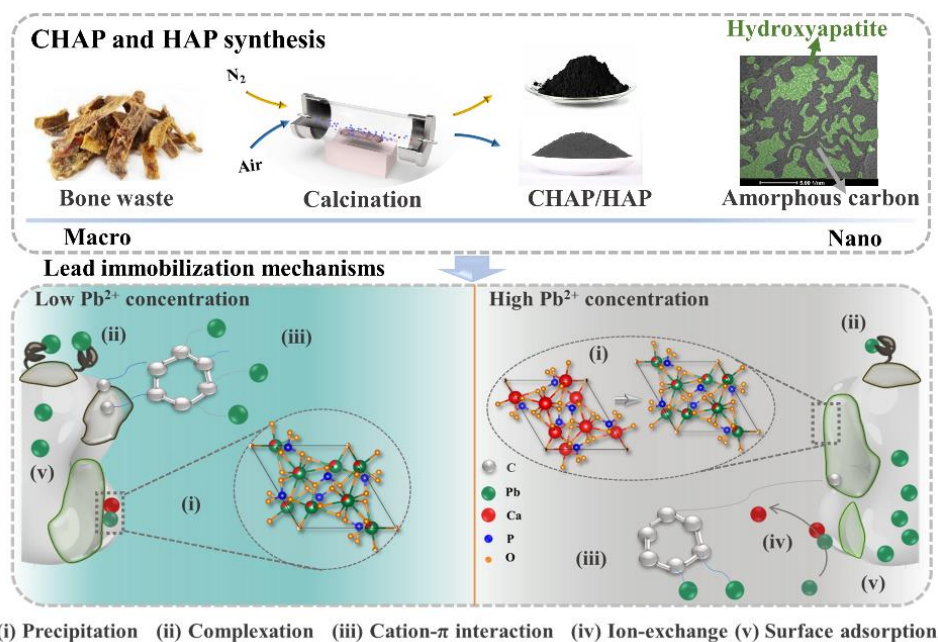


牛骨合成的碳/羟基磷灰石复合材料固定高、低浓度铅的机理研究



【图文摘要】

使用牛骨合成一种新材料——碳/羟基磷灰石复合材料，将其与高、低初始浓度的铅溶液和反应，通过结构精修的方式计算机理中沉淀以及离子交换的贡献，通过合理的计算将机理的各个部分贡献以百分比的形式展现出来。确定碳/羟基磷灰石与高低浓度铅的去除机理并比较固定机理的差异。

【研究背景】

矿物冶炼废水中重金属铅的急性毒性和生物积累是一个长期存在的环境问题，且由于铅是矿山尾矿和地下水中常见的重金属，对环境和人类的影响往往是不可逆转的。羟基磷灰石是一种与铅具有高度亲和力的无污染的矿物材料，被用来去除铅的研究甚多，但是研究人员对羟基磷灰石或者碳的碳/羟基磷灰石除铅机理有不同的看法。影响羟基磷灰石除铅能力的一个重要因素是铅溶液的初始浓度，因此造成除铅机理争议的可能原因是学者们使用的铅浓度不同。

【成果简介】

针对上述科学问题，课题组通过对牛骨的热解合成了一种具有优异脱铅效果的含碳羟基磷灰石（CHAP），并结合 XRD Rietveld、FTIR、XPS、HRTEM 等方法，进一步研究了 CHAP 在高、低初始铅浓度下的去除机理。结果表明：在较低初始铅浓度条件下，CHAP 去除铅的主要机理是化学沉淀(94.1%)，铅与碳官能团的络合作用和阳离子- π 在 CHAP 中非晶碳上的相互作用以及沉淀的表面吸附作用贡献较小；在初始铅浓度较高的条件下，化学沉淀仍然是主要的去除机制(74.68%)，但其他三种机制的贡献有所增加，并且在去除过程的后期出现了离子交换。本研究对不同初始铅浓度下 CHAP 对铅的去除机理提供了新的见解。相关的研究成果发表在《Science of the Total Environment》上。

