

全可见光吸收氮化碳光降解雷尼替丁的性能及应用研究

艾伟¹, 段旭¹, 马小蕾¹, 张军^{2*}, 雷楷¹, 祁学玲¹, 宋海东¹
(1. 中国市政工程西北设计研究院有限公司, 甘肃 兰州 730000;
2. 西安建筑科技大学环境与市政工程学院, 陕西 西安 710055)

摘要:采用二次煅烧法制备了一种全可见光吸收的石墨相氮化碳(DCN-Cg)材料。将其应用于活化过一硫酸盐(PMS)光降解雷尼替丁(RNT),通过静态批量实验优化了反应条件。在催化剂投加量为0.8 g/L、底物浓度为5 mg/L、PMS浓度为0.32 mmol/L、pH=7时,30 min后对RNT的降解效率达91.19%,反应速率常数为0.084 min⁻¹。进一步在连续流面板反应器(5 cm×5 cm)中进行了系统评估,在涂覆量为1 mg/cm²时可连续处理约540 mL的废水(1 mg/L,>80%),并对常见共存阴离子表现出良好的抗干扰性。自由基淬灭实验和能带结构图表明,该体系主要活性氧物种为·O₂⁻、¹O₂和·SO₄⁻,而不涉及·OH的参与。

关键词:全可见光吸收;氮化碳;连续流反应器;过一硫酸盐;光降解

中图分类号:X131.2;TQ118

文献标志码:A

文章编号:0253-4320(2026)08-0199-07

DOI:10.16606/j.cnki.issn0253-4320.2026.08.033

Study on photodegradation performance and application of carbon nitride with full visible light absorption for ranitidine

AI Wei¹, DUAN Xu¹, MA Xiao-lei¹, ZHANG Jun^{2*}, LEI Kai¹, QI Xue-ling¹, SONG Hai-dong¹

(1.CSCEC AECOM Consultants Co., Ltd., Lanzhou 730000, China; 2.School of Environmental and Municipal Engineering, Xi'an University of Architecture and Technology, Xi'an 710055, China)

Abstract:In this study, a carbon nitride material (DCN-Cg) with full visible light absorption was prepared by a secondary calcination method. DCN-Cg was applied to the photodegradation of ranitidine (RNT) by activated peroxymonosulfate (PMS), and the reaction conditions were optimized by static batch experiments. The degradation efficiency of RNT reached 91.19% after 30 min with a reaction rate constant of 0.084 min⁻¹ at a catalyst dosage of 0.8 g/L, RNT concentration of 5 mg/L, PMS concentration of 0.32 mmol/L, and pH=7. Further systematic evaluations were carried out in a continuous flow panel reactor (5 cm × 5 cm). About 540 mL of wastewater (1 mg/L, >80%) could be treated continuously at a coating volume of 1 mg/cm² and showed promising interference resistance to coexisting anions. The free radical quenching experiments and energy band structure indicated that the main reactive oxygen species during the reaction were ·O₂⁻, ¹O₂, and ·SO₄⁻, without the participation of ·OH.

Key words:full visible light absorption; carbon nitride; continuous flow reactor; peroxymonosulfate; photodegradation

作为一种常见胃药,雷尼替丁(Ranitidine, RNT)在人体代谢后约70%以母体化合物形式经尿液排出并进入污水系统。即便RNT在水环境中浓度偏低,但具备转化为致癌物N-亚硝基二甲胺(NDMA)的潜在风险^[1],对生态环境及人类健康构成危害。由于稳定的分子结构导致传统污水处理方法难以实现有效去除,因此亟需开发环保、高效、安全的可持续去除技术。

在高级氧化技术中,已有研究发现单独过一硫酸盐(Peroxymonosulfate, PMS)体系可用于RNT降

解,但通常需要高剂量投加,否则降解速率较低^[2]。PMS在无催化剂情况下主要依赖自分解生成自由基(·SO₄⁻和·OH),而该过程较慢且易受环境基质的影响,导致降解效率下降。因此,开发高效催化剂以提高PMS活化效率,降低PMS用量,提升RNT降解速率和选择性,是推动该技术实际应用的关键。

氮化碳(g-C₃N₄)具备可见光响应及低成本制备等优势^[3]。然而,块状g-C₃N₄可见光吸收范围仍然有限。近年来,研究人员通过纳米片化、元素掺杂、构建异质结等策略对g-C₃N₄进行改性,但这些

收稿日期:2025-10-16;修回日期:2026-05-25

基金项目:中建股份科技研发计划(CSCEC-2025-Q-55)

作者简介:艾伟(1994-),男,硕士,中级工程师,研究方向为污水深度处理及催化氧化水处理技术;张军(1974-),男,博士,高级实验师,研究方向为光催化水处理技术,通讯联系人,zhangjun@xauat.edu.cn。

方法往往存在剥离工艺复杂、掺杂均匀性难以控制、异质结制备成本高等问题^[4]。相比之下,二次煅烧法是一种简便、高效、适用于大规模合成的改性策略,通过调控热处理温度和气氛,可在 g-C₃N₄ 边缘引入石墨化碳,从而提高电子传输效率、促进光生载流子分离。

