

T.C.
SAKARYA ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

SULU ÇÖZELTİLERDEN METİLEN MAVİSİ GİDERİMİ İÇİN
Te/ZnO/C₂N₃ FOTOKATALİZÖRÜNÜN SENTEZİ,
KARAKTERİZASYONU VE OPTİMİZASYONU

DOKTORA TEZİ

Muhammed HAS

Çevre Mühendisliği Anabilim Dalı

HAZİRAN 2025

T.C.
SAKARYA ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

SULU ÇÖZELTİLERDEN METİLEN MAVİSİ GİDERİMİ İÇİN
Te/ZnO/C₂N₃ FOTOKATALİZÖRÜNÜN SENTEZİ,
KARAKTERİZASYONU VE OPTİMİZASYONU

DOKTORA TEZİ

Muhammed HAS

Çevre Mühendisliği Anabilim Dalı

Tez Danışmanı: Doç. Dr. Füsun BOYSAN

Ortak Danışman: Prof. Dr. Abdil ÖZDEMİR

HAZİRAN 2025

Muhammed HAS tarafından hazırlanan “Tekstil Atıksuyundaki Boyar Maddelerin Giderimi İçin Fotokatalizör Sentezi, Karakterizasyonu ve Optimizasyonu” adlı tez çalışması 17.06.2025 tarihinde aşağıdaki jüri tarafından oy birliği/oy çokluğu ile Sakarya Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Çevre Mühendisliği Anabilim Dalı’nda Doktora tezi olarak kabul edilmiştir.

Tez Jürisi

Jüri Başkanı :	Prof. Dr. Mustafa GÜLFEN Sakarya Üniversitesi	
Jüri Üyesi :	Doç. Dr. Füsun BOYSAN Sakarya Üniversitesi	
Jüri Üyesi :	Doç. Dr. Berna KIRIL MERT Sakarya Üniversitesi	
Jüri Üyesi : (	Prof. Dr. Esra ALTINTIĞ Sakarya Uygulamalı Bilimler Üniversitesi	
Jüri Üyesi :	Doç. Dr. Nazire Pınar TANATTI Sakarya Uygulamalı Bilimler Üniversitesi	



ETİK İLKE VE KURALLARA UYGUNLUK BEYANNAMESİ

Sakarya Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Lisansüstü Eğitim-Öğretim Yönetmeliğine ve Yükseköğretim Kurumları Bilimsel Araştırma ve Yayın Etiği Yönergesine uygun olarak hazırlamış olduğum “Tekstil Atıksuyundaki Boyar Maddelerin Giderimi İçin Fotokatalizör Sentezi, Karakterizasyonu ve Optimizasyonu” başlıklı tezin bana ait, özgün bir çalışma olduğunu; çalışmamın tüm aşamalarında yukarıda belirtilen yönetmelik ve yönergeye uygun davrandığımı, tezin içerdiği yenilik ve sonuçları başka bir yerden almadığımı, tezde kullandığım eserleri usulüne göre kaynak olarak gösterdiğimi, bu tezi başka bir bilim kuruluna akademik amaç ve unvan almak amacıyla vermediğimi ve 20.04.2016 tarihli Resmi Gazete’de yayımlanan Lisansüstü Eğitim ve Öğretim Yönetmeliğinin 9/2 ve 22/2 maddeleri gereğince Sakarya Üniversitesi’nin abonesi olduğu intihal yazılım programı kullanılarak Enstitü tarafından belirlenmiş ölçütlere uygun rapor alındığını, çalışmamla ilgili yaptığım bu beyana aykırı bir durumun ortaya çıkması halinde doğabilecek her türlü hukuki sorumluluğu kabul ettiğimi beyan ederim.

(17/06/2025).

Muhammed HAS





Eşime ve aileme



TEŞEKKÜR

Doktora sürecim de dâhil olmak üzere, akademik hayatımın her aşamasında bana destek olan, akademik etik anlayışını kazanmamda ve bilimsel düşünce sistemimi geliştirmemde önemli rol oynayan, her zaman rehberliğini hissettiğim değerli hocam Doç. Dr. Füsün BOYSAN’a en içten teşekkürlerimi sunarım.

Tez çalışmamın her aşamasında bilimsel yönlendirmeleriyle katkı sunan ve ortak danışmanlığımı üstlenen kıymetli hocam Prof. Dr. Abdil ÖZDEMİR’e teşekkür ederim.

Laboratuvar çalışmalarını birlikte yürüttüğüm, süreç boyunca desteğini esirgemeyen değerli arkadaşım Nijat JABRAYILOV’a teşekkür ederim.

Hayatımın her alanında olduğu gibi, bu zorlu akademik süreçte de bilgi birikimi, özverili desteği ve sevgisiyle yanımda olan eşim Arş. Gör. Meliha Gizem HAS’a, hem bir akademisyen hem de hayat arkadaşım olarak sunduğu katkılar için gönülden teşekkür ederim.

Akademik kariyerim boyunca her zaman bana inanan, maddi ve manevi destekleriyle yanımda olan aileme ve dostlarıma teşekkür ederim.

Bu çalışmanın mali olarak desteklenmesini sağlayan Sakarya Üniversitesi Bilimsel Araştırma Projeleri (BAP) Komisyon Başkanlığına (Proje No: 2022-6-23-51) teşekkür ederim.

Muhammed HAS



İÇİNDEKİLER

Sayfa

ETİK İLKE VE KURALLARA UYGUNLUK BEYANNAMESİ	v
TEŞEKKÜR	ix
İÇİNDEKİLER	xi
KISALTMALAR	xiii
SİMGELER	xv
TABLO LİSTESİ	xvii
ŞEKİL LİSTESİ	xix
ÖZET	xxi
SUMMARY	xxiii
1. GİRİŞ	1
2. BOYAR MADDELER	3
2.1. Boyar Madde Türleri	4
2.2. Metilen Mavisi	6
3. FOTOKATALİTİK ARITIM	9
3.1. Fotokatalitik Reaksiyonların Mekanizması ve Temel Aşamaları	10
3.2. Fotokatalitik Heteroyapı Türleri	10
3.3. Karbon Nitrür Bazlı Fotokatalizörler	12
3.4. Çinko Oksit Tabanlı Fotokatalizörler	13
4. MATERYAL VE YÖNTEM	17
4.1. Cihaz ve Materyaller	17
4.2. Katalizör sentezi	17
4.2.1. C ₂ N ₃	17
4.2.2. Te/ZnO/C ₂ N ₃	18
4.3. Fotokatalitik Metilen Mavisi Giderimi	19
5. DENEYSEL BULGULAR VE TARTIŞMA	23
5.1. Karakterizasyon	23
5.1.1. Morfolojik özellikler	23
5.1.2. XRD spektrumları	25
5.1.3. FT-IR spektrumları	26
5.1.4. UV-Vis DRS spektrumları	28
5.1.5. Foto-elektrokimyasal özellikler	29
5.1.6. Te/ZnO/C ₂ N ₃ üçlü kompozitinin Z-tipi bant yapısı ve fotokatalitik yük aktarımı	31
5.2. Metilen Mavisi'nin Fotokatalitik Giderimi	33
5.2.1. C ₂ N ₃ oranının optimizasyonu	34
5.2.2. Tellür oranının optimizasyonu	35
5.2.3. İkili ve tekli katalizörlerin fotokatalitik performanslarının karşılaştırılması	36
5.2.4. Karanlık ortamda adsorpsiyon etkisinin değerlendirilmesi	37
5.2.5. Te/ZnO/C ₂ N ₃ üçlü kompozitinin metilen mavi gideriminin spektrum taraması ile incelenmesi	39

6. SONUÇLAR	41
KAYNAKLAR.....	43
ÖZGEÇMİŞ	51



KISALTMALAR

CdS	: Kadmiyum sülfür
DRS	: Difüze yansıma spektroskopisi
EDS	: Enerji Dağıtıcı X-ışını Spektroskopisi
EIS	: Elektrokimyasal Empedans Spektroskopisi
FT-IR	: Fourier Dönüşüm Infrared Spektroskopisi
GO	: Grafen oksit
g-C₃N₄	: Grafitik karbon nitrür
JCPDS	: Joint Committee on Powder Diffraction Standards
KBr	: Potasyum bromür
MB	: Methylene Blue
MM	: Metilen Mavisi
MOF	: Metal-organik kafes yapıları
ROS	: Reaktif oksijen türleri
TiO₂	: Titanyum dioksit
UVA	: Ultraviyole A ışını
UVB	: Ultraviyole B ışını
WO₃	: Tungsten trioksit
ZnO	: Çinko oksit



SİMGELER

C	:Karbon
CB	:İletkenlik bandı
E_g	:Bant aralığı
E_e	:Serbest elektronun vakum seviyesi
eV	:Elektron volt
g	:Gram
I	:Akım
L	:Litre
mg	:Miligram
mL	:Mililitre
nm	:Nanometre
O	:Oksijen
O₂	:Oksijen molekülü
q	:Elektrik yükü
sn	:Saniye
Te	:Tellür
TeO₂	:Tellür dioksit
V	:Volt
VB	:Değerlik bandı
χ	:Elektronegatiflik
Zn	:Çinko



TABLO LİSTESİ

Sayfa

Tablo 5.1. ZnO, C ₂ N ₃ ve Te'nin bant yapısı değerleri	32
Tablo 5.2. Farklı C ₂ N ₃ oranlarında hazırlanmış Te/ZnO/C ₂ N ₃ fotokatalizörlerinin metilen mavisi üzerine fotokatalitik giderim verimlerinin karşılaştırılması	34
Tablo 5.3. Farklı Te oranlarında hazırlanmış Te/ZnO/C ₂ N ₃ fotokatalizörlerinin metilen mavisi üzerine fotokatalitik giderim verimlerinin karşılaştırılması	36
Tablo 5.4. Farklı tekli ve ikili katalizörler ile üçlü Te/ZnO/C ₂ N ₃ (%5) kompozit yapısının metilen mavisi üzerine fotokatalitik giderim verimlerinin karşılaştırılması	37
Tablo 5.5. Te/ZnO/C ₂ N ₃ katalizörünün karanlık ve aydınlıkta metilen mavisi üzerine fotokatalitik giderim verimlerinin karşılaştırılması	38



ŞEKİL LİSTESİ

Sayfa

Şekil 2.1. Metilen mavisinin kimyasal yapısı	6
Şekil 3.1. Fotokatalitik Heteroyapı Türleri(Fernández-Catalá ve ark., 2022)	12
Şekil 4.1. C_2N_3	18
Şekil 4.2. Te/ZnO/ C_2N_3 sentez diyagramı	19
Şekil 4.3. Te/ZnO/ C_2N_3	19
Şekil 4.4. Fotokatalitik deney düzeneği diyagramı.....	20
Şekil 4.5. Kullanılan ışık kaynağının spektral dağılımı(Sinyal yoğunluğu– counts)	21
Şekil 5.1. (a) C_2N_3 (b)Te/ZnO/ C_2N_3 , FESEM görüntüleri.....	23
Şekil 5.2. Te/ZnO/ C_2N_3 EDS Spektrumu	24
Şekil 5.3. Te/ZnO/ C_2N_3 Elemental haritalaması.....	25
Şekil 5.4. Te/ZnO/ C_2N_3 XRD Spektrumu	26
Şekil 5.5. Fotokatalizörlerin FT-IR spektrumları	27
Şekil 5.6. Fotokatalizörlerin (a) UV-Vis DRS spektrumları, (b) Tauc eğrileri	28
Şekil 5.7. Fotoakım ölçümleri.....	30
Şekil 5.8. Fotokatalizörlerin Nyquist grafiği	30
Şekil 5.9. Te/ZnO/ C_2N_3 kompozitinde önerilen Z-Şeması yük taşıma mekanizması	33
Şekil 5.10. Farklı C_2N_3 oranlarında hazırlanmış Te/ZnO/ C_2N_3 fotokatalizörlerinin metilen mavisi üzerine fotokatalitik giderim verimlerinin karşılaştırılması	35
Şekil 5.11. Farklı Te oranlarında hazırlanmış Te/ZnO/ C_2N_3 fotokatalizörlerinin metilen mavisi üzerine fotokatalitik giderim verimlerinin karşılaştırılması	36
Şekil 5.12. Farklı tekli ve ikili katalizörler ile üçlü Te/ZnO/ C_2N_3 (%5) kompozit yapısının metilen mavisi üzerine fotokatalitik giderim verimlerinin karşılaştırılması	37
Şekil 5.13. Te/ZnO/ C_2N_3 katalizörünün karanlık ve aydınlıkta metilen mavisi üzerine fotokatalitik giderim verimlerinin karşılaştırılması	38
Şekil 5.14. a) Karanlıkta, b) aydınlıkta, Te/ZnO/ C_2N_3 fotokatalizörünün metilen mavisi üzerine fotokatalitik giderim verimlerinin karşılaştırılması	39
Şekil 5.15. Optimum oranda hazırlanmış Te/ZnO/ C_2N_3 fotokatalizörlerinin metilen mavisi üzerine fotokatalitik giderim verimlerinin spektrum taraması	39



SULU ÇÖZELTİLERDEN METİLEN MAVİSİ GİDERİMİ İÇİN Te/ZnO/C₂N₃ FOTOKATALİZÖRÜNÜN SENTEZİ, KARAKTERİZASYONU VE OPTİMİZASYONU

ÖZET

Günümüzde enerji ve çevre sorunları önemli bir tehdit oluşturmaktadır. Özellikle atık su üretimi ve arıtımı, artan nüfus ve sanayileşme nedeniyle çevre sağlığını doğrudan etkilemektedir. Bu durum, insan sağlığı, ekosistem dengesi ve ekonomik sürdürülebilirlik açısından ciddi riskler yaratmaktadır. Aynı zamanda fosil yakıt rezervlerinin azalması ve küresel ısınmanın artması, yenilenebilir enerji kaynaklarının geliştirilmesini zorunlu kılmıştır. Güneş enerjisi; temiz, bol ve sürdürülebilir bir kaynak olarak fotokatalitik uygulamalarda umut vadetmektedir. Güneş ışığı ile çalışan fotokataliz sistemleri, çevre dostu yapıları sayesinde hem enerji hem çevre sorunlarına çözüm sunma potansiyeline sahiptir.

Bu çalışmada, tekstil endüstrisinin neden olduğu boyar madde kirliliğinin giderimi için görünür ışık altında etkin bir fotokatalitik sistem geliştirilmesi amaçlanmıştır. Bu kapsamda, C₂N₃ temelli ZnO ve tellür (Te) katkılı heteroyapılar sentezlenerek, metilen mavisi (MM) giderimi üzerindeki performansları incelenmiştir. C₂N₃, yüksek yüzey alanı, uygun bant yapısı ve karbon-nitrür temelli yapısıyla, ZnO gibi geleneksel yarıiletkenlere göre daha etkili ışık absorpsiyonu ve yük taşıyıcı ayrımı sağlayarak fotokatalitik etkinliği artıran bir malzeme olarak öne çıkmaktadır.

Kompozitlerin sentezinde, C₂N₃ oranı %2, %4, %6 ve %8 olarak değiştirilmiş ve MM giderim verimi sırasıyla %63,3, %71,27, %97,62 ve %85,5 olarak ölçülmüştür. En yüksek verim, %6 C₂N₃ içeren kompozit ile elde edilmiştir. Ardından Te oranı %2,5, %5, %7,5 ve %10 olacak şekilde artırılmış ve MM giderim verimi sırasıyla %84,4, %97,62, %91,27 ve %82,6 olarak gözlemlenmiştir. Böylece %5 Te içeren kompozit en yüksek fotokatalitik aktiviteyi göstermiştir.

Karakterizasyonlar kapsamında; sentezlenen fotokatalizörlerin yüzey morfolojisi FESEM ile, elementel bileşimi EDS ve haritalama ile, kristal fazları XRD ile, yüzey fonksiyonel grupları FT-IR ile ve optik özellikleri DRS analizleriyle değerlendirilmiştir. Elde edilen sonuçlar, ZnO'nun çubuksu yapısının C₂N₃ matrisi içinde homojen dağıldığını ve tellürün başarıyla yapıya entegre olduğunu göstermektedir. DRS analizleri, görünür bölgeye kayma ile birlikte bant aralığında iyileşme olduğunu ortaya koymuştur.

Sonuç olarak, bu çalışmada geliştirilen Te/ZnO/C₂N₃ kompoziti; güçlü adsorpsiyon kabiliyeti, düşük yük transfer direnci, yüksek taşıyıcı ayrışma etkinliği ve Z yapılı heteroyapı karakteri sayesinde etkili bir fotokatalizör olduğunu göstermiştir. Yenilenebilir enerji kaynaklarından biri olan güneş ışığını kullanarak toksik boyar maddelerin giderimini sağlaması, bu sistemi çevresel sürdürülebilirlik açısından da değerli kılmaktadır. Bu bağlamda, çalışma çevre mühendisliği alanında fotokatalitik arıtım uygulamalarının geliştirilmesine katkı sunmaktadır.



SYNTHESIS, CHARACTERIZATION, AND OPTIMIZATION OF Te/ZnO/C₂N₃ PHOTOCATALYST FOR METHYLENE BLUE REMOVAL FROM AQUEOUS SOLUTIONS

SUMMARY

Today, energy and environmental issues are major concerns. Problems related to wastewater generation and treatment have become a serious global environmental threat due to the increasing population and urbanization. The negative impacts of wastewater discharges extend to human health, the environment, food quality and safety, as well as socio-economic domains. At the same time, the development of renewable energy sources has become one of the most critical goals of our time in order to combat challenges such as global warming and the depletion of energy resources. Especially, the decline of fossil fuel reserves and the rise in environmental pollution necessitate the development of sustainable and eco-friendly technologies.

In a world where nearly 80% of global energy consumption relies on fossil fuels, research on alternative energy solutions that could replace these resources has gained momentum. Renewable energy sources such as solar, hydroelectric, geothermal, biomass, and wind are being proposed and extensively investigated. Among these, solar energy stands out with its abundance, low cost, sustainability, and environmentally friendly nature. The potential for solar energy to replace fossil fuels in the near future is considered to be quite high.

Due to its renewable and green nature, sunlight is regarded as one of the most promising energy sources to replace conventional fossil fuels. Solar radiation can be converted into electrical and chemical energy through photon-activated applications. Solar-powered systems are attracting increasing attention today compared to the past, thanks to their ability to operate independently and their lack of harmful emissions or pollutants. Technologies such as photovoltaics, photocatalysis, and photoelectrocatalysis represent various utilization paths of solar energy. Among these, photocatalysis stands out with its efficient, environmentally friendly, and sustainable nature.

In recent years, environmental pollution caused by industrial wastewater has emerged as a critical global issue, particularly with the increased discharge of dye-contaminated effluents from textile industries. These pollutants are not only visually displeasing but also toxic, non-biodegradable, and harmful to aquatic ecosystems and human health. In response to these challenges, photocatalytic degradation methods based on semiconductors have gained widespread attention for their potential to effectively remove organic contaminants under light irradiation. This study focuses on the development, characterization, and optimization of novel ternary Te/ZnO/C₂N₃ photocatalysts for the efficient degradation of methylene blue (MB), a model pollutant, in aqueous solutions.

The synthesized photocatalysts were prepared via a hydrothermal approach, where tellurium and carbon nitride-based C₂N₃ were incorporated into the ZnO matrix. C₂N₃

was selected due to its nitrogen-rich, conjugated polymer structure, high thermal stability, and visible light absorption capabilities. ZnO, a wide band gap (~ 3.37 eV) n-type semiconductor with strong redox potential, was chosen as the base material due to its high photostability and chemical stability. However, due to its limited response to visible light and high electron–hole recombination rate, modifications were made to enhance its photocatalytic performance. Tellurium, a p-type semiconductor, was introduced to facilitate Z-scheme heterojunction formation, aiming to improve charge separation and preserve strong redox potentials.

