

ORIGINAL RESEARCH PAPER

## Investigating the Effect of Adding Carbon Nanotubes to RGO/TiO<sub>2</sub> Aerogel on The Efficiency of Photocatalytic Removal of Gaseous Toluene

Hossein Ali Rangkooy<sup>1,2</sup>, Mojtaba Seraji<sup>2\*</sup>, Behzad Fouladi Dehagh<sup>1,2</sup>

<sup>1</sup>Environmental Technologies Research Center, Medical Basic Sciences Research Institute, Ahvaz Jundishapur University of Medical Sciences, Ahvaz, Iran

<sup>2</sup>Department of Occupational Health Engineering and work safety, School of Public Health, Ahvaz Jundishapur University of Medical Sciences, Ahvaz, Iran

Received: 24-11-2024

Accepted: 16-2-2025

### ABSTRACT

**Introduction:** One of the most common pollutants in industrial and confined environments is toluene. Toluene can be removed in various ways. The simultaneous and integrated use of two methods—adsorption and photocatalytic degradation—in a single process is an important innovation in the removal of gaseous toluene. The aim of this study is to determine the efficiency of a synthesized reduced graphene oxide/carbon nanotube/titanium dioxide (RGO/CNT/TiO<sub>2</sub>) nanocomposite aerogel in the photocatalytic degradation and adsorption of toluene vapors.

**Material and Methods:** In this study, RGO/CNT/TiO<sub>2</sub> and RGO/TiO<sub>2</sub> aerogels were prepared using a one-pot hydrothermal self-assembly method. The properties of the photocatalytic aerogels were investigated using BET testing, scanning electron microscopy (SEM), X-ray diffraction (XRD), and Fourier-transform infrared spectroscopy (FT-IR). Aerogels were loaded on a substrate in a photoreactor with two UV-C lamps using dynamic flow. Adsorption efficiency was measured when irradiation was off, and photocatalytic degradation efficiency was measured when irradiation was on using an instantaneous reading device.

**Results:** Adding CNTs to RGO/TiO<sub>2</sub> affects the specific surface area (SSA) and the porous structure of the aerogels. During the processes of adsorption and photocatalytic degradation using RGO/CNT%5/TiO<sub>2</sub>, the concentration of toluene vapor pollutant decreased from 20 ppm to 3.4 ppm, indicating an efficiency of 81%. In contrast, RGO/TiO<sub>2</sub> demonstrated an efficiency of 43.41%.

**Conclusion:** The results demonstrated that adding CNTs to RGO/TiO<sub>2</sub> aerogel significantly improves photocatalytic performance for the degradation of toluene vapor. This enhanced performance is attributed to increased light absorption, an improved electron and hole recombination rate, as well as the facilitation of electron transition from titanium nanoparticles to the graphene structure.

**Keywords:** Toluene, Adsorption, CNTs, RGO, Photocatalytic degradation, Aerogel

### HOW TO CITE THIS ARTICLE

Rangkooy HA, Seraji M, Fouladi Dehaghi B. Investigating the Effect of Adding Carbon Nanotubes to RGO/TiO<sub>2</sub> Aerogel on The Efficiency of Photocatalytic Removal of Gaseous Toluene. *J Health Saf Work*. 2025; 15(1): 36-51.

## 1. INTRODUCTION

With the acceleration of industrial activities, especially in developing countries, the release of chemical pollutants into the environment has increased, leading to a decline in air quality

in working environments and exacerbating the challenges associated with the spread of these pollutants. One of the widely used volatile organic compounds is toluene. The photocatalytic degradation of volatile organic compounds has been

\* Corresponding Author Email: [mojtabaseraji1999@gmail.com](mailto:mojtabaseraji1999@gmail.com)

widely studied, and titanium dioxide (TiO<sub>2</sub>) has emerged as one of the most effective photocatalysts due to its superior efficiency compared to other semiconductor materials.

In photocatalytic degradation, however, the efficiency of TiO<sub>2</sub> is limited because electron-hole pairs are prone to recombination, resulting in suboptimal utilization of light energy. Additionally, the direct use of titanium dioxide powder as a photocatalyst presents drawbacks, such as difficulty in achieving uniform dispersion and challenges in catalyst recovery. A promising solution to these issues involves loading photocatalyst nanoparticles onto a substrate with a porous 3D structure. Among the commonly used carrier materials, carbon-based nanocomposite aerogels are an ideal option for loading photocatalysts. Carbon nanotubes (CNTs) have been utilized as co-catalysts in numerous studies. One of the significant advancements in nanotechnology is the use of carbon adsorbents, such as carbon nanotubes (CNT) and reduced graphene oxide (RGO), in the form of nanocomposite aerogels.

## 2. MATERIAL AND METHODS

Photocatalytic aerogels were prepared using a hydrothermal self-assembly method. A total of 20 mg of GO powder was dissolved in 100 ml of deionized water and stirred with a magnetic stirrer for 30 minutes to obtain a GO suspension. For the TiO<sub>2</sub>/GO suspension, 5 mg of TiO<sub>2</sub> nanopowder was added to the GO suspension and stirred for 60 minutes using a magnetic stirrer. Subsequently, 40 mg of ascorbic acid powder (reducing agent) was added to the TiO<sub>2</sub>/GO suspension, and the solution was placed in an ultrasonic bath for one hour before being transferred to an oven at 95°C. After 12 hours, TiO<sub>2</sub>/RGO hydrogel was obtained.

The hydrogel was dialyzed with deionized water for one to two days to remove impurities. Following the freeze-drying process, the resulting RGO/TiO<sub>2</sub> aerogel was transferred to an oven at 60°C to dry completely. To obtain the RGO/CNT%5/TiO<sub>2</sub> aerogel, 5 mg of MWCNT was added to the TiO<sub>2</sub>/GO suspension during preparation. A total of 50 mg of TiO<sub>2</sub>/CNT%5/RGO and TiO<sub>2</sub>/RGO aerogels were then loaded onto a porous substrate in the photoreactor.

The adsorption process continued until the concentration of toluene vapor entering the photoreactor (C<sub>i</sub>) equaled its outlet concentration (C<sub>1</sub>). Changes in concentration were monitored

using a Tiger Phoccheck direct-reading device, based on an ionization photo detector, and the adsorption efficiency (η) was calculated using an established equation. Once the input and output concentrations of toluene vapor were equal and saturation time was reached, the UV-C lamps were turned on, initiating the photocatalytic degradation process.

The radiant flux per unit area was tested within the light range of the substrate in the photoreactor using a UV meter (model: EC1 UV-C), and the measured data was 34 mW/cm<sup>2</sup>. The test process and the method of calculating photocatalytic efficiency (η) were identical to those used for adsorption performance measurements.

$$\eta = (1 - C_1 / C_i) * 100\%$$

## 3. RESULTS AND DISCUSSION

The specific surface area (BET) of RGO/CNT%5/TiO<sub>2</sub> and RGO/TiO<sub>2</sub> aerogels was 77.652 m<sup>2</sup>/g and 45.347 m<sup>2</sup>/g, respectively. The porous and three-dimensional structure of the aerogels, as well as the presence of titanium particles, was confirmed using scanning electron microscope (SEM) images, which can be seen in Figure 1. The RGO/CNT%5/TiO<sub>2</sub> sample exhibited a structure with high porosity. Compared to the RGO/TiO<sub>2</sub> sample, SEM images revealed that the RGO/CNT%5/TiO<sub>2</sub> aerogel has three-dimensional honeycomb structures with pore sizes ranging from mesoporous to macroporous. Additionally, TiO<sub>2</sub> nanoparticles were observed on graphene sheets, and their loading percentage in the aerogels increased with the mass of titanium dioxide.

A comparison of the XRD patterns (Figure 2) of the prepared aerogels shows that the (002) plane of the carbon layer shifted from 22.093° in RGO/TiO<sub>2</sub> to 21.793° in RGO/CNT%5/TiO<sub>2</sub>. It was also observed that the crystal network of TiO<sub>2</sub> in the RGO/TiO<sub>2</sub> aerogel remained unchanged with the addition of carbon nanotubes in the formation of the RGO/CNT%5/TiO<sub>2</sub> aerogel. This indicates that the crystallization and structure of the TiO<sub>2</sub> phase were not significantly affected by the addition of CNT. However, the peak corresponding to the (002) plane in the RGO/CNT%5/TiO<sub>2</sub> aerogel was stronger than that in the RGO/TiO<sub>2</sub> aerogel. The XRD spectra obtained for the RGO/CNT%5/TiO<sub>2</sub> aerogel corresponded to the JCPDS standard card no. 1272-21. Additionally, the intensity of the characteristic peaks of TiO<sub>2</sub> increased with the

loading percentage of titanium dioxide, indicating that the composition of the RGO/CNT%5/TiO<sub>2</sub> aerogel could be adjusted by the initial mass ratio of GO and titanium dioxide.

