

g-C₃N₄ 的快速製備用於可見光降解一氧化氮之研究

游勝傑，中原大學環境工程學系教授

王雅玢，中原大學環境工程學系教授

范明順，中原大學環境工程學系研究生

甘飛龍，中原大學環境工程研究所專題生

一、前言

近年來，由於工業化和文明的快速發展，產生愈來愈多的空氣污染物，影響空氣品質。NO_x 被認為是全球空氣污染的指標，包括一氧化氮 (NO) 和二氧化氮 (NO₂)。其中人類活動產生的 NO_x，因為是臭氧的前趨物，且由 NO 和臭氧反應產生的 NO₂ 比 NO 更有害 (Lee, et al)，因此 NO_x 的削減受到大家許多的關注

近年來，光催化技術因其降解 NO 的能力好以及價格不高、可持續反應和精進的技術而引起了廣泛討論。光催化劑在光催化技術中是重中之重，在眾多光催化劑中，石墨碳氮化物 (g-C₃N₄) 具有無毒、高光敏性、高氧化還原電位、天然豐度、成本低廉、合成方法簡單等優點，被認為是一種很有前景的光催化劑，此外 g-C₃N₄ 基於窄帶隙可表現出更好的可見光吸收。(Fu, Junwei, et al)。

本研究利用測定可見光下 g-C₃N₄ 的光催化去除 NO 效率來了解合成 g-C₃N₄ 的重要參數，並分析 NO 轉化為 NO₂ 之比例，了解處理後的副產物，最後進行長交測試以評估 g-C₃N₄ 的穩定性。

二、研究方法

1、g-C₃N₄ 的合成

g-C₃N₄ 的合成方法如下:將不同量的尿素 (CH₄N₂O) 放入坩堝中，550°C 烘烤 2 小時，室溫冷卻得到 g-C₃N₄。尿素用量分別為 30 克、50 克、80 克，分別命名為 30 CN、50 CN、80 CN。

2、光催化測試流程

在可見光下評估光催化劑去除 NO 的效率，第一步將 0.2 克光催化劑在 10 毫升去離子水中進行超音波處理，第二步將此充分混合的溶液塗在直徑 12 cm 的培養皿上，然後在 80 °C 下乾燥 2 小時以去離子水。將塗有光催化劑的培養皿放入帶有玻璃窗和 15 公分氙燈(OSRAM, 300W)的反應室中 (30 厘米長 × 15 厘米寬 × 10 厘米高)，NO 濃度為 500 ppb，流量為 1.5 公升/分鐘。化學發光 NO_x 分析儀每分鐘以數字方式測定 NO 和 NO₂ 濃度 (Sabio 6042)。

