

**ÇANKIRI KARATEKİN ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ**

YÜKSEK LİSANS TEZİ

**GRAFEN OKSİT DİSPERSİYONLARININ KARARLILIK
ÖZELLİKLERİNİN İNCELENMESİNE YÖNELİK BİR DENEY
TASARIMI UYGULAMASI**

Recep Berk ALP

KİMYA MÜHENDİSLİĞİ ANABİLİM DALI

**ÇANKIRI
2019**

Her hakkı saklıdır

ÖZET

Yüksek Lisans Tezi

GRAFEN OKSİT DİSPERSİYONLARININ KARARLILIK ÖZELLİKLERİNİN İNCELENMESİNE YÖNELİK BİR DENEY TASARIMI UYGULAMASI

Recep Berk ALP

Çankırı Karatekin Üniversitesi
Fen Bilimleri Enstitüsü
Kimya Mühendisliği Anabilim Dalı

Danışman: Doç. Dr. Barış ŞİMŞEK

Bu çalışmada Hummers yöntemi kullanılarak grafit ve kömürün oksidasyonu yoluyla sentezlenen grafen oksitlerin karakterizasyonu gerçekleştirilmiştir. Daha sonra; grafitten ve kömürden elde edilen grafen oksitlerin deiyonize su ile dispersiyonları oluşturulmuş performansları tam faktöriyel deney tasarımı yöntemi ile istatistiki olarak analiz edilmiştir. Kömürden sentezlenen grafen oksitin karakterizasyonu Raman spektroskopisi ve Atomik kuvvet mikroskobu (AFM) ile yapılmıştır. AFM analizinde kömürden elde edilen grafen oksitin ortalama yüzey pürüzlülüğü 17.68 nm olarak belirlenirken, grafitten elde edilen grafen oksitin ortalama yüzey pürüzlülüğü 12.90 nm olarak belirlenmiştir. Raman ve AFM analizleri kömür ile grafen oksit sentezinin başarılı olduğunu göstermiştir. Kömür kaynaklı grafen oksit dispersiyonları grafit kaynaklı grafen oksit dispersiyonlarına göre, parçacık boyutunda %14,95 ve iletkenlikte %693,98 daha yüksek bir değere; zeta potansiyelinde %17,91; termal iletkenlikte %0,15 ve viskozitede ise %1,27'lik daha düşük bir değere sahiptir. İletkenlikteki iyileşme oranı kararlı dispersiyonların hazırlanmasında grafit yerine kömür kullanabileceğini göstermiştir. Belirlenen yüksek iletkenlik, kömür kaynaklı kararlı dispersiyonların iletken mürekkep uygulamaları için kullanışlı olduğunu göstermiştir.

2019, 74 sayfa

ANAHTAR KELİMELER: Grafen oksit dispersiyonu, Hummers metodu, Kömürün oksidasyonu, Tam faktöriyel deney tasarımı

ABSTRACT

Master Thesis

APPLICATION OF AN EXPERIMENTAL DESIGN TO EXAMINE THE STABILITY PROPERTIES OF GRAPHENE OXIDE DISPERSIONS

Recep Berk ALP

Çankırı Karatekin University
Graduate School Of Natural And Applied Sciences
Department of Chemical Engineering

Supervisor: Assoc. Prof. Dr. Barış ŞİMŞEK

In this study, the characterization of graphene oxides synthesized by oxidation of graphite and coal by Hummers method was performed. Afterwards; graphene oxide obtained from graphite and coal oxidation dispersions was prepared and water-induced performances were analyzed statistically by the full factorial experimental design method. The characterization of graphene oxide synthesized from coal was performed by Raman spectroscopy and Atomic force microscopy (AFM). In the AFM analysis, the average surface roughness of graphene oxide obtained from coal was determined as 17.68 nm, while the average surface roughness of graphene oxide from graphite was determined as 12.90 nm. Raman and AFM analysis showed that graphene oxide from the coal were successful synthesized. According to the graphite-induced graphene oxide dispersions, the coal-induced graphene oxide dispersions has a higher value of 14.95% in particle size; 693.98 % in conductivity; but also has a lower value of 17.91% in the zeta potential; 0.15% in thermal conductivity and 1.27% in viscosity. The rate of improvement in conductivity showed that it could use coal instead of graphite in the preparation of stable dispersions. The determined high conductivity showed that stable dispersions from coal were useful for conductive ink applications.

2019, 74 pages

KEY WORDS: Graphene oxide dispersion, Hummers method, Oxidation of coal, full factorial experimental design.

ÖNSÖZ VE TEŞEKKÜR

“Grafen Oksit Dispersiyonlarının Kararlılık Özelliklerinin İncelenmesine Yönelik Bir Deneysel Tasarım Uygulaması” adlı bu çalışma 2018-2019 yılları arasında hazırlanarak Çankırı Karatekin Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsüne “Yüksek Lisans Tezi” olarak sunulmuştur.

Çalışmanın her safhasında yakın ilgi ve önerileri ile beni yönlendiren, her türlü yardımını esirgemeyen, her zaman destekleyen ve anlayış gösteren değerli Tez Danışmanım Sayın Doç. Dr. Barış ŞİMŞEK’ e teşekkür ederim. Eş danışmanım Sayın Dr. Öğr. Üyesi Ömer Faruk DİLMAÇ tez çalışmam boyunca bilgi ve desteklerini esirgemeyen kıymetli hocama teşekkür ederim.

Deneysel çalışmaları Çankırı Karatekin Üniversitesi Mühendislik Fakültesi laboratuvarında yapılmıştır. Bu çalışmalar esnasında yardımlarını esirgemeyen Sayın Dr. Öğr. Üyesi Semahat DORUK teşekkür ederim. Teknik ve yönlendirici destekleriyle çalışmada yardımcı olan Öğr. Gör. Haluk KORUCU, Müh. İnci SEVGİLİ ve tüm teknik personel kadroya teşekkür ederim.

Yüksek lisans eğitimim süresince benden maddi ve manevi desteklerini esirgemeyen saygıdeğer çalışma arkadaşım Sayın İbrahim COŞKUN ve Gürsoy Grup ailesine teşekkür ederim.

Eğitim hayatım boyunca beni her zaman destekleyen, hayatımın her safhasında yanımda olan aileme ve benim bu yaşıma gelmemde çok büyük emekleri olan annem Nuran ALP’ e teşekkür ederim.

Hayatıma girmesiyle beni mutlu eden bana hayat arkadaşı olarak eşlik edip beni motive eden Kader KARAGÖZ’ e teşekkür ederim.

Bu aşamaya gelmemde bana emeği geçen tüm hocalarıma, adını burada saymadığım ve katkısı olan herkese ayrıca şükranlarımı sunarım.

Recep Berk ALP

Çankırı, Haziran 2019

İÇİNDEKİLER

ÖZET.....	i
ABSTRACT.....	ii
ÖNSÖZ VE TEŞEKKÜR.....	iii
SİMGELER DİZİNİ.....	vi
ŞEKİLLER DİZİNİ.....	vii
ÇİZELGELER DİZİNİ.....	viii
1. GİRİŞ.....	1
1.1 Grafenin Keşfi.....	1
1.2 Grafenin Yapısı.....	3
1.3 Grafenin Özellikleri.....	5
1.3.1 Mekanik Özellikleri.....	5
1.3.2 Termal Özellikleri.....	6
1.3.3 Optik Özellikleri.....	6
1.3.4 Elektriksel Özellikleri.....	6
1.4 Grafen Üretim Teknikleri.....	7
1.4.1 Fiziksel Yöntemlerle Grafen Sentezi.....	8
1.4.1.1 Mikro mekanik Teknik ile HOPG Tabakasından Tek Tabaka İzolasyonu.....	8
1.4.1.2 Kimyasal Buhar Çöktürme Yöntemi.....	8
1.4.1.3 SiC Bileşiğinin Termal Bozunması.....	9
1.4.1.4 Yüksek Vakumda Tek Kristal Üzerine Epitaksiyel Büyütme.....	10
1.4.2 Kimyasal Yöntemlerle Grafen Sentezi.....	11
1.4.2.1 Organik Sentez Yoluyla Grafen Sentezi.....	11
1.4.2.2 Yükseltgenme İndirgenme Reaksiyonu ile Kimyasal Olarak Grafen Sentezi.....	11
1.5 Grafenin Uygulama Alanları.....	13
2. KAYNAK ÖZETLERİ.....	15
2.1 Grafitten Grafen Oksit Sentezi.....	15
2.2 Kömürden Grafen Oksit Sentezi.....	18
2.3 Dispersiyon.....	22
3. MATERYAL VE YÖNTEM.....	26
3.1 Materyal.....	26
3.2 Hummers Yöntemi.....	29
3.2.1 Grafittin Oksidasyonu.....	29
3.2.2 Kömürün Oksidasyonu.....	30
3.3 Tam Faktöriyel Tasarım.....	31
3.4 Yöntem.....	33
3.5 Metodoloji.....	34
3.6 Sentezlenen Grafen Oksit Dispersiyonlarının Hazırlanışı.....	35
4. BULGULAR VE TARTIŞMA.....	37
4.1 Sentezlenen Grafen Oksit Numunelerinin Karakterizasyonu.....	37
4.1.1 FT-IR Analizi Sonuçları.....	37
4.1.2 Raman Analizi Sonuçları.....	38

4.1.3 XRD Analizi Sonuçları	39
4.1.4 AFM Analizi Sonuçları	39
4.1.5 SEM-EDX Analizi Sonuçları	41
4.1.6 DSC Analizi Sonuçları	43
4.2 Sentezlenen Grafen Oksit Numunelerinin Dispersiyon Özellikleri	44
4.2.1 Ultraviyole-Görünür Işık Analizi Sonuçları	44
4.2.2 Zeta Potansiyeli-Partikül Boyut Dağılımı Analizi Sonuçları	45
4.2.3 Optik Mikroskop Analizi Sonuçları	45
4.2.4 Termal İletkenlik Analizi Sonuçları	48
4.2.5 Viskozite Analizi Sonuçları	48
4.3 Deneysel Sonuçlar	48
4.4 İstatistiksel Analiz	50
4.5 K-GO ile G-GO Kıyaslaması	61
4.6 Literatür ile Kıyaslama	63
4.7 GO Sentezi İçin Maliyet Analizi	64
5. SONUÇ	65
KAYNAKLAR	67
ÖZGEÇMİŞ	74

SİMGELER DİZİNİ

0D	Sıfır boyutlu
1D	Bir boyutlu
2D	İki boyutlu
3D	Üç boyutlu
GO	Grafen oksit
rGO	İndirgenmiş grafen oksit
CNT	Karbon nano tüp
CB	klorobenzen
TPa	Tera pascal
GPa	Giga pascal
W	Watt
m	Metre
K	Kelvin
cm	Santimetre
V	Volt
m	Metre
g	Gram
mg	Miligram
nm	Nanometre
mbar	Milibar
mL	Mililitre
kHz	Kilohertz
CCG	Kimyasal olarak dönüştürülmüş grafen
LCD	Sıvı kristal görüntü
µm	Mikrometre
SEM	Taramalı Elektron Mikroskobu
EDX	Enerji yayımlı X-Işını
FT-IR	Fourier dönüşümlü kızıl ötesi
TGA	Termogravimetrik analiz
XRD	X-Işını difraktometresi
AFM	Atomik kuvvet mikroskobu
DSC	Diferansiyel taramalı kalorimetre
E-GO	Etanol grafen oksit
A-GO	Aseton grafen oksit
NMR	Nükleer manyetik rezonans
GIC	Grafit interkolasyon bileşik
DBD	Dielektrik bariyer deşarjı
GS	Grafen tabakası
S-GOD	Tek katmanlı grafen kuantum noktası
TEM	Transmisyon elektron mikroskobu
CNM	Karbon bazlı nanomalzemeler
HA	Hüyük asit
QI	Primer kinolonda çözünmeyen partikül

ŞEKİLLER DİZİNİ

Şekil 1.1 Karbon elementinin allotropları (Katsnelson 2007).	2
Şekil 1.2 Novoselov ve Geim tarafından 2004 yılında geliştiren “Scotch tape” tekniği ile grafen üretimi (Novoselov vd. 2004; Wei vd. 2015).	3
Şekil 1.3 Grafen (üste) ve ilgili yapılar: fulleren (sol alt); karbon nanotüpleri (alt orta); ve grafit (sağ alt) (Geim ve Novoselov 2010).	4
Şekil 1.4 Grafen tabakasındaki düzlemsel σ bağları ve düzleme dik π orbitallerinin şematik görünümü (Dubois vd. 2009).	5
Şekil 1.5 a. SiC’ün ilk görünümü, b. 6H-SiC ün hücre görünümü, c. Vakum ile 1300 °C de gerçekleşen SiC’ ün yüzeyi, d. Ar atmosferinde 1650 °C de gerçekleşen SiC yüzeyi, e. Tek tabakalı grafen (Sutter 2009).	9
Şekil 1.6 Ru(0001) metali üzerinde grafen filmi oluşumu ve zamanla büyümesi görünümü, a. Ru(0001) metali üzerinde 850°C büyüyen grafenin 12s, 30s, 60s ve 90s’deki düşük enerjili elektron mikroskobu görüntüleri, b. Ru(0001) metali yüzeyinde büyümekte olan grafenin atomik basamaklarla karşılaştığında aşağı yönlü büyüme gerçekleştiği gözlemlenmiştir (Sutter vd. 2008).	10
Şekil 1.7 Yang vd. tarafından sentezlenen grafen nanoşeritler (Yang vd. 2008).	11
Şekil 1.8 Kimyasal olarak grafen sentezinin şematik görünümü (Samal ve Das 2018).	13
Şekil 1.9 Grafen bazlı malzemelerin endüstriyel uygulamaları (Dasari vd. 2017).	14
Şekil 3.1 Kömürün FT-IR spektrum analizi	26
Şekil 3.2 KD2 Pro cihazı ile termal iletkenlik ölçümü	28
Şekil 3.3 Viskozimetre cihazı ile viskozite ölçümü	29
Şekil 3.4 İzlenilen metodoloji	35
Şekil 3.5 Disperse edilen GO numunelerin görünümü	36
Şekil 4.1 Sentezlenen grafen oksitlerin FT-IR görüntüleri	37
Şekil 4.2 Sentezlenen grafen oksitlerin Raman görüntüleri	38
Şekil 4.3 Sentezlenen grafen oksitlerin XRD analizi	39
Şekil 4.4 Sentezlenen K-GO’nun AFM analizi	40
Şekil 4.5 Sentezlenen G-GO’nun AFM analizi	40
Şekil 4.6 K-GO için 20 μ m SEM-EDX verileri	41
Şekil 4.7 K-GO için 4 μ m SEM-EDX verileri	42
Şekil 4.8 G-GO için 60 μ m SEM-EDX analizi	42
Şekil 4.9 K-GO ve G-GO için DSC analizi sonuçları	43
Şekil 4.10 Hazırlanan dispersiyonların UV-Vis sonuçları	44
Şekil 4.11 Nanoakışkanlar için zeta potansiyel	45
Şekil 4.12 K-GO dispersiyonlarının optik mikroskop görüntüleri	46
Şekil 4.13 G-GO dispersiyonlarının optik mikroskop görüntüleri	47
Şekil 4.14 Yanıtlar için ana etki grafikleri	53
Şekil 4.15 K-GO yanıtları için ana etki grafikleri	56
Şekil 4.16 Yanıtlar için etkileşim etki grafikleri	60
Şekil 4.17 Literatür kıyaslaması	63

ÇİZELGELER DİZİNİ

Çizelge 1.1 Grafen sentezlemek için kullanılan yöntemler (Er 2013).....	7
Çizelge 3.1 Kömüre ait fiziksel ve kimyasal veriler (Türkiye Taşkömürü Kurumu 2019)	27
Çizelge 3.2 Deney çalışmalarında kullanılan parametreler ve seviyeler	33
Çizelge 3.3 Deney tasarımı	34
Çizelge 4.1 Deneysel veriler	49
Çizelge 4.2 Ortalama yanıtlar için veri çifti analizi	61
Çizelge 4.3 Yanıtların standart sapma değerleri için veri çifti analizi.....	62



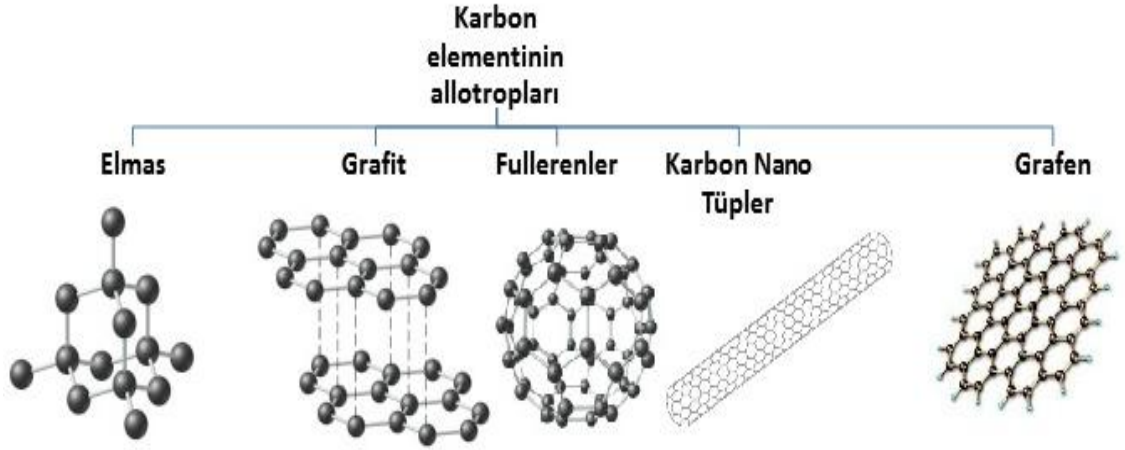
1.GİRİŞ

1.1 Grafenin Keşfi

1986 yılında ilk kez grafiti oluşturan iki boyutlu (2D) tekli tabakaları tanımlamak için grafen terimi kullanılmıştır. Bu zamana kadar grafit tabakaları olarak ifade edilen 2D yapı grafen olarak literatüre kaydedilmiştir. İki boyutlu bu yapıya, grafitten (graphite) gelen graph- ön eki ve C-C çift bağından dolayı polisiklik aromatik hidrokarbonlar için kullanılan “-ene” ekinin birleştirilmesi ile grafen (graphene) kelimesi türetilmiştir (Yıldız 2016).

Grafenin ilk keşfi, 2004 yılında Manchester Üniversitesi'nden Prof. Dr. Andre K. Geim ve Prof. Dr. Konstantin Novoselov tarafından başarılı bir şekilde 17 atom kalınlığında saf grafen tabakasını üretmeyi başarmışlardır (Akbulak 2012; Eroğul 2015). Grafen geç sentezlenmiş olsa bile grafenin elektronik özelliklerinin araştırılması 1946'lara kadar dayanmaktadır. İlk grafen araştırmalarından birini P. R. Wallace yapmıştır. "Tek katmanlı yapı" diye adlandırdığı bu çalışmasında grafenin enerji-bant yapısını incelemiş ve bu çalışmasında 3 boyutlu grafitin elektronik özelliklerini araştırmıştır (Akbulak 2012; Tiyek, Dönmez, vd. 2016).

Grafenin yapı taşı olan karbon (C) periyodik cetvelin IV grubunda yer almakta olup atom numarası 6, atom kütlesi 12 g.mol^{-1} 'dür. C atomları en dış yörüngelerindeki elektronlarını ortaklaşa kullandıkları kovalent bağlar ile birbirlerine bağlanarak, evrende çok farklı şekillerde dizilebilmektedir. Dizilişteki bu farklılık, fiziksel özellikleri birbirinden farklı karbonlar elde edilmesini mümkün kılmıştır. Bunlar karbonun allotropları olarak adlandırılır. Bu allotroplar Şekil 1.1'de gösterilmiştir.

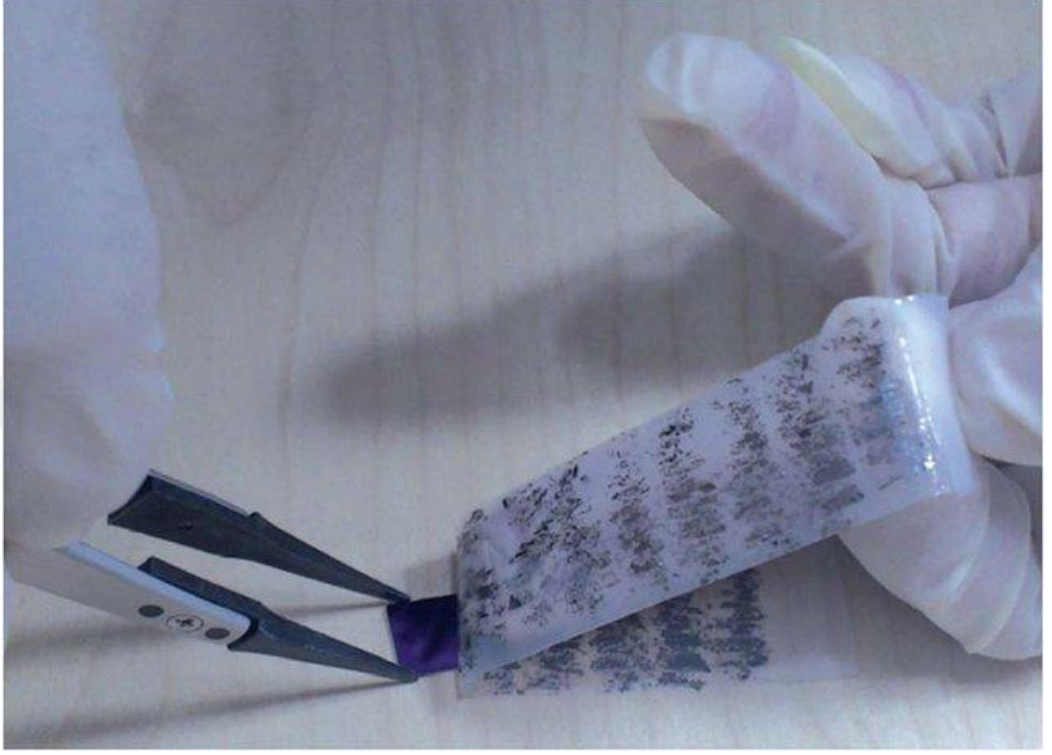


Şekil 1.1 Karbon elementinin allotropları (Katsnelson 2007).

C elementinin ilk çağlardan beri bilinen allotropları elmas ve grafitir. Elmasın üç boyutlu ağ şeklindeki yapısında elektronlar yapı içinde hareket edemez, böylelikle elmas çok sert ve elektriksel iletkenliği olmayan bir yapıya sahip olur. Grafitte karbon atomları altılı halkalar halinde, hareketli elektronlara sahip iki boyutlu tabakalı bir yapı meydana getirir. Bu sayede grafit yumuşak ve elektriksel iletkenliğe sahip bir malzeme özelliği göstermektedir. 1985'te, karbon atomlarının 56, 60 ya da 70 C atomu içeren moleküler yapıda 'Karbon toplar' oluşturduğu bulunmuş, bu buluş sahibine 1996 Nobel Kimya ödülünü kazandırmıştır (Elibol 2012). Mimar Buckminster Fuller'in, çok hafif malzemeler kullanarak inşa ettiği mekanik dayanımı yüksek jeodezik çatılara benzetilen bu karbon topları 'Fulleren'ler olarak adlandırılmıştır. 1991'de Japon araştırmacı Dr.Sumio Iijima fulleren üretmeye çalışırken, ürettiği malzemenin elektron mikroskop incelemesinde yeni bir karbon yapı elde ettiğini belirlemiş, bu yeni malzemeye Karbon Nano Tüp (CNT) adını vermiştir. Karbonun iki yeni allotropu olan fulleren ve CNT'lerin bulunması, 'Nanoteknoloji' olarak anılan yeni teknoloji çağının başlangıcını oluşturmuştur (Sarier 2018).

2004 yılında Manchester Üniversitesinden iki araştırmacı, Prof Andre Geim ve Prof Kostya Novoselov grafitin tek bir tabakayı "selobant" tekniği (Scotch Tape method) ile ayırmayı başararak karbon elementinin yeni bir allotropu olan "grafen"i elde etmişler, bu öncü çalışmaları ile 2010 Nobel Fizik Ödülü ile ödüllendirilmişlerdir (Nobel Media 2010). Bu yöntemde, çok saf bir grafit kristali üzerine Şekil 1.2'de görüldüğü gibi bir

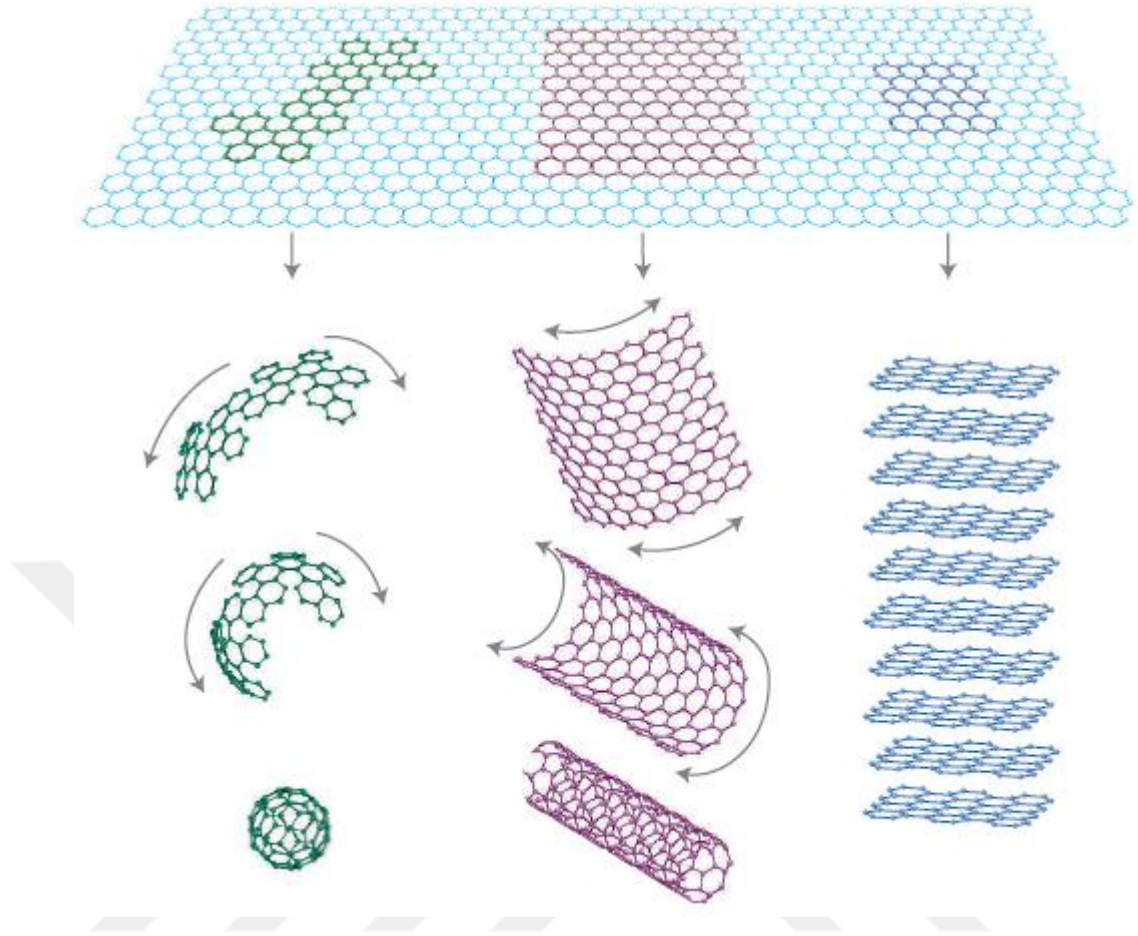
bant yapıştırılmış ve bantın hızla çekilmesiyle grafenin ayrılması gerçekleştirilmiş ve özellikleri incelenmiştir.



Şekil 1.2 Novoselov ve Geim tarafından 2004 yılında geliştiren “Scotch tape” tekniği ile grafen üretimi (Novoselov vd. 2004; Wei vd. 2015).

