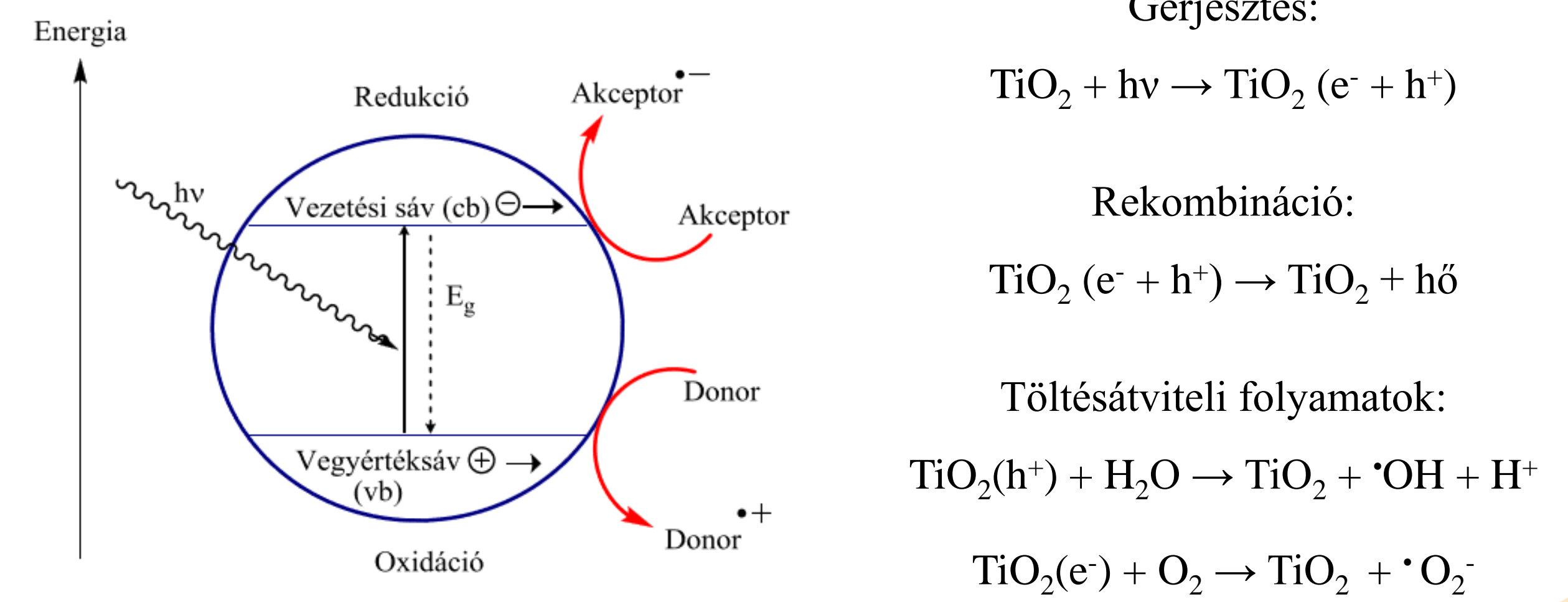


Bevezetés

A környezetvédelem egyik legnagyobb kihívása ma a vízminőség megőrzése és javítása. Az ipari, városi és mezőgazdasági szennyvizek világszerte sokféle szennyező anyagot tartalmaznak, amelyek sok esetben nehezen kezelhetők a hagyományos vízisztítási módszerekkel. A heterogén fotokatalízissel a szerves szennyeződések széndioxidá, vízzé és ásványi sókká bomlanak le, azaz mineralizálhatók.

Munkánk során a karbamazepin és a Topas 100 EC lebonthatóságát vizsgáltuk heterogén fotokatalízissel, UV és látható fény alkalmazásával. Katalizátorként Degussa P25 TiO₂-t és nitrogénnel adalékolt, szol-gél módszerrel előállított katalizátort (N-TiO₂) használtunk. A lebomlási folyamatokat a reakcióelegyek folyadékkromatográfiai elemzésével és szerves széntartalmuk mérésével követtük nyomon.

