
西北研究院在含碳酸根水体系中铀的高效光催化还原研究中获进展

作者：writer 来源：中国科学院

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/13358.html>

本文仅供学习交流之用，版权归原作者所有，请勿用于商业用途！

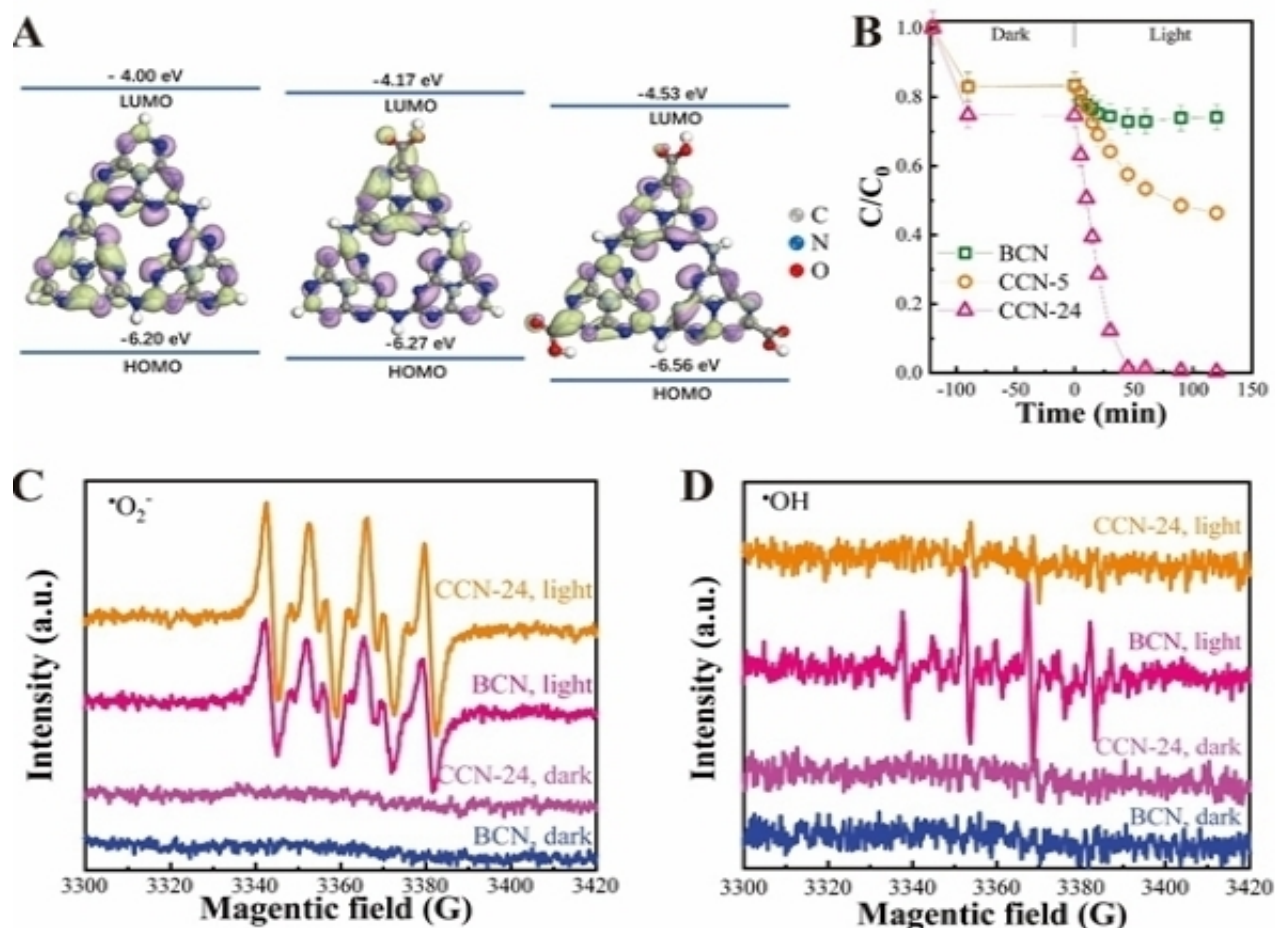
铀是一种重要的资源，但陆地铀矿资源储量有限、分布不均。自20世纪50年代以来，海水提铀引发广泛关注。然而目前，传统的海水提铀方法（如吸附法）仍具有一定的不足。中国科学院西北生态环境资源研究院研究人员提出并验证了光驱动催化还原法在海水提铀中的应用。在光的驱动下，光催化剂能够将易溶的U(VI)还原成难溶态U(IV)，进而实现水体中铀的高效分离。铀的光催化还原具有高选择性、高效率、绿色等优点，在海水提铀及含铀废物处理方面具有广阔的应用前景。然而，在某些含碳酸根体系（如海水中），铀的光催化还原反应难以实现或被严重抑制。主要原因包括：（1）碳酸根容易与U(VI)发生络合，络合物整体呈负电性，难以被大多数催化剂吸附；（2）形成的铀-碳酸根络合物还原电位较低，难以被直接催化还原。碳酸根对U(VI)光催化还原过程的抑制作用限制了该方法的实际应用。

