



APLICAÇÃO DE HIDRÓXIDOS DUPLOS LAMELARES COMO MATERIAIS ADSORVENTES – UMA ANÁLISE BIBLIOMÉTRICA

JULIANA C. P. L. PAULINO¹, ANAMÁLIA F. SILVA¹, DANILO H. S. SANTOS ¹,
PATRÍCIA C. NAGLIATE², LUCAS MEILI¹

¹Universidade Federal de Alagoas, Programa de Pós-Graduação em Materiais

²Universidade Federal de Alagoas, Escola de Enfermagem

*e-mail: lucas.meili@ctec.ufal.br

RESUMO—A poluição hídrica se destaca como um dos maiores problemas atuais. Este fato contribui para a expansão de estudos relacionados ao desenvolvimento de sistemas alternativos capazes de remover variadas classes de poluentes resistentes aos tratamentos convencionais. A adsorção se mostra uma alternativa bastante atraente sendo os Hidróxidos Duplos Lamelares (HDLs) bastante relevantes. Considerando a importância do desenvolvimento de novas tecnologias, este trabalho visa mapear, através de estudo bibliométrico, a extensão de pesquisas sobre a temática, a fim de projetar novas perspectivas e/ou estratégias com potencial para impulsionar a utilização destes materiais. Utilizou-se a base de dados *Web of Science* e a cronologia de busca a partir da primeira publicação recuperada até a atualidade (1997-2022). Os *softwares bibliometix R-package* e *VOSviewer* foram usados. As buscas recuperaram 663 documentos, de 69 países, onde China (328), Índia (51) e Japão (40) destacam-se como os mais produtivos. As palavras-chave utilizadas, indicam que as publicações tratam de aspectos relacionados à eficiência dos HDLs na remoção de diferentes poluentes, a composição, a rota de síntese e a associação com outros materiais e/ou técnicas. O resultado deste estudo constitui uma importante ferramenta para o direcionamento de futuras pesquisas sobre o tema.

INTRODUÇÃO

Uma série de produtos químicos de natureza orgânica e/ou inorgânica, oriundos, principalmente, de águas residuais municipais, hospitalares, veterinárias, industriais e agrícolas, são frequentemente lançados no meio ambiente (Zhang *et al.* 2021). Grande parte desses produtos não são totalmente removidos pelas estações de tratamento, sendo detectados em distâncias cada vez mais longas de suas fontes de descarga (Oller, Malato, and Sánchez-Pérez 2011; Miklos *et al.* 2018).

O gerenciamento inadequado das águas contaminadas pelos sistemas de tratamento convencionais tem produzido, conseqüentemente, um grande impacto na qualidade da água distribuída, uma vez que

estes sistemas são o ponto de junção entre o esgoto e as fontes naturais de água, como rios, lagos, reservatórios e águas subterrâneas (Jiang *et al.* 2018). Este fato tem contribuído para a expansão de estudos que tratam do desenvolvimento de sistemas de tratamento de água alternativos que sejam capazes de remover as variadas classes de poluentes resistentes aos tratamentos convencionais e garantir que a água tratada seja saudável para reutilização e/ou consumo (Kıdak; Doğan 2018).

Métodos alternativos para o tratamento de águas contaminadas têm recebido interesses significativos, principalmente, nos últimos 10 anos, visto o aumento no número de publicações sobre o tema neste período, como observado na Figura 1.

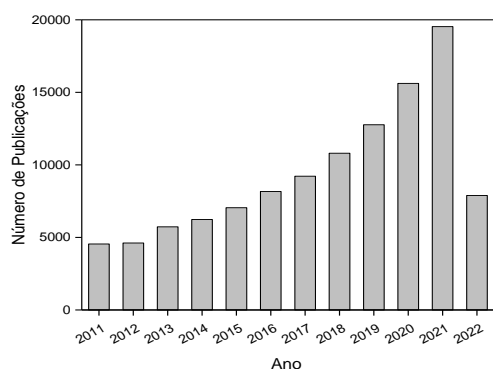


Figura 1: Número de publicações que tratam sobre o tratamento de águas contaminadas por métodos não convencionais recuperadas entre os anos de 2011 e 2022 (Fonte de dados: webofscience.com).

Dentre as diversas tecnologias que vêm sendo avaliadas quanto à sua eficiência no tratamento de águas contaminadas, os sistemas de nanofiltração (Lakhotia, Mukhopadhyay, and Kumari 2019; Torres *et al.* 2021), sistemas de tratamento fundamentados em processos oxidativos avançados, como processos Fenton (Tavares *et al.* 2020), Foto-Fenton (Çalık and Çifçi 2022), Eletro-Fenton (Espinoza-Quñones *et al.*, 2021), Eletro-Oxidação (Santos *et al.*, 2020), Fotocatálise (Carvalho *et al.*, 2020) e Adsorção (Li *et al.* 2020) são citados em trabalhos de revisões de forma mais prevalente e por isso esta revisão se limita apenas a estas técnicas.

Para demonstrar visualmente a frequência com que estas técnicas são abordadas em trabalhos científicos, uma nuvem de palavras foi elaborada a partir do número de publicações recuperadas sobre o tema (Figura 2). Uma vez que todos os artigos avaliados neste estudo focam em técnicas utilizadas para o tratamento de águas contaminadas, o processo de adsorção mostra ser a técnica mais difundida para este fim e por isto, é foco deste trabalho.