As illustrated in Figure 3, the RGO/CNT%5/TiO<sub>2</sub> nanocomposite aerogel with 5% carbon nanotube by weight exhibited a higher adsorption rate and, consequently, a longer saturation time than the RGO/TiO<sub>2</sub> aerogel. This result is consistent with the findings of the BET analysis. The RGO/CNT%5/TiO<sub>2</sub> aerogel adsorbed 47.53% (122 minutes) of toluene vapor with a concentration of 20 ppm until saturation. In comparison, the RGO/TiO<sub>2</sub> aerogel adsorbed 34.18% (81 minutes).

As shown in Figure 4, the addition of CNT to the RGO/TiO<sub>2</sub> aerogel structure had a significant effect on increasing the rate of photocatalytic degradation of toluene vapors with a concentration of 20 ppm. This increase in photocatalytic degradation can be attributed to the electron-conducting ability and photocatalytic properties of CNT. For this reason, CNT can be considered an optimal catalyst aid within the RGO/CNT%5/TiO<sub>2</sub> aerogel structure.

The average amount of degradation and the time required for the loss of photocatalytic degradation efficiency for RGO/CNT%5/TiO<sub>2</sub> and RGO/TiO<sub>2</sub> nanocomposite aerogels were 34.17% in 110 minutes and 9.24% in 48 minutes, respectively.

#### 4. CONCLUSIONS

RGO/CNT%5/TiO<sub>2</sub> aerogels were synthesized through a hydrothermal self-assembly method using ascorbic acid as a reducing and linking agent. The three-dimensional porous structure of the nanocomposite aerogels has resulted in a high specific surface area and high pore volume, making them desirable adsorbents. Additionally, these aerogels demonstrated excellent photocatalytic

performance for the degradation of toluene vapor pollutants, significantly outperforming TiO<sub>2</sub>/RGO aerogels. This improvement is attributed to enhanced light absorption, better electron and hole separation efficiency, and effective charge transfer from TiO<sub>2</sub> nanoparticles to the graphene network, owing to the addition of MWCNT to the structure.

The development of 3D structures consisting of nano-, meso-, and micropores in the form of aerogels, along with the inclusion of nanoparticles such as CNT, has significantly improved the efficiency of cleaning volatile organic compounds (VOCs) in indoor air. Considering the effectiveness of graphene oxide/titanium dioxide/carbon nanotube (RGO/CNT/TiO<sub>2</sub>) photocatalytic aerogels in removing toluene vapor pollutants from the air, it is recommended that this combined system be studied for its potential to address other volatile organic pollutants, both in the gas phase and in the liquid phase.

#### 5. ACKNOWLEDGMENT

The present article is based on the approved research thesis project No. ETRC-0215, titled "Determining the Efficiency of Reduced Graphene Oxide/Carbon Nanotube/Titanium Dioxide (RGO/CNT/TiO<sub>2</sub>) Nanocomposite Aerogel in the Photocatalytic Removal of Toluene Vapors."

#### 6. ETHICAL CODE

IR.AJUMS.REC.1402.32.

#### 7. FUNDING

The authors express their sincere gratitude to the Vice Chancellor for Research and Technology Development at Ahvaz Jundishapur University of Medical Sciences for generously supporting this research project financially.

## بررسی تأثیر افزودن نانولوله کربنی به اپروژل گرافن اکسید کاهش یافته /تیتانیوم دی اکسید بر کارایی حذف فتوکاتالیستی بخار تولوئن

حسینعلی رنگ کوی<sup>۱،۲</sup>، مجتبی سراجی<sup>۳</sup>، بهزاد فولادی دهقی<sup>۱،۲</sup>

<sup>۱</sup>مرکز تحقیقات فناوری‌های زیست محیطی، موسسه تحقیقات علوم پایه پزشکی، دانشگاه علوم پزشکی جندی شاپور اهواز، اهواز، ایران

<sup>۲</sup>گروه مهندسی بهداشت حرفه‌ای و ایمنی کار، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی جندی شاپور اهواز، اهواز، ایران

تاریخ دریافت: ۱۴۰۳/۹/۴، تاریخ پذیرش: ۱۴۰۳/۱۱/۲۸

### چکیده

**مقدمه:** یکی از رایج‌ترین آلاینده‌ها در محیط‌های صنعتی و محصور تولوئن می‌باشد. حذف تولوئن به روش‌های مختلف ممکن است. استفاده همزمان و تلفیقی از دو روش جذب سطحی و تجزیه فتوکاتالیستی در قالب یک فرآیند از جمله نوآوری‌های مهم در حذف آلاینده تولوئن در فاز گاز می‌باشد. هدف از این مطالعه تعیین کارایی اپروژل نانوکامپوزیتی گرافن اکسید احیاشده /نانولوله کربنی /تیتانیوم دی اکسید (RGO/CNT/TiO<sub>۲</sub>) در حذف فتوکاتالیستی بخارات تولوئن بود.

**روش کار:** در این مطالعه، اپروژل‌های RGO/CNT/TiO<sub>۲</sub> به روش کاهش آبی - حرارتی تهیه گردید. ویژگی اپروژل‌های فتوکاتالیستی با استفاده از روش مساحت سطحی BET، تصاویر میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM)، پراش پرتو ایکس (XRD) و طیف سنجی مادون قرمز (FT-IR) مورد بررسی قرار گرفت. کارایی جذب و تجزیه فتوکاتالیستی بخارات تولوئن با استفاده از اپروژل RGO/CNT/TiO<sub>۲</sub> با درصد وزنی ۵ % CNT و اپروژل RGO/TiO<sub>۲</sub>، تحت شرایط جریان مداوم تولوئن مطالعه گردید.

**یافته‌ها:** نتایج حاصل از بررسی‌های تعیین سطح ویژه و روش BET و تصاویر SEM حاکی از حضور ذرات تیتانیوم دی اکسید در سطح و حفرات شبکه اپروژل‌ها بودند. آنالیز XRD اثباتی بر ساختار شبکه‌ای بلورین اپروژل‌ها بود و آزمایش FT-IR نشان دهنده پیوندهای ایجاد شده میان عناصر اپروژل‌ها بود. نتایج حاکی از آن بود که اپروژل نانوکامپوزیتی RGO/CNT/TiO<sub>۲</sub> ۵٪، کارایی بیشتری در مقایسه با اپروژل RGO/TiO<sub>۲</sub> داشت و نشان داد با افزودن CNT راندمان جذب و تجزیه فتوکاتالیستی افزایش می‌یابد.

**نتیجه گیری:** نتایج این مطالعه نشان داد که افزایش درصد وزنی CNT در اپروژل RGO/CNT/TiO<sub>۲</sub> و استفاده از آن در فرآیند تجزیه فتوکاتالیستی تولوئن کارایی مناسبی جهت حذف بخار آلاینده تولوئن دارد. بنابراین استفاده تلفیقی از فناوری فتوکاتالیستی در کنار فناوری جذبی در جهت تصفیه VOC محیط‌های داخلی شیوه‌ی مناسبی باشد.

**کلمات کلیدی:** تولوئن، جذب سطحی، نانولوله کربنی، گرافن اکسید احیا شده، تجزیه فتوکاتالیستی، اپروژل

\* پست الکترونیکی نویسنده مسئول مکاتبه: [mojtabaseraji1999@gmail.com](mailto:mojtabaseraji1999@gmail.com)

## مقدمه

با شتاب گرفتن فعالیت‌های صنعتی مخصوصاً در کشورهای در حال توسعه، انتشار آلاینده‌های شیمیایی در محیط زیست افزایش یافته است که این امر باعث کاهش کیفیت هوا در محیط‌های کاری شده و همچنین مشکلاتی در محدود کردن انتشار این آلاینده‌های صنعتی در کشورها بوجود آورده است. به طور کلی آسیب‌های ناشی از انتشار آلاینده‌های شیمیایی نه تنها سبب بروز معضلات زیست محیطی در یک کشور می‌شود، بلکه اثرات زیان‌باری بر سلامت عمومی خواهد گذاشت (۱).

یکی از مهم‌ترین انواع آلاینده‌ها براساس ریسک بهداشتی، ترکیبات آلی فرار<sup>۱</sup> (VOCs) هستند و کنترل این آلاینده‌ها جزء اولویت‌های اصلی صنایع محسوب می‌گردد (۲).

یکی از پرکاربردترین ترکیبات آلی فرار، تولوئن می‌باشد. بر اساس حدود مجاز (TLV) استاندارد مجمع دولتی متخصصین بهداشت صنعتی آمریکا<sup>۲</sup> (ACGIH)، حد مجاز تولوئن در محیط‌های کاری ۲۰ ppm می‌باشد. حد مجاز مواجهه شغلی با تولوئن توسط استاندارد‌های سازمان‌های ایمنی و سلامت آمریکا (OSHA) معادل ۲۰۰ ppm و حد مواجهه کوتاه مدت تولوئن معادل ۱۵۰ ppm تعیین شده است. همچنین مرکز جهانی تحقیقات سرطان (IARC) تولوئن را از لحاظ سرطان‌زایی در گروه A۴ قرار داده است که ممکن است سرطان‌زای انسانی باشد اما به علت کمبود اطلاعات نمی‌توان به صورت جامع ارزیابی شود (۳).

