

Artikel

Hocheffiziente Photokatalyse von Rose durch sichtbares Licht Bengalischer Farbstoff und Wasserstoffproduktion mit Ag@Cu/TiO₂ Ternäre Nanokomposite

Satish Yadav¹, Asim Jilani², Sarika Sachan¹, Pramod Kumar^{1,*}, Sajid Ali Ansari³, Mohammed Afzal⁴
und Mohammad Omaish Ansari^{2,*}

¹ Labor für Funktionsmaterialien, Abteilung Chemie, Prof. Rajendra Singh (Rajju Bhaiya), Institut für Physikalische Wissenschaften für Studium und Forschung, Veer Bahadur Singh Purvanchal University, Jaunpur 222003, Uttar Pradesh, Indien; sarikasachan27aug@gmail.com (SS)

² Zentrum für Nanotechnologie, König-Abdulaziz-Universität, Dschidda 21589, Saudi-Arabien; asim.jilane@gmail.com Fakultät für Physik,

³ College of Science, König-Faisal-Universität, PO Box 400, Al-Ahsa 31982, Saudi-Arabien; sansari@kfu.edu.sa

⁴ Abteilung für Pharmazeutische Wissenschaften, Pharmazieprogramm, Batterjee Medical College, Postfach 6231, Dschidda 21442, Saudi-Arabien; mohammad.afzal@bmc.edu.sa

* Korrespondenz: pkchemistry.2009@gmail.com (PK); moansari@kau.edu.sa (MOA)

Zusammenfassung: In dieser Arbeit wurde ein ternäres Ag@Cu/TiO₂- Nanokomposit mithilfe einer einfachen chemischen Methode synthetisiert und anschließend auf den photokatalytischen Abbau des Bengalrosa-Farbstoffs (RB) unter sichtbarem Licht sowie dessen Wasserstoffproduktion untersucht. Die Form-, Größen- und topografische Analyse durch Raster- und Transmissionselektronenmikroskopie ergab, dass alle Bestandteile gut interkaliert sind und im Nanobereich liegen. Die energiedispersive Röntgenanalyse des Ag@Cu/TiO₂ zeigte das Vorhandensein von Ti, O, Cu und Ag und das Fehlen jeglicher anderer Verunreinigungen, während die Mapping- Analyse ihre gleichmäßige Verteilung zeigte. Die Röntgenphotonenspektroskopie zeigte auch eine erfolgreiche Interaktion zwischen den Komponenten. Darüber hinaus wurden die Veränderungen im chemischen Zustand von Ti2p untersucht. Unter Verwendung der Tauc-Plot-Beziehungen erwies sich die Bandlücke von Ag@Cu/TiO₂ mit 2,86 eV als die niedrigste im Vergleich zu reinem TiO₂ (3,28 eV), binärem Ag/TiO₂ (3,13 eV) und Cu/TiO₂ (3,00 eV). Ag@Cu/TiO₂ zeigte die niedrigste Photolumineszenzintensität, was auf die höchste Abbaueffizienz und niedrigste Rekombinationsrate hindeutet. Die Anwendung von Ag@Cu/TiO₂ zum photokatalytischen Abbau von RB-Farbstoff zeigte eine Abbaurrate von ~81,07 %, was die Effizienz von reinem TiO₂ um das 3,31-fache übersteigt. ^{y1}, was darauf schließen lässt, dass Kupfer und Silber synergetisch dazu beitrugen, was zu Abgesehen davon betrug die Wasserstoffproduktion von Ag@Cu/TiO₂ 17,1 µmol h⁻¹ g⁻¹, die erhöhte Wasserstoffprodukt

Schlüsselwörter: Bengalrosa-Farbstoff; sichtbarer Bereich; photokatalytischer Abbau; ternäre Ag@Cu/TiO₂- Nanokomposite



Zitat: Yadav, S.; Jilani, A.; Sachan, S.; Kumar, P.; Ansari, SA; Afzal, M.; Ansari, MO Hocheffiziente, durch sichtbares Licht angetriebene Photokatalyse des Bengalrosa-Farbstoffs und Wasserstoffproduktion unter Verwendung von ternären Ag@Cu/TiO₂-Nanokompositen. *Chemistry* **2024**, *6*, 489–505. <https://doi.org/10.3390/chemistry6030028>

Wissenschaftliche Herausgeber: Gianguido Ramis, Vincenzo Vaiano und Olga Sacco

Empfangen: 15. April 2024

Überarbeitet: 29. Mai 2024

Akzeptiert: 30. Mai 2024

Veröffentlicht: 20. Juni 2024



Copyright: © 2024 bei den Autoren.
Lizenznehmer MDPI, Basel, Schweiz.

Dieser Artikel ist ein Open Access-Artikel
vertrieben unter den Bedingungen und
Bedingungen der Creative Commons
Namensnennungslizenz (CC BY)
(<https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>).

1. Einleitung

Wasser ist ein wesentliches Element für das Überleben des Lebens auf der Erde und ist auf der Erde in Form von Flüssen, Meeren, Seen und Grundwasser vorhanden. Das schnelle Bevölkerungswachstum, die Entwicklung, die industrielle Revolution und der Klimawandel haben jeden Aspekt der Wasserressourcen verunreinigt [1]. Die Hauptverunreinigungen im Wasser sind Gerbereien, Leder, Gummi, Farbstoffe, Kosmetika, Lebensmittelpharmazeutika, Druckfarben usw. [2,3]. Unter ihnen leiten die Textil-, Pharma-, Druckfarben- und Stoffindustrie bis zu 17–20 % Farbstoff in Gewässer ab, was zu Wasserverschmutzung führt [4]. Synthetische Farbstoffe sind nicht biologisch abbaubar und hochgradig photostabil [5]. Der Farbstoff hemmt das Sonnenlicht, verringert die Löslichkeit von molekularem Sauerstoff in Wasser, was das Leben der Wasserorganismen sowie das Ökosystem des Wassers beeinträchtigt und langfristige toxische und krebserregende Auswirkungen auf al

Zu den am häufigsten verwendeten organischen Farbstoffen gehört Bengalrosa (RB), der in der Textil-, Druck- und kosmetischen Fotochemieindustrie verwendet wird. Er muss aus dem Wasser entfernt werden, da er bei direktem Kontakt mit der Haut Juckreiz, Rötungen, Entzündungen, Reizungen und Blasenbildung verursacht. In letzter Zeit wurden verschiedene Methoden, darunter Membranfiltration, Koagulation, Flockung und Adsorption, eingesetzt, um die Farbstoffverschmutzung abzubauen [6–8].

Allerdings weisen alle diese Methoden Einschränkungen auf, wie z. B. Abwasser, Schlammabfall und Schwierigkeiten bei der Regenerierung des Adsorbens. Die Photokatalyse ist eine der gängigsten und kostengünstigsten Methoden zur Zersetzung von RB-Farbstoffen aus Wasser unter Verwendung effizienter Nanokatalysatoren. Bei der Photokatalyse mit sichtbarem Licht handelt es sich um einen Prozess, bei dem die Energie des sichtbaren Lichts genutzt wird, um eine chemische Reaktion auszulösen. Dabei wird ein Photokatalysator verwendet, der Licht im sichtbaren Spektrum absorbieren und die Umwandlung von Reaktanten in das gewünschte Produkt fördern kann [10]. In jüngster Zeit hat diese Technik aufgrund ihrer Umweltfreundlichkeit, Vielseitigkeit, Selektivität, Effizienz, Kosteneffizienz und Nachhaltigkeit großes Interesse geweckt, was sie für eine große Anzahl von Anwendungen äußerst anwendbar macht.

Aufgrund ihres hohen Oberflächen-Volumen-Verhältnisses [11] weisen Nanopartikel andere Eigenschaften auf als die Massensubstanzen, Moleküle oder Atome, aus denen sie gewonnen werden. Die verschiedenen Arten von Nanopartikeln aus Übergangsmetallen [12], Übergangsmetalloxiden und Chalkogeniden werden für unterschiedliche Anwendungen eingesetzt, beispielsweise zur Energiespeicherung, magnetischen Datenspeicherung, Sensoren und Ferrofluiden sowie zur photokatalytischen Zersetzung organischer Farbstoffe. Nanopartikel, insbesondere Metalloxid-Nanopartikel, werden häufig im Bereich der Photokatalyse mit sichtbarem Licht verwendet. Diese Nanopartikel verfügen über einzigartige Eigenschaften, die sie in der Photokatalyse verschiedener Reaktionen wirksam machen. So wurden beispielsweise Metalloxid-Nanopartikel wie Titanoxid (TiO_2) [13], Zinkoxid (ZnO) [14] und Wolframoxid (WO_3) [15] umfassend auf ihre photokatalytischen Fähigkeiten hin untersucht. Die Verwendung von Nanopartikeln für die Photokatalyse ist jedoch mit bestimmten Nachteilen verbunden, wie z. B. ihrer hohen Bandlücke und der Anforderung, dass die Bandlücke des Photokatalysators der Energie der sichtbaren Lichtphotonen entsprechen muss, um eine wirksame Photokatalyse mit sichtbarem Licht zu erreichen. Leider haben viele Metalloxid-Nanopartikel eine Bandlücke, die ultraviolettem (UV-Vis) Licht entspricht, wodurch ihre photokatalytische Aktivität mit sichtbarem Licht begrenzt ist. Während des Photokatalyseprozesses können Nanopartikel agglomerieren, was zu einer Verringerung der Oberfläche sowie zu einer Begrenzung der verfügbaren reaktionsaktiven Stellen führt. Diese Aggregation kann aufgrund verschiedener Faktoren auftreten, wie z. B. einer hohen Konzentration, pH-Änderungen oder dem Vorhandensein von Verunreinigungen [16]. Um diese Einschränkung zu überwinden, haben Forscher verschiedene Strategien entwickelt, wie z. B. Dotierung, Oberflächenmodifizierung und Bandlückenänderung, um Metalloxid-Nanopartikel unter sichtbarer Lichtbestrahlung zu aktivieren. Diese Modifikationen ermöglichen es den Nanopartikeln, ein breiteres Spektrum an Licht, einschließlich sichtbarem Licht, zu absorbieren, wodurch ihre photokatalytische Effizienz verbessert wird [17]. Zahlreiche Übergangsmetalloxide wie ZnO , TiO_2 , NiO und CuO sowie Metallchalkogenide wie ZnS und MoS_2 wurden zur Entfernung von Farbstoffen, industriellen Schadstoffen und pharmazeutischen Abwasserabfällen verwendet [18–20]. Das am häufigsten untersuchte Übergangsmetalloxid für den photokatalytischen Abbau von Verunreinigungen sowie Farbstoffen ist TiO_2 , das eine starke Oxidationskraft besitzt, ungiftig und extrem beständig gegenüber Photo- und chemischer Korrosion ist. Die Photokatalyse ist eine vielversprechende Methode, da sie kostengünstig und umweltfreundlich ist. TiO_2 besitzt eine Bandlücke von 3,2 eV und absorbiert Wellenlängen zwischen 360 und 380 nm im UV-Vis-Bereich.

