.997
GO-LDH(0.05)	144.6	0.023	0.984	204.1	4.427×10^{-4}	0.968

从表4可以看出,准二级动力学模型拟合结果的相关性更好,并且对平衡吸附量的估计值也更加接近实测值。3种复合材料中,GO-LDH(0.5)的吸附速率最大。

2.3 表征结果

2.3.1 红外光谱分析

图3为不同原料配比下GO-LDH的红外光谱。可知,GO-LDH在3500 cm⁻¹附近具有强吸收峰,此吸收峰为表面—OH基团的伸缩振动吸收峰。1370 cm⁻¹处也出现了尖锐的C—OH特征吸收峰。

1640 cm⁻¹附近出现的峰为C=O与C=C吸收峰,表明GO-LDH表面带有含羰基或羧基官能团的结构。同时,GO-LDH(0.5)还在1460 cm⁻¹附近出现了CO₃²⁻吸收峰。此外,GO-LDH复合材料在660~680 cm⁻¹区间内也出现了十分显著的吸收峰,这个波数区间内的吸收峰是传统GO材料不曾具有的。而这段吸收峰是LDH中Al—O或Mg—O结构伸缩振动引起的特征吸收峰,证明了GO表面存在复合LDH后的金属—氧的活性官能团,进一步说明了复合材料的制备是成功的^[17]。

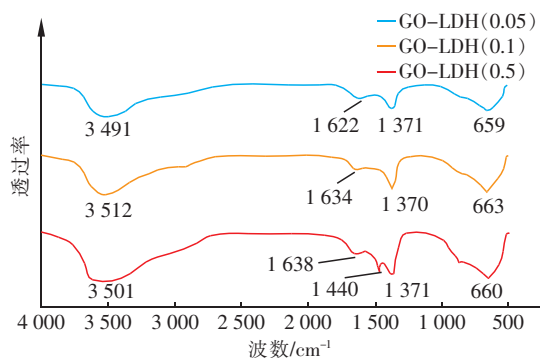


图 3 不同原料配比下 GO-LDH 的红外光谱

Fig. 3 Infrared spectra of GO-LDH at different raw material ratios

图 4 为 GO-LDH(0.5) 吸附饱和和铅离子前后的红外光谱。可以看出,吸附饱和后 3500 cm^{-1} 处的 —OH 吸收峰和 660 cm^{-1} 处的 M—O 吸收峰的峰高和峰面积都大幅度下降, 1640 cm^{-1} 处的羰基峰强度也有较大幅度的下降,且吸收峰从 1638 cm^{-1} 下移至 1595 cm^{-1} 。这说明吸附饱和 Pb^{2+} 后,该复合材料表面的含氧官能团数量急剧下降,其表面羟基、羰基以及金属—氧结构是提供铅离子结合位点的活性官能团,表面上活性官能团的数量决定了 GO-LDH 的吸附性能。同时,羰基峰的红移也可以由吸附后 GO-LDH 表面含氧活性官能团数量减少导致电子分布改变进行解释。

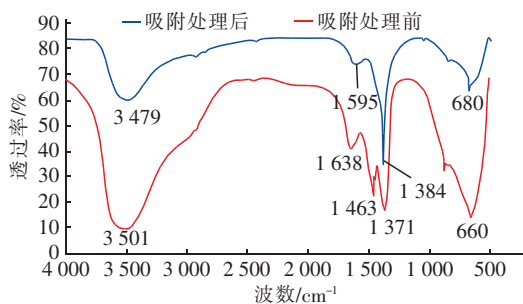


图 4 GO-LDH(0.5) 吸附饱和和铅离子前后的红外光谱

Fig. 4 Infrared spectra of GO-LDH(0.5) before and after saturation adsorption

进一步分析图 3 中 3 种复合材料的含氧活性官能团吸收峰发现,在对铅离子吸附有密切联系的羟基、羰基和镁/铝—氧 3 种官能团中,峰强度从强到弱的顺序均为 $\text{GO-LDH}(0.5) > \text{GO-LDH}(0.1) > \text{GO-LDH}(0.05)$,据此推断其最大吸附量也应该是同样的顺序,这与 2.1 节中最大吸附量的理论计算和试验结果相符合。综上所述,在一定范围内适当提高 GO-LDH 中 GO 的比例,可以显著增加表面含

