

Article Type

Applied Article

نوع مقاله

بژوهش کاربردی

Photocatalytic Degradation of Escherichia coli Bacteria by Graphitic Carbon Nitride: A Comparative Study under Visible Light and Dark Conditions in Aqueous Solutions

A. Nadi¹, M. Bijari², R. Dehghan³, A. Shahbazi^{4*}

1,2,3,4- M.Sc. Student, Ph.D. Student, and Ph.D. Graduate in Environmental Science and Engineering, and Associate Professor, Environmental Sciences Research Institute, Shahid Beheshti University, Tehran, Iran.

Corresponding Author Email: a_shahbazi@sbu.ac.ir

Received ➤ 19-08-2024
Revised ➤ 04-12-2024
Accepted ➤ 22-12-2024
Available Online ➤ 17-06-2025

بررسی عملکرد فتوکاتالیستی کربن نیترید گرافیتی به منظور تخریب باکتری اشریشیا کلی در شرایط مقایسه‌ای نور مرئی و تاریکی از محلول‌های آبی

آدین نادی^۱، مهران بیجاری^۲، ریحانه دهقان^۳، افسانه شهبازی^{۴*}

۱، ۲، ۳ و ۴- به ترتیب دانشجوی کارشناسی ارشد، دانشجوی دکتری و دانش‌آموخته دکتری علوم و مهندسی محیط‌زیست و دانشیار، پژوهشکده علوم محیطی، دانشگاه شهید بهشتی، تهران، ایران.

رایانامه نویسنده مسئول: a_shahbazi@sbu.ac.ir

تاریخ دریافت ➤ ۱۴۰۳/۰۵/۲۹
تاریخ بازنگری ➤ ۱۴۰۳/۰۹/۱۴
تاریخ پذیرش ➤ ۱۴۰۳/۱۰/۰۲
تاریخ انتشار ➤ ۱۴۰۴/۰۳/۲۷

Abstract

چکیده

Microbial disinfection of water involves the inactivation or removal of pathogenic microorganisms. Conventional methods for microbial water disinfection include chemical oxidation using various oxidants such as chlorine, chlorine dioxide, chloramine, and ozone, as well as ultraviolet radiation. Among these, advanced oxidation and photocatalytic disinfection using semiconductor nanomaterials have emerged as a novel approach for eliminating pathogenic bacteria from aqueous solutions. This study aims to investigate the photocatalytic removal of Escherichia coli (E.coli) bacteria using a graphitic carbon nitride photocatalyst synthesized from melamine as a precursor. The synthesis of the photocatalyst was confirmed through X-ray diffraction (XRD), Brunauer-Emmett-Teller (BET) surface area analysis, Fourier-transform infrared spectroscopy (FTIR), photoluminescence (PL) spectroscopy, diffuse reflectance spectroscopy (DRS), and field emission scanning electron microscopy (FE-SEM). To evaluate the antibacterial performance of the synthesized photocatalysts, the disk diffusion assay and the determination of bacterial viability on solid media after the photocatalytic process were employed. The results demonstrated that the synthesized photocatalysts exhibited excellent removal efficiency against E.coli under visible light irradiation. Among them, graphitic carbon nitride synthesized at a temperature of 550°C and a nitrogen gas flow rate of 20 mL/min (CN-20) achieved complete removal of E.coli with an initial concentration of 10^7 CFU/mL within 4.5 hours under visible light irradiation.

Keywords: Graphitic Carbon Nitride, Photocatalyst, Disinfection, Escherichia Coli, Visible Light.

گندزدایی میکروبی آب به معنای غیرفعال کردن یا حذف میکروارگانیسم‌های بیماری‌زا است. روش‌های متداول و معمول تصفیه میکروبی آب همانند، اکسیداسیون شیمیایی با استفاده از اکسیدان‌های مختلف مانند کلر، دی‌اکسید کلر، کلرامین و ازن و حتی استفاده از تابش فرابنفش از روش‌های رایج حذف عوامل آلاینده هستند. در این میان، یکی از روش‌های نوین حذف باکتری‌های بیماری‌زا از محلول‌های آبی، روش اکسیداسیون پیشرفته و ضدعفونی کردن فتوکاتالیستی با استفاده از نانومواد نیمه‌هادی است. هدف از این مطالعه حذف فتوکاتالیستی باکتری اشریشیا کلی (E.coli) با استفاده از فتوکاتالیست کربن نیترید گرافیتی سنتز شده با پیش‌ماده ملامین است. صحت روش سنتز فتوکاتالیست‌ها با انجام آنالیزهای طیف‌سنجی پراش پرتو ایکس (XRD)، تخلخل‌سنجی (BET)، طیف‌سنجی مادون‌قرمز (FT-IR)، طیف‌سنجی فتولومینسانس (PL) و طیف‌سنجی بازتابی روبشی (DRS) و همچنین تصاویر میکروسکوپ الکترونی روبشی (FE-SEM) بررسی شد. در ادامه برای بررسی عملکرد آنتی‌باکتریال فتوکاتالیست‌های سنتز شده، از آزمایش دیسک دیفیوژن و بررسی میزان زنده‌مانی باکتری در محیط جامد بعد از اتمام فرایند فتوکاتالیستی، استفاده شد. طبق نتایج به‌دست‌آمده، فتوکاتالیست‌های سنتز شده در این مطالعه، دارای راندمان حذف مناسبی در برابر باکتری E.coli تحت تابش نور مرئی هستند که در میان آن‌ها کربن نیترید گرافیتی سنتز شده در دمای سنتز ۵۵۰ درجه سانتی‌گراد و نرخ جریان گاز N_2 به میزان ۲۰ mL/min (CN-20) موفق به حذف کامل باکتری E.coli در نمونه محلول آبی تهیه شده در محیط آزمایشگاه و با غلظت اولیه 10^7 CFU/mL در مدت ۴/۵ ساعت تحت تابش نور مرئی شد. **واژه‌های کلیدی:** کربن نیترید گرافیتی، فتوکاتالیست، ضدعفونی کردن، اشریشیا کلی، نور مرئی.

HomePage: <https://jwsd.um.ac.ir>

How to cite this article: Nadi, A., Bijari, M., Dehghan, R. & Shahbazi, A. (2025). Photocatalytic Degradation of Escherichia coli Bacteria by Graphitic Carbon Nitride: A Comparative Study under Visible Light and Dark Conditions in Aqueous Solutions. Journal of Water and Sustainable Development, 12(1), 14-25. <https://dx.doi.org/10.22067/jwsd.v12i1.2408-1357>

دسترسی به آب سالم یک اقدام کلیدی برای جلوگیری از بیماری‌های مختلف از جمله اسهال، عفونت‌های حاد تنفسی و بسیاری از بیماری‌های گوارشی است (Chen و همکاران، ۲۰۲۴). طبق گزارش سازمان جهانی بهداشت، مصرف آب آلوده به میکروارگانیسم‌ها باعث مرگ حدود ۸۲۹۰۰۰ نفر در سال می‌شود. انواع آلاینده‌های آب را می‌توان به ترکیبات معدنی (فلزات سنگین، نمک‌های محلول و اسیدها و بازها) و آلاینده‌های میکروبی (باکتری‌ها و ویروس‌ها) طبقه‌بندی کرد (Kadoya و همکاران، ۲۰۲۱). میکروارگانیسم‌های بیماری‌زا در آب آلوده مسئول انواع زیادی از بیماری‌ها هستند و انتظار می‌رود بیماری‌های منتقل شده از آب در آینده تهدید بزرگی برای سلامت عمومی باشند (Chan، ۲۰۱۷). علاوه‌براین، اپیدمی‌های عفونی ناشی از پاتوژن‌های موجود در آب، سلامت انسان‌ها را در سراسر جهان تهدید می‌کنند (Kadoya و همکاران، ۲۰۲۱). اشریشیاکلی (*E. coli*) یک باکتری گرم منفی میله‌ای شکل است که به‌عنوان شاخص آلودگی میکروبی آب شناخته می‌شود. این باکتری در روده انسان و حیوانات یافت می‌شود و در صورت ورود به آب آشامیدنی می‌تواند منجر به بیماری‌های مختلفی از جمله اسهال خونی، درد شکم، تهوع و استفراغ شود. علاوه‌براین، *E. coli* به دلیل مقاومت فزاینده به آنتی‌بیوتیک‌ها، نگرانی‌های فراوانی را به وجود آورده است. از این‌رو یافتن روش‌های جدید و مؤثر برای کنترل و از بین بردن این باکتری در محیط‌های آبی ضروری است.

