



T.C.
KAHRAMANMARAŞ SÜTÇÜ İMAM ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

GRAFEN OKSİT ESASLI HİBRİT
MATERYALLERİN SENTEZİ,
KARAKTERİZASYONU VE ELEKTROKİMYASAL
ÖZELLİKLERİNİN İNCELENMESİ

ADEM BÜYÜK

YÜKSEK LİSANS TEZİ
KİMYA ANABİLİM DALI

KAHRAMANMARAŞ 2025

T.C.
KAHRAMANMARAŞ SÜTÇÜ İMAM ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

GRAFEN OKSİT ESASLI HİBRİT
MATERİYALLERİN SENTEZİ,
KARAKTERİZASYONU VE ELEKTROKİMYASAL
ÖZELLİKLERİNİN İNCELENMESİ

ADEM BÜYÜK

YÜKSEK LİSANS
Kimya Anabilim Dalı

KAHRAMANMARAŞ 2025

TEZ BİLDİRİMİ

Tez içindeki bütün bilgilerin etik davranış ve akademik kurallar çerçevesinde elde edilerek sunulduğunu, ayrıca tez yazım kurallarına uygun olarak hazırlanan bu çalışmada, alıntı yapılan her türlü kaynağa eksizsiz atıf yapıldığını bildiririm.

Adem BÜYÜK



Not: Bu tezde kullanılan özgün ve başka kaynaktan yapılan bildirişlerin, çizelge, şekil ve fotoğrafların kaynak gösterilmeden kullanımı, 5846 sayılı Fikir ve Sanat Eserleri Kanunundaki hükümlere tabidir.

**GRAFEN OKSİT ESASLI HİBRİT MATERYALLERİN SENTEZİ,
KARAKTERİZASYONU VE ELEKTROKİMYASAL ÖZELLİKLERİNİN
İNCELENMESİ**

(YÜKSEK LİSANS TEZİ)

ADEM BÜYÜK

ÖZET

Yüksek lisans tezi kapsamında yaptığımız çalışmada, saf grafenin fonksiyonel hale getirilebilmesi için modifiye Hummer's metodu kullanılmıştır. Bu metot ile grafen, grafen oksit (GO) haline yükseltgenmiş ve GO tabakaları oluşmuştur. GO yüzeyinde karboksil (-COOH), hidroksil (-OH), karbonil (-CO) ve peroksit gibi fonksiyonel gruplar oluşmaktadır. İnorganik-organik hibritler hazırlamak için inorganik malzeme olarak grafen kullanılmıştır. Ek olarak, organik madde olarak ise 2-amino-4-metil pridin, 2-amino-5-kloro pridin ve 2-amino-5-metil pridin kullanılmıştır. GO'nin fonksiyonellik kazanması için karboksil ve karbonil gibi gruplar elektrofilik merkezler olduğu için çeşitli nükleofilik özelliği olan organik bileşiklerle tepkimeye sokularak hibrit olarak adlandırılan bileşikler elde edilmiştir. Çeşitli primer aminlerle GO'nin tepkimesinden amid ve imin yapısında çok sayıda bileşik sentezlenmiştir. Bu yapıdaki hibritler kompleks oluşturma, katalitik tepkimelerde kullanmak için katalizör sentezi, ağır metal kirliliği giderimi, organik kirlilik giderimi, ilaç salınım çalışmalarında kullanım özelliğine sahip bileşiklerin elde edilmesi veya sensör özelliğine sahip malzemelerin hazırlanması gibi çok amaçlı kullanım özelliklerine sahip bileşikler elde edilebilmiştir. Ligand özelliğine sahip amid karakterinde GO tabanlı bu hibrit malzemelerin sentezi yapıldıktan sonra oluşan yapının karakterizasyonu, elektrokimyasal ve termal özelliklerinin incelenmesi için FTIR, XRD, UV-vis, FL, SEM, TGA gibi yöntemler kullanılarak aydınlatılmıştır.

Anahtar Kelimeler: Grafen, GO, Hibrit Malzeme, Katalizör Sentezi, Katalitik Tepkime

Kahramanmaraş Sütçü İmam Üniversitesi
Fen Bilimleri Enstitüsü

Kimya Bölümü Anabilim Dalı, Mart / 2025

Danışman: Prof. Dr. Mehmet TÜMER

Sayfa sayısı: 50

SYNTHESIS, CHARACTERIZATION AND INVESTIGATION OF ELECTROCHEMICAL PROPERTIES OF GRAPHENE OXIDE BASED HYBRID MATERIALS

(M.Sc. THESIS)

ADEM BÜYÜK

ABSTRACT

In our master's thesis study, modified Hummer's method was used to functionalize pure graphene. With this method, graphene was oxidized to graphene oxide and graphene oxide layers were formed. Functional groups such as carboxyl (-COOH), hydroxyl (-OH), carbonyl (-CO) and peroxide were formed on the graphene oxide surface. Graphene was used as an inorganic material to prepare inorganic-organic hybrids. In addition, 2-amino-4-methyl pyridine, 2-amino-5-chloro pyridine and 2-amino-5-methyl pyridine were used as organic substances. Since groups such as carboxyl and carbonyl are electrophilic centers for GO to gain functionality, it was reacted with various organic compounds with nucleophilic properties and compounds called hybrids were obtained. Many compounds with amide and imine structures were synthesized from the reaction of GO with various primary amines. Hybrids with this structure have been able to obtain compounds with multi-purpose usage properties such as complex formation, catalyst synthesis for use in catalytic reactions, heavy metal pollution removal, organic pollution removal, obtaining compounds with usage properties in drug delivery studies or preparing materials with sensor properties. After the synthesis of these GO-based hybrid materials with ligand properties in amide character, the characterization of the resulting structure was illuminated using methods such as FTIR, XRD, UV-vis, FL, SEM, TGA to examine its electrochemical and thermal properties.

Keywords: Graphene, GO, Hybrid Material, Catalyst Synthesis, Catalytic Reaction

Kahramanmaras Sutcu Imam University
Institute of Science
Department of Chemistry, March / 2025

Supervisor: Prof. Dr. Mehmet TÜMER

Page Numbers: 50

TEŞEKKÜR

Akademik kimliğine ilaveten harika insani değerleriyle her zaman bana destek olan; değerli bilgileriyle, bilimsel öneri ve katkılarıyla beni yönlendiren ve tezin hazırlanması sürecinde yolumuza ışık tutan, kıymetli kişilik, saygı değer danışman hocam **Prof. Dr. Mehmet TÜMER**' e, tez çalışmalarımın her aşamasında, bilgi birikimlerinde yardımlarını esirgemeyen hem bilimsel hem de manevi desteği ile varlığını yanımda hissettiren kıymetli hocalarım, Sayın **Doç. Dr. Seyit Ali GÜNGÖR**'e ve **Doç. Dr. Ayşegül KÖSE**'ye tez kapsamında bilgi birikimi ve tecrübesini esirgmeden özverili ve azimli kişiliği ile yardımcı olan Sayın **Öğr. Gör. Dr. Mustafa BAL**'a Kimya bölümünün çok değerli hocalarından Sayın **Prof. Dr. Mükerrerem KURTOĞLU** ve **Prof. Dr. Muhammet KÖSE**' ye, varlığıyla manevi desteğini hiç esirgemeyen, dualarını üzerimden eksik etmeyen değerli Annem'e ve Babam'a, aldığım tüm kararlarda her zaman destekçim olan hayat arkadaşım, sevgili eşim **Tuğba BÜYÜK** ve varlıkları hayatta olma sebebim olan çok kıymetli çocuklarım **Erva BÜYÜK** ve **Miraç Mete BÜYÜK**' e,

Çalışmalarım süresince bana verdikleri destek ve gösterdikleri sabırdan dolayı

Teşekkür ederim.

İÇİNDEKİLER

ÖZET	i
ABSTRACT	ii
TEŞEKKÜR.....	iii
İÇİNDEKİLER.....	iv
ŞEKİLLER DİZİNİ.....	vi
ÇİZELGELER DİZİNİ.....	viii
SİMGELER VE KISALTMALAR DİZİNİ.....	ix
1. GİRİŞ	1
2. ÖNCEKİ ÇALIŞMALAR	9
3. MATERYAL VE METOT	15
3.1. Materyal.....	15
3.1.1. Kullanılan Kimyasal Maddeler.....	15
3.1.2. Kullanılan Cihazlar.....	16
3.2. Grafen Oksit (GO) Sentezi	17
3.3. Hibrit Bileşiklerin Sentezi	18
4. BULGULAR VE TARTIŞMA	20
4.1. GO yapısına ait analizler	20
4.1.1. GO Malzemesinin FTIR analizi	20
4.1.2. GO Malzemesinin XRD Analizi.....	21
4.1.3. GO Malzemesinin UV-vis Analizi	22
4.1.4. GO Malzemesine ait FL Analizi.....	23
4.1.5. GO Malzemesinin SEM analizi	24
4.1.6. GO Malzemesinin TGA analizi	24
4.2. Hibrit Malzemelerinin Analizleri	25
4.2.1. Organik- İnorganik hibrit malzemelerin FTIR spektrumları.....	25

4.2.2.	Hibrit Malzemelerin XRD Analizi	28
4.2.3.	Hibrit Materyallerinin Elektrokimyasal Özellikleri	30
4.2.4.	Hibrit Materyallerinin Elektronik Özellikleri.....	32
4.2.5.	Hibrit Materyallerin FL Analizi	33
4.2.6.	Hibrit Materyallerinin Termal Özelliklerinin İncelenmesi.....	34
4.2.7.	Hibrit Materyallerinin SEM Görüntüleri	36
5.	SONUÇLAR	41
	KAYNAKLAR.....	43
	ÖZGEÇMİŞ	47
	EK DOSYA	48