Heterogén fotokatalízis



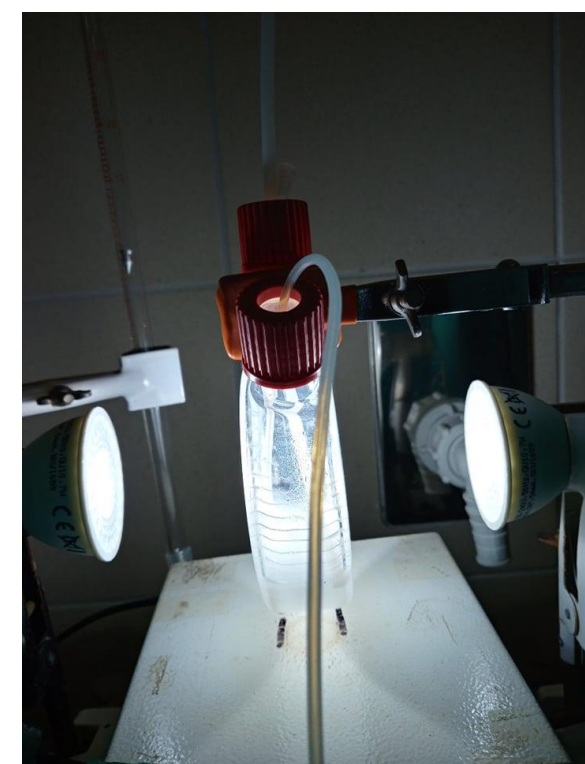
Kísérleti körülmények és analízis

| Modellvegyületek: | Analízis: | Fényforrás és Fotoreaktor: |
|-------------------|-----------|--|
| Karbamazepin | TOC mérés | Fotoreaktor: 90 cm ³ |
| Penkonazol | HPLC | Levegőáram: 10 dm ³ h ⁻¹ |

HPLC analízis: Fordított fázisú folyadékkromatográfia

Kolonna: Phenomenex Kinetex 2,6 μm C18 100Å 100 x 3 mm

Eluens: acetonitril – víz, gradiens elúció

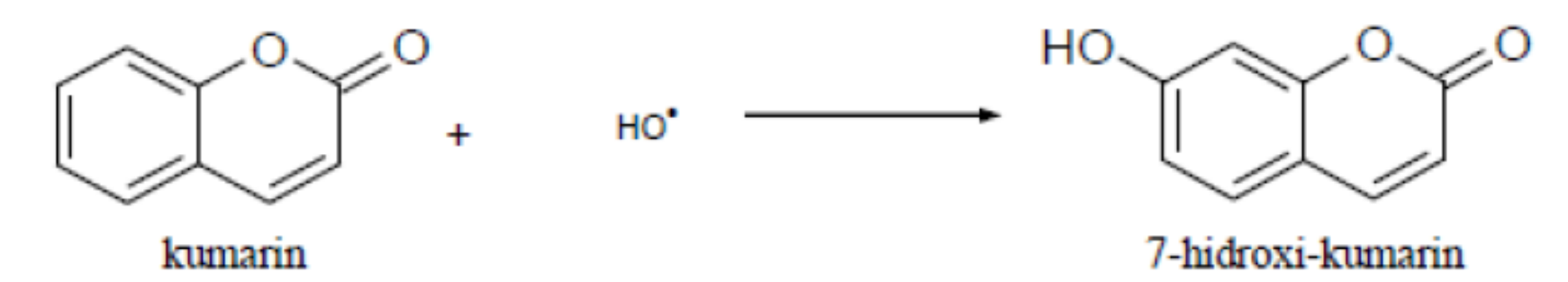


VIS LED: λ_{max} = 453 nm, 7 W
fény intenzitás = 90 mW cm⁻²



UV LED: λ_{max} = 395 nm, 60 W
fény intenzitás = 7,6 mW cm⁻²

Katalizátor: Degussa P25 TiO₂, N-TiO₂



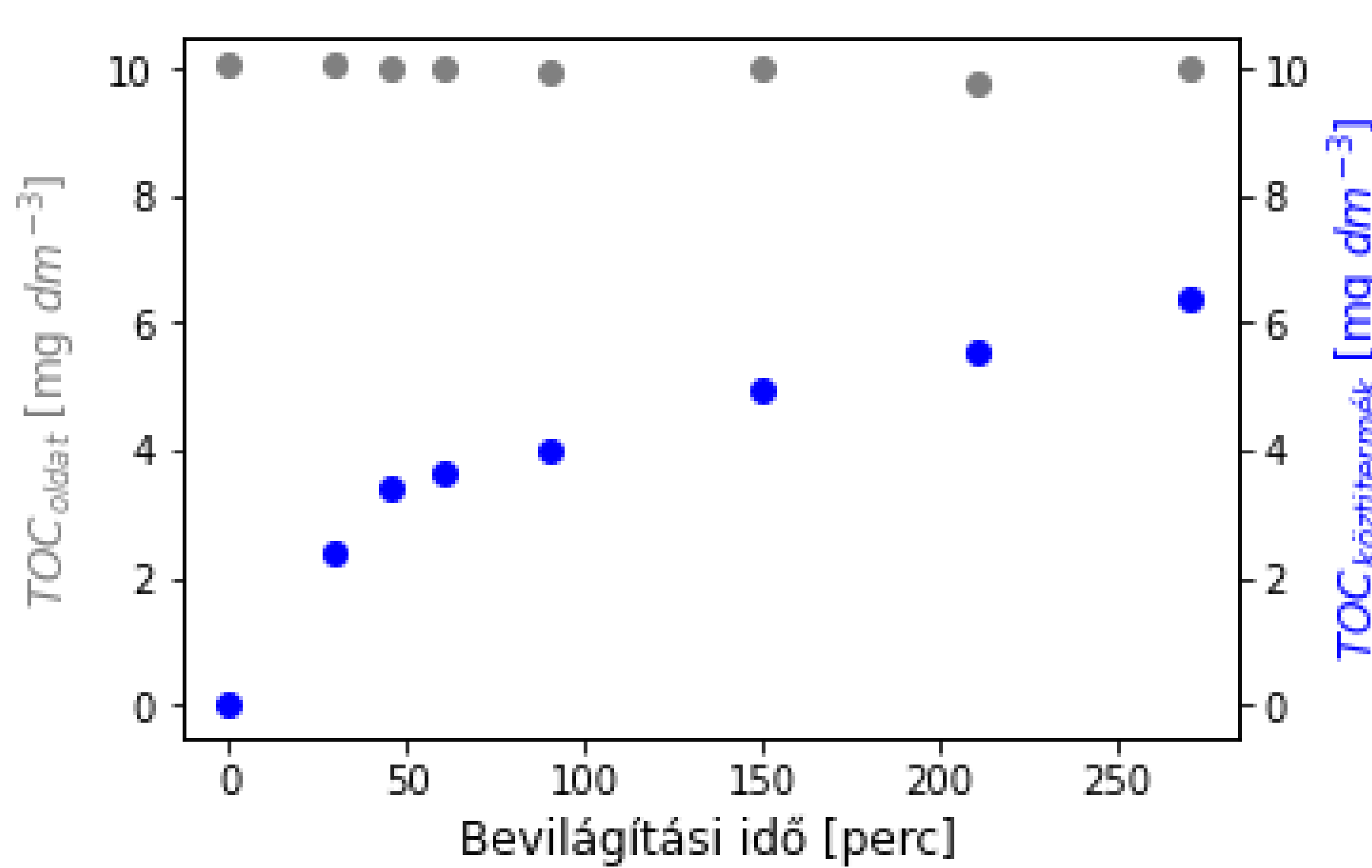
7-OH-kumarin kezdeti képződési sebesség
10⁻¹⁰ mol dm⁻³ perc⁻¹