本研究采用二次煅烧法制备了一种边缘石墨化的氮化碳(DCN-Cg)催化剂,协同活化 PMS 并高效光降解 RNT。对材料的电子结构和光学性能进行了系统表征,采用静态批量反应体系优化初始反应条件,并在设计的连续流平板反应器中评估其长期稳定性及实际应用潜力。总之,本文为光催化高级氧化体系在水污染治理中的工程化应用提供了新的研究思路。

1 材料与试剂

1.1 主要试剂

二聚氰胺、氢氧化钠(NaOH)、过硫酸氢钾(PMS)、雷尼替丁(RNT)、对苯醌(BQ)、L-组氨酸(L-His)、甲醇(MeOH)、叔丁醇(TBA)、乙二胺四乙酸二钠(EDTA-2Na)均为分析纯,购自阿拉丁化工有限公司(中国);实验用水为超纯水(18.2 MΩ·cm)。

1.2 材料合成方法

根据参考文献[5],制备了边缘石墨化氮化碳(DCN-Cg)。首先,将 15 g 二氰胺置于马弗炉中,以 10℃/min 升温至 550℃ 进行初步热聚合,持续 3 h 后得到块状氮化碳(DCN)。然后,将其研磨成粉末,并在氮气保护下,在管式炉中以 5℃/min 升温至 650℃,并保持 3.5 h 进行二次煅烧,以诱导氮化碳的石墨化,最终形成边缘石墨化氮化碳(DCN-Cg)。

1.3 材料表征

采用透射电子显微镜(TEM, FEI Talos F200S)观察材料的边缘局部形貌,分析其石墨化程度。X 射线衍射仪(XRD, Bruker D8 Advance)表征材料的主要晶面。傅里叶红外光谱(FT-IR, Nicolet iS50)获取材料表面官能团。X 射线光电子能谱(XPS, Thermo Scientific K-Alpha)拟合了材料的元素化学键。紫外-可见光谱(UV-Vis, 岛津 UV-3600)测试了材料的光学特性。光致发光光谱(PL, FLS-980)则用于评估光生载流子的分离。此外,利用电化学工作站(CHI 660E)通过莫特-肖特基(Mott-Schottky)分析材料的平带电位与半导体特性。

1.4 光催化性能评价

采用光催化降解实验评估边缘石墨化氮化碳

(DCN-Cg)对雷尼替丁(RNT)的降解性能,实验包括静态批量反应体系和连续流平板反应器。

静态批量反应体系:使用 300 W 氙灯(>420 nm, 光强 200 mW/cm²)作为可见光源。在 250 mL 石英反应器中,将 DCN-Cg 催化剂加入 50 mL RNT 溶液,先在暗处反应 30 min 以实现吸附-脱附平衡。随后加入 PMS 并开启光照,定时取样 1 mL,经 0.22 μm 滤膜过滤后,使用紫外-可见分光光度计(Agilent Cary 60)在 314 nm 波长下检测吸光度,据此计算 RNT 的降解效率和动力学常数。

连续流平板反应体系:自行设计平板式光催化反应器(5 cm×5 cm),其中 DCN-Cg 催化剂固定于反应面板表面,涂覆量为 1 mg/cm²,RNT 溶液以设定流速(3 mL/min)由蠕动泵连续输送至反应区,并在光照射下发生降解。反应液定期采样,并计算降解效率。考察材料在连续流体系下的降解性能及长期稳定性。

2 结果与讨论

2.1 催化剂表征

2.1.1 透射电镜

通过透射电镜观察了材料的微观形貌。如图 1(a)所示,DCN-Cg 呈现层状或片状结构,结构之间表现出相对无序的堆积状,尺寸约为 100 nm。尽管氮化碳整体结构呈现无序性,但从图 1(b)的高分辨透射电镜(HRTEM)图像中发现,在局部放大边缘观察到一定的晶格条纹,其间距约为 0.213 nm,对应石墨(100)晶面^[6]。这一结果表明,二次热聚合过程中,石墨烯可能被缝合至氮化碳的边缘,从而在局部区域形成一定程度的有序结构,为材料的结构演变提供了直接的形貌证据。

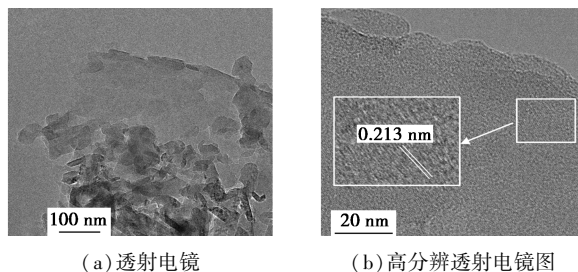


图 1 DCN-Cg 的透射电镜和高分辨透射电镜图

2.1.2 X 射线光电子能谱

利用 X 射线光电子能谱分析了材料的化学组成。在图 2(a)所示的 C 1s 谱图中,DCN 样品在 284.8、286.4 eV 和 288.24 eV 处出现了 3 个特征峰,分别对应于 C—C/C=C、C=N 和 (N)₂—C=N

