

تولید کربن نیتريد گرافیتی جهت حذف فوتوکالیستی آلاینده‌های رنگی و دارویی

فاطمه حیاتی^{۱*}، علی احمدپور^{۲،*}، طاهره روحانی بسطامی^۳

گروه مهندسی شیمی، دانشگاه فردوسی مشهد

پژوهشکده نفت و گاز، دانشگاه فردوسی مشهد

* نویسنده ارائه کننده: fatemehayati@mail.um.ac.ir

** نویسنده مسئول مکاتبات: ahmadpour@um.ac.ir

چکیده

امروزه آلودگی منابع آبی که به دلیل فعالیت‌های انسانی مختلف ایجاد می‌شود، مشکلات مهمی را برای سلامت انسان و محیط زیست به وجود آورده است. کمبود آب و خطرات ناشی از آلاینده‌های موجود در آب‌های آلوده، باعث شده است که نیاز ضروری برای حذف آن‌ها وجود داشته باشد. در همین راستا، کربن نیتريد گرافیتی به عنوان یک فوتوکالیست تحت نور مرئی از ماده اولیه اوره و به روشی آسان و اقتصادی تهیه گردید. توانایی این ماده برای حذف فوتوکالیستی آلاینده‌های دارویی افلوکساسین، ایبوپروفن، مترونیدازول و آلاینده رنگی رودامین ب مورد بررسی قرار گرفت. نتایج آزمایشات انجام شده نشان می‌دهد که فعالیت فوتوکالیستی کربن نیتريد گرافیتی برای حذف آلاینده‌های مختلف به ترتیب عبارت است از: رودامین ب < افلوکساسین < ایبوپروفن < مترونیدازول.

واژه‌های کلیدی: کربن نیتريد گرافیتی، فوتوکالیست، آلاینده، رودامین ب، افلوکساسین، ایبوپروفن، مترونیدازول

۱- مقدمه

- ۱- دانشجوی کارشناسی ارشد مهندسی شیمی، دانشکده مهندسی، دانشگاه فردوسی، مشهد، ایران
- ۲- استاد گروه مهندسی شیمی، دانشکده مهندسی، دانشگاه فردوسی، مشهد، ایران
- ۳- دانشیار گروه مهندسی شیمی، دانشکده مهندسی، دانشگاه صنعتی قوچان، ایران

آلودگی‌های ناشی از فعالیت‌های انسانی در سراسر جهان مشکلات زیست محیطی مهمی را به وجود آورده است و در صورتی که اقدامات مناسب اتخاذ نشود، پیامدهای آن افزایش خواهد یافت. یکی از مهم‌ترین مسائل در این زمینه حضور ترکیبات دارویی در سیستم‌های آب طبیعی و زیرزمینی است. این آلاینده‌ها که معمولاً در غلظت‌های ppm یا حتی ppb حضور دارند، به دلیل آزاد سازی فاضلاب‌های صنعتی و همچنین دفع داروهای متابولیزه نشده به وسیله ادرار و مدفوع انسان و حیوان، به محیط زیست وارد می‌شوند. در میان این آلاینده‌های دارویی متداول‌ترین ترکیبات، آنتی بیوتیک‌ها و داروهای ضدالتهاب غیراستروئیدی هستند [۱].

از طرف دیگر، آلودگی منابع آب توسط مولکول‌های آلی به طور عمده به دلیل اینکه بسیاری از این مولکول‌ها به راحتی به وسیله روش‌های رایج تصفیه فاضلاب تخریب نمی‌شوند، به یک مشکل در حال رشد تبدیل شده است. این مشکل با توسعه صنعت نساجی افزایش یافته است چرا که بسیاری از آلاینده‌ها، رنگی‌هایی هستند که توسط آن‌ها استفاده می‌شوند. علاوه بر ایجاد آلودگی بصری، این نوع از آلاینده‌ها سطوح بالایی از سمیت، مقاومت در برابر تخریب و تجزیه ناپذیری زیستی را نیز به همراه دارند [۲].

در میان تلاش‌های مختلف برای کشف روش‌ها و منابع انرژی پایدار، روش فوتوکاتالیستی به عنوان یکی از جذاب‌ترین و امیدوارکننده‌ترین روش‌ها در نظر گرفته شده است تا به طور مستقیم انرژی خورشیدی تجدیدپذیر را برای تولید انرژی سبز و پایدار و طیف وسیعی از کاربردهای محیط زیستی دریافت، تبدیل و ذخیره نماید. فوتوکاتالیست‌های ناهمگن که در نیمه رساناهای پودری رخ می‌دهند به طور گسترده در زمینه‌های مختلفی مانند شکافت آب، اصلاح محیط زیست، احیای کربن دی‌اکسید و غیره مورد استفاده قرار گرفته‌اند.