Adsorção

Na última década houve um aumento nos estudos que tratam da utilização do processo de adsorção para remoção de poluentes da fase aquosa (Rápó and Tonk, 2021). Este processo é preferível aos outros métodos por apresentar algumas vantagens importantes como *design* relativamente simples, fácil operação, alto custo-benefício,

capacidade de remover poluentes em concentrações muito baixas, baixo consumo de energia e alta disponibilidade de matérias-primas (Fiyadh *et al.*, 2019). Além disso, o processo de adsorção possui uma ampla aplicabilidade, sendo o método mais favorável para remoção de contaminantes de natureza orgânica e/ou inorgânica (Kim *et al.*, 2022).



Figura 2: Nuvem de palavras sobre a frequência com que as técnicas de tratamento de água são abordadas em trabalhos científicos. Dados recuperados entre os anos de 2011 e 2022 (Fonte de dados: webofscience.com).

A eficiência do processo de adsorção depende das características da superfície do material adsorvente e de como estas interagem com os poluentes específicos a serem adsorvidos. Por exemplo, carga de superfície, área de superfície e grupos funcionais podem produzir diferentes níveis de atividade com diferentes poluentes (Fiyadh *et al.*, 2019). Diferentes materiais são comumente utilizados como adsorventes entre os quais as argilas naturais (Momina, Shahadat, and Isamil, 2018) ou modificadas (Kausar *et al.*, 2018), os materiais poliméricos (Sajid *et al.*, 2018), as cinzas volantes (Ochedi, Liu, and Hussain, 2020), as zeólitas (Delkash, Ebrazi Bakhshayesh, and Kazemian, 2015) e o carvão ativado (Bläker *et al.*, 2019) são os mais comumente citados em trabalhos de revisão e por isso este trabalho se limita apenas à análise destes materiais.

Dentre os materiais adsorventes mais comumente utilizados no tratamento de águas contaminadas, listados anteriormente, o carvão ativado (CA) tem se destacado com o maior número de publicações recuperadas, de acordo com os dados apresentados na Figura 3.

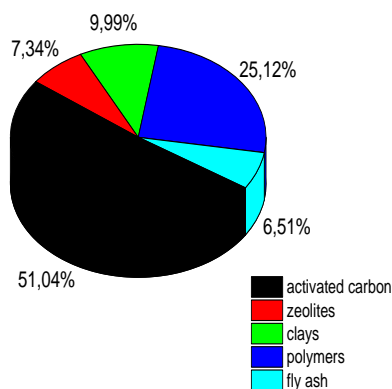


Figura 3: Dados percentuais sobre quantidade de publicações recuperadas para diferentes materiais adsorventes utilizados no tratamento de águas contaminadas (Fonte: webofscience.com).

O maior interesse em estudos que envolvem a utilização desse material, deve-se à sua eficácia na remoção de uma ampla gama de contaminantes presentes em águas residuais industriais e municipais, lixiviados de aterros sanitários e águas subterrâneas contaminadas. A estabilidade e a alta eficiência do CA nos tratamentos de águas contaminadas faz com ele seja considerado o material adsorvente mais poderoso do mundo (De Gisi *et al.* 2016).

No entanto, o uso generalizado de carvão ativado é restrito devido ao seu alto custo (Wang, Wang, and Ma, 2010), que além de contribuir para a falta de acesso à água tratada comercialmente para uma fração significativa da população nos países em desenvolvimento, dada a baixa renda per capita desses países, também limita a capacidade das indústrias de tratar seus efluentes de acordo com os padrões ambientais exigidos antes do descarte (Ntuli and Hapazari, 2013).

Neste sentido, o interesse no desenvolvimento de materiais adsorventes não convencionais, eficientes na remoção de uma variedade de poluentes de natureza orgânica e/ou inorgânica, de fácil obtenção, baixa toxicidade, boa capacidade de regeneração e, em particular, de baixo custo, tem sido o principal objeto de estudos nesta área (Kumar *et al.*, 2019). Nesta perspectiva, os Hidróxidos Duplos Lamelares (HDLs) vêm recebendo cada vez mais atenção.

Hidróxidos Duplos Lamelares (HDLs)

Sintetizado pela primeira vez por Feithnecht em 1942, os Hidróxidos Duplos Lamelares compreendem uma classe de argilas aniônicas bidimensionais com estrutura semelhante à da hidrotalcita mineral ($[Mg_6Al_2(OH)_{16}]CO_3 \cdot 4H_2O$) (Mohapatra and Parida, 2016). A fórmula geral dos HDLs é representada pela equação $M^{2+}_{1-x}M^{3+}_x(OH)_2 \cdot A^{n-}_{-x/n} \cdot zH_2O$, em que M^{2+} e M^{3+} correspondem aos cátions di- e trivalentes, respectivamente, e A^{n-} é um ânion. Os cátions são responsáveis pelas cargas positivas apresentadas pelas lamelas, já as espécies aniônicas juntamente com moléculas de água, presentes na regiação interlamelar, torna o material estável (Mishra, Dash, and Pandey, 2018).

Os HDLs também comumente conhecidos como argilas aniônicas ou materiais semelhantes à hidrotalcita, são facilmente sintetizados usando materiais de baixo custo e equipamentos não sofisticados (Jijoe *et al.*, 2021). Segundo Tronto (2006), os métodos para a síntese desses materiais, podem ser divididos em métodos diretos e indiretos. Os métodos de síntese direta compreendem os métodos de coprecipitação, sal-óxido, hidrotérmicos, hidrólise induzida, sol-gel e preparação eletroquímica. Já os métodos de síntese indireta incluem os processos de troca aniônica simples, troca aniônica por regeneração de material calcinado e troca aniônica, usando fase dupla, com a formação de um sal entre os tensoativos.

