

广州地化所揭示活化和氧化黑碳对壬基酚的吸附和解吸机理

发布时间: 2021-01-08

壬基酚 (NP) 是一种内分泌干扰物, 对人类构成致癌威胁。目前, 在世界范围内的各种有机废水中都检测到 NP。因此, 去除污染废水中的 NP 成为环境污染和污水净化的一个重要问题。黑碳(BCs)因其在控制污染物迁移方面的潜在作用而受到广泛关注。目前, 用 ZnCl₂和KOH活化BCs的报道很多, 但系统比较其表面性能、化学结构性能、微孔性能和吸附/解吸性能差异的研究较少。此外, 鲜少有报道将活化处理和氧化处理相结合。前期研究表明了活化和氧化BCs对平面化合物(菲, Phen)吸附和解吸中的微孔变形机制, 然而, 对于活化和氧化BCs在非平面化合物(壬基酚, NP)上的吸附和解吸行为的认识仍然不足。此外, 可提取有机质(EOM)和多环芳烃(PAHs)对BCs吸附和解吸的影响还有待进一步研究。

广州地化所胡淑捷博士研究生和冉勇研究员等人, 利用化学活化剂(KOH、ZnCl₂)、氧化剂(H₂O₂、NaClO)和有机溶剂分别从页岩干酪根中提取活化黑碳(Z-BCs/P-BCs)、氧化黑碳(ZHP\ZSH\PHP\PSH)和有机溶剂萃取的黑碳样品(E-Z-BCs/E-P-BCs); 并测定了它们的表面性质(水接触角、表面酸/碱官能团、阳离子交换能力CEC)、结构性质(高级固态¹³C NMR)、微孔性质(CO₂吸附)和介孔性质(N₂吸附), 并对热解过程中产生的多环芳烃(PAHs)以及可提取有机质(EOM)进行了量化。

实验表明, 不同温度下 BCs 的EOM和 PAHs含量均随热解温度的升高先升高后降低。与 KOH 活化的 BCs 相比, ZnCl₂ 活化的 BCs 具有较高的碱性表面官能团、CEC 值、芳香碳含量、微孔体积和微孔尺寸, 但酸性表面官能团较低。通过 ¹H – ¹³C 远程偶极去相估计了稠环芳香环的大小, 提出了 300 – 500 °C之间的 BCs 的结构模型。

此外, 研究人员探讨了BCs对壬基酚和菲的吸附和解吸机理。结果表明, 可提取有机物的去除暴露了 BCs 的微孔结构, 有利于吸附菲, 但不利于分子吸附尺寸较大的壬基酚。而且, 氧化处理BCs对壬基酚的吸附比对菲的吸附更有效(图1)。另外, 氢键在对壬基酚吸附过程中有重要作用; BCs 的微孔结构对吸附不可逆性有显著影响; BCs对壬基酚的解吸滞后机制还与氢键效应和微孔变形效应有关。

为进一步探讨, 研究人员利用DR吸附模型估计BCs对Phen和NP的吸附量 (Q₀)。结果表明, NP的吸附过程存在明显的分子筛作用; 空间位阻的原因使得分子较大的壬基酚不能进入到较小的微孔。黑炭对具有平面分子结构的菲的吸附要比非平面的壬基酚吸附的强, 供试BCsde 微孔填充和微孔尺寸分布对壬基酚的吸附起着至关重要的作用。

