

Nghiên cứu chế tạo vật liệu tổ hợp Fe₂O₃ và MgO trên nền graphen đa lớp ứng dụng làm vật liệu hấp phụ kim loại nặng As trong nước

Vũ Trí Thiên*, Nguyễn Trần Hùng, Nguyễn Thu Hương, Lã Đức Dương, Lê Hữu Thành

Viện Hóa học-Vật liệu, Viện Khoa học và Công nghệ quân sự.

*Email: thienkqh140309@gmail.com

Nhận bài: 02/11/2022; Hoàn thiện: 17/11/2022; Chấp nhận đăng: 14/12/2022; Xuất bản: 20/12/2022.

DOI: <https://doi.org/10.54939/1859-1043.j.mst.VITTEP.2022.91-99>

TÓM TẮT

Tấm nano graphen (GNP) có thể được sử dụng như một chất nền để phân bố đồng đều các hạt nano có khả năng hấp phụ nhằm cải thiện và nâng cao khả năng hấp phụ kim loại nặng của chúng. Trong bài báo, tổ hợp nano graphen/Fe₂O₃-MgO được chế tạo bằng phương pháp thủy nhiệt. Các đặc trưng và tính chất của tổ hợp vật liệu được xác định bằng phương pháp kính hiển vi điện tử quét (SEM), kính hiển vi điện tử truyền qua (TEM), phổ tán xạ năng lượng tia X (EDX), phương pháp nhiễu xạ tia X (XRD). Nồng độ asen được xác định bằng quang phổ phát xạ nguyên tử plasma vi sóng (AES). Tổ hợp graphen/Fe₂O₃-MgO cho thấy hiệu suất hấp phụ cao và nhanh chóng đối với asen trong dải pH rộng, độ bền cao, đặc biệt có khả năng tái chế, do đó có thể trở thành một loại vật liệu hứa hẹn để xử lý ô nhiễm asen trong môi trường nước một cách hiệu quả.

Từ khóa: Tổ hợp graphen/Fe₂O₃-MgO; Hỗ hợp oxit Fe₂O₃-MgO; Hấp phụ asen;

1. MỞ ĐẦU

Trong những năm gần đây, nguồn nước bị nhiễm các kim loại nặng, độc hại như asen (As), chì (Pb) và thủy ngân (Hg) đã gia tăng lên đáng kể do các nguồn nguyên nhân từ hoạt động con người. Do độc tính và khả năng gây ung thư của chúng đối với con người, việc tiếp xúc với các nguyên tố này gây ra nguy cơ sức khỏe nghiêm trọng. Trong số đó, asen là một trong những nguyên tố độc nhất, hiện diện rộng rãi trong tự nhiên thông qua việc rửa trôi từ đất, khai thác mỏ, phân bón, chất thải công nghiệp, hoạt động sinh học và khoáng chất chứa As [1, 2]. Do đó, Tổ chức Y tế Thế giới (WHO) đã đưa ra hàm lượng tối đa asen trong nước là 10ppb. Ăn phải thực phẩm được trồng trong thời gian dài ở những khu vực bị ô nhiễm asen hoặc uống trực tiếp nước bị ô nhiễm asen có liên quan đến các bệnh ung thư thận, da và phổi [3]. Vì vậy, việc xử lý asen trong các nguồn nước ô nhiễm là vấn đề cấp thiết, nhằm đảm bảo chất lượng nguồn nước ở mức giới hạn theo khuyến cáo của WHO. Hiện nay, có rất nhiều phương pháp được sử dụng để loại bỏ ô nhiễm asen trong nước, bao gồm hấp phụ, trao đổi ion, thẩm thấu ngược, xử lý điện hóa, lọc màng và đông kết tủa [4-7]. Tuy nhiên, phương pháp hấp phụ được đánh giá là một phương pháp đơn giản, chi phí thấp và hiệu quả cao, trong việc xử lý, loại bỏ asen trong nước. Nhiều vật liệu đã được sử dụng làm chất hấp phụ để hấp phụ asen như chất thải nông nghiệp và công nghiệp, chất hoạt động bề mặt, vật liệu gốc cacbon, polyme và oxit kim loại [8, 9]. Trong số này, kim loại và oxit kim loại như TiO₂ [10-12], nano sắt hóa trị không [13, 14], Fe₂O₃ [3, 15, 16], Fe₃O₄ [17], CeO₂ [18], CuO [19, 20], CaO [21] và ZrO₂ [22, 23] đã được nghiên cứu rộng rãi để xử lý asen trong nước vì chúng có ái lực cao với các loại ion asen, giá thành thấp [9, 24]. Gần đây, các hướng nghiên cứu tập trung vào việc phát triển vật liệu composite có chứa hai hoặc nhiều kim loại và oxit kim loại để nâng cao tối đa khả năng hấp phụ asen. Shan và cộng sự chế tạo thành công hệ hỗn hợp oxit Fe-Mn có khả năng hấp phụ asen cao [25]. Hợp chất Mg_{0,27}Fe_{2,5}O₄ siêu thuận từ, là một chất hấp phụ asen mới, được tổng hợp bởi Tang và cộng sự [26]. Trong một báo cáo khác, Yu và cộng sự đã trình bày kết quả nghiên cứu về các hạt nano từ tính oxit kép Fe-Ti kết hợp tính chất quang xúc tác của TiO₂ với khả năng hấp phụ cao và tính chất từ tính của γ -Fe₂O₃ để xử lý asen.

