

落叶作为吸附材料去除废水中污染物的研究进展

蔡艳荣 宋 杨 常 春

(渤海大学化学化工学院, 锦州 121013)

摘 要 落叶是一种废弃物,深秋时节不仅会增加环卫工人的工作负担,而且会产生大量垃圾。评述了近年落叶作为吸附材料去除废水中金属元素和有色染料等的研究进展,从落叶吸附剂的应用效果、吸附热力学、吸附动力学、吸附光谱等几个方面进行了评述。落叶可以直接制成粉末,也可以将其进行改性,还可以利用其作为原始材料制备活性炭等吸附材料使用,研究其吸附性能。指出了落叶作为吸附材料应用时存在的问题,对未来的研究方向进行了展望。

关键词 落叶,吸附,去除,重金属,染料

Review of the falling leave as adsorption material to remove the pollutant from waste water

Cai Yanrong Song Yang Chang Chun

(College of Chemistry, Chemical Engineering, Bohai University, Jinzhou 121013)

Abstract Falling leaves will not only increase the working burden of sanitation workers, but also generate a lot of rubbish in the autumn, they are waste material. The application of falling leaves as the adsorption material to remove the heavy metals and coloring dye from the wastewater was reviewed. Adsorption effect, adsorption thermodynamics, adsorption dynamics and adsorption spectrum were studied. The leaves can be used directly and they can also be used after the modification as adsorption material. The leaves can be used as a raw material to prepare the other adsorption material like activated carbon. The current problems were pointed out, and prospected the future research direction.

Key words falling leave, adsorption, remove, heavy metal, coloring dye

废水中很多污染物不能直接生物降解或者降解很慢,因而随着废水排到环境中的污染物就会在环境中累积。近些年来许多科技工作者研究使用生物质制成廉价、高效和环境安全的吸附剂,吸附去除废水中的污染物,如使用玉米秸秆、玉米穗、落叶、花生壳、树叶等。北方秋天的落叶是比较讨人厌的,不仅会增加环卫工人的工作负担,而且会产生大量垃圾。由于落叶中包含大量有机质和活性物质,近年来有一些科技工作者用落叶作为吸附材料处理废水,吸附废水中的污染物质,使排放废水达到相关排放标准,落叶价格低廉、处理效果也比较好,使废物得以再利用。在利用落叶作吸附剂时,有人直接将其烘干、磨碎、筛分制成粉末使用,也有人对其改性后再作为吸附剂使用,还有人将其制成活性炭等吸附剂再研究其吸附性能,笔者综述了近年来利用树叶作为吸附材料去除废水中污染物的研究进展。

1 吸附效果分析

1.1 树叶直接作为吸附材料

人们利用树叶作吸附材料进行研究时,往往取材于秋季常见的落叶,如梧桐树叶、橡胶树叶、杨树叶等,将废弃落叶洗涤干净后,烘干、磨碎、筛分,直接作吸附剂去除废水中污染物,研究各影响因素对吸附效果的影响,测量一定条件下的最大吸附量等,落叶作为吸附材料,近年主要应用于去除废水中金属元素和有色染料,已经取得了较好的结果。

1.1.1 吸附去除废水中金属元素

近年人们研究用落叶吸附去除废水中金属元素,主要针对我国污水综合排放标准中规定的金属类污染物,既包括第一类污染物镉、铬、铅、镍等金属元素,也包括第二类污染物铜、锌等金属元素。

张红雨等^[1]研究了梧桐落叶对水中重金属的吸

附,对 Cr(VI)和 Ni(II)的吸附率达到 60%~70%,对 Cu(II)的吸附率能达到 90%~98%,结果表明,不同的吸附处理方式,对吸附效果的影响顺序:振荡>搅拌>静置。潘海燕等^[2]也直接用梧桐落叶作吸附剂,吸附水中重金属 Cu(II)、Ni(II)、Cr(VI)的吸附效率均高于 60%,二次吸附效率达 60%。Li 等^[3]研究了梧桐叶的活化方法以提高对 Pb(II)的吸附率,并分析了吸附平衡和吸附动力学,梧桐叶对 Pb(II)的吸附容量可达 136.7mg/g。

Zolgharnein 等^[4]研究了刺槐叶对 Pb(II)的生物吸附率和去除效率,考察了只优化吸附率或对吸附率和去除效率同时优化。他们还用 Doehlert 设计最优化方法研究了用梓树叶从水溶液中去除 Pb(II),结果表明,吸附率可达 86%,吸附量可达 14.7mg/g^[5]。用部分析因设计方法研究了茱萸叶对 Cr(VI)的吸附,Cr(VI)浓度为 10mg/L 时,吸附量为 0.624mg/g,当 Cr(VI)浓度为 50mg/L 时,吸附量增加到 2.657mg/g^[6]。