| | UV | Vis |
|------------------------------|-------|-----|
| Degussa P25 TiO ₂ | 331,5 | 0,2 |
| N-TiO ₂ | 43,7 | 5,3 |

Degussa P25 TiO₂: 85 % anatóz 15 % rutil

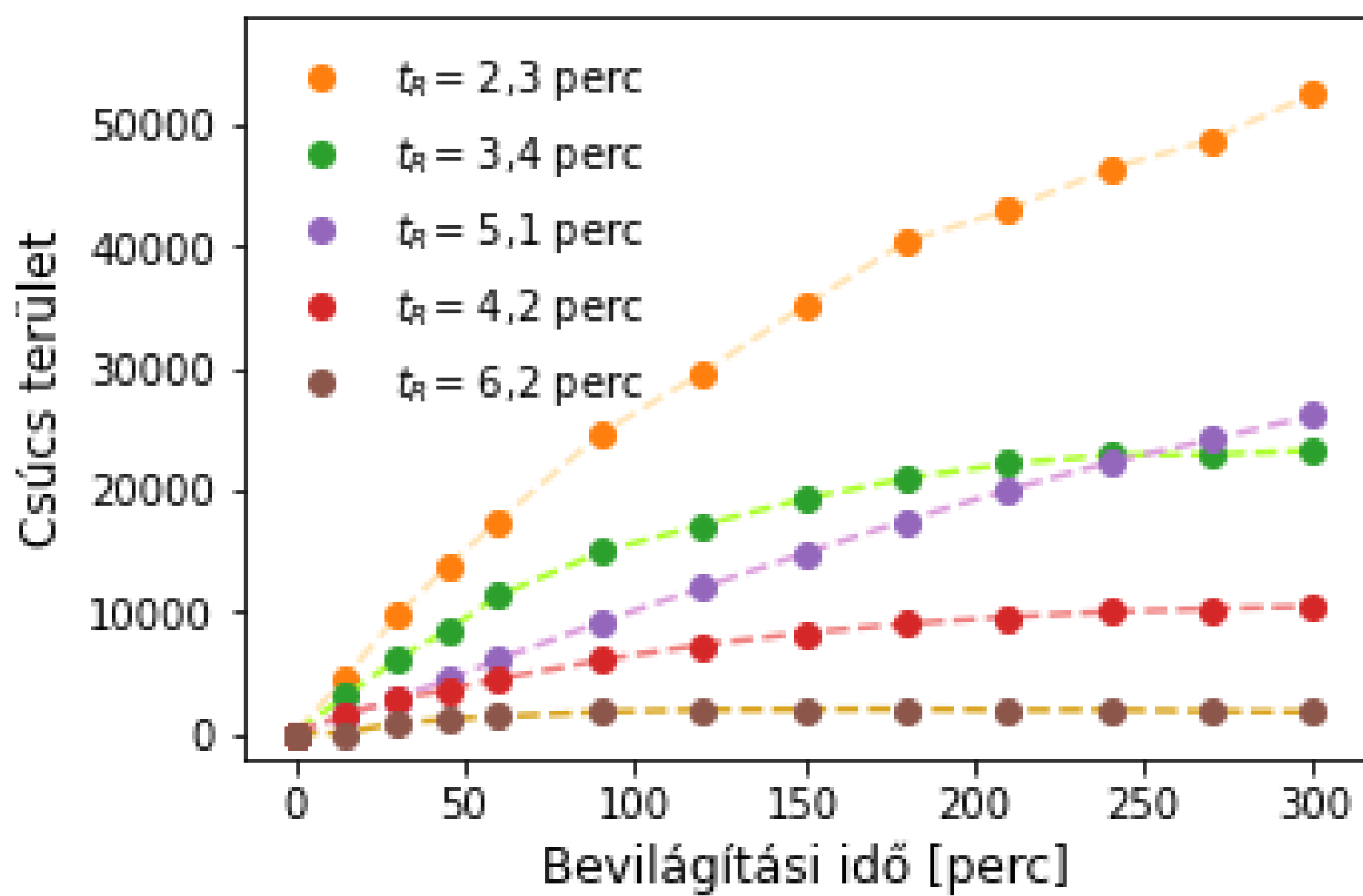
N-TiO₂: 100 % anatóz

Fotolízis (UV)



