

# 焙烧态 MCNOs/LDH 复合材料的 制备及其对水体 F<sup>-</sup> 去除的研究

郭丽君, 梁颖, 张艳荣, 包璐璐, 张卫珂\*

(太原理工大学环境科学与工程学院, 山西 晋中 030600)

**摘要:**采用水热法制备磁性纳米洋葱碳/层状双金属氢氧化物(MCNOs/LDH)复合材料,高温煅烧制备了焙烧态 MCNOs/LDH 复合材料(MCNOs/CLDH),并通过正交试验确定最佳煅烧工艺参数。利用 XRD、FT-IR、SEM、N<sub>2</sub> 吸附-脱附(BET)和 VSM 等对其结构形貌进行表征,并通过静态吸附实验考察 MCNOs/CLDH 对 F<sup>-</sup> 的吸附性能。结果表明,在焙烧温度为 550℃、焙烧时间为 2 h 的最佳条件下制备的 MCNOs/CLDH 对 F<sup>-</sup> 的吸附容量为 28.95 mg/g,去除效率为 57.9%。此外,结合 MCNOs/CLDH 吸附 F<sup>-</sup> 后的 XRD 分析可知,吸附机理包括表面吸附、离子交换和混合金属氧化物的再水化以及氟离子向层间区域的嵌入,从而重建原始的 LDH 结构。

**关键词:**MCNOs/CLDH;记忆效应;F<sup>-</sup>;吸附;磁分离;复合材料;再生

中图分类号:X522

文献标志码:A

文章编号:0253-4320(2020)12-0141-06

DOI:10.16606/j.cnki.issn 0253-4320.2020.12.029

## Preparation of calcined MCNOs/LDH composites and study on their performance in removing F<sup>-</sup> from water

GUO Li-jun, LIANG Ying, ZHANG Yan-rong, BAO Lu-yu, ZHANG Wei-ke\*

(College of Environmental Science and Engineering, Taiyuan University of Technology, Jinzhong 030600, China)

**Abstract:** Magnetic carbon nano onions/layered double hydroxides (MCNOs/LDH) composites are synthesized via hydrothermal process, and calcinated at high temperature to prepare calcinated MCNOs/LDH (MCNOs/CLDH). The optimal calcination process parameters are determined through orthogonal experiments. The as-synthesized composites are characterized by SEM, XRD, FT-IR, N<sub>2</sub> adsorption-desorption isotherms and VSM. Adsorption performance of MCNOs/CLDH to F<sup>-</sup> is investigated by static adsorption experiments. The results suggest that MCNOs/CLDH composites prepared at the optimal conditions such as a calcination temperature of 550℃ and a calcination time of 2 h exhibit an adsorption capacity of 28.95 mg·g<sup>-1</sup> to F<sup>-</sup> and a removal rate of 57.9% for F<sup>-</sup>. What's more, analysis results demonstrate that the adsorption mechanism involves in surface adsorption, ion exchange interaction and original LDH structure reconstruction by rehydration of mixed metal oxides and concomitant intercalation of fluoride ions into the interlayer region.

**Key words:** MCNOs/CLDH; memory effect; F<sup>-</sup>; adsorption; magnetic separation; composites; regeneration

氟(F)是生物所必需的微量元素,摄取适量的氟有助于人类牙齿和骨骼的健康<sup>[1]</sup>。由于高浓度的氟化物会导致氟斑牙、骨质疏松、生长发育不良等氟中毒症状<sup>[2]</sup>,世界卫生组织(WHO)将饮用水中氟化物的最大允许限值设定为 1.5 mg/L<sup>[3]</sup>。目前,发达国家与发展中国家皆存在氟离子污染<sup>[4]</sup>,且中国、印度等发展中国家的污染现状及影响更为明显<sup>[5]</sup>。因此,开展高含氟废水的研究尤为重要。

当前,用于水中除氟的方法有吸附、沉淀、膜技术以及离子交换法等<sup>[6-9]</sup>。其中,吸附法因操作简便、选择性高和成本效益低等优点而被广泛应用<sup>[10]</sup>。层状双金属氢氧化物(Layered Double-

