单原子界面活化臭氧机理研究获进展

作者：writer 来源：科学网

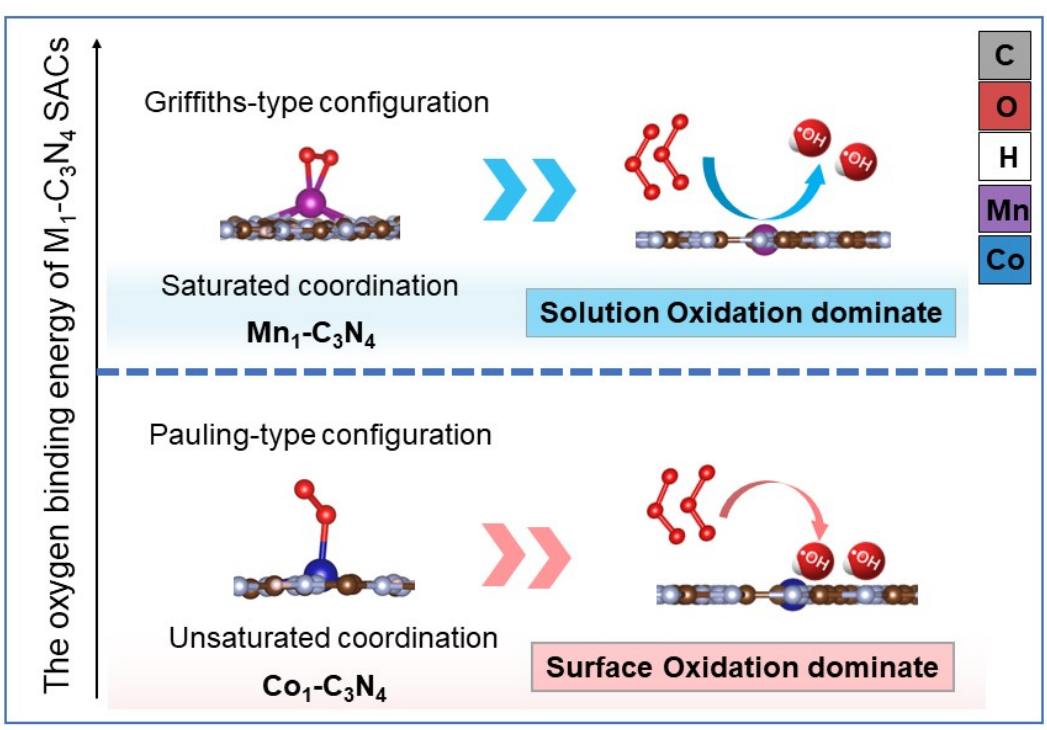
本文原地址：https://www.iikx.com/news/progress/21393.html

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！

单原子界面活化臭氧机理研究获进展。
催化臭氧氧化是深度去除废水中有机污染物的有效方法，但其界面催化机理尚不明确。近日，中科院过程工程研究所研究员曹宏斌团队开发了一系列石墨相氮化碳负载钴、锰、镍过渡金属的单原子催化剂，加速臭氧(O3)分解并产生高活性的羟基自由基(·OH)。基于密度泛函理论模拟和原位X射线吸收光谱，提出了单原子界面活化臭氧过程中中间产物吸附构型对·OH与污染物反应区间的影响。相关研究于近日发表在Environmental Science Technology 上。

有机废水污染严重威胁人类健康和生态平衡，高效削减外排废水中难降解有机物成为当前水污染治理面临的重大技术需求。基于原位生成的强氧化性·OH，催化臭氧氧化可去除工业废水中难降解有机污染物，催化活性位点的性质决定了O3活化的效率、产生·OH和其它活性氧的机理和动力学。但目前活性位点如何与O3作用以及·OH生成路径仍存在争议，限制了高效催化剂的开发与设计。此外，在水处理应用中，调控催化剂表面或本体溶液中的·OH反应区间可减少自由基无效猝灭，但决定·OH攻击污染物反应区间的催化剂确切性质仍然未知。

研究团队深入研究了一系列氮化碳负载单原子催化剂M1-C3N4(M=Co、Mn、Ni)活化臭氧的机理。实验结果发现，MN4位点上·OH生成的主要路径是O3→ Oads→ *OO→ ·O3- → ·OH，而M1-C3N4降解草酸的催化活性为Co1-C3N4>Mn1-C3N4>Ni1-C3N4。其中Ni1-C3N4活性最低，与活性位点上后续中间产物的低活性有关。Mn1-C3N4上氧结合能更高，因此中间产物*OO在金属原子上以Griffiths构型吸附，这种双Mn-O键导致Mn位点形成饱和配位，因此·OH主要在水溶液中攻击有机物。对CoN4位点而言，*OO在金属Co上的吸附以Pauling构型(单Co-O键)，不饱和配位的Co位点允许污染物的进一步吸附，因此·OH对草酸攻击可同时发生在Co1-C3N4表面和主体水溶液中，这是其催化臭氧氧化性能优于Mn1-C3N4的原因。



不同MN4位点上O3活化中间产物吸附构型及相应的·OH氧化区间 图源自论文

博士生王静为论文第一作者，曹宏斌研究员为通讯作者。以上研究工作得到国家自然基金(51934006)和钒钛资源综合利用国家重点实验室(2021P4FZG04A)的支持。(来源：中国科学报 刘如楠)

相关论文信息：https://doi.org/10.1021/acs.est.2c06836

作者：曹宏斌等 来源：《环境科学与技术》

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