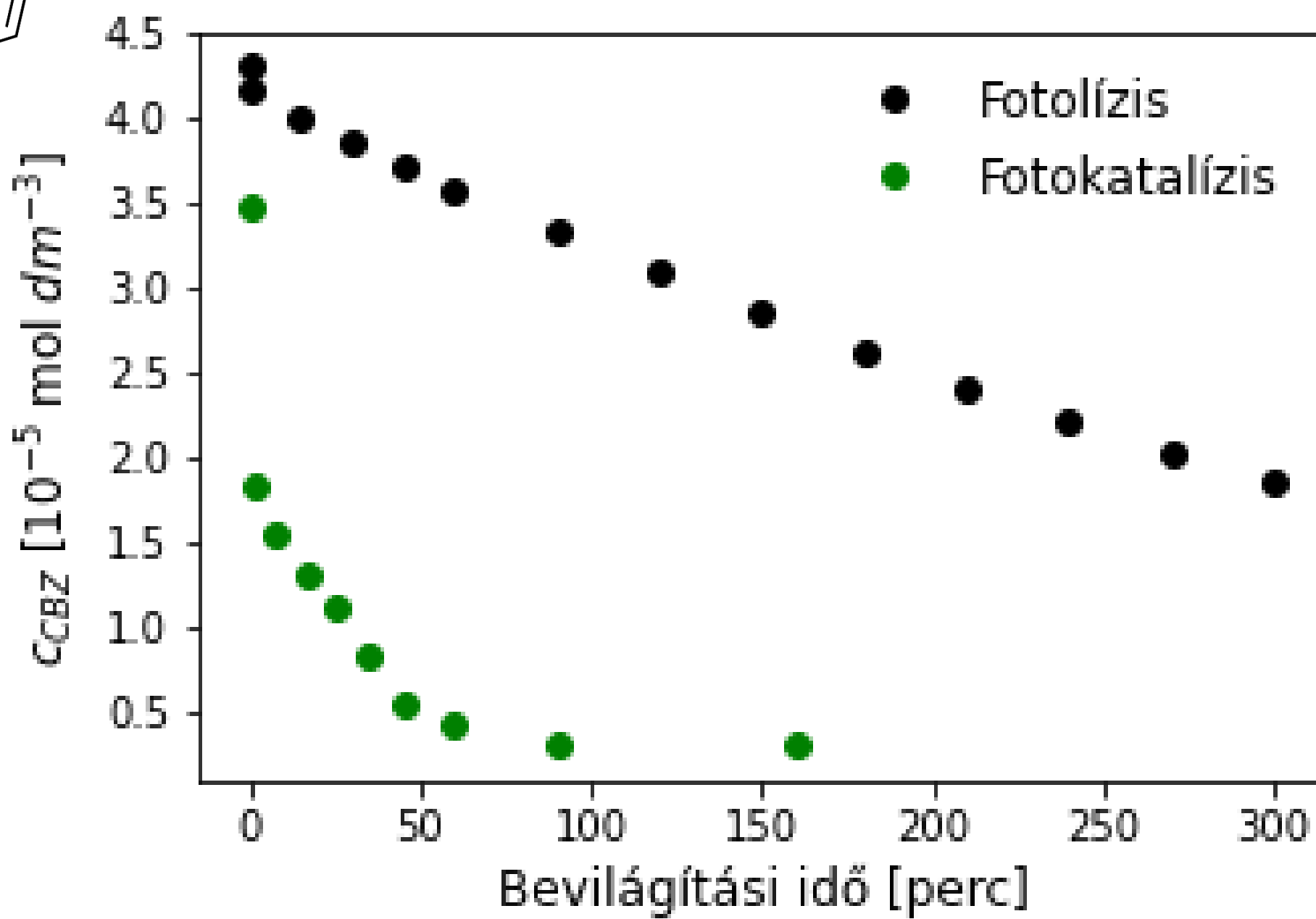
Ábra 1: Szerves széntartalom változása fotolízis során.

Az oldat TOC tartalma nem változik, miközben a CBZ koncentrációja csökken, a szennyező átalakul, de mineralizáció nem történik.



Ábra 4: Köztitermek képződése fotolízis során.