Hydroxide, LDH)具有可交换的层间阴离子、可修复的结构和层板组成的可调整性,作为一种高效除氟材料广受关注。Hsu 等<sup>[11]</sup>成功制备了系列层状双氢氧化物(Mg<sub>x</sub>Al-LDHs)催化剂,Mg/Al 的摩尔比为 5 的 Mg<sub>5</sub>Al-LDHs 催化剂对生物柴油和碳酸甘油酯的去除率分别为 87.5%和 93.4%。LDH 用于废水处理时,主要基于层间阴离子的可交换性<sup>[12]</sup>,即水溶液中的阴离子可将存在于层间的阴离子置换出来。因此,LDH 在一定程度上虽能去除废水中的阴离子,但同时也使废水中引入了新的阴离子,且吸附容量很快达到饱和。而焙烧态的 LDH(CLDH)层状结构坍塌失去层间阴离子和水,若将其置于含有阴

收稿日期:2020-02-02;修回日期:2020-10-10

基金项目:山西省重点研发计划(社会发展领域)(201803D31049)

作者简介:郭丽君(1992-),女,硕士研究生,研究方向为纳米材料在水处理中的应用,1457940185@qq.com;张卫珂(1981-),男,博士,副教授,研究方向为纳米材料,通讯联系人,zhangweike@tyut.edu.cn。

离子的废水中,溶液中的阴离子插入到层间而恢复原有的层状结构,即“记忆效应”<sup>[13]</sup>。同时,CLDH 具有较大的比表面积以及丰富的孔隙结构,近年来被越来越多地运用到水处理中<sup>[14-15]</sup>。Mourid 等<sup>[16]</sup>研究了煅烧的层状双氢氧化物在最佳条件下对 SMX 的吸附容量达到 4 314 mg/g,SMX/CLDH 的质量比为 1.6 时,去除率达到 93%。但因其粒径小且呈粉末状所以很难从溶液中分离再利用。磁性纳米洋葱碳(Magnetic Carbon Nano Onions,MCNOs)作为一种新型纳米材料,其比表面积大、导电率高、分散性好。Zhang 等<sup>[17]</sup>采用水热法制备可磁性回收的 Bi<sub>2</sub>WO<sub>6</sub>/MCNO 材料,经光催化降解后,粉末通过外部磁场可快速与反应体系分离。

基于磁性可回收、“记忆效应”吸附,笔者采用水热法制备磁性 MCNOs/LDH 复合材料,并通过正交试验确定了焙烧态 MCNOs/CLDH 最佳焙烧温度和时间,分析了所制备复合材料对除氟效果的影响,并探讨了 MCNOs/CLDH 的吸附机理和再生性能。

## 1 材料与方法

### 1.1 实验试剂

Mg(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>·6H<sub>2</sub>O、Al(NO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>·9H<sub>2</sub>O、NaOH、Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>、NaF、C<sub>19</sub>H<sub>15</sub>NO<sub>8</sub>、CH<sub>3</sub>COOH、CH<sub>3</sub>COONa·3H<sub>2</sub>O 和 La(NO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>·6H<sub>2</sub>O,均为 AR,天津市大茂化学试剂厂生产;MCNOs,山西中兴环能科技股份有限公司生产。

### 1.2 材料制备与表征

采用水热法合成磁性复合材料 MCNOs/LDH。分别配制 0.20 mol/L Mg(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>·6H<sub>2</sub>O 和 0.10 mol/L Al(NO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>·9H<sub>2</sub>O 溶液并混合得到溶液 A;配制 1.62 mol/L NaOH 和 0.50 mol/L Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> 溶液混合得到溶液 B。将 7.8 g/L MCNOs 溶液置于 80℃ 的恒温磁力搅拌器中搅拌,逐滴加入 A 溶液和 B 溶液(保持溶液 pH 为 9~10)。将所得溶液置于反应釜中,100℃ 水热反应 4 h。离心所得固体产物洗至中性,80℃ 干燥 12 h,研磨即得 MCNOs/LDH。将 MCNOs/LDH 焙烧数小时,制得 MCNOs/CLDH。

对所得 MCNOs/CLDH 进行 XRD(DX-2700,浩元,中国)、FT-IR(Nicolet iS10,Thermo Scientific,美国)、SEM(JSM-7100F,JEOL,日本)、BET(Quadrachrome SI,Quantachrome,美国)、VSM(7404,Lake Shore,美国)等分析与表征。

