



POLİTEKNİK DERGİSİ

*JOURNAL of POLYTECHNIC*

ISSN: 1302-0900 (PRINT), ISSN: 2147-9429 (ONLINE)

URL: <http://dergipark.org.tr/politeknik>



# Titanyum dioksit/indirgenmiş grafen oksit kompozitlerin üretimi ve fotokatalitik özelliklerinin incelenmesi

## *Production of titanium dioxide/reduced graphene oxide composites and investigation of their photocatalytic properties*

*Yazar(lar) (Author(s)):* Metin YURDDAŞKAL<sup>1</sup>, Uğur KARTAL<sup>2</sup>, Eyyüp Can DOLUEL<sup>3</sup>

*ORCID<sup>1</sup>:* 0000-0001-7293-1216

*ORCID<sup>2</sup>:* 0000-0002-5557-2300

*ORCID<sup>3</sup>:* 0000-0002-7018-0743

**Bu makaleye şu şekilde atıfta bulunabilirsiniz (To cite to this article):** Yurddaşkal M., Kartal U. ve Doluel E. C., "Titanyum dioksit/indirgenmiş grafen oksit kompozitlerin üretimi ve fotokatalitik özelliklerinin incelenmesi", *Politeknik Dergisi*, 23(1): 249-255, (2020).

**Erişim linki (To link to this article):** <http://dergipark.gov.tr/politeknik/archive>

**DOI:** 10.2339/politeknik.537900

# Titanyum Dioksit/İndirgenmiş Grafen Oksit Kompozitlerin Üretimi ve Fotokatalitik Özelliklerinin İncelenmesi

*Araştırma Makalesi / Research Article*

Metin YURDDAŞKAL<sup>1,2\*</sup>, Uğur KARTAL<sup>3</sup>, Eyyüp Can DOLUEL<sup>3</sup>

<sup>1</sup>Mühendislik Fakültesi, Metalurji ve Malzeme Müh. Bölümü, Dokuz Eylül Üniversitesi, Türkiye

<sup>2</sup>Elektronik Malzemeler Üretim ve Uygulama Merkezi (EMUM), Dokuz Eylül Üniversitesi, Türkiye

<sup>3</sup>Fen Bilimleri Enstitüsü, Dokuz Eylül Üniversitesi, Türkiye

(Geliş/Received : 10.03.2019 ; Kabul/Accepted : 27.03.2019)

## ÖZ

Bu çalışmada, titanyum dioksit/indirgenmiş grafen oksit (TiO<sub>2</sub>/rGO) kompozitleri sol-jel yöntemi kullanılarak sentezlenmiştir. Hummers metodu ile üretilen grafen oksitten (GO) kimyasal indirgeme yardımıyla rGO elde edilmiştir. TiO<sub>2</sub>/rGO kompozitleri ağırlıkça % 0,5, 1, 2, 4, 6 oranlarında rGO içerecek şekilde üretilmiş olup rGO katkısının yapısal, morfolojik ve fotokatalitik özellikler üzerine etkisi araştırılmıştır. Buna ek olarak TiO<sub>2</sub>/rGO kompozitleri ile karşılaştırma yapabilmek için saf TiO<sub>2</sub>'de üretilmiştir. TiO<sub>2</sub>/rGO kompozitlerinin kristal faz yapısı, yüzey morfolojisi ve kimyasal bağ yapısı XRD, SEM ve FTIR kullanılarak karakterize edilmiştir. Fotokatalitik performansın belirlenmesi için UV-Vis spektroskopisi kullanılarak absorpsiyon değerleri elde edilmiştir. Fotokatalitik özelliklerinin incelenmesi sonucunda ağırlıkça % 4 rGO içeren kompozitin % 87,1'lik bir fotokatalitik parçalamaya sahip olduğu görülmüştür. Bu çalışma, TiO<sub>2</sub>'ye ağırlıkça % 4'lük rGO eklenmesiyle elde edilen TiO<sub>2</sub>/rGO kompozitinin fotokatalitik performansı saf TiO<sub>2</sub>'ye kıyasla % 20 artırdığını göstermiştir.

**Anahtar Kelimeler:** Titanyum dioksit, indirgenmiş grafen oksit, fotokataliz, kompozit, sol-jel.

## Production of Titanium Dioxide/Reduced Graphene Oxide Composites and Investigation of Their Photocatalytic Properties

### ABSTRACT

In this study, titanium dioxide/reduced graphene oxide (TiO<sub>2</sub>/rGO) composites were synthesized by sol-gel method. Reduced graphene oxide was obtained with the aid of chemical reduction of graphene oxide (GO) produced by the Hummers method. TiO<sub>2</sub>/rGO composites were produced with different rGO content, 0.5, 1, 2, 4 and 6 wt. %, to investigate the effect of rGO addition on structural, morphological and photocatalytic properties. In addition, the pure TiO<sub>2</sub> was also produced for comparison with all TiO<sub>2</sub>/rGO composites. The crystal phase structure, surface morphology, and chemical bond structure of TiO<sub>2</sub>/rGO composites were characterized using an XRD, SEM, and FTIR. Absorbance values were obtained by UV-Vis spectroscopy to determine the photocatalytic performance. As a result of the investigation of photocatalytic properties, it was observed that the composite containing 4 wt. % of rGO has a photocatalytic degradation efficiency of 87.1%. This study demonstrated that the TiO<sub>2</sub>/rGO composite obtained by the addition of 4 wt. % of rGO to TiO<sub>2</sub> enhanced the photocatalytic performance by 20% compared to pure TiO<sub>2</sub>.