A two-step optimization process was applied for the preparation of the Te/ZnO/C₂N₃ photocatalyst. In the first step, the Te ratio was kept constant while different ratios of C₂N₃ (2%, 4%, 6%, 8%, and 10%) were used along with ZnO. The predetermined amounts of ZnO and C₂N₃ were dispersed in 50 mL of methanol using an ultrasonic bath. Subsequently, 5% Te was added to the mixture, and the suspension was stirred on a magnetic stirrer for 30 minutes to ensure homogeneity. The resulting mixture was then heated until complete evaporation of methanol and subsequently dried. Based on characterization results, the optimum C₂N₃ ratio was determined. In the second step, the identified optimum C₂N₃ content was fixed, and photocatalysts were prepared by varying the Te ratio (2.5%, 5%, 7.5%, and 10%) along with ZnO. Similarly, ZnO and the optimum C₂N₃ amount were dispersed in 50 mL of methanol via ultrasonic treatment, followed by the addition of Te at the specified ratios. After stirring for 30 minutes using a magnetic stirrer, the methanol was evaporated by heating, resulting in the final photocatalyst powders.

Photocatalytic experiments were carried out by adding 25 mg of catalyst into 25 mL of methylene blue (MB) solution with a concentration of 10 ppm. The distance between the lamp and the reaction medium was adjusted to 5 cm, and the light intensity was measured as 30,000 lux using a digital luxmeter.

The corresponding MB removal efficiencies were found to be 63.3%, 71.27%, 97.62% and 85.5%, respectively. Among these, the composite containing 6% C₂N₃ exhibited the highest photocatalytic degradation performance. Similarly, the Te content was optimized at 2.5%, 5%, 7.5%, and 10%. The removal efficiencies for these compositions were determined as 84.4%, 97.62%, 91.27%, and 82.6%, respectively. The composite with 5% Te showed the highest degradation efficiency, indicating that the photocatalytic performance was highly dependent on the precise ratio of dopants and co-catalysts used in the composite structure.

Although tellurium is not a direct photocatalytic phase, it acted as a conductive bridge between ZnO and C₂N₃ and supported charge transfer by maintaining the continuity of the Z-structure. The removal efficiency of 65.20% obtained in the dark showed that the system had strong adsorption capacity. During light exposure, the effective degradation of surface-adsorbed methylene blue revealed that the photocatalytic mechanism was strengthened by surface interactions.

To investigate the structural, morphological, optical, and surface chemical properties of the prepared photocatalysts, comprehensive characterization techniques were employed. X-ray diffraction (XRD) was used to confirm the crystalline phases and assess the crystallite size and phase purity. Scanning electron microscopy (SEM) and energy-dispersive X-ray spectroscopy (EDS) were applied to examine surface morphology and elemental distribution, while transmission electron microscopy (TEM) provided additional information on the internal structure and nanoscale interactions between the composite components. Fourier transform infrared

spectroscopy (FTIR) confirmed the functional groups and bonding interactions in the composite structure. The optical properties and band gap energies were determined using diffuse reflectance UV-Vis spectroscopy (DRS).

Electrochemical characterizations were also conducted to gain further insights into charge transfer dynamics. Transient photocurrent response measurements indicated significantly enhanced charge separation efficiency in the optimized composites compared to bare ZnO. Moreover, electrochemical impedance spectroscopy (EIS) results demonstrated reduced charge transfer resistance in the Te/ZnO/C₂N₃ composite, further validating the improved interfacial electron mobility and synergistic charge transport behavior due to the Z-scheme mechanism. The Mott–Schottky plots revealed the n-type and p-type semiconductor behavior of ZnO and Te, respectively, confirming the successful formation of a direct Z-scheme heterojunction with C₂N₃ as a co-catalyst.

The enhancement in photocatalytic activity is attributed to the formation of a direct Z-scheme heterojunction between the ZnO and Te components. This structure not only facilitates effective separation of photo-induced electron–hole pairs but also maintains strong oxidative and reductive capabilities by directing electrons from the CB of Te to recombine with holes in the VB of ZnO. As a result, the electrons in the CB of ZnO and holes in the VB of Te retain high redox potentials, which are essential for the degradation of recalcitrant organic pollutants such as methylene blue. The presence of C₂N₃ further promotes visible light absorption and provides active sites for surface reactions, thus contributing synergistically to the degradation process.

The experimental findings in this work clearly demonstrate that photocatalytic degradation performance can be effectively enhanced by the rational design and optimization of ternary nanocomposite photocatalysts. The highest MB degradation efficiency (97.7%) was achieved using the composite containing 6% C₂N₃ and 5% Te, under optimal experimental conditions. These results highlight the potential of Te/ZnO/C₂N₃ composites as promising candidates for visible-light-driven photocatalytic water treatment technologies. The facile synthesis, high activity, and good stability of these materials suggest that they could be successfully employed in practical environmental applications targeting the removal of dye pollutants from industrial wastewater. This study not only contributes to the growing field of photocatalysis but also provides an efficient strategy for the design of high-performance, sustainable, and eco-friendly photocatalytic materials.



1. GİRİŞ

Günümüzde enerji ve çevre sorunları büyük bir endişe kaynağıdır. Atık su üretimi ve arıtımıyla ilgili problemler, artan nüfus ve şehirleşmenin etkisiyle küresel ölçekte ciddi bir çevresel tehdit haline gelmiştir. Atık su deşarjlarının olumsuz etkileri; insan sağlığı, çevre, gıda kalitesi ve güvenliği ile birlikte sosyo-ekonomik alanları da kapsamaktadır (Changotra ve ark., 2020). Aynı zamanda, küresel ısınma ve enerji kaynaklarının tükenmesi gibi sorunlarla mücadele edebilmek adına yenilenebilir enerji kaynaklarının geliştirilmesi, çağımızın en kritik hedeflerinden biri haline gelmiştir (N. Wang ve ark., 2023). Özellikle fosil yakıt rezervlerinin azalması ve çevresel kirliliğin artması, sürdürülebilir ve çevre dostu teknolojilerin geliştirilmesini zorunlu kılmaktadır (Q. Xu ve ark., 2018)

Dünya genelinde enerji tüketiminin yaklaşık %80'inin fosil yakıtlara dayandığı günümüzde, bu kaynakların yerini alabilecek alternatif enerji çözümlerine yönelik çalışmalar ivme kazanmıştır. Güneş, hidroelektrik, jeotermal, biyokütle ve rüzgar gibi yenilenebilir enerji kaynakları bu kapsamda önerilmekte ve kapsamlı biçimde incelenmektedir. Bu kaynaklar arasında güneş enerjisi; bol, ucuz, sürdürülebilir ve çevre dostu yapısıyla öne çıkmaktadır. Güneş enerjisinin yakın gelecekte fosil yakıtların yerini alma potansiyeli oldukça yüksektir (Pourasl ve ark., 2023).

Güneş ışığının yenilenebilir ve yeşil doğası sayesinde, geleneksel fosil yakıtların yerine geçebilecek en umut verici enerji kaynaklarından biri olduğu düşünülmektedir. Güneş ışığı, fotonla etkinleştirilen uygulamalar aracılığıyla elektriksel ve kimyasal enerjiye dönüştürülebilmektedir (T. Yu ve ark., 2023). Güneş enerjisi ile çalışan sistemler, bağımsız çalışabilme özellikleri ve zararlı gaz ya da kirlетici üretmemeleri nedeniyle geçmişe kıyasla günümüzde çok daha fazla ilgi görmektedir. Fotovoltaikler, fotokataliz ve fotoelektrokataliz, güneş enerjisinin çeşitli şekillerde kullanım alanlarını oluşturmaktadır. Bu teknolojiler arasında fotokataliz, verimli, çevre dostu ve sürdürülebilir yapısıyla dikkat çekmektedir.



2. BOYAR MADDELER

Sentetik boyar maddeler, özellikle tekstil endüstrisinde yaygın olarak kullanılan türleri, toksik ve biyolojik olarak parçalanamaz yapıları nedeniyle çevre kirliliğinin başlıca kaynaklarından biridir (Geelani ve ark., 2024; Singha ve ark., 2021). Bu boyar maddeler doğrudan su kaynaklarına deşarj edilmekte olup, sucul yaşamı tehdit etmekte ve insan sağlığı açısından kanserojen riskler oluşturmaktadır (Geelani ve ark., 2024; Singha ve ark., 2021). Tekstil endüstrisinin oluşturduğu atık suların büyük bir bölümü boyar maddelerden oluşmakta ve bu maddeler, geleneksel fiziksel ve kimyasal arıtım yöntemlerine karşı dirençli oldukları için giderimleri oldukça zor olmaktadır (Geelani ve ark., 2024; Singha ve ark., 2021).

Sentetik boyalar; sülfür, naftol, nitratlar ve bakır, arsenik, kurşun gibi ağır metaller gibi zararlı kimyasallar içermektedir; bu da atık suyu oldukça toksik hale getirmektedir (Manzoor & Sharma, 2020; Singha ve ark., 2021). Bu bileşenler, su ortamlarında çözülmüş oksijenin taşınmasını engelleyerek hem sucul canlıların yaşamını tehdit etmekte hem de suyun kendini yenileme kapasitesini azaltmaktadır (Singha ve ark., 2021)

Sentetik boyaların yaygın kullanımının arkasında; maliyet etkinliği, kolay bulunabilirlik ve geniş renk skalası gibi etkenler yer almaktadır (Nik ve ark., t.y.). Ancak bu maddelerin çevrede kalıcılığı ve toksik etkileri, su ve toprak kirliliği başta olmak üzere ciddi çevresel tehditler oluşturmaktadır (Nik ve ark., t.y.; Sivaperumal ve ark., 2017) Biyolojik olarak parçalanmaya dirençli olmaları nedeniyle, sentetik boyalar sucul ortamlarda akut toksisiteye neden olmakta ve insan sağlığı açısından ciltte hassasiyet, alerjik reaksiyonlar ve kansere kadar uzanan riskler taşımaktadır (Khamparia ve ark., 2015; Ramamurthy ve ark., 2024). Bu nedenle, çevreye verilen zararların azaltılması için etkili arıtım teknolojilerine duyulan ihtiyaç giderek artmaktadır (Dayi ve ark., 2018; Khamparia ve ark., 2015).

Bu bağlamda, doğal boyar maddeler çevre dostu bir alternatif olarak öne çıkmaktadır. Doğal boyar maddeler, biyolojik olarak parçalanabilir ve toksik olmayan yapıları sayesinde yenilenebilir, sürdürülebilir kaynaklardan elde edilmekte ve çevre ile insan

sağlığı üzerinde olumsuz etkiler yaratmamaktadır (Geelani ve ark., 2024; Repon ve ark., 2024). Her ne kadar bazı sınırlamaları, örneğin düşük solmazlık ve üretimde tutarsızlık gibi dezavantajları bulunsa da, tekstil endüstrisinde doğal boyalara olan ilgi giderek artmaktadır (Repon ve ark., 2024).

Boyar madde kirliliğinin giderimi için mikrobiyal arıtım ve metal oksit nanoparçacıklarının kullanımı gibi çeşitli yöntemler üzerine yoğun araştırmalar yapılmaktadır (Geelani ve ark., 2024; Senthil Rathi ve ark., 2024). Özellikle genetik olarak modifiye edilmiş mikroorganizmaların kullanıldığı mikrobiyal sistemler, sentetik boyar maddelerin detoksifikasyonunda umut vadetmektedir (Geelani ve ark., 2024). Öte yandan, titanyum dioksit ve çinko oksit gibi metal oksit nanoparçacıkları, sahip oldukları fotokatalitik ve adsorpsiyon-desorpsiyon özellikleri sayesinde boyar madde gideriminde oldukça etkili bileşenler olarak değerlendirilmektedir (Senthil Rathi ve ark., 2024).

Sonuç olarak, sentetik boyaların ekonomik avantajları ve renk çeşitliliği nedeniyle yaygın kullanımı sürmektedir; ancak çevre ve insan sağlığı üzerindeki olumsuz etkileri göz ardı edilemez düzeydedir. Bu bağlamda, doğal boyaların kullanımına yönelme ve gelişmiş arıtım teknolojilerinin uygulanması, çevresel sürdürülebilirliğin sağlanması açısından büyük önem taşımaktadır (Geelani ve ark., 2024; Repon ve ark., 2024; Senthil Rathi ve ark., 2024).

2.1. Boyar Madde Türleri

Tekstil endüstrisinde kullanılan boyar maddeler, kimyasal yapılarına ve uygulama alanlarına göre çeşitlilik göstermekte olup her biri farklı lif türlerine, boyama koşullarına ve renk dayanımına uygun olarak tasarlanmıştır. En yaygın boya sınıfı olan azo boyalar, anilinin diazotlanarak fenol veya aromatik aminlerle eşleştirilmesi yoluyla sentezlenir ve geniş bir renk skalası sunmaktadır (Jadhav ve ark., 2016; Sekar, 2008). Bu boyalar arasında yer alan reaktif boyar maddeler, örneğin Remazol türü, selülozik liflerle güçlü kovalent bağlar oluşturarak yüksek yıkama dayanıklılığına sahip renkler sağlamaktadır (Ayu & Kasiamdari, 2022). Ancak azo boyaların parçalanması sırasında ortaya çıkan arilamin türevlerinin kanserojen özellik göstermesi, bu boyaların çevresel ve biyolojik arıtım yöntemleriyle giderilmesini zorunlu kılmıştır (Ayu & Kasiamdari, 2022; Jadhav ve ark., 2016).

Dispers boyar maddeler, özellikle polyester gibi sentetik liflerin boyanmasında kullanılan iyonik olmayan boyalardır. Bu boyalar, yüksek sıcaklıkta uygulanmakta olup, suda düşük çözünürlükleri sayesinde lif içerisine nüfuz edebilirler. Antrakinon türevleri, bu grupta parlaklık ve ışık dayanıklılığı açısından öne çıkarken; değiştirilmiş stiril boyar maddeleri ise daha çok yeşilimsi-sarı tonların elde edilmesinde kullanılır (Sekar, 2008; Sekar & Dighe, 2007). Genellikle istenen renk tonunu sağlamak ve solmazlık özelliklerini artırmak amacıyla karışım halinde uygulanmaktadırlar (Sekar & Dighe, 2007).

Reaktif boyar maddeler, özellikle pamuk gibi selülozik liflerde kullanılan ve lifle kovalent bağ oluşturarak yüksek yıkama dayanımı sunan boyalardır. Sülfatoetilsülfon grubu içeren reaktif boyalar, süperkritik karbondioksit gibi alternatif çözücülerle birlikte kullanıldığında boya tutunmasını artırmakta ve antibakteriyel özellik kazandırmaktadır (Elsisi ve ark., 2025).

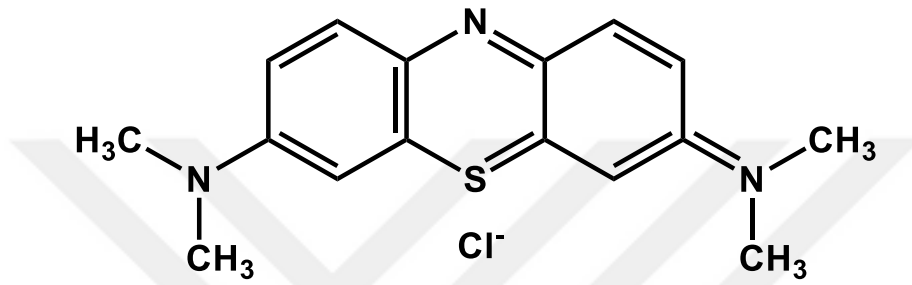
Asit boyar maddeleri, su içinde çözünebilir yapılarıyla yün ve ipek gibi protein esaslı liflerin boyanmasında kullanılmaktadır. Canlı renk tonları ve iyi solmazlık özellikleriyle tanınırlar ve aynı zamanda naylon gibi bazı sentetik liflerde de uygulanabilirler (Spini, 2004). Buna karşılık, küpe boyar maddeleri (vat dyes), boyama öncesinde indirgenerek çözünebilir hale getirilir; lifle bağlandıktan sonra yükseltgenerek tekrar çözünmeyen forma dönerler. Bu sayede, mükemmel yıkama ve ışık dayanıklılığı sağlayan boyamalar elde edilir (Kanchev, 2006; Spini, 2004).

Kükürt boyar maddeleri, genellikle selülozik liflerde koyu tonların elde edilmesi amacıyla tercih edilir ve iyi yıkama dayanımı sağlarlar; ancak renk canlılığı açısından diğer boyalar kadar başarılı değildir (Chattopadhyay, 2011; Kanchev, 2006) Son olarak, direkt boyar maddeler ise ön işlem gerektirmeden doğrudan uygulanabilen, suda çözünebilir boyalardır. Pamuk gibi selülozik liflerde kullanılırlar ve orta düzeyde haslık özelliklerine sahiptirler (Kanchev, 2006; Spini, 2004)

Tüm bu boyar madde türleri, hem kimyasal yapıları hem de çevresel etkileri bakımından dikkatle değerlendirilmelidir. Boyar maddenin türü, istenen renk yoğunluğu ve kalıcılığı kadar, uygulama yapılacak elyafın yapısı ve çevreye olan etkileri dikkate alınarak seçilmelidir.

2.2. Metilen Mavisi

Metilen Mavisi (MM), özellikle tekstil sanayisinde yaygın olarak kullanılan sentetik katyonik bir boyardır. Ancak kimyasal kararlılığı, biyolojik olarak zor bozunabilir yapısı ve toksik özellikleri nedeniyle ciddi çevresel ve sağlık riskleri taşımaktadır. MM'nin sucul ortamlara deşarjı, suda ışık geçirgenliğini azaltarak fotosentetik su bitkilerinin yaşamsal faaliyetlerini engellerken, insan sağlığı açısından da potansiyel kanserojen etkiler göstermesi nedeniyle endişe uyandırmaktadır (Al-Mhyawi ve ark., 2023; Hussein & Rasheed, 2025; Mohammadi ve ark., 2017; SATTAR ve ark., 2024).



Şekil 2.1. Metilen mavisinin kimyasal yapısı

MM, doğada kolaylıkla bozunmadığı için geleneksel arıtma yöntemleriyle uzaklaştırılması oldukça güçtür ve bu da onu kalıcı bir kirletici haline getirir (Zain ve ark., 2024). Bu nedenle, MM'nin sulu ortamlardan uzaklaştırılmasına yönelik pek çok yöntem araştırılmıştır. Bu yöntemler arasında metal-organik kafes yapıları (MOF'lar), hidrojel bazlı adsorbanlar ve metal oksit nanoparçacıklarının kullanımı ön plana çıkmaktadır (Hussein & Rasheed, 2025; Mohammadi ve ark., 2017; Ramadan ve ark., 2023; SATTAR ve ark., 2024). Örneğin, UiO-66 tipi MOF'lar, uygun koşullar altında 91 mg/g'ye kadar MM adsorpsiyon kapasitesi göstermiştir (Mohammadi ve ark., 2017). Benzer şekilde, doğal kauçuk ve pektin gibi doğal kaynaklı malzemelerden sentezlenen hidrojel yapılar, %99,07'ye varan giderim verimleriyle yüksek etkinlik göstermiştir (SATTAR ve ark., 2024).

MM'nin gideriminde yalnızca adsorpsiyon değil, aynı zamanda fotokatalitik bozunma mekanizmaları da oldukça önemli olduğu görülmektedir. Özellikle çinko oksit (ZnO) gibi yarı iletken malzemeler ışık altında aktif hale gelerek reaktif oksijen türleri (ROS) oluşturmaktadır. Bu türler arasında hidroksil radikalleri, MM'nin daha az zararlı ara ürünlere parçalanmasında kilit rol oynamaktadır (González & Jaramillo-Fierro, 2025; Ramadan ve ark., 2023). Ancak bazı araştırmalar, bu ara ürünlerin de sucul canlılar için toksik olabileceğini göstermiştir. Bu nedenle, yalnızca giderim verimi değil, aynı

zamanda bozunma ürünlerinin ekotoksikolojik değeriendirilmesi de büyük önem taşımaktadır (Vieira ve ark., 2021; Vo ve ark., 2024).

Sonuç olarak, MM gibi kalıcı boyar maddelerin çevresel etkilerini azaltmaya yönelik adsorpsiyon ve fotokatalitik bozunma gibi yöntemlerde önemli ilerlemeler kaydedilmiştir. Ancak, bu boyaların doğaya bırakılması hâlâ ciddi bir tehdit oluşturmaktadır ve bu nedenle mevcut arıtma teknolojilerinin daha sürdürülebilir ve etkili hale getirilmesi için araştırmaların sürdürülmesi gerekmektedir.