روش‌های کنترلی برای حذف و کنترل ترکیبات آلی فرار، روش‌های متراکم‌سازی (۴)، احتراق کاتالیستی (۵)، احتراق حرارتی (۷) و پلاسما (۸، ۹) و روش‌های تخریب و تجزیه فتوکاتالیستی (۱۰)، جذب سطحی (۱۱-۱۳)، جذب عمقی (۱۴) و اخیراً روش‌های زیستی (۱۵) مرسوم می‌باشند.

از میان روش‌های تخریب در کنترل VOC، اکسیداسیون فتوکاتالیستی به دلیل انجام عملیات در دما و فشار طبیعی و کاربرد آسان سیستم‌های فتوکاتالیستی و همچنین فراهم کردن امکان استفاده همزمان با سایر تکنیک‌های بازیابی کنترل VOCها در قالب یک سیستم تلفیقی، امروزه بسیار مورد توجه قرار گرفته است (۱۶).

در طول سال‌های اخیر تجزیه فتوکاتالیستی ترکیبات آلی فرار به‌طور گسترده‌ای مورد مطالعه قرار گرفته است (۱۷). یکی از مناسب‌ترین فتوکاتالیست‌ها، دی‌اکسید تیتانیوم (TiO<sub>۲</sub>) است. کارایی بالای این فتوکاتالیست به دلیل فعالیت فتوکاتالیستی بالا، خواص جذب نور مطلوب، پایداری در انتقال بار، پایداری شیمیایی، ارزان بودن و دسترسی آسان آن می‌باشد. از آنجایی که جفت‌های الکترون-حفره ایجاد شده در فرآیند تخریب فتوکاتالیستی، مستعد ترکیب مجدد هستند، استفاده از انرژی نور چندان کارآمد نیست. علاوه بر این، استفاده مستقیم از پودر دی‌اکسید تیتانیوم به عنوان فتوکاتالیست دارای جنبه منفی است که کاتالیزور نمی‌تواند به طور یکنواخت پراکنده شود و به راحتی بازیابی شود. عوامل فوق مانع از کاربرد بیشتر دی‌اکسید تیتانیوم در صنعت شده است (۱۸).

یک راه معمول برای بهبود این نقص، ساخت نانوپودرها به شکل غشایی است. البته این روش مساحت سطح ویژه<sup>۳</sup> (SSA) فتوکاتالیست‌ها را به میزان قابل توجهی کاهش می‌دهد. اقدام اصلاحی دیگر، بارگذاری نانوذرات فتوکاتالیست بر روی بستری است که ساختار متخلخلی مانند شبکه‌های جامد دارد. درمیان مواد رایج مورد استفاده، ابروزل‌های نانوکامپوزیتی مبتنی بر کربن یک گزینه ایده‌آل برای بارگذاری فتوکاتالیست‌ها هستند (۱۹). همچنین ساختار سه بعدی در استحکام مکانیکی این نوع ابروزل‌ها باعث می‌شود، نانوکامپوزیت سنتز شده بتواند در طی فرآیند فتوکاتالیستی قابل استفاده مجدد باشد. یکی از اکتشافات بزرگ مربوط به فناوری

3. Specific Surface Area

1. Volatile Organic Compounds

2. American Conference of Governmental Industrial Hygienists

### آماده سازی ابروژل ها فتوکاتالیستی

ایروژل های فتوکاتالیستی با استفاده از یک روش سنتز خودآرای آبی-حرارتی<sup>۵</sup> تهیه شدند. در فرآیند تولید، ابتدا ۲۰ میلی گرم پودر اکسید گرافن خریداری شده در ۱۰۰ میلی لیتر آب دی یونیزه مخلوط و با استفاده از هم زن مغناطیسی به مدت ۳۰ دقیقه هم زده شد تا سوسپانسیون GO به دست آید. برای تهیه ابروژل  $\text{TiO}_2/\text{GO}$ ، ۵ میلی گرم از نانوپودر  $\text{TiO}_2$  خریداری شده به سوسپانسیون GO افزوده و به مدت ۶۰ دقیقه با استفاده از هم زن مغناطیسی هم زده شد و پس از آن ۴۰ میلی گرم پودر آسکوربیک اسید به سوسپانسیون  $\text{GO}/\text{TiO}_2$  افزوده و پس از همگن شدن محلول با استفاده از حمام التراسونیک، محلول به کوره با دمای  $95^\circ\text{C}$  انتقال یافت تا هیدروژل  $\text{GO}/\text{TiO}_2$  بدست آید. هیدروژل به مدت یک تا دو روز با آب دی یونیزه دیالیز شد تا ناخالصی ها تصفیه شوند و پس از فرآیند Freeze Drying، ابروژل  $\text{GO}/\text{TiO}_2$  بدست آمده به کوره  $(60^\circ\text{C})$  انتقال یافت تا کاملاً خشک شود. برای ساخت ابروژل  $\text{CNT}/\text{TiO}_2$ ، ۵ میلی  $\text{GO}/\text{TiO}_2$ ، پس از تهیه سوسپانسیون  $\text{GO}/\text{TiO}_2$ ، ۵ میلی گرم MWCNT به آن افزوده شد.

### تعیین ویژگی ابروژل های فتوکاتالیستی

ویژگی ساختاری ابروژل ها و مورفولوژی سطحی با استفاده از تصاویر میکروسکوپ الکترونی روبشی مدل VEGA ۳، خواص کریستالی و نوع تخلخل ها و نیز اثر افزودن نانولوله های کربنی و نانوتیتانیوم دی اکسید بر ساختار ابروژل ها با استفاده از آنالیز XRD مدل PW1730، و مساحت سطح ویژه از طریق آزمون BET با استفاده از دستگاه BELSORP MINI II، مورد ارزیابی قرار گرفت. همچنین با روش های طیف سنجی (FT-IR) (دستگاه AVATAR) حضور ترکیبات تیتانیوم دی اکسید و پیوندهای شیمیایی ایجاد شده با سطح گرافن اکسید احیاء شده بررسی شد.

نانو، استفاده از جاذب های کربنی مانند نانولوله کربنی<sup>۱</sup> (CNT) و گرافن اکساید احیا شده<sup>۲</sup> (RGO) در قالب ابروژل های نانوکامپوزیتی است<sup>(۲۰)</sup> نانولوله های کربنی (CNTs) در مطالعات بسیاری به عنوان کمک-کاتالیست<sup>۳</sup> استفاده شده اند<sup>(۲۱)</sup>. همچنین ثابت شده است که جفت شدن نیمه رساناها<sup>۴</sup> با CNTs باعث افزایش کارایی فتوکاتالیست های نانوکامپوزیتی و پلیمر ترکیبی با نانولوله کربنی می گردد. مکانیزم این افزایش را می توان با توجه به بالا بودن خاصیت الکترون خواهی CNT توجیح کرد که سبب افزایش عمر زوج الکترون-حفره و در نهایت افزایش رادیکال های آزاد می شود<sup>(۲۲)</sup>.

به نظرمی رسد با توجه به ویژگی های منحصر به فرد RGO از نظر مساحت سطح ویژه و رسانایی الکتریکی و همچنین خواص کمک کاتالیستی و نوری و جذبی CNTs، ابروژل  $\text{RGO}/\text{CNT}/\text{TiO}_2$  می تواند هم به عنوان جاذب در فرآیند جذب سطحی و هم به عنوان بستری مناسب برای نانو ذرات نیمه رسانا  $\text{TiO}_2$  در فرآیند تخریب فتوکاتالیستی آلاینده های فاز گاز، کارآمد باشد. هدف این مطالعه، بررسی اثر افزودن نانولوله کربنی به ابروژل  $\text{RGO}/\text{TiO}_2$  بر فرآیند جذب سطحی و تخریب فتوکاتالیستی بخار تولوئن در غلظت کنترلی ۲۰ ppm است.