**Keywords:** Titanium dioxide, reduced graphene oxide, photocatalysis, composite, sol-gel.

### 1. GİRİŞ (INTRODUCTION)

Elektro-optik özellikleri sebebiyle yenilenebilir enerji ve fotokatalitik uygulamalarda son zamanlarda sıklıkla kullanılır hale gelen TiO<sub>2</sub>, yarıiletken malzemeler arasında ön plana çıkmaktadır [1–4]. TiO<sub>2</sub>, üstün fotokatalitik özellikleri sayesinde atık sularındaki organik kirliliklerin giderilmesinde de kullanılmaktadır. Fakat TiO<sub>2</sub>'nin nispeten geniş bant aralığına (3,0-3,2 eV) sahip olması ve ışıkla uyarıldığında elektron boşluk çiftlerinin hızlı yeniden birleşmesi sonucu görünür ışığı sınırlı seviyede soğurmaktadır [1,5–8]. Literatürde TiO<sub>2</sub>'nin

bant aralığının daraltılması için başka bir yarıiletken ile kompozit oluşturma, metal ve metal dışı katkılar ekleme, karbon esaslı malzemeler ile modifiye etme gibi yöntemler kullanılmaktadır [5,9–12]. Son yıllarda özellikle karbon esaslı malzemelerden; karbon nanotüp [13], grafen [14] ve indirgenmiş grafen oksit [15] gibi katkıların TiO<sub>2</sub> yapısına eklenerek modifiye edilmesiyle fotokatalitik özelliklerin iyileştirilmesi üzerine çalışmalar yapılmaktadır.

Grafen tek atom kalınlığında, karbon atomlarının altıgen yapıda bir araya gelmesiyle oluşan iki boyutlu bir malzeme olarak tanımlanmaktadır. Bu malzeme yüksek elektron taşıma kapasitesi, çok geniş yüzey alanı, yüksek termal ve elektriksel iletkenlik gibi birçok üstün özelliğe

\*Sorumlu Yazar (Corresponding Author)  
e-posta : metin.yurddaskal@deu.edu.tr

sahip olması sebebiyle son zamanlarda ileri teknoloji malzeme çalışmalarında kullanımı oldukça önem kazanmıştır [16–18]. Grafen, geniş yüzey alanına sahip olmasının yanı sıra yüksek elektron mobilitesi, absorplama ve ışığa karşı duyarlılığı artırma yetenekleri sayesinde ışıkla uyarılmış olan elektronları  $TiO_2$  bant aralığında hızlıca ileterek yariletken malzemelerin fotokatalitik aktivitesini geliştirmektedir [16,19–22]. Ancak, grafenin hidrofobik yapıda olması çözelti içerisinde homojen bir şekilde dağılmasını engellemektedir. Sıvı ortam içerisinde grafen oksite hidroksil, karboksil ve ester gibi oksijen içerikli fonksiyonel grupların bağlı olması tabakaların kolay ve homojen bir şekilde ayrışmasına katkı sağlamaktadır. Literatürde etkili ve kolay bir şekilde GO sentezlemek için modifiye edilmiş Hummers yöntemi oldukça sık kullanılmaktadır [23,24]. Ancak bu fonksiyonel grupların GO yapısına eklenmesiyle elektron hareketliliğini de azalmaktadır. Bu nedenle daha kararlı yapıda olan ve grafen ile benzer özellikler gösteren rGO fotokatalitik çalışmalarda karbon içerikli katkı olarak tercih edilmektedir [16,25,26].

Bu çalışmada, Hummers yöntemi ile elde edilen GO kimyasal işlemlerle indirgenerek rGO elde edilmiştir. Sentezlenen rGO, farklı katkı oranlarıyla  $TiO_2$  yapısına ilave edilerek sol-jel yöntemi ile  $TiO_2$ /rGO kompozitleri üretilmiştir. Sol-jel yöntemiyle üretilen saf  $TiO_2$  ve ağırlıkça % 0,5, 1, 2, 4 ve 6 rGO katkısıyla elde edilen  $TiO_2$ /rGO kompozitlerinin yapısal, morfolojik ve fotokatalitik özellikleri detaylıca incelenmiştir.

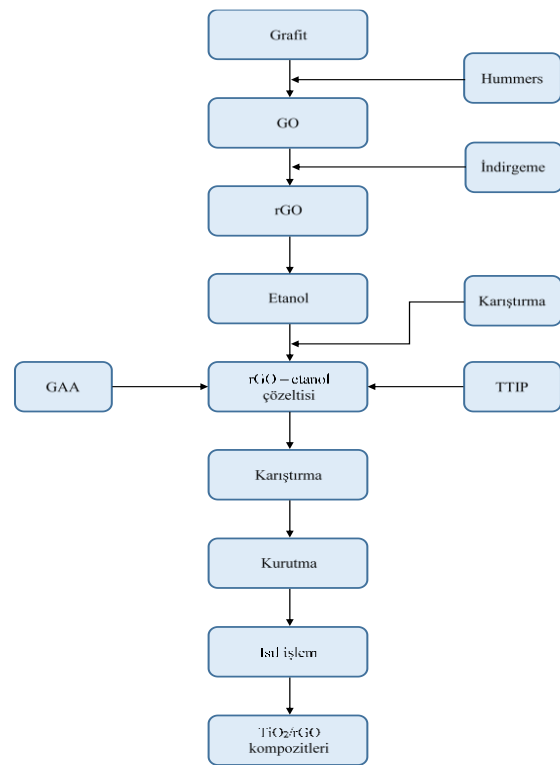
## 2. MATERYAL VE METOD (MATERIAL AND METHOD)