روش‌های متداول و معمول تصفیه آب همانند، اکسیداسیون شیمیایی با استفاده از اکسیدان‌های مختلف مانند کلر، دی اکسید کلر، کلرامین و ازن و حتی استفاده از تابش فرابنفش از روش‌های رایج حذف آلاینده‌های میکروبی می‌باشند (Sabariselvan و همکاران، ۲۰۲۴). کلرزنی، با آسیب رساندن به ساختار سلولی میکروب‌ها و مهار فعالیت آنزیم‌های حیاتی آن‌ها، به عنوان یک روش ضدعفونی مؤثر شناخته می‌شود. با وجود مزایای اقتصادی و عملیاتی، این روش دارای محدودیت‌هایی از جمله تولید آلاینده‌های ثانویه همچون تری‌هالومتان‌ها (THMs)^۱ و خاصیت خوردگی است (Farid و همکاران، ۲۰۲۳). در فرایند تولید ازن، با صرف انرژی، پیوند مولکول اکسیژن شکسته شده و اتم‌های آزاد اکسیژن ایجاد می‌شوند. این اتم‌ها به سرعت با یکدیگر ترکیب شده و مولکول ناپایدار ازن را تشکیل می‌دهند (Yu و همکاران، ۲۰۲۰). ازن به دلیل داشتن خاصیت اکسیدکنندگی قوی، قادر به حذف آلاینده‌های موجود در آب است. این عملکرد از طریق

تولید رادیکال‌های آزاد اکسیژن انجام می‌شود که با واکنش با آلاینده‌ها، آن‌ها را تجزیه می‌کنند. با این حال وجود مواد جامد معلق در آب می‌تواند کارایی این روش را کاهش دهد. همچنین، هزینه بالای تولید و نگهداری تجهیزات ازن‌ساز، یکی از محدودیت‌های اصلی استفاده از این روش در تصفیه آب محسوب می‌شود (pule، ۲۰۱۶). ضد عفونی کردن آب به روش تابش ماوراء بنفش، با آسیب رساندن به ساختار ژنتیکی میکروارگانیسم‌ها و آلاینده‌ها، از تکثیر آن‌ها جلوگیری می‌کند. این روش به دلیل هزینه بالا، تجهیزات نامناسب و همچنین رقابت با روش کلرزنی، توسعه چندانی نیافته است. از محدودیت‌های اصلی این روش، گران بودن تجهیزات UV و سرطان‌زا بودن این اشعه است. علاوه‌بر این، کدورت آب می‌تواند مانع از نفوذ اشعه UV به میکروارگانیسم‌ها شده و کارایی ضدعفونی آب توسط اشعه UV را کاهش دهد (Hijnen و همکاران، ۲۰۰۶). همچنین، برخی از این روش‌ها دارای معایبی مانند تشکیل محصولات جانبی جهش‌زا و سرطان‌زا (DBPs)^۲ در حین فرایند ضدعفونی و هزینه‌های عملیاتی بالا هستند (Abdul Rasheed و همکاران، ۲۰۲۳). در سال‌های اخیر استفاده از انواع فرایندهای اکسیداسیون پیشرفته (AOPs)^۳، با استفاده از فتوکاتالیست‌ها به منظور تصفیه و گندزدایی آب به دلیل مزایایی از جمله، پایداری بالا، سازگاری با محیط زیست و سمی نبودن، حتمتبدیل به گزینه‌ای جذاب و کارآمد برای جایگزینی روش‌های سنتی ضدعفونی، در نظر گرفته می‌شود (Lin و همکاران، ۲۰۱۸). این فناوری شامل جداسازی و خالص‌سازی، اکسیداسیون و احیا، حذف باکتری و ضدعفونی می‌شود. فتوکاتالیست‌های متعددی از جمله CdS ، CeO_2 ، ZnO ، Ta_2O_5 ، Ga_2O_3 ، ZrO_2 ، TiO_2 ، WO_3 و Fe_2O_3 ، MoO_3 ، SnO_2 ، ZnS (Bijari و همکاران، ۲۰۲۴). این فتوکاتالیست‌ها تحت تابش نور، گونه‌های فعال اکسیژن (ROS)^۴ تولید می‌کنند که برای میکروارگانیسم‌ها کشنده هستند.

با اینکه فتوکاتالیست‌ها می‌توانند گونه‌های اکسیژن فعال (ROS) را برای حمله به غشای باکتری‌ها تحت تابش نور تولید کنند، مقدار زیادی ROS و زمان ماندگاری طولانی برای دستیابی به راندمان غیرفعال‌سازی کارآمد مورد نیاز است. علاوه‌براین، گونه‌های فعال می‌توانند به راحتی با اجزای موجود در آب واکنش دهند که باعث کاهش عمر و کارایی آن‌ها می‌شود و در نتیجه فعالیت باکتری‌کشی آن‌ها ضعیف می‌شود. بنابراین تولید و استفاده کارآمد از ROSها یک گام کلیدی در تعیین دستیابی به آب آشامیدنی سالم

با فناوری غیرفعال سازی باکتریایی فوتوکاتالیستی است (Zhong و همکاران، ۲۰۲۳). تاکنون نانومواد مختلفی برای از بین بردن آلاینده های میکروبی مورد استفاده قرار گرفته است. در این خصوص، در یک مطالعه از نانوکامپوزیت های Ag/TiO_2 و Ag/CuO به منظور از بین بردن باکتری های *E.coli* و *P.aeruginosa* استفاده کردند. آزمایش آنتی باکتریال در این پژوهش بر اساس روش ناحیه مهار انجام شد و نتایج نشان داد که نانوکامپوزیت Ag/TiO_2 فعالیت ضدباکتری بالاتری نسبت به نانوکامپوزیت Ag/CuO دارد (Rathi و همکاران، ۲۰۲۳). در مطالعه ای دیگر، از نانوذرات اکسید روی (ZnO) به منظور تخریب باکتری های باکتری های گرم مثبت (*S.aureus*) و گرم منفی (*E.coli*) استفاده کردند (El Khawaga و همکاران، ۲۰۲۳). نتایج آزمایش های ناحیه مهار و حداقل غلظت مهارکنندگی (MIC)^۵ نشان داد که نانوذرات اکسید روی (ZnO) اثرگذاری بیشتری بر روی باکتری گرم مثبت استافیلوکوکوس اورئوس (*S.aureus*) نسبت به باکتری گرم منفی اشیریشیا کلی (*E.coli*) دارد. در این مطالعه، بیشترین ناحیه مهار رشد برای *S.aureus* برابر با ۲۳/۱ میلی متر و کمترین غلظت مهارکنندگی آن ۰/۶۲۵ میکروگرم بر میلی لیتر اندازه گیری شد. در مقابل، این اعداد برای باکتری *E.coli* به ترتیب ۱۷ میلی متر و ۱/۲۵۰ میکروگرم بر میلی لیتر بودند (El-Khawaga و همکاران، ۲۰۲۳). با این حال فوتوکاتالیست های اکسید فلزی همچون TiO_2 و ZnO با وجود داشتن کارآمدی و عملکرد مناسب، بر خلاف فوتوکاتالیست های غیرفلزی، به دلیل داشتن فلز در ساختار خود و مشکلات محیط زیستی متعاقب آن، محبوبیت کمتری دارند. این فلزات خود می توانند سبب آلودگی آب در فرایند تصفیه شوند (Tabasum و همکاران، ۲۰۲۳). در مقابل نانوکامپوزیت های $g-C_3N_4$ به دلیل خواص فوتوکاتالیستی و ضد میکروبی قوی، می تواند یک گزینه مناسب برای تصفیه آب آلوده به *E.coli* باشد. کربن نیتريد گرافیتی با ساختاری شبیه گرافیت، از اتم های کربن و نیتروژن تشکیل شده و به دلیل ویژگی هایی همچون ساختار ۲ بعدی (2D)، پایداری شیمیایی و حرارتی بالا، عدم سمیت، سنتز آسان، قابلیت جذب آلاینده ها، خواص ضدباکتریایی و فعالیت فوتوکاتالیستی در محدوده نور مرئی به دلیل دارا بودن شکاف باندگپ ۲/۷ eV، توجه فزاینده ای را در حوزه های مختلف به خصوص تصفیه فاضلاب به خود جلب کرده است (Dousti و همکاران، ۲۰۲۴). با این حال $g-C_3N_4$ در حالت پایه و توده های (بالک) به دلیل محدودیت هایی مانند مساحت سطح پایین و نرخ بازترکیبی بالای الکترون-

حفره، کارایی پایینی در فرآیندهای فوتوکاتالیستی دارد. به طور کلی کربن نیتريد گرافیتی دارای خواص فیزیکوشیمیایی منحصر به فردی می باشد که با انجام آنالیزهای مختلف شناسایی می شوند. پیک (۱۰۰) در طیف XRD مربوط به ساختار کریستالی سطح CN بوده و با آرایش دوره ای ساختار هپتازین، که واحد ساختاری اصلی در لایه CN است، مطابقت دارد (Oluseun Akintunde و همکاران، ۲۰۲۳). پیک (۰۰۲) به فضای بین لایه ای واحد آروماتیک (تری اس-تری آزین) مربوط می شود و به دلیل وجود فضای انباشتگی در سیستم مزدوج آروماتیک شکل می گیرد (Ma و همکاران، ۲۰۱۹؛ Yang و همکاران، ۲۰۱۹؛ Xu و همکاران، ۲۰۲۰).

عدم وجود پیک های شاخص دیگر، نشان دهنده خلوص ترکیب سنتز شده است (Song و همکاران، ۲۰۱۸). کاهش مقادیر ۲۵، طبق قانون براگ، نشان دهنده افزایش فاصله بین لایه ای است (Du و همکاران، ۲۰۲۴).

طیف FT-IR اطلاعاتی در مورد گروه های عاملی، پیوندهای شیمیایی و ساختار کلی مولکول ارائه می دهد. به طور خلاصه ناحیه cm^{-1} ۸۰۰ تا ۹۰۰ به ارتعاشات خارج صفحه حلقه های تری آزین مربوط می شود. ناحیه cm^{-1} ۱۰۰۰ تا ۱۱۰۰ به ارتعاشات C-N در تری آزین ها و C-O در گروه های کربنیل مربوط می شود. ناحیه cm^{-1} ۱۳۵۰ تا ۱۲۰۰ به ارتعاشات کششی C-N در حلقه های تری آزین و همچنین ارتعاشات C-N-C مربوط می شود. ناحیه cm^{-1} ۱۵۰۰ تا ۱۳۵۰ به ارتعاشات خمشی C-N و C-C مربوط می شود. ناحیه cm^{-1} ۱۶۵۰ تا ۱۶۳۰ به ارتعاشات کششی C=N در حلقه های تری آزین مربوط می شود (Parasuraman و همکاران، ۲۰۲۳). ناحیه cm^{-1} ۱۷۰۰ تا ۱۶۵۰ به ارتعاشات کششی C=C مربوط می شود. ناحیه cm^{-1} ۲۳۰۰ تا ۲۲۰۰ به ارتعاشات کششی C-N مربوط می شود. ناحیه cm^{-1} ۳۵۰۰ تا ۳۴۰۰ به ارتعاشات کششی N-H و O-H مربوط می شود (Zhou و همکاران، ۲۰۱۶).