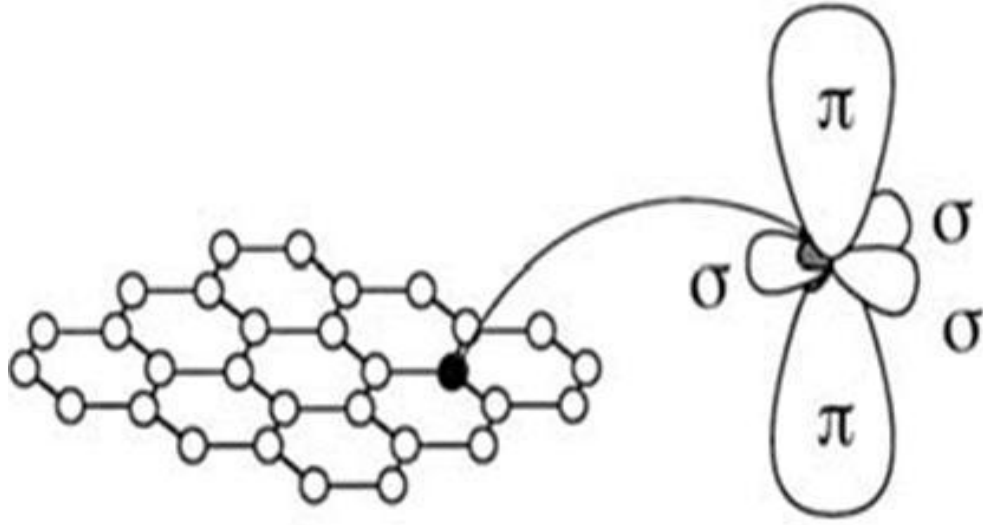
1.2 Grafenin Yapısı

Grafen, iki boyutlu (2D) bir bal peteği kafesine sıkıca paketlenmiş, tek tabakalı karbon atomlarının oluşturduğu yapıya verilen addır ve diğer tüm boyutlardaki grafit malzemeler için temel bir yapı taşıdır. Şekil 1.3’de görüldüğü üzere, bu yapı 0D şeklinde fullerenlere sarılabilir, 1D şeklinde nanotüplere yuvarlanabilir veya 3D grafit olarak istiflenebilir (Geim ve Novoselov 2010).



Şekil 1.3 Grafen (üste) ve ilgili yapılar: fulleren (sol alt); karbon nanotüpleri (alt orta); ve grafit (sağ alt) (Geim ve Novoselov 2010).

Hibritleşmiş sp^2 bağlarına sahip olan grafen, yapısındaki karbon atomları düzlemde üç σ bağı ve bu düzleme dik şekilde bir π orbitaline sahiptir. Hekzagonal yapıyı güçlü σ bağları oluşturmaktadır. Bu nedenle grafene esnekliğinin yanı sıra güçlü mekanik özellikler kazandırmaktadır. Düzleme dik halde bulunan π bağları ise, farklı grafen tabakaları ile etkileşimi ve grafenin iletkenliğini sağlar. Şekil 1.4'de bu yapı gösterilmiştir (Choi vd. 2010; Dubois vd. 2009).



Şekil 1.4 Grafen tabakasındaki düzlemsel σ bağları ve düzleme dik π orbitallerinin şematik görünümü (Dubois vd. 2009).

1.3 Grafenin Özellikleri

Grafen ilk 2D malzemedir. Grafenin hem endüstriyel hem de bilimsel alanda üzerinden en çok araştırma yapılan malzeme olmasının nedeni benzersiz elektriksel ve optik özelliklere sahip olmasının yanı sıra mükemmel kimyasal, termal ve mekanik özelliklere de sahip olmasıdır. Grafenin birim altıgen hücresi iki atoma sahiptir ve 0.052 nm^2 'lik alanı mevcuttur. Böylelikle alan yoğunluğu $0,77 \text{ mg/m}^2$ olarak bulunmuştur (Geim ve Novoselov 2010; Dırbalı 2010; Banerjee ve Grebel 2008).

1.3.1 Mekanik Özellikleri

Tek tabakalı grafenin Young modülü $\sim 1 \text{ TPa}$ ve kırılma dayanımı ise 130 GPa olarak ölçülmüştür (Dırbalı 2010). Grafen bilinen en yüksek Young modüle sahip malzemedir. Bu yüksek değer grafeni çok dayanıklı ve rijit yapmaktadır. Grafenin yapısında bulunan C-C bağlarının yüksek dayanımı ve hegzagonal yapıya sahip olmasından dolayı mükemmel mekanik performans sergilemektedir (Yıldız 2016).

Aynı yüzeye sahip kâğıt ve grafen karşılaştırıldığında grafenin kâğıt ağırlığının %0.001'ine karşılık geldiği görülmüştür. Grafen aynı zamanda bugüne kadar üretilmiş en ince malzeme olarak bilinmektedir ve S235 yapı çeliğinin yaklaşık 350 katı çekme dayanımı sergilemektedir (Yıldız 2016).

Gösterdiği olağanüstü mekanik özellikleri sayesinde grafenin çeşitli mühendislik uygulamaları için (yüksek gerilime maruz kalan malzemelerde kullanım gibi) uygun bir malzeme olduğu sonucuna varılmıştır (Yıldız 2016; Zhou vd. 2014).

1.3.2 Termal Özellikleri

Tüm malzemeler içinde en yüksek termal iletkenliğe sahip olan malzeme tek tabakalı grafen olup termal iletkenliği yaklaşık $6000 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ dir. Bu değer, karbon nanotüplerin ve altın, gümüş, bakır gibi birçok metallerin iletkenlik değerlerine kıyasla oldukça yüksektir (Zhou vd. 2014).

1.3.3 Optik Özellikleri

Grafen oldukça yüksek ışık geçirgenliğine sahiptir ve %97,7 şeffaftır. Yani tek katmanlı grafen beyaz ışığın %2,3'ünü soğurabilmektedir. Çok tabakalı grafende geçirgenlik tabaka sayısı ile doğrusal olarak artmıştır. Tek tabakalı grafen gelen ışığın %0,1 den daha küçük bir kısmını yansıtırken tabaka sayısı 10'a çıkarıldığında yansıma miktarı %2 seviyelerine yükselir (Çıplak 2013; Nair vd. 2008; Yıldız 2016).

1.3.4 Elektriksel Özellikleri

Grafene yönelik ilginin temel nedenlerinden biri de mükemmel elektronik özelliklere sahip olmasıdır. Grafen farklı davranışlar sergileyen bir malzemedir. Yarı metal veya sıfır boşluklu yarıiletken özellikler buna örnek gösterilebilir. Grafendeki valans ve iletkenlik bantlarının Dirac noktası olarak adlandırılan sıfır durumların tek noktasında

kesişmesi, grafeni sıfır boşluklu yarıiletken özellik gösteren bir malzeme yapmaktadır (Avouris 2010).

Grafenin elektronik yapısındaki değişim büyük ölçüde tabaka sayısına bağlı olarak değişmektedir. Yük yoğunluğu ve yük devinirliği (charge carrier mobility) iletkenliği belirleyen önemli parametrelerdir ve grafen için bu değer oldukça yüksektir. Grafen için taşıyıcı mobilitesi $200000 \text{ cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ olup, bu değer ticari olarak kullanılan silikon plakalardan yaklaşık 10 kat daha fazladır (Avouris 2010; Çıplak 2013; Craciun vd. 2011; Yıldız 2016).

1.4 Grafen Üretim Teknikleri

Fiziksel ve kimyasal yöntemler kullanarak grafen sentezlemek mümkündür. Literatürde kullanılan bu yöntemler Çizelge 1.1’de verilmiştir.

Çizelge 1.1 Grafen sentezlemek için kullanılan yöntemler (Er 2013).

Fiziksel Yöntemler	Kimyasal Yöntemler
<ul style="list-style-type: none">*Mikro mekanik teknik ile HOPG tabakasından tek tabaka izolasyonu*Kimyasal buhar çöktürme yöntemi*SiC bileşiğinin yüksek sıcaklıkta bozunması*Yüksek vakumda tek kristal üzerine epitaksiyel büyütme	<ul style="list-style-type: none">*Organik sentez yoluyla grafen sentezi*Yükseltgenme-indirgenme reaksiyonu ile kimyasal yoldan grafen sentezi

1.4.1 Fiziksel Yöntemlerle Grafen Sentezi

1.4.1.1 Mikro mekanik Teknik ile HOPG Tabakasından Tek Tabaka İzolasyonu

2004 yılında Andre Geim ve Konstatin Novoselov selobant yöntemi ile yüksek düzenlilikte pirolitik grafiti (HOPG) mekanik olarak tekli tabakalarına ayırarak ilk defa grafeni izole etmeyi başarmışlardır. Ancak bu yöntem ile elde edilen grafenlerin, tabaka kalınlığının fazla olması ve düşük yüzey alanına sahip olması nedeni ile çeşitli uygulamalar için uygun olmadığı belirtilmiştir (Novoselov vd. 2004).

1.4.1.2 Kimyasal Buhar Çöktürme Yöntemi

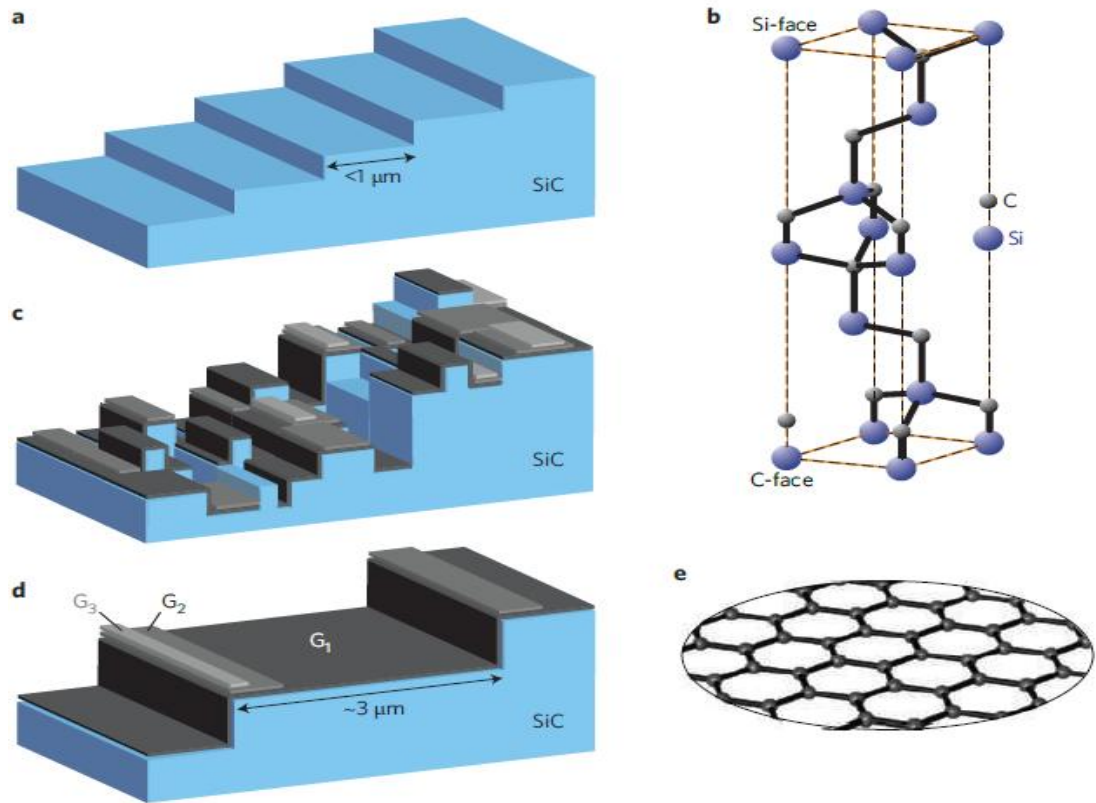
Kimyasal buhar çöktürme (KBC) yöntemi yüksek saflıkta katı malzeme üretmek için sıkça kullanılan yöntemdir. Karbon nanotüplerin seri üretiminde de oldukça fazla kullanılır. Grafen üretimi için ise 1960'larda kullanılmaya başlanmıştır (Hur ve Park 2013; Song ve Cai 2012)

Dairesel bir sistemde, ortam reaktif bir gaz veya gazlar bileşenine maruz bırakılır, ısıtılmış bir alt tabaka üzerine malzemenin çöktürülmesine kimyasal buhar çöktürme denir. Yüzeyde ve yüzeye çok yakın bir mesafelerde reaksiyonlar gerçekleşerek, ince bir film tabakası oluşmasına neden olur. Bu reaksiyonu hızlandırmak için ortam basıncı ve sıcaklığı, taşıyıcı gazlar bileşeni, proses, kullanılan reaktör ve malzeme gibi parametreler etkiler ve değiştirilebilir (Er 2013).

Li vd., Si/SiO₂ substrat üzerine Cu polikristal folyo yüzey oluşturmuş, düşük basınçta metal-hidrojen taşıyıcı gazlarını kullanarak, 1000 °C de geniş bir yüzey alanına sahip grafen sentezlemişlerdir (Li vd. 2009).

1.4.1.3 SiC Bileşiminin Termal Bozunması

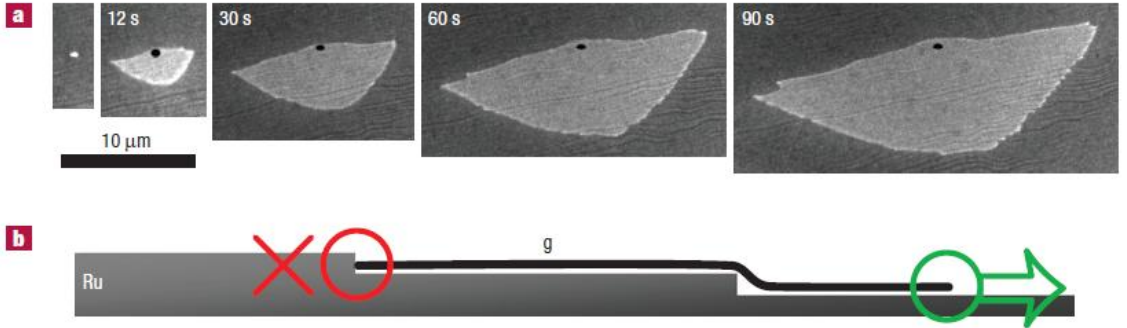
Bu yöntem silisyum karbürün yaklaşık 1300 °C de vakum ortamında tutularak silisyum atomlarının uzaklaşması ve geride kalan karbonca zengin yüzeyin grafitleşmesine dayanır. Süblimleşmenin kontrolü ile tüm SiC wafer üzerinde, tek tabakalı grafenin olduğu ince bir grafen tabakası oluşur. Çok yüksek sıcaklıklarda elde edilen grafenin yapısında kusurlar meydana gelebilmektedir. Farklı olarak vakum atmosferi yerine 900 mbar argon atmosferinde 1650 °C de gerçekleştirildiğinde, çukurlaşmaların olmadığı daha pürüzsüz bir yapıda ve tek tabakalı grafen olduğu gözlemlenmiştir. SiC'ün termal bozunması ve grafitleşmenin şematik gösterimi Şekil 1.5'de verilmiştir (Emtsev vd. 2009; Soldano vd. 2010; Sutter 2009).



Şekil 1.5 a. SiC'ün ilk görünümü, b. 6H-SiC'ün hücre görünümü, c. Vakum ile 1300 °C de gerçekleşen SiC'ün yüzeyi, d. Ar atmosferinde 1650 °C de gerçekleşen SiC yüzeyi, e. Tek tabakalı grafen (Sutter 2009).

1.4.1.4 Yüksek Vakumda Tek Kristal Üzerine Epitaksiyel Büyütme

Tek kristal yapıları sahip Ru(0001), Ir(111), Pt(111), Cu(111) ve Ni(111) gibi metaller üzerinde karbon içerikli gazların ayrıştırılması, yüzeyde karbon çekirdeklenmesi oluşturarak grafen sentezlenmesine neden olur (Coraux vd. 2008; Gamo vd. 1997; Gao, Guest, vd. 2010; Land vd. 1992; Sutter vd. 2008). Cu(111) ve Ni(111) metallerinin örgü yapılarındaki düzen sentez sonucuna doğrudan etki ederek düzgün yapıda grafen sentezlenmesini sağlarken, Pt(111), Ru(0001) ve Ir(111) metallerinin örgü yapılarının daha düzensiz olması nedeniyle dalgalı grafen sentezlenmektedir (Coraux vd. 2008). Grafenin kalitesi, metal yüzeyin örgü yapısı ile grafendeki altıgen karbon yapısı ile uyumunun önemli olduğu gösterir. Şekil 1.6'da yüksek sıcaklıkta ayrışan etilen, asetilen gibi karbon kaynaklı gazların, yüksek vakum altında bozunarak Ru(0001) yüzeyi üzerine çökmesini ve belirli çekirdeklenme noktalarından grafen oluşumunu gösterilmiştir (Sutter vd. 2008).

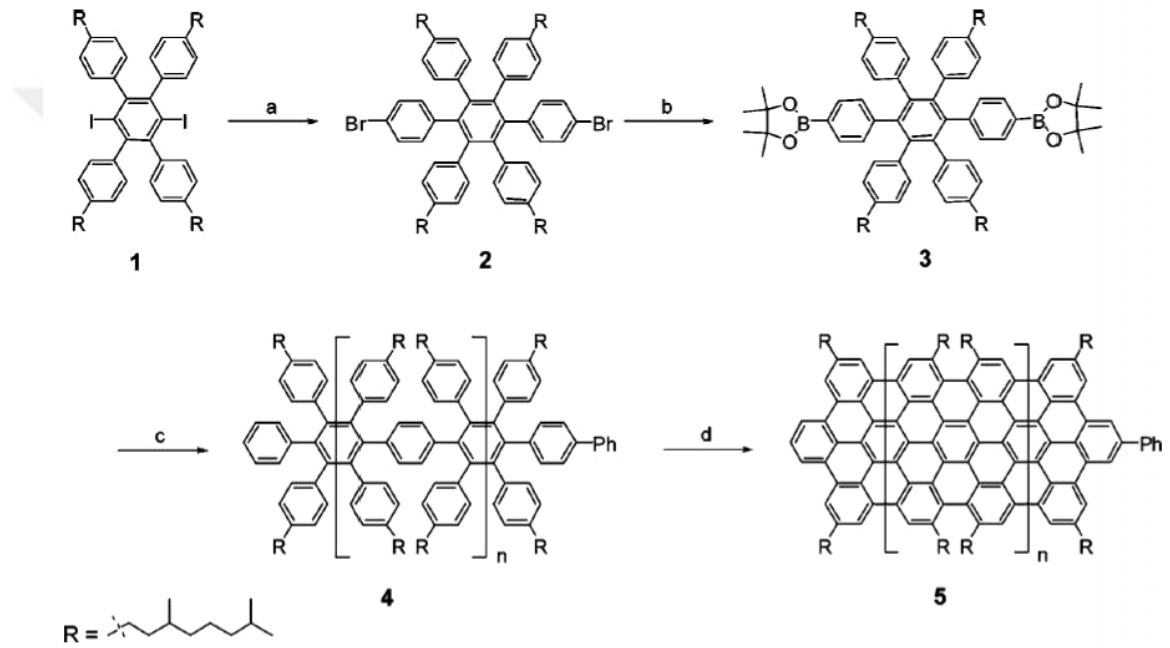


Şekil 1.6 Ru(0001) metali üzerinde grafen filmi oluşumu ve zamanla büyümesi görünümü, a. Ru(0001) metali üzerinde 850°C büyüyen grafenin 12s, 30s, 60s ve 90s'deki düşük enerjili elektron mikroskobu görüntüleri, b. Ru(0001) metali yüzeyinde büyümekte olan grafenin atomik basamaklarla karşılaştığında aşağı yönlü büyüme gerçekleştiği gözlemlenmiştir (Sutter vd. 2008).

1.4.2 Kimyasal Yöntemlerle Grafen Sentezi

1.4.2.1 Organik Sentez Yoluyla Grafen Sentezi

Yang vd., grafenin organik sentezini polimerik bileşikleri bir araya getirerek mümkün olduğunu göstermişlerdir. 1,4-diiyodo-2,3,5,6-tetrafenilbenzen bileşiğinden başlayarak Şekil 1.7’de görülen polimerik grafeni sentezlemişlerdir (Yang vd. 2008).



Şekil 1.7 Yang vd. tarafından sentezlenen grafen nanoşeritler (Yang vd. 2008).

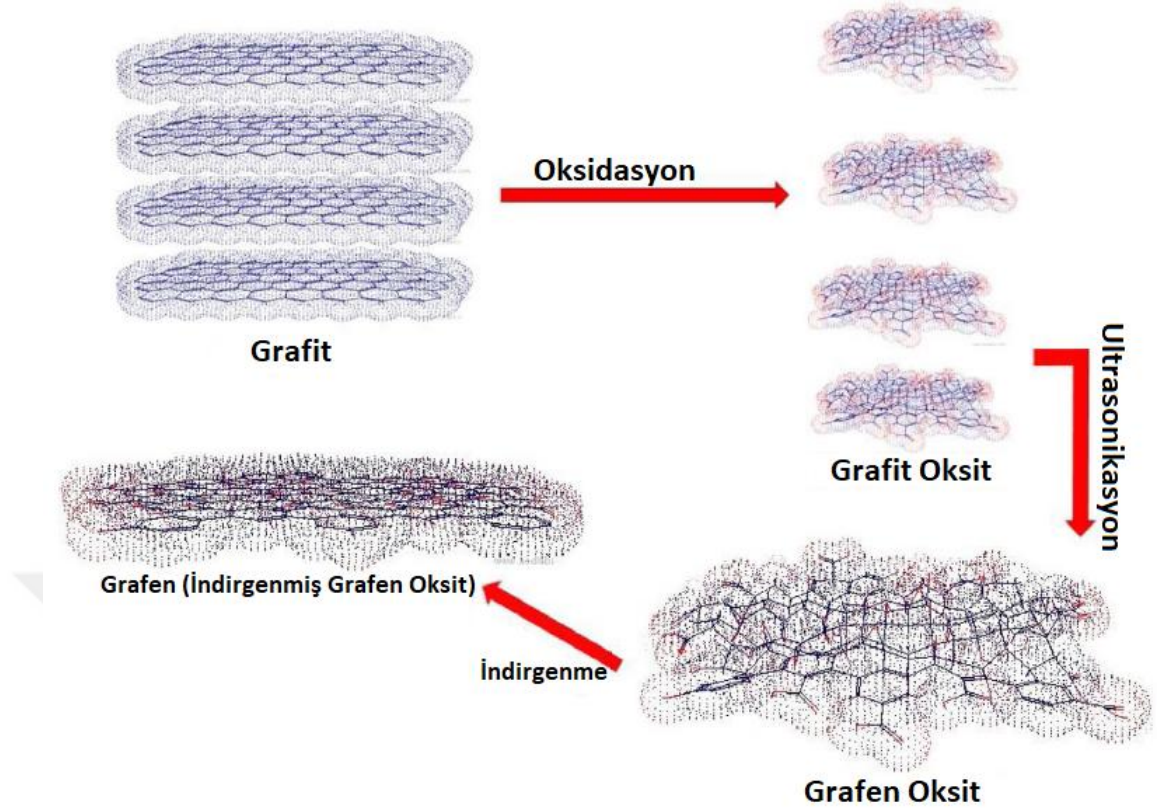
1.4.2.2 Yükseltgenme İndirgenme Reaksiyonu ile Kimyasal Olarak Grafen Sentezi

Grafenin kimyasal olarak sentezlenmesi için öncelikle karbon kaynaklı malzemeden (grafit, kömür, karbon siyahı, aktif karbon vb.) güçlü yükseltgenler yardımıyla grafit oksit hazırlanmaktadır ve daha sonra ultrasonik etki ile tabakalarına ayrılan grafit oksitten grafen oksit ve bununda bir kimyasal indirgeyici yardımı ile indirgenmesi ile grafen sentezlenmektedir. Grafitin oksidasyonu ilk olarak 1859 yılında Brodie B.C. tarafından grafitin nitrik asit ve potasyum nitrat ile yükseltgenmesi yoluyla

gerçekleştirilmiştir (Brodie 1859). Günümüzde tercih edilen Hummers metodu grafitten grafen oksit sentezinde yaygın olarak kullanılmaktadır (Hummers Jr ve Offeman 1958). Bu metot da permanganat ve sülfürik asit oksidant olarak kullanılır. Hummers metodu ile sentezlenen grafen oksit tabakalarında karbon atomlarına bağlı alkol, epoksi, karboksilik asit grupları mevcuttur. Bu metot haricinde Hofmann (Hofmann ve König 1937) ve Staudenmaier (Staudenmaier 1898) metotları ile grafitten grafen oksit sentezlenebilmektedir (Song ve Cai 2012).

Grafen oksit sentezi sonrasında ultrasonik etki ve indirgeyiciler yardımıyla grafen sentezlenir. Grafen sentezinde indirgeyici reaktifler olarak hidrazin ve türevleri (Park vd. 2011), NaBH_4 (Park ve Ruoff 2009), sülfür içeren bileşikler (Chen vd. 2010), metal tuzlar (Zhuo vd. 2013), aminoasit (Gao, Liu, vd. 2010), üre (Wakeland vd. 2010), hidroiyonik asit (Pei vd. 2010), askorbik asit (Dai vd. 2011), okzalik asit (Song vd. 2012), kitosan (Liu vd. 2011), 1-glutation (Pham vd. 2011) gibi pek çok indirgeyici reaktifler kullanılmaktadır. Bunların arasından en çok tercih edilen hidrazin ve NaBH_4 tür. Bu sentezin sonucunda nano ve mikro boyutlarda grafen elde etmek mümkündür. Bu yöntemin dezavantajlarından biri grafenin tabaka kalınlığının kontrol edilememesidir. Tek grafen tabakasının kalınlığı 0,34 nm olarak bilinmektedir. Sentez sonucu elde edilen grafen tabakasının kalınlığı 1 nm 'ye kadar çıkabilmektedir (Tung vd. 2009). Kimyasal yöntem ile grafen sentezi Şekil 1.8'de verilmiştir.

Grafen oksit (GO) sentezi için Hummers metodu seçilmiştir. Bu yöntem biyolojik sistemlerde kullanabilmesi amacıyla daha az kimyasal ve zehirli gaz açığa çıkaran bir metottur.

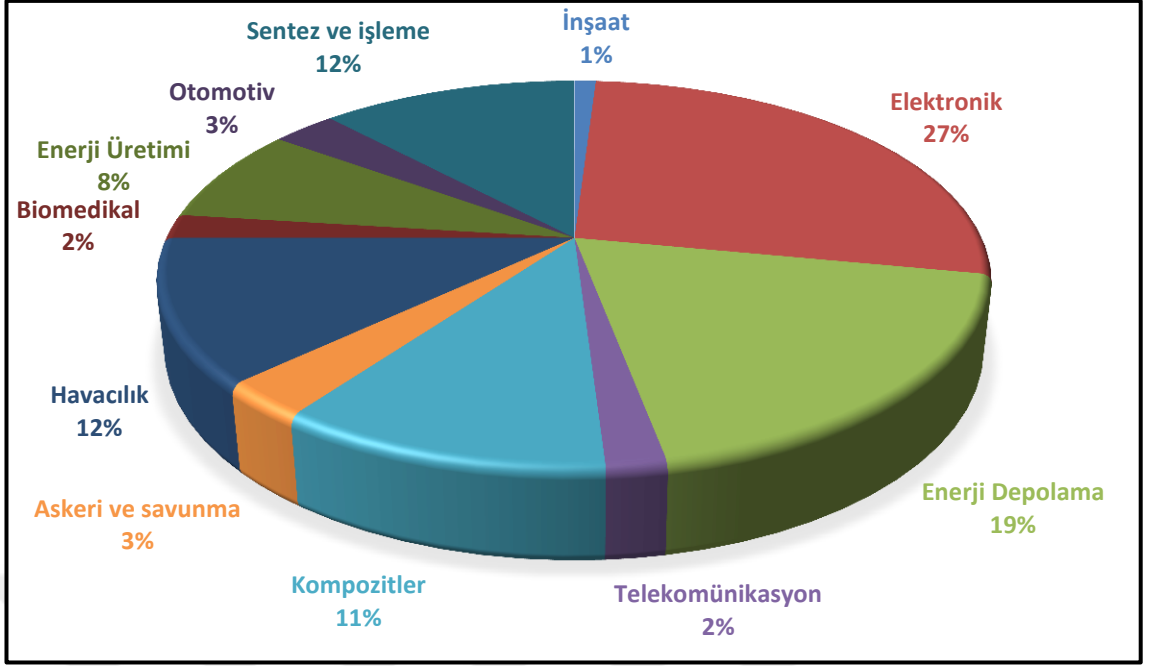


Şekil 1.8 Kimyasal olarak grafen sentezinin şematik görünümü (Samal ve Das 2018).

1.5 Grafenin Uygulama Alanları

2004 yılında Prof Andre Geim ve Prof Kostya Novoselov ürettikleri grafen sayesinde bilime yeni bir çıkır açmışlardır. Bu çalışmalarını grafene olan ilginin artmasına neden olmuş ve akademik yayın sayısı önemli ölçüde artmasını sağlamıştır. Birçok üretim metoduna sahip olan grafen, farklı grafen türleri (tek katmanlı, çok katmanlı, vb.) oluşturmuştur. Her grafen türünün sergilediği özelliğe bağlı olarak farklı uygulamalar içermiştir (Phiri vd. 2017; Randviir vd. 2014).