Grafit tozu kullanılarak grafen oksit sentezlenmesinde Hummers metodundan faydalanılmıştır. Bir beherdeki 25 ml sülfürik asit ( $H_2SO_4$ ) içerisine 1 g grafit eklendikten sonra buz banyosu içerisinde sıcaklık  $20\text{ }^\circ\text{C}$ 'nin altında olacak şekilde 600 rpm hızda manyetik karıştırıcıda 30 dk boyunca karıştırılmıştır. Ardından 3 g potasyum permanganat ( $KMnO_4$ ) çok yavaş bir şekilde çözeltinin içine eklendikten sonra aynı sıcaklığı koruyarak 3 saat boyunca karıştırmaya devam edilmiştir. Daha sonra, artmaya başlayan sıcaklık  $50\text{ }^\circ\text{C}$ 'nin altındaki değerlerde tutularak çözelti içerisine 150 ml saf su yavaşça eklenmiştir. Çözeltinin rengi siyahtan kahverengi oluncaya kadar yaklaşık 1 saat boyunca karıştırma işlemi sürdürülmüştür. Renk değişimi gözlemlendikten sonra 5 ml hidrojen peroksit ( $H_2O_2$ ) çözeltiye eklenerek 1 saat daha karıştırılmıştır. Bu işlemlerin tamamlanmasının ardından çözülden alınan GO tozları yıkama işlemleri için 900 ml saf su ve 100 ml hidroklorik asit (HCl) içerisine eklenmiştir. 10 dakika karıştırılan çözelti 5000 rpm hızda 20 dk boyunca 3 defa santrifüj işlemine tabi tutulmuştur. Elde edilen GO tozları  $80\text{ }^\circ\text{C}$ 'de kurutulmuştur.

İndirgenmiş grafen oksit tozlarının elde edilebilmesi için sentezlenen GO tozları 3mg/ml oranında saf su içerisinde çözeltiye alınmıştır. 1µl/3mg oranında hidrazin hidrat

( $N_2H_4$ ) bu çözeltiye eklenip 300 rpm hız ve  $80\text{ }^\circ\text{C}$ 'de 12 saat boyunca reflux sistemi kullanılarak karıştırılmıştır. Karıştırma işleminden sonra elde edilen çözelti 2 defa santrifüj ile yıkama işlemine tabi tutulmuş ve elde edilen rGO tozları  $80\text{ }^\circ\text{C}$ 'de kurutulmuştur.

Ağırlıkça % 0,5, 1, 2, 4 ve 6 rGO katkılı  $TiO_2$ /rGO kompozitlerinin üretilmesi için belirtilen oranlarda rGO, 5 ml titanyum tetraizopropoksit (TTIP) ve 3 ml glasiyal asetik asit (GAA) karışımı hazırlanarak oda sıcaklığında 5 saat boyunca karıştırılmıştır. Jelleşme sonrası kurutulmuş malzemeye  $500\text{ }^\circ\text{C}$ 'de 2 saat boyunca ısı işlemi yapılmıştır [27]. Elde edilen  $TiO_2$ /rGO kompozitlerin içerisinde bulunan rGO miktarını gösterecek şekilde numuneler T0, T05, T1, T2, T4 ve T6 olarak isimlendirilmiştir. Üretim sürecinin tüm aşamaları Şekil 1'de detaylı olarak gösterilmiştir.



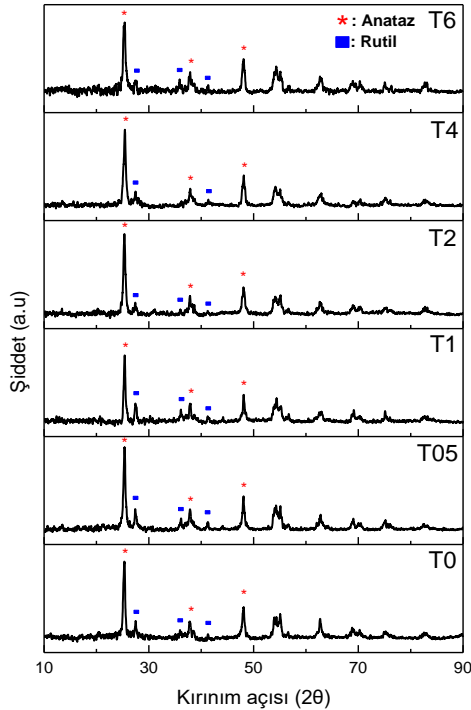
Şekil 1. Sol-jel yöntemiyle  $TiO_2$ /rGO kompozit üretimi akış şeması ( $TiO_2$ /rGO composite production flow chart by sol-gel method)

Farklı katkı oranlarına sahip  $TiO_2$ /rGO kompozitlerinin faz yapısı, Ni-filtreli Cu  $K\alpha$  ışınmasına sahip X-ışını kırınımı (XRD, Thermo ARL X'TRA) kullanılarak incelenmiştir. X-ışını kırınım analizleri  $2^\circ/\text{dk}$  hızında  $5^\circ$ - $90^\circ$  aralığında gerçekleştirilmiştir.  $TiO_2$ /rGO kompozitlerin yüzey morfolojileri taramalı elektron mikroskobu (SEM, Coxem EM-30 Plus) kullanılarak incelenmiştir.  $TiO_2$ /rGO kompozitlerinde katkı oranına bağlı olarak değişen fonksiyonel grupların ve kimyasal bağların incelenmesi amacıyla Fourier dönüşümlü kızılötesi spektroskopisi (FTIR, Thermo Scientific Nicolet IS10) kullanılmıştır.

Farklı rGO oranlarında üretilen  $TiO_2$ /rGO kompozitlerin fotokatalitik özelliklerini belirlemek amacıyla her birinden 0,03 g toz alınarak  $10^{-5}$  M konsantrasyona sahip 30 ml metilen mavisi (MM) çözeltilerine eklenmiştir. Fotokatalitik reaktör içerisine yerleştirilen çözeltiler 240 dk boyunca 300 Watt gücündeki Osram UltraVitalux E27 UV lamba (%4,53 UVA, %1 UVB, %94,47 Vis) ile uyarılıp belirli zaman aralıklarında örnekler alınarak UV-Vis spektrofotometresi (UV-Vis, UV-1240 Shimadzu Spectrophotometer) ile absorpsiyon değerleri ölçülmüştür.

