生物硅源制备花状硅酸镁及其对放射性核素U(VI)的去除

高慧慧^{1,2}, 邓小龙¹, 黄金昭¹, 张守伟^{1*}, 李家星^{2*}

1. 济南大学物理科学与技术学院, 济南 250022

2. 中国科学院等离子体物理研究所, 合肥 230031

*通讯作者, E-mail: sps_zhangsw@ujn.edu.cn; lijx@ipp.ac.cn

收稿日期: 2018-06-05; 接受日期: 2018-07-31; 网络版发表日期: 2018-12-04

国家自然科学基金(编号: 21707043)和山东省自然科学基金(编号: ZR2017BEE005)资助项目

摘要 放射性核素U(VI)的水污染问题已经成为当前核能发展亟待解决的难题之一。硅酸镁因其独特的结构特征, 在水污染治理方面具有广泛的应用前景。因此, 采用废弃生物硅源来代替传统硅源, 制备高性能硅酸镁吸附剂具有极大的研究价值。本文通过两步法制备了高性能花状硅酸镁吸附剂, 并对其进行了表征。系统研究了溶液的pH、吸附时间、吸附剂用量等因素对硅酸镁吸附行为的影响。结果表明, 硅酸镁对U(VI)的吸附动力学符合拟二级速率方程; 吸附和pH有很强的依赖关系; 最大吸附量高达~663.7 mg/g, 吸附过程符合Langmuir模型。

关键词 生物硅, 硅酸镁, 放射性核素U(VI), 吸附

1 引言

近年来, 随着核工业的迅猛发展, 铀矿开采和冶炼、核反应堆运行、乏燃料后处理、核武器试用及高放废物地质处置库的泄露等一系列核能相关过程, 导致大量低浓度含铀废水排放, 对生态环境构成严重威胁^[1-8]。含铀污染物作为一种重金属, 不仅具有放射性且具有动态的生物毒性和化学毒性。我国的污水综合排放标准规定铀的最高允许排放浓度不超过0.05 mg/L, 而铀矿冶等生产排放的废水中铀的质量浓度一般在5 mg/L左右^[9]。因此, 开展含铀废水处理技术的研究已经成为当前核能发展亟待开展的重大课题之一。

目前, 含铀废水处理的方法主要有吸附法、沉淀

法、膜过滤法及离子交换法等。其中, 吸附技术具有经济成本低、操作简单和实用性强等优点而受到广泛的关注^[10-15]。尤其是在环境污染治理方面, 吸附法成为去除水中放射性核素最常用和最有效的处理技术之一。吸附法的关键是选择合适的吸附剂^[16-22]。实用的吸附材料不仅需要考虑到其吸附容量, 还需要综合考虑其实际成本及环境稳定性。

硅酸盐具有结构独特、资源丰富、价格低廉、对环境无污染等优点, 在催化载体、气体分离、环境治理、锂电池等诸多领域具有广泛的应用价值^[23,24]。因此, 研究者制备出不同形貌的硅酸盐用于环境污染物的处理, 如空心球、纳米管和纳米花等^[25-28]。鉴于硅酸盐优异的性质, 探索硅酸盐吸附剂的新制备方法及其在放射性核素处理方面的研究具有重要意义。目前,

引用格式: Gao H, Deng X, Huang J, Zhang S, Li J. Preparation of flower-like magnesium silicate from biomass silicon for radionuclide U(VI) removal. *Sci Sin Chim*, 2019, 49: 103–112, doi: 10.1360/N032018-00131

制备硅酸盐吸附剂的硅源多是正硅酸四乙酯(TEOS), 导致制备成本高, 影响其在工业上的应用. 稻壳作为一种资源丰富的农业废弃物, 焚烧后的灰烬中含有大量无定形 SiO_2 , 约占85%~90%. 以稻壳中的无定形硅作为硅源来代替传统硅源制备高性能硅酸盐吸附剂, 不仅有效降低了材料制备的成本, 还充分利用了我国丰富的农业废弃物资源, 解决了稻壳的环境污染问题.