Mehrere Studien zeigen die verringerte Bandlücke von TiO_2 durch die Dotierung mit neuen Übergangsmetallen wie Cu, Ag, Au, Pt, Ni und Co sowie Polyanilin (PANI), Polypyrrol (PPY) und reduziertem Graphenoxid, was die spektrale Verschiebung im sichtbaren Bereich erweitert und die photokatalytische Aktivität von TiO_2 erhöht [21]. Es wurde gezeigt, dass Methylblau (MB) und Methylorange (MO) unter UV-Vis-Bestrahlung mit TiO_2 , das mit der modifizierten Solvothermalmethode synthetisiert wurde, einen Abbau von 96,3 % bzw. 97 % aufweisen. Lin et al. [22] demonstrierten den photokatalytischen Abbau (UV-VIS) von giftigem 2-Chlorphenol unter Verwendung eines TiO_2 -Katalysators. In ähnlicher Weise untersuchten Zhang et al. [23] den photoelektrischen Effekt und die photokatalytischen Eigenschaften von TiO_2 , indem sie es mit Ag-Nanopartikeln dotierten, um den photoelektrischen und photokatalytischen Abbau zu verbessern. Mingxuan Sun et al. [24] zeigten eine deutlich verbesserte sichtbare

Region der photokatalytischen Aktivität, photochemischen Stabilität und geringen Ladungsrekombination von mit CdS und CdS/MoS₂ dotiertem TiO₂.

Auf der Grundlage der obigen Diskussion haben wir ternäre Ag@Cu/TiO₂-Komposite mit der In-situ-Solvothermalmethode für den photokatalytischen Abbau von RB- Farbstoff im sichtbaren Bereich des Lichts synthetisiert. Das synthetisierte ternäre Ag@Cu/TiO₂-Komposit wurde hinsichtlich seiner strukturellen und morphologischen Eigenschaften charakterisiert. Abschließend wurden der photokatalytische Abbau von RB-Farbstoff und das Phänomen der Wasserstoffentwicklung im sichtbaren Bereich eingehend untersucht.

2. Experimenteller Teil 2.1.

Materialien und Methoden

In dieser Studie wurden Titan(IV)-Isopropoxid (TIP) 97 % von Qualigens, Kupfer(II)-sulfat-Pentahydrat 99,5 % (CuSO₄·5H₂O) von Sisco Research Laboratories, Silbernitrat 99,8 % (AgNO₃) von Sigma Aldrich, Ascorbinsäure 99,7 % von Sisco Research Laboratories, Natriumborhydrid 98 % (NaBH₄) von Sisco Research Laboratories, Salzsäure 35 % (HCl) von Sisco Research Laboratories (Mumbai, Indien) und Bengalrosa (RB)-Farbstoff von Sigma Aldrich (St. Louis, MO, USA) verwendet. Als Reaktionsmedium für das synthetische Verfahren wurde deionisiertes Wasser verwendet.

Zur Untersuchung der Oberflächenmorphologie und Elementzusammensetzungen wurde Feldemissions-Rasterelektronenmikroskopie (JEOL, JSM-7600F, FESEM, Tokio, Japan) verwendet. Außerdem wurde Transmissionselektronenmikroskopie (JEOL, JSM, ARM-200F, HRTEM, Tokio, Japan) verwendet. Die Elementzuordnung wurde mit einem energiedispersiven Röntgenspektroskop (EDS) von Oxford Instruments, Oxfordshire, Großbritannien, aufgezeichnet, das mit FESEM ausgestattet war. Zur Elementerkennung wurde Röntgen-Photoelektronenspektroskopie (XPS) (ESCALAB 250 von Thermo Fisher Scientific, Warrington, Großbritannien) an einer monochromatisierten Al K α -Röntgenquelle γ 1/4 1486,6 eV verwendet.

2.2. Synthese von Ag@Cu/TiO₂

Die Synthese von Ag@Cu/TiO₂ wurde mit der Solvothermalmethode durchgeführt. Bei dieser Methode wurden 6 ml Isopropanol in 86 ml Wasser dispergiert und 6 ml HCl tropfenweise hinzugefügt. Zu der Mischung aus Isopropanol und Säure wurden langsam 5 ml TIP hinzugefügt und die gesamte Mischung 1 Stunde lang bei 80 °C gerührt, wodurch eine weiße kolloidale Lösung entstand (Lösung A genannt). Diese weiße kolloidale Lösung wurde zentrifugiert und anschließend wurde das gesammelte TiO₂ mit einem Überschuss an Lösungsmitteln (Wasser- und Ethanolmischung) gewaschen und schließlich 6 Stunden lang in einem Luftofen bei 80 °C getrocknet, um reines TiO₂ zu erhalten. Das Cu/TiO₂ wurde hergestellt, indem 0,4 g CuSO₄·5H₂O in 100 ml (für eine Beladung von ~5 % Cu auf TiO₂) Wasser gelöst und 0,05 M NaOH verwendet wurden, um den pH-Wert bei 12 zu halten. Zu der obigen Lösung von CuSO₄·5H₂O wurden 30 ml 0,05 M Ascorbinsäure tropfenweise hinzugegeben und das Ergebnis 1 Stunde lang unter ständigem Rühren auf 60 °C erhitzt (Abbildung 1). Die gelbe Farbe der Mischung änderte sich langsam zu Braun, was auf das gebildete Cu hinweist (die Cu-Dispersion wurde als Lösung B bezeichnet). Schließlich wurden beide Lösungen (A und B) unter ständigem Rühren gemischt und das resultierende Cu/TiO₂ zentrifugiert, mit einem Überschuss an Lösungsmitteln (Wasser und Ethanol) gewaschen und schließlich 6 h bei 80 °C getrocknet, um Cu/TiO₂ zu erhalten. Das Ag@Cu/TiO₂ wurde hergestellt, indem zuerst die kolloidale Lösung von Ag-Nanopartikeln durch Auflösen von 0,12 g AgNO₃ in 100 ml H₂O hergestellt und dann tropfenweise 30 ml 0,06 M NaBH₄ hinzugefügt wurden. Die binäre Cu/TiO₂-Verbindung wurde der kolloidalen Ag-Lösung hinzugefügt und die gesamte Mischung 2 h lang kontinuierlich gerührt. Daher wurde das hergestellte Ag@Cu/TiO₂-Komposit mit einem Überschuss an Lösungsmitteln (Wasser und Ethanol) gewaschen und schließlich 6 Stunden lang bei 80 °C getrocknet, um reines Ag@Cu/TiO₂ zu erhalten.

[illegible]

Die Abbaueffizienz von reinem TiO₂, Ag/TiO₂, Cu/TiO₂ und Ag@Cu/TiO₂ wurde mit der folgenden Gleichung berechnet [25].

$$\text{Degradation (\%)} = \frac{C_0 - C_t}{C_0} \times 100 \quad (1)$$

In der angegebenen Gleichung stellt C_0 die Anfangskonzentration des RB-Farbstoffs dar, während C_t die Konzentration von RB nach einem bestimmten Zeitintervall (0, 20, 40 und 60 Min.) angibt.

Anschließend wurde die scheinbare Geschwindigkeitskonstante (k) mithilfe der folgenden Gleichung bestimmt.

$$\ln \frac{C_0}{C_t} = \gamma k t \quad (2)$$

Zur Bewertung der Wasserstoffproduktion wurde Methanol als Scavenger verwendet. In Wasserstoffproduktionsprozessen spielen Scavenger eine entscheidende Rolle bei der Steigerung der Effizienz. Sie bewältigen wichtige Herausforderungen, indem sie Elektron-Loch-Paare einfangen und verhindern, dass erzeugte Energie verschwendet wird [1]. Darüber hinaus zielen Scavenger gezielt auf Moleküle ab, die an unerwünschten Nebenreaktionen beteiligt sind, und eliminieren diese, wodurch die entscheidenden Zwischenprodukte geschützt werden, die für die Wasserstoffentwicklung erforderlich sind. Darüber hinaus können sie die Bewegung photogenerierter Ladungen innerhalb des Systems erleichtern und so deren effiziente Nutzung für die Wasserstoffproduktion sicherstellen. Im Wesentlichen fungieren Scavenger als Wächter, die verschiedene Aspekte des Prozesses optimieren, um die Wasserstoffproduktion zu maximieren [2].

3. Ergebnisse und Diskussion

3.1. Analyse der Oberflächenmorphologie

Die morphologische Analyse von TiO₂, Ag/TiO₂, Cu/TiO₂ und Ag@Cu/TiO₂ wurde mittels SEM (Abbildung 2) und TEM (Abbildung 3) durchgeführt. Das SEM des reinen TiO₂ zeigt Cluster aus kleinen, runden Partikeln, die in kleine und große Aggregate gepackt sind. Ag/TiO₂, Cu/TiO₂ und Ag@Cu/TiO₂ weisen eine ähnliche Morphologie auf, wobei alle Bestandteile im Nanobereich liegen. Aus den Mikrofotografien lässt sich abschätzen, dass alle Bestandteile von Ag@Cu/TiO₂ gut miteinander verflochten sind. Die TEM-Bilder von Ag@Cu/TiO₂ zeigen, dass TiO₂, Cu und Ag gut miteinander verflochten sind, wobei die Größe mancher TiO₂-Bestandteile etwas über 100 nm beträgt.

Die Elementaranalyse von TiO₂, Ag/TiO₂, Cu/TiO₂ und Ag@Cu/TiO₂ mittels EDS zeigt das Vorhandensein von Ti und O im TiO₂, Ti, O und Ag im Ag/TiO₂, Cu, Ti und O im Cu/TiO₂ und Cu, Ti, O und Ag im Ag@Cu/TiO₂ und zeigt damit die erfolgreiche Bildung des Verbundwerkstoffs sowie das Fehlen jeglicher Verunreinigungen. Die gleichmäßige Verteilung der jeweiligen Elemente, wie sie durch die Mapping-Analyse dargestellt wird (Abbildung 4), weist auf die Wirksamkeit der Synthesemethode hin.

3.2. Oberflächenzusammensetzung und chemische

Die Elementzusammensetzung und die Funktionsgruppen der hergestellten Katalysatoren (reines TiO₂, Ag/TiO₂, Cu/TiO₂ und Ag@Cu/TiO₂) wurden mithilfe der Röntgen-Photoelektronenspektroskopie (XPS) untersucht. Die Übersichtsspektren (Abbildung 5a) lieferten Einblicke in die Oberflächenelemente, während die ermittelte Zusammensetzung in Abbildung 5b dargestellt ist. Das reine TiO₂ wies eine Zusammensetzung aus 58,1 % Sauerstoff und 41,9 % Titan auf. Im Fall von Ag/TiO₂ waren die Elemente in den Prozentanteilen 51,7 % Sauerstoff, 45,3 % Titan und 3,0 % Silber vorhanden. Ebenso wurde die Einlagerung von Kupfer in Cu/TiO₂ mit einer Zusammensetzung von 50,7 % Sauerstoff, 43,0 % Titan und 6,3 % Kupfer bestätigt. Das ternäre Nanokomposit, bezeichnet als Ag@Cu/TiO₂, wies eine Elementzusammensetzung von 35,4 % Sauerstoff, 39,2 % Titan, 16,7 % Silber und 8,7 % Kupfer auf.