Graphen là dạng vật liệu hai chiều (2D), đã được nghiên cứu, chế tạo rộng rãi do các đặc tính vật lý và hóa học đặc biệt, graphen có thể được ứng dụng cho nhiều lĩnh vực khác nhau như điện tử, lưu trữ và chuyển hoá năng lượng, cảm biến, hấp phụ và vật liệu tổng hợp [27-32]. Trong những năm gần đây, graphen đã thu hút được sự quan tâm lớn nhờ khả năng hỗ trợ, nâng cao tính chất hấp phụ của vật liệu nhờ diện tích bề mặt lớn, độ dẫn điện cao, và độ linh động ion vượt trội. Ganesh và cộng sự đã tổng hợp được dạng graphen từ tính thông minh có khả năng loại bỏ các kim loại nặng ra khỏi nước uống [33]. Các hạt nano $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{TiO}_2$ trên nền graphen oxit được tổng hợp bằng phương pháp sol-gel có khả năng hấp phụ cao đối với asen [34]. Kumar và cộng sự tổng hợp graphen oxit đơn lớp với các hạt nano từ tính mangan ferrite để loại bỏ hiệu quả asen từ nước bị ô nhiễm [35].

Bài báo này trình bày một số kết quả nghiên cứu chế tạo vật liệu tổ hợp Fe_2O_3 và MgO trên nền graphen đa lớp bằng phương pháp thủy nhiệt, ứng dụng làm vật liệu hấp phụ xử lý ion As trong nước.

2. THỰC NGHIỆM

2.1. Hoá chất, trang thiết bị

Hoá chất: $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, 99%, Xilong; $\text{MgCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, 99%, Macklin; $\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}$, 99,7%, Xilong; NaOH 98%, Xilong; Graphene được cung cấp bởi công ty Vngraphene.

Trang thiết bị: Thiết bị siêu âm JY99-IIDN của Trung Quốc; Tủ quang hoá photo-catalytic reaction chamber 350 của Viện Hoá học - Vật liệu chế tạo.

2.2. Chế tạo vật liệu tổ hợp

- Vật liệu tổ hợp GNPs/ Fe_2O_3 -MgO được chế tạo bằng phương pháp thủy nhiệt. Đầu tiên, $\text{MgCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ và $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ với các tỷ lệ khối lượng Mg:Fe khác nhau là 10:0; 9:1; 7:3; 5:5; 3:7; 1:9 và 0:10 được hòa tan trong 50 mL ethanol.

- Các tấm nano graphen với các khối lượng khác nhau được phân tán trong dung dịch hỗn hợp bằng sóng siêu âm trong 10 phút và khuấy trong 1 giờ. Sau đó, thêm từ từ dung dịch NaOH 2M vào dung dịch, khuấy và ổn định pH trong khoảng từ 8 ÷ 9. Tiến hành phản ứng tại điều kiện này trong 1 h, sau đó phản ứng được thực hiện trong auto clave ở nhiệt độ 150 °C trong 2 giờ.

- Dung dịch được làm nguội đến nhiệt độ phòng và kết tủa được lọc và rửa bằng cồn và nước cất. Mẫu được sấy khô qua trong 24 h ở nhiệt độ 60 °C trong không khí để thu vật liệu tổ hợp GNPs/ Fe_2O_3 -MgO.

2.3. Đánh giá đặc trưng tính chất vật liệu

- Thành phần pha của các mẫu vật liệu tổ hợp được phân tích bằng phương pháp nhiễu xạ tia X (XRD) trên thiết bị Mini flex 600 Rigaku (Nhật Bản) tại Đại học Khoa học - Tự nhiên, Đại học Quốc gia Hà Nội, nguồn tia CuK_α , bước sóng $\lambda=1.5406\text{Å}$, góc quét $2\theta = 20^\circ \div 70^\circ$, bước đo 0,03 °/s.

- Phân tích hình thái học được xác định thông qua phương pháp hiển vi điện tử quét (SEM) được đo trên thiết bị HITACHI S-4800 tại và phương pháp TEM trên máy hiển vi điện tử truyền qua phân giải cao JEM 2100 tại phòng Hiển vi điện tử, Viện Khoa học vật liệu, Viện Hàn lâm Khoa học và Công nghệ Việt Nam.

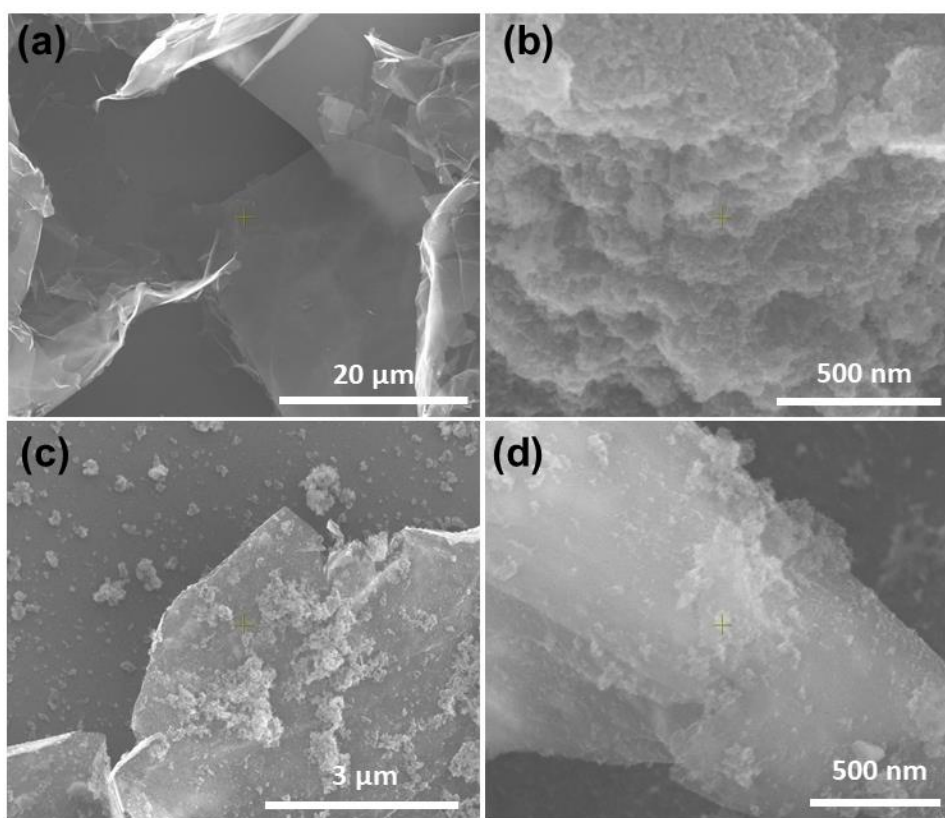
2.4. Khảo sát khả năng hấp phụ asen của vật liệu tổng hợp