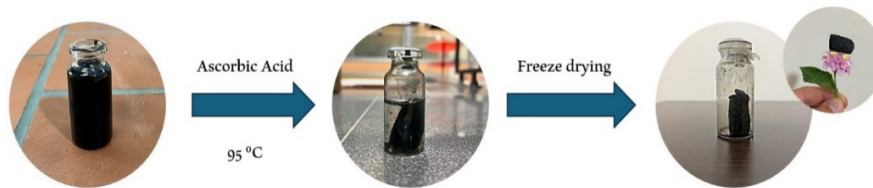
## روش کار

### مواد شیمیایی مورد استفاده

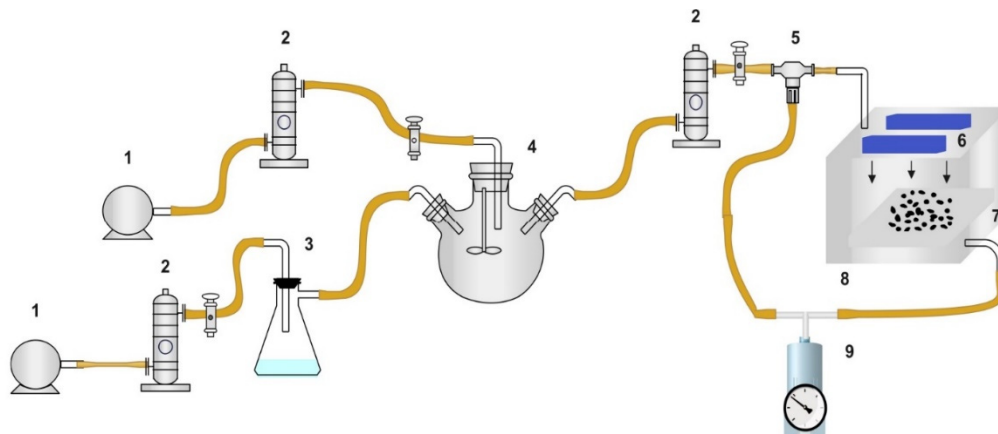
در این مطالعه گرافن اکسید با خلوص ۹۸٪ ساخت شرکت دانش بنیان نوآوران نانومقیاس برهان، نانولوله کربنی چند دیواره با خلوص ۹۵٪ ساخت شرکت Neunano، نانو پودر اکسید تیتانیوم P25-Degussa با جرم مولکولی ۷۹/۷۸ با خلوص ۹۹٪ ساخت شرکت US-Shandong Nano، آسکوربیک اسید ( $\text{C}_6\text{H}_8\text{O}_6$ ) شرکت Shandong luwei با خلوص ۹۹٪ و تولوئن ( $\text{C}_6\text{H}_5-\text{CH}_3$ )، و خلوص ۹۹/۸٪ ساخت شرکت مرک (Merck) آلمان استفاده شد

1. Carbon nanotube
2. Reduced Graphene Oxide
3. Co-catalyst
4. Semi-conductor

5. Self-assembly hydrothermal method



شکل ۱: شرح فرآیند سنتز ایروژل‌ها



شکل ۲: طرح سیستم فتوکاتالیستی متشکل از: (۱) پمپ هوا، (۲) روماتر، (۳) ظرف حاوی محلول تولوئن، (۴) محفظه اختلاط، (۵) شیشه نمونه‌برداری، (۶) لامپ UV، (۷) ایروژل، (۸) راکتور فتوکاتالیستی، (۹) پورت اندازه‌گیری غلظت تولوئن

### راکتور فتوکاتالیستی و سیستم آزمایش

سیستم فتوراکتور (ست‌آپ آزمایش) متشکل از یک محفظه از جنس پیرکس و مکعبی شکل به طول ۱۲ cm، عرض ۳۲ cm و ارتفاع ۱۰ cm بود. که در بالای آن ورودی جریان هوای حاوی آلاینده تولوئن و در پایین خروجی و مابین ورودی و خروجی در ارتفاع ۵ cm از کف راکتور یک بستر متخلخل حاوی لایه نازک با توزیع یکنواخت نانوکامپوزیت ایروژل‌های سنتز شده، بارگذاری شد. در قسمت فوقانی راکتور در فاصله ۵ cm از سطح بستر کاتالیست منبع مولد اشعه UV-C شامل ۲ لامپ لوله ای ۸ وات Hitachi نصب شده بود. سیستم آزمایش متشکل از پمپ هوا، ظرف حاوی محلول تولوئن، محفظه اختلاط، روماتر، پورت اندازه‌گیری غلظت تولوئن، راکتور فتوکاتالیستی و ایروژل ساخته شده بود. همچنین دما و رطوبت با استفاده از دستگاه قرائت مستقیم TES ۱۳۶۰ A به ترتیب ۲۵ و ۳۰٪ بود و در هنگام آزمایش هر دو نوع ایروژل ثابت و برابر بود.

### غلظت‌سازی تولوئن

در این مطالعه غلظت‌سازی به روش جریان مداوم و دینامیک انجام شد. با دمش هوای تمیز به محفظه حاوی مایع تولوئن، فرآیند تبخیر سطحی انجام شده و بخار تولوئن متصاعد شده جهت یکنواخت سازی، وارد محفظه اختلاط شد و تغییرات غلظت با استفاده از دستگاه قرائت مستقیم مدل Tiger Phocheck، براساس آشکارساز یونش نوری (Ionization Photo Detector) بررسی شد تا پس ثابت شدن غلظت در ۲۰ ppm، جریان وارد راکتور فتوکاتالیستی شود. جهت سنجش میزان دقیق دبی هوا از ۳ عدد روماتر کالیبره شده ساخت شرکت SKC استفاده گردید. و در نهایت گاز تولوئن با دبی ثابت ۱ lit / min وارد راکتور شد.

### فرآیند جذب سطحی

ویژگی‌های جذبی ایروژل‌ها، پس از تهیه غلظت لازم از بخار تولوئن وارد شده به فتوراکتور در حالت خاموشی

مشاهده می‌شود.

مقایسه الگوی پراش XRD ابروژل ۵٪/CNT/TiO<sub>۲</sub> و RGO و RGO/TiO<sub>۲</sub> در شکل ۴ مشاهده می‌شود. قله‌ی پراش در زاویه ۲۱/۷۹۳° مطابق با صفحه (۰۰۲) در ساختار گرافن اکسید احیا شده (کربن) است. همچنین قله‌های پراش در زوایای ۲۵/۳۴۳°، ۳۷/۷۸۶°، ۴۸/۱۶۳°، ۵۵/۱۳۱°، ۶۲/۷۲۱°، ۶۸/۷۴۳°، ۷۰/۴۴۳° و ۷۵/۵۴۳° به ترتیب مطابق با صفحات (۱۰۱)، (۰۰۴)، (۲۰۰)، (۲۱۱)، (۲۰۴)، (۱۱۶)، (۲۲۰) و (۲۱۵) فاز آناتاز تیتانیوم دی اکسید می‌باشند. قله‌های پراش در زوایای ۲۷/۱۴۳° و ۵۴/۳۴۳° نیز به ترتیب مطابق با صفحات (۱۱۰) و (۲۱۱) فاز روتایل TiO<sub>۲</sub> هستند.

در شکل ۵ می‌توان طیف FT-IR نمونه ۵٪/CNT/TiO<sub>۲</sub> را مشاهده کرد. قله‌های به‌دست آمده برای ابروژل ۵٪/CNT/TiO<sub>۲</sub>/RGO شباهت زیادی به نتایج ابروژل RGO/TiO<sub>۲</sub> دارند. در قله‌های ۱۰۵۴ cm<sup>-۱</sup> و ۱۷۲۵ cm<sup>-۱</sup> به ترتیب پیوند کششی قوی C-O و پیوند کششی متوسط C=O را نشان داده است. همچنین پیوند خمشی C=C در بازه ۱۵۷۰ cm<sup>-۱</sup> تا ۱۶۳۰ cm<sup>-۱</sup> نمودار قابل مشاهده است. پیوند کششی ضعیف C-H در بازه ۲۹۶۰ cm<sup>-۱</sup> تا ۳۰۱۰ cm<sup>-۱</sup> و همچنین نوار کششی قوی مربوط به پیوند O-H در بازه ۳۴۱۰ cm<sup>-۱</sup> تا ۳۴۵۰ cm<sup>-۱</sup> مشاهده می‌شود. در بازه‌ی ۵۰۰ cm<sup>-۱</sup> تا ۵۹۰ cm<sup>-۱</sup> نیز پیوندهای Ti-O-Ti و Ti-O-C وجود دارند.

در شکل‌های ۶ و ۷ نتایج آنالیز EDX قابل مشاهده‌اند. همچنین درصد وزنی و اتمی دو ابروژل تهیه شده گزارش شده‌اند. براساس اطلاعات به‌دست آمده از آنالیز EDX (شکل‌های ۴ و ۵) مربوط به ابروژل ۵٪/CNT/TiO<sub>۲</sub>/RGO می‌توان پی برد که با اضافه شدن نانولوله کربنی به ساختار ابروژل RGO/TiO<sub>۲</sub> نه تنها درصد کربن بدون کاهش درصد تیتانیوم در ساختار ابروژل (عدم ایجاد رسوب)، افزایش داد، بلکه به عنوان یک عامل کاهنده (Reduction) در کنار آسکوربیک اسید، باعث کاهش اکسیژن در ساختار ابروژل ۵٪/CNT/TiO<sub>۲</sub>/RGO شد که با نتایج Tewatia و همکارانشان در سال ۲۰۲۱ همخوانی دارد (۲۳).