تصاویر FE-SEM^۶ از نانومواد کربن نیتريد گرافیتی، مورفولوژی این ذرات را مشخص می کنند. افزایش فواصل بین لایه ای، منجر به افزایش تعداد مکان های فعال و کاهش نرخ باز ترکیبی الکترون و حفره می شود. این امر در نهایت به بهبود عملکرد فوتوکاتالیستی می انجامد (Li و همکاران، ۲۰۱۷). آنالیز BET^۹ در مواد فوتوکاتالیستی مانند $g-C_3N_4$ ، اهمیت بالایی دارد. مساحت سطح بالا به معنای مکان های فعال بیشتر بر روی سطح $g-C_3N_4$ است (Zhang و همکاران، ۲۰۲۳). با افزایش سطح، نانوماده می تواند با آلاینده ها برهم کنش بیشتری داشته باشند (Stefa و همکاران، ۲۰۲۳).

آنالیز فوتولومینسانس (PL)^{۱۰} می‌تواند اطلاعات ارزشمندی در مورد جداسازی، مهاجرت و فرایند نوترکیبی جفت الکترون-حفره‌های تولید شده، ارائه دهد (Das و همکاران، ۲۰۲۰). شدت پیک به‌دست‌آمده در نمودار با نرخ بازترکیبی الکترون-حفره‌ها ارتباط مستقیم دارد، یعنی هرچه شدت بیشتر باشد، نرخ بازترکیبی در نمونه بالاتر است (Li و همکاران، ۲۰۱۸). ویژگی‌های نوری و توانایی جذب نور کربن نیتريد گرافیتی از طریق آنالیز DRS^{۱۱} تعیین می‌شود (Li و همکاران، ۲۰۲۱). انرژی باند گپ، یکی از معیارهای حائز اهمیت برای بررسی تشکیل جفت‌های الکترون-حفره القا شده توسط نور و انتقال آن‌ها است (Wang و همکاران، ۲۰۲۳). افزایش انرژی باند گپ به معنای کاهش نرخ بازترکیبی می‌باشد (Xu و همکاران، ۲۰۱۹).

در این پژوهش، برای نخستین‌بار تأثیر نرخ جریان گاز نیتروژن طی فرایند سنتز کربن نیتريد گرافیتی بر عملکرد فوتوکاتالیستی به‌منظور گندزدایی آب، بررسی شد. به این منظور کربن نیتريد گرافیتی با سه نرخ جریان گاز نیتروژن شامل ۲۰، ۴۰ و ۸۰ mL/min سنتز شد. در ادامه ویژگی‌های ساختاری فوتوکاتالیست‌های سنتز شده (مساحت سطح، خواص نوری و خصوصیات کریستالی) و عملکرد ضد میکروبی آن‌ها بررسی شد. پس از تعیین غلظت مناسب فوتوکاتالیست‌ها برای مهار رشد و یا از بین بردن باکتری، جهت اطمینان از کارایی ضدباکتریایی فوتوکاتالیست‌های سنتز شده، آزمایش‌های تکمیلی و کیفی انتشار در آگار (دیسک دیفیوژن) و بررسی زنده‌مانی باکتری‌ها در محیط جامد انجام گرفت.

مواد و روش‌ها

۱. آماده‌سازی نمونه‌ها و تعیین ویژگی‌های فوتوکاتالیست‌های سنتز شده

در این مطالعه برای سنتز فوتوکاتالیست‌های کربن نیتريد گرافیتی از پیش‌ماده ملامین (تهیه شده از شرکت Merck) و از روش پیرولیز حرارتی استفاده شد. به این منظور مقدار ۱۰ گرم از پیش‌ماده فوق به یک قایقک آلومینا منتقل شد. سپس قایقک در نوبت‌های مختلف در کوره لوله‌ای در دمای ۵۵۰ درجه سانتی‌گراد با نرخ افزایش دمای ۵ °C/min به مدت ۳ ساعت در اتمسفری از گاز نیتروژن حرارت داده شد. سه نانوماده مختلف در سه نوبت، با سه نرخ متفاوت از جریان عبوری گاز نیتروژن در داخل کوره تهیه شد. جریان گاز عبوری به ترتیب به میزان ۲۰، ۴۰ و ۸۰ mL/min تنظیم شد. نانومواد سنتز شده به ترتیب (CN-20)، (CN-40) و (CN-80) نام‌گذاری شدند.

۲. بررسی خصوصیات فیزیکی و شیمیایی فوتوکاتالیست‌های سنتز شده

طیف‌سنجی پراش پرتو ایکس که به‌اختصار XRD نامیده می‌شود، یک روش پرکاربرد و غیر تخریبی در بررسی خصوصیات کریستالی نانوذرات است که توسط دستگاه Bruker D8 Advance ساخت کشور آلمان انجام شد. آنالیز BET برای اندازه‌گیری دقیق مساحت سطح و حجم حفرات (بر اساس جذب و واجذب گاز نیتروژن) توسط دستگاه BELSORP-MiniX ساخت کشور آلمان انجام گرفت. آنالیز PL برای شناسایی خواص الکترونیکی و نوری فوتوکاتالیست‌های g-C₃N₄ سنتز شده، توسط دستگاه RF-6000 ساخت شیماتزو-ژاپن انجام گرفت. آنالیز DRS جهت بررسی میزان جذب، عبور و بازتاب نور از فوتوکاتالیست‌های سنتز شده، توسط دستگاه UV-3600i Plus ساخت شیماتزو-ژاپن تهیه شد. طیف‌سنجی تبدیل فوریه مادون قرمز (FT-IR) جهت شناسایی گروه‌های عاملی در شبکه‌های آلی فوتوکاتالیست‌ها و بر پایه جذب تابش و بررسی جهش‌های ارتعاشی مولکول‌ها و پیوندهای شیمیایی توسط دستگاه FTIR 8400s ساخت شیماتزو-ژاپن ثبت شد. در این مطالعه برای بررسی مورفولوژی سطح هر یک از نانومواد سنتز شده، تصاویر FE-SEM از نمونه‌ها تهیه شد.

۲. آماده‌سازی سوسپانسیون اولیه از باکتری گرم منفی اشریشیا کلی

در ابتدا باکتری *Escherichia coli* با سویه (ATCC 25922) از آزمایشگاه تنوع زیستی شهید بهشتی در محیط مایع تهیه شد. سپس باکتری *E. coli* جهت نگهداری طولانی‌مدت در محیط LB Agar در شرایط دمایی ۳۷ درجه سانتی‌گراد و به مدت ۱۸ ساعت کشت و تکثیر شد. سپس تعدادی کلونی باکتری با استفاده از لوپ استریل به محیط کشت LB Broth انتقال داده شد و در شیکر انکوباتور در دمای ۳۷ درجه سانتی‌گراد و به مدت ۲۴ ساعت گرماگذاری شد. پس از کشت باکتری‌ها در محیط مایع، به‌منظور جداسازی سلول‌های باکتری از محیط کشت، نمونه‌های محلول حاوی باکتری، سانتریفیوژ شدند و سلول‌های باکتری رسوب داده شده با استفاده از محلول استریل نمک ۰/۹ درصد شستشو داده شده و در این محلول نگهداری شدند (استفاده از محلول سالین برای حفظ تعادل اسمزی سلول‌های باکتریایی و جلوگیری از لیزی آن‌ها ضروری است). در نهایت، برای رسیدن به نمونه تهیه شده در محیط آزمایشگاه با غلظت ۱۰^۷ CFU/mL از باکتری اشریشیا کلی، از روش رقت تدریجی (رقت سریالی) با استفاده از محلول استریل نمک ۰/۹٪ استفاده شد. تمامی مواد و ابزار استفاده

شده در طول آزمایش‌های میکروبی، با استفاده از اتوکلاو در دمای ۱۲۱ درجه سانتیگراد به مدت ۱۵ دقیقه استریل شدند.

۲. اندازه‌گیری خاصیت آنتی‌باکتریال فتوکاتالیست‌های سنتز شده

برای تعیین خاصیت آنتی‌باکتریال فتوکاتالیست‌های سنتز شده از روش‌های تعیین حداقل غلظت بازدارنده (MIC) و حداقل غلظت کشنده (MBC)^{۱۴} اندازه‌گیری ناحیه مهار در روش دیسک دیفیوژن و بررسی زنده‌مانی باکتری در محیط جامد استفاده شد.

الف) تعیین حداقل غلظت بازدارنده (MIC) و حداقل غلظت کشنده (MBC)

در زمینه نانوذرات، MIC به طور خاص، به غلظتی از نانوذرات اشاره دارد که سبب مهار رشد باکتری می‌شود. MBC نیز در میکروبیولوژی برای تعیین کمترین غلظت کشنده یک ماده ضد میکروبی مانند آنتی‌بیوتیک یا نانوذرات گفته می‌شود. در این پژوهش برای تعیین غلظت‌های ذکر شده و همچنین برای سنجش میزان حذف باکتری توسط نانوذرات در محیط مایع از روش بررسی چگالی نوری یا OD^{۱۴}، با استفاده از طیف‌سنج نور مرئی (UV-Vi) استفاده شد. این روش بر این اصل است که باکتری‌ها نور را پراکنده می‌کنند و هر چه تعداد باکتری‌ها بیشتر باشد، کدورت بیشتر و در نتیجه عدد OD نیز بیشتر خواهد بود. از این رو برای انجام آزمایش‌های فوق مقدار ۰/۱ میلی‌لیتر از سوسپانسیون باکتری فعال شده به ۴/۹ میلی‌لیتر از محیط کشت LB Broth حاوی غلظت‌های ۰/۵، ۰/۱، ۰/۲ و ۰/۵ گرم بر لیتر از فتوکاتالیست‌های سنتز شده شامل CN-20، CN-40 و CN-80 اضافه شد. همچنین مقدار ۱۰۰ میکرولیتر از محلول باکتری اشریشیا کلی فعال شده به ۴/۹ میلی‌لیتر محیط کشت LB Broth اضافه شد و به‌عنوان شاهد منفی در آزمایش‌ها در نظر گرفته شد. سپس تمامی نمونه‌ها به مدت ۴/۵ ساعت تحت نور LED^{۱۴} با قدرت ۵۰ وات با طول موج ۴۰۰ تا ۷۰۰ نانومتر و با فاصله ۷ سانتی‌متری از منبع نور بر روی دستگاه شیکر با دور ۲۰۰ rpm قرار داده شدند. دمای محیط توسط دمنده هوا در محدوده ۳۷ درجه سانتی‌گراد ثابت نگه داشته شد. برای بررسی اثر فتوکاتالیستی نانوذرات، نمونه‌ها در شرایط تاریکی نیز بررسی شدند. چگالی نوری نمونه‌ها در سه تکرار و با فواصل ۱/۵ ساعت، در بازه زمانی ۴/۵ ساعت با استفاده از دستگاه اسپکتوفتومتر^{۱۵} در طول موج ۶۰۰ نانومتر اندازه‌گیری و ثبت شد.