Dung dịch gốc của As (V) 1000 ppm được chuẩn bị bằng cách hòa tan As_2O_5 trong nước. Nồng độ asen được xác định bằng máy quang phổ phát xạ nguyên tử plasma vi sóng Agilent 4200 (MP-AES). Tất cả các mẫu được phân tích trong vòng 24 giờ sau khi lọc.

3. KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN

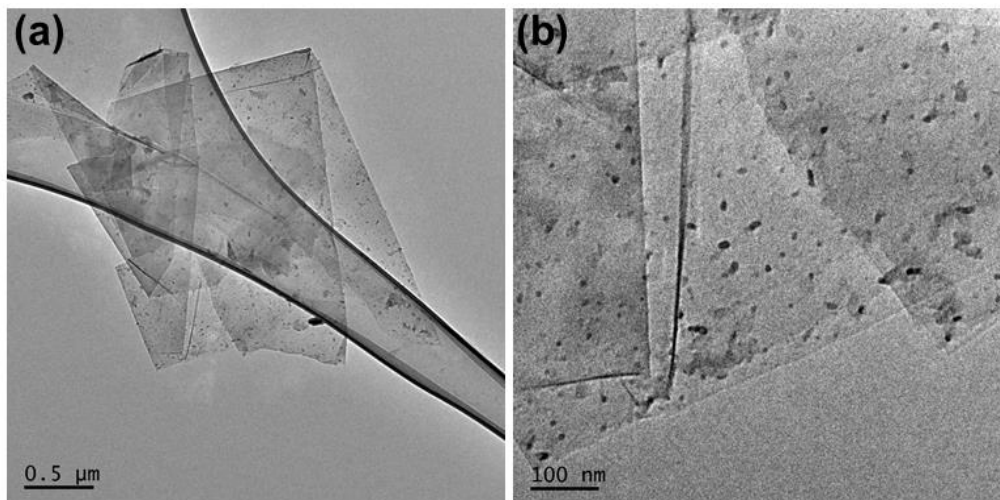
3.1. Đặc trưng tính chất vật liệu tổ hợp

Hình thái học của các tấm nano graphen (GNP) và oxit $\text{Fe}_2\text{O}_3\text{-MgO}$ sau khi được tổng hợp với tỷ lệ khối lượng giữa $\text{Mg}:\text{Fe}$ là 5:5 được thể hiện trong hình ảnh SEM ở hình 1. Có thể thấy rõ trong hình 1a rằng GNPs thu được có hình thái bề mặt cuộn lớp tạo thành các lớp không bằng phẳng với đường kính hàng chục micromet và độ dày <20 nm [36]. Hình ảnh SEM của hỗn hợp 2 oxit $\text{Fe}_2\text{O}_3\text{-MgO}$ sau khi được điều chế được thể hiện trong hình 1b, chỉ ra rằng oxit $\text{Fe}_2\text{O}_3\text{-MgO}$ bao gồm các tinh thể nano siêu mịn. Hình thái oxit $\text{Fe}_2\text{O}_3\text{-MgO}$ phù hợp với một số nghiên cứu trước đây. Hình 1c và 1d là hình ảnh SEM của vật liệu tổ hợp graphen/ $\text{Fe}_2\text{O}_3\text{-MgO}$, cho thấy rằng tổ hợp oxit $\text{Fe}_2\text{O}_3\text{-MgO}$ được phân tán tương đối đều trên bề mặt graphen đa lớp. Kết quả cho thấy rằng vật liệu tổ hợp $\text{Fe}_2\text{O}_3\text{-MgO}$ trên nền graphen đa lớp được chế tạo thành công.

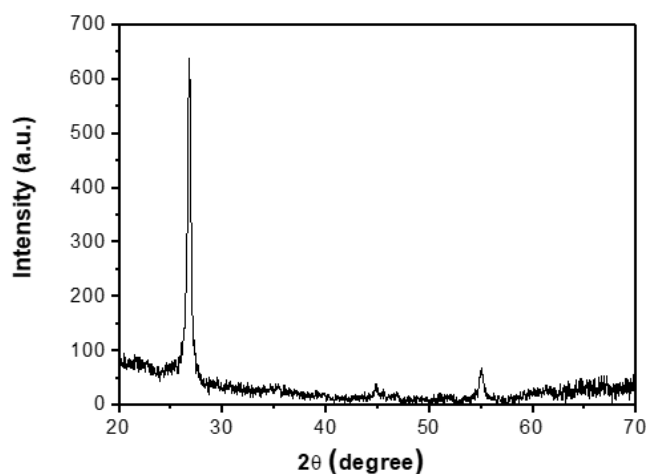


Hình 1. Hình ảnh SEM của (a) graphen đa lớp, (b) $\text{Fe}_2\text{O}_3\text{-MgO}$, (c) và (d) độ phân giải cao và thấp của vật liệu tổ hợp graphene/ $\text{Fe}_2\text{O}_3\text{-MgO}$.