本文首先将收集的稻壳进行热处理, 得到无定形二氧化硅. 其次, 将含有 Mg^{2+} 、尿素和无定形二氧化硅溶液混合均匀, 在水热条件下进行反应. 无定形二氧化硅被尿素溶液中的 OH^- 溶解产生 SiO_3^{2-} , 进一步和溶液中的 Mg^{2+} 反应, 逐渐在无定形二氧化硅的表面沉积形成硅酸镁层, 随着反应的继续进行, 最后生成花状硅酸镁. 最后, 研究花状硅酸镁对U(VI)的吸附, 主要包括系统研究材料在溶液pH、接触时间和吸附剂初始浓度等因素下对吸附行为的影响.

2 实验部分

2.1 试剂与仪器

实验中使用的六水合硝酸镁($\text{Mg}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$)、尿素($\text{CH}_4\text{N}_2\text{O}$)、乙醇($\text{CH}_3\text{CH}_2\text{OH}$)、六水合硝酸铈酰($\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$)、氢氧化钠(NaOH)、盐酸(HCl)等都是分析纯, 购自国药集团化学试剂有限公司(中国). 实验过程中所有溶液的配制均采用去离子水.

2.2 制备稻壳衍生无定形二氧化硅(Rh- SiO_2)

首先, 用去离子水将稻壳多次冲洗; 其次, 取20 g洗净的稻壳, 加入到10%的盐酸中搅拌, 在100℃加热回流2 h, 冷却至室温后用去离子水反复洗涤, 干燥, 得到预处理的稻壳; 最后, 将预处理的稻壳置于马弗炉中600℃处理2 h, 得到无定形二氧化硅.

2.3 制备花状硅酸镁(Rh-MgSi)

首先, 将无定形二氧化硅(100 mg)超声搅拌分散在去离子水(40 mL)和乙醇(20 mL)混合溶液中; 其次, 将六水合硝酸镁(0.26 g)和尿素(2.7 g)依次加入上述混合溶液中并搅拌均匀; 再次, 将混合溶液转移到聚四氟乙烯高压釜中, 在190℃下加热24 h, 冷却后离心洗涤至中性, 冷冻干燥后得到花状硅酸镁. 实验室制备花状硅酸镁的实验是在100 mL的聚四氟反应釜中反应进

行的, 产量约为0.1439 g. 同时, 在本实验过程中, 其他条件不变的情况下, 只需要改变金属源就可以制备相应的金属硅酸盐.

2.4 表征仪器

采用X射线粉末衍射(XRD)仪(Philips X'per diffractometer, 荷兰)对产物进行物相分析; 经KBr压片, 利用红外光谱仪(Magna-IR, Nicolet, 美国)对材料进行傅里叶变换红外光谱(FTIR)分析, 光谱扫描范围400~4000 cm^{-1} ; 采用扫描电子显微镜(SEM, JEOL JSM-6330F, 日本)和透射电子显微镜(TEM, JEOL-2010, 日本)对产物进行形貌和结构分析; 采用比表面分析仪(Quantachrome, 美国)对产物进行氮气吸附-脱附曲线和孔径分布分析.

2.5 吸附实验

首先Rh- SiO_2 和Rh-MgSi吸附U(VI)的实验过程如下: 将一定量的吸附剂、背景电解质溶液(NaCl)、U(VI)的储备液加入10 mL离心管中, 控制吸附剂浓度为0.05 g/L, NaCl 浓度为0.01 M, 初始铀浓度为12 mg/L, 溶液总体积控制为6 mL. 以微量的0.01 M或0.05 M HCl 或 NaOH 调节体系的pH, 然后将离心管置于恒温(25℃)振荡箱内持续振荡24 h以确保体系达到平衡. 其次, 平衡后离心, 取2 mL上层清液以偶氮胂III法在650 nm波长处用紫外可见分光光度计测定U(VI)浓度. U(VI)在Rh- SiO_2 和Rh-MgSi上的吸附量和吸附百分数, 可以用如下计算公式表示:

$$q_e = \frac{C_0 - C_e}{m} V \quad (1)$$

$$R(\%) = \frac{C_0 - C_e}{C_0} \times 100\% \quad (2)$$

其中 q_e 为吸附剂对U(VI)的吸附量(mg/g), C_0 为U(VI)的初始浓度(mg/L), C_e 为吸附平衡后U(VI)的浓度(mg/L), m 为吸附剂的质量(g), V 为悬浮液的总体积(mL), R 为吸附剂对U(VI)的吸附百分数(%).

