

ANKARA ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

YÜKSEK LİSANS TEZİ

MANYETİK FOTOKATALİZÖRLERİN SENTEZİ VE FOTOKATALİTİK
AKTİVİTELERİNİN İNCELENMESİ

Abdullah Bedri KURTVURAN

KİMYA MÜHENDİSLİĞİ ANABİLİM DALI

ANKARA
2023

Her hakkı saklıdır

ÖZET

Yüksek Lisans Tezi

MANYETİK FOTOKATALİZÖRLERİN SENTEZİ VE FOTOKATALİTİK AKTİVİTELERİNİN İNCELENMESİ

Abdullah Bedri KURTVURAN

Ankara Üniversitesi
Fen Bilimleri Enstitüsü
Kimya Mühendisliği Anabilim Dalı

Danışman: Prof.Dr.Nuray YILDIZ

Bu çalışmada, çinko oksit (ZnO), demir oksit (Fe_3O_4) nanotanecikleri rGO tabakaları üzerine çöktürülerek rGO-ZnO- Fe_3O_4 ve rGO-ZnO nanokompozitleri sentezlenmiş ve fotokatalitik etkinlikleri incelenmiştir. Elde edilen ZnO nanotanecikleri, rGO-ZnO ve rGO-ZnO- Fe_3O_4 nanokompozit örneklerinin XRD (X-Işını Kırınımı), UV-VIS (UV-VIS Spektrofotometresi), FTIR (Fourier Dönüştümlü Kızıl Ötesi Spektrometresi) SEM (Taramalı Elektron Mikroskobu) analizleri ile karakterizasyonları gerçekleştirilmiştir. Hazırlanan örneklerin, görünür LED ışık altında metilen mavisi (MB) boyar maddesinin fotokatalitik olarak bozundurulmasındaki performansları belirlenmiştir. Fotokatalitik etkinliğe, tepkime süresinin ve kompozit bileşiminin etkileri incelenmiştir. Sonuç olarak sentezlenen nanoyapılara 3 saat LED ışık uygulaması ile metilen mavisi (MB) giderimi, saf ZnO nanotanecikleri için %47.51, rGO-ZnO nanokompoziti için %74.47 ve rGO- Fe_3O_4 -ZnO nanokompoziti için %93.55 olarak belirlenmiştir.

Mayıs 2023, 74 sayfa

Anahtar Kelimeler: Nanokompozitler, indirgenmiş grafen oksit, çinko oksit nanotanecikleri, manyetik fotokatalizörler, fotokatalitik aktivite

ABSTRACT

Master Thesis

SYNTHESIS OF MAGNETIC PHOTOCATALYSTS AND INVESTIGATION OF THEIR PHOTOCATALYTIC ACTIVITIES

Abdullah Bedri KURTVURAN

Ankara University
Graduate School of Natural and Applied Sciences
Department of Chemical Engineering

Supervisor: Prof. Dr. Nuray YILDIZ

In this study, zinc oxide (ZnO), iron oxide (Fe₃O₄) nanoparticles were deposited on rGO layers and rGO-ZnO-Fe₃O₄ and rGO-ZnO nanocomposites were synthesized and their photocatalytic activities were investigated. The obtained ZnO nanoparticles, rGO-ZnO and rGO-ZnO-Fe₃O₄ nanocomposite samples were analyzed by XRD (X-Ray Diffraction), UV-VIS (UV-VIS Spectrophotometer). The prepared samples were characterized by FTIR (Fourier Transform Infrared Spectrometry) and SEM (Scanning Electron Microscopy) analyses. The performances of the prepared samples in the photocatalytic degradation of methylene blue (MB) dyestuff under visible LED light were determined. The effects of reaction time and composite composition on photocatalytic activity were investigated. As a result, methylene blue (MB) removal by 3 hours of LED light treatment on the synthesized nanostructures was determined as 47.51% for pure ZnO nanoparticles, 74.47% for rGO-ZnO nanocomposite and 93.55% for rGO-Fe₃O₄-ZnO nanocomposite.

May 2023, 74 pages

Key Word: Nanocomposites, reduced graphene oxide, zinc oxide nanoparticles, magnetic photocatalysts, photocatalytic activity

TEŞEKKÜR

Tez çalışmam süresince beni her aşamada destekleyen, karşılaştığımız sorunların çözümde destek olan, yol gösteren ve motive eden danışman hocam Sayın Prof. Dr. Nuray YILDIZ' a (Ankara Üniversitesi Mühendislik Fakültesi Kimya Mühendisliği Anabilim Dalı), deneysel çalışmalarımda fikirleriyle her zaman yol gösteren ve yardım eden Dr. Öğr.Üyesi Zafer ÇIPLAK (Sivas Cumhuriyet Üniversitesi Mühendislik Fakültesi Kimya Mühendisliği Anabilim Dalı) ve Dr. Öğr.Üyesi Furkan SOYSAL' a (Ankara Yıldırım Beyazıt Üniversitesi), her zaman yardımcı olan Araş. Gör. Dr. Ceren ATİLA DİNÇER' e (Ankara Üniversitesi Mühendislik Fakültesi Kimya Mühendisliği Anabilim Dalı), fikirleriyle yardımcı olan Doç. Dr. Nuray ÇELEBİ (Ankara Yıldırım Beyazıt Üniversitesi Mühendislik ve Doğa Bilimleri Fakültesi Enerji Sistemleri Mühendisliği) ve Doç. Dr. Kuroş SALİMİ' ye (Ankara Yıldırım Beyazıt Üniversitesi Mühendislik ve Doğa Bilimleri Fakültesi Kimya Mühendisliği), çalışmalarım boyunca desteklerini esirgemeyen Aslıhan ÖZTÜRK, Salih AÇIL, Araş. Gör. Bengü GETİREN (İzmir Yüksek Teknoloji Enstitüsü Kimya Mühendisliği), Beray ALYAKUT ve Hasan ALTINIŞIK' a, bugünlere gelmemi sağlayan ve her zaman beni destekleyen annem, eşim ve kardeşlerime en içten duygularıyla teşekkürlerimi sunuyorum.

Bu tez çalışması “Manyetik fotokatalizörlerin sentezi ve fotokatalitik aktivitelerinin incelenmesi” konulu proje ile Ankara Üniversitesi Rektörlüğü, Bilimsel Araştırma Projeleri Koordinatörlüğü (Proje No: 21L0443017) tarafından desteklenmiştir.

Teşekkürlerimizi sunuyoruz.

Abdullah Bedri KURTVURAN
Ankara, Mayıs 2023

İÇİNDEKİLER

TEZ ONAY SAYFASI

ETİK.....	i
ÖZET.....	ii
ABSTRACT	iii
TEŞEKKÜR	iv
ŞEKİLLER DİZİNİ	vii
ÇİZELGELER DİZİNİ	xii
1. GİRİŞ	1
2. KURAMSAL TEMELLER.....	2
2.1 Metal Nanotanecikler ve Nanokompozitleri.....	2
2.2 Fotokatalitik Uygulamalar	5
2.3 Metal Nanotaneciklerin ve Nanokompozitlerinin Fotokatalitik Uygulamaları ..	7
2.4 Kaynak Araştırması.....	8
3. Materyal ve yöntem.....	13
3.1 Materyal	13
3.2 Yöntem	13
3.2.1 ZnO nanotaneciklerinin sentezi	14
3.2.2 Fe ₃ O ₄ nanotaneciklerinin sentezi	15
3.2.3 Fe ₃ O ₄ -ZnO nanokompozitlerinin sentezi	16
3.2.4 rGO-ZnO nanokompozitlerinin sentezi	16
3.2.5 rGO-Fe ₃ O ₄ nanokompozitlerinin sentezi	17
3.2.6 rGO-Fe ₃ O ₄ -ZnO nanokompozitlerinin sentezi.....	18
3.2.7 Fotokatalitik çalışmalar	20
3.3 Karakterizasyon	21
3.3.1 Fourier dönüşümlü kızılötesi spektroskopisi (FTIR)	21
3.3.2 Taramalı elektron mikroskobu – enerji dağılımlı x-ışını spektroskopisi (SEM EDS)	22
3.3.3 Ultraviyole ve görünür bölge spektroskopisi (UV-Vis).....	22
3.3.4 X-ışınları difraktometresi (XRD)	22
4. Araştırma Bulguları.....	23
4.1 Nanoyapıların Karakterizasyonu	23

4.1.1 ZnO nanotaneciklerinin karakterizasyonu	23
4.1.2 Fe ₃ O ₄ nanotaneciklerinin karakterizasyonu	31
4.1.3 Fe ₃ O ₄ - ZnO nanoyapılarının karakterizasyonu	33
4.1.4 rGO - ZnO nanokompozitlerinin karakterizasyonu.....	34
4.1.5 rGO - Fe ₃ O ₄ - ZnO nanokompozitlerinin karakterizasyonu	42
4.2 Nanoyapıların Fotokatalitik Etkinlikleri	56
4.2.1 ZnO nanotaneciklerinin fotokatalitik aktivitesi.....	56
4.2.2 rGO - ZnO nanokompozitlerinin fotokatalitik aktivitesi.....	59
4.2.3 rGO - Fe ₃ O ₄ - ZnO nanokompozitlerinin fotokatalitik aktivitesi.....	62
5. TARTIŞMA SONUÇ	69
KAYNAKLAR	71
ÖZGEÇMİŞ.....	74

ŞEKİLLER DİZİNİ

Şekil 2.1 ZnO nanotaneciklerinin sentez yöntemleri ve katkılanan bazı metaller (Hessien 2022).....	3
Şekil 3.1 ZnO nanotanecikleri sentez deney düzeneği.....	15
Şekil 4.1 95 °C’ de NaOH ile elde edilen ZnO nanotaneciklerinin UV-Vis pikleri	24
Şekil 4.2 95 °C’ de NaOH ile elde edilen ZnO nanotaneciklerinin FTIR pikleri	24
Şekil 4.3 95 °C’ de NaOH ile elde edilen ZnO nanotaneciklerinin XRD kırınım deseni	25
Şekil 4.4 95 °C’ de NaOH ile elde edilen ZnO nanotaneciklerinin SEM görüntüleri	25
Şekil 4.5 95 °C’ de NH ₃ ile elde edilen ZnO nanotaneciklerinin UV-Vis pikleri.....	26
Şekil 4.6 95 °C’ de NH ₃ ile elde edilen ZnO nanotaneciklerinin FTIR pikleri.....	27
Şekil 4.7 80 °C’ de NH ₃ ile elde edilen ZnO nanotaneciklerinin UV-Vis pikleri.....	28
Şekil 4.8 80 °C’ de NH ₃ ile elde edilen ZnO nanotaneciklerinin FTIR pikleri.....	28
Şekil 4.9 80 °C’ de NaOH ile 450 mg PVP kullanılarak elde edilen ZnO nanotaneciklerinin UV-Vis pikleri	29
Şekil 4.10 80 °C’ de NaOH ile 450 mg PVP kullanılarak elde edilen ZnO nanotaneciklerinin FTIR pikleri	30
Şekil 4.11 80 °C’ de NaOH ile 900 mg PVP kullanılarak elde edilen ZnO nanotaneciklerinin UV-Vis pikleri	30
Şekil 4.12 80 °C’ de NaOH ile 900 mg PVP kullanılarak elde edilen ZnO nanotaneciklerinin FTIR pikleri	31
Şekil 4.13 Fe ₃ O ₄ nanopartiküllerinin UV-Vis spektrumu.....	32
Şekil 4.14 Fe ₃ O ₄ nanopartiküllerinin FTIR spektrumu.....	32
Şekil 4.15 Fe ₃ O ₄ - ZnO nanoyapılarının UV-Vis spektrumu.....	33
Şekil 4.16 Fe ₃ O ₄ - ZnO nanopartiküllerinin FTIR spektrumu	34
Şekil 4.17 200 mg Zn(CH ₃ COO) ₂ ·2H ₂ O) tuzu, 60 mg GO,80°C ve 450 mg PVP varlığında sentezlenen rGO - ZnO nanokompozitinin UV-Vis spektrumu....	35

Şekil 4.18 200 mg $\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ tuzu, 60 mg GO, 80°C ve 450 mg PVP varlığında sentezlenen rGO - ZnO nanokompozitinin FTIR spektrumu	35
Şekil 4.19 100 mg $\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ tuzu, 25 mg GO, 80°C' de sentezlenen rGO - ZnO nanokompozitinin UV-Vis spektrumu	36
Şekil 4.20 100 mg $\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ tuzu, 25 mg GO, 80°C' de sentezlenen rGO - ZnO nanokompozitinin FTIR spektrumu	37
Şekil 4.21 100 mg $\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ tuzu, 25 mg GO, 88°C' de, 250 mg PVP varlığında sentezlenen rGO - ZnO nanokompozitinin UV-Vis spektrumu	37
Şekil 4.22 100 mg $\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ tuzu, 25 mg GO, 88°C' de, 250 mg PVP varlığında sentezlenen rGO - ZnO nanokompozitinin FTIR spektrumu	38
Şekil 4.23 50 mg $\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ tuzu, 50 mg GO, 90°C' de, 250 mg PVP varlığında sentezlenen rGO - ZnO nanokompozitinin UV-Vis spektrumu	39
Şekil 4.24 50 mg $\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ tuzu, 50 mg GO, 90°C' de, 250 mg PVP varlığında sentezlenen rGO - ZnO nanokompozitinin FTIR spektrumu	39
Şekil 4.25 50 mg $\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ tuzu, 50 mg GO, 90°C' de, 250 mg PVP varlığında sentezlenen rGO - ZnO nanokompozitinin SEM görüntüleri	40
Şekil 4.26 25 mg $\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ tuzu, 50 mg GO, 92°C' de, 250 mg PVP varlığında sentezlenen rGO - ZnO nanokompozitinin UV-Vis spektrumu	40
Şekil 4.27 25 mg $\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ tuzu, 50 mg GO, 92°C' de, 250 mg PVP varlığında sentezlenen rGO - ZnO nanokompozitinin FTIR spektrumu	41
Şekil 4.28 25 mg $\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ tuzu, 50 mg GO, 92°C' de, 250 mg PVP varlığında sentezlenen rGO - ZnO nanokompozitinin SEM görüntüleri	42
Şekil 4.29 rGO - $8\text{Fe}_3\text{O}_4$ - ZnO (50 mg rGO - Fe_3O_4 ve 50 mg $\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ tuzu) nanokompozitinin UV-Vis spektrumu	43
Şekil 4.30 rGO - $8\text{Fe}_3\text{O}_4$ - ZnO (50 mg rGO - Fe_3O_4 ve 50 mg $\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ tuzu) nanokompozitinin FTIR spektrumu	44
Şekil 4.31 rGO - $8\text{Fe}_3\text{O}_4$ - 2ZnO (50 mg rGO - Fe_3O_4 ve 100 mg $\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ tuzu) nanokompozitinin UV-Vis spektrumu	44
Şekil 4.32 rGO - $8\text{Fe}_3\text{O}_4$ - 2ZnO (50 mg rGO - Fe_3O_4 ve 100 mg $\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ tuzu) nanokompozitinin FTIR spektrumu	45
Şekil 4.33 rGO - $8\text{Fe}_3\text{O}_4$ - 0.5ZnO (50 mg rGO - Fe_3O_4 ve 25 mg $\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ tuzu) nanokompozitinin UV-Vis spektrumu	46

Şekil 4.34 rGO - 8Fe ₃ O ₄ - 0.5ZnO (50 mg rGO - Fe ₃ O ₄ ve 25 mg Zn(CH ₃ COO) ₂ ·2H ₂ O tuzu) nanokompozitinin FTIR spektrumu	46
Şekil 4.35 rGO - 8Fe ₃ O ₄ - 0.5ZnO (50 mg rGO - Fe ₃ O ₄ ve 25 mg Zn(CH ₃ COO) ₂ ·2H ₂ O tuzu) nanokompozitinin SEM görüntüleri	47
Şekil 4.36 rGO - 8Fe ₃ O ₄ - 4ZnO (50 mg rGO - Fe ₃ O ₄ ve 200 mg Zn(CH ₃ COO) ₂ ·2H ₂ O tuzu) nanokompozitinin UV-Vis spektrumu	48
Şekil 4.37 rGO - 8Fe ₃ O ₄ - 4ZnO (50 mg rGO - Fe ₃ O ₄ ve 200 mg Zn(CH ₃ COO) ₂ ·2H ₂ O tuzu) nanokompozitinin FTIR spektrumu	48
Şekil 4.38 rGO - 8Fe ₃ O ₄ - 4ZnO (50 mg GO, 400 mg Fe(NO ₃) ₃ ·9H ₂ O) ve 200 mg Zn(CH ₃ COO) ₂ ·2H ₂ O ile solvotermal yöntemle) nanokompozitinin UV-Vis spektrumu	49
Şekil 4.39 rGO - 8Fe ₃ O ₄ - 4ZnO (50 mg GO, 400 mg Fe(NO ₃) ₃ ·9H ₂ O) ve 200 mg Zn(CH ₃ COO) ₂ ·2H ₂ O ile solvotermal yöntemle) nanokompozitinin FTIR spektrumu	50
Şekil 4.40 rGO - 2Fe ₃ O ₄ - 2ZnO (50 mg GO, 100 mg Fe(NO ₃) ₃ ·9H ₂ O) ve 100 mg Zn(CH ₃ COO) ₂ ·2H ₂ O ile solvotermal yöntemle) nanokompozitinin UV-Vis spektrumu	50
Şekil 4.41 rGO - 2Fe ₃ O ₄ - 2ZnO (50 mg GO, 100 mg Fe(NO ₃) ₃ ·9H ₂ O) ve 100 mg Zn(CH ₃ COO) ₂ ·2H ₂ O ile solvotermal yöntemle) nanokompozitinin FTIR spektrumu	51
Şekil 4.42 rGO - 2Fe ₃ O ₄ - 2ZnO (50 mg GO, 100 mg Fe(NO ₃) ₃ ·9H ₂ O) ve 100 mg Zn(CH ₃ COO) ₂ ·2H ₂ O ile solvotermal yöntemle) nanokompozitinin XRD kırınım deseni	52
Şekil 4.43 rGO - 2Fe ₃ O ₄ - 2ZnO (50 mg GO, 100 mg Fe(NO ₃) ₃ ·9H ₂ O) ve 100 mg Zn(CH ₃ COO) ₂ ·2H ₂ O ile solvotermal yöntemle) nanokompozitinin SEM görüntüleri	53
Şekil 4.44 rGO - 2Fe ₃ O ₄ - 0.5ZnO (50 mg GO, 100 mg Fe(NO ₃) ₃ ·9H ₂ O) ve 25 mg Zn(CH ₃ COO) ₂ ·2H ₂ O tuzu) nanokompozitinin UV-Vis spektrumu	54
Şekil 4.45 rGO - 2Fe ₃ O ₄ - 0.5ZnO (50 mg GO, 100 mg Fe(NO ₃) ₃ ·9H ₂ O ve 25 mg Zn(CH ₃ COO) ₂ ·2H ₂ O tuzu) nanokompozitinin FTIR spektrumu	54
Şekil 4.46 rGO - 2Fe ₃ O ₄ - 0.5ZnO (50 mg GO, 100 mg Fe(NO ₃) ₃ ·9H ₂ O) ve 25 mg Zn(CH ₃ COO) ₂ ·2H ₂ O tuzu) nanokompozitinin XRD kırınım deseni	55
Şekil 4.47 rGO - 2Fe ₃ O ₄ - 0.5ZnO (50 mg GO, 100 mg Fe(NO ₃) ₃ ·9H ₂ O) ve 25 mg Zn(CH ₃ COO) ₂ ·2H ₂ O tuzu) nanokompozitinin SEM görüntüleri	56

Şekil 4.48 95 °C’ de NaOH ile elde edilen ZnO nanotaneciklerinin fotokatalitik indirgeme UV-Vis spektrumu (H ₂ O ₂ katkılı).....	57
Şekil 4.49 95 °C’ de NH ₃ ile elde edilen ZnO nanotaneciklerinin fotokatalitik indirgeme UV-Vis spektrumu.....	57
Şekil 4.50 80 °C’ de NH ₃ ile elde edilen ZnO nanotaneciklerinin fotokatalitik indirgeme UV-Vis spektrumu.....	58
Şekil 4.51 80 °C’ de NaOH ile 450 mg PVP varlığında elde edilen ZnO nanotaneciklerinin fotokatalitik indirgeme UV-Vis spektrumu.....	58
Şekil 4.52 80 °C’ de NaOH ile 900 mg PVP varlığında elde edilen ZnO nanotaneciklerinin fotokatalitik indirgeme UV-Vis spektrumu.....	59
Şekil 4.53 200 mg Zn(CH ₃ COO) ₂ ·2H ₂ O) tuzu, 60 mg GO,80°C ve 450 mg PVP varlığında sentezlenen rGO - ZnO nanokompozitinin fotokatalitik indirgeme UV-Vis spektrumu.....	60
Şekil 4.54 100 mg Zn(CH ₃ COO) ₂ ·2H ₂ O) tuzu, 25 mg GO,80°C ve 250 mg PVP varlığında sentezlenen rGO - ZnO nanokompozitinin fotokatalitik indirgeme UV-Vis spektrumu.....	60
Şekil 4.55 50 mg Zn(CH ₃ COO) ₂ ·2H ₂ O) tuzu, 50 mg GO, 90°C ve 250 mg PVP varlığında sentezlenen rGO - ZnO nanokompozitinin fotokatalitik indirgeme UV-Vis spektrumu	61
Şekil 4.56 25 mg Zn(CH ₃ COO) ₂ ·2H ₂ O) tuzu, 50 mg GO, 92°C ve 250 mg PVP varlığında sentezlenen rGO - ZnO nanokompozitinin fotokatalitik indirgeme UV-Vis spektrumu	62
Şekil 4.57 rGO - 8Fe ₃ O ₄ - ZnO (50 mg rGO - Fe ₃ O ₄ (1:8) ve 50 mg Zn(CH ₃ COO) ₂ ·2H ₂ O) tuzu) nanokompozitin fotokatalitik indirgeme UV-Vis spektrumu (H ₂ O ₂ katkılı).....	63
Şekil 4.58 rGO - 8Fe ₃ O ₄ - 2ZnO (50 mg rGO - Fe ₃ O ₄ (1:8) ve 100 mg Zn(CH ₃ COO) ₂ ·2H ₂ O) tuzu) nanokompozitinin fotokatalitik indirgeme UV-Vis spektrumu (H ₂ O ₂ katkılı)	63
Şekil 4.59 rGO - 8Fe ₃ O ₄ - 0.5ZnO (50 mg rGO - Fe ₃ O ₄ (1:8) ve 25 mg Zn(CH ₃ COO) ₂ ·2H ₂ O) tuzu) nanokompozitinin fotokatalitik indirgeme UV-Vis spektrumu (H ₂ O ₂ katkılı)	64
Şekil 4.60 rGO - 8Fe ₃ O ₄ - 4ZnO (50 mg rGO - Fe ₃ O ₄ (1:8) ve 200 mg Zn(CH ₃ COO) ₂ ·2H ₂ O) tuzu) nanokompozitinin fotokatalitik indirgeme UV-Vis spektrumu (H ₂ O ₂ katkılı)	65

Şekil 4.61 rGO - 8Fe₃O₄ - 4ZnO (50 mg rGO – Fe₃O₄(1:8) ve 200 mg Zn(CH₃COO)₂·2H₂O tuzu) nanokompozitinin fotokatalitik indirgeme UV-Vis spektrumu 65

Şekil 4.62 rGO - 8Fe₃O₄ - 4ZnO (50 mg grafit oksit (GO), 400 mg Fe(NO₃)₃.9H₂O tuzu ve 200 mg Zn(CH₃COO)₂·2H₂O tuzu ile solvotermal yöntem) nanokompozitinin fotokatalitik indirgeme UV-Vis spektrumu..... 66

Şekil 4.63 rGO - 2Fe₃O₄ - 2ZnO (50 mg grafit oksit (GO), 100 mg Fe(NO₃)₃.9H₂O tuzu ve 100 mg Zn(CH₃COO)₂·2H₂O tuzu ile solvotermal yöntem) nanokompozitinin fotokatalitik indirgeme UV-Vis spektrumu..... 67

Şekil 4.64 rGO - 2Fe₃O₄ – 0.5ZnO (50 mg grafit oksit (GO), 100 mg Fe(NO₃)₃.9H₂O tuzu ve 25 mg Zn(CH₃COO)₂·2H₂O tuzu) nanokompozitinin fotokatalitik indirgeme UV-Vis spektrumu 68



ÇİZELGELER DİZİNİ

Çizelge 2.1 Demir oksit nanotaneçiklerin özelliklerinin karşılaştırılması (Fatimah vd. 2021).....	4
Çizelge 3.1 ZnO nanotaneçikleri sentez koşulları.....	14
Çizelge 3.2 rGO-ZnO nanokompozitleri için sentez koşulları.....	17
Çizelge 3.3 Atmosferik ortamda sentezlenen rGO-Fe ₃ O ₄ -ZnO nanokompozitleri için sentez koşulları.....	18
Çizelge 3.4 Solvotermal yöntemle sentezlenen rGO-Fe ₃ O ₄ -ZnO nanokopozitleri için sentez koşulları.....	20

1. GİRİŞ

Nanoteknoloji, çeşitli uygulama alanlarında kullanılabilecek özel işlevselliklere, gelişmiş özelliklere ve belirli niteliklere sahip maddeler üretmek için diğer bileşenlerle birlikte ya da tek bileşenli olarak fiziksel, kimyasal ve biyolojik teknikler ve işlemler kullanılarak maddenin dönüştürülmesi olarak tanımlanır. Nanaotanecikler, boyutu 100 nm' den küçük olan parçacıklar olarak tanımlanmaktadır. Nanotanaecikler, büyük ölçüde daha büyük bir yüzey alanı/hacim oranı ile benzersiz elektrokimyasal, optik ve termal özellikler sergiledikleri için yoğun malzemelerden farklıdır. Nanotaneciklerin bu benzersiz özellikleri, tarım, biyoteknoloji, kimya, iletişim, tüketim malları, savunma, elektronik, enerji, çevresel iyileştirme, ağır sanayiler, malzeme bilimi, tıp, mikrobiyoloji, optik ve çeşitli mühendislik alanlarında oldukça popüler olmalarını sağlamaktadır. Metaller ve metal oksitler hem fiziksel hem de kimyasal işlemler kullanılarak nanotaneciklere dönüştürülür. Kimyasal sentez yöntemlerinde, çevreye zarar veren sodyum borohidrit, hipofosfit ve hidrazin hidrat gibi toksik ve tehlikeli maddeler yoğun olarak kullanılır. Bu nedenle, nanotaneciklerin sentezi için yetkin, uygun maliyetli ve sürdürülebilir bir yeşil sürecin geliştirilmesi ile ilgili çalışmalar devam etmektedir. Stabil ve iyi işlevli nanotanecikler, bakteri, aktinomisetler, mantarlar, maya, virüsler ve diğer mikroplar gibi organizmalar kullanılarak üretilmektedir. Bu mikroorganizmalar çevre dostu ve sürdürülebilir öncüler olarak hizmet eder. Bununla birlikte, kaynakların yerel mevcudiyeti, sosyal uyum ve ekonomik fizibilite gibi faktörler, sürecin genel sürdürülebilirliğini büyük ölçüde etkiler (Mondal vd. 2020).

Metal nanotaneciklerin yanı sıra, metal bazlı nanokompozitler de çeşitli çevresel uygulamalar için yaygın olarak kullanılmaktadır (Mondal vd. 2020).

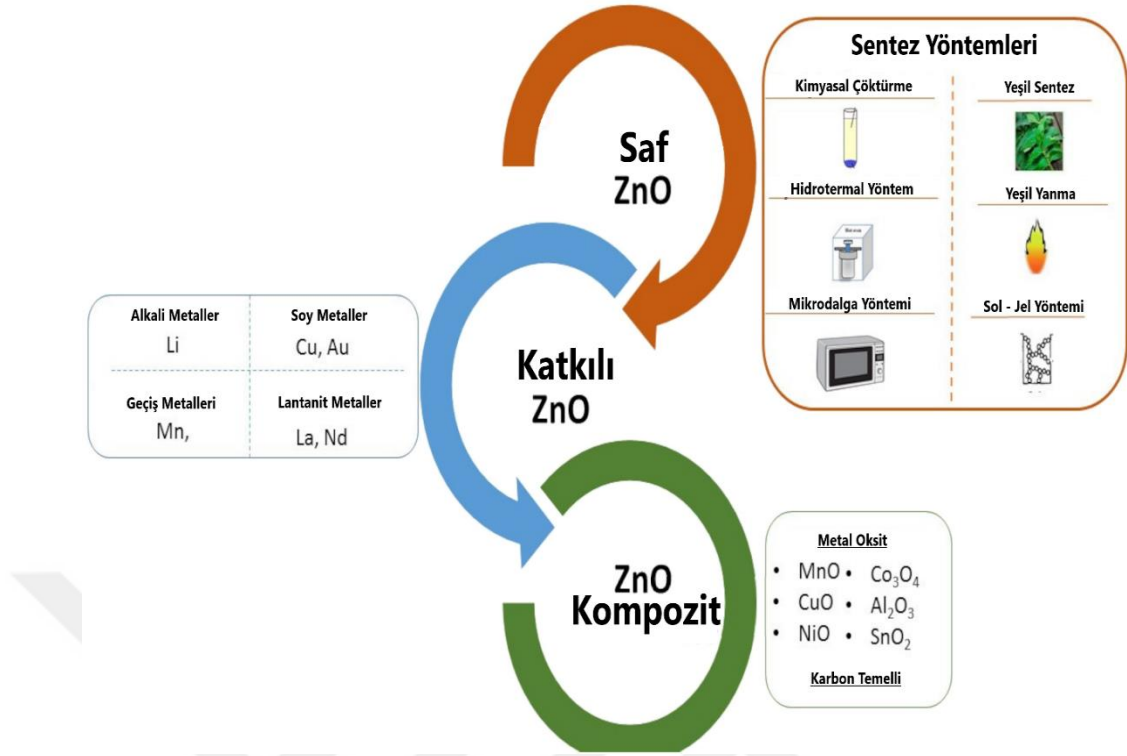
Bu tez çalışmasında rGO, Fe₃O₄ ve ZnO içeren iki ve üç bileşenli nanokompozitlerin sentezi, karakterizasyonu ve atık sularındaki organik kirleticilerin fotokatalitik yöntemle ile giderimi gerçekleştirilmiştir.

2. KURAMSAL TEMELLER

2.1 Metal Nanotanecikler ve Nanokompozitleri

Son yıllarda, nanotanecikler, nanoçubuklar ve nanoteller gibi nanomalzemeler, olağanüstü fiziksel ve kimyasal özelliklerinden dolayı kapsamlı bir şekilde incelenmiştir. Özellikle, ZnO, CuO, TiO₂ ve NiO gibi metal oksitlere dayalı nanomalzemeler, toksik olmamaları, bollukları, yüksek yüzey alanları ve mükemmel kimyasal ve termal kararlılıkları nedeniyle önemli araştırmalara konu olmuştur. Bu oksitler endüstriyel işlemlerde de kullanılmıştır. Özellikle, 2021 yılında kauçuk ve lastik, seramik ve cam, ilaç ve kozmetik, tarım, boya ve kaplamaların endüstriyel üretimi için 106 tondan fazla ZnO kullanılmıştır. 2019 yılında 4,75 milyar USD olan ZnO'nun büyüyen pazarının 2026 yılına kadar 6,26 milyar USD'ye çıkması öngörülmektedir (Hessien 2022).

Son yıllarda araştırmacılar çalışmalarını, ZnO'nun farklı uygulamalardaki performansı, özellikle sentez parametrelerinin modifikasyonu, doping ve ZnO bazlı nanokompozitlerin oluşturulması yoluyla saf ZnO'nun özelliklerinin kontrolü üzerine yoğunlaştırmışlardır. ZnO nanokompozitlerinin karbon bazlı malzemeler ve diğer metal oksitlerle sentezi ve uygulamaları üzerine çalışmalar ilgi görmektedir. Şekil 2.1' de sentez yöntemleri ve katkılanan diğer metal nanotanecikler kısaca özetlenmiştir (Hessien 2022).



Şekil 2.1 ZnO nanotaniclerinin sentez yöntemleri ve katkılanan bazı metaller (Hessien 2022)

Demir oksit manyetik nanotanicleri ve nanokompozitler hem kimyasal hem de fiziksel benzersiz özelliklerinden dolayı birçok alanda uygulama için umut vaat eden malzemelerden biridir. Doğal olarak, demir oksit manyetik malzemeler maghemit (γ -Fe₂O₃), manyetit (Fe₃O₄) ve hematit (α -Fe₂O₃) olmak üzere üç ana tipte sınıflandırılabilir. Bu sınıflandırmalar, belirli alanlarda uygulandıklarında malzemelerin dezavantajlarını ve avantajlarını tanımlamak için kullanışlıdır. Örneğin, manyetit malzeme, en yüksek manyetik özeliği nedeniyle ilaç salımı için tıbbi uygulamada yaygın olarak kullanılmaktadır. Bu nedenle, manyetik malzemenin temel türünün belirlenmesi, farklı türde uygulamalar için önemli faktörlerden biridir. Literatürde ayrıca manyetit türlerinin yanı sıra hematit manyetik nanomalzemeler terapi, kanser tedavisi, hipotermi tedavisi ve ilaç salım sistemlerinde yaygın olarak kullanıldığı görülmektedir. Diğer yandan, süperparamanyetik özellikleri, sensör ve biyomedikal amaçlar için oldukça önemlidir. Demir oksit nanotanic türlerinin manyetik özelliklerinin karşılaştırması çizelge 2.1' de gösterilmektedir. Manyetik nanokompozit geliştirmenin temel fikri, manyetik nanotaniclerin çoklu manyetik alan yapısına sahip olduğu ve boyutları nano ölçeğe indirildikçe tek bir manyetik alan yapısına sahip oldukları ve manyetizmalarının

paramanyetiğe dönüşmesine dayanır. Manyetik özelliklerinden dolayı ayırıştırma kolaylığı adsorpsiyon ve kataliz alanı için tercih sebebi olmaktadır. Manyetik özelliğe sahip bu tür nanotaneciklerin kombinasyonları, belirli amaçlar için manyetik nanokompozit geliştirilmesinde temel bir fikir oluşturur (Fatimah vd. 2021).

