

EDTACo-MgAl 层状双金属氢氧化物去除活性黑 5

樊金红, 秦贺贺, 王国良

(同济大学 污染控制与资源化研究国家重点实验室, 上海 200092)

摘要: 采用共沉淀法制备 EDTACo-MgAl 层状双金属氢氧化物(EDTACo-MgAl-LDHs), 通过 X 射线衍射仪(XRD)、电感耦合等离子体发射光谱仪(ICP)等材料进行表征, 并以活性黑 5 为模拟染料废水, 研究了污染物浓度、pH、温度等因素对吸附效果的影响, 初步探讨了其作为类 Fenton 催化剂的反应性能。结果表明: 常温、中性条件下, 其对活性黑 5 的最大平衡吸附量达到 $330 \text{ mg} \cdot \text{g}^{-1}$; 随着污染物浓度的增大, EDTACo-MgAl-LDHs 的吸附和催化 H_2O_2 氧化效果呈互补趋势, 对于初始质量浓度在 $120 \sim 360 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 范围内的活性黑 5 的总去除率均能达到 90% 以上。

关键词: 层状双金属氢氧化物; 活性黑 5; 吸附; 催化氧化
中图分类号: X703 **文献标志码:** A

EDTACo-MgAl Layered Double Hydroxides for Reactive Black 5 Treatment

FAN Jinhong, QIN Hehe, WANG Guoliang

(State Key Laboratory of Pollution Control and Resources Reuse, Tongji University, Shanghai 200092, China)

Abstract: A new nano composite material of EDTACo-MgAl layered double hydroxides (EDTACo-MgAl-LDHs) was synthesized in the ways of coprecipitation. Then, X-ray diffraction(XRD) and inductively coupled plasma(ICP) were used to characterize the properties of the material. The azo dye reactive black 5 was chosen as a target pollutant to study the effects of initial pH, concentration of target pollutant and temperature on adsorption. Finally, the properties of EDTACo-MgAl-LDHs as catalyst for Fenton reaction were discussed preliminarily. It is found that the maximum equilibrium adsorption was $330 \text{ mg} \cdot \text{g}^{-1}$ under the conditions of normal temperature and neutral pH. The catalytic oxidation and adsorption efficiency was complementary with increasing pollutant concentration. The total removal efficiency reaches up to 90% with the initial pollution concentration range of $120 \sim 360 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$.

Key words: layered double hydroxides (LDHs); reactive black 5; adsorption; catalytic oxidation

印染废水水量大, 污染物成分复杂^[1], 是工业废水主要来源之一。生物处理法运行简单且价格低廉, 是印染废水的传统处理方法^[2-3], 但由于该废水是“高毒性”和“难降解”两大主要特性的叠加, 因此难以保证稳定的处理效果。近年来, 国家对纺织染整工业水污染物的排放标准日益严格, 现有的生物处理工艺很难达到要求。目前, 有应用前景的印染废水处理工程化技术主要有氧化法^[4-5]和吸附法^[6]。吸附法成本较氧化法稍低, 但传统的活性炭、泥炭和壳聚糖等对染料的吸附容量较低, 并且需要考虑吸附剂的再生问题, 因此研发稳定、利用率高且集吸附与转化于一体的新型环境功能材料是强化吸附处理技术的必然趋势。20 世纪 90 年代以后, 随着现代分析技术和测试手段的广泛应用, 人们发现层状双金属氢氧化物(LDHs)^[7]具有金属离子、结晶水、层间阴离子、层板与层析的排列顺序等微观结构和层板电性及较大的比表面积, 逐渐成为环境功能材料的研究热点。在水处理应用中, 层状双金属氢氧化物主要作为吸附剂, 以去除水中的重金属离子、无机阴离子和染料等^[8-11]。随着研究的深入, 可以通过掺杂一些具有催化活性的金属离子和石墨烯等以增加 LDHs 的高级氧化作用, 提高污染物的降解并实现吸附剂的原位活化再生^[12]。