در طی دهه‌های گذشته فوتوکاتالیست‌های مختلفی استفاده شده‌اند، اما در بین آن‌ها TiO_2 به عنوان پرکاربردترین فوتوکاتالیست، سه پنجم کل پژوهش‌های انجام شده در زمینه فوتوکاتالیست‌های ناهمگن را به خود اختصاص داده است. با این وجود پهنای باند بزرگ این ماده (3.2 eV) استفاده از طیف گسترده نور خورشید را محدود می‌سازد، بنابراین منجر به بازده کوانتومی بسیار پایین‌تری در استفاده از طیف خورشیدی می‌شود. تاکنون هیچ‌گونه ماده‌ای نتوانسته تمامی الزامات مانند بازده کوانتومی نور مرئی بالا، پایداری، ایمنی و ارزانی را به طور همزمان داشته باشد. بنابراین به منظور برطرف کردن این چالش‌ها، جستجو برای مواد نیمه رسانای تحت نور مرئی جدید و سپس ساخت سیستم‌های موثر برای تامین انرژی و اصلاح محیط زیست به شدت مورد نیاز است.

کربن نیتريد گرافیتی به عنوان یک نیمه رسانای عاری از فلز، خواص امیدبخش بسیاری مانند خواص الکتریکی، نوری، ساختاری و فیزیکوشیمیایی منحصر به فردی دارد که باعث می‌شود این مواد به عنوان گروه جدیدی از نانومواد چندمنظوره برای استفاده در کاربردهای الکتریکی، کاتالیستی و انرژی شناخته شوند. امروزه،

نانوساختارهای مبتنی بر کربن نیتريد گرافیتی به عنوان يك گزینه ایده آل برای کاربردهای فوتوکاتالیستی مختلف در حوزه محیط زیست و انرژی مانند تخریب آلاینده‌ها مورد استفاده قرار می‌گیرند [۳]. هدف از انجام این پژوهش، تولید کربن نیتريد گرافیتی به روشی آسان و اقتصادی، به منظور بررسی توانایی آن در حذف فوتوکاتالیستی آلاینده‌های دارویی مختلف مانند مترونیدازول، افلوکساسین و ایبوپروفن و همچنین آلاینده رنگی رودامین ب است.

۲- بخش تجربی

۲-۱- روش سنتز کربن نیتريد گرافیتی

کربن نیتريد گرافیتی به روشی آسان و با استفاده از ماده اولیه ارزان قیمت اوره تهیه گردید. بدین منظور مقدار ۱۰ گرم اوره داخل بوته چینی ریخته و روی بوته با فویل پوشانده شد و سپس درپوش روی آن قرار گرفت. در ادامه، بوته در کوره تحت حرارت قرار گرفت به نحوی که در طول دو ساعت دما به ۵۵۰ درجه سانتیگراد برسد. در شکل ۱ کربن نیتريد گرافیتی تولید شده به این روش نمایش داده شده است.



شکل ۱- کربن نیتريد گرافیتی تهیه شده

۲-۲- روش انجام آزمایش

در این پژوهش، برای انجام آزمایشات حذف فوتوکاتالیستی از دستورالعمل زیر استفاده گردید. ابتدا ۵۰ میلی‌لیتر از محلول آلاینده (افلوکساسین، مترونیدازول، ایبوپروفن و رودامین ب) با غلظت ۵ ppm داخل راکتور ریخته شد. سپس ۰/۰۵ g از کربن نیتريد گرافیتی به آن اضافه گردید. به منظور رسیدن به تعادل جذب-دفع،