Os HDLs têm uma estrutura molecular única com uma composição química altamente controlável das camadas catiônicas e da região interlamelar. Esses materiais apresentam diferenças em sua morfologia e estrutura cristalina, o que permite que sejam projetados para uma finalidade específica (Jijoe *et al.*, 2021; Keyikoglu *et al.*, 2022). Trabalhos recentes que mostram diferentes composições, via de síntese e aplicações desses materiais estão listados na Tabela 1.

Dentre as principais aplicações dos HDLs, a sua utilização como agente de remediação ambiental tem se destacado como a área de atuação mais prevalente. Este fato é ratificado pelo alto número de publicações recuperadas que tratam da utilização destes

materiais na área ambiental comparado às publicações que tratam da utilização de HDL sem aplicação específica, como observado na Figura 4.

Tabela 1: Aplicações, composições e vias sínteses dos HDLs.

Composição do HDL	Método de síntese	Aplicação	Referência
ZnAl	Coprecipitação	Carreador fármaco	(Yazdani <i>et al.</i> , 2019)
MgAl	Hidrotérmica	Carreador fármaco	(Sohrabnez <i>et al.</i> , 2020)
ZnCr	Coprecipitação-calcinação	Fotocatálise	(Bencherif <i>et al.</i> , 2021)
NiCoAl	Hidrotérmica	Capacitor	(Gao <i>et al.</i> , 2021)
MgAl	Coprecipitação	Célula combustível	(Simari <i>et al.</i> , 2019)
MgFe	Sol-gel	Adsorvente	(Ahmed; Mohamed, 2017)
SCD*-MgAl	Troca iônica	Adsorvente	(Hu <i>et al.</i> , 2016)
NiFe	Coprecipitação	Catálise	(Zhang <i>et al.</i> , 2019)
ZnAl	Hidrotérmica/ Micro-ondas	Adsorvente	(Chilukoti; Thangavel, 2019)

*Sulfated β -cyclodextrin (SCD).

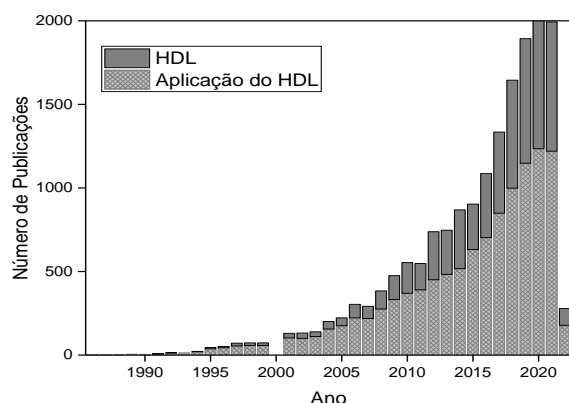


Figura 1: Número de publicações recuperadas que tratam da utilização dos HDLs como agentes de remediação ambiental com os dados recuperados sem aplicação específica (Fonte: webofscience.com).

A utilização dos HDLs como materiais adsorventes na remediação de problemas ambientais tem sido a aplicação mais comumente reportada na literatura. Embora um crescente interesse na utilização de HDLs como material adsorvente seja observado, há uma lacuna nas informações de tendências de pesquisas estatísticas usando análise

bibliométrica sobre este tópico. Neste sentido, o presente trabalho visa, através de uma análise bibliométrica, analisar quantitativa e qualitativamente as diretrizes científicas sobre a empregabilidade dos Hidróxidos Duplos Lamelares (HDLs) como agentes adsorventes de contaminantes em meio aquoso.

MATERIAIS E MÉTODOS

Análise Bibliométrica

Este método permite identificar, organizar e avaliar os elementos constitutivos de uma área de estudo específica, sendo, portanto, uma importante ferramenta para revisões. É uma técnica abrangente relacionada a métodos matemáticos e estatísticos para descobrir a distribuição, variação e quantidade de publicações em bancos de dados públicos sobre um determinado assunto (Gallego-Valero, Moral-Parajes, and Román-Sánchez, 2021).

Fonte de dados

A base de dados *Web of Science* (WoS) foi utilizada para realizar a análise bibliométrica. A WoS tem grande visibilidade nas diversas áreas do conhecimento, filtro de seleção para publicações de prestígio, além de ser amplamente utilizada para a realização de estudos bibliométricos (Jiang *et al.*, 2018).

Seleção e processamento de dados

A amostra de documentos analisados neste estudo foi obtida através dos termos ("layered double hydroxides" OR "anionic clays" OR "hydrotalcite-like materials") AND ("adsorption" OR "adsorbent") AND ("treatment OR remediation") AND ("water" OR "contaminated waters" OR "effluents" OR "wastewater"). O levantamento bibliográfico foi realizado com todos os termos que, de acordo com a literatura, são comumente utilizados para se referir aos HDLs com o intuito de se obter resultados mais condizentes com a realidade. A cronologia utilizada para a busca levou em consideração a data da primeira publicação recuperada sobre o tema na base de dados até março de 2022 (1997-2022).

RESULTADOS

Análise descritiva de publicações anuais

Através das buscas realizadas na base de dados WoS foram recuperados ao todo 663 documentos, desse total 89,54% (595 registros), a absoluta maioria, são referentes a artigos científicos, 9,05% (60 registros) correspondem a documentos de revisão e os menos de 4% restantes correspondem à soma de outros tipos registros como resumo de reunião, capítulo de livro, notícia, material editorial, entre outros.

A impressão de artigos em inglês corresponde a 98,6 % do total de registros, seguidos de artigos publicados em chinês, 0,9% do total. A proporção do somatório dos outros três idiomas com registros recuperados, que incluem francês, polonês e turco, é inferior a 0,5%.

O número de artigos publicados pode refletir a mudança dos tópicos de pesquisa ano a ano e a tendência de desenvolvimento futuro. Na Figura 5 mostra-se o número de publicações entre os anos de 1997 a 2022.

