

聚乙烯亚胺功能化的生物炭气凝胶对铀的 吸附性能研究

冯子豪, 吕建奇, 汪洋, 任奇, 王云

(东华理工大学 核科学与工程学院, 江西 南昌 330013)

摘要:研究了以莲蓬粉末、壳聚糖与聚乙烯亚胺为原料,合成一种聚乙烯亚胺功能化的莲蓬生物炭气凝胶(LSBC-CTS/PEI)并用于吸附废水中的 U(VI)。结果表明:LSBC-CTS/PEI 呈现松散的交联网状结构,且含有非常丰富的胺基官能团,可为 U(VI)的配合提供更多吸附位点;LSBC-CTS/PEI 对 U(VI)的选择性吸附受 pH 影响较大,吸附主要以单层化学吸附为主,属于自发的吸热过程,更适合用准二级动力学和 Langmuir 等温吸附模型描述;LSBC-CTS/PEI 对铀的选择性达 84.91%,最大吸附量为 533.89 mg/g。该吸附材料对铀的吸附量较高、选择性较好,且固液分离方便,具有一定推广应用价值。

关键词:铀(VI);吸附;壳聚糖;聚乙烯亚胺;功能化;生物炭;气凝胶

中图分类号:TQ424;TL212 **文献标识码:**A **文章编号:**1009-2617(2024)05-0543-08

DOI:10.13355/j.cnki.sfj.2024.05.010

随着核工业的发展和核技术在进步,核能以其清洁、高效的特性,在能源结构优化方面发挥着重要作用^[1]。但在核能的开发过程中会产生大量放射性废水,其中含有的 U(VI)具有放射性、生物毒性和较长的半衰期^[2],如不能达标排放会对环境和人体健康造成危害。因此,从放射性废水中经济高效地去除铀尤为重要。

目前,从放射性废水中去除铀的方法已有很多,包括离子交换法、电化学法、光催化法和吸附法等^[1,3-6]。其中,吸附法以成本低廉、操作简单、实用性强及环保特性显著等优势,被视为极具潜力的铀分离富集技术。该法的关键在于性能优良吸附剂的研发与制备。在众多吸附剂中,生物质材料由于具有来源丰富、价格低廉、孔结构复杂、表面官能团丰富、易解吸、可重复使用等特点,在高效吸附铀方面具有一定潜力^[7-9]。传统生物炭大多以粉末状形态存在,虽能简化制备过程,但在实际应用时会导致固液分离困难、难以回收,进而可能引发二次污染。因此,研发制备一种在水溶液中固液分离容易、对铀吸附量更高、选择性更好

的吸附材料十分必要。

气凝胶是一种具有丰富的多孔结构、稳定的形状特征和易于固液分离特点的材料^[10-12],其制备一般包括前驱体的凝胶化、干燥、碳化和后处理 4 个过程^[11]。目前,在气凝胶的众多应用中,铀吸附逐渐成为了研究热点之一^[13-14]。特别是生物炭气凝胶作为一种新兴的吸附剂材料,不仅具有气凝胶的基本优势,还能用一些来源广泛、价格便宜的生物质,如冬瓜^[15]、西瓜^[16]、菠萝^[17]、木耳^[18]和柚子皮^[19]等作为碳源^[20],同时,这些生物质具备的多孔和凝胶状结构为气凝胶的制备提供了良好的前提条件。近年来,关于生物质气凝胶在吸附铀方面的研究已取得了一些进展,如用冬瓜制备的磁性生物质凝胶吸附铀,吸附量可达 230.3 mg/g,该吸附剂兼具磁性,便于吸附后的分离回收^[15];用魔芋制备的生物质凝胶吸附铀,吸附量可达 720.8 mg/g,且在 60 min 内铀去除率即可达 90.1%^[21],吸附性能良好。尽管生物质气凝胶吸附铀已取得了一些成果,但研发更高效的吸附剂,提高对铀的吸附量和选择性仍十分重要。

收稿日期:2024-06-17

基金项目:国家自然科学基金地区科学基金项目(22366003);江西省自然科学基金面上项目(20224BAB203005)。

第一作者简介:冯子豪(2001—),男,硕士研究生,主要研究方向为放射性废水处理。

通信作者简介:王云(1983—),男,博士,教授,主要研究方向为放射废水处理与环境修复。E-mail:wangyun@ecut.edu.cn。

试验研究了用溶胶-凝胶法将壳聚糖(CTS)与聚乙烯亚胺(PEI)交联,并将莲蓬生物炭均匀地分散到CTS与PEI的交联网中,制备一种具有丰富吸附位点的聚乙烯亚胺功能化的莲蓬生物炭气凝胶(LSBC-CTS/PEI),并用于吸附铀。通过一系列表征技术分析LSBC-CTS/PEI的微观形貌和物理化学性质。考察了溶液pH、吸附剂用量、吸附温度及时间、铀初始质量浓度、竞争离子对LSBC-CTS/PEI吸附U(VI)性能的影响,并进一步探讨了吸附动力学、等温线模型及其热力学,以期处理含铀废水提供一种经济、高效的途径。