Grafenin uygulama alanları oldukça çoktur bunun nedeni ise hiçbir malzemede olmayan özelliklere sahip olmasıdır. Bu özellikleri sayesinde birçok endüstriyel uygulamada kullanılmaktadır. Şekil 1.9’da Grafen bazlı malzemelerin endüstriyel uygulama alanları gösterilmiştir.



Şekil 1.9 Grafen bazlı malzemelerin endüstriyel uygulamaları (Dasari vd. 2017).

Grafenin ilk önerilen ve gerçekleşen uygulaması, yüksek iletkenlik özelliğine sahip olması ile ilgilidir. Yüksek hızlı elektronikler, ultra-ince esnek grafen transistörler, veri depolama, LCD akıllı paneller ve OLED ekranlar, süper kapasitörler, güneş hücreleri ve elektrokimyasal sensörler gibi birçok malzemenin yapı taşı olmaya başlamıştır (Phiri vd. 2017).

Türkiye’de ilk defa OLED ekranlar ve grafen malzeme sentezi teknolojilerine yönelik altyapılar ASELSAN ve Sabancı Üniversitesi Nanoteknoloji Araştırma ve Uygulama Merkezinde kurulmuştur. Elmas projesi kapsamında grafen tabanlı OLED ekran prototiplerini yapmayı başarmışlardır. Dünyada bugüne kadarki en yüksek piksel çözünürlüğüne sahip grafen tabanlı ekranlar olarak literatüre geçmiştir (Aselsan 2018).

2. KAYNAK ÖZETLERİ

2.1 Grafitten Grafen Oksit Sentezi

Marcano vd. (2010) grafen oksit (GO) sentezi için geliştirilmiş bir yöntem tarif etmişlerdir. Hummers yöntemi (KMnO_4 , NaNO_3 , H_2SO_4) grafen oksit sentezi için yaygın olarak kullanılan yöntemdir. NaNO_3 kullanılmayarak, KMnO_4 miktarını artırmışlar ve reaksiyonun 9:1'lik bir $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_3\text{PO}_4$ karışımında gerçekleştirilmesi oksidasyon işleminin etkinliğini arttırmıştır. Bu geliştirilmiş yöntem, Hummers'ın metoduna kıyasla daha fazla miktarda hidrofilik oksitlenmiş grafen materyali sağlamıştır. Üstelik bu yöntem tarafından üretilen GO, Hummers'ın yöntemiyle hazırlanandan daha oksite olsa da her ikisi de hidrazinle aynı odada azaltıldığında, bu yeni yöntemden üretilen kimyasal olarak dönüştürülmüş grafen (CCG), elektrik iletkenliğinde eşdeğer olduğunu göstermişlerdir. Hummers yöntemine göre, bu yöntem zehirli gaz üretmiyor ve sıcaklığı kolayca kontrol etmeyi başarmışlardır.

Chen vd. (2015) boyutları 3-20 μm arasında olan grafit tozları, geliştirilmiş bir Hummers metodu ile yüksek verim ($171\pm\%4$) olan tek katmanlı grafen oksite (GO) tamamen dönüştürmüşlerdir. Bu verim, 10–100 μm boyut büyüklüğündeki daha büyük grafit tozlarında çok daha yüksektir ($110\pm\%3$) kanısına varmışlardır. Yüksek verim, basitleştirilmiş arıtma prosedürü göz önüne alındığında ve yüksek kaliteli GO, küçük boyutlarda grafit toz kullanılmasının modifikasyonu, endüstriyel ölçekte GO'nun seri üretimine doğru önemli bir adım atmışlardır.

Tiyek, Dönmez, vd. (2016) modifiye Hummers yöntemi kullanılarak grafitten grafen oksit (G-GO) sentezlemişlerdir. SEM görüntülerinde katmanlı ve çok ince GO yapıları gözlemlenmiştir. SEM/EDX elementel analizde oksijen (O) oranının yaklaşık %23,60 olması oksidasyon işleminin gerçekleştiğini göstermişlerdir. GO yapısının termal kararlılığı TGA ile incelemişler. XRD spektrumlarında 2θ piki, $10,5524^\circ$ de elde edilmişlerdir. FT-IR spektroskopisi ve Raman spektroskopisi ile GO'ya ait karakteristik pikler görüntülenmiştir. Elde edilen sonuçlardan modifiye Hummers yöntemi ile grafit tozundan başarılı bir şekilde GO sentezlendiğini kanıtlamışlardır.

Muzyka vd. (2017) farklı oksijen içerikleri ve özellikleri olan grafit oksitler, Hummers yönteminin farklı yöntem kullanarak sodyum dikromat ile oksidasyon yoluyla ticari bir grafitten hazırlanmışlardır. Grafit oksitlerin kimyasal ve yapısal özellikleri elementel analizi, Fourier dönüşümlü kızılötesi spektroskopisi, X-ışını foto elektron spektroskopisi, taramalı elektron mikroskopu (SEM) ve X-ışını difraksiyonu (XRD) ile incelenmişlerdir. Dikromat oksidasyonu, esas olarak hidroksil ve epoksi grupları formunda düşük oksijen tespiti sağlamışlardır. Hummers yöntemi kullanılarak çok daha verimli bir oksidasyon sağlanmışlardır. NaNO_3 kullanımı ve 2 saatlik bir reaksiyon süresi, grafit oksit içindeki en yüksek oksijen içeriğine, ağırlıkça %40'ın üzerinde olmasına neden olmuş ve oksijenin tek ve çift karbona bağlandığı bulunmuştur. SEM ve XRD gözlemleri, bu koşullar altında grafit katmanlarının yüksek bir aralık gösterdiğini göstermişlerdir. Bu sonuçlar, aynı oksitleyici yöntem kullanılsa bile, grafit oksitlerin kimyasal yapısının değişen reaksiyon koşullarıyla şekillendirilebileceğini kanıtlamışlardır.

Zaaba vd. (2017) çalışmalarının amacı, farklı çözücülerin grafen oksitin yapısı ve elektriksel özellikleri üzerindeki etkisini incelemişlerdir. GO, geleneksel Hummers yönteminden farklı olarak modifiye edilmiş Hummers metodu kullanılarak grafit pullarından elde edilmiştir. Bu yöntemde, deney sodyum nitrat (NaNO_3) ve buz banyosu olmadan, oda sıcaklığında yapılmıştır. Hazırlanan GO tozları daha sonra aseton ve etanol gibi farklı çözücüler içine çözülmüştür. Daha sonra aseton-GO (A-GO) ve etanol-GO (E-GO) üretmek için silikon wafer ve IDE üzerine döndürülerek kaplamışlardır. SEM sonucu birkaç kare mikron GO elde edildiğini göstermişlerdir. Ek olarak, büyük aglomeralar ve E-GO numunesindeki pullar arasındaki temas nedeniyle, akım-voltaj paterni, E-GO'nun A-GO'dan daha yüksek akım akışı ürettiğini göstermişlerdir. FT-IR kullanılarak karakterize edilen GO, her iki numunenin de hidroksil, epoksi, karboksil ve karbonil gibi çeşitli fonksiyonel gruplar içerdiğini göstermişlerdir. Bunun yanı sıra, A-GO'nun daha düşük X-ışını kırınımı nedeniyle, XRD sonucu A-GO numunesinin katlar arası aralığının E-GO numunesinden biraz daha yüksek olduğunu göstermişlerdir.

Ilkevich vd. (2018) grafen oksit, modifiye Hummers yöntemine göre genişletilmiş grafitten elde etmişlerdir. Reaksiyon süresi, genişletilmiş grafitin oksidasyon işlemine

uygulanmasıyla önemli ölçüde azaltılmıştır (24 ila 8 saat). Elde edilen örneklerdeki katlar arası mesafe 0,70-0,74 nm 'ye eşit olduğunu kanıtlamışlardır. Malzemenin yapısal özellikleri X ışını kırınımı, termogravimetrik analiz, taramalı elektron mikroskobu, transmisyon elektron mikroskobu, XPS spektroskopisi ve NMR spektroskopisi ile incelemişlerdir.

Korucu vd. (2018) bu çalışmalarında, Hummers yöntemine dayalı grafen oksit sentezi sürecini analiz etmek ve optimize etmek için TOPSIS tabanlı Taguchi optimizasyon yöntemi uygulamışlardır. Bu amaçla, Hummers metodu ile elde edilen grafen oksit (GO) sentezinde oksidasyon, ana cevaplar ID/IG, I2D ve I (D + D'D+D') grafen kusurunu temsil eden değerler, yüzey morfolojisini temsil eden yüzey pürüzlülüğü, kristalit büyüklüğü veya indirgeme derecesini temsil eden katmanların sayısı ve karbon-oksijen oranı hakkında bilgi vermişlerdir. Sonuçlar, cevaplarda en yüksek varyasyona neden olan santrifüj adımının GO sentez işleminin en önemli faktörü olarak tespit edildiğini göstermişlerdir. Tahmin ve optimal koşullar arasındaki GO kalite özelliklerinde iyileşme, ID/IG değerleri, yüzey pürüzlülüğü, kristalit boyutu ve karbon-oksijen oranı için sırasıyla %7,05; %40,10; %5,38 ve %15,19 olarak hesaplamışlardır. Tahmini ve optimal koşullar arasındaki kalite özelliğindeki gelişme, rGO için şu şekilde hesaplanmışlardır: ID/G değerleri: %1,51; yüzey pürüzlülüğü: %57,49; kristalit boyutu: %48,05 ve karbon/oksijen oranı: %101,82 olarak bulmuşlardır.

Yoo ve Park (2019) grafit oksit (GO) sentezlemek için grafitten oksidasyon yoluyla birkaç yöntem arasında, Hummers yöntemi en yaygın şekilde kullanıldığını belirtmişlerdir. Hummers yöntemi yaklaşık 60 yıl önce ilk kez tanıtıldığından beri birçok araştırma, her bir reaktifin GO'nun nihai özellikleri üzerindeki etkisini ortaya çıkarmaya çalıştıklarından bahsetmişlerdir. Modifiye olanlar dahil olmak üzere tüm Hummers yöntemlerinde, sülfürik asit ve potasyum permanganat, grafit oksitleyici ve eksfoliyasyon edici oksitlenmiş grafiti oksitlemek için kullanılır ve artık mangan iyonlarını çıkarmak için su ve hidrojen peroksit kullanılır olduğunu söylemişlerdir. Bununla birlikte, hidrojen peroksitin sentez sırasında bazen göz ardı edilmiştir, çünkü hidrojen peroksitin permanganat ve mangan dioksit gibi kalıntı mangan iyonlarını

basitçe azalttığı anlaşılmışlardır. Bu nedenle, Hummers yönteminde kullanılan hidrojen peroksit miktarı değişmektedir. Son aşamada eklenen hidrojen peroksit miktarının GO'nun nihai özelliklerini güçlü bir şekilde etkilediğini göstermişlerdir. GO'nun kimyasal olarak parçalanmasının hafif bir indirgeme ile ortaya çıktığını ortaya koyan deneysel kanıtlar, hidrojen peroksit ilavesine eşlik ediyor olduğunu belirtmişlerdir. Hummers yönteminde hidrojen peroksit ile olası bozunma mekanizması çalışmalarının son bölümünde önermişlerdir.

Yadav ve Lochab (2019) 2-D nanoyapılar arasında, grafen oksit, çeşitli uygulamalarda grafenin kullanımı için en çekici öncü nanomalzeme olarak kabul edilir olduğundan bahsetmişlerdir. Daha iyi ve daha kolay sentetik protokollerin geliştirilmesini gerektiren seri üretimi ile ilgili sorunlar var olduğunu belirtmişlerdir. Ayrıca, oksidasyon derecesi ve fonksiyonelliklerin doğası üzerinde daha iyi kontrole sahip kimyasal bir yaklaşım, yapısal modifikasyonlarını ve bunlara karşılık gelen uygulamaları tasarlamak için aynı anda çok önemli olduğunu vurgulamışlardır. Hummers'ın, Orta ve Geliştirilmiş yöntemiyle üç tür GO hazırlanır. GO sentezinde birincil bir reaksiyon adımı, grafit interkalasyon bileşiklerinin (GIC'lar) oluşturulmasıdır. Oksidasyon ve araya getirme verimi, oksidatif olmayan Bronsted asit H_3PO_4/H_2SO_4 ve H_2SO_4 verimi incelenmişler ve özellikler klasik araya getirme maddesi olan $H_2SO_4/NaNO_3$ ile karşılaştırmışlardır. Çeşitli analitik tekniklerle desteklendiği gibi, oksidatif kusurların derecesi ve doğası, pul boyutu ve sulu dispersiyonun stabilitesi bakımından bir modülasyon gözlemlenmiştir. Reaksiyon koşullarına bağlı olarak, sentezlenen GO'lar farklı oksidatif işlevselliklerin baskınlığını ortaya çıkarmış ve böylece spesifik uygulamalar için kullanımlarını yönlendirmede yardımcı olan ilişkili fiziksel özelliklere yansımıştır.

2.2 Kömürden Grafen Oksit Sentezi

Zhou vd. (2012) bu çalışmalarında, katalitik grafitleşme, kimyasal oksidasyon ve dielektrik bariyer deşarjı (DBD) plazma destekli deoksijenasyon yoluyla kimyasal olarak türetilmiş grafen ve grafen-asil metal kompozitlerin başlangıç maddesi olarak kömürle sentezini sunmuşlardır. Kömür kaynaklı karbonun grafitleşme derecesinin,

kimyasal dökülmeden elde edilen grafenin özelliklerini önemli ölçüde etkilediği ve yüksek kaliteli grafen tabakaların (GS) hazırlanması için yüksek miktarda kömür elde edilen karbonun kristalleşmesinin gerekli olduğu bulunmuşlardır. Bu çalışmalarında, grafen ve bileşiklerinin, kömürden enerji depolanması ve çevre korumada umut verici potansiyeli olan fabrikasyonu için alternatif bir yaklaşım olduğunu göstermişlerdir.

Ye vd. (2013) ayarlanabilir kömür grafen kuantum noktalarını çeşitli kömür türlerinden sentezlemek için kolay bir yaklaşım sunmuşlar ve kömür yapısının kuantum noktaları üretmek için saf sp^2 -karbon allotroplarına göre bir avantaja sahip olduğunu ortaya koymuşlardır. Kömür yapısı içindeki kristalimsi karbonun, saf sp^2 -karbon yapıları kullanılmadığı zaman oksidatif olarak yer değiştirmesi daha kolay olmuştur, bu da kenarlarda şekilsiz karbon ekleri olan nanometre boyutlu grafen kuantum noktalarına neden olmuştur. Kömürden %20'ye kadar izole edilmiş verimle üretilen sentezlenmiş grafen kuantum noktaları, sulu bileşiklerde çözünebilir ve flüoresan olup, biyolojik görüntüleme, biyotıp, fotovoltaik ve optoelektronik gibi alanlarda, yapısal kompozitler için ucuz katkıları olmasının yanı sıra uygulamalar için umut verici olduğunu kanıtlamışlardır.

Dong vd. (2014) tek katmanlı grafen kuantum noktaları (S-GQDs) hazırlamak için farklı derecelerde altı kömür örneği kullanılmışlardır. Kimyasal oksidasyondan ve bir dizi santrifüjleme ayrılmasından sonra, her kömür, KömürA ve KömürB olmak üzere iki fraksiyonda işleminden geçirmişlerdir. TEM, AFM, XRD, Raman ve FT-IR'ın karakterizasyon sonuçlarına göre, KömürA'nın, ortalama olarak yaklaşık 0.5 nm yüksekliğe ve yaklaşık 10 nm'lik ortalama bir düzlem boyutuna sahip olan S-GQD'lerden oluştuğu ortaya çıkmıştır. Elde edilen S-GQD'ler uyarma-bağımlı flüoresans ve mükemmel elektrokimyasal göstermiştir. KömürB'nin, aglomere edilmiş GQD'ler, grafen oksit, karbon kuantum noktaları ve aglomere edilmiş karbon nanokristallerini içeren diğer bazı karbon bazlı nanomalzemeler (CNM'ler) olduğu bulunmuştur. Genel olarak, düşük dereceli kömürler S-GQD'lerin hazırlanması için daha uygun olabilir olduğunu söylemişlerdir. S-GQD'lerin incelenen altı kömürden elde edilen üretim verimi, kömür derecesi kademeli olarak arttığında %56,30'dan %14,66'ya düşmüştür. Buna karşılık, yüksek dereceli kömürlerin yüksek kömür verimi vardı ve bu

CNM'lerin deneyimizde birbirlerinden ayrılmaları zor olsada, KömürB'de bulunan diğer CNM'lerin hazırlanması için daha uygun olabilir olduğu kanısına varmışlardır.

Powell ve Beall (2015) bu araştırmalarının büyük bir kısmında, başlangıç materyali olarak grafiti kullanmışlardır ve grafen oksit üretmesi için kuvvetle oksitlemişlerdir. Bu derlemede, daha az pahalı bir karbon kaynağı kullanan ve daha az tehlikeli ve çevreye zararlı kimyasal maddeler gerektiren grafen oksit üretmenin alternatif bir yolu gözden geçirilmişlerdir. Karbon kaynağı, birçok linyit yatağında oluşan düşük dereceli bir linyit kömürü olan leonardittir. Hümik asit (HA), toprakta yaygın olarak bulunan bazı ekstrakte edilebilir organik maddedir. Leonarditten ekstrakte edilen HA, yüksek oranda oksitlenir ve grafen benzeri çekirdeğin kenarları çevresinde bir dizi oksijenli grup içerir. Bu malzeme, grafitin asit oksidasyonu ile üretilen grafen oksite (GO) çok benzerdir. Bu HA özütü GO ve sonuçta grafen üretmek için grafit yerine başlangıç materyali olarak kullanmışlardır. Bu çalışmalarında, GO ile karşılaştırıldığında bu malzemenin karakterizasyonunu, ekstraktın birkaç farklı kimyasal ve termal yolla azaltılması ve işlevselleştirilmesi ve HA'nın grafen'e indirgenmesi ve azaltılmış HA'nın çeşitli uygulamaları ile ilgilenmişlerdir. Bu yaklaşımları potansiyel olarak büyük ölçekli üretim için azaltılmış işlevselleştirilmiş grafen nano levhalar için düşük maliyetli bir kaynak sağladığı belirtmişlerdir.

Vijapur vd. (2017) bakır substratlarda kimyasal buhar biriktirme yoluyla sentezlenen kömür türevi grafen filmlerin büyüme mekanizması, Raman spektroskopisi, X-ışını foto elektron spektroskopisi, seçilen alan elektron difraksiyonu, optik mikroskop ve gaz kromatografisi kullanılarak incelemiştir. Kömür türevi grafen filmlerin sentezi, tavllanmış bakırın ardından hidrojen ortamında kömürün pirolizinin takip ettiği iki aşamalı bir işlem olduğundan bahsetmişlerdir. Büyüme mekanizması, sentezin ilk birkaç dakikasında bir karbon filmi üretmek için bakır katalizli bir reaksiyonu, ardından grafen filmler oluşturmak üzere bir araya gelen grafen alanları oluşturmak için alttaki karbon filmin hidrojen katalizli grafitlenmesini içermiş olduğunu kanıtlamışlardır.

Fernández-García vd. (2017b) bu çalışmalarında, primer kinolonda çözünmeyen partiküllerde (QI'ler) doğal bir içeriğe sahip bağlayıcı dereceli bir endüstriyel katranın ve farklı hazırlama prosedürleri yoluyla ham grafen materyallerinin ham kaynakları

olarak bir çökeltme işlemi ile elde edilen karşılık gelen serbest QI katranının kullanımını incelemişlerdir. Grafen oksitler (GO), bağlayıcı katran bazlı grafit ve sonraki sonikasyonun oksidasyonu yoluyla hazırlanmışlardır. QI'lerin varlığı hem oksidasyon verimini hem de pul pul dökülme adımlarının azalmasına katkıda bulunmuştur. Bu, QI partiküllerinin oksite olmuş grafit içindeki oksijen fonksiyonel gruplarının dağılımını değiştiren, pul pul dökülmesini engelleyen oksidasyona karşı daha fazla reaktivitesinden kaynaklanmıştır. Ayrıca, ana grafitin QI'siz daha yüksek kristallenmesinin bir sonucu olarak, bu durumda daha büyük GO tabakaları elde etmişlerdir. Öte yandan, ana grafitte QI'lerin varlığı, N-metil-pirolidinondaki (NMP) çözücü yaprak dökümü davranışını kolaylaştırır, az miktarda katman grafeni (FLG) verir, ancak grafen gevreğinin boyutunun düşmesine katkıda bulunmuştur.

Fernández-García vd. (2017a) metalürji endüstrisinden elde edilen başlıca sıvı yan ürünler (emprenye, bağlayıcı dereceli katranlar ve antrasen yağlar), grafitleşme, oksidasyon ve sonradan dökülme yoluyla grafen malzemelerin öncülleri olarak değerlendirmişlerdir. Emprenye dereceli katran ve antrasen yağları, ana grafitlerinin kristalin boyutuna bağlı olarak yaprak ebatları ve pul pul dökülme verimi ile grafen oksitleri başarıyla üretilebileceklerinden bahsetmişlerdir. Her ne kadar bağlayıcı dereceli katran ayrıca grafen maddelerine dönüştürülebilmesine rağmen, bileşiminde bulunan kinolin çözünmeyen tanecikler, grafitin oksidasyon mekanizmasını ve bu yan üründen hazırlanan grafen oksitin verimini azaltarak, grafit oksitin dökülmesini değiştirebileceğini belirtmişlerdir. Bu sonuçlar, kömür sıvısı tortularının grafen gibi katma değeri yüksek bir ürüne dönüştürülmesinin değerlendirilmesinde yararlı bir rehber olduğunu söylemişlerdir.

Purwandari vd. (2018) %40,70-49,67 sabit karbon içeren Sawahlunto-Sijunjung kömürü, yüksek uçucu A bitümlü kömür olarak sınıflandırmışlardır. Sawahlunto kömürünün doğada uygun fiyatı ve bolluğu nedeniyle grafen hazırlamak için hammadde olarak alternatif bir grafit kaynağı olduğu ileri sürülmüştür. Grafen öncüsü olarak grafen oksit, modifiye Hummers metodu ile Sawahlunto kömüründen sentezlenmişlerdir. Üretilen grafen oksitin karakterizasyonu, X-Işını Kırınımı analizi, Fourier dönüşümlü kızılötesi spektroskopisi (FT-IR), UV-Görünür spektrofotometresi

ve Sawahlunto-Sijunjung kömürden izole edilen grafen oksitin başarılı bir oksidasyon işlemini doğrulayan SEM-EDX gibi çeşitli analizlerle kanıtlamışlardır. Sawahlunto kömürü, grafit oksit üretmek için hammadde olarak grafit için alternatif bir kaynak olabilir kanısına varmışlardır.

Hoang vd. (2018) konvansiyonel sentez tekniklerinin çoğu, yüksek üretim maliyetine yol açan ve dolayısıyla bunların ticarileştirmesini sınırlayan hidro-karbonlar ve grafit gibi pahalı karbon hammaddelerini kullanır olduğunu belirtmişlerdir. Bol ve ucuz bir doğal kaynak olan kömürün, karbon nanotüpleri, nanolifler/parçacıklar/küreler, grafen, grafen oksit, grafen kuantum noktaları ve karbon noktaları gibi etkili bir şekilde üretilen karbon nanomalzemelerine etkili ve yeşil bir alternatif olarak kabul etmişlerdir. Çalışmalarında, çeşitli kömür bazlı nanomalzemelerin çeşitli kömür türlerinden (linyit, bitümlü, diğerleri arasında antrasit, diğerleri arasında antrasit) üretilmesindeki ham maddeleri içermektedir ve enerji, çevre ve biyomedikal sektörlerinde potansiyel uygulamalarını ortaya koymuşlardır.

2.3 Dispersiyon

Konios vd. (2014) yaptıkları çalışmada GO ve rGO dispersiyonları aşağıdaki organik çözücüler içerisinde test etmişlerdir. Deiyonize su, aseton, metanol, etanol, 2-propanol, etilen glikol, tetrahidrofuran (THF), N,N-dimetilformamid (DMF), N-metil-2-kloroform, toluen, klorobenzen (CB), o-diklorobenzen (o-DCB), 1-kloronaftalen (CN), asetilaseton, dietil eter. Dispersiyonları bir ultrason banyosu içerisinde (Elmasonic S30H) 1 saat boyunca sonike etmişler ve daha sonra büyük parçacıklara sahip topaklaşmış ürünleri çıkarmak için 500 rpm'de 90 dakika santrifüj etmişlerdir (Alegra X-22). Çalışmalarında her bir grafen oksit örneklerinin deiyonize su, etilen glikol ve N-metil-2-pirolidon (NMP) ile dengeli bir dağılım oluşturduğunu tek bir deney ile göstermişlerdir.

Taha-Tijerina vd. (2015) polar deiyonize su, etilen glikol, etanol ve apolar mineral yağı ile bir dispersiyon hazırlanmışlardır. Grafen oksit numunelerinin oluşturulan

dispersiyonlarının 1 dakika ve 1 günlük kararlılık analizlerini yapmışlardır. Sabit katı sıvı oranı ile (0,2 wt % GO ve 99,8 wt % of sıvı faz ile) hazırlanan bu dispersiyonların zeta potansiyeli, SEM (Taramalı Elektron Mikroskobu) ve TEM (Geçirimli Elektron Mikroskobu) imajları ile ortalama parçacık boyutu ve standart sapmasını analiz etmişlerdir. Yaptıkları çalışmada her bir çözücü için bu sonuçları tek bir deney ile elde etmişlerdir.

Song vd. (2016) bu çalışmalarında, çeşitli organik çözücülerde grafen oksit nanoribbonların (GONRs) ve kimyasal olarak indirgenmiş GONRs (CR-GONRs) dağılım stabilitesi araştırmışlardır. GONRs homojen koloidal süspansiyonları, su, N, N-dimetilformamid (DMF) ve N-metil-2-pirolidon (NMP) gibi hidrofilik çözücülerde elde etmişlerdir. Kimyasal indirgemenin ardından, CR-GONRs amfilik dispersiyon davranışı, su, metanol, etanol, DMF, NMP, aseton, stiren ve ksilen dahil olmak üzere çok çeşitli çözücüler üzerinde gözlemlendi. Buna karşılık, CR-GONRs dispersiyon stabilitesi, tetrahidrofur, metil metakrilat ve kloroform gibi belirsizce hidrofilik veya hidrofobik çözücüler açısından zayıf olduğu kanısına varmışlardır.

Del Giudice ve Shen (2017) grafen oksit distile su ile oluşturulan dispersiyonlarının reolojik karakterizasyonu incelemişlerdir. Çalışmada reolojik karakterizasyonu genellikle osilasyonlu doğrusal kayma akışı, sabit kayma akışı ve geçici kesme akışındaki ölçümlerle yerine getirilmiştir. Bu incelemeyi, grafen oksit reolojisini tanımlamak için yaygın olarak benimsenen sıraya göre ve akış türlerine dayalı bölümlere ayırarak gerçekleştirmişlerdir. Çalışmada reolojik analizler için herhangi bir istatistikî yaklaşım kullanılmamıştır.

Chen vd. (2017) grafen oksit hazırlama yöntemlerinin (Hummers, iyileştirilmiş Hummers yöntemi, modifiye Hummers Yöntemi) grafen levhalarının dispersitesi üzerindeki etkisini araştırmaya yönelik bir çalışma yapmışlardır. Yaptıkları çalışmada, grafen tabakaları hazırlamak için Hummers yöntemi, modifiye Hummers yöntemi ve gelişmiş yöntem olmak üzere üç kimyasal eksfoliyasyon yöntemi kullanmışlardır. Hazırlama yöntemlerinin yapı, organik çözücülerde dispersiyon kararlılığı ve grafen levhaların elektrokimyasal özellikleri üzerindeki etkisi araştırılmıştır. Hazırlanan grafen tabakalarının yapısını analiz etmek için Fourier dönüşümü kızıl ötesi mikroskobu,

Raman spektrumları, transmisyon elektron mikroskobu ve UV-VIS spektrofotometresi kullanmışlardır. Sonuçlar, geliştirilmiş yöntemle hazırlanan grafenin organik çözücülerde, tamamen eksfoliyasyon ve düzenli yapıya atfedilen ek bir stabilizatör veya modifikatör olmaksızın mükemmel dispersiyon ve stabilite sergilediğini göstermiştir. Ayrıca, elektrokimyasal empedans spektroskopisi ölçümleri, geliştirilmiş yöntemle hazırlanan grafenin diğer iki yöntemle hazırlanan grafene göre üstün elektrokimyasal özellikleri sergilediğini göstermiştir. Bu çalışma ürünü oluşturan faktörlerin farklı ürün özellikleri üzerinde etkili olduğunu göstermiştir. Ancak bu çalışmada deneyler sistematik yöntemler ile analiz yapılmamış dolayısıyla etki analizleri sadece birkaç deney ile ortaya konmuştur.