### 3. SONUÇLAR VE TARTIŞMA (RESULTS AND DISCUSSION)

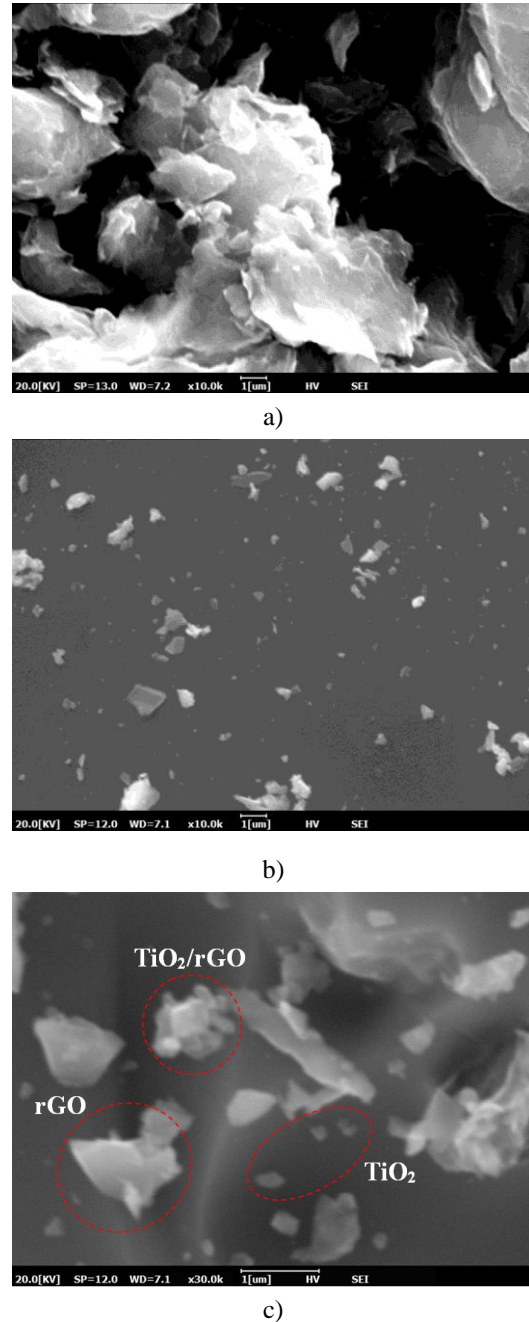
Şekil 2’de  $TiO_2$ /rGO kompozitlerine ait XRD grafikleri verilmiştir. Bu grafikler incelendiğinde  $TiO_2$ ’ye ait anataz ve rutil fazları görülmektedir. Yapı içerisindeki fazların % 93’ünün anataz fazı ve % 7’sinin rutil fazı olarak bulunduğu paket programlar aracılığıyla tespit edilmiştir. Elde edilen grafikler anataz fazına ait JCPDS no: 00-021-1272 ile uyumaktadır [28].  $TiO_2$ ’ye ait 25,38, 37,96, 48,04, 53,94 ve 54,20 derecelerinin sırasıyla 101, 004, 200, 105 ve 211 düzlemlerine ait karakteristik piklerin belirgin bir şekilde anataz fazına ait olduğu görülmektedir. rGO’ya ait olan  $26^\circ$  civarındaki yaygın pikin şiddeti, katkı oranının az olması nedeniyle oldukça düşüktür. Söz konusu pikin anataz fazındaki  $TiO_2$ ’ye ait olan  $25.38^\circ$ ’deki 101 düzlemini belirten pike kıyasla görülemeyecek kadar küçük kaldığından dolayı spektrum üzerinde gösterilememiştir.



Şekil 2. Numunelere ait XRD desenleri (XRD patterns of the samples)

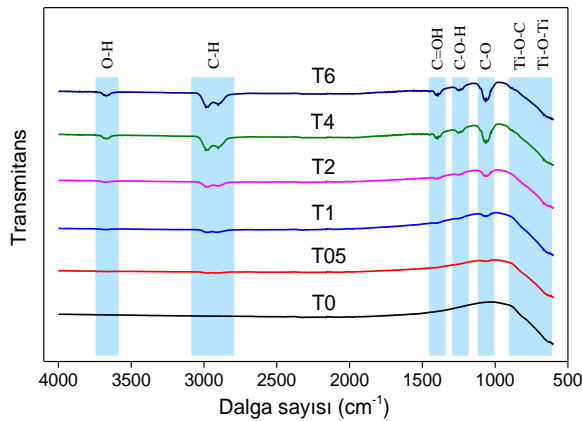
Şekil 3a’daki SEM görüntüsü incelendiğinde kıvrımlı şekilde oluşmuş 2 boyutlu rGO levhaları görülmektedir.

Şekil 3b’de ise sol-jel yöntemiyle sentezlenen  $TiO_2$  parçacıklarının nano boyutlu olduğu görülmektedir. Bunun yanı sıra bir miktar topaklanma olduğu da gözlemlenmektedir. Şekil 3c’de rGO yüzeyine tutunmuş  $TiO_2$  nano parçacıklarından oluşan  $TiO_2$ /rGO yapısı açıkça görülmektedir. Aynı zamanda yapı içerisinde birbiri ile etkileşimde bulunmamış olan serbest rGO ve  $TiO_2$ ’ler de bulunmaktadır.  $TiO_2$  nanoparçacıkları, rGO levhaları ve  $TiO_2$ /rGO kompozit yapıları Şekil 3c’de gösterilmiştir.