### 1.3 实验方法

在烧杯中加入不同质量浓度的 F<sup>-</sup> 溶液(10、20、50 mg/L 和 100 mg/L)及一定质量的 MCNOs/CLDH(固液比为 0.2 g/L),放置在超声波细胞粉碎机(SM-900A 型,南京舜玛仪器设备有限公司生产)中 25℃ 下反应 60 min 后过滤,利用紫外-可见分光光度计(UV-1800PC 型,上海美谱达仪器有限公司生产)测量溶液的吸光度,以确定溶液中 F<sup>-</sup> 浓度,并计算 F<sup>-</sup> 去除率 AE(%):

$$AE(\%) = [(C_0 - C_e)/C_0] \times 100\%$$

其中:C<sub>0</sub> 为 F<sup>-</sup> 溶液初始质量浓度,mg/L;C<sub>e</sub> 为吸附平衡后溶液质量浓度,mg/L。

### 1.4 正交实验设计

以焙烧温度 *T*、焙烧时间 *H* 和 F<sup>-</sup> 溶液初始质量浓度为三因素,以 F<sup>-</sup> 去除率为评价指标,进行三因素四水平 L<sub>16</sub>(4<sup>3</sup>) 正交实验,结果如表 1 所示。

表 1 因素与水平

水平	焙烧温度(A)/ ℃	焙烧时间(B)/ h	F <sup>-</sup> 质量浓度(C)/ (mg·L <sup>-1</sup> )
1	400	2	10
2	450	3	20
3	500	4	50
4	550	5	100

## 2 结果与讨论

### 2.1 正交实验结果

正交实验结果及极差分析如表 2 所示。从表 2 中可知,各因素对 MCNOs/CLDH 吸附 F<sup>-</sup> 影响大小次序为:F<sup>-</sup> 溶液初始质量浓度>焙烧时间>焙烧温度。MCNOs/CLDH 去除水中 F<sup>-</sup> 的最佳实验条件为:焙烧温度为 550℃、焙烧时间为 5 h,F<sup>-</sup> 溶液初始质量浓度为 10 mg/L。

表 2 正交实验结果

试验号	A	B	C	AE/%
1	400	2	10	23.26
2	400	3	20	14.95
3	400	4	50	7.59
4	400	5	100	4.98
5	450	2	20	12.46
6	450	3	10	29.96
7	450	4	100	3.65

续表

试验号	A	B	C	AE/%
8	450	5	50	10.44
9	500	2	50	6.64
10	500	3	100	5.65
11	500	4	10	41.60
12	500	5	20	20.76
13	550	2	100	6.64
14	550	3	50	10.96
15	550	4	20	19.10
16	550	5	10	57.90
$k_1$	12.70	12.25	38.18	
$k_2$	14.13	15.38	16.82	
$k_3$	18.66	17.99	8.91	
$k_4$	23.65	23.52	5.23	
R	10.95	11.27	32.95	

## 2.2 材料的表征

### 2.2.1 SEM 分析

MCNOs/LDH、MCNOs/CLDH 吸附剂的 SEM 图如图 1 所示。由图 1(a) 中可以看出, MCNOs/LDH 吸附剂结构规整, 呈花样层状结构<sup>[18]</sup>, 这是其比表面积较大的重要原因。由图 1(b) 中可以看出, 经高温煅烧后的 MCNOs/LDH 样品的层状结构消失, 表明较高的煅烧温度使层结构塌陷<sup>[19]</sup>。

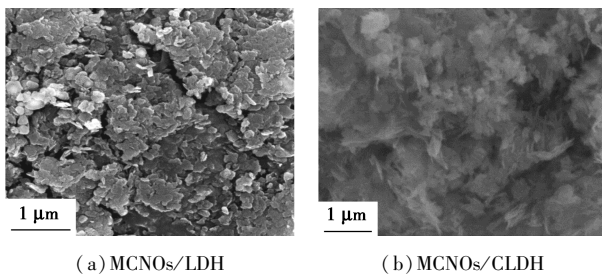
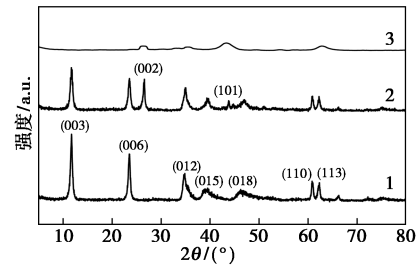


图 1 MCNOs/LDH 和 MCNOs/CLDH 的 SEM 图

### 2.2.2 XRD 分析

MCNOs/LDH 和 MCNOs/CLDH 的 XRD 图谱如图 2 所示。从图 2 中可知, LDH 在  $2\theta$  为  $11.80$  ( $003$ )、 $23.65$  ( $006$ )、 $34.90$  ( $012$ )、 $39.33$  ( $015$ )、 $46.58$  ( $018$ )、 $60.95$  ( $110$ )、 $62.27^\circ$  ( $113$ ) 处出现水滑石的特征衍射峰, 表明存在水滑石的典型层状结构 (JCPDS 89—460)<sup>[18,20]</sup>, 且峰形尖锐、高度对称, 说明合成的 LDH 具有较高的结晶度和较完整的晶体结构。将 MCNOs 和 LDH 复合,  $2\theta$  为  $26.46^\circ$  ( $002$ ) 和  $43.93^\circ$  ( $101$ ) 处的衍射峰对应于 MCNOs 的特征