Ekanayaka vd. (2017) deiyonize su ve organik çözücüler ikili karışımlarında grafen oksit dispersiyonlarından yapısal renk yansımaları elde etmişlerdir ve bu dispersiyonları, üç organik çözücü kullanılarak araştırmışlardır (1,4-dioksan, N-metil-2-pirolidon (NMP) ve dimetilformamit (DMF)). Sulu grafen oksit dispersiyonuna organik çözücüler eklemenin, yansıma spektrumunun zirve dalga boyunu ve yansıma renginin saflığını değiştirdiği belirlemişlerdir. Özellikle pik dalga boyunun grafen oksit konsantrasyonuna bağımlılığı, ikili organik çözücülerde saf suya kıyasla daha duyarlı olarak tespit edilmiştir. Yapısal renk yansımalarının grafen oksit dispersiyonlarının elektriksel olarak değiştirilmesi de etkili olduğu gösterilmiştir. Çalışmalarında farklı katı sıvı oranlarındaki grafen oksit dispersiyonları analizleri için herhangi bir istatistikî yaklaşım kullanılmamıştır.

Şimşek vd. (2018) grafen oksit dispersiyonlarının stabilitesi, ilaç hazırlama, basılı elektronik, 3D yazıcılar ve iletken mürekkeplerin hazırlanmasında önemli bir konudur. İstikrarı geliştirmek için; Ana stabilite olarak, partikül büyüklüğünün ortalama ve standart sapması, polidispersite indeksi, zeta potansiyeli ve grafen oksit dispersiyonu iletkenliği seçilmişlerdir. GO kalite özellikleri tahmin edilen ortalama ve standart sapma için ortalama ve standart sapma, polidispersite indeksi, zeta potansiyeli ve iletkenlik sırasıyla %264; %18750; %583,3; %5 ve %50 olarak hesaplamışlardır. GO kalite özellikleri tahmin edilen ortalama ve standart sapma için ortalama ve standart sapma, polidispersite indeksi, zeta potansiyeli ve iletkenlik sırasıyla %42,7; %79,7; %-5,0;

%9,9 ve %-86,7 olarak hesaplamışlardır. Sonuç olarak bu çalışmalarında TOPSIS tabanlı Taguchi optimizasyonunun, grafen oksit dispersiyon stabilitesini iyileştirmek için etkili olduğunu göstermişlerdir.

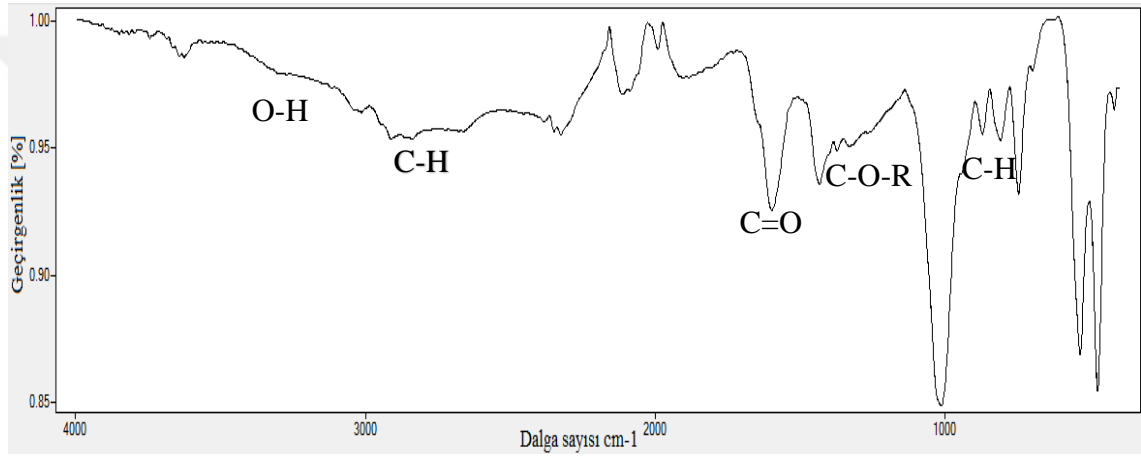
Mungse vd. (2019) alkilenmiş grafen oksit (GO)/indirgenmiş grafen oksit (rGO), oktadesiltriklorosilan (OTCS) ve oktadesiltrietoksosilan (OTES) ile kovalent etkileşim ile hazırlanır. GO/rGO'daki değişken oksijen fonksiyonları ve farklı ayrılan gruplara sahip olan oktadesilsilanların hidroliz hızı, oktadesil zincirlerinin GO ve rGO üzerindeki aşılama yoğunluğunu yönettiği bulmuşlardır. FT-IR, XPS ve TGA sonuçları GO-OTCS'de daha yüksek oktadesil zincirlerinin aşılmasını ortaya çıkarırken, rGO-OTES minimum aşılama göstermişlerdir. Van der Waals, alkilenmiş GO/rGO'nun oktadesil zinciri ve poliollerin oktadesil zincirleri arasındaki etkileşimi, alkilenmiş GO/rGO'yu poliollerin yağ baz yağları içinde dağılılabilebilir kılar. Dispersiyon stabilitesi toplu olarak oktadesil zincirlerinin aşılama yoğunluğu ve GO/rGO'da oksijen fonksiyonelliklerinin varlığı ile tahrik edilir. Sürtünme katsayısı ve aşınma skar çapı açısından tribolojik özellikler, alkilenmiş GO/rGO yapısı ve poliollerin madeni yağ bazında dağılım stabiliteyi ile iyi bir korelasyon ortaya koymuştur. Aşınmış yüzeyin Raman analizi, sürtünmeyi azaltan ve tribo-arayüzleri aşınmaya karşı koruyan, grafen bazlı tribo-ince bir filmin kesilmiş indüklenmiş birikimini ortaya koymuşlardır.

McCoy vd. (2019) grafen oksit, grafenlerin suda dağılılabilen muadili olarak son on yılda öne çıkan iki boyutlu bir karbon nanomalzemesidir. Bu temel özellik, çeşitli yüzey kimyasından ve olağanüstü yüzey alanından yararlanan su bazlı hibrit materyallerin, kaplamaların, membranların ve adsorbanların oluşumunda muazzam bir potansiyel özellik sunar. Bununla birlikte, grafen oksitin temel koloidal özellikleri, malzemenin amfifilik doğası ve ara yüzlerdeki adsorpsiyonun onu yüzey aktif madde veya partikül benzeri bir yapıya dönüştürdüğü konusunda çelişkili raporlar ile tam olarak anlaşılabilmiştir. Bu çalışmalarında, grafen oksitin kütle ve ara yüzey koloidal özelliklerini anlama konusundaki son gelişmeler kimyası ve sistem termodinamiği bağlamında incelenerek, sulu davranışının en iyi şekilde parçacık benzeri olarak tanımlanıp tanımlanmadığına dair temel bir fikir vermişlerdir.

3. MATERYAL VE YÖNTEM

3.1 Materyal

Kömürden grafen oksit hazırlanması için Türkiye Taş Kömürü Kurumundan (TTK) temin edilen kömür kullanılmıştır. Kömüre ait FT-IR analizi sonucu Şekil 3.1’de verilmiştir. TTK Çatalağzı işletmeden temin edilen kömüre ait fiziksel ve kimyasal veriler Çizelge 3.1’de paylaşılmıştır (Türkiye Taşkömürü Kurumu 2019).



Şekil 3.1 Kömürün FT-IR spektrum analizi

Kömür örneğinde $3700-3500\text{ cm}^{-1}$ dalga boyu aralığında gözlemlenen adsorpsiyon bandı, yoğun hidrojen bağları içeren hidroksil bileşiklerinden kaynaklanmaktadır. $2985-2650\text{ cm}^{-1}$ dalga boyu aralığında gözlemlenen bant simetrik ve asimetrik C-H bağlarını temsil etmektedir ve yapıdaki metil ve metilen gibi alkil gruplarının varlığını göstermektedir. $1600-1700\text{ cm}^{-1}$ dalga boyu aralığında gözlemlenen C=O bağlarını temsil eden ve yapıdaki karboksil gruplarını içeren adsorpsiyon bandı görülmektedir. $1000-1800\text{ cm}^{-1}$ dalga boyu aralığında gözlemlenen ve C=O ve C-O-R bağlarını temsil eden pikler mevcuttur. Genel olarak literatürde bulunan kömür analizleri ile karşılaştırıldığında belirgin pikler mevcuttur (Gülen vd. 2012).

Çizelge 3.1 Kömüre ait fiziksel ve kimyasal veriler (Türkiye Taşkömürü Kurumu 2019)

TTK Çatalağzı Kömürü (18-100 mm)			
Rutubet	(orj.k.)	%	4±1
Kül	(orj.k.)	%	11±2
Uçucu Madde	(orj.k.)	%	28±1
Sabit Karbon	(orj.k.)	%	57±2
Üst Isı	(orj.k.)	Kcal/kg	7105±150
Alt Isı	(orj.k.)	Kcal/kg	6855±150
Karbon	(k.k.)	C) %	74-77
Hidrojen	(k.k.)	H) %	3,8-5
Toplam Kükürt	(k.k.)	S) %	max.0,8
Azot	(k.k.)	N) %	0,8-1,1
Oksijen	(k.k.)	O) %	5-6,5
Sınıf			Bitümlü
Grup			m vb
Kısaltmalar (orj.k.) : Orijinal kömürde (k.k.) : Kuru kömürde m vb : Orta Uçuculu Bitümlü kömür			

Deneyleerde karbon kaynağı olarak Merck firmasından temin edilen ekstra saf grafit (>%99) ve Deneyleerde sıcaklığın 5 C°'nin aşağısında tutulması için deneyleelerin her aşamasında Polyscience 15L soğutmalı su sirkülatörü kullanılmıştır. Merck firmasından temin edilen sülfürik asit H₂SO₄ (95-98%), orto-fosforik asit H₃PO₄ (85%), sodyum nitrat NaNO₃ ve potasyum permanganat KMnO₄ (99%) grafitin ve kömürün oksidasyonu için kullanılmıştır. Metal iyonlarının uzaklaştırılması için hidroklorik asit HCl (37% Sigma Aldrich) ve reaksiyonun sonlandırılması için hidrojen peroksit (H₂O₂, 30 wt. %) kullanılmıştır.

Kullanılan saf su Merck Millipore marka saf su cihazı ile üretilmiştir. Santrifüj işlemleri için Sigma 3-30KS marka santrifüj cihazı kullanılmıştır. Kurutma işlemleri için JSR marka etüv kullanılmıştır.

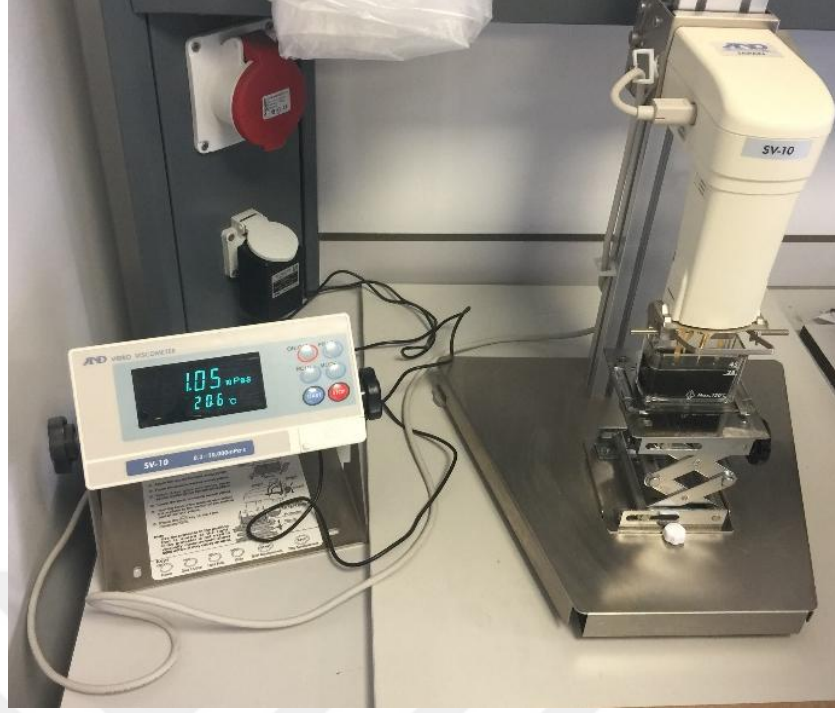
Dispersiyon hazırlama işleminde SONICS marka ultrasonik prob kullanılmıştır. Yüzey aktif madde olarak Sigma marka Tergitol (NP-10) kullanılmıştır. Optik mikroskop ölçümleri için Nikon marka SMZ800N model optik mikroskop kullanılmıştır. İstatistiksel analizler Minitab 17 programı kullanılarak gerçekleştirilmiştir.

Termal iletkenlik ölçümü için KD2 Pro cihazı kullanılmıştır (Şekil 3.2). KS-1 tipi 6 cm uzunluğunda 1,3 mm çapında tek iğne sensörü yardımıyla termal iletkenlik ve termal direnç ölçümü yapmaktadır. Cihazın termal iletkenlik ölçüm aralığı $0,02 - 2 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ dir. Isıl direnç aralığı $50 - 5000 \text{ }^{\circ}\text{C.cm.W}^{-1}$ dir. Hassasiyet $0,2 - 2 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ de $\pm \%5$, $0,02 - 0,2 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ de $\pm 0.01 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ dir. Kablo uzunluğu 0,8 m dir.



Şekil 3.2 KD2 Pro cihazı ile termal iletkenlik ölçümü

Viskozite ölçümü için Vibro Viscometer SV-10 cihazı kullanılmıştır (Şekil 3.3). Tuning Fork prensibi ile ölçüm yapma özelliğine sahip olan vibro viskozimetredir. Bu özellik sayesinde yüksek ölçüm hassasiyeti sağlanır. Tuning-fork titreşim metoduyla çalışan cihaz $0,3 \text{ mPa.s} - 10 \text{ Pa.s}$ ($0,3 - 10,000 \text{ mPa.s}$) ölçüm aralığına sahiptir. Titreşim frekansı 30 Hz dir. Çalışma sıcaklığı $10 - 40 \text{ }^{\circ}\text{C}$ dir. $0 - 160 \text{ }^{\circ}\text{C} / 0.1 \text{ }^{\circ}\text{C}$ de sıcaklık ölçümü gerçekleştirebilir.



Şekil 3.3 Viskoizimetre cihazı ile viskozite ölçümü

3.2 Hummers Yöntemi

3.2.1 Grafittin Oksidasyonu

Sentez için kullanılacak reaktöre 200 mL H_2SO_4 ve 20 mL H_3PO_4 çözeltisine ek olarak 20 g karbon tabanlı malzeme (grafit) ilave edilerek manyetik karıştırıcı ile 5 °C'de 24 saat karıştırılmıştır. Deney 3 paralel reaktörde yapılmıştır. Daha sonra her bir reaktöre 40 g potasyum permanganat ($KMnO_4$) yavaşça eklenmiş ve reaktör sıcaklığı 8 saat boyunca soğutmalı su sirkülatörü yardımıyla 5 °C'nin altında tutulmuştur. Reaktördeki çözeltiye 100 mL ultra saf su yavaşça eklenip sıcaklığı önce 35 °C'ye çıkarılmış ve 16 saat daha karıştırılmıştır. Daha sonra çözelti sıcaklığı 95 °C ye çıkarılmıştır ve 4 saat daha karıştırılmıştır. Oda sıcaklığında soğumaya bırakılan çözelti 16 saat daha karıştırılmıştır. Çözeltiye reaksiyonu durdurmak için hacimce %20'lik 100 mL hidrojen peroksit (H_2O_2) içeren 100 mL su reaktörlere eklenmiştir. Ardından 1 saat karıştırılmıştır. Son olarak metal iyonlarının uzaklaştırılması amacı ile 100 ml HCl çözeltisi (1/10 v/v) ilave edilmiş 1 saat karıştırılmıştır. Numune 3 gün boyunca belirli

aralıklarla ultra saf su ile yıkanmıştır. Yıkama işleminin ardından numune santrifüj tüplerine konularak 8000 (1/dk) devirde 5 dakika santrifüj işlemi yapılmıştır. Ardından numuneler 100 mL'lik beher içine alınıp etüvde 50°C de 24 saat boyunca kurulmuştur (Korucu vd. 2018; Şimşek vd. 2018; Hummers Jr ve Offeman 1958; Korucu vd. 2019; Yadav ve Lochab 2019).

3.2.2 Kömürün Oksidasyonu

Kömürü oksidasyon öncesi hazır hale getirmek için RESTCH RS-200 marka cihaz ile kırma-öğütme işlemi yapılmış ardından kurutma işlemine tabi tutulmuştur. 115 ml H₂SO₄ ve 2,5 g NaNO₃ çözeltisine 5 g kömür ilave edilerek manyetik karıştırıcı ile 5 °C'de karıştırılmıştır. Daha sonra 25 g potasyum permanganat (KMnO₄) yavaşça reaktöre eklenmiş ve reaktör sıcaklığı soğutmali su sirkülatörü ile 5 °C'nin altında tutulmuştur. Çözelti sıcaklığı önce 35 °C'ye çıkarılmış ve 2 saat daha karıştırılmıştır. Ardından ultra saf su yavaşça reaktöre eklenmiştir. Daha sonra çözelti sıcaklığı 85 °C ye çıkarılmıştır ve 12 saat daha karıştırılan çözeltiye reaksiyonu durdurmak için %20'lik 10 mL hidrojen peroksit (H₂O₂) içeren 100 mL su eklenmiştir. Son olarak metal iyonlarının uzaklaştırılması amacı ile 100 ml HCL çözeltisi (1/10 v/v) ilave edilmiş ve numune 3 defa yıkanarak reaksiyon sonlandırılmıştır. Elde edilen grafen oksit (GO) santrifüj işlemlerine tabi tutulmuştur. Ardından etüvde 50 °C'de 24 saat kurutulmuştur (William vd. 1958; Marcano vd. 2010; Korucu vd. 2018; Şimşek vd. 2018; Korucu vd. 2019).

Elde edilen grafen oksitler iletken mürekkepler ve boyalar, polimer dolgu maddeleri, akü elektrotları, süper kapasitörler ve sensörler gibi potansiyel uygulama alanlarında kullanılmaktadır (Shams vd. 2015).

3.3 Tam Faktöriyel Tasarım

Araştırmacılar tarafından bir sistemi ya da belirli bir süreci tanımlamak ve anlamak için deneyler kullanılır. Deneyler, literatürde aynı zamanda bir testtir. Bir süreç ya da sistemin girdilerinde değişiklik yapılarak çıktılarının gözlemlenmesi ve analiz edilmesidir (Montgomery 2017). Deneysel tasarım ilk olarak 1920'lerde ünlü İngiliz istatistikçi R.A. Fisher ve arkadaşları tarafından geliştirilmiş ve aynı zamanda gözlemlenen veri gruplarının ortalamaları arasındaki önemli farklılıklarının olup olmadığının ölçülmesinde kullanılan varyans analizi (ANAVO) tekniği de gelişmiştir. Fisher aritmetik düzenlemenin uygun yolunun varyans analizi olduğunu belirtmiştir (Lazic 2006).

Bilim ve araştırmanın vazgeçilmez bir unsuru olan deneysel çalışmalar, uzun zaman ve bir o kadarda uğraşı gerektirirler. Deneysel çalışmalarda doğru bir sonuca gidebilmek için doğru bir deneysel tasarımının yapılması, parametrelerin doğru olarak belirlenmesi ve deney sonucundan ne istenildiğinin doğru olarak bilinmesi gerekmektedir. Tüm bu koşullar yerine getirildiği zaman bile doğru bir sonuca ulaşmak için aynı numuneden veya aynı deneyden çok sayıda yapılması gerekebilir. Bu ise hem zaman hem maliyet hem de harcanan eforu arttırır. Kaliteli ürün geliştirmek ya da üretmek için deney tasarımı yöntemlerini kullanılır (Gökçe ve Taşgetiren 2009).

Deneysel tasarım teknikleri, deneysel çalışmalarda belirlenen parametrelerin en az deney sayısı ile sonuç değişken üzerine etkilerinin incelenmesi ve optimum koşulların belirlenmesi amacıyla kullanılmaktadır. Bağımlı değişkeni etkilediği düşünülen bağımsız değişkenler farklı seviyelerde göz önüne alarak etkileşim incelenmektedir. İyi bir deneysel tasarım, temel kurallara bağlı bir şekilde basit, esnek, sağlam ve uydurulan modelin uygunluğunu denetleyen kontrollere sahip olmalıdır. Deneysel tasarım yöntemleri kullanılarak az iş, çok bilgi edinme amaçlanmaktadır. Deney tasarımının kullanılan çeşitli yöntemler şunlardır; Her Defada Tek Etken (HDTE), Eşleştirilmiş Karşılaştırma, Tam Faktöriyel, Kısmi Faktöriyel, Latin Kareler, Graceo-Latin Kareler, Box-Behnken, Plackett-Burman, Taguchi (Zümrüt 2009; Simsek 2014).

R. A. Fisher'in geliřtirdiđi çok faktöriyelli deney tasarımları (çok etkenli deneyler, tam eřlendirmeli deney) faktörlerin birbirleri arasında etkileřmeleri durumunda kullanılan tam faktöriyel deney tasarımı yöntemidir (Hasgöl 2011). Tam faktöriyel tasarım, deneysel çalıřmalarda birden çok faktörün farklı seviyelerde ele alınarak etkisinin incelenebildiđi tasarımdır. Tam faktöriyel tasarıma göre deney sayıları,

$$N = n^k \quad (3.1)$$

(N: deney sayısı, n: seviye sayısı, k: parametre, faktör, deđiřken sayısı) formülü ile hesaplanır.

Tam faktöriyel deney tasarımı, çok boyutlu bir yöntem olması nedeniyle fonksiyonların lineerliđinin arařtırılması ve faktörlerin karřılıklı etkileřimlerinin bađımlı deđiřkene olan etkisini bularak sistem üzerinde ekonomik yönden deđerlendirme yapma olanađı sađlar. Maliyet azaltma, kalitenin geliřtirilmesi ve iyileřtirme gibi olanaklar sađlar (Zümrüt 2009).

3.4 Yöntem

Dispersiyon hazırlamada kullanılan parametreler ön çalışmalar neticesinde belirlenmiştir. Ön çalışmalarda yüzey aktif madde miktarı, katı/sıvı oranı ve ultrasonik işlem süresi parametreler olarak belirlenmiştir. Faktör ve seviyeleri aşağıdaki Çizelge 3.2’de verilmiştir.

Çizelge 3.2 Deney çalışmalarında kullanılan parametreler ve seviyeler

Parametreler	Seviyeler	
	1	2
Yüzey Aktif Madde Miktarı, (g)	0,01	0,05
Katı/Sıvı Oranı, (v/v)	0,01	0,05
Ultrasonik İşlem Süresi, (dk)	20	40

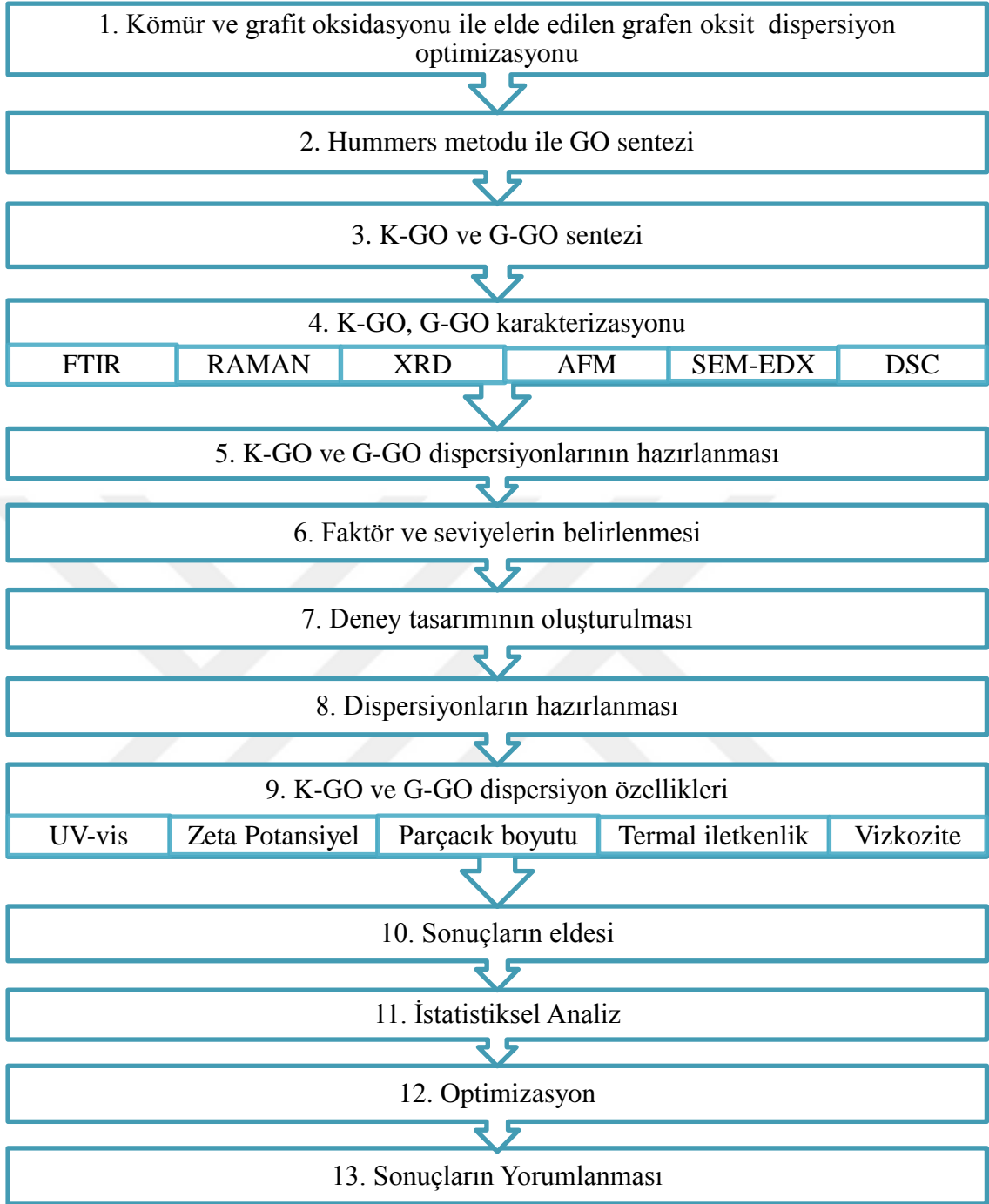
Sabit faktörler olarak karbon kaynağı (kömür ve grafit) seçilmiştir. Kömürden ve grafitten grafen oksit dispersiyonlarının sentezi için deney tasarımında izlenen yöntem matris formunda aşağıdaki Çizelge 3.3’e aktarılmıştır.

Çizelge 3.3 Deney tasarımı

Deney Sayısı	Sabit Faktörler			Değişken Faktörler		
	Malzeme Cinsi	Saf Su Miktarı (mL)	Ultrasonik Prob Çalışma Frekansı (kHz)	Yüzey Aktif Madde Miktarı (g)	Katı/Sıvı Oranı (v/v)	Ultrasonik İşlem Süresi (dk)
	Simge			A	B	C
1	K-GO1	100	20	0,01	0,01	20
2	K-GO2	100	20	0,01	0,01	40
3	K-GO3	100	20	0,05	0,05	40
4	K-GO4	100	20	0,05	0,05	20
5	G-GO1	100	20	0,01	0,01	20
6	G-GO2	100	20	0,01	0,01	40
7	G-GO3	100	20	0,05	0,05	40
8	G-GO4	100	20	0,05	0,05	20

3.5 Metodoloji

13 adımda izlenen bu yöntem de kömür ve grafit oksidasyonu ile elde edilen grafen oksit dispersiyonlarının optimizasyonu amaçlanmıştır. Hummers metodu ile GO sentezi benimsenmiştir. Karbon kaynağına göre (kömür ve grafit) ile K-GO (kömür) ve G-GO (grafit) şeklinde isimlendirilmiştir. Sentezlenen K-GO ve G-GO numuneleri FT-IR, Raman, XRD, AFM, SEM-EDX ve DSC analizleri ile karakterize edilmiştir. G-GO ve K-GO numunelerinden dispersiyon hazırlamak amaçlanmış ve ön çalışmalar yapılmıştır. Faktör ve seviyelerin belirlenmesi denemeler ve daha önce yapılan çalışmaların sonucuna göre yapılmıştır. Belirlenen faktör ve seviyelerden sonra deney tasarımını oluşturulmuştur. Tasarlanan deneyler ile dispersiyonlar hazırlanmıştır. Dispersiyonların ultraviyole ve görünür ışık absorpsiyon spektroskopisi, zeta potansiyeli, parçacık boyutu, termal iletkenlik ve viskozite analizleri yapılmıştır. Elde edilen sonuçlar istatistiksel olarak analiz yapılmış ve optimize edilmiştir. Son aşama olarak sonuçlar yorumlanmıştır (Şekil 3.4).