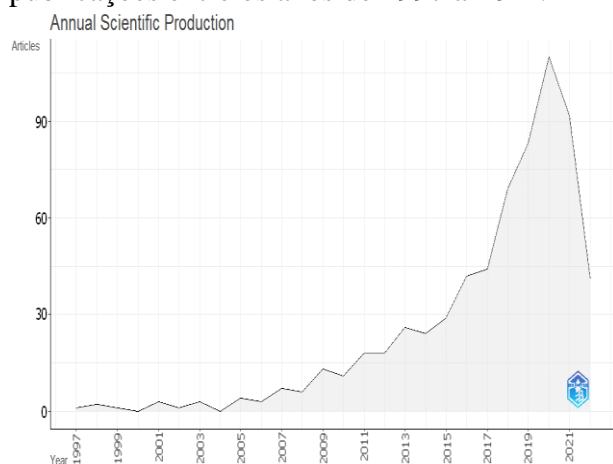


Figura 5: Número de publicações entre os anos de 1997 a 2022.

(Fonte: bibliometrix.org).

O eixo horizontal mostra o ano e o eixo vertical representa o número de artigos publicados. Do ponto de vista do número de trabalhos publicados, a pesquisa acadêmica nessa área de 1997 a 2007 estava em seu estágio inicial, e o número anual de publicações era relativamente baixo. Em 1997, apenas 1 artigo foi publicado. A partir de 2007, o número de artigos publicados apresentou tendência de aumento gradual,

atingindo o pico em 2020 com 110 artigos publicados.

A Figura 6 apresenta a média anual de citações de documentos.

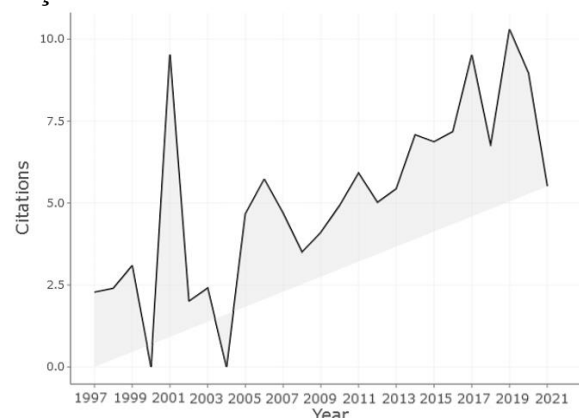


Figura 6: Média anual de citações de documentos. (Fonte: bibliometrix.org).

De modo geral observa-se que a citação geral desse campo mostra uma tendência em ziguezague, indicando que mais e mais estudiosos estão prestando atenção a esse campo nos últimos anos. O número médio de citações atingiu seu pico em 2001 com média de citações totais de cada artigo de 200 vezes. A média de citações totais de cada artigo chegou a 9,52 vezes por ano. O artigo publicado por Liang (2017) é o mais citado.

Recursos sobre fontes de publicação

O total de documentos recuperados foram publicados em 272 diferentes periódicos, classificados por índice h. Este índice fornece de maneira imparcial uma estimativa sobre o impacto e a relevância das descobertas científicas. As 10 principais fontes de publicação com os maiores valores de índice h, número de citações (NC), de publicações (NP) e ano em que cada publicação começou a ser publicada (PY_start) estão listadas na Tabela 3.

O periódico Chemical Engineering Journal (h index 27), bastante abrangente para Engenharia Química Ambiental, foi o periódico mais produtivo com 41 publicações, seguido do Applied Clay Science (h index 20) com 38, Journal of Hazardous Materials (h index 18) com 30 e Journal of cleaner production (h index 14) com 17 publicações, sendo mensurados através destas métricas, produtividade e impacto dos pesquisadores. Em conjunto, estes quatro periódicos

publicaram 62,376% do total de artigos sobre este tema de pesquisa. Outros importantes periódicos como *Chemosphere* e *Colloids and surfaces a-physicochemical and engineering aspects*, ambos com h index 11, também publicaram dentro da temática abordada.

Tabela 3: Principais fontes de publicação com os maiores valores de índice h, número de citações (NC), de publicações (NP) e ano em que cada publicação começou a ser publicada (PY_start)

Element	h index	G index	m index	NC	NP	PY_start
Chemical engineering journal	27	41	2250	2359	41	2011
Applied clay science	20	38	0.909	1691	38	2001
Journal of hazardous materials	18	30	1.000	1542	30	2005
Journal of cleaner production	14	17	1.556	508	17	2014
Chemosphere	11	20	0.647	708	20	2006
Colloids and surfaces a-physicochemical and engineering aspects	11	13	0.550	509	13	2003
Journal of colloid and interface science	10	11	0.625	694	11	2007
Science of the total environment	10	13	1.250	684	13	2015
Water research	9	9	0.500	665	9	2005
Applied surface science	8	10	0.800	279	10	2013

Países relevantes em pesquisas sobre o tema

Os artigos publicados sobre tema no período 1997-2022 provêm de um total de 69 países. A Figura 7 mostra o mapa dos países com resultados na pesquisa. Embora a maioria dos estudos neste campo venham de um número relativamente pequeno de países, como China, Índia, EUA, Japão, Brasil, Arábia Saudita, Austrália, França, Coreia do Sul e Canadá, notadamente os países com uma grande diversidade de características econômicas e socioculturais produzem relevantes pesquisas nesta área do conhecimento.