孙雨佳等^[7]用杨树叶粉末吸附水溶液中 Cu(II),建立了一种微分脉冲伏安法测定铜离子的方法,同时也考察了吸附时间、温度等因素对树叶吸附 Cu(II)效果的影响,吸附 5min 就可以达到吸附平衡。Qi 等^[8]用樱花叶去除废水中 Cr(VI),研究表明,樱花叶展现出高效的吸附性能,在静态吸附过程中对 Cr(VI)的理论最大吸附量达 148.12mg/g,比类似吸附材料高出很多。Boudrahem 等^[9]调查了枣树叶作为一种低价吸附剂去除溶液中 Pb(II),批处理法研究了主要的实验参数,对 Pb(II)的最大去除率达 94%。Bhattacharyya 等^[10]用印度苦楝树叶作吸附剂去除废水中 Cu(II),pH 低时,树叶对 Cu(II)的吸附竞争不过 H⁺,当 pH 约为 5.6 时,叶子材料对 Cu(II)的吸附率可以达到 90%以上。Ponnusamy 等^[11]用印度枳叶子的粉末吸附溶液中 Cd(II),研究了吸附时间、吸附剂量、pH 等条件对吸附效果的影响,在最优条件下,树叶吸附材料对 Cd(II)的吸附率可达 93%以上,实验数据表明,印度枳叶子粉末是一种价格低廉、高效的金属吸附剂,可以进一步开发成商业吸附剂使用。

Aktas 等^[12]研究了用落叶吸附贵金属,也取得了较好的效果。从氯化溶液中回收金,他们从 16 种落叶中选出了两种对金有更好吸附效果的树叶。

在研究将落叶作为吸附材料从废水中吸附金属元素方面,以上科技工作者做了相当部分工作,一般都是就近取材,材料易得,价格低廉,并取得了一定

成果。

1.1.2 吸附去除废水中有色染料

落叶作为一种价格低廉的吸附材料,也有一些科技工作者将其用于吸附去除废水中有色物质,最常用作研究的有色染料有 3 种,亚甲基蓝、孔雀石绿和结晶紫等。

李萍等^[13]将法国梧桐落叶直接作为吸附材料,去除印染废水溶液中的亚甲基蓝,最优条件下,去除率可达 97%以上,化学吸附机理的分析表明,染料分子可以产生阴离子或质子化非离子基团,而染料分子表面包括的基团质子化可产生阳离子基团,从而可结合生成新物质。廖颖敏等^[14]用榕树树叶作吸附材料时,对水溶液中的亚甲基蓝进行吸附,正交试验结果表明,在最佳条件下,吸附率可达 99%以上,榕树树叶粉末对亚甲基蓝的吸附效果非常好,是一种有潜力的亚甲基蓝吸附剂。李薇等^[15]用银杏落叶作为生物吸附剂,常温下,吸附废水中孔雀石绿的最大吸附量可达 74.07mg/g,吸附废水中结晶紫的最大吸附量可达 188.68mg/g^[16]。张庆乐等^[17]用杨树叶干粉吸附废水中结晶紫,通过响应曲面法优化,在最优条件下,对结晶紫的吸附率可达 99.9%,说明杨树叶是一种有潜力的染料吸附剂。

1.2 改性树叶作为吸附材料

对树叶进行改性处理后,能提高其吸附性能。常用的改性方式有酸改性、碱改性和混合试剂改性这 3 种。

梧桐树叶作为一种常见树种,在很多城市用于街道两旁绿化,也是将其作为吸附材料应用较多的一种。研究改性处理时,有研究将其改性后吸附性能变化的,有研究改性后对不同金属吸附性能对比的,有研究不同改性方法进行对比的。Yu 等^[18]对梧桐树叶进行改性,树叶经改性后,提高了对金属离子 Cu(II)、Cd(II)和 Zn(II)的吸附性能,改性后的树叶吸附选择能力为 Cu(II)>Cd(II)>Zn(II)。刘文霞等^[19]采用不同方法对梧桐树叶进行改性,并将其作为吸附剂去除废水中 Pb(II)和 Cd(II),用氢氧化钠-乙醇改性的泡桐树叶对 Pb(II)和 Cd(II)的平衡吸附量分别为 15.38mg/g 和 14.71mg/g。王俊丽等^[20]用氢氧化钙改性泡桐树叶吸附 Pb(II),去除率达 95%以上。