ب) آزمایش انتشار در آگار

این روش که به روش ناحیه مهار نیز شناخته می‌شود، یک

روش آزمایشگاهی رایج برای بررسی فعالیت ضد میکروبی نانومواد در برابر باکتری‌ها و قارچ‌ها است. این روش بر اساس اصل انتشار یک عامل ضد میکروبی (در این مورد نانومواد) در یک محیط کشت جامد و جلوگیری از رشد میکروارگانیسم‌ها در ناحیه‌ای اطراف محل قرارگیری نانومواد است.

جهت تعیین ناحیه مهار (قطر ناحیه فاقد رشد باکتری) فتوکاتالیست‌های سنتز شده، مطابق دستورالعمل‌های ارائه شده توسط مؤسسه استانداردهای بالینی و آزمایشگاه (CLSI)^{۱۶}، ابتدا ۱۰۰ میکرولیتر باکتری *E. coli* روی صفحات پلیت حاوی محیط کشت مولر هینتون آگار در زوایای ۶۰ درجه (برای اطمینان از توزیع یکنواخت تلقیح) با استفاده از لوپ استریل کشت داده شد. در ادامه ذرات فتوکاتالیست‌های CN-20، CN-40 و CN-80 به‌صورت محلول در محیط کشت LB broth با غلظت ۰/۵ گرم بر لیتر که به مدت ۱۵ دقیقه در دستگاه اولتراسونیک^{۱۷} به طور کامل پراکنده شدند. سپس دیسک‌های ۶ میلی‌متری آغشته به ۱۰۰ میکرولیتر از محلول فتوکاتالیست‌های ذکر شده، روی پلیت‌های کشت داده شده قرار داده شدند. پلیت‌ها به مدت ۲۴ ساعت در دمای ۳۷ درجه سانتی‌گراد انکوبه شدند و ناحیه مهار اطراف دیسک‌ها اندازه‌گیری و ثبت شد. از آنتی‌بیوتیک جنتامایسین به‌عنوان کنترل مثبت برای مقایسه عملکرد آنتی‌باکتریال فتوکاتالیست‌ها استفاده شد.

ج) بررسی زنده‌مانی باکتری *Escherichia coli* در برابر فتوکاتالیست‌های سنتز شده

برای بررسی قدرت مهارکنندگی فتوکاتالیست‌ها، ابتدا غلظت ۰/۵ گرم بر لیتر از هر فتوکاتالیست (CN-20، CN-40 و CN-80) محلول در ۴/۹ میلی‌لیتر از محیط کشت LB broth تهیه شد، سپس به هر یک از این محلول‌ها، ۱۰۰ میکرولیتر *Escherichia coli* اضافه شد. تمامی نمونه‌ها به مدت ۴/۵ ساعت در شیکر انکوباتور با سرعت ۲۰۰ دور در دقیقه، در دمای ۳۷ درجه سانتی‌گراد و تحت تابش نور مرئی (لامپ LED) نگهداری شدند. بعد از گذشت زمان مورد نظر، مقدار ۱۰۰ میکرولیتر از سوسپانسیون باکتری با استفاده از محلول نمک ۹٪ تا ۱۰-۳ بار رقیق شد (رقت ۱/۱۰۰۰)، و میزان ۱۰۰ میکرولیتر از محلول رقیق‌شده، به پلیت‌های ۶ سانتی‌متری حاوی محیط کشت آگار اضافه شد، پلیت‌ها در دمای ۳۷ درجه سانتی‌گراد به مدت ۲۴ ساعت در انکوباتور نگهداری شدند، از آنتی‌بیوتیک جنتامایسین به‌عنوان کنترل مثبت استفاده شد، آزمایش تحت سه تکرار طراحی شد و پس از گذشت زمان در نظر گرفته شده، میزان رشد باکتری در هر نمونه بررسی شد.

واکنش و فعالیت سطحی بالاتر است. افزایش فواصل بین لایه‌ای در فتوکاتالیست سنتز شده با جریان ۲۰ میلی‌لیتر بر ثانیه (CN-20)، منجر به افزایش تعداد مکان‌های فعال برای جذب باکتری‌ها و کاهش فاصله انتقال بین الکترون و حفره می‌شود. این امر در نهایت به بهبود عملکرد ضدباکتریایی این فتوکاتالیستی می‌انجامد. در مقابل، تصاویر FE-SEM مربوط به نمونه CN-80 در شکل (۳) و نمونه CN-40 در شکل (۴) ساختاری توده‌ای را نشان می‌دهد. مورفولوژی توده‌ای می‌تواند مانع از انتقال بار و همچنین جذب نور شود و در نتیجه عملکرد فتوکاتالیستی این ماده را کاهش دهد.

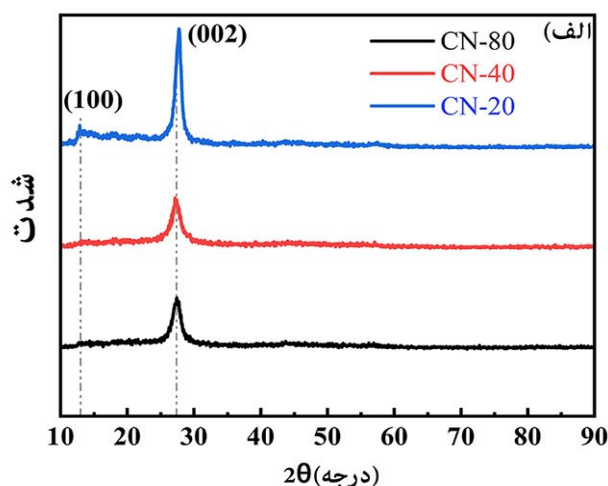
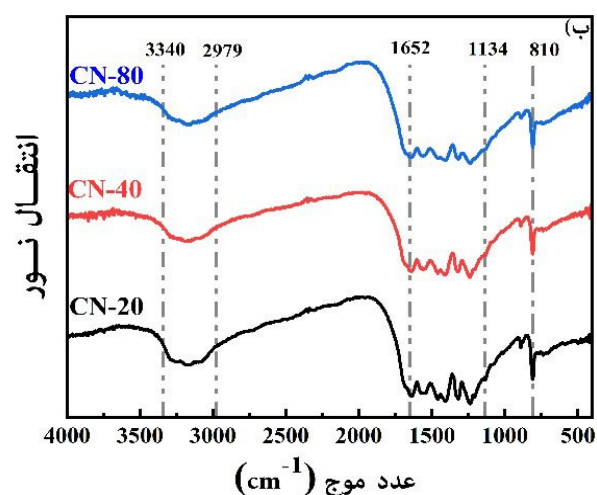
مساحت سطح و حجم حفرات و قطر حفره‌های CN-20، CN-40 و CN-80 در جدول (۱) نشان داده شده است. نتایج نشان می‌دهد مساحت سطح نمونه‌ایی که با جریان گاز نیتروژن ۲۰ میلی‌لیتر بر دقیقه سنتز شده است حدود ۴/۵ برابر بیشتر از نمونه CN-80 می‌باشد. این تفاوت بیانگر افزایش مساحت سطح بر اثر اصلاح ساختاری با تغییر نرخ جریان گاز عبوری در فرایند سنتز است. نمودارهای جذب و واجذب BET که از نوع هیسترسیس H3 است را نشان می‌دهد (شکل ۵-الف).

در شکل (۵-ب) طیف فوتولومینسانس فتوکاتالیست‌های سنتز شده با طول موج تهییج ۳۶۰ نانومتر نشان داده شده است. با مقایسه نمونه‌ها با یکدیگر، مشخص شد نمونه CN-20 کمترین میزان نرخ بازترکیبی بارها در میان نمونه‌های سنتز شده را داشت. نرخ پایین بازترکیبی بارها در فتوکاتالیست‌ها موجب افزایش راندمان جداسازی بار و ارتقای عملکرد فتوکاتالیستی نیمه‌هادی‌ها می‌شود.

