

【11】證書號數：I692375

【45】公告日：中華民國 109 (2020) 年 05 月 01 日

【51】Int. Cl. : *B01J27/04* (2006.01) *B01J35/00* (2006.01)
 B01J37/04 (2006.01) *B01J37/10* (2006.01)
 B01J37/34 (2006.01) *C01B3/04* (2006.01)
 C02F1/30 (2006.01)

發明

全 5 頁

【54】名稱：可同時進行光催化產氫及降解環氧四環素之材料的製作方法與其應用

【21】申請案號：108104359 【22】申請日：中華民國 108 (2019) 年 02 月 11 日

【72】發明人：張章堂 (TW) CHANG, TANG-CHANG；田晶晶 (CN) TIAN, JING-JING

【71】申請人：國立宜蘭大學 NATIONAL ILAN UNIVERSITY
 宜蘭縣宜蘭市神農路一段 1 號

【74】代理人：陳天賜

【56】參考文獻：

TW 201836976A

CN 104324733A

WO 2015/059503A1

審查人員：陳子明

【57】申請專利範圍

1. 一種可同時進行光催化產氫及降解環氧四環素之材料的製作方法，其包含以水熱法製備硫化鉍並以光沉積法製備下步驟：(a)以水熱法製備硫化鉍，將水合硝酸鉍($(\text{Cd}(\text{NO}_3)_3 \cdot 4\text{H}_2\text{O})$)溶解於一異丙醇中，劇烈攪拌形成一均勻混合物；(b)取一硫化鈉(Na_2S)水溶液逐滴加入前述均勻混合物中，並將水溶液轉移至一高壓釜中，於一熱爐中加熱；(c)冷卻至室溫，得一黃色固體產物，以去離子水及乙醇清洗前述產物，乾燥之；(d)將前述硫化鉍(CdS)分散於前述乙醇溶液中並劇烈攪拌形成一均勻懸浮混合物；(e)將步驟(d)中的前述均勻懸浮混合物移至一石英光反應器中，以水合硝化銅及去離子水加入前述均勻懸浮混合物中；及(f)將前述步驟(e)中的均勻懸浮混合物在氮氣鼓泡下連續攪拌並以光照射，冷卻至室溫溶液過濾並用去離子水洗滌，並在高溫下在真空烘箱中乾燥，得一銅-硫化鉍(Cu-CdS)複合材料；其中，前述硫化鉍的製備係將 4.2 克的($\text{Cd}(\text{NO}_3)_3 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$)溶解在 100mL 異丙醇中並攪拌以形成前述均勻混合物，然後，將前述硫化鈉水溶液(100mL, 0.136M)逐滴加入前述均勻混合物中，並置於 160 的熱爐中加熱 48 小時，水熱處理後，將高壓釜正常冷卻至室溫，得到前述黃色固體產物，再用去離子水和乙醇清洗產物數次以除去雜質，然後在 60 下乾燥 12 小時；前述銅-硫化鉍的製備係將一定比例 CdS 分散在 20.0mL 乙二醇溶液中並攪拌以形成前述均勻的懸浮混合物，混合後，轉移到圓柱形石英光反應器中，其中封裝在石英內管內的 8W 高壓汞(Hg)蒸汽燈(Phillips, 最大波長 254nm)，將預定量的 $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$ 和 600mL 去離子水加入上述溶液中，沉積在催化劑上的 Cu 的重量百分比通過 $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$ 溶液的濃度計算，由光催化劑中 Cu 的重量百分比表示，沉積在催化劑上的 Cu 的重量百分比含量為 1% 至 8%，前述混合物在氮氣鼓泡下連續攪拌並以光照射 12 小時，隨後將前述溶液冷卻至室溫最後，將所得溶液過濾並用去離子水洗滌並在 80 下在真空烘箱中乾燥 6 小時。
2. 一種同時光催化產氫及降解環氧四環素之方法，其包含以下步驟：(a)利用一銅-硫化鉍(Cu-CdS)複合材料，將一環氧四環素置於一圓柱形反應器中進行光降解反應；及(b)將前述光降解反應以屏蔽以免受外部光照，並以 UV 燈照射，以磁力攪拌器攪拌步驟(a)之前

(2)

述複合材料；其中，前述銅-硫化鉻複合材料中，銅的重量百分比含量為 1% 至 8%；其中前述光照射強度為 0.97mW cm^{-2} 至 3.88mW cm^{-2} ；其中前述環氧四環素之濃度為 5mg L^{-1} 至 40mg L^{-1} ；其中於 UV 照射前將前述複合材料在黑暗中攪拌 30 分鐘；其中係利用光催化劑分散在含有硫化鈉(Na_2S)和亞硫酸鈉(Na_2SO_3)的水溶液中，作為犧牲劑；其中前述犧牲劑之濃度為硫化鈉(Na_2S)/亞硫酸鈉(Na_2SO_3)為 $0.05\text{M}/0.05\text{M}$ 至 $0.4\text{M}/0.4\text{M}$ 。