Hình ảnh TEM vật liệu GNPs/ $\text{Fe}_2\text{O}_3\text{-MgO}$ composite được thể hiện trong hình 2. Trong hình ảnh TEM có độ phóng đại thấp (hình 2a), rõ ràng là các oxit $\text{Fe}_2\text{O}_3\text{-MgO}$ được hình thành và phân tán trên bề mặt của các tấm nano graphen. Với các kết quả TEM ở độ phóng đại cao hơn như trong hình 2b, có thể thấy rằng các oxit $\text{Fe}_2\text{O}_3\text{-MgO}$ trên graphen không phải là các tinh thể nano được xác định rõ ràng, với một số kết tụ được quan sát thấy, do vậy có thể kết luận hỗn hợp $\text{Fe}_2\text{O}_3\text{-MgO}$ trên GNPs ở trạng thái vô định hình. Bản chất vô định hình của oxit $\text{Fe}_2\text{O}_3\text{-MgO}$ được hình thành trên GNPs được khẳng định thêm bởi kết quả phân tích theo phương pháp XRD của hỗn hợp (hình 3). Trong kết quả XRD, ngoài các đỉnh tại góc $2\theta = 28^\circ$ và 56° được cho là do các tinh thể của tấm nano graphen [36, 37], sự hiện diện của các đỉnh rất yếu và rộng trong vùng góc $2\theta = 30^\circ \div 70^\circ$ cho thấy bản chất vô định hình của tổ hợp oxit $\text{Fe}_2\text{O}_3\text{-MgO}$.



Hình 2. Hình ảnh TEM của vật liệu tổ hợp graphene/ Fe_2O_3 -MgO ở độ phân giải thấp (a) và cao (b).

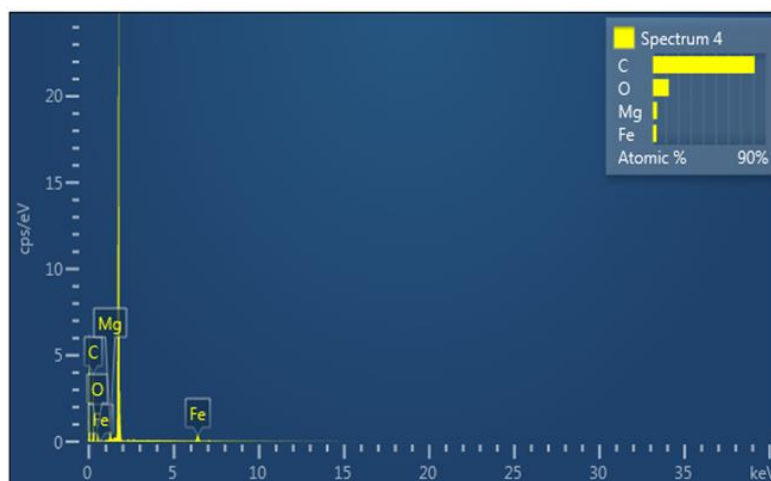


Hình 3. Phổ nhiễu xạ tia X của vật liệu tổ hợp graphene/ Fe_2O_3 -MgO.

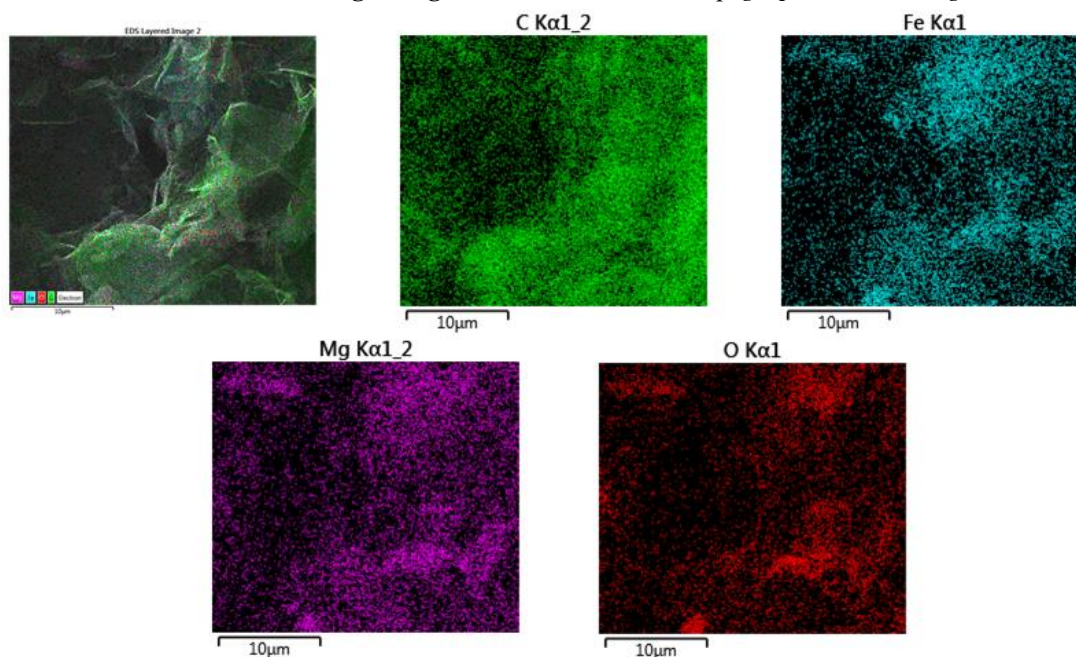
Kết quả phân tích quang phổ tán xạ năng lượng tia X (EDS) được thể hiện trong hình 4 cho thấy sự có mặt của các nguyên tố C, O, Fe, và Mg trong vật liệu tổ hợp. Trong đó, nguyên tố C đại diện cho sự có mặt của graphene, còn Fe, Mg, và O thuộc tổ hợp oxit Fe_2O_3 -MgO. Phổ tán xạ năng lượng tia X mapping trong hình 5 cho thấy sự phân bố đồng đều và bao phủ toàn bộ bề mặt của hỗn hợp oxit Fe_2O_3 -MgO trên tấm nano graphene. Thành phần các nguyên tố của vật liệu được thể hiện trong bảng 1.

