



## ORIGINAL RESEARCH PAPER

## Efficient Photocatalytic Degradation of Tetracycline in Aquaculture Wastewater Using Copper Oxide/Graphene Oxide (CuO/GO) Nanocomposite

M. Jahanshahi<sup>1,\*</sup>, N. Mirhosseini rayen<sup>2</sup>

<sup>1</sup> Department of Chemistry, Faculty of Science, University of Jiroft, Jiroft, Iran

<sup>2</sup> Master's student, Department of Chemistry, Faculty of Science, University of Jiroft, Jiroft, Iran

## ARTICLE INFO

## Article History:

Received: 2025/06/1

Revised: 2025/12/13

Accepted: 2025/12/13

## Keywords:

Sustainable Purification,  
Tetracycline Removal,  
Photocatalytic Degradation ,  
Nanomaterials ,  
Water Treatment

\*Corresponding author:

✉ [mj.jahanshahi@ujiroft.ac.ir](mailto:mj.jahanshahi@ujiroft.ac.ir)

Doi: [10.52547/joc.16.63.2](https://doi.org/10.52547/joc.16.63.2)

ORID: 0000-0002-6672-9801

## ABSTRACT

**Background and Objectives:** This work investigated the design and synthesis of a copper oxide/graphene oxide (CuO/GO) nanocatalyst for the removal of the pharmaceutical pollutant tetracycline from synthetic and real aquaculture wastewater. The use of advanced water treatment technologies is increasingly important to address the rising levels of pharmaceutical contaminants in water resources. Tetracycline, a widely used antibiotic in aquaculture, can enter water sources due to its high resistance to biological degradation, posing harmful effects on aquatic ecosystems and human health. Given the limitations of conventional treatment methods, this research focuses on designing semiconductor nanomaterials and synthesizing the CuO/GO nanocomposite, with the ultimate goal of achieving maximum photocatalytic degradation of tetracycline.

**Methods:** In this study, graphite powder was used as a source for synthesizing graphene oxide nanosheets via the modified Hummers' method, and the final CuO/GO nanocomposite was synthesized using a co-precipitation method. The photocatalytic degradation performance of this nanocomposite in removing tetracycline from aquaculture wastewater was evaluated. Influential parameters such as initial concentration, pH, contact time, and nanocomposite dosage were optimized. The structure and morphology of the CuO/GO nanocomposite were characterized using scanning electron microscopy (SEM), X-ray diffraction (XRD), and Fourier-transform infrared spectroscopy (FTIR).

**Findings:** The results confirmed the high potential of the CuO/GO nanocomposite in effectively removing tetracycline from aquaculture wastewater and its stability over multiple recovery and reuse cycles. The nanocomposite achieved 97% tetracycline removal under a wide range of operational parameters through a photocatalytic degradation mechanism. Optimization of various processes, including TC concentration, nanocomposite dosage, contact time, and pH, led to higher removal efficiency and faster degradation rates. After four recovery cycles, only a slight reduction in removal efficiency was observed.

**Conclusion:** The CuO/GO nanocomposite, combining copper oxide and graphene oxide, is introduced as an innovative and efficient method for removing tetracycline from aquaculture wastewater. By increasing active surface area and improving electron transfer, this nanocomposite successfully achieves maximum antibiotic removal under different operational conditions. These findings provide a basis for developing advanced and efficient water treatment methods, representing a significant step toward protecting water resources and mitigating the harmful environmental impacts of such pollutants on ecosystems.



NUMBER OF TABLES

1



NUMBER OF FIGURES

10



NUMBER OF REFERENCES

28

## مقاله پژوهشی

## حذف فوتوکاتالیستی کارآمد تتراسایکلین از پساب آبی‌پروری با استفاده از نانوکامپوزیت اکسیدمس / اکسیدگرافن (CuO/GO)

نشریه علمی پژوهشی اقیانوس‌شناسی (مهندسی و علوم پایه)

محمدجواد جهانشاهی<sup>۱\*</sup>، نگین السادات میرحسینی راین<sup>۲</sup>

۱- گروه شیمی، دانشکده علوم پایه، دانشگاه جیرفت، جیرفت، ایران

۲- دانشجوی کارشناسی ارشد، گروه شیمی، دانشکده علوم پایه، دانشگاه جیرفت، جیرفت، ایران

## اطلاعات مقاله

## چکیده

**پیشینه و اهداف:** در این مطالعه، طراحی و سنتز نانوکاتالیست اکسیدمس / اکسیدگرافن (CuO/GO) با هدف حذف آلاینده‌ی دارویی تتراسایکلین از پساب مصنوعی و پساب حقیقی آبی‌پروری مورد بررسی قرار گرفت. استفاده از فناوری‌های نوین در تصفیه آب، به منظور مقابله با افزایش آلاینده‌های دارویی در منابع آبی، اهمیت فزاینده‌ای دارد. تتراسایکلین، به عنوان یک آنتی‌بیوتیک پرکاربرد در آبی‌پروری، به دلیل مقاومت زیاد در برابر تجزیه بیولوژیکی، می‌تواند در منابع آبی وارد و اثرات زیان‌باری بر اکوسیستم‌های آبی و سلامت انسان داشته باشد. با توجه به محدودیت‌های روش‌های تصفیه سنتی، این پژوهش بر طراحی نانو مواد نیمه‌رسانا و سنتز نانوکامپوزیت CuO/GO، متمرکز شده‌است و هدف این تحقیق، دستیابی به حداکثر تخریب‌نوری تتراسایکلین می‌باشد.

**روش‌ها:** در این مطالعه، از پودر گرافیت به عنوان منبعی برای سنتز نانوصفحات اکسیدگرافن از روش بهبودیافته هامر استفاده شد و نانوکامپوزیت نهایی CuO/GO به روش هم‌رسوبی سنتز گردید و عملکرد تخریب نوری این نانوکامپوزیت در حذف تتراسایکلین از پساب آبی‌پروری مورد بررسی قرار گرفت. پارامترهای تأثیرگذار مانند غلظت اولیه، اثر pH، زمان تماس و مقدار نانوکامپوزیت، بهینه‌سازی و برای مشخصه‌یابی ساختار و مورفولوژی نانوکامپوزیت CuO/GO از آنالیز میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM)، طیف‌سنجی پراش اشعه ایکس (XRD) و طیف‌سنجی تبدیل فوریه فرسرخ (FTIR) استفاده شد.

**یافته‌ها:** نتایج این پژوهش نشان می‌دهد نانوکامپوزیت CuO/GO از کارایی بسیار بالایی در حذف مؤثر تتراسایکلین از پساب‌های آبی‌پروری برخوردار و در عین حال، پایداری مناسبی در فرآیندهای بازیابی و استفاده مجدد دارد. این نانوکامپوزیت با بهره‌گیری از مکانیزم تخریب نوری توانست تا ۹۷٪ تتراسایکلین را در محدوده گسترده‌ای از شرایط عملیاتی حذف کند. بهینه‌سازی پارامترهایی همچون غلظت تتراسایکلین، مقادیر نانوکامپوزیت، زمان تماس و pH موجب افزایش چشمگیر راندمان حذف و سرعت تخریب آلاینده شد.

**نتیجه‌گیری:** نانوکامپوزیت (CuO/GO)، با ترکیب اکسید مس و اکسید گرافن، به عنوان یک روش نوین و کارآمد برای حذف تتراسایکلین از پساب‌های آبی‌پروری معرفی می‌شود. این فوتوکاتالیست با افزایش سطح فعال و بهبود انتقال الکترون، موفق به حذف حداکثری آنتی‌بیوتیک تتراسایکلین شد. این نتایج، پایه‌ای برای توسعه روش‌های نوین و کارآمد تصفیه آب آلوده فراهم می‌آورد و گام مؤثری در جهت حفاظت از منابع آبی و جلوگیری از اثرات زیان‌بار زیست‌محیطی ناشی از ورود این نوع آلاینده‌ها به اکوسیستم‌ها محسوب می‌شود.