3 结果与讨论

3.1 稻壳硅(Rh- SiO_2)和衍生硅酸镁(Rh-MgSi)的表征

采用XRD对产物进行相结构分析, 如图1(a)所示.

图 1 Rh-SiO₂和Rh-MgSi的XRD谱图(a), FTIR光谱(b), N₂吸附-脱附曲线(c)及对应的孔径分布(d) (网络版彩图)

Figure 1 (a) XRD patterns, (b) FTIR spectra, (c) N₂ adsorption/desorption isotherms and (d) pore size distribution of Rh-SiO₂ and Rh-MgSi (color online).

从图中可以看出稻壳衍生的Rh-SiO₂没有出现明显的具有特定结晶的衍射峰,而是在 $2\theta=15^{\circ}\sim 35^{\circ}$ 范围内出现一个宽的馒头峰,由此说明对稻壳经600℃煅烧2 h后得到的是无定形的二氧化硅(JCPDS No. 29-0085).而经水热反应后,对应的衍射峰可标定为具有滑石结构的硅酸镁(JCPDS 03-0174)^[29].从宽化的XRD衍射峰中可以看出产物是由纳米结构单元组成并具有不完整的结晶性.图1(b)是Rh-SiO₂和Rh-MgSi的FTIR吸收光谱图,在3440 cm⁻¹处有一个比较宽的吸收峰,其对应于Rh-SiO₂和Rh-MgSi表面的羟基振动以及氢键束缚的水分子伸缩振动;1100 cm⁻¹处的吸收峰对应着Si-O-Si的伸缩振动;~1016 cm⁻¹处出现的肩峰对应着除了Si-O-Si之外新的Si-O-Mg键的形成;665 cm⁻¹吸收峰对应着Si-O-Mg的伸缩振动,在806 cm⁻¹处出现Si-O-Si键弯曲振动.结合XRD和FTIR结果证明以稻壳硅为模板,通过牺牲辅助模板-水热法制备出了硅酸镁.进一步对制备的硅酸镁比表面积和孔径分布进行测量,如图1(c, d)所示.通过Brunauer-Emmett-Teller

(BET)理论计算可知, Rh-SiO₂和Rh-MgSi的比表面积分别为217.5和247.7 m²/g,孔容分别为0.326和0.342 cm³/g,结果说明水热之后材料的比表面积和孔容都增加了,这归因于制备的硅酸镁具有独特的微/纳分级结构以及表面片状多孔结构.由脱附曲线计算出的孔径分布曲线显示Rh-SiO₂和Rh-MgSi的孔径集中分布在2~50 nm.

利用场发射扫描电子显微镜和高分辨透射电子显微镜对合成吸附剂的形貌和尺寸进行观察.如图2(a, b)所示,在稻壳煅烧之后产生的Rh-SiO₂的分布为形态聚集,粒径在50~100 μm,表面光滑.这些二氧化硅纳米颗粒不仅是硅元素的来源,而且可作为软模板原位合成硅酸镁.透射电子显微镜图(图3(a, b))表明,稻壳硅是微米级大片状结构,这些微米级片状结构是由颗粒组成的,颗粒尺度在纳米级别并且具有疏松的表面形态.在水热处理之后,这些微米级片状结构的表面有很多明显的几十纳米的层状纳米片(图2(c)),这归因于水热过程中Rh-SiO₂和Mg²⁺在碱性条件下反应生成

图2 Rh-SiO₂ (a, b)和Rh-MgSi (c, d)的SEM照片

Figure 2 Typical SEM images of Rh-SiO₂ (a, b) and Rh-MgSi (c, d).