Bảng 1. Thành phần các nguyên tố của vật liệu.

Element	Weight%	Atomic%
C	60	80
O	11	11
Mg	8	5
Fe	21	6
Totals	100.00	100.00



Hình 4. Phổ tán xạ năng lượng tia X của vật liệu tổ hợp graphene/Fe₂O₃-MgO.



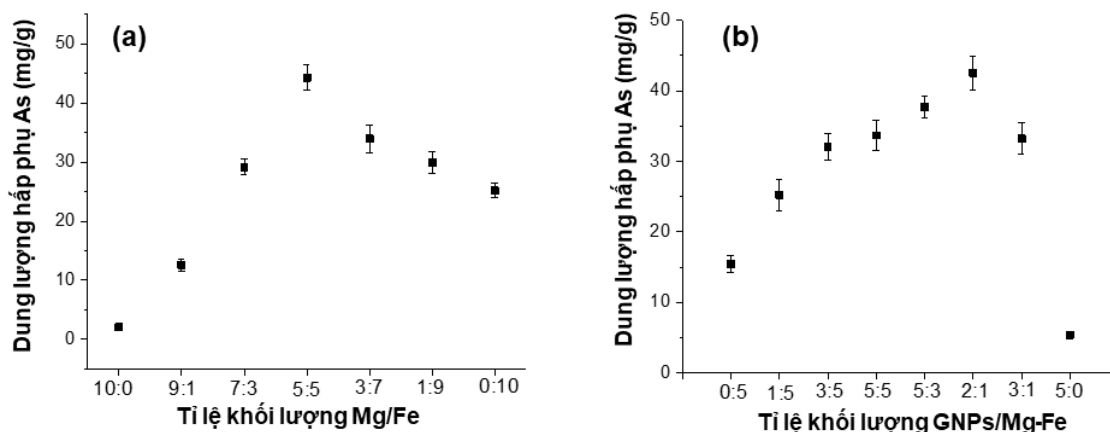
Hình 5. Phổ tán xạ năng lượng tia X mapping của vật liệu tổ hợp graphene/Fe₂O₃ MgO.

3.2. Khả năng hấp phụ arsen của vật liệu tổ hợp

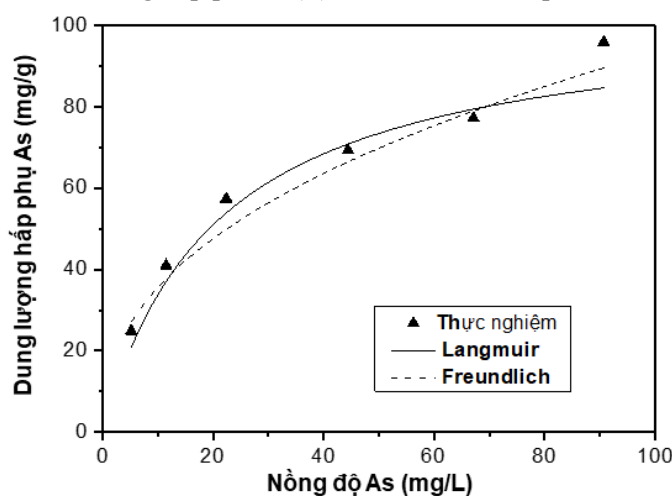
Hình 6a cho thấy ảnh hưởng của các tỷ lệ khối lượng Mg:Fe khác nhau đến sự hấp phụ arsen với nồng độ As(V) ban đầu là 10 mg/L, nồng độ chất hấp phụ là 200 mg/L, ở pH=7 và nhiệt độ phòng. Kết quả chỉ ra rằng sự hấp thụ As(V) bởi vật liệu tổ hợp GNPs/Fe₂O₃-MgO tăng đáng kể khi tỷ lệ khối lượng Mg:Fe giảm và đạt tới khả năng hấp phụ cân bằng tối đa là 44.3 mg/g khi tỷ lệ khối lượng Mg: Fe là 5:5. Sau đó, sự hấp phụ As(V) giảm từ từ khi tỷ lệ khối lượng Mg:Fe giảm tiếp. Cũng cần lưu ý rằng sự hấp phụ As(V) bởi GNPs-Fe₂O₃ (23 mg/L) cao hơn so với GNPs-MgO (3 mg/L). Ảnh hưởng của tỷ lệ khối lượng GNPs lên khả năng hấp phụ As(V) của hỗn hợp cũng được nghiên cứu với nồng độ As (V) ban đầu là 9,5 mg/L như trong hình 6b. Rõ ràng là khi tỷ lệ khối lượng GNPs tăng, sự hấp thụ As(V) tăng và đạt tối đa khoảng 42 mg/g ở tỷ lệ khối lượng của GNPs:Fe₂O₃-MgO là 2:1. Khi tăng tỷ lệ khối lượng GNPs hơn nữa, khả năng hấp phụ giảm đáng kể, và nếu không có hỗn hợp oxit Fe₂O₃-MgO, khả năng hấp phụ As(V) của

GNPs tinh khiết chỉ là 1.38 mg/g. Những kết quả này cho thấy rằng sự kết hợp giữa GNPs và oxit $\text{Fe}_2\text{O}_3\text{-MgO}$ cải thiện đáng kể sự hấp phụ As(V).