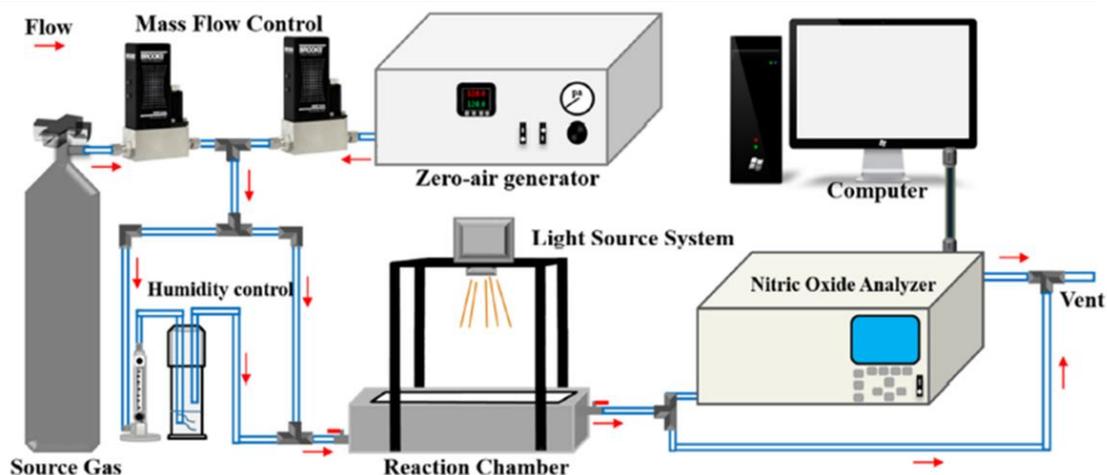


圖 1. 光催化脫硝系統示意圖。

三、 結論與討論

1、 光催化效率

進行可見光下的光催化 NO 去除實驗以評估 g-C₃N₄ 的光催化 NO 去除效率，(圖 2a)，30 CN、50 CN、80 CN 的光催化效率分別為 53.6%、58.8%、55%，50 CN 樣品的的光催化性能最好，證明在相同合成條件下，50 克尿素是最佳參數。圖 2(a)的結果顯示，當使用 50 克尿素時，形成的 g-C₃N₄ 量比 30 克和 80 克更均勻，如圖 2(b) 所示，50 CN 的反應速率 (C/C₀) 高於 30 CN 和 80 CN，在此 50 CN 在光催化反應的前 10 分鐘內表現出最高的反應速率，並在實驗結束前達到穩定狀態。因此 50 CN 在可見光下光催化去除 NO 具有潛在作用。

