

可调电子自旋磁矩的水钠锰矿的合成及其对四环素的微波降解

Synthesis of birnessite with adjustable electron spin magnetic moments for the degradation of tetracycline under microwave induction

抗生素作为一种广泛用于人类和动物传染性疾病的预防、治疗以及作为动物的生长促进剂。随着全球抗生素使用量的不断增长，抗生素在为人类及动物健康发展做出巨大贡献的同时，也带来了日益严重的环境问题，我国已成为世界上抗生素污染最严重的国家。目前国内外现有的抗生素处理技术主要有常规法（絮凝、过滤等）、吸附法和高级化学氧化法等，但因成本高、耗能大及去除效率低等限制了相关处理技术的广泛应用。因此，研发针对抗生素污染高效处理的新技术、新材料，具有重要的理论和实践意义。近年来，微波技术因其快速、高效和无二次污染等特点被广泛应用于治理环境污染领域。氧化锰矿物是一种优良的微波吸收材料，在微波的协同作用下氧化锰矿物降解有机物的能力明显提高。有研究表明，水钠锰矿可在微波下有效降解四环素，并因水钠锰矿与微波强烈的相互作用使其表面温度急剧升高，可导致四环素的降解速率加快，但目前尚缺少基于晶体化学的微波损耗机制及其对微波降解影响规律的研究。因此，如何基于水钠锰矿多变的晶体结构和化学组成探讨其微波降解机理及其对四环素降解的促进作用至关重要。

最近，课题组通过合成可控自旋磁矩的水钠锰矿并用 X 射线衍射、高分辨率透射电子显微镜，X 射线光电子能谱、X 射线吸收精细结构光谱和微波网络分析仪研究了其物理和化学特性，基于晶体化学原理探讨了电子自旋磁矩对四环素微波降解性能的影响。该项研究亮点包括：

- 1.通过调控高锰酸钾的浓度制备出可控锰价态(II/III/IV)的水钠锰矿，水钠锰矿结构中含有更多高自旋磁矩的 Mn(II/III)可更有效实现四环素的降解；

2. 水钠锰矿在较低 pH 值、较高微波功率条件下对四环素的去除率最高。

- 3.微波作用可促进水钠锰矿结构中锰的循环氧化还原，进而促进了四环素的降解，同时氧化还原过程可促进水钠锰矿的再生，为废水处理的绿色化学提供了有效途径。

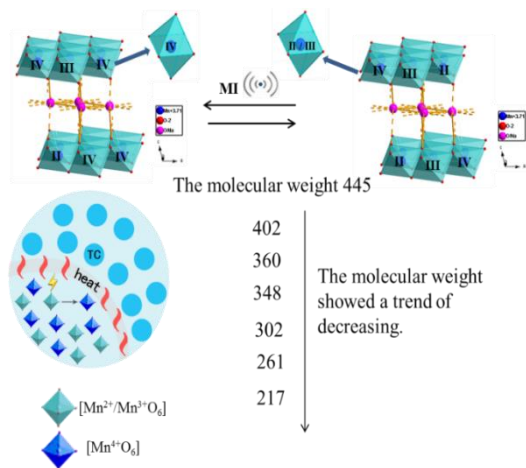


Fig. 1. Mechanism of TC degradation by Birn in the presence of MI

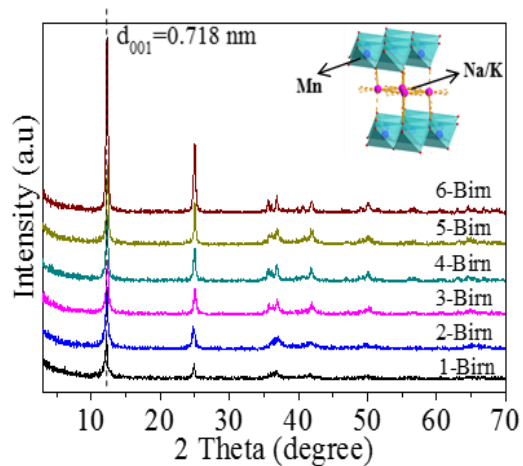


Fig. 2. XRD pattern of Birns after TC degradation under MI power of 600 W for 40 min

