



羧化纤维素气凝胶的制备及其对亚甲基蓝染料的吸附性能

关炳月¹, 刘 涛^{1,2}, 丁新波¹, 王吉楠¹, 王 寅¹

(1. 浙江理工大学纺织科学与工程学院(国际丝绸学院), 杭州 310018;

2. 浙江理工大学科技与艺术学院, 浙江绍兴 312369)

摘要: 为研究羧化纤维素气凝胶对亚甲基蓝的吸附性能, 以微晶纤维素为原料, 利用 2,2,4,6-四甲基哌啶氧化物(TEMPO)介导氧化制备羧化纤维素, 并通过冷冻干燥制备羧化纤维素气凝胶。通过电导率仪、红外光谱仪、热重分析仪和扫描电子显微镜对制备所得羧化纤维素气凝胶的羧基含量、形貌和结构进行表征, 探究 pH 值、溶液初始质量浓度、温度等因素对羧化纤维素气凝胶吸附性能的影响。结果表明: 与纤维素气凝胶相比, 羧基含量为 0.625 mmol/g 的羧化纤维素气凝胶孔洞结构明显增多, 微孔结构比纤维素气凝胶更加均匀, 孔隙率高达 89%, 吸附平衡时间从 20 min 延长至 60 min。当溶液初始质量浓度为 500 mg/L 时吸附量高达 267.88 mg/g; 在 pH 大于 2 的条件下, 羧化纤维素气凝胶最大吸附量可达 73.57 mg/g; 在 25°C 时, 羧化纤维素气凝胶对亚甲基蓝的吸附量最大, 从 11.06 mg/g 提升至 77.32 mg/g。本文制备所得羧化纤维素气凝胶有望作为一种去除废水中阳离子污染物的良好吸附剂。

关键词: 微晶纤维素; TEMPO; 气凝胶; 亚甲基蓝; 吸附

中图分类号: TQ352.4

文献标志码: A

文章编号: 1673-3851 (2022) 03-0166-07

Preparation of carboxylated cellulose aerogel and its adsorption properties for methylene blue dye

GUAN Bingyue¹, LIU Tao^{1,2}, DING Xinbo¹, WANG Jinan¹, WANG Yin¹

(1. College of Textile Science and Engineering (International Institute of Silk), Zhejiang Sci-Tech University, Hangzhou 310018, China; 2. Keyi College of Zhejiang Sci-Tech University, Zhejiang Shaoxing 312369, China)

Abstract: In order to study the adsorption properties of carboxylated cellulose aerogel for methylene blue, carboxylated cellulose was prepared by 2,2,4,6-tetramethylpiperidine oxide mediated oxidation using microcrystalline cellulose as the raw material, and then carboxylated cellulose aerogel was prepared by freeze drying method. The carboxyl group content, morphology and structure of the prepared carboxylated cellulose aerogel were characterized using conductivity meter, infrared spectrometer, thermogravimetric analyzer and scanning electron microscope, and the influence of pH value, initial solution concentration, temperature and other factors on the adsorption properties of carboxylated cellulose aerogel was investigated. The results show that: compared with cellulose aerogel, the carboxylated cellulose aerogel with a carboxyl group content of 0.625 mmol/g has significantly more pore structures, and the microporous structure is more uniform than that of cellulose aerogel, with a porosity of up to 89%. The adsorption equilibrium time is extended from 20 min to 60 min. When the initial concentration of the solution is 500 mg/L, the adsorption capacity is as high as 267.88 mg/g. Under the condition of pH above

2, the maximum adsorption capacity of carboxylated cellulose aerogel can reach 73.57 mg/g; at 25 °C, carboxylated cellulose aerogel has the maximum adsorption for methylene blue, an increase from 11.06 mg/g to 77.32 mg/g. The carboxylated cellulose aerogel prepared in this study is expected to be a good adsorbent for removing cationic pollutants in wastewater.