Şekil 3. Numunelere ait SEM görüntüleri (a) rGO, (b)  $TiO_2$  (c) % 4 rGO katkılı  $TiO_2$ /rGO kompoziti (SEM images of the samples (a) rGO, (b)  $TiO_2$  (c)  $TiO_2$ /rGO composite with 4% rGO)

TiO<sub>2</sub>/rGO kompozitlerine ait Ti-O-Ti ve Ti-O-C titreşimlerinin ve katkı oranına bağlı olarak değişen fonksiyonel grupların ve kimyasal bağların incelenmesi amacıyla elde edilen FTIR sonuçları Şekil 4'te görülmektedir. Dalga sayısı 1000 cm<sup>-1</sup>'in altındaki değerlerde Ti-O-Ti ve Ti-O-C bağ yapısına ait bölge görülmektedir [29–31]. Yapı içerisindeki rGO katkı miktarının artmasıyla birlikte rGO'ya ait olan 1000-3500 cm<sup>-1</sup> dalga sayıları arasındaki karakteristik C-O (1064 cm<sup>-1</sup>), C-O-H (1240 cm<sup>-1</sup>), C=OH (1400 cm<sup>-1</sup>), C-H (2900 – 2990 cm<sup>-1</sup>) ve O-H (3670 cm<sup>-1</sup>) pikleri de katkı oranıyla orantılı olarak büyümüşür [26,30,32–34]. FTIR analizinden de anlaşılacağı üzere TiO<sub>2</sub>/rGO kompozitlerin üretiminin başarılı bir şekilde gerçekleştirildiği söylenebilir.



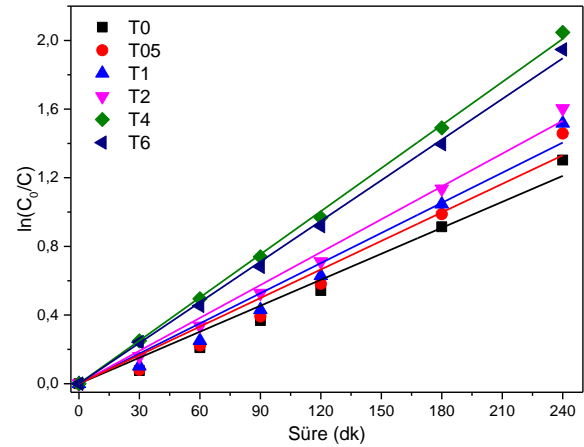
Şekil 4. Numunelere ait FTIR spektrumları (FTIR spectra of the samples)

10<sup>-5</sup> molarlık MM içerisine eklenen TiO<sub>2</sub>/rGO kompozitlerinin fotokatalitik performansları belirli zaman aralıklarında MM'nin absorptans verilerinin ölçülmesiyle değerlendirilmiştir. Fotokatalitik etki ile fotokatalizörler zamanla MM sulu çözeltisini parçalayarak renginin giderilmesine sebep olmaktadır. MM'nin 664 nm'deki karakteristik pikine ait absorptans değerlerinden Lambert-Beer yasası kullanılarak konsantrasyon verileri elde edilmiştir [10]. Elde edilen ln(C<sub>0</sub>/C) değerlerinin zamanla değişimi Şekil 5'e aktarılmıştır. Bu değerlerin birinci dereceden Lambert-Beer yasasına uyumlu olduğu belirlenmiş ve aşağıdaki denklem kullanılarak fotokatalitik parçalanma hızı tüm numuneler için hesaplanmıştır. Tüm numunelere ait fotokatalitik parametreler Çizelge 1'de verilmiştir.

$$\ln \frac{C_0}{C} = kt \quad (1)$$

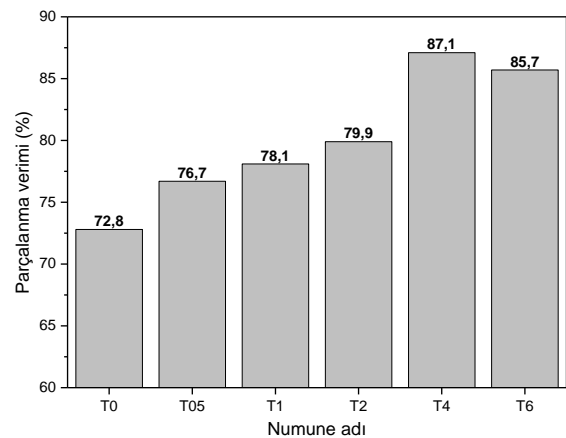
Bu denklemde C<sub>0</sub>; MM'nin başlangıç konsantrasyonunu, C ise herhangi bir t anındaki konsantrasyonunu vermektedir. Parçalanma hızı ise k olarak gösterilmiştir. Şekil 5'te oluşturulan grafiğin eğimi k değerini vermektedir. Elde edilen k değerleri, MM'nin fotokatalitik parçalanmasının TiO<sub>2</sub>/rGO kompozitlerindeki rGO miktarının artmasıyla önemli ölçüde arttığını göstermektedir. T4 numunesi maksimum

parçalanma hızına sahip olmuştur. Bu katkı oranından daha yüksek katkı oranına sahip T6 numunesi kullanılarak MM'nin parçalanmasının azaldığı görülmektedir.



Şekil 5. TiO<sub>2</sub>/rGO kompozitlerinin fotokatalitik performansları (Photocatalytic performances of the TiO<sub>2</sub>/rGO composites)

664 nm'deki başlangıç absorptans değeri 0,666 olan MM'nin farklı numuneler tarafından parçalanma verimleri hesaplanmış ve Çizelge 1'de belirtilmiş ve Şekil 6'ya aktarılmıştır. Bu grafik incelendiğinde T4 kompozitinin en iyi fotokatalitik performans sergilediği görülmektedir. T4 numunesi MM'yi 240 dakikada % 87,1 oranında parçalanırken, T0 numunesi ise % 72,8 oranında parçalanma verimi göstermiştir. Diğer bir deyişle, %4 rGO katkılı TiO<sub>2</sub>/rGO kompoziti saf TiO<sub>2</sub>'ye göre % 20 oranında daha fazla parçalanma verimi sergilemiştir. Bir diğer gözlem olarak da, T4 numunesine kadar fotokatalitik performans artarken T6 numunesinde ise bu performansın azaldığı görülmektedir.