衍射峰<sup>[21]</sup>, 表明成功制备了 MCNOs/LDH 复合材料。而经高温煅烧后的 MCNOs/LDH, 其特征衍射峰消失, 晶相被完全破坏, 出现以金属氧化物形式存在的 MgO ( $43.32$ 、 $62.57^\circ$ , JCPDS 45—0946) 的特征峰, 这是由于在煅烧过程中发生层间阴离子和水分子的损失而导致结构崩塌, LDH 被分解为 Mg 和 Al 的混合氧化物<sup>[22]</sup>。

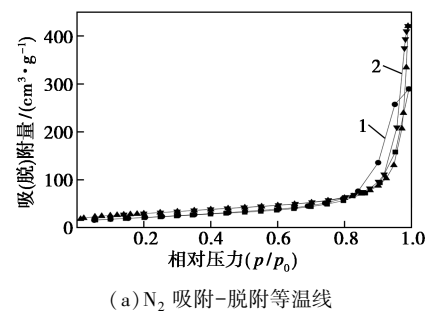


1—LDH; 2—MCNOs/LDH; 3—MCNOs/CLDH

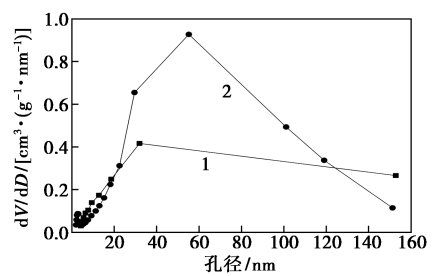
图 2 MCNOs/LDH 和 MCNOs/CLDH 的 XRD 图谱

### 2.2.3 BET 分析

MCNOs/LDH 和 MCNOs/CLDH 的 N<sub>2</sub> 吸附-脱附等温线和孔径分布如图 3 所示。由图 3(a) 中可以看出, MCNOs/LDH 和 MCNOs/CLDH 的比表面积分别为  $77.22 \text{ m}^2/\text{g}$  和  $104.95 \text{ m}^2/\text{g}$ , 吸附等温线属于 IV 型, 在较高相对压力 ( $0.8 \sim 1.0$ ) 下显示出高吸附性, 表明样品中存在中孔和大孔, 回滞环的形状为



(a) N<sub>2</sub> 吸附-脱附等温线



(b) 孔径分布图

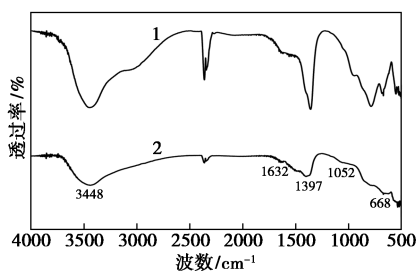
1—MCNOs/LDH; 2—CLDH/MCNOs

图 3 MCNOs/LDH 和 CLDH/MCNOs 的 N<sub>2</sub> 吸附-脱附等温线和孔径分布图

H3 型,这与片层结构堆积形成的狭缝状孔有关<sup>[23]</sup>。MCNOs/LDH 经高温煅烧,结晶水、CO<sub>3</sub><sup>2-</sup> 以气体形式逸出,片层状结构崩塌,产生丰富的孔隙结构,导致 MCNOs/CLDH 的比表面积增加。由图 3(b)中可以看出,MCNOs/CLDH 的孔径分布曲线呈 2~150 nm 的宽孔径分布,在 2~3 nm 处有 1 个小峰,在 55 nm 处有 1 个宽峰,该结果进一步证明了中孔和大孔的存在。

