

首页 | 研究所概况 | 国际交流 | 院地合作 | 科学研究 | 研究队伍 | 研究生教育 | 科学普及 | 科研成果 | 党群园地 | 信息公开

站内搜索

请输入关键字

GO

您现在的位置: 首页 > 新闻动态 > 科研动态

城市环境研究所在新型锰基磁性材料激活过硫酸盐机制方面取得新进展

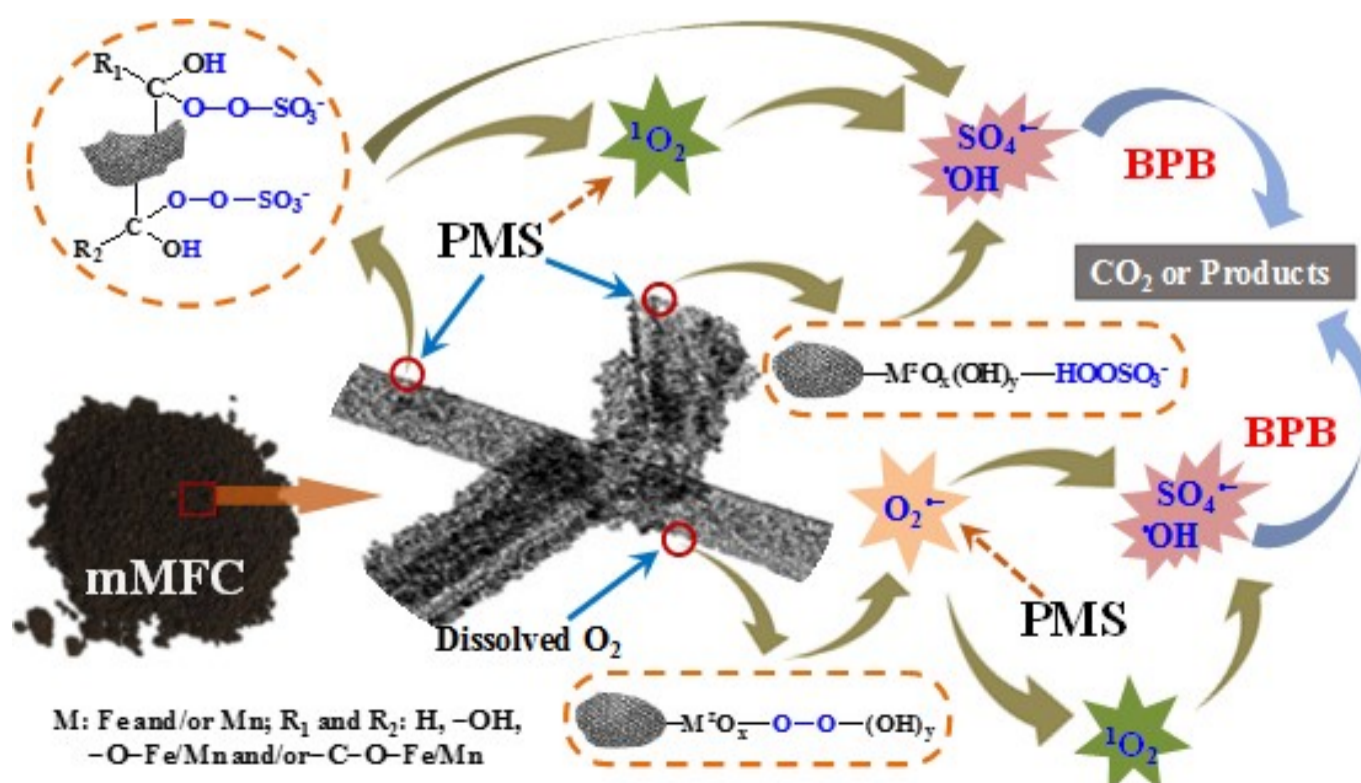
付明来研究组 | 2020-02-24 | 【大 中 小】 【打印】 【关闭】

近日,中国科学院城市环境研究所环境功能材料组(付明来组)报道了该组最新研究成果:磁性Mn-Fe碳氧化物可激活过硫酸盐(PS)形成多种活性氧物种(ROS,即 $O_2^{\cdot-}$ 、 1O_2 、 $SO_4^{\cdot-}$ 和 $\cdot OH$), $O_2^{\cdot-}$ 和 1O_2 可影响 $SO_4^{\cdot-}$ 和 $\cdot OH$ 的形成, $SO_4^{\cdot-}$ 和 $\cdot OH$ 是污染物降解的主要ROS。该研究以*Novel magnetic rod-like Mn-Fe oxycarbide toward peroxydisulfate activation for efficient oxidation of butyl paraben: Radical oxidation versus singlet oxygenation*为题发表在*Applied Catalysis B: Environmental*上,杨佳诚博士为该文的第一作者,付明来研究员为该文的通讯作者,中科院城市污染物转化重点实验室为该工作第一署名和通讯单位。该研究得到了国家自然科学基金(51778598、51808524和51478449)、福建省新型污染物生态毒理效应与控制重点实验室开放基金(PY18003)、厦门科技局重大项目(3502Z20191012)和国家科技国际合作项目(2011DFB91710)的共同资助。

过硫酸盐氧化技术(POT)是最近十年发展起来的一类新型水处理高级氧化技术,但PS自身氧化除污能力有限,利用金属氧化物激活PS产生 $SO_4^{\cdot-}$ (2.5 - 3.1 V_{NHE})可显著增强其氧化降解能力;相对于经典非均相Fenton氧化技术,POT使用的pH范围更广。近年来,围绕POT的研究不断深入,其难点是开发出反应活性高、结构性能稳定且可回收性强的活化剂/催化剂激活PS产生高氧化能力的ROS。因廉价易得和结构可调控的特点,锰基材料(MNM)一直以来被认为是新能源开发和环境修复领域最具应用前景的一类新型功能材料。