1 试验部分

1.1 试验材料、试剂与设备

莲蓬粉末(LS):取自于山东省潍坊市,晾干,去除莲蓬子,剪成小块,洗涤干燥后研磨成100目粉末。

铀溶液:精确称取2.1092g硝酸铀酰 $[\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}]$,加入少量去离子水溶解,然后加入10mL硝酸,将溶液移入1000mL容量瓶中,用去离子水稀释至刻度线,摇匀,得到1g/L的标准铀溶液。后续吸附试验根据所需铀溶液质量浓度取相应标准铀溶液进行稀释,以铀质量浓度为100mg/L、溶液体积为25mL为试验标准。

试剂:硝酸盐、硝酸、过氧化氢(30%)等试剂,均为化学纯;壳聚糖、聚乙烯亚胺、环氧氯丙烷、冰乙酸、偶氮胂Ⅲ、氯乙酸、乙酸钠等试剂,均为分析纯。

设备:循环水式真空泵,SHZ-D(Ⅲ)型,上海力辰仪器科技有限公司;恒温磁力搅拌水浴锅,DF-101S型,上海力辰仪器科技有限公司;pH计,PHS-2F型,上海雷磁仪器厂;恒温冷冻水浴振荡器,SHA-EA型,常州金坛精达仪器制造有限公司;冷冻干燥机,FD-1A-50型,江苏天翎仪器有限公司;超声波清洗机,SN-QX-100D型,上海尚仪仪器设备有限公司;电子天平,BAS224S型,德国Sartorius;扫描电子显微镜(SEM),Sigma 300型,德国ZEISS;傅里叶红外光谱仪(FT-IR),Nicolet iS5型,麦可莫瑞提克(上海)仪器有限公司;氮气吸附脱附仪(BET),ASAP2460型,麦可莫瑞提克(上海)仪器有限公司;热重分析仪(TGA),STA 449 F5型,德国Netzsch;电感耦合等离子体发射光谱仪(ICP-

OES),Optima 8000型,珀金埃尔默股份有限公司。

1.2 材料的制备

称取1g莲蓬粉末于烧杯中,分别加入2.5mL冰乙酸,2.5mL过氧化氢(30%)和60mL去离子水,混合并超声30min。将混合物倒入100mL水热反应釜中,在200℃条件下反应12h。反应结束后,过滤,用去离子水和乙醇清洗至pH中性,在60℃下烘干一定时间,得水热莲蓬生物炭(LSBC)。

称取0.5g壳聚糖于烧杯中,加入50mL 0.01mol/L的HCl,充分搅拌,得溶液A。称取1.25g聚乙烯亚胺于烧杯中,加入25mL去离子水和25mL无水乙醇,充分搅拌溶解,得溶液B。另取一个烧杯,倒入50mL溶液A和50mL溶液B,再加入1mL环氧氯丙烷作为交联剂,得溶液C。取100mg LSBC与溶液C混合搅拌,在70℃下反应120min后取出,陈化3d,然后进行6次溶剂置换,最后经冷冻干燥,得聚乙烯亚胺功能化的莲蓬生物炭气凝胶(LSBC-CTS/PEI)。

1.3 铀的吸附

采用批量吸附法研究各吸附材料对U(VI)的吸附性能。分别对pH、吸附时间、铀初始浓度、吸附温度和竞争离子等因素进行考察,优化吸附条件。将10mg LSBC或LSBC-CTS/PEI置于锥形瓶中,加入25mL不同pH(1~8)和不同铀初始质量浓度(10~300mg/L)的铀溶液或含其他11种竞争离子的混合铀溶液,在一定温度(10~55℃)下振荡一定时间(5~1440min),取上清液,用ICP-OES测定上清液中剩余铀和其他竞争离子质量浓度。分别按式(1)~(4)计算吸附量、去除率、分配系数和选择性:

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

$$p = \frac{\rho_0 - \rho_e}{\rho_0} \times 100\%; \quad (2)$$

$$k_d = \frac{(\rho_0 - \rho_e)V}{m\rho_e}; \quad (3)$$

$$S = \frac{q_i}{q_{\text{总}}} \times 100\%。 \quad (4)$$

式中: q_e —吸附量,mg/g; p —去除率,%; k_d —分配系数; ρ_0 —铀初始质量浓度,mg/L; ρ_e —吸附平衡时铀质量浓度,mg/L; V —铀溶液体积,mL; m —吸附剂用量,mg; S —选择性,%; q_i —某一元素的吸附量,mg/g; $q_{\text{总}}$ —所有元素的总吸附量,mg/g。

2 试验结果与讨论

2.1 LSBC-CTS/PEI 的表征

2.1.1 SEM、EDS

图 1 为 LSBC、LSBC-CTS/PEI 及 LSBC-CTS/PEI-U 的 SEM、EDS 表征结果。对比图 1(a)~(c) 看出:LSBC 表面粗糙且多孔,有裂痕与褶皱,呈现薄的片状结构,这是因为在水热碳化过程中,莲蓬