Đường hấp phụ đẳng nhiệt của vật liệu tổ hợp GNPs/ $\text{Fe}_2\text{O}_3\text{-MgO}$ đối với asen trong nước được thực hiện để đánh giá khả năng hấp phụ As(V) và xác định dung lượng hấp phụ As(V) cực đại của vật liệu tổ hợp. Kết quả được thể hiện trong hình 7. Thí nghiệm hấp phụ đẳng nhiệt được thực hiện ở các nồng độ asen khác nhau từ 5 ÷ 90 mg/L, với hàm lượng vật liệu tổ hợp là 200 mg/L, ở pH=7 và tại nhiệt độ phòng. Phương trình Langmuir và Freundlich được thực hiện để mô phỏng quá trình hấp phụ đẳng nhiệt. Hệ số tương quan mô phỏng phương trình Freundlich được xác định là cao hơn so với phương trình Langmuir. Điều này chứng tỏ rằng phương trình Freundlich là phù hợp để mô phỏng quá trình hấp phụ đẳng nhiệt của vật liệu tổ hợp đối với As(V). Kết quả này cho thấy rằng quá trình hấp phụ As(V) bởi vật liệu tổ hợp là quá trình hấp phụ dị thể. Dung lượng hấp phụ cực đại được xác định từ phương trình Langmuir là khoảng 106 mg/g. Kết quả hấp phụ As(V) của vật liệu tổ hợp GNPs/ $\text{Fe}_2\text{O}_3\text{-MgO}$ là tương đối cao so với các vật liệu hấp phụ khác như vật liệu $\text{Mg}_{0.27}\text{Fe}_{2.5}\text{O}_4$ được tổng hợp Tang và cộng sự 2013 với dung lượng hấp phụ cực đại 83.2 mg/g, vật liệu MnFe_2O_4 của Zhang và cộng sự 2010 là 90 mg/g, GO-ZrO(OH)₂ nanocomposites của LuO và cộng sự 2013 84.89 mg/g.



Hình 6. Ảnh hưởng của tỷ lệ khối lượng giữa Mg:Fe (a) và của tỷ lệ khối lượng GNPs: $\text{Fe}_2\text{O}_3\text{-MgO}$ (b) đến khả năng hấp phụ As(V) của vật liệu tổ hợp GNPs/ $\text{Fe}_2\text{O}_3\text{-MgO}$.



Hình 7. Đường hấp phụ đẳng nhiệt của vật liệu tổ hợp tổ hợp GNPs/ $\text{Fe}_2\text{O}_3\text{-MgO}$ đối với As(V).

4. KẾT LUẬN

Vật liệu tổ hợp vật liệu GNPs/Fe₂O₃-MgO đã được chế tạo thành công bằng phương pháp thủy nhiệt với chiều dày tấm graphen < 20 nm, được bao phủ đồng đều trên bề mặt hỗn hợp oxit Fe₂O₃-MgO ở trạng thái vô định hình. Vật liệu có khả năng hấp phụ tốt As(V) trong nước nồng độ 10 mg/l, nồng độ chất hấp phụ là 200 mg/L, ở pH=7 và nhiệt độ phòng với dung lượng hấp phụ cực đại 103.9 mg/g khi tỷ lệ khối lượng giữa Mg:Fe là 5:5 và tỷ lệ khối lượng giữa GNPs/Fe₂O₃-MgO là 2:1.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