Country Scientific Production

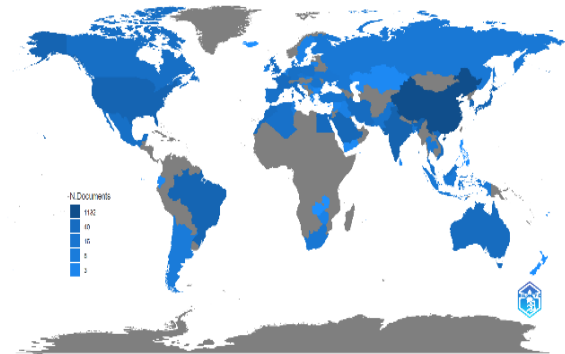


Figura 7: Mapa da pesquisa que evidencia todos os países que publicaram sobre o tema. (Fonte: webofscience.com).

A Figura 8 apresenta os percentuais dos 10 países/territórios mais produtivos sobre o tema.

A China é o território mais prolífico, representando 47,96% do total, com 318 documentos recuperados. O segundo lugar é ocupado pela Índia (7,69% do total, 51 artigos), seguido da Japão com 40 documentos, o que representa 6,03% do total. Posteriormente temos USA (40 documentos, 6,03%), Brasil (28 documentos, 4,22%), Arábia Saudita (28 documentos, 4,22%), Austrália (25 documentos, 3,77%), França (25 documentos, 3,62%), Coreia do Sul (24 documentos, 3,62%) e Canadá (17 documentos, 2,56%).

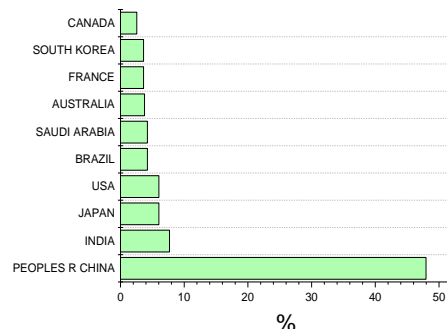


Figura 8: Percentual dos principais países em número de documentos sobre o tema. (Fonte: webofscience.com).

Rede de países/regiões

As redes país/região mostram visualmente a distribuição da produção e as parcerias entre países/regiões são apresentados na Figura 9.

Country Collaboration Map

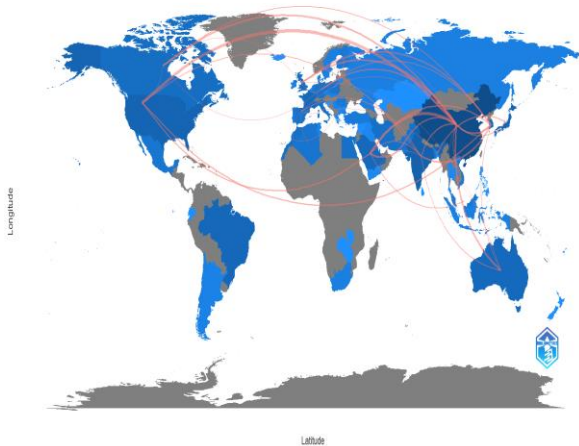


Figura 9: Distribuição da produção e as parcerias entre países/regiões. (Fonte: webofscience.com).

Na Tabela 4 é apresentado a cooperação entre países/regiões. Vê-se que a China e os Estados Unidos têm a cooperação mais estreita com um total de 23 documentos publicados.

Tabela 4: Valores da cooperação entre países/regiões

De	Para	Frequência
China	EUA	23
China	Arábia Saudita	17
China	Austrália	14
China	Canadá	10
China	Coreia	10
China	Reino unido	8
Índia	Coreia	8
Arábia Saudita	Paquistão	7
China	Índia	6
China	Paquistão	6

Análise de palavras-chave

A análise de evolução temática pode ser usada para detectar, quantificar e visualizar campos de pesquisa específicos, e pode mostrar visualmente a evolução do tema nos últimos anos. Um mapa estratégico mostrado na Figura 10 dividido em quatro quadrantes mostra o grau de conexão entre os clusters e entre as palavras-chave no cluster.

Clusters by Documents Coupling

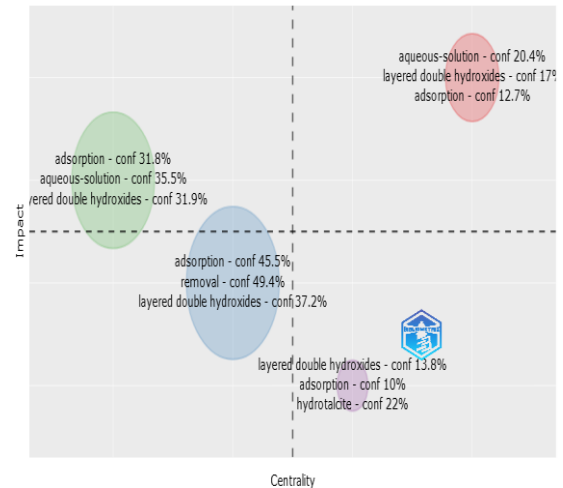


Figura 10: Grau de conexão entre os clusters e entre as palavras-chave no cluster. (Fonte: bibliometrix.org).

O segundo e o terceiro quadrante são os bem mais desenvolvidos, apresentando com forte centralidade e alto impacto sendo os mais relevantes para o campo atual. Palavras semelhantes são encontradas no primeiro e o quarto quadrante, indicando certa linearidade na utilização dos HDLs.