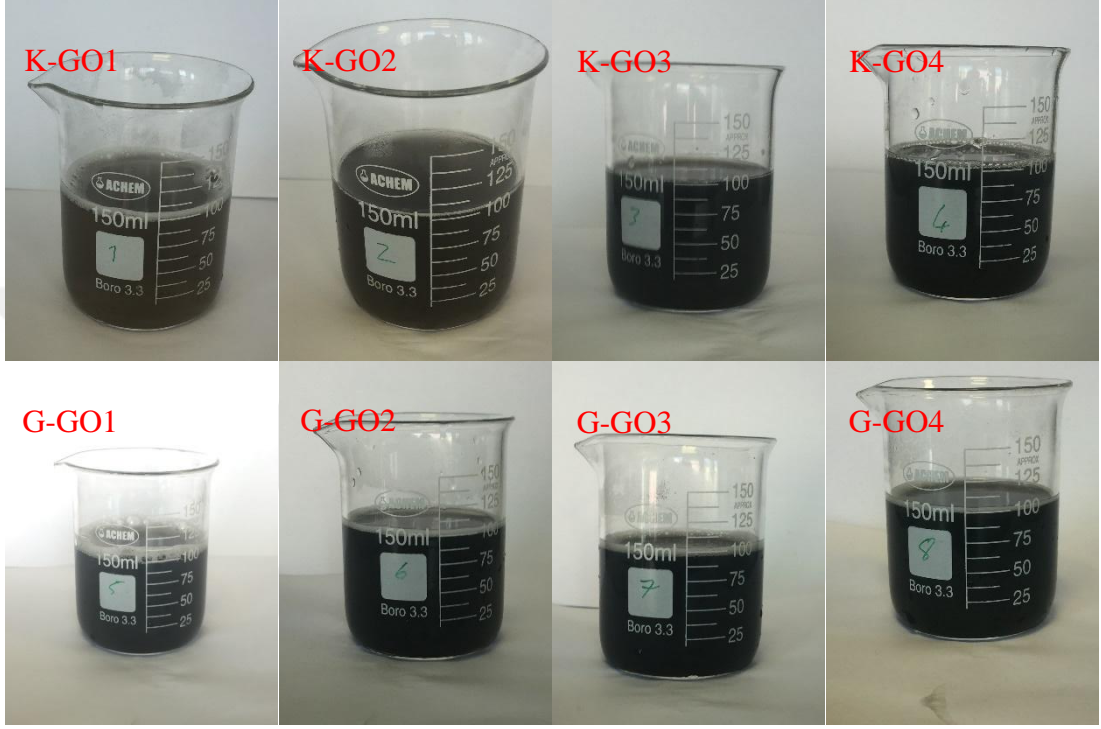


Şekil 3.4 İzlenilen metodoloji

3.6 Sentezlenen Grafen Oksit Dispersiyonlarının Hazırlanışı

Grafit ve kömürden üretilen GO numuneleri havanda dövülerek küçük partiküller haline getirilmiştir. 150 mL'lik beherlere deney tasarımında belirtilen miktarlarda hassas terazi de ölçülen GO numuneleri ve NP-10 yüzey aktif madde konulmuştur. Ardından 100 mL

ye saf su ile tamamlanan dispersiyonlar tasarımındaki sürelerin karşılığı kadar 7 °C 'de belirtilen sürelerde ultrasonik işlem yardımıyla disperse edilmiştir. Dispersiyon sonrasında numunelerden alınan görüntüler Şekil 3.5'de verilmiştir.



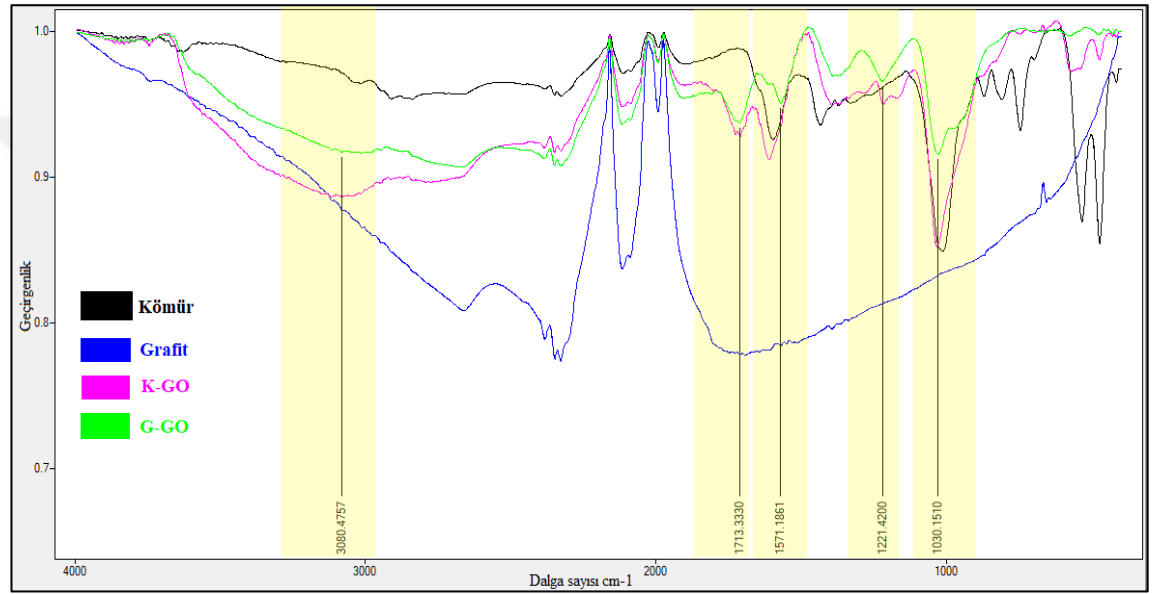
Şekil 3.5 Disperse edilen GO numunelerin görünümü

4. BULGULAR VE TARTIŞMA

4.1 Sentezlenen Grafen Oksit Numunelerinin Karakterizasyonu

4.1.1 FT-IR Analizi Sonuçları

Hummers metodu ile sentezlenen grafitten grafen oksit (G-GO) ve kömürden grafen oksit (K-GO) FT-IR görüntüsü Şekil 4.1’de verilmiştir.

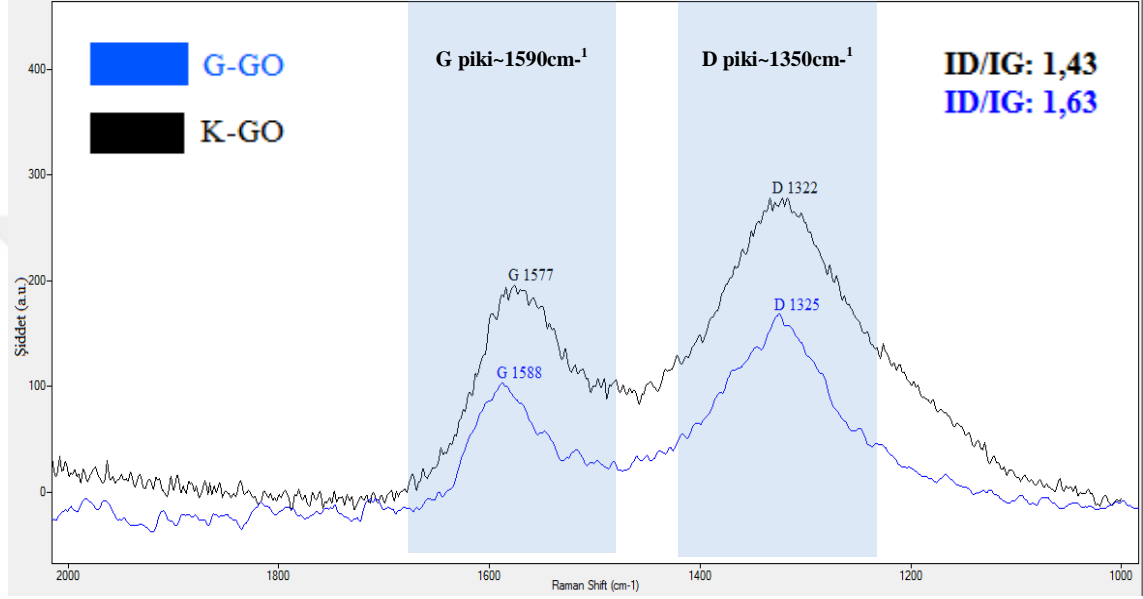


Şekil 4.1 Sentezlenen grafen oksitlerin FT-IR görüntüleri

Sentezlemiş olduğumuz grafen oksitlerin her ikisinde de hidroksil gruplarının, karboksilik asit gruplarının, epoksi ve alkoksi grupları gözlemlenmiştir. Karboksilik asit gruplarına ait olan C=O gerilmesi 1713 cm^{-1} ve hidroksil gruplarına ait olan O-H gerilmesi 3080 cm^{-1} de gözlemlenmiştir. Epoksi grubuna ait olması gereken C-O gerilmesi 1221 cm^{-1} de pik verdiği gözlemlenmiştir. Alkoksi gruplarına ait olan C-O gerilmesi 1030 cm^{-1} de pik verdiği gözlemlenmiştir. 1571 cm^{-1} ve 1600 cm^{-1} civarında aromatik C=C bağları tespit edilmiştir. Gözlemlenen bu gerilmeler grafen oksitin oluştuğunu ortaya koymaktadır (Dörtoğul 2018; Tiyek, Ersoy, vd. 2016; Shahriary ve Athawale 2014; Guerrero-Contreras ve Caballero-Briones 2015).

4.1.2 Raman Analizi Sonuçları

Sentezlenen GO'ların Raman spektroskopisi ile yapısal özellikleri analiz edilmiştir. Şekil 4.2'de Raman analiz sonucu verilmiştir. Elde edilen sonuca göre literatüre uyumlu olarak olması beklenen oksijen ve karbon karbon arası bağların varlığı ve D, G piklerinin varlığı görülmektedir.

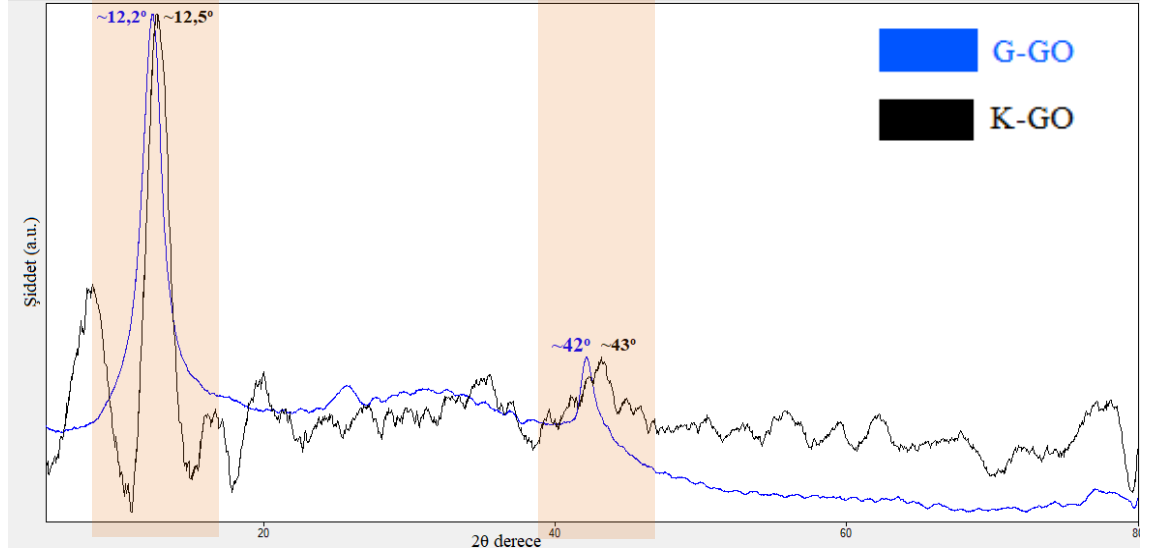


Şekil 4.2 Sentezlenen grafen oksitlerin Raman görüntüleri

D ve G pikleri GO'nun karakteristik özelliğidir. Burada G bandı düzenli/aromatik yapıyı temsil ederken, D bandı ise karbon yapısının düzensizliklerini, amorf yapıların ve oksidasyon sonucu bozunmaya uğrayan yapıları göstermektedir. Kömürden sentezlenen K-GO'nun D piki 1322 cm^{-1} ve G piki 1577 cm^{-1} olduğu görülmektedir. Grafitten sentezlenen G-GO'nun D piki 1325 cm^{-1} ve G piki 1588 cm^{-1} görülmektedir. D pikinin şiddeti (I_D) düzensiz yapıların derecesini ve G pikinin şiddeti (I_G) ise düzenli yapıların şiddet değerlerini vermektedir. K-GO için I_D/I_G değeri 1,43; G-GO için I_D/I_G değeri 1,63 olarak belirlenmiştir. Raman spektroskopisi, sentezlenen GO'ların yapılarını doğrulamaktadır (Wahab vd. 2015; Cañado vd. 2011; Cheng vd. 2012; Shahriary ve Athawale 2014; Guerrero-Contreras ve Caballero-Briones 2015; Tiyek, Dönmez, vd. 2016).

4.1.3 XRD Analizi Sonuçları

K-GO ve G-GO numuneleri X-Işını kırınım desenleri (XRD) incelendiğinde K-GO için $2\theta = 12,5^\circ$ ve G-GO için $2\theta = 12,2^\circ$ değerlerinde pik görünmektedir. G-GO ve K-GO için $12,2^\circ/12,5^\circ$ ve $42^\circ/43^\circ$ civarında yer alan pikler sentezinin başarılı olduğunu göstermektedir. K-GO numunesinde yaklaşık 20° civarında oluşan yayvan pik karbon yapısındaki şekilsizlikten kaynaklanmaktadır. Bu pikin şiddetindeki düşüklük grafen tabakalarının daha az düzenli yığıldığını göstermektedir. $42^\circ/43^\circ$ civarında oluşan pikler ürün kusurluluğundan kaynaklanır ve oksidasyon sonrasında beklenen piklerdir. Fakat pik şiddetleri görüldüğü üzere düşüktür (Şekil 4.3) (Shahriary ve Athawale 2014; Guerrero-Contreras ve Caballero-Briones 2015).

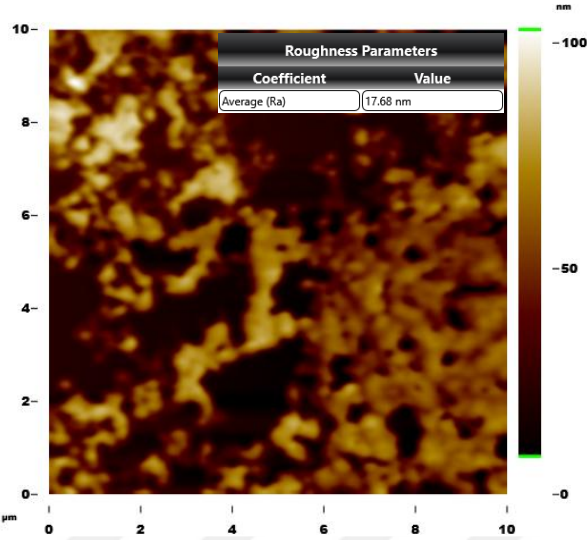


Şekil 4.3 Sentezlenen grafen oksitlerin XRD analizi

4.1.4 AFM Analizi Sonuçları

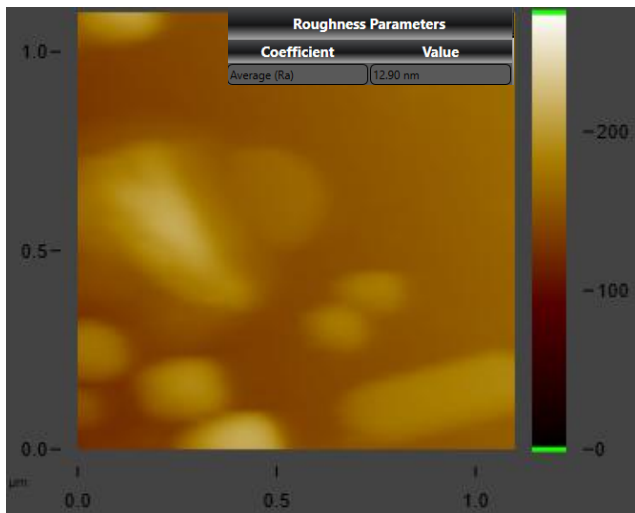
Atomik kuvvet mikroskobu (AFM) numune görüntüleme ve AFM topoğrafya hakkında bilgi vermektedir. Bu analiz grafenin kalınlığını ve yüzey pürüzlülüğünü karakterize etmek için kullandığımız bir yöntemdir. Grafen yüzeylerinin yapısı, kalınlığı, yüzey özellikleri bu analiz yöntemi ile ölçülmüştür (Dörtoğul 2018).

Kömürden sentezlenen K-GO numunesine ait AFM görüntüsü Şekil 4.4’de verilmiştir. Ortalama yüzey pürüzlülüğü 17.68 nm olarak ölçülmüştür. AFM de görülen pürüzlü yapı grafen oksitin yüzeydeki varlığını kanıtlamaktadır. Yüzey morfolojisinde görüldüğü gibi K-GO’nun kimyasal indirgeme işleminden sonra kalan ve güçlü oksidasyon sırasında ortaya çıkan karbon iskeleti yapısal bozukluğun sonucudur (Dörtoğul 2018).



Şekil 4.4 Sentezlenen K-GO’nun AFM analizi

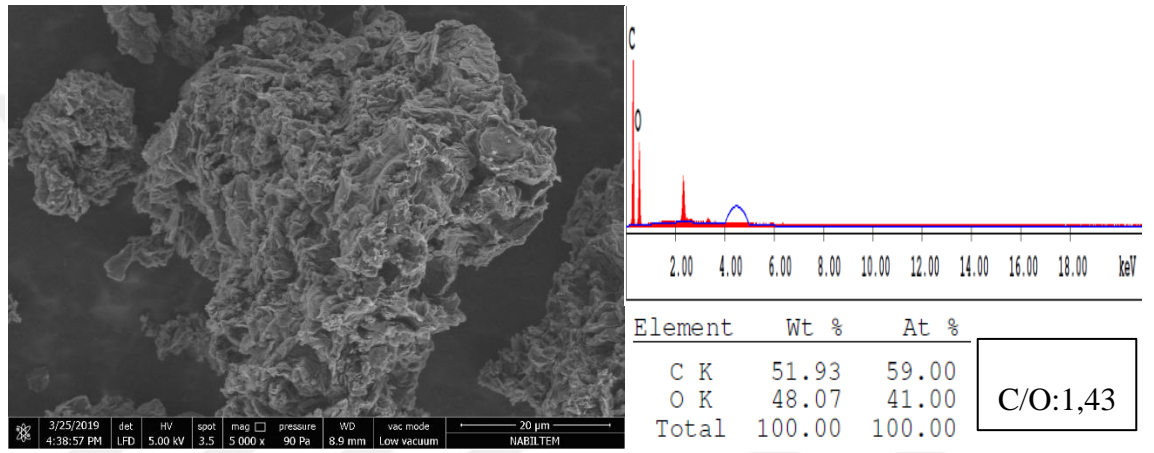
Grafitten sentezlenen G-GO numunesi ait AFM görüntüsü Şekil 4.5’de verilmektedir. Ortalama yüzey pürüzlülüğü 12.90 nm olarak ölçülmüştür.



Şekil 4.5 Sentezlenen G-GO’nun AFM analizi

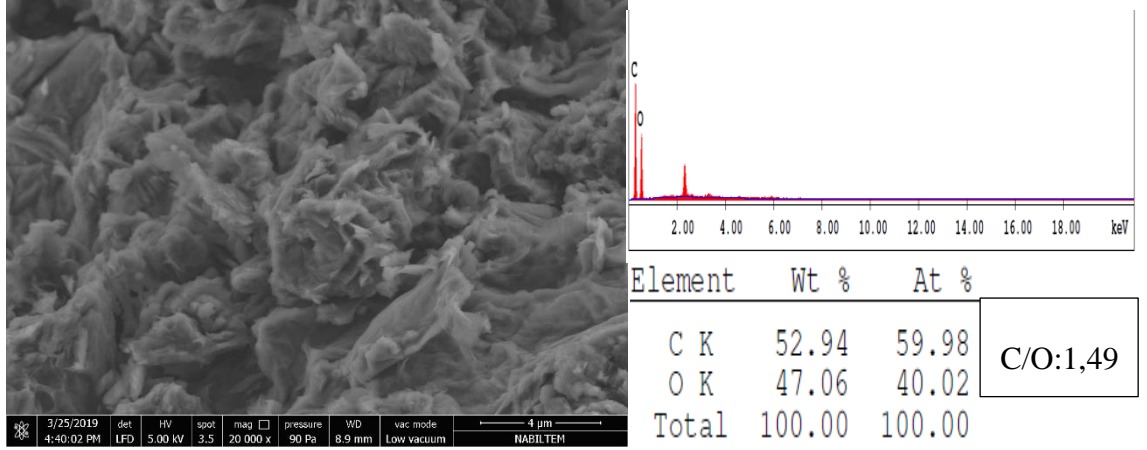
4.1.5 SEM-EDX Analizi Sonuçları

Sentezlenen K-GO yüzey morfolojisi, Taramalı Elektron Mikroskobu (SEM) ile analiz edildi. SEM cihazına entegre olan EDX cihazı ile karbon, oksijen ve diğer elementlerin miktarı tespit edilip, karbon/oksijen oranı bulunmuştur. Şekil 4.6'da 20 µm için SEM-EDX verileri gösterilmiştir (Shahriary ve Athawale 2014; Guerrero-Contreras ve Caballero-Briones 2015).



Şekil 4.6 K-GO için 20 µm SEM-EDX verileri

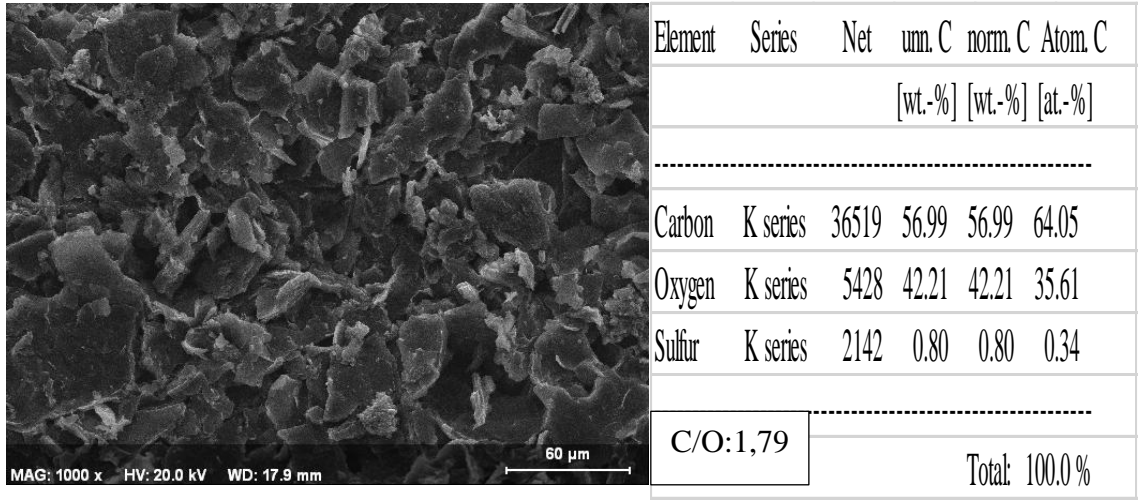
Sentezlenen K-GO'nun elementel analiz sonuçları oksijenin varlığını ve yapısında fonksiyonel grupların oluştuğunu göstermektedir. EDX elementel analizi sonucu karbon ve oksijen oranı literatüre göre C/O:1,43 değeri ile uyumlu sonuç vermiştir. Şekil 4.7'de 4 µm da K-GO SEM-EDX analiz verileri verilmiştir.



Şekil 4.7 K-GO için 4 μm SEM-EDX verileri

4 μm de C/O oranı 1,49 olarak bulunmuştur. Bu veriler literatür ile uyumludur.

Sentezlenen G-GO numunesine ait yüzey morfolojisi ve C/O oranı Şekil 4.8’de verilmektedir.

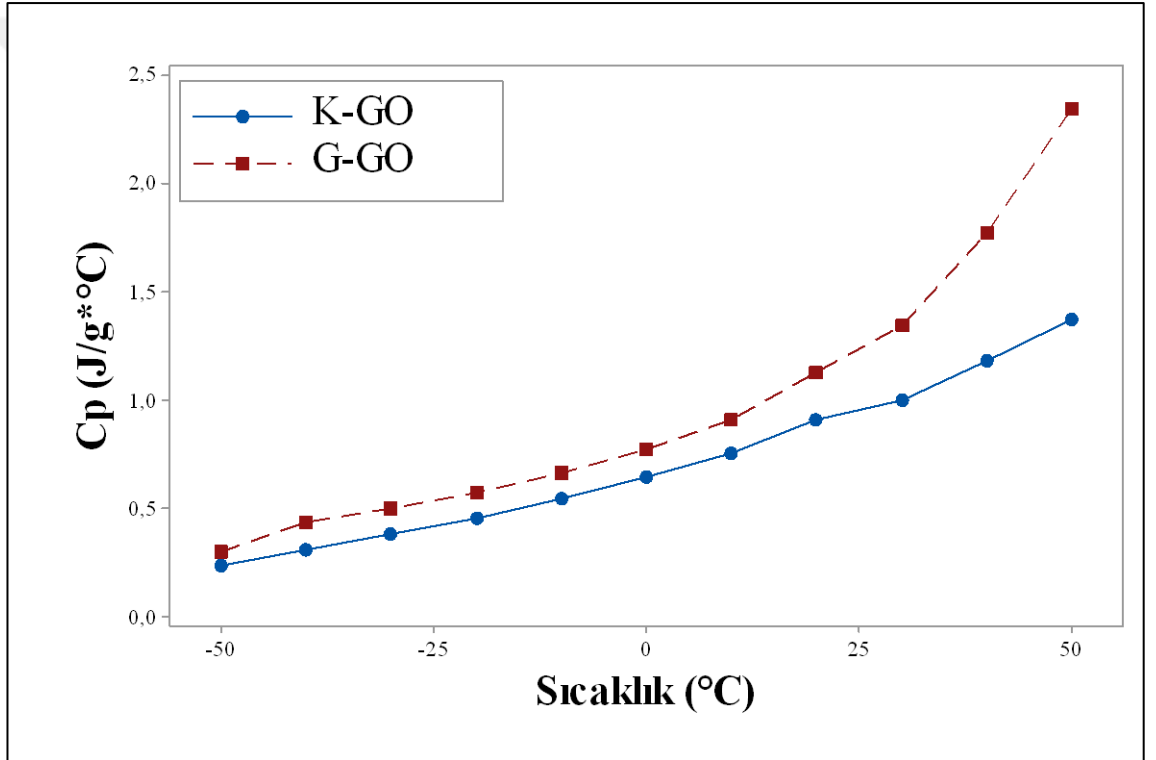


Şekil 4.8 G-GO için 60 μm SEM-EDX analizi

4.1.6 DSC Analizi Sonuçları

Diferansiyel Taramalı Kalorimetre yöntemiyle numune ısıtılırken, soğutulurken veya sabit bir sıcaklıkta tutulurken soğurulan veya salıverilen enerji miktarı ölçülür (Korucu vd. 2019).

K-GO ve G-GO için termal analizler yapılmış ve özgül ısı değerleri belirlenmiştir. Elde edilen özgül ısı değerleri Şekil 4.9'da verilmiştir. Özgül ısı kapasitesi enerji depolama yeteneğinin bir ölçüsüdür ve malzemedeki karbon oranı ile ters orantılı olduğu bilinmektedir.