3. FOTOKATALİTİK ARITIM

Fotokataliz, doğal fotosentez sürecinden ilham alan ve ışık enerjisini kullanarak kimyasal reaksiyonları yönlendirmeyi amaçlayan yenilikçi bir teknolojidir. Kimyasal reaksiyonların optik enerji yardımıyla gerçekleştirilmesi, fotosentezin temel ilkelerinden biridir (Chakravorty & Roy, 2024a). Fotokataliz kavramı ilk kez 1839 yılında Edmond Becquerel tarafından ortaya atılmış olsa da, bu alana yönelik yoğun bilimsel ilgi 1960'ların sonlarında Boddy (Boddy, 1968), Honda ve Fujishima (Fujishima & Honda, 1971) gibi araştırmacıların çalışmalarıyla başlamıştır. Son yıllarda artan sürdürülebilirlik bilinciyle birlikte, fotokataliz araştırmaları büyük bir ivme kazanmıştır.

Fotokataliz, güneş enerjisinin doğrudan kimyasal enerjiye dönüştürülmesini sağlayan yapay fotosentez sistemleriyle bağlantılı olarak değerlendirilmektedir. Bu bağlamda fotokataliz, enerji üretimi ve çevresel iyileştirme açısından büyük bir potansiyele sahiptir. Araştırmalar, fotokatalizörlerin genellikle yarıiletken özelliklere sahip, uygun elektronik yapıda, ışık absorpsiyonu ve yük transferi gerçekleştirebilen nanoölçekli parçacıklar olduğunu göstermektedir. Bu fotoaktif nanomalzemeler, yüksek yüzey/hacim oranları sayesinde katalitik aktivitelerini büyük ölçüde artırmakta ve çeşitli alanlarda uygulama potansiyeli sunmaktadır (Chakravorty & Roy, 2024b).

Bir fotokatalizör, üzerine gelen fotonla elektron/boşluk (e^-/h^+) çifti oluşturabilen, bu sayede ışık enerjisini kimyasal enerjiye dönüştürebilen bir yarıiletken olarak tanımlanır. Örneğin, doğada yer alan klorofil pigmenti, fotosentez sırasında bir fotokatalizör görevi üstlenerek su ve karbondioksiti oksijen ve karbonhidratlara dönüştürmektedir (Saravanan ve ark., 2015). Benzer şekilde, yapay fotokatalizörler de foton absorpsiyonu ile aktifleşerek oksidasyon, indirgeme, organik bileşiklerin parçalanması ve suyun ayrıştırılması gibi fotokimyasal süreçlerde görev alabilir.

Güneş ışığını doğrudan kullanan fotokatalitik sistemler, zararlı gaz veya artık üretmeden çalışabilmeleri ve enerji verimliliği açısından sürdürülebilir çözümler sunmaları nedeniyle oldukça avantajlıdır. Gelişmiş nanomalzeme tasarımları ile bu

sistemlerin performansı artırılabilen ve fotokatalizörlerin farklı çevresel ve enerji uygulamaları için uygun hale getirilmesi mümkün olmaktadır (Y. Wang ve ark., 2015).

3.1. Fotokatalitik Reaksiyonların Mekanizması ve Temel Aşamaları

Sadece uygun bir yarı iletken fotokatalizör ve güneş ışığı gibi doğal bir enerji kaynağına ihtiyaç duyması, fotokatalizi çevre dostu ve umut vadeden bir teknoloji haline getirmektedir. Özellikle suyun fotokatalitik olarak ayrıştırılmasıyla hidrojen (H_2) ve/veya oksijen (O_2) üretimi konusunda büyük potansiyel barındırırken, karbon dioksit (CO_2) indirgenmesi yoluyla hidrokarbon yakıt üretimi gibi enerji dönüşüm uygulamalarında da etkili olabilir. Bunlara ek olarak, organik boyaların ve uçucu organik bileşenlerin parçalanması, bakterilerin dezenfeksiyonu ve organik bileşiklerin seçici sentezi gibi çevresel ve kimyasal iyileştirme süreçlerinde de geniş bir kullanım alanı bulmaktadır. Genel olarak, bir fotokatalitik reaksiyon dört temel aşamada gerçekleşir:

- Işık ışıması altında elektron-boşluk çiftlerinin fotogenerasyonu,
- Yük taşıyıcılarının ayrılması ve yüzeye göç etmesi,
- Elektronların ve boşlukların indirgeme/yükseltgenme reaksiyonlarına katılması,
- Yük taşıyıcılarının hacim içinde ya da fotokatalizör yüzeyinde yeniden birleşmesi.

Bu dört adım birbirini tamamlayan süreçlerdir ve her birinin termodinamik ve kinetik özellikleri, belirli bir fotokatalizörün genel verimliliğini belirler (Q. Xu ve ark., 2018).

3.2. Fotokatalitik Heteroyapı Türleri

Genel olarak, bir yarı iletken malzeme üzerinde yapay fotokataliz; foton absorpsiyonu, değerlik bandından iletim bandına elektron uyarılması ve uyarılmış elektronların yarı iletken malzemenin yüzeyine göç etmesi gibi iyi bilinen adımları içerir. Bu süreçte reaktanlarla redoks reaksiyonları gerçekleşir. Ancak tek bir yarı iletken tabanlı fotokatalizör kullanılarak, oksidasyon ve indirgeme reaksiyonları gibi birden fazla etkinliği tek adımlı bir uyarılma ile gerçekleştirmek genellikle mümkün olmamaktadır (Samajdar ve ark., 2025).

Ayrıca, tek bir fotokatalizörde güçlü redoks yetenekleri, geniş foton yanıt aralığı, yüksek stabilite ve düşük bant aralığı gibi özelliklerin uyumsuzluğu; taşıyıcıların hızla

yeniden birleşmesine yol açarak fotokatalitik verimi düşürmektedir. Elektron-boşluk çiftinin ayrılması, eksitonların yeniden birleşmesini baskılamak açısından zorlayıcıdır fakat uygun tasarım ve modifikasyon stratejileriyle başarılabilmektedir(Zhu & Zhou, 2019).

Bu zorlukları aşmak amacıyla, iki veya daha fazla yarı iletkenin entegrasyonu ile oluşturulan heteroyapılar (heterojunctionlar), fotoprodüksiyonla üretilen yük taşıyıcılarının yeniden birleşme sürecini engellemek için en etkili yöntemlerden biri olarak öne çıkmaktadır. Bu yapılar, sadece eksitonları ayırmakla kalmaz, aynı zamanda bu taşıyıcıların hareket mesafesini artırarak yeniden birleşme olasılığını azalmaktadır(Chen ve ark., 2024).

Farklı bant aralıklarına, bant hizalamalarına ve Fermi seviyelerine sahip iki yarı iletkenin birleşimi, yük akışı nedeniyle arayüz bölgesinde band bükülmesine neden olur ve bu da içsel bir elektrik alan oluşturarak taşıyıcı ayrımını desteklemektedir. Bu bağlamda heteroyapılar; tip-I (straddling gap), tip-II (staggered gap), tip-III (broken gap) ve Z-şeması olmak üzere dört türde sınıflandırılmaktadırlar(Kistner-Morris ve ark., 2024; Soni ve ark., 2025).

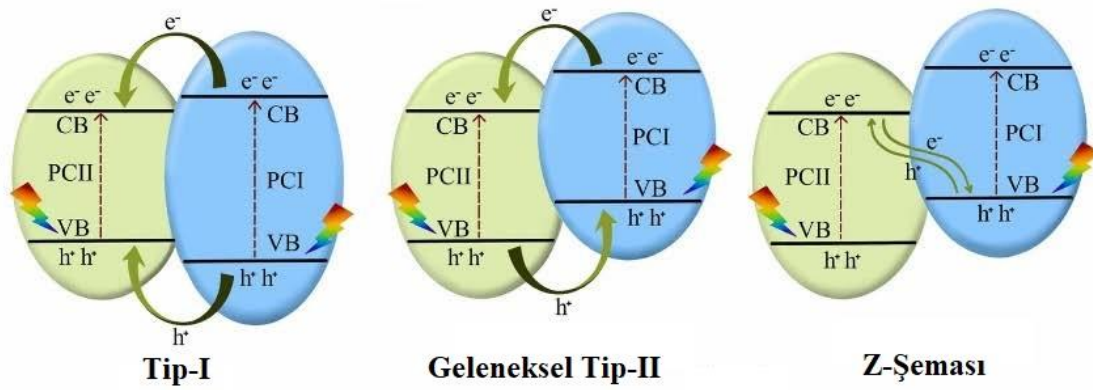
Tip-I yapıda, düşük bant aralıklı yarı iletkenin bant kenarları daha geniş bant aralıklı yarı iletkenin içinde yer almaktadır. Bu yapı taşıyıcı ayrımında etkin olmamaktadır. Tip-II yapıda, fotoprodüksiyonla oluşan elektron ve boşluk farklı yarı iletkenlere doğru göç etmekte, böylece yük taşıyıcıları ayrılmakta fakat redoks potansiyel kaybı yaşanmaktadır. Tip-III yapıda, iki yarı iletkenin bant yapısı uyumsuz olduğu için etkili bir yük transferi gerçekleşmemektedir(Khan ve ark., 2018; Kistner-Morris ve ark., 2024; Soni ve ark., 2025).

Bu sınıflandırmalar arasında, tip-II düzenlemesi, etkili taşıyıcı ayrımı sağlamasına rağmen redoks potansiyellerin zayıflaması nedeniyle sınırlamalara sahiptir. Elektronların daha düşük indirgeme potansiyeline sahip bir iletim bandına, boşlukların ise daha düşük oksidasyon potansiyeline sahip bir değerlik bandına göç etmesi, genel fotokatalitik etkinliği sınırlamaktadır. Ayrıca yük dinamiği ve enerji verimliliği açısından da kayıplar oluşmaktadır(Soni ve ark., 2025).

Bu sınırlamaları aşmak amacıyla geliştirilen Z-şeması yapılar, yüksek redoks potansiyelini koruyarak taşıyıcı ayrımını daha etkili biçimde gerçekleştirebilmektedir. Bu yapı, doğal fotosentez sürecinden ilham almakta ve tip-II yapıya benzer bir

düzenleme sunsa da yük taşıyıcılarının farklı bir göç yolu izlemesiyle ayrılmaktadır(Mansingh ve ark., 2023).

2013 yılında Yu ve arkadaşları, fotoindüklenmiş elektron-delik ayırım verimliliğini artırabilen ve redoks reaksiyonlarını optimize edebilen doğrudan bir Z-şeması mekanizması önermiştir (J. Yu ve ark., 2013). Bu yapıda, düşük oksidasyon potansiyeline sahip A yarı iletkenindeki boşluklar, düşük indirgeme potansiyeline sahip B yarı iletkenindeki elektronlarla doğrudan birleşebilmektedir. Böylece her iki malzemenin güçlü redoks yetenekleri korunmuş olmaktadır.



Şekil 3.1. Fotokatalitik Heteroyapı Türleri(Fernández-Catalá ve ark., 2022)

Ek olarak, Z-şeması mekanizmasında yük taşıyıcılarının transferi fiziksel olarak daha elverişli olmaktadır. Çünkü elektronların B yarı iletkeninin CB'sinden, boşlukça zengin A yarı iletkeninin VB'sine geçişi, sistemdeki büyük elektrostatik itme kuvveti sayesinde kolaylaşmaktadır (Jia ve ark., 2023).

3.3. Karbon Nitrür Bazlı Fotokatalizörler

Grafitik karbon nitrür (g-C₃N₄), kararlı kimyasal özellikleri, uygun bant yapısı ve kolay sentezlenebilirliği sayesinde en çok çalışılan fotokatalizörlerden biri olmaktadır. Su ayrıştırma, organik dönüşümler ve organik kirleticilerin giderimi gibi birçok uygulamada yaygın şekilde kullanılmıştır (Kumru ve ark., 2021; Thomas ve ark., 2022; L. Wang ve ark., 2020). Ancak, g-C₃N₄ düşük ışık kullanımı ve foto-uyarılmış elektron-delik çiftlerinin hızlı rekombinasyonu gibi bazı sınırlamalara sahiptir. Bu eksikliklerin giderilmesi amacıyla farklı stratejiler geliştirilmiştir. Özellikle, diğer malzemelerle heteroeklem oluşturmak, optik absorpsiyonu artırmakta ve yük taşıyıcı ayırımını iyileştirmektedir (Mohd Nasir ve ark., 2023; Qi ve ark., 2020). Örneğin, g-

C_3N_4 'nin biyokömür ile birleştirilmesi, görünür ışık altında Rodamin B'nin (RhB) fotokatalitik bozunmasında kayda değer iyileşmeler sağlamıştır (Xing ve ark., 2021).

C_3N_5 , g- C_3N_4 'ye göre daha yüksek azot içeriğine sahip olup, benzersiz elektronik yapısı sayesinde potansiyel olarak daha iyi fotokatalitik özellikler sunabilir. Ancak, C_3N_5 'in fotokatalitik performansına yönelik literatürdeki çalışmalar sınırlıdır. Yine de, karbon nitrür malzemelerin genel avantajları – örneğin ayarlanabilir bant yapıları ve yüksek kimyasal kararlılık – göz önüne alındığında, C_3N_5 'in de değerli bir fotokatalizör olabileceği öngörülmektedir (Li ve ark., 2024; Vidyasagar ve ark., 2021).

Bu çalışmada kullanılan C_2N_3 de bir diğer karbon nitrür türevidir ve fotokatalitik uygulamalarda dikkate değer bir potansiyele sahiptir. C_2N_3 üzerine yapılan spesifik çalışmalar literatürde henüz yaygın olmasa da, karbon nitrürlerin genel yapısal ve elektronik özellikleri göz önüne alındığında bu materyalin yüksek yüzey alanı, heteroeklem oluşturmaya yatkınlığı ve elektronik özelliklerinin modifiye edilebilirliği gibi önemli avantajlar sunduğu açıktır (Li ve ark., 2024; Vidyasagar ve ark., 2021). g- C_3N_4 için uygulanan doping, kompozit oluşturma gibi stratejilerin C_2N_3 üzerinde de uygulanabilir olduğu düşünülmektedir. Bu da C_2N_3 'ün görünür ışık altında fotokatalitik performansını iyileştirmek için umut verici bir platform sunduğunu göstermektedir.

Sonuç olarak, g- C_3N_4 fotokataliz alanında yaygın şekilde belgelenmiş ve uygulanmış olsa da, C_3N_5 ve özellikle C_2N_3 gibi karbon nitrür türevleri hâlâ keşfedilmeyi bekleyen, ancak sundukları potansiyel özelliklerle dikkat çeken malzemelerdir. Bu nedenle, gelecekteki araştırmaların bu tür yeni karbon nitrür yapılarının fotokatalitik performanslarının ortaya konmasına ve g- C_3N_4 için kullanılan modifikasyon yaklaşımlarının bu malzemelere uygulanmasına odaklanması büyük önem taşımaktadır.

3.4. Çinko Oksit Tabanlı Fotokatalizörler

ZnO, kimyasal kararlılığı, yüksek elektrokimyasal eşleşme katsayısı, geniş radyasyon soğurma aralığı ve yüksek fotostabilitesi gibi avantajlı özellikleri nedeniyle yaygın şekilde çalışılan bir yarı iletken fotokatalizördür. Yaklaşık 3,37 eV bant aralığına ve 60 meV bağlanma enerjisine sahip olması, ZnO'nun esasen UV ışık altında aktif olmasına neden olmaktadır (Isa ve ark., 2020; Loh ve ark., 2023; Sures ve ark., 2025). Ancak bu geniş bant aralığı, görünür ışığı absorbe etme kapasitesini sınırlamakta ve

bu da genel fotokatalitik verimliliğini düşürmektedir (Ahmad ve ark., 2022; Al-Zahrani ve ark., 2024; H.-5 Xu & Lan, 2020).

ZnO'nun fotokatalitik performansını artırmak amacıyla geçiş metalleri ile katkılama, nanoyapı oluşturma ve hibrit nanomalzeme sentezi gibi çeşitli stratejiler uygulanmıştır. Örneğin, ZnO'nun mangan (Mn) ve kobalt (Co) ile katkılanması, bant aralığı içine yeni enerji seviyeleri ekleyerek görünür ışık altında fotokatalitik aktivitesini artırmaktadır (Sures ve ark., 2025). Benzer şekilde, lityum, sodyum ve potasyum gibi alkali metallerle yapılan katkılama, ZnO'nun kristallik derecesini artırmakta ve bant aralığını daraltarak organik kirleticilerin bozunma verimini yükseltmektedir (Benhebal ve ark., 2012).

Ayrıca ZnO, farklı malzemelerle heteroeklem yapıları oluşturularak da modifiye edilebilmektedir. Bu yapıların oluşturulması, yük taşıyıcı ayrımını iyileştirmekte ve görünür ışık absorpsiyonunu genişletmektedir. Tip II heteroeklemler, yük taşıyıcıların ayrışmasını kolaylaştıran bant hizalamaları ile çalışırken; Z yapısı (Z-scheme) heteroeklemler ise doğrudan elektron transferi üzerinden çalışarak daha güçlü redoks kapasiteleri sunar. Örneğin, ZnO'nun grafen oksit (GO) ile birleştirilmesi Tip II bir heteroeklem yapısı oluşturmakta ve fotokatalitik aktiviteyi artırarak reaktif oksijen türlerinin oluşumunu teşvik etmektedir (Al-Zahrani ve ark., 2024). Benzer şekilde, ZnO ile g-C₃N₄ arasındaki birleşim bir Z yapısı heteroeklem meydana getirerek görünür ışık absorpsiyonunu artırmakta ve kirleticilerin fotokatalitik bozunmasını desteklemektedir (Shemeena & Binitha, 2020).

ZnO tabanlı ikili Z yapısı heteroeklemler (örneğin WO₃/ZnO, TiO₂/ZnO, CdS/ZnO), yüksek indirgeme ve yükseltgeme kapasitelerini koruyarak fotokatalitik performansı önemli ölçüde artırmaktadır (Wu ve ark., 2023). Bunun yanında, soy metallerin (örneğin Ag veya Au) ara elektron taşıyıcı olarak kullanıldığı üçlü Z yapısı heteroeklemler (örneğin ZnO–Ag–BiVO₄ ve ZnO–Au–ZnAl₂O₄), yük taşınımını iyileştirerek fotokatalitik verimliliği daha da artırmaktadır (Wu ve ark., 2023).

Sonuç olarak, ZnO'nun fotokatalitik verimliliği; katkılama, nanoyapı oluşturma ve heteroeklem sentezi gibi çeşitli modifikasyon stratejileriyle anlamlı şekilde geliştirilebilir. Bu stratejiler, ZnO'nun geniş bant aralığına ve hızlı yük taşıyıcı rekombinasyonuna bağlı sınırlamalarını ortadan kaldırarak çevresel arıtım ve sürdürülebilir enerji uygulamaları için daha etkili bir fotokatalizör haline gelmesini

sağlamaktadır (Ahmad ve ark., 2022; Al-Zahrani ve ark., 2024; Sures ve ark., 2025; Wu ve ark., 2023).





4. MATERYAL VE YÖNTEM

4.1. Cihaz ve Materyaller

Bu çalışmada kullanılan tüm kimyasallar analitik saflıkta olup, herhangi bir arıtma işlemi uygulanmadan kullanılmıştır. 3-Amino-1,2,4-triazol (Sigma-Aldrich), metanol (Merck), metilen mavisi (Merck), potasyum bromür (KBr, Merck), çinko oksit (ZnO, Merck) ve tellür (Te, Sigma-Aldrich) ticari olarak temin edilmiştir. Işık kaynağı olarak Osram Ultra-Vitalux marka 300 W'lık bir lamba kullanılmıştır. Işık kaynağının dalgaboyunu ölçmek için Ocean Optics S2000 spektrometre kullanılmıştır. Bu lamba 315–400 nm (UVA) aralığında 13,6 W ve 280–315 nm (UVB) aralığında 3,0 W ışıyım gücüne sahiptir. Lambanın lüks ölçümü TES-1332A dijital lüksmetre ile ölçülmüştür. UV-Vis ve difüze yansıma spektroskopisi (DRS) analizleri için Shimadzu 2600i UV-Vis spektrofotometre kullanılmıştır. Fonksiyonel grupların belirlenmesinde Perkin Elmer Spectrum Two model Fourier Dönüşüm Infrared Spektrometresi (FT-IR) kullanılmıştır. Elektrokimyasal analizler Gamry Instruments Interface 1000 model potansiyostat/galvanostat ile gerçekleştirilmiştir. Yüzey morfolojisinin ve yapısal özelliklerin belirlenmesinde FEI ESEM Quanta 450 FEG alan emisyonlu taramalı elektron mikroskopu (FESEM) kullanılmıştır. Elementel analizler LECO TruSpec Micro Elemental Analyzer ile yapılmıştır. Kristal yapının belirlenmesinde ise Rigaku D/MAX 2000 PC model X-ışını difraktometresi (XRD), Cu K α ışıyımı kullanılarak uygulanmıştır.