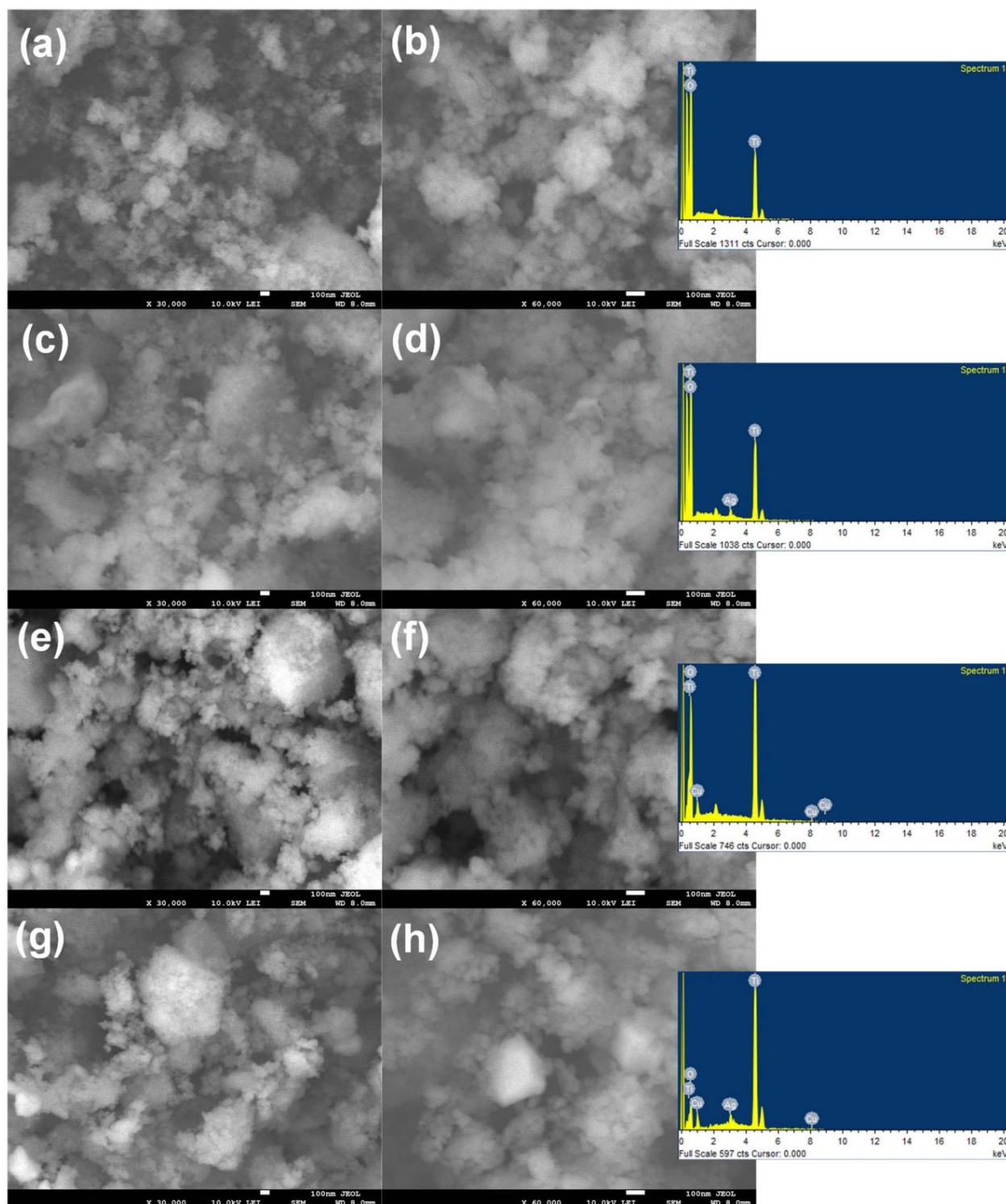


Abbildung 2. SEM-Mikrofotografien von TiO_2 (a,b), Ag/TiO_2 (c,d), Cu/TiO_2 (e,f) und Ag@Cu/TiO_2 (g,h), zusammen mit ihrer jeweiligen Elementanalyse. Zusammen mit ihrer jeweiligen Elementanalyse.

Die chemische Zustandsanalyse des $\text{Ti}2p$ wurde weiter untersucht, um die chemischen Wechselwirkungen in TiO_2 , Ag/TiO_2 , Cu/TiO_2 und Ag@Cu/TiO_2 aufzuklären (Abbildung 6a–d). Bei der chemischen Zustandsanalyse des reinen TiO_2 (Abbildung 6a) wurden deutliche Spitzen bei 457,99 eV und 463,67 eV beobachtet, die $\text{Ti}2p_{3/2}$ und $\text{Ti}2p_{1/2}$ entsprechen, mit Beiträgen von 73,32 % bzw. 26,68 %. Die Einführung von Ag und Cu in das TiO_2 führte zu Veränderungen in den Beiträgen von $\text{Ti}2p_{3/2}$ und $\text{Ti}2p_{1/2}$. Insbesondere zeigte die Ag/TiO_2 -Probe

Gesamtbeiträge von 72,05 % (Ti2p3/2) und 27,95 % (Ti2p1/2). Ebenso zeigte Cu/TiO2 Gesamtbeiträge von 78,38 % (Ti2p3/2) und 21,62 % (Ti2p1/2). Das endgültige ternäre Komposit, Ag@Cu/TiO2, zeigte Gesamtbeiträge von 72,31 % (Ti2p3/2) und 27,69 % (Ti2p1/2). Zusammenfassend zeigen die beobachteten Änderungen der atomaren Prozentbeiträge von *Chemistry* **2024**, 6, FOR PEER REVIEW Ti2p3/2 und Ti2p1/2 im reinen TiO2 nach der Zugabe von Ag und Cu die erfolgreiche Wechselwirkung zwischen den Komponenten an.

7

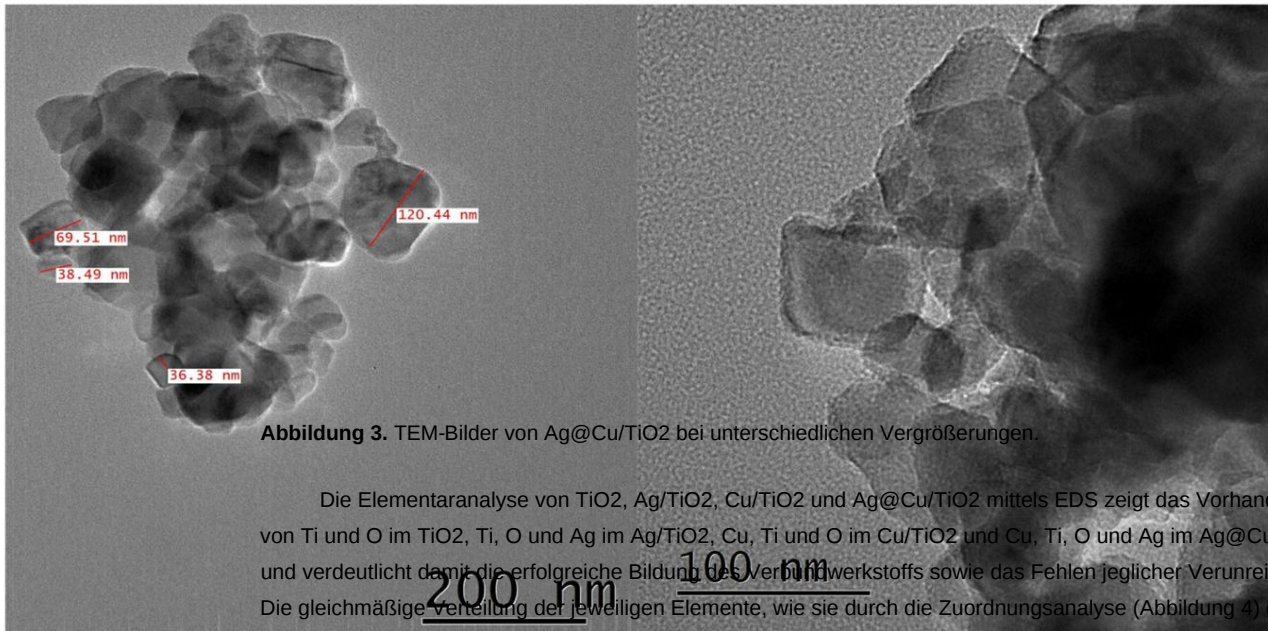


Abbildung 3. TEM-Bilder von Ag@Cu/TiO2 bei unterschiedlichen Vergrößerungen.

Die Elementaranalyse von TiO2, Ag/TiO2, Cu/TiO2 und Ag@Cu/TiO2 mittels EDS zeigt das Vorhandensein von Ti und O im TiO2, Ti, O und Ag im Ag/TiO2, Cu, Ti und O im Cu/TiO2 und Cu, Ti, O und Ag im Ag@Cu/TiO2 und verdeutlicht damit die erfolgreiche Bildung des Verbundwerkstoffs sowie das Fehlen jeglicher Verunreinigungen. Die gleichmäßige Verteilung der jeweiligen Elemente, wie sie durch die Zuordnungsanalyse (Abbildung 4) dargestellt wird, weist auf die Wirksamkeit der Synthesemethode hin (Abbildung 3. TEM-Bilder von Ag@Cu/TiO2 bei unterschiedlichen Vergrößerungen).

Die Elementaranalyse von TiO2, Ag/TiO2, Cu/TiO2 und Ag@Cu/TiO2 mittels EDS zeigt das Vorhandensein von Ti und O im TiO2, Ti, O und Ag im Ag/TiO2, Cu, Ti und O im Cu/TiO2 und Cu, Ti, O und Ag im Ag@Cu/TiO2 und verdeutlicht damit die erfolgreiche Bildung des Verbundwerkstoffs sowie das Fehlen jeglicher Verunreinigungen. Die gleichmäßige Verteilung der jeweiligen Elemente, wie sie durch die Zuordnungsanalyse (Abbildung 4) dargestellt wird, weist auf die Wirksamkeit der Synthesemethode hin (Abbildung 3. TEM-Bilder von Ag@Cu/TiO2 bei unterschiedlichen Vergrößerungen).