Karbamazepin (CBZ)



Ábra 2: CBZ koncentráció változása a bevilágítási idő függvényében.

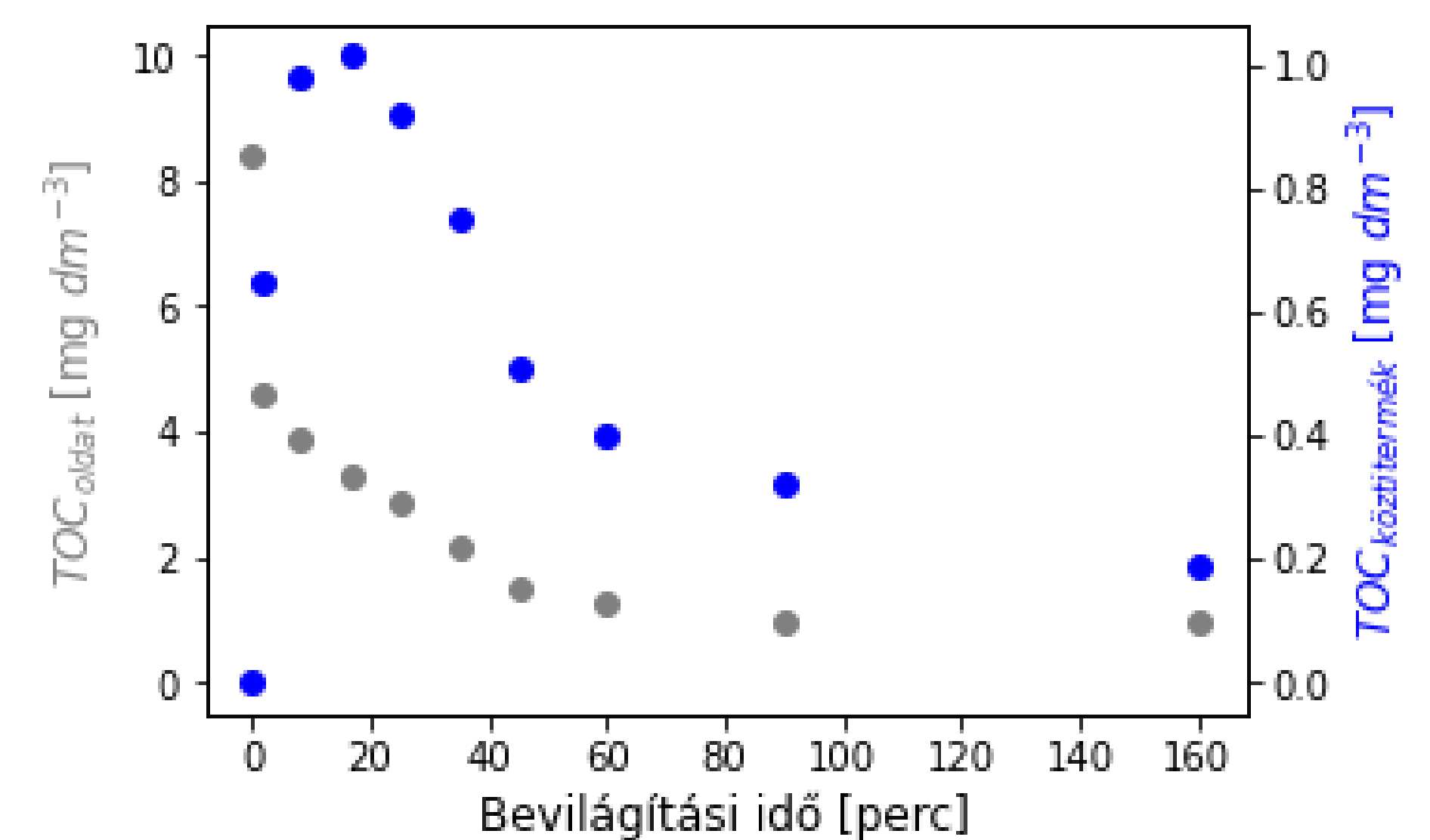
$$TOC_{köztitermek} = TOC_{oldat} - TOC_{CBZ}$$

Táblázat 2: Köztitermek kezdeti képződési sebessége.

| t _R [perc] | Fotolízis (a) 0 - 16 perc [mAU perc ⁻¹] | Fotokatalízis (b) 0 - 15 perc [mAU perc ⁻¹] | b/a |
|--------------------------|---|---|-----|
| 2,3 | 445 | 4470 | 10 |
| 3,4 | 328 | 5404 | 16 |
| 4,2 | 108 | 482 | 4 |
| 5,1 | 207 | 3568 | 17 |
| 6,2 | 49 | 828 | 17 |

Fotolízisnél a köztitermek felhalmozódnak, míg a fotokatalízisnél degradálódnak is.