تاریخ دریافت: ۱۴۰۴/۴/۱۱  
تاریخ بازبینی: ۱۴۰۴/۹/۲۲  
تاریخ پذیرش: ۱۴۰۴/۹/۲۲

## واژگان کلیدی:

پالایش پایدار  
حذف تتراسایکلین  
تجزیه فوتوکاتالیستی  
نانومواد  
تصفیه آب

\*نویسنده مسئول

✉mj.jahanshahi@ujiroft.ac.ir

Doi: 10.52547/joc.16.63.2

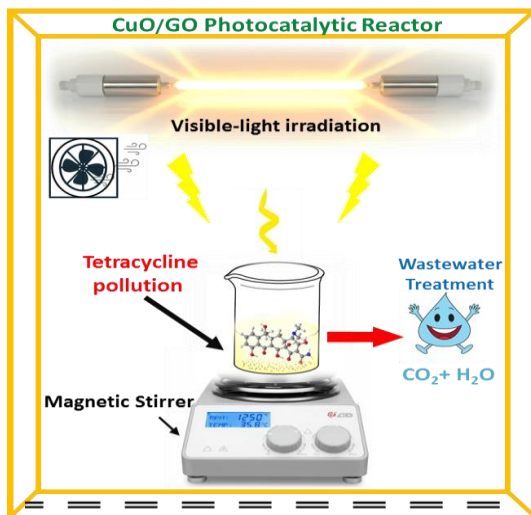
ORID: 0000-0002-6672-9801

## مقدمه

مختلفی برای حذف این دارو از منابع آب وجود دارد، که می‌توان به فرآیند جذب سطحی، فیلتراسیون، روش‌های بیولوژیکی و تبادل یونی اشاره کرد. این روش‌ها با مشکلاتی از جمله، کارایی محدود در مقیاس صنعتی، ایجاد آلودگی ثانویه، هزینه‌های اقتصادی بالا، راندمان پایین در مقیاس صنعتی مواجه هستند [12]. بنابراین، نیاز به توسعه و بهره‌برداری از فناوری‌های مؤثر و اقتصادی برای حذف کامل تتراسایکلین از منابع آبی احساس می‌شود. استفاده از فناوری‌های نوین می‌تواند بطور مؤثر، آلودگی‌های دارویی در محیط‌های طبیعی را کاهش دهد و به حفظ سلامت محیط زیست و انسان کمک کند. یکی از روش‌های نوین و پیشرفته فناوری اکسیداسیون پیشرفته و الکتروشیمیایی است. این فناوری‌ها به دلیل پتانسیل بالا در حذف آلاینده‌های آلی، به عنوان رویکردهایی مؤثر و امیدبخش، مورد توجه قرار گرفته دارند. در این میان، فناوری فتوکاتالیستی مبتنی بر نیمه‌هادی‌ها، به عنوان یک فرآیند اکسیداسیون پیشرفته نوین، جایگاه ویژه‌ای یافته است. این فناوری با مزایایی همچون زیست سازگاری، عدم سمیت، پایداری در برابر تابش نورخورشید و مهم‌تر از آن، قابلیت تولید رادیکال‌های فعال نظیر رادیکال‌های هیدروکسیل ( $^{\bullet}\text{OH}$ ) و سوپراکسید ( $^{\bullet}\text{O}_2^-$ ) شناخته می‌شود. رادیکال‌های تولید شده در این فرآیند با قدرت اکسیداسیون بالا، قادرند آلاینده‌های آلی گوناگون را به ترکیبات کم‌خطر یا بی‌خطر تجزیه کنند. مکانیزم عمل این فرآیند شامل حمله رادیکال‌های فعال به پیوندهای شیمیایی آلاینده و اکسیداسیون آن به محصولات بی‌خطر نظیر دی‌اکسید کربن و آب است [13]. این فرآیند با کم‌ترین تولید پسماند و حداقل مصرف انرژی نسبت به روش‌های سنتی تصفیه آب انجام می‌شود. فتوکاتالیست‌ها با برداشت انرژی تجدیدپذیر نورخورشید و مواد نیمه‌هادی از جمله دی‌اکسید تیتانیوم ( $\text{TiO}_2$ ) می‌توانند، به عنوان یک فناوری کارآمد و سبز به تصفیه آب‌های آلوده پردازند [14]. مطالعات نشان می‌دهد فتوکاتالیست‌ها می‌توانند طیف وسیعی از آلاینده‌های آلی، از جمله داروها، رنگ‌ها و سموم را به طور مؤثری حذف کنند [15]. در سال‌های اخیر تحقیقات گسترده‌ای برای افزایش کاربردهای عملی فناوری فتوکاتالیستی مبتنی بر نانومواد، صورت گرفته است زیرا افزایش کارایی این فناوری به عنوان راهکاری پایدار و مؤثر برای حذف آلاینده‌های آلی در محیط زیست شناخته می‌شود. نانومواد فتوکاتالیستی از قبیل اکسیدهای تیتانیوم، روی، تنگستن، مس و غیره در تجزیه طیف گسترده‌ای از آلاینده‌های آلی نظیر، رنگ‌ها و داروها مورد استفاده قرار گرفته‌اند و به دلیل ویژگی‌های منحصر به فرد نانوذرات (مانند خواص الکترونیکی، نوری، مکانیکی و مساحت سطح بالا)، در حذف آلاینده‌های آلی بسیار کارآمد هستند [16]. نانوذرات اکسیدمس ( $\text{CuO}$ ) و اکسیدمس دوگانه ( $\text{Cu}_2\text{O}$ )، به دلیل ویژگی‌های منحصر به فرد ساختاری و الکترونی خود، به عنوان نانوکاتالیست‌های بسیار کارآمد در فرآیندهای فتوکاتالیستی مورد توجه هستند. نانومواد به دلیل خواص فیزیکی و شیمیایی منحصر به فرد، مورد بررسی و استفاده در حذف آلاینده‌های آلی

امروزه، بحران جهانی آب به یکی از چالش‌های اساسی بشر تبدیل شده است [1]. گزارش‌های معتبر نشان می‌دهند، تقریباً دوسوم جمعیت جهان با کمبود شدید منابع آب شیرین مواجه است [2]. پیش‌بینی می‌شود، این بحران تا سال ۲۰۵۰ وخیم‌تر، و دسترسی به آب سالم به نصف میزان فعلی کاهش یابد. این در حالی است که افزایش روزافزون جمعیت، توسعه صنعتی، تقاضا برای آب سالم را به طور قابل توجهی افزایش داده است [3]. از سوی دیگر، فعالیت‌های انسانی، از قبیل فاضلاب‌های بیمارستانی و شهری صنایع نساجی، فعالیت‌های کشاورزی، و صنایع غذایی و شیمیایی، منجر به تشدید آلودگی منابع آب‌های سطحی و زیرزمینی شده است. این آلاینده‌ها، که شامل ترکیبات آلی، معدنی و میکروبی هستند، حتی در غلظت‌های پایین نیز اثرات سمی و مخربی بر سلامت انسان و محیط زیست دارند [4]. آمار سازمان بهداشت جهانی نشان می‌دهد در سال ۲۰۱۸، حدود ۱/۶ میلیون نفر به دلیل آلودگی گسترده‌ی آب جان خود را از دست داده‌اند [5]. این آمار هشداردهنده، لزوم توجه جدی به مدیریت منابع آب و توسعه روش‌های کارآمد برای تصفیه را بیش از پیش آشکار می‌سازد [6]. در سال‌های اخیر، آلودگی منابع آبی بر اثر آلاینده‌های آلی، به‌ویژه داروها و بطور خاص آنتی‌بیوتیک‌ها، به یکی از چالش‌های جدی زیست‌محیطی تبدیل شده، و همین امر نگرانی‌ها درباره تأمین آب سالم و ایمن را افزایش داده است. تتراسایکلین‌ها (TCS) به عنوان یک دسته از آنتی‌بیوتیک‌های وسیع‌الطیف، به دلیل ارزان بودن، یکی از مهم‌ترین و پرمصرف‌ترین آنتی‌بیوتیک‌ها در جهان می‌باشند [7]. تتراسایکلین، به دلیل هزینه کم و کارایی بالا، دومین آنتی‌بیوتیک پرمصرف در فعالیت‌های انسانی، دامداری و آبرزی‌پروری است [8]. اما جذب کم در دستگاه گوارش و دفع بالا (حدود ۸۰ تا ۹۰ درصد) از طریق ادرار و مدفوع، منجر به ورود بقایای تصفیه نشده و ایجاد آلودگی در منابع آب می‌شود [9]. مطالعات نشان می‌دهند که آنتی‌بیوتیک‌های دسته تتراسایکلین از مسیرهای گوناگونی، از جمله بکارگیری پزشکی، آبرزی‌پروری و دامپروری، وارد محیط زیست می‌شوند که این امر به تولید و گسترش ژن‌های مقاومت آنتی‌بیوتیکی منجر می‌گردد [10]. علاوه بر این، اثرات سمی تتراسایکلین بر موجودات غیرهدف، تهدیدی جدی برای تنوع زیستی در محیط زیست به شمار می‌رود. این ترکیبات سمی، با ورود به زنجیره غذایی آبریزان، احتمال انتقال و تجمع در بدن انسان را افزایش داده و به طور بالقوه سلامت انسان را به خطر می‌اندازند. افزایش حضور تتراسایکلین به دلیل استفاده گسترده، در محیط‌های آبی و ترویج مقاومت آنتی‌بیوتیکی، حذف این آلاینده را ضروری می‌سازد. مطالعه‌ی Guo و همکاران نشان داد که میانگین غلظت تتراسایکلین در آب‌های سطحی دریاچه دانگتینگ شرقی در فصل بهار، ۲۰/۹۲ نانوگرم در لیتر بوده است [11]. بنابراین اقدام فوری و توسعه فناوری‌های نوین و کارآمد برای تصفیه پساب حاوی آلاینده‌های دارویی به ویژه تتراسایکلین، بیش از پیش اهمیت دارد. روش‌های مرسوم

پژوهش، سنتز به صورت هم‌رسوبی برای CuO و با استفاده از روش هامر اصلاح شده برای GO انجام گرفته که موجب تشکیل ساختاری یکنواخت با سطح فعال بالا شد، همچنین از طریق بهینه‌سازی پارامترهای عملیاتی pH، مقدار کاتالیست و غلظت اولیه تتراسایکلین، راندمان حذف ارتقاع یافت؛ به طوری که در  $pH=4$  با غلظت  $4\text{ mg/L}$  کاتالیست، راندمان حذف تتراسایکلین به حدود  $97\%$  در  $60$  دقیقه رسید و حتی در غلظت بالای  $40\text{ mg/L}$  نیز راندمان بیش از  $80\%$  حفظ شده است. افزون بر این، آزمون‌های بازیافت نشان داد نانوکامپوزیت CuO/GO پس از چهار چرخه استفاده‌ی متوالی، همچنان  $81\%$  کارایی خود را حفظ کرده و از پایداری بالایی برخوردار است. بنابراین با توجه به پایداری و بهینه‌سازی پارامترهای عملیاتی و اثبات عملکرد در پساب واقعی، پژوهش حاضر از نظر کارایی فتوکاتالیستی، سرعت حذف آلاینده با قابلیت کاربرد صنعتی، برتری اثبات‌شده‌ی نسبت به مطالعات پیشین دارد.