MNM激活过硫酸盐产生 $SO_4^{\cdot-}$ 和 $\cdot OH$ 自由基降解难降解污染物已被广泛证实并认可,然而,诸多合成方法(或工艺)形成的MNM,其结构和性能各异,势必会影响其激活PS的效能;目前,有关POT的非自由基氧化过程(1O_2 和电子穿梭直接氧化)也被研究者发现并迅速成为该领域的研究热点,如 $\alpha-MnO_2$ 可活化过二硫酸盐形成 1O_2 选择性去除酚类污染物,但有关MNM激活PS产生多种ROS及其降解污染物机制一直悬而未知。

鉴于此,研究组合成了具有棒状结构的磁性Mn-Fe碳氧化物(mMFC),研究mMFC激活过一硫酸盐氢钾(PMS)氧化降解水中新型污染物尼泊金丁酯(BPB)效能,以此探究新型MNM激活过硫酸盐效能与ROS演变机制。合成的mMFC可视为 Fe_24O_{32} 相内八面体位点的Fe部分被Mn取代(即 $(Mn, Fe)_{24}O_{32}/(Mn, Fe)_3O_4$),故与 Fe_24O_{32} 有类似的晶相结构。利用XPS、原位ATR-IR和Raman表征技术对mMFC元素结构信息和mMFC与PMS相互作用进行了系统分析,利用淬灭实验和原位EPR表征对形成的ROS类型进行分析,结果表明:mMFC内金属位点(Mn和Fe)和非金属位点(C=O)可协同激活PMS同时产生 $O_2^{\cdot-}$ 、 1O_2 、 $SO_4^{\cdot-}$ 和 $\cdot OH$ 。此外,利用原位EPR+淬灭、D2O实验和理论计算对ROS演变和BPB降解贡献进行了分析,结果表明: $O_2^{\cdot-}$ 可影响 1O_2 、 $SO_4^{\cdot-}$ 和 $\cdot OH$ 的形成, 1O_2 也可影响 $O_2^{\cdot-}$ 、 $SO_4^{\cdot-}$ 和 $\cdot OH$ 的形成, $SO_4^{\cdot-}$ 和 $\cdot OH$ 是降解BPB主要ROS, $O_2^{\cdot-}$ 和 1O_2 则是 $SO_4^{\cdot-}$ 和 $\cdot OH$ 的形成驱动力。酸溶实验表明:mMFC内金属位点和非金属位点对PMS活化贡献分别为65.8%和34.2%。该研究揭示了新型MNM激活PS形成自由基和非自由基降解污染物的重要过程(概念模型见下图),为全面和深刻理解POT去除污染物的过程和本质提供新的视角。

文章链接





©2006-2020中国科学院城市环境研究所 闽ICP备09043739号-1 版权所有 联系我们
地址：中国厦门市集美大道1799号 邮编：361021 Email: Webmaster@iue.ac.cn