Şekil 4.9 K-GO ve G-GO için DSC analizi sonuçları

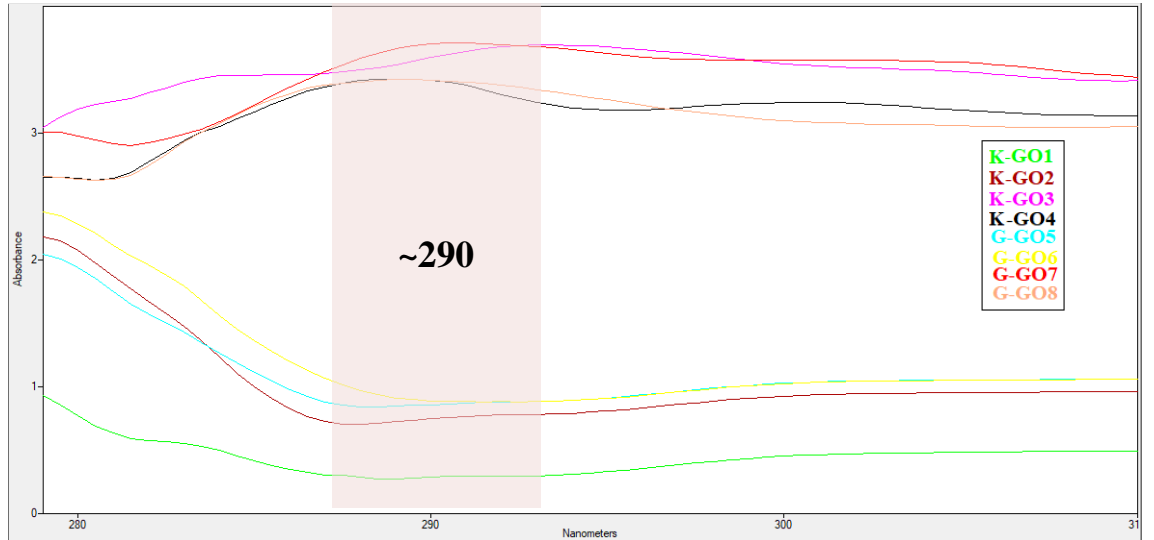
4.2 Sentezlenen Grafen Oksit Numunelerinin Dispersiyon Özellikleri

4.2.1 Ultraviyole-Görünür Işık Analizi Sonuçları

Ultraviyole ve görünür ışık (UV-Vis) absorpsiyon spektroskopisi bir ışın demetinin bir numune yüzeyinden yansıtıldıktan sonraki şiddetinin azalmasının ölçülmesidir. Hazırlanan GO dispersiyonlarının kalitesini daha iyi tanımlamak için Ultraviyole-görünür (UV-Vis) absorpsiyon spektrasında UV-Vis spektroskopisi ölçümleri Shimadzu marka UV-1800 spektrofotometre ile gerçekleştirilmiştir.

GO'nun UV-Vis absorpsiyon spektrasında 2 çeşit karakteristik pik açığa çıkmaktadır. Birincisi karbonil gruplarının $n-\pi^*$ geçişlerine karşılık gelen ~ 300 nm'de bir banttır. İkinci karakteristik özellik ~ 230 nm'de açığa çıkmaktadır ve bir $\pi-\pi^*$ plazmon pike karşılık gelmektedir (Lai vd. 2012; Peng vd. 2013). $\pi-\pi^*$ plazmon piki 2 çeşit konjüge etkiye bağlı olmaktadır: ilki nanometre-skalasındaki sp^2 kümelerle ilgilidir, ikincisi de C=C, C=O ve C-O bağları gibi bağlayıcı kromofor birimlerinden kaynaklanmaktadır (Bakır vd. 2016; Shahriary ve Athawale 2014; Guerrero-Contreras ve Caballero-Briones 2015).

Şekil 4.10'da K-GO ve G-GO dispersiyonlarına ait UV-Vis analizi sonuçları verilmiştir.



Şekil 4.10 Hazırlanan dispersiyonların UV-Vis sonuçları

4.2.2 Zeta Potansiyeli-Partikül Boyut Dağılımı Analizi Sonuçları

Zeta potansiyeli absorban için önemli bir parametredir. Zeta potansiyeli ve partikül boyut dağılımı analizi Malvern marka Nano ZS cihazı ile ölçülmüştür. Zeta potansiyeli nanoparçacık yüzeyi ve taban akışkanı arasındaki elektriksel potansiyel olarak tanımlanır, zeta potansiyeli mutlak değeri nano akışkanın kararlılığı ile ilişkilidir. Dispersiyonların kararlılığını artırmak için yüzey aktif madde kullanılarak topaklaşmayı önlenmektedir. Dispersiyonlarda amaç zeta potansiyel değerini sıfır olduğu izoelektrik noktası (çökme olduğu nokta) dışında tutmaktır. Literatürde zeta potansiyelinin mutlak değerinin +/- 30 mV üstü değerlerde kararlı olduğu, arasındaki değerlerde ise kararsız olduğu kabul edilmektedir (Şekil 4.11) (Yazici vd. 2018; Eravcu 2016).

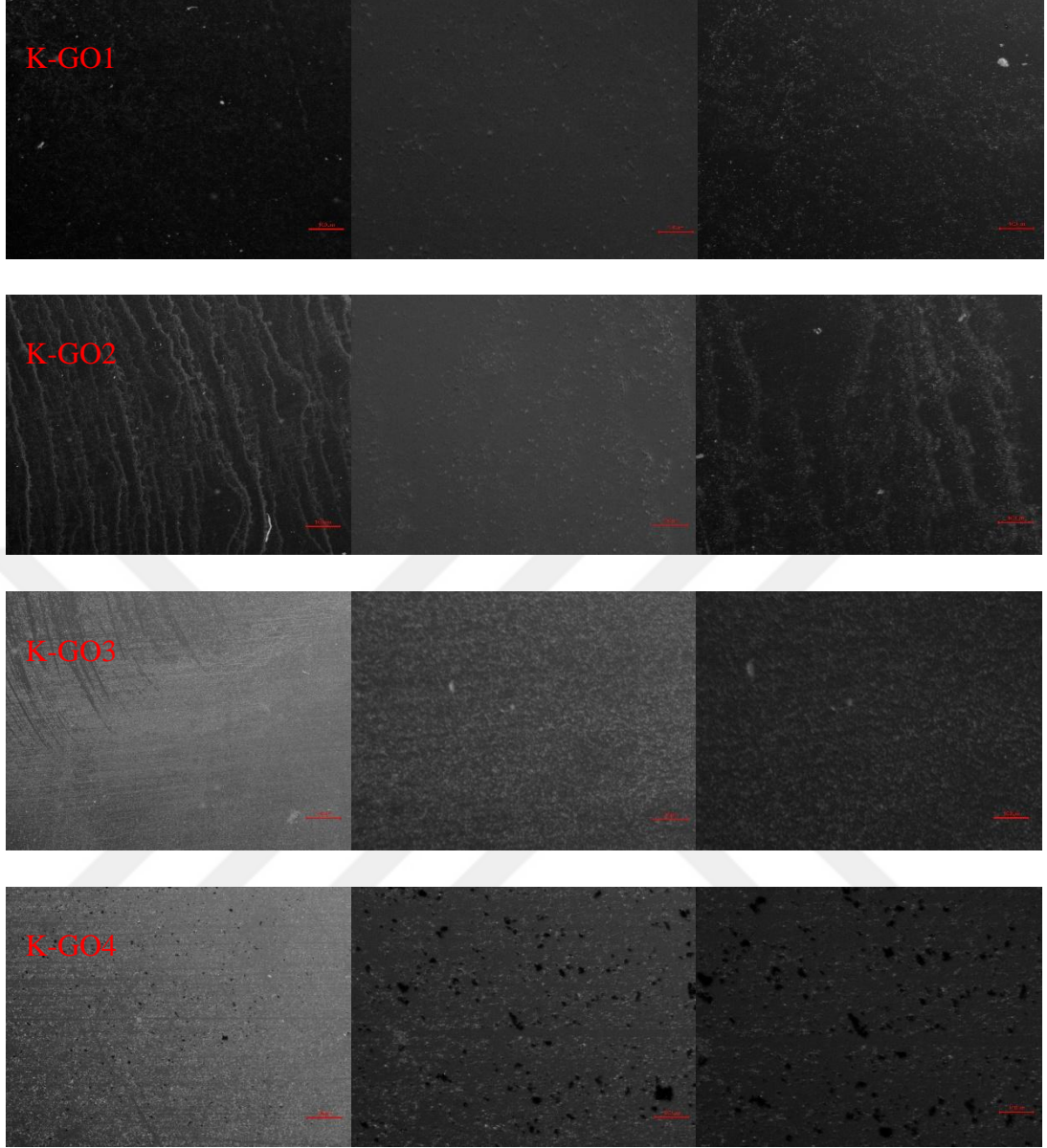


Şekil 4.11 Nanoakışkanlar için zeta potansiyeli

Deneysel sonuçlar bölümünde K-GO ve G-GO dispersiyonlarının zeta potansiyel değerleri ve parçacık boyutu değerleri verilmiştir.

4.2.3 Optik Mikroskop Analizi Sonuçları

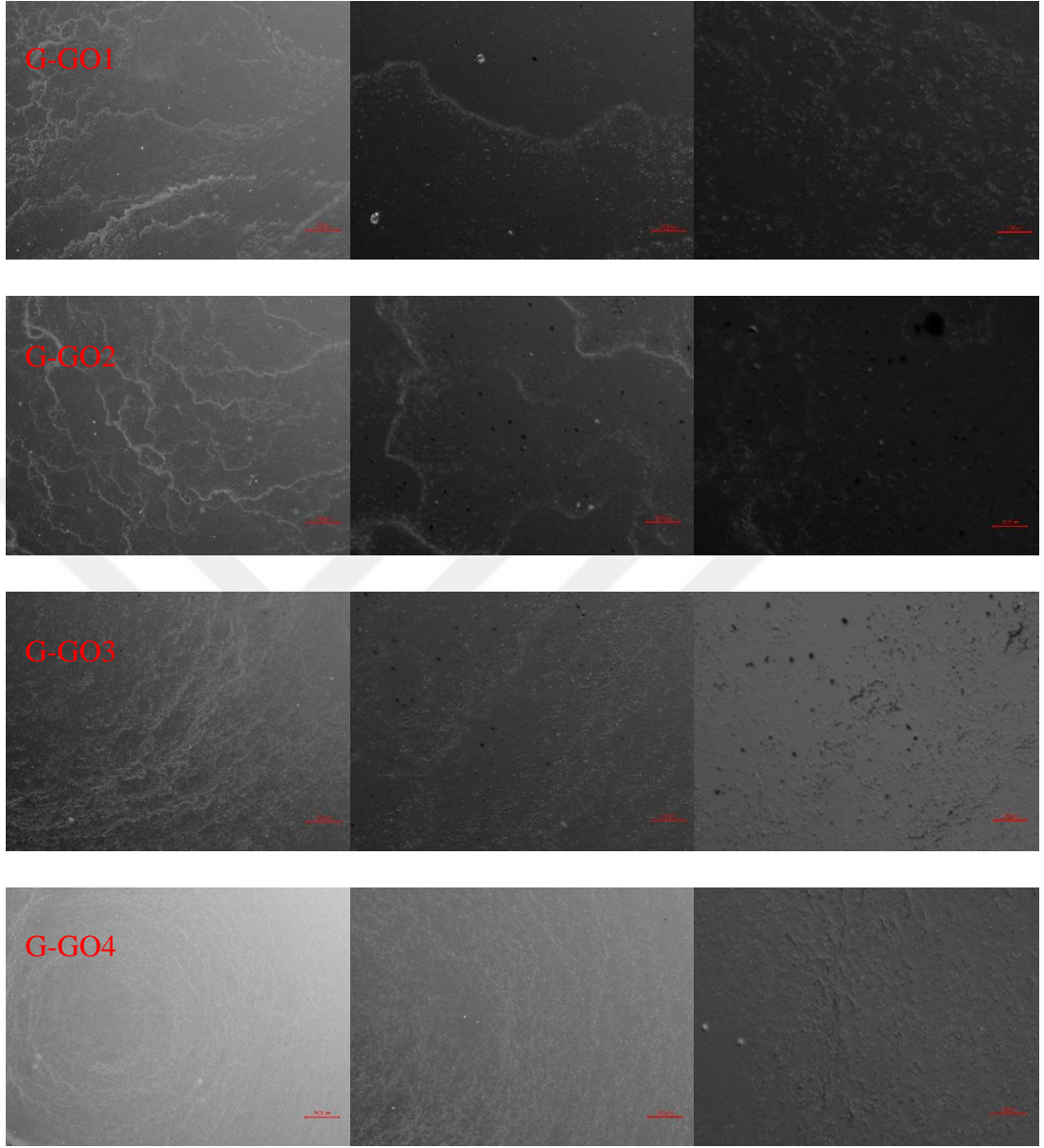
Optik mikroskop ile numunelerimizin homojen bir dağılım sağlayıp sağlamadığı görüntüler ile incelenmiştir. K-GO dispersiyonlarının 100 µm de optik mikroskop görüntüleri Şekil 4.12’de paylaşılmıştır.



Şekil 4.12 K-GO dispersiyonlarının optik mikroskop görüntüleri

Kömür kaynaklı dispersiyonlara bakıldığında elde edilen grafen oksit örnekleri dispersiyon içerisinde homojen bir dağılıma sahip olduğu gözlemlenmektedir. K-GO2 numunesinde topaklaşma ve ciddi miktarda tabakalaşma belirtileri görülmektedir. K-GO4 dispersiyonun optik mikroskopunda gözlemlenen topaklanmış yapı, dispersiyon içerisindeki numunelerin parçacık boyutlarının artacağını göstermektedir.

G-GO dispersiyonları 100 µm de optik mikroskop görüntüleri Şekil 4.13’de verilmiştir.



Şekil 4.13 G-GO dispersiyonlarının optik mikroskop görüntüleri

Grafit kaynaklı dispersiyonlar, kömür kaynaklı dispersiyonlara göre daha az tabakalaşma ve topaklanmaya yol açmıştır (Şekil 4.13). G-GO1, G-GO2 ve G-GO4 dispersiyonlarında nispeten homojen dağılım gözlenmektedir. G-GO3 dispersiyonlarında ise kısmen homojen dağılım gözlemlenmiş ancak belli noktalarda grafen oksidin topaklaştığı belirlenmiştir.

4.2.4 Termal İletkenlik Analizi Sonuçları

Termal iletkenlik analizinde, hazırlanan dispersiyonların ısı iletim kabiliyetleri karşılaştırılmıştır. Nanoakışkanların termal özelliklerinin (termal iletkenlik ve konveksiyon ısı aktarım katsayıları) eklendikleri taban akışlarına göre (su, etilen glikol, makine yağı vb.) daha yüksek çıkması ve eklendikleri akışkanın reolojik özellik katmasıyla birçok uygulama alanında kullanılabilir. Karbon tabanlı nanoparçacıkların metal ve metal oksit nanoparçacıklara göre daha kararlı ve termal özellikleri daha yüksektir. Geçici sıcak tel yöntemi nanoakışkanların ısı transfer katsayısı ölçümünde kullanılan yaygın bir yöntemdir (Eravcu 2016). KD2 Pro cihazı ile elde edilen veriler deneysel sonuçlarda verilmiştir.

4.2.5 Viskozite Analizi Sonuçları

Nanoakışlar için önemli kriterlerden bir tanesi de viskozite değeridir. Nanoakışkanın kararlılığının belirlenmesinde kullanılan diğer bir yöntem ise fiziksel niceliğinin (yoğunluk, viskozite, ısıl iletkenlik vb.) zaman ile değişiminin incelenmesidir (Eravcu 2016). Akışkanı pompalamak için gereken pompalama gücü ve taşınım ısı transferi viskozite ile direkt bağlantılıdır (Ziyadanoğulları 2017). Viskozite GO dispersiyonlarında kullanım alanlarına göre istenilen değer değişmektedir. Burada hazırladığımız 8 farklı numune için oda sıcaklığında viskoziteleri ölçülmüş, deneysel sonuçlar kısmında sonuçlar verilmiştir.

4.3 Deneysel Sonuçlar

Hazırlanan dispersiyonların analiz sonuçları ortalama ve standart sapmalarıyla beraber parçacık boyutu, zeta potansiyeli, iletkenlik, termal iletkenlik ve viskozite değerleri Çizelge 4.1’de toplanmıştır.

Çizelge 4.1 Deneysel veriler

Deney No	Parçacık Boyutu (nm)		Zeta Potansiyeli (mV)		İletkenlik (mS.cm ⁻¹)		Termal İletkenlik (W.m ⁻¹ .K ⁻¹)		Viskozite (cP)	
	X	s	X	s	X	s	X	s	X	s
K-GO1	836	70,38	-19,9	1,41	0,0830	0,0015	0,620	0,0477	1,01	0,010
K-GO2	1138,6	10,97	-35,7	0,40	0,0822	0,0008	0,658	0,0225	1,02	0,001
K-GO3	823,8	15,57	-34,6	1,43	0,4486	0,0140	0,652	0,0759	1,04	0,001
K-GO4	1196,6	58,73	-37,2	0,7	0,4003	0,0067	0,675	0,1365	1,05	0,001
G-GO1	735,1	43,46	-37,2	0,5	0,0218	0,0003	0,699	0,0744	1,06	0,001
G-GO2	958,1	37,58	-47	1	0,0177	0,0001	0,665	0,0330	1,08	0,005
G-GO3	845,5	15,91	-45,7	0,41	0,0607	0,0003	0,634	0,0642	1,04	0,005
G-GO4	716,6	15,5	-40,8	1,28	0,0565	0,0004	0,653	0,0881	1,05	0,005

X: Ortalama¹
s : Standart Sapma²
¹ $X = \frac{a_1+a_2+a_3+\dots+a_n}{n}$ Ölçüm sonuçlarının ortalaması
² $S = \sqrt{\frac{1}{N-1} \sum_{i=1}^N x_i^2 - X^2}$ ölçüm sonuçlarının standart sapması

4.4 İstatistiksel Analiz

Kömür ve grafit kaynaklı dispersiyonlara ait ana etki grafiği Şekil 4.14'de verilmektedir. İstatistiksel analizler Minitab 17 programı kullanılarak gerçekleştirilmiştir.

Ortalama parçacık boyutunda yüzey aktif madde miktarı artıkça parçacık boyutu azaltmıştır, katı/sıvı oranı artıkça parçacık boyutu azaltmıştır, ultrasonik işlem süresi artıkça parçacık boyutunda artma gözlemlenmiştir (Şekil 4.14.a). Yüzey aktif madde, dispersiyonun yüzey gerilimini düşürerek parçacıkların bir araya gelmesini engellemiştir. Bu da parçacık boyutunda azalmaya sebep olmuştur. Ultrasonik işlem süresinin fazla olması dispersiyonun ısınmasına sebep vermektedir. Isınmanın etkisiyle parçacıklar topaklanma eğilimi göstermiştir. Toplanma eğimi parçacık boyutunda artmaya sebep olmuştur.

Standart sapma parçacık boyutunda yüzey aktif madde miktarı artıkça parçacık boyutu azaltmıştır, katı/sıvı oranı artıkça parçacık boyutu azaltmıştır, ultrasonik işlem süresi artırıldıkça parçacık boyutunun azaldığı görülmüştür (Şekil 4.14.b). Yüzey aktif madde parçacık boyutlarının eşit dağılımı sağlayarak standart sapmasının düşmesine neden olmuştur. Katı/sıvı oranının artması dispersiyon içinde parçacıkların standart sapmanın azaltıcı yönde etki yaptığını görülmektedir. Ultrasonik işlem süresinde artması parçacık boyutlarının homojen boyut dağılımına sebep olduğu gözlenmektedir.

Ortalama zeta potansiyelinde yüzey aktif madde miktarı artıkça zeta potansiyeli azaltmıştır, katı/sıvı oranı artıkça zeta potansiyeli azaltmıştır, ultrasonik işlem süresi artırıldıkça zeta potansiyelinin azaldığı görülmüştür (Şekil 4.14.c). Yüzey aktif madde, zeta potansiyeli ile doğrudan bağlantılıdır. Yüzey aktif madde, kararlı dispersiyonların hazırlanması için kullanılan yardımcı maddelerdendir. -38 mV zeta potansiyel değerinde yüzey aktif madde miktarının artmasıyla -40 mV değerine yakın daha kararlı bir dispersiyon haline geldiği görülmektedir. Katı/sıvı oranı artması parçacık boyutunda olduğu gibi zeta potansiyelleri üzerinde de kararlı dispersiyon olması yönünde etki göstermiştir. Ultrasonik işlem süresi artması zeta potansiyel üzerinde istenilen etkiyi

göstermiştir. Ultrasonik işlem süresinin artmasıyla dispersiyon içinde GO'ların dağılımı sağlanmıştır. Çökme etkisini ortadan kaldırmıştır.

Standart sapma zeta potansiyelinde yüzey aktif madde miktarı arttıkça zeta potansiyeli değeri artmıştır, katı/sıvı oranı arttıkça zeta potansiyel değeri artmıştır, ultrasonik işlem süresi arttıkça zeta potansiyeli değerinde azalma gözlemlenmiştir (Şekil 4.14.d). Yüzey aktif madde miktarının artmasıyla zeta potansiyeli arasındaki farkın artışı, bunun nedeni ise yüzey aktif maddenin homojen olmadığından kaynaklı olduğu düşünülmektedir. Katı/sıvı oranı artması dispersiyonun içinde bulunan madde miktarının artmasıyla zeta potansiyeli değerlerinin arasındaki farkı artması doğru orantılı olarak etkisi görünmektedir. Ultrasonik işlem süresi artması, dispersiyonların homojenliğini artırarak standart sapma zeta değerini azaltıcı yönde etkisini beklenildiği gibi olmuştur.

Ortalama iletkenlikte yüzey aktif madde miktarı arttıkça iletkenlik artmıştır, katı/sıvı oranı arttıkça iletkenlik artmıştır, ultrasonik işlem süresi arttıkça iletkenlik değeri az miktarda arttığı gözlemlenmiştir (Şekil 4.14.e). Yüzey aktif madde, yapısı gereği elektron kutuplaşmasına sebep olmaktadır. Bu da yüzey aktif madde miktarının artmasıyla iletkenlik doğru orantılı olarak artmıştır. Katı/sıvı oranı artması, dispersiyon içerisinde bulunan GO'ların artmasıyla iletkenliği de arttırmıştır. Ultrasonik işlem süresi iletkenlik üzerinden etkisi azdır, fakat arttırıcıdır.

Standart sapma iletkenliğinde yüzey aktif madde miktarı arttıkça iletkenlik artmıştır, katı/sıvı oranı arttıkça iletkenlik artmıştır, ultrasonik işlem süresi arttıkça iletkenlik değerinin arttığı gözlemlenmiştir (Şekil 4.14.f). Yüzey aktif madde yapısı gereği iletkenlik değerini arttırmaktadır fakat iletkenlik değeri arasındaki değer farkını da arttırmaktadır. Aynı durum katı/sıvı oranında da geçerlidir. Ultrasonik işlem süresi, iletkenlik değerleri arasında farklılık oluşmasına sebebiyet vermiştir.

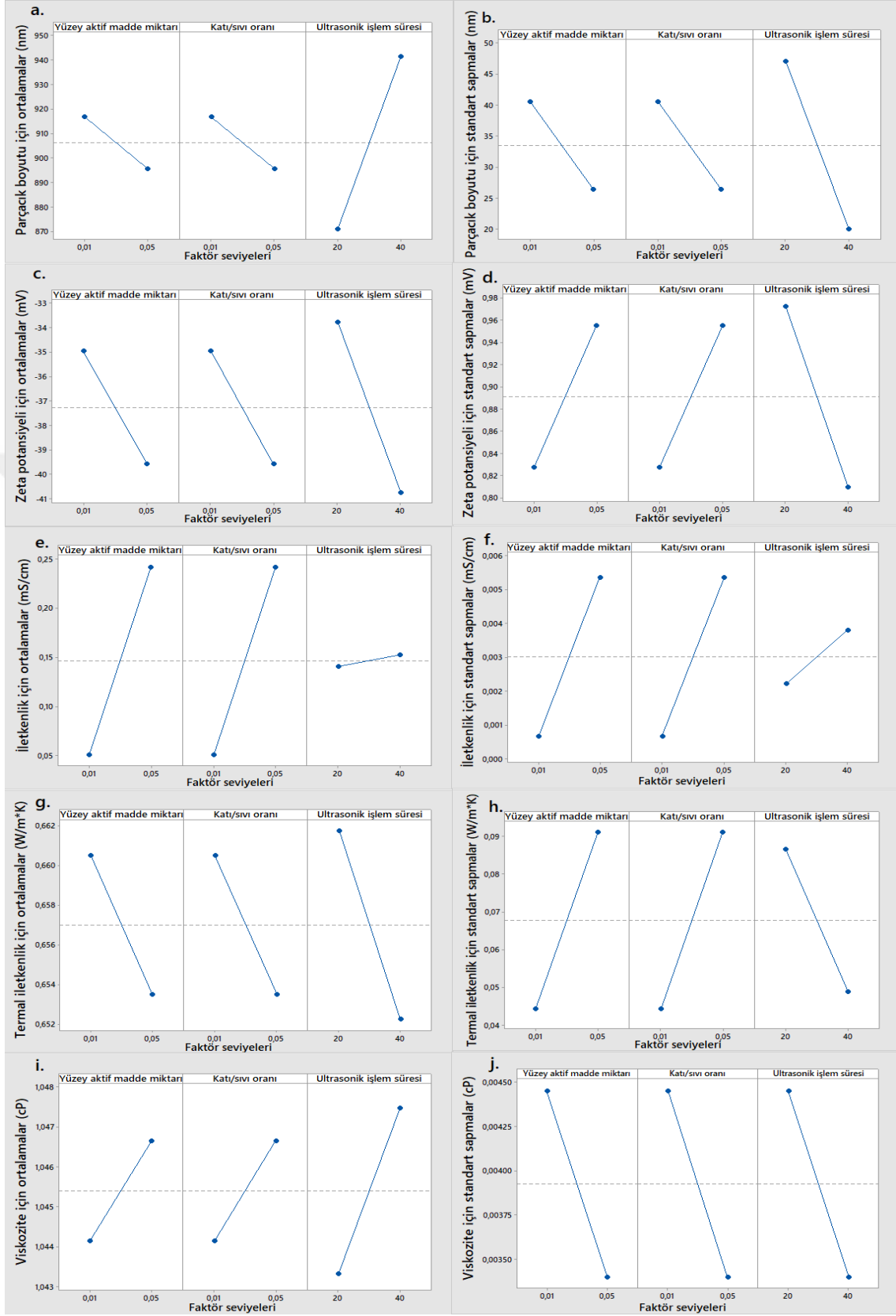
Ortalama termal iletkenlik yüzey aktif madde miktarı artırıldıkça termal iletkenlik azaltmıştır, katı/sıvı oranı arttıkça termal iletkenlik azaltmıştır, ultrasonik işlem süresi artırıldıkça termal iletkenlik değerinin azaldığı görülmüştür (Şekil 4.14.g). Yüzey aktif maddeye artmasıyla yüzey aktif maddenin termal iletkenliğine dispersiyonun ait termal iletkenlik değerini etkilediğini görülmektedir. GO madde miktarının artması ve GO'lara

ait termal iletkenlik deęerleri ve GO'ların yapısı ile ilgili olduęu görölmektedir. Ultrasonik işlem süresinin de artması dispersiyonların yapısında oluşturduęu deęişiklięin etkisidir.

Standart sapma termal iletkenlięinde yüzey aktif madde miktarı artıkça termal iletkenlik artmıřtır, katı/sıvı oranı artıkça termal iletkenlik artmıřtır, ultrasonik işlem süresi artıkça termal iletkenlik deęerinin standart sapması azaldıęı gözlemlenmiřtir (Şekil 4.14.h). Yüzey aktif maddenin termal iletkenlik deęerinin etkisinden dolayı, dispersiyonlar üzerinde standart sapmayı arttırmıřtır. GO miktarı artması GO termal iletkenlik özellięinden dolayı termal iletkenlikteki standart sapmayı arttırmıřtır. Ultrasonik işlem homojenlięi saęlanması aęısında etkili olmuřtur. Bu da termal iletkenlięin standart sapmasını düşürmeye neden olmuřtur.

Ortalama viskozite yüzey aktif madde miktarı artıkça viskozite artmıřtır, katı/sıvı oranı artıkça viskozite artmıřtır, ultrasonik işlem süresi artıkça viskozitenin arttıęı görölmüřtür (Şekil 4.14.i). Yüzey aktif maddenin viskozitesi, dispersiyondan yüksek olduęu için arttırıcı etki yaratmıřtır. GO miktarının artması viskoziteyi doęrudan etkilemiřtir. Dispersiyon içinde GO miktarı artıkça viskozitede artar. Ultrasonik işlem süresinin artması viskozitenin artıcı yönde etkisini göstermiřtir.

Standart sapma viskozite yüzey aktif madde miktarı artıkça viskozite azaltmıřtır, katı/sıvı oranı artıkça viskozite azaltmıřtır, ultrasonik işlem süresi artıkça viskozite deęerinin azaldıęı gözlemlenmiřtir (Şekil 4.14.j). Yüzey aktif madde miktarının artması dispersiyonların viskozite deęerlerini birbirine yaklařtırmıřtır. GO miktarının artması ile standart sapma viskozitesi üzerinde azaltıcı etki yaratmıřtır. Ultrasonik işlem süresi daęılım üzerinde etkisinin yüksek olması sebebiyle viskozitenin standart sapmasını azaltıcı etkisi görölmüřtür.