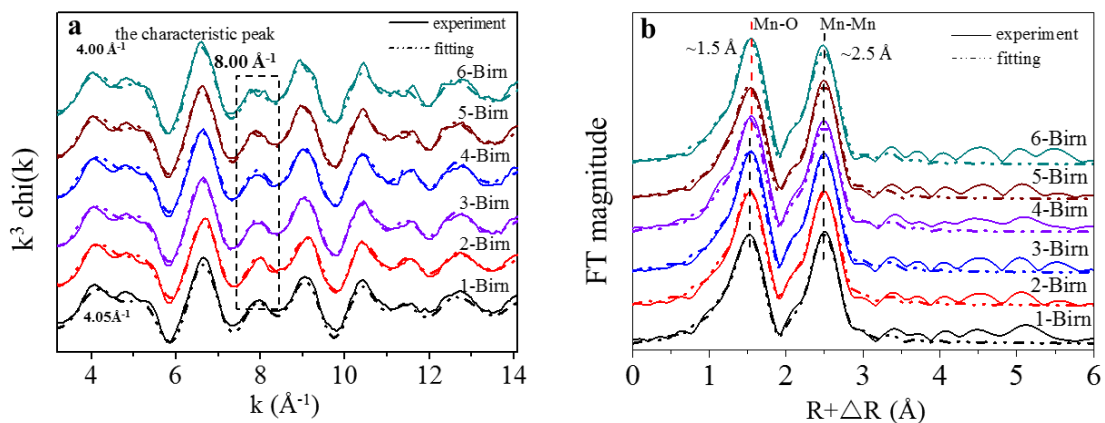


Fig. 3. Mn K-edge k^3 -weighted XAFS (a) and Fourier transformed spectra (b) of Birns. The solid and dashed lines are the experiment data and fitted results.

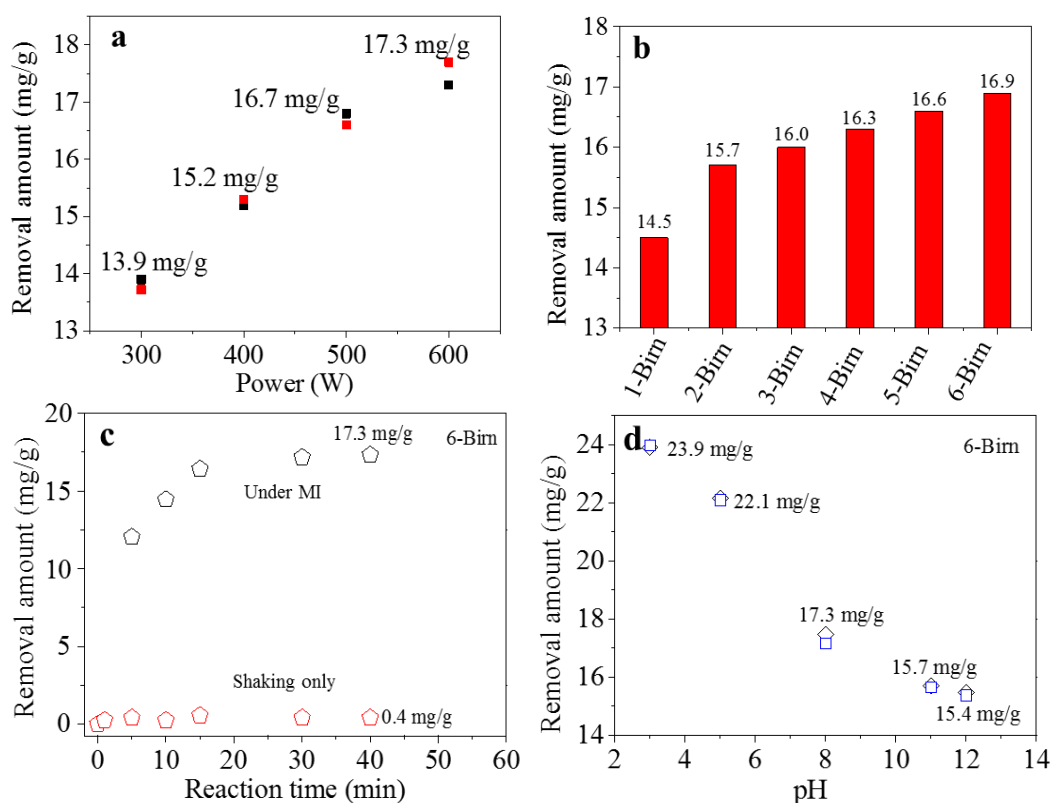


Fig. 4. TC removal by 6-Birn under different microwave powers (a), TC removal by different Birns under 600 W MI (b), TC removal under different MI time by 6-Birn in the absence and presence of 600 W MI (c) and TC removal under different equilibrium solution pH values by 6-Birn in the presence of 600 W MI for 30 min (d).

上述研究成果发表于国际著名期刊《Chemical Engineering Journal》上: Guocheng Lv, Xuebing Xing, Libing Liao*, Pengfei An, Hui Yin, Lefu Mei, Zhaohui Li*. Synthesis of birnessite with adjustable electron spin magnetic moments for the degradation of tetracycline under microwave induction. Chemical Engineering Journal, 2017, 326: 329-338.