ŞEKİLLER DİZİNİ

Şekil 1.1 Grafen'in elektronik yapısı.....	3
Şekil 1.2 Tek bir Grafen tabakasının (a) ve GO'nun (b) görünümü.	4
Şekil 1.3 İmidazolium modifiyeli GO hibrit malzemesi anyon değişim reaksiyonları.	5
Şekil 1.4 GO Dönüşümlü Voltametri.	6
Şekil 1.5 GO ve TPP Hibrit bileşiği.	7
Şekil 2.1 Nitroaromatik patlayıcı tespitinde kullanılan GO temelli hibrit malzemesi(Bal et al., 2022).....	9
Şekil 2.2 İçme suyu ve standart çözeltilerde Co(II) ve Zn(II) iyonlarını uzaklaştırmada adsorban olarak kullanılan hibrit malzeme.....	12
Şekil 2.3 Metal iyonlarıyla etkileşen GO–EDTA hibritinin yapısı.	12
Şekil 2.4 Kirletici özelliğe sahip boyaların uzaklaştırılmasında kullanılmak üzere hazırlanmış olan amonyak fonksiyonelize edilmiş GO.	13
Şekil 3.1 GO sentezi	18
Şekil 3.2 AB-1-AB-2-AB-3 Hibrit Bileşiklerinin Sentez Basamağı.....	19
Şekil 4.1 GO malzemesine ait FTIR spektrumu.....	21
Şekil 4.2 GO malzemesine ait XRD spektrumu.	22
Şekil 4.3 GO malzemesine ait UV-vis spektrumu.....	23
Şekil 4.4 GO Malzemesine ait FL spektrumu.	23
Şekil 4.5 GO Malzemesine ait SEM görüntüleri.....	24
Şekil 4.6 GO Malzemesine ait TGA şekli	25
Şekil 4.7 AB-1 Hibrit Malzemesine ait FTIR spektrumu.....	26
Şekil 4.8 AB-2 Hibrit Malzemesine ait FTIR spektrumu.....	27
Şekil 4.9 AB-3 Hibrit Malzemesine ait FTIR spektrumu.....	28
Şekil 4.10 AB-1 Hibrit Malzemesine ait XRD spektrumu.....	29
Şekil 4.11 AB-2 Hibrit Malzemesine ait XRD spektrumu.....	29
Şekil 4.12 AB-3 Hibrit Malzemesine ait XRD spektrumu.....	30
Şekil 4.13 AB-1 Hibrit Malzemesine ait Siklik Voltamogram Grafiği.	31
Şekil 4.14 AB-2 Hibrit Malzemesine ait Siklik Voltamogram Grafiği.	32
Şekil 4.15 AB-3 Hibrit Malzemesine ait Siklik Voltamogram Grafiği.	32
Şekil 4.16 AB-1, AB-2 ve AB-3 Hibrit Malzemelerine ait UV-vis spektrumları.	33
Şekil 4.17 AB-1, AB-2 ve AB-3 Hibrit Malzemelerine ait FL spektrumları.	34
Şekil 4.18 AB-1 Hibrit Malzemesine ait TGA/DTA eğrisi.....	35

Şekil 4.19 AB-2 Hibrit Malzemesine ait TGA/DTA eğrisi.....	35
Şekil 4.20 AB-3 Hibrit Malzemesine ait TGA/DTA eğrisi.....	36
Şekil 4.21 AB-1 malzemesine ait (a) SEM görüntüleri ve (b) EDX verileri.....	37
Şekil 4.22 AB-2 malzemesine ait (a) SEM görüntüleri ve (b) EDX verileri.....	38
Şekil 4.23 AB-3 malzemesine ait (a) SEM görüntüleri ve (b) EDX verileri.....	39



ÇİZELGELER DİZİNİ

Çizelge 3.1 Kullanılan kimyasal maddeler.....	15
Çizelge 3.2 Kullanılan cihazlar.	16



SİMGELER VE KISALTMALAR DİZİNİ

GO	: Grafen Oksit
M	: Metre
G	: Gram
Nm	: Nanometre
°C	: Santigrat derece
EDX	: Enerji dağıtıcı X ışını spektroskopisi
XRD	: X-Işınları difraksiyonu
SEM	: Taramalı elektron mikroskobu
FTIR	: Fourier dönüşümlü kızılötesi spektroskopisi
UV-vis	: Ultraviyole ve görünür ışık spektroskopisi
CNT	: Karbon nanotüp
K	: Kelvin derece
Cm	: Santimetre

1. GİRİŞ

Karbonun allotropu olan grafen, bir bal peteği şeklinde düzenlenmiş sp^2 kibritle yapısına sahip karbon atomlarından oluşmuş, iki boyuttan oluşan bir malzemedir. Bir parça bant desteği ile grafitin mekanik olarak soyulması neticesinde, ilk grafen sentezi 2004 yılında gerçekleştirilmiştir (Novoselov et al., 2004).

Grafen, altıgen yapıdan oluşan kafes şeklinde yerleşmiş karbon atomlarından oluşan iki boyutlu (2D) bir atomik kristal bir yapıdır. Grafen araştırmaları 1859 yılına kadar takip edilse de 'Scotch bant yöntemi' çok kolay ve bir o kadar da etkili bir yöntem olarak belirtilmiştir. Grafen, termodinamik açıdan 3B yapılardan büyük derecede farklı olan 2D atomik bir kristallerin ilk örneği olmuştur. Ayrıca, benzersiz özelliklere sahip olan yeni bir elektronik sistem olarak kabul edilmektedir. Kimyasal modifikasyon için elektronik kompozit yapıdaki malzemelere kadar çok çeşitli uygulamalara imkân sağlanmasına destek olmuştur. Grafenin bu özellikleri çoklu ve disiplinler arası araştırmalara da olanak oluşturmaktadır (Novoseov, 2011).

Grafenin keşfiyle, güneş pilleri, elektronik cihazlar ve foto iletken malzemeler dahil tıbbi görüntüleme, ilaç salınımı ve doku çalışmalarına kadar birbirinden çok farklı özellikleri ve uygulamaları yapılan bilimsel çalışmalar yapılmıştır. Grafit yapısında bulunan karbon atomlarına güçlü bir C-C bağı ile bağlı oldukları görülmektedir. Ayrıca, zayıf Van der Waals kuvvetleri ile de tabakaların birbirine bağlanması, elmasın sert olmak yerine yumuşak bir malzeme haline gelmesini sağlar. Düzlemde oluşan güçlü C-C bağı, aromatik halde olan yapılar, serbest elektronlar ve yüzey reaksiyonları için reaktif bölgeler grafeni çok üstün mekanik, fizikokimyasal, termal, elektronik, optik ve biyomedikal özelliklere sahip mükemmel bir malzeme haline gelmesini sağlamaktadır (Goenka et al., 2014).

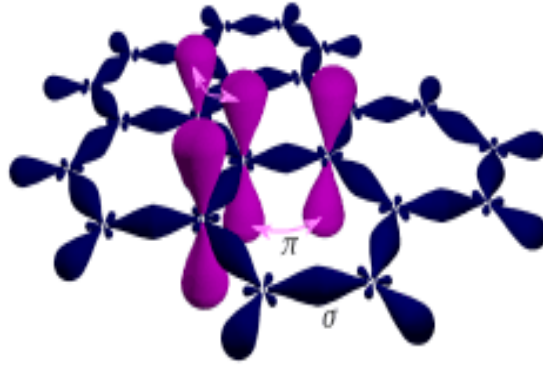
Grafitik asit olarak adlandırılan grafitik oksit, neredeyse bir yüzyıldır bilinmektedir. GO sentezi ilk olarak 1859 yılında Brodie tarafından yapılan deneyde, dumanlı nitrik asit ve klorat ikilisinden oluşan oksidasyon karışımı Seylan grafit ile tekrar tekrar reaksiyona sokulmuştur. Günümüze kadar en çok kullanılan yöntem ise, Brodie ve Staudenmaier'in kullandığı, konsantre sülfürik ile nitrik asit ve potasyum klorat yardımıyla grafitin oksitlendiği yöntem olmuştur (Hummers, W. S.; Offeman et al., 1957). Brodie, grafit'i Potasyum Klorat ($KClO_3$) ve Nitrik asit (HNO_3) ile karıştırarak oluşturduğu bu karışıma "Grafitik asit" (Staudenmaier, 1898) demiştir. Yapılan bu denemeden yaklaşık 40 yıl sonra

Brodie'nin grafiti oksitleme yöntemini aynı karışım üzerinde tekrar sayısını yükselterek daha da geliştirmiştir(Ramli et al., 2023).

Daha fazla miktarlarda grafen üretimi yapabilmek için kimyasal işlemler kullanarak grafitin grafene dönüştürülmesi ve sonrasında indirgenmesi yöntemidir (Eda et al., 2008). Yapılan bu kimyasal yöntemin iki önemli faydası bulunmaktadır. Bunlardan birincisi, grafitin ekonomik ve üretiminin ise verimli olmasıdır, ikincisi ise grafitin hidrofilik olmasından dolayı stabil bir çözelti elde edilebilmesi faydasıdır (Moosa et al., 2021). Derişik nitrik asit ve Potasyum Klorat grafit üzerine ilave edilerek elde edilen karışım, sonrasında grafitin ilk durumu ile kıyaslama yapılmıştır. Yapılan bu deney ile grafitin oksitlenmeye müsait bir yapı olduğu ortaya çıkmıştır (Bedeloğlu et al., 2016). Grafen kimyasal yolla grafitten ayırma yoluyla sentezlenebilmektedir. Grafen sentezi, Hummers yöntemi izlenerek grafitin oksitlenmesi temeline dayanmaktadır. Bunun için Sülfürik ve Nitrik asit ile Potasyum permanganat gibi oksidanlar kullanılmıştır. Kullanılan bu oksidanların miktarı, kullanım süresi ve yöntemleri yapılan araştırmaya göre değişkenlikler gösterebilmektedir. Bazal düzleminde oksitleme yapılan grafit, epoksi grubu, hidroksil ve oksijen fonksiyonel grupları ile katmanların kenarlarında karboksil ve karbonil grubu bulunmaktadır (Cimilli Çatır, 2020). Grafitin katmanları arasında bulunan Van der waals etkileşimi oksitlenme nedeni ile koptuğundan dolayı hidrofiliklik oluşmaktadır. Bu esnada ayrılan tabakalar arasına su moleküllerinin interlokasyonu gerçekleşirken ve pul pul dökülme sırasında koloidal bir dağılım elde edilirken ve ayrıca pul pul dökülmeyle tek katmanlı GO'in eldesi gerçekleştirilmiş olmaktadır (Yetgin et al., 2020). Tek katmanlı olmasına rağmen üzerinde taşıdığı gruplar yapının kusur ve bozukluklarına sebep olarak elektriksel olarak yalıtkan hale getirdiği görülmektedir. Hidrofiliklikte azalmaya yol açan ve elektriksel iletkenliği azaltmış olan oksidasyon işlemi GO süspansiyonunun kimyasal olarak indirgenmesiyle elektriksel açıdan iletkenliği yeniden kazanması için gerekli ilerlemeyi sağlamış olmaktadır (Tovide et al., 2014).