### 2.2.4 FT-IR 分析

MCNOs/LDH 和 MCNOs/CLDH 的 FT-IR 光谱图如图 4 所示。由图 4 中可以看出,3 448 cm<sup>-1</sup> 处的特征峰为中间层和表面水分子中—OH 拉伸振动<sup>[24]</sup>。1 397 cm<sup>-1</sup> 附近的峰与 CO<sub>3</sub><sup>2-</sup> 阴离子有关,因为 MCNOs/LDH 在空气中煅烧时会吸收 CO<sub>2</sub>。由于复合材料中含有 MCNOs,所以在 1 632 cm<sup>-1</sup> 和 1 052 cm<sup>-1</sup> 处分别检测到 C=O 的伸缩振动和 C—O 的拉伸振动峰<sup>[1,19]</sup>。而 668 cm<sup>-1</sup> 处的峰为 M—O 晶格振动(M 为 Mg 或 Al)<sup>[25]</sup>。



1—MCNOs/LDH; 2—MCNOs/CLDH

图 4 MCNOs/LDH 和 MCNOs/CLDH 的 FT-IR 谱图

### 2.2.5 MCNOs/CLDH 的磁滞回线

MCNOs/CLDH 的磁滞回线和磁分离效果图如图 5 所示。由图 5 中可以看出,室温下,MCNOs/CLDH 显示出狭窄的磁滞回线,这是软磁体的典型特征<sup>[26]</sup>。从 M-H 曲线可知,其饱和磁化强度(M<sub>s</sub>)为 1.13 emu/g,由“趋近原则”可得<sup>[27]</sup>,剩余磁化强

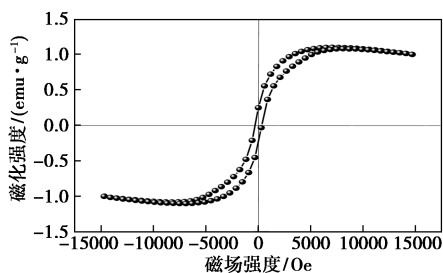


图 5 MCNOs/CLDH 的磁滞回线图

度(M<sub>r</sub>)和矫顽力(H<sub>c</sub>)分别为 0.248 emu/g 和 301.191 Oe,则 M<sub>r</sub>/M<sub>s</sub> = 0.219 (< 0.3),显示出超顺磁特性<sup>[17]</sup>。因此,MCNOs/CLDH 在外部磁场下显示出快速的磁分离,实现从水溶液中快速分离的效果。

### 2.3 MCNOs/CLDH 去除 F<sup>-</sup> 的效果

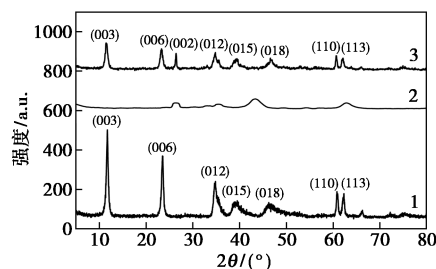
在吸附剂投加质量浓度为 0.2 g/L、F<sup>-</sup> 溶液质量浓度为 10 mg/L、吸附时间为 60 min 的条件下,考察了最佳制备条件制得的 MCNOs/CLDH 与未焙烧的 MCNOs/LDH 去除水中的 F<sup>-</sup> 的去除效果,结果如表 3 所示。未焙烧的 MCNOs/LDH 除氟率只有 32.15%,焙烧态的 MCNOs/CLDH 除氟率达到 57.90%。这是因为焙烧态的 MCNOs/CLDH 通过“记忆效应”进行结构重组加强了对 F<sup>-</sup> 的吸附。

表 3 样品的 F<sup>-</sup> 去除率

样品	MCNOs/LDH	MCNOs/CLDH
F <sup>-</sup> 去除率/%	32.15	57.90

### 2.4 吸附机理

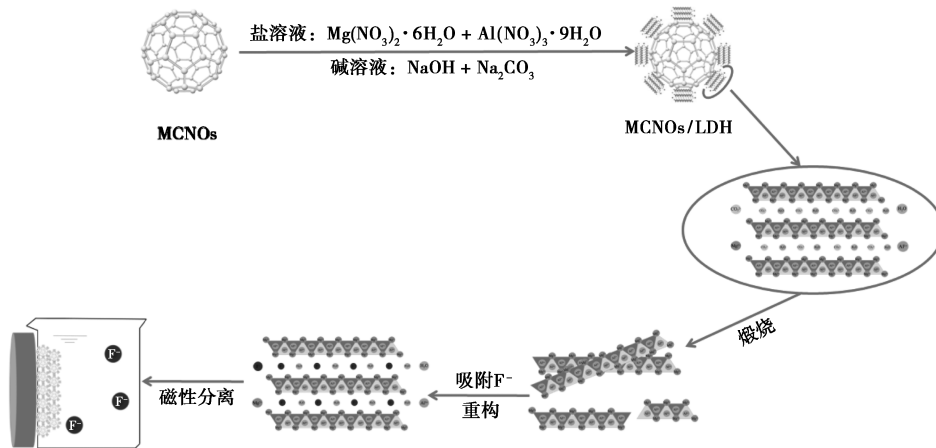
合成的样品和 MCNOs/CLDH 吸附 F<sup>-</sup> 后的 XRD 图谱如图 6 所示。由图 6 中可以看出,经高温煅烧后的 LDH 的特征衍射峰消失,出现以金属氧化物形式存在的 MgO (43.32、62.57°, JCPDS 45-0946) 的特征峰,表明煅烧过程中出现结构坍塌。吸附 F<sup>-</sup> 后的 MCNOs/CLDH 重新出现水滑石典型特征衍射峰,说明 MCNOs/CLDH 在吸附 F<sup>-</sup> 的过程中,通过“记忆效应”与水及阴离子结合以重建 MCNOs/LDH 的层状结构<sup>[16,21]</sup>,使水中的 F<sup>-</sup> 得以吸附去除。