Çizelge 2.1 Demir oksit nanotaneciklerin özelliklerinin karşılaştırılması
(Fatimah vd. 2021)

Demir oksit	Kimyasal formül	Renk	Manyetik doygunluk ($\text{Am}^2\text{kg}^{-1}$)	Tanecik boyutu (nm)	Curie geçişi
Maghemit	$\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$	Gri, Kırmızı	60-80	± 10	$\sim 820\text{--}980$
Manyetit	Fe_3O_4	Siyah	92–100	± 6	~ 850
Hematit	$\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$	Gri, Kırmızı	0.3	-	~ 1000

Sürelili yayınlarda birlikte çöktürme, kimyasal buhar biriktirme (CVD), elektrokimyasal yöntem, solvotermal, mikrodalga ve mikro emülsiyon gibi demir oksit nanokompozitlerini sentezlemek için çeşitli yöntemler özetlenmiştir (Fatimah vd. 2021).

Fe_3O_4 nanotaneciklerinin kolay sentezi, sahip olduğu manyetik özellik, toksik olmayan ve nihayetinde yüksek ışığa duyarlı yapısı gibi özellikleri nedeniyle en etkili manyetik nanotanecik olarak kabul edilmiştir. Yine de pratik uygulamada karşılaşılan Fe_3O_4 parçacıklarının hızlı şarj rekombinasyonu ve aglomerasyonu gibi belirli olumsuzluklar vardır. Bu eksiklikleri ortadan kaldırmak için, Fe_3O_4 kompozitinin tasarlanması da dahil olmak üzere çok sayıda teknik izlenmiştir ve en avantajlı olanın grafen bazlı malzemelerle kompozitlerinin hazırlanması olduğu bulunmuştur. Polarize edilebilir gruplar içeren grafen platformunun, Fe_3O_4 parçacıklarını bağladığı ve bunların aglomerasyonunu engellediği literatürde bildirilmektedir (Mansingh vd. 2019).

Grafen, iki boyutlu bir petek yapısına sahip, sp^2 bağlı karbon atomlarından oluşan bir tek tabakadır. Grafen, yüksek elektriksel ve termal iletkenlik, yüksek mekanik mukavemet

ve optik absorpsiyon gibi benzersiz fiziksel ve kimyasal özellikleri nedeniyle süper kapasitörler, enerji depolama, spintronik, kataliz, elektronik, antimikrobiyal ve sensör uygulamaları için umut verici bir malzemedir. Son on yılda, Grafen oksitin (GO) indirgenmesi, grafen üretimi için önemli ve etkili bir yol olarak büyük ilgi görmüştür. GO, epoksi, hidroksil, karboksil ve karbonil gibi çeşitli oksijen içeren fonksiyonel gruplara sahip, onu hidrofilik yapan ve grafitte kıyasla ara tabaka mesafesi geniş olan grafit tabakalarından oluşmaktadır. GO' nun indirgenmesi için, termal indirgeme (termal tavlama, mikrodalga ve foto-indirgeme gibi) ve kimyasal indirgeme (solvotermal, hidrotermal, kimyasal reaktif indirgeme, biyosentez ve elektrokimyasal indirgeme gibi) içeren çeşitli yöntemler kullanılır. Birçoğunda asıl amaç sentez maliyetini düşürmektir. Uzun tepkime süresi ve uzun ısıtma süreci, bildirilen yaklaşımların özelliklerindendir (Baizae vd. 2018).

2.2 Fotokatalitik Uygulamalar

Bilim ve teknolojinin ilerlemesi ve ekonominin hızlı gelişimi ile insanın yaşam standartları büyük ölçüde iyileşmiştir. Bu sebeple çevre kirliliği, insanların yüzleşmesi gereken önemli bir problem haline gelmiştir (Zhang vd. 2023). Son yıllardaki nanotanecek ve nanoparçacık sentezi ile ilgili çalışmalar, nano ölçekli boyut (1-100 nm), çeşitli morfolojiler ve yüzey reaktivitesi gibi değerli özelliklerinden dolayı su ve atık su arıtımı için çevre dostu bir yöntem olarak yaygın bir şekilde uygulanmaktadır (Abdolalian vd. 2022).

Metilen mavisi (MB), heterosiklik aromatik bir bileşiktir. Pamuk ve yünden yapılan tekstil ipliklerini boyamak için yaygın olarak kullanılır. MB, solunması veya cilt ile teması halinde son derece tehlikelidir (Saeed vd. 2022). Reaktif bir katyonik boya olarak endüstriyel üretimde yüksek oranda atık olarak oluşur ve oluşan atık su, kolayca su kirliliğine neden olabilir. Organik boyaların endüstriyel atık sulardan arıtılmasıyla ilgili çok fazla çalışma yapılmış olsa da, araştırmacılar için bu boyaları verimli bir şekilde uzaklaştırmak hala önemlidir (Abdolalian vd. 2022, Chen vd. 2022, Zhang vd. 2023).

Günümüzde, boyaların atık sulardan uzaklaştırılması fiziksel adsorpsiyon, biyolojik bozunma, kataliz vb. yöntemler ile gerçekleştirilir. Kolay uygulanabilirlik, adsorpsiyon için metal NP çeşitliliği, düşük fiyat ve yeniden kullanılabilirlik avantajları nedeniyle, adsorpsiyon yöntemi çok sayıda çalışmaya konu olmuş ve pratik uygulama için yaygın olarak benimsenmiştir. Bununla birlikte, adsorpsiyon yöntemi kirleticileri indirgeyemez ve kirletici giderme verimliliği adsorpsiyon kapasitesi ile sınırlıdır. Biyobozunma yöntemi, güvenli, kullanışlı, toksik olmayan ve ikincil kirlilik oluşturmeyen organik kirleticileri arıtmak için mikroorganizmaları kullanır, ancak bu yöntem yüksek maliyetlere sahiptir. Son yıllarda, fotokataliz ve fotoelektrokatalitik, atık sudaki organik boyaların bozunması için önemli teknolojiler haline gelmiştir (Abdolalian vd. 2022, Chen vd. 2022).

Fotokataliz, güneş enerjisini kimyasal enerjiye dönüştürmek (örneğin, suyun hidrojene ayrılması ve CO₂' nin mevcut hidrokarbonlara indirgenmesi) ve organik kirleticilerin bozundurulması için umut verici temiz ve yenilenebilir bir teknolojisidir (Lin vd. 2023). Bu teknoloji, gelişmekte olan, yeşil ve çevre dostu bir teknoloji olarak, düşük maliyeti ve yüksek verimliliği nedeniyle yaygın olarak kullanılmaktadır (Abdolalian vd. 2022, Chen vd. 2022). Fotokatalitik işlemde, ışık ile uyarılmış elektronlar kirleticileri parçalamak amacıyla fotokatalizörün yüzeyindeki reaktanlarla tepkimeye girer (Zhang vd. 2023). Fotokatalitik işlemin mekanizması, bant aralığına uyan veya onu aşan UV ışığının aydınlatmasından bir enerji alarak yarı iletken üzerinde bir elektron boşluğu oluşturulmasına dayanır (Abdolalian vd. 2022). Sonuç olarak, organik ve inorganik kirleticilerin oksidasyonu doğrudan bu boşluklarda gerçekleşebilir ve bu boşluklar su molekülleri ile tepkimeye girmesi sonucu oluşan serbest radikaller yoluyla hidroksil radikalleri (OH) oluşturur ve elektronlar oksijenle reaksiyona girerek oksitleyici bir tür oluşturur. Ancak, ışık ile uyarılmış elektronların ve boşlukların rekombinasyonu ve fotokatalizörün geri kazanılması ve yeniden kullanılması, araştırmacılar için genellikle önemli problemlerdir (Zhang vd. 2023).

2.3 Metal Nanotaneciklerin ve Nanokompozitlerinin Fotokatalitik Uygulamaları

Fotokataliz, güneş ışığını absorplamak ve elektron-boşluk çiftleri oluşturmak için çoğunlukla fotokatalizör olarak kullanan yarı iletken nanopartiküllerin ya da nanokompozitlerin kullanıldığı yöntemdir. Bir fotokatalizör ışığa maruz kaldığında, değerlik bandındaki elektron, bant aralığı enerjisinden daha yüksek olan fotonların enerjisini absorplar. Elektron iletim bandı uyarılırken, valans bandında boşluk oluşturulur. Elektron boşluğu çiftleri, boya moleküllerini atık sudan ayrıştırmak için kullanıldıkları oksidasyon ve indirgeme reaksiyonları yoluyla hidroksil radikalleri (OH) üretir. Potansiyel yarı iletkenler arasında çinko oksit (ZnO), yaklaşık 3.37 eV' lik (UV spektral bölgesine yakın) doğrudan ve geniş bant aralığı, güçlü oksidasyon kabiliyeti, yüksek sıcaklıklarda kimyasal ve termal olarak çok kararlı olması gibi benzersiz özellikleri nedeniyle fotokatalizör olarak yaygın kullanılır. Bununla birlikte, fotokatalitik işlemlerde ZnO dahil yarı iletkenleri kullanmanın en büyük dezavantajı, elektron-boşluk çiftlerinin rekombinasyonudur ve bunların çoğu sadece UV bölgesinde ışığı absorplayabilir, bu da fotokatalizörün verimini engeller ve boyaların bozunmasını etkiler. Bu nedenle, rekombinasyonu önlemek ve ZnO'nun fotokatalitik aktivitesini iyileştirmek için ZnO' da yük taşınmasını iyileştirmek önemlidir. ZnO'nun yük taşıma özelliklerini geliştirebilen birkaç strateji vardır, bu stratejilerin başında yüzey modifikasyonu, metal katkılama ve grafen ile kompozitinin hazırlanması gelmektedir. Süreli yayınlarda, özellikle metal katkılamanın iyi fotokatalitik aktiviteler elde etmek için etkili bir yaklaşım olduğu gösterilmiştir (Srisai vd. 2022, Chen vd. 2022, Gupta vd. 2022).

ZnO foto katalizörün pratik uygulamalarında diğer bir sorun, ikincil kirliliğe neden olabilen, tepkime çözeltilerinden ZnO nanoparçacıklarının (NP'ler) geri dönüştürülmesinin zorluğudur. Bu sorunu çözmek için manyetik malzemeleri substrat olarak kullanmanın etkili bir yöntem olabileceği benimsenmiştir (Zhang vd. 2022). Ferromanyetik bir malzeme olarak Fe₃O₄, birçok alandaki potansiyel yeteneği nedeniyle araştırmacıların giderek daha fazla ilgisini çekmiştir (Lei vd. 2020).

Karbon malzemeler arasında indirgenmiş grafen oksit (rGO) ideal bir 2D matristir. 106 Scm⁻¹ lik mükemmel bir elektriksel iletkenliğe ve geniş bir yüzey alanına (2630 m²g⁻¹)

sahiptir; esnek, termal ve kimyasal olarak kararlıdır, bu da onu fotokatalitik uygulamalarda kullanım için iyi bir aday yapar. Yüksek fotokatalitik performansa sahip nanoyapılar geliştirmek için sıklıkla kullanılan bir ana malzemedir. Delokalize elektronlar, sonuçta rGO bazlı fotokatalizörlerin fotokatalitik aktivitesini artıran rekombinasyon hızını yavaşlatır (Saeed vd. 2022).

2.4 Kaynak Araştırması

Literatürde, bu tez çalışması kapsamındaki bileşenleri içeren fotokataliz ve fotokatalizörler üzerine yapılan çalışmalar aşağıda özetlenmiştir:

Dao vd. (2023), farklı pH değerlerinde hazırladıkları çözeltilerde ZnO nanopartiküllerini sentezlemişlerdir. Sentezledikleri nanotaneceklerini X-ışını kırınımı, taramalı elektron mikroskobu ve ultraviyole-görünür spektrofotometre kullanılarak karakterize etmişlerdir. ZnO katalizörleri, UV ışınlaması altında metilen mavisi (MB), metilen turuncusu (MO), kongo kırmızısı (CR) ve rodamin B (RhB) dahil olmak üzere organik boyaların bozunmasına yönelik dikkate değer bir fotokatalitik verimlilik ortaya koymuştur. Ayrıca, çözelti pH'ının fotokatalitik aktivite üzerindeki etkisi de araştırılmıştır. MB, MO ve RhB'nin bozunma oranının pH değerlerinin artışı ile arttığı bulunmuştur. Bununla birlikte, pH değerinin düşmesiyle CR'nin fotokatalitik bozunma verimliliği artmıştır. Sonuç olarak CR için %100 fotokatalitik bozunma (10 dakika, pH 4) elde etmişlerdir.

Packialakshmi vd. (2023), ZnO/SnO₂/indirgenmiş grafen oksit nanokompozitlerinin (ZnO/SnO₂/rGO) organik boya kirliliğinin gelişmiş fotokatalitik bozunmasına etkisini incelemişlerdir. Geliştirilen üçlü nanokompozitler kristallik, ışık ile uyarılmış yük taşıyıcılarının rekombinasyonu, enerji boşluğu ve yüzey morfolojileri gibi tespit edilen çeşitli faktörleri iyileştirmek için karışıma rGO eklendiğinde, ZnO/SnO₂'nin optik bant aralığı enerjisi düşmüş ve bu da fotokatalitik aktiviteyi geliştirmiştir. Ayrıca, ZnO, ZnO/rGO, SnO₂/rGO örnekleriyle karşılaştırıldığında, ZnO/SnO₂/rGO nanokompozitleri, güneş ışığına 120 dakika maruz kaldıktan sonra sırasıyla turuncu II (%99,8) ve reaktif kırmızı 120 boyasının (%97,02) yok edilmesinde yüksek fotokatalitik etkinlik

göstermiştir. Elektron deliği çiftlerini verimli bir şekilde ayırmayı mümkün kılan rGO katmanlarının yüksek elektron taşıma özellikleri, ZnO/SnO₂/rGO nanokompozitlerinin fotokatalitik aktivitesini yükseltmiştir. Sonuçlara göre, sentezlenen ZnO/SnO₂/rGO nanokompozitleri, boya kirleticilerinin sulu bir ekosistemden uzaklaştırılması için uygun maliyetli bir seçenek olduğunu bildirmişlerdir. Çalışmalar, ZnO/SnO₂/rGO nanokompozitlerinin etkili fotokatalizörler olduğunu ve bir gün su kirliliğini azaltmak için ideal malzeme olarak hizmet edebileceğini göstermiştir.

Long vd. (2022), çevre kirliliğini çözmede büyük potansiyele sahip olan yarı iletken fotokatalizörlerin, enerji tasarrufu sağlayan, çevre dostu ve verimli özelliklerinin olduğunu belirtmişlerdir. Bu çalışmada ZnO/CuO mikroküreleri, sırasıyla yerinde ve iki aşamalı yöntemlerle grafen oksit (GO) ile modifiye etmişlerdir. Grafen oksit içeriğinin ve hazırlama yönteminin heteroyapılı mikrokürelerin morfolojisi, yapısı ve fotokatalitik özellikleri üzerindeki etkilerini araştırmışlardır. Elde ettikleri sonuçlara göre, yerinde hazırlama yoluyla tek tip boyut ve yüksek katalitik aktiviteye sahip ZnO/CuO/GO (ZCGO) mikrokürelerinin elde edilebileceğini göstermişlerdir. GO içeriği 6 mL olduğunda, yerinde yöntemle hazırlanan kompozitler güneş ışığı altında en iyi fotokatalitik performansa sahip olduğu ve 100 dakikada rodamin B çözeltisindeki boya içeriğinin %99 oranında bozunduğunu ve bozunma oranı ZnO/CuO kompozitlerinin 1,4 katı olduğunu gösterilmiştir. Gömülü GO levhası direnci azaltır ve 102 $\mu\text{A}/\text{cm}^2$ ' den (ZnO/CuO) 140 $\mu\text{A}/\text{cm}^2$ ' ye (ZCGO) yükselterek foto akımı iyileştirir. Bu sonuçlara göre, ZCGO' nun fotokatalitik malzemeler için uygun bir malzeme olabileceğini göstermişlerdir.

Ou vd. (2022), N-katkılı ZnO/ N-katkılı grafen/ N-katkılı ZnO' dan (NZ/NG/NZ) oluşan sandviç tipi hibrit yapısını oligoanilin ve grafen oksit (GO) kullanılarak çözelti reaksiyonu ve ardından karbonizasyon yoluyla üretmişlerdir. Oligoanilin, GO nanotabakaları ile π - π etkileşimine katılarak bir aralayıcı malzeme görevi görür ve yeniden istiflenmelerini önler. Bununla birlikte oligoanilin, Zn²⁺ iyonları ile koordine olur ve karbonizasyon ile birlikte, N-katkılı ZnO/grafen/ZnO kompozitinin çekirdek kabuk yapısı ile sonuçlanır. Bu sandviç tipi yapı, N-katkılı ZnO' nun görünür bir ışık tepkisi ile daralmış bant aralığına sahip olduğu ve N-katkılı karbon matrisinin etkin foto-

indüklenmiş elektron-delik ayrımını kolaylaştırdığı birçok aktif bölge sağlar. Bu çalışmadaki strateji, fotokataliz veya enerji depolama için bu tür sandviç yapıları N katkılı metal oksit/ grafen kompozitlerini hazırlamak için etkili bir yöntem sunar. Bu çalışmada güneş ışınması altında metilen turuncusunun (MO) fotodegradasyonu, grafen, ZnO, grafen/ZnO, NG/NZ ve NZ/NG/NZ fotokatalizörleri kullanılarak test edilmiştir. Çalışmada MO çözeltisinin %5.4' ünün bozunma oranını fotokatalizör olmadan ölçülmüşlerdir. Işıksız koşullar altında bir fotokatalizör olarak kompozit NZ/NG/NZ, MO bozunma oranını %3.5' e kadar azaltabildiğini belirlemişlerdir. Bir fotokatalizör olarak ZnO' nun etkin ışık tepkisini gösteren yaklaşık %44.8 bozunma oranını elde etmişlerdir. Grafen/ZnO ve NG/NZ için MO' nun bozunma verimliliğini sırasıyla %60.7 ve %69.8 olarak ölçmüşlerdir. Bu gelişmeyi bir elektron alıcısı olarak hizmet edebilen ve kompozitteki ışık ile uyarılmış elektronların ve deliklerin ayrılmasını iyileştirebilen grafenin varlığına atfetmişlerdir. NZ/NG/NZ kompozit için sırasıyla ZnO ve NG/NZ' den yaklaşık 1.78 ve 1.14 kat daha yüksek olan %79.7 fotodegradasyon verimi elde etmişlerdir.

Zarrabi vd. (2022), su kirleticilerinin fotobozunmasında etkili bir manyetik nanokompozit olan ZnO-GO-Fe₃O₄' i iki aşamalı bir yöntem ile hazırlamış ve organik boyaların bozunması için fotokatalitik aktivitesini araştırmışlardır. Nanokompozitin karakterizasyonu X-Işını Kırınım (XRD), Alan Emisyon Taramalı Elektron Mikroskobu (FESEM), Enerji Dağılımlı X-Işını Analizi (EDX), Geçirimli Elektron Mikroskobu (TEM), Brunauer-Emmett-Teller (BET) Yüzey Alanı Analizi ve Barrett- Joyner-Halenda (BJH) Gözenek Boyutu ve Hacim Analizi, Diferansiyel yansıma spektroskopisi (DRS), Fourier Dönüşümü Kızılötesi spektroskopisi (FTIR) ve Titreşimli Örnek Manyetometresi (VSM) gibi teknikler ile yapmışlardır. Mezogözenekli yapıya sahip örneklerin yüksek yüzey alanı gösterdiğini ve solvothermal yöntemle sentezlenen ZnO-GO-Fe₃O₄ için düşük enerji bant aralığı elde edildiğini bildirmişlerdir. Ayrıca, ultrason ışınmasının fotoreaksiyon için mevcut yüzey alanını, çözeltinin başlangıç pH' sının, kullanılan fotokatalizör miktarının ve başlangıç boya konsantrasyonunun etkilerini incelemişlerdir. Sonuç olarak bu çalışmada 180 dakikalık süre içerisinde, metilen mavisi (MB) ve eozin sarısı (EY)' nin fotokatalitik bozunumunu verimini sırası ile %97 ve %60 olarak belirlemişlerdir.

Ahmad vd. (2021), Fe_3O_4 nanopartiküllerinin foto-Fenton işleminde Fe^{3+} iyonlarının Fe^{2+} iyonlarına dönüşüm oranını daha da iyileştirmek için birçok girişimde bulunulduğu çalışmalarında, UV-görünür ışık tarafından üretilen elektron deliği çiftleri foto-Fenton reaksiyonunda kullanıldığında bu sorunu çözmek için ZnO 'yu seçtiklerini belirtmişlerdir. $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-RGO-ZnO}$ 'da RGO'nun ZnO ile kombinasyonu, elektron deliği çiftinin ZnO 'da ki ömrünü artırabildiği, bu da ZnO 'dan Fe_3O_4 'deki $\text{Fe}^{3+} / \text{Fe}^{2+}$ redoks çiftine daha yüksek bir serbest elektron transferi olasılığı ile sonuçlandığı belirtilmiştir. Işınlama süresi, hidrojen peroksit dozu ve katalizör dozajı olmak üzere üç parametrenin metilen turuncusu (MO) ve metilen mavisi (MB) foto-Fenton bozunması üzerindeki etkilerini araştırmış ve sonuçlar $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-RGO-ZnO}$ katalizörünün kirleticileri parçalamak için büyük bir potansiyele sahip olduğunu göstermiştir.

Elshypany vd. (2021), manyetit/çinko oksit ($\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{ZnO}$) nanokompozitleri, farklı oranlarda çinko oksit ve demir oksit kullanılarak katı hal yöntemiyle sentezlemişlerdir. Nanokompozitlerin yapısal, morfolojik ve optik özellikleri, X-ışını kırınımı (XRD), Fourier dönüşümü kızılötesi spektroskopisi (FTIR), Raman spektroskopisi, geçirimli elektron mikroskopu (TEM), UV-Vis spektrumu (UV-Vis/DRS) ve fotoluminesans spektrofotometrisi (PL) ile analiz edilmiştir. $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{ZnO}$ nanokompozitlerinin fotokatalitik aktiviteleri, farklı pH koşullarında, başlangıç konsantrasyonunda ve serbest radikaller için farklı yakalama ajanlarıyla (Tert-bütül alkol (TBA), p-benzokinon (BQ) ve disodyum etilendiamintetraasetik asit ($\text{Na}_2\text{-EDTA}$)) görünür ışık altında sulu çözeltide metilen mavisinin bozunmasıyla araştırılmıştır. Elde ettikleri sonuçlar, manyetit varlığında ZnO bileşiğinin fotodegradasyon verimliliğinin %13,5' den %88,5' e yükseldiğini ortaya koymuştur. UV-Vis/DRS sonuçları görünür ışık altında metilen mavisinin yüksek fotokatalitik bozunmasını elde etmek için uygulanan optimum koşullar $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{ZnO}$ (MZ4) deneyindeki nanotaneciklerin arasındaki oran ile e^-/h^+ arasında yüksek bir stabilite ile görünür bölge altında nanokompozit absorpsiyonunun arttığı göstermektedir.

Lei vd. (2020), manyetik ayırmalı $\text{Fe}_3\text{O}_4@\text{ZnO-RGO}$ (RGO: indirgenmiş grafen oksit) kompoziti düşük sıcaklıkta hidrotermal bir yöntem kullanılarak elde etmiş, ortalama boyutu 200 nm olan Fe_3O_4 nanopartiküllerini yaklaşık 50 nm kalınlığında bir ZnO

tabakası ile kaplayıp RGO yüzeyine çöktürmüşlerdir. Sentezlenen $\text{Fe}_3\text{O}_4@\text{ZnO}$ -RGO' nun yapısı, morfolojisi ve fotokatalitik özelliklerini, X-ışını kırınımı (XRD), Fourier dönüşümü kızılötesi spektroskopisi (FTIR), geçirimli elektron mikroskobu (TEM), UV-vis spektrumları kullanılarak analiz etmişler ve foto-lüminesans spektrumlarını (PL) incelemişlerdir. Saf ZnO ve $\text{Fe}_3\text{O}_4@\text{ZnO}$ nanoparçacıkları ile karşılaştırıldığında, $\text{Fe}_3\text{O}_4@\text{ZnO}$ -RGO görünür ışıktaki metilen mavisi (MB) için daha geniş bir adsorpsiyon aralığına, iyi fotokatalitik aktiviteye ve döngüsel stabiliteye sahip olduğunu belirlemişlerdir. Ayrıca, $\text{Fe}_3\text{O}_4@\text{ZnO}$ -RGO' nun yapısal özellikleri aracılığıyla, gelişmiş fotokatalitik özelliklerine yol açan elektron-delik çiftlerinin ayrılması sağlanmıştır. Bu özellikler nedeniyle, $\text{Fe}_3\text{O}_4@\text{ZnO}$ -RGO nanokompozitinin su kirleticilerin arıtılmasında büyük potansiyele sahip bir fotokatalizör olduğunu öne sürmüşlerdir. Elde edilen $\text{Fe}_3\text{O}_4@\text{ZnO}$, Fe_3O_4 -RGO, ZnO-RGO ve $\text{Fe}_3\text{O}_4@\text{ZnO}$ -RGO nanokompozitlerinin metilen mavisi üzerindeki bozunma verimliliğini 180 dakika sonunda sırası ile %18,9, %30,7, %40,2 ve %98,7 olarak belirlemişlerdir.

Bu tez çalışmasında, nanoyapıların sentezinde solvotermal yöntem ve atmosferik koşullarda, farklı sentez ortamlarında indirgenmiş grafen oksit/çinko oksit/demir oksit içeren çok bileşenli manyetik nanokompozitler sentezlenmiş ve karakterizasyonları gerçekleştirilmiştir. Farklı bileşen oranlarında sentezlenen örneklerin organik boyaların gideriminde fotokatalitik etkinlikleri incelenerek, bulgular kendi aralarında ve literatür çalışmaları ile karşılaştırılmıştır.

3. MATERYAL VE YÖNTEM

3.1 Materyal

$\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ (çinko asetat dihidrat) (Merck), NaOH (sodyum hidroksit) (Sigma-Aldrich, $\geq 98\%$), CH_3COONa (sodyum asetat) (Merck, $\geq 99\%$), GO (grafit oksit) (Grefen Chemical Industries), $\text{FeN}_3\text{O}_9 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ (demir (III) nitrat nonahidrat) (Sigma-Aldrich, $\geq 99.95\%$), $\text{C}_2\text{H}_6\text{O}_2$ (etilen glikol) (Isolab, $\geq 99\%$), $\text{C}_2\text{H}_6\text{O}$ (etanol) (Isolab, $\geq 99.9\%$), PVP (polivinilpirolidon) (Sigma-Aldrich) ve deiyoniz su (DI) kullanılmıştır.

3.2 Yöntem

Bu tez çalışması kapsamında ZnO nanotanecikleri ve rGO-ZnO nanokompozitleri atmosferik ortamda sentezlenmiştir. Metal tuzu olarak çinko asetat dihidrat ($\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$) kullanılmıştır. ZnO nanotanecikleri ve ZnO bileşenli nanokompozitlerinin sentezinde indirgeyici ajan olarak sodyum hidroksit (NaOH) kullanılmıştır. Sentez koşulları 90-92 °C sıcaklığı, pH 10-11 aralığı için denenmiştir. Fe_3O_4 nanotaneciklerin ve rGO- Fe_3O_4 nanokompozitlerin solvotermal sentezinde indirgeyici ajan olarak etilen glikol (EG) ve sodyum asetat ($\text{C}_2\text{H}_3\text{NaO}_2$) kullanılmıştır. Metal tuzu olarak demir (III) nitrat nonahidrat ($\text{FeN}_3\text{O}_9 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$) kullanılmıştır. Deneysel çalışma teflon astarlı paslanmaz çelik otoklavda, sentez koşulları 200°C sıcaklık ve 8 saat olarak gerçekleştirilmiştir. rGO- Fe_3O_4 -ZnO nanokompoziti rGO- Fe_3O_4 nanokompozitinin solvotermal üretimi sonrasında atmosferik ortamda yüzeylerinde ZnO nanotanecikleri çöktürülerek iki adımda sentezlenmiştir. Sentez sonrası yıkama ve saflaştırma işlemleri uygulanmış. Örnekler FTIR, SEM-EDS, XRD ve UV-Vis analizleri ile karakterize edilmiştir.

3.2.1 ZnO nanotaneciklerinin sentezi

200 mg çinko asetat dihidrat ($\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$) tuzu 90 ml DI içerisinde 10 dakikalık sonikasyon işlemi ile çözündürülmüştür. Devam eden işlem adımlarında indirgeyici ajan olarak NaOH ve NH_3 kullanılmış, sentez süreleri 1 ve 2 saat olarak belirlenmiş, sıcaklıklar 80 ve 95 °C için ve stabilizör olarak PVP kullanılarak ZnO nanotanecikleri elde edilmiş ve fotokatalitik aktiviteleri incelenmiştir. Çizelge 3.1’ de ZnO NP’ lerinin sentez koşulları verilmiştir. Elde edilen ZnO nanotaneciklerinin fotokatalitik aktivitelerine göre en iyi sentez koşullarının belirlenmesi hedeflenmiştir. Elde edilen ZnO nanotaneciklerinin kompozitleri hazırlanarak fotokatalitik etkinlikleri incelenmiştir.

Çizelge 3.1 ZnO nanotanecikleri sentez koşulları

	İndirgeyici Ajan	pH	Sıcaklık	Sentez Süresi	Stabilizör
200 mg Çinko Asetat Dihidrat ($\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$) + 90 ml DI	700 µL 3 M NaOH	11,08	95 °C	2 saat	-
	650 µL NH_3	9,36	95 °C	1 saat	-
	600 µL NH_3	9,42	80 °C	1 saat	-
	500 µL 0,5 M NaOH	10,53	80 °C	1 saat	450 mg PVP
	4 ml 0,5 M NaOH	10,38	80 °C	1 saat	900 mg PVP

Şematik olarak Şekil 3.1’ de verilen, atmosferik koşullarda, sürekli azot akışlı, geri soğutuculu ve 450 rpm karıştırma hızı olan bir sistemde gerçekleştirilmiştir. Sentezlenen nanotanecikler 5 kez DI ile yıkanıp 11500 rpm’ de 8 dakika santrifüjlenerek saflaştırılmıştır. Sentezlenen nanotanecikler vakum etüvünde 65 °C’ de 24 saat kurutulmuştur ve sonrasında 450 °C’ de 45 dakika kalsine edilmiştir.



Şekil 3.1 ZnO nanotanicikleri sentez deney düzeneđi

3.2.2 Fe₃O₄ nanotaniciklerinin sentezi

Fe₃O₄ nanotaniciklerinin sentezi solvotermal yöntem ile gerçekleştirilmiştir. 400 mg Fe(NO₃)₃·9H₂O tuzu 15 ml etilen glikol içerisinde 15 dakikalık sonikasyon işlemi ile çözündürülmüştür ve üzerine 10 ml etilen glikol içerisinde 1 saatte çözündürülmüş olan sodyum asetat (C₂H₃NaO₂) damlatılmıştır. İkili karışım 1,5 saatlik sonikasyon işlemine tabi tutulduktan sonra üzerine 6 g üre eklenerek 30 dakika daha sonikasyona devam edilmiştir. Oluşturulan karışım teflon astarlı paslanmaz çelik otoklav içerisinde 8 saat boyunca 200 °C sıcaklıkta tepkimeye tabi tutulmuştur. Tepkime süresi sonunda otoklavın oda sıcaklığında soğutularak elde edilen ürün, sırasıyla etanol ve DI ile yıkandıktan sonra bir mıknatıs yardımı ile sıvı kısmında ayrılıp 65 °C’ de 24 saat vakum etüvünde kurutulmuştur (Ghanbarnezhad vd. 2017, Çıplak 2020, Zhang vd. 2022).

3.2.3 Fe₃O₄-ZnO nanokompozitlerinin sentezi

432 mg çinko asetat dihidrat ($\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$) tuzu 10 ml DI içerisinde ve 80 ml DI içerisinde 50 mg Fe₃O₄ ayrı beherlerde 10 dakikalık sonikasyon işlemi ile çözündürülmüştür. Hazırlanan çözeltiler birbirleri ile karıştırılmış ve 2,1 mL 3 M NaOH çözeltisi eklenerek karışım pH değeri 11 olarak ayarlanmıştır. Fe₃O₄-ZnO nanokompozitleri 95 – 100 °C çözelti sıcaklığı olacak şekilde yağ banyosunda, 100 rpm’ de mekanik karıştırıcı ile sabit hızda karıştırılarak, geri soğutuculu bir sistemde, sürekli azot gazı akışı altında 2 saat tepkime süresi sonunda sentezlenmiştir. Sentezlenen nanokompozitler DI ile yıkayıp mıknatıs yardımı ile sıvı kısımdan ayrılmıştır. Sentezlenen nanokompozitler vakum etüvünde 65 °C de 24 saat kurutulmuştur ve sonrasında 450 °C’ de 2 saat kalsine edilmiştir (Darabi vd. 2018, Lei vd. 2020, Zhang vd. 2022).