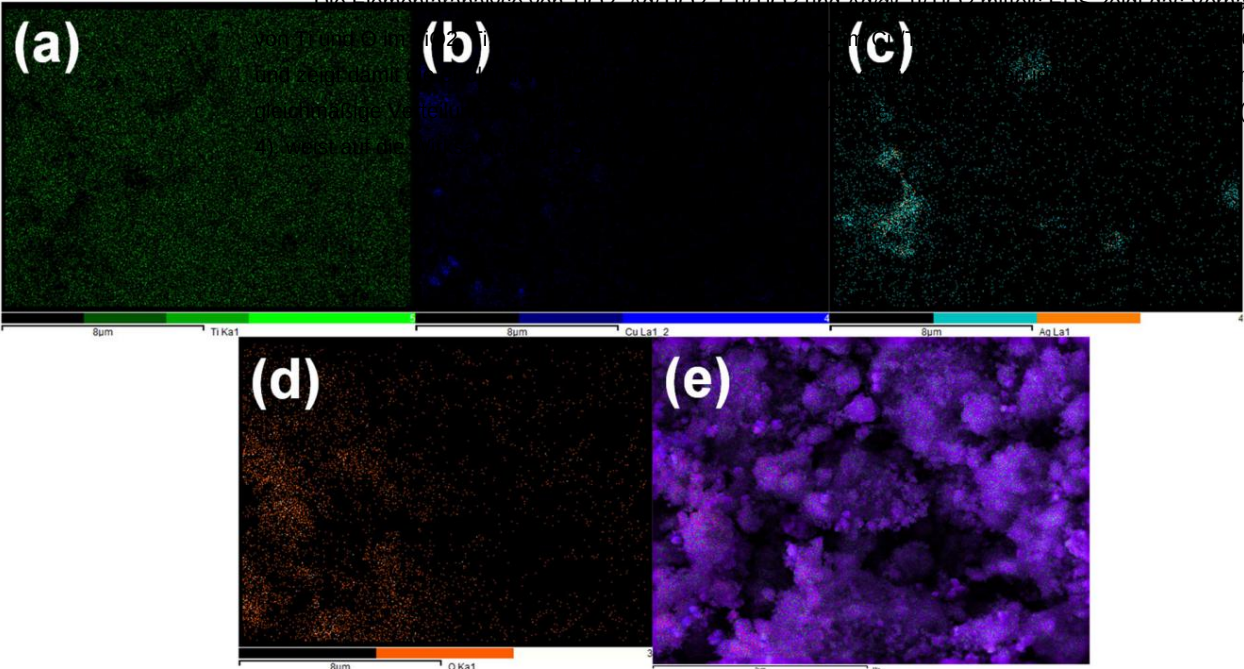
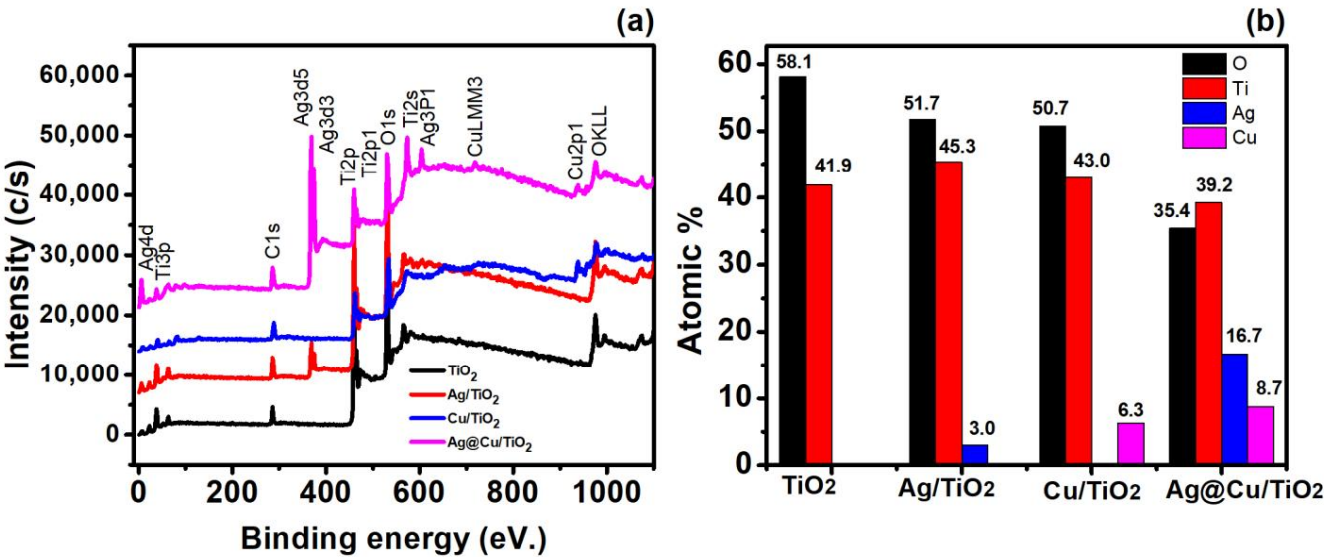


Abbildung 4. Elementverteilungsabbildung von Ti (a), O (b), Ag (c), Cu (d) und gemischten Elementen (e).

3.2. Oberflächenzusammensetzung und chemische Analyse

Die Elementzusammensetzung und die Funktionsgruppen der hergestellten Katalysatoren (reines TiO2, Ag/TiO2, Cu/TiO2 und Ag@Cu/TiO2) wurden mittels Röntgen-Photoelektronenspektroskopie (XPS) untersucht. Die Übersichtsspektren (Abbildung 5a) lieferten Einblicke in die Oberflächenelemente, während die ermittelte Zusammensetzung in Abbildung 5b dargestellt ist. Das reine TiO2 zeigte eine **Abbildung 4**. Elementverteilungsabbildung von Ti (a), O (b), Ag (c), Cu (d) und gemischten Elementen (e).

3.2. Oberflächenzusammensetzung und chemische Analyse



Chemistry 2024, 6, ZUR PEER-REVIEW

Abbildung 5. (a) XPS-Untersuchungsspektren und (b) Zusammensetzung von TiO₂, Ag/TiO₂, Cu/TiO₂ und Ag@Cu/TiO₂.

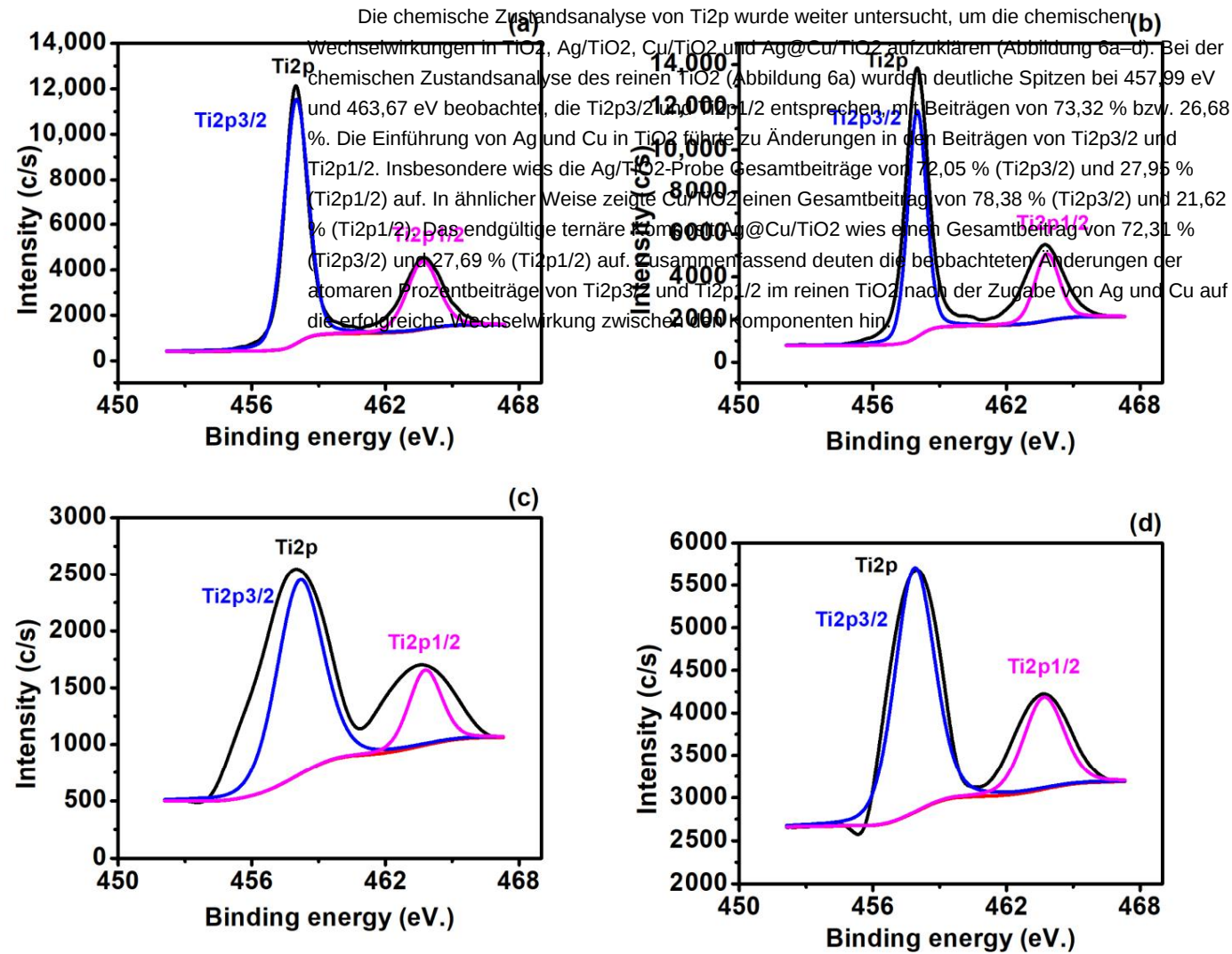


Abbildung 6. (a–d) Hartmann-Spektren des Ti2p für TiO₂, Ag/TiO₂, Cu/TiO₂ und Ag@Cu/TiO₂.

Die O1s-Spektren des reinen TiO₂ (Abbildung 7a) weisen zwei Hauptspitzen bei etwa 530 eV und 532,5 eV auf, die auf die Wechselwirkung zwischen Sauerstoff und Ti bei 530 eV bzw. auf Sauerstoffleerstellen bei 532,5 eV zurückzuführen sind [1]. Insbesondere die Anwesenheit von Ag im TiO₂ (Ag/TiO₂), wie in Abbildung 7b dargestellt, führt zu einer Erhöhung der Sauerstoffleerstellen von 12,54 %

Der chemische Zustand des Ag bei Ag₂/TiO₂-Abbildung ist kein Peak Ag905,7-945,7 eV mit Beiträgen von 59,90 % und 40,10 % und Ag3d_{3/2} bei 368 eV bzw. 374 eV mit Beiträgen von 59,90 % und 40,10 % auf [1]. Bei Zugabe von Cu zu Ag/TiO₂, wie in Abbildung 8 dargestellt, verändern sich diese Peaks jedoch leicht, wobei die Prozentsätze sich auf 59,93 % und 40,97 % verschieben. Die Cu2p-Analyse von Cu/TiO₂ und Ag@Cu/TiO₂ wird bei 40,97 % dargestellt. Die Cu2p-Analyse von Cu/TiO₂ und Ag@Cu/TiO₂ ist in Abbildung 9c,d dargestellt. Die bei 937 eV beobachteten Peaks werden der Wechselwirkung von Cu mit Sauerstoff zugeschrieben (Abbildung 9c,d). Die bei 937 eV beobachteten Peaks werden der Wechselwirkung von Cu mit Sauerstoff (CuOx) zugeschrieben, während diejenigen bei 945,5 eV dem Shake-Up-Satellitenpeak mit Beiträgen von 27,46 % bzw. 30,71 % entsprechen [1]. Diese Änderung im Beitrag der Shake-Up-Satellitenpeaks unterstützt weiter die Verstärkung der photokatalytischen Aktivität des ternären Ag@Cu/TiO₂ des ternären Ag@Cu/TiO₂.

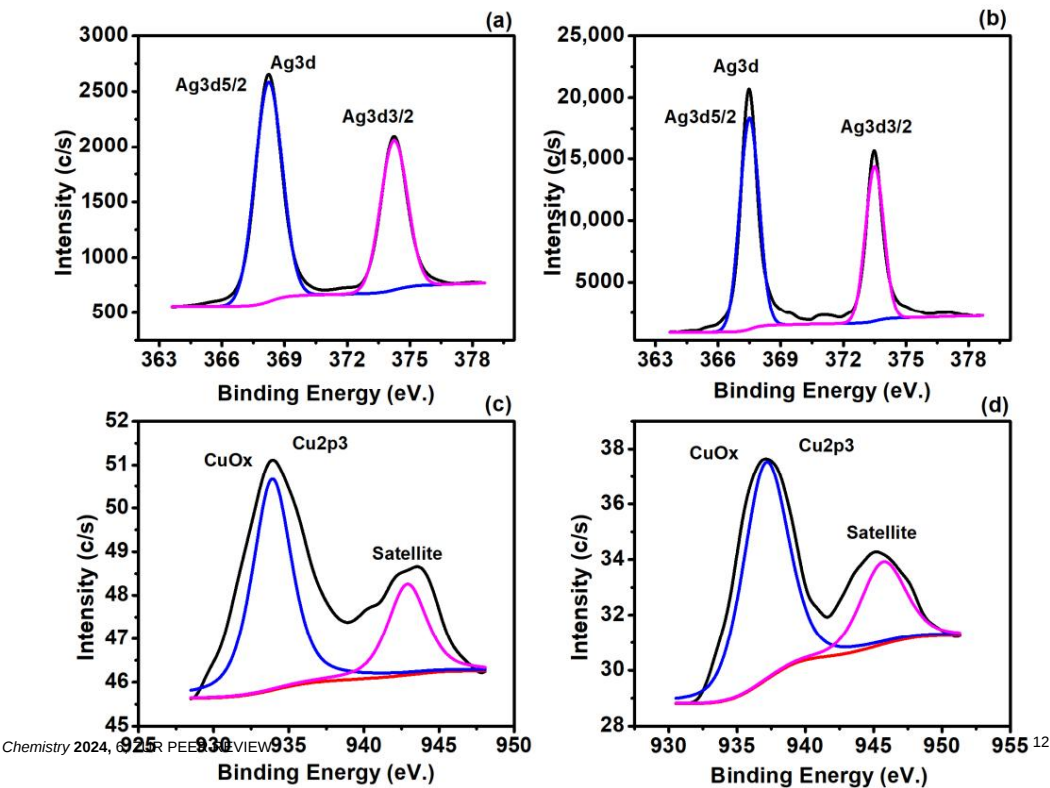


Abbildung 8. (a,b) Ag 3d-Spektren von Ag/TiO₂ und Ag@Cu/TiO₂ und (c,d) Cu 2p-Analyse des Cu/TiO₂ und Ag@Cu/TiO₂. was zu einem verstärkten photokatalytischen Abbau von RB führt.