1—LDH; 2—MCNOs/LDH; 3—MCNOs/CLDH-F<sup>-</sup>

图 6 MCNOs/CLDH-F<sup>-</sup> 的 XRD 图谱

MCNOs/CLDH 吸附机理如图 7 所示。由图 7 中可以看出,MCNOs/CLDH 对 F<sup>-</sup> 的吸附主要归因于其混合氧化物在阴离子溶液中的结构重构,F<sup>-</sup> 插入层间通道。此外,吸附剂表面的 F<sup>-</sup> 与配体羟基的交换达到了同步吸附<sup>[28]</sup>。

图7 MCNOs/CLDH 的制备及其对 F<sup>-</sup> 的吸附机理示意图

## 2.5 吸附剂再生

吸附剂的稳定性和可回收性是实际应用的关键因素。3次吸附-解吸循环后 MCNOs/CLDH 的可重复使用性能如表4所示。从表4中可知,MCNOs/CLDH 对 F<sup>-</sup> 的初始吸附效率为 57.90%,而随着再生次数的增加,吸附效率逐渐降低到 30.01%。这归因于可用活性吸附位点的消耗和饱和吸附剂中污染物释放不充分<sup>[28]</sup>,但也表明 MCNOs/CLDH 即使经过多次再生实验,利用其“记忆效应”仍可有效地捕获污染物<sup>[29]</sup>。因此,所制备的 MCNOs/CLDH 是一种用于去除水溶液中氟化物的可再生且有效的吸附剂。

表4 循环使用后 F<sup>-</sup> 去除率

循环次数	0	1	2	3
F <sup>-</sup> 去除率/%	57.90	49.01	39.00	30.01

## 3 结论

(1) 水热法制备了磁性 MCNOs/LDH 复合材料,高温煅烧制备了焙烧态 (MCNOs/CLDH) 复合材料,通过正交实验确定最佳制备工艺为:焙烧温度为 550℃、焙烧时间为 2 h。此时,其比表面积为 104.95 m<sup>2</sup>/g, F<sup>-</sup> 的最高去除率为 57.9%。

(2) 焙烧态 MCNOs/LDH 具有磁性和“记忆效应”特点,焙烧后的层状结构层间趋向致密,接触水溶液后恢复结构并重建层状结构。

(3) MCNOs/CLDH 的吸附机理包括表面吸附、离子交换、混合金属氧化物的再水化以及氟离子向层间区域的嵌入,从而重建原始的 LDH 结构。

## 参考文献

[1] 章萍,杨陈凯,马若男,等.碳纳米管/羟基磷灰石复合材料对水

体 F<sup>-</sup> 的去除研究[J].中国环境科学,2019,39(1):179-187.