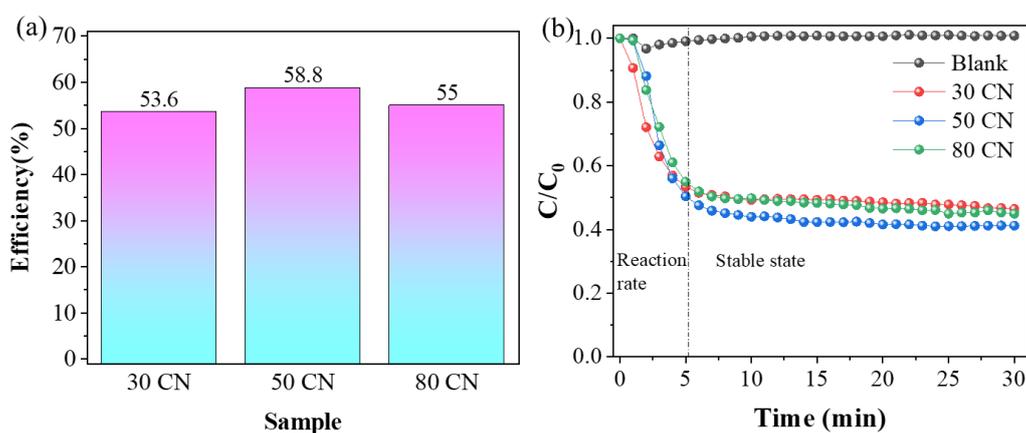


圖 2. 光催化 NO 去除效率(a) 和 g-C₃N₄ 的反應速率

合成的 g-C₃N₄ 的輸入和輸出量見表 1。製造過程中的質量損失被認為是尿素中的氫和氧在高溫下蒸發了。

表 1. 合成 g-C₃N₄ 的輸入輸出量

樣品	尿素重量(g)	g-C ₃ N ₄ 重量 (g)
30 CN	30	1.5

50 CN	50	2.3
80 CN	80	3.5

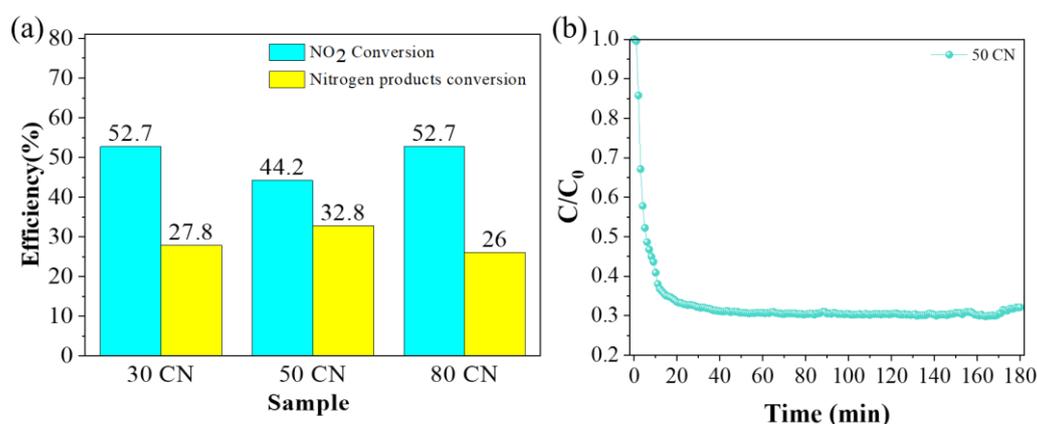


圖 3. g-C₃N₄ 的光催化 NO 轉化 (a)，和 50 CN 的長期試驗 (b)。

計算 NO 轉化率以確定材料光催化反應過程中產生的副產物，如圖 3 所示，30 CN、50 CN 和 80 CN 的 NO 轉化為 NO₂ 的比例分別為 27.8%、32.8% 和 26%。50 CN 的 NO 轉化為 NO₂ 比例高於 30 CN 和 80 CN。30 CN、50 CN、80 CN 轉化為其他產品的比例分別為 52.7%、44.2% 和 52.7%，這些結果證實 50 CN 去除 NO 的效率最好。根據圖 2 和圖 3 的結果，50 CN 相對 30CN 和 80CN 是較佳選擇，在可見光下通過光催化方法去除 NO 並產生較少 NO₂。

為了了解材料的穩定性，我們進行了長期測試。如圖 3(b) 所示，50 CN 的光催化性能在光催化反應時間的前 10 分鐘後保持穩定，並保持穩定直到光催化過程結束。結果證實 g-C₃N₄ 長期使用穩定，證明 g-C₃N₄ 的實際應用潛力。

表 2. 各論文的研究比較

樣品	流率 (L/mi)	NO 濃度 (ppb)	光源	效率 (%)	參考
H ₂ treated g-C ₃ N ₄	N/A	600	Visible-150w	48	Liao, Jiazhen, et al.
W-g-C ₃ N ₄	1	500	Visible-150w	37.2	Li, Guojun, et al
This study	1.5	500	Visible-300w	60	This study

四、結論

研究通過熱分解成功合成 g-C₃N₄ 光催化劑，50 CN 光催化劑通過形成均勻的 g-C₃N₄ 在可見光下表現出較佳的光催化性能，50 克尿素是合成條件的最佳參數，對於其他合成條件，可能因為通過高溫氧和氫的損失造成合成法的失重。50 CN 通過 NO₂ 轉化顯示出較高光催化效率，基於高效和長期使用，50 CN 展現出通過可見光驅動的光催化處理 NO_x 的應用潛力。

參考文獻

Lee, Sang Won, et al. "Recent advances in carbon material-based NO₂ gas sensors." *Sensors and Actuators B: Chemical* 255 (2018).

Fu, Junwei, et al. g-C₃N₄- Based heterostructured photocatalysts." *Advanced Energy Materials* 8.3 (2018): 1701503.

Liao, Jiazhen, et al. "Nitrogen defect structure and NO⁺ intermediate promoted photocatalytic NO removal on H₂ treated g-C₃N₄." *Chemical Engineering Journal* 379 (2020).

Li, Guojun, et al. "Facile synthesis of the Z-scheme graphite-like carbon nitride/silver/silver phosphate nanocomposite for photocatalytic oxidative removal of nitric oxides under visible light." *Journal of Colloid and Interface Science* 588 (2021).

Sun, Yanjuan, et al. "Improving g-C₃N₄ photocatalysis for NO_x removal by Ag nanoparticles decoration." *Applied Surface Science* 358 (2015).