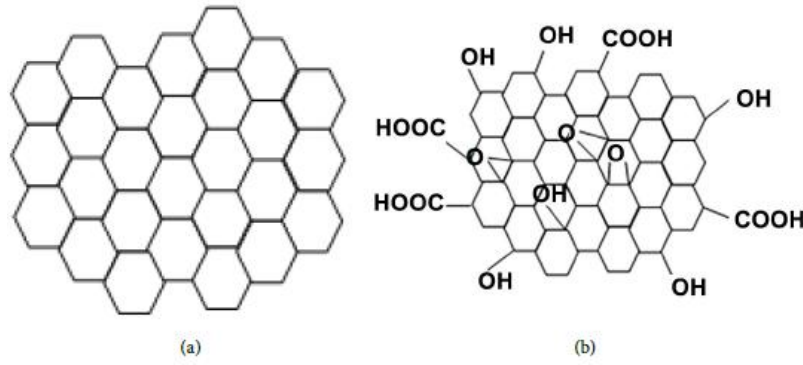
Günümüzde GO, Brodie, Hummers veya bunların bazı diğer versiyonları olarak bilinen çeşitli yöntemler sayesinde saf grafitten eksfoliye edilmiş ve kimyasal olarak oksitlenmiş olarak sentezlenmektedir. Brodie yönteminde, (KClO_4 +Fuming HNO_3) grafitten GO üretmek için kullanılmıştır. Brodie, 1859'a göre, GO yalnızca Grafit yapısından işlenebilir (Brodie, 1859). 1998'de Staudenmaier, GO t oluşturmak için H_2SO_4 , HNO_3 ve KClO_4 ile grafiti ısıttı. Son olarak, Hummers ve Offeman, H_2SO_4 ve KMnO_4 ile oksidasyon altında GO üretmek için daha uygun bir yöntem açıkladılar (Hummers, W. S.; Offeman et al., 1957).

Grafit, karbon allotroplarından biri olup yalıtkan özelliktedir. Güçlü oksidantlar varlığında konsantre asidik ortamda GO haline dönüştürülmüş ve bu haliyle iletken özellik kazanmıştır. Grafit sadece karbon elementinden oluşan bir allotrop iken GO ise karbon elementine ilave olarak hidrojen ve oksijen elementlerini de içermektedir. Grafen'in elektronik özellikleri tamamına yakın π -elektronlarından kaynaklanmaktadır. Grafen ideal olarak 2D (iki boyutlu) sisteminde bulunur ve π -elektronları valans seviyesinde yer alarak π^* durumuna geçer ve iletkenlik bandını oluşturur (**Şekil 1.1**). Grafende iletkenlik bandında bulunan elektronlar ışık hızına yakın bir hız ile hareket ederler ve etkin kütlesi sıfır olur (Ojha et al., 2014).



Şekil 1.1 Grafen'in elektronik yapısı.

İngiliz kimyager B.C. Brodie GO özelliklerini ilk keşfeden kişidir (Smith et al., 2019). GO'nin özellikleri yavaş yavaş anlaşıldıktan sonra bilim adamlarının büyük ilgisini çekmiştir. Fakat bu dönemde bilgiye ulaşmadaki zorluklardan dolayı İngiltere dışındaki ülkelerde bulunan araştırmacıların bu gelişmelerden haberlerinin olması daha sonraki yıllarda mümkün olabilmektedir. Brodie metodunda, grafit ve KClO_3 ağırlıkça 1:3 oranında karıştırıldı ve 60°C 'de dumanlı HNO_3 içerisinde 3 veya 4 gün boyunca karıştırılmıştır. 1898 yılında L. Staundenmaier; Brodie'nin metodunda değişiklikler yapmıştır (Sali et al., 2019). Bu metotta, hacimce 2:3 oranında dumanlı HNO_3 ve H_2SO_4 ile iki kat oranında KClO_3 kullanılarak tepkime 4 gün boyunca devam etmiştir (Brodie, 1859). Tepkime sonucunda elde edilen GO'nin yapısı **Şekil 1.2**'de verilmiştir.



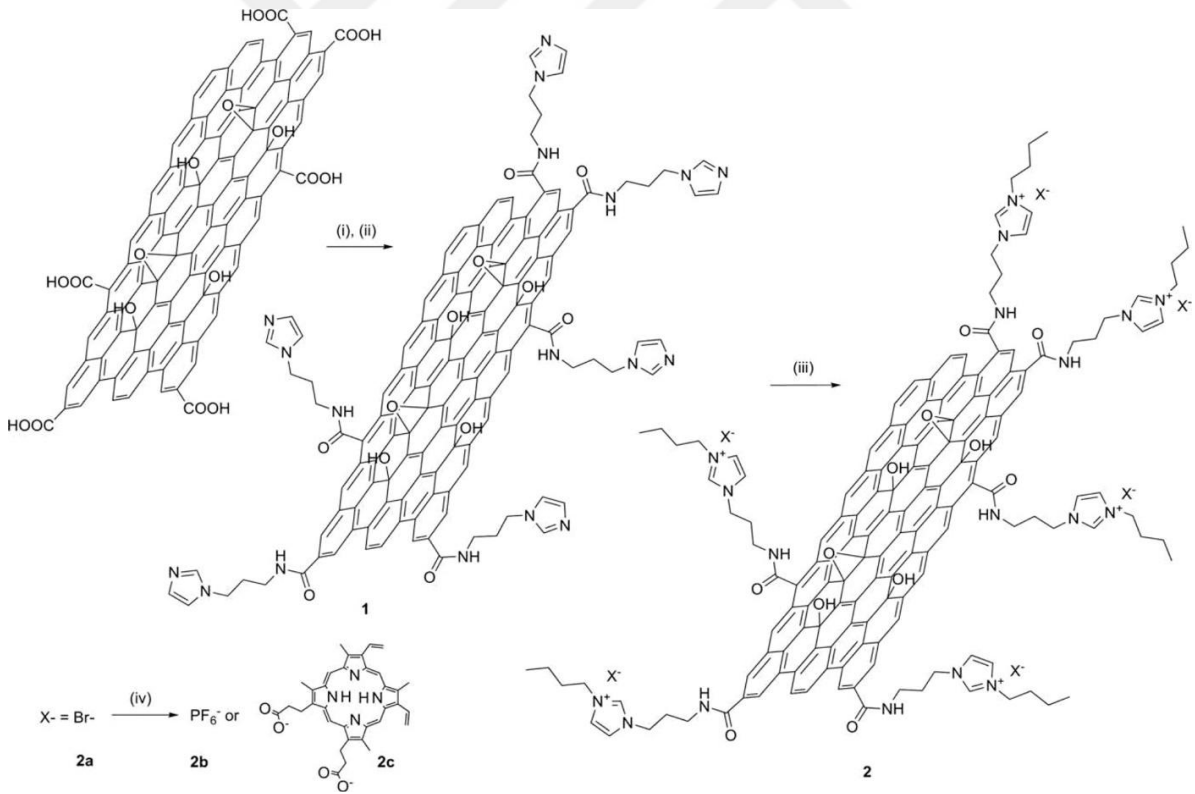
Şekil 1.2 Tek bir Grafen tabakasının (a) ve GO'nin (b) görünümü.

Ağır metaller, endüstrinin gelişmesiyle doğru orantılı olarak yayılmaktadır. Son olarak insan vücudunda toplanmıştır. Bunun sonucu olarak, hayati organlarla birleşebilir ve birçok türde iltihaplanmaya neden olabilir veya toksisitelerine müdahale edebilirler. 1868'den beri kurşun, cıva ve arsenik olarak bilinen ağır metallerin toksisite etkisi hakkında bazı çalışmalar yapılmıştır. Endüstri atık sularında bol miktarda bulunan ve su kirliliğine neden olan toksik metaller dünya çapında önemli bir soru haline gelmeye başladı (Özbolat et al., 2016). Pb^{2+} ve Hg^{2+} endüstriyel ve madencilik işlemlerinden salınır. Özellikle insan sağlığı olmak üzere çevre üzerindeki etkileri kolayca fark edilebilir. Bazı insanlar, merkezi sinir sistemine, karaciğere ve böbreklere zarar veren toksisitelerinden mustarıptır (Moukadiri et al., 2024). Atık sudan kaynaklanan bu tür kirliliği önlemek için çöktürme, iyon değişimi ve adsorpsiyon gibi bazı teknikler geliştirilmiştir (Amdeha, 2024). Adsorpsiyon yararlı ve ekonomik bir yöntemdir (Bilici Baskan et al., 2014). GO, adsorpsiyon kapasitesi sayesinde su arıtımında yaygın ve etkili bir şekilde kullanılır. GO ayrıca hidroksil, karboksil grupları gibi birçok fonksiyonel gruba sahiptir bu da ona sensörler, piller ve adsorpsiyon gibi geniş uygulama alanı şansı verir (Singh et al., 2023). Özellikle, az Katmanlı GO (FGO) Pb^{2+} üzerinde yüksek adsorpsiyon kapasitesine sahiptir (Zhao et al., 2011). İndirgenmiş GO 'in yanı sıra, teorik olarak yüzey alanları aracılığıyla kurşun ve diğer metaller üzerinde aynı adsorpsiyon özelliklerine sahiptir. GO, hidrazin hidratı ile indirgendiğinde, yalnız çift elektronu sayesinde bivalent metal iyonları üzerindeki adsorpsiyon kapasitesini destekleyen NH_2 kazanç aralığını hidratlar (Bal et al., 2022). Ayrıca, GO üzerindeki herhangi bir nanomalzemenin organizasyonu uygulama sırasında kümelenmeyi aşmak için dirençlidir (Çoğal, 2022).

Özellikle, yeni nanomalzemeler katı faz ekstraksiyonu (SPE) ve katı faz mikro ekstraksiyonu (SPME) için yakın cepleme malzemeleri olarak çekici kullanımlarıyla ortaya çıkmaktadır. Bu çalışmada, çevre sularından ağır metaller Pb^{2+} ve Hg^{2+} iyonlarını gidermek için

kullanılan imin-Grafen hibrit malzemesini elde ettik. İlk olarak, oksidasyon adımları için H_2SO_4 ve $KMnO_4$ 'ün kullanıldığı Hummers yöntemi kullanılarak GO hazırlandı. Daha sonra, GO 3-(trimetoksisilil) propilamin ile silanize edildi ve daha sonra bu silanize edilmiş GO, 3,5-dikloro-salisilaldehit FT-IR, UV-Vis, EDX, SEM, XRD, TGA ve TEM ile reaksiyona girerek GO-Schiff baz malzemesi hazırlamak için kullanıldı. Son olarak, sulu çözeltide Pb^{2+} ve Hg^{2+} iyonlarının adsorpsiyonu için parti deneyleri kullanıldı ve analiz için ICP-AES kullanıldı (Mohammed et al., 2024).