氧官能团,从而提升材料的吸附性能。

2.3.2 X 射线衍射光谱分析

图 5 为不同原料配比下 GO-LDH 的 XRD 图谱。可知,3 种复合材料的出峰位置基本一致。其中在 2θ 为 11.3° 、 22.8° 、 34.4° 、 38.9° 、 45.8° 、 60.4° 和 61.8° 处出现的峰,基本对应于 Mg/Al-LDH 的 (003)、(006)、(012)、(015)、(018)、(110) 和 (113) 晶面的特征峰^[8]。同时认为在 11.3° 处出现的强峰应当有氧化石墨烯(001)面的特征峰成分,红外光谱结果也可以通过其表面官能团的特性来证明^[18]。

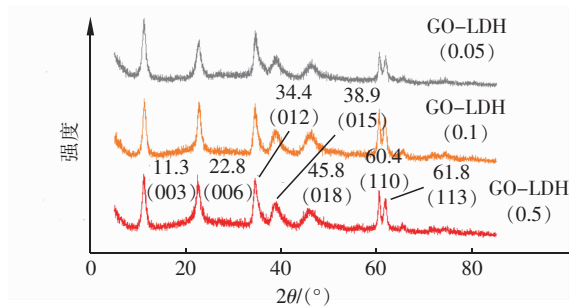


图 5 不同原料配比下 GO-LDH 的 XRD 图谱

Fig. 5 XRD patterns of GO-LDH at different raw material ratios

图 6 为 GO-LDH(0.5) 吸附铅离子后的 XRD 图谱。

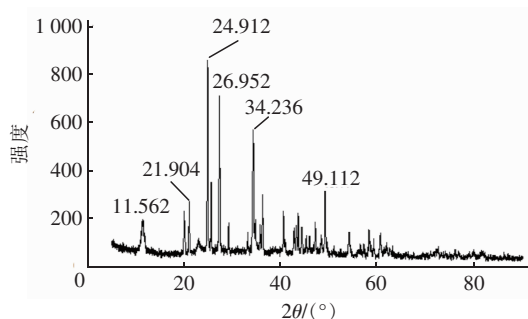


图 6 GO-LDH(0.5) 吸附铅离子后的 XRD 图谱

Fig. 6 XRD pattern of GO-LDH(0.5) after adsorption of lead ion

从图 6 可以看出,在 2θ 为 11.562° 处出现单独的宽峰,此为 GO 的特征峰^[12]。在 2θ 分别为 20.068° 、 24.912° 、 25.808° 、 36.242° 和 49.112° 附近尖锐的强峰表明该复合材料表面具有 PbCO_3 晶体结构(jade 6.0),这是铅离子经过吸附后以 PbCO_3 在 GO 表面结构中镶嵌分布的结果。上述结果可以解释在红外光谱中观察到的经过吸附后复合材料表面含氧官能团数量急剧下降且 CO_3^{2-} 完全消失的现

象,即 Pb^{2+} 通过与表面含氧官能团位点的结合,生成稳定的、以 PbCO_3 为主结构的化合物从而被吸附在 GO 的片层状表面上。同时 2θ 为 34.236° 处以及其他一些较弱的峰则表明,其表面结构中所吸附的铅中还有少部分以 $\text{Pb}_3(\text{CO}_3)_2(\text{OH})_2$ 和 $\text{Pb}_2\text{OCO}_3 \cdot \text{H}_2\text{O}$ 的形式存在。

根据 XRD 图谱和红外光谱结果,可以对 GO-LDH 吸附铅离子的机理进行推测。GO-LDH 对铅离子的吸附可以分为两个过程:首先是络合阶段,GO-LDH 复合材料中 LDH 层结构中层间阴离子造成的负电层吸引 Pb^{2+} 靠近,与 GO-LDH 表面的大量羟基和羧基进行反应,通过表面络合作用将 Pb^{2+} 固着在 GO-LDH 表面,随着反应的进行,LDH 的结构逐渐溶解,释放出层间包括 OH^- 和 CO_3^{2-} 在内的阴离子,继续进行第 2 阶段的表面沉淀反应,从而生成稳定的 $\text{Pb}(\text{OH})_2$ 和 PbCO_3 。试验结果显示,铅离子最终更倾向于生成 PbCO_3 ,这可能是由于 PbCO_3 在水中的溶度积更小。由于 LDH 层状结构逐渐被破坏,这些沉淀物形成后便进入 GO 骨架的表面空缺位点,呈现出镶嵌分布的特点。总而言之,GO-LDH 对铅离子的去除主要依靠基团的络合作用和表面沉淀反应来完成,而是否有大规模的阳离子交换作用的参与还需要进一步研究。