键^[7]。相比之下,DCN-Cg 的 C=N 和 $(N)_2-C=N$ 信号向高结合能方向移动,这可能是二次热聚合导致材料表面电子云密度变化^[8]。同时,石墨 sp^2 碳 (284.8 eV) 信号的比例从 11.22% 增加至 11.71%,表明材料石墨化程度有所提高。在图 2(b) 中,DCN 的主要特征峰位于 398.67、400.41 eV 和 401.33 eV,分别对应于 C—N=C, N—(C)₃ 和 C—NH 键^[9]。相应的,DCN-Cg 中 3 个信号也向高结合能方向移动,分别位于 398.75、400.52 eV 和 401.42 eV,进一步表明氮化碳中氮的电子环境发生了变化。

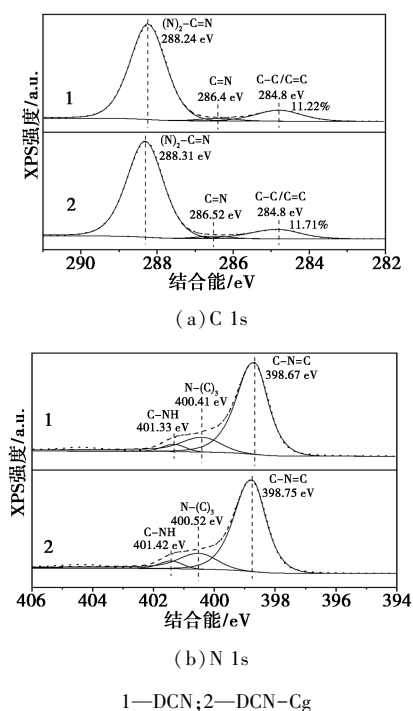


图 2 DCN 和 DCN-Cg 的 XPS 谱图

2.1.3 X 射线衍射光谱

图 3 所示的 X 射线衍射光谱对比了材料的晶体结构特征。在 12.89° 和 27.48° (2θ) 处发现了 DCN 的衍射峰,分别对应于氮化碳的 (100) 和 (002) 晶面^[10]。相比之下,DCN-Cg 的 (100) 峰略微偏移至 12.84° ,而 (002) 峰向高角度偏移至 27.70° ,这表

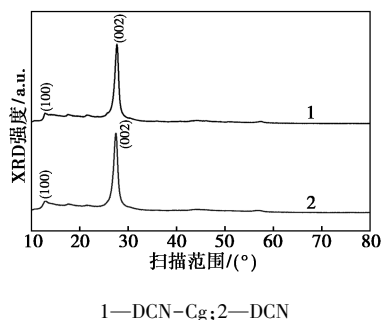


图 3 DCN 和 DCN-Cg 的 XRD 图谱

明堆积结构更加规整。同时, (100) 峰的位置变化幅度较小,说明基本晶体结构未发生明显改变。上述结果表明,二次煅烧优化了 DCN 的层状结构和结晶特性。

2.1.4 傅里叶红外光谱

为探究 DCN 和 DCN-Cg 的官能团变化及结构稳定性,对两者进行傅里叶红外分析,结果如图 4 所示。DCN 在 $3\ 090\text{ cm}^{-1}$ 处出现宽吸收峰为 N—H 或 O—H 的伸缩振动^[11]。在 DCN-Cg 中该峰位移至 $3\ 192\text{ cm}^{-1}$,表明边缘石墨化可能影响了材料内部的氢键环境或分子间相互作用。在 $1\ 660\sim 1\ 240\text{ cm}^{-1}$ (DCN-Cg) 和 $1\ 670\sim 1\ 190\text{ cm}^{-1}$ (DCN) 范围内,两者均表现出 C=N、C—N 和芳香 C=C 的特征吸收峰^[12],峰的偏移可能是由于石墨化调控了氮化碳骨架的电子结构,导致分子骨架中电子云密度变化。同时三嗪环的振动峰 ($\sim 808\text{ cm}^{-1}$) 未发生明显变化,说明其结构完整性得以保持。

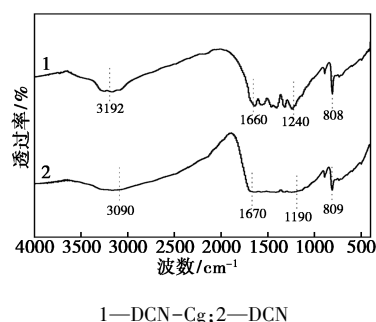


图 4 DCN 和 DCN-Cg 的 FT-IR 图谱

2.1.5 紫外漫反射

材料的光学吸收如图 5(a) 所示。DCN 的光吸收截止边位于约 450 nm 处,主要归因于 $n-\pi^*$ 电子跃迁^[13]。与 DCN 相比,DCN-Cg 的光吸收截止边发生了红移,表明边缘石墨化可能降低了材料的带隙。同时,伴随着吸收尾峰的出现使其吸收范围拓展至全可见光区域。此外,在 500 nm 左右,DCN-Cg 出现了一个新的吸收带,这可归因于七聚嗪单元中边缘 N 原子上的孤对 $n-\pi^*$ 跃迁^[14],这一特征在 DCN 中并未出现。

