

石墨烯三维宏观体的构筑及石墨烯基复合材料 对水体中常见污染物的去除研究进展

钱春园 张 婷* 董玲玉

(兰州理工大学,兰州 730050)

摘 要 系统总结了石墨烯基三维宏观体材料的几种构筑方法,综述了石墨烯基复合材料在染料、重金属离子、油类和有机溶剂等水体常见污染物中的研究进展。石墨烯基复合材料的稳定性能、高效、再生、成本及其在水处理领域的实际应用仍然是今后研究的重点。

关键词 石墨烯,三维宏观体,常见污染物,研究进展

Study progress of construction of three-dimensional graphene and its composite for main pollutants removal

Qian Chunyuan Zhang Ting Dong Lingyu

(Lanzhou University of Technology,Lanzhou 730050)

Abstract Several methods for the construction of graphene-based three-dimensional macroscopic materials were systematically summarized, and reviewed the research progress of graphene-based composite materials in common pollutants such as dyes, heavy metal ions, oils, and organic solvents. The stability, efficiency, regeneration, and low cost of graphene-based composites and their practical application in water treatment were still the focus of future research.

Key words graphene, three-dimensional graphene, common pollutant, research progress

英国曼彻斯特大学物理学家盖姆和诺沃肖洛夫从石墨中分离出由碳原子组成的二维晶体石墨烯,其断裂强度高,是目前自然界存在强度最高、最薄的材料。石墨烯因比表面积大、机械强度高优异性能^[1-4],在集成电路^[5]、太阳能电池^[6]、超级电容器^[7]、复合材料^[8]、生物医药^[9]、环境吸附^[10]和催化^[11-14]等领域具有良好的应用前景。石墨烯基三维宏观体具有高比表面积和三维孔状结构,增强了其吸附能力,同时三维结构解决了二维石墨烯片层的团聚和堆叠的缺陷。笔者系统总结了石墨烯基三维宏观体的构筑方法,论述了石墨烯基复合材料在污水处理领域的研究进展。

1 石墨烯基三维宏观体的构筑方法

石墨烯基三维宏观体的构筑主要包括合成和修饰两部分。合成是指以氧化石墨烯为前驱体制备三

维石墨烯。常见的方法包括模板化学气相沉积(CVD)法、自组装以及 3D 打印等。修饰是指负载金属纳米颗粒、与其他碳质材料的共筑以及三维宏观体内片层的掺杂。不同的修饰方法使石墨烯三维宏观体具有不同的性质,笔者主要介绍石墨烯三维宏观体的合成^[15]。

1.1 模板 CVD 法

模板 CVD 法通常以泡沫镍为模板,利用 CVD 法在其上生长石墨烯。以烷烃为碳源,C 原子在高温下分解,然后溶解扩散到泡沫镍中,通过快速冷却析出 C 原子,沉淀到泡沫镍表面,形成与泡沫镍结构相似的三维石墨烯结构。泡沫镍既是石墨烯生长的催化剂,也是构成三维结构的模板。Chen 等^[16]以甲烷为碳源,以泡沫镍为模板制备石墨烯,在 1000℃ 的环境压力下,石墨烯薄膜沉淀到泡沫镍表面。由于镍和石墨烯的膨胀系数不同,在石墨烯表

基金项目:国家自然科学基金(51302123)

作者简介:钱春园(1994-),女,硕士研究生,主要从事环境催化方面的研究。

联系人:张婷(1979-),女,博士,副教授,主要主要从事环境催化方面的研究。

面会形成波纹和褶皱,波纹和褶皱会增强泡沫石墨烯与聚合物结合形成复合材料时的物理结合能力,从而提高附着力。实验中将聚甲基丙烯酸甲酯(PMMA)涂到石墨烯的表面保护石墨烯的三维结构,最后用丙酮去除 PMMA 制备三维石墨烯。制备的石墨烯孔隙率高达 99.7%,表面积达到了 $850\text{m}^2/\text{g}$ 。Wilson 等^[17]以反蛋白石和倾斜纳米柱型金属为模板,利用 CVD 法倾斜沉积碳源,制备具有新颖结构、可控构筑的三维石墨烯。在 1000°C 下,以倾斜纳米柱型金属为模板制备石墨烯的过程中,纳米结构大量融化,而以反蛋白石为模板的纳米结构没有发生变化。采用模板 CVD 法制备的石墨烯结构完整,具有较高的物理和力学特性,但是过程复杂,制备成本高。