3.2.4 rGO-ZnO nanokompozitlerinin sentezi

Farklı sentez yöntemiyle gerçekleştirilen rGO-ZnO nanokompoziti için yapılan çalışmalar Çizelge 3.2’ de özetlenmiştir. Sentez işlemlerinde Grafit Oksit (GO) DI içerisinde üzerine 20 µL NH₃ eklenerek 1 saatlik süre içerisinde dağıtılmıştır. Daha sonra GO çözeltisi üzerine stabilizör olarak kullanılmış olan polivinilpirolidon (PVP)’ un eklenerek 2 saat boyunca sonikasyona tabi tutulmasının ardından yine DI içerisinde 5 dakika boyunca sonikasyona tabi tutulan çinko asetat dihidrat ($\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$) tuzu damla damla eklenmiştir. Hazırlanan çözeltilerin üzerine 400 - 2000 µL arasında değişen miktarlarda 0,5 M NaOH çözeltisi eklenerek pH değeri 9,20 – 10,80 arasındaki değerlere ayarlanmıştır. İşlemler 1 saatlik sentez süresi boyunca farklı sıcaklıklar için gerçekleştirilmiştir.

Çizelge 3.2 rGO-ZnO nanokompozitleri için sentez koşulları

	Çinko asetat dihidrat ($\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$) Miktarı (mg)	GO Miktarı (mg)	DI Miktarı (ml)	Sıcaklık	pH	Stabilizör PVP (mg)
rGO-ZnO	200	60	90	80 °C	9.57	450
	100	25	50	80 °C	9.30	-
	100	25	50	88 °C	10,27	250
	50	50	60	90 °C	9,81	250
	25	50	60	92 °C	10.80	250

Sentezler atmosferik koşullarda, sürekli azot akışlı, geri soğutuculu ve 450 rpm karıştırma hızı olan bir sistemde gerçekleştirilmiştir. Sentezlenen nanotanecikler 4 kez DI ile yıkanıp 11500 rpm’ de 5 dakika santrifüjlenerek saflaştırılmıştır. Sentezlenen nanotanecikler vakum etüvünde 65 °C’ de 24 saat kurutulmuştur ve sonrasında 450 °C’ de 45 dakika kalsine edilmiştir.

3.2.5 rGO-Fe₃O₄ nanokompozitlerinin sentezi

rGO-Fe₃O₄ nanokompoziti solvotermal yöntemle sentezlenmiştir. İlk olarak 50 mg grafit oksit (GO) 15 ml etilen glikol (EG) içerisinde 1 saatlik bir sonikasyon işlemiyle dağıtılmıştır. Aynı beherlerde 5 ml etilen glikol içerisinde 1,5 gr sodyum asetat ($\text{C}_2\text{H}_3\text{NaO}_2$) ve 5 ml etilen glikol içerisinde 400 mg demir nitrat ($\text{Fe}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$) çözülmüştür. Demir nitrat çözeltisi GO karışımı üzerine damlatılıp 15 dakika sonikasyonda bırakılmıştır. Daha sonra elde edilen çözelti sodyum asetat içeren çözeltinin üzerine damla damla ilave edilmiş ve 1,5 saat sonikasyonda bekletilmiştir. Elde edilen çözelti teflon astarlı paslanmaz çelik otoklava aktarılmış ve 8 saat boyunca 200 °C sıcaklıkta bekletilmiştir. Bu işlemin sonrası otoklav oda sıcaklığında soğutulmuş ve ulaşılan

nihai ürün, sırasıyla etanol ve DI ile yıkandıktan sonra bir mıknatıs yardımı ile sıvı kısmında ayrılıp 65 °C’ de 24 saat vakum etüvünde kurutulmuştur ve sonrasında 450 °C’ de 2 saat kalsine edilmiştir (Çıplak 2020). Aynı işlemler demir nitrat ($\text{Fe}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$) tuzunun 100 mg olacak şekilde tekrarlanması ile 2 farklı rGO- Fe_3O_4 nanokompozit elde edilmiştir.

3.2.6 rGO- Fe_3O_4 -ZnO nanokompozitlerinin sentezi

Öncelikle 3.2.5’ de belirtildiği gibi iki farklı bileşimde sentezlenmiş olan 50 mg rGO- Fe_3O_4 nanokompoziti DI içerisinde dağıtılmış ve üzerine 10 ml DI içerisinde sonikasyon ile çözündürülmüş olan farklı miktarlardaki çinko asetat dihidrat ($\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$) çözeltileri eklenmiştir. Son olarak üzerine 600-4000 μL arasında değişen miktarlarda 0,5 M NaOH çözeltisi eklenen hazırlanan karışımların pH’ ı 10-11 aralığında ayarlanmıştır. İşlemler Çizelge 3.3’ de özetlenmiştir. Sentezlenen rGO- Fe_3O_4 -ZnO nanokompozitlerinin bileşen oranları ve kısaltmaları Çizelge 3.3’ de gösterilmiştir.

Çizelge 3.3 Atmosferik ortamda sentezlenen rGO- Fe_3O_4 -ZnO nanokompozitleri için sentez koşulları

	Nanokompozit	Çinko asetat dihidrat ($\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$) (mg)	DI (ml)	Sıcaklık (°C)	pH	Stabilizör PVP (mg)
rGO- Fe_3O_4 - ZnO	rGO-8 Fe_3O_4 -ZnO	50	90	95	10,20	-
	rGO-8 Fe_3O_4 -2ZnO	100	90	95	10,80	-
	rGO-8 Fe_3O_4 -0.5ZnO	25	90	95	10,50	-
	rGO-8 Fe_3O_4 -4ZnO	200	90	95	10,30	-
	rGO-2 Fe_3O_4 -0.5ZnO	25	60	92 °C	10,15	250

92-95 °C çözelti sıcaklığı olacak şekilde yağ banyosunda, 100 rpm’ de mekanik karıştırıcı ile sabit hızda karıştırılarak, geri soğutuculu bir sistemde, sürekli azot gazı akışı altında 1 saat tepkime süresi sonunda rGO-Fe₃O₄-ZnO nanokompoziti sentezlenmiştir. Sentezlenen nanokompozitler DI ile yıkandıktan sonra bir mıknatıs yardımı ile sıvı kısmında ayrılıp 65 °C ‘de 24 saat vakum etüvünde kurutulmuştur ve sonrasında 450 °C’ de 45 dakika kalsine edilmiştir (Çıplak 2020, Dutta vd. 2022).

rGO-Fe₃O₄-ZnO nanokompozitinin sentezlenmesinde uygulanan diğer bir yöntem ise tek basamaklı işlem ile Teflon astarlı paslanmaz çelik reaktörde gerçekleştirilmiştir. Sırasıyla 50 mg grafit oksit 10 ml etilen glikol (EG) içerisinde (A) 1 saat sonikasyona tabi tutularak, 400 mg Fe(NO₃)₃.9H₂O 5 ml etilen glikol (EG) içerisinde (B) 15 dakika sonikasyona tabi tutularak, 1,5381 g sodyum asetat sodyum asetat (C₂H₃NaO₂) 5 ml etilen glikol (EG) içerisinde (C) manyetik karıştırıcı yardımı ile 1 saat karıştırılarak, 200 mg çinko asetat dihidrat (Zn(CH₃COO)₂.2H₂O) 5 ml etilen glikol (EG) içerisinde (D) 15 dakika sonikasyona tabi tutularak çözündürülmüş (A), (B), (C) ve (D) çözeltileri oluşturulmuştur. (B) çözeltisi (A) çözeltisinin üzerine damlatılarak 15 dakika sonikasyona tabi tutulmuş ve sonra (A+B) çözeltisinin üzerine (D) çözeltisi damlatılarak tekrar 15 dakika sonikasyona tabi tutulmuştur. Elde edilen (A+B+D) çözeltisi (C) çözeltisinin üzerine eklenerek 1,5 saat manyetik karıştırıcı ile karıştırılmıştır. Elde edilen nihai çözeltisi teflon astarlı paslanmaz çelik reaktörün içerisine koyulmuş ve içerisine azot gazı gönderilmiştir. 8 saat boyunca 200 °C’ de gerçekleşen tepkime sonucunda otoklav kendiliğinden oda sıcaklığında soğutulmuş ve elde edilen ürün, sırasıyla etanol ve DI ile yıkandıktan sonra bir mıknatıs yardımı ile sıvı kısmında ayrılıp 65 °C’ de 24 saat vakum etüvünde kurutulmuştur. Daha sonra 450 °C’ de 45 dakika kalsine edilmiştir.

Tek basamakta gerçekleştirilen sentez işlemi farklı oranlar kullanılarak tekrarlanmıştır. 15 ml etilen glikol (EG) içerisinde 1 saatte sonikasyon ile dağıtılan 50 mg grafit oksit (GO)’ in üzerine 5 mL etilen glikol (EG) içerisinde 15 dakika çözündürülmüş olan 100 mg Fe(NO₃)₃.9H₂O damla damla eklenmiştir. Sonrasında elde edilen karışım 15 dakika sonikasyona tabi tutulduktan sonra üzerine 5 ml etilen glikol (EG) içerisinde çözündürülmüş olan 100 mg çinko asetat dihidrat (Zn(CH₃COO)₂.2H₂O) eklenmiş ve 15 dakika sonikasyona tabi tutulmuştur. Elde edilmiş olan karışım 5 ml etilen glikol (EG)

içerisine 1,5381 g sodyum asetat sodyum asetat ($C_2H_3NaO_2$) ilave edilmiştir. Nihai karışım 1,5 saat sonikasyon işlemine tabi tutulduktan sonra teflon astarlı paslanmaz çelik reaktörün içerisine koyulmuştur. 8 saat boyunca 200 °C’ de gerçekleşen tepkime sonucunda otoklav kendiliğinden oda sıcaklığında soğutulmuş ve elde edilen ürün, sırasıyla etanol ve DI ile yıkandıktan sonra bir mıknatıs yardımı ile sıvı kısmında ayrılıp 65 °C’ de 24 saat vakum etüvünde kurutulmuştur. Daha sonra 450 °C’ de 45 dakika kalsine edilmiştir. İşlemler Çizelge 3.4’ de özetlenmiştir.

Çizelge 3.4 Solvothermal yöntemle sentezlenen rGO-Fe₃O₄-ZnO nanokopozitleri için sentez koşulları

rGO- Fe ₃ O ₄ - ZnO	Bileşen Oranları ve Kısaltmaları	Çinko asetat dihidrat (Zn(CH ₃ COO) ₂ ·2H ₂ O) Miktarı (mg)	Demir nitrat nonahidrat (Fe(NO ₃) ₃ ·9H ₂ O) Miktarı (mg)	Etilen Glikol (EG) Miktarı (ml)	Sıcaklık
	rGO-8Fe ₃ O ₄ - 4ZnO	50	400	30	95 °C
	rGO-2Fe ₃ O ₄ - 2ZnO	100	100	30	95 °C

3.2.7 Fotokatalitik çalışmalar

Elde edilen rGO-ZnO ve rGO-Fe₃O₄/ZnO nanoyapıların ve ZnO nanotaneceklerinin fotokatalitik performansları süreli yayınlara benzer şekilde belirlenen deney koşullarına göre incelenmiştir. Bu çalışmada hedef kirletici olarak metilen mavisi (MB) kullanılmıştır. Literatürde katalizörün eklenmiş olduğu süspansiyonlarda adsorpsiyon - desorpsiyon dengesinin sağlanması için 20 ile 120 dakikalık sürelerde sabit karıştırma altında karanlık ortamda beklendiği, 200 ile 500 W/cm² gücünde bir ışık kaynağı kullanıldığı bilinmektedir. Literatürdeki çalışmalarda katalizör miktarının ve kompoziti oluşturan nanotaneceklerin birbirleri ile arasındaki oranın MB’ nin bozunması üzerinde

etkili olduđu ve en iyi kořulların %30 rGO ve Fe₃O₄-ZnO oranının 1:6 olması en iyi sonucu verdiđi görölmektedir. Bununla birlikte dıř katmanda bulunan ZnO miktarının artması tepkime hızını artıran fotokatalitik aktif bölgelerin artmasına neden olduđu fakat belli bir miktardan sonrasının MB' nin bozunma hızını düşürdüđu belirtilmiřtir. Bunun nedeni daha büyük nanotanecek yapıların meydana gelmesi ile açıklanmaktadır (Choudhary vd. 2022, Elshypany vd. 2021, Zarrabi vd. 2022, Ou vd. 2022, Lei vd. 2020, Abharya vd. 2021).

Bu alıřmada adsorpsiyon - desorpsiyon süresi 45 dakika olarak belirlenmiřtir. Katalizör miktarı 40 ml özelti ierisine 10 mg, kirletici ieren özelti deriřimi ise 10 mg/L' dir. Deneyler 3 saat süre ile gerekleřtirilmiřtir. Deney düzeneđi 577 W/cm² gücünde Led lamba ile hazırlanmıř ve mekanik karıřtırma hızı 300 rpm olarak ayarlanmıřtır. Belirli zaman aralıklarında Eppendorf tüp ierisine alınan 800 µL örnekler santrifüjlenerek öken katalizör kısmı uzaklařtırılmıř ve 500 µL örnek 2 ml DI ile karıřtırılarak UV-Vis ölçümleri alınmıřtır.

$$\text{Giderim (\%)} = \frac{C_0 - C_1}{C_0} = \frac{A_0 - A_1}{A_0}$$

(3.1)

Örneklerin fotokatalitik bozunmasının verimliliđi yukarıdaki formöl kullanılarak hesaplanmıřtır (Choudhary vd. 2022, Elshypany vd. 2021, Zarrabi vd. 2022, Ou vd. 2022, Lei vd. 2020, Abharya vd. 2021).

3.3 Karakterizasyon

3.3.1 Fourier dönüřümlü kızılötesi spektroskopisi (FTIR)

Analiz iřlemleri Ankara Üniversitesi Kimya Mühendisliđi bünyesindeki FTIR Shimadzu 8400 S cihazı ile yapılmıřtır. Potasyum bromür (KBr) ile karıřtırılarak oluřturulan tablet örneklerinin analizleri 400 – 4000 cm⁻¹ aralıđında gerekleřtirilmiřtir.

3.3.2 Taramalı elektron mikroskobu - enerji dağılımlı x-ışını spektroskopisi (SEM EDS)

Analiz işlemleri ODTÜ Merkez Laboratuvarında bulunan QUANTA 400F Field Emission SEM cihazında vasıtasıyla yapılmıştır. Örnekler, sentezlenip kurutulduktan sonra ultrasonik etki ile dağıtma sonucu “stub” üzerine damlatma yapılarak hazırlanmıştır.

3.3.3 Ultraviyole ve görünür bölge spektroskopisi (UV-Vis)

Analizler Ankara Üniversitesi Kimya Mühendisliğin Bölümünde Shimadzu UV 1601 cihazında gerçekleştirilmiştir. Spektrumlar 200-1100 nm aralığında elde edilmiştir.

3.3.4 X-ışınları difraktometresi (XRD)

Analiz işlemleri Rigaku marka miniflex 600 model masaüstü toz X-ışını diffraktometresi kullanılarak gerçekleştirilmiştir. X ışını kaynağı olarak Cu K α ½ radiation, $\lambda = 1.54 \text{ \AA}$ kullanılmış ve cihaz ayarı 40 kV ve 15 mA olarak belirlenmiştir.

4. ARAŞTIRMA BULGULARI

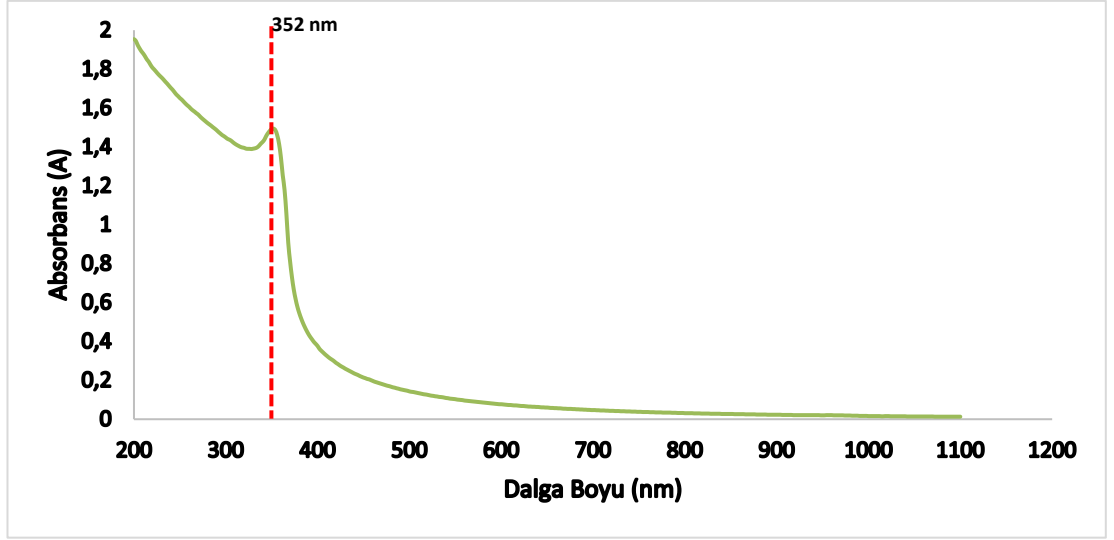
4.1 Nanoyapıların Karakterizasyonu

Sentezlenen nanotaneciklerin ve nanokompozitlerin karakterizasyonu UV-Vis, FTIR, XRD ve SEM analizleri gerçekleştirilmiştir.

4.1.1 ZnO nanotaneciklerinin karakterizasyonu

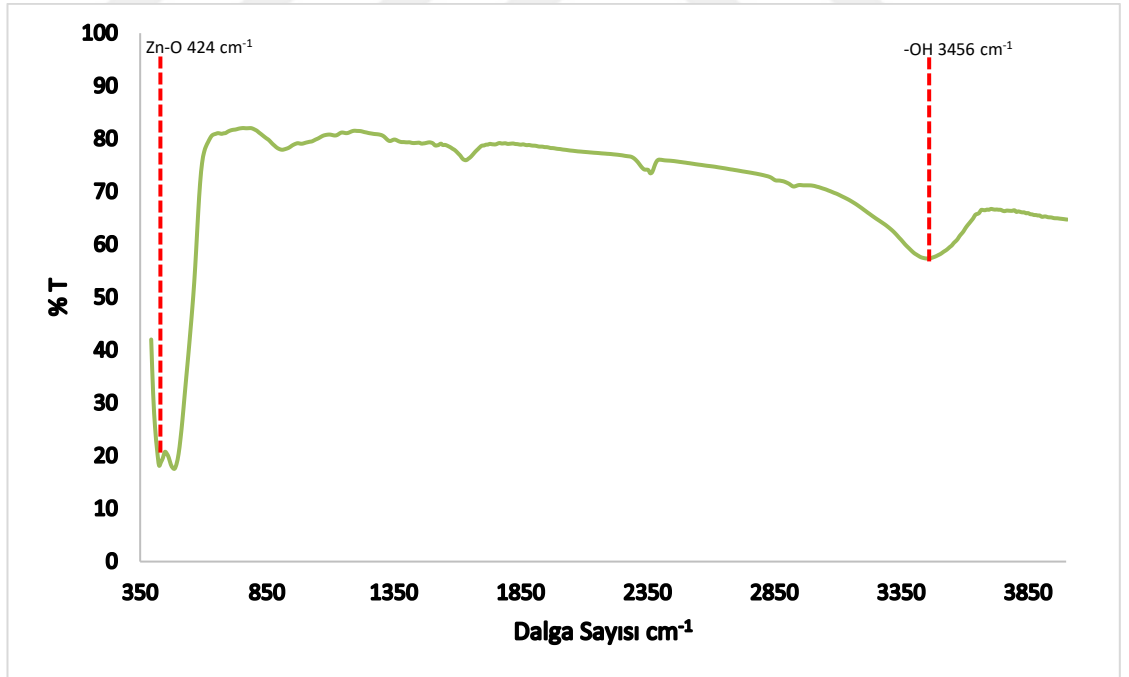
ZnO nanotanecikleri $\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ tuzunun atmosferik ortamda farklı sıcaklıklarda NH_3 ve NaOH ile indirgenmesi yoluyla elde edilmişlerdir. Aynı işlemler ortamda stabilizör olarak kullanılan PVP varlığında tekrar edilmiştir. Sentezlenen nanotaneciklerin UV-Vis spektrumlarında ZnO için 352 ila 366 nm dalga boyunda pik olduğu görülmektedir. Süreli yayınlarda, ZnO nanotaneciklerinin 200 ila 400 nm bandında görünür ışığı absorbe edebildiği ve 355, 357, 360 nm dalga boylarında karakteristik pik oluşturduğu bilinmektedir. Bulgular literatür ile uyumludur (Lei vd. 2020, Shamhari vd. 2018, Veerabhadraiah vd. 2022).

Şekil 4.1 ve 4.2’de görüldüğü üzere indirgeyici ajan olarak NaOH ’ ın kullanıldığı, pH değerinin ~11 olarak belirlendiği ve 95 °C sıcaklıkta 2 saatlik sentez süresi sonucunda elde edilen ZnO nanotanecikleri UV-Vis ve FTIR ile analiz edilmiştir. UV-Vis spekturumda görülen 352 nm dalga boyundaki pik literatür ile uyumlu olarak ZnO nanotaneciklerine ait olduğu belirlenmiştir.



Şekil 4.1 95 °C’ de NaOH ile elde edilen ZnO nanotaneçiklerinin UV-Vis pikleri

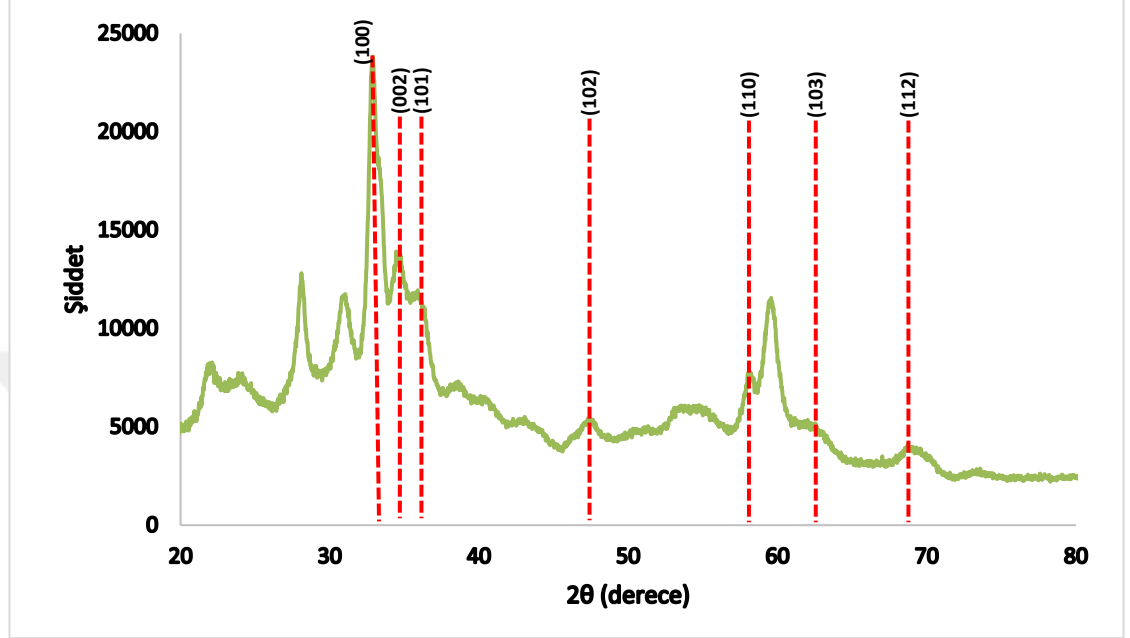
Şekil 4.2’ de, FTIR spektrumunda 424 cm^{-1} ’ de Zn-O bağına ait karakteristik pik ve 3456 cm^{-1} ’ de -OH gerilme titreşimine ait pik görülmektedir (Shamhari vd. 2018, Lei vd. 2020, Abharya vd. 2021).



Şekil 4.2 95 °C’ de NaOH ile elde edilen ZnO nanotaneçiklerinin FTIR pikleri

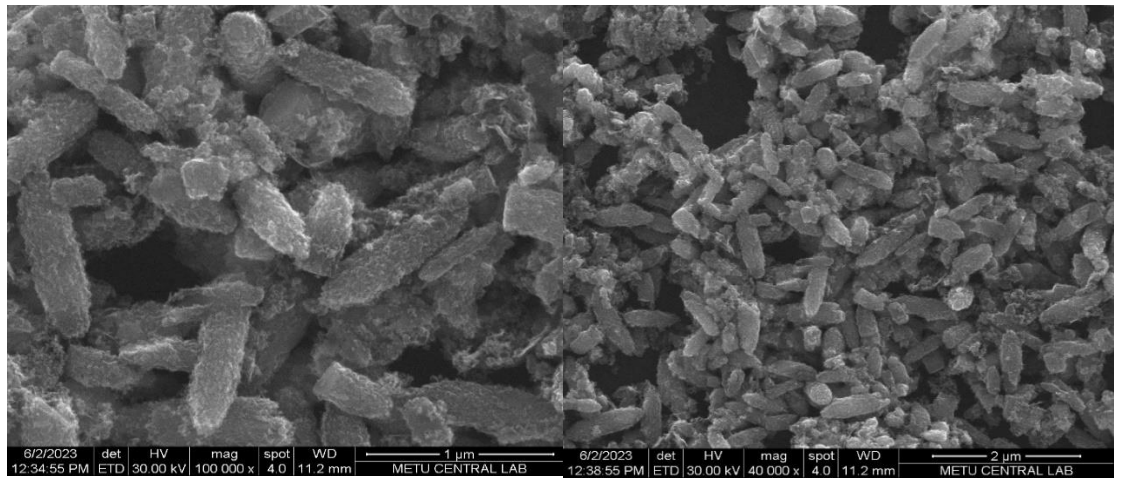
Şekil 4.3’ de ZnO nanotaneçiklerine ait XRD kırınım deseni verilmiştir. ZnO NP’ lerinin XRD kırınım desenine göre $2\theta = 32.8^\circ$ (100), 34.4° (002), 36.0° (101), 47.3° (102), 58.0°

$^{\circ}$ (110), 62.2° (103), 68.6° (112) civarında oluşan pikler ZnO NP' ne ait karakteristik piklerdir. Bulgular literatür ile uyumludur (Lei vd. 2020, Feng vd. 2018, Ahamed vd. 2022, Abharya vd. 2021).



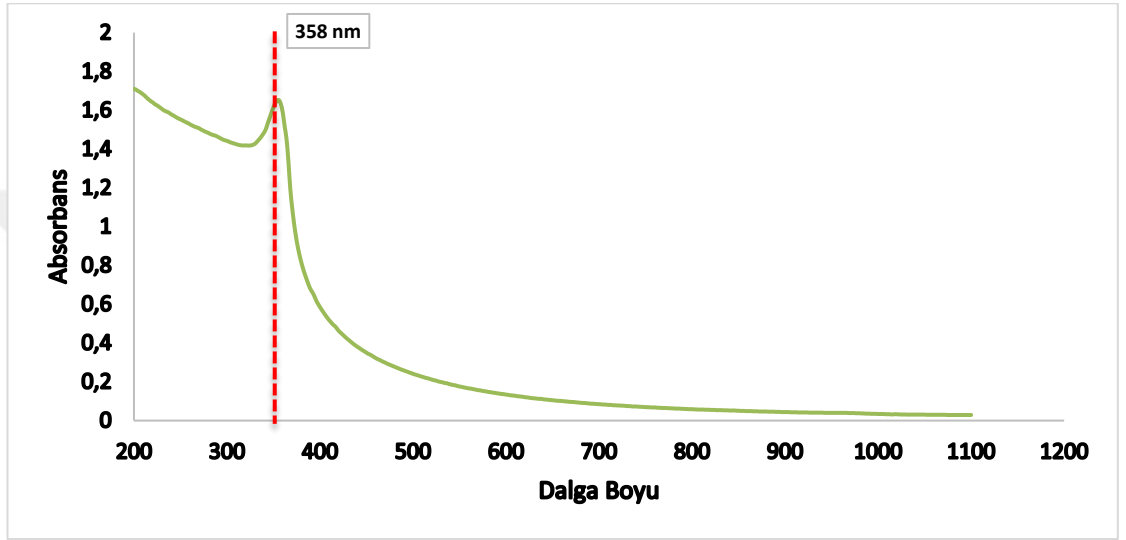
Şekil 4.3 95°C ' de NaOH ile elde edilen ZnO nanotaneçiklerinin XRD kırınım deseni

Şekil 4.4' de SEM görüntülerine yer verilen ZnO nanotaneçiklerinin gerçekleştirilen sentez işleminin başarılı olduğunu ve ZnO nanotaneçiklerinin oluştuğu görülmektedir. Elde edilen sonuçlar literatür ile uyumludur (Abharya vd. 2021, Ahamed vd. 2022).



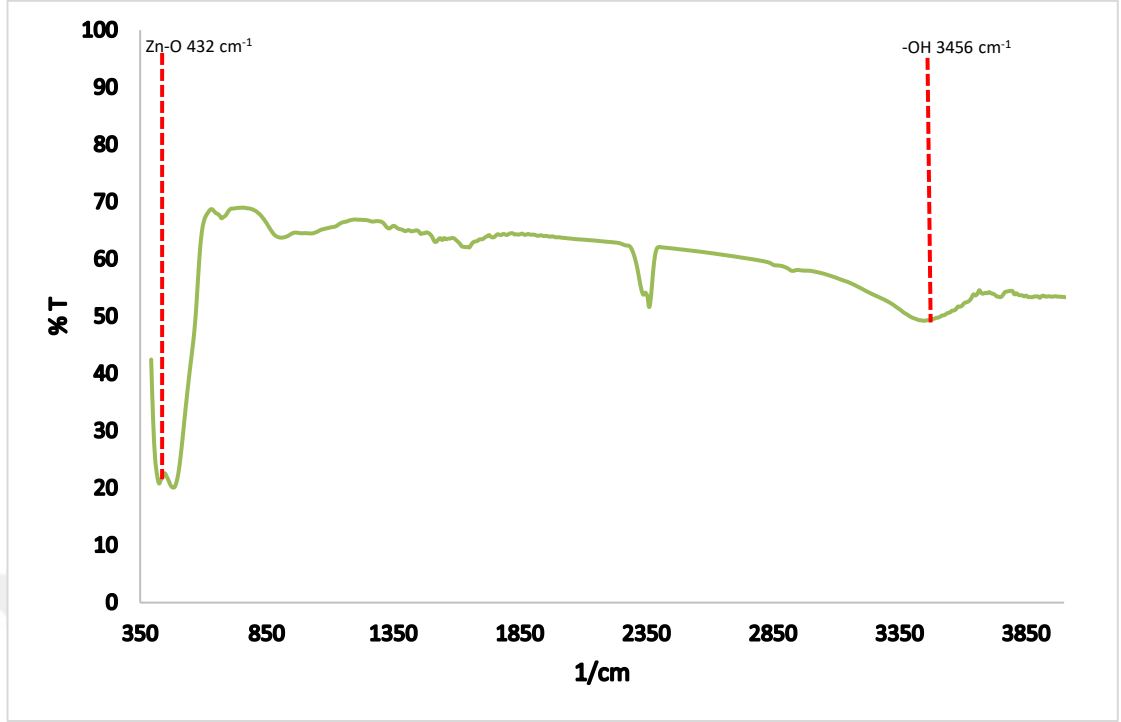
Şekil 4.4 95°C ' de NaOH ile elde edilen ZnO nanotaneçiklerinin SEM görüntüleri

Şekil 4.5 ve 4.6’da görüldüğü üzere, 95 °C’ de aynı sentez yöntemi kullanılan fakat indirgeyici ajan olarak NH_3 kullanılarak elde edilen ZnO nanotanecikleri UV-Vis ve FTIR ile analiz edilmiştir. UV-Vis analizine göre indirgeyici ajanın değiştirilmesi ile oluşan pikte 352 nm’ den 358 nm’ ye bir kayma olduğu görülmektedir. Bu kayma elde edilen ZnO nanotaneciklerinin partikül boyutunda bir büyüme ya da aglomerasyon meydana geldiği şeklinde yorumlanabilir.



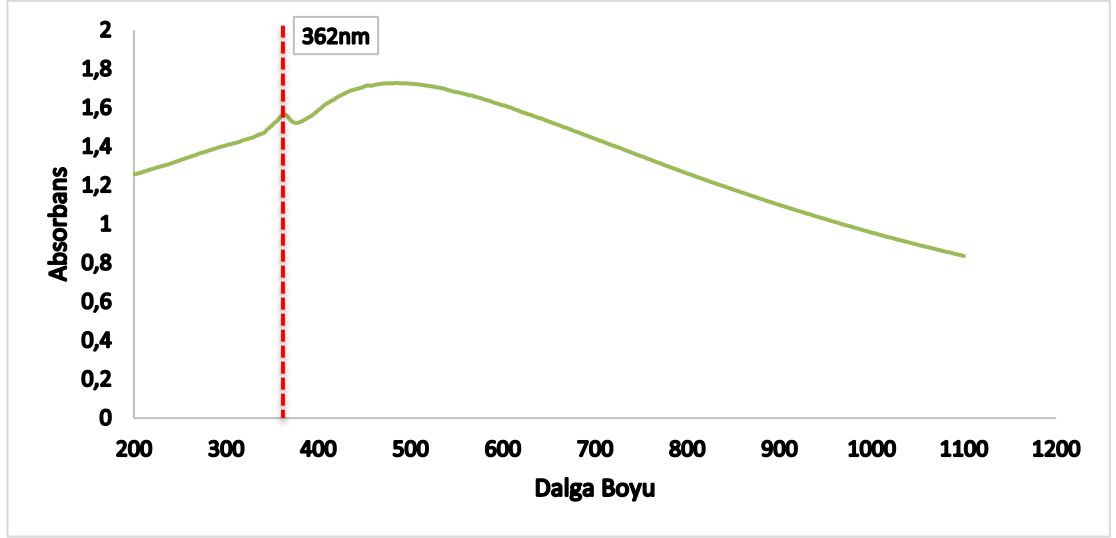
Şekil 4.5 95 °C’ de NH_3 ile elde edilen ZnO nanotaneciklerinin UV-Vis pikleri

Elde edilen FTIR bulgularına göre ise; şekil 4.2 ve 4.6 karşılaştırıldığında, indirgeyici ajanın değişmesi Zn-O bağına ait olan pikin 424 cm^{-1} ’ den 432 cm^{-1} ’ e kaymasına neden olmuştur. Mevcut diğer titreşimler Şekil 4.2’ ile uyumludur.