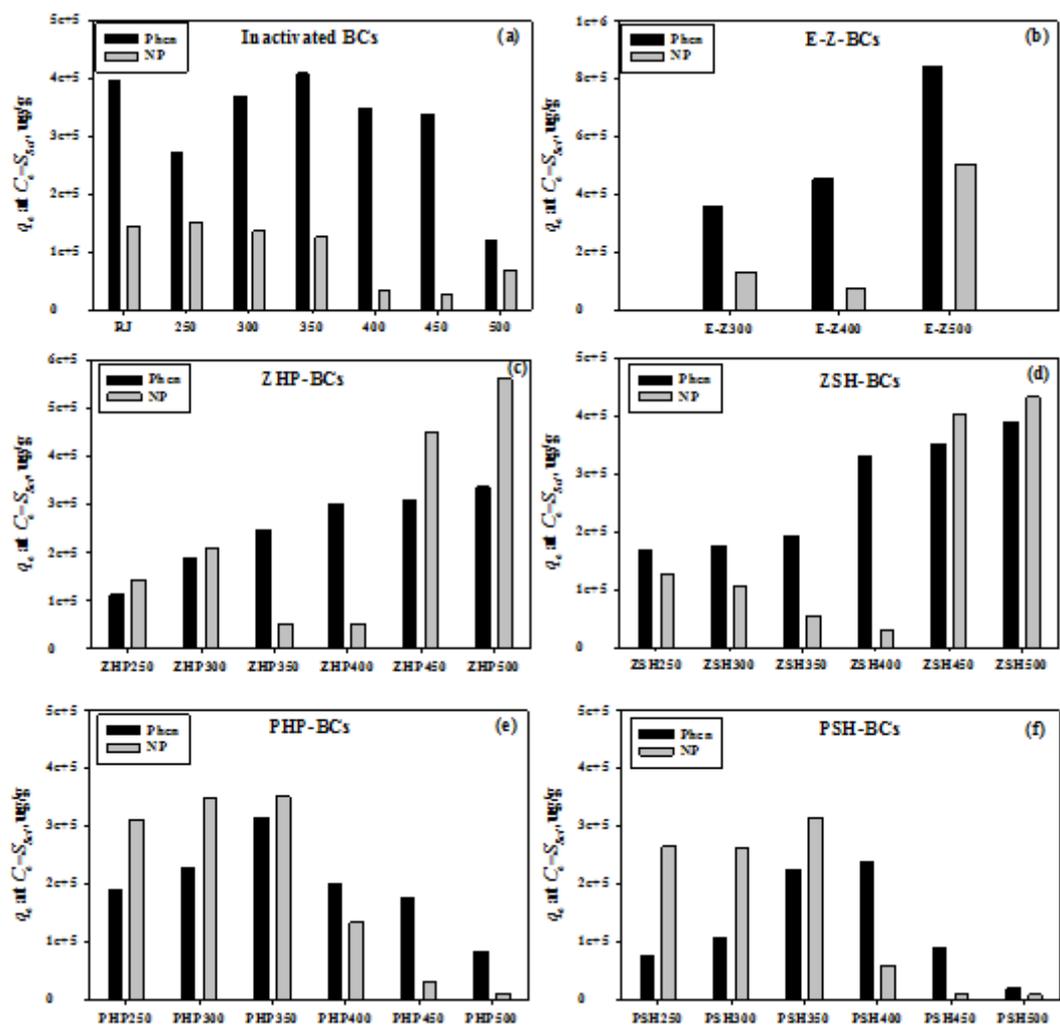


图1: BCs 对菲和王基酚吸附的 q_e 值 (来源: Elsevier)