4.2. Katalizör sentezi

4.2.1. C₂N₃

C₂N₃ sentezi g-C₃N₅ sentezine benzemektedir (H. Wang ve ark., 2019). 8 gram KBr ve 2 gram 3-amino-1,2,4-triazol, 5 mL metanol içerisinde homojen bir karışım elde edilene kadar karıştırılmıştır. Elde edilen karışım, 25 °C'de kurutulmuş ve ardından kapaklı bir kroze içerisinde, önceden 550 °C'ye ısıtılmış fırında 3 saat süreyle ısıtılma işlemi tabi tutulmuştur. Bu işlem sonucunda karışım kahverengi bir görünüm kazanmıştır. Daha sonra, 600 °C'de 135 dakika boyunca ikinci bir kalsinasyon işlemi gerçekleştirilmiştir. Isıl işlem sonrası numune dört kez saf su ve bir kez etanol ile

yıkanmıştır. Yıkama işleminin ardından, karışım kapalı bir ortamda, önceden 600 °C'ye ısıtılmış fırında 50 dakika daha kalsine edilmiştir. Bu işlemler sonucunda C_2N_3 bileşiği elde edilmiştir(Şekil 4.1.).

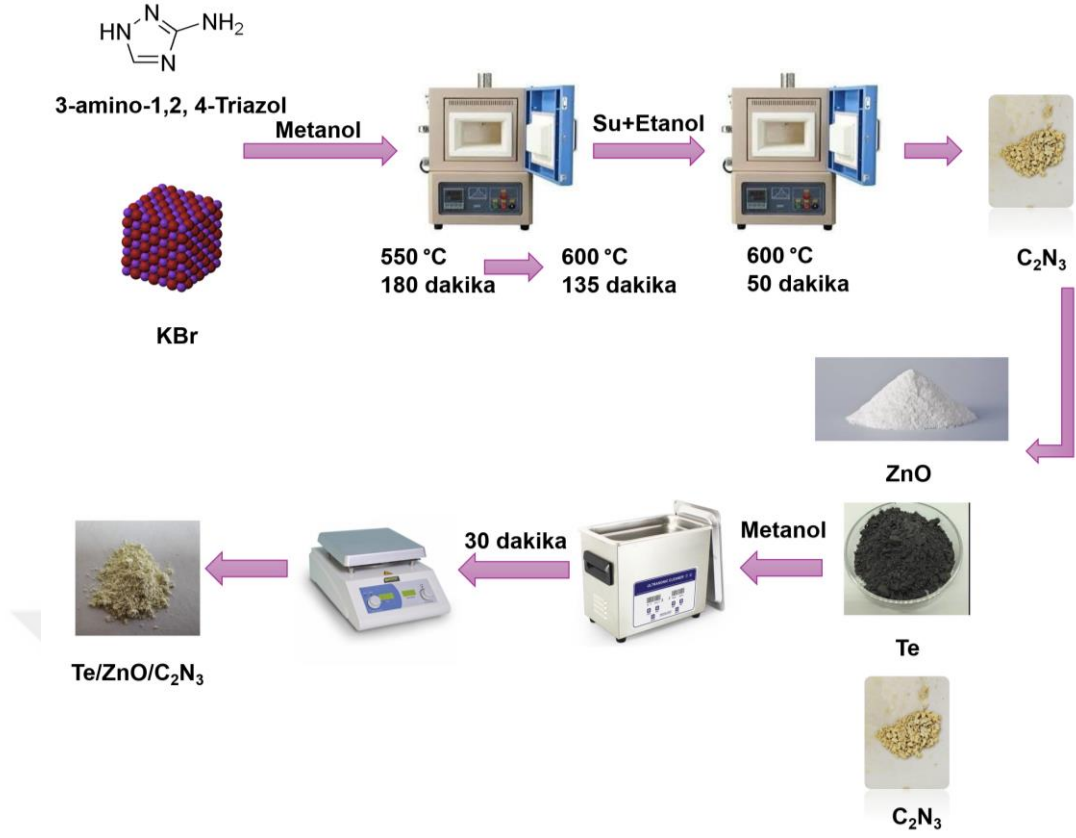


Şekil 4.1. C_2N_3

4.2.2. Te/ZnO/ C_2N_3

Şekil 4.2.'de de görüldüğü üzere Te/ZnO/ C_2N_3 fotokatalizörünün hazırlanmasında iki aşamalı bir optimizasyon süreci uygulanmıştır. İlk aşamada, Te oranı sabit tutulmuş ve ZnO ile farklı oranlardaki C_2N_3 (%2, %4, %6, %8, %10) kullanılmıştır. Belirlenen miktarlardaki ZnO ve C_2N_3 , 50 mL metanol içinde ultrasonik banyo yardımıyla dispers edilmiştir. Daha sonra karışıma %5 oranında Te eklenmiş ve 30 dakika boyunca manyetik karıştırıcı altında homojen hale getirilmiştir. Elde edilen karışım, ısıtıcı altında metanol tamamen buharlaşmaya kadar ısıtılmış ve kurutulmuştur. Karakterizasyon çalışmaları sonucunda en uygun C_2N_3 oranı belirlenmiştir.

İkinci aşamada, belirlenen optimum C_2N_3 oranı sabit tutulmuş ve ZnO ile birlikte farklı Te oranlarında (%2,5, %5, %7,5, %10) fotokatalizörler hazırlanmıştır. Benzer şekilde ZnO ve optimum C_2N_3 oranı, 50 mL metanol içerisinde ultrasonik banyo ile dispers edilmiş, ardından belirlenen oranlardaki Te ilave edilmiştir. Karışımlar 30 dakika manyetik karıştırıcı ile homojen hale getirildikten sonra, metanol ısıtıcı altında buharlaştırılarak fotokatalizörler elde edilmiştir (Şekil 4.3.).



Şekil 4.2. Te/ZnO/C₂N₃ sentez diyagramı

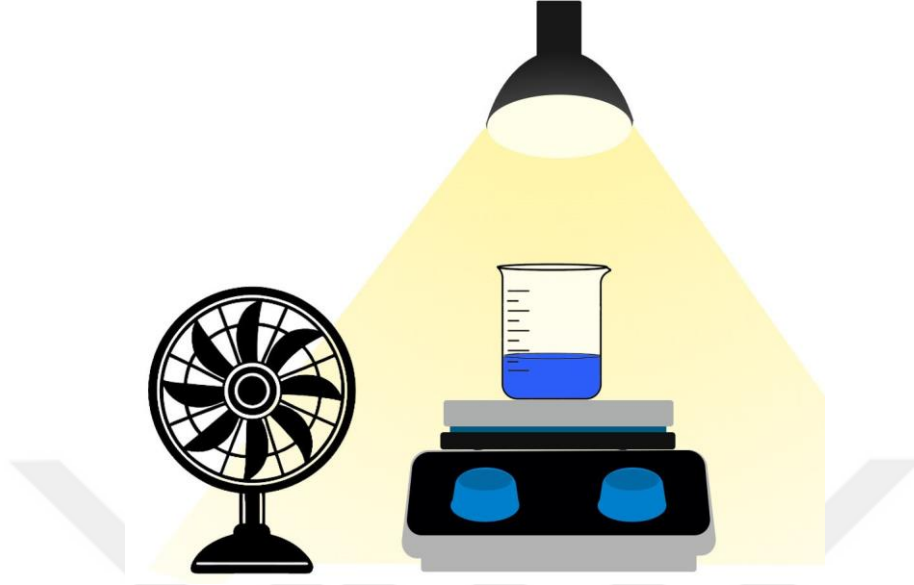


Şekil 4.3. Te/ZnO/C₂N₃

4.3. Fotokatalitik Metilen Mavisi Giderimi

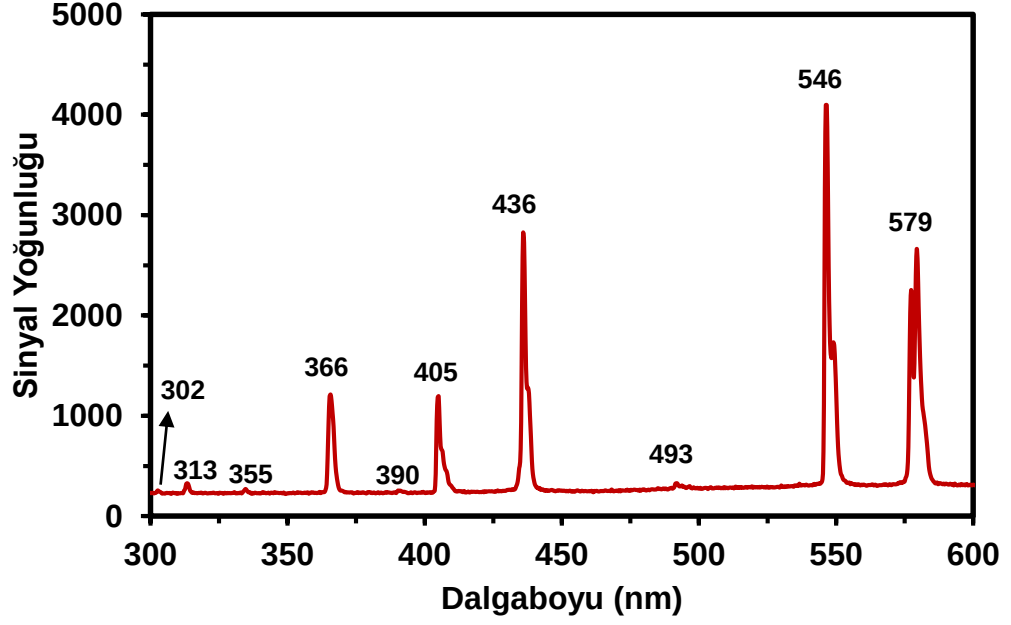
Fotokatalitik deneyler, 10 ppm konsantrasyonda 25 mL MM çözeltisi içerisine 25 mg katalizör eklenerek gerçekleştirilmiştir. Lamba ile reaksiyon ortamı arasındaki mesafe

5 cm olacak şekilde ayarlanmış ve dijital lüksmetre ile yapılan ölçümlerde ışık şiddeti 30.000 lüks olarak gözlemlenmiştir(Şekil 4.4.).



Şekil 4.4. Fotokatalitik deney düzeneği diyagramı

Şekil 4.5.'te kullanılan ışık kaynağının spektral dağılımı incelendiğinde, hem ultraviyole (UV) hem de görünür (Vis) bölgede geniş spektrumlu absorpsiyon sağladığını göstermektedir. Özellikle 300–400 nm arası UV-A ve UV-B bölgelerinde belirgin piklerin bulunması, fotokatalitik süreçleri tetikleyen yüksek enerjili fotonların sağlandığını göstermektedir. 400–700 nm aralığında ise, görünür bölgeye yayılan yoğun ışık şiddeti sayesinde fotokatalizörlerin görünür ışıkla uyarılabilirliği mümkün kılınmaktadır. Bu spektral profil, güneş ışığının doğal dağılımına oldukça yakın olduğundan, kullanılan lamba çevresel fotokatalitik uygulamalar için ideal bir ışık kaynağı niteliğindedir. Bu sayede yapılan deneysel çalışmalar, güneş ışığı altında gerçekleşen süreçlerin laboratuvar ortamında temsil edilebilirliğini artırmaktadır.



Şekil 4.5. Kullanılan ışık kaynağının spektral dağılımı(Sinyal yoğunluğu– counts)

Deneylerde ön adsorpsiyon dengesi beklenmemiş, ışık kaynağı açılır açılmaz fotokatalitik reaksiyona başlanmıştır. Belirli zaman aralıklarında 3 mL'lik numuneler alınarak santrifüjlenmiş ve süpernatant çözelti, metilen mavisi konsantrasyonunun tayini amacıyla 665 nm dalga boyunda UV–Vis spektrofotometrede analiz edilmiştir. Kontrollü deney koşulları kapsamında, aynı katalizör miktarı ve çözeltisi ile, ışık kaynağı kapalı olacak şekilde (karanlık ortamda) bir örnek sistem hazırlanarak fiziksel adsorpsiyon etkisi ayrıca değerlendirilmiştir.

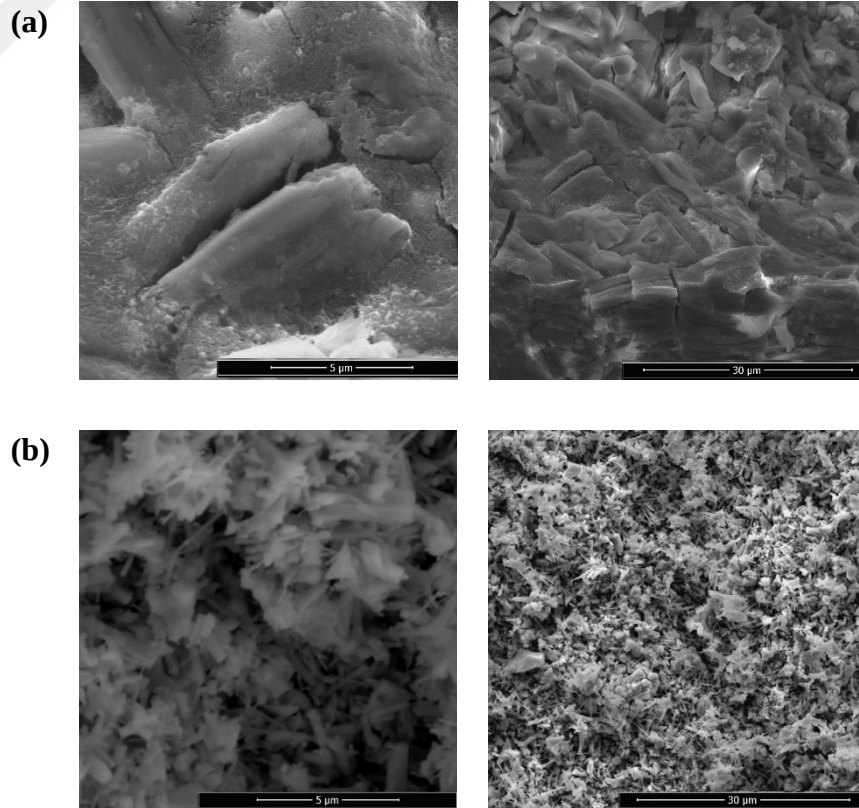


5. DENEYSEL BULGULAR VE TARTIŞMA

5.1. Karakterizasyon

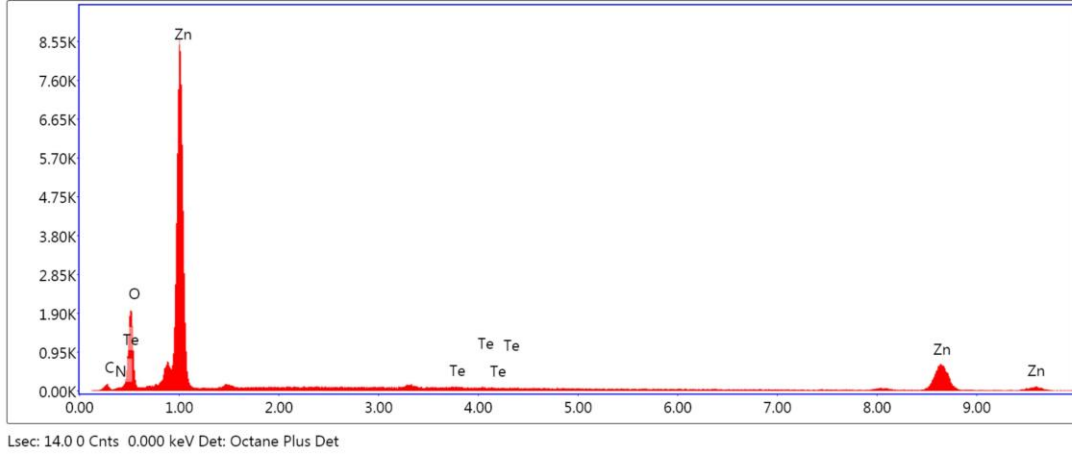
5.1.1. Morfolojik özellikler

Te/ZnO/C₂N₃ kompozit fotokatalizörün yüzey morfolojisi, bileşimi ve elementel dağılımı; FESEM görüntüleri, Enerji Dağıtıcı X-ışını Spektroskopi (EDS) analizi ve elemental haritalama yöntemiyle değerlendirilmiştir. Şekil 5.1.'de verilen FESEM görüntüleri, ZnO'nun karakteristik çubuksu yapısının korunduğunu, bu yapıların C₂N₃ matrisi üzerine homojen şekilde dağıldığını ve yüzeyin yoğun parçacıklarla kaplandığını göstermektedir. Ayrıca, tellür içeriğine bağlı olarak gözlemlenen parçacıkların, ZnO ve C₂N₃ yapısına entegre bir şekilde dağılmış olduğu görülmüştür. Bu durum, kompozit yapının başarılı bir şekilde sentezlendiğini doğrulamaktadır (Aroosh ve ark., 2023; Tang ve ark., 2021).



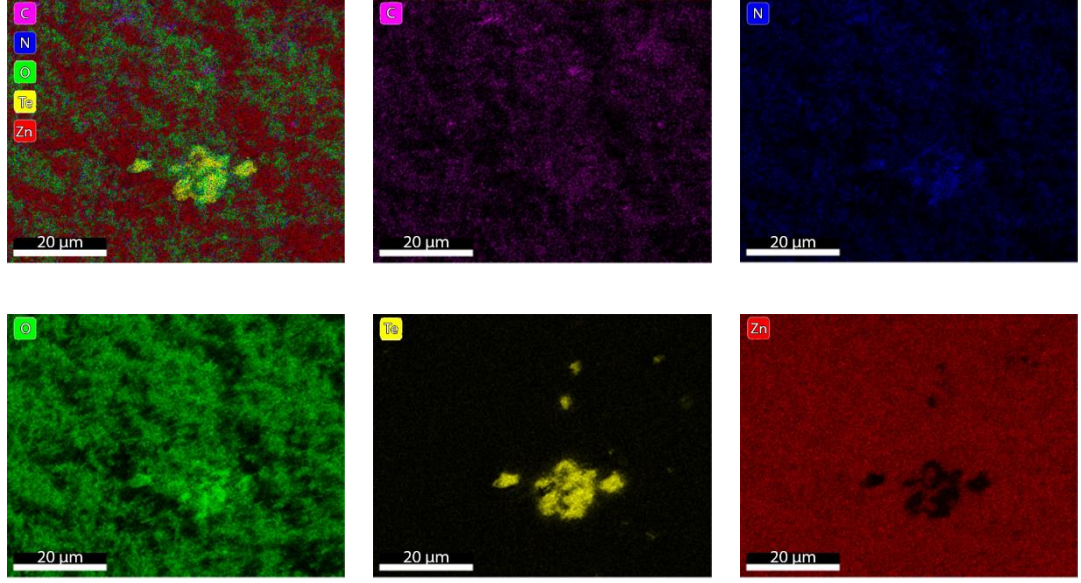
Şekil 5.1. (a)C₂N₃ (b)Te/ZnO/C₂N₃, FESEM görüntüleri

Şekil 5.2.'de bulunan EDS analizi, sentezlenen yapının ana bileşenleri olan Zn, O, C, N ve Te elementlerinin yüzeyde varlığını doğrulamaktadır. Tellür sinyali, yapıya tellür katkısının başarıyla entegre edildiğini ve yüzeyde tespit edilebilir düzeyde bulunduğunu göstermektedir. Bu bulgular, hazırlanan fotokatalizörün hedeflenen kimyasal bileşime sahip olduğunu kanıtlamaktadır.



