

DÉGRADATION DU PARACÉTAMOL; PHOTOCATALYSÉE PAR DES OXYDES MÉSOPOREUX

Hajer AZZI^{1,2*}, Yassine Cherif¹, Linda Hamida Ghernaout¹, Kenza Drissi^{1,2}

¹ Laboratoire de catalyse et de synthèse en chimie organique / Abou Bakr Belkaid, Tlemcen, Algérie

² Université de Ain Témouchent, Institut des Sciences et de la Technologie, BP 284, 46000 Ain Témouchent

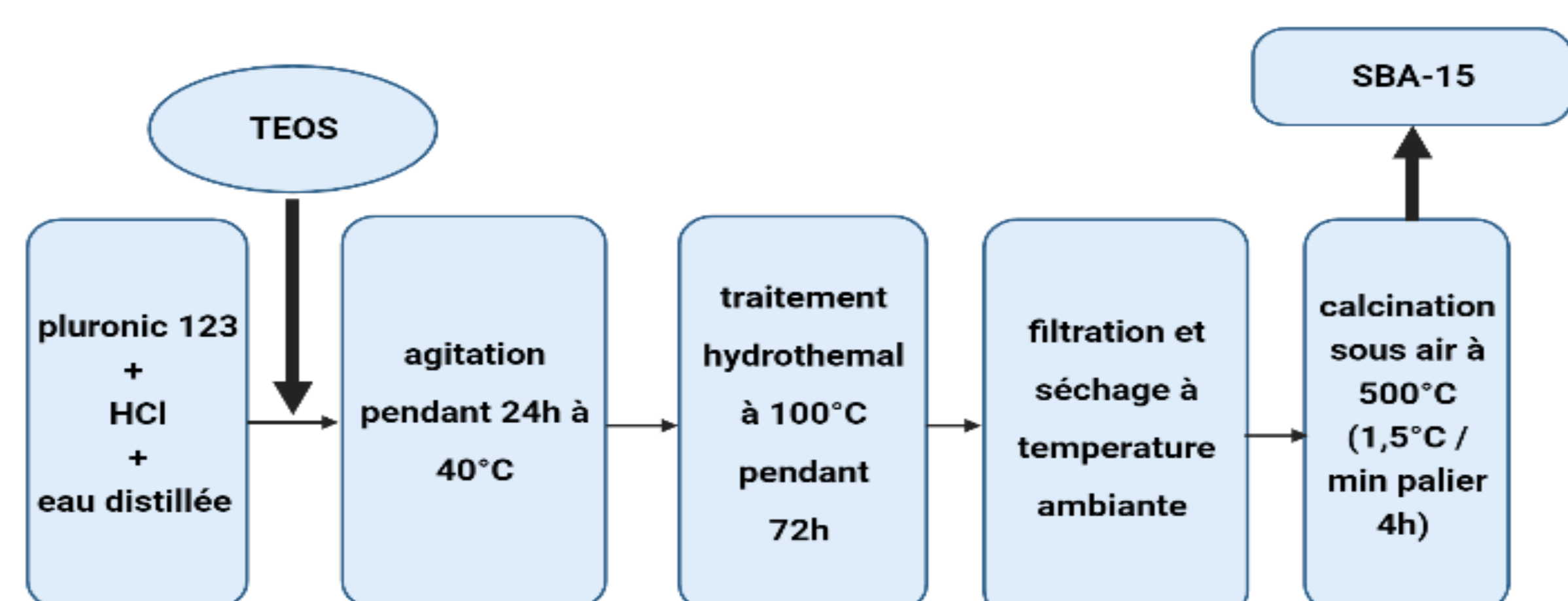
Email: catalyse030781@yahoo.fr; hajer.azzi@univ-aintemouchent.dz