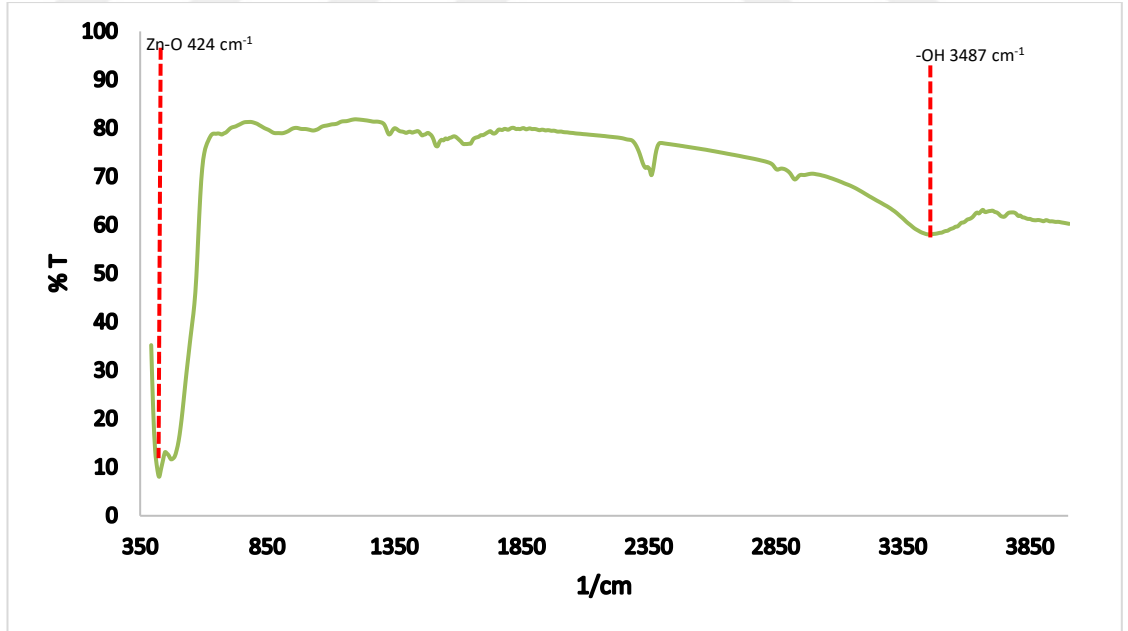
Şekil 4.6 95 °C’ de NH₃ ile elde edilen ZnO nanotaniciklerinin FTIR pikleri

Şekil 4.7 ve 4.8’ de UV-Vis ve FTIR analizlerine yer verilen ZnO nanotaniciklerinin elde edilmesinde, indirgeyici ajan olarak NH₃ kullanılmış fakat işlemler 80 °C’ de gerçekleştirilmiştir. Şekil 4.5 ile 4.7 karşılaştırıldığında sentez sıcaklığındaki değişim, ZnO nanotaniciklerinin UV-Vis pikinin 358 nm’ den 362 nm’ ye kaymasına neden olmuştur. Daha düşük sıcaklıkta gerçekleştirilen bu sentezin oluşan ZnO nanotaniciklerinin boyutunda bir miktar büyümeye ya da aglomerasyona sebep olduğu şeklinde yorumlanabilir.



Şekil 4.7 80 °C’ de NH_3 ile elde edilen ZnO nanotaneceklerinin UV-Vis pikleri

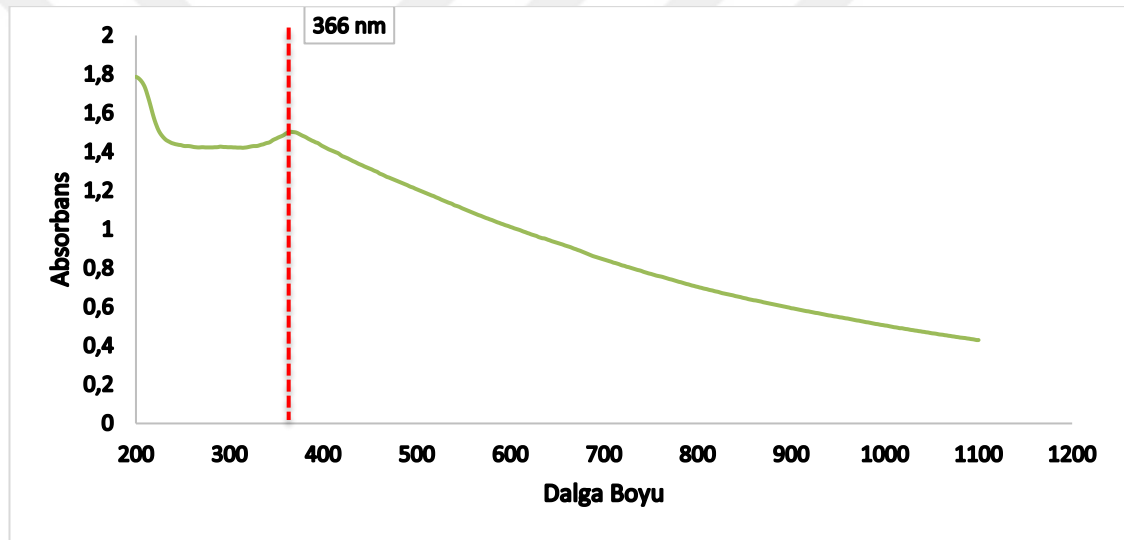
Şekil 4.8’ deki FTIR piklerinde görüldüğü üzere NH_3 kullanılarak farklı sıcaklıklarda gerçekleştirilen ZnO nanotaneceklerinin sentez sonuçlarında Zn-O bağına ait pikin 432 cm^{-1} ’ den 424 cm^{-1} ’ e doğru bir kayma olduğu görülmüştür. Bu sonuçlar Şekil 4.2’ de verilmiş olan FTIR analizi ile uyum göstermektedir.



Şekil 4.8 80 °C’ de NH_3 ile elde edilen ZnO nanotaneceklerinin FTIR pikleri

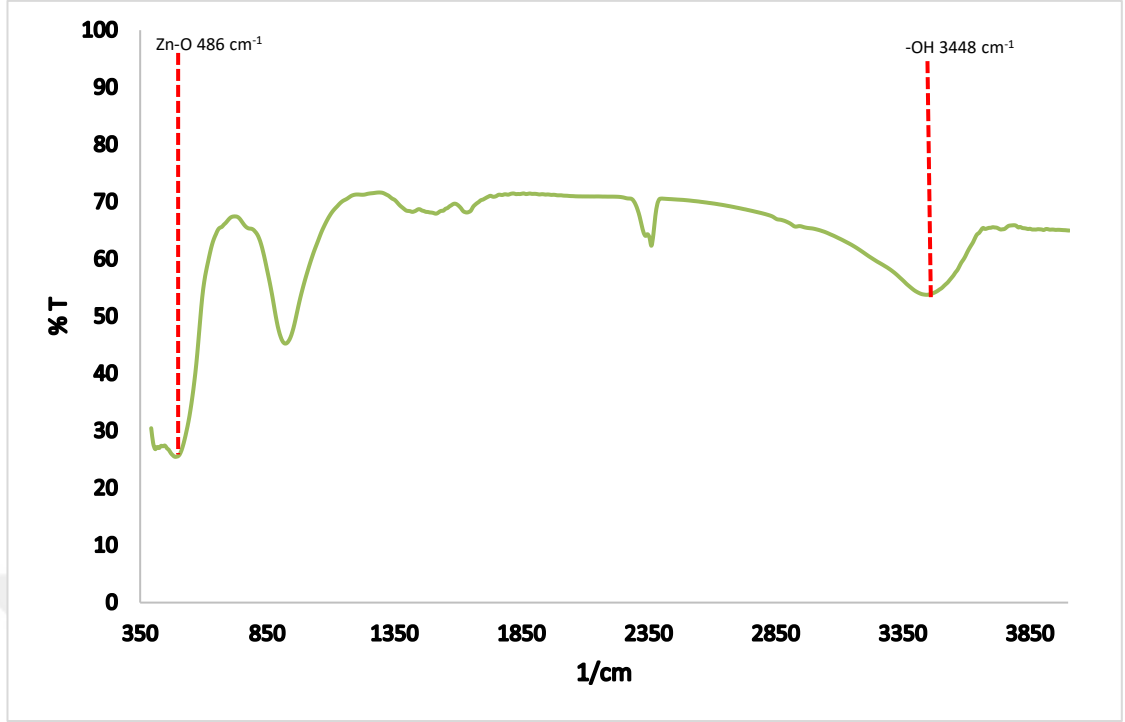
Uygun sıcaklığın 80 °C olarak ve indirgeyici ajanın NaOH olarak belirlenmesinin ardından, ortamda meydana gelebilecek aglomerasyonun engellenmesi için ortama 450

mg PVP eklenerek elde edilmiş olan ZnO nanotaneçiklerinin UV-Vis ve FTIR analizleri şekil 4.9 ve 4.10’ da verilmiştir. Şekil 4.11 ve 4.12’ de ise sentez ortamına PVP miktarı iki katına çıkarılıp 900 mg eklenerek elde edilen ZnO nanotaneçiklerinin UV-Vis ve FTIR analizleri görölmektedir. Şekil 4.9 ve 4.11 UV-Vis analiz ve şekil 4.10 ve 4.12 FTIR analiz sonuçlarına göre ortama eklenen PVP ve eklenen PVP miktarının artışına göre ZnO’ in karakteristik piklerinde kaymaların olduđu görölmektedir. Bu kaymalar sentez sıcaklığının 80 °C olarak belirlenmesi sonucu aglomerasyon meydana geldiđi veya partiköl boyutunda bir artışa sebep olduđu şeklinde yorumlanabilirken, ortama eklenen PVP’ nin bu sentez koşullarında bu durumun önüne geçemediđi ancak PVP miktarının 2 katına çıkarılması kısmen iyileştirdiđi şeklinde yorumlanmıştır.

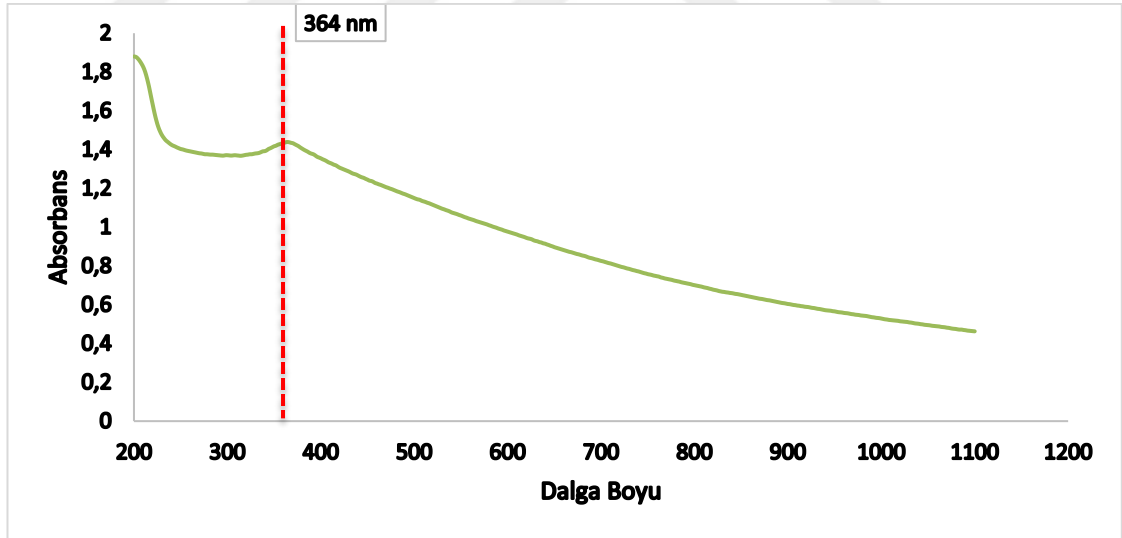


Şekil 4.9 80 °C’ de NaOH ile 450 mg PVP kullanılarak elde edilen ZnO nanotaneçiklerinin UV-Vis pikleri

Şekil 4.10’ da göröldüğü üzere, spektrumda 486 cm^{-1} Zn-O bađına ait karakteristik pik, 3448 cm^{-1} ’ de -OH gerilme titreşimlerine ait pik literatür ile uyumlu olarak belirlenmiştir (Shamhari vd. 2018, Lei vd. 2020, Abharya vd. 2021).

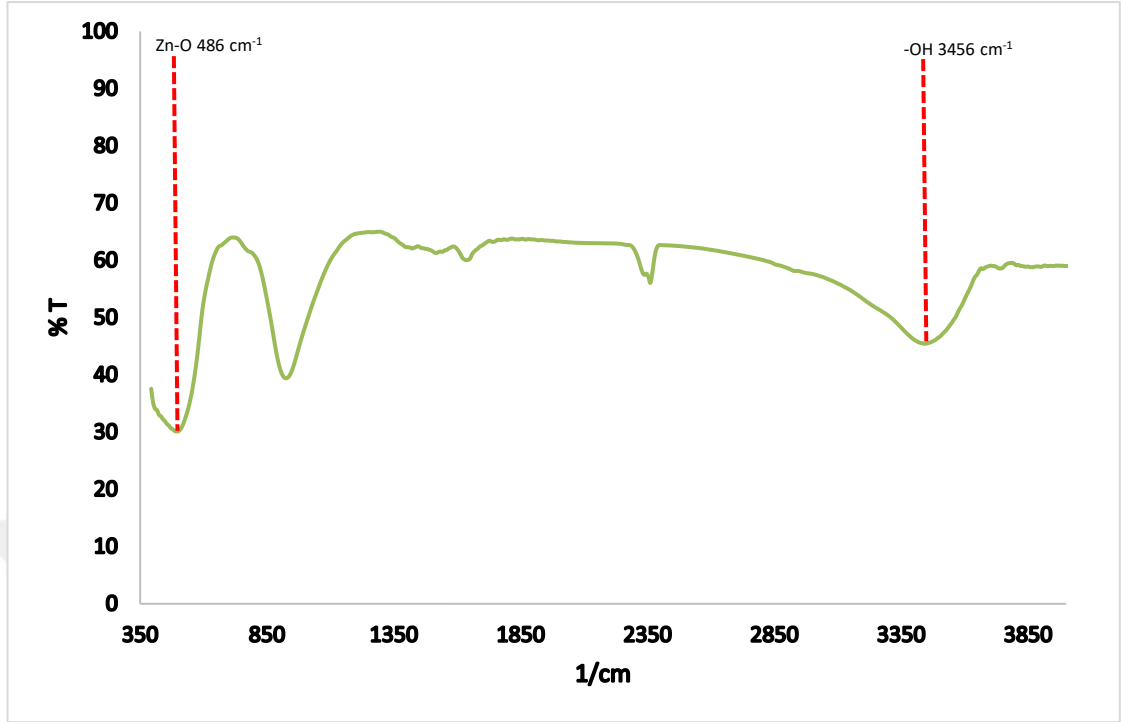


Şekil 4.10 80 °C’ de NaOH ile 450 mg PVP kullanılarak elde edilen ZnO nanotaneceklerinin FTIR pikleri



Şekil 4.11 80 °C’ de NaOH ile 900 mg PVP kullanılarak elde edilen ZnO nanotaneceklerinin UV-Vis pikleri

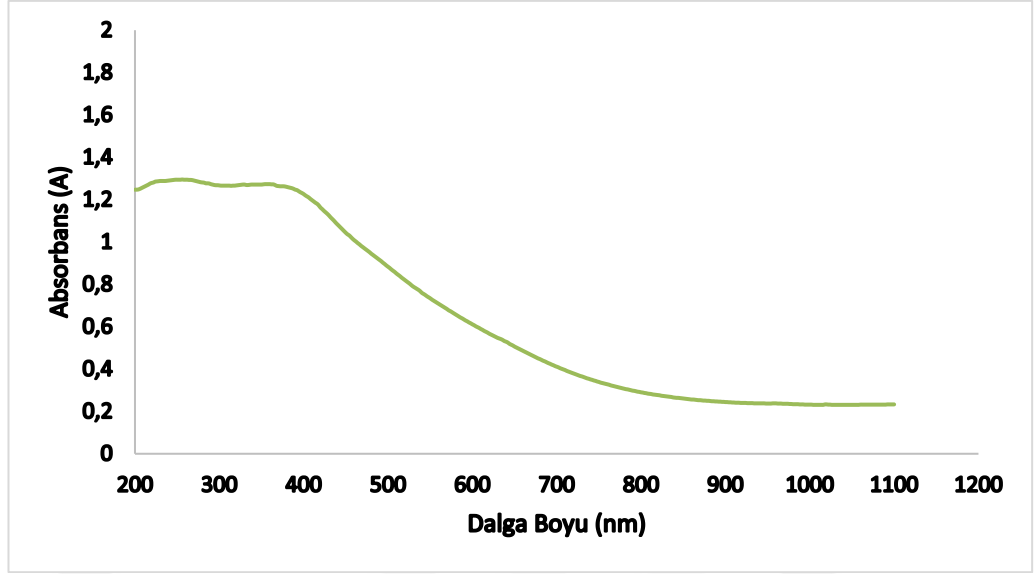
Şekil 4.10’ da elde edilen FTIR verilerinin Şekil 4.12 ile uyum sağladığı görülmektedir. 486 cm^{-1} Zn-O bağına ait karakteristik pik, 3448 cm^{-1} ’ de -OH gerilme titreşimlerine ait pik literatür ile uyumlu olarak belirlenmiştir (Shamhari vd. 2018, Lei vd. 2020, Abharya vd. 2021).



Şekil 4.12 80 °C’ de NaOH ile 900 mg PVP kullanılarak elde edilen ZnO nanotaneceklerinin FTIR pikleri

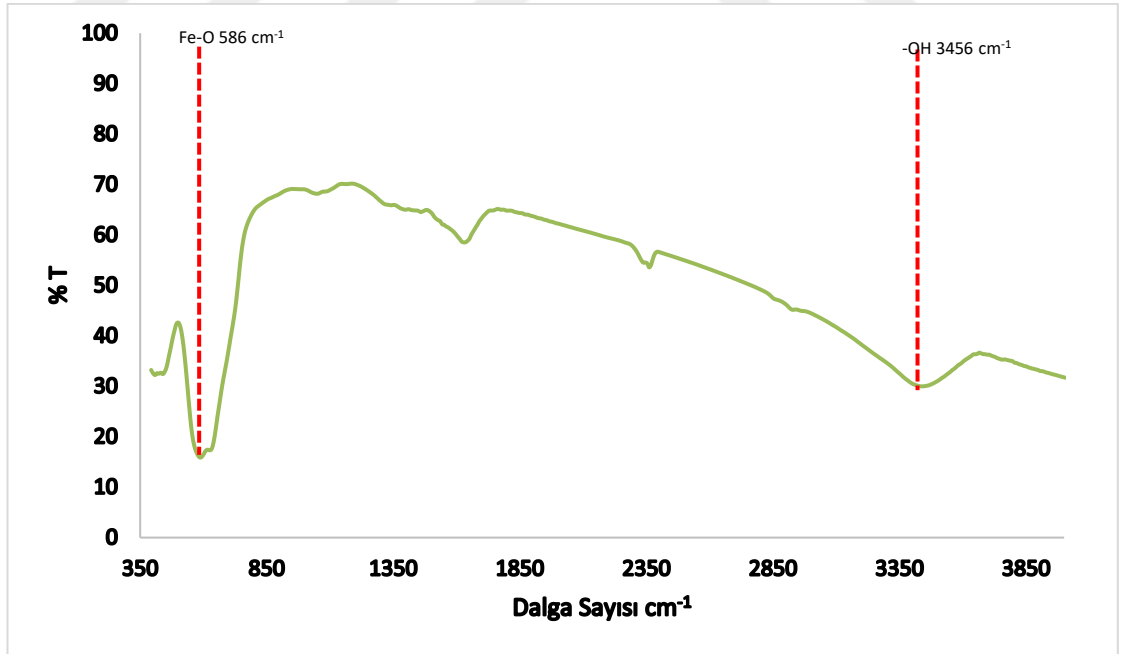
4.1.2 Fe₃O₄ nanotaneceklerinin karakterizasyonu

Şekil 4.13’ de UV-Vis spektrumu verilen Fe₃O₄ nanotanecekleri Fe(NO₃)₃ tuzunun etilen glikol ile solvotermal yöntemle 8 saatte indirgenmesiyle elde edilmiştir. Fe₃O₄ nanopartikülleri 200 - 800 nm dalga boyu aralığında görünür ışığı absorbe etmektedir ve elde edilen bulgular literatür ile uyumludur (Çıplak 2020).



Şekil 4.13 Fe₃O₄ nanopartiküllerinin UV-Vis spektrumu

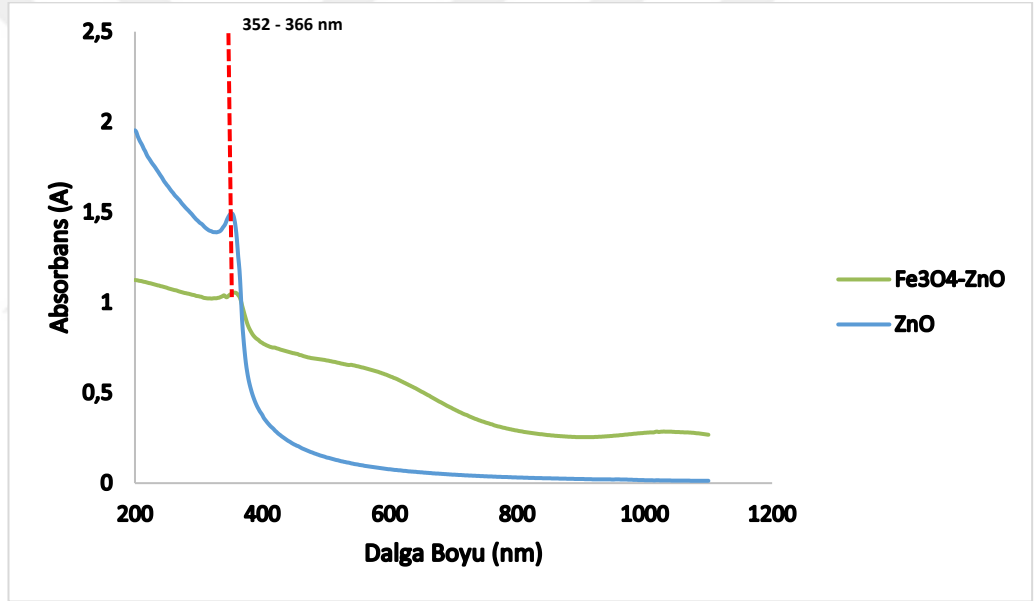
Şekil 4.14’ de sentezlenen Fe₃O₄ nanotaneceklerinin FTIR spektrumu görülmektedir. 586 cm⁻¹’ de Fe-O bağına ait karakteristik pik ve 3456 cm⁻¹’ de -OH gerilme titreşimlerine ait pik gözlemlenmiştir (Lei vd. 2020, Abharya vd. 2021).



Şekil 4.14 Fe₃O₄ nanopartiküllerinin FTIR spektrumu

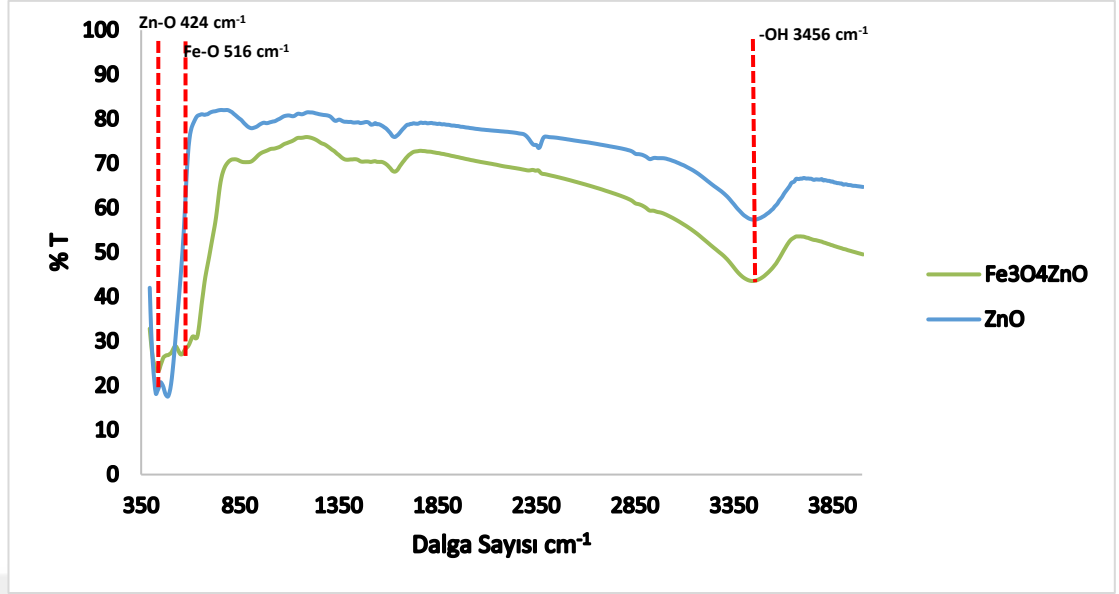
4.1.3 Fe₃O₄ - ZnO nanoyapılarının karakterizasyonu

Şekil 4.15’ de ZnO ve Fe₃O₄ - ZnO nanoyapılarının UV- Vis spektrumları verilmiştir. Fe₃O₄ - ZnO nanotanecikleri, Zn(CH₃COO)₂·2H₂O tuzunun atmosferik ortamda NaOH ile önceden solvotermal yöntem ile sentezlenen Fe₃O₄ metal oksit nanotaneciklerinin üzerine indirgenmesi yoluyla elde edilmişlerdir. Fe₃O₄ - ZnO nanopartiküllerinin UV-Vis ölçümü ölçümü ile ZnO’ e ait olan 352 nm’ deki pik kompozitli yapıda 366 nm’ ye doğru bir kayma göstermiştir. Bunun nedeni olarak yapıya katılan manyetik metal oksit ile ZnO’ in etkileşiminin neden olduğu düşünülmektedir. Bulgular literatür ile uyumludur (Lei vd. 2020, Elshypany vd. 2021).



Şekil 4.15 Fe₃O₄ - ZnO nanoyapılarının UV-Vis spektrumu

Şekil 4.16’ da saf ZnO ve Fe₃O₄ - ZnO nanopartiküllerinin FTIR spektrumları verilmiş ve bulguların literatür ile uyumlu olduğu görülmüştür. 424 cm⁻¹’de Zn-O bağına, 516 cm⁻¹’ de Fe-O bağına ait pikler gözlenmiştir. 3456 cm⁻¹’ de -OH gerilme titreşimi görülmektedir (Lei vd. 2020, Abharya vd. 2021).



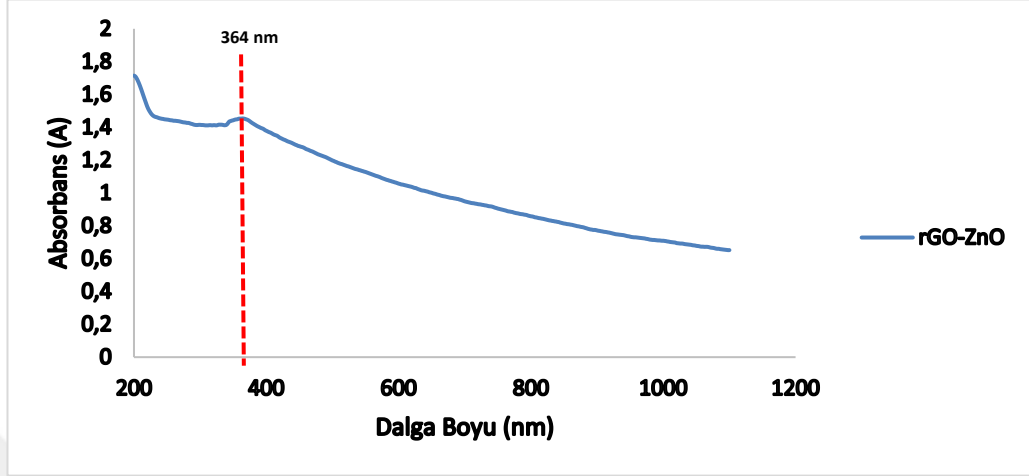
Şekil 4.16 Fe₃O₄ - ZnO nanopartiküllerinin FTIR spektrumu

4.1.4 rGO - ZnO nanokompozitlerinin karakterizasyonu

rGO - ZnO nanokompoziti Zn(CH₃COO)₂·2H₂O tuzunun atmosferik ortamda NaOH ile rGO nanoyapılarının üzerine indirgenmesi yoluyla 1 saatlik sentez işlemi sonucunda elde edilmişlerdir. Bu sentez koşulları farklı Zn(CH₃COO)₂·2H₂O tuz, GO miktarları, sıcaklıklar ve ortama eklenen PVP miktarları ile tekrarlanmıştır.

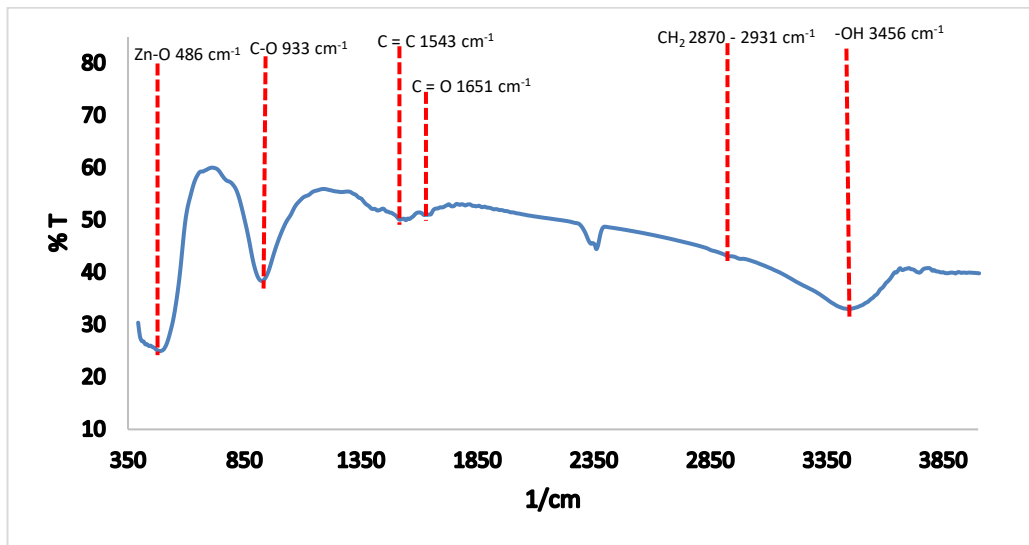
Şekil 4.17 ve Şekil 4.18’ de sırasıyla elde edilen rGO - ZnO nanokompozitinin UV-Vis ve FTIR spektrumları verilmiştir. Sentezlenen rGO-ZnO nanokompoziti 90 ml DI içerisinde 1 saat boyunca 20 µL NH₃ eklenerek sonikasyon ile dağıtılmış olan 60 mg GO üzerine 450 mg PVP ilave edilerek hazırlanmış olan karışımın içerisine 200 mg Zn(CH₃COO)₂·2H₂O tuzunun eklenmesi ile edilmiştir. İndirgeme işlemi 80°C’ de gerçekleştirilmiştir. Bulgular literatür ile uyumludur. Saf ZnO nanotaneceklerinin UV-Vis ölçümü sonucunda ZnO ya atfedilebilecek olan 352 nm’ deki pik kompozitli yapıda 364 nm’ ye doğru bir kayma göstermiştir. Buna sebep olarak yapıya katılan rGO’ nun neden olduğu düşünülmektedir. Görünür bölgede rGO-ZnO nanokompozitinin absorptans değerlerinin saf ZnO ile karşılaştırıldığında önemli ölçüde artış gösterdiği saptanmıştır. Yapıya dahil edilen grafen nanotabakalarının ZnO nanotanecekleri ile arasındaki sinerjik

etki nedeniyle 200 - 800 nm aralığında görünür ışığı güçlü şekilde absorplama yeteneği belirlenmiştir (Lei vd. 2020, Dutta vd. 2022).



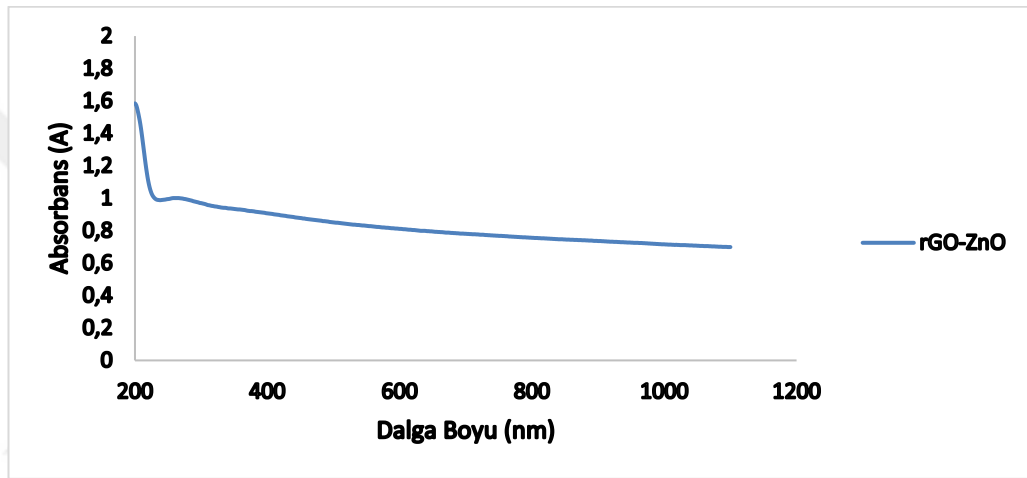
Şekil 4.17 200 mg $\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ tuzu, 60 mg GO, 80°C ve 450 mg PVP varlığında sentezlenen rGO - ZnO nanokompozitinin UV-Vis spektrumu

Şekil 4.18’ de verilen spektrumda Zn-O bağına ait pik 486 cm^{-1} ’de görülmektedir. Ayrıca, -OH gerilme titreşimi (3456 cm^{-1}), CH_2 gerilme titreşimleri (2870 cm^{-1} ve 2931 cm^{-1}), karbonil grubu $\text{C}=\text{O}$ zincir titreşimi (1651 cm^{-1}), $\text{C}=\text{C}$ zincir titreşimi (1543 cm^{-1}) ve $\text{C}-\text{O}$ epoksi grubu gerilme titreşimi (933 cm^{-1}) görülmektedir (Çıplak 2020, Lei vd. 2020, Abharya vd. 2021, Zarrabi vd. 2022).