了花状硅酸镁。对产物采用扫描电子显微镜进行放大观察,如图2(d)所示,能够更清楚地看到硅酸镁表面形态,发现其表面是由大量的纳米片单元相互交叉形成且生长方向不固定,形成了花状表面结构,有利于增加硅酸镁的吸附反应位点。

通过透射电子显微镜观察(图3(c, d)),发现产物是微米级大片状结构,边缘的部分有大量纳米片,放大的透射电子显微镜能够更清楚地看到表面由细小的薄片状物质单元组成,纳米片之间相互交叉形成网状表面结构。在样品的内部也同样存在着,说明水热之后,样品不仅保存了Rh-SiO₂的微米级大片状结构,还在表面内部生成了花状表面结构。同时,我们进一步测量元素组成(EDS),如图4所示,结果表明合成的花状结构主要由Mg、Si和O元素组成,他们的原子比是Mg:Si:O=18.14:22.34:29.52。

3.2 吸附性能

Rh-SiO₂和Rh-MgSi对U(VI)的吸附量随时间的变化曲线如图5所示。从图中可以清楚地看到U(VI)在Rh-SiO₂和Rh-MgSi的吸附大约都在60 min内达到平衡,然而它们去除容量明显不同。在最初接触的40 min,

U(VI)在Rh-SiO₂和Rh-MgSi的吸附容量分别达到88.2和196.2 mg/g,吸附率达到34.1%和75.7%。

Rh-MgSi表面大量的纳米片层结构为U(VI)的吸附提供了丰富的活性位点,因此能够更多地吸附U(VI),进而表明Rh-MgSi可以作为放射废水处理的潜在材料。

放射性核素的吸附动力学过程可通过拟一、二级动力学方程来描述,该方程表示如下^[30,31]:

$$\log(q_e - q_t) = \log q_e - \frac{k_1 t}{2.303} \quad (3)$$

$$\frac{t}{q_t} = \frac{1}{k_2 q_e^2} + \frac{t}{q_e} \quad (4)$$

其中 t 为平衡时间(h), q_t 为某一时间的吸附量(mg/g), k_1 为拟一级反应速率常数(min^{-1}), k_2 为拟二级反应速率常数(g min/mg)。由图5(b)及表1可知,测试数据与拟二级动力学模型拟合直线吻合较好($R^2=0.998$ 和 0.999)。对斜率和截距进行计算得到,拟二级反应的速率常数 k_2 分别为 6.36×10^{-4} 和 $6.57 \times 10^{-4} \text{ g min/mg}$,吸附达到平衡时的吸附量 q_e 分别为140.6和251.9 mg/g,与试验得到的平衡吸附量 q_e (135.8和246.5 mg/g)接近,所以Rh-SiO₂和Rh-MgSi对铀的吸附过程遵循拟二级动力学模

图 3 Rh-SiO₂ (a, b)和Rh-MgSi (c, d)的TEM照片

Figure 3 Typical TEM images of Rh-SiO₂ (a, b) and Rh-MgSi (c, d).

图 4 Rh-MgSi的EDS谱图(网络版彩图)

Figure 4 Typical EDS spectrum of Rh-MgSi (color online).

型. 吸附剂用量是另一个影响吸附过程的重要因素. 因而, 进一步研究了吸附剂用量对U(VI)的去除率的影响. 图6显示了Rh-SiO₂和Rh-MgSi用量对U(VI)的去除效率、吸附容量的影响. 图6(a)可以得出U(VI)去除效率随着Rh-SiO₂的用量的增加迅速增加, 然后接近平衡, 仅达到60%, 同时吸附容量也较小. 而随着Rh-MgSi用量的增加(图5(b)), 去除效率迅速增加, 接近平衡时达到100%, 并且吸附容量最高可以达到570 mg/g. Rh-MgSi用量的增加导致U(VI)的结合中心也增多, 从而导致吸附率的显著增大. 但Rh-MgSi用量较少时, 活性位点显露更充分, 单位质量Rh-MgSi吸附的U(VI)更多, 因此吸附容量较大. 然而当Rh-MgSi用量进一步增

加时, 颗粒间的碰撞概率增大而易使其发生聚集, 进而导致其单位质量中的活性位点暴露量明显减少, 同时, 由于溶液中的U(VI)浓度降低, 从而使得Rh-MgSi的吸附量降低.