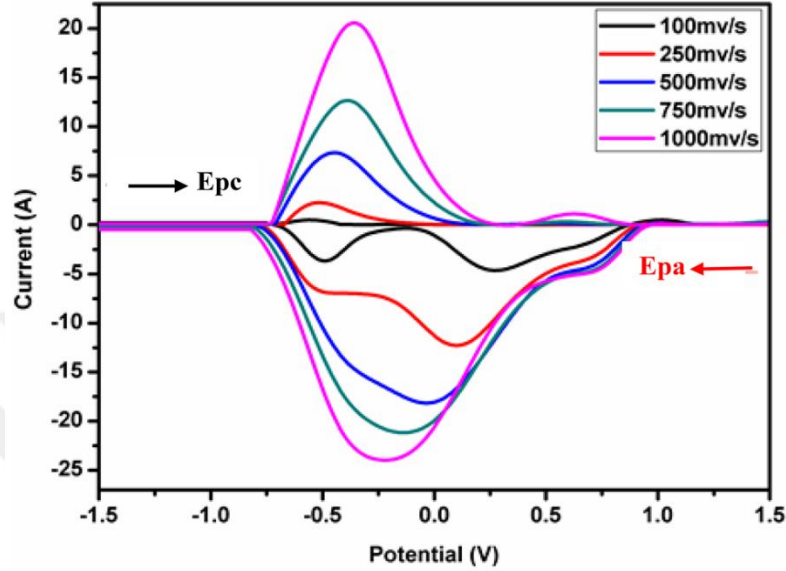
GO'in organik ligandlar kullanılarak elde edilen hibrit bileşikler arasında en çok rastlanılardan biri de fonksiyonel imin bileşikler kullanılarak elde edilen materyallerdir. Bu bileşiklerin en büyük özellikleri arasında kovalent bağ yaparak metal tutma kapasitelerine sahip olmalarıdır (Georgakilas et al., 2012). GO yüzeyinin kenar (uç) kısımlarında bulunan karboksil gruplarına imin bileşiklerinin bağlanması ile elde edilen malzemelerde çok sayıda imin bağlı grup olduğundan metal bağlama kapasitesi de aynı oranda artmaktadır (Şekil 1.3)



Şekil 1.3 İmidazolium modifiyeli GO hibrit malzemesi anyon değişim reaksiyonları.

Materyal katalizleme işleminde katalizör olarak kullanılacak bir malzeme ise üzerinde bulunan metal iyonu sayısının çokluğundan dolayı katalitik etkinliği de o oranda fazla olması beklenebilir. Fakat bazı durumlarda materyal hazırlamada kullanılan organik ligandın sterik

açından hacimli yapıda olması durumunda katalitik işlem sırasında substrat ile katalizör arasındaki etkileşme güç olacağından katalizörün beklenen etkiyi göstermesi zorlaşacaktır (Karabörk et al., 2018a). Dikkat çeken elektrokimyasal davranışlar da gösterebilen bu malzemelerin Katodik ve anodik pik potansiyelleri özellikle -1,0 V ile +1,0 V arasında ligant veya metal merkezli redoks çiftleri olarak gözlenmektedir (Şekil 1.4).



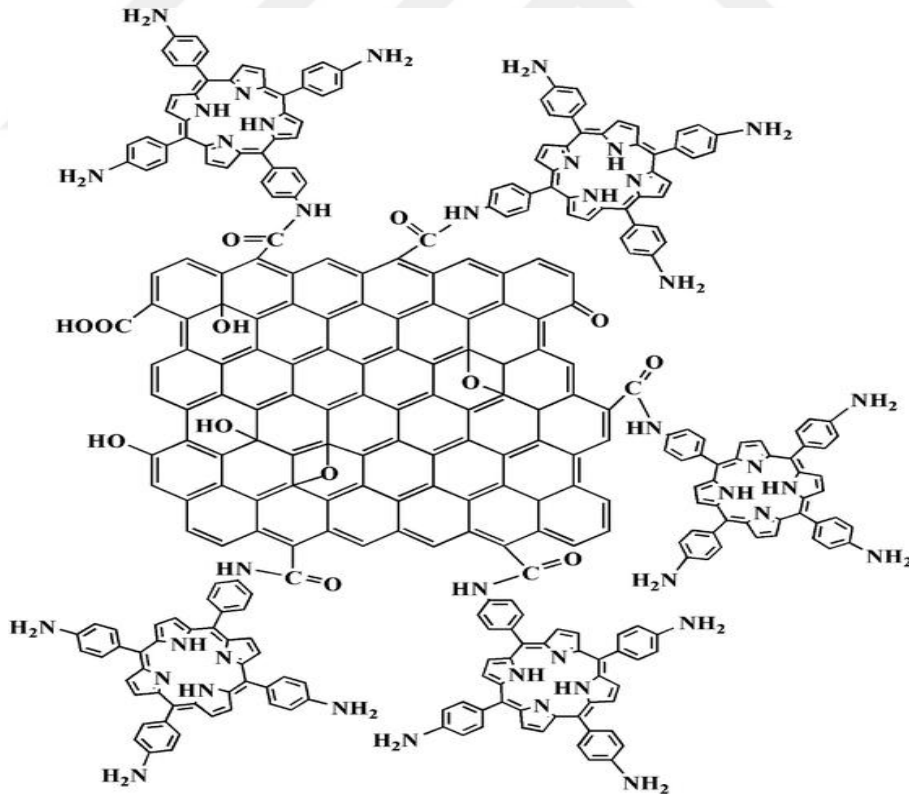
Şekil 1.4 GO Dönüşümlü Voltametri.

Malzemelerin kemosensör özellikleri UV-vis, fotoluminesans ve elektrokimyasal yöntemlerle incelenebilir. Organik ligantların metal bağlayıcı bölgesinin kavitesi (çapı) materyalin sensör özelliği göstermesinde etkilidir. GO tabanlı malzemelerin diğer bir özelliği gaz sensörü ve/veya kemosensör olarak yaygın bir şekilde üzerinde araştırma yapılmasıdır (Chen Zhu et al., 2021). GO geniş bir yüzey alanına sahiptir ve gözenek boyutuna bağlı olarak da katyon ve anyonlara karşı sensör davranışı gösterebilmektedir. Bu çalışmalarda temel hedef kullanılacak malzemenin seçici olarak metal bağlama kapasitesine sahip olmasıdır. Çünkü seçicilik ürünün ticarileşebilme potansiyelini de içinde barındırmaktadır (Raptopoulou, 2021).

Bununla birlikte, GO tabanlı yeni nesil kompozit malzemelerin özelliklerini belirli alanlarda kullanabilmek için polimerler, seramikler ve metaller gibi diğer birçok bileşenlerle birlikte etkileştirilerek hibrit malzemeler geliştirilmiştir. Hibrit malzemeleri hazırlamada kullanılan materyallerin özellikleri kapsamında düşünüldüğünde hazırlanacak olan hibrit malzemeler üstün özelliklere sahip olacağından bu hibritler enerji depolama, biyomedikal, gıda paketlenme, nano-kağıt, köpükler, şekil hafıza cihazları ve katalizör gibi çok çeşitli alanlarda kullanılabilme kapasitesine sahiptirler (Trache et al., 2020).

GO'nun doğal liflerle kombinasyonu, yakın zamanda sinerjik bir etkiye sahip yeni bir hibrit malzeme kategorisi olarak ortaya çıkmıştır. Metal oksitler zayıf elektrolit özelliğine sahiptirler. GO üzerine metal oksitlerin katkılanmasıyla elde edilen kompozit malzemelerin en önemli kullanım alanlarından biri süper kapasitör de denilen elektrokimyasal kapasitörde elektrot malzemesi olarak kullanılmalarıdır. Elektrokimyasal kapasitörlerin enerji yoğunluğu bataryalara oranla daha düşüktür fakat bu kapasitörler enerjiyi depolayabilirler ve çok hızlı bir şekilde bir yerden başka bir yere nakledebilirler (Simon et al., 2011).

Grafen esaslı hibrit materyaller GO üzerine çapraz bağlanma ile elde edilmiştir. Elektrot malzemelerin performansını etkileyen en önemli faktörlerden biri materyalin gözenek boyutudur. GO yüzeyinde organik moleküllerin bağlanması ile büyük bir gözenek boyutu elde edilir ve bu da elektrolitin akış hızının artmasına yol açmaktadır. GO ile uygun bir porfirin (TPP) türevi etkileştirilerek amino modifiye bir materyal hazırlanır ve bu hazırlanan materyal karboksilik asit grubuna sahiptir. Bu hibrit materyaldeki porfirin halkasının gözlenen lüminesans sönümlenme olayı uyarılmış haldeki TPP ve GO arasındaki güçlü bir elektronik etkileşimin neticesidir (Şekil 1.5) (Stergiou et al., 2014).



Şekil 1.5 GO ve TPP Hibrit bileşiği.

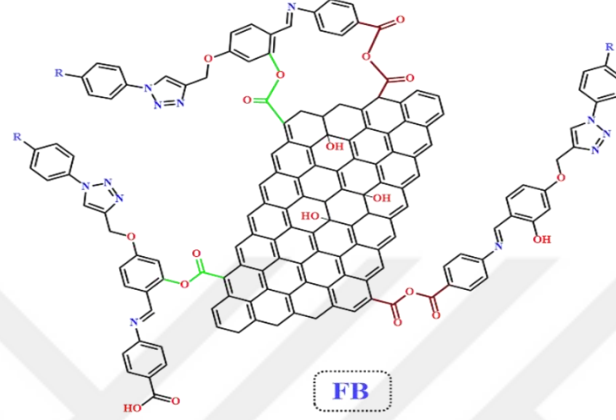
Yapılan bu tez çalışması kapsamında, saf grafitten güçlü oksitleyicilerle elde edilen GO levhasına 2-amino-4-metil pridin, 2-amino-5-metil pridin ve 2-amino-5-kloro pridin

fonksiyonel grupları bağlanarak AB-1, AB-2 ve AB-3 hibrit bileşikleri elde edilmiştir. Sentezlenen hibrit malzemelerin karakterizasyonu FTIR, UV, Fotolüminesans, XRD, SEM, TGA gibi yöntemlerle incelenmiştir.



2. ÖNCEKİ ÇALIŞMALAR

Bal ve ark. Tarafından 2022 yılında saf grafitin oksitlenmesiyle elde ettikleri GO malzemesini termal yöntemle indirgemeyi başarmışlardır. Sentezlene rGO malzemesine bazı Schiff bazları bağlanarak yeni tip hibrit malzemeleri elde etmişlerdir. Hibrit malzemeleri bazı nitroaromatik patlayıcıların tespitinde kullanmışlardır (Şekil 2.1).