进一步通过变换后的 Kubelka-Munk 函数计算分析带隙变化,结果如图 5(b) 所示,DCN-Cg 的带隙能从 2.85 eV 缩小到 2.58 eV ,表明可以吸收更多的可见光。此外,DCN-Cg 出现了中间能隙态,且其带隙能量约为 2.19 eV ,这一变化与 UV-Vis 中新出现的吸收能带相对应。中间能隙态的出现有助于加速光生电子空穴对的分离和转移,抑制光生载流子

的重组。

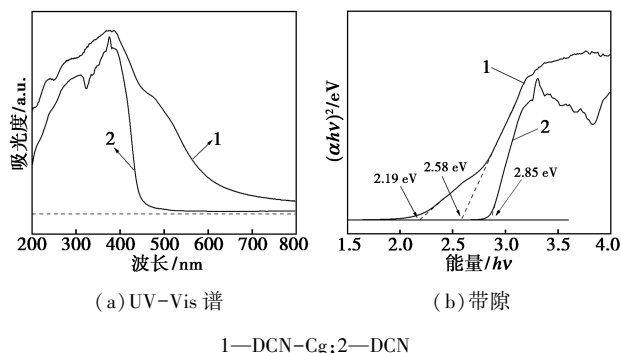


图 5 DCN 和 DCN-Cg 的 UV-Vis 谱和带隙

2.1.6 稳态荧光光谱

材料的稳态荧光光谱如图 6 所示。DCN 在约 400~600 nm 范围内的发射峰极为强烈,表明其光生电子-空穴复合率较高。这主要归因于 $\pi-\pi^*$ 跃迁过程中电子与空穴的复合^[15]。相较而言,DCN-Cg 的荧光强度明显减弱,说明其光生载流子复合过程受到有效抑制。在二次热聚合过程中,由于片层间的堆积方式发生变化,可能形成了更有利于电子分离和传输的结构,从而减少了荧光发射。

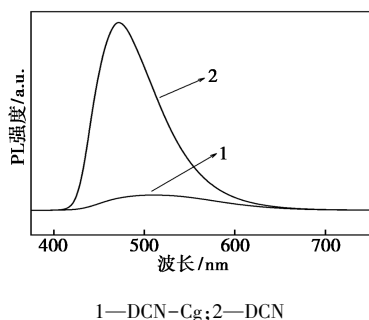


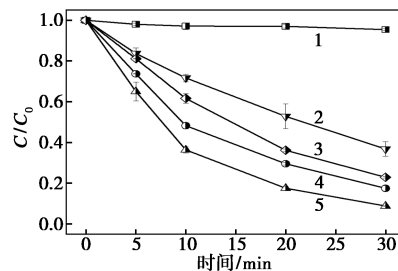
图 6 DCN 和 DCN-Cg 的 PL 光谱

2.2 静态反应体系

2.2.1 不同催化剂的影响

不同材料对 RNT 的光降解效果如图 7 所示。结果表明,仅依靠 DCN-Cg 的表面吸附作用,RNT 的去除率仅为 4.59%,这表明材料表面物理吸附能力较弱。在添加 PMS 但无光照条件下,RNT 的降解效率提升至 63.24%,反应速率常数(k)达到 0.033 min^{-1} 。而在无 PMS 但有可见光照射时,RNT 的降解效率为 77.09%,反应速率常数为 0.0494 min^{-1} 。这表明可见光和 PMS 的存在均对提高光催化效率具有重要作用。当可见光与 PMS 协同作用时,30 min 后 RNT 的降解效率显著提高至 91.19%,反应速率常数提升至 0.0842 min^{-1} ,这可能是由于可见光激发增强了 PMS 的活化效率,同时光生电子促进了 PMS 的

分解,生成了更多的活性氧物种。值得注意的是,在相同条件下,DCN/PMS/可见光体系对 RNT 的降解效率为 82.49%,反应速率常数为 0.06 min^{-1} 。这一结果进一步证实,二次煅烧处理增强了材料的可见光吸收能力及 PMS 活化性能,从而显著提升了光催化效率。



1—暗吸附, $k=0.0017 \text{ min}^{-1}$;2—DCN-Cg/PMS, $k=0.033 \text{ min}^{-1}$;
3—DCN-Cg/可见光, $k=0.049 \text{ min}^{-1}$;4—DCN/PMS/可见光,
 $k=0.06 \text{ min}^{-1}$;5—DCN-Cg/PMS/可见光, $k=0.084 \text{ min}^{-1}$