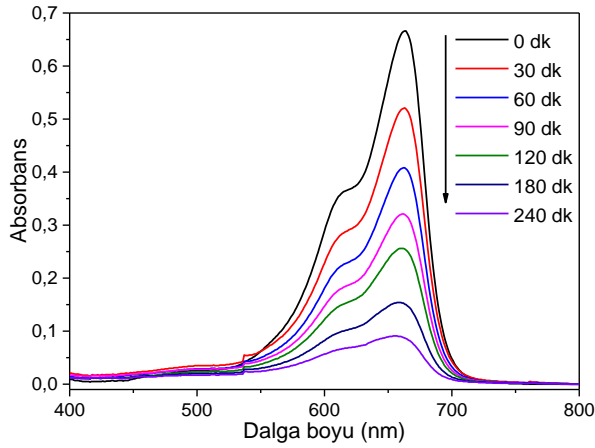
Şekil 6. Farklı kompozitler tarafından parçalanmış MM'nin UV ışık kaynağı altındaki parçalanma verimleri (Degradation efficiencies of MB by different composites under UV irradiation)



**Çizelge 1.** Numunelere ait fotokatalitik parametreler (Photocatalytic parameters of the samples)

Numune adı	T0	T05	T1	T2	T4	T6
Parçalama verimi (%)	71,8	78,1	79,9	76,7	87,1	85,7
Parçalanma hızı (k) ( $10^{-4}, dk^{-1}$ )	50,5	55,4	58,5	63,8	83,7	79
R <sup>2</sup>	0,9943	0,9926	0,9947	0,9986	0,9998	0,9996

Fotokatalitik performans ve MM'nin parçalanma verimi grafikleri incelendiğinde en iyi fotokatalitik performansın T4 numunesi ile sağlandığı açıkça görülmektedir. T4 numunesine ait fotokatalitik parçalama grafiği farklı süreler için oluşturulmuş ve Şekil 7'de gösterilmiştir. 664 nm'deki başlangıç absorbans değeri 0,666 olan MM, T4 numunesi kullanılarak UV ışık kaynağı altında 240 dk boyunca parçalanmış ve absorbans değeri 0,0086'ya düşürülmüştür.

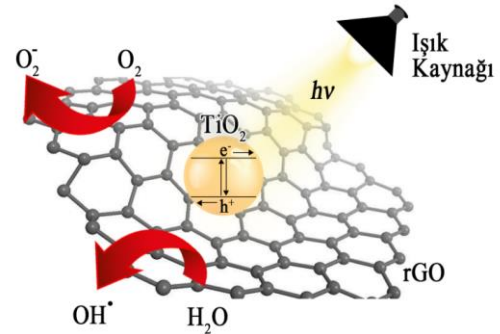


**Şekil 7.** T4 numunesinin varlığında MB çözeltisinin zamana bağlı absorpsiyon spektrumları (The time dependent absorption spectra of the MB solution in the presence of the T4 sample)

TiO<sub>2</sub>/rGO kompozitlerinin fotokatalitik mekanizması Şekil 8'de gösterilmektedir. Işıkla uyarıldığında TiO<sub>2</sub>'nin valans bandındaki elektronların iletim bandına geçişi sağlanır. Böylece valans bandında boşluklar (h<sup>+</sup>) oluşurken elektronlar (e<sup>-</sup>) iletim bandına geçer. TiO<sub>2</sub> normalde ışıkla uyarıldığında elektron boşluk çiftleri hızlıca yeniden birleşir. Ancak rGO yapıya katıldığında iletken banda geçen elektronlar valans bandındaki boşluklara geri gelmek yerine elektriksel iletimi çok iyi olan rGO levhaları üzerine geçiş yapma eğiliminde olurlar. Elektron boşluk yeniden birleşmesi engellendiği için fotokatalitik özellikler T4 numunesine kadar iyileşmiştir. Ancak T6 numunesinde fotokatalitik verimin düştüğü görülmektedir. Bunun sebebi olarak artan rGO miktarı TiO<sub>2</sub> nano parçacıkları ile ışık kaynağı arasında bir bariyer gibi davranması sonucu UV

ışık kaynağı tarafından oluşturulan yük taşıyıcılarının konsantrasyonunun nispeten azalması gösterilebilir

[35,36]. Oksijen molekülleri (O<sub>2</sub>), ışıkla uyarıldığında TiO<sub>2</sub>/rGO kompozitindeki TiO<sub>2</sub>'den ortaya çıkan O<sub>2</sub>'ler ile indirgenerek süper oksit radikal anyonlarını (•O<sub>2</sub><sup>-</sup>) oluştururlar. Bu •O<sub>2</sub><sup>-</sup> yapıları ise MM'yi karbondioksit (CO<sub>2</sub>) ve su (H<sub>2</sub>O) olarak parçalar. MM'nin UV ışık kaynağı altındaki parçalanması esnasında gerçekleşen reaksiyonları şu şekilde sıralayabiliriz:



**Şekil 8.** Fotokatalitik parçalanma mekanizmasının şematik gösterimi (Schematic illustration of photocatalytic degradation mechanism)