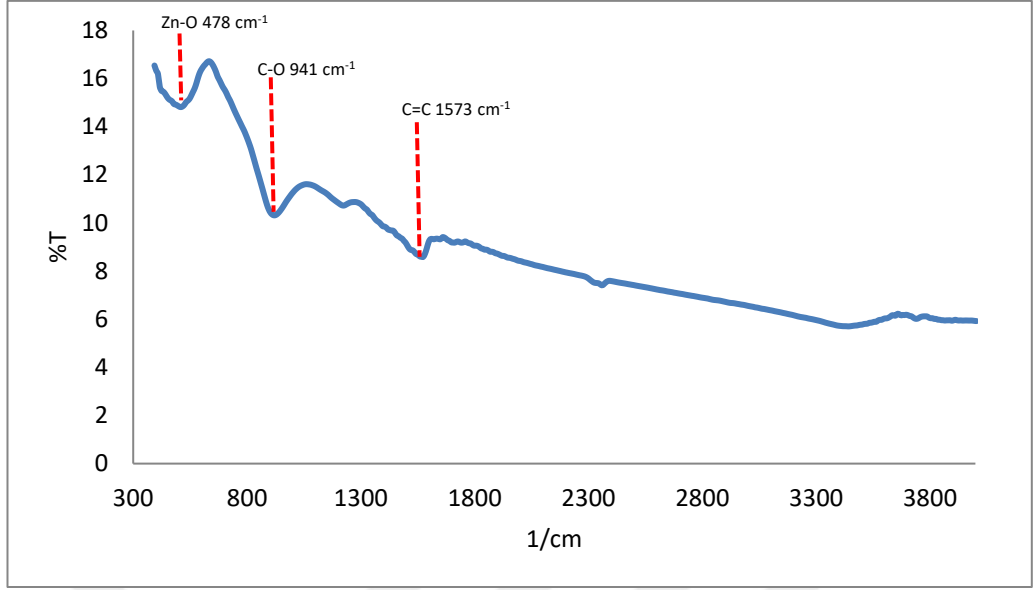
Şekil 4.18 200 mg $\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ tuzu, 60 mg GO, 80°C ve 450 mg PVP varlığında sentezlenen rGO - ZnO nanokompozitinin FTIR spektrumu

Aynı sentez işlemleri 50 ml DI içerisinde 1 saat boyunca 15 μL NH_3 eklenerek sonikasyon ile dağıtılmış olan 25 mg GO üzerine 100 mg $\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ tuzunun eklenmesi ile tekrarlanmıştır. İndirgeme işlemi 80°C ' de gerçekleştirilmiştir. Elde edilen nanoyapıların karakterizasyonu Şekil 4.19 ve Şekil 4.20' de görüldüğü gibi sırasıyla UV-Vis ve FTIR analizleri ile gerçekleştirilmiştir. 266 nm'de C – C bağlarının $\pi \rightarrow \pi^*$ geçişine ait pik görülmektedir. Elde edilen rGO-ZnO nanoyapılarının UV-Vis spektrumunda ZnO nanotaneceklerine ait karakteristik pikler gözlenmemiştir. ZnO nanoyapılarının varlığı FTIR analizi ile tespit edilmiştir.



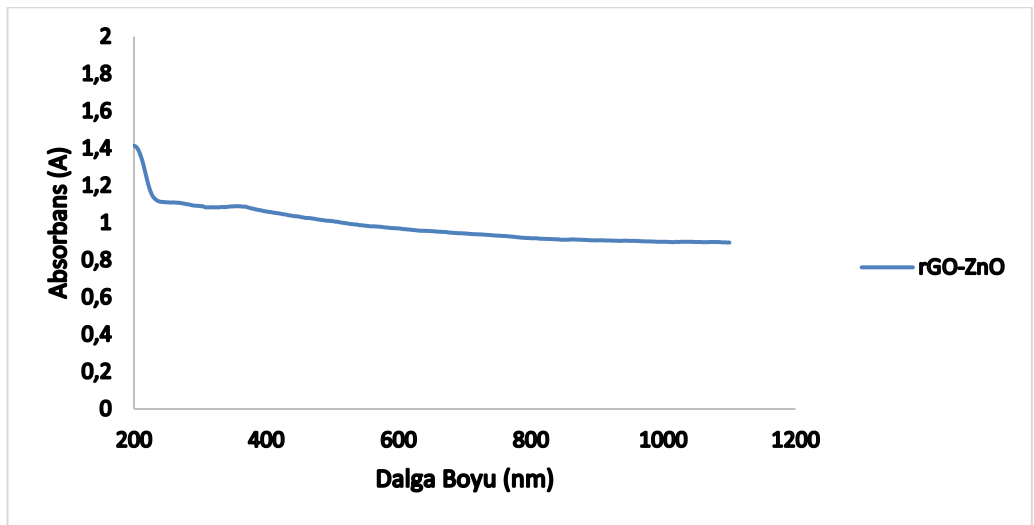
Şekil 4.19 100 mg $\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ tuzu, 25 mg GO, 80°C ' de sentezlenen rGO - ZnO nanokompozitinin UV-Vis spektrumu

Şekil 4.20' de görüldüğü üzere, spektrumda 478 cm^{-1} Zn – O bağına ait karakteristik pik görülmektedir. Ayrıca, C = C zincir titreşimi (1573 cm^{-1}), C - O epoksi grubu gerilme titreşimi (941 cm^{-1}) görülmektedir (Çıplak 2020, Lei vd. 2020, Abharya vd. 2021, Zarrabi vd. 2022).



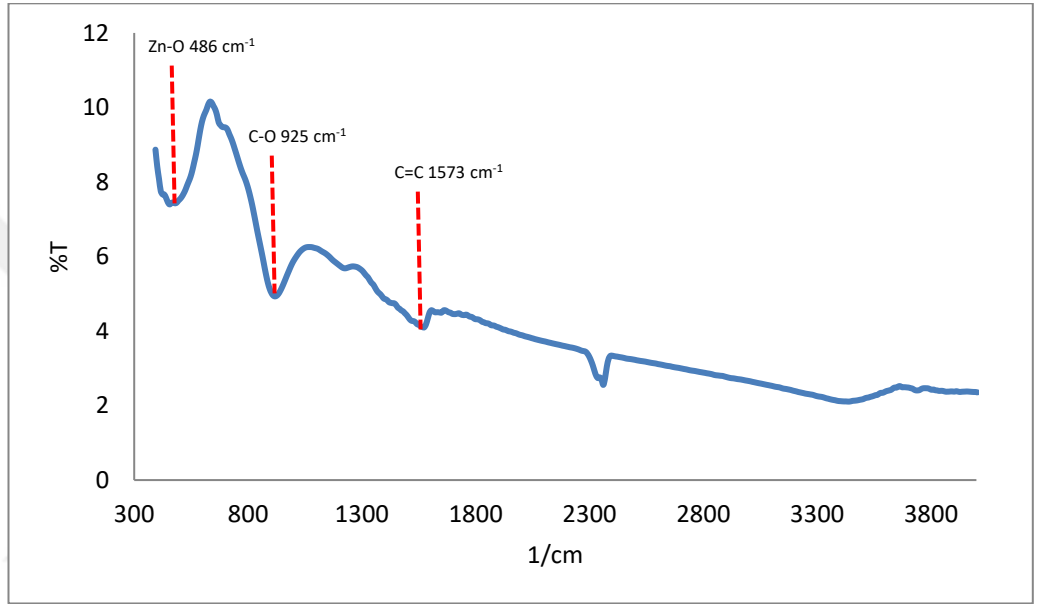
Şekil 4.20 100 mg $\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ tuzu, 25 mg GO, 80°C’ de sentezlenen rGO - ZnO nanokompozitinin FTIR spektrumu

100 mg $\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ tuzunun, 50 ml DI içerisinde dağıtılmış 25 mg GO üzerine 88°C’ de 250 mg PVP varlığında eklenmesi ile elde edilen rGO-ZnO nanokompozitine ait UV-Vis ve FTIR spektrumları Şekil 4.21 ve Şekil 4.22’ de görülmektedir. Elde edilen kompozit içerisindeki ZnO nanotanicikleri kompozit içerisinde UV-Vis analizi ile tespit edilememiştir. Ancak Şekil 4.22’ deki FTIR analizinde ZnO nanotaniciklerinin varlığı belirlenmiş olup literatür ile desteklenmiştir.



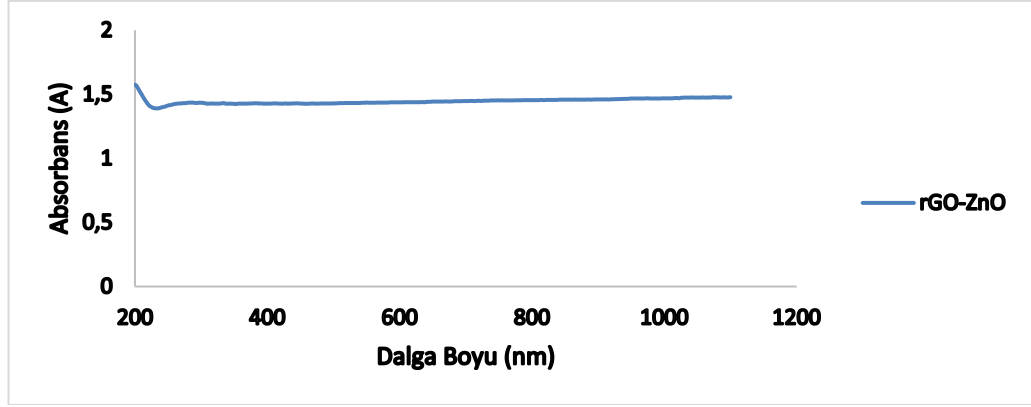
Şekil 4.21 100 mg $\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ tuzu, 25 mg GO, 88°C’ de, 250 mg PVP varlığında sentezlenen rGO - ZnO nanokompozitinin UV-Vis spektrumu

Şekil 4.22’ de verilen FTIR spektrumuna göre elde edilen ZnO (Şekil 4.2) ve rGO - ZnO nanoyapıları için Zn – O bağına ait pikler karşılaştırıldıklarında birbirleri ile uyumlu olduğu görülmektedir. Bulgular literatür ile uyumludur ve Zn – O bağına ait pik 486 cm^{-1} ’de, C = C zincir titreşimi 1573 cm^{-1} ’ de, C - O epoksi grubu gerilme titreşimi 925 cm^{-1} ’ de görülmektedir (Çıplak 2020, Lei vd. 2020, Abharya vd. 2021, Zarrabi vd. 2022).



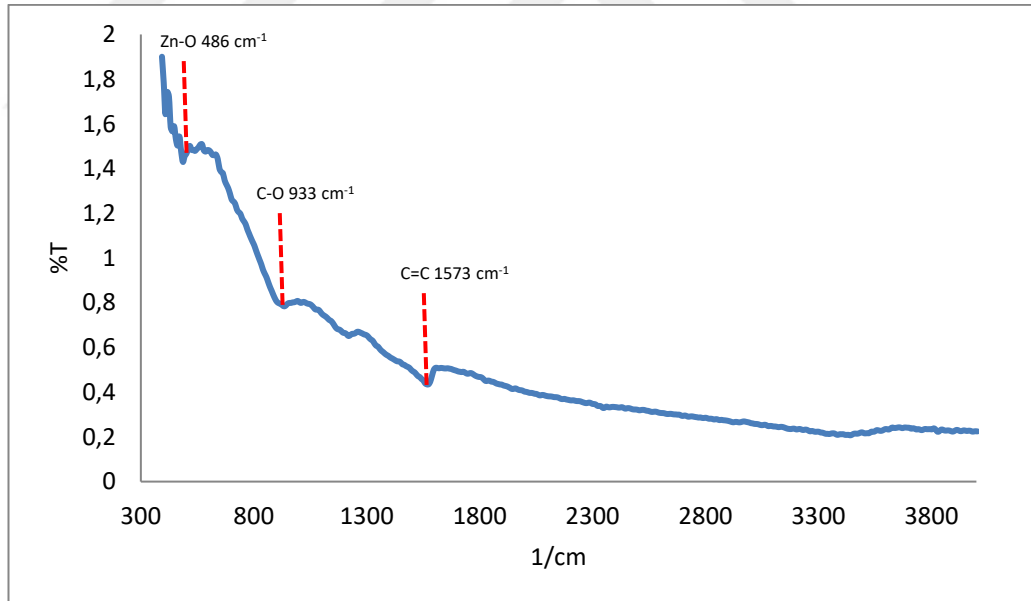
Şekil 4.22 100 mg $\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ tuzu, 25 mg GO, 88°C ’ de, 250 mg PVP varlığında sentezlenen rGO - ZnO nanokompozitinin FTIR spektrumu

50 mg $\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ tuzunun, 60 ml DI içerisinde dağıtılmış 50 mg GO üzerine 90°C ’ de 250 mg PVP varlığında eklenmesi ile elde edilen rGO-ZnO nanokompozitene ait Uv-Vis ve FTIR spektrumları Şekil 4.23 ve Şekil 4.24’ de görülmektedir. Elde edilen rGO-ZnO nanoyapılarının UV-Vis spektrumunda 270 nm ’ de C – C bağlarının $\pi \rightarrow \pi^*$ geçişine ait pik görülmektedir.



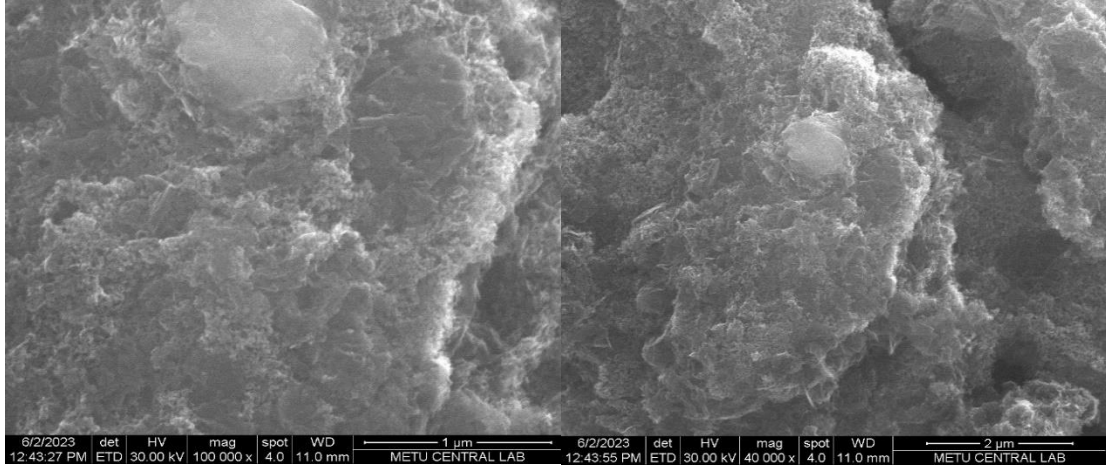
Şekil 4.23 50 mg $\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ tuzu, 50 mg GO, 90°C ' de, 250 mg PVP varlığında sentezlenen rGO - ZnO nanokompozitinin UV-Vis spektrumu

Şekil 4.24' de verilen FTIR spektrumunda, elde edilen rGO – ZnO nanokompozitinde literatür ile uyumlu olarak Zn – O bağına ait pik 486 cm^{-1} 'de, C = C zincir titreşimine ait pik 1573 cm^{-1} ' de, C – O epoksi grubu gerilme titreşimine ait pik ise 933 cm^{-1} ' de görülmektedir (Çıplak 2020, Lei vd. 2020, Abharya vd. 2021, Zarrabi vd. 2022).



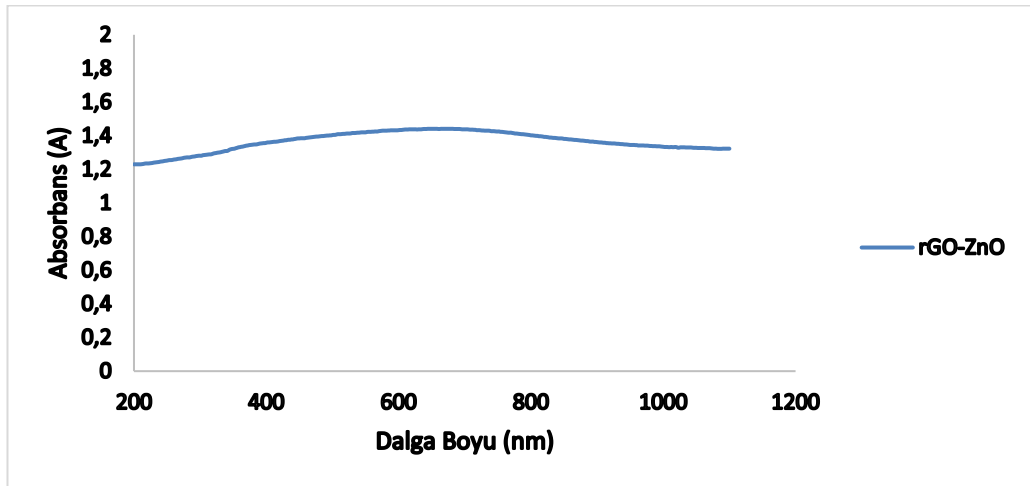
Şekil 4.24 50 mg $\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ tuzu, 50 mg GO, 90°C ' de, 250 mg PVP varlığında sentezlenen rGO - ZnO nanokompozitinin FTIR spektrumu

Şekil 4.25' de verilen SEM görüntülerinde rGO tabakalarının yüzeylerinin ZnO nanotaneçikleri ile kaplandığı görülebilmektedir. Elde edilen bulgular literatür ile uyum sağlamaktadır (Abharya vd. 2021, Ahamed vd. 2022).



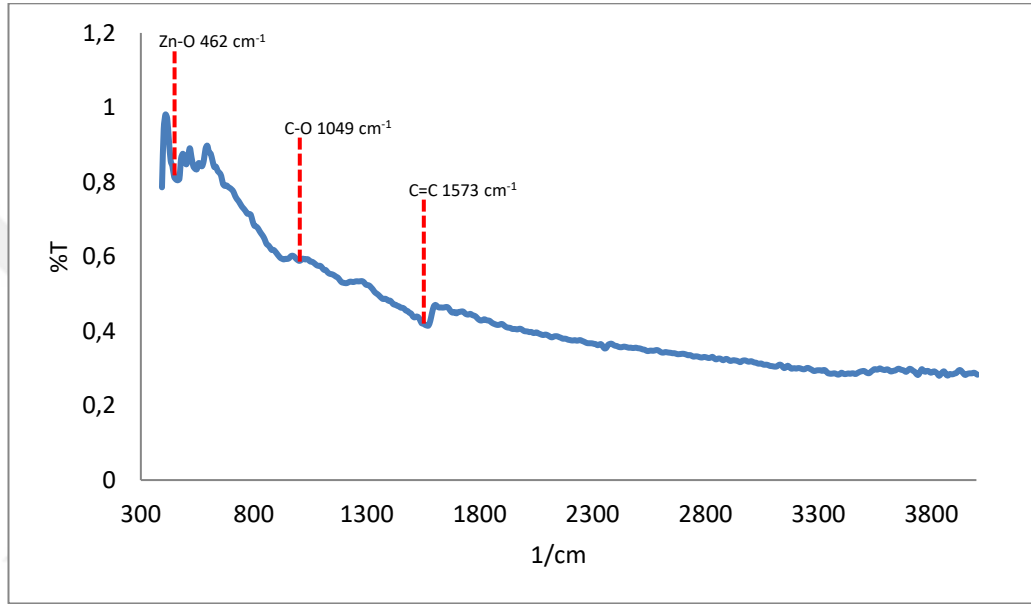
Şekil 4.25 50 mg $\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ tuzu, 50 mg GO, 90°C’ de, 250 mg PVP varlığında sentezlenen rGO - ZnO nanokompozitinin SEM görüntüleri

25 mg $\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ tuzunun, 60 ml DI içerisinde dağıtılmış 50 mg GO üzerine 92°C’ de 250 mg PVP varlığında eklenmesi ile elde edilen rGO-ZnO nanokompozitine ait Uv-Vis ve FTIR spektrumları Şekil 4.26 ve Şekil 4.27’ de görülmektedir. Elde edilen nanokompozit içerisindeki ZnO nanotanecekleri bileşime eklenen $\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ tuzunun azalmasıyla Şekil 4.26’ da verilen UV-Vis analiz sonucunda ZnO nanotaneceklerinin karakteristik piki görülememiştir.



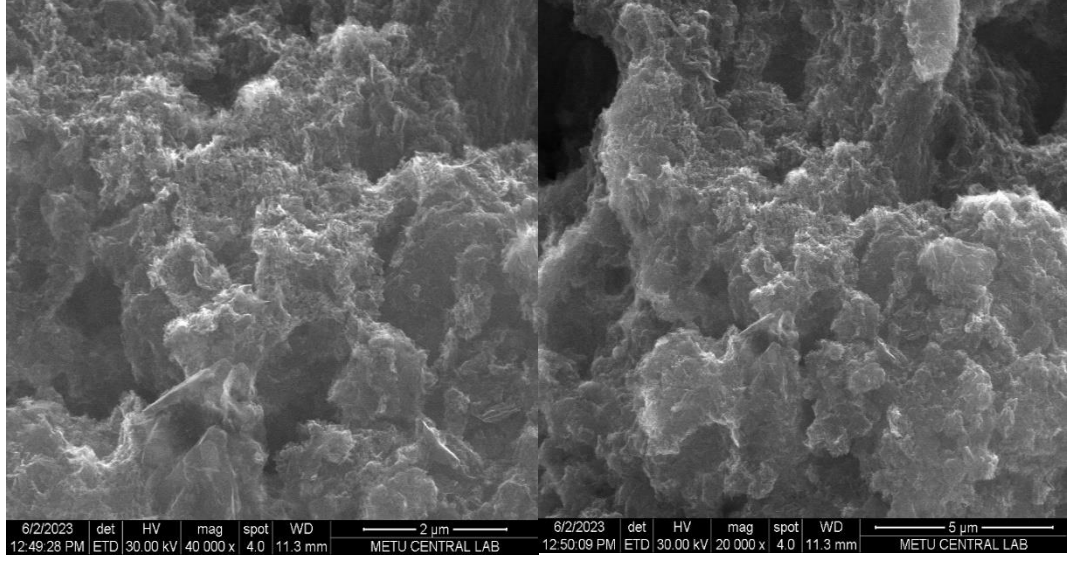
Şekil 4.26 25 mg $\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ tuzu, 50 mg GO, 92°C’ de, 250 mg PVP varlığında sentezlenen rGO - ZnO nanokompozitinin UV-Vis spektrumu

Şekil 4.27’ de rGO – ZnO nanoyapısı için verilen FTIR spektrumu ve ZnO için Şekil 4.2’ de verilen FTIR spektrumu karşılaştırıldıklarında Zn – O bağına ait piklerin birbirleri ile uyumlu olduğu görülmektedir. Bulgular literatür ile uyumludur ve Zn – O bağına ait pik 462 cm^{-1} ’de, C = C zincir titreşimi 1573 cm^{-1} ’ de, C - O epoksi grubu gerilme titreşimi 1049 cm^{-1} ’ de görülmektedir (Çıplak 2020, Lei vd. 2020, Abharya vd. 2021, Zarrabi vd. 2022).



Şekil 4.27 25 mg $\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ tuzu, 50 mg GO, 92°C ’ de, 250 mg PVP varlığında sentezlenen rGO - ZnO nanokompozitinin FTIR spektrumu

Şekil 4.28’ de SEM görüntülerine yer verilen rGO-ZnO nanokompozitinin başarılı şekilde sentezlendiği görülmektedir. Fakat Şekil 4.25’ deki SEM görüntülerindeki rGO-ZnO nanokompoziti ile karşılaştırıldığında nanokompozitin sentezinde kullanılan $\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ tuzunun miktarının 50 mg’ dan 25 mg’ a düşürülmesinin farkı tam olarak anlaşılamamaktadır. Bunun nedeni gerçekleştirilen SEM analizinin daha yüksek büyütmelerde gerçekleştirilmemiş olmasından kaynaklandığı düşünülmektedir (Abharya vd. 2021, Ahamed vd. 2022).

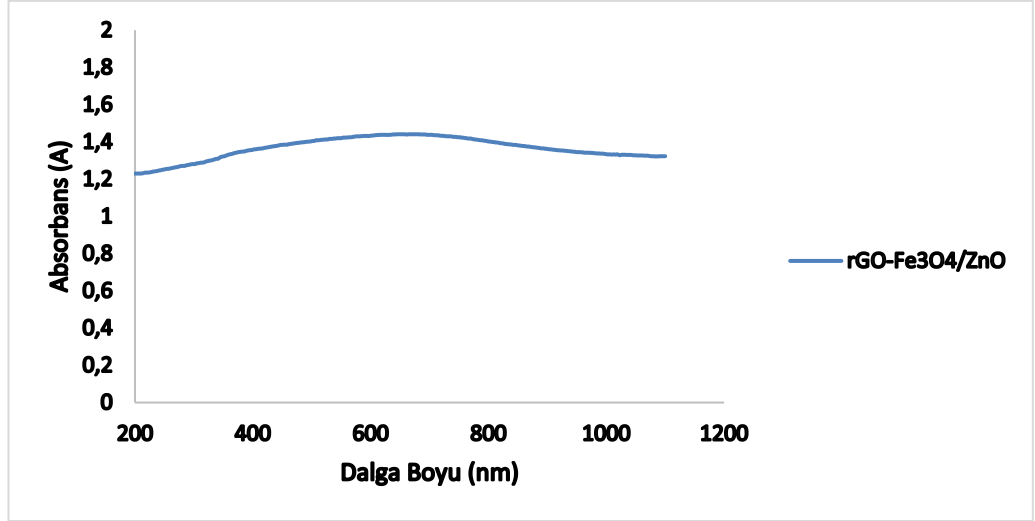


Şekil 4.28 25 mg $\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ tuzu, 50 mg GO, 92°C’ de, 250 mg PVP varlığında sentezlenen rGO - ZnO nanokompozitinin SEM görüntüleri

4.1.5 rGO - Fe_3O_4 - ZnO nanokompozitlerinin karakterizasyonu

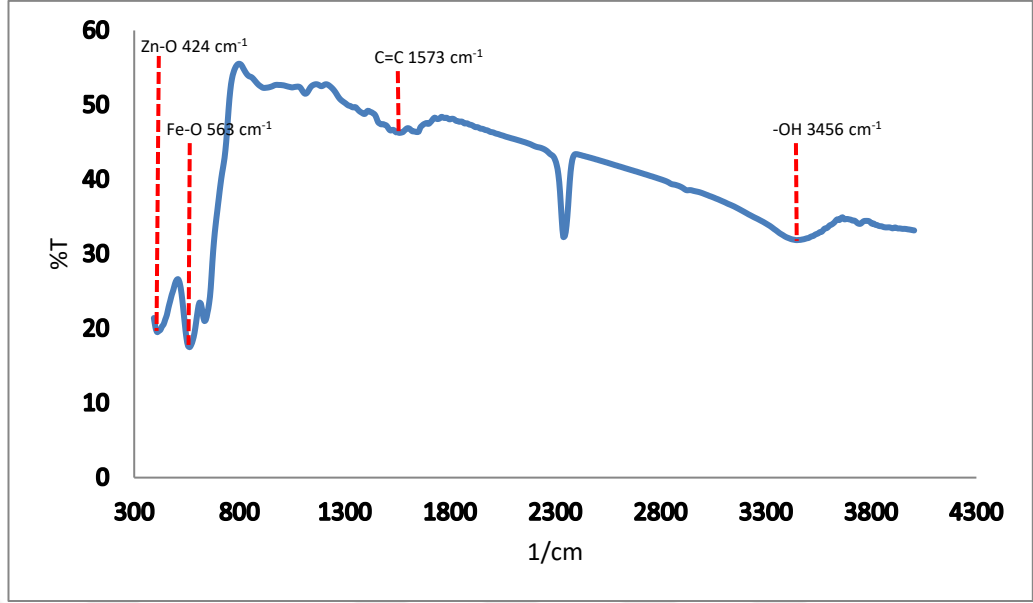
rGO - Fe_3O_4 - ZnO nanokompoziti etilen glikol ile solvotermal bir yöntem ile sentezlenen 50 mg rGO - Fe_3O_4 nanoyapısı üzerine farklı miktarlarda $\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ tuzunun atmosferik ortamda, 95°C’ de, 1 saatlik sentez süresi boyunca NaOH ile indirgenmesi yoluyla elde edilmiştir. Aynı yöntemle ortama PVP katılarak rGO - Fe_3O_4 - ZnO nanokompoziti elde edilmiş ve UV-Vis, FTIR analizleri gerçekleştirilmiştir.

Şekil 4.29 ve 4.30’ da sırasıyla UV-Vis ve FTIR spektrumu verilen rGO - $8\text{Fe}_3\text{O}_4$ - ZnO nanokompozitinin 200 ila 800 nm dalga boyunda geniş bir bant aralığında ışığı absorbe ettiği fakat Şekil 4.29’ da elde edilen UV-Vis spektrumunda nanokompozitin bileşiminde bulunan metal oksitlere ait karakteristik pikler görülmemektedir. Bu duruma yapıya katılan manyetik metal oksitin pikleri ile ZnO piklerinin benzer bölgelerde ışığı absorplaması nedeni ile ilgili olduğu düşünülmektedir (Lei vd. 2020, Elshypany vd. 2021).



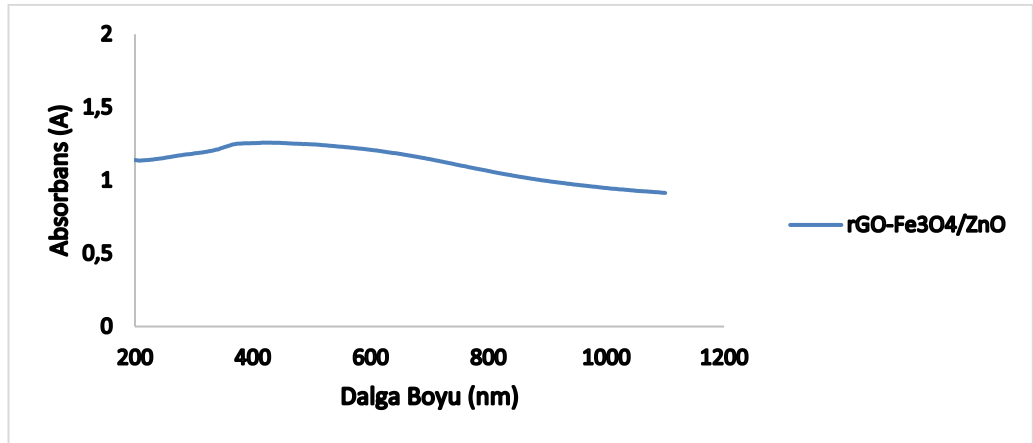
Şekil 4.29 rGO - 8Fe₃O₄ - ZnO (50 mg rGO - Fe₃O₄ ve 50 mg Zn(CH₃COO)₂·2H₂O tuzu) nanokompozitinin UV-Vis spektrumu

Şekil 4.30’ da rGO - 8Fe₃O₄ - ZnO nanoyapısı için verilen FTIR spektrumu ile ZnO (Şekil 4.2) ve ZnO - Fe₃O₄ (Şekil 4.16) nanoyapılarına ait spektrumlar karşılaştırıldığında Fe – O ve Zn – O bağlarına ait piklerin birbirleri ile uyumlu oldukları görülmektedir. Zn – O bağlarına ait piklerin 424 cm⁻¹’ de, Fe – O bağlarına ait piklerin ise 563 cm⁻¹’ de oluştuğu görülmektedir. Bu durum rGO nanotabakalarında Fe₃O₄ ve ZnO nanotaneceklerinin başarılı şekilde üretildiğini gösteren önemli bir bulgudur ve bu bulgular literatür ile uyumludur. Üç bileşenli kompozit yapısı için FTIR spektrumunda oluşan diğer piklerin, -OH gerilme zincir titreşimi için 3456 cm⁻¹’ de, C = C zincir titreşimi için 1573 cm⁻¹’ de olduğu belirlenmiştir (Çıplak 2020, Lei vd. 2020, Abharya vd. 2021).



