

SnNb₂O₆纳米片的合成及对达氟沙星的吸附

赵洁, 宋强, 郭笑, 吴飞, 田昊川, 卢朝薇

(西安理工大学理学院, 西安 710048)

摘要 通过水热反应制备了新型 SnNb₂O₆ 纳米片吸附剂, 并利用 X 射线衍射(XRD)、扫描电子显微镜(SEM)和比表面积及孔径分析等手段对其结构和形貌进行了表征. 以第三代喹诺酮类抗生素达氟沙星为吸附质, 进行了影响因素实验、吸附动力学实验及等温吸附实验, 探究了 SnNb₂O₆ 对达氟沙星的吸附性能和吸附机理. 实验结果表明, SnNb₂O₆ 吸附剂具有片状形貌, 层状单斜相晶体结构, 比表面积为 52.89 m²/g. 吸附剂用量、吸附温度、溶液 pH 值及吸附时间均对吸附率有一定影响. 相应的等温吸附曲线可以较好地拟合 Freundlich 方程, 且动力学实验数据可以用拟二级动力学方程描述, 其中液膜扩散为主要控制步骤. 在 35 °C 下, 吸附剂用量为 0.09 g, 控制溶液 pH 值为 6.02 时, 吸附 30 min 即可达到较好效果, 此时达氟沙星的吸附去除率为 93.1%.

关键词 吸附剂; SnNb₂O₆; 纳米片; 达氟沙星

中图分类号 O611.3 **文献标志码** A

抗生素作为治疗细菌或微生物感染的有效手段, 已广泛应用于医疗、农业和公共卫生等领域. 在长期使用过程中, 抗生素对生物及环境造成了不可忽视的影响^[1,2]. 达氟沙星(Danofloxacin)作为喹诺酮类兽用药物, 是一种广谱抗生素, 可用于治疗巴氏杆菌和支原体等细菌微生物引发的感染. 该药物可在家畜体内快速代谢并排出体外, 但由于其良好的稳定性, 代谢物中有 85% 为未降解的达氟沙星, 容易通过渗透或循环作用污染水体^[3,4]. 目前, 对达氟沙星的研究主要集中在药代动力学性质和残留检测方法等方面^[5-8], 而对其产生的水体污染去除方法的研究尚未见文献报道. 消除水体抗生素污染通常采用气浮法、吸附法、膜渗透、氧化法、电化学法以及生物法等. 其中, 吸附法具有处理效率高、去除过程不产生副产物及处理成本低等特点, 被视为处理抗生素污染的有效手段^[9]. 吸附法的关键是吸附剂的研发, 其中活性炭被用作吸附抗生素的主要材料, 但是由不同原料制备的活性炭吸附能力差异较大, 同时在其制备及改性过程中需要无氧环境和较高的温度, 工艺较为复杂, 能耗很大^[10]. 因此, 需要寻找一种制备简单的新型吸附材料, 并可用于水体中达氟沙星的吸附去除. 在众多吸附材料中, 纳米材料因具有独特的理化性质, 而被研究者广泛关注^[11].

SnNb₂O₆ 是一种复合金属氧化物, 属于 C2/c 单斜晶系, 其中, Nb 原子位于中心, 6 个 O 原子为顶点构成 [NbO₆] 八面体; Sn 原子位于锥体顶点, 4 个 O 原子位于锥体底面形成 [SnO₄] 四棱锥, O 原子与 [NbO₆] 共用, 形成层状结构^[12]. 由于 SnNb₂O₆ 具有较大的晶胞空间及表面积, 且孔径分布均匀, 使其有可能成为具有优良吸附性能的新型材料. 本文通过水热法制备了 SnNb₂O₆ 纳米材料; 以达氟沙星为吸附质, 研究了吸附条件变化对该材料吸附性能的影响; 并对动力学实验与等温吸附实验数据进行分析, 初步解释了该材料的吸附机理.

1 实验部分

1.1 试剂与仪器

二水合氯化亚锡、五氯化铌、无水乙醇和氨水均为分析纯, 购于国药集团化学试剂公司; 达氟沙

收稿日期: 2019-01-04. 网络出版日期: 2019-06-04.

基金项目: 国家自然科学基金(批准号: 21706207)资助.

联系人简介: 赵洁, 女, 博士, 副教授, 主要从事环境催化材料方面的研究. E-mail: zhaojie_1999@xaut.edu.cn

星标准品购于 Sigma-Aldrich 公司; 实验用水为去离子水.