图 7 不同催化剂对雷尼替丁降解的影响

2.2.2 PMS 投加浓度

《生活饮用水卫生标准》(GB 5749—2022)中限定硫酸盐的最大值为 250 mg/L ,折算后约等于 400 mg/L (0.65 mmol/L) PMS。为此,我们研究了限制在 $0.16 \sim 0.64 \text{ mmol/L}$ 范围内的 PMS 浓度对 RNT 去除的影响。结果如图 8(a) 所示,当 PMS 浓度为 0.16 mmol/L 时,在可见光照射下 DCN-Cg 对 RNT 的降解效率为 80.3%,反应速率常数仅为 0.0575 min^{-1} 。随着 PMS 浓度增加至 0.32 mmol/L 时,降解效率提高至 91.19%,反应速率提高了约 1.46 倍(为 0.0842 min^{-1})。继续增加 PMS 浓度至 0.48 mmol/L 和 0.64 mmol/L 时,降解效率和反应速率同样呈现逐步提高的趋势,这是因为较高浓度的 PMS 能够生成更多的活性氧物种。然而,需要注意的是,随着 PMS 浓度的增加,降解效率提升幅度逐渐减小,这表明在实际应用中应根据出水质量要求选择合适的 PMS 浓度,以平衡降解效率与反应成本。

2.2.3 催化剂投加量

如图 8(b) 所示,在 $0 \sim 1.0 \text{ g/L}$ 范围内考察了材料不同投加量对 RNT 降解效率的影响。在未加入催化剂时,由于 PMS 在水中的缓慢自发分解,30 min 后对 RNT 的降解效率仍达 73.27%,投加量逐渐增加至 0.8 g/L 时,由于材料表面光生电子对 PMS 的快速活化,降解效率整体呈现上升趋势,反应速率常数提高了 2.15 倍(从 0.039 min^{-1} 到 0.084 min^{-1})。然而,当催化剂用量进一步增加至

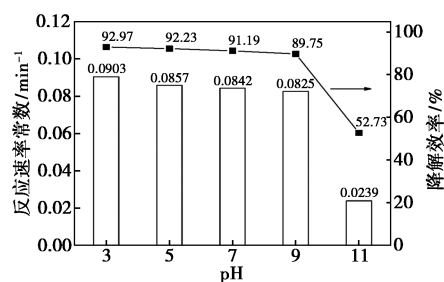
1.0 g/L 时,降解效率从 91.19% 略微下降至 90.12%。这可能是由于过量的催化剂颗粒之间发生相互遮挡或分散不均,进而影响其有效表面积,造成反应效率的下降^[16]。

2.2.4 RNT 初始浓度

合理控制污染物的浓度是优化反应条件的关键。如图 8(c) 所示,随着污染物浓度从 1 mg/L 增加至 5 mg/L,反应速率常数保持相对稳定,并且降解效率仍高达 92.37% 和 91.19%。然而,当污染物浓度升高至 10 mg/L 时,降解效率显著下降至 87.71%,而在 20 mg/L 时,降解效率进一步降低至 79.29%。这可能是由于随着反应体系污染物浓度升高,导致催化剂在短时间内无法有效降解过量的 RNT 分子^[17]。

2.2.5 不同 pH 条件

如图 8(d) 所示,溶液 pH 是另一个可能影响 PMS 活化过程和光催化作用的因素。在 pH=3~9 时 RNT 的降解效率相对较高,均保持在 90% 左右,且反应速率常数在 0.0825 min⁻¹ 至 0.0903 min⁻¹ 之间,表明该体系在酸性至弱碱性环境中均表现出较优的降解效果。当 pH 为 11 时,降解效率下降为



(d) 不同 pH 条件

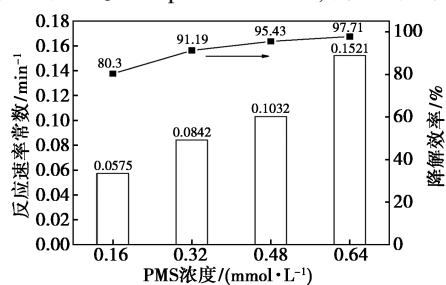
图 8 初始反应条件对静态反应体系降解 RNT 的影响

52.73%,反应速率常数也只有 0.0239 min⁻¹。这与材料的表面电荷及 PMS 的酸解离常数有关^[18]。然而,值得注意的是,相较于先前研究的单一 PMS 降解 RNT 体系^[2],该催化剂在活化 PMS 后,即使在 pH=11 的强碱性条件下,仍能保持一定的降解能力,表明其在碱性环境下的耐受性得到显著改善。