شکل ۱- شماتیکی از فرآیند تخریب نوری تتراسایکلین تحت لامپ هالوژنی در اتاق ساخته‌شده

## روش پژوهش

۱-۱ مواد مورد نیاز: کلرید مس (II)، گرافیت، سدیم هیدروکسید، استیک اسید، پتاسیم پرمنگنات، سولفوریک اسید، فسفریک اسید، اتانول و هیدروکلریک اسید از شرکت مرک (آلمان) تهیه شدند. کلیه مواد از خلوص بالا برخوردار بودند و در تمام مراحل سنتز نانو مواد از آب فوق خالص استفاده شده است.

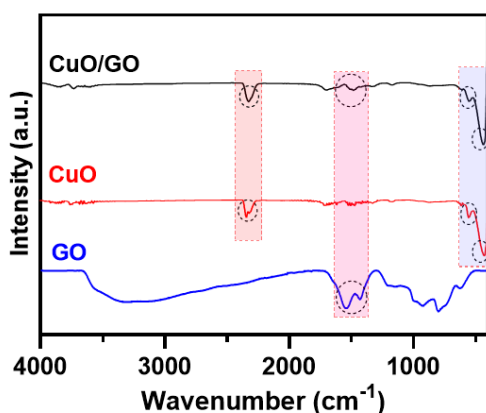
۱-۲ سنتز نانوذرات (CuO): روش هم‌رسوبی برای سنتز نانوذرات CuO طراحی و انتخاب شد. از محلول‌های کلرید مس ( $0.1$  مولار) و سدیم هیدروکسید ( $0.1$  مولار) در آب دیونیزه استفاده شد. برای سنتز CuO،  $50$  میلی‌لیتر محلول کلرید مس با  $1$  میلی‌لیتر اسید استیک مخلوط شد در حالی که به طور پیوسته با همزن مغناطیسی در دمای  $90$  درجه سانتی‌گراد به مدت  $1$  ساعت هم خورد. پس از آن، محلول هیدروکسید سدیم به تدریج به

از محیط زیست پر کاربرد هستند، اکسیدمس و اکسیدمس دوگانه، به ترتیب دارای شکاف باندی حدود  $1/2$  و  $2/0$  الکترون‌ولت، انتخاب مناسبی برای جذب نور مرئی و فعالیت فتوکاتالیستی می‌باشند. در یک پژوهش توکلی و همکارانش با استفاده از نانوذرات اکسیدمس و اکسیدمس دوگانه با توجه به خاصیت نیمه‌هادی p آن‌ها و شکاف باند باریکشان، به دنبال افزایش عملکرد فتوکاتالیستی برای تجزیه آلاینده‌های آلی بودند. آن‌ها با سنتز نانوذرات اکسیدمس به عنوان پیش‌ساز، موفق به حذف بیش از  $90\%$  رنگ متیلن بلو در مدت زمان  $150$  دقیقه شدند [17]. با توجه به انواع مختلف اکسید فلزات واسطه، اکسیدمس به دلیل خواص شیمیایی و فیزیکی برتر در طراحی فوتوکاتالیست‌ها کاربرد فراوان دارد. اما اکسیدمس علی‌رغم مزیت‌هایی همچون فراوانی و غیرسمی بودن، به دلیل فاصله باند کم (حدود  $1/2$  الکترون‌ولت) فعالیت نوری محدودی دارد [18]. این محدودیت، همراه با راندمان پایین جذب انرژی خورشیدی (حداکثر  $5$  تا  $6$  درصد)، منجر به عملکرد محدود آن در فرآیند تخریب نوری می‌شود. بنابراین، برای افزایش بهره‌وری از انرژی خورشیدی در این دسته از مواد، توسعه فتوکاتالیست‌های جدید با خواص بهبودیافته، از جمله افزایش فاصله باند و بهبود جذب انرژی نوری، ضروری است. در روش اکسیداسیون پیشرفته استفاده از نیمه‌هادی فوتوکاتالیستی بدون فلز مختلف مانند اکسیدگرافن (GO) نیتريدکربن گرافیتی ( $g-C_3N_4$ ) و نانولوله‌های کربنی (CNTs) و غیره نیز استفاده می‌شود [19]. اکسیدگرافن یکی از جاذب‌های بر پایه کربن است که دارای سطح ویژه  $2600$  مترمربع بر گرم و دارای هدایت حرارتی و استحکام مکانیکی و الکتریکی بالا می‌باشد [20]. علاوه بر این وجود گروه‌های عاملی کربوکسیل، هیدروکسیل و اپوکسی بر سطح گرافن می‌تواند تعداد محل‌های اتصال با آلاینده را افزایش دهد، که این عمل به طور قابل توجهی پتانسیل جذب آلاینده‌ها را بهبود می‌بخشد [21]. بسیاری از پژوهش‌های اخیر برای کاهش نرخ نوترکیبی حامل‌های بار، از جفت کردن اکسیدگرافن به دو یا چند نانوذره اکسیدفلزی و تشکیل نانوکامپوزیت استفاده می‌کنند [22]. ادغام اکسیدمس با مواد دارای خواص الکترونیکی پیشرفته نظیر اکسیدگرافن، می‌تواند منجر به بهبود فعالیت نوری و کارایی فوتوکاتالیستی این ترکیبات شود. خواص انتقال الکترون برتر و سطح ویژه بالای اکسیدگرافن، در کنار خاصیت نیمه‌رسانایی اکسیدمس، منجر به افزایش جذب نور و بهبود انتقال بار در سیستم‌های فوتوکاتالیستی می‌شود [23]. در این پژوهش مطابق شکل ۱ در رآکتور، اکسید گرافن تزئین شده با اکسید مس (CuO/GO) به منظور حذف مؤثر تتراسایکلین از پساب مزرعه آبی‌پروری مورد استفاده قرار گرفت. در مقایسه با پژوهش شارما و گارگ (۲۰۲۴) که حذف تتراسایکلین را صرفاً در محلول‌های آزمایشگاهی با غلظت پایین ( $10\text{ mg/L}$ ) و زمان  $120$  دقیقه بررسی و راندمان حذف را در حدود  $94\%$  گزارش کردند [24]. نتایج این مطالعه نشان‌دهنده‌ی بهبود چشمگیر عملکرد نانوکامپوزیت CuO/GO در شرایط واقعی و بهینه‌شده است. در این

مورفولوژی و شکل ساختار نانوکامپوزیت CuO/GO مورد استفاده قرار گرفت.

**۱-۱ تحلیل طیف FTIR و شناسایی اجزای نانوکامپوزیت (CuO/GO)**  
تجزیه و تحلیل طیف سنجی FTIR برای تعیین گروه‌های عاملی انجام شد. طیف نانوذرات CuO، GO و نانوکامپوزیت نهایی CuO/GO در محدوده ۴۰۰ تا  $4000\text{ cm}^{-1}$  در شکل ۲ نشان داده شده است. حضور پیک قوی و تیز در طول موج‌های  $492\text{ cm}^{-1}$  و  $611\text{ cm}^{-1}$  به طور مشخص مربوط به فرکانس کششی پیوند مس و اکسیژن (Cu-O) است. طیف FTIR اکسیدگرافن، وجود گروه‌های عاملی مهم و مرتبط با اکسیدگرافن که شامل گروه‌های هیدروکسیل (-OH)، گروه‌های اپوکسی و پیوندهای آروماتیک (C=C) می‌شود، را تأیید می‌کند. این گروه‌ها در طیف اکسیدگرافن با ایجاد پیک گسترده در محدوده ۲۷۵۰ تا  $3780\text{ cm}^{-1}$  به دلیل کشش گروه‌های هیدروکسیل و مولکول‌های آب جذب شده در ساختار می‌باشد.