同一种树叶,产地不同,改性方法不同,吸附效果会有一定的差异,杜婷等^[21]用氢氧化钠-异丙醇化学改性松树叶,用于对 Cr(VI)的吸附实验,一定条件下,对 Cr(VI)的去除率可达 82%以上。刘智

峰^[22]用硫酸改性松树叶,对 Cr(VI) 的去除率可达 97% 以上。

许芳等^[23]对桑树叶进行沸水蒸煮后用磷酸改性,改性后用于吸附废水中 Cd(II) ,讨论了等温吸附线、吸附效果等内容,对 Cd(II) 吸附率达 96% 以上,最大吸附量达 30.58mg/g。Fadzil 等^[24]研究了对橡胶叶进行不同方法改性后对铅的吸附能力,柠檬酸改性的橡胶叶最大吸附量为 97.19mg/g,谷氨酸钠改性叶子的最大吸附量为 109.95mg/g。张庆乐等^[25]用草酸改性杨树叶,对溶液中 Cr(VI) 进行吸附,最大吸附量为 40.91mg/g。Hanafiah 等^[26]将白茅叶粉末用氢氧化钠处理,采用批处理模式,吸附溶液中 Cu(II) ,改变了吸附容量。

1.3 树叶制成活性炭等其他吸附材料

落叶可以直接用作吸附剂,也可以改性后用作吸附剂,还可以制成其他吸附剂,使吸附性能、吸附容量等有大幅度改善。例如,可以制成活性炭、碳纳米粒子、多壁碳纳米管等。最常见的是制成活性炭材料,有很多人采用不同的方法用树叶制成了活性炭,并将制得的材料用于废水处理,研究其吸附性能。

邵瑞华等^[27]研究用微波辐照磷酸活化法制备了梧桐树叶基活性炭,在最佳制备条件下得到的梧桐树叶基活性炭碘吸附值大于 618.78mg/g。梧桐树叶原料的不同,制备所得材料的性能也有很大的不同。吕春芳等^[28]也是用微波辐照磷酸活化法制备得到活性炭,碘吸附值大于 538.87mg/g,对生活污水中总磷的去除率可达 96%。

吕春芳等以银杏叶为原料,氯化锌活化法制备活性炭,用磷酸法活化银杏叶活性炭,然后吸附水中邻苯二甲酸二丁酯,前者吸附符合 Freundlich 吸附等温模型,后者符合 Langmuir 吸附等温模型,两者吸附过程均符合伪二级动力学模型^[29-30]。张鹏会等^[31]也研究了用银杏叶制成生物炭吸附溶液中的亚甲基蓝,对溶液中亚甲基蓝的去除率达 99% 以上,吸附过程符合准一级动力学模型。杨文娟等^[32]将银杏树叶用硫酸活化后制成生物质炭,对水溶液中亚甲基蓝进行吸附,去除率能达 99.7%,吸附符合 Langmuir 吸附等温模型,吸附动力学符合伪一级动力学模型。

有人用微波辅助氯化锌化学活化法将蓖麻叶子制成活性炭,吸附溶液中 Ni(II) ,通过吸附平衡数据计算,吸附符合 Langmuir 等温方程,吸附过程符合准二级动力学模型^[33]。Thilagavathy 等^[34]用刺

槐树叶制成炭吸附材料,从溶液中吸附 Co(II) ,同时研究了吸附动力学、等温吸附线、吸附平衡等。

还有将树叶制成其他纳米级粒子,作为吸附材料用于废水处理研究方面。Qu 等^[35]用柳树落叶作为先驱体合成了一种碳纳米粒子,采用拉曼光谱和能散光谱进行表征,制成的材料可以吸附溶液中的 Cu(II) 、 Zn(II) 和 Cr(VI) 。刘勇等^[36]以桉树叶提取液作为还原剂和稳定剂,绿色合成纳米铁,去除水体中的铬离子,去除率达 77% 以上,纳米铁在重复使用 3 次以后,对铬的去除率仍能达到 35% 以上。

2 吸附理论分析

2.1 吸附热力学分析

一些科技工作者对落叶吸附过程进行了热力学分析。杜婷等^[21]采用氢氧化钠和异丙醇对松树叶进行化学改性,然后将改性后的松树叶用于处理废水中的六价铬,对影响吸附的各因素进行了实验研究,结果表明该吸附是吸热过程,以离子交换吸附为主。Aathithya 等^[37]研究了樱桃叶对 Cr(VI) 的吸附热力学模型,实验数据更适合用 Langmuir 吸附等温线进行描述。