Os diagramas estratégicos permitem visualizar o campo de pesquisa como um conjunto de temas, mapeados e classificados em quatro grupos, categorizados em termos de densidade e centralidade: (I) motor cluster (primeiro quadrante, com alta densidade e forte centralidade); (II) clusters altamente desenvolvidos e isolados (segundo quadrante superior esquerdo, com importância marginal para o campo de pesquisa; ‘temas especializados’); (III) clusters em declínio ou emergentes (terceiro quadrante, com baixa densidade e baixa centralidade; ‘temas emergentes ou em desaparecimento’); e (IV) clusters básicos e transversais (quarto quadrante, com temas importantes porém não desenvolvidos; ‘temas transversais e gerais’) (Alcaide-Muñoz *et al*; 2017; Cobo *et al*; 2012). Ressalta-se que a esfera representa um cluster de palavras (ou tema) e o nome de cada um destes está relacionado à palavra e/ou tema mais recorrente; o volume das esferas corresponde ao número de artigos associados - quanto maior a esfera, maior o número de artigos que citaram tal palavra como palavra-chave (Cobo, López-Herrera, Herrera-Viedma; Herrera, 2011; Cobo *et al*; 2012).

REFERÊNCIAS

- Ahmed, M.A., Brick, A.A., Mohamed, A.A.A., 2017. An efficient adsorption of indigo carmine dye from aqueous solution on mesoporous Mg/Fe layered double hydroxide nanoparticles prepared by controlled sol-gel route. *Chemosphere* 174, 280–288.
- Bläker, C., Muthmann, J., Pasel, C., Bathen, D., 2019. Characterization of Activated Carbon Adsorbents – State of the Art and Novel Approaches. *ChemBioEng Rev.* 6, 119–138.
- Çalık, Ç., Çifçi, D.İ., 2022. Comparison of kinetics and costs of Fenton and photo-Fenton processes used for the treatment of a textile industry wastewater. *J. Environ. Manage.* 304, 114234.
- Carvalho, S.S.F., Rodrigues, A.C.C., Lima, J.F., Carvalho, N.M.F., 2020. Photocatalytic degradation of dyes by mononuclear copper(II) complexes from bis-(2-pyridylmethyl)amine NNN-derivative ligands. *Inorganica Chim. Acta* 512, 119924.
- Chang, Z., Evans, D.G., Duan, X., Vial, C., Ghanbaja, J., Prevot, V., De Roy, M., Forano, C., 2005. Synthesis of [Zn-Al-CO₃] layered double hydroxides by a coprecipitation method under steady-state conditions. *J. Solid State Chem.* 178, 2766–2777.
- Chilukoti, S., Thangavel, T., 2019. Enhanced adsorption of Congo red on microwave synthesized layered Zn-Al double hydroxides and its adsorption behaviour using mixture of dyes from aqueous solution. *Inorg. Chem. Commun.* 100, 107–117.
- da Silva Santos, D.H., Paulino, J.C.P.L., dos Santos Alves, G.F., de Magalhães Oliveira, L.M.T., de Carvalho Nagliate, P., da Silva Duarte, J.L., Meili, L., Tonholo, J., Zanta, C.L. de P. e. S., 2021. Effluent treatment using activated carbon adsorbents: a bibliometric analysis of recent literature. *Environ. Sci. Pollut. Res. Int.* 28, 32224–32235.
- Dąbrowski, A., Podkościelny, P., Hubicki, Z., Barczak, M., 2005. Adsorption of phenolic compounds by activated carbon—a critical review. *Chemosphere* 58, 1049–1070.
- De Gisi, S., Lofrano, G., Grassi, M., Notarnicola, M., 2016. Characteristics and adsorption capacities of low-cost sorbents for wastewater treatment: A review. *Sustain. Mater. Technol.* 9, 10–40.
- De Sá, F.P., Cunha, B.N., Nunes, L.M., 2013. Effect of pH on the adsorption of Sunset Yellow FCF food dye into a layered double hydroxide (CaAl-LDH-NO₃). *Chem. Eng. J.* 215–216, 122–127.
- Delkash, M., Ebrazi Bakhshayesh, B., Kazemian, H., 2015. Using zeolitic adsorbents to cleanup special wastewater streams: A review. *Microporous Mesoporous Mater.* 214, 224–241.
- Djelloul Bencherif, S., Gallardo, J.J., Carrillo-Berdugo, Iván, Bahmani, Abdellah, Navas, J., Bencherif, S.D., Gallardo, J.J., Carrillo-Berdugo, I., Bahmani, A., Grumezescu, M., Gherasim, O., Negishi, Y., 2021. Synthesis, Characterization and Photocatalytic Performance of Calcined ZnCr-Layered Double Hydroxides. *Nanomater.* 2021, Vol. 11, Page 3051 11, 3051.
- Espinoza-Quiñones, F.R., Dall'Oglio, I.C., de Pauli, A.R., Romani, M., Módenes, A.N., Trigueros, D.E.G., 2021. Insights into brewery wastewater treatment by the electro-Fenton hybrid process: How to get a significant decrease in organic matter and toxicity. *Chemosphere* 263, 128367.
- Fallah, Z., Zare, E.N., Ghomi, M., Ahmadijokani, F., Amini, M., Tajbakhsh, M., Arjmand, M., Sharma, G., Ali, H., Ahmad, A., Makvandi, P., Lichtfouse, E., Sillanpää, M., Varma, R.S., 2021. Toxicity and remediation of pharmaceuticals and pesticides using metal oxides and carbon nanomaterials. *Chemosphere* 275, 130055. E.2021.130055
- Fan, Y., Fang, C., 2020. A comprehensive insight into water pollution and driving forces in Western China—case study of Qinghai. *J. Clean. Prod.* 274, 123950.
- Fiyadh, S.S., AlSaadi, M.A., Jaafar, W.Z.,