本文以 MgAl-LDHs 为前驱体, 采用共沉淀法将 EDTACo 嵌入到 LDHs 中, 成功合成了新型纳米多功能复合材料, 通过 X 射线衍射仪(XRD)、电感耦合等离子体发射光谱仪(ICP)和比表面积(BET)分析技术对该材料的晶体结构、组成和表面积进行表征, 并以偶氮染料活性黑 5 为目标污染物, 研究了废水浓度、pH、温度等因素对吸附效果的影响, 初步

探讨了其作为类 Fenton 催化剂的反应性能。

1 实验部分

1.1 实验试剂与材料

主要试剂:氯化镁、氯化铝、硝酸镁、硝酸铝、碳酸钠、氢氧化钠、EDTA 二钠、氯化钴、活性黑 5 均为分析纯,购自国药化学集团。

1.2 吸附剂制备方法^[11,13]

将一定质量的 Na_2CO_3 和 NaOH 混合溶解于高纯水中,置于自滴液漏斗中,备用。将按一定比例配制的 $\text{MgCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 和 $\text{AlCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 混合溶解于高纯水,并置于 500 mL 的四颈蒸馏瓶,然后将其放到自控调温装置的油浴中,采用电动搅拌器进行搅拌。当温度达到 40 °C 时,将 Na_2CO_3 和 NaOH 混合液逐滴滴加到蒸馏瓶中进行反应。滴加完毕后,将油浴温度升至 100 °C 晶化 16 h。样品冷却后,将沉淀产物进行抽滤,用高纯水多次洗涤至中性及无游离的氯离子,再用丙酮洗涤二次,在 80 °C 下烘干、研磨,备用。

称取一定质量的 EDTANa_2 和 $\text{CoCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 分别溶于高纯水,然后将 EDTA-2Na 溶液加入到置于油浴中的三颈蒸馏瓶。当温度升至 70 °C 时,用连续滴加器将 $\text{CoCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 滴加到蒸馏瓶中发生络合反应,滴加完成后,并持续恒温反应 30 min,得到 $[\text{EDTACo}]_{\text{Na}_2}$ 溶液。

称取一定质量的 MgAl-LDHs 并加入高纯水,然后转移到 250 mL 的三颈蒸馏烧瓶,最后将其置于 100 °C 的油浴中。当油浴温度升至 100 °C 时,将制得的 $[\text{EDTACo}]_{\text{Na}_2}$ 溶液通过自动加液器逐滴滴加至三颈瓶中,并使其在 100 °C 的油浴中晶化老化 16 h。冷却后,将反应产物进行抽滤,用高纯水多次洗涤至中性及无游离离子,再用丙酮洗涤二次,在 80 °C 下烘干、研磨,备用。

1.3 实验方法

1.3.1 吸附性能

采用控制变量法:在若干个 100 mL 的磨口玻璃瓶内,称取一定质量的吸附剂并加入待测溶液,在恒温振荡器中进行吸附,测定不同条件下吸附质浓度。

1.3.2 吸附等温线

采用批量平衡振荡法:在若干个 100 mL 磨口锥形瓶内,称取一定质量的吸附剂并加入到含有一系列不同浓度吸附质的溶液,在恒温振荡器中进行吸附,直到达到吸附平衡。用 0.5 μm 玻璃纤维滤膜过

滤,然后确定溶液中剩余吸附质的浓度。吸附量的计算方法如下所示:

$$q_e = \frac{(\rho_0 - \rho_e)V}{m} \quad (1)$$

式中: q_e 是平衡吸附量, $\text{mg} \cdot \text{g}^{-1}$; ρ_0 是初始吸附质质量浓度, $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$; ρ_e 是吸附平衡后,剩余吸附质质量浓度, $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$; V 是溶液体积, L; m 是吸附剂投加量, g。

在 Langmuir 等温吸附模型中,通常利用 Langmuir 系数 K_L 计算分离常数 R_L ,以此来表征吸附反应进行的难易程度,如下所示:

$$R_L = \frac{1}{1 + K_L \rho_0} \quad (2)$$

1.3.3 吸附-催化氧化性能

在若干个 100 mL 磨口锥形瓶内,称取 0.4 $\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$ 的吸附剂并加入含有不同浓度吸附质的溶液(未调节溶液 pH 值,约为 6.5),在恒温振荡器中进行吸附。反应 2 h 后,加入 0.8 mmol 的 H_2O_2 ,反应 1 h,然后确定溶液中剩余吸附质的浓度。