Chakravarty 等^[38]用印度枳叶子去除溶液中 Pb(II) ,吸附等温线和吸附动力学与 Cu(II) 相似,印度枳叶子对 Pb(II) 的吸附是物理吸附。Shi 等^[39]研究了香柏落叶吸附溶液中 Pb(II) 的特性,吸附等温拟合方程说明自然柏树叶对水溶液中 Pb(II) 的吸附能力较好。番石榴叶和活化番石榴叶可以用于从溶液中吸附 Cd(II) ,Abdelwahab 等^[40]通过实验数据计算了吸附过程的扩散参数、活化能、热力学参数,推断了吸附机理。Rao 等^[41]用榕树叶粉末吸附溶液中 Cd(II) ,估算了焓和熵等热力学参数。Khavidaki 等^[42]用桉树叶粉末制备吸附剂,简单改性后的吸附剂是一种适合吸附铊离子的吸附剂,平衡数据符合 Langmuir 等温线。Abadian 等^[43]用梧桐叶粉末去除水溶液中 Cu(II) ,吸附等温线数据符合 Langmuir 等温吸附方程,梧桐叶粉末对 Cu(II) 的吸附过程是自发吸热过程。Sulaiman 等^[44]研究了油棕叶从溶液中吸附 Cu(II) 的平衡和热力学过程,计算了热力学参数、标准自由能、标准焓变和熵变等,吸附热变化表明,吸附是放热的。Shi 等^[45]对金柏叶吸附溶液中 Pb(II) 、 Cu(II) 和 Co(II) 进行了对比研究,研究结果表明吸附机理是物理吸附。

2.2 吸附动力学分析

吸附动力学是揭示吸附速率和吸附时间随环境条件的变化情况的。文献数据揭示,大多数树叶或改性树叶吸附金属离子的过程均符合准二级动力学模型。吸附动力学模型见表 1。

表 1 树叶吸附过程动力学模型

被吸附离子	吸附材料	动力学模型	文献
Cd(Ⅱ)	大榕树叶(3 种改性方法)	准二级动力学模型	[46]
	柚子叶	准二级动力学模型	[47]
	杨树落叶	准二级动力学模型	[48]
Cr(VI)	硫酸改性松树叶	准二级动力学模型	[22]
Pb(Ⅱ)	Ca(OH) ₂ 改性泡桐树叶	准二级动力学模型	[20]
	香樟叶	准二级动力学模型	[49]
Cu(Ⅱ)	十二烷基苯磺酸钠改性油棕叶	准二级动力学模型	[50]
	绿化树种落叶	准二级动力学模型	[51]
	改性小叶榕落叶	自己拟合吸附动力学模型	[52]
	橡胶树叶	准二级动力学模型	[53]
Ni(Ⅱ)	桉树叶	准二级动力学模型	[54]

2.3 吸附光谱分析

通过对吸附材料进行光谱分析,可以了解吸附材料的吸附基团、粒径、比表面积和吸附机理等多方面情况。

Chen 等^[49]从香樟落叶的红外光谱图发现其中存在功能基团,如羟基、羧基和氨基。香樟落叶有多个吸附峰,表明在生物吸附剂中存在多个功能基团,研究工作说明香樟落叶是一种新的低花费吸附剂,可以有效地去除溶液中 Pb(Ⅱ)。Fan 等^[55]用柿子落叶制备了一种生物吸附剂,回收 Pb(Ⅱ),用 X 射线衍射、扫描电镜-能谱、红外光谱、X 射线光电子能谱和热重等多种分析手段表征了吸附特征和吸附机理,表明化学吸附是吸附过程的主要控制步骤。Saha 等^[56]研究了用芒果叶作高效的生物吸附剂,处理水溶液中的 Cr(VI),通过红外光谱分析了吸附剂和金属离子的反应本质,说明六价铬的吸附与基团—OH、C=O、C—O 等有关。Li 等^[57]也用白茅叶粉末通过硫酸和磷酸进行化学改性制备了两种吸附剂,这两种吸附剂用来从溶液中吸附 Ni(Ⅱ),吸附剂不会对环境二次污染,根据 Ni(Ⅱ)吸附前后的红外光谱,吸附机理包括离子交换和 Ni(Ⅱ)离子以及功能基团在吸附剂表面的络合。Wan 等^[58]研究