Key words: microcrystalline cellulose; TEMPO; aerogel; methylene blue; adsorption

0 引言

染料广泛用于纺织厂和造纸厂^[1]。由偶氮化合物或芳香胺组成的部分染料能致癌或致畸^[2-3]。这类染料如果直接排入水中,会对水环境造成严重危害^[4]。带正电荷的阳离子染料亚甲基蓝是印染废水中常见的污染物^[5],可使水体透明度降低,对人类和生态系统都会产生一定的危害^[6-7]。人体若不小心接触亚甲基蓝染料废水,短期内会出现呼吸困难、心率加快、呕吐、休克、黄疸等不良反应^[8]。此外,亚甲基蓝还是一种耐酸、耐碱、抗氧化的化合物,具有不易被生物降解的特征^[9-10]。因此,含有亚甲基蓝的废水在排放前必须进行针对性处理。

絮凝法、混凝法、膜分离法、生物处理法和吸附法等^[11-12]被证明是去除染料废水中染料的有效方法。相比之下,吸附法具有操作简单、成本低、效率高的优点^[13]。何雪梅等^[14]通过溶液共混和冷冻干燥技术制备了壳聚糖/微晶/聚多巴胺/二氧化钛(CS/WSK/PDA/TiO₂)杂化气凝胶,该气凝胶对活性红紫X-2R、活性红KE-3B和活性黄M-3BE的吸附量可分别达到400.0、398.4、404.9 mg/g;程金瑜等^[15]采用水热法制备纳米多孔二氧化硅微球,其对水中的罗丹明B染料具有较好的吸附效果,且具有良好的可重复利用性;胡耀强等^[16]采用水热-冷冻干燥法制备生物质碳气凝胶(WUA),其对刚果红(CR)和孔雀石绿(MG)染料均表现出较好的吸附效果。因此,获得高效吸附剂将是处理亚甲基蓝废水的关键。

纤维素是地球上最丰富的生物材料^[17],也是一种被广泛利用的可再生自然资源,具有独特的物理和化学性质,且价格低廉^[18]。然而,天然纤维素的溶解性和加工性较差,这在很大程度上限制了其应用^[19]。近年来,通过2,2,4,6-四甲基哌啶氧化物(TEMPO)介导氧化法处理纤维素的研究进展迅速,获得的产物中含有的大量羧酸基团($-COO^-$),其可与阳离子污染物通过电荷作用相结合^[20-21],有望用作高效吸附剂。

本文通过简单的方法制备了一种含有羧酸基团

的高效阳染料吸附剂,并将其用于吸附亚甲基蓝染料。利用2,2,4,6-四甲基哌啶氧化物介导氧化制备羧化纤维素,经冷冻干燥制备羧化纤维素气凝胶,并采用多种测试方法对羧化纤维素气凝胶进行表征,探究羧化纤维素气凝胶在不同实验条件下对亚甲基蓝染料的吸附性能。本文的研究为阳离子污染物的去除方法提供了新思路。

1 实验部分

1.1 材料与仪器

微晶纤维素(MCC,国药集团化学试剂有限公司),尿素(分析纯,上海麦克林生化科技有限公司),氢氧化钠(NaOH,分析纯,天津市永大化学试剂有限公司),浓盐酸(分析纯,杭州双林化工试剂有限公司),无水乙醇(分析纯,杭州高晶精细化工有限公司),去离子水(实验室自制),2,2,4,6-四甲基哌啶氧化物(>98%,上海麦克林生化科技有限公司),溴化钠(NaBr,分析纯,上海麦克林生化科技有限公司),次氯酸钠水溶液(6%~14%有效氯含量,上海麦克林生化科技有限公司),氯化钠(分析纯,杭州高晶精细化工有限公司),亚甲基蓝(>98%,上海麦克林生化科技有限公司)。

pH计(FE20型,上海梅特勒托利多仪器公司),冷冻干燥机(FD-1 A-50型,上海比朗仪器制造有限公司),雷磁 DDSJ-308 A电导率仪,场发射扫描电子显微镜(Ultra55型,德国Carl Zeiss公司),傅立叶红外光谱仪(Nicolet5700型,美国Thermo Electron公司),热重分析仪(Pyris-1型,美国Perkin-Elmer公司),紫外分光光度计(UV-2600型,日本Shimadzu公司)。

1.2 改性纤维素的制备

依次将7.0 g氢氧化钠和12.0 g尿素加入81 mL去离子水中,搅拌均匀后得到氢氧化钠/尿素水溶液。将混合水溶液置于低温冰箱中冷冻,12 h后取出解冻;随后称取质量分数为2%的微晶纤维素缓慢倒进氢氧化钠/尿素水溶液中搅拌6 h,得到澄清的纤维素水溶液;接着将其放进冰箱进行冷冻,12 h之后取出进行解冻。将纤维素水溶液倒入乙醇