پیک در محدوده  $1700\text{ cm}^{-1}$  ی  $1700\text{ cm}^{-1}$  به ارتعاش کششی گروه‌های کربونیل (C=O) نسبت داده می‌شود. ناحیه ۱۰۰۰ تا  $1200\text{ cm}^{-1}$  به ارتعاش کششی پیوندهای C-O نسبت دارد، که معمولاً با گروه‌های اپوکسی یا آلکوکسی مرتبط است و نشان‌دهنده اکسیداسیون موفقیت‌آمیز گرافیت و تشکیل اکسیدگرافن است. پیک‌های مشخص در  $1617\text{ cm}^{-1}$  و  $1735\text{ cm}^{-1}$  به کشش آروماتیک پیوندهای C=C در ساختار گرافیتی درون اکسیدگرافن نسبت دارند و نشان‌دهنده حفظ بخش‌هایی از ساختار گرافیتی در طی فرآیند اکسیداسیون هستند. در طیف FTIR بطور قاطعانه وجود گروه‌های عاملی مختلف، که شامل گروه‌های هیدروکسیل، اپوکسی، کربونیل و پیوندهای آروماتیک است، به وضوح مشخص شد که نشان‌دهنده اکسیداسیون موفق و تشکیل اکسیدگرافن است. در نانوکامپوزیت CuO/GO نوارهای جذب در ناحیه  $1754\text{ cm}^{-1}$  به پیوندهای C=O نسبت داده می‌شوند. پیک‌های  $1511$  و  $1288\text{ cm}^{-1}$  به C-O اختصاص یافته و نشان‌دهنده حضور اکسیدگرافن در ترکیب نهایی است و پیک  $614\text{ cm}^{-1}$  مربوط به فرکانس کششی CuO است. از این رو، سنتز و ادغام مؤثر ذرات CuO ساختار اکسیدگرافن توسط تجزیه و تحلیل FTIR تأیید می‌شود.



شکل ۲- نمودار طیف سنجی (FTIR) نانوکامپوزیت CuO/GO

صورت قطره‌ای به محلول بالا اضافه شد تا تغییر رنگ از سبز به سیاه حاصل شود. تشکیل رنگ سیاه سنتز نانوذرات CuO را در مخلوط محلول تأیید می‌کند. نانوذرات به مدت ۴ ساعت در دمای ۴۵۰ درجه سانتی‌گراد کلسینه شدند تا نانوذرات پایدار CuO تولید شود.

**۳-۱ سنتز اکسیدگرافن (GO)**: از پودر گرافیت به عنوان منبعی برای سنتز نانوصفحات اکسیدگرافن از طریق روش بهبود یافته هامر استفاده شد [۱۳]. حدود ۳/۰ گرم از پودر گرافیت در مخلوط با نسبت ۹:۱ از اسید فسفریک: اسید سولفوریک غلیظ (۳۶۰:۴۰ میلی‌لیتر) پخش شد و به مدت ۱ ساعت هم خورد. سپس مقدار ۱۸/۰ گرم پتاسیم پرمنگنات با احتیاط و کنترل دمایی ۸ درجه سانتی‌گراد به مخلوط اضافه شد و به مدت ۲۴ ساعت در دمای ۵۰ درجه سانتی‌گراد همزده شد. سپس این مخلوط با ریختن ۴۰۰ میلی‌لیتر آب یخ به همراه ۵ میلی‌لیتر آب اکسیژنه (۳۰ درصد) خنک شد. محلول نهایی دارای رنگ قهوه‌ای مایل به زرد بود. این محلول به مدت یک شب رها شد تا رسوب کند، و این رسوب جدا گشت و ده مرتبه با آب و اتانول شستشو و در دمای ۵۰ درجه سانتی‌گراد خشک شد. در نهایت، اکسیدگرافن حاصل به ۲۰۰ میلی‌لیتر آب مقطر اضافه شد و به مدت ۳ ساعت مورد تابش امواج یک پروب-سونیکاتور قرار گرفت تا نانوصفحات اکسیدگرافن نازک لایه برداری شده به دست آید.

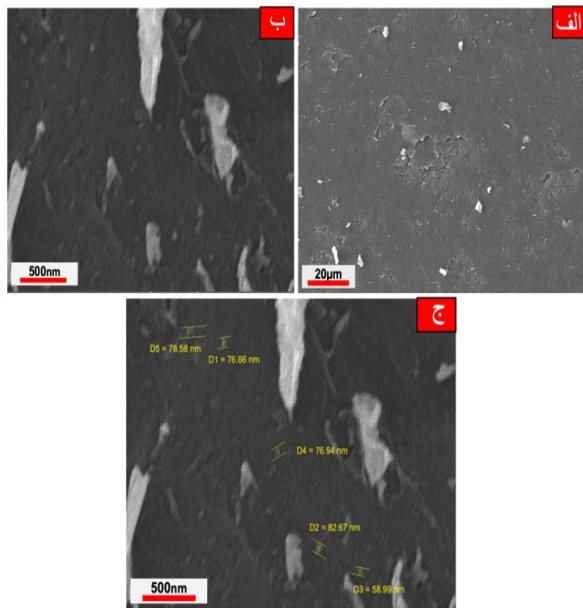
#### ۴-۱ سنتز CuO/GO:

برای تهیه CuO/GO از روش هم‌رسوبی مرطوب استفاده شد. حدود ۳۰۰ میلی‌گرم اکسیدگرافن در ۴۰ میلی‌لیتر آب مقطر و تحت تابش امواج حمام سونیکاتور به مدت ۵ دقیقه حل شد. و سپس ۳۰۰ میلی‌گرم اکسیدمس در ۴۰ میلی‌لیتر آب پراکنده و به محلول اکسیدگرافن منتقل شد. به منظور انجام واکنش، مواد اولیه به مدت ۴۸ ساعت در دمای محیط و تحت همزدن با سرعت بالا مخلوط شدند. در ادامه، رسوب تشکیل شده با استفاده از دستگاه سانتریفیوژ و با سرعت ۴۰۰۰ دور در دقیقه جدا گردید. رسوب حاصل به مدت ۸ ساعت در آون و در دمای ۵۰ درجه سانتی‌گراد خشک شد.

#### نتایج و بحث

در سنتز نانومواد فتوکاتالیستی، شناسایی و تعیین ویژگی‌های ساختاری و شیمیایی اهمیت بسزایی دارد. آنالیز پراش اشعه ایکس (XRD) و طیف سنجی فروسرخ تبدیل فوریه (FTIR) به عنوان دو تکنیک مکمل، نقش حیاتی در این زمینه ایفا می‌کنند. پراش اشعه ایکس با ارائه اطلاعات دقیق در مورد فازهای کریستالی به درک جامعی از ترکیب و آرایش اتمی کاتالیزور کمک می‌کند. این اطلاعات برای بهینه‌سازی فرآیند سنتز و بهبود عملکرد کاتالیستی ضروری می‌باشد. از سوی دیگر، FTIR با شناسایی گروه‌های عاملی موجود در سطح فتوکاتالیزور، اطلاعات ارزشمندی در مورد ترکیب شیمیایی و برهمکنش‌های سطحی ارائه می‌دهد. گروه‌های عاملی نقش مهمی در فعالیت فتوکاتالیستی ایفا می‌کنند. به این ترتیب، استفاده همزمان از XRD و FTIR دیدگاه جامعی از ویژگی‌های ساختاری و شیمیایی کاتالیزور فراهم می‌سازد. همچنین آنالیز میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM)، برای تعیین

اتصال موفق با سطح بستر گرافن اکساید باشد. در تصاویر آنالیز SEM مورفولوژی و اندازه نانوذرات اکسید مس با قطر متوسط بین ۵۸ تا ۸۲ نانومتر قابل مشاهده است. به طور کلی، تصاویر SEM از نانوکامپوزیت CuO/GO، ساختاری منظم و یکنواخت را نشان می‌دهند که شامل صفحات گسترده و متخلخل GO است که در آن نانوذرات CuO توزیع شده‌اند. این ساختار می‌تواند برای کاربردهای مختلفی، مانند کاربردهای الکترونیکی، کاتالیستی و یا سنسوری، مناسب باشد.



شکل ۴- تصاویر میکروسکوپ الکترونی روبشی SEM از نانوکامپوزیت سنتز شده در مقیاس‌های (الف) ۲۰ میکرومتر تا (ب-ج) ۵۰۰ نانومتر

## ۲- فعالیت کاتالیزوری نانوکامپوزیت CuO/GO در تخریب نوری تتراسایکلین

۲-۱ مشخصات راکتور فتوکاتالیستی و شرایط آزمایش تخریب نوری در واکنش تخریب نوری برای حذف تتراسایکلین تحت تابش نور مرئی، از نانوکامپوزیت CuO/GO به عنوان فتوکاتالیست استفاده شد. آزمایش‌های تخریب نوری در یک راکتور پیرکس با حجم ۱۰۰ میلی‌لیتر انجام شد. برای هر آزمایش، ۵۰ میلی‌لیتر از محلول‌های آلاینده با غلظت مشخص در دمای اتاق تهیه و مقدار مشخصی از کاتالیزور با توجه به شرایط هر آزمایش به راکتور پیرکس اضافه شد. به منظور دستیابی به تعادل جذب و دفع، سیستم به مدت ۳۰ دقیقه در تاریکی هم زده و سپس تحت تابش نور مرئی قرار گرفت. در طول آزمایش، در فواصل زمانی معین، ۲ میلی‌لیتر نمونه برداشت و با سرعت ۴۰۰۰ دور در دقیقه سانتریفیوژ شد. میزان جذب نمونه‌ها با استفاده از اسپکتروفتومتر UV-Vis در طول موج ۳۵۶ نانومتر برای تعیین غلظت تتراسایکلین بررسی شد.