- [2] Cai J G, Zhao X, Zhang Y Y, *et al.* Enhanced fluoride removal by La-doped Li/Al layered double hydroxides[J]. *Journal of Colloid and Interface Science*, 2018, 509:353-359.
- [3] 马福臻,周少奇,刘泽珺,等.三维网状 HZO@SGH 对水中氟离子的吸附作用和机制[J].*环境科学*, 2018, 39(2):828-837.
- [4] Amini M, Mueller K, Abbaspour K C, *et al.* Statistical modeling of global geogenic fluoride contamination in groundwaters[J]. *Environmental Science & Technology*, 2008, 42(10):3662-3668.
- [5] Chowdhury A, Adak M K, Mukherjee A, *et al.* A critical review on geochemical and geological aspects of fluoride belts, fluorosis and natural materials and other sources for alternatives to fluoride exposure[J]. *Journal of Hydrology*, 2019, 574:333-359.
- [6] Kang D J, Yu X L, Ge M F. Morphology-dependent properties and adsorption performance of CeO<sub>2</sub> for fluoride removal[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2017, 330:6-43.
- [7] Belkade F D, Kitous O, Drouiche N, *et al.* Electrodialysis for fluoride and nitrate removal from synthesized photovoltaic industry wastewater[J]. *Separation and Purification Technology*, 2018, 204:108-115.
- [8] Nunes-pereira J, Lima R, Choudhary G, *et al.* Highly efficient removal of fluoride from aqueous media through polymer composite-membranes[J]. *Separation and Purification Technology*, 2018, 205:1-10.
- [9] Ben Grich N, Attour A, Mostefa M L, *et al.* Fluoride removal from water by electrocoagulation: Effect of the type of water and the experimental parameters[J]. *Electrochimica Acta*, 2019, 316:257-265.
- [10] Uddin M K. A review on the adsorption of heavy metals by clay minerals, with special focus on the past decade[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2017, 308:438-462.
- [11] Hsu Y T, Wu J C S, Nguyen V H. Mg, Al-LDHs layered double hydroxides catalysts for boosting catalytic synthesis of biodiesel and conversion of by-product into valuable glycerol carbonate[J]. *Journal of the Taiwan Institute of Chemical Engineers*, 2019, 104:219-226.
- [12] Guo Y D, Gong Z H, Li C X, *et al.* Efficient removal of uranium

- (VI) by 3D hierarchical Mg/Fe-LDH supported nanoscale hydroxyapatite: A synthetic experimental and mechanism studies [J]. *Chemical Engineering Journal*, 2019, 392: 1236-33.
- [13] Xu S, Zhao J W, Yu Q Q, *et al.* Understanding how specific functional groups in humic acid affect the sorption mechanisms of different calcinated layered double hydroxides [J]. *Chemical Engineering Journal*, 2019, 392.
- [14] 张微, 张志刚, 李学亮, 等. 水滑石对氟离子的去除作用研究 [J]. *沈阳化工大学学报*, 2018, 32(4): 335-339.
- [15] Mrozek O, Ecorchard P, Vomacka P, *et al.* Mg-Al-La LDH-MnFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> hybrid material for facile removal of anionic dyes from aqueous solutions [J]. *Applied Clay Science*, 2019, 169: 1-9.
- [16] Mourid E, Lakraimi M, Benaziz L, *et al.* Wastewater treatment test by removal of the sulfamethoxazole antibiotic by a calcined layered double hydroxide [J]. *Applied Clay Science*, 2019, 168: 87-95.
- [17] Zhang W K, Wang J W, Yang Y Q, *et al.* Novel magnetically retrievable Bi<sub>2</sub>WO<sub>6</sub>/magnetic carbon nano-onions composite with enhanced photoactivity under visible light [J]. *Journal of Colloid and Interface Science*, 2018, 531: 502-512.
- [18] Zhou F, Pan N Y, Chen H Y, *et al.* Hydrogen production through steam reforming of toluene over Ce, Zr or Fe promoted Ni-Mg-Al hydrotalcite-derived catalysts at low temperature [J]. *Energy Conversion and Management*, 2019, 196: 677-687.
- [19] Zhao G Q, Li C F, Wu X, *et al.* Reduced graphene oxide modified NiFe-calcinated layered double hydroxides for enhanced photocatalytic removal of methylene blue [J]. *Applied Surface Science*, 2018, 434: 251-259.
- [20] 卫彩云, 谭静静, 夏晓丽, 等. 焙烧温度对 CuMgAl 催化剂催化糠醇加氢制戊二醇的影响 [J]. *化工学报*, 2019, 70(4): 1409-1419.
- [21] Li X L, Zhang Y, Jing L J, *et al.* Novel N-doped CNTs stabilized Cu<sub>2</sub>O nanoparticles as adsorbent for enhancing removal of Malachite Green and tetrabromobisphenol A [J]. *Chemical Engineering Journal*, 2016, 292: 326-339.
- [22] Lee S H, Tanaka M, Takahashi Y, *et al.* Enhanced adsorption of arsenate and antimonate by calcined Mg/Al layered double hydroxide: Investigation of comparative adsorption mechanism by surface characterization [J]. *Chemosphere*, 2018, 211: 903-911.
- [23] Luo Y J, Zheng Y B, Zuo J C, *et al.* Insights into the high performance of Mn-Co oxides derived from metal-organic frameworks for total toluene oxidation [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2018, 349: 119-127.
- [24] Gao G, Zhu Z, Zheng J, *et al.* Ultrathin magnetic Mg-Al LDH photocatalyst for enhanced CO<sub>2</sub> reduction: Fabrication and mechanism [J]. *Journal of Colloid and Interface Science*, 2019, 555: 1-10.
- [25] Bing X M, Li J, Liu J, *et al.* Biomimetic synthesis of Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Bi<sub>2</sub>WO<sub>6</sub>/MgAl-CLDH hybrids from lotus pollen and their enhanced adsorption and photocatalysis performance [J]. *Journal of Photochemistry and Photobiology A: Chemistry*, 2018, 364: 449-460.
- [26] Pena-garcia R, Guerra Y, Santos F E P, *et al.* Structural and magnetic properties of Ni-doped yttrium iron garnet nanopowders [J]. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 2019, 492: 165650.
- [27] Pena-garcia R, Guerra Y, Buitrago D M, *et al.* Synthesis and characterization of yttrium iron garnet nanoparticles doped with cobalt [J]. *Ceramics International*, 2018, 44(10): 11314-11319.
- [28] Kong L C, Tian Y, Pang Z, *et al.* Synchronous phosphate and fluoride removal from water by 3D rice-like lanthanum-doped La@MgAl nanocomposites [J]. *Chemical Engineering Journal*, 2019, 371: 893-902.
- [29] Zhang H, Chen H, Azat S, *et al.* Super adsorption capability of rhombic dodecahedral Ca-Al layered double oxides for Congo red removal [J]. *Journal of Alloys and Compounds*, 2018, 768: 572-581. ■

