

Nitruro de carbono grafítico ($g-C_3N_4$) inmovilizado sobre sustratos inorgánicos para la eliminación de fármacos citostáticos de agua

Á. Pérez-Molina¹, E. Galata², M. Barbero-Ramírez¹, L.M. Pastrana-Martínez¹, F.J. Maldonado-Hódar¹, G. Em. Romanos², S. Morales-Torres^{1*}

¹NanoTech – Nanomateriales y Tecnologías Químicas Sostenibles, Departamento de Química Inorgánica, Facultad de Ciencias, Universidad de Granada. Avda. Fuente Nueva, s/n, 18071, Granada, España

²Institute of Nanoscience and Nanotechnology, National Centre for Scientific Research "Demokritos", Ag. Paraskevi, 15130 Athens, Greece.

semoto@ugr.es

Palabras clave: nitruro de carbono grafítico, fármacos citostáticos, fotocatalisis, filtración.

Introducción

Los fármacos citostáticos son ampliamente utilizados en el tratamiento contra el cáncer y su presencia en aguas se ha incrementado en los últimos años, lo que supone un grave riesgo para los ecosistemas debido a su elevada toxicidad. La fotocatalisis heterogénea es un proceso avanzado de oxidación prometedor, dado su bajo coste energético y ser respetuoso con el medio ambiente. Sin embargo, su implementación industrial está aún limitada por el uso de un fotocatalizador adecuado. El nitruro de carbono grafítico ($g-C_3N_4$) es un semiconductor polimérico libre de metales con una baja energía de banda prohibida ($E_g = 2.7$ eV), estable y baja toxicidad. Por otro lado, la inmovilización de fotocatalizadores presenta ciertas ventajas con respecto al formato polvo, ya que facilita la recuperación del catalizador. En el presente trabajo, $g-C_3N_4$ fue depositado mediante inmersión (*dip-coating*) sobre dos tipos de soportes inorgánicos: anillos cilíndricos de Raschig de borosilicato y membranas planas de α -alúmina.

Experimental

La síntesis del $g-C_3N_4$ se realizó por policondensación térmica de melamina a 550 °C durante 4 h bajo atmósfera estática de aire [1]. El catalizador fue soportado sobre anillos cilíndricos de Raschig de borosilicato (5x5 mm) mediante inmersión (*dip-coating*) utilizando una suspensión del 5% m/v en etanol absoluto. Las membranas planas de α -alúmina (~2 mm de espesor y 22 mm de diámetro) fueron preparadas por compactación y posterior sinterizaron hasta 1180 °C. Estas membranas son hidroxiladas con H_2O_2 (30 %) y pretratadas con una disolución de (3-glicidoxipropil)trimetoxisilano (GLYMO) en etanol absoluto (2% v/v), para facilitar la deposición del fotocatalizador por inmersión en una disolución acuosa de $g-C_3N_4$ (1 g L⁻¹) [2]. Los catalizadores preparados fueron caracterizados mediante adsorción física de N_2 , SEM, XRD, XPS, etc., mientras que su comportamiento fue evaluado para la eliminación de metotrexato (MTX) o 5-fluorouracilo (5-FU) en disolución acuosa bajo radiación solar-LED.

Resultados y discusión

La morfología de los sustratos recubiertos con $g-C_3N_4$ fue evaluada mediante SEM, mostrando una distribución bastante homogénea del catalizador sobre la superficie y la sección de los anillos de Raschig (Figuras 1a-b). Sin embargo, la deposición del material sobre las membranas planas fue más heterogénea (Figura 1c), observando ciertas zonas con grandes cantidades de $g-C_3N_4$. Esta inmovilización irregular podría ser debida por un pretratamiento insuficiente de la membrana con GLYMO, lo que impidió crear las funcionalizaciones necesarias a lo largo de toda la superficie de la membrana. Por otro lado, $g-C_3N_4$ presentó una baja porosidad con bajos valores de área superficial (SBET), así como una amplia banda de absorción en el rango de visible (~2.7 eV).

Los anillos recubiertos fueron evaluados para la degradación fotocatalítica de los fármacos MTX y 5-FU bajo radiación solar-LED y en modo recirculación, obteniéndose una degradación del 95% y 80% tras 8 h de reacción, respectivamente. En el caso de las membranas cerámicas también se estudió su capacidad de adsorción/filtración, mostrando una eliminación de MTX más eficaz que 5-FU operando en flujo continuo.