1.2 3D 打印技术

3D 打印石墨烯功能材料是目前石墨烯材料研究的前沿领域之一。通过氧化还原等技术制备的石墨烯材料其可剪裁性差,力学性能调变性弱。3D 打印技术优化了石墨烯材料这一缺点,所制备的石墨烯功能材料除了能够进行新颖的几何形状设计和精确的多尺度结构剪裁外,同时可以将陶瓷、金属和聚合物等按层加热和沉积,然后通过计算机控制建造^[18]。

Sha 等^[19]利用 3D 打印技术,通过层层组装的方法制备出了高质量的三维石墨烯泡沫(3DGFs)。实验中每层都用 CO_2 激光进行处理,通过手动逐层供给 Ni 和蔗糖粉末原位合成独立 3DGFs。3D 印刷技术制备的石墨烯泡沫(GF)与使用其他工艺制造的 GF 相比,这种简单高效的 GF 印刷方法无需冷压模或高温 CVD 处理,不需要其他粘结剂的添加。此外,GF 的形状可由激光切割器设计,形状多样,经过蚀刻和干燥后的 GF 可以保持良好的结构。通过 3D 打印技术制备的 3DGFs 在需要快速成型和制造 3D 碳的领域展现出良好的应用前景。

Zhang 等^[20]采用 3D 打印技术,首先构建了具有一定几何形态的高分子支撑模板,然后将流动性能良好的氧化石墨烯混合液注入到模板中。通过改进的水热反应和冷冻干燥工艺处理,最后用热刻蚀处理法去除高分子支撑模板,得到微观上具有有序排布的蜂窝多孔结构,宏观上具有连续 3D 镂空特征的三维石墨烯结构。实验在 3D 打印模板辅助剪裁和微观自组装调控机制的基础上,实现了石墨烯宏观体几何结构形态的多尺度可控制备。制备的石

烯材料稳定性强、吸附容量大、高导电、低导热,这些特性使石墨烯材料能够在环境除污、重油吸附、电极器件、智能传感器、隔热材料以及生物组织支架等领域发挥重要的作用。

1.3 自组装法

石墨烯的自组装包括诱导蒸发法^[21]、定向流动法^[22]、叠层沉淀法^[23]、Langmuir-Blodgett 技术^[24]和水热合成法。通过这些方法将平面石墨烯制成 3D 立体宏观结构。水热法是制备三维石墨烯最简便和常用的一种方法。通过水热还原氧化石墨烯表面的含氧官能团,减少它们之间的静电斥力,形成具有相互交联的三维网状结构的石墨烯水凝胶。水热法操作简单,可一步成型,但是这种方法只能制备湿凝胶,如果需要干凝胶,则要通过干燥处理^[25-26]。

Xu 等^[27]运用一步水热法制备了自组装 3D 立体石墨烯水凝胶(SGH),实现了二维石墨烯片到复杂三维宏观结构的转变。SGH 优异的机械、电气和热性能以及碳材料固有的生物相容性使其在各种应用领域具有吸引力,如药物输送、组织支架、高性能纳米复合材料和超级电容器。

Cong 等^[10]以亚铁离子还原氧化石墨烯片,诱导石墨烯自组装形成水凝胶。实验发现在温和条件下通过调节 pH 可以在石墨烯片层上沉积纳米粒子,比如 $\alpha\text{-FeOOH}$ 纳米棒和磁性 Fe_3O_4 纳米粒子,从而使石墨烯具有更多的功能。这种功能性石墨烯基水凝胶在去除污染物方面表现出了优异的性能,因此有希望作为一种吸附剂,用于水的净化。

2 三维石墨烯基复合材料对水体中常见污染物的处理研究进展

石墨烯基三维宏观体由于其高比表面积和丰富的孔隙结构,使其具有较强的吸附性能,且能在强酸等环境中稳定存在^[28],可与其他材料复合制备石墨烯基复合材料,用于废水处理。根据目前的报道,使用石墨烯基复合材料处理的水体污染物常见的有染料、重金属离子、油类和有机溶剂等。

2.1 石墨烯基复合材料对水体中染料的处理

染料作为有机分子,常用于印刷、纺织、化妆品制造等行业。由于其独特的分子结构,具有一定的稳定性。在染色的过程中,超过 15% 的染料遗留在水中。每年使用的合成纤维染料中约有 12% 被转化,约有 20% 的染料进入水中经过污水处理厂排放^[10,29]。废水中存在染料时,会减少水表面的光穿