با حجم هوای ورودی ۱ L/min بررسی شد. در هر بار انجام آزمایش ۵۰ میلی‌گرم از ابروژل ۵٪/CNT/TiO<sub>۲</sub> و RGO بر بستر متخلخل موجود در فتوراکتور بارگذاری شد. آزمایش جذب سطحی تا زمانی که غلظت ورودی بخار تولوئن به فتوراکتور (C<sub>i</sub>) با غلظت خروجی آن (C) برابر شد، ادامه داشت. و میزان کارایی جذبی (η) با استفاده از رابطه ۱ محاسبه شد. در این رابطه C<sub>i</sub> غلظت ورودی به فتوراکتور (۲۰ ppm) و C غلظت خروجی لحظه‌ای در حالت خاموشی فتوراکتور می‌باشد.

$$\eta = (1 - C_i / C_i) * 100\% \quad (1)$$

#### فرآیند تخریب فتوکاتالیستی

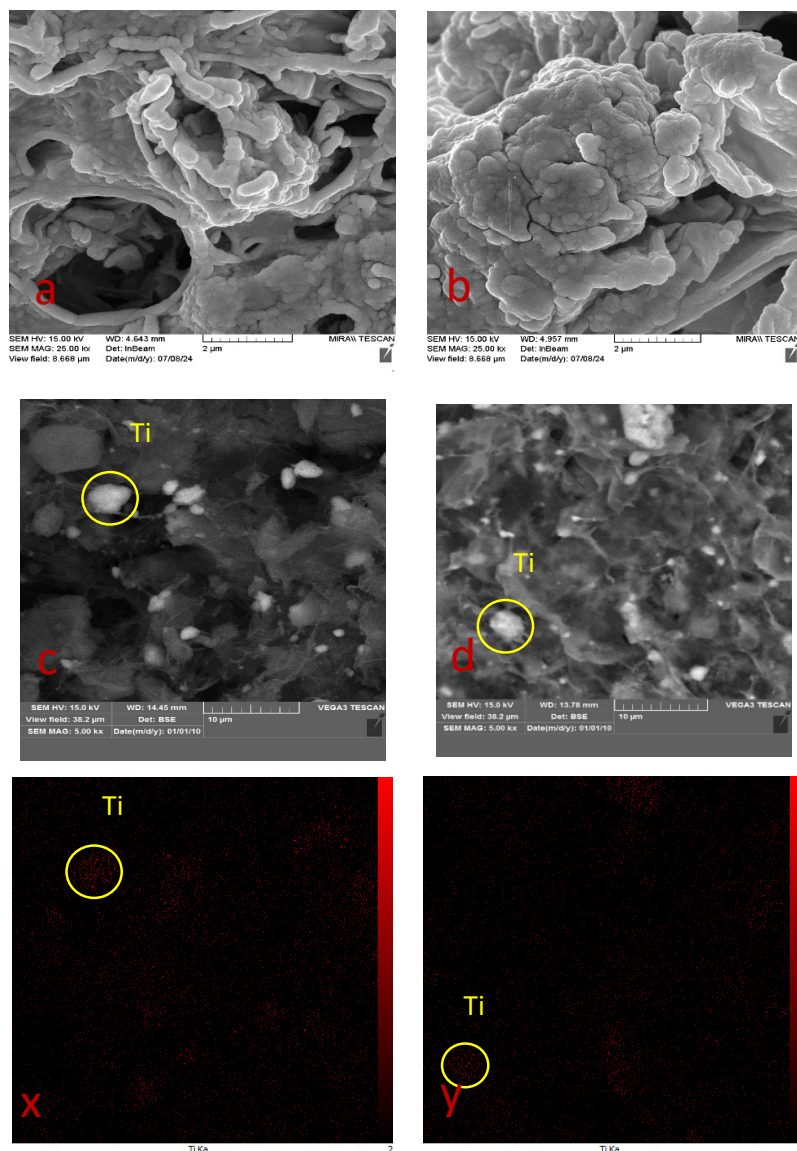
با برابر شدن غلظت ورودی و خروجی بخار تولوئن و رسیدن به زمان اشباع، لامپ‌های UV-c روشن شده و فرآیند تخریب فتوکاتالیستی شروع شد. شار تابشی در واحد سطح در محدوده نوری بستر در فتوراکتور با استفاده از UV سنچ (مدل: UV-c EC۱) آزمایش شد و داده‌ها ۳۴ mW/cm<sup>۲</sup> بود. فرآیند آزمایش فتوکاتالیستی مانند فرآیند جذبی بود و کارایی فوتوکاتالیستی (η) با استفاده از رابطه ۲ محاسبه شد. در این رابطه، C<sub>i</sub> غلظت خروجی لحظه‌ای در حالت تابش لامپ‌های UV فتوراکتور بود.

$$\eta = (1 - C_i / C_i) * 100\% \quad (2)$$

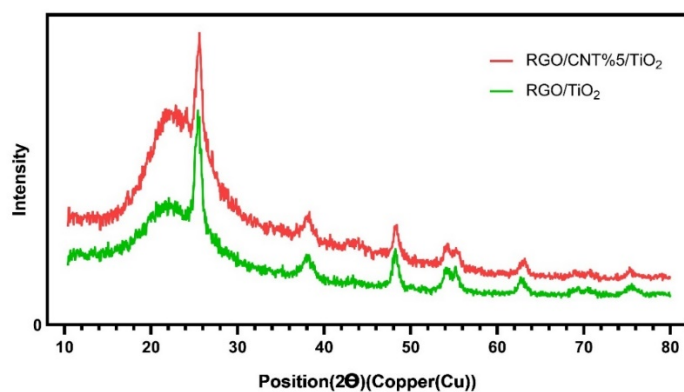
به منظور دستیابی به نتایج دقیق، هر آزمایش ۳ بار تکرار شد و میانگین اندازه‌گیری‌ها ثبت و با استفاده از نرم‌افزار IBM SPSS ۲۰ آنالیز شد.

#### یافته‌ها

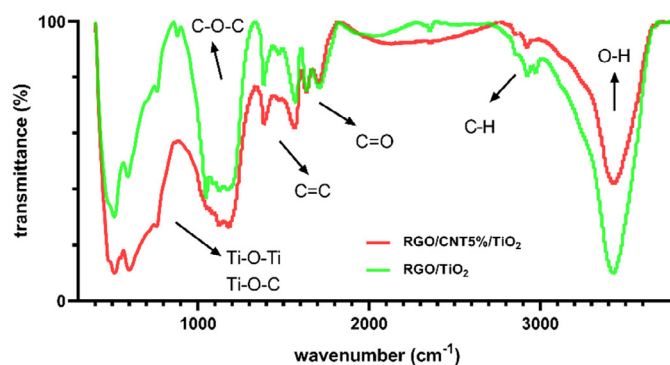
مساحت سطح ویژه (BET) ابروژل‌های TiO<sub>۲</sub>/۵٪/CNT/RGO و TiO<sub>۲</sub>/۵٪/CNT/RGO به ترتیب برابر ۷۷/۶۵۲ m<sup>۲</sup>/g و ۴۵/۳۴۷ m<sup>۲</sup>/g بود. مورفولوژی ترکیبات ابروژل‌های ذکر شده با استفاده از تصاویر میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM) ارزیابی شد که در شکل ۳



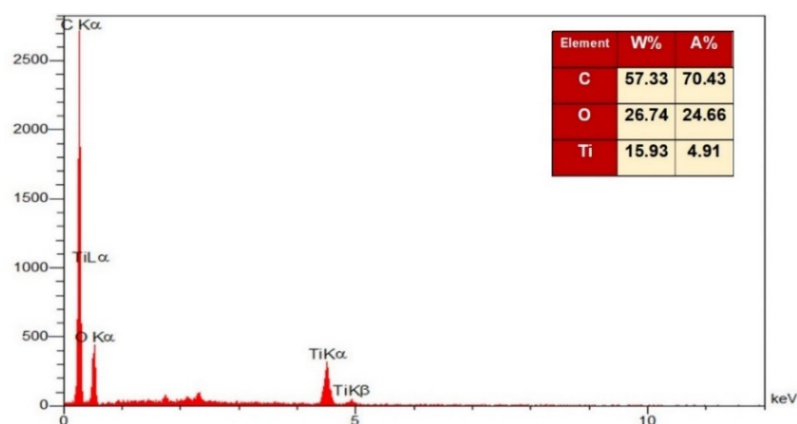
شکل ۳: a و c و x تصویر SEM و EDS-mapping ابروزل  $\text{RGO/CNT}/5/\text{TiO}_2$  و b و d و y تصویر SEM و EDS-mapping ابروزل  $\text{RGO/TiO}_2$



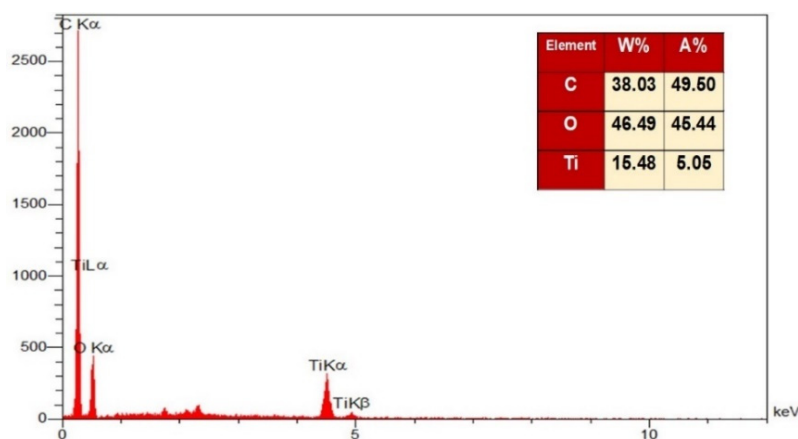
شکل ۴: الگوی پراش XRD ابروزل های  $\text{RGO/CNT}/5/\text{TiO}_2$  و  $\text{RGO/TiO}_2$