#### 4. SONUÇ (CONCLUSION)

Yapılan bu çalışmada, Hummers metodu ile üretilen GO'dan kimyasal indirgeme yöntemi kullanılarak rGO sentezlenmiştir. Elde edilen rGO levhaları, belirlenen oranlarda kullanılarak sol-jel yöntemiyle TiO<sub>2</sub>/rGO kompozitleri üretilmiştir. 500°C'de, 2 saat boyunca ısı işleme tabi tutulan numunelere XRD, SEM ve FTIR karakterizasyon işlemleri uygulanmıştır. Bu karakterizasyon çalışmaları ile numunelerin faz yapısı, kimyasal bağ yapısı ve yüzey morfolojileri incelenmiştir. XRD analizi sonucunda faz yapısının anataz fazı ile uyumlu olduğu, SEM analizi ile rGO ve TiO<sub>2</sub>'nin bir arada bulunduğu, FTIR analizi ile yapıda bulunan bağlara ait karakteristik piklerin büyüklüğünün, katkı oranı ile orantılı olarak arttığı gözlemlenmiştir. Uv-vis spektroskopisi ile elde edilen absorbans verileri

kullanılarak fotokatalitik verim değerleri elde edilmiştir. Daha sonra Lambert-Beer dönüşümü yardımıyla fotokatalitik hız değerleri tüm numuneler için hesaplanmıştır. Hesaplanan bu değerlere göre en iyi fotokatalitik performansı T4 numunesi göstermiştir. Özetle, yüksek performanslı fotokatalizör kompozitlerin oluşturulmasında rGO etkin bir şekilde rol oynamıştır. rGO, fotokatalizörün toplam yüzey alanını artırarak nispeten geniş bant aralıklı bir yarı iletken olan TiO<sub>2</sub>'nin UV ışık altındaki absorpsiyon yeteneğini geliştirmiştir. Bu çalışma sonucunda rGO levhalarının, TiO<sub>2</sub> nanoparçacıkları ile bir araya getirilmesiyle organik kirliliklerin giderilmesinde verimli bir şekilde kullanılabileceği görülmüştür.

#### KAYNAKLAR (REFERENCES)

- [1]. Dargahi, Z., Asgharzadeh, H. and Maleki-Ghaleh, H. "Synthesis of Mo-doped TiO<sub>2</sub>/reduced graphene oxide nanocomposite for photoelectrocatalytic applications" *Ceramics International*, 44(11): 13015–13023, (2018).
- [2]. Ge, M., Chunyan, C., Jianying, H., Shuhui L., Zhong C., Ke Q. Z., Al-Deyab S. S., and Yuekun L. "A review of one-dimensional TiO<sub>2</sub> nanostructured materials for environmental and energy applications" *Journal of Materials Chemistry A*, 4(18): 6772-6801, (2016).
- [3]. Truppi, A., Francesca, P., Tiziana, P., Marinella, S., Angela, A., Maria, C., and Roberto, C. "Visible-light-active TiO<sub>2</sub>-based hybrid nanocatalysts for environmental applications" *Catalysts*, 7(4): 100, (2017).
- [4]. Kim, Ki D., Ta,e Jin L., and Hee, Taik K. "Optimal conditions for synthesis of TiO<sub>2</sub> nanoparticles in semi-batch reactor." *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 224(1-3): 1-9, (2003).
- [5]. Khan, H., Zhuoran, J., and Dimitrios, B. "Molybdenum doped graphene/TiO<sub>2</sub> hybrid photocatalyst for UV/visible photocatalytic applications." *Solar Energy*, 162: 420-430, (2018).
- [6]. Maeda, Kazuhiko. "Photocatalytic water splitting using semiconductor particles: history and recent developments." *Journal of Photochemistry and Photobiology C: Photochemistry Reviews*, 12(4): 237-268, (2011).
- [7]. Mamba, G., Mbianda, X. Y., and Mishra, A. K. "Gadolinium nanoparticle-decorated multiwalled carbon nanotube/titania nanocomposites for degradation of methylene blue in water under simulated solar light." *Environmental Science and Pollution Research*, 21(8): 5597–5609, (2014).
- [8]. Sreeja, S., and Vidya Shetty, K. "Photocatalytic water disinfection under solar Irradiation by Ag@TiO<sub>2</sub> core-shell structured nanoparticles." *Solar Energy*, 157: 236-243, (2017).
- [9]. Behpour, M., Rozita Foulady, D., and Noshin M. "Considering photocatalytic activity of N/F/S-doped TiO<sub>2</sub> thin films in degradation of textile Waste under visible and sunlight irradiation." *Solar Energy*, 158: 636–643, (2017).
- [10]. Demirci, S., Dikici, T., Yurddaskal, M.,Gultekin, S., Toparli, M., and Celik, E. "Synthesis and characterization of Ag doped TiO<sub>2</sub> heterojunction films and their photocatalytic performances." *Applied Surface Science*, 390: 591-601, (2016).
- [11]. Kaur, T., Sraw, A., Toor, A., P., and Wanchoo, R.K. "Utilization of solar energy for the degradation of carbendazim and propiconazole by Fe doped TiO<sub>2</sub>." *Solar Energy*, 125: 65–76, (2016).
- [12]. Yurtsever, H., A., and Çiftçioğlu, M. "Nadir toprak elementi katkili kimyasal çöktürme titanya tozlari ile yapay fotosentezle hidrojen üretimi." *Dokuz Eylül Üniversitesi Mühendislik Fakültesi Fen ve Mühendislik Dergisi*, 17(50): 54-67, (2015).
- [13]. Ahmmad, B., Kusumoto, Y., Somekawa, S., and Ikeda, M. "Carbon nanotubes synergistically enhance photocatalytic activity of TiO<sub>2</sub>." *Catalysis Communications*, 9(6): 1410-1413, (2008).
- [14]. Shi, J., Chen, G., Zeng, G., Chen, A., He K., Huang, Z., Hu, L., Zeng, J., Wu J., and Liu, W. "Hydrothermal synthesis of graphene wrapped Fe-doped TiO<sub>2</sub> nanospheres with high photocatalysis performance." *Ceramics International*, 44(7): 7473-7480, (2018).
- [15]. Vasilaki, E., Georgaki, I., Vernardou, D., Vamvakaki, M., and Katsarakis, N. "Ag-loaded TiO<sub>2</sub>/reduced graphene oxide nanocomposites for enhanced visible-light photocatalytic activity." *Applied Surface Science*, 353: 865–872, (2015).
- [16]. Isari, A.A., Payan, A., Fattahi, M., Jorfi, S., and Kakavandi, B. "Photocatalytic degradation of rhodamine B and real textile wastewater using Fe-doped TiO<sub>2</sub> anchored on reduced graphene oxide (Fe-TiO<sub>2</sub>/RGO): characterization and feasibility, mechanism and pathway studies." *Applied Surface Science*, 462: 549–564, (2018).
- [17]. Li, X., Shen, R., Ma, S., Chen, X., and Xie, J., "Graphene-based heterojunction photocatalysts." *Applied Surface Science* 430: 53-107, (2018).
- [18]. Min, S., Hou, J., Lei, Y., Ma, X., and Lu, G. "Facile one-step hydrothermal synthesis toward strongly coupled TiO<sub>2</sub>/graphene quantum dots photocatalysts for efficient hydrogen evolution." *Applied Surface Science*, 396: 1375–1382, (2017).
- [19]. Chen, C., Zhang Y., Zeng, J., Zhang, F., Zhou, K., Bowen, C.R., and Zhang, D. "Aligned macroporous TiO<sub>2</sub>/chitosan/reduced graphene oxide (rGO) composites for photocatalytic applications." *Applied Surface Science*, 424: 170-176, (2017).
- [20]. Cheng, L., Xiang, Q., Liao, Y., and Zhang, H. "CdS-based photocatalysts." *Energy & Environmental Science*, 11(6): 1362-1391, (2018).
- [21]. Xiang, Q., Yu, J., Jaroniec, M., "Graphene-based semiconductor photocatalysts." *Chem. Soc. Rev.*, 41(2): 782-796, (2012).
- [22]. Xu, Y., Mo, Y., Tian, J., Wang, P., Yu H., and Yu, J. "The synergistic effect of graphitic N and pyrolic N for the enhanced photocatalytic performance of nitrogen-doped graphene/TiO<sub>2</sub> nanocomposites." *Applied Catalysis B: Environmental*, 181: 810-817, (2016).
- [23]. Hummers, W.S., and Richard E.O. "Preparation of graphitic oxide" *Journal of the American Chemical Society*, 80(6): 1339-1339, (1958).
- [24]. Moon, I.K., Lee, J., Ruoff, R.S., and Lee, H. "Reduced graphene oxide by chemical graphitization." *Nature Communications*, 1: 73, (2010).