- AlOmar, M.K., Fayaed, S.S., Mohd, N.S., Hin, L.S., El-Shafie, A., 2019. Review on heavy metal adsorption processes by carbon nanotubes. *J. Clean. Prod.* 230, 783–793.
- Gallego-Valero, L., Moral-Parajes, E., Román-Sánchez, I.M., 2021. Wastewater Treatment Costs: A Research Overview through Bibliometric Analysis. *Sustain.* 2021, Vol. 13, Page 5066 13, 5066.
- Gao, X., Zhang, R., Huang, X., Shi, Y., Wang, C., Gao, Y., Han, Z., 2021. One-step growth of NiCoAl layered double hydroxides microspheres toward high energy density supercapacitors. *J. Alloys Compd.* 859, 157879.
- Golban, A., Lupa, L., Coheci, L., Pode, R., 2019. Synthesis of MgFe Layered Double Hydroxide from Iron-Containing Acidic Residual Solution and Its Adsorption Performance. *Cryst.* 2019, Vol. 9, Page 514 9, 514.
- Hu, W., Wu, X., Jiao, F., Yang, W., Zhou, Y., 2016. Preparation and characterization of magnetic Fe₃O₄@sulfonated β -cyclodextrin intercalated layered double hydroxides for methylene blue removal. *New pub Balaban* 57, 25830–25841.
- Jiang, M., Qi, Y., Liu, H., Chen, Y., 2018. The Role of Nanomaterials and Nanotechnologies in Wastewater Treatment: a Bibliometric Analysis. *Nanoscale Res. Lett.* 13, 1–13.
- Jijoe, S., Shivamurthy, ., Yashas, R., Harikaranahalli, ., Shivaraju, P., 2021. Fundamentals, synthesis, characterization and environmental applications of layered double hydroxides: a review 19, 2643–2661.
- Kacan, E., 2016. Optimum BET surface areas for activated carbon produced from textile sewage sludges and its application as dye removal. *J. Environ. Manage.* 166, 116–123.
- Kasonga, T.K., Coetzee, M.A.A., Kamika, I., Ngole-Jeme, V.M., Benteke Momba, M.N., 2021. Endocrine-disruptive chemicals as contaminants of emerging concern in wastewater and surface water: A review. *J. Environ. Manage.* 277, 111485.
- Kausar, A., Iqbal, M., Javed, A., Aftab, K., Nazli, Z. i. H., Bhatti, H.N., Nouren, S., 2018. Dyes adsorption using clay and modified clay: A review. *J. Mol. Liq.* 256, 395–407.
- Keyikoglu, R., Khataee, A., Yoon, Y., 2022. Layered double hydroxides for removing and recovering phosphate: Recent advances and future directions. *Adv. Colloid Interface Sci.* 300, 102598.
- Kim, S., Nam, S.N., Jang, A., Jang, M., Park, C.M., Son, A., Her, N., Heo, J., Yoon, Y., 2022. Review of adsorption–membrane hybrid systems for water and wastewater treatment. *Chemosphere* 286, 131916.
- Kıdık, R., Doğan, Ş., 2018. Medium-high frequency ultrasound and ozone based advanced oxidation for amoxicillin removal in water. *Ultrason. Sonochem.* 40, 131–139.
- Koutavarapu, R., Tamtam, M.R., Rao, M.C., Peera, S.G., Shim, J., 2021. Recent progress in transition metal oxide/sulfide quantum dots-based nanocomposites for the removal of toxic organic pollutants. *Chemosphere* 272, 129849.
- Kumar, P.S., Korving, L., van Loosdrecht, M.C.M., Witkamp, G.J., 2019. Adsorption as a technology to achieve ultra-low concentrations of phosphate: Research gaps and economic analysis. *Water Res. X* 4, 100029.
- Lakhotia, S.R., Mukhopadhyay, M., Kumari, P., 2019. Iron oxide (FeO) nanoparticles embedded thin-film nanocomposite nanofiltration (NF) membrane for water treatment. *Sep. Purif. Technol.* 211, 98–107.
- Li, A., Deng, H., Ye, C., Jiang, Y., 2020. Fabrication and Characterization of Novel ZnAl-Layered Double Hydroxide for the Superadsorption of Organic Contaminants from Wastewater. *ACS Omega* 5, 15152–15161.
- Li, Z., Hanafy, H., Zhang, L., Sellaoui, L., Schadeck, M., Oliveira, M.L.S., Seliem, M.K., Luiz, G., Bonilla-petriciolet, A., 2020. Adsorption of congo red and methylene blue dyes on an ashitaba waste and a walnut shell-based activated carbon from aqueous solutions: Experiments , characterization and physical interpretations. *Chem. Eng. J.* 388,