中凝固一段时间,直至纤维素水凝胶在乙醇中完全漂浮起来,然后用0.1 mol/L的盐酸水溶液和去离子水水洗至中性,最后放入冰箱冷藏备用。

称取一定量纤维素气凝胶置于5 mL去离子水中获取悬浮液,然后称取一定量的溴化钠(0.10 mmol/g纤维素)和2,2,4,6-四甲基哌啶氧化物(0.01 mmol/g纤维素)作为羧化反应的催化剂溶于悬浮液中进行搅拌,再分别称取1、3、5、7、9 mmol/g纤维素的次氯酸钠加入悬浮液中进行搅拌,并加入0.5 mol/L氢氧化钠水溶液使其pH保持在10.0~10.5之间,搅拌6 h,使反应充分,倒入一定量的乙醇终止反应。用0.1 mol/L的盐酸水溶液和去离子水洗至中性,随后把羧化纤维素水凝胶进行冷冻干燥得到羧化纤维素气凝胶。

1.3 测试与表征

1.3.1 羧基含量的测定

用电导滴定法研究了羧基的含量。取0.1 g羧化纤维素气凝胶悬浮于100 mL去离子水中,加入0.01 mol的氯化钠,再加入0.1 mol/L盐酸水溶液进行搅拌使羧化纤维素气凝胶充分酸化,以保证羧酸钠($-COONa$)全部转化为羧基($-COOH$),pH保持在2.5~3.0。然后将0.025 mol/L的氢氧化钠标准水溶液滴加到悬浮液中,每次滴加0.1 mL氢氧化钠水溶液,间隔时间30 s,直至pH达到11.0,记录悬浮液电导率的变化和氢氧化钠水溶液的滴加量。羧基含量(n_{COOH} , mmol/g)的计算公式可用式(1)表示:

$$n_{COOH} = \frac{c \times (V_2 - V_1)}{m} \quad (1)$$

其中: c 为氢氧化钠标准水溶液的浓度, mol/L; V_1 为电导率最低时标准氢氧化钠消耗量的最小值, mL; V_2 为电导率最低时标准氢氧化钠消耗量的最大值, mL; m 为样品质量的绝对干重, g。

1.3.2 形貌及结构分析

利用扫描电子显微镜对气凝胶的外观形态进行观察,工作电压为3 kV。

1.3.3 化学结构分析

使用傅里叶红外光谱仪对气凝胶的化学结构进行分析。采用溴化钾压片法对气凝胶进行制样,表征其红外吸收峰,波数范围为4000~400 cm⁻¹。

1.3.4 热重分析

热失重测试在热重分析仪上进行,测试温度为室温到800 °C,温度上升速率为15 °C/min,在氮气条件下进行。

1.3.5 孔隙率测试

用无水乙醇为介质,采用比重瓶法来测定不同次氯酸钠添加量下羧化纤维素气凝胶的孔隙率,每个样品重复3次。孔隙率的计算公式可用式(2)表示:

$$P = \frac{(m_2 - m_3 - m_s)}{(m_1 - m_3)} \times 100\% \quad (2)$$

其中: P 代表孔隙率,%; m_1 代表比重瓶和乙醇的总质量,g; m_2 代表加入样品后反复抽真空后比重瓶和乙醇的总质量,g; m_3 代表反复抽真空后取出样品后比重瓶和剩余乙醇的总质量,g; m_s 代表气凝胶干重,g。

1.3.6 染料降解性能测试

在200~800 nm范围内,用紫外分光光度仪测出亚甲基蓝的最大吸收波长,波长为669 nm。配置质量浓度(C , mg/L)为0.125、0.250、2.500、4.000、5.000 mg/L的亚甲基蓝标准溶液,借助紫外分光光度仪测得吸光度 A ,绘制出标准曲线,结果如图1所示。