شکل ۵: طیف FT-IR ابروژل  $\text{RGO}/\text{TiO}_2$  و  $\text{RGO}/\text{CNT}5\%/\text{TiO}_2$



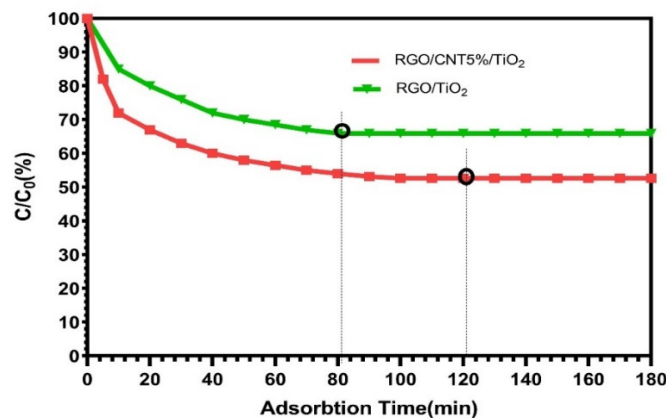
شکل ۶: طیف EDX ابروژل  $\text{RGO}/\text{CNT}5\%/\text{TiO}_2$



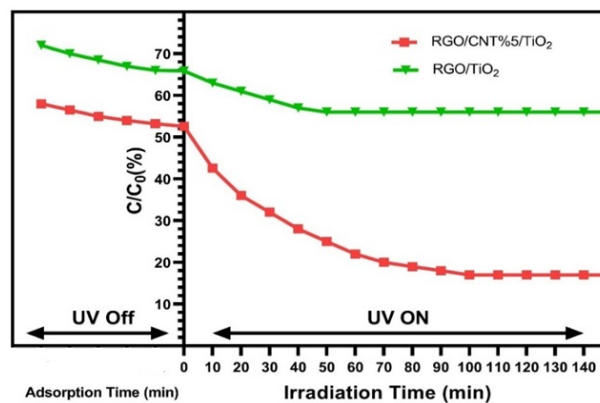
شکل ۷: طیف EDX ابروژل  $\text{RGO}/\text{TiO}_2$

$\text{RGO}/\text{TiO}_2$  را ۲۰ ppm جذب کند. این مقدار برای ابروژل  $\text{RGO}/\text{TiO}_2$  ۳۴/۰.۱۸ (۸۱ دقیقه) بود. علت آن را می توان اینگونه توضیح داد که جذب بیشتر مولکول تولوئن در ابروژل  $\text{RGO}/\text{CNT}5\%/\text{TiO}_2$  به عنوان جاذب متشکل از

همانطور که در شکل ۸ مشاهده می شود، این موضوع با نتایج به دست آمده از آنالیز BET سازگاری دارد. ابروژل  $\text{RGO}/\text{CNT}5\%/\text{TiO}_2$ ، در مدت زمان جذب تا اشباع توانست ۴۷/۵۳٪ (۱۲۲ دقیقه) از بخار تولوئن با غلظت



شکل ۸: روند فرآیند جذب سطحی بخار تولوئن (۲۰ ppm) توسط جاذب‌ها در حالت خاموشی راکتور



شکل ۹: نمودار روند تجزیه فتوکاتالیستی بخارات تولوئن توسط ایروزل‌ها در غلظت ۲۰ ppm

تخریب فتوکاتالیستی بخارات تولوئن تحت تاثیر متغیر نمونه ایروزل در غلظت ۲۰ ppm با میزان جریان حجم کلی ۱ lit/min از نظر آماری دارای اختلاف معنی دار (۰/۰۵ <  $t_{\text{test}}$  - ۳) می‌باشد (جدول ۱). همچنین کارایی حذف تولوئن طی فرآیند جذب سطحی نیز دارای اختلاف معنی دار (۰/۰۵ <  $t_{\text{test}}$  - ۵۶) است. میانگین حذف تولوئن طی فرآیند جذب سطحی ۴۷/۱۷٪ و طی فرآیند تخریب فتوکاتالیستی ۳۴/۱۷٪ بود. در نتیجه درصد کارایی حذف تولوئن در فرآیند تلفیقی متشکل از جذب سطحی و تخریب فتوکاتالیستی با استفاده از RGO/CNT/۵/TiO<sub>۲</sub>، ۸۱/۳۴٪ بود.

مزو و ماکرو تخلل‌ها باعث ایجاد سیستم کاتالیزوری عالی متناسب با مشخصات دینامیکی گاز شده و امکان تماس کافی به وسیله جذب سطحی آلاینده گازی به منظور ایجاد واکنش‌های گازی در سطح فتوکاتالیست را فراهم می‌کند.

همانطور که در شکل ۹ نشان داده شده، میانگین میزان تجزیه و مدت زمان از دست دادن کارایی تجزیه فتوکاتالیستی برای ایروزل‌های نانو کامپوزیتی TiO<sub>۲</sub>/RGO/۵٪ و RGO/TiO<sub>۲</sub> به ترتیب برابر با ۳۴/۱۷٪ در مدت ۱۱۰ دقیقه، ۹/۲۴٪ در مدت ۴۸ دقیقه بوده است یافته‌ها حاکی از آن بود که میانگین درصد کارایی

جدول ۱: مقایسه میانگین درصد کارایی حذف تولوئن با استفاده از ابروژل های فتوکاتالیستی

| کارایی حذف تولوئن (%) |        |       |                  |         | فرآیند / ابروژل                |             |
|-----------------------|--------|-------|------------------|---------|--------------------------------|-------------|
| P-Value*              | حداکثر | حداقل | انحراف استاندارد | میانگین |                                |             |
| ۳*۱۰ <sup>-۶</sup>    | ۳۵     | ۳۳    | ۱/۰۴             | ۳۴/۱۷   | TiO <sub>2</sub> /CNT%5/RGO/UV | Degradation |
|                       | ۹/۸۵   | ۸/۷۰  | ۰/۵۷۴            | ۹/۲۴    | TiO <sub>2</sub> /RGO/UV       |             |
| ۵۶*۱۰ <sup>-۶</sup>   | ۴۸/۲۱  | ۴۶/۳۲ | ۰/۹۵۷            | ۴۷/۱۷   | TiO <sub>2</sub> /CNT%5/RGO    | Adsorption  |
|                       | ۳۴/۸۳  | ۳۳/۱۷ | ۰/۸۳۲            | ۳۳/۹۶   | TiO <sub>2</sub> /RGO          |             |

\* Independent Sample T-Test

## بحث

محاسبه شده به روش BET، برای ابروژل فتوکاتالیستی RGO/CNT/TiO<sub>2</sub> بیشتر از RGO/TiO<sub>2</sub> بوده است. این امر به دلیل افزایش خلل و فرج در ساختار ابروژل پس از افزودن نانوذرات CNT بوده است. نتایج تصاویر میکروسکوپ الکترونی، نمودار EDX و تصاویر EDS- Mapping آشکار ساخت که پس از سنتز ابروژل، در اثر تثبیت نانوذرات دی اکسید تیتانیوم در حفرات ابروژل فتوکاتالیستی RGO/CNT/TiO<sub>2</sub> ذرات TiO<sub>2</sub> علاوه بر انباشتنی در سطح ابروژل، به منافذ موجود در سرتاسر ساختار تخلخلی آن نیز نفوذ کرده بودند. در مطالعه انجام شده توسط Yi Li و همکاران در سال ۲۰۱۶ از فتوکاتالیست های RGO/TiO<sub>2</sub> با درصدهای وزنی مختلف تیتانیوم دی اکسید برای حذف فتوکاتالیستی متیلین بلو استفاده شد که در آن سطح ویژه فتوکاتالیست با افزایش درصد وزنی تیتانیوم دی اکسید در ساختار RGO/TiO<sub>2</sub>، کاهش یافته است (۲۵). در سال ۲۰۱۷، Natarajan و همکاران به منظور افزایش کارایی نانولوله های تیتانیوم دی اکسید (TNT)، ترکیب درصدهای وزنی MWCNT/TNT را برای تخریب رودامین G۶ سنتز نمودند. نتایج ایشان حاکی از آن بود که با افزایش درصد وزنی MWCNT و به طبع آن افزایش مساحت ویژه کارایی تخریب آلاینده افزایش یافته است. همچنین این افزایش درصد وزنی CNT باعث بهبود خواص نوری و کاهش انرژی باندی (Band Gap) تیتانیوم موجود در نانوکامپوزیت شود (۲۶). طیف XRD به دست آمده برای ابروژل TiO<sub>2</sub>/RGO/CNT با کارت استاندارد JCPDS No. ۲۱-