Şekil 4.30 rGO - 8Fe₃O₄ - ZnO (50 mg rGO - Fe₃O₄ ve 50 mg Zn(CH₃COO)₂·2H₂O tuzu) nanokompozitinin FTIR spektrumu

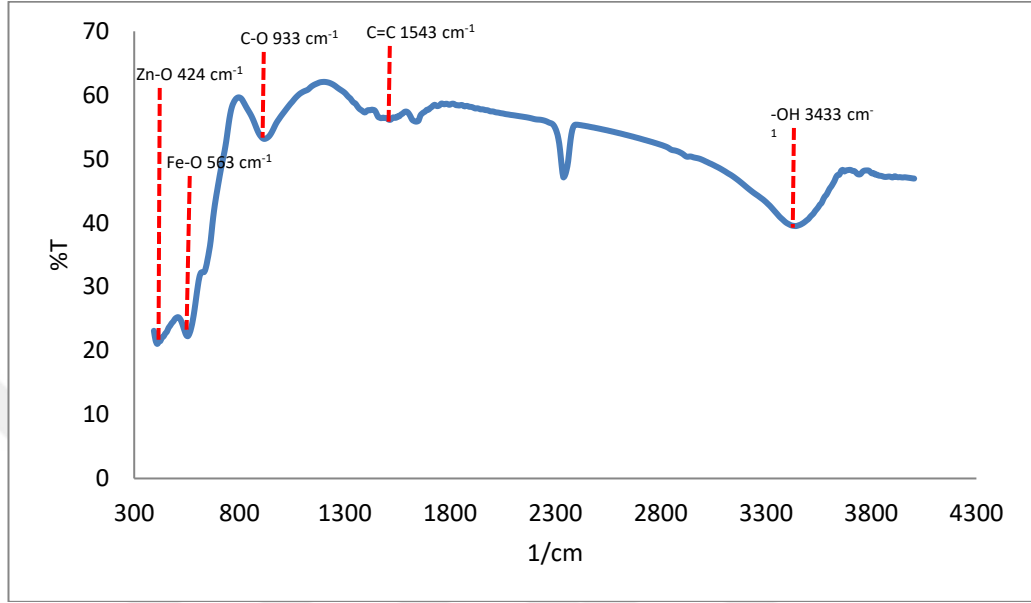
Şekil 4.31 ve 4.32’ de sırasıyla UV-Vis ve FTIR spektrumu verilen rGO - 8Fe₃O₄ - 2ZnO nanokompozitinin bileşiminde bulunan metal oksit nanotaneciklerine ait olabilecek karakteristik pik 200 ila 600 nm dalga boyu arasındaki geniş bir alanda görülmektedir (Lei vd. 2020, Elshypany vd. 2021).



Şekil 4.31 rGO - 8Fe₃O₄ - 2ZnO (50 mg rGO - Fe₃O₄ ve 100 mg Zn(CH₃COO)₂·2H₂O tuzu) nanokompozitinin UV-Vis spektrumu

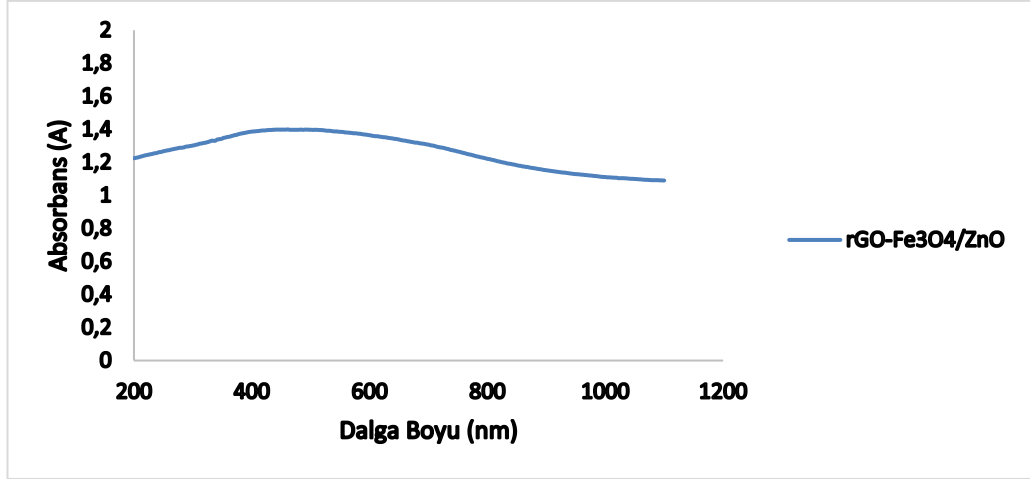
Şekil 4.32’ da verilen FTIR spektrumunda Zn – O bağlarına ait pik 424 cm⁻¹’de, Fe – O bağlarına ait pik 563 cm⁻¹’de gözlenmiştir. Bu durum rGO tabakaları üzerinde Fe₃O₄ ve ZnO nanotaneciklerinin başarılı şekilde üretildiğini gösteren önemli bir bulgudur ve bu

bulgular literatür ile uyumludur. FTIR spektrumunda oluşan diğer pikler, -OH gerilme titreşimi 3433 cm^{-1} ' de, C = C zincir titreşimi 1543 cm^{-1} ' de ve C - O epoksi grubu gerilme titreşiminin 933 cm^{-1} ' de gözlenmiştir (Çıplak 2020, Lei vd. 2020, Abharya vd. 2021).



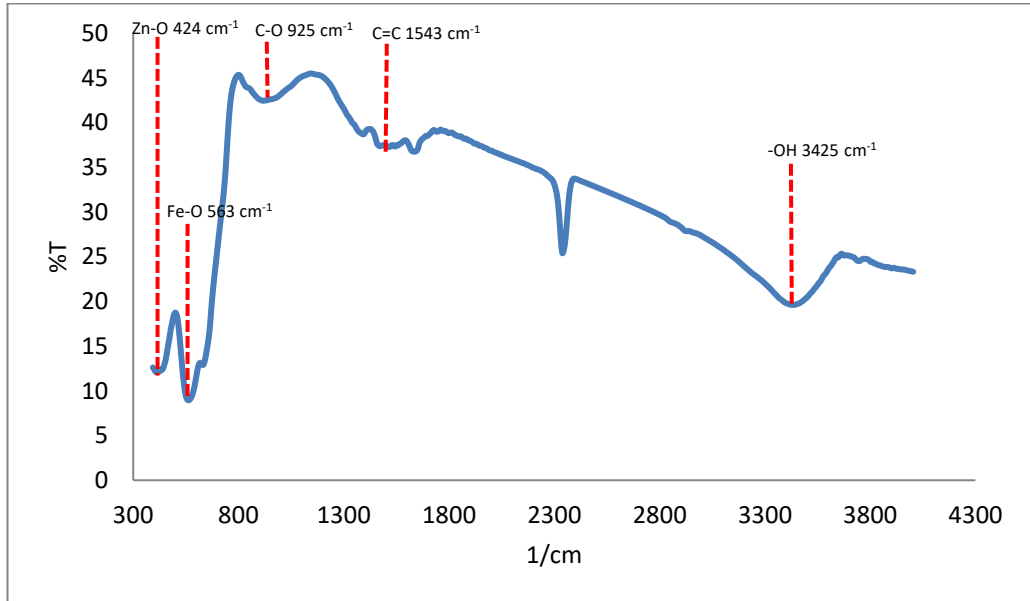
Şekil 4.32 rGO - $8\text{Fe}_3\text{O}_4$ - 2ZnO (50 mg rGO - Fe_3O_4 ve 100 mg $\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ tuzu) nanokompozitinin FTIR spektrumu

Farklı bileşimde sentezlenmiş olan rGO - $8\text{Fe}_3\text{O}_4$ - 0.5ZnO nanokompozitinin UV-Vis ve FTIR spektrumları Şekil 4.33 ve 4.34' de sırasıyla verilmiştir. UV spektrumunda nanoyapının bileşiminde bulunan metal oksit nanotaneceklerine ait olabilecek pikler 200 ila 600 nm dalga boyu arasında görülmektedir (Lei vd. 2020, Shamhari vd. 2018, Veerabhadraiah vd. 2022).



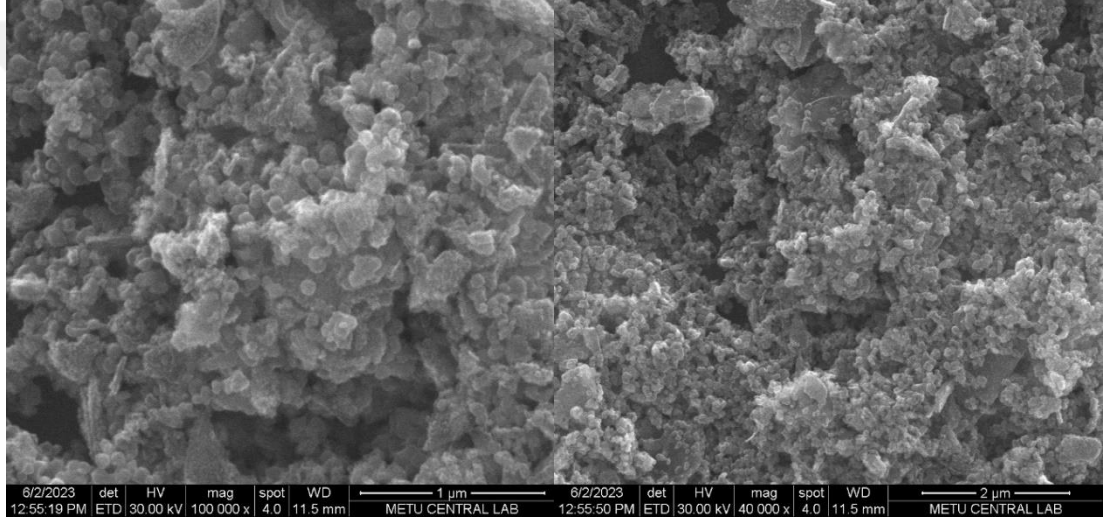
Şekil 4.33 rGO - 8Fe₃O₄ - 0.5ZnO (50 mg rGO - Fe₃O₄ ve 25 mg Zn(CH₃COO)₂·2H₂O tuzu) nanokompozitinin UV-Vis spektrumu

Şekil 4.34’ de verilen FTIR spektrumuna göre Zn – O bağlarına ait pik 424 cm⁻¹’ de, Fe – O bağlarına ait pik 563 cm⁻¹’ de görülmektedir. Bu durum rGO nanotabakalarında Fe₃O₄ ve ZnO nanotaneceklerinin başarılı şekilde üretildiğini gösteren önemli bir bulgudur ve bu bulgular literatür ile uyumludur. FTIR spektrumunda oluşan diğer piklerin, -OH gerilme titreşimi (3425 cm⁻¹), C = C zincir titreşimi (1543 cm⁻¹) ve C - O epoksi grubu gerilme titreşimlerine (925 cm⁻¹) ait olduğu belirlenmiştir (Çıplak 2020, Lei vd. 2020, Abharya vd. 2021).



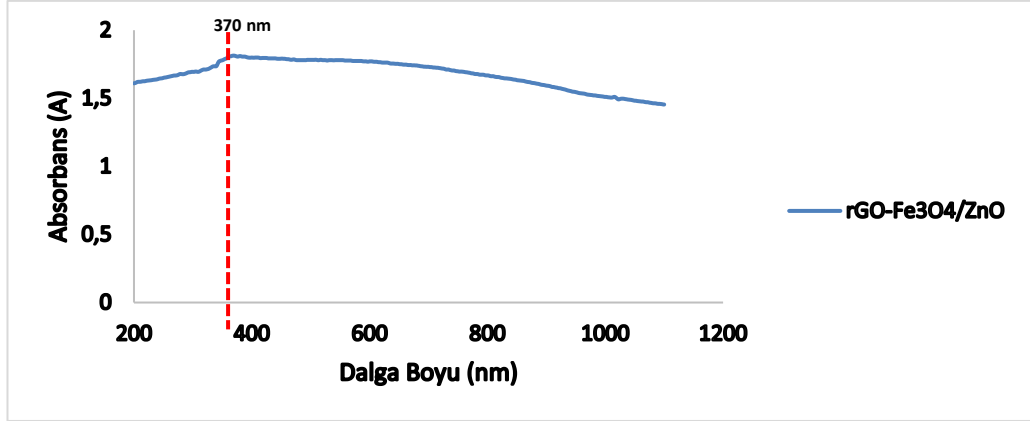
Şekil 4.34 rGO - 8Fe₃O₄ - 0.5ZnO (50 mg rGO - Fe₃O₄ ve 25 mg Zn(CH₃COO)₂·2H₂O tuzu) nanokompozitinin FTIR spektrumu

Şekil 4.35’ de sentezi gerçekleştirilen rGO - $8\text{Fe}_3\text{O}_4$ - 0.5ZnO nanokompozitine ait SEM görüntüleri görülmektedir. Bu sentezde kullanılan nanokompozit bileşenleri 50 mg grafit oksit (GO) ve 400 mg $\text{Fe}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ tuzu (1:8) kullanılarak elde edilen 50 mg rGO - Fe_3O_4 manyetik nanokompozitinin üzerine 25 mg $\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ tuzu eklenerek elde edilmiştir. Yapıda kullanılan 400 mg $\text{Fe}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ tuzunun oranının yüksek olması sebebi ile oluşan ZnO nanotanecikleri SEM görüntülerinde net şekilde belirlenememiştir. Oluşan Fe_3O_4 nanotaneciklerinin rGO tabakaları üzerinde küresel şekilde elde edildiği görülmektedir (Abharya vd. 2021, Ahamed vd. 2022).



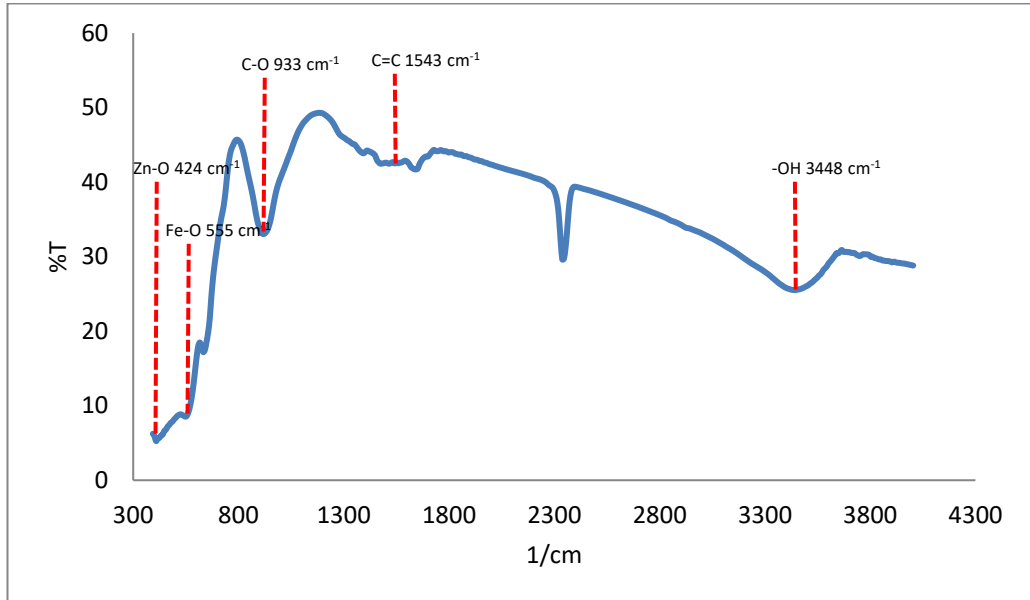
Şekil 4.35 rGO - $8\text{Fe}_3\text{O}_4$ - 0.5ZnO (50 mg rGO - Fe_3O_4 ve 25 mg $\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ tuzu) nanokompozitinin SEM görüntüleri

Şekil 4.36 ve 4.37’ de sırasıyla UV-Vis ve FTIR spektrumları incelendiğinde rGO - $8\text{Fe}_3\text{O}_4$ - 4ZnO nanokompozitinin bileşiminde bulunan ZnO nanotaneciklerine ait olabilecek karakteristik pik 370 nm dalga boyunda görülmektedir. Bu durum nanokompozit oluşumunda aglomerasyonun devam ettiği fakat bu sentez koşullarında $\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ tuzunun kullanımındaki artışın görünür bölgedeki karakteristik pikin daha net oluşmasına etki ettiği şeklinde yorumlanabilir.



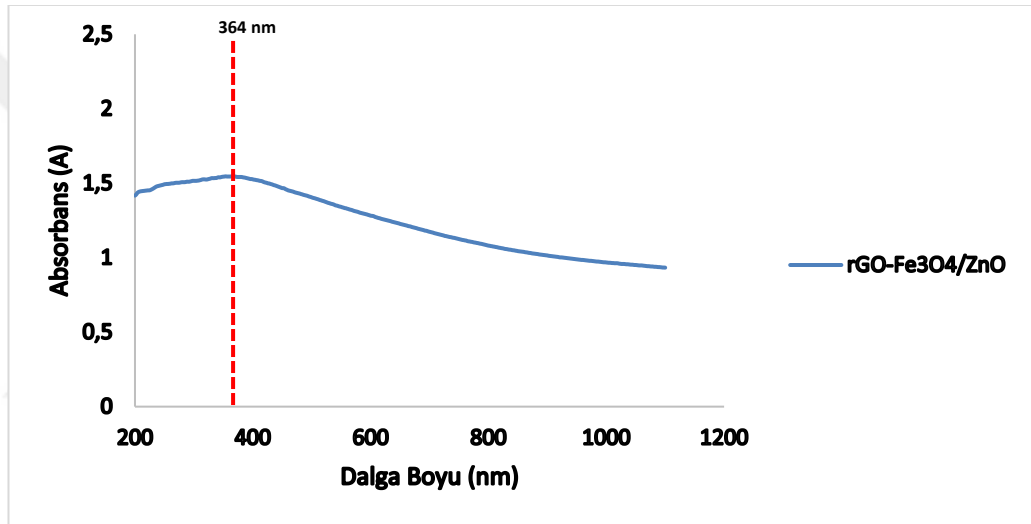
Şekil 4.36 rGO - 8Fe₃O₄ - 4ZnO (50 mg rGO - Fe₃O₄ ve 200 mg Zn(CH₃COO)₂·2H₂O tuzu) nanokompozitinin UV-Vis spektrumu

Şekil 4.37’ de verilen FTIR spektrumuna göre Zn – O bağına ait pik 424 cm⁻¹’ de, Fe – O bağına ait pik ise 555 cm⁻¹’ de gözlenmiştir. Bu durum rGO nanotabakalarında Fe₃O₄ ve ZnO nanotaneceklerinin başarılı şekilde üretildiğini gösteren önemli bir bulgudur ve bu bulgular literatür ile uyumludur. FTIR spektrumunda oluşan diğer piklerin, OH gerilme titreşimi (3448 cm⁻¹), C = C zincir titreşimi (1543 cm⁻¹), C - O epoksi grubu gerilme titreşimine (933 cm⁻¹) ait olduğu belirlenmiştir (Çıplak 2020, Lei vd. 2020, Abharya vd. 2021).



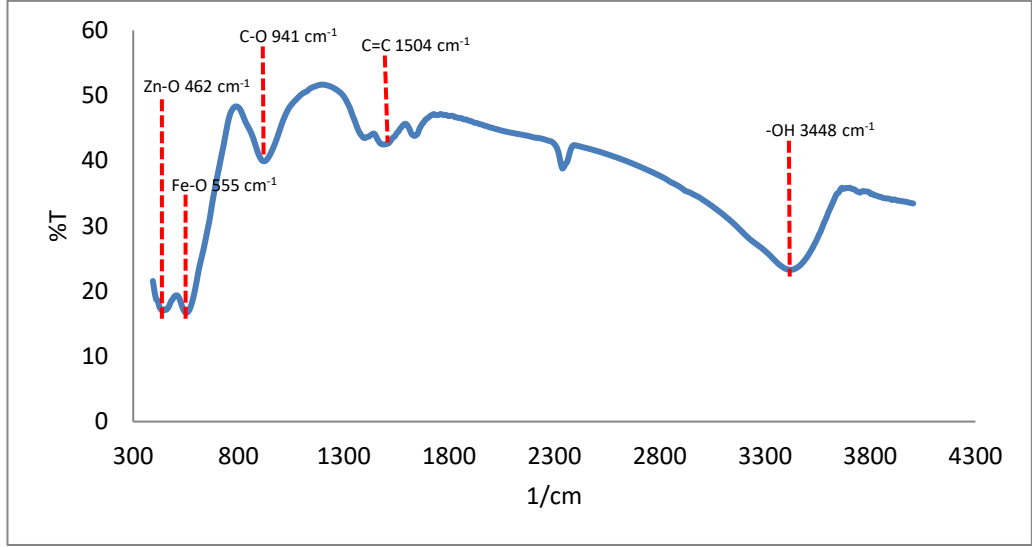
Şekil 4.37 rGO - 8Fe₃O₄ - 4ZnO (50 mg rGO - Fe₃O₄ ve 200 mg Zn(CH₃COO)₂·2H₂O tuzu) nanokompozitinin FTIR spektrumu

Solvotermal yöntem ile etilen glikol (EG) kullanılarak 50 mg grafit oksit, 400 mg $\text{Fe}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ ve 200 mg $\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ tuzu ile tek adımda otoklavda gerçekleştirilen sentez sonucu elde edilen $\text{rGO} - 8\text{Fe}_3\text{O}_4 - 4\text{ZnO}$ nanokompozitinin UV-Vis ve FTIR spektrumları sırasıyla Şekil 4.38 ve 4.39’ da verilmiştir. Elde edilen nanokompozit bileşiminde bulunan ZnO nanotaneceklerine ait olabilecek karakteristik pik 364 nm dalga boyunda görülmektedir. Şekil 4.1’ deki saf ZnO pikine göre spektrumdaki pikin sağa kayması yapıda bulunan manyetik nanotaneceklerin ve $\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ tuzunun fazlalığı, PVP katkılamaının yapılmaması gibi sebeplerden dolayı yapıda aglomerasyon meydana geldiği ve nanotanecek boyutlarında büyüme ile açıklanabilir.



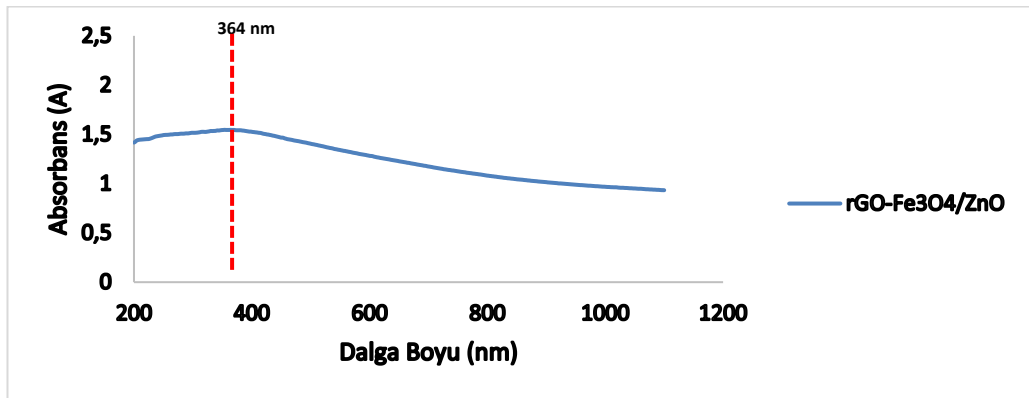
Şekil 4.38 $\text{rGO} - 8\text{Fe}_3\text{O}_4 - 4\text{ZnO}$ (50 mg GO, 400 mg $\text{Fe}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$) ve 200 mg $\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ ile solvotermal yöntemle) nanokompozitinin UV-Vis spektrumu

Şekil 4.39’ da verilen FTIR spektrumuna göre Zn – O bağına ait pik 462 cm^{-1} ’ de, Fe – O bağına ait pik 555 cm^{-1} ’ de gözlenmiştir. Bu durum rGO nanotabakalarında Fe_3O_4 ve ZnO nanotaneceklerinin başarılı şekilde üretildiğini gösteren önemli bir bulgudur ve bu bulgular literatür ile uyumludur. FTIR spektrumunda oluşan diğer piklerin, OH gerilme titreşimi (3448 cm^{-1}), C = C zincir titreşimi (1504 cm^{-1}), C - O epoksi grubu gerilme titreşimine (941 cm^{-1}) ait olduğu belirlenmiştir (Çıplak 2020, Lei vd. 2020, Abharya vd. 2021).



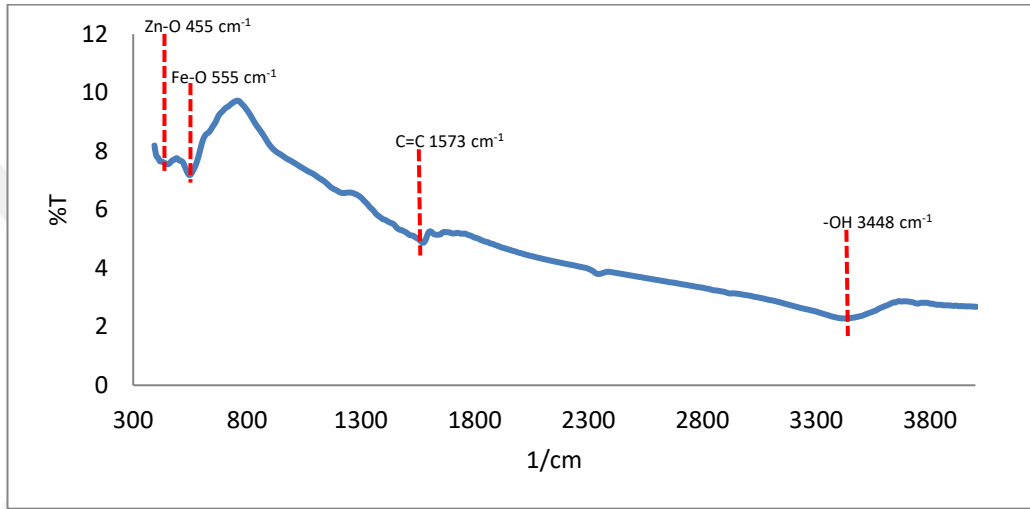
Şekil 4.39 rGO - 8Fe₃O₄ - 4ZnO (50 mg GO, 400 mg Fe(NO₃)₃·9H₂O ve 200 mg Zn(CH₃COO)₂·2H₂O ile solvotermal yöntemle) nanokompozitinin FTIR spektrumu

Solvotermal yöntem ile 50 mg grafit oksit, 100 mg Fe(NO₃)₃·9H₂O ve 100 mg Zn(CH₃COO)₂·2H₂O tuzu kullanılarak tek adımda gerçekleştirilen sentez sonucu elde edilen rGO - 2Fe₃O₄ - 2ZnO nanokompozitinin UV-Vis ve FTIR spektrumlarına sırasıyla Şekil 4.40 ve 4.41’ de yer verilmiştir. Nanokompozit bileşiminde bulunan ZnO nanotaneçiklerine ait olabilecek karakteristik pik 364 nm dalga boyunda görülmektedir. Bu durum solvotermal yöntem ile gerçekleştirilen sentez işlemlerinde nanokompozit bileşiminde bulunan metal tuzlarının oranlarındaki değişikliğin rGO - Fe₃O₄ - ZnO nanoyapısında önemli bir etkisi olmadığı şeklinde yorumlanabilir.



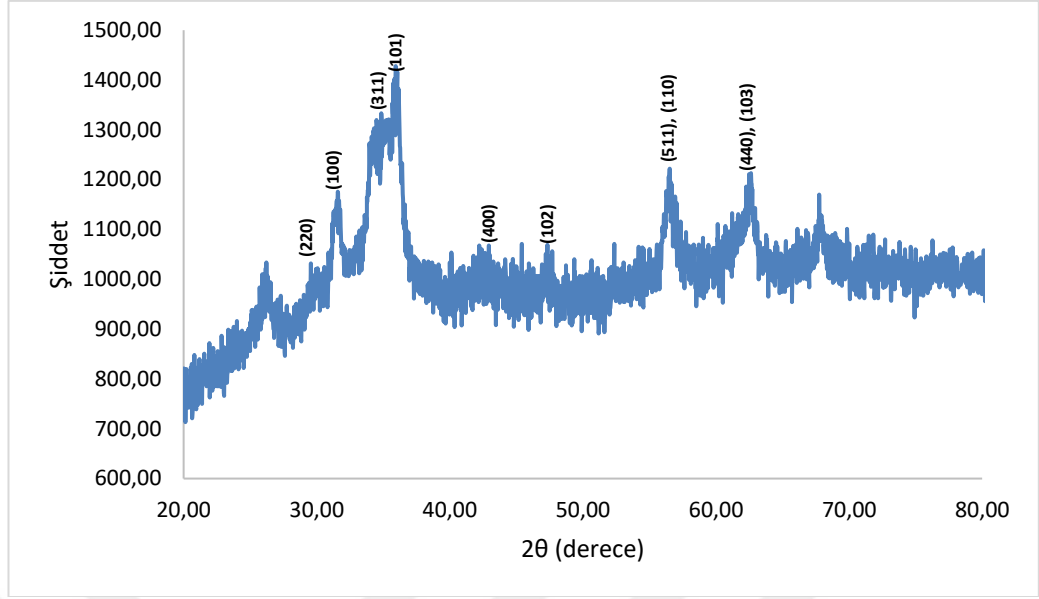
Şekil 4.40 rGO - 2Fe₃O₄ - 2ZnO (50 mg GO, 100 mg Fe(NO₃)₃·9H₂O ve 100 mg Zn(CH₃COO)₂·2H₂O ile solvotermal yöntemle) nanokompozitinin UV-Vis spektrumu

Şekil 4.41’ de verilen FTIR spektrumuna göre Zn – O bağına ait pik 455 cm^{-1} ’ de, Fe – O bağına ait pik 555 cm^{-1} ’ de gözlenmiştir. Bu durum rGO nanotabakalarında Fe_3O_4 ve ZnO nanotanciklerinin başarılı şekilde üretildiğini gösteren önemli bir bulgudur ve bu bulgular literatür ile uyumludur. FTIR spektrumunda oluşan diğer piklerin, OH gerilme titreşimi (3448 cm^{-1}), C = C zincir titreşimi (1573 cm^{-1}) olduğu belirlenmiştir (Çıplak 2020, Lei vd. 2020, Abharya vd. 2021).



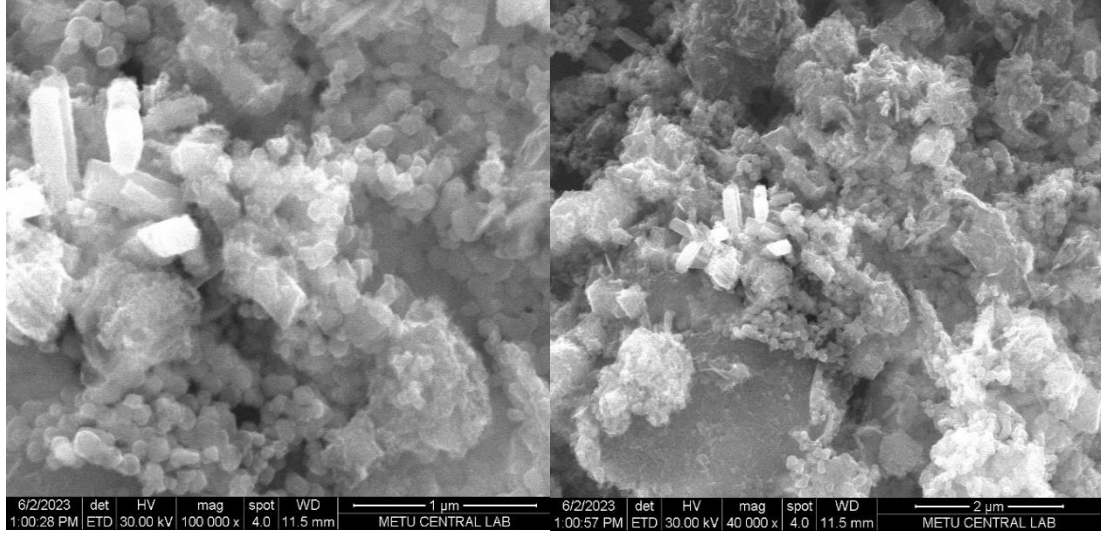
Şekil 4.41 rGO - $2\text{Fe}_3\text{O}_4$ - 2ZnO (50 mg GO, 100 mg $\text{Fe}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$) ve 100 mg $\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ ile solvotermal yöntemle) nanokompozitinin FTIR spektrumu

Şekil 4.42’ de rGO - $2\text{Fe}_3\text{O}_4$ - 2ZnO nanokompozitine ait XRD kırınım deseni verilmiştir. Verilen spekturuma göre $2\theta = 29.94^\circ$ (220), 35.06° (311), 42.98° (400), 56.50° (511) ve 62.64° (440)’ de oluşan pikler Fe_3O_4 ’ de, 31.60° (100), 35.96° (101), 47.70° (102), 56.50° (110), 62.64° (103) ve 67.76° (112)’ da bulunan pikler ZnO NP’ sine ait olduğu düşünülmektedir. Bulgular literatür ile uyumludur (Lei vd. 2020, Feng vd. 2018, Ahamed vd. 2022, Abharya vd. 2021).