1.4 分析、表征方法

活性黑 5 浓度的测定,采用紫外分光光度法,最大吸收波长为 599 nm。

采用德国布鲁克公司 D08 型 X 射线衍射仪表征样品的晶体结构, Cu 靶,电流为 80 mA,电压为 40 kV,扫描范围为 3° ~ 80°,扫描速度为 0.02 (°) $\cdot \text{min}^{-1}$ 。

将 LDHs 样品用 1 : 1(体积比)的盐酸溶解后,再用去离子水稀释,最后用 Optima 2100 DV 电感耦合等离子体发射光谱仪测定。通过金属元素的含量得出二价和三价金属的比例以及层板金属元素比例的变化。

2 结果与讨论

2.1 EDTACo-MgAl-LDHs 表征

对照 MgAl-LDHs 的特征衍射峰可知,在相近的角度范围内,EDTACo-MgAl-LDHs 出现 MgAl-LDHs 的(003)、(006)、(009)和(110)、(113)特征峰(见图 1)。 d_{003} 、 d_{006} 、 d_{009} 之间存在良好的倍数关系,且峰形尖锐、基线平衡、杂峰少,谱峰对称性好,基线及其峰形与 MgAl-LDHs 相近,表明嵌入 EDTACo 后的 EDTACo-MgAl-LDHs 具有规整的层状结构,晶相单一,结构合理、完整,没有因为 EDTACo 的嵌入而改变 LDHs 的结构。

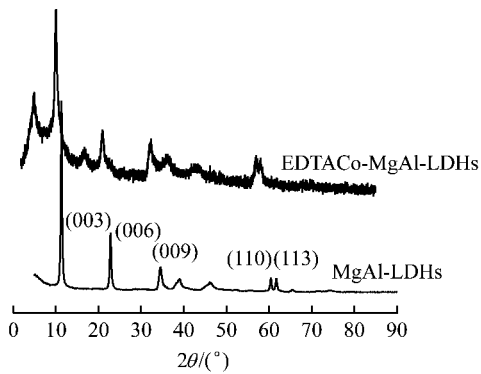


图 1 MgAl-LDHs 和 EDTACo-MgAl-LDHs 的 XRD 图谱
Fig.1 XRD patterns of MgAl-LDHs and EDTACo-MgAl-LDHs

电感耦合等离子体光谱分析结果表明, EDTACo-MgAl-LDHs 层间金属离子 Mg 和 Al 的物质的量比约为 3 : 1, 与 MgAl-LDHs 材料相似. 由于 EDTACo 络合离子的嵌入, C、N 元素从 MgAl-LDHs 中含量 5.43% 和 0 分别提高到 13.00% 和 3.50% 左右.

比表面积分析结果表明, MgAl-LDHs 的比表面积为 $125 \text{ m}^2 \cdot \text{g}^{-1}$, EDTACo-MgAl-LDHs 为 $189 \text{ m}^2 \cdot \text{g}^{-1}$, 较 MgAl-LDHs 比表面积提高了近 50%, 表明该制备方法提高了前驱体材料的空隙率, 有利于其作为吸附剂的应用.

2.2 吸附性能分析

25 °C、pH 为 6.5 条件下, $0.8 \text{ g} \cdot \text{L}^{-1}$ 吸附剂对活性黑 5 的吸附效果如图 2 所示. 由图可知, 吸附量随吸附质质量浓度的增大而增加. 在高初始浓度时, 吸附量随着时间的延长明显经历两个阶段, 开始的 60 min 内吸附量快速增长, 而后的 120 min 内, 吸附量随着时间的延长平缓增长, 180 min 后趋于平稳, $400 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 的吸附质浓度所能达到的饱和吸附量为 $330 \text{ mg} \cdot \text{g}^{-1}$ 左右. 同样条件下, 相较于 MgAl-