Şekil 4.14 Yanıtlar için ana etki grafikleri

Sadece kömür kaynaklı K-GO dispersiyonlarının ana etki grafiği Şekil 4.15'de verilmiştir.

Ortalama parçacık boyutunda yüzey aktif madde miktarı arttıkça parçacık boyutu artmıştır, katı/sıvı oranı arttıkça parçacık boyutu artmıştır, ultrasonik işlem süresi arttıkça parçacık boyutunda azalma gözlemlenmiştir (Şekil 4.15.a). NP-10 miktarındaki artış kömür kaynaklı GO dispersiyonlarında parçacık boyutunu artırıcı etki yaratmıştır. Kömür kaynaklı GO miktarının artması parçacık boyutu üzerinde etkisi artı yönde olmuştur. Ultrasonik işlem süresi artışı, dağılım etkisi nedeniyle kömür kaynaklı dispersiyonların parçacık boyutu değerlerini azaltmıştır.

Standart sapma parçacık boyutunda yüzey aktif madde miktarı arttıkça parçacık boyutu azaltmıştır, katı/sıvı oranı arttıkça parçacık boyutu azaltmıştır, ultrasonik işlem süresi artırıldıkça gene parçacık boyutu azaldığı görülmüştür (Şekil 4.15.b).

Ortalama zeta potansiyelinde yüzey aktif madde miktarı arttıkça zeta potansiyeli azaltmıştır, katı/sıvı oranı arttıkça zeta potansiyeli azaltmıştır, ultrasonik işlem süresi artırıldıkça zeta potansiyelinin azaldığı görülmüştür (Şekil 4.15.c). Yüzey aktif maddedeki artış, yüzey aktif maddenin yüzey gerilimini azaltıcı etkisi, dispersiyonların kararlı hale gelmesini sağladığını bütün dispersiyonlarda gözlenmiştir.

Standart sapma zeta potansiyelinde yüzey aktif madde miktarı arttıkça zeta potansiyeli değeri artmıştır, katı/sıvı oranı arttıkça zeta potansiyel değeri artmıştır, ultrasonik işlem süresi arttıkça zeta potansiyeli değerinde azalma gözlemlenmiştir (Şekil 4.15.d).

Ortalama iletkenlikte yüzey aktif madde miktarı arttıkça iletkenlik artmıştır, katı/sıvı oranı arttıkça iletkenlik artmıştır, ultrasonik işlem süresi arttıkça iletkenlik değeri arttığı gözlemlenmiştir (Şekil 4.15.e). K-GO dispersiyonlarında 3 faktöründe iletkenlik değeri üzerinde etkisi artırıcı olmuştur.

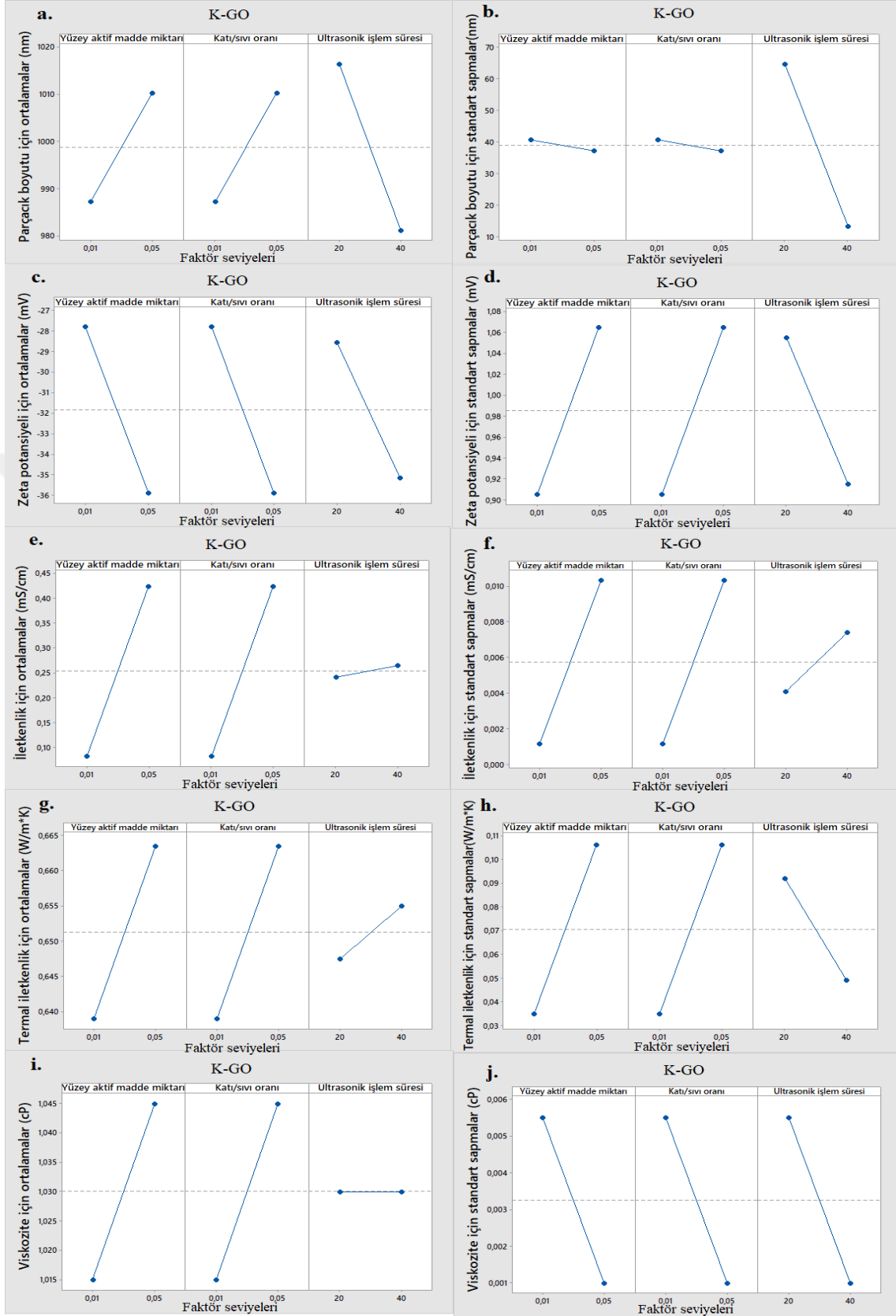
Standart sapma iletkenliğinde yüzey aktif madde miktarı arttıkça iletkenlik artmıştır, katı/sıvı oranı arttıkça iletkenlik artmıştır, ultrasonik işlem süresi arttıkça iletkenlik değeri arttığı gözlemlenmiştir (Şekil 4.15.f).

Ortalama termal iletkenlik yüzey aktif madde miktarı artırıldıkça termal iletkenlik artmıştır, katı/sıvı oranı arttıkça termal iletkenlik artmıştır, ultrasonik işlem süresi artırıldıkça termal iletkenlik arttığı görülmüştür (Şekil 4.15.g).

Standart sapma termal iletkenliğinde yüzey aktif madde miktarı artıkça termal iletkenlik artmıştır, katı/sıvı oranı artıkça termal iletkenlik artmıştır, ultrasonik işlem süresi arttıkça termal iletkenlik azaldığı gözlemlenmiştir (Şekil 4.15.h).

Ortalama viskozite yüzey aktif madde miktarı artıkça viskozite artmıştır, katı/sıvı oranı artıkça viskozite artmıştır, ultrasonik işlem süresi artıkça viskozite değişmediği görülmektedir (Şekil 4.15.i). Yüzey aktif maddedeki ve katı/sıvı oranındaki artış viskozite değerini arttırıcı etkisi beklenildiği gibi görünmüştür. Ultrasonik işlem süresindeki artış viskoziteyi artıcı etkisi beklenilmektedir. Lakin kömür kaynaklı dispersiyonlarda bu etki gözlemlenmemiştir.

Standart sapma viskozite yüzey aktif madde miktarı artıkça viskozite azalmıştır, katı/sıvı oranı artıkça viskozite azalmıştır, ultrasonik işlem süresi artıkça viskozite değerinin azaldığı gözlemlenmiştir (Şekil 4.15.j).



Şekil 4.15 K-GO yanıtları için ana etki grafikleri

Ortalama parçacık boyutu üzerinde yüzey aktif madde ve katı/sıvı oranı faktörleri etkileşimlerinin etkisi gözlemlenmemiştir. Yüzey aktif madde, katı/sıvı oranı ve ultrasonik işlem süresi faktörlerinin sırasıyla 0,01; 0,01; 20 seviyelerinde faktörlerin yanıt üzerinde sinerjistik etkisi gözlemlenmiştir. Yüzey aktif madde, katı/sıvı oranı ve ultrasonik işlem süresi faktörlerinin sırasıyla 0,05; 0,05; 40 seviyelerinde ise faktörlerin yanıt üzerinde antagonistik etkisi gözlemlenmiştir. Katı/sıvı oranı ve ultrasonik işlem süresi faktörlerinin 0,01 ve 20 seviyelerinde ortalama parçacık boyutu artmıştır. Buna karşın 0,05 ve 40 seviyelerinde ise ortalama parçacık boyutu üzerindeki etkisi azaltmıştır (Şekil 4.16.a). Yüzey aktif madde, katı/sıvı oranı ve ultrasonik işlem süresi faktörlerini etkileşimi seviyeler arasındaki farklılıktan dolayı yüksek seviyede parçacık boyutu azalırken, düşük seviyelerde parçacık boyutu artmaktadır. Düşük seviyelerde yeterli yüzey aktif madde olması ve ultrasonik etkinin yetersiz olduğundan bu durum gözlenmektedir.

Standart sapma parçacık boyutunda yüzey aktif madde ve katı/sıvı oranı faktörlerinde etkileşim yoktur. Yüzey aktif madde, katı/sıvı oranı ve ultrasonik işlem süresi faktörlerinin tüm seviyeler için yanıt üzerinde etkisi azaltıcı yönde olmuştur. Katı/sıvı oranı ve ultrasonik işlem süresi etkileşimleri üzerinde yanıtlar tüm seviyeler için standart sapma parçacık boyutu üzerinde etkisi azaltıcı olmuştur (Şekil 4.16.b).

Ortalama zeta potansiyeli üzerinde yüzey aktif madde ve katı/sıvı oranı faktörleri etkileşimi etkisizdir. Yüzey aktif madde, katı/sıvı oranı, ultrasonik işlem süresi faktörleri tüm seviyeler için yanıt üzerinde azaltıcı etkisi olmuştur. Katı/sıvı oranı ve ultrasonik işlem süresi etkileşimleri üzerinde katı/sıvı oranı ve ultrasonik süresi işlem faktörünü tüm seviyeleri için ortalama zeta potansiyeli etkisi azaltmıştır (Şekil 4.16.c). Yüzey aktif madde miktarı, katı/sıvı oranı ve ultrasonik işlem süresi gibi faktörlerin etkileşimi ile katı/sıvı oranı ve ultrasonik işlem süresi faktörlerinin etkileşimleri kararlı dispersiyon hazırlamada istenilen zeta potansiyel değerini düşürücü etkisi gözlenmiştir.

Standart sapma zeta potansiyeli için yüzey aktif madde ve katı/sıvı oranı faktörlerinin etkileşimi etkisizdir. Yüzey aktif madde, katı/sıvı oranı, ultrasonik işlem süresi faktörlerini etkileşimleri üzerinde tüm seviyeler için etkisi standart sapma zeta

potansiyelini etkisi azaltmıştır. Katı/sıvı oranı ve ultrasonik işlem süresi faktörlerinin tüm seviyeleri için standart sapma zeta potansiyeli etkisi azaltmıştır (Şekil 4.16.d).

Ortalama iletkenlikte, yüzey aktif madde ve katı/sıvı oranı faktörleri etkileşimi etkisizdir. Yüzey aktif madde, katı/sıvı oranı ve ultrasonik işlem süresi faktörlerinin sırasıyla 0,05; 0,05; 40 seviyelerinde ortalama iletkenlik etkisi artmıştır. Diğer seviye olan 0,01; 0,01; 20 seviyelerinde ortalama iletkenlik etkisi azaltmıştır. Katı/sıvı oranı ve ultrasonik işlem süresi faktörlerinin sırasıyla 0,05 ve 40 seviyelerinde ortalama iletkenlik artmışken 0,01 ve 20 seviyeleri ortalama iletkenlik etkisi azalma eğilimi göstermiştir (Şekil 4.16.e). Yüzey aktif madde, katı/sıvı oranı ve ultrasonik işlem süresi faktörlerin düşük seviyelerindeki etkileşimin sonuçlar üzerinde antagonistik etki yaparken sadece iletkenlikte sinerjistik etki yaptığı görülmüştür. Bu etki GO miktarından ve GO'nun iletken yapısından kaynaklanmaktadır.

Standart sapma iletkenlik için yüzey aktif madde ve katı/sıvı oranı faktörleri etkileşimleri etkisizdir. Yüzey aktif madde, katı/sıvı oranı ve faktörleri etkileşimlerinde sırasıyla 0,01; 0,01; 20 seviyelerinde standart sapma iletkenlikte etkisi artmıştır. 0,05; 0,05; 40 seviyelerinde standart sapma iletkenlik etkisi azaltmıştır. Katı/sıvı oranı ve ultrasonik işlem süresi etkileşiminden 0,05 ve 40 seviyelerinde standart sapma iletkenlik etkisi artışı, 0,01 ve 20 seviyesinde standart sapma iletkenlik etkisinin azaldığı gözlemlenmiştir (Şekil 4.16.f).

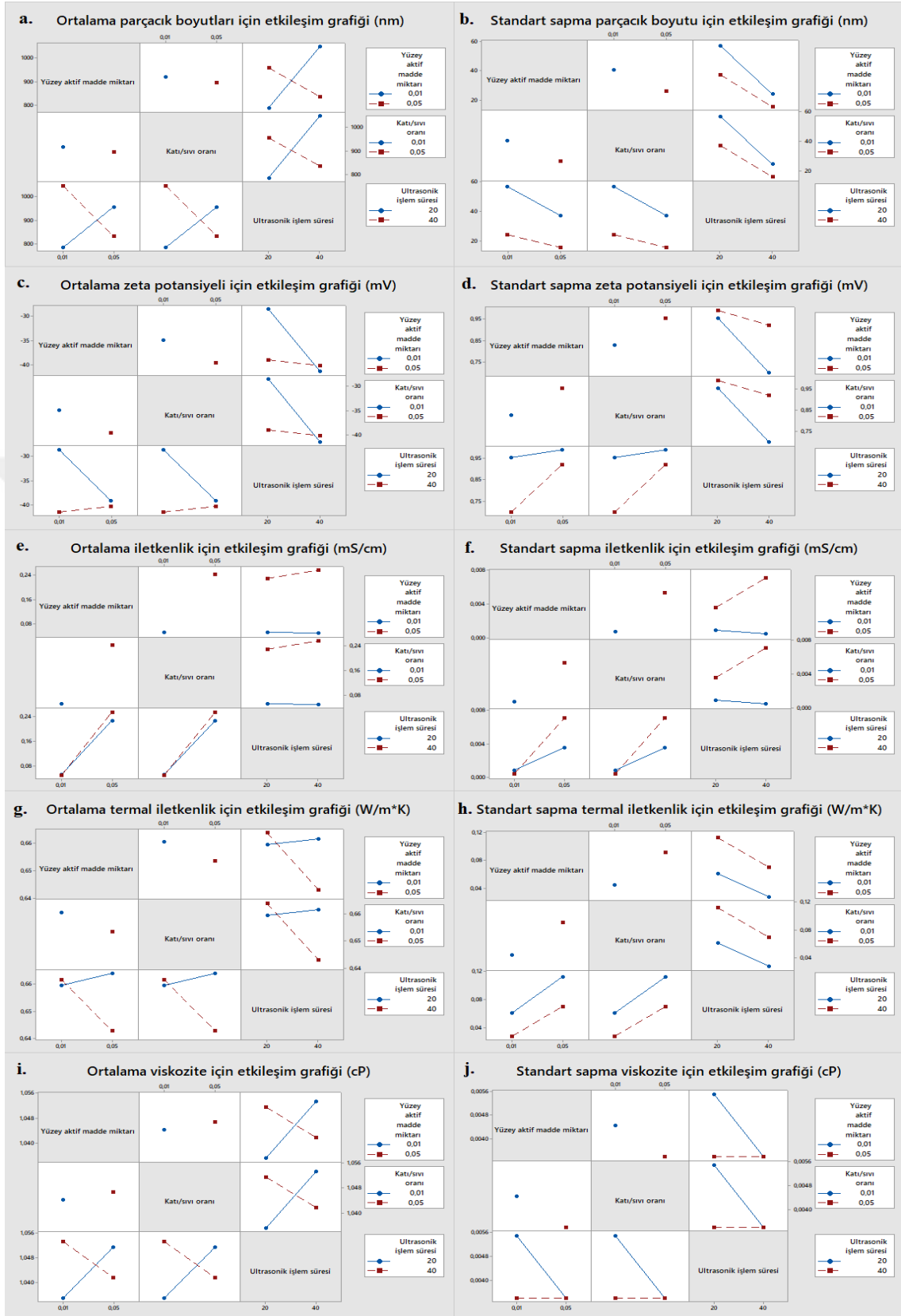
Ortalama ısı iletkenlik üzerinde yüzey aktif madde ve katı/sıvı oranı faktör etkileşimi etkisizdir. Yüzey aktif madde, katı/sıvı oranı ve faktörleri sırasıyla 0,01; 0,01; 20 seviyelerinde ortalama ısı iletkenlik etkisi artış gözlemlenmiştir. 0,05; 0,05; 40 seviyelerinde ise ortalama ısı iletkenlik etkisi azaltmıştır. Katı/sıvı oranı ve ultrasonik işlem süresi faktörlerinin etkileşimlerinde 0,01 ve 20 seviyelerinde ortalama ısı iletkenlik etkisi artmıştır, 0,05 ve 40 seviyelerinde ise ortalama ısı iletkenlik etkisi azaltmıştır (Şekil 4.16.g).

Standart sapma ısı iletkenlik üzerinde yüzey aktif madde ve katı/sıvı oranı faktörlerinin etkileşimlerinin etkisi gözlemlenmemiştir. Yüzey aktif madde, katı/sıvı oranı ve faktörleri etkileşimleri sırasıyla 0,01; 0,01; 20 seviyelerinde standart sapma ısı iletkenlik

üzerinde antagonistik etkisi gözlemlenmiştir. 0,05; 0,05; 40 seviyelerinde ise ortalama ısı iletkenlik üzerinde antagonistik etkisi görülmüştür. Katı/sıvı oranı ve ultrasonik işlem süresi faktörlerinin etkileşimlerinde tüm seviyelerinde standart sapma ısı iletkenlik etkisi azaltıcı olduğu gözlemlenmiştir (Şekil 4.16.h).

Ortalama viskozite üzerinde yüzey aktif madde ve katı/sıvı oranı faktörleri etkileşimlerinin etkisi gözlemlenmemiştir. Yüzey aktif madde, katı/sıvı oranı ve ultrasonik işlem süresi faktörlerinin sırasıyla 0,01; 0,01; 20 seviyelerinde faktörlerin yanıt üzerinde sinerjistik etkisi gözlemlenmiştir. Yüzey aktif madde, katı/sıvı oranı ve ultrasonik işlem süresi faktörlerinin sırasıyla 0,05; 0,05; 40 seviyelerinde ise faktörlerin yanıt üzerinde antagonistik etkisi gözlemlenmiştir. Katı/sıvı oranı ve ultrasonik işlem süresi faktörlerinin 0,01 ve 20 seviyelerinde ortalama parçacık boyutu artmıştır. Buna karşın 0,05 ve 40 seviyelerinde ise ortalama viskozite üzerindeki etkisi azaltmıştır (Şekil 4.16.i). Yüzey aktif madde, katı/sıvı oranı ve ultrasonik işlem süresi faktörlerinin düşük seviyelerinde viskozite artıcı etkisi, yüksek seviyelerinden viskozite azaltıcı etkisi faktörlerin viskozite üzerinden etkili olduğunu göstermiştir.

Standart sapma viskozite üzerinde yüzey aktif madde ve katı/sıvı oranı faktörlerinde etkileşim etkisi yoktur. Yüzey aktif madde, katı/sıvı oranı ve ultrasonik işlem süresi faktörlerinin tüm seviyeler için yanıt üzerinde etkisi azaltıcı yönde olmuştur. Katı/sıvı oranı ve ultrasonik işlem süresi etkileşimleri üzerinde yanıtlar tüm seviyeler için standart sapma parçacık boyutu üzerinde etkisi azaltıcı olmuştur (Şekil 4.16.j).



Şekil 4.16 Yanıtlar için etkileşim etki grafikleri

4.5 K-GO ile G-GO Kıyaslaması

Deney verileri istatistiksel olarak kömürden ve grafitten üretilen GO'nun yanıtları arasında kıyaslama işlemi yapılmıştır. Veri çifti analizinde p_{değeri} yorumlanarak istatistiksel olarak K-GO ve G-GO yanıtları karşılaştırıldığında ortalama zeta potansiyelleri arasında anlamlı bir farkın olduğu kanıtlanmıştır. Çizelge 4.2'de bu veriler paylaşılmıştır.

Çizelge 4.2 Ortalama yanıtlar için veri çifti analizi

Veriler	Ortalama Parçacık Boyutu		Ortalama Zeta Potansiyeli		Ortalama İletkenlik		Ortalama Termal İletkenlik		Ortalama Viskozite	
	K-GO	G-GO	K-GO	G-GO	K-GO	G-GO	K-GO	G-GO	K-GO	G-GO
1	836	735,1	-19,9	-37,2	0,0830	0,0218	0,620	0,699	1,01	1,06
2	1138,6	958,1	-35,7	-47	0,0822	0,0177	0,658	0,665	1,02	1,0866
3	823,8	845,5	-34,6	-45,7	0,4486	0,0607	0,652	0,634	1,04	1,0433
4	1196,6	716,6	-37,2	-40,8	0,4003	0,0565	0,675	0,653	1,05	1,0533
t_{değeri}	1,73		3,86 ¹		2,44		-0,49 ²		-1,90	
p_{değeri}	0,182 ⁺		0,031 [*]		0,093 ⁺		0,657 ⁺		0,154 ⁺	
<p>*p_{değeri} 0,05'den küçük olduğu için aralarında anlamlı bir fark vardır. ⁺ p_{değeri} 0,05'den büyük olduğu için aralarında anlamlı bir fark yoktur. ¹t_{değeri} (+) olduğu sinerjistik etkili ²t_{değeri} (-) olduğu antagonistik etkili</p>										

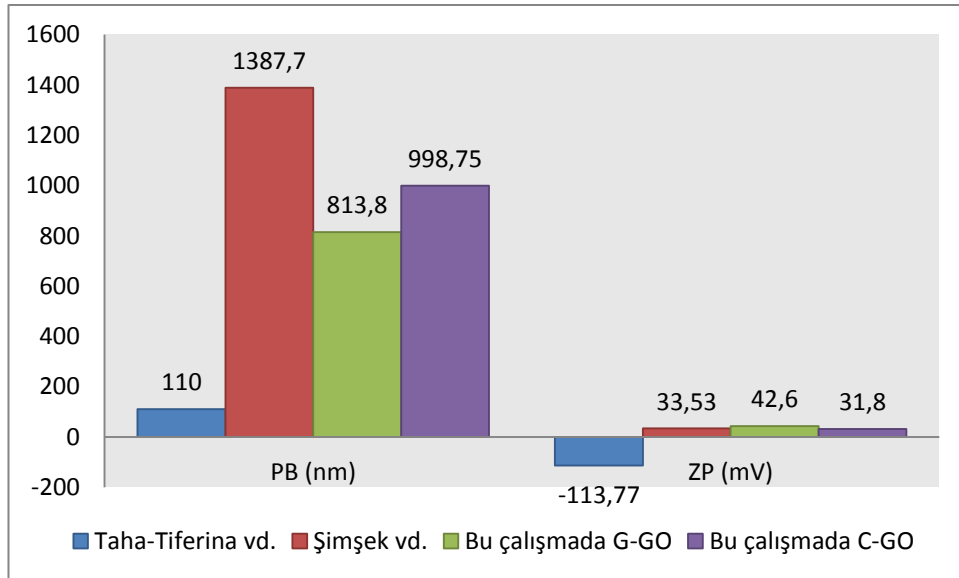
Yanıtlar arasında standart sapma verileri kıyaslandığında K-GO ve G-GO'nun standart sapma değerleri arasında anlamlı bir fark olmadığı görülmüştür. Bu verileri Çizelge 4.3'de verilmiştir.

Çizelge 4.3 Yanıtların standart sapma değerleri için veri çifti analizi

Veriler	Ortalama Parçacık Boyutu		Ortalama Zeta Potansiyeli		Ortalama İletkenlik		Ortalama Termal İletkenlik		Ortalama Viskozite	
	K-GO	G-GO	K-GO	G-GO	K-GO	G-GO	K-GO	G-GO	K-GO	G-GO
1	70,38	43,465	1,41	0,5	0,0015	0,0003	0,0477	0,0744	0,01	0,001
2	10,97	37,585	0,40	1	0,0008	0,0001	0,0225	0,0330	0,001	0,0058
3	15,57	15,91	1,43	0,41	0,014	0,0003	0,0759	0,0642	0,001	0,0058
4	58,73	15,5	0,7	1,28	0,0067	0,0004	0,1365	0,0881	0,001	0,0058
t_{değeri}	0,70		0,42		1,81		0,35		-0,39	
p_{değeri}	0,533 ⁺		0,705 ⁺		0,167 ⁺		0,748 ⁺		0,722 ⁺	
*p _{değeri} 0,05'den küçük olduğu için aralarında anlamlı bir fark vardır. + p _{değeri} 0,05'den büyük olduğu için aralarında anlamlı bir fark yoktur.										

4.6 Literatür ile Kıyaslama

Literatür araştırması sonucunda kömürden üretilen GO'nun dispersiyon hazırlama çalışmasına rastlanılmamıştır. Grafitten üretilen GO'nun dispersiyon çalışmaları değerlendirildiğinde Taha-Tiferina vd. (2015) deiyonize su ile oluşturdukları dispersiyonlarda ortalama parçacık boyunu 110 nm, standart sapma değerini 0,01 μm ve zeta potansiyelini -113,77 mV tespit etmişlerdir. Bir başka çalışma olan Şimşek vd. (2018) yine deiyonize su ile oluşturdukları dispersiyonlarda ortalama parçacık boyutu 1387,7 nm iken, standart sapma parçacık boyutu değeri ise 216,9 nm'dir. Ayrıca, Şimşek ve arkadaşlarının distile su ile oluşturdukları dispersiyonların zeta potansiyeli -33,53 mV olarak belirlemişlerdir. Bu çalışmada grafitten üretilen GO'nun dispersiyonlarının ortalama parçacık boyutu 813,8 nm, parçacık boyutu değerinin standart sapması 28,1 nm ve zeta potansiyeli ise -42,6 mV olarak belirlenmiştir (Şekil 4.17). Bu sonuçlar grafit ile elde edilen dispersiyonların kararlı olduğunun göstergesidir. Bu çalışmada kömürden üretilen GO'nun dispersiyonlarının ortalama parçacık boyutu 998,75 nm, parçacık boyutu değerinin standart sapması 38,9 nm ve zeta potansiyeli ise -31,8 mV olarak belirlenmiştir (Şekil 4.17). Bu sonuçlar kömürün grafen oksit dispersiyonu hazırlamada kullanışlı olduğunun göstergesidir.



Şekil 4.17 Literatür kıyaslaması

4.7 GO Sentezi İin Maliyet Analizi

Hummers yöntemi ile sentezlenen GO'ların maliyet analizine bakıldığında, 5 g GO elde etmek için karbon kaynağı olarak kömürün kullanıldığı yöntemde 12,36 TL, grafitin karbon kaynağı olarak kullanıldığında ise 14,43 TL'lik üretim maliyeti hesaplanmıştır. Üretim miktarı büyüdükçe, büyük ölçekli üretimlerde bu maliyet farkı gittikçe artacaktır. Dolayısıyla kömür ciddi bir karbon kaynağı olarak GO üretiminde kullanılabilir. Yaptığımız çalışmada incelenen GO karakterizyonları karbon kaynağı olarak grafit yerine kömür kullanımının elverişli olduğunu göstermektedir.



5. SONUÇ

Bu çalışmada Hummers yöntemiyle grafitten ve kömürden sentezlenen grafen oksitlerin dispersiyon oluşturma performansları tam faktöriyel deney tasarımı yöntemi ile istatistiki olarak analiz edilmiştir. Çalışma sonuçları aşağıda özetlenmiştir.