透,降低水生植物的光合作用,同时有些染料具有一定的毒性,会致畸、致癌。染料废水进入到地表水和地下水中时,会带来大量难降解的有机污染物,使地表水和地下水受到严重污染。这些污染物长期存在于水体中,会对人体和其他动物的健康产生一定的危害。染料废水的高效处理仍是一个难题,虽然现在已经用物理化学等方法对染料废水进行了处理,但是完全去除废水中的染料是现在的技术还无法完成的^[18,30]。吸附是处理染料废水常用的方法。常用的有活性炭和 SiO_2 。活性炭具有多孔结构、比表面积大,但是吸附容量少、去除效率低。石墨烯复合材料的出现引起了研究者的注意。Chang 等^[31]利用水热法,在不同温度下制备还原氧化石墨烯-二氧化钛(rGO-TiO_2)纳米复合材料,研究了在自然光照条件下纳米复合材料 rGO-TiO_2 对亚甲基蓝(MB)的光催化性能,实验证明 rGO-TiO_2 具有较长的可见光吸收能力,吸附能力强,具有较好的光催化活性。Tiwari 等^[32]用抗坏血酸钠还原氧化石墨烯,在范德华力和 π - π 作用下,形成了相互连接的三维多孔网状结构。其孔径分布均匀,比表面积大。将其应用于吸附 MB,实验证明该结构对 MB 的去除率达到 100%,有优异的去除能力。Sun 等^[33]开发了一种简单的单步解决方案,使用无毒、成本效益好的前驱体制备磁铁矿/还原氧化石墨烯纳米复合材料(MRGO),用于去除染料污染物。MRGO 具有石墨烯和纳米粒子的双重优势,能够快速去除染料,对罗丹明 B 的去除率超过 91%,MRGO 最大的优点在于能够再生,只需简单的用乙二醇冲洗。MRGO 能够重复利用,即使重复吸附 5 种染料后,吸附效果仍能够超过 80%,使用完毕后,可以用外部磁场完全去除吸附剂。但是复合材料 MRGO 的去除效果强烈依赖于 Fe_3O_4 的负载和 pH。Xu 等^[34]通过乙烯-乙醇介导自组装工艺,合成了氧化镁氧化石墨烯复合材料(MgO-GO), MgO-GO 平均直径为 500nm 并且具有层次结构,符合 Langmuir 吸附等温模型。实验制备的 MgO-GO 微球对于水中的阴离子刚果红吸附能力为 237.0mg/g。 MgO-GO 吸附刚果红的主要机理是 MgO 表面被质子化的羟基($-\text{OH}_2^+$)吸引带负电荷的 $-\text{SO}_3^-$,此外,出现在刚果红(CR)萘基和 GO 芳香环上的 π - π 堆叠作用也促进了刚果红被 MgO-GO 吸附,吸附在 1~3h 内完成。

2.2 三维石墨烯复合材料对水体中重金属离子的处理

工业废水中重金属离子是主要的污染物之一,

重金属离子大多数都有毒且非生物降解,致癌并且具有诱变性,对人体以及其他动植物产生了严重的威胁。例如人体中铜过量会产生急性铜中毒、肝中毒、神经中毒、肝豆状核变性、儿童肝内胆汁淤积等病症,对肠道和胃有一定的伤害^[35]。人体内汞过量可以造成水俣病等。一般用沉淀、吸附、膜分离等技术来去除废水中的重金属离子^[36]。石墨烯复合材料由于其优异的性能引起了研究者的注意。