3. 如請求項 2 所述之同時光催化產氫及降解環氧四環素之方法，其中在反應過程中，使用一磁力攪拌器使光催化劑保持懸浮狀態，並以氮氣吹掃以徹底脫氣，以在大氣壓下完全除去氧氣，並用高壓汞蒸汽燈照射，定期收集氣體。
4. 如請求項 2 所述之同時光催化產氫及降解環氧四環素之方法，其中前述光降解反應於一單槽體中進行或於一 H 型雙槽中進行。

圖式簡單說明

圖 1 為本發明銅-硫化鉻複合材料之製備裝置示意圖；

圖 2 為本發明一系列具有不同銅負載量的銅-硫化鉻樣品進行光學吸收效率結果圖；

圖 3 為本發明銅-硫化鉻之複合材料中，不同銅含量對光催化產氫效率的影響；

圖 4 為本發明銅-硫化鉻之複合材料中，銅含量對 OTC 光降解效率影響；及

圖 5 為本發明銅-硫化鉻之複合材料中，循環時間對產氫效率的影響。

(3)

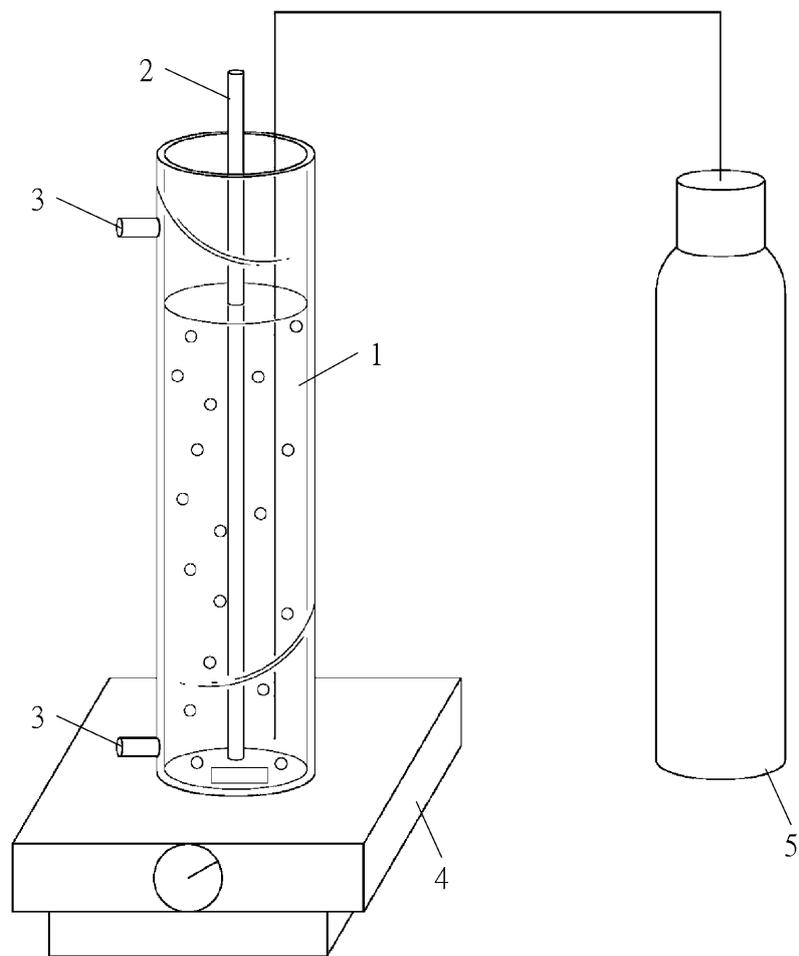


圖1

(4)