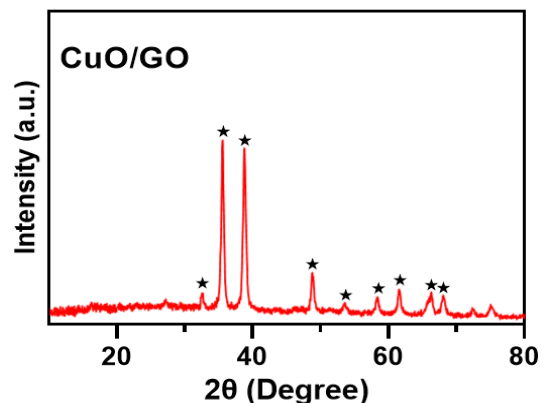
$$\text{درصد تخریب} = ((\text{غلظت اولیه} - \text{غلظت نهایی}) / \text{غلظت اولیه}) \times 100$$

## ۲-۱ مشخصه‌یابی ساختاری (CuO/GO) به کمک آنالیز پراش پرتو ایکس

فازهای کریستالوگرافی نانوکامپوزیت CuO/GO در شکل ۳ با استفاده از تکنیک پراش اشعه ایکس در محدوده زوایای پراش (2θ) از ۱۰ تا ۸۰ درجه بررسی شد. الگوی XRD برای نانوکامپوزیت سنتز شده، حضور یک فاز مونوکلینیک واحد را نشان می‌دهد. پیک‌های پراش مشخصه در زوایای ۶۸/۸۴، ۳۲/۳۷، ۳۵/۵۲، ۳۸/۸۷، ۴۸/۷۷، ۵۳/۱۷، ۵۸/۲۲، ۶۱/۷، ۶۶/۴۷ و ۶۸/۸۴ درجه، به ترتیب به صفحات (۰۱۱)، (۱۱۱)، (۱۱۱)، (۲۰۲)، (۰۲۰)، (۲۰۲)، (۱۱۳)، (۳۱۱) و (۲۲۰) نسبت داده شده‌اند. این پیک‌ها، ساختار کریستالی نانوذرات اکسید مس را تایید می‌کنند. وجود پیک‌های پراش در پروفایل XRD، نشان‌دهنده بلورینگی بالای CuO و توزیع مناسب آن بر روی صفحات مسطح اکسید گرافن (GO) در ساختار نانوکامپوزیت نهایی است. نتایج حاصل از آنالیز پراش اشعه ایکس به وضوح فرآیند سنتز موفق نانوکامپوزیت CuO/GO را با موفقیت تایید می‌کند. الگوی پراش به دست آمده، تثبیت مطلوب نانوذرات اکسید مس بر روی صفحات اکسید گرافن را تایید و توزیع یکنواخت و چیدمان مناسب نانوذرات در سطح بستر، منجر به تشکیل ساختاری پایدار با بلورینگی بالا شده‌است. چنین آرایش ساختاری مطلوبی می‌تواند به طور قابل توجهی موجب بهبود خواص فیزیکی و شیمیایی نانوکامپوزیت می‌گردد.

## ۳-۱ آنالیز میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM) نانوکامپوزیت (CuO/GO)

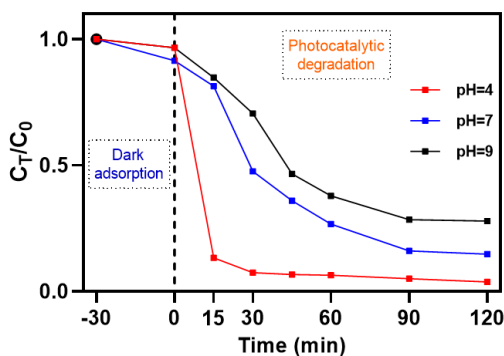
تصاویر میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM) ارائه شده در شکل ۴، ساختار نانوکامپوزیت CuO/GO را نشان می‌دهد. در این ساختار، نانوذرات اکسید مس به صورت یکنواخت در سطح و درون توده‌های متخلخل و گسترده صفحات اکسید گرافن توزیع شده‌اند. این توزیع، نشان‌دهنده سنتز موفق نانوکامپوزیت CuO/GO است. تصاویر SEM، ساختار ورقه‌ای و لایه لایه صفحات GO را به وضوح نشان می‌دهند.



شکل ۳- نمودار ساختار کریستالی CuO/GO با استفاده از XRD

همچنین، توزیع نانوذرات CuO در میان این صفحات نیز به خوبی قابل مشاهده است. این نانوذرات به صورت متمرکز در نقاط مختلف صفحات GO پراکنده شده‌اند که می‌تواند به دلیل برهم‌کنش‌های سطحی بین CuO و

نقش اساسی در واکنش تخریب نوری دارد. به منظور ارزیابی تاثیر pH در فرآیند تخریب نوری نانوکامپوزیت CuO/GO در شرایط غلظت تتراسایکلین (۵۰ میلی گرم بر لیتر)، مقدار فتوکاتالیست (۲/۰ گرم بر لیتر) و زمان تابش (۱۲۰ دقیقه) طراحی شد. (pH محلول تتراسایکلین با افزودن محلول سود و یا محلول هیدروکلریک اسید، ۰/۱M تنظیم شد) در pH=۹ پس از پایان واکنش میزان تخریب نوری تتراسایکلین ۶۳٪ بود، در حالی که در pH خنثی نرخ تخریب نوری تتراسایکلین به ۸۴٪ افزایش یافت. نتایج تخریب نوری در pH=۴ نشان می دهد، که با کاهش pH، تخریب تتراسایکلین در حال افزایش است و حداکثر تخریب نوری در این pH اسیدی حدود ۹۷٪ می باشد. براساس این نتایج، pH بهینه فتوکاتالیست سنتز شده در حذف تتراسایکلین، ۴ است. این مطالعه نشان می دهد که انتخاب pH مناسب، فاکتور کلیدی در بهینه سازی فرآیند فتوکاتالیستی در حذف آلاینده می باشد. بهینه سازی پارامترهای دیگر مانند غلظت دارو، مقدار کاتالیست و زمان تابش از جمله پارامترهای دیگری هستند، که تأثیر مستقیمی در واکنش تخریب نوری دارند و می توانند منجر به ارتقا راندمان تخریب نوری تتراسایکلین شوند.



شکل ۶- نمودار تاثیر pH در طول زمان بر تخریب نوری تتراسایکلین

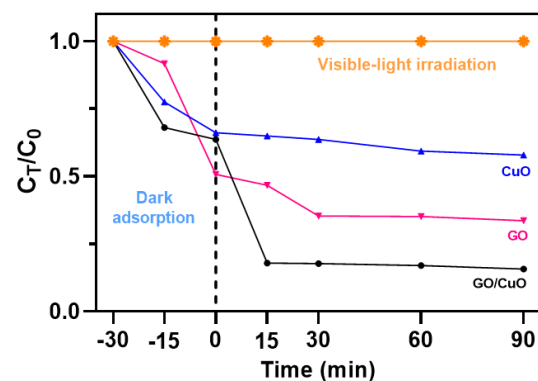
#### ۲-۴ اثر مقدار نانوکامپوزیت

برای بهینه سازی مقدار فتوکاتالیست در شرایط ۱۰۰ میلی گرم بر لیتر در pH:۴ در مقادیر مختلف کاتالیزور تخریب نوری تتراسایکلین مورد بررسی قرار گرفت. با بررسی غلظت های مختلف نانوکاتالیست (۰/۲، ۰/۴، ۰/۶، ۰/۸) و ۱/۰ گرم بر لیتر)، مشخص شد که با افزایش غلظت نانوکامپوزیت افزایش در نرخ تخریب نوری تتراسایکلین وجود دارد. این افزایش تخریب به علت تعدد سطوح فعال و افزایش سایت های کاتالیستی مؤثر در فرآیند جذب و تخریب است. بنابراین، مقدار بهینه نانوکامپوزیت ۰/۴ گرم بر لیتر است که منجر به تخریب ۸۲٪ تتراسایکلین در مدت زمان ۳۰ دقیقه تابش نور می گردد. همچنین، ثابت بودن نرخ تخریب پس از ۶۰ دقیقه تابش در شکل ۷ به وضوح نشان می دهد که زمان بهینه در فرآیند تخریب نوری، ۶۰ دقیقه روشنایی می باشد.

فرمول درصد تخریب نوری تتراسایکلین نشان می دهد، چه درصدی از تتراسایکلین اولیه در فرآیند تخریب حذف شده است. برای نمایش گرافیکی در سرتاسر این پژوهش، نسبت غلظت نرمال شده ( $C_T/C_0$ ) در برابر زمان تابش ترسیم شده است، در حالی که بازده تخریب با استفاده از معادله فوق محاسبه گردید.