(上接第 140 页)

- [10] Feng D, Zhang Y, Chen Q, *et al.* Synthesis and surface activities of amidobetaine surfactants with ultra-long unsaturated hydrophobic chains [J]. *Journal of Surfactants and Detergents*, 2012, 15(5): 657-661.
- [11] El-hoshoudy A, Desouky S, Elkady M, *et al.* Hydrophobically associated polymers for wettability alteration and enhanced oil recovery—article review [J]. *Egyptian Journal of Petroleum*, 2017, 26(3): 757-762.
- [12] Sarsenbekuly B, Kang W, Fan H, *et al.* Study of salt tolerance and temperature resistance of a hydrophobically modified polyacrylamide based novel functional polymer for EOR [J]. *Colloids and Surfaces A*, 2017, 514(c): 91-97.
- [13] 杨小华, 王中华. 国内 AMPS 类聚合物研究与应用进展 [J]. *精细石油化工进展*, 2007, 8(1): 14-22.
- [14] 吕茂森, 史新兰, 许克峰, 等. 耐温抗盐二元聚合物驱油剂的合成及性能评价 [J]. *断块油气田*, 2001, 8(1): 54-55.
- [15] 赵修太, 吕华华, 邱广敏, 等. 驱油用磺酸盐型聚丙烯酰胺的合成及性能表征 [J]. *应用化工*, 2008, 37(1): 29-32.
- [16] 王爱国, 周瑶琪, 王在明, 等. 适于油田污水的聚丙烯酰胺合成及配制工艺研究 [J]. *中国石油大学学报(自然科学版)*, 2007, 31(5): 123-127.
- [17] 孙文. 聚合物调剖机理及国内外研究现状 [J]. *化学工程师*, 2018, 32(8): 60-63.
- [18] 范振中, 万家瑰, 王丙奎, 等. HPAM/有机络弱凝胶调驱剂的研究 [J]. *精细石油化工进展*, 2004, 5(9): 13-14.
- [19] 马立军, 闫建华, 李志勇. 聚合物驱油技术在大港油田港西三区的推广应用 [J]. *油气地质与采收率*, 2001, 8(6): 71-72.
- [20] 张建国, 毛宏志. HPAM/酚/醛/Al<sup>3+</sup> 交联体系的研究 [J]. *油田化学*, 2003, 20(1): 47-49.
- [21] 乔宏宾, 乔保林, 张晓辉. 提高酚醛树脂/聚合物流动凝胶耐温抗盐性的室内研究 [J]. *油田化学*, 2003, 20(2): 154-156.
- [22] 黄宁, 王中华, 孙举, 等. 耐温耐盐低度交联聚合物驱油体系的研究 [J]. *精细石油化工*, 2002, (5): 1-3. ■