中的纤维素被水解成低聚糖,从而剥离成薄的纳米片状结构;而 LSBC-CTS/PEI 材料表面呈光滑的层状结构,这是 CTS 的经典结构,且由于 CTS 与 PEI 的交联,形成了更松散的交联网状结构,并有生物炭颗粒附着在其中。由图 1(d)看出:吸附铀后的 LSBC-CTS/PEI-U 中出现均匀分布的 N、O、U 元素,说明材料表面富含 N、O 官能团,能提供大量的铀酰离子吸附位点,将铀均匀地吸附到材料表面。

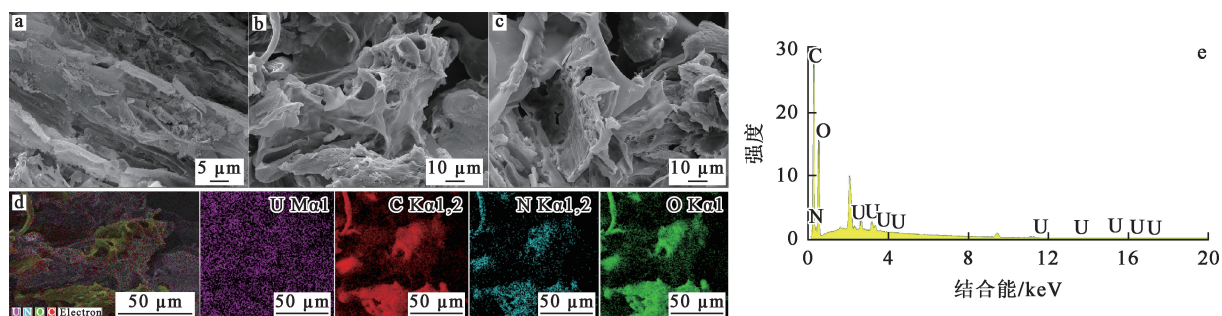


图 1 LSBC 和 LSBC-CTS/PEI 的 SEM、LSBC-CTS/PEI-U 的 SEM-EDS 表征结果
a—LSBC 的 SEM 照片(放大 2 000 倍);b、c—LSBC-CTS/PEI 的 SEM 照片(放大 1 000 倍);
d—LSBC-CTS/PEI-U 的 SEM 照片及 EDS 元素面扫;e—EDS 元素图谱。

图 1 LSBC 和 LSBC-CTS/PEI 的 SEM、LSBC-CTS/PEI-U 的 SEM-EDS 表征结果

2.1.2 BET

图 2 为 LSBC-CTS/PEI 和 LSBC 的 N₂ 吸附—脱附等温线。可以看出:两者均为 IV 型滞后回路,这是由于多孔吸附剂的毛细凝结现象和碳质吸附剂中焦油的存在造成脱气不完全所致。

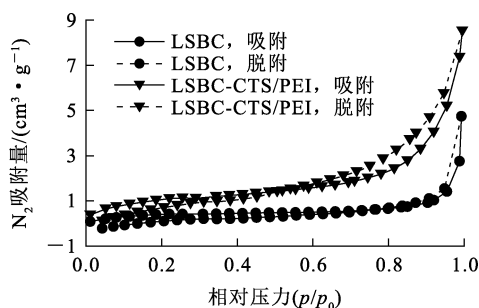


图 2 LSBC、LSBC-CTS/PEI 的吸附—脱附等温线

LSBC、LSBC-CTS/PEI 孔隙结构参数见表 1。可以看出:二者的平均孔径分别为 12.52 和 12.34 nm,均属于介孔材料;LSBC 比表面积为 65.21 m²/g,而 LSBC-CTS/PEI 比表面积降至 4.21 m²/g,这种差异可能是由于 LSBC-CTS/PEI 在制备过程中,CTS 与 PEI 交联反应导致壳聚糖分子的堆叠和

孔道的部分堵塞导致比表面积较小。比表面积变小可能会影响吸附速率,但 CTS 与 PEI 交联使材料表面出现胺基等官能团,可使材料的吸附量与选择性进一步提升。

表 1 LSBC-CTS/PEI、LSBC 的孔隙结构参数

吸附剂	比表面积/ (m ² ·g ⁻¹)	孔隙体积/ (cm ³ ·g ⁻¹)	平均孔径/ nm
LSBC	65.21	0.20	12.34
LSBC-CTS/PEI	4.21	0.02	12.52

2.1.3 FT-IR

LSBC-CTS/PEI 吸附铀前、后的 FT-IR 光谱如图 3 所示。由 LSBC-CTS/PEI 的红外光谱看出:在 3 431 cm⁻¹ 处出现宽吸收峰,这是由羟基的伸缩振动引起;在 2 926 和 2 871 cm⁻¹ 处出现的峰分别对应—CH₂ 和—CH₃ 中的 C—H 伸缩振动峰;在 1 641 cm⁻¹ 处出现的峰是由 C=C 伸缩振动引起,证明 LSBC-CTS/PEI 结构中存在生物炭;1 326 cm⁻¹ 处出现的峰是由环氧氯丙烷与 CTS 和 PEI 上的胺反应形成的 C—N 键伸缩振动引起;1 426 和 1 382 cm⁻¹ 处新出现的峰是属于 PEI 典型