#### ۲-۲ بررسی اثر هم افزایی اجزای نانوکامپوزیت CuO/GO

در شکل ۵ قابلیت فتوکاتالیستی نانوکامپوزیت های CuO، GO و GO/CuO از طریق تخریب نوری آنتی بیوتیک تتراسایکلین در محلول آبی آزمایش شد. نتایج نشان داد که نانوذرات CuO و GO به ترتیب موجب حذف ۴۳٪ و ۶۷٪ تتراسایکلین در مدت ۶۰ دقیقه تحت تابش نور مرئی شدند. با این حال، زمانی که نانوذرات CuO بر روی بستر گرافن اکسید تثبیت شده و نانوکامپوزیت GO/CuO سنتز شد، راندمان تجزیه به حدود ۹۰٪ افزایش یافت. این افزایش چشمگیر در کارایی فتوکاتالیستی بیانگر اثر هم افزایی مؤثر و ترکیب موفق CuO و GO است، که با اتصال هتروساختار موفق، موجب تسهیل انتقال الکترون، کاهش باز ترکیب زوج های الکترون-حفره و تقویت واکنش های اکسیداسیون و احیای نوری می شود. بنابراین، نانوکامپوزیت در مقایسه با نانومواد منفرد ضمن پایداری نوری و سرعت تجزیه بالاتر و ظرفیت جذب نور بهتر، به عنوان سامانه ای پیشرفته برای حذف ترکیبات آلی پایدار و مقاوم بکار می رود.



شکل ۵-

نمودار اثر هم افزایی اجزای نانوکامپوزیت بر بهبود عملکرد فتوکاتالیستی

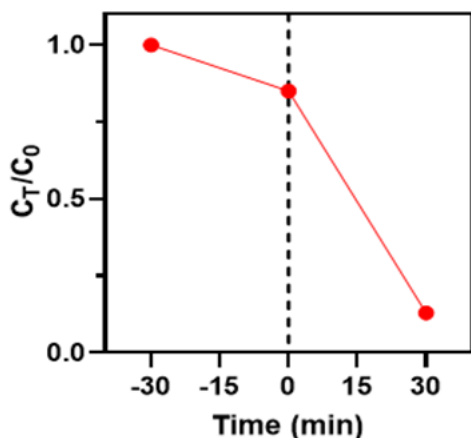
#### ۲-۳ اثر pH اولیه تتراسایکلین

شکل ۶ اثر pH در سه حالت اسیدی، خنثی و بازی در راندمان تخریب نوری را نشان می دهد، تا اثر pH محلول بر حذف تتراسایکلین در فرآیند مشخص شود. از آنجا که pH محلول می تواند، بر بار سطحی کاتالیزور تأثیر بگذارد (به عنوان مثال، در pH اسیدی، سطح کاتالیزور ممکن است دارای بار مثبت، در حالی که در pH قلیایی، بار سطحی کاتالیزور ممکن است، منفی باشد) و این تاثیرگذاری بر ظرفیت جذب و واکنش تخریب نوری تتراسایکلین در سطح کاتالیزور اثرگذار است. بنابراین تعیین pH برای دستیابی به حداکثر میزان تخریب نوری ضروری می باشد. یکی از مهم ترین تاثیرات دیگر pH اثرگذاری در تشکیل گونه های فعال سطحی (حامل های بار نوری الکترون و حفره) در سیستم فتوکاتالیستی است. وجود این گونه های واکنش پذیر

## ۲-۶ نمودار اثر نانوکامپوزیت CuO/GO بر کاهش غلظت

### تتراسایکلین در پساب مزرعه آبی‌پروری

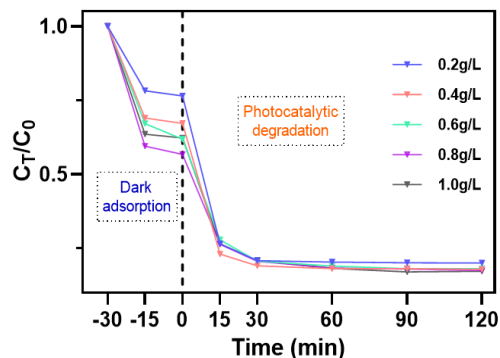
تتراسایکلین از جمله آنتی‌بیوتیک‌های پرمصرف در صنعت آبی‌پروری به شمار می‌رود. که به دلیل استفاده گسترده و تخلیه نامناسب پساب با ایجاد آلودگی در محیط‌زیست، تأثیرات منفی قابل توجهی را بر اکوسیستم وارد کرده‌است. در این تحقیق، به منظور کاهش آلودگی زیست محیطی حاصل از این دارو، نمونه‌ای از پساب مزرعه آبی‌پروری تهیه شد. این تست در شرایط بهینه pH، زمان و مقدار نانوکامپوزیت انجام شده است. سپس با استفاده از دستگاه طیف‌سنجی UV-Vis، غلظت تتراسایکلین در زمان‌های مختلف برای برآورده، درصد تخریب نمونه حقیقی اندازه‌گیری شد. براساس نتایج بدست آمده در شکل ۹ فتوکاتالیست قادر است، در مدت زمان تنها ۳۰ دقیقه ۸۵٪ از غلظت آنتی‌بیوتیک را در نمونه‌ی حقیقی تهیه‌شده از پساب مزرعه آبی‌پروری کاهش دهد. این امر، کارایی بالای نانوکامپوزیت را در کاهش آلودگی‌های زیست‌محیطی و حفظ سلامت اکوسیستم‌های آبی نشان می‌دهد. از این رو، استفاده از این نانوکامپوزیت به عنوان روشی مؤثر برای کاهش آلودگی ناشی از تتراسایکلین در محیط‌های آبی به‌ویژه پساب آبی‌پروری پیشنهاد می‌شود. نتیجه‌گیری داده‌های تجربی این تحقیق حاکی از آن است که فتوکاتالیست، در شرایط بهینه قابلیت بالایی در حذف تتراسایکلین از پساب‌های آبی‌پروری دارد. این نتایج می‌توانند مبنای طراحی سیستم‌های تصفیه آب مؤثر و پایدار در آینده باشند و به ارتقای کیفیت آب‌های طبیعی و محیط زیستی کمک کند. این پژوهش اهمیت به‌کارگیری فناوری‌های نوین فتوکاتالیستی را برای بهبود کیفیت آب و سلامت اکوسیستم‌های آبی را به وضوح نشان می‌دهد.



شکل ۹- نمودار نتایج تخریب نوری کاتالیست CuO/GO در پساب آبی‌پروری

### ۲-۷ ارزیابی پایداری در چرخه‌های بازیافتی

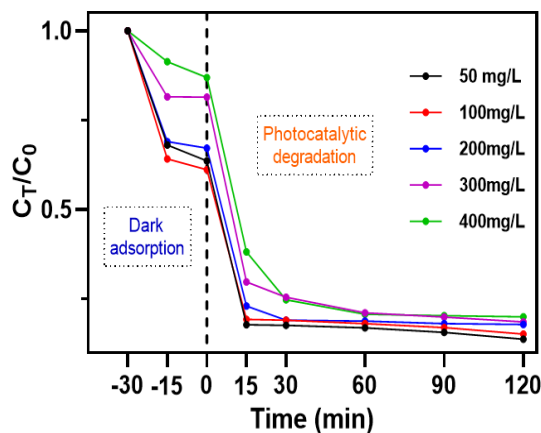
بازیابی فتوکاتالیست در چرخه‌های بازیافتی، به لحاظ کاهش هزینه و حفاظت از محیط‌زیست، بسیار ضروری می‌باشد. عملکرد نانوکامپوزیت CuO/GO در تصفیه آب، عامل کلیدی در ارزیابی کاربردهای صنعتی و زیست‌محیطی آن می‌باشد. این مطالعه، تأثیر چرخه‌های بازیافت بر کارایی و پایداری کامپوزیت را در حذف تتراسایکلین را مورد بررسی قرار داده‌است.



شکل ۷- نمودار اثر مقادیر مختلف کاتالیست بر تخریب نوری تتراسایکلین

### ۲-۵ اثر غلظت اولیه تتراسایکلین

نتایج نرخ تخریب در شکل ۸ نشان می‌دهد که نانوکامپوزیت در غلظت‌های (۵۰ تا ۱۰۰ میلی‌گرم بر لیتر) تتراسایکلین عملکرد تخریب نوری بالایی دارد، بطوریکه در همان ۱۵ دقیقه‌ی ابتدایی واکنش، نرخ تخریب ۸۳٪ است و با افزایش غلظت تتراسایکلین تا ۴۰۰ میلی‌گرم بر لیتر، عملکرد نانوکامپوزیت در زمان‌های ابتدایی واکنش به‌طور جزئی کاهش می‌یابد، اما در زمان‌های پایانی در غلظت‌های بالا همانند غلظت‌های کم، راندمان تخریب همچنان بالا است. این کاهش عملکرد جزئی در غلظت ۴۰۰ میلی‌گرم بر لیتر به دلیل اشباع شدن سطح نانوکاتالیست با مولکول‌های تتراسایکلین است. در غلظت‌های پایین، مولکول‌های تتراسایکلین می‌توانند به‌طور مؤثرتر به سطح کاتالیست جذب شوند و در معرض نور قرار گیرند، که همین امر منجر به افزایش کارایی تخریب نوری نانوکامپوزیت می‌شود، اما در غلظت‌های بالا، اشباع شدن سطح نانوکاتالیست، دسترسی مولکول‌های تتراسایکلین را به سایت فعال کاتالیست کاهش و در نتیجه، عملکرد تخریب در مراحل اولیه واکنش کمی کاهش می‌یابد. با این حال، نانوکاتالیست در نهایت، حتی در غلظت‌های بالایی از تتراسایکلین مثل ۴۰۰ میلی‌گرم بر لیتر موفق به تخریب ۸۰٪ از این آنتی‌بیوتیک در پایان واکنش می‌شود، بنابراین هرچند که سرعت اولیه تخریب نوری در غلظت‌های بالا در ابتدای واکنش جزئی است، اما در نهایت به دلیل توان بالای نانوکامپوزیت در تخریب تتراسایکلین در طول زمان واکنش افزایش می‌یابد.