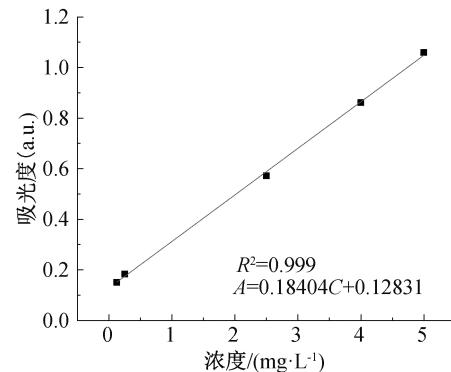


图1 亚甲基蓝水溶液的标准曲线

取50 mg吸附剂置于50 mL质量浓度为100 mg/L的亚甲基蓝水溶液中进行吸附降解,设定反应温度为25 °C;然后对在不同时间、不同初始质量浓度、不同初始pH、不同温度下吸附前后的亚甲基蓝水溶液进行测定。将测得的吸光度带入标准曲线方程获得对应亚甲基蓝水溶液的质量浓度,并根据相关计算公式得出吸附量和吸附率,对其吸附性能进行分析。吸附量计算公式可用式(3)表示,吸附率计算公式可用式(4)表示:

$$q_e = \frac{(C_0 - C_e)V}{m_0} \quad (3)$$

$$A = \frac{C_0 - C_e}{C_0} \times 100\% \quad (4)$$

其中: C_0 和 C_e 分别为初始和平衡时间的亚甲基蓝溶液的质量浓度,mg/L; m_0 为吸附剂的绝对干重,g; V 为溶液体积,L。

2 结果与讨论

2.1 羧化纤维素性能分析

2.1.1 羧基含量分析

图2为不同次氯酸钠添加量下制备所得羧化纤维素气凝胶的羧基含量图。在TEMPO介导氧化纤维素的过程中,羧基含量主要受氧化剂次氯酸钠添加量的影响。从图2中可以看出,随着次氯酸钠添加量不断增加,羧基含量随之增加,而这主要是羧化反应不断增强所导致的。

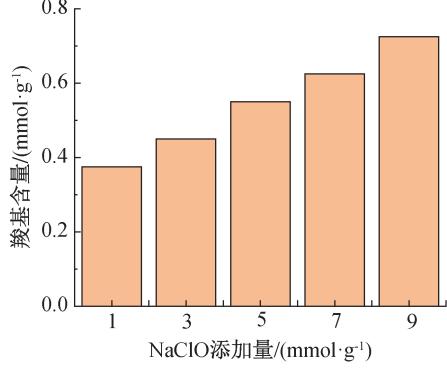


图2 不同次氯酸钠添加量下制备所得羧化纤维素气凝胶的羧基含量

2.1.2 FTIR分析

图3为纤维素气凝胶和羧化纤维素气凝胶的红外光谱图。由图3可知,纤维素气凝胶及羧化纤维素气凝胶的红外光谱均在3440、2891 cm⁻¹和1060 cm⁻¹处出现振动峰,分别对应—OH、C—H和

C—O基团的伸缩振动。羧化纤维素气凝胶在3440 cm⁻¹处峰值伸缩振动变宽,并在1609 cm⁻¹处出现新的振动峰,该振动峰属于羧酸酯基团的伸缩振动。综上可得,羧化反应发生在纤维素的C6位置,其中的羟甲基部分转化为羧酸酯基团。

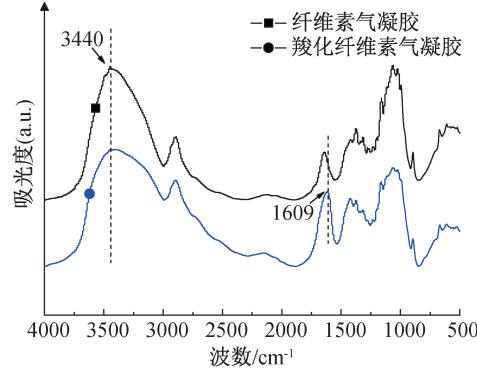


图3 纤维素及羧化纤维素气凝胶的红外光谱图

2.1.3 TG分析

纤维素及羧化纤维素气凝胶的热重曲线和热分解曲线如图4所示。由图4可知,羧化纤维素气凝胶的热分解过程的起始分解温度为215 °C,比纤维素气凝胶的分解温度低74 °C,这一阶段持续到259 °C主要是由于羧化纤维素的分解和脱羧反应释放出二氧化碳所致;第二阶段为259~322 °C,失重4%,此时分解速率达到最高水平,这是纤维素继续分解及挥发性分子释放所致;当温度达到800 °C时,残余量为28%,高出纤维素气凝胶14%,可能是由于TEMPO介导的氧化过程中引入了剩余的钠元素。