VEGA-3-SDH 型扫描电子显微镜 (SEM, 捷克 TESCAN 公司); JW-BK122W 型静态氮吸附仪 (北京精微高博科学技术有限公司); XRD-7000s 型 X 射线衍射仪 (XRD, 日本岛津公司); UV-2102PC 型紫外-可见分光光度计 (UV-Vis, 上海尤尼柯仪器有限公司); KYC-100B 型空气恒温摇床 (上海福玛实验设备有限公司).

1.2 吸附剂的制备

采用水热法制备 SnNb_2O_6 吸附剂^[13]. 室温下, 取 1.25 mmol 的 $\text{SnCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ 溶于 20 mL 蒸馏水中, 搅拌 20 min; 同时, 将 2.5 mmol 的 NbCl_5 溶解在 20 mL 无水乙醇中, 搅拌 20 min. 将 NbCl_5 溶液在搅拌下缓慢滴入 SnCl_2 溶液中, 用质量分数为 25%~28% 的 $\text{NH}_3 \cdot \text{H}_2\text{O}$ 调节 pH 值为 3; 置于 100 mL 水热反应釜中, 于 200 °C 反应 12 h, 反应完成后自然冷却, 经洗涤、干燥后, 得到产物 SnNb_2O_6 .

1.3 吸附实验

将一定量的 SnNb_2O_6 加入到 50 mL 8 mg/L 的达氟沙星溶液中, 考察 SnNb_2O_6 用量、达氟沙星溶液的初始 pH 值、吸附温度和吸附时间对达氟沙星吸附率的影响. 实验中, 测试上层清液在 282 nm 处的吸光度, 并用下式计算吸附率 (η , %) 和吸附量 q_t (mg/g)^[14]:

$$\eta = \frac{c_0 - c_e}{c_0} \times 100\% \quad (1)$$

$$q_t = \frac{(c_0 - c_t)V}{m} \quad (2)$$

式中: c_0 (mg/L) 为样品的初始浓度; c_e (mg/L) 为样品达到吸附平衡时的浓度; m (g) 为 SnNb_2O_6 的添加量; V 为达氟沙星溶液的体积 (L); c_t (mg/L) 为 t 时刻样品的吸附浓度.

2 结果与讨论

2.1 吸附剂的表征

图 1 为 SnNb_2O_6 纳米材料的 XRD 谱图, 将其与单斜相 SnNb_2O_6 的标准衍射谱图 JCPDS No. 84-1810 进行对比发现, 2θ 为 24.77°, 28.81°, 29.07°, 31.38°, 32.19°, 36.83°, 49.14°, 54.22°, 54.60°, 61.65° 和 65.60° 等处的衍射峰与标准谱图基本一致, 可知所制备的 SnNb_2O_6 为傅锡铌矿单斜晶系晶体. 晶胞参数 $a=1.7093$ nm, $b=0.4877$ nm, $c=0.5558$ nm, $\alpha=90.0^\circ$, $\beta=90.85^\circ$, $\gamma=90.0^\circ$.

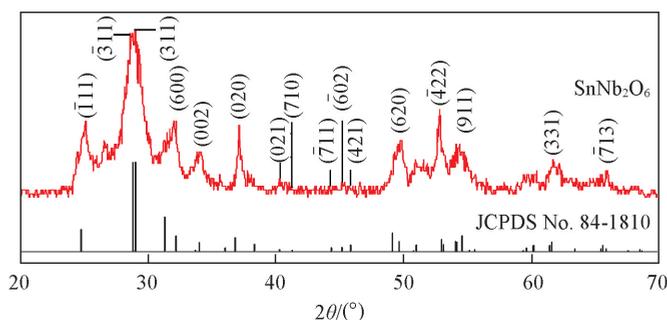


Fig.1 XRD patterns of SnNb_2O_6

SnNb_2O_6 的平均粒径根据谢乐 (Scherrer) 公式^[15] 计算得到:

$$D = \frac{k\lambda}{\beta \cos\theta} \quad (3)$$

式中: D 为粒径; k 为常数, 当 β 为半峰宽 (FWHM) 时 $k=0.89$; λ 为衍射光的波长; θ (°) 为布拉格衍射角. 由式 (3) 计算得出 SnNb_2O_6 纳米材料的平均晶粒尺寸 $D=10.0$ nm.