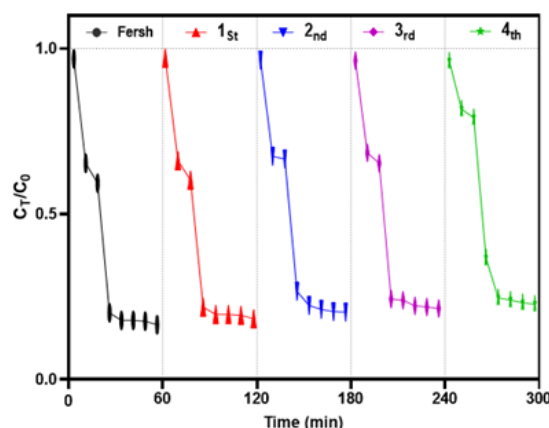


شکل ۸- نمودار اثر غلظت‌های مختلف تتراسایکلین بر راندمان تخریب نوری

در چرخه اول، حذف تتراسایکلین حدود ۸۷٪ بود و این میزان به تدریج در چرخه‌های بعدی به ۸۴٪ (چرخه دوم)، ۸۳٪ (چرخه سوم)، ۸۱٪ (چرخه چهارم) کاهش یافت، نتایج آزمون‌های بازیافت نشان می‌دهد که فتوکاتالیست سنتز شده، از پایداری بالایی در تخریب نوری تتراسایکلین برخوردار است و می‌تواند به‌عنوان یک نانوکامپوزیت کارآمد و پایدار، راهکاری مؤثر برای فرآیندهای تصفیه آب و حفاظت از محیط‌زیست در آینده باشد.

۸-۲ مقایسه عملکرد فتوکاتالیستی : در جدول ۱، عملکرد فتوکاتالیستی CuO/GO با نتایج گزارش شده در تحقیقات پیشین مقایسه شده است. یافته‌ها نشان می‌دهند، که نانوکامپوزیت CuO/GO سنتزی برتری قابل توجهی نسبت به سایر تحقیقات در سال‌های اخیر در میزان غلظت و زمان آنتی‌بیوتیک تتراسایکلین تخریب نوری یافته، از خود نشان می‌دهد. نانوکامپوزیت با ترکیب خواص منحصر به فرد اکسیدمس و اکسیدگرافن، می‌تواند به بهبود عملکرد فتوکاتالیستی و افزایش کارایی تخریب نوری آلاینده‌های آبی کمک کند.

نتایج نرخ تخریب نوری نشان می‌دهد که ساختار نانوکامپوزیت پس از چهار چرخه بازیافت، پایدار است. همچنین، فعالیت آن در تخریب نوری تتراسایکلین، در طول چرخه‌های مختلف مطابق شکل ۱۰ با کاهش جزئی، روبه رو می‌شود.



شکل ۱۰- قابلیت استفاده مجدد و بازیافت کاتالیست CuO/GO

Catalysts	TC Concentration (mg.L <sup>-1</sup> )	Catalyst (g.L <sup>-1</sup> )	Time (min)	pH	Degradation (%)	Ref.
<b>CuO/GO</b>	<b>50</b>	<b>0.4</b>	<b>60</b>	<b>4</b>	<b>97.5</b>	<b>This work</b>
Cu@Cu <sub>2</sub> O@CuO-microalgae	-	0.5	80	6	76.5	[25]
BTiO <sub>2</sub> -ZnO	50	0.125	120	7	74	[26]
Zinc oxide nanoparticles	50	1	120	7	84	[27]
Ag/ZnO@BC	50	0.01	-	6	70	[28]

جدول ۱- مقایسه عملکرد فتوکاتالیستی نانوکامپوزیت سنتز شده نسبت به تحقیقات پیشین در تجزیه تتراسایکلین

نانوکامپوزیت، زمان تماس و pH، نانوکامپوزیت به ۹۷٪ تجزیه نوری در زمان ۶۰ دقیقه از پساب مصنوعی، و با تجزیه ۸۵٪ فاضلاب حقیقی آبی‌پرووری در مدت زمان ۳۰ دقیقه، راندمان قابل قبولی در تخریب تتراسایکلین در مقایسه با روش‌های سنتی تصفیه، از خود نشان داده است. با توجه به نتایج این تحقیق، می‌توان نتیجه گرفت که نانوکامپوزیت CuO/GO نه تنها قابلیت بالایی را در حذف مؤثر تتراسایکلین داراست، بلکه می‌تواند به‌عنوان یک راهکار پایدار و کارآمد برای مقابله با آلودگی‌های دارویی در منابع آبی مورد استفاده قرارگیرد. این یافته‌ها، فرصتی جدید برای توسعه روش‌های نوین تصفیه آب فراهم آورده و گامی اساسی در جهت حفاظت از منابع آبی و کاهش اثرات زیان‌بار زیست‌محیطی ناشی از ورود آلاینده‌های آلی به اکوسیستم‌ها محسوب می‌شود.

## نتیجه‌گیری

در این مطالعه نانوکامپوزیت CuO/GO با هدف تخریب نوری تتراسایکلین از پساب آبی‌پرووری، با روش هم‌رسوبی سنتز و کارایی آن در شرایط عملیاتی مختلف برای حذف تتراسایکلین از پساب‌های مصنوعی و حقیقی آبی‌پرووری بررسی شد. نتایج پتانسیل بالای این نانوکامپوزیت در حذف تتراسایکلین را نشان می‌دهد و آن را به‌عنوان یک روش مؤثر و نوین در تصفیه آب‌های آلوده به آلاینده دارویی معرفی می‌کند. ساختار منحصر به فرد نانوکامپوزیت، حاصل از ترکیب اکسید مس و اکسیدگرافن، منجر به افزایش قابل توجه سطح فعال و بهبود انتقال الکترون در واکنش‌های تخریب نوری شده، این ویژگی‌ها، فعالیت نوری و راندمان حذف تتراسایکلین را به‌طور چشمگیری افزایش داده‌است. علاوه بر این، بررسی پارامترهای عملیاتی مختلف، نقش مهمی در بهینه‌سازی فرآیند تخریب نوری داشته‌است. نتایج نشان داد که در شرایط بهینه شامل غلظت تتراسایکلین، مقادیر

- [9] J. Bi, Z. Zhu, T. Li, and Z. Lv, "Research progress on g-C3N4-based materials for efficient tetracyclines photodegradation in wastewater: A review," *Journal of Water Process Engineering*, vol. 66, p. 105941, Sep. 2024, doi: 10.1016/j.jwpe.2024.105941.
- [10] M. Jahanshahi, R. Afsharipour, and N. alsadat Mirhosseini rayen, "Fabrication of a Spirulina algae-CuFeS<sub>2</sub>/CuWO<sub>4</sub> composite for effective photo-Fenton degradation of TC and RhB with environmental assessment," *Journal of Environmental Management*, vol. 381, p. 125340, May 2025, doi: 10.1016/j.jenvman.2025.125340.
- [11] Y. Zhou *et al.*, "Bandgap engineering of carbon nitride by formic acid assisted thermal treatment for photocatalytic degradation of tetracycline hydrochloride," *Chemical Engineering Journal*, vol. 485, p. 149830, Apr. 2024, doi: 10.1016/j.cej.2024.149830.
- [12] Z. Xu *et al.*, "Algal organic matter accelerates the photodegradation of tetracycline: Mechanisms, degradation pathways and product toxicity," *Chemical Engineering Journal*, vol. 468, p. 143724, Jul. 2023, doi: 10.1016/j.cej.2023.143724.
- [13] J. Jing, J. Li, J. Feng, W. Li, and W. W. Yu, "Photodegradation of quinoline in water over magnetically separable Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>/TiO<sub>2</sub> composite photocatalysts," *Chemical Engineering Journal*, vol. 219, pp. 355–360, Mar. 2013, doi: 10.1016/j.cej.2012.12.058.
- [14] M. Hasham Firooz, A. Naderi, M. Moradi, and R. R. Kalantary, "Enhanced tetracycline degradation with TiO<sub>2</sub>/natural pyrite S-scheme photocatalyst," *Sci Rep*, vol. 14, no. 1, p. 4954, Feb. 2024, doi: 10.1038/s41598-024-54549-0.
- [15] D. Chahar, D. Kumar, P. Thakur, and A. Thakur, "Visible light induced photocatalytic degradation of methylene blue dye by using Mg doped Co-Zn nanoferrites," *Materials Research Bulletin*, vol. 162, p. 112205, Jun. 2023, doi: 10.1016/j.materresbull.2023.112205.
- [16] F. Z. Haque, R. Nandanwar, and P. Singh, "Evaluating photodegradation properties of anatase and rutile TiO<sub>2</sub> nanoparticles for organic compounds," *Optik*, vol. 128, pp. 191–200, Jan. 2017, doi: 10.1016/j.ijleo.2016.10.025.
- [17] F. Tavakoli Joorabi, M. Kamali, and S. Sheibani, "Effect of aqueous inorganic anions on the photocatalytic activity of CuO–Cu<sub>2</sub>O nanocomposite on MB and MO dyes degradation," *Materials Science in Semiconductor Processing*, vol. 139, p. 106335, Mar. 2022, doi: 10.1016/j.mssp.2021.106335.
- [18] R. Ahmadi, R. F. N. Fatahi, P. Sangpour, M. Bagheri, and T. Rahimi, "Evaluation of antibacterial behavior of in situ grown CuO–GO nanocomposites," *Materials Today Communications*, vol. 28, p. 102642, Sep. 2021, doi: 10.1016/j.mtcomm.2021.102642.
- [19] G. Xiao, P. Gao, L. Wang, Y. Chen, Y. Wang, and G. Zhang, "Ultrasonochemical-Assisted Synthesis of CuO Nanorods with High Hydrogen Storage Ability," *Journal of Nanomaterials*, vol. 2011, no. 1, p. 439162, 2011, doi: 10.1155/2011/439162.