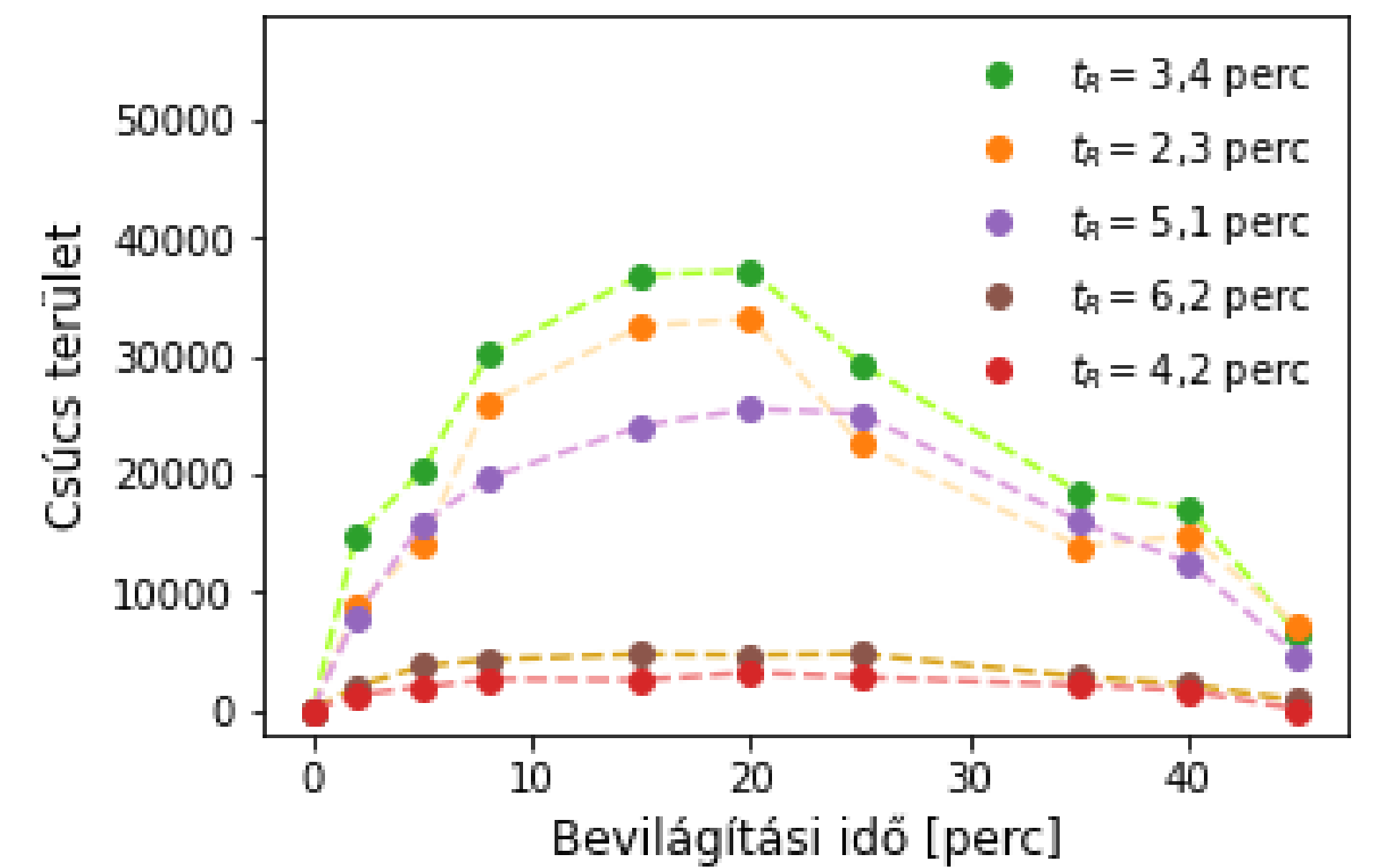
Fotokatalízis (UV + TiO₂)



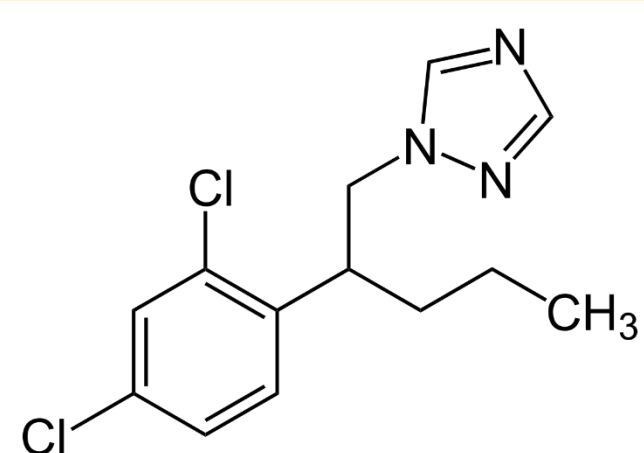
Ábra 3: Szerves széntartalom változása fotokatalízis során.

Az oldat TOC tartalma csökken.

A kiindulási anyag és a köztitermek is elbomlanak.