的代表峰,分别对应—RNH₂的N—H和—R₂NH的N—H弯曲振动,证明PEI与CTS成功交联;1 076 cm⁻¹处的峰是由C—O键伸缩振动引起。这表明LSBC生物炭成功附着在CTS与PEI所形成的交联网状结构中。由吸附铀后的LSBC-CTS/PEI-U的红外光谱看出,在905 cm⁻¹处出现了铀酰峰,表明铀被成功吸附到LSBC-CTS/PEI上。

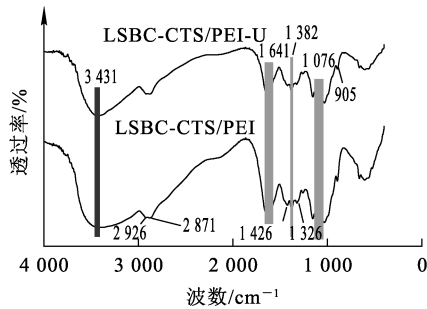


图3 LSBC-CTS/PEI吸附铀前、后的FT-IR光谱

2.1.4 TGA

LSBC-CTS/PEI的热重曲线如图4所示。可以看出,LSBC-CTS/PEI的热解过程分为3个阶段:第1个阶段在0~100℃之间,质量损失约为11%,这主要是物理吸附水分蒸发导致;第二个阶段在200~500℃之间,质量损失约为55%,这主要是壳聚糖和聚乙烯亚胺分子链表面官能团分解所致,证明材料表面具有大量官能团;第3阶段在500~800℃,质量损失约为7%,这主要是材料中生物炭残留的化合物和无机盐分解所致。LSBC-CTS/PEI材料整个热分解过程的总质量损失约为73%,而LSBC的总质量损失为58.4%,说明LSBC-CTS/PEI的热稳定性明显下降,这是生物炭与壳聚糖、聚乙烯亚胺交联后官能团增多导致。

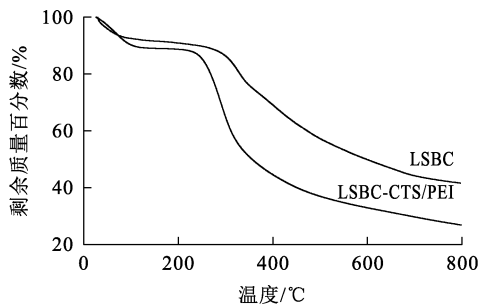


图4 LSBC-CTS/PEI和LSBC的TGA曲线

2.2 LSBC-CTS/PEI吸附铀

2.2.1 溶液pH对吸附的影响

在吸附剂用量10 mg、铀溶液体积25 mL、铀初始质量浓度100 mg/L、吸附时间12 h、吸附温度298 K条件下,考察溶液pH对LSBC-CTS/PEI和LSBC吸附铀U(VI)影响,试验结果如图5所示。

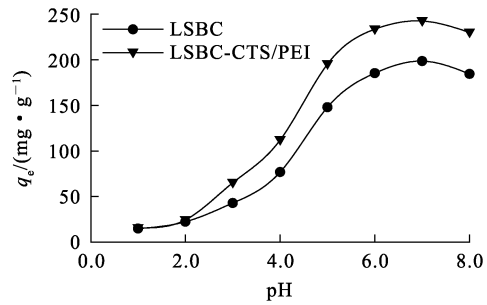


图5 溶液pH对LSBC-CTS/PEI和LSBC吸附U(VI)的影响

由图5看出:pH较低时,LSBC-CTS/PEI对铀酰离子的吸附量较小,这是因为溶液中有较多H⁺,这些H⁺会与铀酰离子竞争吸附位点,降低U(VI)吸附量;随pH升高,溶液中与铀酰离子竞争的H⁺浓度逐渐降低,会使U(VI)更易被材料表面的吸附位点吸附,从而提高吸附量,同时,材料表面更多官能团逐渐去质子化,暴露出更多的活性位点,更有利于铀酰离子的吸附;溶液pH过高时,溶液中会形成(UO₂)₃(OH)₇⁻和UO₂(OH)₃⁻等不利于U(VI)与材料表面官能团配合成铀酰的氢氧化物,也会导致铀吸附量下降。所以,选择溶液pH=5.0进行后续试验。