Şekil 4.42 rGO - 2Fe₃O₄ - 2ZnO (50 mg GO, 100 mg Fe(NO₃)₃.9H₂O) ve 100 mg Zn(CH₃COO)₂.2H₂O) ile solvotermal yöntemle) nanokompozitinin XRD kırınım deseni

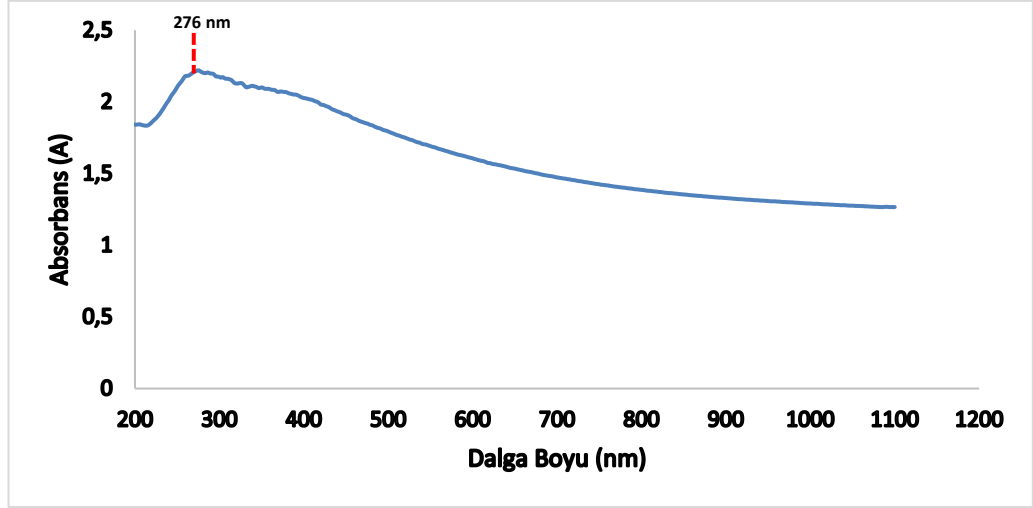
Şekil 4.43’ de SEM görüntülerine yer verilen rGO - 2Fe₃O₄ - 2ZnO nanokompozitinin bileşenleri rGO tabakalarının üzerinde küresel şekilde oluşan Fe₃O₄ nanotanecikleri görülmektedir. Yapıda bulunan ZnO nanotaneciklerinin partikül büyüklüğünün diğer bileşenlere göre daha küçük boyutlarda oluştuğu düşünüldüğü için daha büyük ölçekte yapılacak SEM analizi ile görüntülenebileceği düşünülmektedir. Şekil 4.35’ deki SEM görüntüleri ile karşılaştırıldığında nanokompozit oluşumunda kullanılan Fe(NO₃)₃.9H₂O) tuzunun azaltılması yapının oluşumundaki aglomerasyonun azalmasına etkisi olduğu anlaşılmaktadır (Abharya vd. 2021, Ahamed vd. 2022).



Şekil 4.43 rGO - 2Fe₃O₄ - 2ZnO (50 mg GO, 100 mg Fe(NO₃)₃.9H₂O) ve 100 mg Zn(CH₃COO)₂.2H₂O ile solvotermal yöntemle) nanokompozitinin SEM görüntüleri

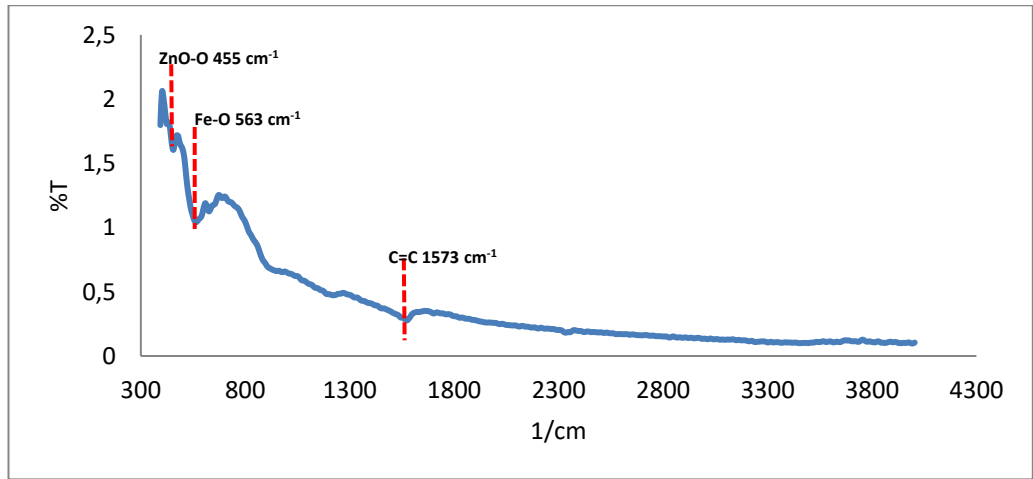
rGO - 2Fe₃O₄ - 0.5ZnO nanokompoziti etilen glikol ile solvotermal bir yöntem ile sentezlenen rGO - Fe₃O₄ nanoyapısının oluşumu için 50 mg GO ve 100 mg Fe(NO₃)₃.9H₂O tuzu kullanılmıştır. Elde edilen 50 mg rGO - Fe₃O₄ nanoyapısı üzerine 25 mg Zn(CH₃COO)₂.2H₂O tuzunun atmosferik ortamda, 92°C’ de, 1 saatlik sentez süresi boyunca NaOH ile indirgenmesi yoluyla ortama 250 mg PVP katkılanarak elde edilmiştir. Elde edilen rGO - Fe₃O₄ - ZnO nanokompozitinin UV-Vis, FTIR, XRD ve SEM analizlerine Şekil 4.44, 4.45, 4.46 ve 4.47’ de yer verilmiştir.

Şekil 4.44’ de 276 nm’de, C – C bağlarının $\pi \rightarrow \pi^*$ geçişine ait pik görülmektedir ve 340 nm civarındaki küçük pik literatür ile uyumlu olarak ZnO nanotaneciklerine atıf edilmiştir.



Şekil 4.44 rGO - 2Fe₃O₄ - 0.5ZnO (50 mg GO, 100 mg Fe(NO₃)₃.9H₂O) ve 25 mg Zn(CH₃COO)₂.2H₂O tuzu) nanokompozitinin UV-Vis spektrumu

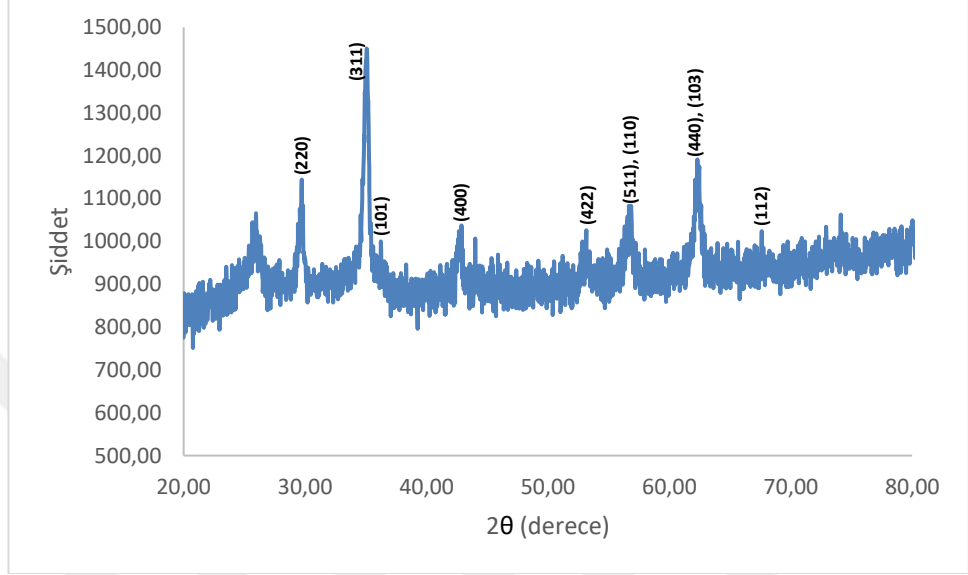
Şekil 4.45’ de verilen FTIR spektrumuna göre Zn – O bağına ait pik 455 cm⁻¹’ de, Fe – O bağına ait pik ise 563 cm⁻¹’ de gözlenmiştir. Bu durum rGO nanotabakalarında Fe₃O₄ ve ZnO nanotaneceklerinin başarılı şekilde üretildiğini gösteren önemli bir bulgudur ve bu bulgular literatür ile uyumludur. FTIR spektrumunda oluşan diğer pikin ise C = C zincir titreşimine (1573 cm⁻¹) ait olduğu belirlenmiştir (Çıplak 2020, Lei vd. 2020, Abharya vd. 2021).



Şekil 4.45 rGO - 2Fe₃O₄ - 0.5ZnO (50 mg GO, 100 mg Fe(NO₃)₃.9H₂O ve 25 mg Zn(CH₃COO)₂.2H₂O tuzu) nanokompozitinin FTIR spektrumu

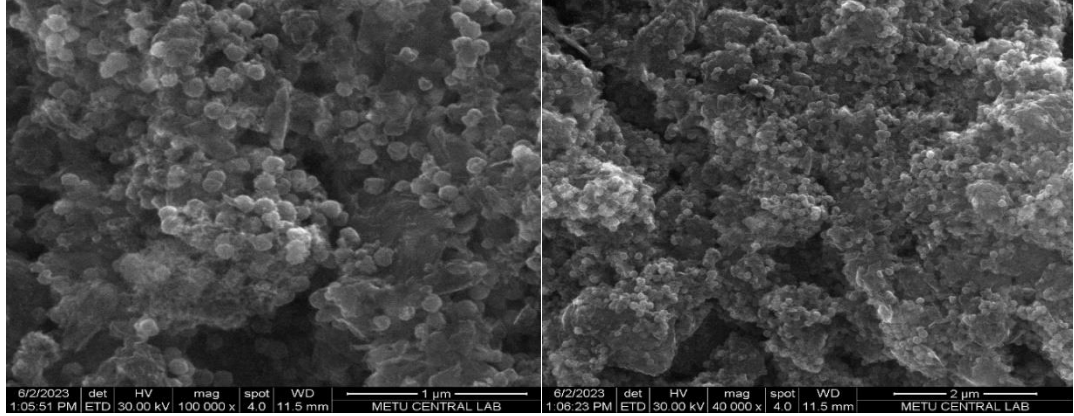
Şekil 4.46’ da rGO - 2Fe₃O₄ - 0.5ZnO nanokompozitine ait XRD kırınım deseni verilmiştir. Verilen spekturuma göre 2θ= 29.74 ° (220), 35.02 ° (311), 42.88 ° (400), 53.16

$^{\circ}$ (422), 56.84° (511), 62.46° (400)' de oluşan pikler Fe_3O_4 ' de, 36.26° (101), 56.84° (110), 62.46° (103) ve 67.60° (112)' da bulunan pikler ZnO NP' sine ait olduğu düşünülmektedir. Bulgular literatür ile uyumludur (Lei vd. 2020, Feng vd. 2018, Ahamed vd. 2022, Abharya vd. 2021).



Şekil 4.46 rGO - $2\text{Fe}_3\text{O}_4$ - 0.5ZnO (50 mg GO, 100 mg $\text{Fe}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$) ve 25 mg $\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ tuzu) nanokompozitinin XRD kırınım deseni

Şekil 4.47 SEM görüntülerine yer verilen rGO - $2\text{Fe}_3\text{O}_4$ - 0.5ZnO nanokompozitinin bileşenleri rGO tabakalarının üzerinde küresel şekilde oluşan Fe_3O_4 nanotanecikleri görülmektedir. Yapıda bulunan ZnO nanotaneciklerinin partikül büyüklüğünün diğer bileşenlere göre daha küçük boyutlarda oluştuğu düşünüldüğü için daha büyük ölçekte yapılacak SEM analizi ile görüntülenebileceği düşünülmektedir. Şekil 4.35' deki SEM görüntüleri ile karşılaştırıldığında nanokompozit oluşumunda kullanılan $\text{Fe}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ tuzunun azaltılmasının nanoyapıdaki aglomerasyonun azalmasına etkisi olduğu anlaşılmaktadır (Abharya vd. 2021, Ahamed vd. 2022).



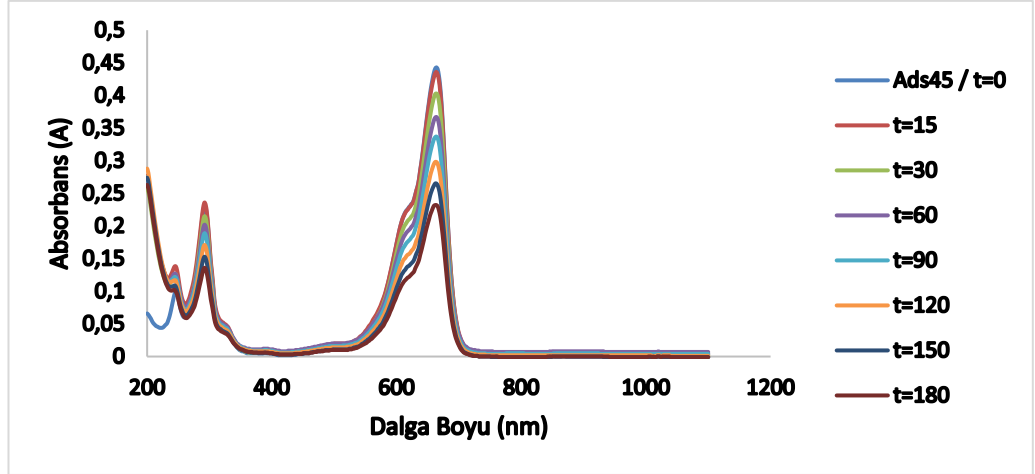
Şekil 4.47 rGO - 2Fe₃O₄ - 0.5ZnO (50 mg GO, 100 mg Fe(NO₃)₃·9H₂O) ve 25 mg Zn(CH₃COO)₂·2H₂O tuzu) nanokompozitinin SEM görüntüleri

4.2 Nanoyapıların Fotokatalitik Etkinlikleri

Bu aşamada elde edilen nanoyapıların metilen mavisinin giderimi üzerine etkinlikleri belirlenmiştir. Fotokatalitik aktivite üzerine nanokompozit bileşen oranlarının ve etkileşim süresinin etkisi incelenmiştir.

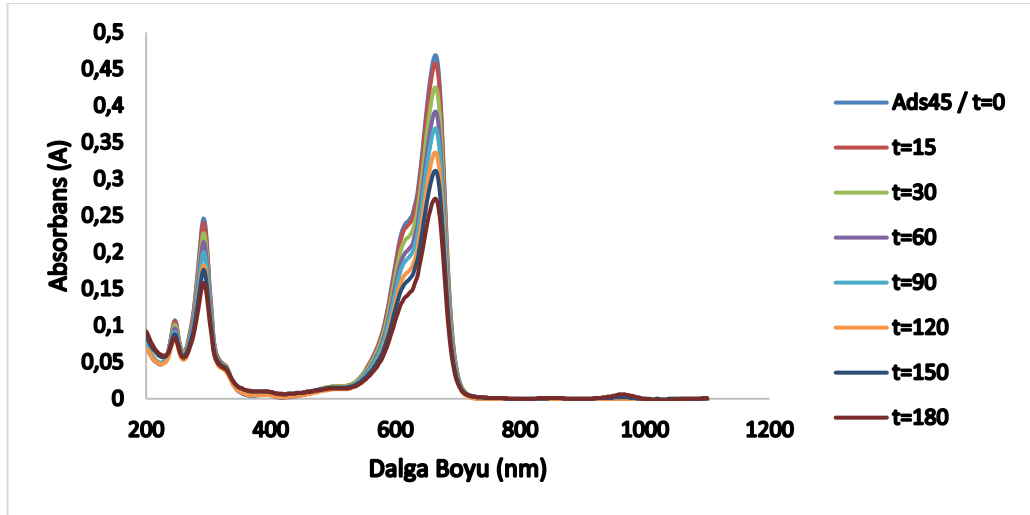
4.2.1 ZnO nanotaneciklerinin fotokatalitik aktivitesi

Şekil 4.48’ de görülen 95 °C’de NaOH ile elde edilen ZnO nanotaneciklerinin fotokatalitik aktivite çalışma koşulları 1250 µL 10 mg/L MB 38,75 mL DI ile karıştırılıp üzerine 10 mg katalizör ve 20 µL H₂O₂ eklenmiştir ve deney süresi 3 saat olarak belirlenmiştir. Sonuçta elde edilen giderim yüzdeleri; t=60 dk anında %17.57, t=120 dk anında %32,66, t=180 dk anında %47.51 olarak hesaplanmıştır.



Şekil 4.48 95 °C’ de NaOH ile elde edilen ZnO nanotaneceklerinin fotokatalitik indirgeme UV-Vis spektrumu (H₂O₂ katkılı)

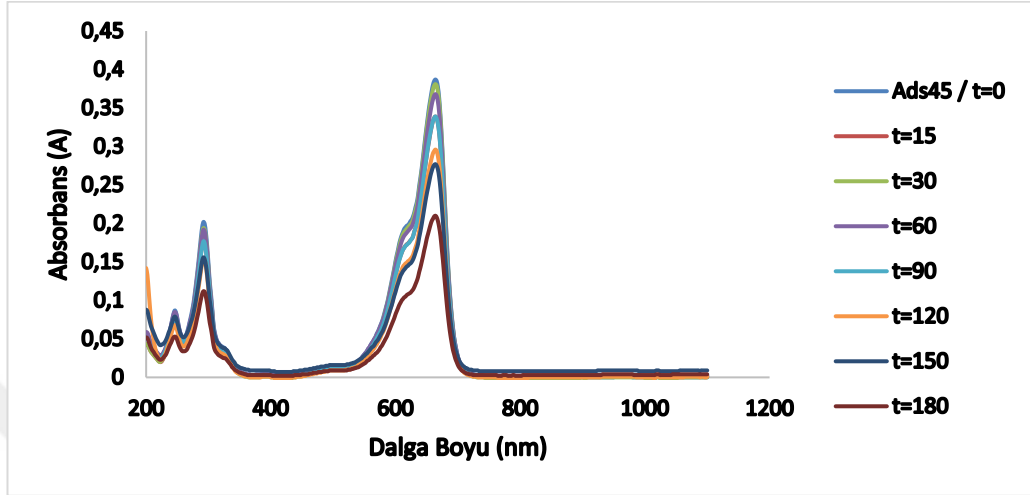
Şekil 4.49’ da görülen 95 °C’ de NH₃ ile elde edilen ZnO nanotaneceklerinin fotokatalitik aktivite çalışma koşulları 1250 µL 10 mg/L MB 38,75 ml DI ile karıştırılıp üzerine 10 mg katalizör ve deney süresi 3 saat olarak belirlenmiştir. Sonuçta elde edilen giderim yüzdeleri; t=60 dk anında %16.59, t=120 dk anında %28.30, t=180 dk anında %41.70 olarak hesaplanmıştır.



Şekil 4.49 95 °C’ de NH₃ ile elde edilen ZnO nanotaneceklerinin fotokatalitik indirgeme UV-Vis spektrumu

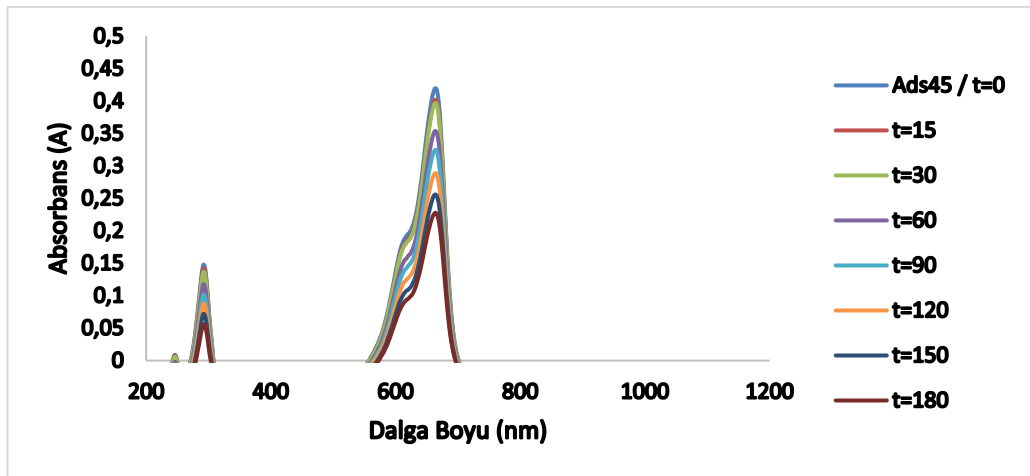
Şekil 4.50’ de görülen 80 °C’ de NH₃ ile elde edilen ZnO nanotaneceklerinin fotokatalitik aktivite çalışma koşulları 1250 µL 10 mg/L MB 38,75 ml DI ile karıştırılıp üzerine 10 mg

katalizör ve deney süresi 3 saat olarak belirlenmiştir. Sonuçta elde edilen giderim yüzdeleri; $t=60$ dk anında %4.89, $t=120$ dk anında %23.71, $t=180$ dk anında %46.13 olarak belirlenmiştir.



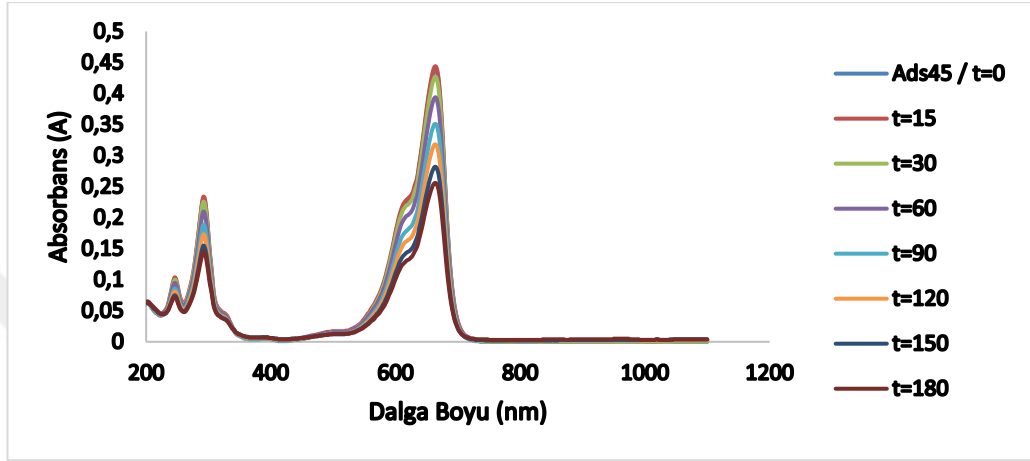
Şekil 4.50 80 °C’ de NH_3 ile elde edilen ZnO nanotaneceklerinin fotokatalitik indirgeme UV-Vis spektrumu

Şekil 4.51’ de görülen 80 °C’ de NaOH ile 450 mg PVP varlığında elde edilen ZnO nanotaneceklerinin fotokatalitik aktivite çalışma koşulları 1250 μL 10 mg/L MB 38,75 ml DI ile karıştırılıp üzerine 10 mg katalizör ve deney süresi 3 saat olarak belirlenmiştir. Sonuçta elde edilen giderim yüzdeleri; $t=60$ dk anında %15.27, $t=120$ dk anında %31.26, $t=180$ dk anında %45.58 olarak hesaplanmıştır.



Şekil 4.51 80 °C’ de NaOH ile 450 mg PVP varlığında elde edilen ZnO nanotaneceklerinin fotokatalitik indirgeme UV-Vis spektrumu

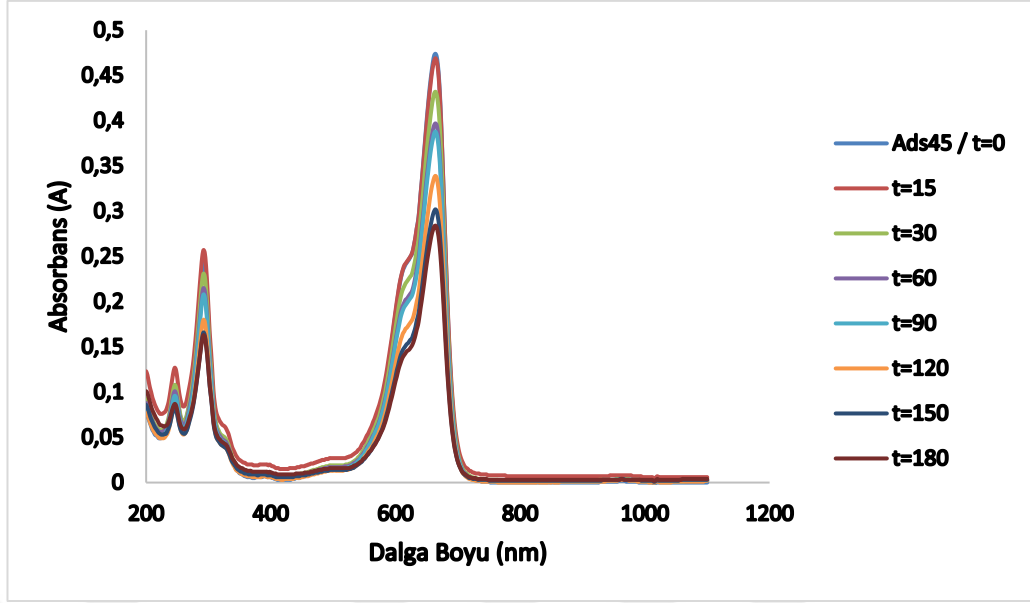
Şekil 4.52’ de görülen 80 °C’ de NaOH ile 900 mg PVP varlığında elde edilen ZnO nanotaneceklerinin fotokatalitik aktivite çalışma koşulları 1250 µL 10 mg/L MB 38,75 ml DI ile karıştırılıp üzerine 10 mg katalizör ve deney süresi 3 saat olarak belirlenmiştir. Sonuçta elde edilen giderim yüzdeleri; t=60 dk anında %10.68, t=120 dk anında %27.50, t=180 dk anında %41.82 olarak belirlenmiştir.



Şekil 4.52 80 °C’ de NaOH ile 900 mg PVP varlığında elde edilen ZnO nanotaneceklerinin fotokatalitik indirgeme UV-Vis spektrumu

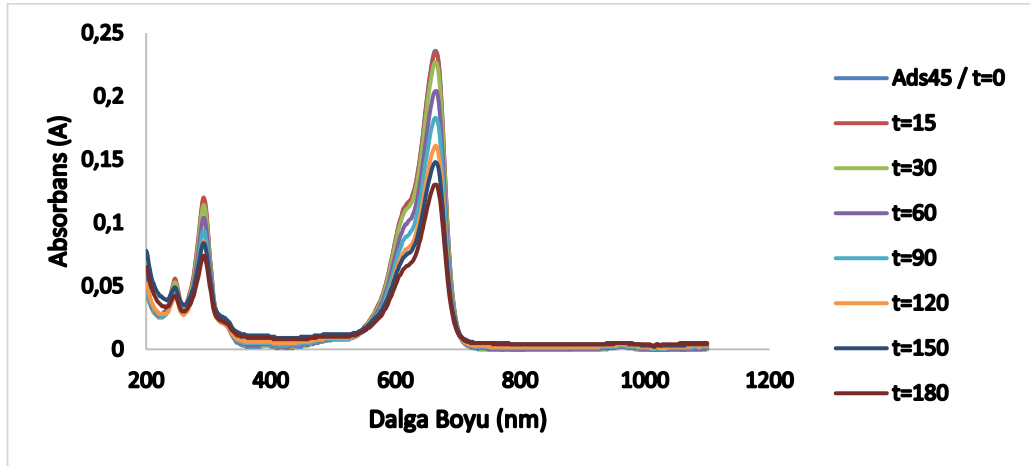
4.2.2 rGO - ZnO nanokompozitlerinin fotokatalitik aktivitesi

Şekil 4.53’ de verilen grafikte 200 mg $\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ tuzu, 60 mg GO, 80°C ve 450 mg PVP varlığında sentezlenen rGO - ZnO nanokompozitinin fotokatalitik aktivite çalışma koşulları 1250 µL 10 mg/L MB 38,75 ml DI ile karıştırılıp üzerine 10 mg katalizör eklenmiştir ve deney süresi 3 saat olarak belirlenmiştir. Sonuçta elde edilen giderim yüzdeleri; t=60 dk anında %17.72, t=120 dk anında %30.91, t=180 dk anında %43.18 olarak hesaplanmıştır.



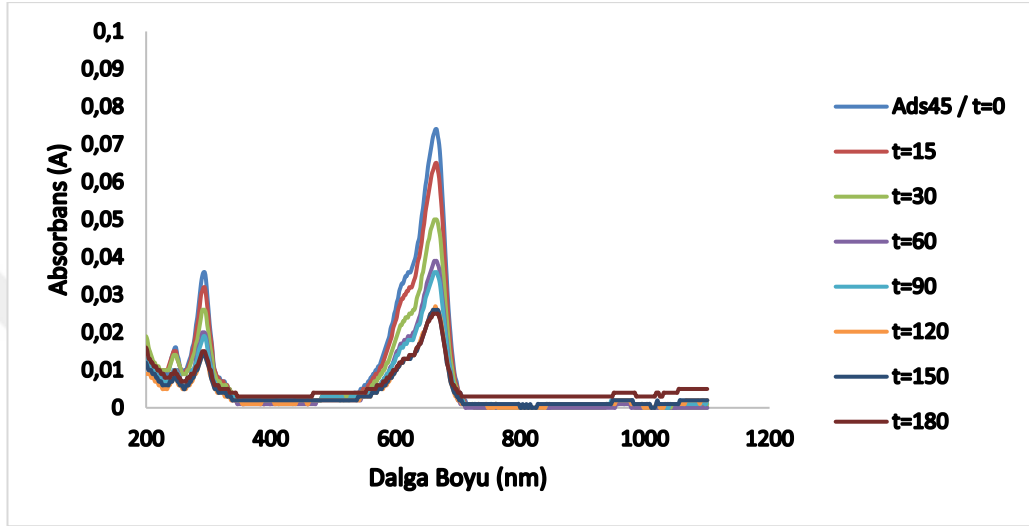
Şekil 4.53 200 mg $\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ tuzu, 60 mg GO, 80°C ve 450 mg PVP varlığında sentezlenen rGO - ZnO nanokompozitinin fotokatalitik indirgeme UV-Vis spektrumu

Şekil 4.54' de görülen 100 mg $\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ tuzu, 25 mg GO, 88°C ve 250 mg PVP varlığında sentezlenen rGO - ZnO nanokompozitinin fotokatalitik aktivite çalışma koşulları 1250 μL 10 mg/L MB 38,75 ml DI ile karıştırılıp üzerine 10 mg katalizör ve deney süresi 3 saat olarak belirlenmiştir. Sonuçta elde edilen giderim yüzdeleri; t=60 dk anında %13.50, t=120 dk anında %31.64, t=180 dk anında %44.72 olarak hesaplanmıştır.



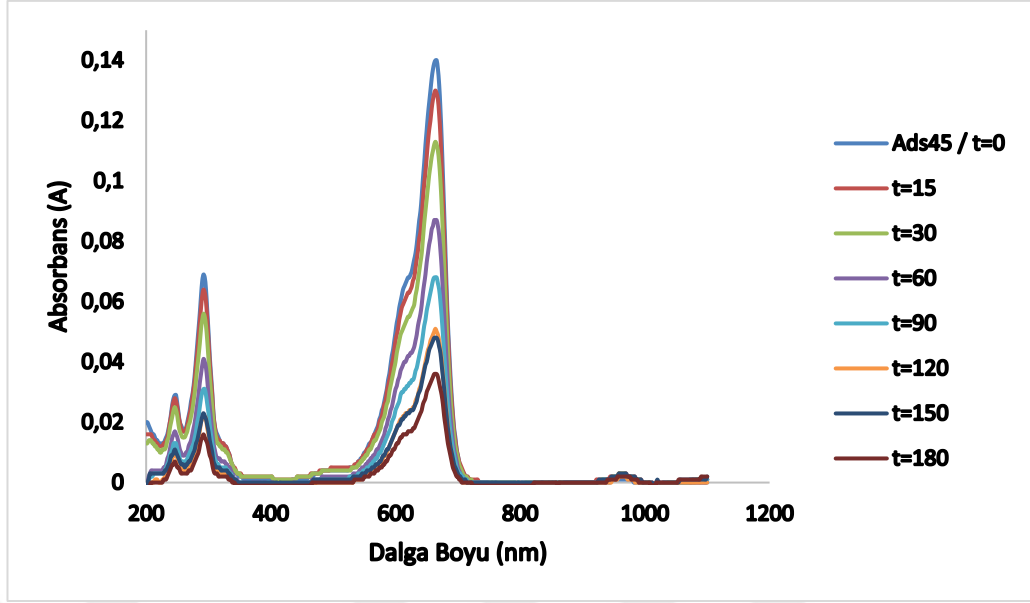
Şekil 4.54 100 mg $\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ tuzu, 25 mg GO, 80°C ve 250 mg PVP varlığında sentezlenen rGO - ZnO nanokompozitinin fotokatalitik indirgeme UV-Vis spektrumu

Şekil 4.55’ de görülen 50 mg $\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ tuzu, 50 mg GO, 90°C ve 250 mg PVP varlığında sentezlenen rGO - ZnO nanokompozitinin fotokatalitik aktivite çalışma koşulları 1250 µL 10 mg/L MB 38,75 ml DI ile karıştırılıp üzerine 10 mg katalizör ve deney süresi 3 saat olarak belirlenmiştir. Sonuçta elde edilen giderim yüzdeleri; t=60 dk anında %47.29, t=120 dk anında %63.51, t=180 dk anında %66.21 olarak hesaplanmıştır.



Şekil 4.55 50 mg $\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ tuzu, 50 mg GO, 90°C ve 250 mg PVP varlığında sentezlenen rGO - ZnO nanokompozitinin fotokatalitik indirgeme UV-Vis spektrumu

Şekil 4.56’ da görülen 25 mg $\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ tuzu, 50 mg GO, 92°C ve 250 mg PVP varlığında sentezlenen rGO - ZnO nanokompozitinin fotokatalitik aktivite çalışma koşulları 1250 µL 10 mg/L MB 38,75 ml DI ile karıştırılıp üzerine 10 mg katalizör ve deney süresi 3 saat olarak belirlenmiştir. Sonuçta elde edilen giderim yüzdeleri; t=60 dk anında %37.59, t=120 dk anında %63.83, t=180 dk anında %74.47 olarak hesaplanmıştır.