了橡胶树叶吸附溶液中 Cu(Ⅱ)离子,通过扫描电镜、能谱和红外光谱等分析了吸附特性,扫描电镜结果说明树叶表面存在不规则结构,能够吸附 Cu(Ⅱ)离子,能谱分析吸附前后的峰变化说明吸附过程发生了离子交换,红外光谱分析表明在橡胶树叶材料上存在多个功能基团。杨贯羽等^[53]对梧桐树叶吸附铜离子前后的红外光谱进行分析比较,吸附 Cu(Ⅱ)后,树叶的结构仍保持完整。Hanafiah 等^[59]同时用批处理和吸附柱吸附研究用盐酸改性的橡胶树叶吸附溶液中 Cu(Ⅱ),对质子化橡胶树叶对 Cu(Ⅱ)的吸附机理和特性进行了研究。结果发现,其上含有多种功能基团,如 Si—OH、ROH、RCOOH、RCOO—、RNH₂、C—O—C 等,有利于对 Cu(Ⅱ)的吸附。Silva 等^[60]用玉米叶粉末制备了一种绿色吸附剂,去除溶液中的 Cu(Ⅱ)和 Cd(Ⅱ),制备的材料用红外光谱、核磁共振和扫描电镜进行表征,其上含有氨基、羰基等基团,存在硫氨和甲硫氨等基团,有大孔结构,有利于吸附过程的发生,吸附效果较好。

3 结语与展望

以落叶或改性落叶为原材料制备的其他吸附剂可以用于从废水中吸附去除金属和其他污染物质,用吸附率和吸附量等因素分析了吸附效果,科技工作者们用多种分析手段研究了吸附机理,根据实验数据分析了吸附热力学和吸附动力学,为廉价吸附剂的实际工业制备和应用提供了一定的研究基础。落叶作为一种废弃物重新利用,有很高的研究价值,可以在实验室研究基础上进一步扩大规模进行工业应用。目前暂时没有人研究对吸附后叶子的处理,吸附后叶子的后续处理同样会给环境带来污染。对吸附后落叶的后续处理将是未来的一个研究方向。对落叶更深层次改性或深加工使用是落叶作为吸附材料应用的另一个研究方向。

参考文献

[1] 张红雨,冀兰涛,王乃岩,等.梧桐树落叶碎屑对水中重金属吸附的初步研究[J].精细化工,2002,19(2):80-82.
[2] 潘海燕,冀兰涛,靖波.梧桐落叶对重金属吸附的初步研究[J].黑龙江环境通报,2002,26(1):91-92.
[3] Li Z, Tang X, Chen Y, et al. Activation of firmiana simplex leaf and the enhanced Pb(Ⅱ) adsorption performance: equilibrium and kinetic studies[J]. J Hazard Mater, 2009, 169(1-3):386-394.
[4] Zolgharnein J, Shahmoradi A, Ghasemi J B. Comparative study