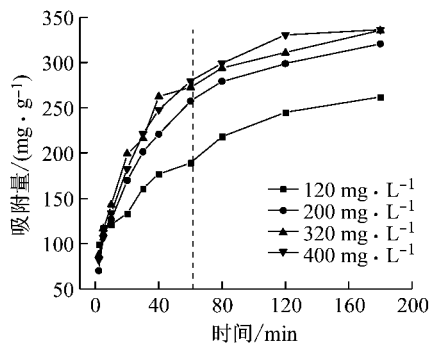


图 2 EDTACo-MgAl-LDHs 对活性黑 5 的吸附量随时间的变化

Fig.2 Adsorption capacity of reactive black 5 by EDTACo-MgAl-LDHs with varied time

LDHs 的最大平衡吸附量 $68.43 \text{ mg} \cdot \text{g}^{-1}$, EDTACo-MgAl-LDHs 的吸附量增大了 3.8 倍以上.

目前用于水溶液中活性黑 5 的吸附剂类型主要有泥炭、活性炭等. 泥炭和城市飞灰^[14]的吸附能力非常弱, 吸附量均小于 $10 \text{ mg} \cdot \text{g}^{-1}$, 不宜用作活性黑 5 的吸附剂; 活性炭和商用活性炭颗粒 F400 两类吸附剂^[15]的吸附量分别为 $58.82 \text{ mg} \cdot \text{g}^{-1}$ 和 $176 \text{ mg} \cdot \text{g}^{-1}$, 碱性法和十二烷基硫酸钠法制得的壳聚糖^[16]对活性黑 5 的吸附量分别为 $201.9 \text{ mg} \cdot \text{g}^{-1}$ 和 $168.07 \text{ mg} \cdot \text{g}^{-1}$; 由虾壳制备的壳聚糖粉和壳聚糖膜^[17]对活性黑 5 的吸附量分别为 $196.9 \text{ mg} \cdot \text{g}^{-1}$ 和 $194.7 \text{ mg} \cdot \text{g}^{-1}$. 对比各吸附剂的吸附量可得, 本文制备的 EDTACo-MgAl-LDHs 吸附剂对活性黑 5 的吸附量大大高于商业活性炭颗粒, 且优于多数已知的吸附剂. 相较于 MgAl-LDHs^[18] 和 MgNiAl-LDH^[19]对甲基橙染料的平衡吸附量 $148 \text{ mg} \cdot \text{g}^{-1}$ 和 $375 \text{ mg} \cdot \text{g}^{-1}$ (后者吸附量是前者的 2.5 倍), EDTACo-MgAl-LDHs 可以广泛应用于类似偶氮染料如活性黑 5、甲基橙等的印染废水中.

2.3 初始 pH 的影响

pH 在 LDHs 吸附去除有机阴离子污染物的过程中有着重要影响. 一方面, pH 变化会引起材料组成发生变化; 另一方面, pH 的大小决定了阴离子有机污染物在水中的存在形态以及水体的性质. 25 °C、 $0.8 \text{ g} \cdot \text{L}^{-1}$ EDTACo-MgAl-LDHs 对 $400 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 活性黑 5 吸附 3 h 的效果随溶液初始 pH 的变化如图 3 所示.

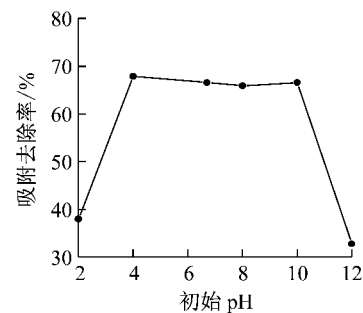


图 3 初始 pH 对 EDTACo-MgAl-LDHs 吸附活性黑 5 去除率的影响

Fig.3 Effect of initial pH on removal ratio of reactive black 5 by EDTACo-MgAl-LDHs

由图 3 可知, EDTACo-MgAl-LDHs 对活性黑 5 的去除率随着 pH 的升高呈先增大后减小的趋势. 当 pH 值介于 4~10 之间时, 其吸附去除率均介于 65%~70% 之间; 当 pH 值为 2 和 12 时, 吸附剂

EDTACo-MgAl-LDHs 的吸附效果较差. 这是因为: 当 pH 较小时, LDHs 层板发生部分溶解, 导致结构破坏; 当 pH 较高时, 水体中存在的 OH^- 浓度增大, 形成对有机物吸附的竞争, 大大降低污染物去除率^[20].