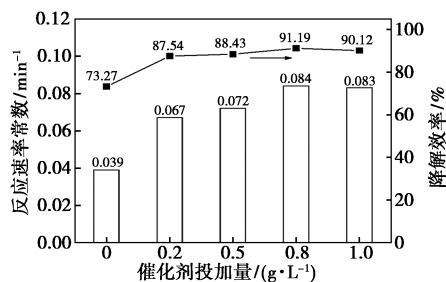
2.3 连续流平板反应体系

目前,大多数光催化降解研究仍停留在实验室规模,采用静态批量反应体系,但该体系存在催化剂难以回收、降解动力学受限、难以满足实际工程应用等问题。相比之下,连续流反应器可更真实地模拟实际水处理过程,提供稳定的流动环境,增强污染物与催化剂的接触效率,在连续流体系下评估催化剂的降解性能,可为其实际应用提供更科学可靠的依据。因此,设计的连续流平板反应器如图 9(a) 所示,包括蠕动泵、面板反应器和进出水系统。污染物 (1 mg/L) 经蠕动泵 (流速:3 mL/min) 输送至蛇形通道的平板反应器 (面积:25 cm²),经上端可见光照射后发生降解反应,最终产物流出至收集容器。

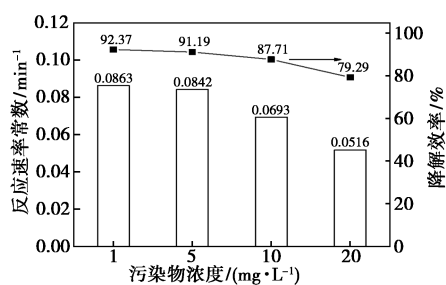
该装置模拟了动态流动条件下的光催化降解过程。降解性能如图 9(b) 所示。反应起始阶段,污染物浓度急剧下降,40 min 内 RNT 降解率已达到约 70%。随后,在 60 min 内降解率进一步提高至 90% 以上,此时降解速率逐渐趋于平缓。在 90 min 后,曲线显示污染物浓度略有回升。这可能是长时间照射引起光腐蚀或 PMS 消耗,导致活性氧物种生成效率下降。当共存离子 (Cl⁻, SO₄²⁻, NO₃⁻ 和 HCO₃⁻, 浓度为 5 mmol/L) 存在时,对 RNT 的降解并无明显抑制,降解率仍保持在 80% 以上,表明该光催化体系对共存离子的抗干扰能力较强。此外,该平板反应器在 180 min 内可连续处理约 540 mL 废水 (降解率 >80%),表现了其在动态流动条件下的高效降解活性和实际应用潜力。



(a) PMS 投加浓度



(b) 催化剂投加量



(c) RNT 初始浓度

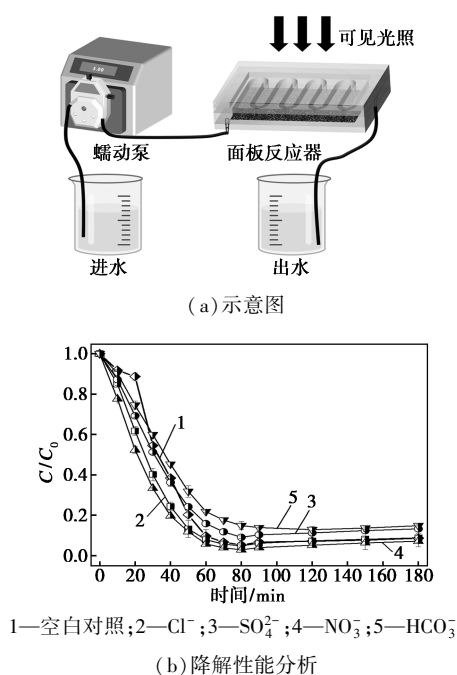


图 9 连续流反应器示意图和降解性能分析

2.4 活性氧物种淬灭实验

不同淬灭剂对 RNT 光降解的影响如图 10 所示。与对照组相比,各类淬灭剂均不同程度抑制了降解效率。其中,对苯醌的加入使降解效率降至 34.36%,反应速率常数仅为 $0.015\ 1\ \text{min}^{-1}$,表明 $\cdot\text{O}_2^-$ 是主要活性物种之一。加入 EDTA-2Na 后,降解效率为 58.77%,速率常数为 $0.031\ 9\ \text{min}^{-1}$,提示 h^+ 对反应亦有贡献。叔丁醇(淬灭 $\cdot\text{OH}$)与甲醇(淬灭 $\cdot\text{OH}$ 及 $\cdot\text{SO}_4^-$)抑制程度相近,说明 $\cdot\text{SO}_4^-$ 为主要参与自由基, $\cdot\text{OH}$ 作用可忽略。L-组氨酸抑制作用较弱,表明体系与单一 PMS 体系中以 $^1\text{O}_2$ 为主导的路径不同。该体系以 $\cdot\text{O}_2^-$ 和 $\cdot\text{SO}_4^-$ 主导的自由基反应为主。综上,体系的主要活性氧物种包括 $\cdot\text{O}_2^-$ 、 $\cdot\text{SO}_4^-$ 、 h^+ 及 $^1\text{O}_2$ 。