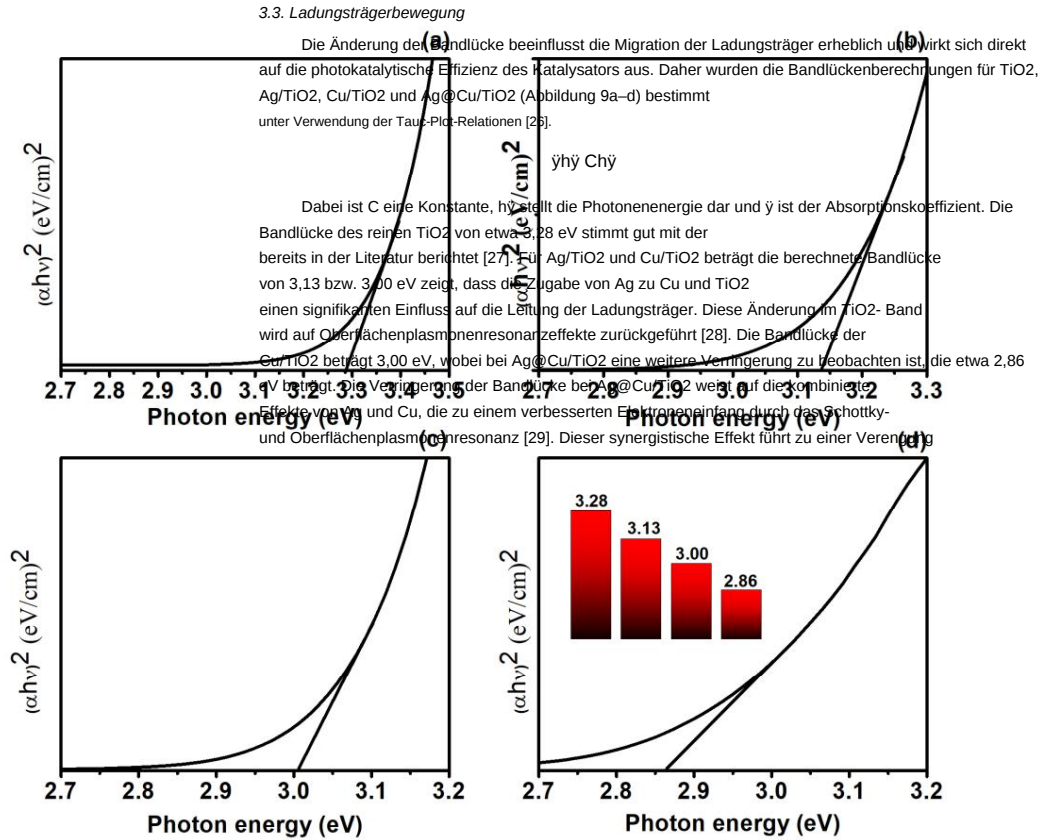


Abbildung 9. Bandlückenanalyse von (a) TiO₂, (b) Ag/TiO₂, (c) Cu/TiO₂ und (d) Ag@Cu/TiO₂ und einer Einschub, der die Änderung der Bandlücke zeigt.

3.4. Ladungsrekombinationsverhältnis

Das Ladungsrekombinationsverhältnis ist umgekehrt proportional zur photokatalytischen Leistung. Die Ladungsrekombinationsverhältnisse von TiO₂, Ag/TiO₂, Cu/TiO₂ und Ag@Cu/TiO₂ wurden durch die Photolumineszenzspektren bestimmt, wie in Abbildung 10 dargestellt. Die Analyse der Photolumineszenzspektren ergab, dass das TiO₂ einen Peak aufwies von hoher Intensität im Vergleich zu Ag/TiO₂, Cu/TiO₂ und Ag@Cu/TiO₂, was auf eine hohe Rekombinationsrate für das TiO₂, was folglich zu einer geringeren photokatalytischen Effizienz führt.

3.3. Ladungsträgerbewegung

Die Änderung der Bandlücke beeinflusst die Migration der Ladungsträger erheblich und wirkt sich somit direkt auf die photokatalytische Effizienz des Katalysators aus. Daher wurden die Bandlückenberechnungen für TiO₂, Ag/TiO₂, Cu/TiO₂ und Ag@Cu/TiO₂ (Abbildung 9a–d) mithilfe der Tauc-Plot-Beziehungen [26] durchgeführt.

$$\alpha(h\nu) = C \cdot h\nu \cdot \gamma \cdot ZB^N$$

Hier ist C eine Konstante, $h\nu$ stellt die Photonenenergie dar und γ ist der Absorptionskoeffizient. Die Bandlücke des reinen TiO₂ von etwa 3,28 eV stimmt gut mit der zuvor in der Literatur veröffentlichten Literatur überein [27]. Die für Ag/TiO₂ und Cu/TiO₂ berechnete Bandlücke von 3,13 bzw. 3,00 eV weist darauf hin, dass die Zugabe von Ag sowohl zu Cu als auch zu TiO₂ einen signifikanten Einfluss auf die Leitung der Ladungsträger hat. Diese Veränderung der Bandlücke bei TiO₂ wird den Oberflächenplasmonenresonanzeffekten zugeschrieben [28]. Die Bandlücke von Cu/TiO₂ beträgt 3,00 eV, wobei bei Ag@Cu/TiO₂ eine weitere Verringerung auf etwa 2,86 eV beobachtet wurde. Die Bandlückenverringern bei Ag@Cu/TiO₂ weist auf die kombinierten Effekte von Ag und Cu hin, die zu einer verbesserten Elektroneneinfangung durch den Schottky-Effekt und die Oberflächenplasmonenresonanz beitragen [29]. Dieser synergetische Effekt führt zu einer Verengung der Bandlücke sowie zu beschleunigten Elektronen- und Lochbewegungen im Ag@Cu/TiO₂ und damit zu einem verstärkten photo

3.4. Ladungsrekombinationsverhältnis

Das Ladungsrekombinationsverhältnis ist umgekehrt proportional zur photokatalytischen Leistung. Die Ladungsrekombinationsverhältnisse von TiO₂, Ag/TiO₂, Cu/TiO₂ und Ag@Cu/TiO₂ wurden durch die Photolumineszenzspektren bestimmt, wie in Abbildung 10 dargestellt. Die Analyse der Photolumineszenzspektren ergab, dass TiO₂ im Vergleich zu Ag/TiO₂, Cu/TiO₂ und Ag@Cu/TiO₂ einen Peak mit hoher Intensität aufwies, was auf ein hohes Rekombinationsverhältnis für TiO₂ hindeutet, was folglich zu einer geringeren photokatalytischen Effizienz führt. Umgekehrt hatte Ag@Cu/TiO₂ eine geringe Intensität, was auf eine höhere Abbaueffizienz hindeutet. Diese 13
REVIEW: Die Photolumineszenz-Ergebnisse stimmen mit unseren photokatalytischen Erkenntnissen überein, die folgende Abbaueffizienz ergaben: Ag@Cu/TiO₂ > Cu/TiO₂ > Ag/TiO₂ > TiO₂.

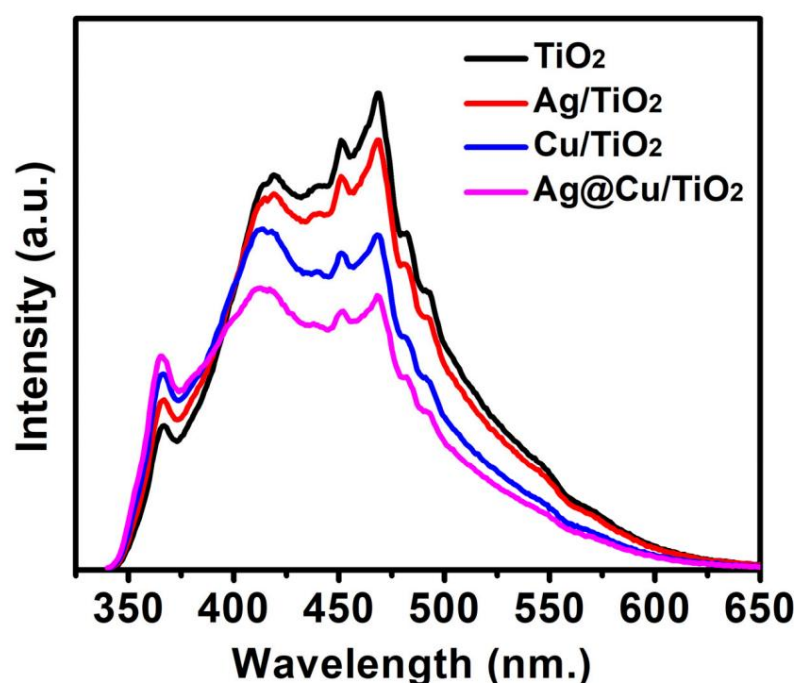


Abbildung 10. Ladungsrekombinationsverhältnis von TiO₂, Ag/TiO₂, Cu/TiO₂ und Ag@Cu/TiO₂.

3.5. Photokatalytischer Abbau von RB

Das zeitabhängige UV-Vis-Spektrum von RB unter UV-Vis-Bestrahlung ist in Abbildung 9a dargestellt, wobei der charakteristische Absorptionspeak bei λ_{max} von 545 nm liegt, was das Hauptmerkmal von RB ist. Bei Betrachtung von Abbildung 9a wird deutlich, dass mit zunehmender Bestrahlungszeit von 0 auf 60 m der Absorptionspeak allmählich abnimmt, was auf die Deradierung von RB durch TiO₂, A/TiO₂, Cu/TiO₂ und A@Cu/TiO₂ unter sichtbarem Licht hinweist.

3.5. Photokatalytischer Abbau von

RB Das zeitabhängige UV-Vis-Spektrum von RB unter UV-Vis-Bestrahlung ist in Abbildung 9a dargestellt, wobei der charakteristische Absorptionspeak bei λ_{max} von 545 nm liegt, was das Hauptmerkmal von RB ist. Bei Betrachtung von Abbildung 9a wird deutlich, dass mit zunehmender Bestrahlungszeit von 0 auf 60 m der Absorptionspeak allmählich abnimmt, was auf den Abbau von RB durch TiO_2 , Ag/TiO_2 , Cu/TiO_2 und Ag@Cu/TiO_2 unter sichtbarem Licht hinweist.