Şekil 5.2. Te/ZnO/C₂N₃ EDS Spektrumu

Elemental haritalama sonuçları, tüm elementlerin yüzey boyunca homojen bir şekilde dağıldığını göstermektedir(Şekil 5.3.). Özellikle Zn ve O elementlerinin birlikte yayılımı ZnO yapısının bütünlüğünü ortaya koyarken, C ve N elementlerinin eş zamanlı dağılması C₂N₃ iskeletinin yüzey boyunca düzenli bir şekilde yerleştiğini göstermektedir. Tellür elementinin de benzer şekilde yüzeye entegre şekilde dağılmış olması, yapının tüm bileşenlerinin etkili bir sentezle bir araya getirildiğini ortaya koymaktadır. Bu bulgular, fotokatalitik etkinlik için gerekli olan çoklu bileşenli ve düzgün yüzey yapısının elde edildiğini göstermektedir.

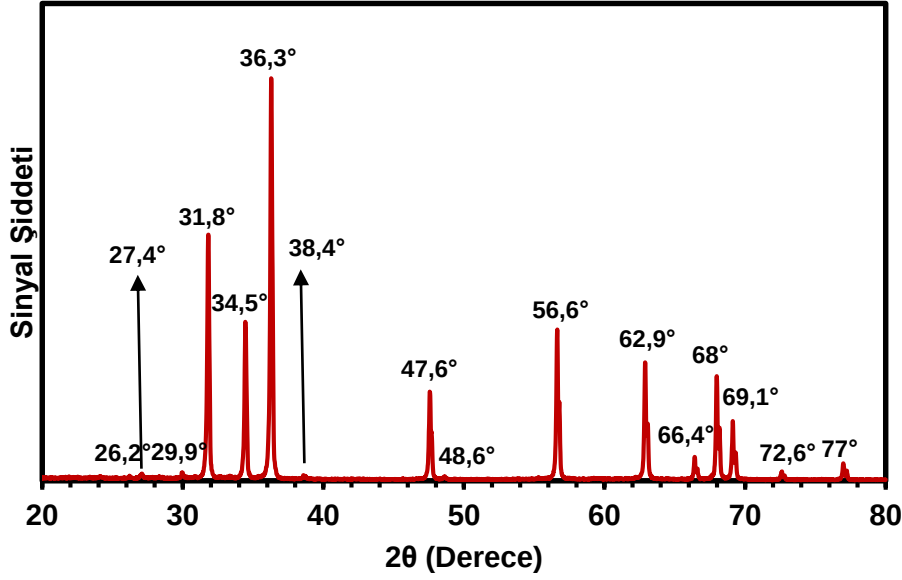


Şekil 5.3. Te/ZnO/C₂N₃ Elemental haritalaması

5.1.2. XRD spektrumları

Te/ZnO/C₂N₃ kompozitinin kristal yapısı, X-ışını difraktometre (XRD) analizi ile incelenmiştir. Şekil 5.4.'te gösterilen desen, kompozitte yer alan bireysel fazlara ait karakteristik kırınım piklerini açıkça ortaya koymaktadır. ZnO'ya ait karakteristik (100), (002), (101), (110), (103), (200), (112), (201), (004) ve (202) düzlemlerine karşılık gelen pikler sırasıyla 31,8°, 34,5°, 36,3°, 56,6°, 62,9°, 66,4°, 68,0°, 69,1°, 72,6° ve 77,0° 2θ değerlerinde gözlenmiş olup, bu değerler JCPDS kartı No. 01-080-0075 ile iyi bir uyum göstermektedir. Bu sonuçlar, ZnO'nun hekzagonal wurtzite yapısını koruyarak kristal halde bulunduğunu doğrulamaktadır.

Ayrıca, TeO₂'ye ait karakteristik pikler 26,2°, 29,9°, 47,6° ve 48,6° gibi açılarda gözlemlenmiştir. Bu kırınım sinyalleri, TeO₂'nin paratellurit fazında bulunduğunu ve JCPDS No. 01-074-0269 numaralı kartla uyumlu olduğunu göstermektedir. Pik şiddetlerinin nispeten daha düşük olması, TeO₂'nin kompozit içerisinde düşük miktarda bulunduğunu ve homojen olarak dağılmış olabileceğini düşündürmektedir. Sentezde oluşan TeO₂'nin arıtıma etkisi düşünülerek sentez Te yerine TeO₂ kullanılarak tekrarlanmış fakat fotokatalitik etkinin azaldığı gözlemlenmiştir.



Şekil 5.4. Te/ZnO/C₂N₃ XRD Spektrumu

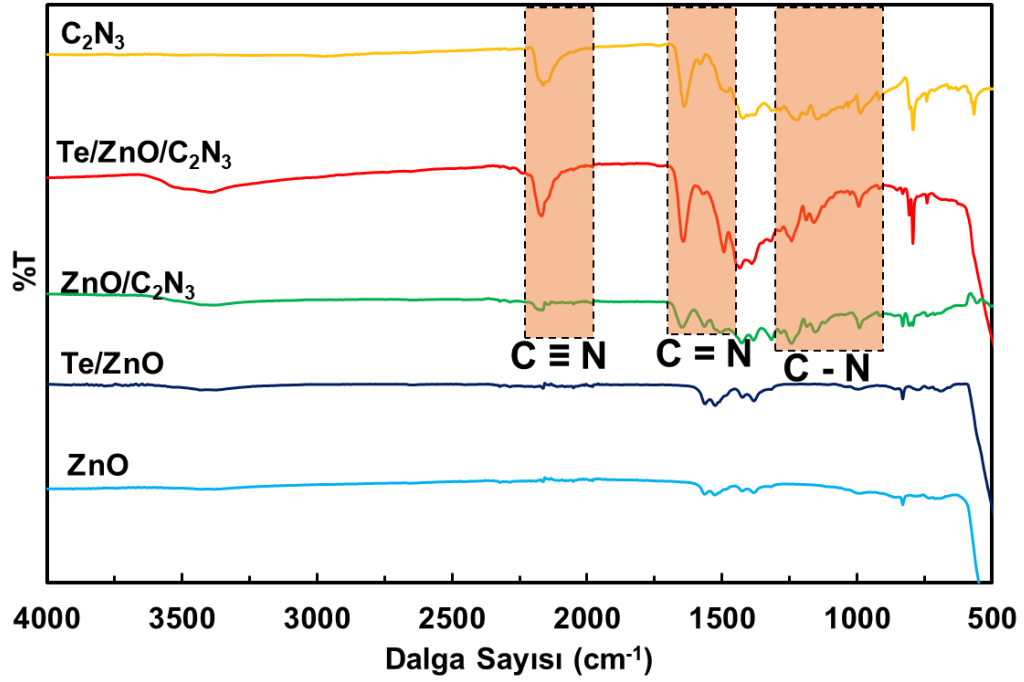
27,4° ve 38,2° değerlerindeki kırınım sinyalleri, C₂N₃ yapısına ait olup literatürde grafitik karbon nitrür benzeri yapılara atfedilen düzlemlere karşılık gelir. Daha önceki yorumlarda C₂N₃'ün amorf olduğu belirtilmiş olsa da, bu bulgular C₂N₃'ün düşük kristalliliğe sahip bir yapıda olduğunu ortaya koymaktadır (Kumar ve ark., 2019; Wen ve ark., 2017).

Kompozit örnekte, ZnO ve TeO₂'ye ait yoğun fazların hâkim olması nedeniyle C₂N₃'e ait kırınım sinyalleri daha zayıf gözlenmiştir. Bu durum, C₂N₃'ün düşük X-ışını saçılma katsayısına sahip olması ve kompozit içerisindeki oranının daha az olmasından kaynaklanabilir. Ayrıca, gözlenen küçük açısız kaymalar, kristal yapıdaki gerginlikler, kristalit boyutundaki değişiklikler veya Te'nin ZnO kafesine sınırlı düzeyde doplanması ile ilişkili olabilir. Sonuç olarak, ZnO kristal yapısını korurken, C₂N₃ düşük kristal yapısıyla katkı sağlamakta ve TeO₂ ayrı bir faz olarak kompozitte yer almaktadır.

5.1.3. FT-IR spektrumları

Şekilde sunulan FT-IR spektrumları, ZnO, Te/ZnO, ZnO C₂N₃, Te/ZnO/C₂N₃ ve saf C₂N₃ örneklerini kapsamaktadır. Özellikle 2167 cm⁻¹'de gözlenen karakteristik keskin bant, literatürde azid yapılarla ilişkilendirilen ve -C≡N (karbon-azot üçlü bağı) gerilme titreşimine karşılık gelir (Tang ve ark., 2021). Bu pik, C₂N₃'ün yapısında bulunan grafitik azid benzeri yapılara işaret eder. Ayrıca, 1500–1700 cm⁻¹ aralığında gözlenen belirgin bantlar, heptazin yapısında yer alan C=N çiftli bağların gerilme

titreşimlerinden kaynaklanmaktadır. Bu bantların varlığı, C_2N_3 yapısının aromatik özellikteki π -bağlı azot içeren halkalar içerdiğini doğrular. Özellikle ZnO/C_2N_3 ve $Te/ZnO/C_2N_3$ spektrumlarında bu bölgede gözlenen kaymalar ve şiddet değişimleri, C_2N_3 ile ZnO arasındaki etkileşimleri ve hibrid yapının başarılı oluşumunu destekler niteliktedir.



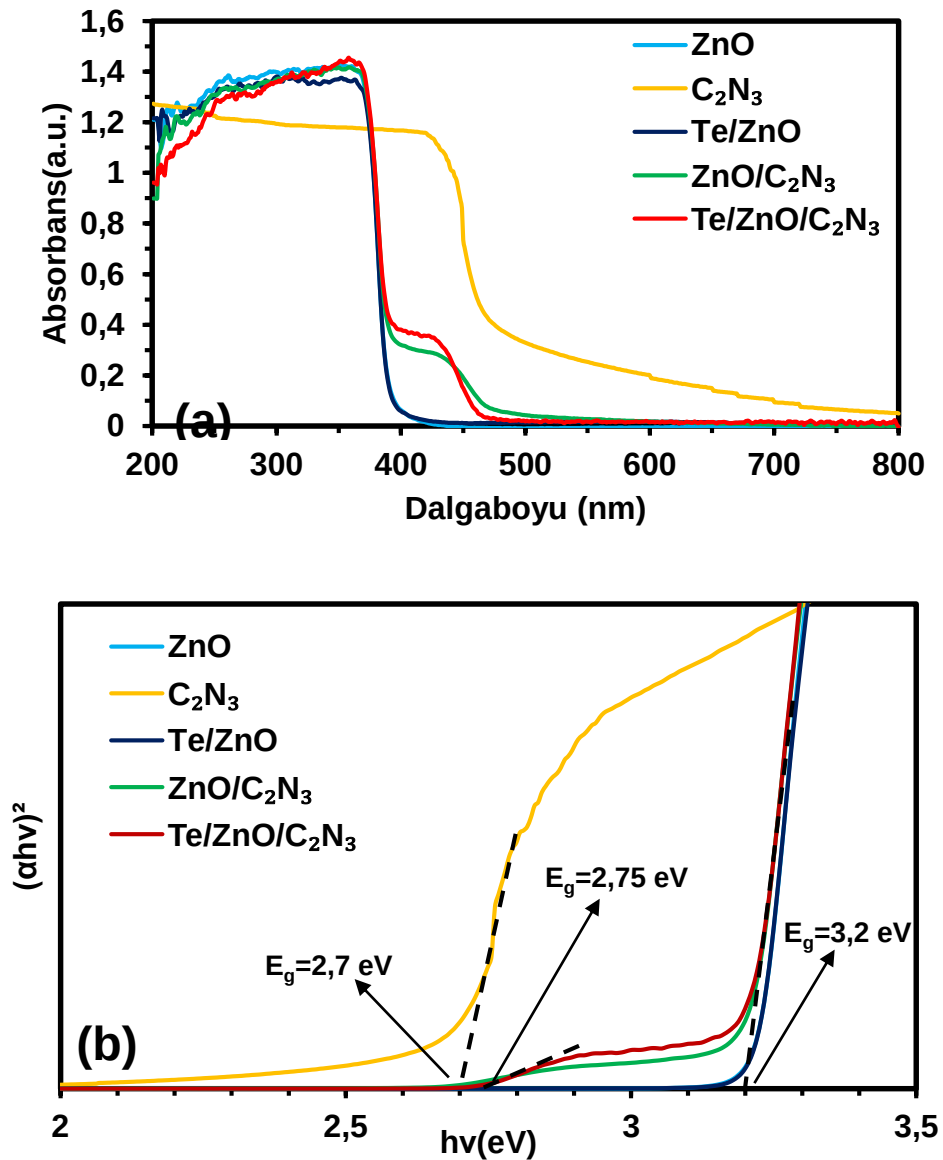
Şekil 5.5. Fotokatalizörlerin FT-IR spektrumları

Yaklaşık 812 cm^{-1} 'de yer alan keskin bant ise triazin halkalarının dışa soluma (breathing) moduna karşılık gelmekte olup C_2N_3 'ün kristal benzeri grafitik yapısını doğrulamaktadır. ZnO ve ZnO içeren kompozitlerde ise 500–600 cm^{-1} aralığında belirgin $Zn-O$ bağlarına ait gerilme titreşimleri gözlenmektedir. Te katkılı sistemlerde bu bantların korunmuş olması, ZnO yapısının bozulmadan kaldığını göstermektedir.

Sonuç olarak, spektrumda $C \equiv N$, $C = N$ ve $Zn-O$ bağlarına ait karakteristik bantların tespiti, ZnO ve C_2N_3 'ün kompozit yapı içerisinde fiziksel olarak bütünleştiğini ve yapısal özelliklerini koruduğunu göstermektedir. Bu durum, heteroyapı içinde başarılı bir kombinasyonun gerçekleştiğini ve fotokatalitik performansı olumlu yönde etkileyebilecek bir kimyasal uyumun varlığını ortaya koymaktadır.

5.1.4. UV-Vis DRS spektrumları

Fotokatalitik performans üzerinde doğrudan etkili olan optik özelliklerin değerlendirilmesi amacıyla ZnO, C₂N₃ ve Te/ZnO/C₂N₃ kompozitlerine ait UV-Vis DRS spektrumları incelenmiştir. Şekilde görüldüğü üzere ZnO, Te/ZnO ve Te/ZnO/C₂N₃ yapıları, özellikle 400 nm'nin altında güçlü bir absorpsiyon göstererek bu yapıların morötesi bölgedeki ışığı etkin bir şekilde absorbladığını ortaya koymaktadır. Buna karşın C₂N₃, 400–600 nm aralığında geniş bir absorpsiyon spektrumu sergileyerek görünür bölgeye doğru daha etkin bir absorpsiyon göstermektedir. Bu durum, C₂N₃'ün daha dar bant aralığına sahip olmasından kaynaklanmaktadır.

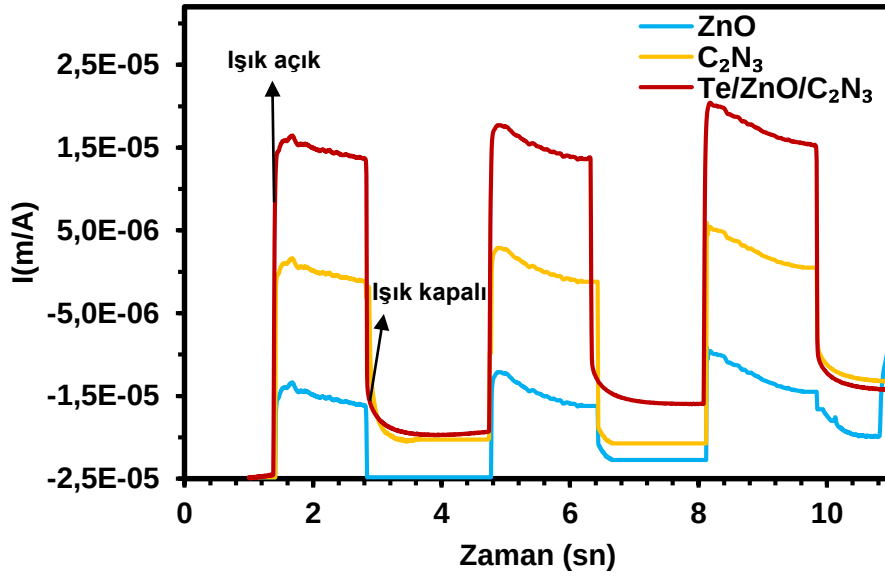


Şekil 5.6. Fotokatalizörlerin (a) UV-Vis DRS spektrumları, (b) Tauc eğrileri

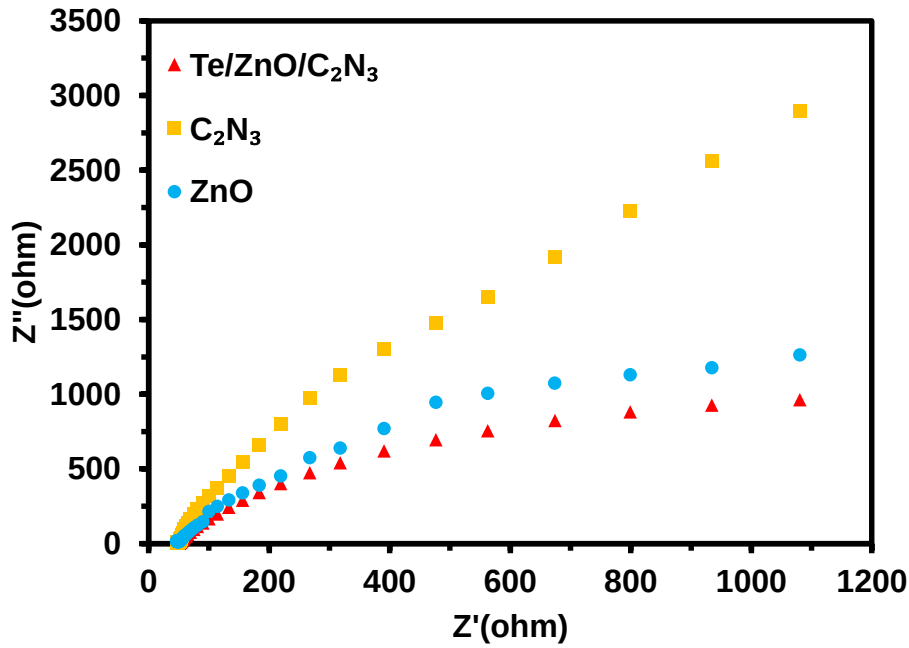
Malzemelerin bant aralıkları Tauc eğrileri kullanılarak belirlenmiştir. $(\alpha h\nu)^2 - h\nu$ grafikleri incelendiğinde, ZnO, Te/ZnO, ZnO/C₂N₃ ve Te/ZnO/C₂N₃ yapılarının bant aralıkları 3,2 eV civarında hesaplanmış olup bu değer ZnO'nun tipik bant aralığı ile uyumludur. Buna karşın C₂N₃'ün bant aralığı yaklaşık 2,7 eV olarak bulunmuştur. Te/ZnO/C₂N₃ kompozitinin bant aralığının ZnO'ya benzer şekilde 3,2 eV civarında kalması, karışım yapısında C₂N₃ ve Te oranlarının oldukça düşük (%6 C₂N₃, %5 Te) olmasıyla açıklanabilir. Ayrıca ZnO/C₂N₃ ve Te/ZnO/C₂N₃'ün 2,75 eV değerinde de bant aralığı verdiği gözlemlenebilmektedir, bu da fotokatalitik aktivitenin görünür bölgeye doğru genişlediğini göstermektedir. Te katkısının ise bant aralığını belirgin şekilde değiştirmediği, ancak arayüzde taşıyıcı geçişlerini kolaylaştırıcı etkisiyle yapının fotokatalitik etkinliğine katkı sunduğu düşünülmektedir.