- [1]. Kitchin, K.T.; Conolly, R. Arsenic-“*Induced Carcinogenesis - Oxidative Stress as a Possible Mode of Action and Future Research Needs for More Biologically Based Risk Assessment*”. Chemical research in toxicology, 23, 327-335, (2009). <https://doi.org/10.1021/tx900343d>
- [2]. Erdoğan, H.; Yalçınkaya, Ö.; Türker, A.R. “*Determination of inorganic arsenic species by hydride generation atomic absorption spectrometry in water samples after preconcentration/separation on nano ZrO₂/B₂O₃ by solid phase extraction*”. Desalination, 280, 391-396, (2011). <https://doi.org/10.1016/j.desal.2011.07.029>
- [3]. Tuzen, M.; Çıtak, D.; Mendil, D.; Soylak, M. “*Arsenic speciation in natural water samples by coprecipitation-hydride generation atomic absorption spectrometry combination*”. Talanta, 78, 52-56, (2009). <https://doi.org/10.1016/j.talanta.2008.10.035>
- [4]. Bissen, M.; Frimmel, F.H. “*Arsenic—a review. Part I: occurrence, toxicity, speciation, mobility*”. Acta hydrochimica et hydrobiologica, 31, 9-18, (2003). <https://doi.org/10.1002/aheh.200390025>
- [5]. Mohan, D.; Pittman, C.U. “*Arsenic removal from water/wastewater using adsorbents—a critical review*”. Journal of hazardous materials, 142, 1-53, (2007). <https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2007.01.006>
- [6]. Jadhav, S.V.; Bringas, E.; Yadav, G.D.; Rathod, V.K.; Ortiz, I.; Marathe, K.V. “*Arsenic and fluoride contaminated groundwaters: a review of current technologies for contaminants removal*”. Journal of environmental management, 162, 306-325, (2015). <https://doi.org/10.1016/j.jenvman.2015.07.020>
- [7]. Singh, R.; Singh, S.; Parihar, P.; Singh, V.P.; Prasad, S.M. “*Arsenic contamination, consequences and remediation techniques: a review*”. Ecotoxicology and environmental safety, 112, 247-270, (2015). <https://doi.org/10.1016/j.ecoenv.2014.10.009>
- [8]. Kurniawan, T.A.; Sillanpää, M.E.; Sillanpää, M. “*Nano-adsorbents for remediation of aquatic environment: local and practical solutions for global water pollution problems*”. Critical reviews in environmental science and technology, 42, 1233-1295, (2012). <https://doi.org/10.1080/10643389.2011.556553>
- [9]. Ray, P.Z.; Shipley, H.J. “*Inorganic nano-adsorbents for the removal of heavy metals and arsenic: a review*”. Rsc Advances, 5, 29885-29907, (2015). <https://doi.org/10.1039/C5RA02714D>
- [10]. Jézéquel, H.; Chu, K.H. “*Enhanced adsorption of arsenate on titanium dioxide using Ca and Mg ions*”. Environmental Chemistry Letters, 3, 132-135, (2005). <https://doi.org/10.1007/s10311-005-0018-x>
- [11]. Deedar, N.; Aslam, I. “*Evaluation of the adsorption potential of titanium dioxide nanoparticles for arsenic removal*”. Journal of Environmental Sciences, 21, 402-408, (2009). [https://doi.org/10.1016/S1001-0742\(08\)62283-4](https://doi.org/10.1016/S1001-0742(08)62283-4)
- [12]. Xu, Z.; Li, Q.; Gao, S.; Shang, J.K. “*As (III) removal by hydrous titanium dioxide prepared from one-step hydrolysis of aqueous TiCl₄ solution*”. Water research, 44, 5713-5721, (2010). <https://doi.org/10.1016/j.watres.2010.05.051>
- [13]. Bhowmick, S.; Chakraborty, S.; Mondal, P.; Van Renterghem, W.; Van den Berghe, S.; Roman-Ross, G.; Chatterjee, D.; Iglesias, M. “*Montmorillonite-supported nanoscale zero-valent iron for removal of arsenic from aqueous solution: kinetics and mechanism*”. Chemical Engineering Journal, 243, 14-23, (2014). <https://doi.org/10.1016/j.cej.2013.12.049>
- [14]. Dong, H.; Guan, X.; Lo, I.M. “*Fate of As (V)-treated nano zero-valent iron: determination of arsenic desorption potential under varying environmental conditions by phosphate extraction*”. Water research, 46, 4071-4080, (2012). <https://doi.org/10.1016/j.watres.2012.05.015>