- [25]. Fan, W., Yu, X., Lu, H.C., Bai, H., Zhang, C., and Shi W. "Fabrication of TiO<sub>2</sub>/RGO/Cu<sub>2</sub>O heterostructure for photoelectrochemical hydrogen production" *Applied Catalysis B: Environmental*, 181: 7-15, (2016).
- [26]. Xiang, Q., Yu, J., and Jaroniec, M. "Enhanced photocatalytic H<sub>2</sub>-production activity of graphene-modified titania nanosheets." *Nanoscale*, 3(9): 3670, (2011).
- [27]. Erol, M., and Bilgin, K. "Boron doped titanium dioxide nanotube arrays: production, characterization and photocatalytic properties" *Journal of Porous Materials*, 24(5): 1295-1302, (2017).
- [28]. Yurddaskal, M., Dikici, T., Yildirim, S., Yurddaskal, M., Toparli, M., and Celik, E. "Fabrication and characterization of nanostructured anatase TiO<sub>2</sub> films prepared by electrochemical anodization and their photocatalytic properties." *Journal of Alloys and Compounds*, 651: 59-71, (2015).
- [29]. Liu, J., Bai, H., Wang, Y., Liu, Z., Zhang, X., and Sun, D.D. "Self-assembling TiO<sub>2</sub> nanorods on large graphene oxide sheets at a two-phase interface and their anti-recombination in photocatalytic applications." *Advanced Functional Materials*, 20(23): 4175-4181, (2010).
- [30]. Tan, L., Ong, W.J., Chai, S.P., and Mohamed, A.R. "Reduced graphene oxide-TiO<sub>2</sub> nanocomposite as a promising visible-light-active photocatalyst for the conversion of carbon dioxide" *Nanoscale Research Letters*, 8(1): 465, (2013).
- [31]. Wang, P., Zhan, S., Xia, Y., Ma, S., Zhou, Q., and Li, Y. "The fundamental role and mechanism of reduced graphene oxide in RGO/Pt-TiO<sub>2</sub> nanocomposite for high-performance photocatalytic water splitting." *Applied Catalysis B: Environmental*, 207: 335-346, (2017).
- [32]. Karimi, L., Yazdanshenas, M.E., Khajavi, R., Rashidi, A., and Mirjalili, M. "Using graphene/TiO<sub>2</sub> nanocomposite as a new route for preparation of electroconductive, self-cleaning, antibacterial and antifungal cotton fabric without toxicity." *Cellulose*, 21, (5): 3813-3827, (2014).
- [33]. Li, G., Wang, T., Zhu, Y., Zhang, S., Mao, C., Wu, J., Jin, B., and Tian, Y. "Preparation and photoelectrochemical performance of Ag/Graphene/TiO<sub>2</sub> composite film." *Applied Surface Science*, 257(15): 6568-6572, (2011).
- [34]. Williams, G., Seger, B., and Kamat, P.V. "TiO<sub>2</sub>-graphene nanocomposites. UV-assisted photocatalytic reduction of graphene oxide." *ACS Nano*, 2(7): 1487-1491, (2008).
- [35]. Police, A.K.R., Chennaiahgari, M., Boddula, R., Vattikuti, S.V.P., Mandari, K.K., and Chan, B. "Single-step hydrothermal synthesis of wrinkled graphene wrapped TiO<sub>2</sub> nanotubes for photocatalytic hydrogen production and supercapacitor applications" *Materials Research Bulletin*, 98: 314-321, (2018).
- [36]. Nainani, R.K., and Thakur, P. "Facile synthesis of TiO<sub>2</sub>-RGO composite with enhanced performance for the photocatalytic mineralization of organic pollutants." *Water Science and Technology*, 73(8): 1927-1936, (2016).