- of box-behnken, central composite, and doehlert matrix for multivariate optimization of Pb(II) adsorption onto robinia tree leaves[J]. *Journal of Chemometrics*, 2013, 27(1-2): 12-20.
- [5] Zolgharnein J, Shariatmanesh T, Asanjarani N, et al. Doehlert design as optimization approach for the removal of Pb(II) from aqueous solution by catalpa speciosa tree leaves: adsorption characterization[J]. *Desalination and Water Treatment*, 2015, 53(2): 430-445.
- [6] Zolgharnein J, Shahmoradi A. Adsorption of Cr(VI) onto elaeagnus tree leaves: statistical optimization, equilibrium modeling, and kinetic studies[J]. *Journal of Chemical & Engineering Data*, 2010, 55(9): 3428-3437.
- [7] 孙雨佳, 吴琼, 熊凌燕, 等. 铜离子在废弃杨树叶粉上吸附的研究[J]. *中国无机分析化学*, 2018, 8(1): 1-5.
- [8] Qi W, Wang Y, Ji M, et al. Highly efficient adsorption of Cr(VI) by sakura Leaves from aqueous solution[J]. *Chemistry Letters*, 2015, 44(5): 697-699.
- [9] Boudrahem F, Aissani-Benissad F, Soualah A. Adsorption of lead(II) from aqueous solution by using leaves of date trees as an adsorbent[J]. *Journal of Chemical and Engineering Data*, 2011, 56(5): 1804-1812.
- [10] Bhattacharyya K G, Sarma A, Sarma J. Adsorption of Cu(II) ions onto a cellulosic biosorbent, azadirachta indica leaf powder application in water treatment[J]. *Adsorption Science & Technology*, 2010, 28(10): 869-883.
- [11] Ponnusamy S K, Gayathri R. Study on removal of cadmium from aqueous solutions by adsorption on bael tree leaf powder[J]. *Environmental Engineering and Management Journal*, 2010, 9(3): 429-433.
- [12] Aktas S, Gozuak B, Acma H, et al. Gold recovery from chloride solutions using fallen leaves[J]. *Environmental Chemistry Letters*, 2011, 9(1): 47-53.
- [13] 李萍, 宫磊. 生物吸附剂-落叶对印染废水的吸附处理研究[J]. *青岛科技大学学报(自然科学版)*, 2012, 33(1): 62-67.
- [14] 廖颖敏, 林双梓. 榕树叶对废水中亚甲基蓝的吸附研究[J]. *地球与环境*, 2016, 44(6): 699-704.
- [15] 李薇, 孙志宇, 马宏飞, 等. 银杏落叶对孔雀石绿的生物吸附作用[J]. *应用化工*, 2015, 44(11): 2001-2005.
- [16] 李薇, 王梅, 马宏飞, 等. 银杏落叶对结晶紫的生物吸附性能研究[J]. *化工新型材料*, 2017, 45(4): 193-195.
- [17] 张庆乐, 王丽平, 李业云, 等. 杨树叶干粉吸附结晶紫染料的响应曲面法研究[J]. *化工新型材料*, 2016, 44(10): 194-197.
- [18] Yu Junxia, Feng Liyuan, Cai Xiaoli, et al. Adsorption of Cu²⁺, Cd²⁺ and Zn²⁺ in a modified leaf fixed-bed column: competition and kinetics[J]. *Environmental Earth Sciences*, 2015, 73(4): 1789-1798.
- [19] 刘文霞, 李佳昕, 王俊丽, 等. 改性泡桐树叶吸附剂对水中铅和镉的吸附特性[J]. *农业环境科学学报*, 2014, 33(6): 1226-1232.
- [20] 王俊丽, 乔辛悦, 陈学斌, 等. 碱改性泡桐树叶粉末对水中 Pb²⁺ 的吸附特性[J]. *河南科学*, 2015, 33(4): 535-539.
- [21] 杜婷, 戴芝芝, 贾明畅, 等. 改性松树叶对六价铬的去除研究[J]. *工业水处理*, 2011, 31(12): 39-42.
- [22] 刘智峰. 硫酸改性松树叶对废水中 Cr(VI) 的吸附性能研究[J]. *电镀与装饰*, 2014, 36(9): 5-8.
- [23] 许芳, 张利平, 程先忠, 等. 改性桑树叶吸附材料对废水中 Cd(II) 的吸附性能研究[J]. *岩矿测试*, 2016, 35(1): 62-68.
- [24] Fadzil F, Ibrahim S, Hanafiah M A K M. Adsorption of lead(II) onto organic acid modified rubber leaf powder: batch and column studies[J]. *Process Safety and Environmental Protection*, 2016, 100: 1-8.
- [25] 张庆乐, 董建, 张丽青, 等. 草酸改性杨树叶对六价铬的吸附性能[J]. *环境工程*, 2015, 33(5): 64-68, 94.
- [26] Hanafiah M A K M, Zakaria H, Ngah W S W. Preparation, characterization, and adsorption behavior of Cu(II) ions onto alkali-treated weed (imperata cylindrica) leaf powder[J]. *Water, Air, and Soil Pollution*, 2009, 201(1): 43-53.
- [27] 邵瑞华, 房平, 王赛, 等. 梧桐树叶基活性炭的制备研究[J]. *炭素技术*, 2012, 31(4): A28-A30.
- [28] 吕春芳, 王婕, 高盼盼. 磷酸微波法制备梧桐树叶活性炭及其性能研究[J]. *应用化工*, 2014, 43(5): 824-826.
- [29] 张鹏伟, 王郑, 余丹, 等. 银杏叶粉末活性炭对水中 DBP 的吸附效能与机理[J]. *湖北农业科学*, 2013, 52(10): 2290-2298.
- [30] 余丹, 王郑, 张鹏伟, 等. 磷酸法活化银杏叶活性炭对 DBP 的吸附性能研究[J]. *能源环境保护*, 2013, 27(2): 26-30.
- [31] 张鹏会, 李艳春, 胡浩斌, 等. 银杏叶生物炭对亚甲基蓝的吸附特性[J]. *环境污染与防治*, 2017, 39(11): 1229-1234.
- [32] 杨文娟, 杨琴, 张凤, 等. 银杏树叶制备的生物质炭对水溶液中亚甲基蓝的吸附[J]. *西华师范大学学报(自然科学版)*, 2015, 36(3): 267-272.
- [33] Makeswari M, Santhi T. Optimization of preparation of activated carbon from ricinus communis leaves by microwave-assisted zinc chloride chemical activation; competitive adsorption of Ni²⁺ ions from aqueous solution[J]. *Journal of Chemistry*, 2013, 2013: 1-12.
- [34] Thilagavathy P, Santhi T. Kinetics, isotherms and equilibrium study of Co(II) adsorption from single and binary aqueous solutions by acacia nilotica leaf carbon[J]. *Chinese Journal of Chemical Engineering*, 2014, 22(11): 1193-1198.
- [35] Qu J, Zhang Q, Xia Y, et al. Synthesis of carbon nanospheres using fallen willow leaves and adsorption of rhodamine B and heavy metals by them[J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2015, 22(2): 1408-1419.
- [36] 刘勇, 黄超, 翁秀兰, 等. 绿色合成纳米铁去除水中铬离子[J]. *环境工程学报*, 2016, 10(8): 4118-4124.
- [37] Aathithya R, Rajani Sowparnika J, Balakrishnan V. Determination of adsorption isotherm models for the biosorption of chromium using cherry leaves (muntingia calabura L.)[J]. *International Letters of Natural Sciences*, 2014, 25: 12-17.
- [38] Chakravarty S, Mohanty A, Sudha T N, et al. Removal of Pb(II) ions from aqueous solution by adsorption using bael leaves (aegle marmelos)[J]. *J Hazard Mater*, 2010, 173(1-3): 502-509.
- [39] Shi J, Zhao Z, Liang Z, et al. Adsorption characteristics of Pb(II) from aqueous solutions onto a natural biosorbent, fallen