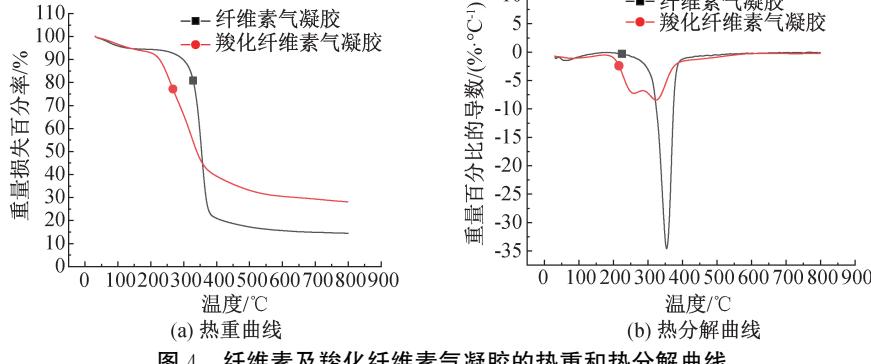


图4 纤维素及羧化纤维素气凝胶的热重和热分解曲线

2.1.4 微观结构分析

纤维素及羧化纤维素气凝胶的SEM图像如图5所示。相较于纤维素气凝胶,次氯酸钠添加量为7 mmol/g纤维素、羧基含量为0.625 mmol/g时,羧化纤维素气凝胶有较好的三维孔洞结构,并且微孔结构更加均匀。这是由于氧化剂和水分子渗透到纤维素气凝胶中,氧化了孔的内壁。

2.1.5 孔隙率分析

不同次氯酸钠用量下羧化纤维素气凝胶的孔隙率如图6所示。经测试,纤维素气凝胶的孔隙率为68%。相较于纤维素气凝胶,羧化纤维素气凝胶的孔隙率明显被提高,最大值达到89%,这归因于其具有更规整的三维孔洞结构。随着次氯酸钠添加量的增加,纤维素气凝胶被过度羧化,不易成型,造成气凝胶的机械性能急剧下降,孔隙率呈现逐渐减小的趋势。