图 2 为 SnNb_2O_6 纳米材料的 SEM 照片. 可见, SnNb_2O_6 是由纳米片组成的花球状晶体, 这是由 SnNb_2O_6 自身结构为相互平行的 NbO_6 八面体层和 SnO_8 层所决定的, 其晶体结构如图 3 所示. Li 等^[12]

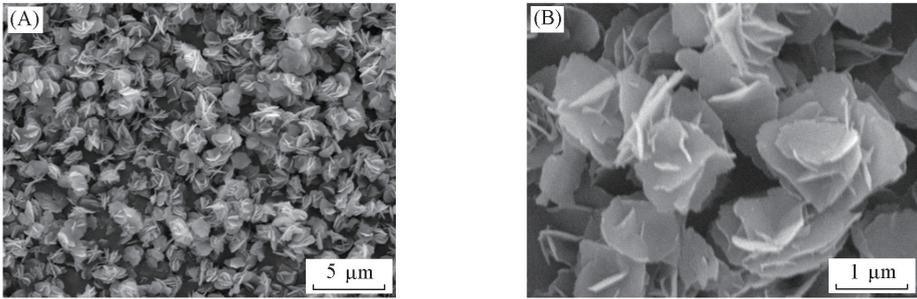


Fig.2 SEM images of SnNb₂O₆ with different magnifications

研究表明, 由于相对化学势的作用, 层状结构的 SnNb₂O₆ 晶体总是优先沿层结构的方向生长. 与颗粒状晶体相比, 片状晶体具有更大的比表面积, 与溶液接触更充分, 有利于吸附质的表面吸附过程. 使用 Nano Measurer 1.2 软件对图 2(B) 中 SnNb₂O₆ 纳米片进行粒径统计, 发现粒径分布在几百纳米至几微米之间, 厚度介于 10~30 nm 之间. 粒径统计结果与 Scherrer 公式计算结果有较大差别, 可能是由于 Scherrer 公式仅适用于纳米尺度的粒径计算, 而 SEM 由于受放大倍率的影响, 过小的颗粒并不在视野范围内, 从而造成两者数据的差异.

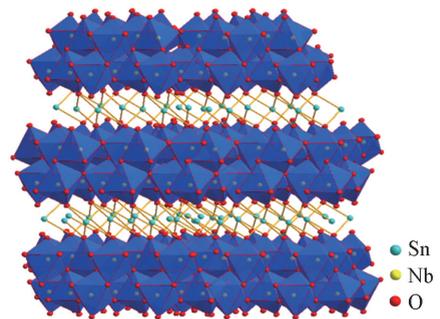


Fig.3 Crystal structure of SnNb₂O₆

图 4 为 SnNb₂O₆ 吸附剂的氮气吸附-脱附等温曲线. 由图 4 可知, 当 $p/p_0 < 0.1$ 时曲线有一段较快的上升, 为氮气的微孔吸附; 当 $p/p_0 > 0.17$ 时出现迟滞回线, 介孔有氮气渗入, 且在这一区域中由于毛细管凝聚效应曲线较快上升; 当 $p/p_0 = 0.98$ 时, 迟滞回线结束, 在较高相对压力区域内并未出现终止平台, 这可能是由于材料中还存在大孔, 进而继续吸附形成了多分子层^[16]. 在氮气脱附过程中, 在 $p/p_0 = 0.17 \sim 0.98$ 范围内脱附速率较平稳, 无明显变化. 初步判断 SnNb₂O₆ 吸附剂属于 IV 型等温线, 为介孔吸附材料, 有较为明显的 H3 型迟滞回线, 与该材料的片状颗粒形貌吻合, 并且在较高相对压力区域没有表现出吸附限制^[17]. 根据以上吸附等温线测试结果, 采用 BET 法计算得 SnNb₂O₆ 的比表面积为 52.89 m²/g.