- arborvitae leaves[J]. Water Science & Technology, 2016, 73(10):2422-2429.
- [40] Abdelwahab O, Fouad Y O, Amin N K, et al. Kinetic and thermodynamic aspects of cadmium adsorption onto raw and activated guava (psidium guajava) leaves[J]. Environmental Progress & Sustainable Energy, 2015, 34(2):351-358.
- [41] Rao K S, Anand S, Venkateswarlu P. Adsorption of cadmium from aqueous solution by ficus religiosa leaf powder and characterization of loaded biosorbent[J]. CLEAN-Soil Air Water, 2011, 39(4):384-391.
- [42] Khavidaki H D, Aghaie H. Adsorption of thallium (I) ions using eucalyptus leaves powder[J]. Clean-Soil Air Water, 2013, 41(7):673-679.
- [43] Abadian S, Rahbar-Kelishami A, Norouzbeigi R, et al. Cu(II) adsorption onto platanus orientalis leaf powder: kinetic, isotherm, and thermodynamic studies[J]. Research on Chemical Intermediates, 2014, 41(10):7669-7681.
- [44] Sulaiman O, Amini M H M, Rafatullah M, et al. Adsorption equilibrium and thermodynamic studies of copper (II) ions from aqueous solutions by oil palm leaves[J]. International Journal of Chemical Reactor Engineering, 2010, 8(1):1542-1580.
- [45] Shi J, Fang Z, Zhao Z, et al. Comparative study on Pb(II), Cu(II), and Co(II) ions adsorption from aqueous solutions by arborvitae leaves [J]. Desalination and Water Treatment, 2016, 57(10):4732-4739.
- [46] 黄冬兰, 曾洁桃, 王超凡, 等. 新型大榕树叶吸附剂的制备及其对镉的吸附研究[J]. 韶关学院学报·自然科学, 2016, 37(6):42-47.
- [47] Rao K S, Anand S, Venkateswarlu P. Adsorption of cadmium (II) ions from aqueous solution by tectona grandis LF (teak leaves powder)[J]. BioResources, 2010, 5(1):438-454.
- [48] 张瑾, 王福禄, 杨树落叶对 Cd^{2+} 的吸附等温线和动力学研究[J]. 安徽农业科学, 2011, 39(22):13484-13488.
- [49] Chen H, Zhao J, Dai G, et al. Adsorption characteristics of Pb(II) from aqueous solution onto a natural biosorbent, fallen cinnamomum camphora leaves[J]. Desalination, 2010, 262(1-3):174-182.
- [50] Rafatullah M, Sulaiman O, Hashim R, et al. Adsorption of copper(II) ions onto surfactant-modified oil palm leaf powder [J]. Journal of Dispersion Science and Technology, 2011, 32(11):1641-1648.
- [51] 王文清. 生物质吸附剂-落叶对水溶液中 Cu^{2+} 吸附及动力学研究[J]. 济宁学院学报, 2013, 34(3):20-24.
- [52] 万俊杰, 梁耀开. 小叶榕落叶改性条件优化及其处理含 Cu^{2+} 废水动力学研究[J]. 四川环境, 2010, 29(3):28-31.
- [53] 杨贯羽, 张敬华, 邹卫华, 等. 梧桐树叶吸附铜离子前后红外光谱分析比较[J]. 光谱实验室, 2006, 23(2):390-392.
- [54] 李坤, 唐艳葵, 王生业, 等. 速生桉树叶制备生物质吸附剂去除废水中 Ni(II) 的研究[J]. 广东化工, 2015, 42(13):183-185.
- [55] Fan R, Yi Q, Xie Y, et al. Enhanced adsorption and recovery of Pb(II) from aqueous solution by alkali-treated persimmon fallen leaves[J]. Journal of Applied Polymer Science, 2016, 133(28), DOI:10.1002/APP.43656.
- [56] Saha R, Saha B. Removal of hexavalent chromium from contaminated water by adsorption using mango leaves (mangifera indica) [J]. Desalination and Water Treatment, 2014, 52(10-12):1928-1936.
- [57] Li Z, Teng T T, Alkarkhi A F M, et al. Chemical modification of imperata cylindrica leaf powder for heavy metal ion adsorption[J]. Water Air & Soil Pollution, 2013, 224(4):1505-1519.
- [58] Wan Ngah W S, Hanafiah M A K M. Adsorption of copper on rubber (hevea brasiliensis) leaf powder: kinetic, equilibrium and thermodynamic studies[J]. Biochemical Engineering Journal, 2008, 39(3):521-530.
- [59] Hanafiah M A K M, Ngah W S W. Preparation, characterization and adsorption mechanism of Cu(II) onto protonated rubber leaf powder[J]. Clean-Soil Air Water, 2009, 37(9):696-703.
- [60] Silva A C P, Jorgetto A O, Wondracek M H P, et al. Characterization of corn (zea mays) leaf powder and its adsorption properties regarding Cu(II) and Cd(II) from aqueous samples[J]. BioResources, 2015, 10(1):1099-1114.