2.4 温度的影响

吸附过程中能量的变化和温度有着密切的关系, 吸附剂在不同温度下往往有着不同的吸附状况, 探讨温度因素的影响有着重要意义.

在 pH 为 6.5 条件下, $0.8 \text{ g} \cdot \text{L}^{-1}$ EDTACo-MgAl-LDHs 对 $400 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 活性黑 5 在 25、35、45 $^{\circ}\text{C}$ 温度下的吸附量如图 4 所示. 从图中可以看出, 在相对应的平衡浓度下, 温度对于 EDTACo-MgAl-LDHs 在低浓度和高浓度范围内的吸附具有不同的影响规律. 这是因为: EDTACo-MgAl-LDHs 对于溶液中活性黑 5 的吸附以化学吸附为主, 当吸附质浓度较低时, 溶液和吸附剂表面聚集的离子基团较少, 温度成为吸附的主要因素, 又由于活性黑 5 的吸附过程是放热反应, 温度升高, 吸附量减小; 当吸附质浓度较高时, 溶液和吸附剂表面聚集了大量的离子基团, 吸附剂表层及其空隙的电子、离子基团相互作用的影响远远大于由于温度的升高对吸附量的影响.

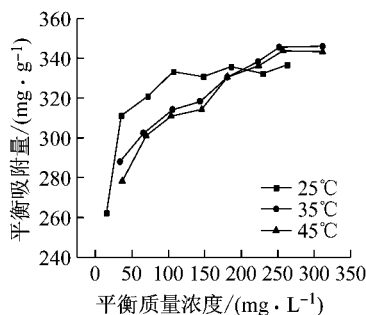


图 4 不同温度下 EDTACo-MgAl-LDHs 的吸附量

Fig. 4 Adsorption capacity of EDTACo-MgAl-LDHs for reactive black 5 at different temperatures

EDTACo-MgAl-LDHs 的吸附数据与 Langmuir 等温吸附模型具有很强的相关性, 其在 25、35、45 $^{\circ}\text{C}$ 的相关性系数 R^2 分别为: 0.999、0.988 和 0.992, 且其理论吸附量与实验吸附量很接近, 这说明 Langmuir 吸附等温方程适合描述 EDTACo-MgAl-LDHs 对溶液中活性黑 5 的等温吸附过程. 在 Langmuir 等温吸附模型中, 通常利用 Langmuir 系数 K_L 可以计算出分离常数 R_L , 以此来表征吸附反应进行的难易程度(见式(2)). 当 $R_L > 1$ 时, 表示吸附难于进行; 当 $R_L = 1$ 时, 表示等温吸附为线性; 当

$0 < R_L < 1$ 时, 表示吸附过程容易进行. 从图 5 可以看出, 拟合的线性方程截距大于零, 说明 K_L 大于零, 所以 $0 < R_L < 1$ 且随着初始浓度增大而增大, R_L 减小直至基本恒定, 其吸附的难易程度不再变化. 当初始质量浓度大于 $200 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$, EDTACo-MgAl-LDHs 吸附的 R_L 为 0.02, 不会因为初始浓度的增加而使得吸附更易于发生.