1. Kömürün oksite edilmesi ile elde edilen grafen oksitin karakterizasyonu; Raman spektroskopisi, Atomik kuvvet mikroskobu, Taramalı elektron mikroskobu, Enerji yayımlı X-Işını analizi, Ultraviyole görünür spektroskopisi ve Fourier dönüşümlü kızılötesi spektroskopisi ile gerçekleştirilmiştir. Raman analizinde K-GO için I_D/I_G değeri 1,43 olarak belirlenirken, G-GO için I_D/I_G değeri 1,63 olarak belirlenmiştir. Bu sonuç kömürün karbon kaynağı olarak kullanılmasının daha kusurlu bir yapı oluşumuna neden olduğunun göstergesidir. AFM analizinde K-GO için ortalama yüzey pürüzlülüğü 17.68 nm olarak belirlenirken G-GO için ortalama yüzey pürüzlülüğü 12.90 nm olarak ölçülmüştür. Düşük yüzey pürüzlülüğü düşük katman kalınlığına işaret eder ve kömürden grafen oksitin başarılı bir şekilde sentezlendiğinin göstergesidir. EDX analizinde K-GO için C/O oranı 1,49; G-GO için C/O oranı 1,79 olarak, DSC analizinde (20 °C için) K-GO için 0,9095 ($J.g^{-1}.^{\circ}C^{-1}$), G-GO için 1,1240 ($J.g^{-1}.^{\circ}C^{-1}$) olarak belirlenmiştir. Kömür kaynaklı grafen oksitin daha düşük karbon içeriği ve dolayısıyla daha düşük özgül ısı kapasitesine sahip olduğu belirlenmiştir.
2. Kömürden elde edilen grafen oksit dispersiyonları ile grafitten elde edilen grafen oksit dispersiyonları tam faktöriyel deney tasarımı dikkate alınarak oluşturulmuştur. Kömür kaynaklı dispersiyonların parçacık boyutu, zeta potansiyeli, iletkenlik, termal iletkenlik ve viskozite verileri istatistiki yöntemlerle analiz edilmiştir. Parçacık boyutunda grafit kaynaklı dispersiyonlara göre parçacık boyutunda %14,95; zeta potansiyelinde %17,91; iletkenlikte %693,98; termal iletkenlikte %0,15 ve viskozitede %1,27'lik bir artış gözlemlenmiştir. Dolayısıyla özellikle iletkenlikteki iyileştirme oranı düşünüldüğü zaman kararlı dispersiyonların hazırlanmasında grafit yerine kömürde kullanılabileceği sonucuna varılmıştır. Özellikle belirlenen yüksek

iletkenlik kömür kaynaklı kararlı dispersiyonların iletken mürekkep uygulamaları için kullanışlı olduğunu göstermektedir.

3. Grafit ve kömür kaynaklı dispersiyonların parçacık boyutu, zeta potansiyeli, iletkenlik, termal iletkenlik ve viskozite değerleri üzerinde en etkili faktörlerin sırasıyla; ultrasonik işlem süresi, yüzey aktif madde miktarı ve katı/sıvı oranı olduğu belirlenmiştir. Ultrasonik işlem süresi artınca topaklanma artarmıştır. Ultrasonik dalgalar kimyasal bağları parçalama özelliği vardır ve katalizör etkisi gösterir. Düşük ultrasonik işlem süresinin daha küçük parçacık boyutuna, kararlı dispersiyona (yüksek zeta potansiyeli sağlaması açısından) ve daha düşük viskoziteye neden olduğu belirlenmiştir. Buna karşın düşük katı/sıvı oranı ve düşük yüzey aktif madde miktarının ise daha büyük parçacık boyutuna ve zeta potansiyeline sebep olduğu belirlenmiştir. Dispersiyonların iletkenlik değerleri üzerinden en etkili faktörler katı/sıvı oranı ve yüzey aktif madde miktarı olmuştur.
4. Dispersiyonların belirlenen özellikleri üzerinde katı/sıvı oranı ve yüzey aktif madde miktarı etkileşiminin etkili olduğu belirlenmiştir. Sadece dispersiyonların termal iletkenlik değeri kısmen faktörlerin etkileşim etkilerinden etkilenmemiştir.

KAYNAKLAR

- Akbudak, S. 2012. 'Grafenin keşfi', Nanoteknoloji ve Nanotıp Bilim Dergisi, Hacettepe Üniversitesi, Ankara, Nanobülten-16: 5-10.
- Aselsan. 2018. 'ASELPOD İhracatı', ASELSAN: 54-55.
- Avouris, Phaedon. 2010. 'Graphene: electronic and photonic properties and devices', Nano letters, 10: 4285-94.
- Bakır, Sevtap, Veysel Kenan Çelik, İsmail Sari, Serpil Erşan, and Duygu Anaklı. 2016. 'Grafen Oksitin Ksantin Oksidaz Aktivitesi Üzerine İn Vitro Etkisinin İncelenmesi', Süleyman Demirel Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Dergisi, 21: 401-07.
- Banerjee, A, and Haim Grebel. 2008. 'Depositing graphene films on solid and perforated substrates', Nanotechnology, 19: 365303.
- Brodie, Benjamin Collins. 1859. 'XIII. On the atomic weight of graphite', Philosophical Transactions of the Royal Society of London: 249-59.
- Cançado, L Gustavo, A Jorio, EH Martins Ferreira, F Stavale, CA Achete, RB Capaz, MVO Moutinho, Antonio Lombardo, TS Kulmala, and Andrea Carlo Ferrari. 2011. 'Quantifying defects in graphene via Raman spectroscopy at different excitation energies', Nano letters, 11: 3190-96.
- Chen, Ji, Yingru Li, Liang Huang, Chun Li, and Gaoquan Shi. 2015. 'High-yield preparation of graphene oxide from small graphite flakes via an improved Hummers method with a simple purification process', Carbon, 81: 826-34.
- Chen, Li, Na Li, Mingxia Zhang, Pinnan Li, and Zhengping Lin. 2017. 'Effect of preparation methods on dispersion stability and electrochemical performance of graphene sheets', Journal of Solid State Chemistry, 249: 9-14.
- Chen, Wufeng, Lifeng Yan, and PR. The Journal of Physical Chemistry C Bangal. 2010. 'Chemical reduction of graphene oxide to graphene by sulfur-containing compounds', 114: 19885-90.
- Cheng, Meng, Rong Yang, Lianchang Zhang, Zhiwen Shi, Wei Yang, Duoming Wang, Guibai Xie, Dongxia Shi, and Guangyu Zhang. 2012. 'Restoration of graphene from graphene oxide by defect repair', Carbon, 50: 2581-87.
- Choi, Wonbong, Indranil Lahiri, Raghunandan Seelaboyina, and Yong Soo Kang. 2010. 'Synthesis of graphene and its applications: a review', Critical Reviews in Solid State and Materials Sciences, 35: 52-71.
- Coraux, Johann, Alpha T. N 'Diaye, Carsten Busse, and Thomas Michely. 2008. 'Structural coherency of graphene on Ir (111)', Nano letters, 8: 565-70.
- Craciun, M. F., S. Russo, M. Yamamoto, and S. Tarucha. 2011. 'Tuneable electronic properties in graphene', Nano Today, 6: 42-60.
- Çıplak, Zafer. 2013. 'Grafen Temelli Polianilin Gümüş Nanotanecik Nanokompozitlerinin Sentez Ve Karakterizasyonu', Ankara Üniversitesi.
- Dai, Chunhua, Xiaoming Yang, and Hongde. Materials Research Bulletin Xie. 2011. 'One-step synthesis of reduced graphite oxide–silver nanocomposite', 46: 2004-08.
- Dasari, Bhagya Lakshmi, Jamshid M Nouri, Dermot Brabazon, and Sumsun. Energy Naher. 2017. 'Graphene and derivatives–Synthesis techniques, properties and their energy applications', 140: 766-78.

- Del Giudice, Francesco, and Amy Q. Shen. 2017. 'Shear rheology of graphene oxide dispersions', *Current opinion in chemical engineering*, 16: 23-30.
- Dırbalı, Bahar. 2010. 'Nikel Filmlerin Grafen Üretiminde Kullanılmak Üzere Manyetik Alanda Sıçratma Yöntemi İle Üretilmesi'.
- Dong, Yongqiang, Jianpeng Lin, Yingmei Chen, Fengfu Fu, Yuwu Chi, and Guonan Chen. 2014. 'Graphene quantum dots, graphene oxide, carbon quantum dots and graphite nanocrystals in coals', *Nanoscale*, 6: 7410-15.
- Dörtoğul, Cahide. 2018. 'Grafen oksitin sentezlenmesi ve karakterizasyonu', Selçuk Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü.
- Dubois, Sm- M., Zeila Zanolli, Xavier Declerck, and J. C. Charlier. 2009. 'Electronic properties and quantum transport in Graphene-based nanostructures', *The European Physical Journal B*, 72: 1-24.
- Ekanayaka, Thilini K., Seung-Ho Hong, Tian-Zi Shen, and Jang-Kun Song. 2017. 'Effect of solvents on photonic crystallinity in graphene oxide dispersions', *Carbon*, 123: 283-89.
- Elibol, Kenan. 2012. "Karbon nanotüplere giriş." In.
- Emtsev, Konstantin V., Aaron Bostwick, Karsten Horn, Johannes Jobst, Gary L. Kellogg, Lothar Ley, Jessica L. McChesney, Taisuke Ohta, Sergey A. Reshanov, and Jonas Röhr. 2009. 'Towards wafer-size graphene layers by atmospheric pressure graphitization of silicon carbide', *Nature materials*, 8: 203-03.
- Er, Engin. 2013. 'Grafen Oksidin Sülfürik Ve Fosforik Asit Varlığında İndirgenmesi Ve Elektroanalitik Uygulamalarının Araştırılması', Gazi Üniversitesi.
- Eravcu, F. 2016. 'Karbon Tabanlı Nanomalzemelerin Sentezi, Karakterizasyonu, Reolojisi, Isıl İletkenliği Ve Kararlılığı', Cumhuriyet Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü, Yüksek Lisans Tezi, 15.
- Eroğul, Şeyma. 2015. 'Hidrokinon ve katekol tayini için Fe₃O₄ nanopartikül-grafen oksite dayanan elektrokimyasal sensör hazırlanması', Selçuk Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü.
- Fernández-García, Laura, Patricia Álvarez, Ana M. Pérez-Mas, Clara Blanco, Ricardo Santamaría, Rosa Menéndez, and Marcos Granda. 2017a. 'Peculiarities of the production of graphene oxides with controlled properties from industrial coal liquids', *Fuel*, 203: 253-60.
- . 2017b. 'Role of quinoline insoluble particles during the processing of coal tars to produce graphene materials', *Fuel*, 206: 99-106.
- Gamo, Y., A. Nagashima, M. Wakabayashi, M. Terai, and Ch Oshima. 1997. 'Atomic structure of monolayer graphite formed on Ni (111)', *Surface Science*, 374: 61-64.
- Gao, Jian, Fang Liu, Yiliu Liu, Ning Ma, Zhiqiang Wang, and Xi. Chemistry of Materials Zhang. 2010. 'Environment-friendly method to produce graphene that employs vitamin C and amino acid', 22: 2213-18.
- Gao, Li, Jeffrey R. Guest, and Nathan P. Guisinger. 2010. 'Epitaxial graphene on Cu (111)', *Nano letters*, 10: 3512-16.
- Geim, Andre K., and Konstantin S. Novoselov. 2010. 'The rise of graphene.' in (World Scientific).
- Gökçe, Barış, and S. Taşgetiren. 2009. 'Kalite İçin Deney Tasarımı', *Makine Teknolojileri Elektronik Dergisi*, 6: 71-83.

- Guerrero-Contreras, Jesus, and Felipe Caballero-Briones. 2015. 'Graphene oxide powders with different oxidation degree, prepared by synthesis variations of the Hummers method', *Materials Chemistry and Physics*, 153: 209-20.
- Gülen, Jale, Selami Toprak, and Sabriye Pişkin. 2012. 'Batı Türkiye Kömürlerine ait Bazı Karakteristik Özellikler', *Karaelmas Fen ve Mühendislik Dergisi*, 2: 27-33.
- Hasgül, Özlem. 2011. 'Ürün Ve Süreçlerin Geliştirilmesinde Deney Tasarımı: Gıda Sektöründe Bir Uygulama', *Yönetim ve Ekonomi Araştırmaları Dergisi*, 9: 42-67.
- Hoang, Van Chinh, Mahbub Hassan, and Vincent G. Gomes. 2018. 'Coal derived carbon nanomaterials – Recent advances in synthesis and applications', *Applied Materials Today*, 12: 342-58.
- Hofmann, Ulrich, and Ernst. *Zeitschrift für anorganische und allgemeine Chemie* König. 1937. 'Untersuchungen über graphitoxyd', 234: 311-36.
- Hummers Jr, William S., and Richard E. Offeman. 1958. 'Preparation of graphitic oxide', *Journal of the american chemical society*, 80: 1339-39.
- Hur, Seung Hyun, and Jin- Nam Park. 2013. 'Graphene and its application in fuel cell catalysis: a review', *Asia- Pacific Journal of Chemical Engineering*, 8: 218-33.
- Ilkevich, LV, TB Tkachenko, AV Samarov, AA Burtsev, SA Sozinov, LM Hitsova, AN Popova, Ch N Barnakov, and AP Kozlov. 2018. 'Fabrication and physicochemical characterization of graphene oxide derived from thermally expanded graphite', *Russian Chemical Bulletin*, 67: 986-90.
- Katsnelson, Mikhail I. 2007. 'Graphene: carbon in two dimensions', *Materials today*, 10: 20-27.
- Konios, Dimitrios, Minas M. Stylianakis, Emmanuel Stratakis, and Emmanuel Kymakis. 2014. 'Dispersion behaviour of graphene oxide and reduced graphene oxide', *Journal of Colloid and Interface Science*, 430: 108-12.
- Korucu, H, B Şimşek, MM Kocakerim, and İH Karakaş. 2019. 'Effective reduction of graphene oxide using sulfur dioxide-containing chemical compounds', *International Journal of Environmental Science and Technology*: 1-14.
- Korucu, Haluk, Barış Şimşek, and Ahmet Yartaşı. 2018. 'A TOPSIS-based Taguchi design to investigate optimum mixture proportions of graphene oxide powder synthesized by hummers method', *Arabian Journal for Science and Engineering*, 43: 6033-55.
- Lai, Qi, Shifu Zhu, Xueping Luo, Min Zou, and Shuanghua Huang. 2012. 'Ultraviolet-visible spectroscopy of graphene oxides', *AIP Advances*, 2: 032146.
- Land, T. A., Th Michely, R. J. Behm, J. C. Hemminger, and G. Comsa. 1992. 'STM investigation of single layer graphite structures produced on Pt (111) by hydrocarbon decomposition', *Surface Science*, 264: 261-70.
- Lazic, Zivorad R. 2006. *Design of experiments in chemical engineering: a practical guide* (John Wiley & Sons).
- Li, Xuesong, Weiwei Cai, Jinho An, Seyoung Kim, Junghyo Nah, Dongxing Yang, Richard Piner, Aruna Velamakanni, Inhwa Jung, and Emanuel Tutuc. 2009. 'Large-area synthesis of high-quality and uniform graphene films on copper foils', *Science*, 324: 1312-14.
- Liu, Sen, Jingqi Tian, Lei Wang, Yonglan Luo, Wenbo Lu, Xuping. Biosensors Sun, and bioelectronics. 2011. 'Self-assembled graphene platelet–glucose oxidase nanostructures for glucose biosensing', 26: 4491-96.

- Marcano, Daniela C, Dmitry V Kosynkin, Jacob M Berlin, Alexander Sinitskii, Zhengzong Sun, Alexander Slesarev, Lawrence B Alemany, Wei Lu, and James M Tour. 2010. 'Improved synthesis of graphene oxide', *ACS nano*, 4: 4806-14.
- McCoy, Thomas M., Geosmin Turpin, Boon Mian Teo, and Rico F. Tabor. 2019. 'Graphene oxide: a surfactant or particle?', *Current Opinion in Colloid & Interface Science*, 39: 98-109.
- Montgomery, Douglas C. 2017. *Design and analysis of experiments* (John Wiley & sons).
- Mungse, Harshal P., Kanika Gupta, Raghuvir Singh, Om P. Sharma, Hiroyuki Sugimura, and Om P. Khatri. 2019. 'Alkylated graphene oxide and reduced graphene oxide: Grafting density, dispersion stability to enhancement of lubrication properties', *Journal of Colloid and Interface Science*, 541: 150-62.
- Muzyka, Roksana, Monika Kwoka, Łukasz Smeđowski, Noel Díez, and Grażyna Gryglewicz. 2017. 'Oxidation of graphite by different modified Hummers methods', *New Carbon Materials*, 32: 15-20.
- Nair, Rahul Raveendran, Peter Blake, Alexander N. Grigorenko, Konstantin S. Novoselov, Tim J. Booth, Tobias Stauber, Nuno M. R. Peres, and Andre K. Geim. 2008. 'Fine structure constant defines visual transparency of graphene', *Science*, 320: 1308-08.
- Nobel Media, A. B. 2010. "The Nobel Prize in Physics 2010." In, NobelPrize.org.
- Novoselov, Kostya S., Andre K. Geim, Sergei V. Morozov, D. Jiang, Y. Zhang, Sergey V. Dubonos, Irina V. Grigorieva, and Alexandr A. Firsov. 2004. 'Electric field effect in atomically thin carbon films', *Science*, 306: 666-69.
- Park, Sungjin, Jinho An, Jeffrey R Potts, Aruna Velamakanni, Shanthi Murali, and Rodney S. Carbon Ruoff. 2011. 'Hydrazine-reduction of graphite-and graphene oxide', 49: 3019-23.
- Park, Sungjin, and Rodney S. Nature nanotechnology Ruoff. 2009. 'Chemical methods for the production of graphenes', 4: 217.
- Pei, Songfeng, Jinping Zhao, Jinhong Du, Wencai Ren, and Hui-Ming. Carbon Cheng. 2010. 'Direct reduction of graphene oxide films into highly conductive and flexible graphene films by hydrohalic acids', 48: 4466-74.
- Peng, Shuge, Xinjie Fan, Shuang Li, and J. U. N. Zhang. 2013. Green synthesis and characterization of graphite oxide by orthogonal experiment.
- Pham, Tuan Anh, Jeong Sik Kim, Jeong Su Kim, Yeon Tae. *Colloids Jeong, Surfaces A: Physicochemical, and Engineering Aspects*. 2011. 'One-step reduction of graphene oxide with L-glutathione', 384: 543-48.
- Phiri, Josphat, Patrick Gane, Thad C. Materials Science Maloney, and Engineering: B. 2017. 'General overview of graphene: Production, properties and application in polymer composites', 215: 9-28.
- Powell, Clois, and Gary W. Beall. 2015. 'Graphene oxide and graphene from low grade coal: Synthesis, characterization and applications', *Current Opinion in Colloid & Interface Science*, 20: 362-66.
- Purwandari, Vivi, Saharman Gea, Basuki Wirjosentono, and Agus Haryono. 2018. Synthesis of graphene oxide from the Sawahlunto-Sijunjung coal via modified hummers method.

- Randviir, Edward P, Dale AC Brownson, and Craig E. Materials Today Banks. 2014. 'A decade of graphene research: production, applications and outlook', 17: 426-32.
- Samal, Alaka, and Dipti P. Catalysis Today Das. 2018. 'Transfiguring UV light active "metal oxides" to visible light active photocatayst by reduced graphene oxide hypostatization', 300: 124-35.
- Sarier, Nihal. 2018. "Grafenin Öyküsü." In.
- Shahriary, Leila, and Anjali A. Athawale. 2014. 'Graphene oxide synthesized by using modified hummers approach', Int. J. Renew. Energy Environ. Eng, 2: 58-63.
- Shams, S Saqib, Ruoyu Zhang, and Jin Zhu. 2015. 'Graphene synthesis: a Review', Materials Science-Poland, 33: 566-78.
- Simsek, B. 2014. 'A Multi-Response Optimization and Modeling Application for Determining Optimal Mix Proportions o Ready-Mixed Concrete: Response Surface Methodology (RSM) with A TOPSIS based Taguchi Approach [dissertation: In Turkish]', Ankara University, Ankara: 207.
- Soldano, Caterina, Ather Mahmood, and Erik Dujardin. 2010. 'Production, properties and potential of graphene', Carbon, 48: 2127-50.
- Song, Min Yeong, Young Soo Yun, Na Rae Kim, and Hyoung-Joon Jin. 2016. 'Dispersion stability of chemically reduced graphene oxide nanoribbons in organic solvents', RSC Advances, 6: 19389-93.
- Song, Mo, and Dongyu Cai. 2012. 'Graphene functionalization: A review', Polymer-Graphene Nanocomposites, 26: 1-51.
- Song, Peng, Xiaoyan Zhang, Mingxuan Sun, Xiaoli Cui, and Yuehe. Rsc Advances Lin. 2012. 'Synthesis of graphene nanosheets via oxalic acid-induced chemical reduction of exfoliated graphite oxide', 2: 1168-73.
- Staudenmaier, L. Berichte der deutschen chemischen Gesellschaft. 1898. 'Verfahren zur darstellung der graphitsäure', 31: 1481-87.
- Sutter, Peter. 2009. 'Epitaxial graphene: How silicon leaves the scene', Nature materials, 8: 171-71.
- Sutter, Peter W., Jan-Ingo Flege, and Eli A. Sutter. 2008. 'Epitaxial graphene on ruthenium', Nature materials, 7: 406-06.
- Şimşek, Barış, Gözde Ultav, Haluk Korucu, and Ahmet Yartaşı. 2018. 'Improvement of the graphene oxide dispersion properties with the use of TOPSIS based Taguchi application', Periodica Polytechnica Chemical Engineering, 62: 323-35.
- Taha-Tijerina, Jaime, Deepika Venkataramani, Clint P. Aichele, Chandra Sekhar Tiwary, James E. Smay, Akshay Mathkar, Patricia Chang, and Pulickel M. Ajayan. 2015. 'Quantification of the Particle Size and Stability of Graphene Oxide in a Variety of Solvents', Particle & Particle Systems Characterization, 32: 334-39.
- Tiyek, İsmail, Utkay Dönmez, Behzat Yıldırım, Mehmet Hakkı Alma, Mehmet Sabri Ersoy, and Şükrü Karataş. 2016. 'Kimyasal yöntem ile indirgenmiş grafen oksit sentezi ve karakterizasyonu', Sakarya University Journal of Science, 20: 349-57.
- Tiyek, İsmail, Mehmet Sabri Ersoy, Mehmet Hakkı Alma, Utkay Dönmez, Behzat Yıldırım, Tufan Salan, Şükrü Karataş, Serhan Uruş, İbrahim Karteri, and Kübra Yıldız. 2016. 'Modifiye Hummers Yöntemiyle Grafen Oksit (GO) Sentezi ve Karakterizasyonu', Gazi Üniversitesi Fen Bilimleri Dergisi Part C: Tasarım ve Teknoloji, 4: 41-48.

- Tung, Vincent C, Matthew J Allen, Yang Yang, and Richard B. Nature nanotechnology Kaner. 2009. 'High-throughput solution processing of large-scale graphene', 4: 25.
- Türkiye Taşkömürü Kurumu. 2019. ' Taşkömürü Analiz değerleri', Erişim Tarihi: 21.05.2019.
http://www.taskomuru.gov.tr/file/KOMURFIYAT/Analiz_degerleri.pdf.
- Vijapur, Santosh H., Dan Wang, David C. Ingram, and Gerardine G. Botte. 2017. 'An investigation of growth mechanism of coal derived graphene films', Materials Today Communications, 11: 147-55.
- Wahab, Hilal S, Salam H Ali, and AM Abdul Hussein. 2015. 'Synthesis and characterization of graphene by Raman spectroscopy', J Mater Sci Appl, 1: 130-35.
- Wakeland, Stephen, Ricardo Martinez, John K Grey, and Claudia C. Carbon Luhrs. 2010. 'Production of graphene from graphite oxide using urea as expansion–reduction agent', 48: 3463-70.
- Wei, Jiacheng, Thuc Vo, and Fawad Inam. 2015. Epoxy/graphene nanocomposites – processing and properties: a review.
- William, S., J. R. Hummers, Richard E. Offeman, and others. 1958. 'Preparation of graphitic oxide', J. Am. Chem. Soc, 80: 1339-39.
- Yadav, Nisha, and Bimlesh Lochab. 2019. 'A comparative study of graphene oxide: Hummers, intermediate and improved method', FlatChem, 13: 40-49.
- Yang, Xiaoyin, Xi Dou, Ali Rouhanipour, Linjie Zhi, Hans Joachim Räder, and Klaus. Journal of the American Chemical Society Müllen. 2008. 'Two-dimensional graphene nanoribbons', 130: 4216-17.
- Yazici, Mustafa, Ömer ÖNal, and Oğuzhan Konuş. 2018. Graphene Katkılı Sıvılaştırılmış Fındık Kabuğu Polyvinyl pyrrolidone (PVP) Nanoyüzeylerin Elektrospinning Tekniği İle Elde Edilmesi Ve Karakterizasyonu.
- Ye, Ruquan, Changsheng Xiang, Jian Lin, Zhiwei Peng, Kewei Huang, Zheng Yan, Nathan P. Cook, Errol L. G. Samuel, Chih-Chau Hwang, Gedeng Ruan, Gabriel Ceriotti, Abdul-Rahman O. Raji, Angel A. Martí, and James M. Tour. 2013. 'Coal as an abundant source of graphene quantum dots', Nature Communications, 4: 2943.
- Yıldız, Bayram. 2016. 'Grafenin kaymalı yataklara uygulanması'.
- Yoo, Myung Jin, and Ho Bum Park. 2019. 'Effect of hydrogen peroxide on properties of graphene oxide in Hummers method', Carbon, 141: 515-22.
- Zaaba, NI, KL Foo, U Hashim, SJ Tan, Wei-Wen Liu, and CH Voon. 2017. 'Synthesis of graphene oxide using modified hummers method: solvent influence', Procedia engineering, 184: 469-77.
- Zhou, Quan, Zongbin Zhao, Yating Zhang, Bo Meng, Anning Zhou, and Jieshan Qiu. 2012. 'Graphene sheets from graphitized anthracite coal: preparation, decoration, and application', Energy & Fuels, 26: 5186-92.
- Zhou, Xufeng, Wei Wang, and Zhaoping Liu. 2014. 'Graphene overview', Graphene: Energy Storage and Conversion Applications, 6: 1-1.
- Zhuo, Qiqi, Jing Gao, Mingfa Peng, Lili Bai, Jiujun Deng, Yujian Xia, Yanyun Ma, Jun Zhong, and Xuhui. Carbon Sun. 2013. 'Large-scale synthesis of graphene by the reduction of graphene oxide at room temperature using metal nanoparticles as catalyst', 52: 559-64.

Ziyadanođulları, NeŒe Budak. Batman Üniversitesi YaŒam Bilimleri Dergisi. 2017. 'Al₂O₃-Su NanoakıŒkanı İle Isı Transferinin İyileŒtirilmesi', 7: 253-60.

Zümrüt, Zeynep. 2009. 'Tam Faktöriyel Deney Tasarımı Tekniđi ile Hidroksiapatit Kaplı Titanyum İmplant Malzemelerin Mekanik Özellikleri Üzerine Parametrelerin Etkisi'.



ÖZGEÇMİŞ

Adı Soyadı : Recep Berk ALP
Doğum Yeri : Zonguldak
Doğum Tarihi : 15.12.1994
Medeni Hali : Bekar
Yabancı Dili : İngilizce
Adres : Öteyüz Mahallesi Çakmacılar Caddesi 8/5 Filyos
Çaycuma/Zonguldak

Tel : 0543 671 48 69
E-posta : recepberkalp@windowslive.com

Eğitim Durumu

Lise : Filyos Atacan Şanlı Lisesi (2012)
Lisans : Çankırı Karatekin Üniversitesi (2016)
Yüksek Lisans: Çankırı Karatekin Üniversitesi (2019)

Çalıştığı Kurum/Kurumlar

Gürmak Demiryolu Bağlantı Elemanları San. Tic. A.Ş.- Üretim Sorumlusu / Devam ediyor

Yayınlar

Makaleler

1. Alp, R.B., Dilmaç, Ö. F. ve Şimşek, B. Grafit ve Ömrünü Tamamlamış Atık Lastikten Elde Edilen Karbon Siyahının İyileştirilmiş Hummers Yöntemi İle Oksidasyonu. International Journal of Advances in Engineering and Pure Sciences, 2019, kabul edildi.

Bildiriler

1. Alp, R.B., Dilmaç, Ö. F. ve Şimşek, B. Yüksek kaliteli kömürün Hummers yöntemi ile oksidasyonu. International Eurasian Conference on Biological and Chemical Sciences, June 28-29, 2019, Ankara, Turkey, Sözlü olarak sunuldu.