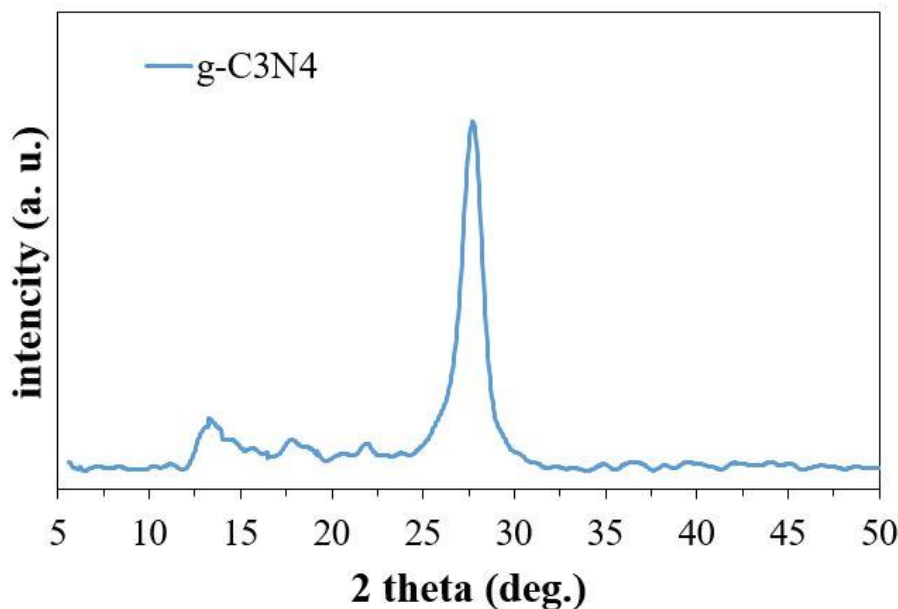
سوسپانسیون حاصله به مدت ۶۰ دقیقه در تاریکی هم زده شد. سپس به مدت ۱۲۰ دقیقه نیز در معرض تابش نور (لامپ زنون) قرار گرفت تا فرآیند حذف فوتوکاتالیستی انجام شود. به هنگام تابش نور و در بازه‌های زمانی نیم ساعته، نمونه‌های ۵ میلی‌لیتری از سوسپانسیون برداشته شده و با استفاده از سانتریفیوژ، فوتوکاتالیست موجود در نمونه از محیط آبی خارج گردید. غلظت آلاینده‌های مختلف موجود در محلول توسط روش طیف سنجی ماوراء بنفش - مرئی تعیین شد. میزان درصد حذف فوتوکاتالیستی آلاینده‌ها نیز با استفاده از معادله زیر محاسبه شد:

$$Removal(\%) = \frac{C_0 - C_t}{C_0} \times 100 \quad (1)$$

که در آن C_0 غلظت اولیه محلول آلاینده و C_t غلظت محلول در زمان t است.

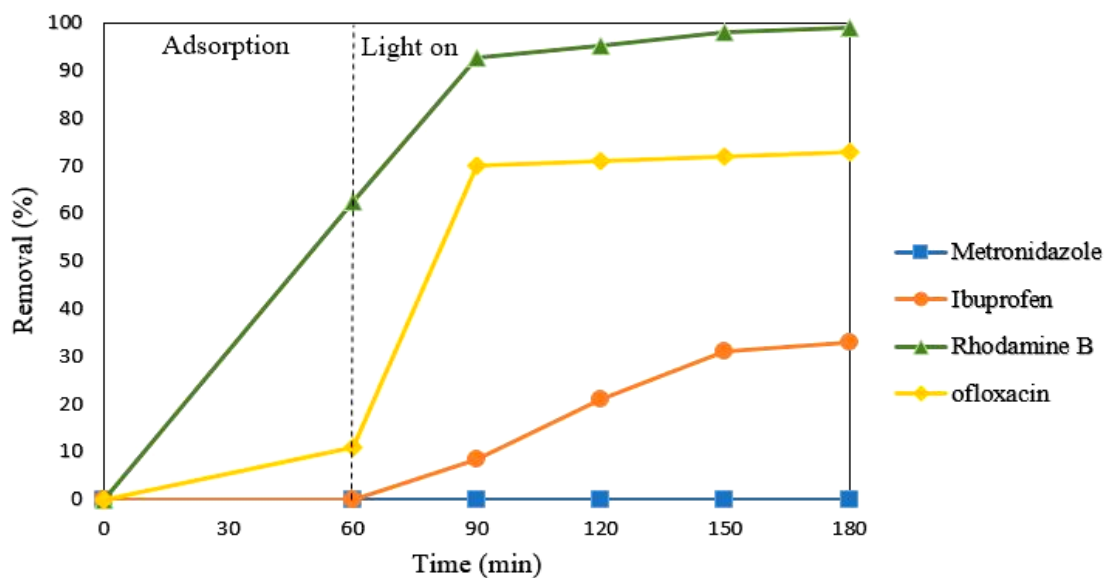
۳- بحث و نتایج

نتایج بدست آمده از آنالیز XRD که در شکل ۲ ارائه شده است، نشان می‌دهد که کربن نیتريد گرافیتی با موفقیت تولید شده است. این ماده دارای دو پیک قوی و ضعیف در 2θ در $13/1^\circ$ و $27/7^\circ$ است که به ترتیب به صفحات (۰۰۲) و (۱۰۰) مربوط هستند. پیک مشاهده شده در $2\theta = 27/7^\circ$ مربوط به فاصله بین لایه‌ای و پیک موجود در $2\theta = 13/1^\circ$ مربوط به شکل‌گیری درون صفحه‌ای واحدهای هپتازین است [۴].