در این مطالعه به منظور افزایش کارایی جذبی و فتوکاتالیستی ابروژل RGO/TiO<sub>2</sub>، این ابروژل با افزودن CNT سنتز شد. به ساختار شرح فرآیند سنتز ابروژل ها در شکل ۲ نشان داده شده است. ابتدا، مخلوط همگن حاوی سوسپانسیون GO و نانوذرات TiO<sub>2</sub> در کوره با دمای ۹۵ °C با افزودن آسکوربیک اسید به عنوان عامل کاهنده قرار گرفت و پس از ۵ ساعت، ابروژل ها تهیه شد. در این مرحله، نانوذرات TiO<sub>2</sub> مخلوط شده با سوسپانسیون GO، توانسته اند با تشکیل پیوندهای جدید با GO به دلیل وجود گروه های فراوان کربوکسیل (-COOH) و هیدروکسیل (-OH) به طور همگن در دو طرف صفحات GO تثبیت شوند (۲۴). پس از کاهش GO، نانوذرات TiO<sub>2</sub> با اتصال شیمیایی بر روی سطح صفحات گرافن باقی ماندند. در همین حال، هنگامی که صفحات GO به علت گیرافتادگی فیزیکی (بین صفحات گرافنی) کوچک می شوند، سایر نانوذرات آزاد TiO<sub>2</sub> موجود در مخلوط می توانند به هم متصل شده تا یک ساختار سه بعدی تشکیل شود. بنابراین، نانوذرات بارگذاری شده بر روی صفحات GO می توانند خودآرایی کرده و هیدروژل سه بعدی به دست آید. پس از آن، هیدروژل های به دست آمده با آب دیونیزه به مدت دو روز دیالیز شدند تا عامل کاهنده (آسکوربیک اسید) حذف شود. در نهایت، هیدروژل ها به مدت دو روز تحت فرآیند Freeze Drying قرار گرفته تا ابروژل های نانوکامپوزیتی حاصل شوند. نتایج مطالعه حاضر نشان داد که مساحت سطح ویژه

۱۲۷۲ مطابق دارد (۲۷). مقایسه الگوهای XRD مربوط به ابروژل‌های تهیه شده نشان می‌دهد، صفحه (۰۰۲) مربوط به لایه‌ی کربنی که زاویه  $22/093^\circ$  در  $\text{TiO}_2/\text{RGO}$  به زاویه  $21/793^\circ$  در  $\text{RGO/CNT/TiO}_2$  منتقل شده است. همچنین می‌توان مشاهده نمود که شبکه کریستالی  $\text{TiO}_2$  در ابروژل  $\text{RGO/TiO}_2$  با اضافه شدن نانولوله کربنی و تشکیل ابروژل  $\text{RGO/CNT/TiO}_2$  بدون تغییر باقیمانده است که نشان می‌دهد تبلور و ساختار فاز  $\text{TiO}_2$  نتوانسته تا حد زیادی با افزودن CNT تحت تاثیر قرار گیرد. گرچه پیک مربوط به صفحه (۰۰۲) در ابروژل  $\text{RGO/CNT/TiO}_2$  قوی‌تر از همین پیک در ابروژل  $\text{RGO/TiO}_2$  است. با مشاهده دقیق، می‌توان دریافت که شدت پیک‌های مشخصه  $\text{TiO}_2$  با افزایش درصد بارگذاری تیتانیوم دی اکسید افزایش می‌یابد که به این معنی است که ترکیب ابروژل  $\text{RGO/CNT/TiO}_2$  را می‌توان با نسبت جرم اولیه GO و تیتانیوم دی اکسید تنظیم کرد. همچنین مقایسه طیف‌های FT-IR مربوط به ابروژل‌ها نشان می‌دهد، اضافه شدن CNT به ساختار ابروژل باعث تغییر در برخی قله‌های مربوط به پیوندهای کربن و اکسیژن موجود در ساختار ابروژل  $\text{CNT/TiO}_2/\text{RGO}$  شده است. با توجه به شکل ۵ و مقایسه طیف‌های دو نوع ابروژل فتوکاتالیستی، متفاوت بودن طیف‌ها در نتیجه افزودن MWCNT، مشهود است (۲۸).

نتایج آزمایش جذب سطحی بخار تولوئن در غلظت ۲۰ ppm نشان داد که ابروژل نانوکامپوزیتی  $\text{CNT/TiO}_2/\text{RGO}$  درصد وزنی ۵٪ نانولوله کربنی به دلیل برخورداری از مساحت سطح ویژه و تخلخل بیشتر، دارای میزان جذب بالاتری بوده و در نتیجه زمان اشباع طولانی‌تری نسبت به ابروژل  $\text{RGO/TiO}_2$  دارد.

افزودن CNT به ساختار ابروژل  $\text{RGO/TiO}_2$  تاثیر به‌سزایی در افزایش میزان تجزیه و تخریب فتوکاتالیستی بخارات تولوئن با غلظت ۲۰ ppm، داشته است. این افزایش میزان تجزیه و تخریب فتوکاتالیستی را می‌توان ناشی از توانایی رسانندگی الکترون و همچنین خاصیت فتوکاتالیستی CNT دانست. به همین دلیل می‌توان

CNT را به عنوان یک کمک کاتالیست بهینه در ساختار ابروژل  $\text{RGO/CNT/TiO}_2$  معرفی کرد.

Wang و همکارانش در سال ۲۰۱۹، به منظور افزایش بازدهی کاتالیستی نانوذرات  $\text{TiO}_2$  به طراحی و ساخت فتوکاتالیست  $\text{RGO/TiO}_2/\text{Ag}$  در حالت‌های پودری و ابروژل برای تجزیه فرمالدهید در فاز گازی و مایع پرداختند. در این پژوهش علاوه بر بررسی دقیق اثر نقره، هیچگونه بررسی اثر نوع ریزساختار ابروژل بر روی رفتار تخریب فتوکاتالیستی انجام نشد. در نتیجه می‌توان اثر مهندسی ریزساختاری (بافت) پایه ابروژل را بر روی کارایی حذف فتوکاتالیستی به عنوان یک پارامتر مورد بررسی قرار داد (۲۹). نتایج ایشان حاکی از آن بود که نقره توانست اثر فتوکاتالیستی  $\text{RGO/TiO}_2/\text{Ag}$  چه در حالت ابروژل و چه در حالت پودری، افزایش دهد، به طوری که در حالت ابروژل نرخ تخریب فتوکاتالیستی گاز فرمالدهید در عرض ۲ ساعت ۷۷/۰۸٪ بود. همچنین نتایج Yue و همکارانشان در سال ۲۰۱۹ در حذف تولوئن با استفاده از نانوذرات گرافن و تیتانیوم اکسید نشان داد که نانوذرات آمورف  $\text{TiO}_2$  به طور همگن بر روی سطح گرافن رسوب کرده و از این رو ساختار ریز متخلخل ۲ بعدی ۲ بعدی را تشکیل می‌دهند. اگرچه مساحت سطح ترکیبات GR- $\text{TiO}_2$  تنها ۴-۸٪ نسبت به  $\text{TiO}_2$  ریز متخلخل به تنهایی افزایش یافت، مقدار تولوئن جذب شده برای ترکیبات  $\text{GR-TiO}_2$ ، ۱۵۵-۱۹۳٪ بیشتر از  $\text{TiO}_2$  ریز متخلخل بود (۳۰). حال آنکه توسعه یک نانوساختار متخلخل شکل گرفته در یک شبکه لانه زنبوری سه بعدی می‌تواند خواص سطحی و فتوکاتالیستی را بهبود بخشد (۳۱).

علاوه بر این در برخی از پژوهش‌ها CNT، خود به تنهایی به عنوان فتوکاتالیست (۲۱)، و در بسیاری از پژوهش‌ها به عنوان بستر، کمک کاتالیست و رساننده الکترون در ساختار نمونه‌ها مورد استفاده قرار گرفته است (۳۲) که با نتایج مطالعه حاضر همخوانی دارند.

### نتیجه گیری

ابروژل‌های  $\text{RGO/CNT}/\text{TiO}_2$  از طریق روش

تیتانیوم دی اکسید/نانولوله کربنی (RGO/CNT/TiO<sub>2</sub>)، توصیه می‌شود این سیستم تلفیقی برای سایر آلاینده‌های آلی فرار، هم در فاز گاز و هم در فاز مایع مورد مطالعه قرار گیرد.

### تشکر و قدردانی

نویسندگان بر خود لازم میدانند از معاونت توسعه پژوهش و فناوری دانشگاه علوم پزشکی جندی شاپور اهواز برای حمایت مالی این طرح تحقیقاتی قدردانی بعمل آورند. مقاله حاضر نتیجه طرح تحقیقاتی پایان نامه مصوب شماره ۰۲۱۵-ETRC با عنوان تعیین کارایی ابروژل نانوکامپوزیتی گرافن اکسید احیا شده/نانولوله کربنی/تیتانیوم دی اکسید (RGO/CNT/TiO<sub>2</sub>) در حذف فتوکاتالیستی بخارات تولوئن و کد اخلاق IR.AJUMS. REC.۱۴۰۲.۳۲ می‌باشد و کلیه حقوق این پایان‌نامه برای معاونت توسعه پژوهش و فناوری دانشگاه علوم پزشکی جندی شاپور اهواز محفوظ است.