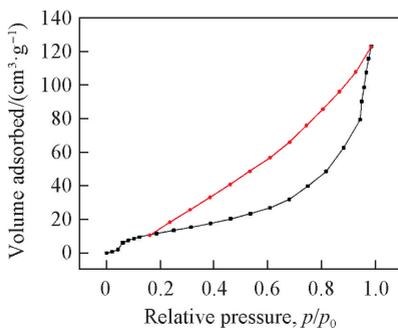


Fig.4 N₂ adsorption-desorption isotherms of SnNb₂O₆ nanoplates

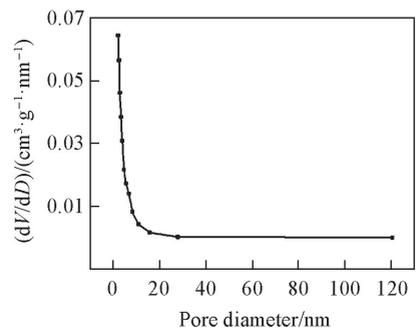


Fig.5 Pore size distribution of SnNb₂O₆ obtained from N₂ adsorption data

图 5 为 SnNb₂O₆ 吸附剂的孔径分布图, 由图 5 可得 BJH 脱附累积总孔体积为 0.26 cm³/g, BJH 脱附平均孔径为 4.97 nm, 最可几孔径为 2.21 nm. 可见, SnNb₂O₆ 是孔径较小的介孔吸附材料. 在一般吸附过程中, 微孔非常适合吸附离子和小分子, 但由于微孔尺寸过小, 吸附物的扩散速度非常慢. 大孔结构虽然有利于吸附质的内扩散, 但大孔材料的比表面积小, 吸附位点少, 吸附效果不佳. 而介孔结构由于其孔径介于微孔与大孔之间, 在提高扩散速率的同时也可以吸附较大的分子^[18].

2.2 吸附剂用量对达氟沙星吸附率的影响

图 6 示出了吸附温度为 35 °C, 达氟沙星溶液浓度为 8 mg/L, 体积为 50 mL, 吸附时间为 30 min 时, SnNb_2O_6 纳米片用量对达氟沙星吸附率的影响. 可见, 在添加量从 0.03 g 增加到 0.09 g 的过程中, 吸附率的增加十分明显, 由 47.9% 逐渐增大到 93.1%; 之后吸附剂用量继续增加吸附率几乎不变. 这可能是由于在 0.03~0.09 g 范围内, 随着吸附剂用量的增加, 吸附平衡向正向移动, 吸附率随用量的增加而增大. 而添加量大于 0.09 g 后, 进一步提升用量, 吸附率略微下降, 由 93.1% 下降至约 91.9%, 可能此时的吸附反应已经达到饱和, 故继续增加吸附剂用量无法提高吸附率, 同时过量的吸附剂发生团聚, 影响了 SnNb_2O_6 的吸附效果. 因此, 最佳的 SnNb_2O_6 用量为 0.09 g.

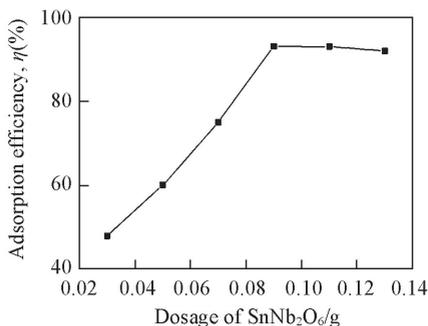


Fig.6 Effect of SnNb_2O_6 dosage on the adsorption of danofloxacin

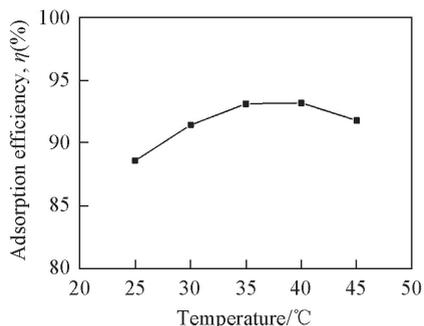


Fig.7 Effect of solution temperature on the adsorption of danofloxacin

2.3 溶液 pH 值对达氟沙星吸附率的影响

用盐酸和氢氧化钠溶液调节达氟沙星溶液的 pH 值, 吸附率随溶液 pH 值的变化如图 8 所示. 可见, 溶液 pH=2 时, 吸附率仅有 60.8%; 溶液 pH=4 时, 吸附率升高至 68.4%; 而当 pH=6 时, 吸附率达到 93.1%; 再提高溶液的 pH 值, 吸附率略微上升, 溶液 pH=10 时, 吸附率达到 93.9%. 综上, 吸附率随 pH 值的升高而升高, 并在 pH=6 后趋于稳定. 推测由于 pH 较低时, 溶液中有大量的氢离子, 与达氟沙星竞争吸附位点, 部分吸附位点被氢离子中和, 削弱了吸附剂与达氟沙星分子间的静电作用, 从而导致吸附率下降^[19]. 因此, 出于经济性考量选用达氟沙星溶液的初始 pH 值(pH=6.02).