5.1.5. Foto-elektrokimyasal özellikler

Fotoindüklenmiş yük taşıyıcılarının ayrışma ve taşınım verimliliğini değerlendirmek amacıyla geçici fotokimyasal akım ölçümleri gerçekleştirilmiştir. Şekil 5.7.'de sunulan geçici fotokimyasal akım-zaman (I-t) eğrileri incelendiğinde, ışık altında Te/ZnO/C₂N₃ kompozit örneğinin ürettiği akımın, hem saf ZnO hem de C₂N₃'e kıyasla belirgin şekilde daha yüksek olduğu gözlemlenmiştir. Bu artış, ZnO ve C₂N₃ arasındaki uygun bant hizalanması ile iletken tellür fazının katkısıyla, fotoyüksüz taşıyıcıların daha etkin şekilde ayrılmasına ve elektrot yüzeyine taşınmasına olanak sağladığını göstermektedir. Te/ZnO/C₂N₃ kompozitinde oluşan heteroeklem yapısı, ışıkla uyarılan elektronlar ve boşlukların rekombinasyonunu azaltarak fotokimyasal performansı önemli ölçüde artırmaktadır. Bu sonuçlar, Te/ZnO/C₂N₃ fotokatalizörünün yük taşıyıcı ayrımı ve iletimi açısından üstün özellikler sergilediğini ortaya koymaktadır.



Şekil 5.7. Fotoakım ölçümleri



Şekil 5.8. Fotokatalizörlerin Nyquist grafiği

Fotoyük taşıyıcılarının taşınım etkinliğini değerlendirmek amacıyla elektrokimyasal empedans spektroskopisi (EIS) ölçümleri gerçekleştirilmiştir. Şekil 5.8.'de sunulan Nyquist grafiğinde ZnO, C₂N₃ ve Te/ZnO/C₂N₃ örneklerinin empedans yanıtları karşılaştırılmıştır. Grafikte gözlemlenen yarım daire segmentleri, elektrot ile elektrolit arayüzeyinde gerçekleşen yük transfer sürecinin direnç bileşenine karşılık gelmektedir. Te/ZnO/C₂N₃ kompozit yapısının yarıçapının hem saf ZnO'ya hem de saf

C₂N₃'e kıyasla belirgin şekilde daha küçük olması, bu malzemenin yük transfer direncinin daha düşük olduğunu göstermektedir. Bu durum, ZnO ve C₂N₃ arasında Te katkısıyla oluşturulan heteroeklemin güçlü bir arayüz oluşturduğunu, bu sayede foto-uyarılmış yük taşıyıcıların hızlı bir şekilde ayrılarak yüzeye aktarımının kolaylaştığını göstermektedir. Elde edilen bu sonuçlar, Te/ZnO/C₂N₃ kompozit yapısının geliştirilmiş yük taşıma yeteneğine sahip olduğunu ve bu özelliğin fotokatalitik performansı artıran önemli bir etken olduğunu ortaya koymaktadır.

5.1.6. Te/ZnO/C₂N₃ üçlü kompozitinin Z-tipi bant yapısı ve fotokatalitik yük aktarımı

Te/ZnO/C₂N₃ üçlü kompozit yapısında yer alan yarıiletkenlerin enerji bant hizalanmaları, Mulliken elektronegatiflik yaklaşımı temel alınarak değerlendirilmiştir. Bu yöntem, bir yarıiletkenin iletkenlik bandı (CB) ve değerlik bandı (VB) potansiyellerini, malzemenin elektronegatifliği ve bant aralığına (E_g) göre yaklaşık olarak tahmin etme olanağı sağlar (Hernández-Laverde ve ark., 2024). ZnO ve C₂N₃ bileşenlerinin bant aralıkları, UV-Vis DRS analizleri ile sırasıyla 3,2 eV ve 2,7 eV olarak ölçülmüş ve hesaplamalarda kullanılmıştır. ZnO için bu değer, literatürde yaygın olarak bildirilen 3,2 ± 0,1 eV aralığıyla tamamen örtüşmekte ve deneysel doğruluğu desteklemektedir. Tellür, sistemde iletken bir arayüz fazı olarak bulunduğundan, aynı yöntemle enerji seviyesi analizine dâhil edilmiştir.

Bant kenarı potansiyellerinin hesaplanmasında aşağıdaki eşitlikler kullanılmıştır (Denklem 5.1, 5.2):

$$E_{CB} = \chi - E_e - \frac{E_g}{2} \quad (5.1)$$

$$E_{VB} = E_{CB} + E_g \quad (5.2)$$

Burada χ malzemenin elektronegatifliği (eV), E_e serbest elektronun vakum seviyesi (4,5 eV) ve E_g ise deneysel olarak belirlenen bant aralığıdır.

ZnO için $\chi=5,79$ ve $E_g=3,20$ alındığında (Denklem 5.3, 5.4):

$$E_{CB} = 5,79 - 4,5 - \frac{3,2}{2} = -0,31 \text{ V} \quad (5.3)$$

$$E_{VB} = -0,31 + 3,2 = +2.89 \quad (5.4)$$

C₂N₃ için $\chi=4.73$ ve $E_g=2.70$ eV alındığında (Denklem (5.5, 5.6):

$$E_{CB} = 4,73 - 4,5 - \frac{2,7}{2} = -1,12 \quad (5.5)$$

$$E_{VB} = -1,12 + 2,7 = +1,58 \text{ V} \quad (5.6)$$

Tellür için $\chi=4.95$ ve $E_g=0.33$ eV kabul edilmiştir (Denklem 5.7, 5.8):

$$E_{CB} = 4,95 - 4,5 - \frac{0,33}{2} = +0,29 \text{ V} \quad (5.7)$$

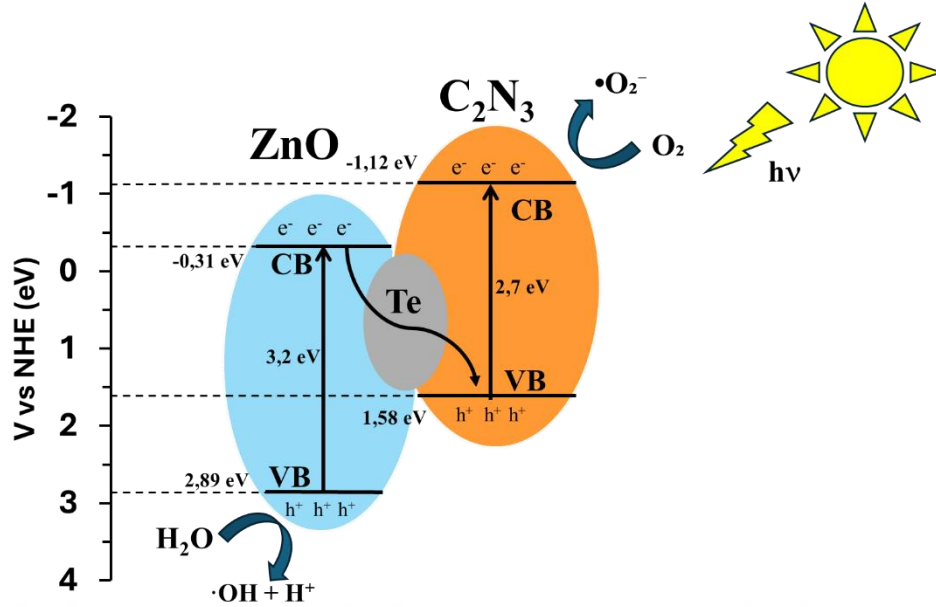
$$E_{VB} = +0.29 + 0.33 = +0.62 \text{ V} \quad (5.8)$$

Elde edilen tüm bant seviyeleri Tablo 5.1.'de özetlenmiştir:

Tablo 5.1. ZnO, C₂N₃ ve Te'nin bant yapısı değerleri

Malzeme	Elektronegatiflik (χ , eV)	Bant Aralığı (E_g , eV)	CB (eV vs NHE)	VB (eV vs NHE)
ZnO	5,79	3,20	-0,31	+2,89
C ₂ N ₃	4,73	2,70	-1,12	+1,58
Te	4,95	0,33	+0,29	+0,62

Bu hesaplamalar, sistemin klasik tip II heteroyapı modelinden farklı olarak Z tipi yük transfer mekanizması sergilediğini göstermektedir(Şekil 5.9.). Z yapısında, ışıkla uyarılan C₂N₃'teki elektronlar ile ZnO'daki boşluklar yüzeyde rekombine olurken, yalnızca C₂N₃'teki indirgeme potansiyeli yüksek elektronlar ve ZnO'daki yükseltgenme potansiyeli yüksek boşluklar sistemde kalır. Bu ayrışma, O₂'nin •O₂⁻ radikaline indirgenmesini sağlayan -1,12 V'luk C₂N₃ CB potansiyeli ve H₂O'nun •OH radikaline yükseltgenmesini mümkün kılan +2,89 V'luk ZnO VB potansiyeli sayesinde, fotokatalitik reaksiyonların etkin şekilde gerçekleşmesini sağlar.



Şekil 5.9. Te/ZnO/C₂N₃ kompozitinde önerilen Z-Şeması yük taşıma mekanizması

Klasik tip II sistemlerde ise elektron ve boşluklar daha düşük redoks potansiyellerine sahip seviyelere aktarıldığından, taşıyıcıların reaktivitesi düşer. Z yapısı bu sorunu ortadan kaldırarak sistemdeki taşıyıcıların redoks gücünü korur. Tellür, doğrudan bir fotokatalitik faz olmasa da ZnO ve C₂N₃ arasında iletken bir arayüz oluşturarak, fotoyük taşıyıcılarının ayrışma ve taşınım etkinliğini artırmakta, yüzeysel rekombinasyonları azaltmakta ve Z yapısının sürekliliğini desteklemektedir. Tüm bu bulgular birlikte değerlendirildiğinde, deneysel bant aralığı ölçümleriyle uyumlu olan Mulliken temelli hesaplamalar, Te/ZnO/C₂N₃ kompozitinin Z tipi heteroyapı karakteristiği taşıdığını açıkça ortaya koymakta ve bu yapının sistemin yüksek fotokatalitik etkinliğinde belirleyici rol oynadığını göstermektedir.

5.2. Metilen Mavisi'nin Fotokatalitik Giderimi

Organik boyar maddeler, özellikle tekstil endüstrisinden kaynaklı atıksuların başlıca kirleticileri arasında yer almakta ve çevreye verdikleri zararlar nedeniyle etkili arıtım yöntemlerine ihtiyaç duyulmaktadır. Bu bağlamda, fotokatalitik arıtım yöntemleri, güneş ışığı gibi yenilenebilir enerji kaynaklarından faydalanarak çevre dostu bir alternatif sunar. Bu çalışmada, model kirletici olarak seçilen MM boyasının, sentezlenen farklı katalizör sistemleri yardımıyla fotokatalitik giderimi incelenmiştir.

Fotokatalitik deneylerde, ZnO ve C₂N₃ gibi tek başına olan yarıiletkenlerin yanı sıra, bu malzemelerin tellür (Te) ile modifiye edilmiş kompozitleri de değerlendirilmiştir.

Te/ZnO/C₂N₃ üçlü kompozitleri, optimize oranlarda birleştirilerek oluşturulmuş ve MM giderimi üzerindeki etkileri kıyaslanmıştır. Tüm deneyler, 300 W Osram UltraVitalux lamba kullanılarak gerçekleştirilen aydınlatma altında yürütülmüş; adsorpsiyon katkısını dışlamak amacıyla ayrı bir karanlık deney de yapılmıştır.

Elde edilen veriler, özellikle tellür katkısının kompozit sistemlerde önemli bir rol oynadığını ortaya koymaktadır. Te/ZnO/C₂N₃ kompozit yapısı, ZnO ve C₂N₃ arasındaki elektron transferini kolaylaştırarak, fotoyüksüz taşıyıcıların rekombinasyonunu baskılamakta ve böylece boyar madde giderimini etkin şekilde gerçekleştirmektedir. Bu yapı sayesinde hem oksidasyon hem de indirgeme reaksiyonları daha yüksek verimle gerçekleşmekte, sistemin fotokatalitik performansı belirgin biçimde artmaktadır.

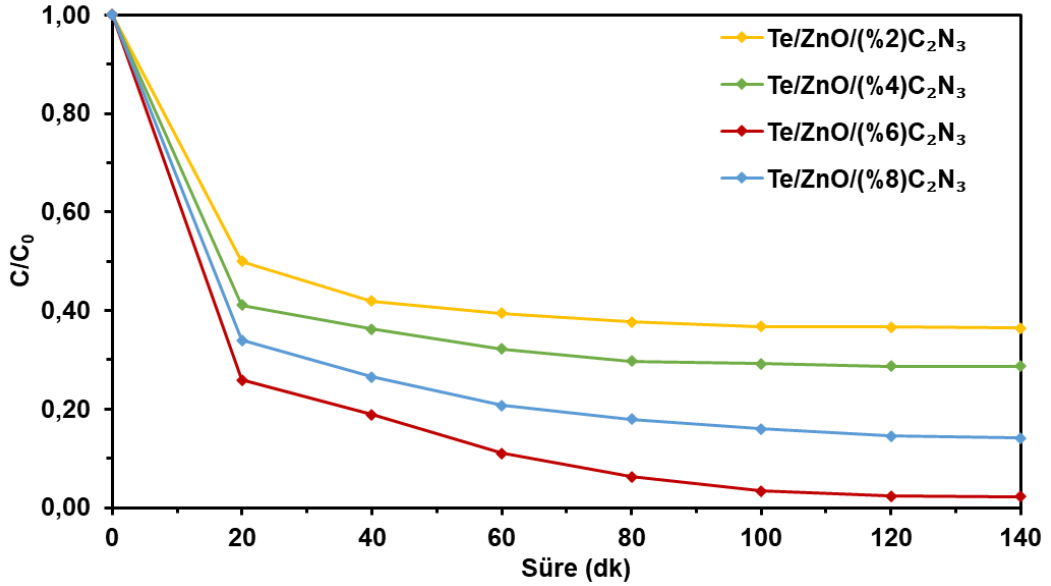
5.2.1. C₂N₃ oranının optimizasyonu

Te oranı %5 sabit tutularak gerçekleştirilen deneylerde, C₂N₃ oranının fotokatalitik performansa etkisi değerlendirilmiştir (Şekil 5.10., Tablo 5.2.). Te/ZnO/C₂N₃ kompozitlerinde C₂N₃ oranı %2, %4, %6 ve %8 olarak artırıldığında, giderim verimi sırasıyla %63,33, %71,27, %97,62 ve %85,5 olarak belirlenmiştir. Bu sonuçlara göre %6 oranında C₂N₃ içeren kompozit, en yüksek metilen mavisi giderim verimine ulaşmıştır. Bu artış, ZnO ile C₂N₃ arasında oluşan uygun bant hizalanması ve etkili yük taşıyıcı ayrımıyla açıklanabilir. Ancak, C₂N₃ oranının %6'nın üzerine çıkmasıyla birlikte fotokatalitik verimin düşmeye başladığı görülmektedir; bu durum fazla C₂N₃'ün ışık absorpsiyonunu sınırlayarak aktif bölge sayısını azaltmasıyla ilişkilendirilebilir.

Tablo 5.2. Farklı C₂N₃ oranlarında hazırlanmış Te/ZnO/C₂N₃ fotokatalizörlerinin metilen mavisi üzerine fotokatalitik giderim verimlerinin karşılaştırılması

Süre (dakika)	Te/ZnO/(%2)C ₂ N ₃		Te/ZnO/(%4)C ₂ N ₃		Te/ZnO/(%6)C ₂ N ₃		Te/ZnO/(%8)C ₂ N ₃	
	C/C ₀	Toplam Verim(%)	C/C ₀	Toplam Verim(%)	C/C ₀	Toplam Verim(%)	C/C ₀	Toplam Verim(%)
20	1,00	0,00	1,00	0,00	1,00	0,00	1,00	0,00
40	0,50	50,00	0,41	58,89	0,26	74,14	0,34	65,99
60	0,42	58,10	0,36	63,72	0,19	81,14	0,27	73,50
80	0,40	60,50	0,32	67,82	0,11	88,94	0,21	79,30
100	0,38	62,34	0,30	70,24	0,06	93,67	0,18	82,00
120	0,37	63,28	0,29	70,80	0,03	96,60	0,16	84,00
140	0,37	63,33	0,29	71,27	0,02	97,62	0,15	85,50

Bu bölümde, farklı katkı oranlarına ve bileşen kombinasyonlarına sahip sistemlerin fotokatalitik giderim performansları üç ayrı başlık altında değerlendirilmiş ve optimum yapının belirlenmesine yönelik karşılaştırmalar sunulmuştur.



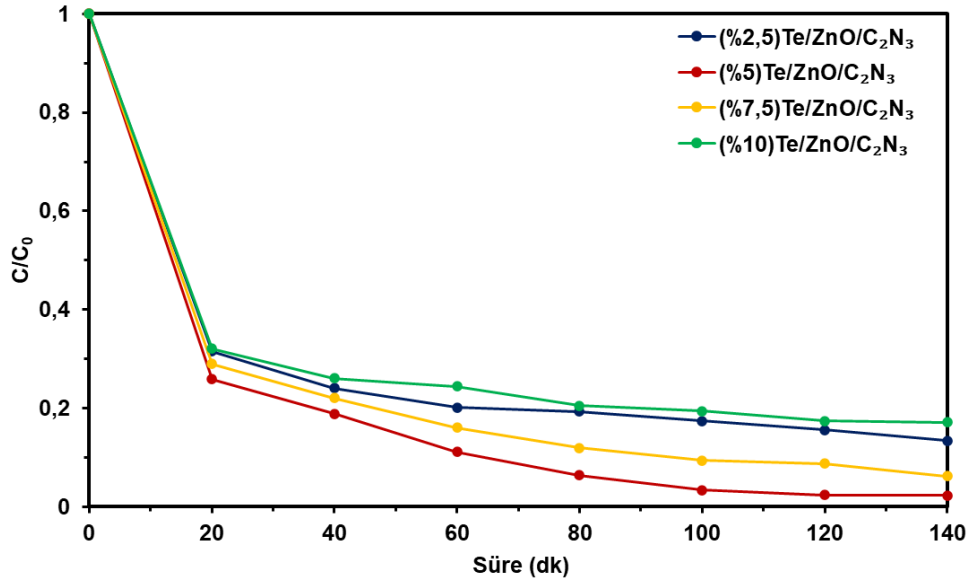
Şekil 5.10. Farklı C₂N₃ oranlarında hazırlanmış Te/ZnO/C₂N₃ fotokatalizörlerinin metilen mavisi üzerine fotokatalitik giderim verimlerinin karşılaştırılması(MM dozu: 10 mg/L⁻¹, katalizör dozu: 25 mg, numune hacmi: 25 mL).

5.2.2. Tellür oranının optimizasyonu

C₂N₃ oranı %6 sabit tutularak, Te içeriğinin fotokatalitik performans üzerindeki etkisi değerlendirilmiştir(Şekil 5.11., Tablo 5.3.). Te oranı %2,5, %5, %7,5 ve %10 olarak artırıldığında, Te/ZnO/C₂N₃ kompozitlerinin metilen mavisi giderim verimleri sırasıyla %84,40, %97,62, %91,27 ve %83 olarak ölçülmüştür. En yüksek fotokatalitik aktiviteye %5 Te içeren örnek ulaşmıştır. Bu durum, uygun Te miktarının ZnO ve C₂N₃ arasında etkili bir arayüz oluşturarak yük taşıyıcıların ayrılmasını kolaylaştırmasıyla açıklanabilir. Ancak Te oranı %5'in üzerine çıktığında, aşırı Te miktarının yüzeyi kaplayarak aktif bölgeleri engellediği ve rekombinasyon ihtimalini artırdığı düşünülmektedir. Bu nedenle, optimal Te miktarının %5 olduğu sonucuna varılmıştır.