Abbildung 9b,c veranschaulicht die Degradationsstatistik und zeigt, dass die Degradationseffizienz des reinen TiO_2 innerhalb von 60 m Bestrahlung etwa 24,41 % beträgt. Diese relativ niedrige Effizienz ist auf die große Bandlücke und die hohe Ladungsrekombinationsrate zurückzuführen. Durch die Integration von Ag erhöhte sich die Degradationseffizienz des reinen TiO_2 innerhalb derselben Dauer auf etwa 34,73 %. Diese Verbesserung ist auf die durch Silber induzierte Oberflächenphotolumineszenzresonanz zurückzuführen, die die Rekombination der Ladungsträger unterdrückt und somit die Degradation von RB durch Ag/TiO_2 intensiviert [25].

Die Abbaueffizienz von Cu/TiO_2 lag bei etwa 68,38 %, was dem 2,82-fachen der von reinem TiO_2 entspricht. Diese Verbesserung ist auf die verringerte Ladungsrekombinationsrate und die Einführung aktiver Stellen wie Sauerstoffleerstellen im reinen TiO_2 zurückzuführen, wodurch RB-Moleküle effektiver eingefangen und somit die Abbaueffizienz von Cu/TiO_2 verbessert wird [26]. Ebenso zeigt sich die kombinierte Wirkung von Silber und Kupfer in der photokatalytischen Effizienz des ternären Ag@Cu/TiO_2 , das eine Abbaurate von etwa 81,07 % aufwies, was dem 3,31-fachen von TiO_2 entspricht. Die bemerkenswerte Verbesserung ist auf die effektive Verringerung der Rekombination der Elektron-Loch-Paare und die Einführung weiterer aktiver Stellen für die Einfangung von RB-Molekülen zurückzuführen. Darüber hinaus führte die Einarbeitung von Silber und Kupfer in das TiO_2 zu einer erhöhten Lichtabsorption, was weiter zur Gesamtverbesserung beiträgt. Darüber hinaus erhöht sich mit zunehmender Abbaueffizienz auch die Reaktionsgeschwindigkeitskonstante von TiO_2 , Ag/TiO_2 , Cu/TiO_2 und Ag@Cu/TiO_2 . Die Reaktionsgeschwindigkeitskonstante (Abbildung 11d) für Ag@Cu/TiO_2 betrug ungefähr $2,76 \times 10^{-2} \text{ min}^{-1}$, was 5,94-mal höher als bei TiO_2 . Die Reaktionsgeschwindigkeitskonstante für Ag/TiO_2 und Cu/TiO_2 betrug etwa $7,11 \times 10^{-3}$ bzw. $1,91 \times 10^{-2}$.

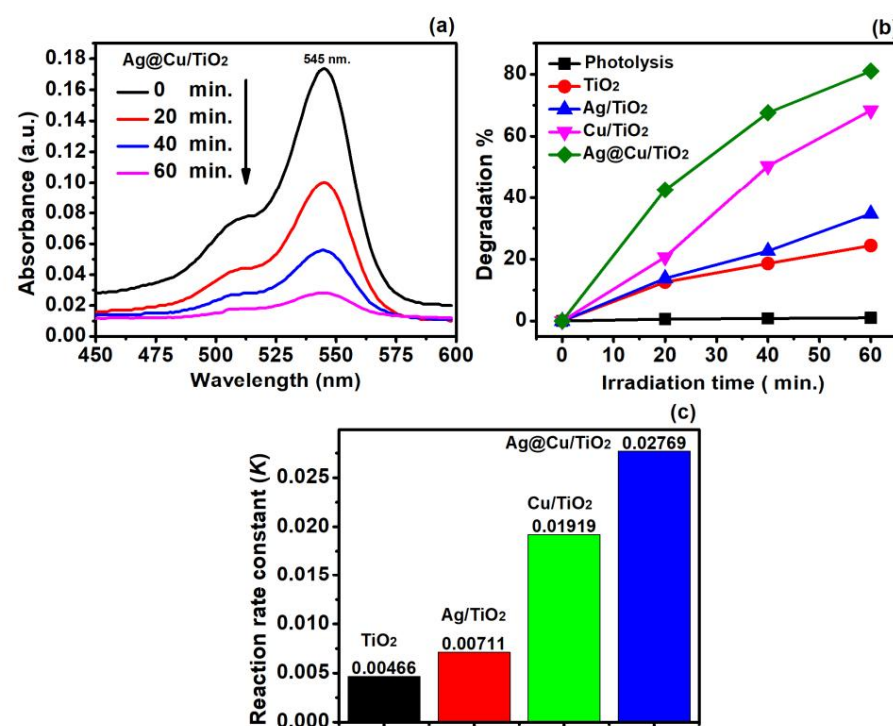


Abbildung 11. (a) Zeitabhängiges UV-Vis-Spektrum von RB für Ag@Cu/TiO_2 , und **(b)** Abbaustatistik

und **(c)** Reaktionsgeschwindigkeitskonstante von TiO_2 , Ag/TiO_2 , Cu/TiO_2 und Ag@Cu/TiO_2 gemäß Statistik und dem optimierten Wert von 200 mg jedes Katalysators in einer 250-ml-Lösung mit 30 mg/l RB-Farbstoff. optimierter Wert von 200 mg jedes Katalysators in einer 250-ml-Lösung mit 30 mg/l RB-Farbstoff.

3.5.1. Einfluss der RB-Konzentration

Die Farbstoffkonzentration ist ein entscheidender Faktor, da sie die photokatalytische Effizienz des Katalysators entweder steigern oder verringern kann. Um dies zu untersuchen, wurde eine Reihe von Reaktionen mit verschiedenen RB-Konzentrationen durchgeführt, nämlich 5, 20, 30, 40 und 50 ppm, während die Dosierung von Ag@Cu/TiO_2 bei 200 mg/250 ml und die Lichtintensität bei einer 500 W-Halogenlampe gehalten wurde. Wie in Abbildung 12a dargestellt, war der Abbau von RB bei einer RB-Konzentration von 30 ppm mit etwa 81,07 % am höchsten. Die Ergebnisse zeigten einen fortschreitenden Anstieg von

3.5.1. Einfluss der RB-Konzentration

Die Farbstoffkonzentration ist ein entscheidender Faktor, da sie die photokatalytische Effizienz des Katalysators entweder erhöhen oder verringern kann. Um dies zu untersuchen, wurde eine Reihe von Reaktionen mit verschiedenen RB-Konzentrationen durchgeführt, nämlich 5, 20, 30, 40 und 50 ppm, während die Ag@Cu/TiO₂- Dosierung bei 200 mg/250 ml und die Lichtintensität bei einer 500 W-Halogenlampe gehalten wurde. Wie in Abbildung 12a dargestellt, erreichte der Abbau von RB bei einer RB-Konzentration von 30 ppm seinen Höhepunkt, nämlich etwa 81,07 %. Die Ergebnisse zeigten einen fortschreitenden Anstieg der Abbaurate von 5 ppm auf 30 ppm, mit Abbauwerten von etwa 49,5 %, 57,1 %, 70,9 % und 81,07 % für 5 ppm, 10 ppm, 20 ppm und 30 ppm. Bemerkenswerterweise begann der Abbau von RB ab 30 ppm abzunehmen, mit Abbauwerten von 75,9 % bzw. 65,2 % bei 40 ppm bzw. 50 ppm. Die hocheffiziente photokatalytische Leistung des Ag@Cu/TiO₂ ist auf die wachsende Verfügbarkeit von RB-Farbstoffmolekülen zur Anregung und Energieübertragung bei zunehmender RB-Konzentration zurückzuführen [30]. Beim Überschreiten einer kritischen Konzentration, in unserem Fall 30 ppm, beginnen die Farbstoffmoleküle jedoch, die Strahlung zu absorbieren, anstatt vom Ag@Cu/TiO₂ absorbiert zu werden, was zu einer Verringerung der photokatalytischen Effizienz des Ag@Cu/TiO₂ führt [31].

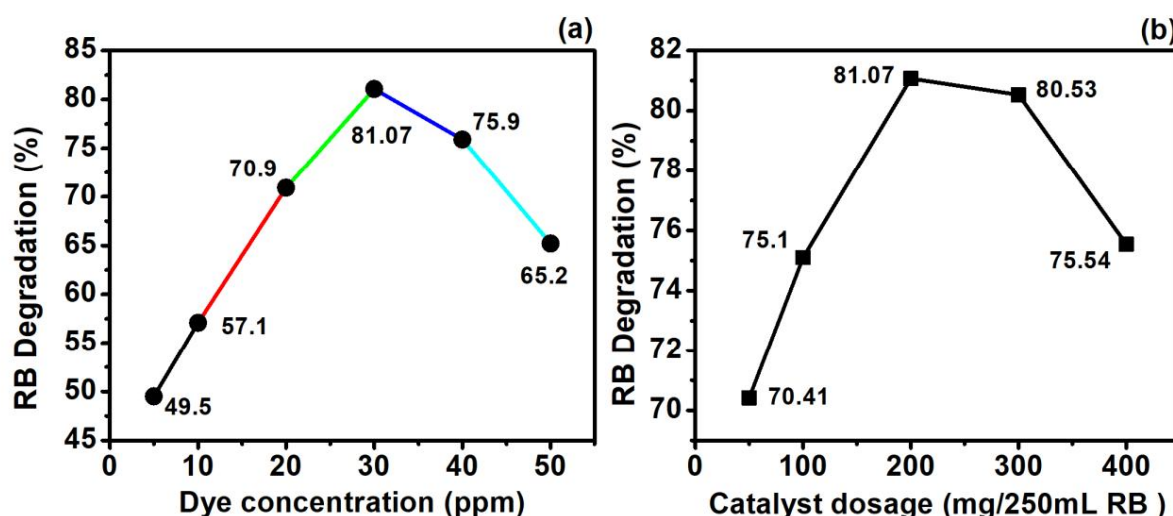


Abbildung 12. (a) Wirkung der RB-Konzentration bei Ag@Cu/TiO₂ 200 mg/250 ml und 500 W-Halogenlampe. (b) Variation der Dosierungen von Ag@Cu/TiO₂ bei 50 mg/250 ml, 100 mg/250 ml, 200 mg/250 ml, 300 mg/250 ml und 400 mg/250 ml.

3.5.2. Wirkung der Ag@Cu/TiO₂-Dosierung

Die photokatalytische Abbaurate hängt von der Katalysatordosis ab. Um die optimale Dosierung zu ermitteln, wurden Ag@Cu/TiO₂-Dosierungen von 50 mg/250 ml bis 400 mg/250 ml bei einer RB-Konzentration von 30 ppm und einer Lichtintensität von 500 W-Halogenlampe (500 W) bei einer Reaktionszeit von 60 min konstant gehalten.

Die Ergebnisse (Abbildung 12b) zeigen, dass die Effizienz von Ag@Cu/TiO₂ bei einer Dosierung von 200 mg/250 ml am höchsten war (81,07 %). Bei einer Dosierung von 50 mg/250 ml betrug die Effizienz 70,41 %, bei 100 mg/250 ml 75,1 %, bei 300 mg/250 ml 80,53 % und bei 400 mg/250 ml 75,54 %. Dies verdeutlicht die Verfügbarkeit von RB-Farbstoffmolekülen zur Anregung und Energieübertragung. Die Ergebnisse zeigen auch, dass die Effizienz von Ag@Cu/TiO₂ bei einer Dosierung von 200 mg/250 ml am höchsten war (81,07 %). Bei einer Dosierung von 50 mg/250 ml betrug die Effizienz 70,41 %, bei 100 mg/250 ml 75,1 %, bei 300 mg/250 ml 80,53 % und bei 400 mg/250 ml 75,54 %.

Dieser Rückgang der Effizienz kann auf die Desorption und Streuung von Licht ab einer bestimmten Schwellendosis von Ag@Cu/TiO₂ zurückgeführt werden [29].