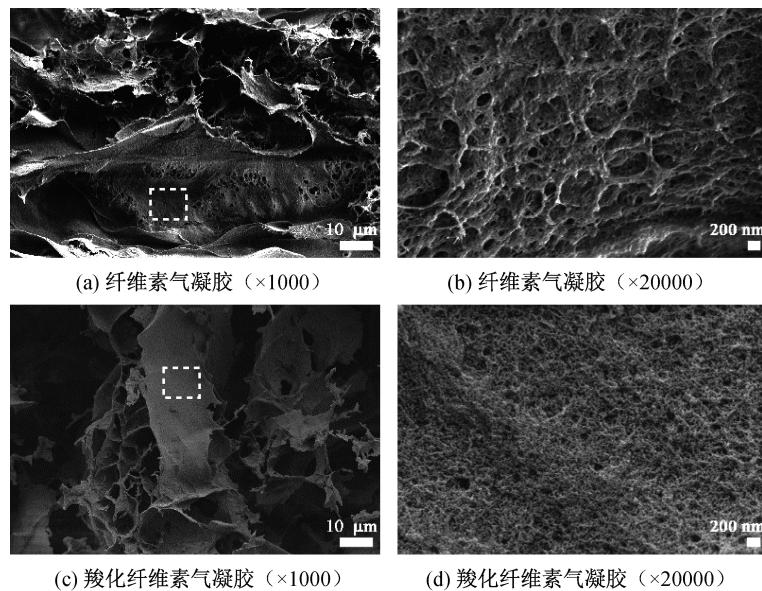


图 5 纤维素及羧化纤维素气凝胶的 SEM 图像

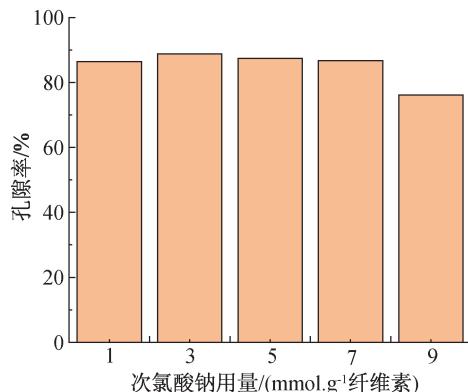


图 6 不同次氯酸钠用量下羧化纤维素气凝胶的孔隙率

2.2 不同条件下羧化纤维素对亚甲基蓝的吸附性能

2.2.1 吸附时间

选定次氯酸钠添加量为 7 mmol/g 纤维素、

羧基含量为 0.625 mmol/g 的羧化纤维素气凝胶进行吸附测试。在不同吸附时间下,纤维素及羧化纤维素气凝胶对亚甲基蓝水溶液的吸附性能如图 7 所示。相较于纤维素气凝胶,羧化纤维素气凝胶对亚甲基蓝的吸附性能得到很大提升,这是由于诱导的氧化反应可以产生羧基,选择性氧化脱水葡萄糖单元的 C6,促进了阳离子物质在其表面的吸附能力。在前 20 min 内,吸附率较快;在 20~60 min 之间,吸附速率明显降低,吸附平衡时间为 60 min,最大吸附量达到 77.32 mg/g。以上结果表明羧化纤维素气凝胶对亚甲基蓝水溶液主要为物理吸附,整个吸附过程符合多孔吸附剂的液相吸附特性,并且以相对较高的速率达到平衡。

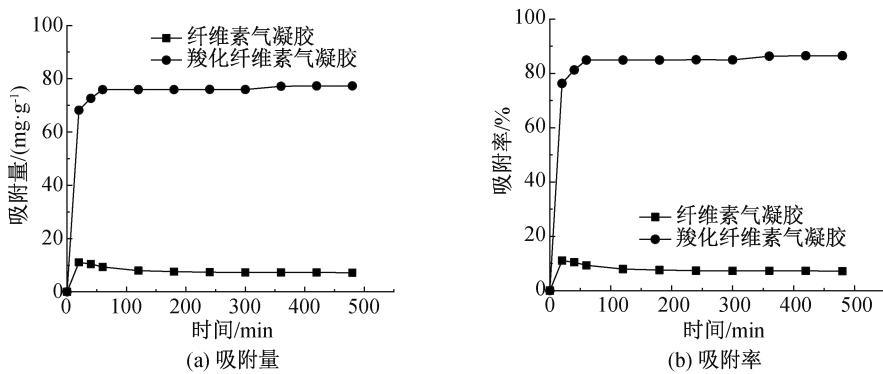


图 7 不同吸附时间下羧化纤维素气凝胶对亚甲基蓝的吸附量和吸附率

2.2.2 染料初始质量浓度

羧化纤维素对不同初始质量浓度亚甲基蓝染料的吸附性能如图 8 所示。在吸附过程中,溶液的初

始质量浓度对纤维素气凝胶的吸附量有很大影响。随着初始质量浓度的增加,羧化纤维素气凝胶对亚甲基蓝的吸附量逐渐增加,但吸附率基本呈减小的

趋势。这是由于亚甲基蓝的质量浓度大于等于吸附位点数目的上限时,吸附位点数目不变,吸附量达到平衡不再上升。当染料溶液初始质量浓度为500 mg/L时,羧化纤维素的吸附量高达267.88 mg/g。

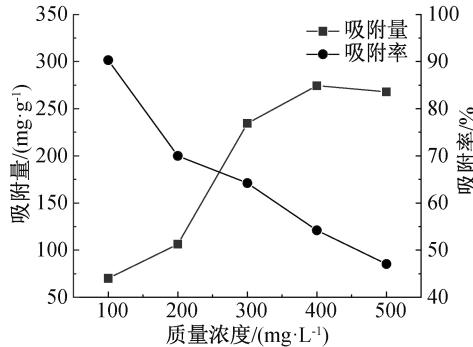


图8 不同初始质量浓度下羧化纤维素气凝胶对亚甲基蓝的吸附量和吸附率

2.2.3 溶液初始 pH

羧化纤维素对不同 pH 亚甲基蓝的吸附性能如图 9 所示。在 pH 大于 2 的条件下,吸附能力基本不受酸碱度的影响,羧化纤维素气凝胶最大吸附量可达 73.57 mg/g。当溶液 pH 为 2 时,溶液呈强酸性,含有较高的氢离子。亚甲基蓝是一种阳离子染料,带有正电荷,溶液中氢离子和带正电的亚甲基蓝在吸附时存在竞争性。当 pH 升高时,溶液呈碱性,表面的羧基由于去质子化作用增加了羧化纤维素气