pH是影响吸附剂表面电荷分布状态以及重金属离子在水溶液中存在状态的重要因素之一. 图7描述了Rh-SiO₂和Rh-MgSi对U(VI)的吸附百分比随pH的变化情况以及U(VI)在不同pH下的形态分布. 结果表明, Rh-SiO₂在整个pH范围内对U(VI)的去除率较低, 这归因于材料主要由小颗粒组成, 吸附位点较少. Rh-MgSi在pH<4.0时, 随着溶液pH的增加, 对U(VI)的去除率从20%增加至90%. pH的影响与吸附剂的表面性质以及放射性核素的物种分布有关. 研究表明pH小于4时, U(VI)主要以UO₂²⁺离子的形式存在, pH 4~9范围内出现多种络合水解物种(如(UO₂)₃(OH)₇⁻和UO₂(OH)₃⁻等). Wang等^[25]发现硅酸镁在很宽的pH范围内其表面都是带负电的, 并且随着pH的增加, 表面的负电性也就越强. 在低pH时, 吸附剂的表面带负电荷, 而U(VI)主要以UO₂²⁺离子的形式存在, 因此有利于吸附的进行, 随着溶液酸度的降低, Rh-MgSi在溶液中的溶解现象得到缓解; 在高pH时, U(VI)主要以负电络合物存在且吸附剂的表面带有更多的负电荷, 此时静电排斥作用加强, 降低了对U(VI)的吸附能力.

图 5 吸附时间对Rh-SiO₂和Rh-MgSi吸附U(VI)的影响(a)和拟二级动力学拟合(b) (网络版彩图)
Figure 5 (a) Kinetics sorption curves and (b) pseudo-second-order kinetic plot fitting for U(VI) removed on Rh-SiO₂ and Rh-MgSi (color online).

图 6 Rh-SiO₂ (a)和Rh-MgSi (b)浓度对U(VI)吸附的影响(网络版彩图)
Figure 6 Effect of solid content of Rh-SiO₂ (a) and Rh-MgSi (b) (color online).

表 1 拟一级和拟二级动力学模型动力学拟合参数
Table 1 Kinetics parameters for the U(VI) removed on Rh-SiO₂ and Rh-MgSi

吸附剂	q_{exp} (mg/g)	拟一级动力学		拟二级动力学		
		k_1 (1/min)	R^2	k_2 (g/(mg min))	q_{cal} (mg/g)	R^2
Rh-SiO ₂	135.8	0.037	0.892	6.3×10^{-4}	140.6	0.998
Rh-MgSi	246.5	0.041	0.836	6.5×10^{-4}	251.9	0.999

自然水体中U(VI)通常与其他阴阳离子共存, 而共存离子可能会影响吸附剂对U(VI)的去除效果. 当阳离子Na⁺、K⁺、Mg²⁺、Ca²⁺和阴离子NO₃⁻、Cl⁻、CO₃²⁻和SO₄²⁻共存时, Rh-MgSi对U(VI)的吸附率仍然接近100% (图8), 表明这些共存的阴阳离子对U(VI)的吸附几乎没有影响. 共存的Ca²⁺导致Rh-SiO₂和Rh-MgSi的原始吸附容量降低了20%和21%. 研究表明在pH<8.4的富Ca²⁺溶液中, U(VI)主要以Ca₂UO₂(CO₃)₃(aq)的形式存在, 而这种Ca-U(VI)-碳酸盐复合形式能够影响U(VI)和吸附位点之间的络合形式, 进而导致U(VI)吸

附容量的减少^[32,33]. 以上实验结果表明, Rh-MgSi对U(VI)的去除具有显著的选择性, 因此在实际的放射性废水处理中具有更大的应用潜力.

图9(a)是Rh-SiO₂和Rh-MgSi对U(VI)的吸附等温线. 结果表明, 随着U(VI)浓度的增加, 吸附量增加很迅速, 接着吸附量增加缓慢, 并趋向于饱和. 进一步采用Langmuir模型和Freundlich模型对等温吸附数据进行拟合, 表达式如下所示^[34]:

$$q_e = \frac{K_L q_{\text{max}} C_e}{1 + K_L C_e} \quad (5)$$

图 7 (a) 溶液pH对Rh-SiO₂和Rh-MgSi吸附U(VI)的影响; (b) U(VI)在不同pH下的形态分布(网络版彩图)

Figure 7 (a) Effect of pH on U(VI) adsorption on Rh-SiO₂ and Rh-MgSi. (b) Species distribution of U(VI) as a function of pH (color online).