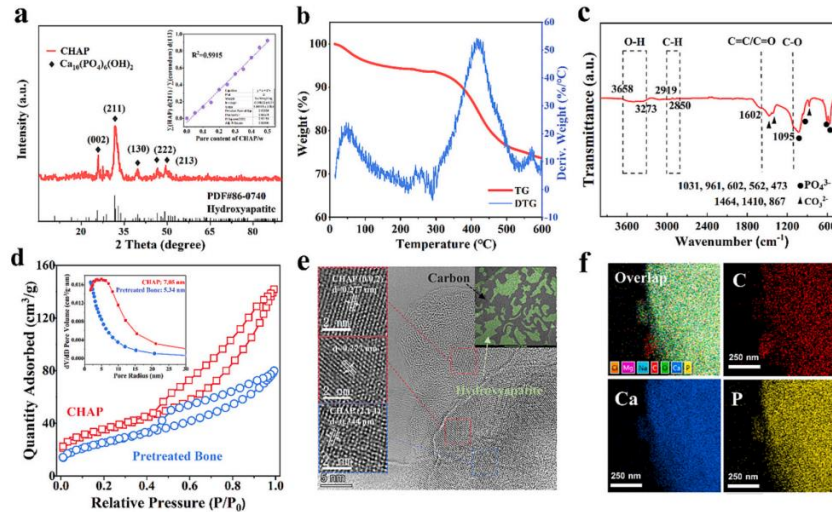


图 1 CHAP 样品的表征:(a) XRD 谱图和内标法定量物相分析;(b) CHAP 样品的热重分析;(c) CHAP 的 FT-IR 光谱(d)CHAP 样品的 N₂ 吸附/解吸等温线和孔径分布;(e) TEM 图像, 无定形碳与羟基磷灰石在 CHAP 中的位置关系, 绿色代表羟基磷灰石;(f) CHAP 的元素映射。

【主要结论】

在本研究中, 将牛骨在空气中 300°C 预处理, 然后在氮气气氛中 500°C 热解, 制备了含 18% 无定形碳的碳/羟基磷灰石(CHAP)。CHAP 对铅具有良好的去除能力。通过 XRD、Rietveld 精修、TEM、FITR、XPS 等对 CHAP 及其与铅的反应产物进行分析, 探讨了低、高浓度下铅的去除机理。在低铅浓度下, CHAP 去除铅的机理包括化学沉淀、官能团络合和阳离子- π 在非晶碳上的相互作用以及沉淀的表面吸附。在高铅浓度下, 化学沉淀在反应初期也起着重要作用, 而后期官能团络合、无定形碳上阳离子- π 相互作用和沉淀表面吸附等机制增强, 并发生离子交换与其他含羟基磷灰石或碳的吸附剂相比, 本研究制备的碳/羟基磷灰石能充分发挥碳和羟基磷灰石的优势。与其他含羟基磷灰石或含碳的吸附剂相比, 本研究制备的 CHAP 能充分发挥碳和羟基磷灰石的优势, 有望在铅污染废水和矿山尾矿浸出液的修复中得到实际应用。

本研究由国家自然科学基金重点项目: 多金属矿山尾矿渗滤液复杂污染物的原位修复及机理研究 (No. 41831288) 资助。

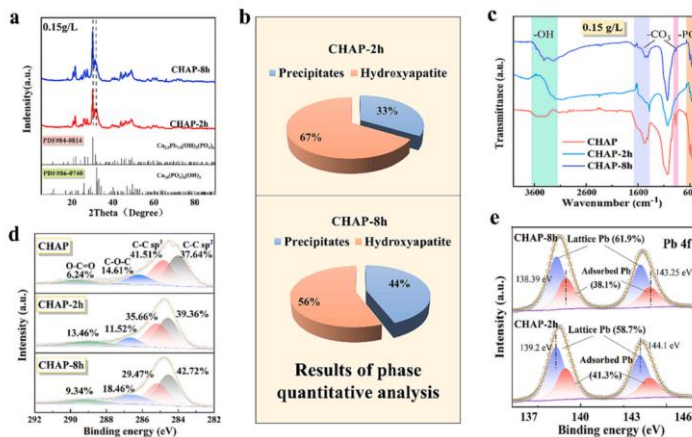


图 2 (a)低初始浓度下 CHAP 及其与 Pb²⁺ 反应 2 h 和 8 h 的产物的 XRD 谱图, (b)固相含量, (c) FTIR 谱图, (d, e) C1s 和 Pb 的 4f 谱图。

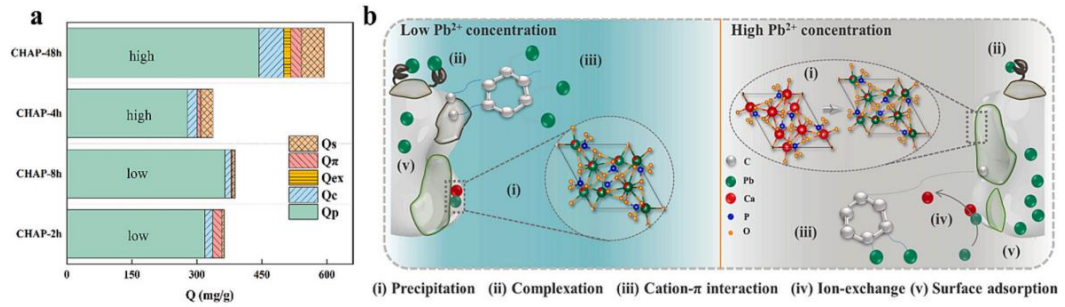


图 3 (a)低、高铅浓度下 CHAP 去除的不同机制的贡献。(b)高、低浓度下 CHAP 对铅的去除机理示意图。

【论文链接】

Qihui Yu, Hao Liu, Guocheng Lv, Xin Liu, Lijuan Wang, Libing Liao. Mechanistic insight into lead immobilization on bone-derived carbon/ hydroxyapatite composite at low and high initial lead concentration. *Science of the Total Environment*, 2023, 900: 165910.

原文链接: <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2023.165910>