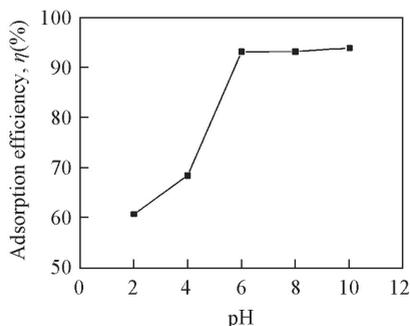


Fig.8 Effect of pH on danofloxacin adsorption by SnNb_2O_6 nanoplates

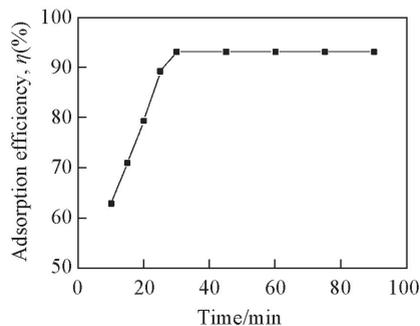


Fig.9 Effect of time on danofloxacin adsorption by SnNb_2O_6 nanoplates

2.4 吸附时间对达氟沙星吸附率的影响

在与 2.2 节相同的实验条件下, 吸附时间对达氟沙星吸附率的影响如图 9 所示, 在 10~30 min 范围内吸附率快速升高, 吸附 30 min 时吸附率最大, 达到 93.1%; 继续延长吸附时间, 吸附率基本保持不变. 因此, 最佳吸附时间为 30 min.

2.5 吸附动力学

分别使用拟一级动力学方程和拟二级动力学方程进行动力学实验数据拟合. 然而, 拟一级动力学方程通常不能描述完整的吸附过程, 仅适合描述前 20~30 min 的吸附^[20]; 而拟二级动力学方程由于其假定吸附速率受到化学吸附的影响, 因此其描述的化学吸附机理更全面^[21], 拟二级动力学方程为^[22]

$$\frac{dq_t}{dt} = k_2(q_e - q_t)^2 \quad (4)$$

对式(4)进行积分得到:

$$\frac{t}{q_t} = \frac{1}{k_2 q_e^2} + \frac{1}{q_e} t \quad (5)$$

式中: t (min) 为吸附时间; k_2 ($\text{g} \cdot \text{mg}^{-1} \cdot \text{min}^{-1}$) 为二级吸附速率常数; q_t (mg/g) 为 t 时刻 SnNb₂O₆ 对达氟沙星的吸附量; q_e (mg/g) 为达到吸附平衡时的吸附量. 方程中的二级吸附速率常数 k_2 可以反映吸附速率的快慢, k_2 越大则吸附速率越快^[23]. 拟合所得曲线如图 10 所示, 拟合直线方程为 $t/q_t = 0.75551 + 0.23079t$, 相关系数 $R^2 = 0.9964$, 比拟一级动力学方程拟合相关系数 ($R^2 = 0.9382$) 更高, 可见 SnNb₂O₆ 对达氟沙星的吸附更符合拟二级动力学方程, 说明 SnNb₂O₆ 与达氟沙星分子之间有较强的静电作用, 即两者之间有电子共用或电子转移现象, 是一个由快转慢并逐渐趋于平衡的过程^[24]. 通过进一步计算得出二级吸附速率常数 $k_2 = 0.0705 \text{ g} \cdot \text{mg}^{-1} \cdot \text{min}^{-1}$, 平衡吸附量 $q_e = 4.33 \text{ mg/g}$.