## تعارض منافع

این پروژه در قالب طرح پژوهشی مصوب دانشگاه جیرفت به شماره ۳۸۱۳-۰۳-۶-۳۰۴۳۱۹ و با بهرهمندی از اعتبارات پژوهشی دانشگاه جیرفت به انجام رسیده است. نویسنده اول مجری طرح تحقیقاتی و نویسنده مسئول مقاله است. «هیچ‌گونه تعارض منافع توسط نویسندگان بیان نشده است.»

## منابع

- [1] J. Zhang *et al.*, "Photocatalysis coupling with membrane technology for sustainable and continuous purification of wastewater," *Separation and Purification Technology*, vol. 329, p. 125225, Jan. 2024, doi: 10.1016/j.seppur.2023.125225.
- [2] R. Mousavi Nadushan and M. Ghiyasabadi, "Identification, introduction, and population fluctuations of cladocerans and copepods in Lake Tar, Damavand," *Journal of Oceanography*, vol. 15, no. 60, pp. 85–98, Mar. 2025, doi: 10.52547/joc.15.60.7.
- [3] A. Balakrishnan and M. Chinthala, "Comprehensive review on advanced reusability of g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub> based photocatalysts for the removal of organic pollutants," *Chemosphere*, vol. 297, p. 134190, Jun. 2022, doi: 10.1016/j.chemosphere.2022.134190.
- [4] D. T. Ruziwa *et al.*, "Pharmaceuticals in wastewater and their photocatalytic degradation using nano-enabled photocatalysts," *Journal of Water Process Engineering*, vol. 54, p. 103880, Aug. 2023, doi: 10.1016/j.jwpe.2023.103880.
- [5] E. Amdeha, "Biochar-based nanocomposites for industrial wastewater treatment via adsorption and photocatalytic degradation and the parameters affecting these processes | Biomass Conversion and Biorefinery." Accessed: Nov. 21, 2024. [Online]. Available: <https://link.springer.com/article/10.1007/s13399-023-04512-2>
- [6] S. Ahmady Asbchin, D. Siamian, and N. O. Nasrolahi Omran, "Kinetic and biosorption isotherm studies on biosorption of nickel and cadmium by using Halobacillus trueperi isolated from factory wastewater entry into the Caspian Sea," *Journal of Oceanography*, vol. 15, no. 60, pp. 99–112, Mar. 2025, doi: 10.52547/joc.15.60.8.
- [7] Z. Liu *et al.*, "Empowering wastewater treatment with step scheme heterojunction ternary nanocomposites for photocatalytic degradation of nitrophenol," *Sci Rep*, vol. 15, no. 1, p. 3299, Jan. 2025, doi: 10.1038/s41598-025-86975-z.
- [8] J. Ma, Y. Chen, G. Zhou, H. Ge, and H. Liu, "Recent Advances in Photocatalytic Degradation of Tetracycline Antibiotics," *Catalysts*, vol. 14, no. 11, Art. no. 11, Nov. 2024, doi: 10.3390/catal14110762.

- [25] A. Serrà, E. Gómez, J. Michler, and L. Philippe, "Facile cost-effective fabrication of Cu@Cu<sub>2</sub>O@CuO-microalgae photocatalyst with enhanced visible light degradation of tetracycline," *Chemical Engineering Journal*, vol. 413, p. 127477, Jun. 2021, doi: 10.1016/j.cej.2020.127477.
- [26] L. Sawunyama, O. Oyewo, D. C. Onwudiwe, and S. S. Makgato, "Photocatalytic degradation of tetracycline using surface defective black TiO<sub>2</sub>-ZnO heterojunction photocatalyst under visible light," *Heliyon*, vol. 9, no. 11, Nov. 2023, doi: 10.1016/j.heliyon.2023.e21423.
- [27] H. Abdullahi Ari, Adewole ,Alani Olushola, Ugya ,Adamu Yunusa, Asipita ,Otaru Habiba, Musa ,Makiyyu Abdullahi, and W. and Feng, "Biogenic fabrication and enhanced photocatalytic degradation of tetracycline by bio structured ZnO nanoparticles," *Environmental Technology*, vol. 44, no. 9, pp. 1351-1366, Apr. 2023, doi: 10.1080/09593330.2021.2001049.
- [28] M. Hosny, M. Fawzy, and A. S. Eltaweil, "Green synthesis of bimetallic Ag/ZnO@Biohar nanocomposite for photocatalytic degradation of tetracycline, antibacterial and antioxidant activities," *Sci Rep*, vol. 12, no. 1, p. 7316, May 2022, doi: 10.1038/s41598-022-11014-0.
- [20] S. H Al-Ansari, H. Goma, R. D Abdel-Rahim, G. A M Ali, A. M Nagiub, "Recycled gold-reduced graphene oxide nanocomposite for efficient adsorption and photocatalytic degradation of crystal violet | Scientific Reports." Accessed: Nov. 22, 2024. [Online]. Available: <https://www.nature.com/articles/s41598-024-54580-1>
- [21] M. Jahanshahi et al., "Sericin grafted multifunctional curcumin loaded fluorinated graphene oxide nanomedicines with charge switching properties for effective cancer cell targeting," *International Journal of Pharmaceutics*, vol. 572, p. 118791, Dec. 2019, doi: 10.1016/j.ijpharm.2019.118791.
- [22] O. Moradi, M. Mirzaian, and S. Sedaghat, "Poly(methyl methacrylate) functionalized graphene oxide/CuO as nanocomposite for efficient removal of dye pollutants," *Sci Rep*, vol. 14, no. 1, p. 22318, Sep. 2024, doi: 10.1038/s41598-024-72937-4.
- [23] H. Tju, A. Taufik, and R. Saleh, "Enhanced UV Photocatalytic Performance of Magnetic Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>/CuO/ZnO/NGP Nanocomposites," *J. Phys.: Conf. Ser.*, vol. 710, no. 1, p. 012005, Apr. 2016, doi: 10.1088/1742-6596/710/1/012005.
- [24] A. Sharma and V. K. Garg, "Synthesis of a novel CuO@GO@IR nanocomposite for the removal of tetracycline from wastewater," *Environ Sci Pollut Res*, vol. 32, no. 2, pp. 993-1005, Jan. 2025, doi: 10.1007/s11356-024-35807-0.

## AUTHOR(S) BIOSKETCHES

**Jahanshahi, M.** (Assistant Professor), *Department of Chemistry, Faculty of Science, University of Jiroft, Jiroft, Iran.*

✉ [mj.jahanshahi@ujiroft.ac.ir](mailto:mj.jahanshahi@ujiroft.ac.ir)

 <https://orcid.org/0000-0002-6672-9801>

**Mirhosseini rayen, N** (MSc), *Department of Chemistry, Faculty of Science, University of Jiroft, Jiroft, Iran.*

✉ [neginmirhossini@gmail.com](mailto:neginmirhossini@gmail.com)

 .....

این قسمت توسط نشریه تکمیل می‌گردد:



### HOW TO CITE THIS ARTICLE

 <http://doi.org/10.52547/joc.16.63.2>

 <http://joc.inio.ac.ir/article-1-1863-fa.html>

 <https://orcid.org/0000-0002-6672-9801>

### COPYRIGHTS

©2021 The author(s). This is an open access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution (CC BY 4.0), which permits unrestricted use, distribution, and reproduction in any medium, as long as the original authors and source are cited. No permission is required from the authors or the publishers.