2.2.2 吸附时间对吸附的影响与吸附动力学

在吸附剂用量10 mg、铀溶液体积25 mL、铀初始质量浓度100 mg/L、溶液pH=5.0、吸附温度298 K条件下,考察吸附时间对LSBC-CTS/PEI和LSBC吸附U(VI)的影响,试验结果如图6(a)所示。可以看出:随吸附时间延长,LSBC-CTS/PEI对铀的吸附量快速增大;LSBC-CTS/PEI吸附720 min达吸附平衡,而LSBC吸附60 min即可达吸附平衡,LSBC-CTS/PEI达吸附平衡所需时间更长,是由于壳聚糖与聚乙烯亚胺的交联使生物炭表面有壳聚糖堆积,阻塞了铀酰离子在吸附剂内部的扩散,在内部吸附时消耗很多时间。

为了更好地研究 LSBC-CTS/PEI 对 U(VI) 的吸附动力学,用准一级和准二级动力学模型对试验数据进而拟合^[22],拟合曲线如图 6(b)所示,拟合参数见表 2。可以看出,LSBC-CTS/PEI 的

准二级动力学拟合相关系数高于准一级,说明准二级动力学能更好地描述 LSBC-CTS/PEI 对铀的吸附过程,即化学吸附在过程中占主导作用。

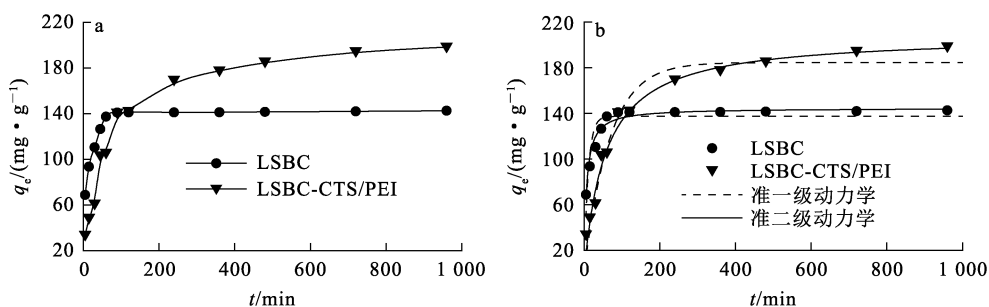


图 6 吸附时间对 LSBC-CTS/PEI 和 LSBC 吸附 U(VI) 的影响(a)及准一级动力学、准二级动力学拟合曲线(b)

表 2 LSBC-CTS/PEI 和 LSBC 吸附 U(VI) 的动力学拟合参数

吸附剂	$q_{e, 试验} / (mg \cdot g^{-1})$	准一级动力学模型			准二级动力学模型		
		$q_{e, 理论} / (mg \cdot g^{-1})$	k_1 / min^{-1}	R^2	$q_{e, 理论} / (mg \cdot g^{-1})$	$k_2 / (g \cdot mg^{-1} \cdot min^{-1})$	R^2
LSBC	142.65	138.81	0.0827	0.8568	145.19	0.0011	0.9558
LSBC-CTS/PEI	198.4	184.7	0.0151	0.9670	207.54	0.0008	0.9792

2.2.3 铀初始质量浓度对吸附量的影响与吸附等温线

在吸附剂用量 10 mg、铀溶液体积 25 mL、溶液 pH=5.0、吸附时间 12 h、吸附温度 298 K 条件下,考察铀初始质量浓度对 LSBC-CTS/PEI 和 LSBC 吸附 U(VI) 的影响,试验结果如图 7(a)所示。可以看出:随溶液中 U(VI) 质量浓度不断增大,LSBC-CTS/PEI 对 U(VI) 的吸附量逐渐升高,最大吸附量为 391.01 mg/g,明显高于 LSBC 对 U(VI) 的吸附量,这也说明壳聚糖与聚乙烯亚胺交联可提高材料吸附性能。

为进一步考察铀初始质量浓度对 LSBC-CTS/

PEI 吸附效果的影响,确定 LSBC-CTS/PEI 对 U(VI) 的理论最大吸附量,用 Freundlich 和 Langmuir 等温吸附模型对试验数据进行拟合^[23],拟合曲线如图 7(b)所示,拟合参数见表 3。可以看出:Langmuir 等温吸附模型的拟合相关系数更接近 1,明显高于 Freundlich 等温吸附模型,说明 Langmuir 等温吸附模型能更准确地描述 LSBC-CTS/PEI 对 U(VI) 的吸附过程,即属于单层吸附,且吸附位点均匀;LSBC-CTS/PEI 的理论最大吸附量为 533.89 mg/g,说明 LSBC-CTS/PEI 是一种非常有潜力的 U(VI) 吸附剂。

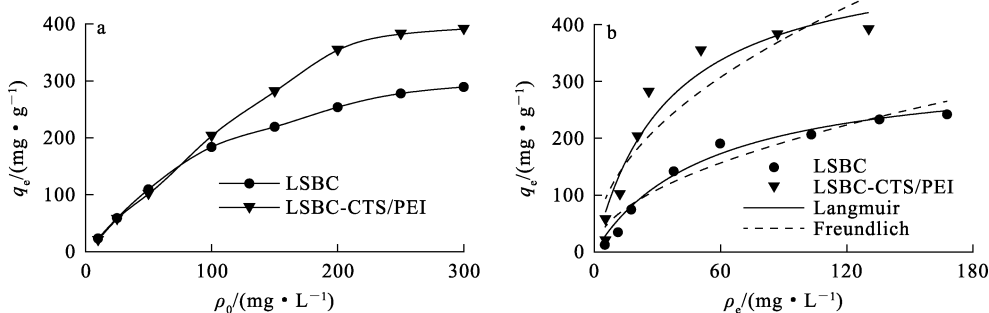


图 7 铀初始质量浓度对 LSBC-CTS/PEI 和 LSBC 吸附 U(VI) 的影响(a)及 Langmuir、Freundlich 等温吸附拟合曲线(b)