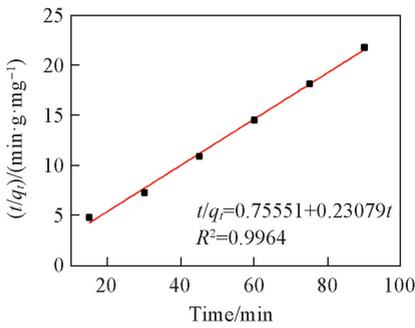


Fig.10 Pseudo-second order kinetic curve of danofloxacin adsorption

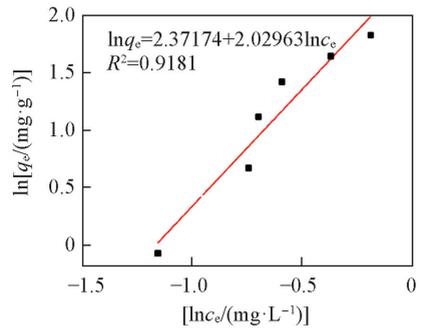


Fig.11 Adsorption curve of danofloxacin fitted by Freundlich equation

2.6 吸附等温线

在 35 °C 下, 分别配制浓度为 2, 4, 6, 8, 10 和 12 mg/L 的达氟沙星溶液各 50 mL, 向每个溶液中均加入 0.09 g 吸附剂进行吸附实验, 得到吸附量随达氟沙星浓度变化曲线. 随着达氟沙星浓度的增大, 达氟沙星在 SnNb₂O₆ 上的吸附量先逐渐增加, 随后减小. 对吸附数据分别使用 Langmuir 与 Freundlich 吸附等温式进行拟合. 由拟合结果发现, 此吸附过程不符合 Langmuir 方程, 而用 Freundlich 方程拟合的相关性系数更高. Freundlich 等温线方程如下^[25]:

$$q_e = K_F c_e^{1/n} \quad (6)$$

将式(6)变为线性形式:

$$\ln q_e = \ln K_F + \frac{1}{n} \ln c_e \quad (7)$$

式(7)表明, $\ln q_e$ 与 $\ln c_e$ 为线性关系, 其中 q_e (mg/g) 为平衡吸附量; c_e (mg/L) 为平衡浓度; K_F 为 Freundlich 吸附常数; n 为吸附强度. 拟合曲线如图 11 所示, 相关系数 $R^2 = 0.9181$, 可知该过程较符合 Freundlich 吸附模型. Freundlich 方程是描述溶质从液体表面吸附到固体表面的经验公式, 当 $n = 1$ 时, 吸附过程与浓度无关; 当 $1/n < 1$ 时为正常吸附; 当 $1/n > 1$ 时为协同吸附^[26]. 由拟合结果可知, SnNb₂O₆ 对达氟沙星的吸附为非均匀吸附, 吸附剂表面存在活性吸附位点, 同时具有协同吸附效应, 即吸附质被吸附后也对游离的吸附质分子产生了吸附作用^[27].

2.7 吸附机理

通常认为吸附过程包括以下 3 个阶段: 首先, 由于浓度差因素, 溶液中的分子接触并固定到吸附剂外表面, 即外扩散过程; 其次, 吸附剂表面的分子通过材料表面的孔结构, 从外表面扩散至内表面, 为内扩散过程; 最后, 分子在内表面与吸附剂分子产生作用, 被固定在吸附剂内部, 为内表面吸附过程^[28]. 而对整个吸附速率起主导因素的是内扩散过程, 因此使用 Weber-Morris 方程来进行拟合, 方

程^[29]如下:

$$q_t = k_{id} t^{1/2} + C \quad (8)$$

式中: 斜率 k_{id} [$\text{mg} \cdot (\text{g} \cdot \text{min}^{1/2})^{-1}$] 为内扩散速率常数; C 为涉及到厚度和边界层的常数; t (min) 为吸附时间; q_t (mg/g) 为 t 时刻的吸附量. 以 q_t 对 $t^{1/2}$ 作线性拟合, 得到 k_{id} 和 C 的值. 若拟合曲线通过原点, 说明吸附过程主要由分子的内部扩散控制; 若偏离原点则证明吸附过程主要为液膜扩散机理^[30]. 经拟合得到 $k_{id} = 0.1417 \text{ mg}/(\text{g} \cdot \text{min}^{1/2})$, 且拟合曲线未通过原点, 说明 SnNb_2O_6 纳米片对达氟沙星的吸附过程主要步骤为液膜扩散. SnNb_2O_6 是片状介孔材料, 在吸附过程中片层两面与溶液充分接触, 并且由于片层厚度较薄, 分子可通过介孔结构迅速完成内扩散过程. 而吸附质在浓度差驱动下, 从溶液转移到液体与吸附剂的两相界面, 并产生吸附作用, 整个过程较慢, 成为影响整个吸附过程的主要因素.

3 结 论

采用水热法制备了 SnNb_2O_6 纳米片状介孔吸附剂. 样品具有明显的层状形貌及较小的介孔结构, 并具有粒径较小、比表面积大和吸附去除率高等优点, 是一种有效、便捷的合成方法. 制备的 SnNb_2O_6 吸附剂对达氟沙星有较高的吸附率, 在温度为 $35 \text{ }^\circ\text{C}$, 溶液 $\text{pH} = 6.02$ 条件下, 添加 0.09 g 的 SnNb_2O_6 吸附剂, 30 min 即可达到吸附平衡, 吸附率为 93.1% , 表明 SnNb_2O_6 吸附剂可用于达氟沙星的吸附去除. SnNb_2O_6 纳米片对达氟沙星的吸附过程基本符合 Freundlich 吸附规律, 动力学过程可以使用拟二级动力学方程拟合. 液膜扩散为吸附过程的主要机理.