Şekil 2.1 Nitroaromatik patlayıcı tespitinde kullanılan GO temelli hibrit malzemesi (Bal et al., 2022).

2020 yılında Cho ve arkadaşları “Gözenekli alüminyum yüzeyler üzerinde GO birikmesiyle elektrik potansiyeli kaynaklı kararlılık” başlıklı çalışmalarında; dengesiz buharlaşma hızından dolayı substratlar üzerindeki sulu mikro/nanopartikül süspansiyonlarının düzensiz çökelmeye yol açarak kahve halkası etkileri oluşturduğu bildirilmiştir. Bu etkiyi ortadan kaldırmak için basit yöntemler geliştirilmiştir. Gözenekli alümina nanoyapı (PAN) substratları üzerinde toplanan GO'nun kararlılığını artırabilmek amacıyla damlacık hacimleri ve konsantrasyonları kullanılarak bir elektrik potansiyeli uygulanmıştır. Substrat ile elektrik potansiyeli arasında oluşan sinerjik etki damlacıktaki hidrodinamik akışı optimize etmiş ve düzgün GO birikimi gerçekleştirilmiştir. Bu süreçte GO'in homojenliğine etki eden; halka çapı, kararlılık oranı, biriktirme alanının ölçüsü gibi faktörlerin olduğu tespit edilmiştir. Uygun elektrik potansiyelinin uygulanmasıyla, PAN substratı üzerine biriktirilen GO'in, başka yöntemlerle elde edilemeyen ultra tek tip film yapılar üretilebildiği rapor edilmiştir (Cho et al., 2020).

2019 yılında Masteri-Farahani ve Ghahremani , “GO ve GO -manyetit nanokompozitinin, molibden-bidentat Schiff baz kompleksi ile yüzey fonksiyonallizasyonu” başlıklı çalışmada; GO ve manyetit-GO nanokompozitin yüzeyinin işlevsellik kazandırılması ile, olefinlerin epoksidasyonu için yeni heterojen molibden katalizörleri 20 üretildiğini, ilk

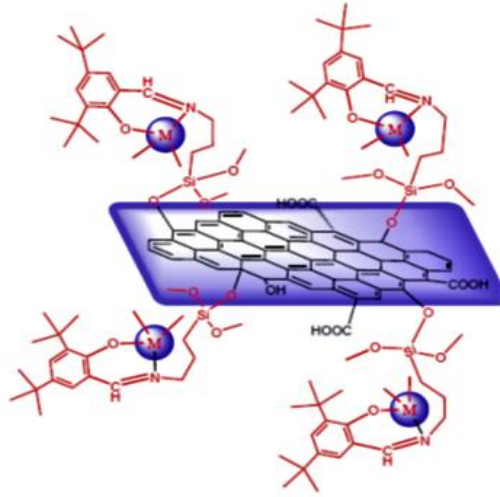
aşamada, GO, grafen oksit destekli çift dişli Schiff bazı ligandını sentezlendiğini, bunun için, 3-aminopropil trietoksisilan ve tiyofen-2-karbaldehit ile reaksiyona sokulmuş ve kovalent bağlı yeni bir bileşik elde edildiği bildirilmiştir. İkinci kademedede sentezlenen ligandın $\text{MoO}_2(\text{acac})_2$ kompleksi ile reaksiyonundan, heterojen molibden katalizörü üretildiği, GO'nin klik reaksiyonu desteği ile, manyetit nanopartiküller ile konjugasyonu ve molibden-Schiff bazı kompleksi ile oluşturulan bir katalizör hazırlandığı, Molibden-bidentat Schiff baz kompleksinin GO ve manyetit- GO nanokompozit yüzeyine kovalent bağlanmasıyla hazırlanmış olan heterojenize katalizörlerin karakterizasyonu yapılarak aydınlatıldığı, FT-IR spektroskopisi Mo kompleksinin yüzeye tutunduğunu, XRD ve TEM analizleri GO'nin işlevsellik kazandırılması aşamasında yüzey ve doku özelliğinde bir değişme olmadığını desteklediğini ve ölçülen yüksek katalitik performansın, GO'nin olağanüstü özelliklerinden kaynaklanabileceği rapor etmişlerdir (Masteri-Farahani et al., 2019).

2011 yılında Zhao ve ark., tarafından, su çözeltilerinden Pb^{2+} iyonlarını uzaklaştırmak için kullanılan grafit levhalardan modifiye edilmiş Hummers yöntemi ile birkaç katmanlı GO sentezlendi ve birkaç katmanlı GO, toz X-ışını kırınımı (XRD), taramalı elektron mikroskobu (SEM), X-ışını fotoelektron spektroskopisi (XPS), atomik kuvvet mikroskobu (AFM) ve Raman spektroskopisi ile karakterize edildi. FGO'nun yüzeylerindeki fonksiyonel oksijen grupları, FGO'ya Pb^{2+} iyonunun adsorpsiyonundan birincil olarak sorumluydu. Birkaç katmanlı GO'ya Pb^{2+} iyonlarının adsorpsiyonu pH değerlerine bağlıydı ve iyonik güce bağlı değildi. Birkaç katmanlı GO'ya Pb^{2+} iyonlarının adsorpsiyonu, esas olarak eser elementlere bağlanan FGO'nun güçlü yüzeyi tarafından gerçekleştirildi. Adsorpsiyon izotermelerinden, Pb^{2+} iyonlarının Langmuir modeline göre maksimum adsorpsiyon kapasitelerinin FGO'da belirlenmesi 293 °K'de yaklaşık 842 mg/g, 313 °K'de 1150 mg/g ve 333 °K'de 1850 mg/g olarak hesaplandı. Sonuç olarak, birkaç katmanlı-GO diğer tüm adsorban nanomalzemelerin iyi emilimini göstermektedir. Birkaç katmanlı-GO'da Pb^{2+} iyonunun sıcaklığa bağlı adsorpsiyonunun belirlenmesi kendiliğinden ve endotermik bir sürecin göstergesidir (Zhao et al., 2011).

2013 yılında, hava, su ve toprak kirliliğini içeren yeni Grafen bazlı nanomalzemeler kullanılarak ekolojik zehirlerin adsorptif iyileştirilmesi, eko-çevre ve insan kültürü için genel bir sorundur. İnorganik ve düzenli karışımlar dahil olmak üzere çeşitli toksinlerin yeryüzünden atılması bir uyarı testidir. Adsorpsiyon stratejileri normalde temeldir ve makul şekilde çalışır. Her durumda, malzemelerin en uzak mesafelere adsorpsiyonu, nüfuz edilebilir yapılarına ve yüzey özelliklerine bağlıdır. GO ve grafen yeni karbonlu

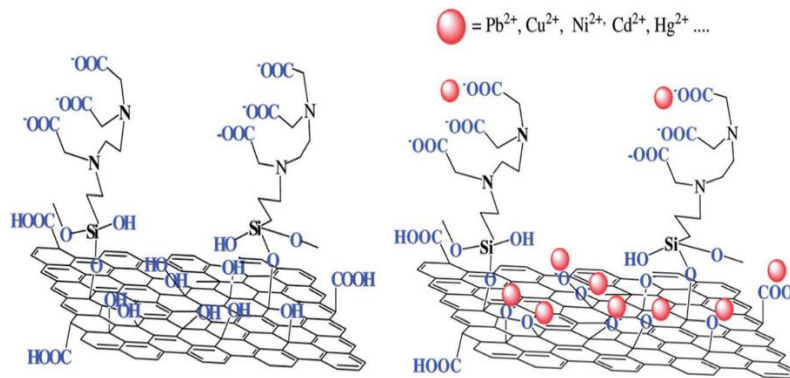
nanomalzemelerdir. Grafenin geniş bir teorik özgül yüzey alanı vardır ve GO, adsorpsiyon çerçeveleri için potansiyellerini gösteren yararlı bileşenlere sahiptir. Son yıllarda, çeşitli analizler havadan ve sudan kirliliklerin giderilmesinde Grafen veya kompozitlerin kullanımlarına odaklanmıştır. Bu makalede, karakteristik kirlenmenin adsorptif tedavisi için Grafenle ilişkili nanomalzemelerdeki son gelişmeleri gözden geçireceğiz. GO, temel karışımlar ve katyonlar için yüksek adsorpsiyon gösteren, yeryüzüne yakın sosyal durumlar ve güçlü bir akrediteye sahipken, Grafen hidrofobik bir yüzey sergiler ve güçlü $\pi-\pi$ bağlantısı nedeniyle kimyasallarla yüksek adsorpsiyon sağlar. GO veya Grafenin metal oksitler veya organiklerle ayarlanması, adsorpsiyon kırılma noktasını ve segment verimliliğini artıran farklı nanokompozitler oluşturabilir. Grafenin gözenekli karbonlu malzemeye dönüştürülmesi, daha fazla adsorpsiyon sınırlamasıyla başa çıkmanın umut verici bir yolu olacaktır (Wang et al., 2013)

Organosilan fonksiyonalize GO destekli Schiff baz ligantları ile Co(II) ve Zn(II) komplekslerini sentezleyerek bu bileşiklerin yapılarını XRD, SEM, EDX, TEM, UV-vis ve FTIR metotları ile karakterize etmişlerdir. Materyallerin termal kararlılıklarını incelemek için TG/DTA yöntemi kullanılmıştır. Organosilan fonksiyonalize ve amin aktive edilmiş GO materyalinden Schiff bazlarını elde etmek için karbonil bileşiği olarak 3,5-di-*tert*-butil salisil aldehit bileşiği kullanılmıştır (Karabörk et al., 2022)(Şekil 2.2). GO tabanlı hibrit malzeme içme suyu ve standart çözeltilerde Co(II) ve Zn(II) iyonlarını uzaklaştırmada adsorban olarak kullanılmıştır. Materyalin metal iyonlarına karşı adsorpsiyon kapasitesini belirlemede batch (kesikli) metodu kullanılmıştır. Bu çalışmada ayrıca GO tabanlı Schiff bazı materyalinin metal iyonlarını adsorplama kapasitesi üzerine pH, temas süresi, sıcaklık ve konsantrasyonun etkisi incelenmiştir (Karabörk et al., 2022).



Şekil 2.2 İçme suyu ve standart çözeltilerde Co(II) ve Zn(II) iyonlarını uzaklaştırmada adsorban olarak kullanılan hibrit malzeme.