### REFERENCES

- Maung TZ, Bishop JE, Holt E, Turner AM, Pfrang C. Indoor air pollution and the health of vulnerable groups: a systematic review focused on particulate matter (PM), volatile organic compounds (VOCs) and their effects on children and people with pre-existing lung disease. *International journal of environmental research and public health*. 2022;19(14):8752.
- David E, Niculescu V-C. Volatile organic compounds (VOCs) as environmental pollutants: Occurrence and mitigation using nanomaterials. *International journal of environmental research and public health*. 2021;18(24):13147.
- Samples T, Samples C, Samples P. OSHA PEL: ACGIH TLV. 1998.
- Belaissaoui B, Le Moullec Y, Favre E. Energy efficiency of a hybrid membrane/condensation process for VOC (Volatile Organic Compounds) recovery from air: A generic approach. *Energy*. 2016;95:291-302.
- Han W, Wu S, Dong F, Han W, Chu Y, Su L, et al. A confined growth strategy to construct 3DOM SiO<sub>2</sub> nanoreactor in-situ embedded Co<sub>3</sub>O<sub>4</sub> nanoparticles catalyst for the catalytic combustion of VOCs: Superior H<sub>2</sub>O and SO<sub>2</sub> resistance. *Nano Research*. 2024;17(1):207-20.
- Zhou H, Su W, Xing Y, Wang J, Zhang W, Jia H, et al. Progress of catalytic oxidation of VOCs by manganese-based catalysts. *Fuel*. 2024;366:131305.
- Luo Y, Liu R, Yu S, Xue M, Xie X. Thermal oxidation of VOCs. *Volatile Organic Compound Removal: Elsevier*; 2024. p. 27-60.
- Belkessa N, Assadi AA, Bouzaza A, Nguyen-Tri P, Amrane A, Khezami L. A review of Non-thermal plasma-catalysis: The mutual influence and sources of synergetic effect for boosting volatile organic compounds removal. *Environmental Research*. 2024;119333.
- Li J, Xia T, Xu J, Zhang C, Xu L, Wu Z, et al. Boosting the plasma catalytic performance of CeO<sub>2</sub>/γ-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>

خودآرایی آبی حرارتی با استفاده از آسکوربیک اسید به عنوان عامل کاهنده و پیوند دهنده سنتز شدند. وجود ساختار متخلخل سه بعدی، ابروژل‌های نانوکامپوزیتی را از مساحت سطح ویژه و حجم منافذ بالا برخوردار ساخته و به یک جاذب مطلوب تبدیل کرده است. همچنین عملکرد فتوکاتالیستی عالی برای تخریب بخار آلاینده بخار تولوئن دارد و بسیار بهتر از عملکرد ابروژل TiO<sub>2</sub>/RGO بود. به دلیل افزایش جذب نور و بهبود راندمان جداسازی الکترون و حفره و همچنین انتقال بار موثر از نانوذرات TiO<sub>2</sub> به شبکه گرافن است. این امر را به علت اضافه شدن MWCNT به ساختار بود.

توسعه ساختارهای شبکه‌ای متشکل از حفرات نانو، مزو و ماکرو در قالب ابروژل و همچنین نانوذراتی نظیر CNT در فناوری فتوکاتالیستی و جذبی توانسته سبب بهبود کارایی تصفیه VOC ها در هوای داخل شود. با توجه به مناسب بودن کارایی حذف آلاینده بخار تولوئن در هوا با استفاده از ابروژل فتوکاتالیستی گرافن اکسید/

- in long-chain alkane VOCs via tuning the crystallite size. *Applied Surface Science*. 2023;611:155742.
10. Yu M, Yu T, Chen S, Guo Z, Seok I. A facile synthesis of Ag/TiO<sub>2</sub>/rGO nanocomposites with enhanced visible light photocatalytic activity. *ES Materials & Manufacturing*. 2020;7(24):64-9.
  11. Li D, Su R, Ma X, Zeng Z, Li L, Wang H. Porous carbon for oxygenated and aromatic VOCs adsorption by molecular simulation and experimental study: Effect pore structure and functional groups. *Applied Surface Science*. 2022;605:154708.
  12. Zheng G, Wei K, Kang X, Fan W, Ma NL, Verma M, et al. A new attempt to control volatile organic compounds (VOCs) pollution-modification technology of biomass for adsorption of VOCs gas. *Environmental Pollution*. 2023:122451.
  13. Zhu L, Shen D, Luo KH. A critical review on VOCs adsorption by different porous materials: Species, mechanisms and modification methods. *Journal of hazardous materials*. 2020;389:122102.
  14. Li G, Chen K, Lei Z, Wei Z. Condensable gases capture with ionic liquids. *Chemical Reviews*. 2023;123(16):10258-301.
  15. Wu X, Lin Y, Wang Y, Wu S, Yang C. Volatile organic compound removal via biofiltration: influences, challenges, and strategies. *Chemical Engineering Journal*. 2023:144420.
  16. Bui VKH, Nguyen TN, Van Tran V, Hur J, Kim IT, Park D, et al. Photocatalytic materials for indoor air purification systems: An updated mini-review. *Environmental Technology & Innovation*. 2021;22:101471.
  17. Jaison A, Mohan A, Lee Y-C. Recent developments in photocatalytic nanotechnology for purifying air polluted with volatile organic compounds: effect of operating parameters and catalyst deactivation. *Catalysts*. 2023;13(2):407.
  18. Ijaz M, Zafar M. Titanium dioxide nanostructures as efficient photocatalyst: Progress, challenges and perspective. *International Journal of Energy Research*. 2021;45(3):3569-89.
  19. Yu J, Ma T, Liu S. Enhanced photocatalytic activity of mesoporous TiO<sub>2</sub> aggregates by embedding carbon nanotubes as electron-transfer channel. *Physical Chemistry Chemical Physics*. 2011;13(8):3491-501.
  20. Ahmad A, Ali M, Al-Sehemi AG, Al-Ghamdi AA, Park J-W, Algarni H, et al. Carbon-integrated semiconductor photocatalysts for removal of volatile organic compounds in indoor environments. *Chemical Engineering Journal*. 2023;452:139436.
  21. Zhang LL, Xiong Z, Zhao X. Pillaring chemically exfoliated graphene oxide with carbon nanotubes for photocatalytic degradation of dyes under visible light irradiation. *ACS Nano*. 2010;4(11):7030-6.
  22. Biranje PM, Prakash J, Alexander R, Kaushal A, Patwardhan AW, Joshi JB, et al. Ultra-fast detection and monitoring of cancerous volatile organic compounds in environment using graphene oxide modified CNT aerogel hybrid gas sensor. *Talanta Open*. 2022;6:100148.
  23. Tewatia K, Sharma A, Sharma M, Kumar A. Synthesis of graphene oxide and its reduction by green reducing agent. *Materials Today: Proceedings*. 2021;44:3933-8.
  24. Cong H-P, Ren X-C, Wang P, Yu S-H. Macroscopic Multifunctional Graphene-Based Hydrogels and Aerogels by a Metal Ion Induced Self-Assembly Process. *ACS Nano*. 2012;6(3):2693-703.
  25. Li Y, Yang J, Zheng S, Zeng W, Zhao N, Shen M. One-pot synthesis of 3D TiO<sub>2</sub>-reduced graphene oxide aerogels with superior adsorption capacity and enhanced visible-light photocatalytic performance. *Ceramics International*. 2016;42(16):19091-6.
  26. Natarajan TS, Lee JY, Bajaj HC, Jo W-K, Tayade RJ. Synthesis of multiwall carbon nanotubes/TiO<sub>2</sub> nanotube composites with enhanced photocatalytic decomposition efficiency. *Catalysis today*. 2017;282:13-23.
  27. Najafi M, Kermanpur A, Rahimpour MR, Najafizadeh A. Effect of TiO<sub>2</sub> morphology on structure of TiO<sub>2</sub>-graphene oxide nanocomposite synthesized via a one-step hydrothermal method. *Journal of Alloys and Compounds*. 2017;722:272-7.
  28. Huang Y, Chen D, Hu X, Qian Y, Li D. Preparation of TiO<sub>2</sub>/carbon nanotubes/reduced graphene oxide composites with enhanced photocatalytic activity for the degradation of rhodamine B. *Nanomaterials*. 2018;8(6):431.

29. Wang H, Wang G, Zhang Y, Ma Y, Wu Z, Gao D, et al. Preparation of RGO/TiO<sub>2</sub>/Ag aerogel and its photodegradation performance in gas phase formaldehyde. *Scientific Reports*. 2019;9(1):16314.
30. Yue L, Cheng R, Ding W, Shao J, Li J, Lyu J. Compositing micropores constructed by amorphous TiO<sub>2</sub> and graphene for degrading volatile organic compounds. *Applied Surface Science*. 2019;471:1-7.
31. Maleki H, Hüsing N. Current status, opportunities and challenges in catalytic and photocatalytic applications of aerogels: Environmental protection aspects. *Applied Catalysis B: Environmental*. 2018;221:530-55.
33. Ghasemipour P, Fattahi M, Rasekh B, Yazdian F. Developing the ternary ZnO doped MoS<sub>2</sub> nanostructures grafted on CNT and reduced graphene oxide (RGO) for photocatalytic degradation of aniline. *Scientific reports*. 2020;10(1):4414.