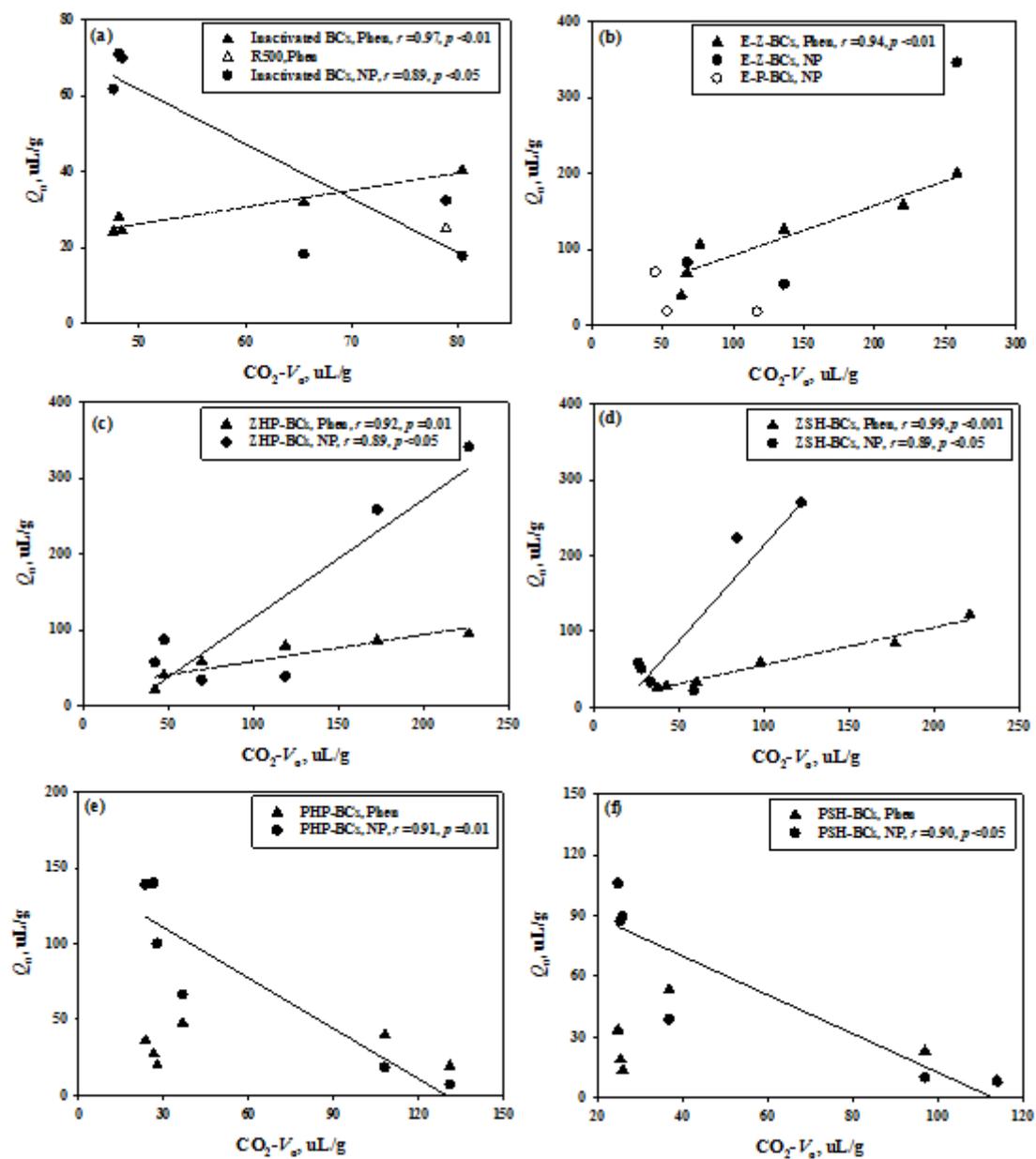


图2: BCs 对菲和王基酚吸附的 Q_o 值与微孔体积的关系 (来源: Elsevier)