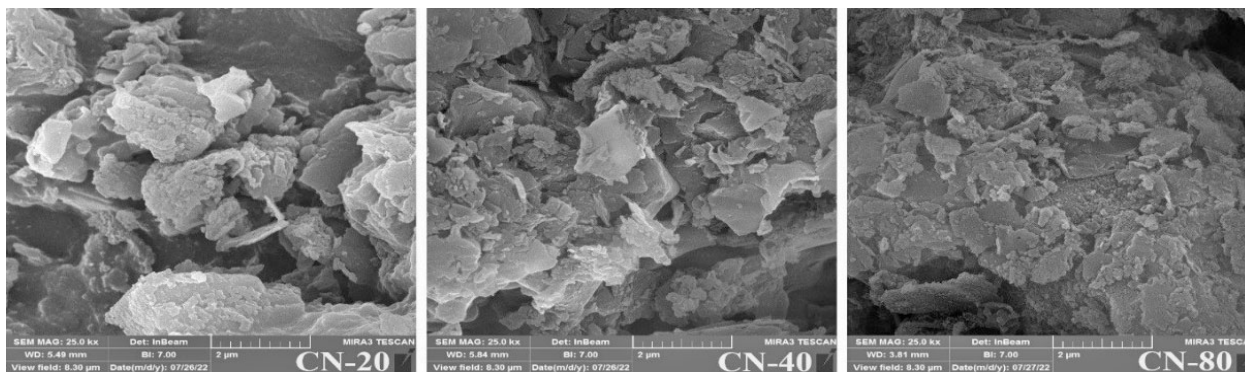
نتایج آنالیز DRS برای نمونه‌های CN-20، CN-40 و CN-80 در (شکل ۶) نشان داده شده است. همان‌طور که در شکل مشاهده

ساختار کریستالی فتوکاتالیست‌های CN-20، CN-40 و CN-80 با استفاده از آنالیز XRD بررسی شد (شکل ۱-الف). در طیف XRD فتوکاتالیست‌های سنتز شده، دو پیک برجسته مشاهده می‌شود. پیک (۰۰۲) در حدود 2θ ۲۶/۶۸ درجه نشان دهنده فاصله بین لایه‌های $g-C_3N_4$ است. پیک‌های موجود در نمودار نشان‌دهنده صحت سنتز کریستالین گرافیتی در این مطالعه است. تطابق پیک‌های پراش با مطالعات گذشته نشان دهنده سنتز موفقیت‌آمیز فتوکاتالیست‌ها در این مطالعه است. در نمودار، شدت پیک (۰۰۲) برای CN-20 بیشتر از CN-40 و CN-80 است. این نشان می‌دهد که نمونه CN-20 دارای درجه کریستالی بالاتری نسبت به دو ماده دیگر است و نشان‌دهنده نظم و بلورینگی بالا در ساختار این ماده است. با توجه به نمودار به‌دست‌آمده از آنالیز FT-IR، همه‌ی نمونه‌ها پیک‌های ارتعاشی مشابهی را نشان می‌دهند (شکل ۱-ب). در نتیجه گروه‌های عاملی مشابه روی سطح نمونه‌های سنتز شده وجود دارد. این قله‌ها مشابه ساختار گزارش شده کریستالین گرافیتی در پژوهش‌های گذشته می‌باشد. شدت بالاتر پیک‌های موجود در ناحیه 3500 تا 3400 cm^{-1} مربوط به نمونه CN-20 حاکی از حضور بیشتر گروه‌های عاملی حاوی نیتروژن و اکسیژن و یا مقدار آب جذب شده بیشتر بر روی سطح این نمونه نسبت به نمونه‌های دیگر است.

تصاویر FE-SEM در شکل (۲)، نشان داد که مورفولوژی $g-C_3N_4$ به طور قابل توجهی تحت تاثیر جریان گاز در فرایند سنتز قرار گرفته است. نمونه سنتز شده با جریان ۲۰ میلی‌لیتر بر ثانیه، ساختار لایه‌ای را به خوبی نشان می‌دهد. لایه‌های زاویه‌دار در این نمونه نشان‌دهنده تمایل بیشتر نانوذرات به



شکل ۱- الف) نمودار XRD نمونه‌های سنتز شده و ب) نمودار FT-IR نمونه‌های سنتز شده



شکل ۴- تصویر FE-SEM
مربوط به نمونه CN-20

شکل ۳- تصویر FE-SEM
مربوط به نمونه CN-40

شکل ۲- تصویر FE-SEM
مربوط به نمونه CN-80

$$(\alpha h\nu)^2 = k(h\nu - E_g) \quad (1)$$

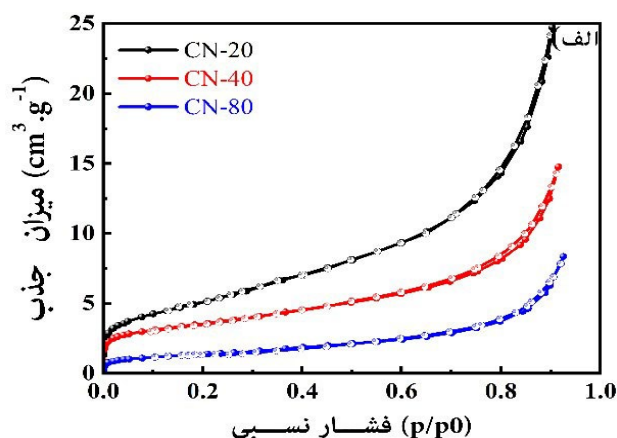
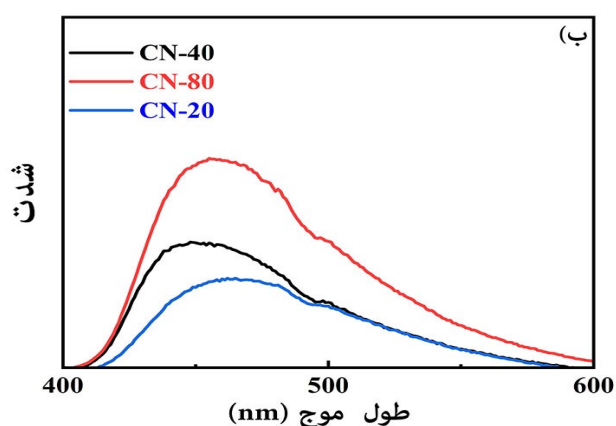
α : ضریب جذب^{۱۹} h : ثابت پلانک^{۲۰} ν : فرکانس نور^{۲۱}
 k : ثابت تناسب^{۲۲} E_g : انرژی باند گپ

به کمک نتایج به دست آمده از این آنالیزها مشخص شد که مقادیر E_g برای نمونه‌های CN-20، CN-40 و CN-80 به ترتیب ۲/۷۸، ۲/۷۰ و ۲/۶۳ است. این نتایج نشان می‌دهد ساختار الکترونیکی نیتريد کربن تغییرات جزئی داشته است که به تغییرات اندازه کوانتومی نسبت داده می‌شود. در این نمودار فاصله باند در نمونه سنتز شده با جریان گاز نیتروژن عبوری ۲۰ میلی‌لیتر بر ثانیه، بیشتر شده است و نرخ بازترکیبی کاهش یافته و منجر به افزایش فعالیت فوتوکاتالیستی شده است.

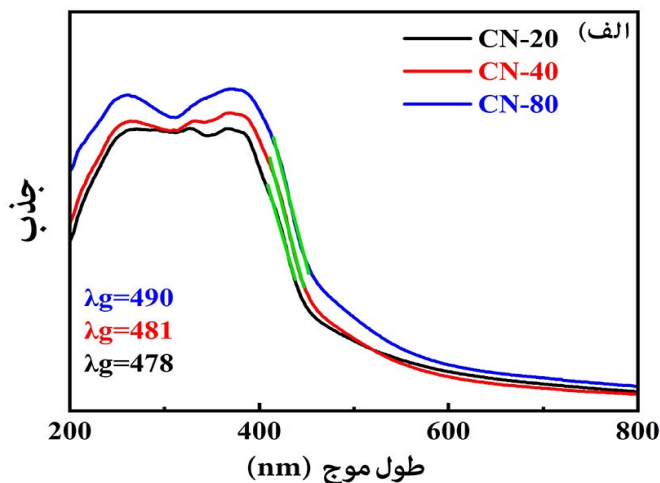
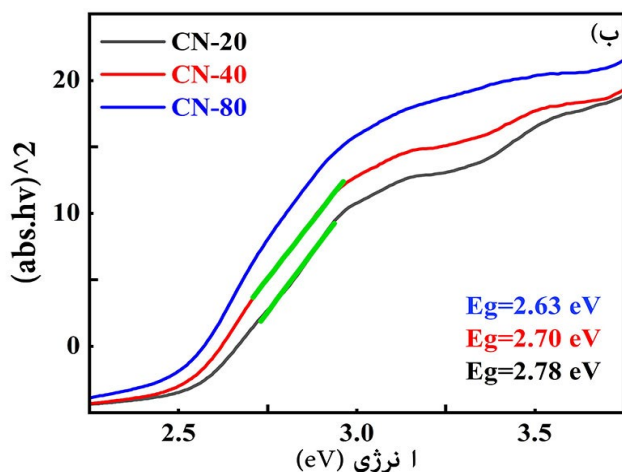
می‌شود، هر سه نمونه قادر به جذب نور در ناحیه مرئی بودند، بنابراین می‌توان نتیجه گرفت مواد سنتز شده همگی دارای ویژگی‌های مناسب برای فعالیت‌های فوتوکاتالیستی در ناحیه نور مرئی هستند. در این تحقیق، از نمودار تاوک^{۱۸} برای محاسبه انرژی باند گپ استفاده شد. در این روش، همان‌گونه که در شکل (۶-ب) قابل مشاهده می‌باشد، نمودار بر حسب $(\alpha h\nu)$ در محور عمودی و انرژی فوتون (E_g) در محور افقی رسم شد. سپس، خطی که با خط نمودار مماس بوده و در یک راستا قرار داشت، رسم شد و نقطه‌ای که این خط محور افقی را قطع می‌کرد، انرژی باند گپ نوری مستقیم در نظر گرفته شد. برای محاسبه انرژی باند گپ از رابطه (۱) استفاده شد:

جدول ۱- آنالیز جذب و واجذب گاز نیتروژن (BET) فوتوکاتالیست‌های سنتز شده سنتز شده

مساحت سطح (m^2/g)	حجم کلی حفره (cm^3/g)	قطر حفره (nm)	فوتوکاتالیست سنتز شده
۱۸/۳۳۱	۰/۰۳۸۲۷۵	۸/۳۵۱۸	CN-20
۱۲/۲۷۲	۰/۰۲۲۸۱۸	۷/۴۳۷۶	CN-40
۴/۸۳۸۰	۰/۰۱۲۹۰۹	۱۰/۶۷۳	CN-80



شکل ۵- الف) نمودار BET مربوط به نمونه‌های سنتز شده و ب) نمودار PL مربوط به فوتوکاتالیست‌های سنتز شده



شکل ۶- نمودار DRS (الف) لبه جذبی، (ب) انرژی باندگپ فوتوکاتالیست‌های سنتز شده

راندمان حذف باکتری برای نانوذرات CN-20، CN-40 و CN-80 در شرایط تاریکی با مقدار اولیه 0.5 g/L به ترتیب مقادیر $12/3$ ، $5/4$ و $3/3$ درصد به دست آمد. در غلظت 0.1 g/L به ترتیب 20 ، $8/9$ و $5/6$ درصد ثبت شد. در غلظت 0.2 g/L ، درصد حذف باکتری برای CN-20، CN-40 و CN-80 به ترتیب $22/8$ ، $15/8$ و $12/4$ به دست آمد. با افزایش غلظت نانومواد سنتز شده به 0.5 g/L ، مقادیر حذف باکتری *E. coli* به ترتیب به $28/4$ ، $18/2$ و $14/8$ درصد افزایش یافت. در نتیجه هیچ یک از نانوذرات موفق به حذف و یا مهار رشد باکتری در مدت زمان $4/5$ ساعت در شرایط تاریکی نشدند.