收稿日期:2018-12-17

(上接第47页)

- [39] Chazeau L, Cavaillé J Y, Canova G, et al. Viscoelastic properties of plasticized PVC reinforced with cellulose whiskers[J]. Journal of Applied Polymer Science, 1999, 71(11):1797-1808.
- [40] Anlovar A, Huski M, Agar E. Modification of nanocrystalline cellulose for application as a reinforcing nanofiller in PMMA composites[J]. Cellulose, 2016, 23(1):505-518.
- [41] Li S, Gao Y, Bai H, et al. Preparation and characteristics of polysulfone dialysis composite membranes modified with nanocrystalline cellulose [J]. Bioresources, 2011, 6(2):391-394.
- [42] Desmaisons J, Gustafsson E, Dufresne A, et al. Hybrid nanopaper of cellulose nanofibrils and PET microfibers with high tear and crumpling resistance[J]. Cellulose, 2018, 25:7127-7142.
- [43] Liu D, Liu Y, Sui G. Synthesis and properties of sandwiched films of epoxy resin and graphene/cellulose nanowhiskers paper[J]. Composites Part A Applied Science & Manufacturing, 2016, 84(1):87-95.
- [44] Lomeli-Ramírez M G, Valdez-Fausto E M, Renteria-Urquiza M, et al. Study of green nanocomposites based on corn starch and cellulose nanofibrils from Agave tequilana Weber[J]. Carbohydrate Polymers, 2018, 201:9-19.
- [45] Li W, Zhao X, Liu S. Preparation of entangled nanocellulose fibers from APMP and its magnetic functional property as matrix[J]. Carbohydrate Polymers, 2013, 94(1):278-285.
- [46] Gunji S, Shimotsuna Y, Miura K. Synthesis and photocatalytic properties of $\text{SiO}_2/\text{TiO}_2$ nanofibers using templates of TEMPO-oxidized cellulose nanofibers[J]. Journal of Sol-Gel Science and Technology, 2016, 79(1):151-159.

收稿日期:2019-08-06