理论计算评价光催化剂 VOCs 降解性能: g-C₃N₄ 量子点/石墨烯

杨金龙

中国科学技术大学化学与材料科学学院, 合肥 230026

Evaluation Procedure of Photocatalysts for VOCs Degradation Based on Density Functional Theory: g-C₃N₄ Dots/Graphene

Jinlong Yang

School of Chemistry and Materials Science, University of Science and Technology of China, Hefei 230026, China.

Email: jlyang@ustc.edu.cn

Published online: November 18, 2020.

理论计算评价光催化剂降解 VOCs 的性能流程。

挥发性有机污染物VOCs是典型的大气污染物,对气体环境和人体健康产生严重的影响¹。因此,控制VOCs在大气中的排放刻不容缓²。目前利用光催化剂降解污染物来有效控制VOCs的技术手段吸引了研究者的广泛关注³。

虽然在实验过程中已采用多种技术手段去研究高效光催化剂,并了解对应的催化机理⁴。但对于从电子和原子水平深入剖析光催化机理,依然具有极大的挑战。而基于第一性原理的密度泛函理论(DFT)计算能够很好的解决这一问题⁵。但目前来说,从DFT计算角度来评价光催化降解污染物性能和机理的方法一直没有被系统的总结,使得光催化剂在电子和原子水平的研究参差不齐。

类石墨氮化碳g-C₃N₄作为一种二维非金属光催化剂具有与众不同的电学性质,良好的热导性能,丰富的表面积,容易合成等优点^{4,6}。但其带隙

相对较大,电子空穴对复合率高,氧化能力弱不易生成电子空穴对限制了实际应用⁷。因此,相对性质更突出的g-C₃N₄量子点便成了众多研究者的关注热点⁸。

近日,广东工业大学环境科学与工程学院敖志敏教授团队考虑石墨烯优异的导电性能,推测石墨烯能够加速g-C₃N₄量子点电子空穴对的迁移,降低复合率,于是以g-C₃N₄量子点/石墨烯为例,从理论计算的角度提出了一种评价光催化剂性能和机理的方法。众所周知,光催化降解有机污染物主要是利用光激发生成的电子空穴对去活化吸附在催化剂表面的水,氧气以及其他的氧化物,使其生成羟基自由基和超氧离子自由基,并利用这些自由基使污染物降解为更为清洁的二氧化碳和水⁶。因此,提出以下几点评价过程:①能带结构、价导带位置以及光吸附利用率,以此判断光

生电子空穴对效率; ②对水、氧气以及其他氧化物的吸附性能, 判断活性自由基的生成情况; ③对污染物的吸附能力; ④降解污染物的反应路径, 得出降解性能。与此同时, 敖志敏教授团队还阐述了一种新颖的电子跃迁机制, 为合理的从DFT计算角度评价光催化剂性能和机理提供了有效指导。

上述研究工作近期在 *Journal of Materials Chemistry A* 期刊上在线发表⁹。该工作不仅总结了在理论计算方面评价光催化剂性能和机理的方法, 同时还表明g-C₃N₄量子点/石墨烯可以提高可见光利用率来有效生成光生电子对, 促进羟基自由基和超氧离子自由基的生成, 作用于光催化降解VOCs。重要的是, 电子从量子点价带经过石墨烯这个跳板, 跃迁到量子点的导带上, 在提高可见光利用率的同时, 抑制了光生电子空穴对的复合。

References

- (1) Liu, B.; Zhao, W.; Jiang, Q.; Ao, Z.; An, T. *Sustainable Mater. Technol.* **2019**, *21*, e00103. doi: 10.1016/j.susmat.2019.e00103
- (2) Liotta, L. F. *Appl. Catal. B* **2010**, *100*, 403. doi: 10.1016/j.apcatb.2010.08.023
- (3) Ao, Z.; Sun, H.; Fullana, A. *Front. Chem.* **2019**, *7*, 75. doi: 10.3389/fchem.2019.00075
- (4) Duan, X.; Ao, Z.; Sun, H.; Indrawirawan, S.; Wang, Y.; Kang, J.; Liang, F.; Zhu, Z. H.; Wang, S. *ACS Appl. Mater. Interfaces* **2015**, *7*, 4169. doi: 10.1021/am508416n
- (5) Ye, X.; Ma, S.; Jiang, X.; Yang, Z.; Jiang, W.; Wang, H. *Chin. Chem. Lett.* **2019**, *30*, 2123. doi: 10.1016/j.cclet.2019.09.043
- (6) Wu, M.; He, X.; Jing, B.; Wang, T.; Wang, C.; Qin, Y.; Ao, Z.; Wang, S.; An, T. *J. Hazard. Mater.* **2020**, *384*, 121323. doi: 10.1016/j.jhazmat.2019.121323
- (7) Wu, M.; Lv, H.; Wang, T.; Ao, Z.; Sun, H.; Wang, C.; An, T.; Wang, S. *Catal. Today* **2018**, *315*, 205. doi: 10.1016/j.cattod.2018.01.019
- (8) Wang, T.; Nie, C.; Ao, Z.; Wang, S.; An, T. *J. Mater. Chem. A* **2020**, *8*, 485. doi: 10.1039/C9TA11368A
- (9) Jing, B.; Ao, Z.; Zhao, W.; Xu, Y.; Chen, Z.; An, T. *J. Mater. Chem. A* **2020**, *8*, 20363. doi: 10.1039/d0ta06060g