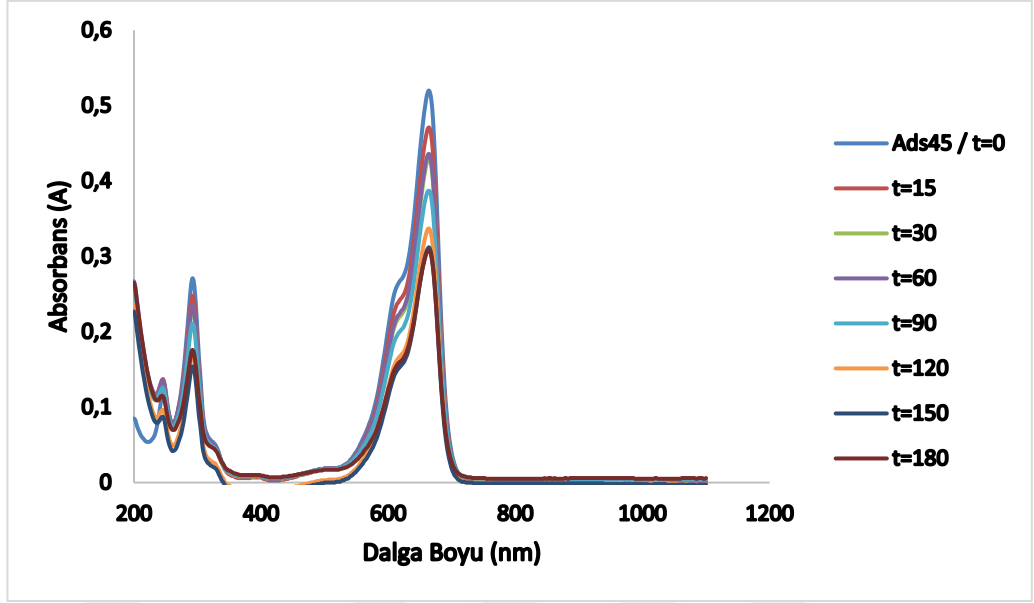


Şekil 4.56 25 mg $\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ tuzu, 50 mg GO, 92°C ve 250 mg PVP varlığında sentezlenen rGO - ZnO nanokompozitinin fotokatalitik indirgeme UV-Vis spektrumu

4.2.3 rGO - Fe_3O_4 - ZnO nanokompozitlerinin fotokatalitik aktivitesi

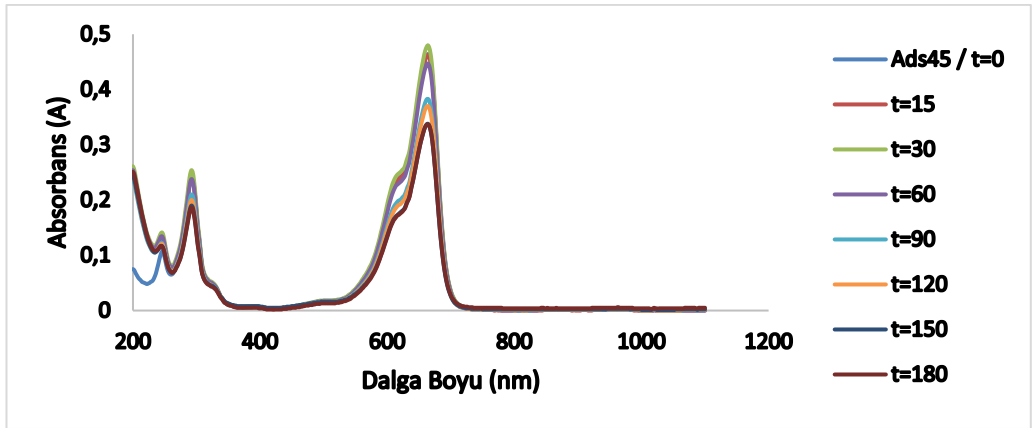
50 mg grafit oksit (GO) ve 400 mg $\text{Fe}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ tuzu (1:8) kullanılarak elde edilen rGO - Fe_3O_4 manyetik nanokompozitinin üzerine farklı miktarlarda $\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ tuzunun 95°C ' de 1 saatte NaOH ile indirgenmesi yoluyla elde edilen rGO - Fe_3O_4 - ZnO manyetik nanokompozitlerinin fotokatalitik etkinlikleri incelenmiştir.

Şekil 4.57' de görülen rGO - $8\text{Fe}_3\text{O}_4$ - ZnO nanokompozitinin fotokatalitik aktivite çalışma koşulları 1250 μL 10 mg/L MB 38,75 ml DI ile karıştırılıp üzerine 10 mg katalizör ve 20 μL H_2O_2 eklenmiştir ve deney süresi 3 saat olarak belirlenmiştir. Sonuçta elde edilen giderim yüzdeleri; $t=60$ dk anında %16.12, $t=120$ dk anında %35.12, $t=180$ dk anında %40.69 olarak hesaplanmıştır.



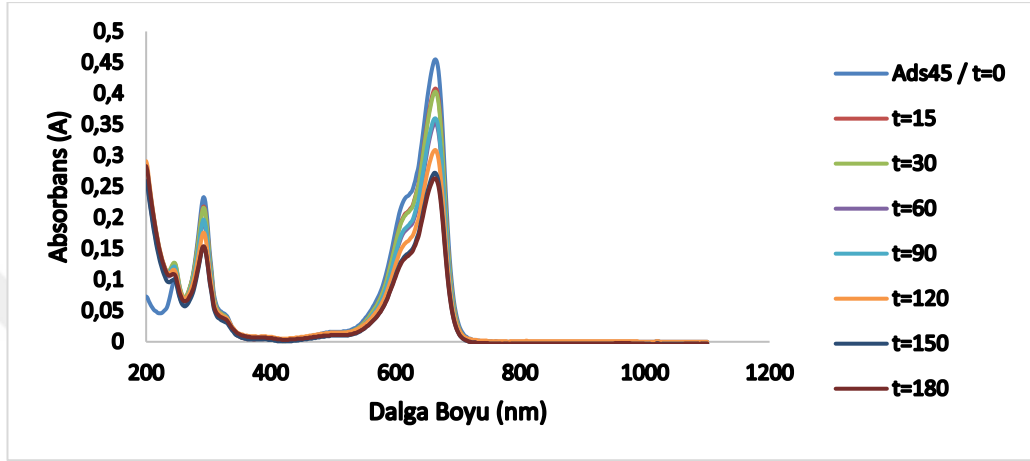
Şekil 4.57 rGO - 8Fe₃O₄ - ZnO (50 mg rGO - Fe₃O₄(1:8) ve 50 mg Zn(CH₃COO)₂·2H₂O tuzu) nanokompozitin fotokatalitik indirgeme UV-Vis spektrumu (H₂O₂ katkılı)

Şekil 4.58’ de görülen rGO - 8Fe₃O₄ - 2ZnO nanokompozitinin fotokatalitik aktivite çalışma koşulları 1250 µL 10 mg/L MB 38,75 ml DI ile karıştırılıp üzerine 10 mg katalizör ve 20 µL H₂O₂ eklenmiştir ve deney süresi 3 saat olarak belirlenmiştir. Sonuçta elde edilen giderim yüzdeleri; t=60 dk anında %3.24, t=120 dk anında %19.87, t=180 dk anında %26.70 olarak belirlenmiştir.



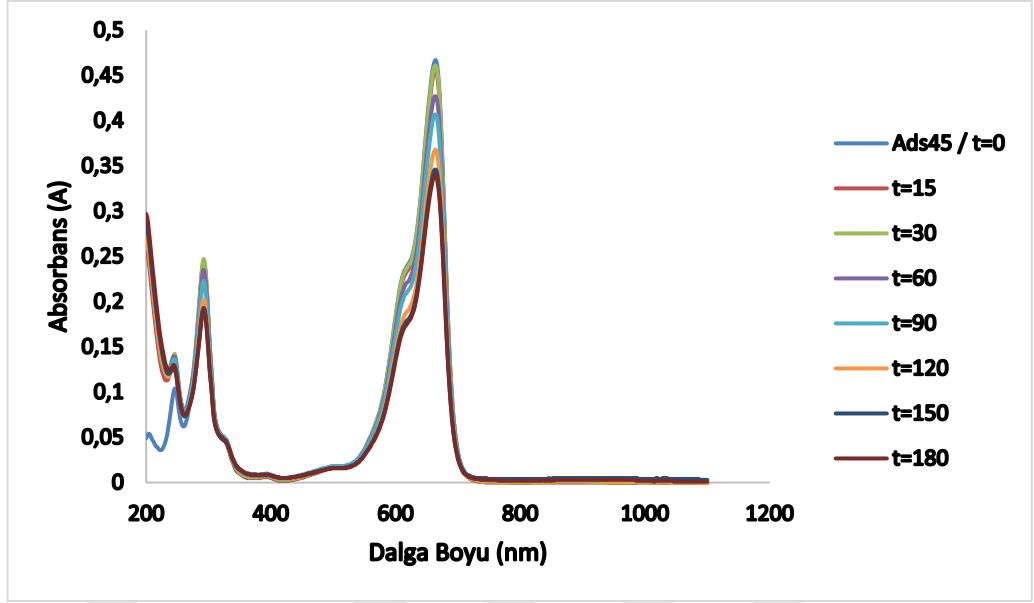
Şekil 4.58 rGO - 8Fe₃O₄ - 2ZnO (50 mg rGO - Fe₃O₄(1:8) ve 100 mg Zn(CH₃COO)₂·2H₂O tuzu) nanokompozitinin fotokatalitik indirgeme UV-Vis spektrumu (H₂O₂ katkılı)

Şekil 4.59’ da görülen rGO - 8Fe₃O₄ – 0.5ZnO nanokompozitinin fotokatalitik aktivite çalışma koşulları 1250 µL 10 mg/L MB 38,75 ml DI ile karıştırılıp üzerine 10 mg katalizör ve 20 µL H₂O₂ eklenmiştir ve deney süresi 3 saat olarak belirlenmiştir. Sonuçta elde edilen giderim yüzdeleri; t=60 dk anında %22.15, t=120 dk anında %32.23, t=180 dk anında %42.10 olarak bulunmuştur.



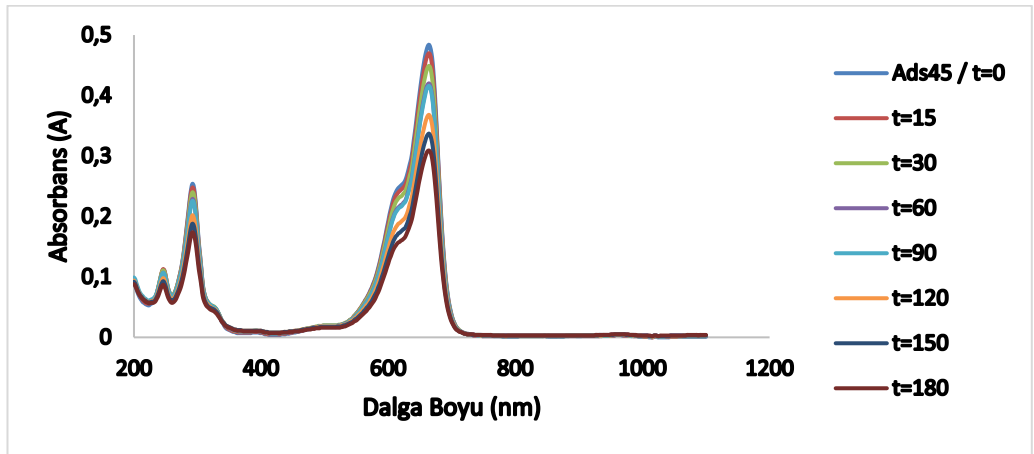
Şekil 4.59 rGO - 8Fe₃O₄ – 0.5ZnO (50 mg rGO - Fe₃O₄(1:8) ve 25 mg Zn(CH₃COO)₂·2H₂O tuzu) nanokompozitinin fotokatalitik indirgeme UV-Vis spektrumu (H₂O₂ katkılı)

Şekil 4.60’ da görülen rGO - 8Fe₃O₄ - 4ZnO nanokompozitinin fotokatalitik aktivite çalışma koşulları 1250 µL 10 mg/L MB 38,75 ml DI ile karıştırılıp üzerine 10 mg katalizör ve 20 µL H₂O₂ eklenmiştir ve deney süresi 3 saat olarak belirlenmiştir. Sonuçta elde edilen giderim yüzdeleri; t=60 dk anında %8.76, t=120 dk anında %21.15, t=180 dk anında %27.35 olarak hesaplanmıştır.



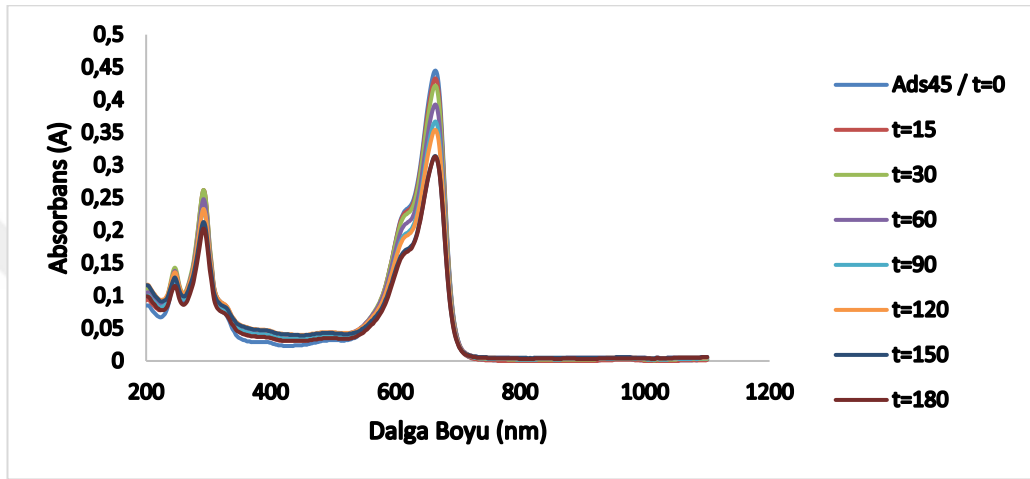
Şekil 4.60 rGO - 8Fe₃O₄ - 4ZnO (50 mg rGO - Fe₃O₄(1:8) ve 200 mg Zn(CH₃COO)₂·2H₂O tuzu) nanokompozitinin fotokatalitik indirgeme UV-Vis spektrumu (H₂O₂ katkılı)

Şekil 4.61’ de görülen rGO - 8Fe₃O₄ - 4ZnO nanokompozitinin fotokatalitik aktivite çalışması Şekil 4.60’ da gösterilmiş olan çalışmadan farkı MB çözelti içerisine H₂O₂ eklenmeden gerçekleştirilmesidir. Sonuçta elde edilen giderim yüzdeleri; t=60 dk anında %13.01, t=120 dk anında %23.76, t=180 dk anında %35.95 olarak bulunmuştur.



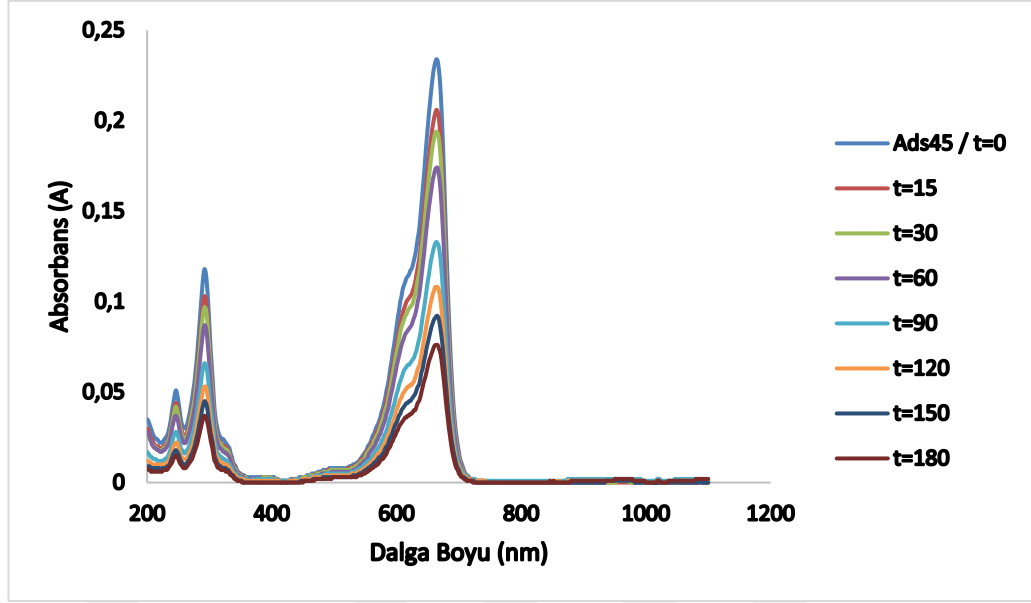
Şekil 4.61 rGO - 8Fe₃O₄ - 4ZnO (50 mg rGO - Fe₃O₄(1:8) ve 200 mg Zn(CH₃COO)₂·2H₂O tuzu) nanokompozitinin fotokatalitik indirgeme UV-Vis spektrumu

Şekil 4.62’ de fotokatalitik aktivite çalışmasına yer verilen rGO - 8Fe₃O₄ - 4ZnO nanokompozitinin Şekil 4.61’ de gösterilmiş olan çalışmadan farkı aynı orandaki nanokompozit bileşenleri oranları kullanılarak etilen glikol (EG) varlığında solvotermal yöntem ile tek adımda sentezlenmiş olmasıdır. Sonuçta elde edilen giderim yüzdeleri; t=60 dk anında %11.43, t=120 dk anında %20.40, t=180 dk anında %29.82 olarak belirlenmiştir.



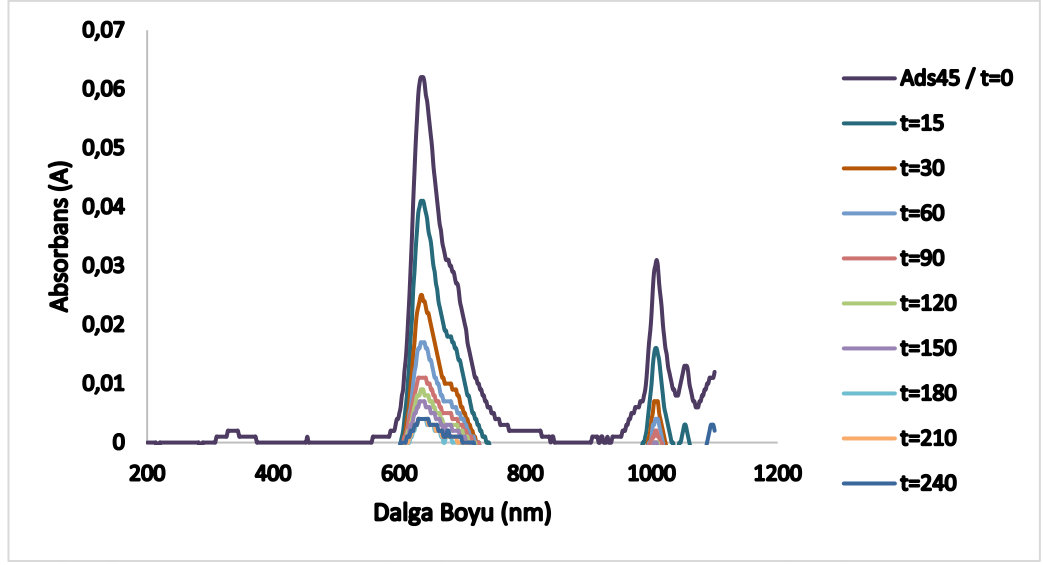
Şekil 4.62 rGO - 8Fe₃O₄ - 4ZnO (50 mg grafit oksit (GO), 400 mg Fe(NO₃)₃.9H₂O tuzu ve 200 mg Zn(CH₃COO)₂.2H₂O) tuzu ile solvotermal yöntem) nanokompozitinin fotokatalitik indirgeme UV-Vis spektrumu

50 mg grafit oksit (GO) ve 100 mg Fe(NO₃)₃.9H₂O tuzu ve 100 mg Zn(CH₃COO)₂.2H₂O) tuzu etilen glikol (EG) ile solvotermal yöntemle tek adımda sentezi gerçekleştirilen rGO - 2Fe₃O₄ - 2ZnO manyetik nanokompozitinin fotokatalitik etkinlikleri incelenmiştir. Şekil 4.63’ da görülen rGO - 2Fe₃O₄ - 2ZnO nanokompozitinin fotokatalitik aktivite çalışma koşulları 1250 µL 10 mg/L MB 38,75 ml DI ile karıştırılıp üzerine 10 mg katalizör eklenmiştir ve deney süresi 3 saat olarak belirlenmiştir. Sonuçta elde edilen giderim yüzdeleri; t=60 dk anında %25.64, t=120 dk anında %53.84, t=180 dk anında %67.09 olarak hesaplanmıştır.



Şekil 4.63 rGO - 2Fe₃O₄ - 2ZnO (50 mg grafit oksit (GO), 100 mg Fe(NO₃)₃.9H₂O tuzu ve 100 mg Zn(CH₃COO)₂.2H₂O) tuzu ile solvotermal yöntem) nanokompozitinin fotokatalitik indirgeme UV-Vis spektrumu

50 grafit oksit (GO) ve 100 mg Fe(NO₃)₃.9H₂O tuzunun etilen glikol (EG) ile solvotermal yöntemle sentezi gerçekleştirilen rGO - Fe₃O₄ manyetik nanokompozitinin üzerine atmosferik ortamda 25 mg Zn(CH₃COO)₂.2H₂O) tuzu eklenerek elde edilen rGO - 2Fe₃O₄ - 0.5ZnO nanokompozitinin fotokatalitik aktiviteleri incelenmiştir. Şekil 4.64’ da görülen rGO - 2Fe₃O₄ - 0.5ZnO nanokompozitinin fotokatalitik aktivite çalışma koşulları 1250 µL 10 mg/L MB 38,75 ml DI ile karıştırılıp üzerine 10 mg katalizör eklenmiştir ve deney süresi 4 saat olarak belirlenmiştir. Sonuçta elde edilen giderim yüzdeleri; t=60 dk anında %--, t=120 dk anında %--, t=180 dk anında %93.55 olarak hesaplanmıştır. Devam eden sürelerde t=210 ve t=240 dk anlarında sonuçlar değişmemiş ve giderim yüzdeleri %93.55 olarak sabitlenmiştir. Bu sonuçlar ile birlikte sentezlenen rGO - 2Fe₃O₄ - 0.5ZnO nanokompoziti 3 saat içerisinde maksimum etkinliğini göstermiştir (şekil 4.64).



Şekil 4.64 rGO - 2Fe₃O₄ – 0.5ZnO (50 mg grafit oksit (GO), 100 mg Fe(NO₃)₃.9H₂O tuzu ve 25 mg Zn(CH₃COO)₂.2H₂O) tuzu) nanokompozitinin fotokatalitik indirgeme UV-Vis spektrumu

5. TARTIŞMA SONUÇ

Bu tez çalışmasının kapsamında sularda bulunan organik boyar maddelerin fotokatalitik yöntem ile uzaklaştırılması için kullanılan çevre dostu, düşük maliyetli, etkin ve kolay uzaklaştırılabilen bir nanokompozit yapısı elde edilmesi amaçlanmıştır. Bu kapsamda geniş bant aralığına sahip çinko oksit (ZnO), demir oksit (Fe₃O₄) ve grafen (rGO) içeren nanokompozitler farklı bileşimlerde elde edilerek karakterizasyonları gerçekleştirilmiştir.

Sentezlenen örneklerden, 95 °C’ de NaOH ile elde edilen saf ZnO nanotaneceklerinde fotokatalitik etkinlik 20 µL H₂O₂ varlığında %47.51 giderim ile en yüksek değere ulaşmıştır.

ZnO nanotanecekleri indirgenmiş grafen oksit (rGO) nanoyapılarının üzerine çöktürülerek elde edilen rGO-ZnO nanokompoziti başarılı şekilde oluşturulmuştur. Elde edilen rGO-ZnO nanokompozitleri içerisinde en yüksek fotokatalitik etkinlik gösteren, 25 mg Zn(CH₃COO)₂·2H₂O tuzu, 50 mg GO, 92°C ve 250 mg PVP varlığında sentezlenen rGO - ZnO nanokompozitinde giderim %74.47 olarak belirlenmiştir.

En yüksek giderim yüzdesi, 50 mg GO ve 100 mg Fe(NO₃)₃·9H₂O solvotermal bir yöntem ile sentezlendikten sonra elde edilen rGO-Fe₃O₄ nanokompozitinin üzerine 25 mg Zn(CH₃COO)₂·2H₂O tuzunun atmosferik ortam indirgenmesi ile oluşturulan üç bileşenli rGO-2Fe₃O₄-0.5ZnO nanokompozitinde %93.55 olarak belirlenmiştir.

Yapılan deneysel çalışmalarda nanokompoziti oluşturan bileşenlerin oranları ve fotokatalitik deney süresi gibi parametrelerdeki değişimlerin fotokatalitik aktiviteye etki ettiği görülmüştür.

Gerçekleştirilen bu çalışmada elde edilen sonuçların geliştirilmesi için, ZnO nanotaneceklerinin daha küçük boyutlarda sentezlenmesi, oluşturulan üçlü nanokompozitin yapısına katılan nanotaneceklerin birbirlerine olan oranlarının değiştirilerek optimum oranın tespit edilmesi, aglomerasyonun önüne geçilmesi için stabilizör olarak kullanılan PVP’ nin farklı miktarlarda ortama dahil edilerek yeni

nanokompozit örneklerinin elde edilmesi ve performanslarının incelenmesi önerilmektedir. Bu şekilde elde edilen nanokompozitlerin fotokatalitik etkinliklerinin artabileceği öngörülmektedir.



KAYNAKLAR

- Abdolalian S., Taghavijeloudar M. 2022. Performance evaluation and optimization of ZnO-PVP nanoparticles for photocatalytic wastewater treatment: Interactions between UV light intensity and nanoparticles dosage. *Journal of Cleaner Production*, 365(2022), 132833.
- Abharya A., Gholizadeh A., 2021. Synthesis of a Fe₃O₄-rGO-ZnO-catalyzed photo-Fenton system with enhanced photocatalytic performance, *Ceramics International* 47(2021), 12010-12019.
- Ahamed M., Akhtar M.J., Khan M.A.M., Alhadlaq H.A. 2022. Facile green synthesis of ZnO-RGO nanocomposites with enhanced anticancer efficacy. *Methods*, 199(2022), 28-36.
- Baizaee S.M., Arabi M., Bahador A.R. 2018. A simple, one-pot, low temperature and pressure route for the synthesis of RGO/ZnO nanocomposite and investigating its photocatalytic activity. *Materials Science in Semiconductor Processing*, 82(2018), 135-142.
- Bharathi D., Nandagopal J.G.T., Rajamani R., Pandit S., Kumar D., Pantf B., Pandey S., Gupta P.K. 2022. Enhanced photocatalytic activity of St-ZnO nanorods for methylene blue dye degradation. *Materials Letters*, 311(2022), 131637.
- Chen X., Li J., Chen F. 2022. Photocatalytic degradation of MB by novel and environmental ZnO/ Bi₂WO₆-CC hierarchical heterostructures. *Materials Characterization*, 189(2022), 111961.
- Choudhary S. Hasina D., Saini M., Ranjan M., Mohapatra S. 2022. Facile synthesis, morphological, structural, photocatalytic and optical properties of ZnFe₂O₄-ZnO hybrid nanostructures. *Journal of Alloys and Compounds*, 895(2022), 162723.
- Çıplak Z. 2020. Grafen temelli nanokompozitlerin süperkapasitör uygulamaları için performanslarının incelenmesi. Ankara Üniversitesi, Ankara, Türkiye.
- Dao T.T., Vo T.L.N., Duong T.A., Tran D.T., Nguyen D.L., Pham V.V., Das R., Nguyen H.T. 2023. Highly photocatalytic activity of pH-controlled ZnO nanoflakes. *Optical Materials*, 140, 113865.
- Darabi R.R., Jahanshahi M., Peyravi M. 2018. A support assisted by photocatalytic Fe₃O₄/ZnO nanocomposite for thin-film forward osmosis membrane. *Chemical Engineering Research and Design*, 133(2018), 11–25.
- Dutta A., Saha S.K., Akhtar A.J. 2022. In-situ synthesis of porous ZnO nanosphere/reduced graphene oxide (ZnO@rGO) composite for structural, optical and electrochemical properties. *Materials Today: Proceedings*, Volume 66, Part 7, 2022, Pages 3253-3260.

- Elshypany R., Selim H., Zakaria K., Moustafa A.H., Sadeek S.A., Sharaa S.I., Raynaud P., Nada A.A. 2021. Elaboration of Fe₃O₄/ZnO nanocomposite with highly performance photocatalytic activity for degradation methylene blue under visible light irradiation. *Environmental Technology & Innovation*, 23(2021), 101710.
- Fatimah I., Fadillah G., Yudha S. P. 2021. Synthesis of iron-based magnetic nanocomposites: A review. *Arabian Journal of Chemistry*, 14(2021), 103301.
- Feng Q., Li S., Ma W., Fan H.J., Wan X., Lei Y., Chen Z., Yang J., Qin B. 2018. Synthesis and characterization of Fe₃O₄/ZnO-GO nanocomposites with improved photocatalytic degradation methyl orange under visible light irradiation. *Journal of Alloys and Compounds*, 737(20218), 197-206.
- Ghanbarnezhad S., Baghshahi S., Nemati A., Mahmoodi M. 2017. Preparation, magnetic properties, and photocatalytic performance under natural daylight irradiation of Fe₃O₄-ZnO core/shell nanoparticles designed on reduced GO platelet. *Materials Science in Semiconductor Processing*, 72(2017), 85-92.
- Gupta J., Sahoo K.P., Barick K.C. 2022. Highly efficient ZnO nanostructures for enhanced photocatalytic degradation of organic contaminants under simulated solar light: An efficient industrial approach. *Materials Today: Proceedings*, 67(2022), 1129-1134.
- Hessien M. 2022. Recent progress in zinc oxide nanomaterials and nanocomposites: From synthesis to applications. *Ceramics International*, 48 (2022), 22609-22628.
- Lei Y., Ding J., Yu P., He G., Chen Y., Chen H. 2020. Low-temperature preparation of magnetically separable Fe₃O₄@ZnORGO for high-performance removal of methylene blue in visible light. *Journal of Alloys and Compounds*, 821(2020), 153366.
- Lin H., Wu J., Zhou F., Zhao X., Lu P., Sun G., Song Y., Li Y., Liu X., Dai H. 2023. Graphitic carbon nitride-based photocatalysts in the applications of environmental catalysis. *Journal of environmental sciences*, 124(2023), 570-590.
- Long H., Huang R., Liu X., Chen C. 2022. Preparation and photocatalytic performance of ZnO/CuO/GO heterojunction under visible light. *Inorganic Chemistry Communications*, 136(2022), 109097.
- Mansingh S., Padhi D. K., Parida K. 2019. Bio-surfactant assisted solvothermal synthesis of Magnetic retrievable Fe₃O₄@rGO nanocomposite for photocatalytic reduction of 2-nitrophenol and degradation of TCH under visible light illumination. *Applied Surface Science*, 466(2019), 679-690.
- Mondal P., Anweshan A., Purkait M.K. 2020. Green synthesis and environmental application of iron-based nanomaterials and nanocomposite: A review. *Chemosphere*, 259(2020), 127509.

- Ou R., Zeng Z., Nig X., Zeng B., Wu C. 2022. Improved photocatalytic performance of N-doped ZnO/graphene/ZnO sandwich composites. *Applied Surface Science*, 577(2022), 151856.
- Packialakshmi J.S., Albeshr M.F., Alrefaei A.F., Zhang F., Liu X., Selvankumar T., Mythili R. 2023. Development of ZnO/SnO₂/rGO hybrid nanocomposites for effective photocatalytic degradation of toxic dye pollutants from aquatic ecosystems. *Environmental Research*, 225, 115602.
- Saeed U., Jilani A., Iqbal J., Al-Turaif H. 2022. Reduced graphene oxide-assisted graphitic carbon nitride@ZnO rods for enhanced physical and photocatalytic degradation. *Inorganic Chemistry Communications*, 142(2022), 109623.
- Shamhari N. M., Wee B.S., Chin S.F., Kok K.Y. 2018. Synthesis and Characterization of Zinc Oxide Nanoparticles with Small Particle Size Distribution. *Acta Chimica Slovenica*, 65, 578-585.
- Srisai J., Muangnapoh T., Vas-Umnuay P. 2022. Comparative study on photocatalytic degradation of methylene blue using pristine ZnO and Ni/ZnO composite films. *Materials Today: Proceedings*, 66(2022), 3168-3173.
- Sugihartono I., Retnoningtyas A., Rustana C., Umiatin., Yudasari N., Isnaeni., Imawan C., Kurniadewi F. 2019. The influence of calcination temperature on optical properties of ZnO nanoparticles. *AIP Conference Proceedings*, 2169, 060010, (2019).
- Veerabhadraiah S.R., Maji S., Panneerselvam A. 2022. Solvent influence on the formation of ZnO nanoparticles by sonochemical technique and evaluation of UV-blocking efficiency. *Journal of Crystal Growth*, 579(2022), 126430.
- Zarrabi M., Haghighi M., Alizadeh R., Mahoob S. 2022. Hybrid sonoprecipitation fabrication of magnetic ZnO-GO-Fe₃O₄ nanophotocatalyst for solar-light-driven degradation of dyes in water. *Materials Research Bulletin*, 153(2022), 111907.
- Zhang D., Zuo X., Gao W., Huang H., Zhang H., Cong T., Yang S., Zhang J., Pan L. 2022. Recyclable ZnO/Fe₃O₄ nanocomposite with piezotronic effect for high performance photocatalysis. *Materials Research Bulletin*, 148(2022), 111677.
- Zhang Y., Zheng J., Nan J., Gai C., Shao Q., Murugadoss V., Maganti S., Naik N., Algadi H., Huang M., Xu B.B., Guo Z. 2023. Influence of mass ratio and calcination temperature on physical and photoelectrochemical properties of ZnFe-layered double oxide/cobalt oxide heterojunction semiconductor for dye degradation applications. *Particuology*, 74(2023), 141-155.