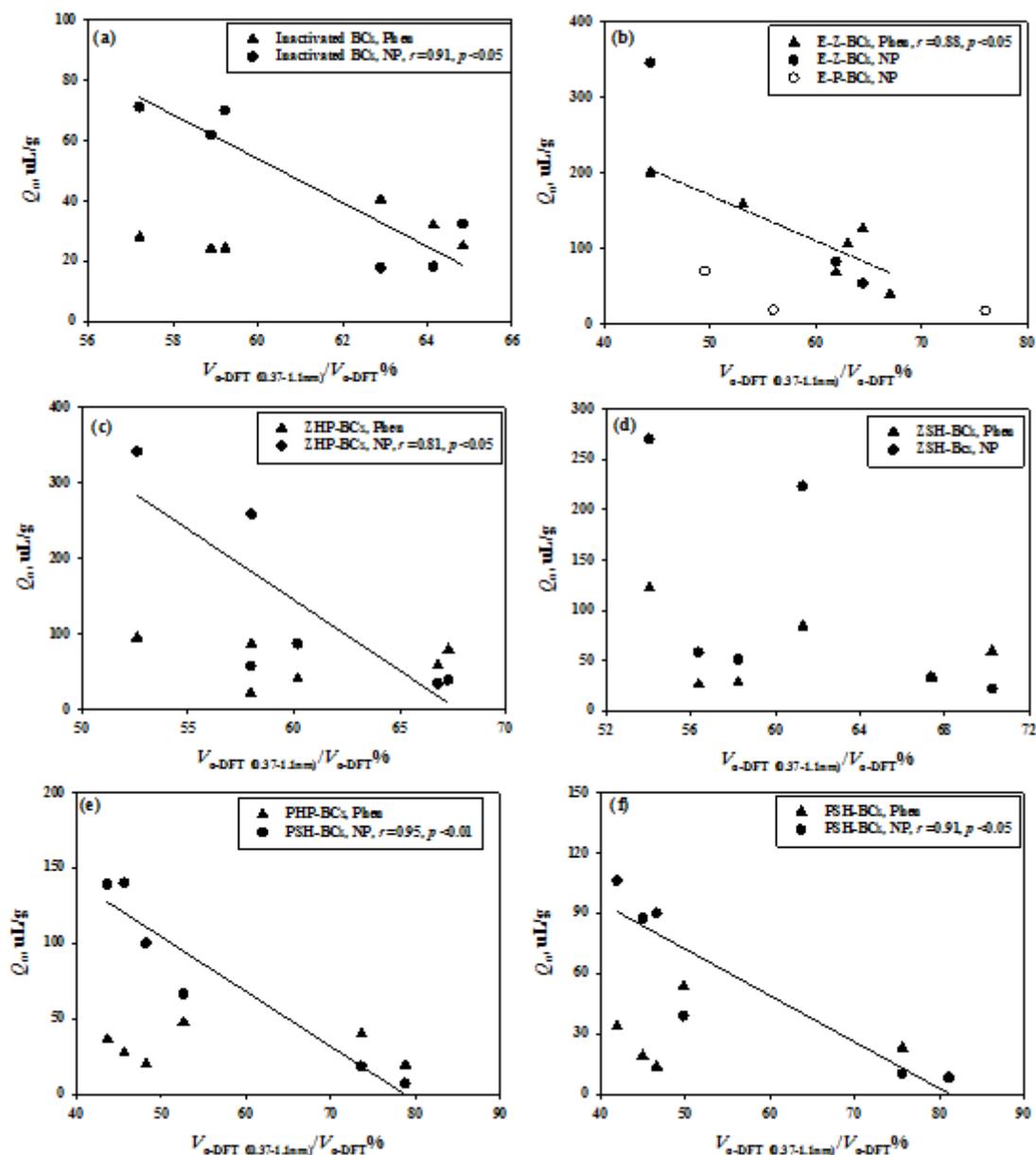


图3: BCs 对菲和壬基酚吸附的 Q_o 值与 $V_{o-DFT-(0.37-1.1nm)}/V_{o-DFT} \%$ 的关系 (来源: Elsevier)

原 文 链 接 :

<https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0048969720377226>

(<https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0048969720377226>)

(有机地球化学国家重点实验室供稿)



中国科学院
CHINESE ACADEMY OF SCIENCES



([https://bszs.conac.cn/sitename?](https://bszs.conac.cn/sitename?method=show&id=095E4B02F8297743E053022819AC2942)

[method=show&id=095E4B02F8297743E053022819AC2942](https://bszs.conac.cn/sitename?method=show&id=095E4B02F8297743E053022819AC2942)).

版权所有 © 2020 中国科学院广州地球化学研究所 粤ICP备05004659号

联系电话: 85290702 传真: 85290130 邮编: 510640

地址: 广州天河区科华街511号 通讯地址: 广州1131信箱