图 8 不同背景离子对Rh-SiO₂和Rh-MgSi吸附U(VI)的影响(网络版彩图)

Figure 8 The effect of different competitive ions on the amount of adsorbed U(VI) on Rh-SiO₂ and Rh-MgSi (color online).

表 2 Langmuir和Freundlich模型拟合相关系数

Table 2 The Langmuir and Freundlich isotherm model parameters for the U(VI) removed on Rh-SiO₂ and Rh-MgSi

吸附剂	Langmuir等温吸附			Freundlich等温吸附		
	$q_{\max}$ (mg/g)	K_L (L/mg)	R^2	K_F ((mg ¹⁻ⁿ /L ⁿ)/g)	n	R^2
Rh-SiO ₂	308.2	0.16	0.975	61.1	0.49	0.930
Rh-MgSi	663.7	0.81	0.985	280.6	0.38	0.982

$$q_e = K_F C_e^n \quad (6)$$

其中 $q_{\max}$ (mg/g)为单位质量吸附剂的最大吸附容量, K_L (L/mg)是Langmuir常数, K_F ((mg¹⁻ⁿ/Lⁿ)/g)是Freundlich常数, n 是与吸附强度相关的参数.从Langmuir模型和Freundlich模型线性关系拟合的实验结果(表2)来看,实验数据符合Langmuir吸附等温模型,这说明Rh-SiO₂和Rh-MgSi对U(VI)的吸附是单分子层的吸附过程. Rh-SiO₂和Rh-MgSi对U(VI)的最大吸附量分别为

308.2和663.7 mg/g. 与其他吸附剂吸附U(VI)的量相比,如Ca-Mg-Al LDH/LDO (486.8, 132.5 mg/g)^[35]、SiO₂@LDH (303.1 mg/g)^[36]、富羧基碳(197.7 mg/g)^[37]、Ca-Ti/Ca-Al合金氧化物(241.71、258.29 mg/g)^[38], Rh-MgSi对放射性U(VI)具有较强的吸附效果.同时,图9(b)显示Rh-MgSi对U(VI)的吸附在5个循环中再生效率几乎高于97%,表明Rh-MgSi在未来的实际应用中具有很好的稳定性和可重复利用性.

图9 (a) Rh-SiO₂和Rh-MgSi对U(VI)在室温下的吸附等温线, 实线是Langmuir方程拟合的曲线, 虚线是Freundlich模型拟合的曲线; (b) Rh-MgSi对U(VI)吸附稳定性测试(网络版彩图)

Figure 9 (a) Adsorption isotherms of U(VI) on Rh-SiO₂ and Rh-MgSi. (b) Reusable performance of the Rh-MgSi (color online).

4 结论

本文以廉价、产量丰富且可再生的稻壳为原料, 通过两步法制备了用于放射性核素U(VI)的去除高性能花状硅酸镁吸附剂, 系统研究了溶液pH、接触时间和吸附初始浓度等因素下对U(VI)的吸附行为, 相关结论如下: (1) 花状硅酸镁对U(VI)的吸附和pH有很强的依赖关系, 随着pH的增加, 对U(VI)的吸附量也随之增

加, 这和溶液中U(VI)存在的形式以及花状硅酸镁表面的电荷状态有关. (2) 花状硅酸镁对U(VI)的吸附动力学实验结果表明吸附过程符合拟二级动力学模型, 说明吸附过程是化学吸附主导的过程. (3) 花状硅酸镁对U(VI)的吸附过程符合Langmuir模型, 在室温下对U(VI)的最大吸附量高达663.7 mg/g, 显示出稻壳衍生的硅酸镁吸附剂对放射性核素具有较好的去除效果.