Metal iyonlarını tutma kapasitesine sahip haks dentad (altı dişli) etilen diamin tetraasetik asit (EDTA) ile GO'in tepkimesinden hibrit materyal hazırlayarak çeşitli metal iyonlarına karşı adsorplama kapasitelerini belirlemişlerdir (**Şekil 2.3**). Yapılan adsorpsiyon çalışmalarında sadece EDTA kullanıldığında iyon tutma kapasitesinin GO-EDTA hibritine oranla çok daha düşük seviyede olduğu belirlenmiştir. Hibrit materyalin adsorpsiyon kapasitesinin artması GO yüzeyine bağlanan EDTA sayısının oldukça fazla olmasından oluşabileceği ifade edilebilir. Ayrıca bu hibrit malzemenin Pb^{2+} iyonlarını pH 6.8'de seçici olarak en yüksek oranda adsorbe ettiği tespit edilmiştir. Diğer taraftan metal iyonunu adsorbe eden hibrit malzeme HCl ile muamele edildiğinde metal iyonlarının kolaylıkla uzaklaşabildiği ve bu uzaklaşmadan dolayı da etkin bir şekilde toksik metallerin çevremizden uzaklaştırılabileceği belirlenmiştir (Majumder et al., 2022).

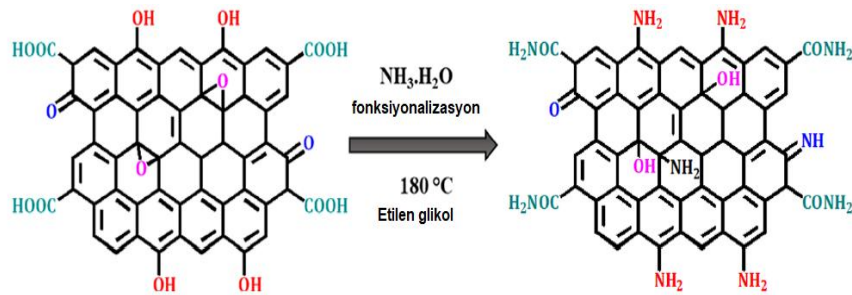


Şekil 2.3 Metal iyonlarıyla etkileşen GO–EDTA hibritinin yapısı.

Rani ve arkadaşları (2016) 2-amino tiazol ile GO etkileşmesinden amit-fonksiyonalize hibrit materyal (AGO) sentezleyerek XRD, FTIR, SEM-EDX ve Raman spektroskopik

yöntemleriyle karakterize etmişlerdir. SiO₂/Si tabanlılığı üzerine yerleştirilmiş alüminyum elektrotlar arasına GO/AGO filmi yerleştirilerek gaz sensör cihazı geliştirilmiş ve H₂S gazının ölçümü yapılmıştır. AGO ve GO'nun sensör performansı iletkenlikteki değişime bağlı olarak incelenmiştir. GO ile AGO'nun H₂S gazına karşı performansları karşılaştırıldığında AGO'nun dönüşümlü olarak daha iyi performans gösterdiği belirlenmiştir (Rani et al., 2016).

Verma ve arkadaşları (2022) endüstriyel atıklardan dolayı meydana gelen organik safsızlıkların etkili bir şekilde azaltılması için GO esaslı yeni bir malzeme geliştirmişlerdir. Yapılan bu çalışmada, katyonik formdaki bazik boya mavi 41 (BB41), anyonik boya metil oranj (MO) ve iyonik 4-nitrofenol (4-NP), sulu ortamda temas süresi, pH, ilk adsorbat konsantrasyonu, adsorban kütlesi ve sıcaklık gibi dinamik deneysel değişkenlerin etkileşimi yoluyla hedeflerin adsorpsiyonunda yüzey asidik ve bazik bağlanma bölgelerinin güçlü bir rolü olduğu belirlenmiştir (Şekil 2.4). 20 mg/L'lik bir başlangıç kirletici konsantrasyonunda, BB41, MO ve 4-NP için denge adsorpsiyon kapasiteleri sırasıyla 199.5, 64.0 ve 54.1 mg/g olarak tahmin edildi ve buna karşılık gelen 4156, 79.4 ve 14.3 L'lik dağılım katsayıları belirlenmiştir. Her üç organik kirleticinin deneysel verileri, en iyi pseudo (yalancı) ikinci dereceden kinetik modele uygundur. BB41'in adsorpsiyon izotermi çok katmanlı bir adsorpsiyon modelini takip ederken, MO ve 4-NP'ninkiler tek katmanlı bir adsorpsiyon modeline uymaktadır. Adsorpsiyon proseslerinin endotermik ve kendiliğinden doğası, termodinamik analize dayalı olarak NH₃-GO üzerindeki üç hedef için de araştırılmıştır. Hazırlanan NH₃-GO tabakaları, çözelti fazında polar organik boyaların ve aromatiklerin uzaklaştırılması için umut verici bir adsorban olarak görünmektedir (Verma et al., 2022).



Şekil 2.4 Kirletici özelliğe sahip boyaların uzaklaştırılmasında kullanılmak üzere hazırlanmış olan amonyak fonksiyonize edilmiş GO.

Chao Gao ve diğerleri (2012) AlOOH/indirgenmiş-GO malzemesini sentezlemek için yeşil tek kap hidrotermal işlemi kullanmışlardır. Alüminyum oksihidroksit indirgenmiş GO nanomalzemesinin hazırlanması ve karakterizasyonu ve eser metal iyonlarına karşı elektrokimyasal davranışı açıklanmıştır. Nanomalzemenin morfolojisi ve yapısı X-ışını

kırınımı (XRD), transmisyon elektron mikroskobu (TEM), X-ışını fotoemiyon spektroskopisi (XPS), Raman spektroskopisi, Fourier dönüşüm-kızılötesi spektroskopisi (FTIR) ve atomik kuvvet mikroskobu (AFM) kullanılarak karakterize edilmiştir. Döngüsel voltametri ve elektrokimyasal empedans spektroskopisi elektrokimyasal özellikleri karakterize eder. Metal iyonlarının çökelmesi ve aşınması üzerinde etkisi olan elektrokimyasal ve kimyasal parametreler, örneğin temas süresi, çökelme potansiyeli ve pH değeri incelenir. GO'nun hızlı elektron transfer kinetiği ve alüminyum oksihidroksitin ağır metal iyonlarına güçlü çekimi nedeniyle, SPE ve baring voltametrik analiz kombinasyonu içme suyunda Pb^{2+} ve Cd^{2+} 'nin hassas ve hızlı bir şekilde ölçülmesine izin verdi, bu nanomalzemeler biyosferde ağır metal iyonlarının tespiti için umut vadeden bir aday haline geldi (Gao et al., 2012).



3. MATERYAL VE METOT

3.1. Materyal

3.1.1. Kullanılan Kimyasal Maddeler

Çizelge 3.1 Kullanılan kimyasal maddeler

ÜRÜN	KİMYASAL FORMÜL	MARKA
Grafit	C	Aldrich
Sülfürik Asit	H ₂ SO ₄	Merck
Potasyum Permanganat	KMnO ₄	Aldrich
2-Amino 4-Metil Pridin	C ₆ H ₈ N ₂	Merck
2-Amino 5-Metil Pridin	C ₆ H ₈ N ₂	Merck
2-Amino 5-Kloro Pridin	C ₅ H ₅ ClN ₂	Merck
4-Dimetilaminopiridin (DMAP)	C ₇ H ₁₀ N ₂	Merck
Vanadyum (IV) oksit sülfat hidrat	VO ₂ SO ₄ · H ₂ O	Merck
Potasyum Bikarbonat	KHCO ₃	Merck
Diklorometan	CH ₂ Cl ₂	Merck
Hidroklorik Asit	HCl	Merck
Sodyum Nitrat	NaNO ₃	Merck
Hidrojen Peroksit	H ₂ O ₂	Merck
Dimetil Sülfoksit (DMSO)	C ₂ H ₆ OS	Isolab
Trietil Amin	C ₆ H ₁₅ N	Merck
Metanol	CH ₄ O	Merck
Etanol	C ₂ H ₆ O	Merck
N, N-Dimetilformamid (DMF)	(CH ₃) ₂ NCOH	Merck
Aseton	C ₃ H ₆ O	Merck

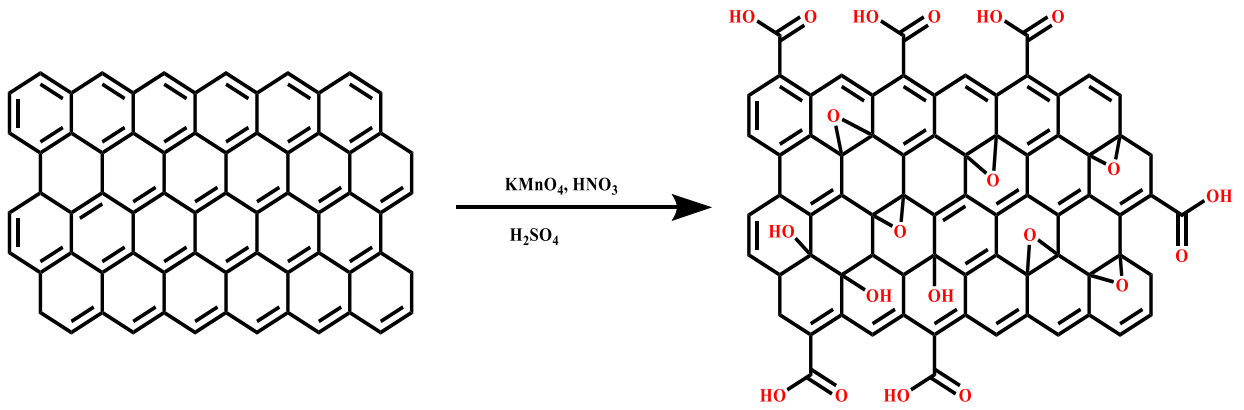
3.1.2. Kullanılan Cihazlar

Çizelge 3.2 Kullanılan cihazlar.