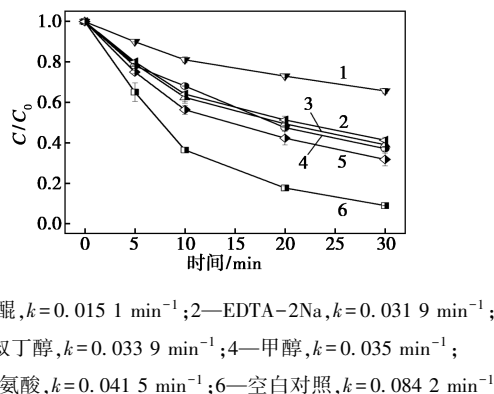
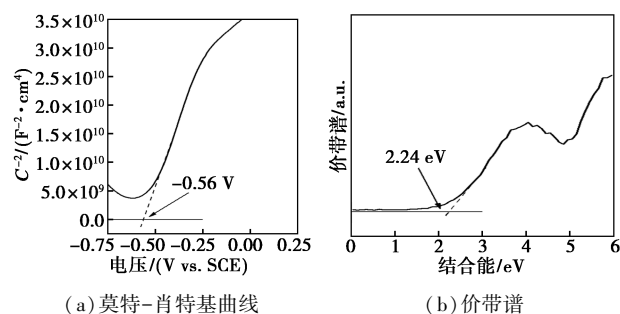


图 10 活性氧物种淬灭实验

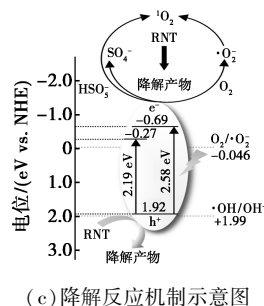
2.5 降解反应机制

通过莫特-肖特基曲线,价带谱分析了材料的能带结构,并推测了光降解机制,结果如图 11 所示。根据图中莫特-肖特基测量结果,平带电位为 $-0.56\ \text{V}$ vs.SCE。通常平带电位可视为材料的费米能级^[19]。因此计算得到 DCN-Cg 的费米能级约为 $-0.32\ \text{V}$ vs.NHE。进一步的,从价带谱图得出价带最大值相对于费米能级的距离为 $2.24\ \text{eV}$,计算出材料的价带位置为 $1.92\ \text{eV}$ vs.NHE。同时,结合材料的带隙和中间能隙值,进一步算出材料的导带和中间能隙位置分别为 $-0.69\ \text{eV}$ 和 $-0.27\ \text{eV}$ 。



(a) 莫特-肖特基曲线

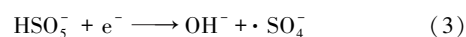
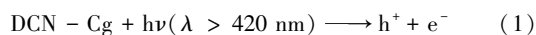
(b) 价带谱

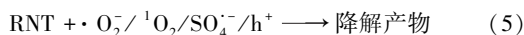
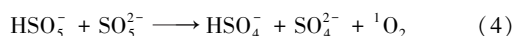


(c) 降解反应机制示意图

图 11 材料的莫特-肖特基曲线,价带谱及降解反应机制示意图

根据能带结构,推测 DCN-Cg/PMS 体系降解 RNT 的机制如下:在可见光照射下,DCN-Cg 被激发产生电子跃迁[式(1)]。由于其导带电位($-0.69\ \text{eV}$ vs.NHE)低于 $\cdot\text{O}_2^-$ 生成电位($-0.046\ \text{eV}$ vs.NHE),光生电子可将溶解氧还原生成 $\cdot\text{O}_2^-$ [式(2)]。中间能隙态可捕获低能光子,增强光响应。与此同时,PMS (HSO_5^-)在光生电子作用下活化,生成 $\cdot\text{SO}_4^-$ [式(3)]和 $^1\text{O}_2$ [式(4)],参与 RNT 降解。由于 DCN-Cg 价带电位($1.92\ \text{eV}$ vs.NHE)低于 $\cdot\text{OH}$ 生成电位($1.99\ \text{eV}$ vs.NHE),光生空穴无法直接氧化 H_2O 或 OH^- 形成 $\cdot\text{OH}$,但 h^+ 仍可直接氧化 RNT 或促进 PMS 活化,从而提高降解效率。





综上,在 DCN-Cg/PMS/Vis 体系中,光生电子与价带空穴协同作用,形成 $\cdot\text{O}_2^-$ 、 $\cdot\text{SO}_4^-$ 和 ${}^1\text{O}_2$ 等多种活性氧物种,共同促进 RNT 的高效降解[式(5)]。

3 结论

(1)以二聚氰胺为前驱体,通过简便的二次煅烧法成功合成了全可见光吸收氮化碳材料。石墨烯被缝合至氮化碳的边缘,诱导出现中间能隙态,从而有效扩宽光学吸收范围至全可见光谱,并显著抑制光生载流子的复合。

(2)静态批量反应体系初步评估了材料的催化活性,催化剂的引入加速了 PMS 的活化速率,并提高了其在碱性环境下的稳定性。连续流平板反应器实验结果表明,所涂敷的催化材料可稳定去除约 540 mL 的废水,并对常见阴离子表现出良好的抗干扰性。