参考文献

- Sun Y, Yang S, Chen Y, Ding C, Cheng W, Wang X. *Environ Sci Technol*, 2015, 49: 4255–4262
- Chang K, Li X, Liao Q, Hu B, Hu J, Sheng G, Linghu W, Huang Y, Asiri AM, Alamry KA. *Chem Eng J*, 2017, 327: 320–327
- Chang K, Sun Y, Ye F, Li X, Sheng G, Zhao D, Linghu W, Li H, Liu J. *Chem Eng J*, 2017, 325: 665–671
- Sheng G, Huang C, Chen G, Sheng J, Ren X, Hu B, Ma J, Wang X, Huang Y, Alsaedi A, Hayat T. *Environ Pollut*, 2018, 233: 125–131
- Sheng G, Alsaedi A, Shammakh W, Monaqueel S, Sheng J, Wang X, Li H, Huang Y. *Carbon*, 2016, 99: 123–130
- Sheng G, Hu J, Li H, Li J, Huang Y. *Chemosphere*, 2016, 148: 227–232
- Sheng G, Tang Y, Linghu W, Wang L, Li J, Li H, Wang X, Huang Y. *Appl Catal B-Environ*, 2016, 192: 268–276
- Sheng G, Yang P, Tang Y, Hu Q, Li H, Ren X, Hu B, Wang X, Huang Y. *Appl Catal B-Environ*, 2016, 193: 189–197
- Shao D, Hou G, Li J, Wen T, Ren X, Wang X. *Chem Eng J*, 2014, 255: 604–612
- Hu B, Qiu M, Hu Q, Sun Y, Sheng G, Hu J, Ma J. *ACS Sustain Chem Eng*, 2017, 5: 6924–6931
- Hu B, Ye F, Jin C, Ma X, Huang C, Sheng G, Ma J, Wang X, Huang Y. *Chemosphere*, 2017, 184: 408–416
- Hu B, Hu Q, Chen C, Sun Y, Xu D, Sheng G. *Chem Eng J*, 2017, 322: 66–72
- Hu B, Huang C, Li X, Sheng G, Li H, Ren X, Ma J, Wang J, Huang Y. *Chem Eng J*, 2017, 313: 527–534
- Hu B, Chen G, Jin C, Hu J, Huang C, Sheng J, Sheng G, Ma J, Huang Y. *J Hazard Mater*, 2017, 336: 214–221
- Liu J, Luo X, Wang J, Xiao T, Chen D, Sheng G, Yin M, Lippold H, Wang C, Chen Y. *Environ Pollut*, 2017, 224: 445–453
- Zhang S, Yang H, Huang H, Gao H, Wang X, Cao R, Li J, Xu X, Wang X. *J Mater Chem A*, 2017, 5: 15913–15922
- Yang S, Wang X, Chen Z, Li Q, Niu B, Wang X. *Prog Chem*, 2018, 30: 225–242 (in Chinese) [杨姗姗, 王祥学, 陈中山, 李倩, 韦犇犇, 王祥科. 化学进展, 2018, 30: 225–242]
- Chen H, Huang S, Zhang Z, Liu Y, Wang X. *Acta Chim Sin*, 2017, 75: 560–574 (in Chinese) [陈海军, 黄舒怡, 张志宾, 刘云海, 王祥科. 化学学报, 2017, 75: 560–574]