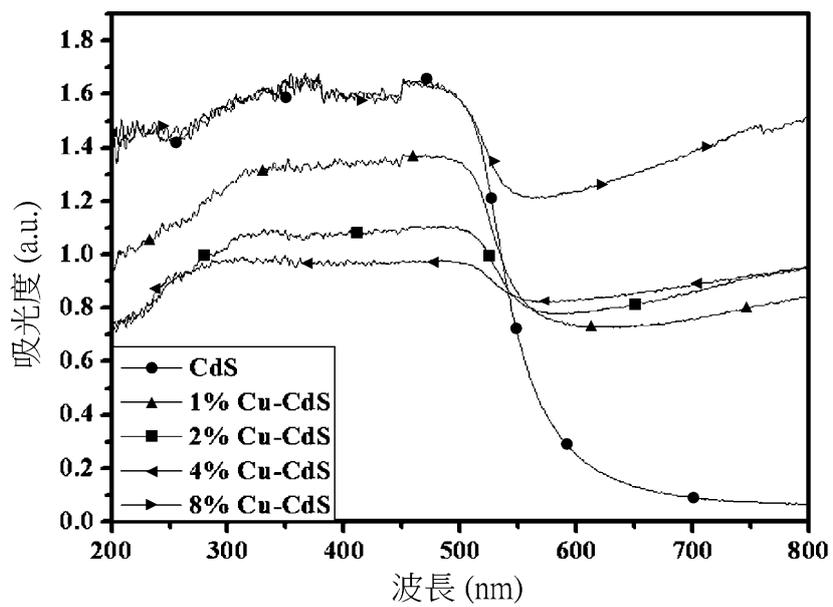


圖2

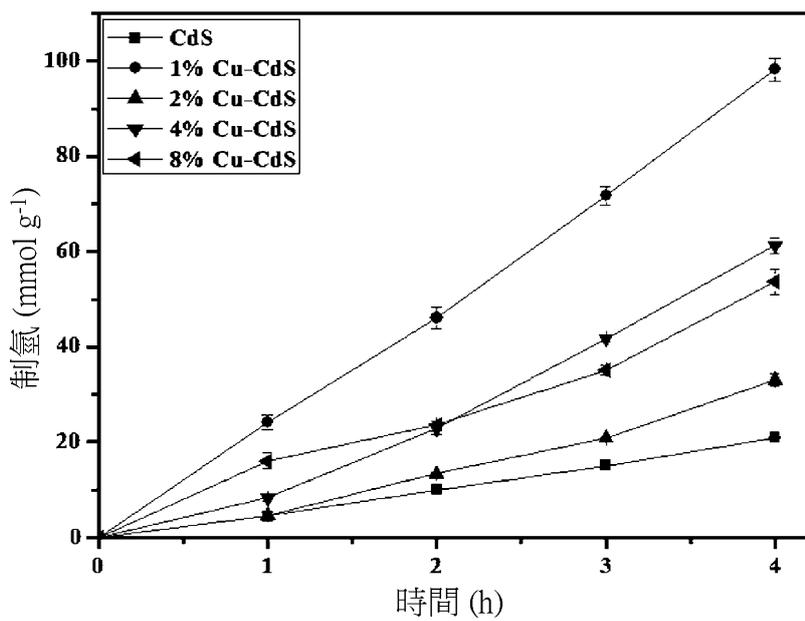


圖3

(5)

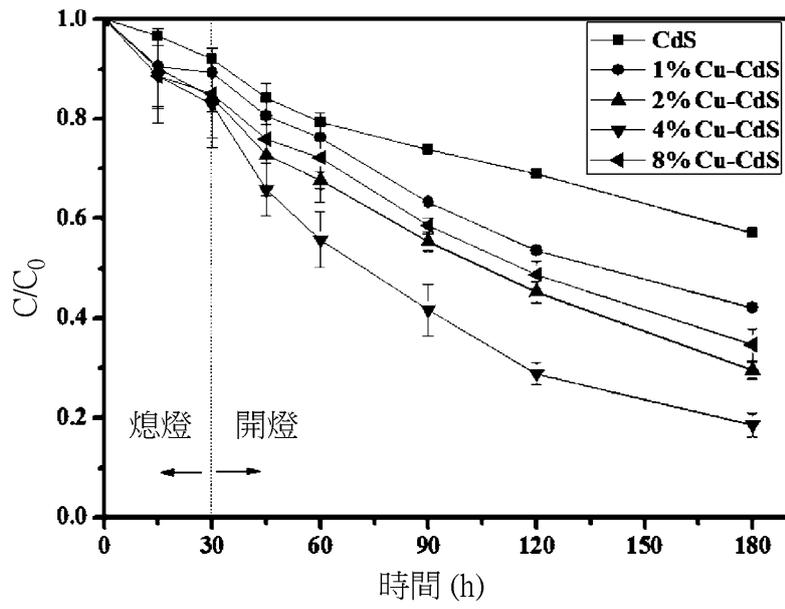


圖4

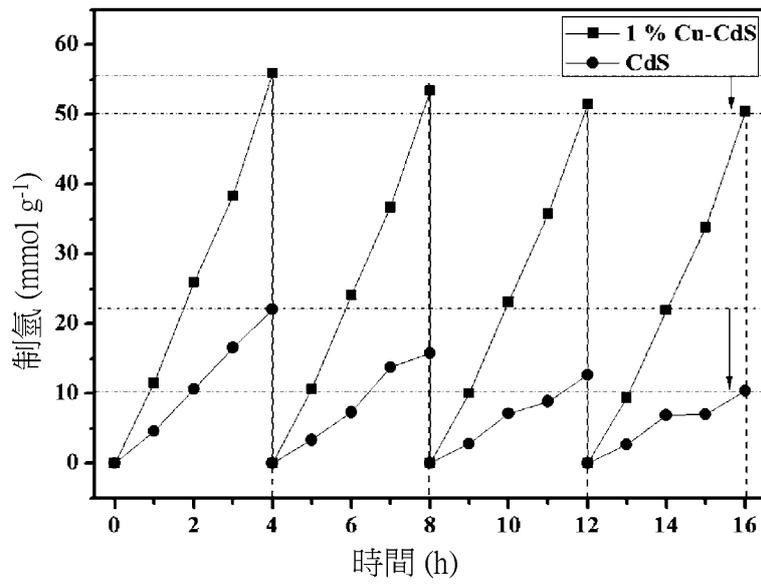


圖5