INTRODUCTION

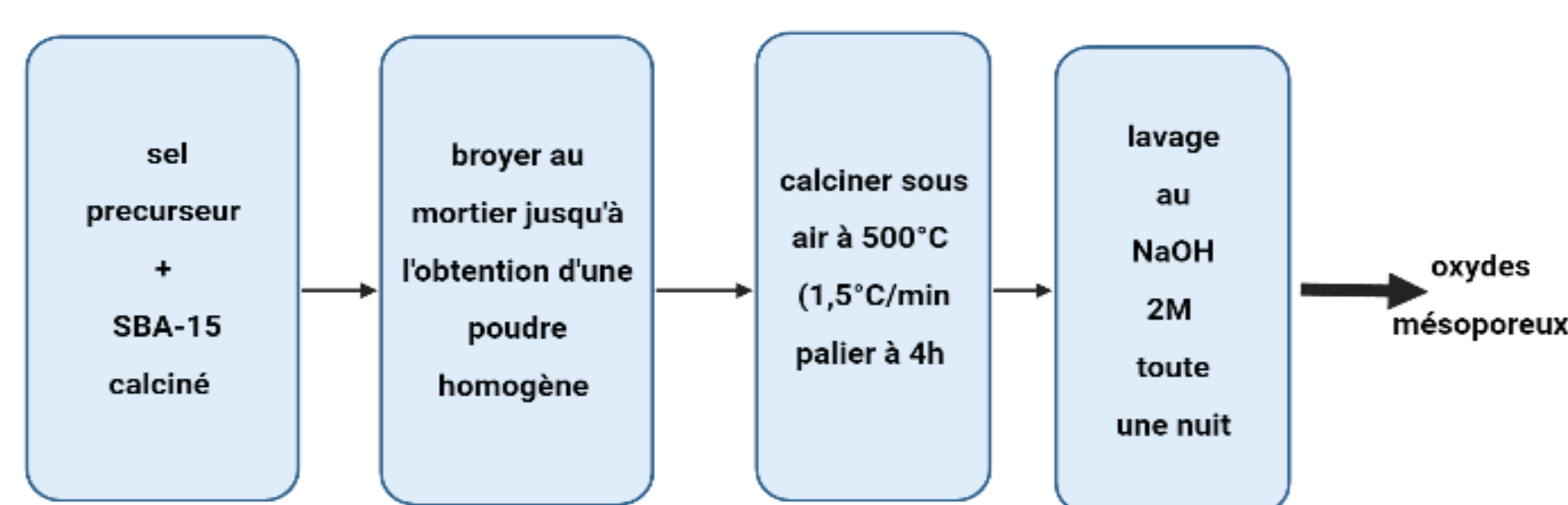
Le développement rapide de l'industrie et de la société ne cesse de générer des rejets liquides contenant des composés hautement toxiques avec une biodégradabilité limitée. Les produits pharmaceutiques sont un type de contaminants de l'eau de plus en plus répandus. Ils sont principalement attribués aux déchets hospitaliers et thérapeutiques, et à l'industrie pharmaceutique. Parmi les techniques de traitement possibles de ces polluants, la photocatalyse qui apparaît comme l'un des procédés les moins onéreux à mettre en place pour conduire à la minéralisation des polluants de l'environnement.

Dans cette optique nous avons synthétisé de nouveaux matériaux à base d'oxydes de cérium et de manganèse Ce_x-Mn_{x-1} ($x = 0; 0,25; 0,50; 0,75$ et 1) et étudié leur hétérojonction et leur efficacité dans la dépollution, en utilisant la photocatalyse d'une molécule pharmaceutique model : l'acétaminophène (paracétamol) qui fait partie des molécules les plus consommées dans le monde encore plus avec la pandémie du Covid-19.

Synthèse de la SBA-15



Catalysts Preparation



Synthèse des oxydes mésoporeux

Catalyst characterizations

Détermination de l'énergie de gap du CeO₂.