- 19 Liang Y, Gu P, Yao W, Yu S, Wang J, Wang X. *Prog Chem*, 2017, 29: 1062–1071 (in Chinese) [梁宇, 顾鹏程, 姚文, 于淑君, 王建, 王祥科. 化学进展, 2017, 29: 1062–1071]
- 20 Li J, Wang X, Zhao G, Chen C, Chai Z, Alsaedi A, Hayat T, Wang X. *Chem Soc Rev*, 2018, 47: 2322–2356
- 21 Gu P, Zhang S, Li X, Wang X, Wen T, Jehan R, Alsaedi A, Hayat T, Wang X. *Environ Pollut*, 2018, 240: 493–505
- 22 Zhang S, Gao H, Huang Y, Wang X, Hayat T, Li J, Xu X, Wang X. *Environ Sci-Nano*, 2018, 5: 1179–1190
- 23 Fang Q, Xuan S, Jiang W, Gong X. *Adv Funct Mater*, 2011, 21: 1902–1909
- 24 Zhu J, Tang C, Zhuang Z, Shi C, Li N, Zhou L, Mai L. *ACS Appl Mater Interfaces*, 2017, 9: 24584–24590
- 25 Wang Y, Wang G, Wang H, Liang C, Cai W, Zhang L. *Chem Eur J*, 2010, 16: 3497–3503
- 26 Cao CY, Wei F, Qu J, Song WG. *Chem Eur J*, 2013, 19: 1558–1562
- 27 Qu J, Cao CY, Hong YL, Chen CQ, Zhu PP, Song WG, Wu ZY. *J Mater Chem*, 2012, 22: 3562–3567
- 28 Zheng J, Wu BH, Jiang ZY, Kuang Q, Fang XL, Xie ZX, Huang RB, Zheng LS. *Chem Asian J*, 2010, 5: 1439–1444
- 29 Zhang S, Gao H, Li J, Huang Y, Alsaedi A, Hayat T, Xu X, Wang X. *J Hazard Mater*, 2017, 321: 92–102
- 30 Pang H, Wang X, Yao W, Yu S, Wang X. *Sci Sin-Chim*, 2018, 48: 58–73 (in Chinese) [庞宏伟, 王祥学, 姚文, 于淑君, 王祥科. 中国科学: 化学, 2018, 48: 58–73]
- 31 Zhang N, Zhang TN, Jiang JC, Wang CL, Liu CL. *Sci Sin Chem*, 2016, 46: 409–416 (in Chinese) [张娜, 张陶娜, 蒋京呈, 王春丽, 刘春立. 中国科学: 化学, 2016, 46: 409–416]
- 32 Dong W, Ball WP, Liu C, Wang Z, Stone AT, Bai J, Zachara JM. *Environ Sci Technol*, 2005, 39: 7949–7955
- 33 Fox PM, Davis JA, Zachara JM. *Geochim Cosmochim Acta*, 2006, 70: 1379–1387
- 34 Chen H, Shao D, Li J, Wang X. *Chem Eng J*, 2014, 254: 623–634
- 35 Zou Y, Wang X, Wu F, Yu S, Hu Y, Song W, Liu Y, Wang H, Hayat T, Wang X. *ACS Sustain Chem Eng*, 2017, 5: 1173–1185
- 36 Yang D, Song S, Zou Y, Wang X, Yu S, Wen T, Wang H, Hayat T, Alsaedi A, Wang X. *Chem Eng J*, 2017, 323: 143–152
- 37 Han B, Zhang E, Cheng G, Zhang L, Wang D, Wang X. *Chem Eng J*, 2018, 338: 734–744
- 38 Hu Y, Wang X, Zou Y, Wen T, Wang X, Alsaedi A, Hayat T, Wang X. *Chem Eng J*, 2017, 316: 419–428

Preparation of flower-like magnesium silicate from biomass silicon for radionuclide U(VI) removal

Huihui Gao^{1,2}, Xiaolong Deng¹, Jinzhao Huang¹, Shouwei Zhang^{1*}, Jiaxing Li^{2*}

¹ School of Physics and Technology, University of Jinan, Jinan 250022, China

² Institute of Plasma Physics, Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031, China

*Corresponding authors (email: sps_zhangsw@ujn.edu.cn; lijx@ipp.ac.cn)

Abstract: The serious environmental pollution have been one of the most important scientific problems to be urgently solved in the social development process. Metal silicates have attracted extensive interest due to their unique structure and promising properties in adsorption. Rice husks are suitable natural reservoirs for the preparation of high value-added nanostructured silicate-based adsorbents. Inspired by this proposal, we herein reported a facile and general strategy to fabricate flower-like magnesium silicate with ultrathin nanosheets from the low-cost rice husks as sustainable silicon sources. The as-prepared magnesium silicate was used as an adsorbent to test its adsorption performance towards U(VI) remove. Dependent on batch adsorption experiments, the adsorption behavior and removal efficiency of U(VI) under various environmental conditions (e.g., pH, contact time and solid content) were simulated systematically. The results showed that the adsorptive properties were highly pH dependent. The adsorption system obeyed the pseudo-second-order kinetic models. The adsorption data were well fitted with the Langmuir isotherms, and the maximum adsorption capacity was up to ~663.7 mg/g.

Keywords: biomass silicon, magnesium silicate, radionuclide U(VI), adsorption

doi: [10.1360/N032018-00131](https://doi.org/10.1360/N032018-00131)