凝胶的负电荷,因此可以产生更多的吸附点。

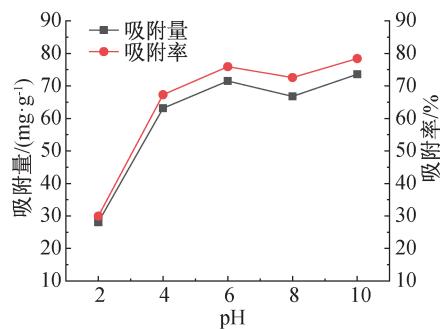


图9 不同 pH 下羧化纤维素气凝胶对亚甲基蓝的吸附量和吸附率

2.2.4 吸附温度

不同吸附温度下,羧化纤维素对亚甲基蓝的吸附性能如图 10 所示。在 25 °C 时,羧化纤维素气凝胶对亚甲基蓝水溶液的吸附量最高可达 77.32 mg/g。随着温度的升高,羧化纤维素对亚甲基蓝的吸附量和吸附率呈减小的趋势,吸附量由 67.32 mg/g 减小到 57.98 mg/g,吸附率由 86.52% 减小到 61.79%,并且吸附速率也有所降低。根据液相吸附的溶剂置换理论,亚甲基蓝的扩散速率受温度变化和扩散速度的影响。温度升高会导致吸附率和吸附量减小,这表明亚甲基蓝在羧化纤维素气凝胶上的吸附是放热反应。

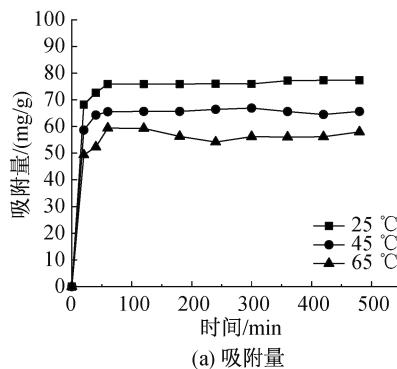
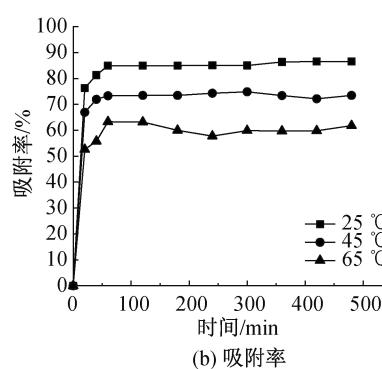


图10 不同温度下羧化纤维素气凝胶对亚甲基蓝的吸附量和吸附率



(b) 吸附率

3 结论

本文采用 TEMPO 介导氧化和冷冻干燥制备羧化纤维素气凝胶,对制备所得羧化纤维素气凝胶的羧基含量、形貌和结构进行表征,考察羧化纤维素气凝胶对亚甲基蓝水溶液的吸附性能,并探究不同吸附条件对羧化纤维素气凝胶吸附性能的影响,得到以下主要结论:

a)相较于纤维素气凝胶,羧基含量为 0.625 mmol/g

的羧化纤维素气凝胶孔洞结构明显增多,微孔结构比纤维素气凝胶更加均匀,孔隙率高达 89%,吸附平衡时间从 20 min 延长至 60 min。

b)当染料溶液初始质量浓度为 500 mg/L 时吸附量高达 267.88 mg/g;在 pH 大于 2 的条件下,羧化纤维素气凝胶仍有优异的吸附效果,最大吸附量可达 73.57 mg/g;在 25 °C 时,羧化纤维素气凝胶对亚甲基蓝水溶液的吸附量随着反应时间的增加而增加,最高可达 77.32 mg/g,与大多数吸附剂相当甚至更高。

参考文献:

- [1] 杜国勇, 奚君男, 王永红, 等. CMS/AMPS/AM 水凝胶的制备及其对亚甲基蓝的吸附[J]. 山东化工, 2021, 50(9): 10-12.
- [2] Liu Z W, Cao C X, Han B H. A cationic porous organic polymer for high-capacity, fast, and selective capture of anionic pollutants[J]. Journal of Hazardous Materials, 2019, 367: 348-355.
- [3] Jayapal M, Jagadeesan H, Shanmugam M, et al. Sequential anaerobic-aerobic treatment using plant microbe integrated system for degradation of azo dyes and their aromatic amines by-products[J]. Journal of Hazardous Materials, 2018, 354: 231-243.
- [4] Liu Y Y, Jin W, Zhao Y P, et al. Enhanced catalytic degradation of methylene blue by α -Fe₂O₃/graphene oxide via heterogeneous photo-Fenton reactions [J]. Applied Catalysis B: Environmental, 2017, 206: 642-652.
- [5] Mashkoor F, Nasar A. Magsorbents: Potential candidates in wastewater treatment technology-A review on the removal of methylene blue dye[J]. Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 2020, 500: 166408.
- [6] He K, Chen G Q, Zeng G M, et al. Enhanced removal performance for methylene blue by Kaolin with graphene oxide modification[J]. Journal of the Taiwan Institute of Chemical Engineers, 2018, 89: 77-85.
- [7] Dinh H T, Tran N T, Trinh D X. Investigation into the adsorption of methylene blue and methyl orange by UiO-66-NO₂ nanoparticles [J]. Journal of Analytical Methods in Chemistry, 2021, 2021: 1-10.
- [8] Sathiyavimal S, Vasantha Raj S, Shanmugavel M, et al. Facile synthesis and characterization of hydroxyapatite from fish bones: Photocatalytic degradation of industrial dyes (crystal violet and Congo red) [J]. Progress in Organic Coatings, 2020, 148: 105890.
- [9] Fadillah G, Saleh T A, Wahyuningsih S, et al. Electrochemical removal of methylene blue using alginate-modified graphene adsorbents [J]. Chemical Engineering Journal, 2019, 378: 122140.
- [10] Li Y H, Du Q J, Liu T H, et al. Methylene blue adsorption on graphene oxide/calcium alginate composites[J]. Carbohydrate Polymers, 2013, 95(1): 501-507.
- [11] 段安阳, 李柱泉, 苏扬帆, 等. 纤维素纳米纤维膜的改性及其染料吸附性能[J]. 精细化工, 2020, 37(10): 2002-2008.
- [12] 薛蓓, 房伶晏, 梁辰, 等. 磁性木质素制备及其对染料的吸附性能[J]. 林业工程学报, 2019, 4(4): 85-92.
- [13] Li X P, Wang C B, Zhang J G, et al. Preparation and application of magnetic biochar in water treatment: A critical review[J]. Science of the Total Environment, 2020, 711: 134847.
- [14] 何雪梅, 冒海燕, 蔡露. 壳聚糖基杂化气凝胶对活性染料的吸附性能[J]. 纺织学报, 2021, 42(2): 148-155.
- [15] 程金瑜, 刘朋威, 何铠君, 等. 纳米多孔二氧化硅微球在染料罗丹明 B 吸附中的应用[J]. 染整技术, 2021, 43(8): 36-41.
- [16] 胡耀强, 房得珍, 叶秀深, 等. 西瓜皮基生物质碳气凝胶的制备及对染料的吸附[J]. 材料导报, 2021, 35(11): 11007-11012.
- [17] Wang H, Gurau G, Rogers R D. Ionic liquid processing of cellulose[J]. Chemical Society Reviews, 2012, 41(4): 1519-1537.
- [18] Nordin A H, Wong S, Ngadi N, et al. Surface functionalization of cellulose with polyethyleneimine and magnetic nanoparticles for efficient removal of anionic dye in wastewater[J]. Journal of Environmental Chemical Engineering, 2021, 9(1): 104639.
- [19] 葛文斌, 冯新星, 张华鹏. TEMPO 介导氧化纤维素模板 Zr/Si 气凝胶的合成和测试[J]. 浙江理工大学学报(自然科学版), 2021, 45(4): 437-444.
- [20] Li C, Ma H Y, Venkateswaran S, et al. Highly efficient and sustainable carboxylated cellulose filters for removal of cationic dyes/heavy metals ions [J]. Chemical Engineering Journal, 2020, 389: 123458.
- [21] Mohammed N, Lian H, Islam M S, et al. Selective adsorption and separation of organic dyes using functionalized cellulose nanocrystals [J]. Chemical Engineering Journal, 2021, 417: 129237.

(责任编辑:刘国金)