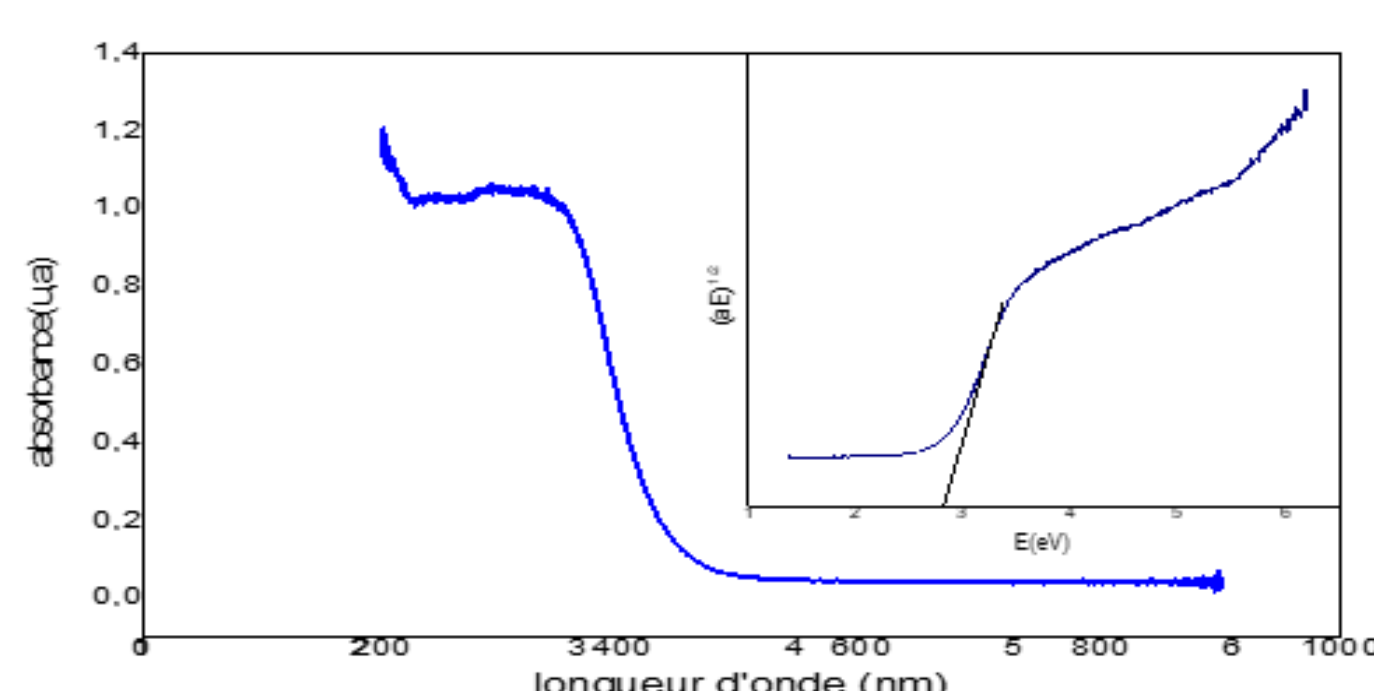