3 结论

① 作为碳基吸附剂,GO-LDH 对水中铅离子表现出良好的吸附性能。在室温 (25°C)、弱酸性 (pH 值为 5.2) 条件下,GO-LDH(0.5)、GO-LDH(0.1) 和 GO-LDH(0.05) 对铅离子的最大吸附量均可达到 300 mg/g 以上,其中 GO-LDH(0.5) 的最大吸附量可达 387.7 mg/g 。3 种复合材料的吸附等温过程能够很好地符合 Langmuir 模型。

② 在吸附速率方面,当铅离子初始浓度为 20 mg/L 时,GO-LDH(0.5) 仅需 10 min 便可达到吸附平衡,且平衡浓度可以控制在 1 mg/L 以下。当铅离子初始浓度上升至 100 mg/L 时,达到吸附平衡所需的接触时间超过 2 h 。吸附动力学分析结果表明,GO-LDH(0.5) 对铅离子的吸附速率明显优于 GO-LDH(0.1) 和 GO-LDH(0.05)。

③ GO-LDH 表面含有大量的羟基、羧基和金属—氧的基团结构,且这些含氧官能团是吸附铅的活性位点。这些官能团对铅离子的吸附主要通过表面络合作用和表面沉淀作用完成,材料表面的含氧

官能团越多则其吸附量越大。同时,铅离子经过吸附后主要以较为稳定的 PbCO_3 形式存在于 GO 的层状表面上。

参考文献:

- [1] 姚颖吉,刘树丽,刘伟,等. 微生物—化学絮凝剂对实际矿山废水中铅的处理[J]. 水处理技术,2017,43(10):99-102,109.
Yao Yingji, Liu Shuli, Liu Wei, et al. Lead treatment in practical mine wastewater by microbial-chemical flocculant[J]. Technology of Water Treatment, 2017, 43(10):99-102,109(in Chinese).
- [2] 李富华,吕文英,刘国光,等. 电絮凝/膜过滤技术处理含铅废水的研究[J]. 电镀与环保,2015,35(2):47-49.
Li Fuhua, Lü Wenying, Liu Guoguang, et al. Study on treatment of wastewater containing lead by electrocoagulation/membrane filtration technology[J]. Electroplating & Pollution Control, 2015, 35(2):47-49(in Chinese).
- [3] Wen T, Wu X, Tan X, et al. One-pot synthesis of water-swallowable Mg-Al layered double hydroxides and graphene oxide nanocomposites for efficient removal of As(V) from aqueous solutions[J]. ACS Appl Mater Interfaces, 2013, 5(8):3304-3311.
- [4] 张巍. 膨润土在水污染治理中吸附无机污染物的应用进展[J]. 工业水处理,2018,38(11):10-16.
Zhang Wei. Progress in the application of bentonite to the adsorption for inorganic pollutants in water pollution control[J]. Industrial Water Treatment, 2018, 38(11):10-16(in Chinese).
- [5] Yang Z, Ji S S, Gao W, et al. Magnetic nanomaterial derived from graphene oxide/layered double hydroxide hybrid for efficient removal of methyl orange from aqueous solution[J]. Journal of Colloid and Interface Science, 2013, 408:25-32.
- [6] Fang Q, Chen B. Self-assembly of graphene oxide aerogels by layered double hydroxides cross-linking and their application in water purification[J]. Journal of Materials Chemistry, 2014, 2(23):8941-8951.
- [7] 赵阳,赵玉真,张永明,等. 功能化氧化石墨烯/纤维素共混复合材料对 Pb^{2+} 吸附性能的研究[J]. 纤维素科学与技术,2018,26(3):39-44.
Zhao Yang, Zhao Yuzhen, Zhang Yongming, et al. Adsorption of functionalized graphene oxide/cellulose hybrid composite for Pb^{2+} [J]. Journal of Cellulose