针对上述问题，西北研究院环境地球化学课题组致力于高效光催化剂的开发，旨在原位实现含碳酸根体系中U(VI)的高效催化还原。研究人员通过对氮化碳（BCN）进行不同程度氧化，构筑了系列羧基化氮化碳（CCN）（CCN-5和CCN-24），并应用于含碳酸根体系中U(VI)的光驱动催化还原。羧基的引入提升了U(VI)在催化剂表面的亲和力。与BCN相比，在含2.0 mM和10.0 mM HCO_3^- 体系中，CCN-24对U(VI)的吸附率分别增加了30%和9%。此外，吸电子羧基的引入降低了导带的位置（图A），提高了电子和空穴的分离效率，增强了催化剂光催化性能。在可见光的照射下，CCN对含碳酸盐体系中的U(VI)表现出优异的催化还原活性。在含10.0 mM HCO_3^- 体系中，CCN-24对U(VI)的还原速率为 0.0867 min^{-1} ，约为BCN（ 0.0026 min^{-1} ）的33倍（图B）。电子自旋共振（ESR）和自由基捕获研究证明， $\cdot \text{O}_2^-$ 是主要活性还原物质。与BCN相比，CCN上生成的 $\cdot \text{O}_2^-$ 数量较多，且氧化性 $\cdot \text{OH}$ 自由基更少（图C和D），有利于U(VI)的还原。X射线光电子能谱（XPS）和X射线衍射（XRD）证实了U(VI)被还原为U(IV)，最终以 UO_{2+x} （ $x < 0.25$ ）的形式沉积在催化剂表面。该研究实现了较高浓度碳酸盐溶液中U(VI)的光催化还原，为含碳酸盐溶液中铀的分离提取提供了解决方案，提升了该方法在天然体系中的适用性。

相关研究成果以Carboxyl groups on g- C_3N_4 for boosting the photocatalytic U(VI) reduction in the presence of carbonates为题，发表在Chemical Engineering Journal

上，副研究员李平为论文第一作者，研究员范桥辉为论文通讯作者。研究工作获得国家自然科学基金、中科院青年创新促进会、废旧矿山修复治理甘肃省引才引智基地、甘肃省油气资源研究重点实验室项目等的资助。

[论文链接](#)



羧基氮化碳分子轨道能量和结构 (A)，含10 mM HCO_3^- 体系中羧基氮化碳对U(VI)光催化还原效果 (B)，BCN与CCN体系产生自由基对比 (C、D)

研究团队单位：西北生态环境资源研究院

更多 科学进展 请访问 <https://www.iikx.com/news/progress/>

本文版权归原作者所有，请勿用于商业用途，[爱科学iikx.com](#)转发