در میان فوتوکاتالیست‌های سنتز شده عملکرد فوتوکاتالیستی و آنتی‌باکتریال نانوماده CN-20 بهتر از دو نانوماده دیگر بود علت عملکرد بهتر این فوتوکاتالیست به دلیل اصلاح روش سنتز از طریق کاهش جریان گاز نیتروژن عبوری در داخل کوره بوده که سبب شده تا این نانوماده دارای سطح مؤثر بیشتری باشد و در حذف باکتری بهتر عمل کند. تفاوت راندمان حذف بین دو شرایط نور و تاریکی نیز، به علت تولید رادیکال‌های اکسیژن فعال (ROS)، توسط فوتوکاتالیست‌ها در حین تابش نور مرئی است. این گونه‌های فعال به دلیل ناپایداری و قدرت تخریب بالا، به اجزای سلولی آسیب می‌رسانند و مرگ سلول را به دنبال دارند (Heo و همکاران، ۲۰۱۹).

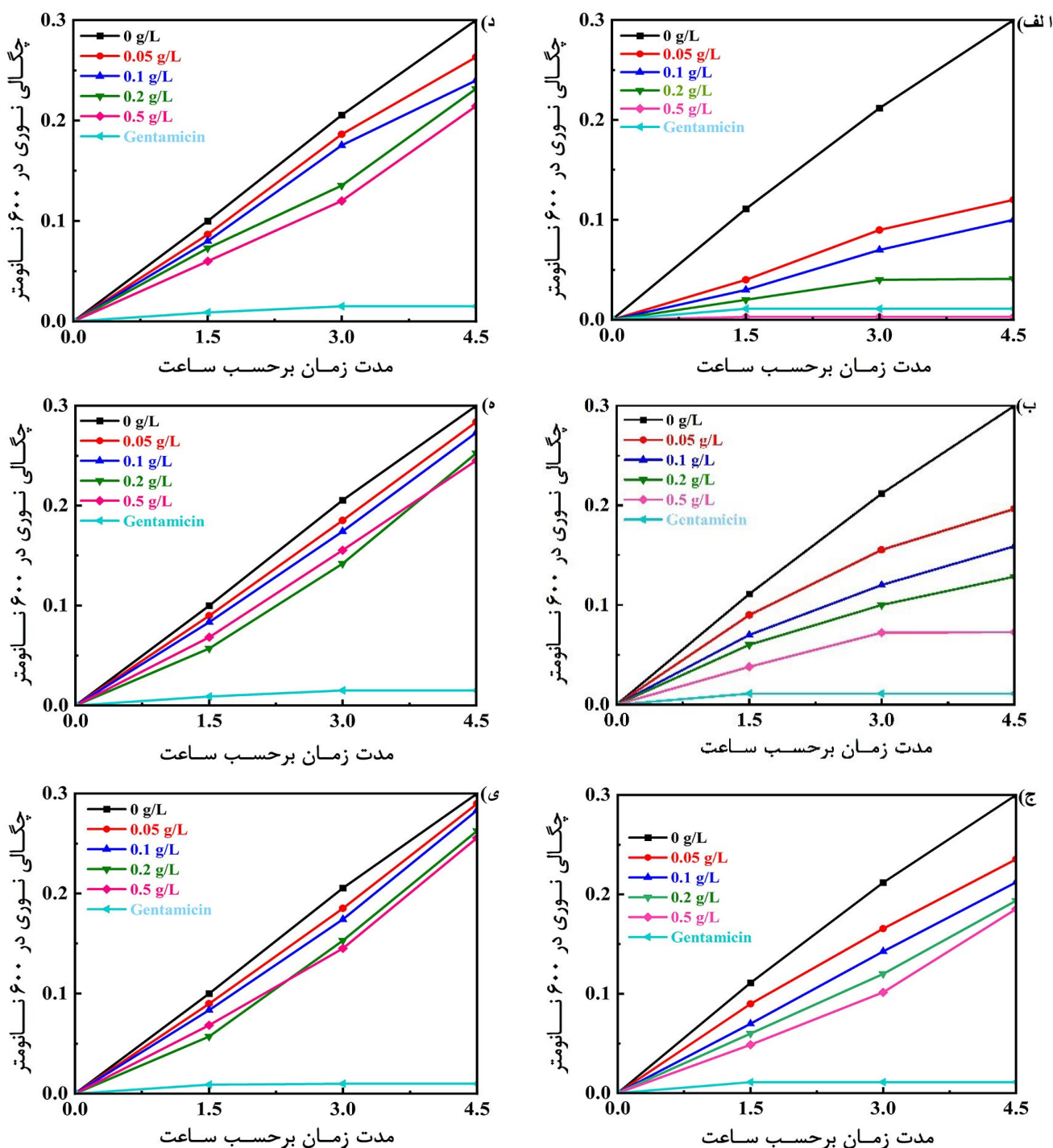
۲. ارزیابی فعالیت ضد میکروبی نانوصفات $\text{g-C}_3\text{N}_4$ با روش انتشار دیسک در محیط کشت مولر هینتون

در این مطالعه، فعالیت ضد میکروبی فوتوکاتالیست‌های سنتز شده، در مقابل باکتری *E. coli* با استفاده از روش انتشار دیسک در محیط کشت مولر هینتون آگار بررسی شد. نتایج نشان داد که نانوماده CN-20 دارای قوی‌ترین فعالیت ضدباکتریایی در

نتایج آزمایش‌های آنتی‌باکتریال

۱. تعیین مقادیر MIC و MBC

تعیین مقادیر MIC و MBC تحت تأثیر عوامل مختلفی از جمله نوع میکروارگانیسم، نوع ماده مورد آزمایش، شرایط محیطی و روش مورد استفاده است. در این مطالعه فعالیت ضد میکروبی فوتوکاتالیست‌های سنتز شده، با اندازه‌گیری OD در بازه زمانی $4/5$ ساعت، بررسی شد (شکل ۷). تغییرات میزان OD نمونه‌ها با غلظت‌های مختلف از فوتوکاتالیست‌های CN-20، CN-40 و CN-80 در مدت $4/5$ ساعت، نشان‌دهنده میزان رشد و یا درصد حذف باکتری *E. coli* بود. بر اساس نتایج به دست آمده، مهار رشد باکتری اشریشیاکلی وابسته به غلظت فوتوکاتالیست‌ها بود (He، ۲۰۲۱). راندمان حذف باکتری برای فوتوکاتالیست‌های CN-20، CN-40 و CN-80 تحت نور LED با غلظت 0.5 g/L به ترتیب مقادیر 60 ، $34/5$ و $21/5$ درصد به دست آمد. غلظت 0.1 g/L از هر فوتوکاتالیست در نمونه‌ها سبب حذف 66 ، 47 و $29/2$ درصد از باکتری اشریشیاکلی شد. در نهایت در غلظت 0.2 g/L ، درصد حذف باکتری به ترتیب 86 ، $56/6$ و $35/4$ درصد به دست آمد. با افزایش غلظت فوتوکاتالیست‌ها به 0.5 g/L ، مقدار حذف باکتری *E. coli* به $99/99$ ، $73/3$ و $38/2$ درصد افزایش یافت. بر اساس نتایج به دست آمده، مقادیر MIC و MBC برای فوتوکاتالیست CN-20 به ترتیب 0.2 و 0.5 در بازه زمانی $4/5$ ساعت به دست آمد. مقادیر MIC به دست آمده برای فوتوکاتالیست CN-40، 0.5 گرم بر لیتر در بازه زمانی $4/5$ ساعت بود. همچنین این فوتوکاتالیست موفق به حذف کامل باکتری *E. coli* در بازه زمانی $4/5$ ساعت نشد. مقادیر MIC و MBC برای فوتوکاتالیست CN-80 به دست نیامد.



شکل ۷- نمودار رشد OD برای نمونه‌های الف) ۰.۲۰-، ب) ۰.۴۰-، ج) ۰.۸۰- تحت نور مرئی و د) ۰.۲۰-، ه) ۰.۴۰- و ی) ۰.۸۰- در شرایط تاریکی

میلی‌متر بود (شکل ۸).