参 考 文 献

- [1] Cheng G. Y., Li J., Gu Y. F., Jia S. F., Hao H. H., Wang X., Liu Z. L., Dai M. H., Yuan Z. H., *Chinese Journal of Antibiotics*, **2018**, 43(6), 35—44(程古月, 李俊, 谷宇锋, 贾思凡, 郝海红, 王旭, 刘振利, 戴梦红, 袁宗辉. 中国抗生素杂志, **2018**, 43(6), 35—44)
- [2] Batt A. L., Snow D. D., Aga D. S., *Chemosphere*, **2006**, 64(11), 71—1963
- [3] Cheng D. M., Li Z. J., Zhang X. L., Feng Y., Zhang S. Q., *Scientia Agricultura Sinica*, **2018**, 51(17), 3335—3352(成登苗, 李兆君, 张雪莲, 冯瑶, 张树清. 中国农业科学, **2018**, 51(17), 3335—3352)
- [4] Lynch M. J., Rice J. R., Ericson J. F., Mosher F. R., Millas W. J., Harran L. P., Frame G. M., Illyes E. F., McGuirk P. R., *Journal of Agricultural and Food Chemistry*, **1994**, 42(2), 289—294
- [5] Xiao X., Lan W. X., Wang Y., Jiang L. J., Jiang Y. J., Wang Z. Q., *Journal of Veterinary Pharmacology and Therapeutics*, **2018**, 41(6), 912—918
- [6] Liu L. Q., Luo L. J., Suryoprabowo S., Peng J., Kuang H., Xu C. L., *Sensors*, **2014**, 14(9), 16785—16798
- [7] Kaur K., Saini S. S., Malik A. K., Singh B., *Spectrochimica Acta Part A: Molecular and Biomolecular Spectroscopy*, **2012**, 96(1), 790—795
- [8] Liu Y., Li J. C., Xu Q. Q., Meng Q., Pan X. Y., *Chinese Journal of Veterinary Science*, **2009**, 29(11), 1434—1437(柳影, 李继昌, 徐倩倩, 孟倩, 潘晓影. 中国兽医学报, **2009**, 29(11), 1434—1437)
- [9] Ebrahim S., Hossein Z. K., Mehrorang G., Arash A., Ramin J., *Ultrasonics-Sonochemistry*, **2018**, 40, 373—382
- [10] Tan F., Wu S. H., *Journal of Southwest Forestry University*, **2016**, 36(2), 142—145(谭非, 吴思鸿. 西南林业大学学报, **2016**, 36(2), 142—154)
- [11] Liu J., Sui M. H., Zhu C. Y., *Sichuan Environment*, **2011**, 30(2), 111—114(刘佳, 隋铭皓, 朱春艳. 四川环境, **2011**, 30(2), 111—114)
- [12] Li K. F., *Preparation and Photoelectrochemical Properties of Layered SnNb_2O_6* , Zhejiang University, Hangzhou, **2008**(李开翻. 层状 SnNb_2O_6 的制备及其光电化学性能研究, 杭州: 浙江大学, **2008**)
- [13] Se W. S., Tae H. N., Sangbaek P., Chan W. L., Sang H. K., Hae J. K., Hun K. P., Kug S. H., *International Journal of Hydrogen Energy*, **2013**, 39, 17517—17523
- [14] Yao Q. Y., Tang Y. K., Zhang H. B., Tan M. M., Xu Y. H., *Chemical Reaction Engineering and Technology*, **2011**, 27(4), 332—337(姚秋艳, 唐艳葵, 张寒冰, 覃苗苗, 徐源徽. 化学反应工程与工艺, **2011**, 27(4), 332—337)
- [15] Warren B. E., *X-Ray Diffraction*, Dover Publications Inc., New York, **1990**, 251—254
- [16] Zhong Y., Lan T. L., Huang Y. P., *Journal of China Three Gorges University (Natural Sciences)*, **2010**, 32(6), 98—103(钟永, 兰天龙, 黄应平. 三峡大学学报(自然科学版), **2010**, 32(6), 98—103)