Die zyklische Wiederverwendbarkeit von Ag@Cu/TiO₂ wurde in sieben aufeinanderfolgenden Zyklen bewertet (siehe Abbildung S2). Bemerkenswerterweise blieb die Wiederverwendbarkeit auch nach dem siebten Zyklus bei 79,96 % stabil. Diese Ergebnisse unterstreichen das vielversprechende Potenzial von Ag@Cu/TiO₂ für RB-Farbstoffe.

Dieser Rückgang der Effizienz kann auf die Desorption und Streuung von Licht ab einer bestimmten Schwellendosis von Ag@Cu/TiO₂ zurückgeführt werden [29].

Die zyklische Wiederverwendbarkeit von Ag@Cu/TiO₂ wurde in sieben aufeinanderfolgenden Zyklen bewertet (siehe Abbildung S2). Bemerkenswerterweise blieb die Wiederverwendbarkeit auch nach dem siebten Zyklus bei 79,96 % stabil. Diese Ergebnisse unterstreichen das vielversprechende Potenzial von Ag@Cu/TiO₂ für den Abbau von RB- Farbstoffen unter sichtbarem Licht.

3.5.3. Vorgeschlagener photokatalytischer Mechanismus

Abbildung 13 zeigt den vorgeschlagenen Ag@Cu/TiO₂ -Abbaupfad von RB. Es gibt drei mögliche Wege zur Bildung von binären und ternären Heteroübergängen mit TiO₂.

Das Energieniveau des höchsten besetzten Molekülorbitals von Cu befindet sich zwischen dem Valenzband (VB) und dem Leitungsband (CB) von TiO₂, was die Bildung einer binären Heteroverbindung erleichtert. Unter Bestrahlung mit sichtbarem Licht erleichtert Cu/TiO₂ den Lochtransfer zu Cu, was zu einem Elektronentransport zum CB von TiO₂ führt. Die große Anzahl an Löchern in Cu reagiert mit RB, was zu Oxidation und anschließendem RB-Abbau führt. Darüber hinaus tritt das generierte CB in einer binären Ag@TiO₂- Heteroverbindung auf, da die Unterschiede in den TiO₂-Ionen und Elektronen [32]. Dies zeigt, dass Ag eine bedeutende Rolle als Elektronenreservoir hat. Das CB von TiO₂ und Ag mit einer binären Ag@TiO₂- Heteroverbindung auf, da die Unterschiede in der Ladungsrekombination durch die Schaffung einer Schottky-Barriere reduziert werden. Dies wiederum verbessert die Ausstrahlungsrate von TiO₂ und Ag [32]. Dies zeigt, dass Ag eine wichtige Rolle als Elektronenreservoir spielt, was die Ladungsrekombination durch die Schaffung einer Schottky-Barriere verringert. Dies wiederum erhöht die photokatalytische Aktivität, indem es die Elektronenmigration durch Photonenanteile fördert. Die Lochmigration zu Cu erleichtert die Erzeugung von ternären Heteroübergängen in Ag@Cu/TiO₂, wo Elektronen auf dem CB des TiO₂ und schließlich zum CB des Ag übertragen werden. Hier beschleunigen sie die Oxidations- und Reduktionsprozesse, wodurch freie Radikale entstehen. Der Abbauprozess beginnt, wenn RB das TiO₂ und schließlich das CB des Ag absorbiert. Hier beschleunigen sie die Oxidations- und Reduktionsprozesse dieser Radikale, wodurch freie Radikale entstehen. Der Abbauprozess beginnt, wenn RB diese Radikale absorbiert.

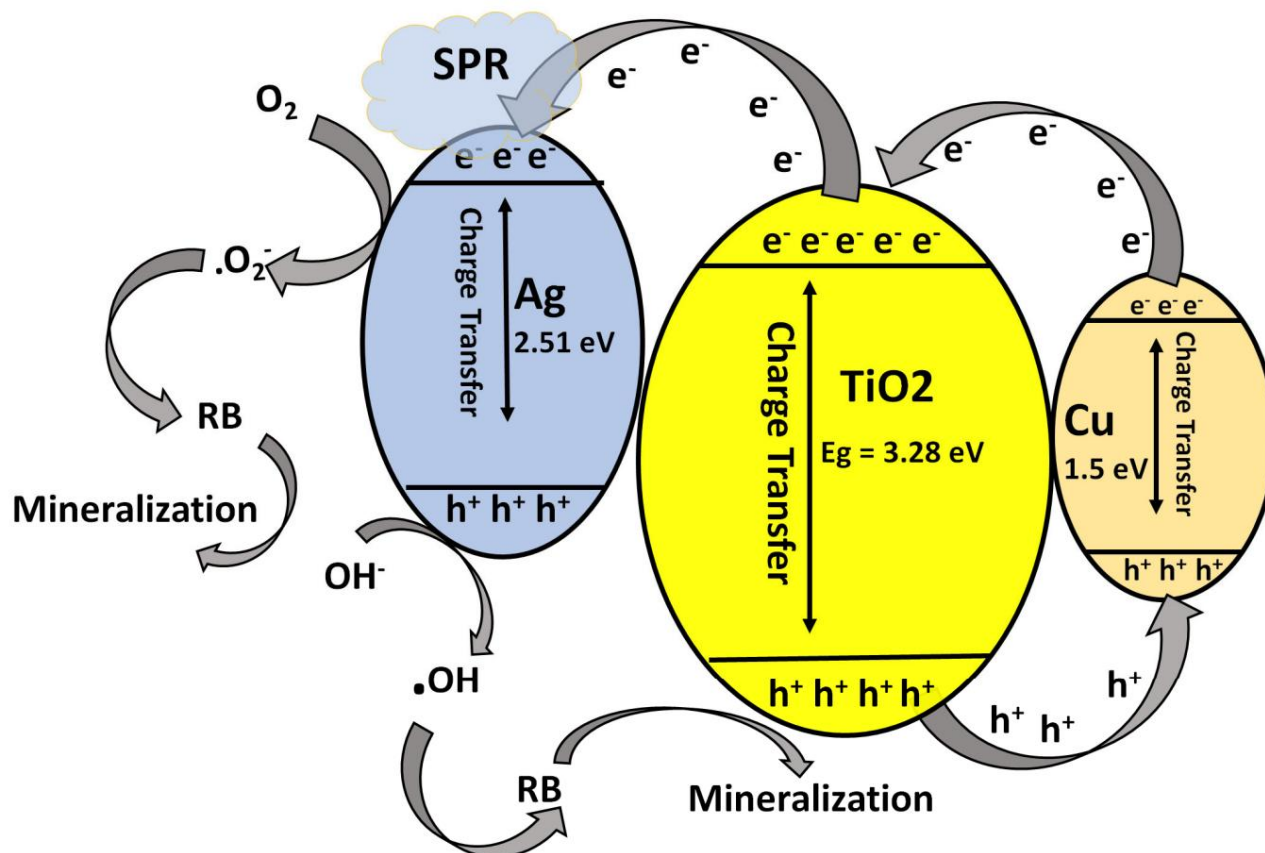


Abbildung 13. Vorgeschlagener Abbaumechanismus von RB durch Ag@Cu/TiO₂.

Abbildung 13. Vorgeschlagener Abbaumechanismus von RB durch Ag@Cu/TiO₂.

3.6. Wasserstoffproduktion

Unter Verwendung einer 20%igen Konzentration von Methanol als Radikalfänger untersuchten wir die photokatalytische Wasserstofferzeugung von TiO₂, Ag/TiO₂, Cu/TiO₂ und Ag@Cu/TiO₂. Die Ergebnisse, wie

3.6. Wasserstoffproduktion

Unter Verwendung einer 20%igen Methanolkonzentration als Radikalfänger untersuchten wir die photokatalytische Wasserstoffproduktion von TiO₂, Ag/TiO₂, Cu/TiO₂ und Ag@Cu/TiO₂. Die Ergebnisse, wie in Abbildung 14 dargestellt, deuten darauf hin, dass reines TiO₂ eine langsamere Wasserstoffproduktionsrate (8,4 $\mu\text{mol h}^{-1}\text{g}^{-1}$), aber die Geschwindigkeit der Wasserstoffentwicklung in der Ag/TiO₂- kann auf die Rolle von Ag bei der $\mu\text{mol h}^{-1}\text{g}^{-1}$ aufwies, die nach Einbau von Ag signifikant auf 10,1 $\mu\text{mol h}^{-1}\text{g}^{-1}$ anstieg. Diese Steigerung 17 Verbesserung der Ladungsträgertrennung zurückzuführen sein [34]. Darüber hinaus wurde beobachtet, dass Cu/TiO₂ eine höhere Kapazität zur Wasserstoffproduktion als Ag/TiO₂ hatte, mit einem ungefähren Wert von 14,4 $\mu\text{mol h}^{-1}\text{g}^{-1}$. Der Wert von Ag@Cu/TiO₂ betrug etwa 17,1 $\mu\text{mol h}^{-1}\text{g}^{-1}$. Die Wasserstoffproduktion lässt h $\mu\text{mol h}^{-1}\text{g}^{-1}$, was darauf hindeutet, dass Ag und Cu synergistisch zur Steigerung der Wasserstoffproduktion von reinem TiO₂ beitragen [35]. Tragen synergistisch zur Steigerung darauf schließen, dass Ag und Cu der Wasserstoffproduktion von reinem TiO₂ bei [35]. Darüber hinaus weist die XPS-Analyse der O1s auf eine deutliche Zunahme der Sauerstoffkonzentration bei Ag@Cu/TiO₂ im Vergleich zu reinem TiO₂, Cu/TiO₂ und Ag/TiO₂ hin. Diese Beobachtung gilt für Ag@Cu/TiO₂ im Vergleich zu reinem TiO₂, Cu/TiO₂ und Ag/TiO₂. Diese Beobachtung dient als ein weiterer Faktor, der zur gesteigerten Wasserstoffproduktion beiträgt. dient als ein weiterer Faktor, der zur gesteigerten Wasserstoffproduktion beiträgt.

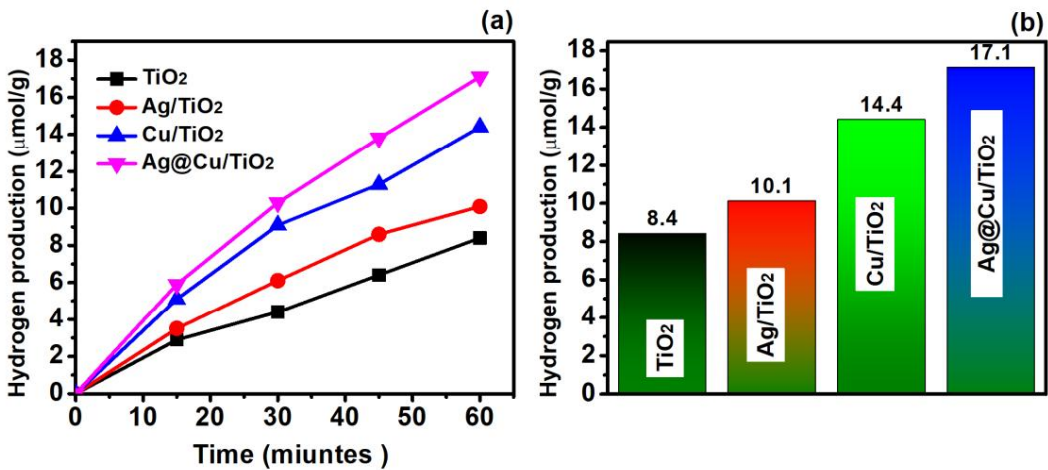


Abbildung 14. (a) Wasserstoffproduktion von TiO₂, Ag/TiO₂, Cu/TiO₂ und Ag@Cu/TiO₂ in 20%iger Methanolkonzentration. (b) Wasserstoffproduktion von TiO₂, Ag/TiO₂, Cu/TiO₂ und Ag@Cu/TiO₂ in 20%iger Methanolkonzentration.