刘伟等^[37]以氧化石墨和铁盐为原料,采用化学沉淀法制备出磁性石墨烯复合材料,吸附过程符合 Langmuir 等温吸附模型,吸附动力学符合伪二级动力学模型,并且吸附过程是自发且吸热的。在最佳条件下,磁性石墨烯对水中的 Cr(VI) 吸附能够再生,但是重复利用 3 次后吸附能力下降至 46.4%。Hu 等^[38]将磺胺酸芳基重氮盐与磁性氧化石墨烯(MGO)在冰浴中反应 4h 制得磺化磁性氧化石墨烯复合材料(SMGO),通过透射电镜、能谱、比表面积、热重、红外光谱和拉曼等表征,发现 SMGO 可以使用磁分离技术轻松分离和回收。将其作为去除水溶液中 Cu(II) 离子的吸附剂,吸附过程符合伪二阶模型和 Langmuir 等温吸附模型。在最佳实验条件下,SMGO 对 Cu(II) 的吸附量为 62.73mg/g,并且 SMGO 对铜的吸附是自发且吸热的。Liu 等^[39]通过共沉淀法制备出了石墨烯/ Fe_3O_4 磁性纳米复合材料(M/GO),吸附过程符合伪二级模型,并且是自发和吸热的。M/GO 纳米复合材料对 Co(II) 的吸附是内球表面络合而不是离子交换或外球表面络合,因此对 pH 具有强烈的依赖性,易受到外来离子的影响。M/GO 结合的 Co(II) 可以通过简单的磁分离从溶液中快速分离和回收,该材料是一种非常适合自然环境中金属离子污染清除的材料。

2.3 三维石墨烯复合材料对水体中油类和有机溶剂的处理

随着工业的发展,原油、石油产品和有毒有机溶剂的泄露以及人为排放对水环境产生了严重的危害。如何高效的去除这些污染物是研究者研究的重点。吸附法由于其简单易行且环境友好被广泛应用。石墨烯复合材料由于其孔状结构以及高表面积、强吸附能力被学者大量研究。

Hong 等^[40]通过对自组装石墨烯氧化物气凝胶进行表面改性,通过一步溶液浸渍法将氟化官能团引入三维大孔石墨烯气凝胶的表面,制备了具有高孔隙率和疏水性的功能化石墨烯气凝胶(F-rGO)。

将其应用于对泵油、氯苯、四氢呋喃和丙酮等物质的吸附,发现 F-rGO 对于油类和有机溶剂的吸附能力强,吸附能力高于 rGO 和常规的吸附材料。F-rGO 气凝胶样品可以重复使用多次,多次使用后没有明显的吸收能力波动和结构变形。吸收的油和有机溶剂可以通过在沸点以上干燥吸收的样品而简单地除去。Ren 等^[41]通过水热自组装和热退火工艺,利用 GO 和三聚氰胺制备出具有三维互联网状结构的氮掺杂石墨烯气凝胶(NGA)、通过扫描电镜(SEM)、红外光谱、X 射线光电子能谱(XPS)、元素分析、X 射线衍射(XRD)、拉曼和氮吸附/解吸测量等来表征气凝胶。将其应用于正己烷、四氢呋喃、氯苯、二甲苯、四氯化碳和 *N*-甲基吡咯烷酮(NMP)的吸附,质量吸附容量(QW)分别为 68.6g/g、71.4g/g、83.9g/g、52.6g/g、111.6g/g 和 60.2g/g, QW 会随着气凝胶的密度降低而逐渐增加。经过测定体积容量发现气凝胶的多孔体积大部分用于液体储存。利用 GO 和三聚氰胺制备的具有三维互联网状结构的 NGA 具有较大的表面积和孔隙体积,吸油速率快,吸附容量在 10 次循环后仍保持其初始容量的 96.5%,因此可以将 NGA 应用于去除水中的有机污染物。

3 结语

综上,三维石墨烯的构筑有多种方法,主要为模板 CVD 法、3D 打印法和自组合法。其中,3D 打印法解决了石墨烯材料可剪裁性差、力学性能调变性弱等缺点,实现了精确的多尺度剪裁,新颖的形貌几何设计。三维石墨烯与其他材料复合后具有优异的吸附催化性能,对水体中染料、重金属离子、油类和有机溶剂等常见污染物去除能力强。据已有文献报道,石墨烯复合材料可实现重复利用,重复利用多次后去除效率仍较好。

目前关于石墨烯复合材料的研究仍处于实验室研究阶段,由于制备成本较高,性能不稳定,未能广泛应用于水处理工程中。未来关于石墨烯基复合材料的研究应集中于以下两个方面:(1)制备性能稳定、高效、可再生且成本低廉的石墨烯基复合材料;(2)通过实验条件优化将制备的石墨烯基复合材料广泛应用于水处理工程中。