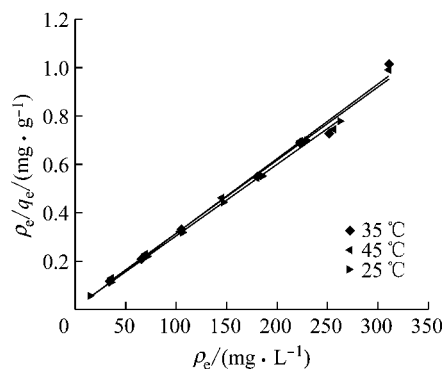


图 5 EDTACo-MgAl-LDHs 吸附溶液中活性黑 5 的 Langmuir 吸附等温线

Fig. 5 Langmuir plots of the adsorbent EDTACo-MgAl-LDHs for reactive black 5 adsorption

2.5 EDTACo-MgAl-LDHs 的催化氧化效果

为了考察 EDTACo-MgAl-LDHs 作为吸附剂和催化剂的双重效果, 降低 EDTACo-MgAl-LDHs 的投加量至 $0.4 \text{ g} \cdot \text{L}^{-1}$, 且将吸附时间缩短至 2 h, 在吸附未饱和的情况下加入 $0.8 \text{ mmol H}_2\text{O}_2$ 继续反应 1 h, 检测剩余活性黑 5 的浓度, 如图 6 所示.

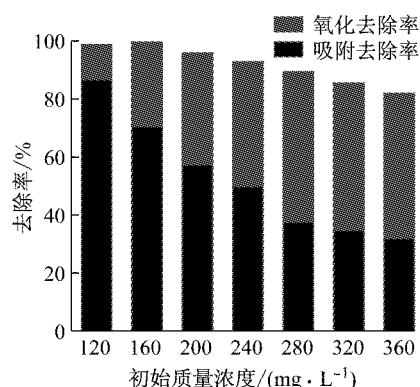


图 6 EDTACo-MgAl-LDHs 对不同初始质量浓度活性黑 5 的吸附和催化氧化性能

Fig. 6 Adsorption and catalytic oxidation of EDTACo-MgAl-LDHs for reactive black 5 with different initial concentrations

由图 6 可知, 随着初始浓度的增大, 其吸附去除效率逐渐减小, 由 85% 降低到 35% 左右, 而 EDTACo-MgAl-LDHs 的氧化去除效率随着初始质

量浓度的增加而增大.对于初始浓度在120~360 mg·L⁻¹的活性黑5,其总去除率可达90%以上.因此,EDTACo-MgAl-LDHs不仅能够有效地吸附活性黑5,还能通过催化H₂O₂进一步氧化去除残留的活性黑5,在有毒、难降解有机污染物的去除中具有非常好的应用潜力.

3 结论

(1) EDTACo-MgAl-LDHs 结晶度好,晶相单一,结构合理、完整,具有规整的层状结构,是理想的层状双金属结构. EDTACo-MgAl-LDHs 的比表面积为189 m²·g⁻¹,较MgAl-LDHs提高了近50%.

(2) EDTACo-MgAl-LDHs 吸附溶液中活性黑5的pH适用范围较广,其数值介于4~10之间均具有较好的吸附效果.

(3) 温度对EDTACo-MgAl-LDHs 吸附活性黑5的效果影响不大,常温、中性pH条件下EDTACo-MgAl-LDHs对活性黑5的饱和吸附量为330 mg·g⁻¹左右,较MgAl-LDHs的最大平衡吸附量提高了3.8倍以上,大大高于商业活性炭颗粒,且优于多数已知的吸附剂.

(4) 随着污染物浓度的增大,EDTACo-MgAl-LDHs的吸附和氧化效果呈互补趋势,对于初始质量浓度在120~360 mg·L⁻¹范围内活性黑5的总去除率均能达到90%以上.

参考文献:

- [1] PEARCE C I, LLOYD J R, GUTHRIE J T. The removal of colour from textile wastewater using whole bacterial cells: a review [J]. *Dyes and Pigments*, 2003, 58(3): 179.
- [2] YILMAZ A, YILMAZ E, YILMAZ M, *et al.* Removal of azo dyes from aqueous solutions using calix [4] arene and β -cyclodextrin [J]. *Dyes and Pigments*, 2007, 74(1): 54.
- [3] KALYUZHNYI S, YEMASHOVA N, FEDOROVICH V. Kinetics of anaerobic biodecolourisation of azo dyes [J]. *Water Science & Technology*, 2006, 54(2): 73.
- [4] WANG C, YEDILER A, LIENERT D, *et al.* Ozonation of an azo dye CI Remazol Black 5 and toxicological assessment of its oxidation products [J]. *Chemosphere*, 2003, 52(7): 1225.
- [5] HE J, MA W, HE J, *et al.* Photo oxidation of azo dye in aqueous dispersions of H₂O₂/ α -FeOOH [J]. *Applied Catalysis B: Environmental*, 2002, 39(3): 211.
- [6] GUPTA V K, SUHAS. Application of low-cost adsorbents for dye removal: a review [J]. *Journal of Environmental Management*, 2009, 90(8): 2313.
- [7] THEISS F L, AYOKO G A, FROST R L. Synthesis of layered double hydroxides containing Mg²⁺, Zn²⁺, Ca²⁺ and Al³⁺ layer cations by co-precipitation methods: a review [J]. *Applied Surface Science*, 2016, 383 (33): 200.
- [8] LIANG X F, ZANG Y B, XU Y M, *et al.* Sorption of metal cations on layered double hydroxides [J]. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 2013, 433(35): 122.
- [9] ASHEKUZZAMAN S M, JIANG J Q, *et al.* Study on the sorption-desorption-regeneration performance of Ca-, Mg- and CaMg-based layered double hydroxides for removing phosphate from water [J]. *Chemical Engineering Journal*, 2014, 246 (12): 7.
- [10] LING F L, FANG L, LU Y, *et al.* A novel CoFe layered double hydroxides adsorbent: high adsorption amount for methyl orange dye and fast removal of Cr(VI) [J]. *Microporous and Mesoporous Materials*, 2016, 234: 230.
- [11] GUZMÁN-VARGASA A, LIMA E, URIOSTEGUI-ORTEGA GISELLE A, *et al.* Adsorption and subsequent partial photodegradation of methyl violet 2B on Cu/Al layered double hydroxides [J]. *Applied Surface Science*, 2016, 363: 372.
- [12] DAUD M, KAMAL M S, SHEHZAD F, *et al.* Graphene/layered double hydroxides nanocomposites: a review of recent progress in synthesis and applications [J]. *Carbon*, 2016, 104: 241.
- [13] HOSNI K, SRASRA E. Evaluation of phosphate removal from water by calcined-LDH synthesized from the dolomite [J]. *Colloid Journal*, 2010, 72(3): 423.
- [14] JAIN A K, GUPTA V K, BHATNAGAR A, *et al.* Utilization of industrial waste products as adsorbents for the removal of dyes [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2003, 101(1): 31.
- [15] MCKAY G, IP A W M, BARFORD J P. Reactive black dye adsorption/desorption onto different adsorbents: effect of salt, surface chemistry, pore size and surface area [J]. *Journal of Colloid and Interface Science*, 2009, 337(1): 32.
- [16] WOO S H, CHATTERJEE S, CHATTERJEE T. Influence of the polyethyleneimine grafting on the adsorption capacity of chitosan beads for Reactive Black 5 from aqueous solutions [J]. *Chemical Engineering Journal*, 2011, 166(1): 168.
- [17] DOTTO G L, OCAMPO-PEREZ R, MOURA J M, *et al.* Adsorption rate of Reactive Black 5 on chitosan based materials: geometry and swelling effects [J]. *Adsorption*, 2016, 22: 973.
- [18] AI L H, ZHANG C Y, MENG L Y. Adsorption of methyl orange from aqueous solution on hydrothermal synthesized Mg-Al layered double hydroxide [J]. *Journal of Chemical & Engineering Data*, 2011, 56 (11): 4217.
- [19] ZAGHOUE-BOUDIAF H, BOUTAHALA M, ARAB L. Removal of methyl orange from aqueous solution by uncalcined and calcined MgNiAl layered double hydroxides (LDHs) [J]. *Chemical Engineering Journal*, 2012, 187: 142.
- [20] 周友飞,隋铭皓,盛力.层状双金属氢氧化物在有机污染物吸附方面的应用[J].*水处理技术*, 2012,38(11): 1. ZHOU Youfei, SUI Minghao, SHENG Li. Application of layered double hydroxides in adsorption on organic pollutants [J]. *Technology of Water Treatment*, 2012,38(11):1.