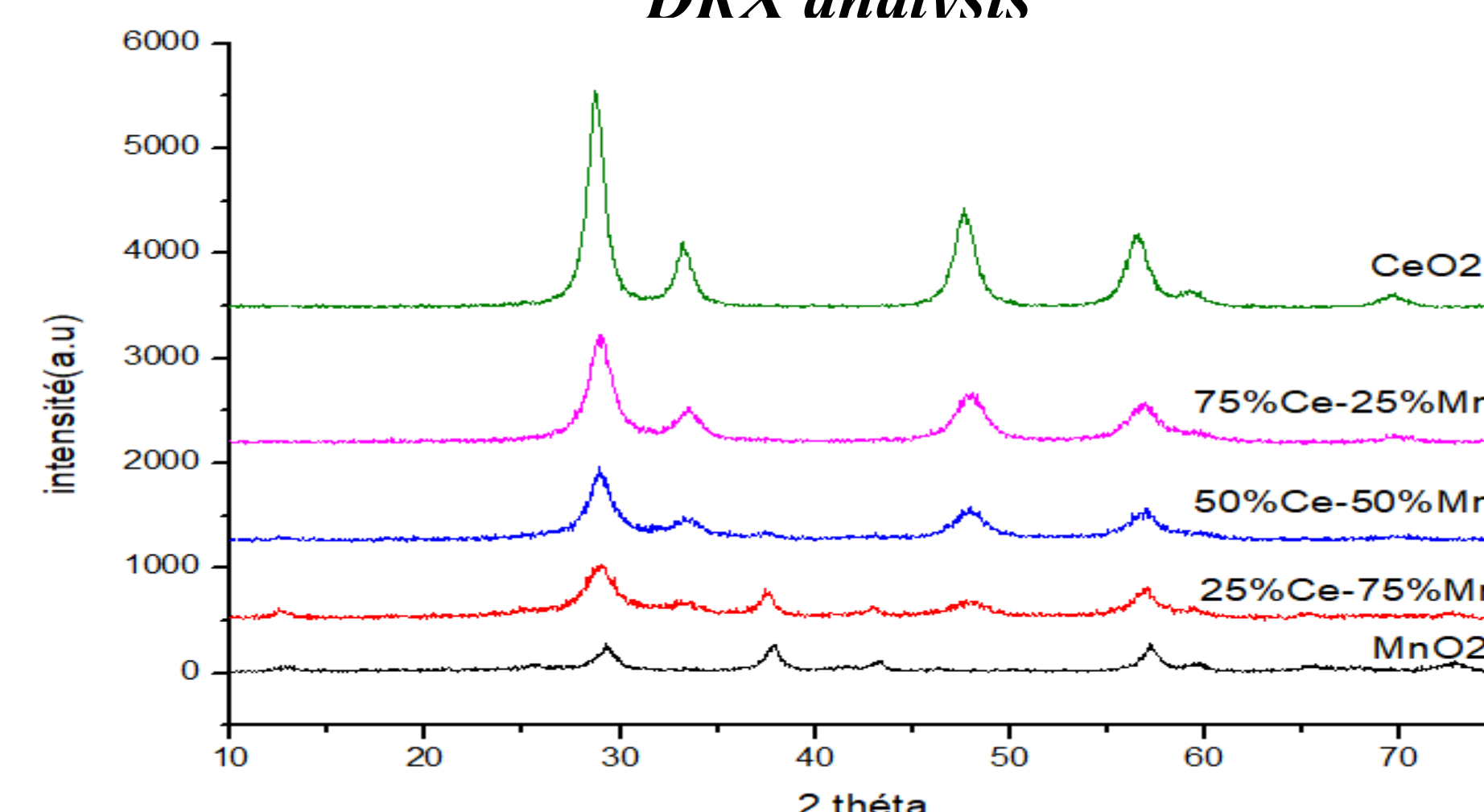