(3)自由基淬灭结果表明, $\cdot\text{O}_2^-$ 、 ${}^1\text{O}_2$ 和 $\cdot\text{SO}_4^-$ 是该体系反应过程中的主要活性物种。综上,本研究为可批量合成的高效光催化剂的设计及其在连续流平板反应器中的应用提供了重要参考。

参考文献

- [1] King F J, Searle A D, Urquhart M W. Ranitidine-investigations into the root cause for the presence of *N*-nitroso-*N,N*-dimethylamine in ranitidine hydrochloride drug substances and associated drug products[J]. Organic Process Research and Development, 2020, 24(12): 2915-2926.
- [2] 艾伟,段旭,雷楷,等.过一硫酸盐修复雷尼替丁污染水体的性能、机制和毒性变化[J].应用化工,2024,53(5):1123-1128.
- [3] Yao Y, Wang Y, Lu T, et al. In-plane implanting carbon rings into carbon nitride to intrigue nonradical photodegradation[J]. Applied Catalysis B: Environmental, 2024, 342: 123363.
- [4] 朱蓓蓓,周杰,刁国旺.石墨相氮化碳的改性及在环境领域的应用研究进展[J].化工新型材料,2025,53(2):40-47,52.
- [5] Li F, Tang M, Li T, et al. Two-dimensional graphene/g-C₃N₄ in-plane hybrid heterostructure for enhanced photocatalytic activity with surface-adsorbed pollutants assistant[J]. Applied Catalysis B: Environmental, 2020, 268: 118397.
- [6] Li Z, Chen Y, Zhang Y, et al. Tuning interfacial charge transfer for efficient visible-light-driven photodegradation and simultaneous H₂ evolution[J]. Journal of Materials Science and Technology, 2024, 168: 35-49.
- [7] Quan Y, Li J, Li X, et al. Molten salt-assisted synthesis of carbon nitride with defective sites as visible-light photocatalyst for highly efficient hydrogen evolution[J]. Applied Catalysis B: Environment and Energy, 2025, 362: 124711.
- [8] Liang Y, Cao C, Zeng L, et al. Simultaneously improving the delocalization of π electrons and directional transfer of charge carriers in carbon nitride for superior photocatalytic hydrogen evolution[J]. Journal of Materials Chemistry A, 2024, 12(38): 26096-26102.
- [9] Song P, Xu B, Yang Q, et al. Alkaline metal derived secondary thermal polymerization for superior thin g-C₃N₄ nanosheets with efficient photocatalytic performance[J]. International Journal of Hydrogen Energy, 2024, 51: 425-435.
- [10] Hou S, Gao X, Wang S, et al. Precise defect engineering on graphitic carbon nitrides for boosted solar H₂ production[J]. Small, 2024, 20(39): 2302500.
- [11] Yu M, Chang S, Ma L, et al. Remarkable improvement in photocatalytic activity of g-C₃N₄ for NO oxidation through surface hydroxylation[J]. Separation and Purification Technology, 2025, 354: 128695.
- [12] Ming H, Bian X, Cheng J, et al. Carbon nitride with a tailored electronic structure toward peroxymonosulfate activation: A direct electron transfer mechanism for organic pollutant degradation[J]. Applied Catalysis B: Environmental, 2024, 341: 123314.
- [13] Wang L, Yang H, Wu Q, et al. Construction of visible-light-response K, Na doped g-C₃N₄/FeOCl photocatalysis-self-Fenton system for pollutants degradation in water[J]. International Journal of Hydrogen Energy, 2024, 80: 495-506.
- [14] Jiang D, Hu S, Qu Y, et al. Infrared irradiation-lattice vibration coupling-initiated $\text{N} \rightarrow \Pi^*$ electronic transition in carbon nitride nanosheets for increased photocatalysis[J]. Advanced Functional Materials, 2024, 34(16): 2311803.
- [15] Li J, Chen L, Chu X, et al. Synergistic modulation of $\pi-\pi^*$ and $n-\pi^*$ transitions by in situ phenol-like structure integration for efficiently wide-spectrum hydrogen production of ultrathin carbon nitride[J]. Small, 2024, 20(46): 2405013.
- [16] 李硕,李育珍,夏云生,等. AgCoO₂/g-C₃N₄ 催化剂的制备及其协同 H₂O₂ 光催化降解四环素的研究[J]. 现代化工, 2025, 45(2): 209-215.
- [17] 李佳欣. ZnIn₂S₄ 基光电极基底材料及其改性对雷尼替丁催化降解性能的影响研究[D]. 西安: 西安建筑科技大学, 2024.
- [18] 郑佳红, 黄植. Fe₃O₄/CoS/g-C₃N₄ 催化剂的制备及降解罗丹明 B[J]. 硅酸盐学报, 2024, 52(12): 3748-3760.
- [19] Huang X, Sun M, Humayun M, et al. In-situ synthesis of efficient N-graphyne/Bi/BiOBr photocatalysts for contaminants removal and nitrogen fixation[J]. Journal of Alloys and Compounds, 2024, 976: 173025. ■

欢迎订阅《现代化工》杂志,邮发代号 82—67。