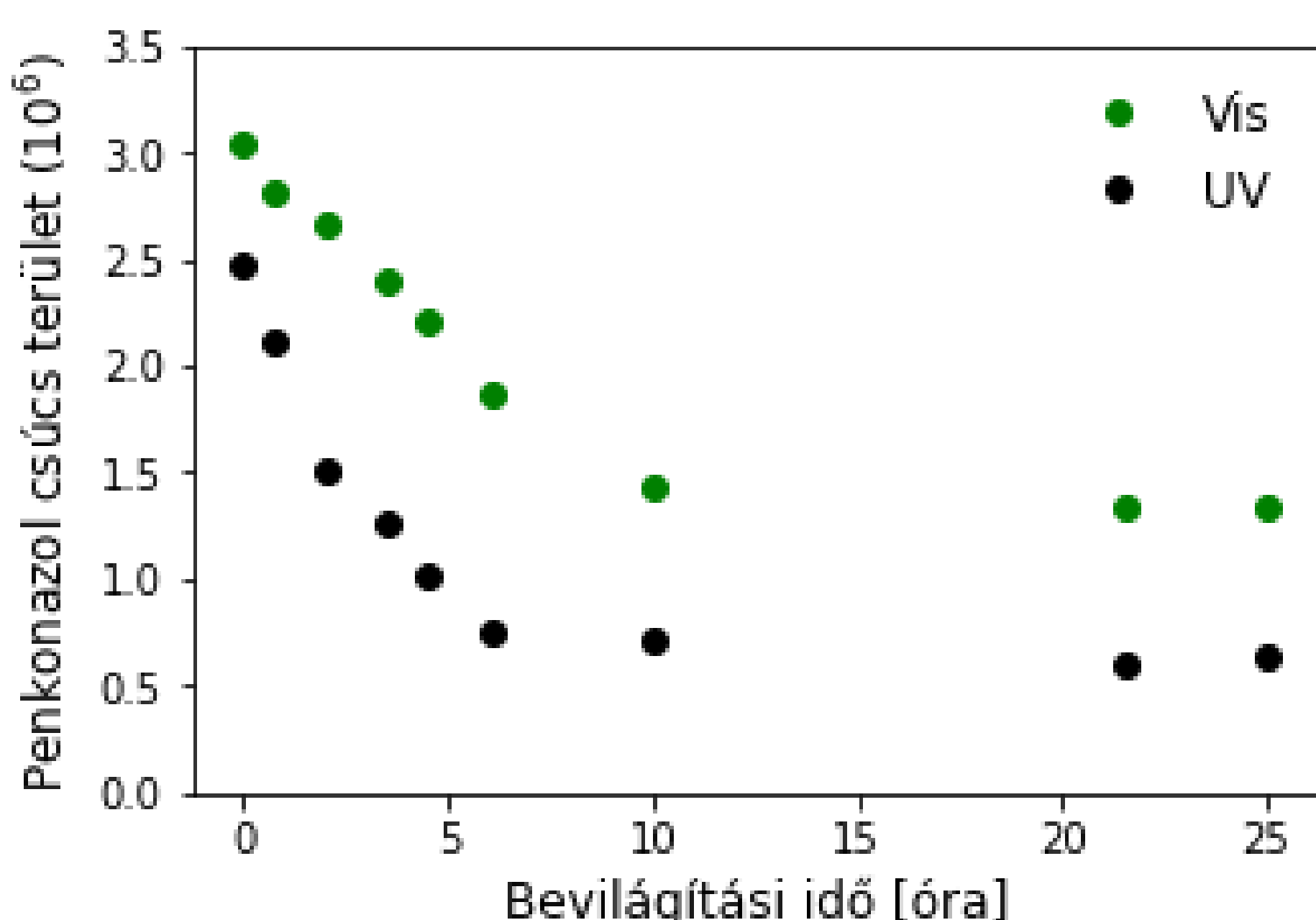
Ábra 5: Köztitermek mennyiségének alakulása a fotokatalitikus kísérletekben.



Ábra 6: A penkonazol szerkezeti képlete.

Táblázat 3: A Topas EC-100 növényvédőszer összetétele.

| Kémiai név | Koncentráció [%] |
|-------------------------------|------------------|
| Penkonazol | 10-20 |
| ciklohexanon | 10-20 |
| 2-metil-propán-1-ol | 3-5 |
| (2-metoximetiletóxi)-propanol | 50-70 |



Ábra 7: Penkonazol mennyiségének időbeli alakulása.