Tableau 1: Caractéristiques texturales des matériaux synthétisés

Matériaux	Surface spécifique (m ² /g)	Distribution des pores (nm)	Type d'isotherme
SBA-15	584	9	Type IV
MnO ₂	127	15	
Ce _{0,75} -Mn _{0,25}	155	13	

DRX analysis



Les résultats obtenus avec l'adsorption d'azote confirment la mésoporosité des oxydes.

On note aussi que l'oxyde mésoporeux MnO₂ et l'oxyde Ce_{0,75}-Mn_{0,25} mésoporeux synthétisés présentent une importante surface spécifique comparée à celle des oxydes conventionnels.

Tableau 2: Energie de gap des oxydes préparés.

Oxydes mésoporeux	Energie de gap (ev)
MnO ₂	1,04
CeO ₂	2,7
25%Ce-75%Mn	1,6
50%Ce-50%Mn	2,7
75%Ce-25%Mn	2,9

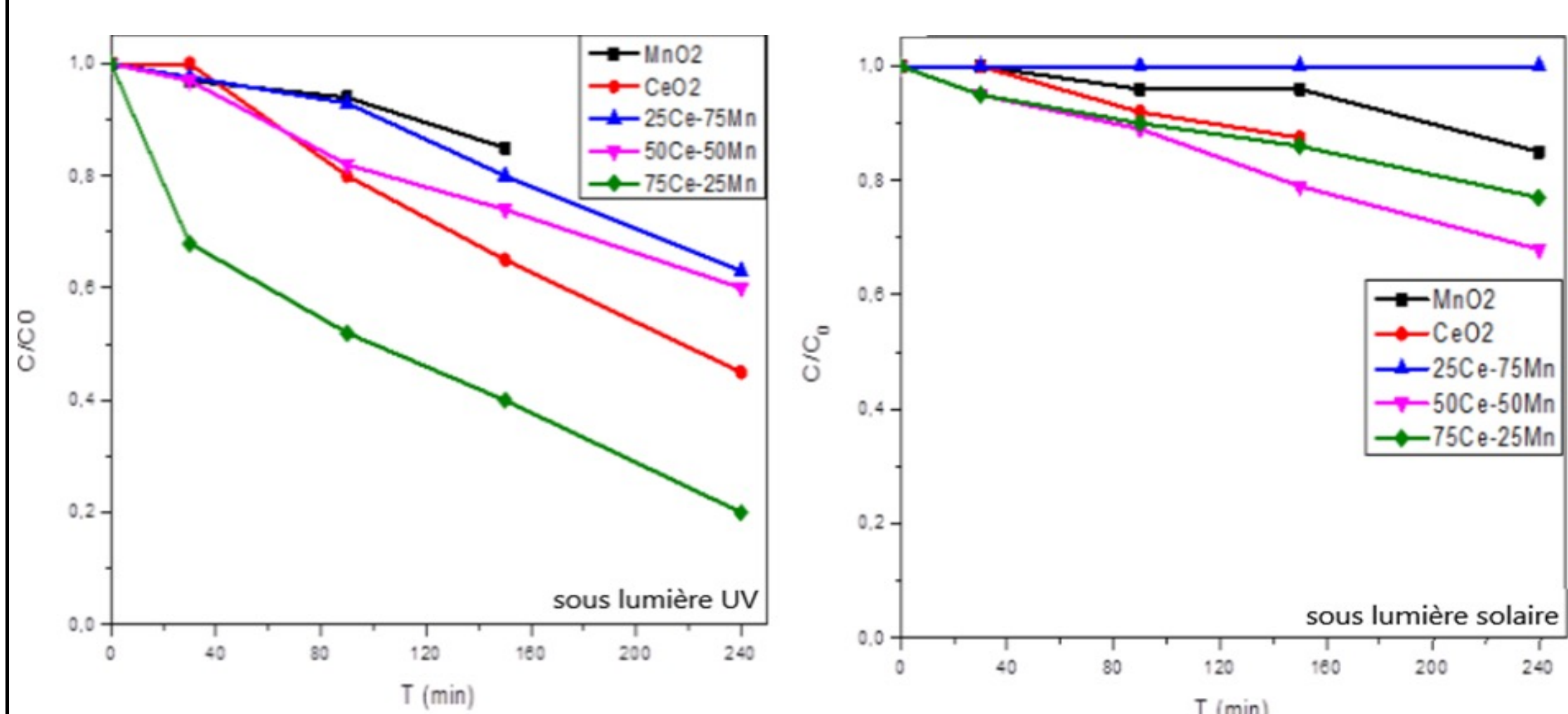
Pour le dioxyde de cérium les résultats de diffraction 2θ valent, sont caractéristiques de la phase cubique de l'oxyde de cérium [1].

Pour l'oxyde de manganèse le diffractogramme révèle une structure tétragonale [38].