- Science and Technology, 2018, 26 (3): 39 - 44 (in Chinese).
- [8] Wu X L, Wang L, Chen C H, *et al.* Water-dispersible magnetite-graphene-LDH composites for efficient arsenate removal [J]. Journal of Materials Chemistry, 2011, 21 (43): 17353 - 17359.
- [9] Varadwaj G B B, Oyetade O A, Rana S, *et al.* Facile synthesis of three-dimensional Mg-Al layered double hydroxide/partially reduced graphene oxide nanocomposites for the effective removal of Pb^{2+} from aqueous solution [J]. ACS Appl Mater Interfaces, 2017, 9 (20): 17290 - 17305.
- [10] 曹明莉, 张会霞, 张聪, 等. 石墨烯及其复合材料在重金属离子吸附方面的应用 [J]. 功能材料, 2016, 47 (8): 8001 - 8007.
- Cao Mingli, Zhang Huixia, Zhang Cong, *et al.* Graphene-containing composite materials for heavy metal ions adsorption [J]. Journal of Functional Materials, 2016, 47 (8): 8001 - 8007 (in Chinese).
- [11] 林雅洁. 石墨烯-层状双氢氧化物纳米复合材料在环境修复中的应用综述 [J]. 环境与可持续发展, 2017, 42 (3): 95 - 99.
- Lin Yajie. Graphene/layered double hydroxides nanocomposites: A review of recent progress in environmental remediation [J]. Environment and Sustainable Development, 2017, 42 (3): 95 - 99 (in Chinese).
- [12] 邹南, 喻珍林, 陈龙, 等. $Pb(II)$ -XO 分光光度法测定水溶液中的铅 [J]. 广东化工, 2016, 43 (13): 252 - 253, 274.
- Zou Nan, Yu Zhenlin, Chen Long, *et al.* Determination of Pb in aqueous solution by $Pb(II)$ -XO spectrophotometry [J]. Guangdong Chemical Industry, 2016, 43 (13): 252 - 253, 274 (in Chinese).
- [13] 肖乐勤, 陈春, 周伟良, 等. 活性炭纤维的氧化改性及其对铅离子吸附研究 [J]. 水处理技术, 2011, 37 (3): 37 - 40.
- Xiao Leqin, Chen Chun, Zhou Weiliang, *et al.* Adsorption of Pb^{2+} by modified activated carbon fiber (ACF) with oxidation [J]. Technology of Water Treatment, 2011, 37 (3): 37 - 40 (in Chinese).
- [14] 郑梅琴, 彭军, 林瑞余, 等. 紫苏基活性炭对铅镉二元离子的吸附研究 [J/OL]. 江西农业大学学报, 2019 - 03 - 20 [2019 - 05 - 07]. <http://kns.cnki.net/kcms/detail/36.1028.S.20190320.1505.058.html>.
- Zheng Meiqin, Peng Jun, Lin Ruiyu, *et al.* Adsorption of Pb^{2+} and Cd^{2+} from contaminated water by activated carbon from *Perilla frutescens* [J/OL]. Acta Agriculturae Universitatis Jiangxiensis, 2019 - 03 - 20 [2019 - 05 - 07]. <http://kns.cnki.net/kcms/detail/36.1028.S.20190320.1505.058.html> (in Chinese).
- [15] 张辉, 陆嘉伟, 余剑清, 等. 镁铝水滑石的制备及其对铅离子的吸附性能 [J]. 广州化工, 2017, 45 (8): 69 - 72.
- Zhang Hui, Lu Jiawei, Yu Jianqing, *et al.* Preparation of Mg-Al hydrotalcite and its adsorption of lead ions in wastewater [J]. Guangzhou Chemical Industry, 2017, 45 (8): 69 - 72 (in Chinese).
- [16] Madadrang C J, Kim H Y, Gao G, *et al.* Adsorption behavior of EDTA-graphene oxide for $Pb(II)$ removal [J]. ACS Appl Mater Interfaces, 2012, 4 (3): 1186 - 1193.
- [17] 闫洪志. 磁性氧化石墨烯的制备及对水中铅离子吸附性能的研究 [D]. 哈尔滨: 东北林业大学, 2017.
- Yan Hongzhi. Synthesis of Magnetic Graphene Oxide and Study on Absorb Ability Pb^{2+} of the Water [D]. Harbin: Northeast Forestry University, 2017 (in Chinese).
- [18] 吴文刚. 氧化石墨烯和石墨烯基复合材料的制备与性能研究 [D]. 广州: 华南理工大学, 2018.
- Wu Wengang. Research on Preparation and Performance of Graphene Oxide-based and Graphene-based Composite Materials [D]. Guangzhou: South China University of Technology, 2018 (in Chinese).



作者简介: 周博秋 (1998 -), 男, 重庆人, 本科在读, 主要研究方向为水环境治理。

E-mail: 904181868@qq.com

收稿日期: 2019 - 05 - 18