Tablo 5.3. Farklı Te oranlarında hazırlanmış Te/ZnO/C₂N₃ fotokatalizörlerinin metilen mavisi üzerine fotokatalitik giderim verimlerinin karşılaştırılması

	(%2,5)Te/ZnO/C ₂ N ₃		(%5)Te/ZnO/C ₂ N ₃		(%7,5)Te/ZnO/C ₂ N ₃		(%10)Te/ZnO/C ₂ N ₃	
Süre (dakika)	C/C ₀	Toplam Verim(%)	C/C ₀	Toplam Verim(%)	C/C ₀	Toplam Verim(%)	C/C ₀	Toplam Verim(%)
20	1,00	0,00	1,00	0,00	1,00	0,00	1,00	0,00
40	0,32	68,50	0,26	74,14	0,29	71,00	0,32	67,90
60	0,24	76,00	0,19	81,14	0,22	78,00	0,26	74,00
80	0,20	79,90	0,11	88,94	0,16	84,00	0,24	75,60
100	0,19	80,74	0,06	93,67	0,12	88,11	0,21	79,50
120	0,17	82,60	0,03	96,60	0,09	90,63	0,19	80,60
140	0,16	84,40	0,02	97,62	0,09	91,27	0,17	82,60



Şekil 5.11. Farklı Te oranlarında hazırlanmış Te/ZnO/C₂N₃ fotokatalizörlerinin metilen mavisi üzerine fotokatalitik giderim verimlerinin karşılaştırılması (MM dozu: 10 mg L⁻¹, katalizör dozu: 25 mg, numune hacmi: 25 mL)

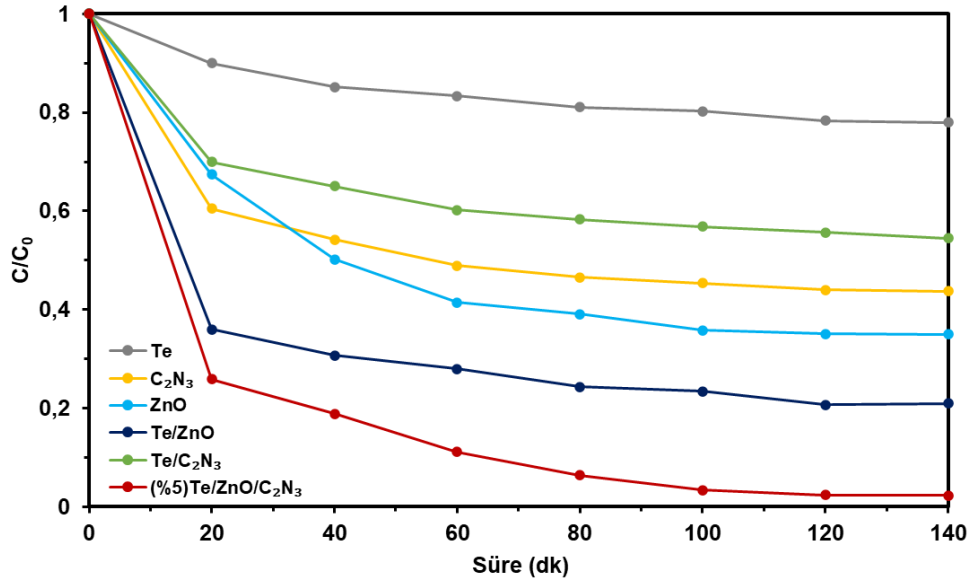
5.2.3. İkili ve tekli katalizörlerin fotokatalitik performanslarının karşılaştırılması

C₂N₃, ZnO, Te, Te/ZnO, Te/C₂N₃ ve Te/ZnO/C₂N₃ (%5) örneklerinin fotokatalitik performansları karşılaştırmalı olarak değerlendirilmiştir (Şekil 5.12.). Elde edilen veriler, saf Te'nin yalnızca %21,7, Te/C₂N₃'nin %44,3 ve Te/ZnO'nun %79,3 giderim verimine sahip olduğunu göstermektedir. Bu sonuçlar, saf halde veya yalnızca bir yarıiletkenle kombine edilmiş Te'nin sınırlı bir fotokatalitik aktiviteye sahip olduğunu ortaya koymaktadır. Buna karşılık, ZnO (%64,9) ve C₂N₃ (%56) gibi saf yarıiletkenlerin performansları daha yüksek olsa da, bu değerler Te/ZnO/C₂N₃ (%5)'in ulaştığı %97,62 giderim veriminin oldukça gerisinde kalmaktadır. Bu fark, üçlü

kompozit sistemde oluşan heteroeklem yapının yük taşıyıcıların etkin ayrışmasını ve yüzey reaksiyonlarını daha verimli şekilde desteklemesinden kaynaklanmaktadır.

Tablo 5.4. Farklı tekli ve ikili katalizörler ile üçlü Te/ZnO/C₂N₃ (%5) kompozit yapısının metilen mavisi üzerine fotokatalitik giderim verimlerinin karşılaştırılması

Süre (dakika)	Te		C ₂ N ₃		ZnO		Te/ZnO		Te/C ₂ N ₃		(%5)Te/ZnO/C ₂ N ₃	
	C/C ₀	Toplam Verim(%)	C/C ₀	Toplam Verim(%)	C/C ₀	Toplam Verim(%)	C/C ₀	Toplam Verim(%)	C/C ₀	Toplam Verim(%)	C/C ₀	Toplam Verim(%)
20	1,00	0,00	1,00	0,00	1,00	0,00	1,00	0,00	1,00	0,00	1,00	0,00
40	0,90	10,00	0,60	39,55	0,67	32,57	0,36	64,00	0,70	30,00	0,26	74,14
60	0,85	14,83	0,54	45,76	0,50	49,79	0,31	69,30	0,65	35,00	0,19	81,14
80	0,83	16,64	0,49	51,04	0,41	58,58	0,28	72,00	0,60	39,80	0,11	88,94
100	0,81	18,90	0,47	53,50	0,39	60,90	0,24	75,70	0,58	41,70	0,06	93,67
120	0,80	19,70	0,45	54,60	0,36	64,20	0,23	76,60	0,57	43,20	0,03	96,60
140	0,78	21,70	0,44	56,00	0,35	64,90	0,21	79,30	0,56	44,30	0,02	97,62



Şekil 5.12. Farklı tekli ve ikili katalizörler ile üçlü Te/ZnO/C₂N₃ (%5) kompozit yapısının metilen mavisi üzerine fotokatalitik giderim verimlerinin karşılaştırılması (MM dozu: 10 mg L⁻¹, katalizör dozu: 25mg, numune hacmi: 25 mL)

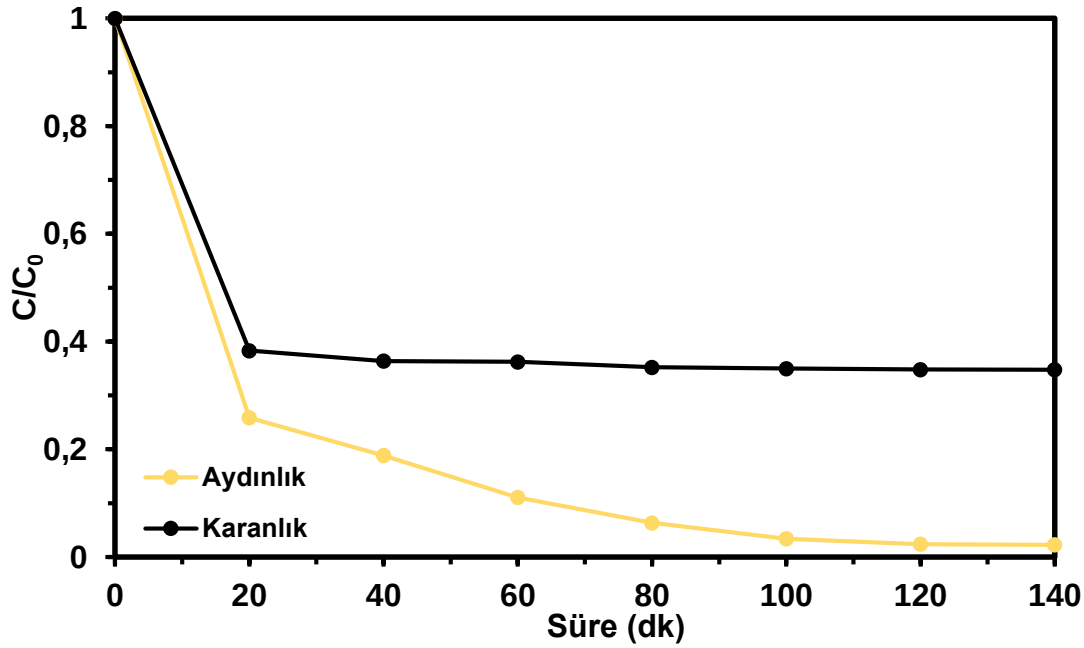
5.2.4. Karanlık ortamda adsorpsiyon etkisinin değerlendirilmesi

Te/ZnO/C₂N₃ örneklerinin fotokatalitik performansları ve metilen mavi giderim verimi aydınlık ve karanlıkta karşılaştırmalı olarak değerlendirilmiştir (Şekil 5.13.). Karanlık koşullarda yapılan kontrol deneyinde metilen mavisi giderim verimi %65,2 olarak belirlenmiştir. Bu yüksek giderim oranı, fotokatalizörlerin yüzeyinde güçlü bir adsorpsiyon gerçekleştiğini göstermektedir. Şekil 5.14'de de görüldüğü gibi deney sırasında katalizörlerin MM kaplanması, boyar maddenin yüzeye tutunduğunu görsel

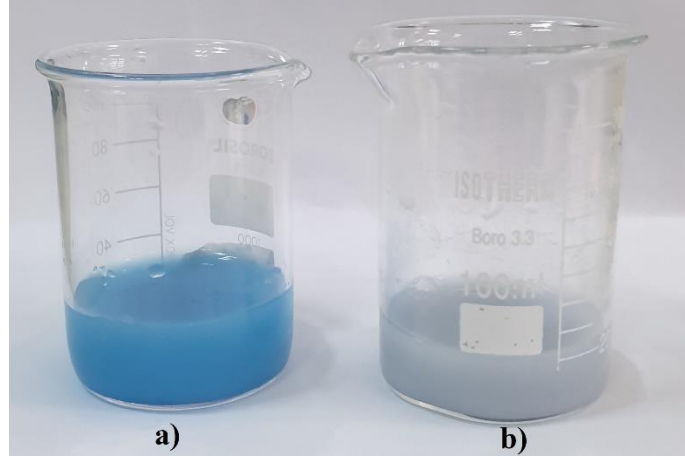
olarak da doğrulamaktadır. Işık uygulanmadığında bile bu düzeyde giderim gözlenmesi, sistemde fiziksel adsorpsiyonun önemli bir rol oynadığını ortaya koymaktadır. Ancak esas fotokatalitik aktivitenin, yüzeye adsorplanmış metilen mavisinin ışık varlığında parçalanmasıyla gerçekleştiği anlaşılmaktadır. Bu durum, fotokataliz sürecinde yalnızca çözeltideki değil, aynı zamanda yüzeye tutunmuş boyar maddelerin de etkili bir şekilde ayrıştığını göstermektedir.

Tablo 5.5. Te/ZnO/C₂N₃ katalizörünün karanlık ve aydınlıkta metilen mavisi üzerine fotokatalitik giderim verimlerinin karşılaştırılması

Süre (dakika)	Aydınlık		Karanlık	
	C/C ₀	Toplam Verim(%)	C/C ₀	Toplam Verim(%)
20	1,00	0,00	1,00	0,00
40	0,26	74,14	0,38	61,69
60	0,19	81,14	0,36	63,61
80	0,11	88,94	0,36	63,76
100	0,06	93,67	0,35	64,78
120	0,03	96,60	0,35	65,01
140	0,02	97,62	0,35	65,20



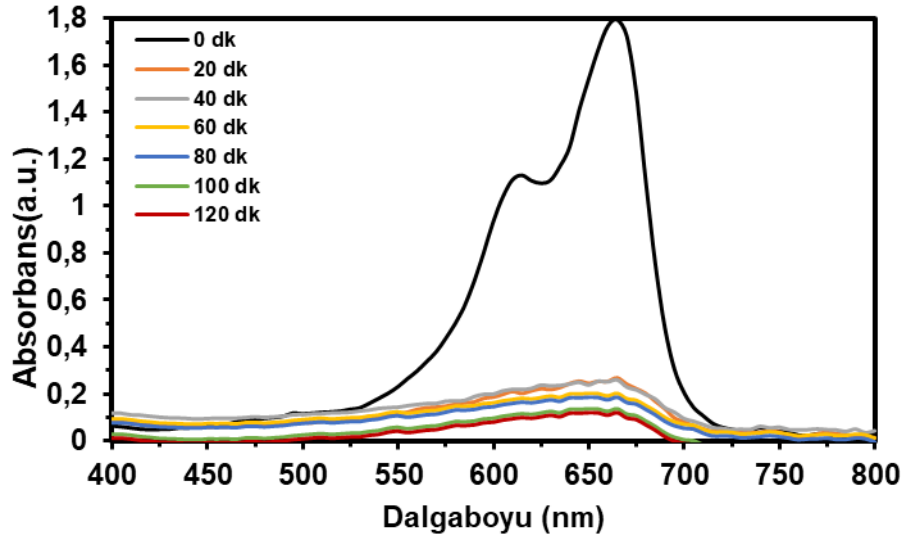
Şekil 5.13. Te/ZnO/C₂N₃ katalizörünün karanlık ve aydınlıkta metilen mavisi üzerine fotokatalitik giderim verimlerinin karşılaştırılması (MM dozu: 10 mg L⁻¹, katalizör dozu: 25 mg, numune hacmi: 25 mL)



Şekil 5.14. a) Karanlıkta, **b)** aydınlıkta, Te/ZnO/C₂N₃ fotokatalizörünün metilen mavisi üzerine fotokatalitik giderim verimlerinin karşılaştırılması (MM dozu: 10 mg L⁻¹, katalizör dozu: 25 mg, numune hacmi: 25 mL)

5.2.5. Te/ZnO/C₂N₃ üçlü kompozitinin metilen mavi gideriminin spektrum taraması ile incelenmesi

Optimum olarak belirlenen %6 C₂N₃ ve %5 Te içeren Te/ZnO/C₂N₃ fotokatalizörlerinin MM giderimi üzerine fotokatalitik giderimini göstermek adına 120 dakikaya kadar olacak şekilde spektrum taraması yapılmıştır. Şekil 5.15.'de de görüldüğü üzere 120 dakikanın sonunda MM'nin oluşturduğu mavi rengi veren 615 ve 665 nm dalgaboylarında neredeyse tamamen renk giderimi sağlanmıştır.



Şekil 5.15.Optimum oranda hazırlanmış Te/ZnO/C₂N₃ fotokatalizörlerinin metilen mavisi üzerine fotokatalitik giderim verimlerinin spektrum taraması(MM dozu: 10 mg/L⁻¹, katalizör dozu: 25 mg, numune hacmi: 25 mL).



6. SONUÇLAR

Bu tez kapsamında sentezlenen tellür katkılı ZnO/C₂N₃ kompozitleri kullanılarak metilen mavisi boyasının fotokatalitik giderimi araştırılmış ve elde edilen bulgular aşağıda özetlenmiştir:

- En yüksek fotokatalitik performans, %6 C₂N₃ ve %5 Te içeren Te/ZnO/C₂N₃ kompozit örneğinde elde edilmiştir. Bu örnek %97,62 giderim verimi ile saf ZnO (%64,9) ve saf C₂N₃ (%56) fotokatalizörlerine kıyasla önemli bir üstünlük göstermiştir.
- Geçici fotokimyasal akım ölçümleri, bu kompozitin ışık altında fotoyük taşıyıcı ayrışma ve taşınım etkinliğinin yüksek olduğunu göstermiştir.
- Nyquist eğrilerinden elde edilen EIS verileri, Te/ZnO/C₂N₃ kompozitinin daha düşük yük transfer direncine sahip olduğunu ve böylece yüzeye etkin taşıyıcı aktarımı sağladığını ortaya koymuştur.
- Mulliken elektronegatiflik yaklaşımıyla hesaplanan bant hizalanmaları, bu sistemin klasik tip II heteroyapılardan farklı olarak Z yapılı bir yük taşıma mekanizmasına sahip olduğunu doğrulamaktadır. Bu yapıda, C₂N₃'ün iletkenlik bandındaki elektronlar, ZnO'nun değerlik bandındaki boşluklarla yüzeyde rekombine olur. Böylece sadece yüksek indirgeme potansiyeline sahip C₂N₃ CB elektronları ve yüksek yükseltgenme potansiyeline sahip ZnO VB boşlukları sistemde kalır. Bu durum taşıyıcıların redoks gücünü koruyarak fotokatalitik verimi artırır.
- Tellür, doğrudan bir fotokatalitik faz olmamakla birlikte ZnO ile C₂N₃ arasında iletken bir köprü görevi görmüş ve Z yapısının sürekliliğini sağlayarak yük geçişini desteklemiştir.
- Karanlıkta elde edilen %65,20 giderim verimi, sistemin güçlü adsorpsiyon kapasitesine sahip olduğunu göstermiştir. Işık maruziyeti sırasında, yüzeye adsorplanmış MM'nin etkin şekilde parçalanması, fotokatalitik mekanizmanın yüzey etkileşimleriyle güçlendiğini ortaya koymuştur.

Sonu olarak, bu alıřmada geliřtirilen Te/ZnO/C₂N₃ kompoziti; gl adsorpsiyon kabiliyeti, dřk yk transfer direnci, yksek tařıyıcı ayırırma etkinlięi ve Z yapılı heteroyapı karakteri sayesinde etkili bir fotokatalizr olduęunu gstermiřtir. Yenilenebilir enerji kaynaklarından biri olan gneř iřıęını kullanarak toksik boyar maddelerin giderimini saęlaması, bu sistemi evresel srdrlebilirlik aısından da deęerli kılmaktadır. Bu baęlamda, alıřma evre mhendislięi alanında fotokatalitik arıtım uygulamalarının geliřtirilmesine katkı sunmaktadır.



KAYNAKLAR

- Ahmad, I., Shukrullah, S., Naz, M. Y., Bhatti, H. N., Ahmad, M., Ahmed, E., Ullah, S. & Hussien, M. (2022). Recent progress in rare earth oxides and carbonaceous materials modified ZnO heterogeneous photocatalysts for environmental and energy applications. *Journal of Environmental Chemical Engineering*, 10(3), 107762.
- Al-Mhyawi, S. R., Abdel-Tawab, N. A.-H. & El Nashar, R. M. (2023). Synthesis and characterization of orange peel modified hydrogels as efficient adsorbents for methylene blue (MB). *Polymers*, 15(2), 277.
- Al-Zahrani, S. A., Khedr, A. M., Alturki, A. M. & El-Yazeed, W. S. A. (2024). Integration of 2D graphene oxide/zinc oxide nanohybrid for enhancement adsorption and photodegradation of organic pollutants. *Journal of Molecular Liquids*, 395, 123956.
- Aroosh, K., Javed, M., Hussain, N., Alhujaily, A., Iqbal, S., Alotaibi, M. T., Faizan, M., Khan, M. S., Bahadur, A., Qayyum, M. A., Awwad, N. S., Jazaa, Y., Al-Fawzan, F. F. & Elkaeed, E. B. (2023). Construction of Te-ZnO@S-g-C₃N₄ Heterojunction Nanocomposites for the Efficient Removal of Methylene Blue, Antifungal Activity, and Adsorption of Cr(VI) Ion. *Adsorption Science & Technology*, 2023, 6736182. <https://doi.org/10.1155/2023/6736182>
- Ayu, Y. S. & Kasiamdari, R. S. (2022). Screening and identification of fungi isolated from batik wastewaters for decolorization of Remazol Black B dye and batik effluent. *Journal of Degraded & Mining Lands Management*, 10(1).
- Benhebal, H., Chaib, M., Leonard, A., Lambert, S. D. & Crine, M. (2012). Photodegradation of phenol and benzoic acid by sol-gel-synthesized alkali metal-doped ZnO. *Materials science in semiconductor processing*, 15(3), 264-269.
- Boddy, P. J. (1968). Oxygen evolution on semiconducting TiO₂. *Journal of the Electrochemical Society*, 115(2), 199.
- Chakravorty, A. & Roy, S. (2024a). A review of photocatalysis, basic principles, processes, and materials. İçinde *Sustainable Chemistry for the Environment* (C. 8). Elsevier B.V. <https://doi.org/10.1016/j.scenv.2024.100155>
- Chakravorty, A. & Roy, S. (2024b). A review of photocatalysis, basic principles, processes, and materials. *Sustainable Chemistry for the Environment*, 8, 100155. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.scenv.2024.100155>
- Changotra, R., Rajput, H., Guin, J. P., Khader, S. A. & Dhir, A. (2020). Techno-economical evaluation of coupling ionizing radiation and biological treatment process for the remediation of real pharmaceutical wastewater. *Journal of Cleaner Production*, 242. <https://doi.org/10.1016/j.jclepro.2019.118544>
- Chattopadhyay, D. P. (2011). Chemistry of dyeing. İçinde *Handbook of textile and industrial dyeing* (ss. 150-183). Elsevier.