شکل ۲- طیف پراش اشعه ایکس کربن نیتريد گرافیتی تهیه شده

نتایج حاصل از آزمایشات حذف فوتوکاتالیستی با استفاده از کربن نیتريد گرافیتی به عنوان فوتوکاتالیست در شکل ۳ نمایش داده شده است. همان‌طور که مشاهده می‌شود، این ماده بعد از ۱۲۰ دقیقه تابش میزان حذف ۹۹، ۷۳، ۳۳ و ۰ درصد را برای آلاینده‌های رودامین ب، افلوکسازین، ایبوپروفن و مترونیدازول نشان می‌دهد. لازم به ذکر است تعیین غلظت آلاینده‌ها با استفاده از روش طیف سنجی ماوراء بنفش - مرئی، در طول موج بیشینه ۲۲۰، ۳۲۰، ۲۸۷ و ۵۵۴ نانومتر برای ایبوپروفن، مترونیدازول، افلوکسازین و رودامین ب انجام گردیده است.



شکل ۳- تغییرات درصد حذف آلاینده‌های مختلف با زمان

۴- نتیجه‌گیری

در این پژوهش کربن نیتريد گرافیتی با روش تراکم حرارتی اوره تهیه گردید. سپس از آن برای حذف فوتوکاتالیستی آلاینده‌های مختلف استفاده شد. همان‌طور که نتایج نشان می‌دهد، این ماده توانایی خوبی برای حذف آلاینده رنگی رودامین ب و آلاینده دارویی افلوکسازین دارد. در مورد سایر آلاینده‌ها نیز می‌توان با بهبود خواص کربن نیتريد گرافیتی از طریق تهیه کامپوزیت‌های مختلف، به درصد‌های بالاتری از حذف رسید.

مراجع

- [1] D.B. Hernández-Uresti, A. Vázquez, D. Sanchez-Martinez, S. Obregón, Performance of the polymeric g-C₃N₄ photocatalyst through the degradation of pharmaceutical pollutants under UV-vis irradiation, *Journal of Photochemistry and Photobiology A: Chemistry*. 324 (2016) 47-52.
- [2] E.T. Soares, M.A. Lansarin, C.C. Moro, A study of process variables for the photocatalytic degradation of rhodamine B, *Brazilian Journal of Chemical Engineering*. 24(1) (2007) 29-36.



[3] J. Wen, J. Xie, X. Chen, X. Li, A review on g-C₃N₄-based photocatalysts, Applied surface science. 391 (2017) 72-123.

[4] F. Dong, L. Wu, Y. Sun, M. Fu, Z. Wu, , S.C. Lee, Efficient synthesis of polymeric gC 3 N 4 layered materials as novel efficient visible light driven photocatalysts, Journal of Materials Chemistry. 21(39) (2011) 15171-15174.

تمایل دارم این مقاله را در بخش پوستر شفاهی ارائه نمایم.

Preparation of graphitic carbon nitride for photocatalytic removal of dye and pharmaceutical pollutants

Fatemeh Hayati, Ali Ahmadpour*, Tahereh Rohani Bastami

Presentor E-mail: fatemehayati@mail.um.ac.ir

Corresponding Author E-mail: ahmadpour@um.ac.ir

Abstract

Nowadays, pollution of water resources caused by various anthropogenic activities has created significant problems for human health and the environment. Because of the water scarcity and hazards due to the pollutants in contaminated water there is an urgent need for removing them. In this regard, graphitic carbon nitride as a visible-light-driven photocatalyst was prepared from urea via a facile and cost-efficient method. Its capability for photocatalytic removal of pharmaceutical pollutants ofloxacin, ibuprofen, metronidazole and dye pollutant rhodamine B was investigated. The results of experiments show that the photocatalytic activity of graphitic carbon nitride for removal of various pollutants is in the following sequence: rhodamine B > ofloxacin > ibuprofen > metronidazole.

Keywords: Graphitic carbon nitride, Photocatalyst, pollutant, Rhodamine B, Ofloxacin, Ibuprofen, Metronidazole