- [15]. Tang, W.; Li, Q.; Gao, S.; Shang, J.K. "Arsenic (III, V) removal from aqueous solution by ultrafine α -Fe₂O₃ nanoparticles synthesized from solvent thermal method". Journal of hazardous materials, 192, 131-138, (2011). <https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2011.04.111>
- [16]. Tang, W.; Li, Q.; Li, C.; Gao, S.; Shang, J.K. "Ultrafine α -Fe₂O₃ nanoparticles grown in confinement of in situ self-formed "cage" and their superior adsorption performance on arsenic (III)". Journal of Nanoparticle Research, 13, 2641-2651, (2011). <https://doi.org/10.1007/s11051-010-0157-2>
- [17]. Akin, I.; Arslan, G.; Tor, A.; Ersoz, M.; Cengeloglu, Y. "Arsenic (V) removal from underground water by magnetic nanoparticles synthesized from waste red mud". Journal of hazardous materials, 235, 62-68, (2012). <https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2012.06.024>
- [18]. Feng, Q.; Zhang, Z.; Ma, Y.; He, X.; Zhao, Y.; Chai, Z. "Adsorption and desorption characteristics of arsenic onto ceria nanoparticles". Nanoscale research letters, 7, 1-8, (2012). <https://doi.org/10.1186/1556-276x-7-84>
- [19]. Reddy, K.; McDonald, K.; King, H. "A novel arsenic removal process for water using cupric oxide nanoparticles". Journal of colloid and interface science, 397, 96-102, (2013). <https://doi.org/10.1016/j.jcis.2013.01.041>
- [20]. Goswami, A.; Raul, P.; Purkait, M. "Arsenic adsorption using copper (II) oxide nanoparticles". Chemical Engineering Research and Design, 90, 1387-1396, (2012). <https://doi.org/10.1016/j.cherd.2011.12.006>
- [21]. Olyaie, E.; Banejad, H.; Afkhami, A.; Rahmani, A.; Khodaveisi, J. "Development of a cost-effective technique to remove the arsenic contamination from aqueous solutions by calcium peroxide nanoparticles". Separation and purification technology, 95, 10-15, (2012). <https://doi.org/10.1016/j.seppur.2012.04.021>
- [22]. Cui, H.; Su, Y.; Li, Q.; Gao, S.; Shang, J.K. "Exceptional arsenic (III, V) removal performance of highly porous, nanostructured ZrO₂ spheres for fixed bed reactors and the full-scale system modeling". Water research, 47, 6258-6268, (2013). <https://doi.org/10.1016/j.watres.2013.07.040>
- [23]. Cui, H.; Li, Q.; Gao, S.; Shang, J.K. "Strong adsorption of arsenic species by amorphous zirconium oxide nanoparticles". Journal of Industrial and Engineering Chemistry, 18, 1418-1427, (2012). <https://doi.org/10.1016/j.jiec.2012.01.045>
- [24]. Habuda-Stanić, M.; Nujić, M. "Arsenic removal by nanoparticles: a review". Environmental Science and Pollution Research, 22, 8094-8123, (2015). <https://doi.org/10.1007/s11356-015-4307-z>
- [25]. Shan, C.; Tong, M. "Efficient removal of trace arsenite through oxidation and adsorption by magnetic nanoparticles modified with Fe-Mn binary oxide". Water research, 47, 3411-3421, (2013). <https://doi.org/10.1016/j.watres.2013.03.035>
- [26]. Tang, W.; Su, Y.; Li, Q.; Gao, S.; Shang, J.K. "Superparamagnetic magnesium ferrite nano-adsorbent for effective arsenic (III, V) removal and easy magnetic separation". Water research, 47, 3624-3634, (2013). <https://doi.org/10.1016/j.watres.2013.04.023>
- [27]. Novoselov, K.S.; Geim, A.K.; Morozov, S.; Jiang, D.; Zhang, Y.; Dubonos, S.a.; Grigorieva, I.; Firsov, A. "Electric field effect in atomically thin carbon films". Science, 306, 666-669, (2004). <https://doi.org/10.1126/science.1102896>
- [28]. Bunch, J.S.; Van Der Zande, A.M.; Verbridge, S.S.; Frank, I.W.; Tanenbaum, D.M.; Parpia, J.M.; Craighead, H.G.; McEuen, P.L. "Electromechanical resonators from graphene sheets". Science, 315, 490-493, (2007). <https://doi.org/10.1126/science.1136836>
- [29]. Katsnelson, M.I. "Graphene: carbon in two dimensions". Materials today, 10, 20-27, (2007). [https://doi.org/10.1016/S1369-7021\(06\)71788-6](https://doi.org/10.1016/S1369-7021(06)71788-6)
- [30]. Kopelevich, Y.; Esquinazi, P. "Graphene physics in graphite". Advanced Materials, 19, 4559-4563, (2007). <https://doi.org/10.1002/adma.200702051>
- [31]. Morozov, S.; Novoselov, K.; Katsnelson, M.; Schedin, F.; Elias, D.; Jaszczak, J.; Geim, A. "Giant intrinsic carrier mobilities in graphene and its bilayer". Physical review letters, 100, 016602, (2008). <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.100.016602>
- [32]. Becerril, H.A.; Mao, J.; Liu, Z.; Stoltenberg, R.M.; Bao, Z.; Chen, Y. "Evaluation of solution-processed reduced graphene oxide films as transparent conductors". ACS nano, 2, 463-470, (2008). <https://doi.org/10.1021/nn700375n>

- [33]. Gollavelli, G.; Chang, C.-C.; Ling, Y.-C. "Facile synthesis of smart magnetic graphene for safe drinking water: heavy metal removal and disinfection control". ACS Sustainable Chemistry & Engineering, 1, 462-472, (2013). <https://doi.org/10.1021/sc300112z>
- [34]. Babu, C.M.; Vinodh, R.; Sundaravel, B.; Abidov, A.; Peng, M.M.; Cha, W.S.; Jang, H.-T. "Characterization of reduced graphene oxide supported mesoporous Fe₂O₃/TiO₂ nanoparticles and adsorption of As (III) and As (V) from potable water". Journal of the Taiwan Institute of Chemical Engineers, 62, 199-208, (2016). <https://doi.org/10.1016/j.jtice.2016.02.005>
- [35]. Kumar, S.; Nair, R.R.; Pillai, P.B.; Gupta, S.N.; Iyengar, M.; Sood, A. "Graphene oxide-MnFe₂O₄ magnetic nanohybrids for efficient removal of lead and arsenic from water". ACS applied materials & interfaces, 6, 17426-17436, (2014). <https://doi.org/10.1021/am504826q>
- [36]. La, M.; Duc, D.; Bhargava, S.; Bhosale, S.V. "Improved and A Simple Approach For Mass Production of Graphene Nanoplatelets Material". ChemistrySelect, 1, 949-952, (2016). <https://doi.org/10.1002/slct.201600157>
- [37]. Zhu, J.; Sadu, R.; Wei, S.; Chen, D.H.; Haldolaarachchige, N.; Luo, Z.; Gomes, J.; Young, D.P.; Guo, Z. "Magnetic graphene nanoplatelet composites toward arsenic removal". ECS Journal of Solid State Science and Technology, 1, M1-M5, (2012). <http://dx.doi.org/10.1149/2.010201jss>

ABSTRACT

Study on fabrication of graphene – supported Fe₂O₃ and MgO mixed oxides composite and its application as adsorbent for the removal of As ions aqueous media

Graphene nanoplates (GNPs) can be used as a platform for homogeneous distribution of adsorbent nanoparticles to improve electrons exchange, absorption sites and ion transports for heavy metal adsorption. In this work, graphene/Fe₂O₃-MgO nanocomposite was fabricated using a facile thermal decomposition route. The prepared composite was characterized by using scanning electron microscopy (SEM), transmittance electron microscopy (TEM), Energy dispersive X-ray (EDX), X-ray diffraction (XRD), and FTIR. The graphene/Fe₂O₃-MgO nanocomposite revealed high and quick adsorption performance toward arsenic in a wide range of solution pH with exceptional durability and recyclability, which could make this composite a very promising candidate for effective removal of arsenic from aqueous solution.

Keywords: GNPs/Fe-Mg oxide composite; Fe-Mg binary oxide; Arsenic adsorption.