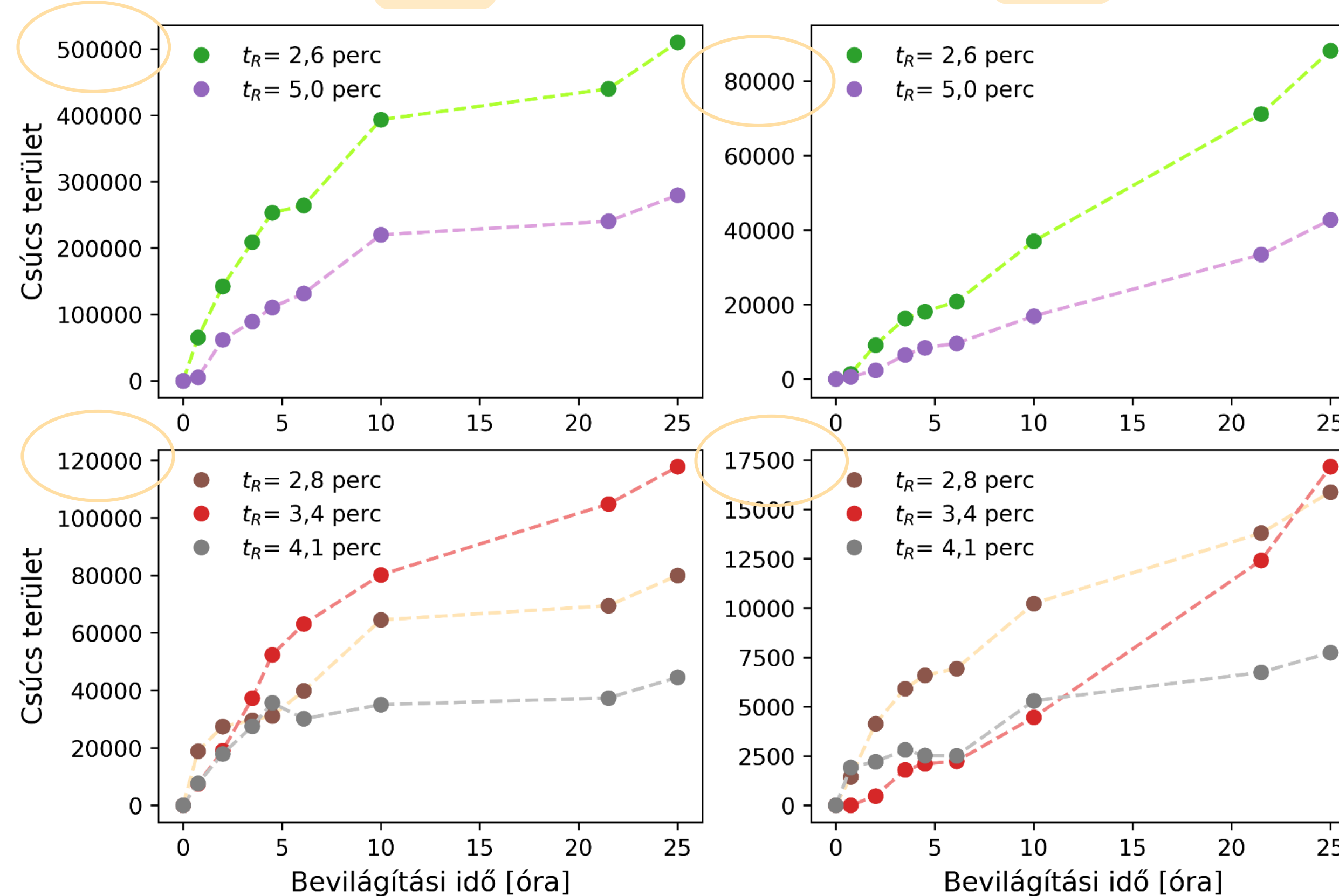
A penkonazol bomlási sebessége UV fényben 0,47 mAU perc⁻¹,
látható fényben 0,16 mAU perc⁻¹.

Topas EC-100

Fotokatalízis (UV + N-TiO₂)

UV

Vis



Ábra 8: Köztitermek képződése Topas EC-100 oldatában fotokatalízis során.

A Topas EC-100 TOC változása a bevilágítás során UV fényben 2,20 mg dm⁻³,
látható fényben 0,26 mg dm⁻³.

A köztitermek képződési sebessége kisebb látható fényben, mint UV fényben.

Összefoglalás

- A Degussa P25 TiO₂ tartalmú szuszpenziók szennyeződései UV besugárzás után mineralizálódtak.
- N-TiO₂ és látható fény alkalmazása esetén a bomlási folyamat hatékonysága lényegesen alacsonyabb volt.

További kutatási irány:

- Kísérletek Degussa P25 TiO₂ és látható fényben is aktív – N-TiO₂ – katalizátorokkal.
- HPLC-MS-MS módszerrel köztitermek meghatározása.
- Toxicitás vizsgálata.
- További gyógyszer molekulák és növényvédőszer vizsgálat.
- Ezeknek a fotokatalitikus kísérleteknek az eredményei hasznos információkkal szolgáltak a hibrid rendszerek kifejlesztéséhez, amelyek e módszer és más fejlett oxidációs eljárások, például nem termikus plazma (NTP) eljárás kombinációján alapulnak.

Támogatások:

Kocsis Gábor kutatási munkáját az Innovációs és Technológiai Minisztérium Új Nemzeti Kiválósági Programja (ÚNKP-21-2) támogatta. Ezt a munkát a Magyar Innovációs és Technológiai Minisztérium Széchenyi 2020 programja támogatta a GINOP-2.3.2-15-2016-00016 projekt keretében, valamint a Magyar Nemzeti Kutatási, Fejlesztési és Innovációs Hivatal a kétoldalú magyar- Francia S&T Együttműködési Program (projekt kód 2019-2.1.11-TÉT-2019-00033).