۳. بررسی زنده‌مانی باکتری E.coli در برابر فتوکاتالیست‌ها

میزان زنده‌مانی باکتری‌ها در نمونه‌های حاوی باکتری و فتوکاتالیست‌های CN-20، CN-40 و CN-80 در غلظت g/L ۰/۴ که به مدت ۴/۵ ساعت تحت تابش نور LED بودند، بررسی شد (شکل ۹). تفاوت بازدهی عملکرد فتوکاتالیستی

بین نمونه‌های آزمایش شده بود و ناحیه‌ای از عدم رشد باکتری (زون مهار) به شعاع ۱۱ میلی‌متر در اطراف دیسک‌های حاوی این نانوماده ایجاد شد. در حالی که شعاع ناحیه مهار برای نانومواد CN-40 و CN-80 به ترتیب ۷ میلی‌متر و بدون زون مهار قابل مشاهده بود. جنتامایسین نیز که به‌عنوان کنترل مثبت در آزمایش در نظر گرفته شده دارای ناحیه مهار ۱۰

نتیجه‌گیری

در این مطالعه تأثیر تغییر جریان گاز عبوری در فرایند سنتز کربن نیتريد گرافیتی در فرایند پلیمریزاسیون حرارتی، بر ساختار فیزیکی و عملکرد آنتی‌باکتریال این ماده بررسی شد. طبق نتایج آنالیز اندازه‌گیری مساحت سطح ویژه (BET) با کاهش نرخ جریان گاز نیتروژن عبوری در کوره لوله‌ای از ۸۰ به ۲۰ میلی‌لیتر بر دقیقه مساحت سطح ویژه کربن نیتريد گرافیتی از ۴/۸ به ۱۸/۳ مترمربع بر گرم افزایش می‌یابد. افزایش مساحت سطح فتوکاتالیست CN-20 موجب بهبود ساختاری این نمونه شده، به نحوی که طبق نتایج آزمایش‌های آنتی‌باکتریال تحت نور مرئی و مقایسه آن با شرایط تاریکی، این فتوکاتالیست در غلظت ۰/۵ گرم بر لیتر موفق به حذف ۱۰۰ درصدی باکتری اشریشیا کلی در مدت ۴/۵ ساعت و تحت نور مرئی (لامپ LED با قدرت ۵۰ وات) شده است. نتایج این مطالعه نشان داد تغییر نرخ جریان گاز عبوری در فرایند سنتز کربن نیتريد گرافیتی می‌تواند روشی کم‌هزینه و با راندمان بالا در افزایش عملکرد فتوکاتالیستی و ضدباکتریایی کربن نیتريد گرافیتی در گندزدایی از محلول‌های آبی ارائه دهد. باتوجه به زمان ماند مورد نیاز برای تکمیل فرایند فتوکاتالیستی نانوماده CN-20 که در این مطالعه بررسی شد، به منظور توسعه کاربرد صنعتی این فتوکاتالیست، مطالعات گسترده‌ای در مقیاس صنعتی مورد نیاز است. استفاده گسترده از فتوکاتالیست‌ها در فرایند تصفیه، نیازمند بررسی پایداری طولانی مدت نانوماده در شرایط عملیاتی، بهینه‌سازی فرایند سنتز برای تولید انبوه نانوماده و همچنین بررسی سازوکار دقیق واکنش‌های فتوکاتالیستی است. به بیان دیگر این فتوکاتالیست در حال حاضر کاربرد آزمایشگاهی دارد و برای امکان‌سنجی استفاده‌های صنعتی و نیمه‌صنعتی، مطالعات بیشتری مورد نیاز است.

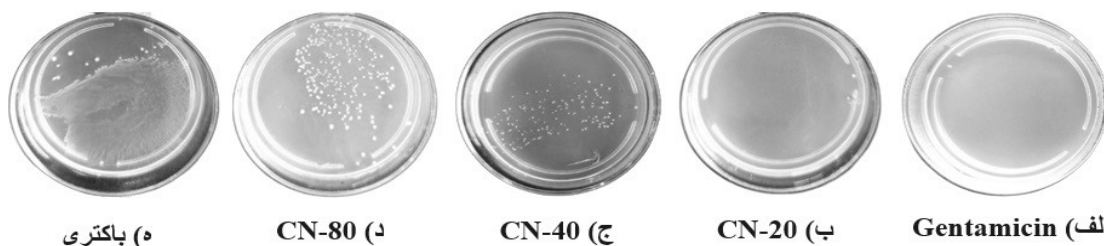
سپاسگزاری

از همکاری صمیمانه همکاران گرامی آزمایشگاه نانوفناوری پژوهشکده علوم محیطی دانشگاه شهید بهشتی که در انجام آزمایش‌ها و تحلیل داده‌ها ما را یاری نمودند، کمال تشکر و قدردانی را داریم.



شکل ۸- ناحیه مهار ایجادشده توسط فتوکاتالیست‌ها و کنترل جنتامایسین در مقابل باکتری اشریشیاکلی

CN-20، CN-40 و CN-80 باتوجه به تعداد کلونی‌های تشکیل شده روی هر پلیت به خوبی نشان داده شده است. باتوجه به شکل (۹) تقریباً هیچ باکتری روی پلیت‌های حاوی CN-20 و کنترل جنتامایسین وجود نداشت که نشان‌دهنده اصلاح ساختار کربن نیتريد گرافیتی با کنترل شرایط سنتز می‌باشد. رشد کلونی‌های باکتری *E.coli* بر سطح محیط کشت LB آگار برای دو نانوماده دیگر مشاهده شد. کلرزنی، به عنوان یک روش متداول در تصفیه آب، با وجود مزایایی همچون سادگی اجرا و هزینه پایین، معایبی چون خوردگی و تولید ترکیبات آلی فرار سرطان‌زای تری‌هالومتان‌ها را به همراه دارد (Farid و همکاران، ۲۰۲۳). ازن نیز به عنوان یک گندزدا، باوجود کارایی بالا، در حضور مواد معلق عملکرد ضعیفی نشان می‌دهد و هزینه‌های تولید و نگهداری تجهیزات آن قابل توجه است (pule، ۲۰۱۶). تابش ماوراء بنفش نیز با وجود اثربخشی در حذف میکروارگانیسم‌ها، به دلیل هزینه بالا، محدودیت‌های فنی و رقابت با کلرزنی، گسترش چندانی نیافته است (Hijnen و همکاران، ۲۰۰۶). در مقابل این روش‌های ذکر شده، نانوماده CN-20 عملکرد مطلوبی برای از بین بردن باکتری اشریشیا کلی در شرایط آزمایشگاهی و در مقایسه با آنتی‌بیوتیک جنتامایسین از خود نشان داد. همچنین این نانوماده دارای مزایایی مانند عدم سمیت، عدم تولید محصولات جانبی و پایداری شیمیایی و حرارتی بالا است. سازگاری با محیط‌زیست نیز از دیگر مزایای این روش محسوب می‌شود.



شکل ۹- بررسی اثرزنده‌مانی باکتری در برابر فتوکاتالیست‌ها و کنترل جنتامایسین

1. Trihalomethanes
2. Disinfection By-Product
3. Advanced Oxidation Processes
4. Reactive Oxygen Species
5. Minimum Inhibitory Concentration
6. X Ray Diffraction
7. Fourier Transform Infrared Spectrometer
8. Field Emission Scanning Electron Microscopy
9. Brunauer-Emmett-Teller
10. Photoluminescence
11. Diffuse Reflectance Spectroscopy
12. Minimum Bacteriocidal Concentration
13. Optical Density
14. Light-emitting diode
15. Spectrophotometer
16. Clinical & Laboratory Standards Institute
17. Ultrasonic Cleaner
18. Tauc
19. Absorption Coefficient
20. Planck's Constant
21. Frequency of Light
22. Proportionality Constant

منابع

- Abdul Rasheed, P., Thomas, R. T., & Namboorimadathil Backer, S. (2023). Synthesis, Characterization, and Applications of Graphitic Carbon Nitride, Chapter 7. Elsevier. Kerala, India. Bijari, M., Shahbazi, A., Vatanpour, V., & Younesi, H. (2024). Synthesis of G-C₃N₄/Mxene Composite for Enhanced Photocatalytic Degradation of Eosin Y Dye in Aqueous Solutions Under Visible Light. Sustainable Earth Trends, 4(4), 1-9. <https://doi.org/10.48308/set.2024.236700.1063>
- Chan, K. L. D. (2017). Graphitic Carbon-Based Nanostructures for Energy and Environmental Applications. Ph.D, The Chinese University of Hong Kong, Hong Kong, China. <https://login.nduezproxy.idm.oclc.org/login?url=https://www.proquest.com/dissertations-theses/graphitic-carbon-based-nanostructures-energy/docview/1991031432/se-2?accountid=173708>
- Chen, X., Jin, Y., Huang, P., Zheng, Z., Li, L.-P., Lin, C.-Y., Chen, X., Ding, R., Liu, J., & Chen, R. (2024). Solar driven photocatalytic disinfection by Z-scheme heterojunction of In₂O₃/g-C₃N₄: Performance, mechanism and application. Applied Catalysis B: Environmental, 340, 123235. <https://doi.org/10.1016/j.apcatb.2023.123235>
- Das, K. K., Patnaik, S., Mansingh, S., Behera, A., Mohanty, A., Acharya, C., & Parida, K. M. (2020). Enhanced photocatalytic activities of polypyrrole sensitized zinc ferrite/graphitic carbon nitride n-n heterojunction towards ciprofloxacin degradation, hydrogen evolution and antibacterial studies. Journal of Colloid and Interface Science, 561, 551-567. <https://doi.org/10.1016/j.jcis.2019.11.030>
- Dousti, S., Mahmoodi, B., Bijari, M., & Shahbazi, A. (2024).