- 124263.
- Mahmoud, R.K., Taha, M., Zaher, A., Amin, R.M., 2021. Understanding the physicochemical properties of Zn-Fe LDH nanostructure as sorbent material for removing of anionic and cationic dyes mixture. *Sci. Reports* 2021 111 11, 1–19.
- Mao, S., Chang, J., Zhou, G., Chen, J., 2015. Nanomaterial-enabled Rapid Detection of Water Contaminants. *Small* 11, 5336–5359.
- Miklos, D.B., Remy, C., Jekel, M., Linden, K.G., Drewes, J.E., Hübner, U., 2018. Evaluation of advanced oxidation processes for water and wastewater treatment – A critical review. *Water Res.* 139, 118–131.
- Mishra, G., Dash, B., Pandey, S., 2018. Layered double hydroxides: A brief review from fundamentals to application as evolving biomaterials. *Appl. Clay Sci.* 153, 172–186.
- Mohapatra, L., Parida, K., 2016. A review on the recent progress, challenges and perspective of layered double hydroxides as promising photocatalysts. *J. Mater. Chem. A* 4, 10744–10766.
- Momina, Shahadat, M., Isamil, S., 2018. Regeneration performance of clay-based adsorbents for the removal of industrial dyes: a review. *RSC Adv.* 8, 24571–24587.
- Ntuli, V., Hapazari, I., 2013. Sustainable waste management by production of activated carbon from agroforestry residues. *S. Afr. J. Sci.* 109, 1–6.
- Ochedi, F.O., Liu, Y., Hussain, A., 2020. A review on coal fly ash-based adsorbents for mercury and arsenic removal. *J. Clean. Prod.* 267, 122143.
- Oller, I., Malato, S., Sánchez-Pérez, J.A., 2011. Combination of Advanced Oxidation Processes and biological treatments for wastewater decontamination—A review. *Sci. Total Environ.* 409, 4141–4166.
- Pourfaraj, R., Fatemi, S.J., Kazemi, S.Y., Biparva, P., 2017. Synthesis of hexagonal mesoporous MgAl LDH nanoplatelets adsorbent for the effective adsorption of Brilliant Yellow. *J. Colloid Interface Sci.* 508, 65–74. 1
- Rápó, E., Tonk, S., 2021. Factors Affecting Synthetic Dye Adsorption; Desorption Studies: A Review of Results from the Last Five Years (2017–2021). *Mol.* 2021, Vol. 26, Page 5419 26, 5419.
- Sajid, M., Nazal, M.K., Ihsanullah, Baig, N., Osman, A.M., 2018. Removal of heavy metals and organic pollutants from water using dendritic polymers based adsorbents: A critical review. *Sep. Purif. Technol.* 191, 400–423.
- Santos, D.H.S., Duarte, J.L.S., Tavares, M.G.R., Tavares, M.G., Friedrich, L.C., Meili, L., Pimentel, W.R.O., Tonholo, J., Zanta, C.L.P.S., 2020. Chemical Engineering & Processing: Process Intensi fication Electrochemical degradation and toxicity evaluation of reactive dyes mixture and real textile e ffl uent over DSA® electrodes. *Chem. Eng. Process. Process Intensif.* 153, 107940.
- Santos, J.P.T. da S., Tonholo, J., de Andrade, A.R., Del Colle, V., Zanta, C.L. de P. e. S., 2020. The electro-oxidation of tetracycline hydrochloride in commercial DSA® modified by electrodeposited platinum. *undefined* 28, 23595–23609.
- Santos, L.C., da Silva, A.F., dos Santos Lins, P.V., da Silva Duarte, J.L., Ide, A.H., Meili, L., 2019. Mg-Fe layered double hydroxide with chloride intercalated: synthesis, characterization and application for efficient nitrate removal. *Environ. Sci. Pollut. Res.*
- Silva, A.F. da, Duarte, J.L. da S., Meili, L., 2021. Different routes for MgFe/LDH synthesis and application to remove pollutants of emerging concern. *Sep. Purif. Technol.* 264.
- Simari, C., Vecchio, C. Lo, Enotiadis, A., Davoli, M., Baglio, V., Nicotera, I., 2019. Toward optimization of a robust low-cost sulfonated-polyethersulfone containing layered double hydroxide for PEM fuel cells. *J. Appl. Polym. Sci.* 136, 47884.
- Stoeckli, H.F., 1990. Microporous carbons and their characterization: The present state of the art. *Carbon N. Y.* 28, 1–6.
- Tavares, M.G.R., Santos, H.S., Tavares, M.G., Duarte, L.S., Meili, L., Pimentel, R.O., 2020. Removal of Reactive Dyes from Aqueous Solution by Fenton Reaction:

Kinetic Study and Phytotoxicity Tests
231, 1–15.

- Țolea, S.N., Cochechi, L., Lupa, L., Vodă, R., Pode, R., 2021. Development of New Efficient Adsorbent by Functionalization of Mg₃Al-LDH with Methyl Trialkyl Ammonium Chloride Ionic Liquid. *Mol.* 2021, Vol. 26, Page 7384 26, 7384.
- Torres, J.J., Cuello, M., Ochoa, N.A., Pagliero, C., 2021. Biodiesel wastewater treatment using nanofiltration membranes. *Process Saf. Environ. Prot.* 148, 825–833.
- Wang, F.Y., Wang, H., Ma, J.W., 2010. Adsorption of cadmium (II) ions from aqueous solution by a new low-cost adsorbent—Bamboo charcoal. *J. Hazard. Mater.* 177, 300–306.
- Yang, C.A., Huang, H., Ji, T., Zhang, K.S., Yuan, L.Q., Zhou, C.S., Tang, K.W., Yi, J.M., Chen, X.B., 2019. A cost-effective crosslinked β -cyclodextrin polymer for the rapid and efficient removal of micropollutants from wastewater. *Polym. Int.* 68, 805–811.
- Yazdani, P., Mansouri, E., Eyvazi, S., Yousefi, V., Kahroba, H., Hejazi, M.S., Mesbahi, A., Tarhriz, V., Abolghasemi, M.M., 2019. Layered double hydroxide nanoparticles as an appealing nanoparticle in gene/plasmid and drug delivery system in C2C12 myoblast cells. *Artif. Cells, Nanomedicine Biotechnol.* 47, 436–442.
- Zhang, J., Zhang, N., Tack, F.M.G., Sato, S., Alessi, D.S., Oleszczuk, P., Wang, H., Wang, X., Wang, S., 2021. Modification of ordered mesoporous carbon for removal of environmental contaminants from aqueous phase: A review. *J. Hazard. Mater.* 418, 126266.
- Zhang, Z., Zhou, D., Liao, J., Bao, X., Yu, H., 2019. Synthesis of high crystalline nickel-iron hydrotalcite-like compound as an efficient electrocatalyst for oxygen evolution reaction. *Int. J. Energy Res.* 43, 1460–1467.