- Chen, J., Ma, J., Dai, J., Wang, Y., Zheng, Y., Qiang, L. & Xue, J. (2024). The trapezoidal heterojunction ZnO/Bi₂O₃ with 3D interfacial structure for the efficient degradation of organic pollutants. *Journal of Water Process Engineering*, 58. <https://doi.org/10.1016/j.jwpe.2024.104898>
- Dayi, B., Kyzy, A. D., Abduloglu, Y., Cikrikci, K. & Akdogan, H. A. (2018). Investigation of the ability of immobilized cells to different carriers in removal of selected dye and characterization of environmentally friendly laccase of *Morchella esculenta*. *Dyes and Pigments*, 151, 15-21.
- Elsisi, H., Negm, E., Abou Elmaaty, T., Shaban, M. & Sorour, H. (2025). Development of Special Reactive Disperse Dyes for the Coloration of Wool and Nylon-6 Fabrics in Supercritical CO₂. *Fibers and Polymers*, 26(5), 2017-2029.
- Fernández-Catalá, J., Greco, R., Navlani-García, M., Cao, W., Berenguer-Murcia, Á. & Cazorla-Amorós, D. (2022). g-C₃N₄-Based Direct Z-Scheme Photocatalysts for Environmental Applications. *Catalysts*, 12(10). <https://doi.org/10.3390/catal12101137>
- Fujishima, A. & Honda, K. (1971). Electrochemical evidence for the mechanism of the primary stage of photosynthesis. *Bulletin of the chemical society of Japan*, 44(4), 1148-1150.
- Geelani, S. M., Bhat, R. A. & Tonelli, F. M. P. (2024). *Advances in Natural Dyes for Environmental Protection: Degradation and Remediation*. CRC Press.
- González, S. & Jaramillo-Fierro, X. (2025). Density Functional Theory Study of Methylene Blue Demethylation as a Key Step in Degradation Mediated by Reactive Oxygen Species. *International Journal of Molecular Sciences*, 26(4), 1756.
- Hernández-Laverde, M., Morante, N., Gutiérrez, B. L., Murcia, J. J., Monzillo, K., Sannino, D. & Vaiano, V. (2024). Solar Light Elimination of Bacteria, Yeast and Organic Pollutants by Effective Photocatalysts Based on Ag/Cr-TiO₂ and Pd/Cr-TiO₂. *Nanomaterials*, 14(21), 1730.
- Hussein, E. B. & Rasheed, F. A. (2025). Innovative use of recycled aluminum adsorbent for methylene blue adsorption and post-application for soil stabilization. *Journal of Contaminant Hydrology*, 272, 104553.
- Isa, E. D. M., Jusoh, N. W. C., Hazan, R. & Shameli, K. (2020). Pullulan mediated zinc oxide microparticles: Effect of synthesis temperature. *IOP Conference Series: Materials Science and Engineering*, 808(1), 012032.
- Jadhav, I., Vasniwal, R., Shrivastava, D. & Jadhav, K. (2016). Microorganism-based treatment of azo dyes. *Journal of Environmental Science and Technology*, 9(2), 188.
- Jia, J., Zhang, Q., Li, K., Zhang, Y., Liu, E. & Li, X. (2023). Recent advances on g-C₃N₄-based Z-scheme photocatalysts: Structural design and photocatalytic applications. *International Journal of Hydrogen Energy*, 48(1), 196-231.

- Kanchev, E. (2006). Complex prevention and control of pollution in the Bulgarian textile industry - The best available techniques. European Commission July 2003. *Tekstil i Obleklo*, 2006(2), 2-5. <https://www.scopus.com/inward/record.uri?eid=2-s2.0-33646812953&partnerID=40&md5=a6cb43faae8a58504e6592572ec0917d>
- Khamparia, S., Gupta, V. K., Tyagi, I., Malviya, A. & Jaspal, D. (2015). Decolorization of mixture of dyes: A critical review. *Global Journal of Environmental Science and Management*, 1(1).
- Khan, M. A., Wahab, Y., Muhammad, R., Tahir, M. & Sakrani, S. (2018). Catalyst-free fabrication of novel ZnO/CuO core-Shell nanowires heterojunction: Controlled growth, structural and optoelectronic properties. *Applied Surface Science*, 435, 718-732. <https://doi.org/10.1016/j.apsusc.2017.11.071>
- Kistner-Morris, J., Shi, A., Liu, E., Arp, T., Farahmand, F., Taniguchi, T., Watanabe, K., Aji, V., Lui, C. H. & Gabor, N. (2024). Electric-field tunable Type-I to Type-II band alignment transition in MoSe₂/WS₂ heterobilayers. *Nature Communications*, 15(1). <https://doi.org/10.1038/s41467-024-48321-1>
- Kumar, P., Vahidzadeh, E., Thakur, U. K., Kar, P., Alam, K. M., Goswami, A., Mahdi, N., Cui, K., Bernard, G. M., Michaelis, V. K. & Shankar, K. (2019). C₃N₅: A Low Bandgap Semiconductor Containing an Azo-Linked Carbon Nitride Framework for Photocatalytic, Photovoltaic and Adsorbent Applications. *Journal of the American Chemical Society*, 141(13), 5415-5436. <https://doi.org/10.1021/jacs.9b00144>
- Kumru, B., Cao, Q. & Schmidt, B. (2021). *Graphitic Carbon Nitride-polymer Hybrids: A Win-Win Combination with Advanced Properties for Different Applications*.
- Li, H., Cheng, B., Xu, J., Yu, J. & Cao, S. (2024). Crystalline carbon nitrides for photocatalysis. *EES Catalysis*, 2(2), 411-447.
- Loh, X. L., Ooi, Z. X., Teoh, Y. P. & Shuit, S. H. (2023). Synthesis and characterization of zinc oxide nanoparticles using peppermint tea (*Mentha piperita*) dregs extract and their photocatalytic performance. *Environmental Progress & Sustainable Energy*, 42(6), e14202.
- Mansingh, S., Das, K. K., Priyadarshini, N., Sahoo, D. P., Prusty, D., Sahu, J., Mohanty, U. A. & Parida, K. (2023). Minireview Elaborating S-Scheme Charge Dynamic Photocatalysts: Journey from Z to S, Mechanism of Charge Flow, Characterization Proof, and H₂O₂ Evolution. *Energy & Fuels*, 37(14), 9873-9894. <https://doi.org/10.1021/acs.energyfuels.3c00717>
- Manzoor, J. & Sharma, M. (2020). Impact of textile dyes on human health and environment. İçinde *Impact of textile dyes on public health and the environment* (ss. 162-169). IGI Global Scientific Publishing.
- Mohammadi, A. A., Alinejad, A., Kamarehie, B., Javan, S., Ghaderpoury, A., Ahmadpour, M. & Ghaderpoori, M. (2017). Metal-organic framework Uio-66 for adsorption of methylene blue dye from aqueous solutions. *International Journal of Environmental Science and Technology*, 14, 1959-1968.

- Mohd Nasir, S. N. F., Mohamed, N. A., Arzaee, N. A. & Mat Teridi, M. A. (2023). Chapter 3 - Engineering of graphitic carbon nitride-based heterojunction photocatalysts. İçinde S. Thomas, S. Anas & J. Joy (Ed.), *Synthesis, Characterization, and Applications of Graphitic Carbon Nitride* (ss. 43-57). Elsevier. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/B978-0-12-823038-1.00010-6>
- Nik, W. M. N. W., Ismail, N., Saravanan, S., Nazri, N. K. & Ariffin, M. A. (2023). Degradation Of Azo Dyes From Effluents: A Mini Review Focusing On Comparison Between Currently Existing Industrial Methods And Green Oxidation Catalysis Treatment Involving Fe-TAML and H₂O₂, *Journal of Malaysian Journal of Analytical Sciences*, . (C. 27-4, ss. 890 – 905)
- Pourasl, H. H., Barenji, R. V. & Khojastehnezhad, V. M. (2023). Solar energy status in the world: A comprehensive review. İçinde *Energy Reports* (C. 10, ss. 3474-3493). Elsevier Ltd. <https://doi.org/10.1016/j.egyr.2023.10.022>
- Qi, K., Liu, S. & Zada, A. (2020). Graphitic carbon nitride, a polymer photocatalyst. *Journal of the Taiwan Institute of Chemical Engineers*, 109, 111-123.
- Ramadan, M. F., Kareem, A. T., Al-Majdi, K. & Omran, A. A. (2023). Exploration of zinc oxide nanoparticles for efficient photocatalytic removal of methylene blue dye: synthesis, characterization and optimization. *Engineering Proceedings*, 59(1), 120.
- Ramamurthy, K., Priya, P. S., Murugan, R. & Arockiaraj, J. (2024). Hues of risk: investigating genotoxicity and environmental impacts of azo textile dyes. *Environmental Science and Pollution Research*, 31(23), 33190-33211.
- Repon, M. R., Islam, T., Paul, T. K., Jurkonienė, S., Haji, A., Shukhratov, S. & Toki, G. F. I. (2024). Natural dyes in textile printing: parameters, methods, and performance. *Environmental Science and Pollution Research*, 31(35), 47552-47583.
- Samajdar, S., Biswas, M., Sarkar, D., Pramanik, J., Mukhopadhyay, J. & Ghosh, S. (2025). Double heterojunction photocatalysts: strategic fabrication and mechanistic insights towards sustainable fuel production. *Chemical Communications*, 61(33), 6069-6094. <https://doi.org/10.1039/D4CC06829G>
- Saravanan, R., Mansoob Khan, M., Gupta, V. K., Mosquera, E., Gracia, F., Narayanan, V. & Stephen, A. (2015). ZnO/Ag/CdO nanocomposite for visible light-induced photocatalytic degradation of industrial textile effluents. *Journal of Colloid and Interface Science*, 452, 126-133. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.jcis.2015.04.035>
- SATTAR, O. D. A., KHALID, R. M. & YUSOFF, S. F. M. (2024). Optimizing Methylene Blue Dye Adsorption onto Liquid Natural Rubber-Based Hydrogel: Kinetics, Isotherms and Reusability. *Sains Malaysiana*, 53(5), 1149-1166.
- Sekar, N. (2008). Blue disperse dyes - structural diversities. *Colourage*, 55(11), 36-38+42. <https://www.scopus.com/inward/record.uri?eid=2-s2.0-60749094833&partnerID=40&md5=bc2847f0439a17c362b8a5fc8271232f>
- Sekar, N. & Dighe, R. (2007). Anthraquinone disperse dyes - Some recent developments. *Colourage*, 54(3), 72-78. <https://www.scopus.com/inward/record.uri?eid=2-s2.0-34447544579&partnerID=40&md5=b65ad5439142914480ad1935993a7170>

- Senthil Rathi, B., Ewe, L. S., S, S., S, S., Yew, W. K. & Tiong, S. K. (2024). Recent trends and advancement in metal oxide nanoparticles for the degradation of dyes: synthesis, mechanism, types and its application. *Nanotoxicology*, 18(3), 272-298.
- Shemeena, M. & Binitha, N. N. (2020). Visible light active ZnO–g-C₃N₄ photocatalyst for dye pollutant degradation. *Materials Today: Proceedings*, 25, 107-110.
- Singha, K., Pandit, P., Maity, S. & Sharma, S. R. (2021). Harmful environmental effects for textile chemical dyeing practice. İçinde *Green chemistry for sustainable textiles* (ss. 153-164). Elsevier.
- Sivaperumal, P., Kamala, K. & Rajaram, R. (2017). Application of Marine Polymers in Dye and Textile Industries. İçinde *Industrial Applications of Marine Biopolymers* (ss. 577-589). CRC Press.
- Soni, V., Malhotra, M., Singh, A., Chaudhary, V., Singh, P., Aahmad, T., Kaya, S., Hussain, C. M. & Raizada, P. (2025). Emerging bismuth stannate semiconductor and its photocatalytic applications in pollutant degradation via Z/S-scheme heterostructures. *Environmental Research*, 279. <https://doi.org/10.1016/j.envres.2025.121670>
- Spini, R. (2004). Choosing the right dye. *Rivista della Tecnologie Tessili*, 4, 106-117. <https://www.scopus.com/inward/record.uri?eid=2-s2.0-2942736929&partnerID=40&md5=c55f63a6866ecc88d64563769fc4c4c0>
- Sures, N., Aridi, M. R., Aziz, N. A. S., Thivagaran, R., Norapandi, N. F., Salim, N. & Abu Bakar, N. H. (2025). Comparative Study of Manganese and Cobalt Oxide Doped Zinc Oxide as Photocatalyst Nanomaterials. *Macromolecular Symposia*, 414(1), 2300263.
- Tang, D., Shao, C., Jiang, S., Sun, C. & Song, S. (2021). Graphitic C₂N₃: an allotrope of g-C₃N₄ containing active azide pentagons as metal-free photocatalyst for abundant H₂ bubble evolution. *ACS nano*, 15(4), 7208-7215.
- Thomas, S., Anas, S. & Joy, J. (2022). *Synthesis, characterization, and applications of graphitic carbon nitride: an emerging carbonaceous material*. Elsevier.
- Vidyasagar, D., Bhoyar, T., Singh, G. & Vinu, A. (2021). Recent progress in polymorphs of carbon nitride: synthesis, properties, and their applications. *Macromolecular Rapid Communications*, 42(7), 2000676.
- Vieira, M. M., Dornelas, A. S. P., Carlos, T. D., Pallini, A., Gravato, C., Pereira, D. H., Sarmento, R. A. & Cavallini, G. S. (2021). When treatment increases the contaminant's ecotoxicity: A study of the Fenton process in the degradation of methylene blue. *Chemosphere*, 283, 131117.
- Vo, Q. V., Thao, L. T. T., Manh, T. D., Van Bay, M., Truong-Le, B.-T., Hoa, N. T. & Mechler, A. (2024). Reaction of methylene blue with OH radicals in the aqueous environment: mechanism, kinetics, products and risk assessment. *RSC advances*, 14(37), 27265-27273.

- Wang, H., Li, M., Lu, Q., Cen, Y., Zhang, Y. & Yao, S. (2019). A Mesoporous Rod-like g-C₃N₅ Synthesized by Salt-Guided Strategy: As a Superior Photocatalyst for Degradation of Organic Pollutant. *ACS Sustainable Chemistry and Engineering*, 7(1), 625-631. <https://doi.org/10.1021/acssuschemeng.8b04182>
- Wang, L., Wang, K., He, T., Zhao, Y., Song, H. & Wang, H. (2020). Graphitic carbon nitride-based photocatalytic materials: preparation strategy and application. *ACS Sustainable Chemistry & Engineering*, 8(43), 16048-16085.
- Wang, N., Cheng, L., Liao, Y. & Xiang, Q. (2023). Effect of functional group modifications on the photocatalytic performance of g-C₃N₄. *Small*, 19(27), 2300109.
- Wang, Y., Shi, L., Gao, L., Wei, Q., Cui, L., Hu, L., Yan, L. & Du, B. (2015). The removal of lead ions from aqueous solution by using magnetic hydroxypropyl chitosan/oxidized multiwalled carbon nanotubes composites. *Journal of Colloid and Interface Science*, 451, 7-14. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.jcis.2015.03.048>
- Wen, J., Xie, J., Chen, X. & Li, X. (2017). A review on g-C₃N₄-based photocatalysts. *Applied Surface Science*, 391, 72-123. <https://doi.org/10.1016/j.apsusc.2016.07.030>
- Wu, M. K., Ren, L., Ren, R. X., Li, J. H., Zhao, C. F. & Yu, Y. (2023). Research Progresses on Photocatalytic Properties of Z-scheme Heterojunction Structures Based on ZnO. *Surface Technology*, 52(11), 200-215. <https://doi.org/10.16490/j.cnki.issn.1001-3660.2023.11.015>
- Xing, W., Cheng, K., Xiong, R., Xue, Y., Han, J. & Wu, G. (2021). Study on biochar functionalized g-C₃N₄ photocatalyst towards improved photocatalytic degradation performance. *J. For. Eng*, 6, 137-141.
- Xu, H.-5 & Lan, X. U. (2020). Preparation of ZnO Nanomaterials and Their Photocatalytic Degradation of Organic Pollutants. *İçinde J . Journal of Donghua University f English EditionD D D* (C. 2020).
- Xu, Q., Zhang, L., Yu, J., Wageh, S., Al-Ghamdi, A. A. & Jaroniec, M. (2018). Direct Z-scheme photocatalysts: Principles, synthesis, and applications. *İçinde Materials Today* (C. 21, Sayı 10, ss. 1042-1063). Elsevier B.V. <https://doi.org/10.1016/j.mattod.2018.04.008>
- Yu, J., Wang, S., Low, J. & Xiao, W. (2013). Enhanced photocatalytic performance of direct Z-scheme gC₃N₄-TiO₂ photocatalysts for the decomposition of formaldehyde in air. *Physical Chemistry Chemical Physics*, 15(39), 16883-16890.
- Yu, T., He, W., Zhang, Q. & Ma, D. (2023). Advanced nanomaterials and characterization techniques for photovoltaic and photocatalysis applications. *Accounts of Materials Research*, 4(6), 507-521.
- Zain, N. S., Mahmoud, M. H. H., Khan, M. I., Zafar, F., Manzoor, S., Akhtar, N., Khan, M. A., El Azab, I. H. & El-Bahy, Z. M. (2024). Machine learning-assisted optimization and evaluation of methylene blue adsorption kinetics on citrus aurantifolia leaves: Insights from isotherm and thermodynamic studies. *Journal of the Taiwan Institute of Chemical Engineers*, 164, 105696.

Zhu, D. & Zhou, Q. (2019). Action and mechanism of semiconductor photocatalysis on degradation of organic pollutants in water treatment: A review. *Environmental Nanotechnology, Monitoring & Management*, 12, 100255. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.enmm.2019.100255>





ÖZGEÇMİŞ

Ad-Soyad : Muhammed HAS

ÖĞRENİM DURUMU:

- **Lisans** : 2015, Sakarya Üniversitesi, Mühendislik Fakültesi, Çevre Mühendisliği Bölümü
- **Yükseklisans** : 2019, Sakarya Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Çevre Mühendisliği Anabilim Dalı

MESLEKİ DENEYİM VE ÖDÜLLER:

- 2017 yılında Sakarya Üniversitesi, Mühendislik Fakültesi, Çevre Mühendisliği Bölümü'nde Araştırma Görevlisi olarak çalışmaya başladı.

TEZDEN TÜRETİLEN ESERLER:

DİĞER ESERLER:

Boysan, F., Özer, Ç., Has, M., & Murat, M. (2015). Project on solid waste recycling plant in Sakarya University Campus. *Procedia Earth and Planetary Science*, 15, 590-595.

Aksu, M., Has, M., Tanattı, N. P., Erden, B., Sınmaz, G. K., Boysan, F., & Şengil, İ. A. (2022). Assessment of photocatalytic n-TiO₂/UV and n-TiO₂/H₂O₂/UV methods to treat DB 86, RY 145 and AV 90 dye mix containing wastewater. *Desalination And Water Treatment*, 266, 226-235.

Erden, B., Katırcıoğlu Sınmaz, G., Aksu, M., Tanattı, N. P., & Has, M. (2024). Comparative Study on Removal of Acid Violet 90 dye by using Catalytic Ozonation Processes with n. CeO₂, n. ZnO and n. CeO₂/n. ZnO Nanocatalysts and Kinetic Examination. *Water, Air, & Soil Pollution*, 235(9), 581.