参考文献

- [1] Guo S, Dong S. Graphene nanosheet: synthesis, molecular engineering, thin film, hybrids, and energy and analytical applications[J]. *Chemical Society Reviews*, 2011, 40(5): 2644-2672.
- [2] Zhu Y, Murali S, Cai W, et al. Graphene-based materials: graphene and graphene oxide: synthesis, properties, and applications[J]. *Advanced Materials*, 2010, 22(35): 3906-3924.
- [3] Zhu Y, Murali S, Stoller M D, et al. Carbon-based supercapacitors produced by activation of graphene[J]. *Science*, 2011, 332(6037): 1537.
- [4] Kim K S, Zhao Y, Jang H, et al. Large-scale pattern growth of graphene films for stretchable transparent electrodes[J]. *Nature*, 2009, 457(7230): 706.
- [5] Han T H, Lee Y, Choi M R, et al. Extremely efficient flexible organic light-emitting diodes with modified graphene anode[J]. *Nature Photonics*, 2012, 6(2): 105-110.
- [6] Miao X, Tongay S, Petterson M K, et al. High efficiency graphene solar cell by chemical doping[J]. *Nano Letters*, 2012, 12(6): 2745.
- [7] Yang X, Cheng C, Wang Y, et al. Liquid-mediated dense integration of graphene materials for compact capacitive energy storage[J]. *Science*, 2013, 341(6145): 534-537.
- [8] Ansari S, Giannelis E P. Functionalized graphene sheet-poly(vinylidene fluoride) conductive nanocomposites[J]. *Journal of Polymer Science Part B Polymer Physics*, 2010, 47(9): 888-897.
- [9] Yang K, Feng L, Shi X, et al. Nano-graphene in biomedicine: theranostic applications[J]. *Chemical Society Reviews*, 2013, 42(2): 530-547.
- [10] Cong H P, Ren X C, Wang P, et al. Macroscopic multifunctional graphene-based hydrogels and aerogels by a metal ion induced self-assembly process[J]. *Acs Nano*, 2012, 6(3): 2693-2703.
- [11] Sha J, Zhao N, Liu E, et al. In situ synthesis of ultrathin 2-D TiO₂ with high energy facets on graphene oxide for enhancing photocatalytic activity[J]. *Carbon*, 2014, 68(3): 352-359.
- [12] Xiang Q, Yu J, Jaroniec M. Graphene-based semiconductor photocatalysts[J]. *Chemical Society Reviews*, 2012, 41(2): 782-796.
- [13] Williams G, Seger B, Kamat P V. TiO₂-graphene nanocomposites. UV-assisted photocatalytic reduction of graphene oxide[J]. *Acs Nano*, 2008, 2(7): 1487.
- [14] Tang Z, Shen S, Zhuang J, et al. Noble-metal-promoted three-dimensional macroassembly of single-layered graphene oxide[J]. *Angewandte Chemie*, 2010, 122(27): 4707-4711.
- [15] 沈意. 石墨烯基三维宏观体的构筑及其对水中典型污染物的去除作用机理及影响因素[D]. 杭州: 浙江大学, 2017.
- [16] Chen Z, Ren W, Gao L, et al. Three-dimensional flexible and conductive interconnected graphene networks grown by chemical vapour deposition[J]. *Nature Materials*, 2011, 10