CİHAZ	MARKA-MODEL
FTIR (ATR) Spektrofotometresi	Perkin Elmer Spectrum 400, KSÜ, Kimya.
UV-vis spektrofotometresi	Hitachi U3900h Spectrophotometer, KSÜ, Kimya
XRD Analizi	PANalytical marka ve EMPYREAN XRD model, ÇÜ, ÇÜMERLAB
Taramalı Elektron Mikroskobu (SEM-EDX)	JEOL JSM – 5600, KSÜ, ÜSKİM
Termogravimetrik Analiz (TGA)	Perkin Elmer STA 6000, KSÜ, Kimya
Rotary Evaporatör	Heidolph, KSÜ, Kimya

3.2. Grafen Oksit (GO) Sentezi

GO üretimi, grafitten başlayarak Hummers yönteminin modifiye edilmesiyle gerçekleştirilmiştir. Grafit tozunun oksitlenmesi amacıyla, 2 gram sodyum nitrat (NaNO_3) 50 mililitre sülfürik asit (H_2SO_4) içinde 75 santigrat derecede 30-35 dakika boyunca karıştırılmıştır. Bu süre sonunda, elde edilen karışıma 2 gram toz grafit eklenmiş ve 75 santigrat derecede 60 dakika daha karıştırma işlemine devam edilmiştir. Karışımın sıcaklığı, 5 santigrat derecenin altına düşürülmek üzere buz içerisinde karıştırma işlemine devam edilmiştir. İstenilen değere ulaşıldığında, 12 gram potasyum permanganat (KMnO_4) azar azar ve aralıklı zamanlarla karışıma ilave edilmiştir. Ekleme işlemi sürerken, yükselen sıcaklığın 5 santigrat derecenin altında tutulmasına özen gösterilmiştir. Ekleme işlemi tamamlandıktan sonra, 30 dakika boyunca buz içerisinde karıştırmaya devam edilmiştir. Daha sonra, karışımın kırmızımsı kahverengi macun kıvamına erişene kadar sıcaklığı 35 santigrat derecede sabit tutularak karıştırma işlemine devam edilmiştir. İstenilen kıvam ulaşıldığında, kırmızı renkli duman çıkışı gözlemlenmiştir. Bu işaretin ardından, macun kıvamındaki karışım 120 dakika daha karıştırılmıştır. İşlemler sona erdiğinde, karışıma 100 mililitre çift damıtılmış su eklenmiş ve 97 santigrat derecede 1 saat boyunca karıştırıcıda bekletilmiştir. Son olarak, reaksiyonun durdurulması amacıyla; 180 mililitre sıcak çift damıtılmış su ilave edildikten hemen sonra, potasyum permanganatın (KMnO_4) tamamen indirgenmesi için 10 mililitre %5'lik hidrojen peroksit (H_2O_2) karışıma eklenmiş ve karışım 24 saat süreyle dinlenmeye bırakılmıştır. Süre sonunda, madde dekante edilerek ayrılmıştır. Karışımda bulunabilecek metal iyonlarının uzaklaştırılması amacıyla, birkaç kez %10'luk hidroklorik asit (HCl) ile yıkama işlemi uygulanmıştır. Asit kalıntısının uzaklaştırılması için son olarak, saf su ile birkaç kez daha yıkama yapılmış ve suyun uzaklaştırılması amacıyla oda sıcaklığında yaklaşık üç gün bekletilerek kurutulmuştur. Elde edilen kahverengi film halindeki malzemenin yapısı, FTIR ve SEM gibi spektroskopik yöntemlerle yapısal karakterizasyonu yapılmıştır. Grafitten GO eldesine ait sentez basamaklarının görüntüsü **Şekil 3.1**'de verilmiştir.



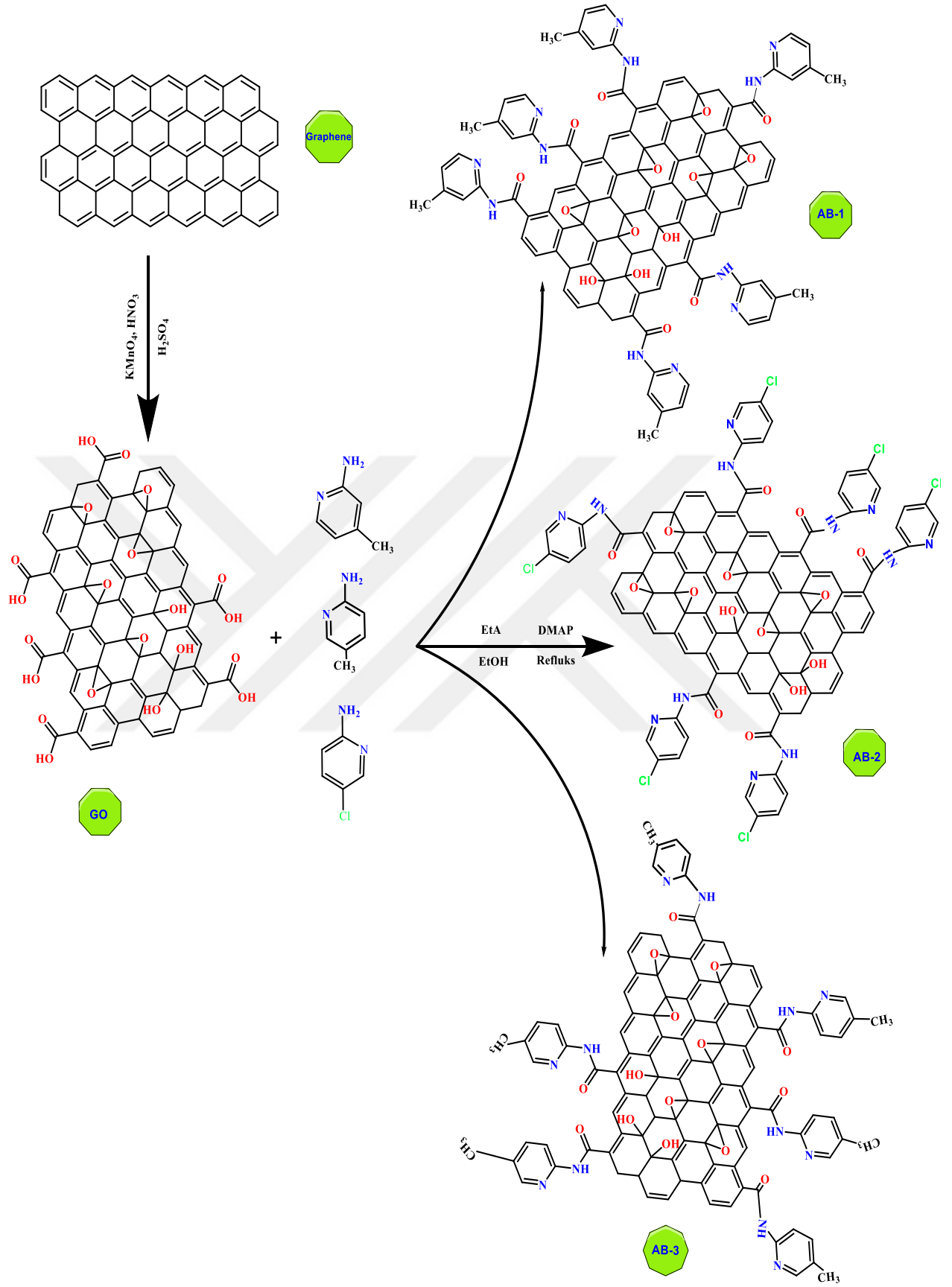
Şekil 3.1 GO sentezi

3.3. Hibrit Bileşiklerin Sentezi

2-Amino 4-Metil Pridin (3g) 100 mL etanolde çözülerek üzerine 2g trietilamin (EtA) ve 20 ml diklorometan (CH_2Cl_2) eklenmiştir. Karışımın üzerine 1g GO ilave edilmiş ve 72 saat reflükse bırakılmıştır. Elde edilen hibrit çözeltisi süzülerek ayrıldıktan sonra oda koşullarında kurutulmaya bırakılmıştır. **AB-1** adı verilen numunenin sentez basamağı görüntüsü **Şekil 3.2**'de verilmiştir.

2-Amino 5-Kloro Pridin (3g) 100 mL etanolde çözülerek üzerine 2g trietilamin (EtA) ve 20 ml diklorometan (CH_2Cl_2) eklenmiştir. Karışımın üzerine 1g GO ilave edilmiş ve 72 saat reflükse bırakılmıştır. Elde edilen hibrit çözeltisi süzülerek ayrıldıktan sonra oda koşullarında kurutulmaya bırakılmıştır. **AB-2** adı verilen numunenin sentez basamağı görüntüsü **Şekil 3.2**'de verilmiştir.

2-Amino 5-Metil Pridin (3g) 100 mL etanolde çözülerek üzerine 2g trietilamin (EtA) ve 20 ml diklorometan (CH_2Cl_2) eklenmiştir. Karışımın üzerine 1g GO ilave edilmiş ve 72 saat reflükse bırakılmıştır. Elde edilen hibrit çözeltisi süzülerek ayrıldıktan sonra oda koşullarında kurutulmaya bırakılmıştır. **AB-3** adı verilen numunenin sentez basamağı görüntüsü **Şekil 3.2**'de verilmiştir.