- [17] Xin Q., Luo M. F., *Modern Catalysis Research Methods*, Science Press, Beijing, **2009**, 19—25(辛勤, 罗孟飞. 现代催化研究方法, 北京: 科学出版社, **2009**, 19—25)
- [18] Raimundo A. L. S., George R. S. A., Luiz P. C., Marcelo J. S., Anne M. S., Iara F. G., *Journal of Hazardous Materials*, **2018**, 362, 53—61
- [19] Wu Z. J., Liu H. N., Zhang H. F., *Environmental Chemistry*, **2010**, 29(6), 997—1003(吴志坚, 刘海宁, 张慧芳. 环境化学, **2010**, 29(6), 997—1003)
- [20] Ho Y. S., McKay G., *Process Biochemistry*, **1999**, 34(5), 451—465
- [21] Yue Q. Y., Xie J. K., Gao B. Y., Yu H., Yue W. W., Zhang S. X., Wang X. N., *Acta Scientiae Circumstantiae*, **2007**, 27(9), 1431—1438(岳钦艳, 解建坤, 高宝玉, 于慧, 岳文文, 张升晓, 王晓娜. 环境科学学报, **2007**, 27(9), 1431—1438)
- [22] Babu B. V., Gupta S., *Adsorption*, **2008**, 14(1), 85—92
- [23] Zhou Y. F., Meng Z., Wang Z. L., Li J. G., Men X. Q., Liu W. Y., *Chem. J. Chinese Universities*, **2018**, 39(10), 2253—2264(周艳芬, 孟哲, 王泽岚, 李吉光, 门秀琴, 刘万毅. 高等学校化学学报, **2018**, 39(10), 2253—2264)
- [24] Kang Y. Y., Guo Z. Q., Zhou J. P., *Chem. J. Chinese Universities*, **2018**, 39(7), 1364—1370(康媛媛, 郭泽清, 周剑平. 高等学校化学学报, **2018**, 39(7), 1364—1370)
- [25] Walter J. W., Paul M. M., Lynn E. K., *Water Research*, **1991**, 25(5), 499—528
- [26] Mohan S. V., Karthikeyan J., *Environmental Pollution*, **1997**, 97(1), 183—187
- [27] Matthias T., Katie A. C., *Adsorption*, **2014**, 20(2), 233—250
- [28] Wu S. Q., *Study on Removal of Heavy Metals Such as Cadmium and Copper in Polluted Water by Cyanuric Acid and Its Derivatives*, Hunan University, Changsha, **2017**(吴胜泉. 三聚硫氰酸及其衍生物去除污染水体中镉和铜等重金属的应用研究, 长沙: 湖南大学, **2017**)
- [29] Mahir A., Özkan D., Mehmet D., *Microporous and Mesoporous Materials*, **2007**, 101(3), 388—396
- [30] Mamdouh M. N., *Water Science and Technology*, **1999**, 40(7), 133—139

Synthesis of SnNb₂O₆ Nanoplates and Its Application for Danofloxacin Adsorption[†]

ZHAO Jie*, SONG Qiang, GUO Xiao, WU Fei, TIAN Haochuan, LU Zhaowei
(School of Science, Xi'an University of Technology, Xi'an 710048, China)

Abstract A novel SnNb₂O₆ nano-adsorbent was prepared *via* hydrothermal method. The structure and morphology of the sample were characterized by X-ray powder diffraction (XRD), scanning electron microscopy (SEM) and Brunauer-Emmett-Teller (BET) techniques. Danofloxacin, as one of the third generation of quinolone antibiotics, was used as the adsorption target. The influencing factors experiment, adsorption kinetics experiment and isothermal adsorption experiment were designed to investigate the adsorption performance and adsorption mechanism of SnNb₂O₆ adsorbent. The results showed that the SnNb₂O₆ adsorbent has a layered monoclinic phase crystal structure with a specific surface area of 52.89 m²/g. In addition, the amount of adsorbent, adsorption temperature, pH value and adsorption time all have an effect on the adsorption efficiency. The adsorption process conforms to the Freundlich equation at 35 °C and the adsorption kinetics meets the Pseudo-second-order kinetic equation, suggesting liquid film diffusion is dominant factor in adsorption process. At optimal conditions of 35 °C and pH = 6.02 with the dosage of 0.09 g, the adsorption efficiency is up to 93.1% in 30 min.

Keywords Adsorbent; SnNb₂O₆; Nanoplates; Danofloxacin

(Ed.: V, Z, K)

[†] Supported by the National Natural Science Foundation of China (No.21706207).