Conclusiones

El catalizador $g-C_3N_4$ preparado a partir de melamina fue depositado sobre dos tipos de sustratos inorgánicos por la técnica de inmersión. Los anillos de Raschig permitieron obtener recubrimientos más homogéneos, mientras que la deposición en las membranas cerámicas fue irregular. Los anillos mostraron una elevada fotodegradación de MTX bajo radiación solar-LED, mientras que las membranas mostraron una eliminación de MTX más eficaz que 5-FU mediante filtración operando en flujo continuo.

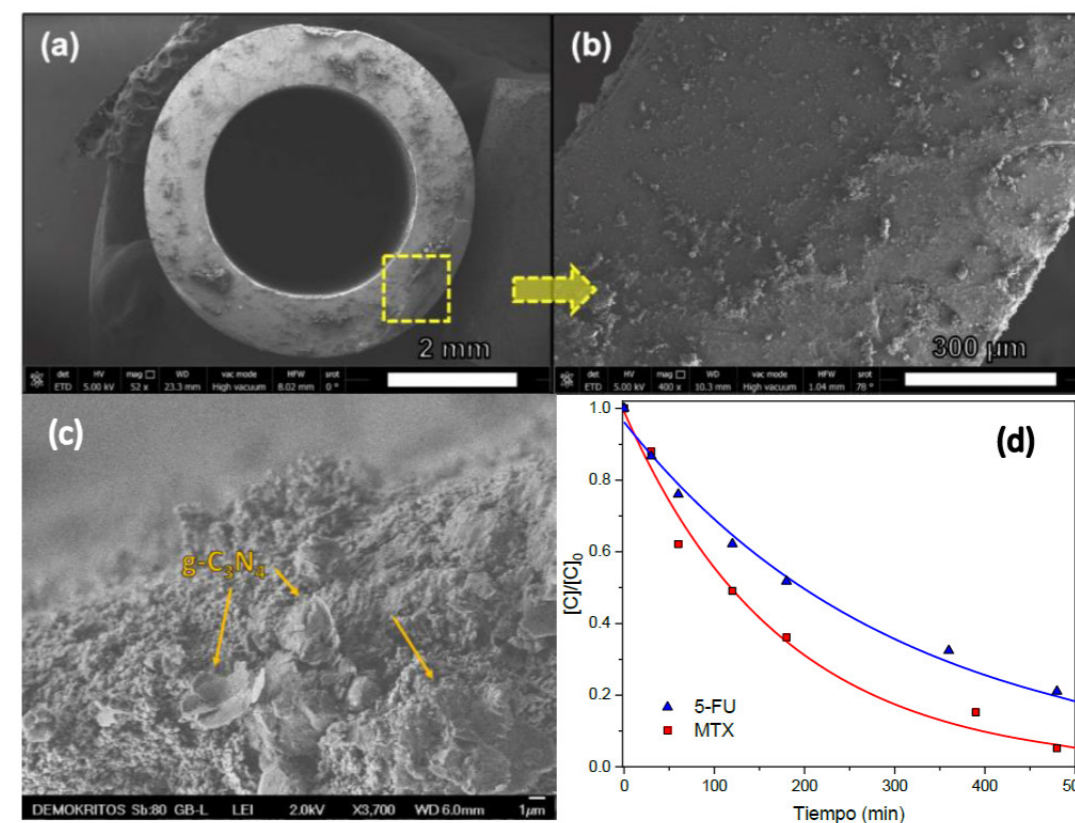


Figura 1. Sección transversal por SEM de $g-C_3N_4$ sobre (a, b) anillos de Raschig y (c) membranas planas. (d) Fotodegradación de los fármacos usando los anillos recubiertos.

Agradecimientos

Este trabajo ha sido financiado por los Proyectos ref. PID2021-126579OB-C31 y ref. RTI2018-099224-B-I00 del MCIN/AEI/10.13039/501100011033 y FEDER "Una manera de hacer Europa"; y ref. B-RNM-486-UGR20 de la Consejería de Transformación Económica, Industria, Conocimiento y Universidades – Junta de Andalucía y FEDER. ÁPM (PRE2019-087946) y SMT (RYC-2019-026634-I) agradecen al MCIN/AEI/10.13039/501100011033 y FSE por su contrato predoctoral y su contrato Ramón y Cajal, respectivamente.

Referencias

- [1] Pérez-Molina A, Pastrana-Martínez LM, Morales-Torres S, Maldonado-Hódar FJ, Photodegradation of cytostatic drugs by $g-C_3N_4$: Synthesis, properties and performance fitted by selecting the appropriate precursor, *Catalysis Today* 2023; 418:114068.
- [2] Galata E, Veziri CM, Theodorakopoulos GV, Romanos GE, Pavlatou EA, Composite GO/Ceramic Membranes Prepared via Chemical Attachment: Characterisation and Gas Permeance Properties, *Membranes (Basel)* 2022; 12:1181.