4. Schlussfolgerungen

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass das ternäre Ag@Cu/TiO₂ Nanokomposit erfolgreich mithilfe der chemischen Methode synthetisiert wurde. Die morphologische und strukturelle Charakterisierung zeigt, dass alle Bestandteile gleichmäßig verteilt und gut integriert waren. TiO₂ (5,28 eV), das Ag@Cu/TiO₂ zeigte die niedrigste Bandlücke von 2,86 eV im Vergleich zu reinem TiO₂ (3,13 eV) und Cu/TiO₂ (3,00 eV). Ag@Cu/TiO₂ zeigte die niedrigste Photolumineszenzintensität, was auf die höchste Ladungseffizienz und niedrigste Rekombinationsrate hindeutet. Der photokatalytische Abbau von RB durch Ag@Cu/TiO₂ zeigte die niedrigste Rekombinationsrate auf. Der photokatalytische Abbau von RB durch Ag@Cu/TiO₂ zeigte eine Abbaurate von 81,07%, was 3,31-mal so viel wie bei TiO₂ ist. Die Reaktionsgeschwindigkeitskonstante für Ag@Cu/TiO₂ betrug 2,76 $\times 10^{-2}$, also das 5,94-fache von TiO₂. Ebenso betrug die Geschwindigkeitskonstante für Ag@Cu/TiO₂ 7,11 $\times 10^{-3}$ bzw. 1,91 $\times 10^{-2}$ TiO₂. Ebenso betrug die Reaktionsgeschwindigkeitskonstante für Ag/TiO₂ und Cu/TiO₂ 7,11 $\times 10^{-3}$ bzw. 1,91 $\times 10^{-2}$ TiO₂. Abgesehen davon betrug die Wasserstoffproduktion von Ag@Cu/TiO₂ 17,1 $\mu\text{mol h}^{-1}\text{g}^{-1}$, was darauf hindeutet, dass Ag und Cu synergistisch zur Steigerung der Wasserstoffproduktion von reinem TiO₂ beitragen. Steigerung der Wasserstoffproduktion von reinem TiO₂.

y1

Ergänzende Materialien: Die folgenden ergänzenden Informationen können heruntergeladen werden unter: <https://www.mdpi.com/article/10.3390/chemistry6030028/s1>. Abbildung S1: Wiederverwendbarkeit von Ag@Cu/TiO₂. Abbildung S2: UV-Daten für (a) TiO₂, (b) Ag/TiO₂, (c) Cu/TiO₂ und (d) Ag@Cu/TiO₂. Abbildung S3: XRD-Muster von TiO₂, Ag/TiO₂, Cu/TiO₂ und Ag@Cu/TiO₂. Abbildung S4(a) zeigt den Abbau von RB unter Verwendung von reinem TiO₂ als Katalysator, während Abbildung S4(b) zeigt den Abbau von RB unter Verwendung von reinem TiO₂ bei verschiedenen pH-Werten im Bereich von 7 bis 9.

Beiträge der Autoren: Konzeptualisierung, SY, AJ, PK, SAA und MOA; Datenkuratierung, SS und SY; Formale Analyse, SY, SS und SAA; Mittelbeschaffung, SY und PK; Untersuchung SY, AJ, PK, SAA, MOA und MA; Methodik, SY, PK, AJ und MOA; Projektverwaltung, SY, AJ, PK und MOA; Ressourcen, SY, AJ, PK und MOA; Software, SS und MA; Überwachung, AJ, PK und MOA; Validierung, SY und MA; Visualisierung, SY, PK, SAA und MOA; Schreiben – Originalentwurf, SY und MA; Schreiben – Überprüfung und Bearbeitung, SY, AJ, PK und MOA Alle

1

Chemistry 2024, 6, ZUR PEER-REVIEW

Interessenkonflikte: Die Autoren erklären, dass keine Interessenkonflikte vorliegen.

Verweise

17. Deng, S.; Feng, Z.; Fan, M.; Pi, Y.; Hu, L.; Han, X.; Liu, M.; Sun, J.; Sun, J. Jüngste Entwicklungen in der heterogenen Photokatalyse. *Nanomater.* **2015**, *5*, 57–63. [CrossRef]
20. Li, Z.; Wang, Y.; Zhang, Z. Jüngste Entwicklungen bei der MoS₂-basierten Photokatalyse. Ein Überblick. *J. Adv. Photocatal.* **2016**, *8*, 110–120. [CrossRef]

18. Palanisamy, VK; Manoharan, K.; Raman, K.; Sundaram, R. Effizientes sonnenlichtgetriebenes photokatalytisches Verhalten von Zinksulfid- Nanostäben gegenüber dem Abbau von Bengalrosa. *J. Mater. Sci. Mater. Electron.* **2020**, *31*, 14795–14809. [\[CrossRef\]](#)
19. Tayeb, AM; Hussein, DS Synthese von TiO₂- Nanopartikeln und ihre photokatalytische Aktivität für Methylenblau. *Am. J. Nanomater.* **2015**, *3*, 57–63.
20. Li, Z.; Meng, X.; Zhang, Z. Neueste Entwicklungen in der MoS₂ -basierten Photokatalyse: Ein Überblick. *J. Photochem. Photobiol. C Photochem.* **2018**, *35*, 39–55. [\[CrossRef\]](#)
21. Li, Z.; Wang, S.; Wu, J.; Zhou, W. Jüngste Fortschritte bei defekten TiO₂- Photokatalysatoren für Energie- und Umweltanwendungen. Erneuern. Aufrechterhalten. *Energy Rev.* **2022**, *156*, 111980. [\[CrossRef\]](#)
22. Chun-Te Lin, J.; Sopajaree, K.; Jitjanesuwan, T.; Lu, M.-C. Anwendung von sichtbarem Licht auf kupferdotiertes Titandioxid zur Katalyse des Abbaus von Chlorphenolen. *Sep. Purif. Technol.* **2018**, *191*, 233–243.
23. Zhang, H.; Wang, G.; Chen, D.; Lv, X.; Li, J. Feinabstimmung der photoelektrochemischen Leistung von Ag-TiO₂- Nanokompositen über Reduktion/Oxidation von Ag. *Chem. Mater.* **2008**, *20*, 6543–6549. [\[CrossRef\]](#)
24. Sun, M.; Wang, Y.; Fang, Y.; Sun, S.; Yu, Z. Konstruktion von MoS₂/CdS/TiO₂- Ternärkompositen mit verbesserter photokatalytischer Aktivität und Stabilität. *J. Alloys Compd.* **2016**, *684*, 335–341. [\[CrossRef\]](#)
25. Dustgeer, MR; Asma, ST; Jilani, A.; Raza, K.; Hussain, SZ; Shakoor, MB; Iqbal, J.; Abdel-wahab, MS; Darwesh, R. Synthese und Charakterisierung eines neuartigen einphasig gesputterten Cu₂O -Dünnschichten: Strukturelle, antibakterielle Aktivität und photokatalytischer Abbau von Methylenblau. *Inorg. Chem. Commun.* **2021**, *128*, 108606. [\[CrossRef\]](#)
26. Jilani, A.; Iqbal, J.; Rafique, S.; Abdel-wahab, MS; Jamil, Y.; Al-Ghamdi, AA Morphologische, optische und röntgen-photoelektronenchemische Zustandsverschiebungsuntersuchungen von ZnO-Dünnschichten. *Optik* **2016**, *127*, 6358–6365. [\[CrossRef\]](#)
27. Kumari, A.; Zaman, M.; Kumar, A.; Singh, VR; Ghosh, A.; Sahoo, SK; Rahaman, A.; Mandal, SK; Bhunia, S. Ein alternativer Ansatz zur Untersuchung des photokatalytischen Verhaltens von TiO₂ unter Verwendung synchrotronbasierter fortschrittlicher spektroskopischer Techniken. *J. Mater. Eng. Perform.* **2023**, *32*, 10391–10401. [\[CrossRef\]](#)
28. Shi, Y.; Li, L.; Xu, Z.; Guo, F.; Li, Y.; Shi, W. Synergistische Kopplung von piezoelektrischen und plasmonischen Effekten reguliert die Schottky-Barriere in der Heterostruktur aus Ag-Nanopartikeln/ultradünnen g-C₃N₄ -Nanoschichten, um die photokatalytische Aktivität zu verbessern. *Appl. Surf. Sci.* **2023**, *616*, 156466. [\[CrossRef\]](#)
29. Di, S.; Guo, S.; Wang, Y.; Wang, W.; Jung, YM; Chen, L.; Wang, L. Oberflächenplasmonenresonanzeffekt auf den Ladungstransfer in Ag@Cu₂O-rGO-Komposite. *Mater. Chem. Phys.* **2023**, *301*, 127621. [\[CrossRef\]](#)
30. Hanafi, MF; Sapawe, N. Einfluss der Anfangskonzentration auf den photokatalytischen Abbau von Remazol Brilliant Blue Dye unter Verwendung Nickelkatalysator. *Mater. Today Proc.* **2020**, *31*, 318–320. [\[CrossRef\]](#)
31. Reza, KM; Kurny, A.; Gulshan, F. Parameter, die den photokatalytischen Abbau von Farbstoffen mit TiO₂ beeinflussen : Eine Übersicht. *Appl. Wasserwissenschaft* **2017**, *7*, 1569–1578. [\[CrossRef\]](#)
32. Mansfeldova, V.; Zlamalova, M.; Tarabkova, H.; Janda, P.; Vorokhta, M.; Pilai, L.; Kavan, L. Austrittsarbeit von TiO₂- Einkristallen (Anatas, Rutil und Brookit): Auswirkungen der Umgebung. *J. Phys. Chem. C* **2021**, *125*, 1902–1912. [\[CrossRef\]](#)
33. Huang, K.; Li, C.; Zheng, Y.; Wang, L.; Wang, W.; Meng, X. Jüngste Fortschritte bei der silberbasierten Photokatalyse: Hemmung der Photokorrosion, Verbesserung der Empfindlichkeit gegenüber sichtbarem Licht und Beschleunigung der Ladungstrennung. *Sep. Purif. Technol.* **2022**, *283*, 120194. [\[Querverweis\]](#)
34. Yadav, AA; Hunge, YM; Kang, S.-W. Schwammartige, kugelförmige Kupferoxid-Nanostruktur, modifiziert durch reduziertes Graphenoxid zur verbesserten photokatalytischen Wasserstoffproduktion. *Mater. Res. Bull.* **2021**, *133*, 111026. [\[CrossRef\]](#)
35. Wu, D.; Liu, H.; Chen, J.; Liu, W.; Hstand, G.; Wang, T. Cu NPs-eingebettete vernetzte mikroporöse 3D-reduzierte Graphenhydrogele als Photokatalysator für die Wasserstoffentwicklung. *J. Colloid Interface Sci.* **2020**, *577*, 441–449. [\[CrossRef\]](#)

Haftungsausschluss/Anmerkung des Herausgebers: Die in allen Veröffentlichungen enthaltenen Aussagen, Meinungen und Daten sind ausschließlich die der einzelnen Autoren und Mitwirkenden und nicht die von MDPI und/oder den Herausgebern. MDPI und/oder die Herausgeber lehnen jegliche Verantwortung für Personen- oder Sachschäden ab, die aus den im Inhalt erwähnten Ideen, Methoden, Anweisungen oder Produkten resultieren.