表 3 LSBC-CTS/PEI 和 LSBC 吸附 U(VI) 的等温吸附拟合参数

吸附剂	Langmuir 等温吸附模型			Freundlich 等温吸附模型		
	$q_m/(mg \cdot g^{-1})$	$k_L/(L \cdot g^{-1})$	R^2	$k_F/(mg^{1-1/n} \cdot L^{1/n} \cdot g^{-1})$	n	R^2
LSBC	329.53	0.017 7	0.978 9	17.842 4	0.524 6	0.921 0
LSBC-CTS/PEI	533.89	0.028 5	0.944 8	41.505 6	0.488 8	0.864 6

2.2.4 吸附温度对吸附的影响与热力学

吸附剂用量 10 mg、铀溶液体积 25 mL、铀初始质量浓度 100 mg/L、溶液 pH=5.0、吸附时间 12 h 条件下,考察吸附温度对 LSBC-CTS/PEI 和 LSBC 吸附 U(VI) 的影响,试验结果如图 8(a)所示。可以看出:2 种材料对 U(VI) 的吸附量随温度升高的变化趋势相似,LSBC-CTS/PEI 对 U(VI) 的吸附量随温度升高从 185.23 mg/g 增

至 222.1 mg/g,说明升温对吸附有促进作用。 $\ln k_d$ 与 $1/T$ 的线性关系如图 8(b)所示,热力学参数计算^[23]结果见表 4。可以看出:熵变 $\Delta S > 0$,说明 LSBC-CTS/PEI 表面混乱度增加;焓变 $\Delta H > 0$,说明 LSBC-CTS/PEI 吸附 U(VI) 的过程吸热;不同温度下的吉布斯自由能变 $\Delta G < 0$,说明反应是自发的,且温度升高对反应发生有利。

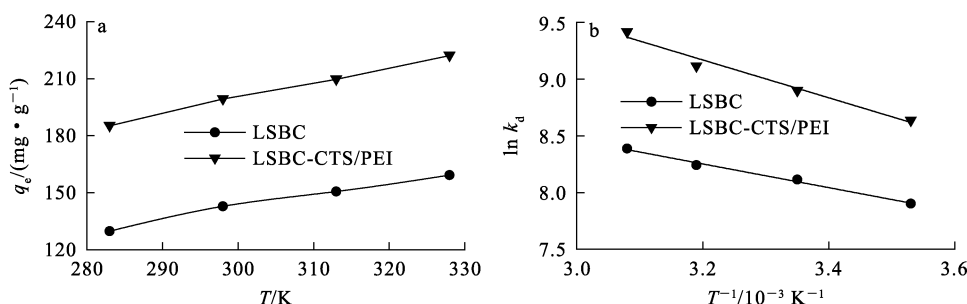


图 8 吸附温度对 LSBC-CTS/PEI 和 LSBC 吸附 U(VI) 的影响(a)、 $\ln k_d$ 与 $1/T$ 的线性关系(b)

表 4 LSBC-CTS/PEI 和 LSBC 吸附 U(VI) 的热力学参数

吸附剂	$\Delta S/(J \cdot mol^{-1} \cdot K^{-1})$	$\Delta H/(kJ \cdot mol^{-1} \cdot K^{-1})$	$\Delta G/(kJ \cdot mol^{-1})$			
			283 K	298 K	313 K	328 K
LSBC	96.44	8.69	-18.61	-20.05	-21.49	-22.94
LSBC-CTS/PEI	120.61	13.87	-20.26	-22.07	-23.88	-25.89

2.2.5 竞争离子对吸附的影响

由式(1)~(4)计算得出,LSBC 对 U(VI) 的选择性为 44.17%,而 LSBC-CTS/PEI 选择性提高到 84.91%,表明经过 CTS/PEI 交联后,大大提高了 LSBC 对 U(VI) 的选择性。为探究 LSBC-CTS/PEI 对 U(VI) 的选择性能,在吸附剂用量 10 mg、竞争离子溶液体积 25 mL、各种离子初始

质量浓度 100 mg/L、溶液 pH=5.0、吸附温度 298 K、吸附时间 12 h 条件下,考察竞争离子对吸附影响,试验结果如图 9 所示。由图 9(a)看出:LSBC-CTS/PEI 对铀的吸附分配系数 k_d 达 34 264.7 mL/g,明显大于 LSBC。由图 9(b)也可看出,LSBC-CTS/PEI 对 U(VI) 的选择性比 LSBC 更好。