- (6):424.
- [17] Wilson P, Mbah G, Smith T, et al. Three-dimensional periodic graphene nanostructures[J]. *Journal of Materials Chemistry C*, 2014, 2(10):1879-1886.
- [18] Yao L, Zhang L, Wang R, et al. A new integrated approach for dye removal from wastewater by polyoxometalates functionalized membranes[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2016, 301:462-470.
- [19] Sha J, Li Y, Villegas S R, et al. Three-dimensional printed graphene foams[J]. *Acs Nano*, 2017, 11(7):6860.
- [20] Zhang Q, Zhang F, Xu X, et al. Three-dimensional printing hollow polymer template-mediated graphene lattices with tailorable architectures and multifunctional properties[J]. *Acs Nano*, 2018, 12(2):1096-1106.
- [21] Chen C, Yang Q H, Yang Y, et al. Erratum: self-assembled free-standing graphite oxide membrane[J]. *Advanced Materials*, 2009, 21(35):DOI:10.1002/adma.200803726.
- [22] Hu Y H, Wang H, Hu B. Thinnest two-dimensional nanomaterial-graphene for solar energy[J]. *Chemsuschem*, 2010, 3(7):782-796.
- [23] Shen J, Hu Y, Li C, et al. Layer-by-layer self-assembly of graphene nanoplatelets[J]. *Langmuir the Acs Journal of Surfaces & Colloids*, 2009, 25(11):6122-6128.
- [24] Li X, Zhang G, Bai X, et al. Highly conducting graphene sheets and Langmuir-Blodgett films[J]. *Nature Nanotechnology*, 2008, 3(9):538-542.
- [25] Ghorbani M, Abdizadeh H, Golobostanfard M R. Reduction of graphene oxide via modified hydrothermal method[J]. *Procedia Materials Science*, 2015, 11:326-330.
- [26] Bouguettoucha A, Atout H, Álvarez M G, et al. Enhanced photocatalytic degradation of methylene blue: preparation of TiO_2 /reduced graphene oxide nanocomposites by direct sol-gel and hydrothermal methods[J]. *Geochemistry International*, 2017, 50(11):952-957.
- [27] Xu Y, Sheng K, Li C, et al. Self-assembled graphene hydrogel via a one-step hydrothermal process[J]. *Acs Nano*, 2010, 4(7):4324-4330.
- [28] Yu B, Xu J, Liu J H, et al. Adsorption behavior of copper ions on graphene oxide-chitosan aerogel[J]. *Journal of Environmental Chemical Engineering*, 2013, 1(4):1044-1050.
- [29] Mahmoodi N M. Synthesis of magnetic carbon nanotube and photocatalytic dye degradation ability[J]. *Environmental Monitoring & Assessment*, 2014, 186(9):5595-5604.
- [30] Konicki W, Aleksandrak M, Mijowska E. Equilibrium, kinetic and thermodynamic studies on adsorption of cationic dyes from aqueous solutions using graphene oxide[J]. *Chemical Engineering Research & Design*, 2017, 123, DOI:10.1016/j.jcis.2017.02.031.
- [31] Chang B Y S, Mehmood M S, Pandikumar A, et al. Hydrothermally prepared graphene-titania nanocomposite for the solar photocatalytic degradation of methylene blue[J]. *Desalination & Water Treatment*, 2016, 57(1):238-245.
- [32] Tiwari J N, Mahesh K, Le N H, et al. Reduced graphene oxide-based hydrogels for the efficient capture of dye pollutants from aqueous solutions[J]. *Carbon*, 2013, 56(5):173-182.
- [33] Sun H, Cao L, Lu L. Magnetite/reduced graphene oxide nanocomposites: one step solvothermal synthesis and use as a novel platform for removal of dye pollutants[J]. *Nano Research*, 2011, 4(6):550-562.
- [34] Xu J, Xu D, Zhu B, et al. Adsorptive removal of an anionic dye congo red by flower-like hierarchical magnesium oxide (MgO)-graphene oxide composite microspheres[J]. *Applied Surface Science*, 2018, 435:1136-1142.
- [35] Hou X X, Deng Q F, Ren T Z, et al. Adsorption of Cu^{2+} and methyl orange from aqueous solutions by activated carbons of corncob-derived char wastes[J]. *Environmental Science & Pollution Research*, 2013, 20(12):8521-8534.
- [36] Wu Y, Luo H, Wang H, et al. Adsorption of hexavalent chromium from aqueous solutions by graphene modified with cetyltrimethylammonium bromide[J]. *J Colloid Interface Sci*, 2013, 394(1):183-191.
- [37] 刘伟, 杨琦, 李博, 等. 磁性石墨烯吸附水中 Cr(VI) 研究[J]. *环境科学*, 2015, 36(2):537-544.
- [38] Hu X J, Liu Y G, Wang H, et al. Removal of Cu(II) ions from aqueous solution using sulfonated magnetic graphene oxide composite[J]. *Separation & Purification Technology*, 2013, 108(16):189-195.
- [39] Liu M, Chen C, Hu J, et al. Synthesis of magnetite/graphene oxide composite and application for cobalt(II) removal[J]. *Journal of Physical Chemistry C*, 2011, 115(51):25234-25240.
- [40] Hong J Y, Sohn E H, Park S, et al. Highly-efficient and recyclable oil absorbing performance of functionalized graphene aerogel[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2015, 269:229-235.
- [41] Ren H, Shi X, Zhu J, et al. Facile synthesis of N-doped graphene aerogel and its application for organic solvent adsorption[J]. *Journal of Materials Science*, 2016, 51(13):6419-6427.