Investigating the effect of various precursors in the synthesis and improvement of the photocatalytic performance of graphite carbon nitride in the degradation of Rhodamine B dye under visible light. Journal of Color Science and Technology, 18(2), 135-150. <https://doi.org/10.30509/JCST.2024.167291.1224>

- Du, J., Zhang, N., Ma, S., Wang, G., Ma, C., Liu, G., & Wu, W. (2024). Visible light-driven C/O-g-C₃N₄ activating peroxydisulfate to effectively inactivate antibiotic resistant bacteria and inhibit the transformation of antibiotic resistance genes: Insights on the mechanism. Journal of Hazardous Materials, 464, 132972. <https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2023.132972>
- Farid, M., Ahsan, A., Asam, Z., Abbas, M., Fatima, A., Salman, M., & Aslam, A. (2023). Principles and Applications of Environmental Biotechnology for Sustainable Future. Climate-Resilient Agriculture, Vol 1: Springer International Publishing. London, Berlin.
- El-Khawaga, M., Elsayed, A., Gobara, M., Suliman, A., Hashem, H., Zaher, A., & Salem, S. (2023). Green synthesized ZnO nanoparticles by Saccharomyces cerevisiae and their antibacterial activity and photocatalytic degradation. Biomass Conversion and Biorefinery, 1-12. <https://doi.org/10.1007/s13399-023-04827-0>
- He, D., Yang, H., Jin, D., Qu, J., Yuan, X., Zhang, Y. N., & Peijnenburg, W. J. (2021). Rapid water purification using modified graphitic carbon nitride and visible light. Applied Catalysis B: Environmental, 285, 119864. <https://doi.org/10.1016/j.apcatb.2020.119864>
- Heo, S., Shukla, S., Oh, Y., Bajpai, K., Lee, U., Cho, J., & Huh, S. (2019). Shape-controlled assemblies of graphitic carbon nitride polymer for efficient sterilization therapies of water microbial contamination via 2D g-C₃N₄ under visible light illumination. Materials Science and Engineering: C, 104, 109846. <https://doi.org/10.1016/j.msec.2019.109846>
- Hijnen, W. A. M., Beerendonk, E. F., & Medema, G. J. (2006). Inactivation credit of UV radiation for viruses, bacteria and protozoan (oo)cysts in water: A review. Water Research, 40(1), 3-22. <https://doi.org/10.1016/j.watres.2005.10.030>
- Kadoya, S., Nishimura, O., Kato, H., & Sano, D. (2021). Predictive water virology using regularized regression analyses for projecting virus inactivation efficiency in ozone disinfection. Water Research X, 11, 100093. <https://doi.org/10.1016/j.wroa.2021.100093>
- Li, C., Sun, Z., Zhang, W., Yu, C., & Zheng, S. (2018). Highly efficient g-C₃N₄/TiO₂/kaolinite composite with novel three-dimensional structure and enhanced visible light responding ability towards ciprofloxacin and S. aureus. Applied Catalysis B: Environmental, 220, 272-282. <https://doi.org/10.1016/j.apcatb.2017.08.044>
- Li, F., Huang, Y., Gao, C., & Wu, X. (2021). The enhanced photo-catalytic CO₂ reduction performance of g-C₃N₄ with high selectivity by coupling CoNiSx. Materials Research Bulletin, 144, 111488. <https://doi.org/10.1016/j.materresbull.2021.111488>

- Li, Y., Li, Y., Ma, S., Wang, P., Hou, Q., Han, J., & Zhan, S. (2017). Efficient water disinfection with Ag₂WO₄-doped mesoporous g-C₃N₄ under visible light. *Journal of Hazardous Materials*, 338, 33-46. <https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2017.05.011>
- Lin, T., Song, Z., Wu, Y., Chen, L., Wang, S., Fu, F., & Guo, L. (2018). Boron- and phenyl-codoped graphitic carbon nitride with greatly enhanced light responsive range for photocatalytic disinfection. *Journal of Hazardous Materials*, 358, 62-68. <https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2018.06.053>
- Ma, Y., Zhang, J., Wang, Y., Chen, Q., Feng, Z., & Sun, T. (2019). Concerted catalytic and photocatalytic degradation of organic pollutants over CuS/g-C₃N₄ catalysts under light and dark conditions. *Journal of Advanced Research*, 16, 135-143. <https://doi.org/10.1016/j.jare.2018.10.003>
- Oluseun Akintunde, O., Hu, J., Golam Kibria, M., Pogolian, S., & Achari, G. (2023). A facile synthesis process of GCN/ZnO-Cu nanocomposite and the evaluation of the performance for the photocatalytic degradation of organic pollutants and the disinfection of wastewater under visible light. *Chemosphere*, 344, 140287. <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2023.140287>
- Parasuraman, V., Perumalswamy Sekar, P., Mst Akter, S., Ram Lee, W., Young Park, T., Gon Kim, C., & Kim, S. (2023). Improved photocatalytic disinfection of dual oxidation state (dos)-Ni/g-C₃N₄ under indoor daylight. *Journal of Photochemistry and Photobiology A: Chemistry*, 434, 114262. <https://doi.org/10.1016/j.jphotochem.2022.114262>
- Pule, D. (2016). Conventional and Alternative Disinfection Methods of Legionella in Water Distribution Systems – Review. *Construction Science*, 19(1), 21-26. <https://doi.org/10.1515/cons-2016-007>
- Rath, V. H., Joice, A. R., & Jayakumar, K. (2023). Green synthesis of Ag/CuO and Ag/TiO₂ nanoparticles for enhanced photocatalytic dye degradation, antibacterial, and antifungal properties. *Applied Surface Science Advances*, 18, 100476. <https://doi.org/10.1016/j.ap-sadv.2023.100476>
- Song, T., Zhang, P., Wang, T., Ali, A., & Zeng, H. (2018). Alkali-assisted fabrication of holey carbon nitride nanosheet with tunable conjugated system for efficient visible-light-driven water splitting. *Applied Catalysis B: Environmental*, 224, 877-885. <https://doi.org/10.1016/j.apcatb.2017.11.039>
- Sabariselvan, L., Okla, M. K., Brindha, B., Kokilavani, S., Abdel-maksoud, M., El-Tayeb, M. A., & Sudheer Khan, S. (2024). Interfacial coupling of CuFe₂O₄ induced hotspots over self-assembled g-C₃N₄ nanosheets as an efficient photocatalytic bacterial disinfectant. *Environmental Pollution*, 342, 123076. <https://doi.org/10.1016/j.envpol.2023.123076>
- Stefa, S., Zografaki, M., Dimitropoulos, M., Paterakis, G., Galiotis, C., Sangeetha, P., & Binas, V. (2023). High surface area g-C₃N₄ nanosheets as superior solar-light photocatalyst for the degradation of parabens. *Applied Physics A*, 129(11), 754. <https://doi.org/10.1007/s00339-023-07032-y>
- Tabasum, S., Rani, S., Sharma, A., Dhupar, N., Singh, P., Bagri, U., & Kumar, D. (2023). Efficient Photocatalytic Degradation of Chlorpyrifos Pesticide from Aquatic Agricultural Waste Using g-C₃N₄ Decorated Graphene Oxide/V₂O₅ Nanocomposite. *Topics in Catalysis*, 67, 1-12. <https://doi.org/10.1007/s11244-023-01865-w>
- Wang, J., Fan, Q., Kou, L., Chen, H., Xing, X., Duan, W., & Jiang, K. (2023). LED-driven sulfamethazine removal and bacterial disinfection by a novel photocatalytic textile impregnated with oxygen vacancy-rich BiO₂-x/g-C₃N₄ hybrid. *Chemical Engineering Journal*, 474, 145590. <https://doi.org/10.1016/j.cej.2023.145590>
- Xu, J., Fujitsuka, M., Kim, S., Wang, Z., & Majima, T. (2019). Unprecedented effect of CO₂ calcination atmosphere on photocatalytic H₂ production activity from water using g-C₃N₄ synthesized from triazole polymerization. *Applied Catalysis B: Environmental*, 241, 141-148. <https://doi.org/10.1016/j.apcatb.2018.09.023>
- Xu, X., Wang, S., Yu, X., Dawa, J., Gui, D., & Tang, R. (2020). Biosynthesis of Ag deposited phosphorus and sulfur co-doped g-C₃N₄ with enhanced photocatalytic inactivation performance under visible light. *Applied Surface Science*, 501, 144245. <https://doi.org/10.1016/j.apsusc.2019.144245>
- Yang, Y., Zhang, C., Huang, D., Zeng, G., Huang, J., Lai, C., & Xiong, W. (2019). Boron nitride quantum dots decorated ultrathin porous g-C₃N₄: Intensified exciton dissociation and charge transfer for promoting visible-light-driven molecular oxygen activation. *Applied Catalysis B: Environmental*, 245, 87-99. <https://doi.org/10.1016/j.apcatb.2018.12.049>
- Yu, G., Wang, Y., Cao, H., Zhao, H., & Xie, Y. (2020). Reactive Oxygen Species and Catalytic Active Sites in Heterogeneous Catalytic Ozonation for Water Purification. *Environmental Science & Technology*, 54(10), 5931-5946. doi: [10.1021/acs.est.0c00575](https://doi.org/10.1021/acs.est.0c00575)
- Zhang, X., Zhao, X., Li, H., Hao, X., Xu, J., Tian, J., & Wang, Y. (2023). Corrigendum: Detection methods of nanoparticles synthesized by gas-phase method: a review. *Frontiers in Chemistry*, Volume 11. Switzerland. <https://doi.org/10.3389/fchem.2023.1351829>
- Zhong, K.-Q., Xie, D.-H., Liu, Y.-J., Guo, P.-C., & Sheng, G.-P. (2023). Modulation of ultrathin nanosheet structure and nitrogen defects in graphitic carbon nitride for efficient photocatalytic bacterial inactivation. *Water Research X*, 20, 100193. <https://doi.org/10.1016/j.wroa.2023.100193>
- Zhou, Y., Zhang, L., Huang, W., Kong, Q., Fan, X., Wang, M., & Shi, J. (2016). N-doped graphitic carbon-incorporated g-C₃N₄ for remarkably enhanced photocatalytic H₂ evolution under visible light. *Carbon*, 99, 111-117. <https://doi.org/10.1016/j.carbon.2015.12.008>