Quant aux oxydes Ce_x-Mn_{x-1} ($x = 0; 0,25; 0,50; 0,75$ et 1), les résultats des rayons que plus la teneur en cérium augmente plus l'intensité des pics le concernant augmentent.

Il est intéressant de noter un léger déplacement des pics de diffraction vers des valeurs plus élevées, ceci est dû à l'incorporation d'ions de Mn de plus petites tailles ($Mn^{4+} = 0,053nm$) [40] dans le réseau du cérium ($Ce^{4+} = 0,097nm$) [41] ce qui indique la formation d'une solution solide

Résultats des tests catalytiques sous les deux lumières UV et solaire.



Teste Catalytique

L'activité des catalyseurs synthétisés dans la photodégradation de l'acétaminophène suit l'ordre décroissant suivant :

75%Ce-25%Mn > CeO₂ > 50%Ce-50%Mn > 25%Ce-75%Mn > MnO₂.

Tableau 3: Activité catalytique des photocatalyseurs synthétisés.

Oxydes mésoporeux	Conversion résultant de l'irradiation UV	Conversion résultant de l'irradiation solaire	Surface spécifique (m ² /g)	Energie de gap (ev)
MnO ₂	15%	11%	122	1,04
CeO ₂	55%	13%	/	2,7
25%Ce-75%Mn	37%	0%	/	1,6
50%Ce-50%Mn	41%	35%	/	2,7
75%Ce-25%Mn	80%	23%	155	2,9

Le catalyseur ayant présenté la meilleure activité est l'oxyde mésoporeux (75% Ce- 25% Mn), en même temps il possède la plus grande énergie de gap (2,95ev), en parallèle la plus faible conversion est obtenue avec l'oxyde de manganèse sachant qu'il a la plus faible énergie de gap. Notons aussi que le catalyseur Ce_{0,75}- Mn_{0,25} a une surface spécifique plus importante que celle de MnO₂.

l'activité catalytique sous la lumière solaire du Ce_{0,75}-Mn_{0,25} a nettement diminuée par rapport à son activité sous irradiation UV on peut en déduire qu'il est plus réactif sous UV que sous lumière solaire.

Conclusion

La mésoporosité des matériaux a été confirmée grâce à la BET, ces derniers ont de plus grandes surfaces spécifiques que les oxydes conventionnels et une taille de pores aussi importants caractéristique des oxydes mésoporeux.

En ce qui concerne la structure des oxydes, il y a eu formation d'une solution solide et la phase cubique pour le CeO₂.

Le meilleur photocatalyseur est le Ce_{0,75}-Mn_{0,25} sous lumière UV, et le Ce_{0,50}-Mn_{0,50} sous irradiation solaire.

Le MnO₂ booste l'activité photocatalytique du CeO₂.

Il y a une corrélation entre activité catalytique, surface spécifique et énergie de gap.

On note aussi que l'activité a nettement baissé en présence de cérium. Comme il est connu le CeO₂ est un semi-conducteur à large bande interdite autour de 2,8 à 3,1 eV et ne pourrait absorber que la région UV et légèrement dans la région visible jusqu'à ~400 nm, ce qui représente moins de 5 % de l'énergie du spectre solaire [8].

References

- [1] Arfaoui, J., Khalfallah Boudali, L., Ghorbel, A., Appl. Clay Sci. **2010**, 48, 171-178.
- [2] X. Zhao, R. Long, Y. Chen and Z. Chen, *Microelectronic Engineering* **2010**, **87**, 1716-1720.
- [3] P. L. a. D. XUE, *Modern Physics Letters B* **2009**, **23**.
- [4] H. a. L. C. Siffert, *springer nature B.V* **2020**.
- [5] R. Ma, S. Zhang, T. Wen, P. Gu, L. Li, G. Zhao, F. Niu, Q. Huang, Z. Tang and X. Wang, *Catalysis Today* **2019**, **335**, 20-30.