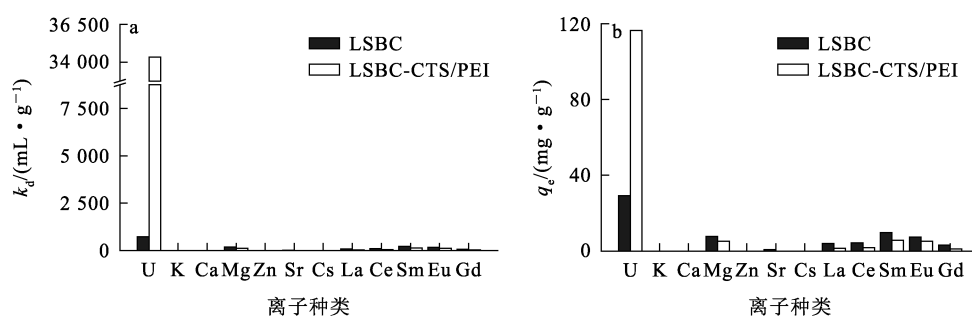


图 9 LSBC-CTS/PEI 和 LSBC 对离子的吸附分配系数 k_d (a) 及竞争离子对 LSBC-CTS/PEI 和 LSBC 吸附 U(VI) 的影响 (b)

3 结论

采用简单、绿色的溶胶-凝胶法将壳聚糖与聚乙烯亚胺交联,并将水热法制备得到的莲蓬生物炭均匀地分散到 CTS 与 PEI 的交联网中,可成功制备一种具有丰富吸附位点的聚乙烯亚胺功能化的莲蓬生物炭气凝胶 LSBC-CTS/PEI。该法能弥补类似方法过程复杂、有机试剂用量大等缺点,且有利于后续固液分离和回收,大大提高吸附剂的实用性和经济性。

LSBC-CTS/PEI 呈更松散的交联网状结构,虽然由于壳聚糖在表面的堆叠导致比表面积和热稳定性有所下降,但具有非常丰富的胺基官能团,能为 U(VI) 的配合提供更多吸附位点。溶液 pH 对 LSBC-CTS/PEI 吸附 U(VI) 的影响较大,该吸附过程更符合准二级动力学模型和 Langmuir 等温吸附模型,属于单层的化学吸附,吸热过程可自发进行。最大吸附量为 533.89 mg/g,且 LSBC-CTS/PEI 对铀的选择性较高。

LSBC-CTS/PEI 对 U(VI) 的吸附量较高,选择性和固液分离能力均较好,在含铀废水处理领域具有一定应用潜力,但吸附速率有所降低,其性能仍需进一步提升。

参考文献:

[1] IGHALO J O, CHEN Z H, OHORO C R, et al. A review of remediation technologies for uranium-contaminated water [J]. *Chemosphere*, 2024, 352. DOI: 10. 1016/j. chemosphere. 2024. 141322.

[2] CHEN X C, WANG Y, XIA H T, et al. "One-can" strategy for the synthesis of hydrothermal biochar modified with phosphate groups and efficient removal of uranium(VI)[J]. *Journal of Environmental Radioactivity*, 2023, 263. DOI:10.

1016/j. jenvrad. 2023. 107182.

[3] SOBCZYK M, CWANEK A, OKAS E, et al. Elucidating uranium interactions with synthetic Na-P1 zeolite/Ca²⁺-substituted alginate composite granules through batch and spectroscopic studies; emphasizing the significance of ion exchange and complexation [J]. *Environmental Pollution*, 2024, 343. DOI:10. 1016/j. envpol. 2023. 123184.

[4] YE Y, FAN B L, QIN Z M, et al. Electrochemical removal and recovery of uranium; effects of operation conditions, mechanisms, and implications [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2022, 432. DOI:10. 1016/j. jhazmat. 2022. 128723.

[5] CHEN L J, GAO Y, LIAN J J, et al. Efficient photoreduction removal of uranium(VI) by O, K co-doped g-C₃N₄ under air atmosphere without sacrificial agents [J]. *Separation and Purification Technology*, 2022, 307 (11). DOI: 10. 1016/j. seppur. 2022. 122873.

[6] LYU J Q, XIA H T, REN Q, et al. Hydrothermal fabrication of amino functionalized lotus seedpods-derived biochar for efficient removal of uranium(VI) [J]. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 2023, 332 (10): 4075-4087.

[7] LIU Y T, WANG Y, XIA H T, et al. Low-cost reed straw-derived biochar prepared by hydrothermal carbonization for the removal of uranium(VI) from aqueous solution [J]. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 2022, 331 (9): 3915-3925.

[8] LI Y, REN Q, HUA R, et al. Synergistic strategy design of (malonamide-amidoxime) bifunctional branching network crosslinked membrane and application in uranium(VI) resource recovery [J]. *Chemical Engineering Journal*, 2023, 461. DOI:10. 1016/j. cej. 2023. 142013.

[9] LEI J, LIU H H, ZHOU L, et al. Progress and perspective in enrichment and separation of radionuclide uranium by biomass functional materials [J]. *Chemical Engineering Journal*, 2023, 471. DOI:10. 1016/j. cej. 2023. 144586.

[10] GEORGIOS E, RAPTOPOULOS G, ANASTOPOULOS I, et al. Uranium removal from aqueous solutions by aerogel-based adsorbents: a critical review [J]. *Nanomaterials*,

- 2023, 13(2). DOI:10.3390/nano13020363.
- [11] 张佳彬,高丹丹,张展硕,等. 生物质碳气凝胶的研究现状及发展趋势[J]. 现代化工,2024,44(1):59-62.
- [12] 张安杰,刘东升,李蕾蕾,等. 环境友好型气凝胶材料研究进展[J]. 三峡生态环境监测,2024,9(1):9-18.
- [13] LIU W J,ZHANG L Y,CHEN F M, et al. Efficiency and mechanism of adsorption of low-concentration uranium in water by a new chitosan/aluminum sludge composite aerogel[J]. Dalton Transactions,2020,49(10):3209-3221.
- [14] LEI Y Q,LI K D,LIAO J, et al. Design of 3D alumina-doped magnesium oxide aerogels with a high efficiency removal of uranium(VI) from wastewater[J]. Inorganic Chemistry Frontiers,2021,8(10):2561-2574.
- [15] YIN N, AI Y, XU Y, et al. Preparation of magnetic biomass-carbon aerogel and its application for adsorption of uranium(VI)[J]. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry,2020,326(2):1307-1321.
- [16] TU P M, PHAT L N, LIN T H, et al. Effects of activation conditions on the characteristics, adsorption capacity, and energy storage of carbon aerogel from watermelon rind[J]. Chem-Nano Mat,2022,8(12). DOI:10.1002/cnma.202200426.
- [17] LIM Z E, THAI Q B, LE D K, et al. Functionalized pineapple aerogels for ethylene gas adsorption and nickel(II) ion removal applications[J]. Journal of Environmental Chemical Engineering, 2020, 8 (6). DOI: 10. 1016/j. jece. 2020. 104524.
- [18] ZHANG H,ZHANG Z,LUO J D, et al. A chemical blowing strategy to fabricate biomass-derived carbon-aerogels with graphene-like nanosheet structures for high-performance supercapacitors[J]. Chem Sus Chem,2019,12(11):2462-2470.
- [19] TU D,LIAO H W,DENG Q L, et al. Renewable biomass-derived hierarchically porous carbonaceous sponge (CS)/g-C₃N₄ composites as adsorption and photocatalytic materials[J]. Chemistryselect,2019,4(11):3233-3240.
- [20] LEE J H,PARK S J. Recent advances in preparations and applications of carbon aerogels; a review[J]. Carbon,2020,163:1-18.
- [21] WANG R X,LI M Z,LIU T, et al. Encapsulating carbon-coated nano zero-valent iron particles with biomass-derived carbon aerogel for efficient uranium extraction from uranium-containing wastewater[J]. Journal of Cleaner Production,2022,364. DOI:10.1016/j.jclepro.2022.132654.
- [22] HAMED A,ORABI A,SALEM H, et al. An effective uranium removal using diversified synthesized cross-linked chitosan bis-aldehyde Schiff base derivatives from aqueous solutions [J]. Environmental Science and Pollution Research,2023,30(49):106790-106811.
- [23] XIE X Q,WANG Y F,XIONG Z, et al. Highly efficient removal of uranium(VI) from aqueous solution using poly(cyclotriphosphazene-co-polyethyleneimine) microspheres [J]. J Radioanal Nucl Chem,2020,326(3):1867-1877.

Adsorption Properties of Polyethylene Imine-functionalized Biochar Aerogel for Uranium

FENG Zihao, LYU Jianqi, WANG Yang, REN Qi, WANG Yun

(School of Nuclear Science and Engineering, East China University of Technology,
Nanchang 330013, China)

Abstract: The synthesis of a polyethylene imine-functionalized biochar aerogels (LSBC-CTS/PEI) using lotus seed powder, chitosan and polyethylene imine as materials, and used for adsorption of U(VI) in wastewater was studied. The results show that LSBC-CTS/PEI exhibit a looser structure with interconnections, and contains very rich amine-based functional groups, which can provide more adsorption sites for U(VI) coordination. The selective adsorption of U(VI) by LSBC-CTS/PEI is greatly affected by pH. The adsorption is mainly composed of single-layer chemisorption, which belongs to a spontaneous endothermic process, and is more suitable for description by quasi-second-order kinetics and Langmuir isothermal adsorption model. The selectivity of LSBC-CTS/PEI to uranium is 84.91%, and the maximum adsorption capacity is 533.89 mg/g. The adsorption material has high adsorption capacity of uranium, good selectivity, and convenient separation of solid and liquid, so it has the certain value of application.

Key words: uranium(VI); adsorption; chitosan; polyethylene imine; functionalization; biochar; aerogel