Şekil 3.2 AB-1-AB-2-AB-3 Hibrit Bileşiklerinin Sentez Basamağı

4. BULGULAR VE TARTIŞMA

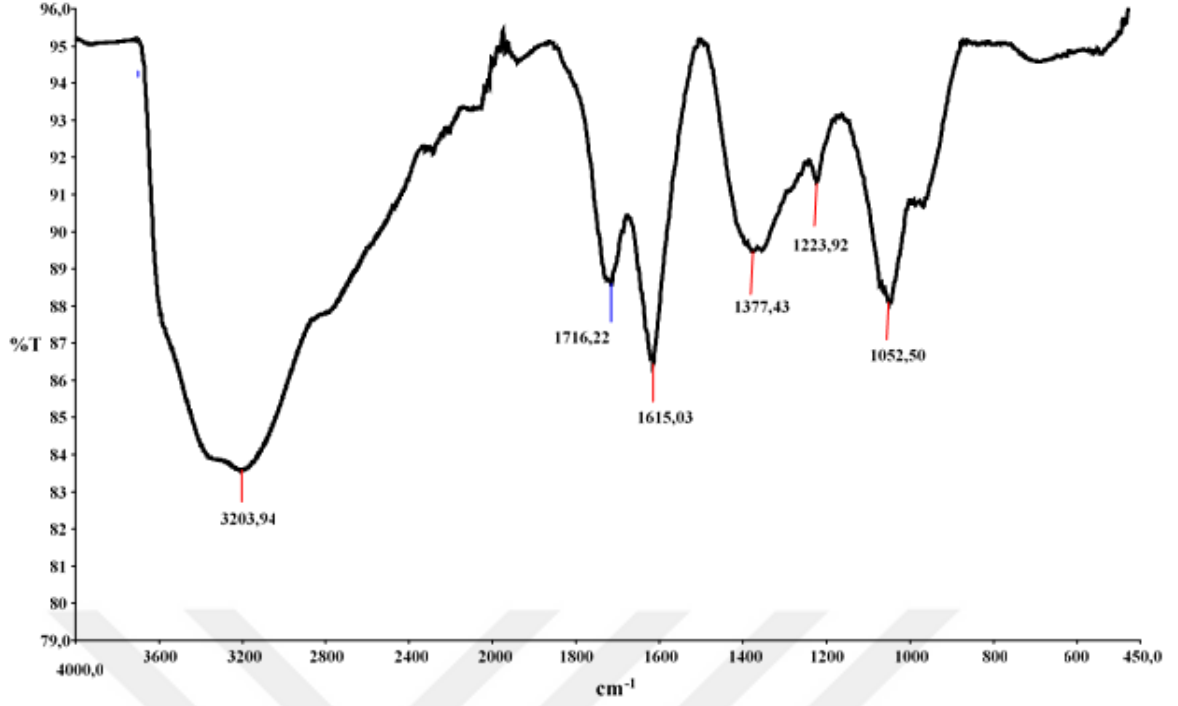
Yüksek lisans tezi kapsamında, inorganik-organik hibritler hazırlamak için inorganik malzeme olarak grafen kullanılmıştır. Diğer taraftan organik madde olarak ise 2-amino-4-metil pridin, 2-amino-5-metil pridin ve 2-amino-5-kloro pridin kullanılmıştır. Grafenin fonksiyonel hale getirilebilmesi için modifiye Hummer's metodu kullanılmıştır. Bu metot ile grafen, GO haline yükseltgenmiş ve GO tabakaları oluşmuştur. GO yüzeyinde karboksil, hidroksil, karbonil ve peroksit gibi fonksiyonel gruplar oluşmaktadır. GO'nin fonksiyonelleştirilebilmesi için karboksil ve karbonil gibi gruplar elektrofilik merkezler olduğu için çeşitli nükleofilik karakterdeki organik bileşiklerle tepkimeye sokularak hibrit olarak adlandırılan bileşikler elde edilmektedir. Çeşitli primer aminlerle GO'nin tepkimesinden amid ve imin yapısında çok sayıda bileşik sentezlenmektedir. Bu yapıdaki hibritler kompleks oluşturma, katalitik tepkimelerde kullanmak için katalizör sentezi, ağır metal kirliliği giderimi, organik kirlilik giderimi, ilaç salınım çalışmalarında kullanım özelliğine sahip bileşiklerin eldesi veya sensör özelliğine sahip malzemelerin hazırlanması gibi çok amaçlı kullanım özelliklerine sahip bileşikler elde edilebilmektedir. Çalışmamızın amacı, ligand özelliğine sahip amid karakterinde GO tabanlı hibrit malzemelerin sentezi, karakterizasyonu, elektrokimyasal ve termal özelliklerinin incelenmesidir. Elde edilen hibritlerin karakterizasyon çalışmaları ise aşağıda verilmiştir.

4.1. GO yapısına ait analizler

Bileşiklerin FTIR spektrumları Kahramanmaraş Sütçü İmam Üniversitesi Kimya Bölümünde bulunan "Perkin Elmer Spectrum 400" cihazı ile alınmıştır.

4.1.1. GO Malzemesinin FTIR analizi

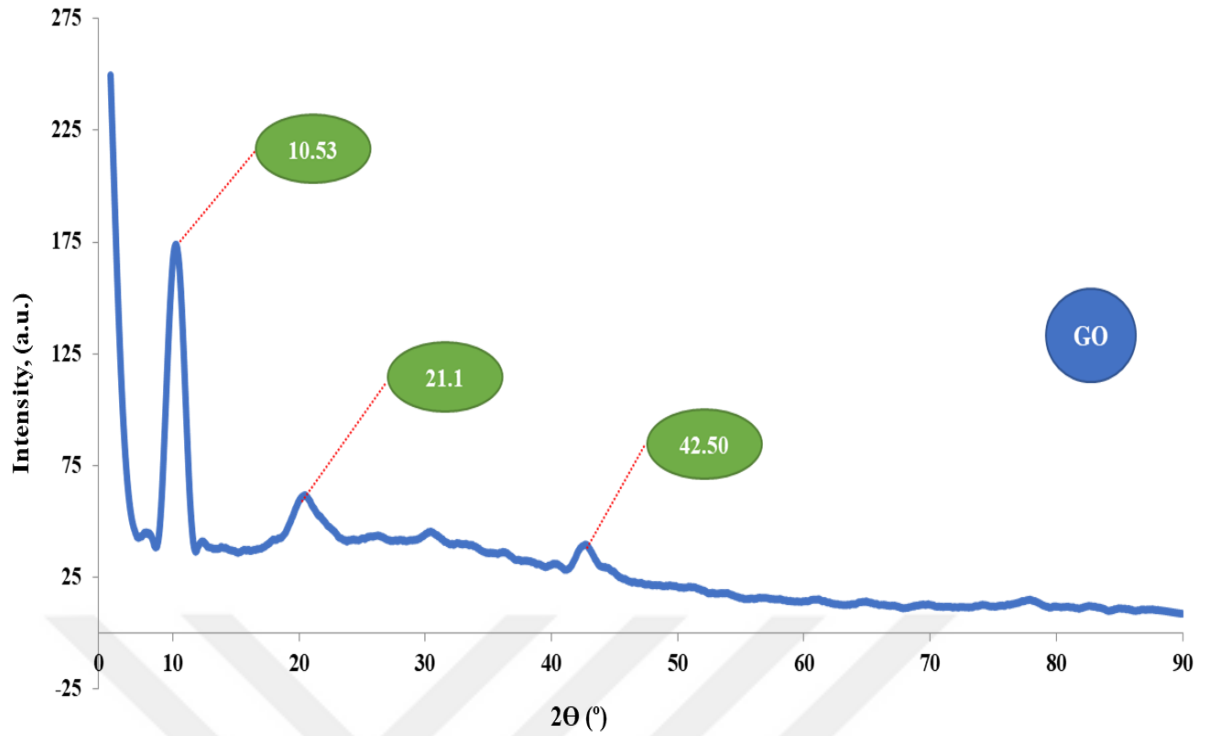
GO malzemesinin FTIR spektrumunda $3203,94\text{ cm}^{-1}$ 'de gözlemlenen geniş band –OH veya H_2O moleküllerinden kaynaklanmaktadır. Karbonil grubunun $\text{C}=\text{O}$ titreşimine ait band $1716,22\text{ cm}^{-1}$ 'de şiddetli ve keskin bir pik olarak gözlemlenmektedir. Aromatik $\text{C}=\text{C}$ titreşiminin keskin piki $1615,03\text{ cm}^{-1}$ 'de gözlenmektedir. Epoksi grubuna ait (O-C-O) titreşim bandı 1223 cm^{-1} 'de gözlemlenmektedir. O-H deformasyon titreşim bandı $1377,43\text{ cm}^{-1}$ 'de ve $1052,50\text{ cm}^{-1}$ 'de C-O germe titreşim bandına sahip olduğu görülmektedir (Shahriary et al., 2014). **Şekil 4.1**'da GO'e ait FTIR spektrumu göstermektedir.



Şekil 4.1 GO malzemesine ait FTIR spektrumu

4.1.2. GO Malzemesinin XRD Analizi

Katmanlı yapıya sahip olan GO bileşiğinin yapısında yer alan oksijen bulunduran grupların ve GO levhaları arasında bulunan H₂O moleküllerinden kaynaklanan etkiyle ile GO bileşiğinin XRD verisinde tepe noktası $2\theta = 10.53^\circ$ de bulunmaktadır (Şekil 4.2). Bileşiğin XRD analizinde düzlemler arası d mesafesi Bragg yasasına ($2d \cdot \sin\theta = n\lambda$) göre hesaplanarak 8.43 Å, 0.84 nm olarak bulunmuştur. Bu değerin oluşmasının temel sebebi saf grafitin oksidasyonu sonucu tabakalar arasına giren oksijendir. Hesaplanan bu değer saf grafit yapısının $2\theta = 26.5^\circ$, $d = 0.34$ nm mesafesinden de büyüktür (Chengzhou Zhu et al., 2010).



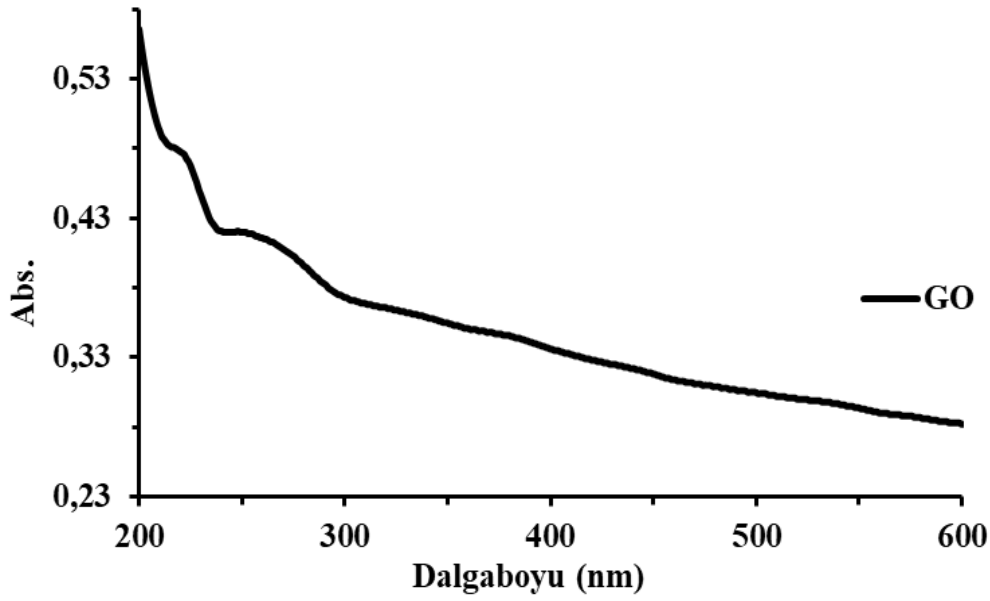
Şekil 4.2 GO malzemesine ait XRD spektrumu.

4.1.3. GO Malzemesinin UV-vis Analizi

Bileşiklerin UV-vis spektrumları Kahramanmaraş Sütçü İmam Üniversitesi Kimya Bölümünde bulunan “Hitachi U3900H Spectrophotometer” cihazı ile alınmıştır.

Tez kapsamında sentezlenen GO’nin UV-vis spektrumu Şekil 4.3’de gösterilmektedir. GO’ in UV-vis spektrumunda iki karakteristik absorpsiyon bandı vardır. 225 nm’de ortalananmış absorpsiyon bandı, aromatik C-C bağlarının $\pi-\pi^*$ geçişlerine atfedilir. 270 nm’de ortalananmış omuz, C=O bağlarının $n-\pi^*$ geçişlerine karşılık gelir (Shahriary et al., 2014).

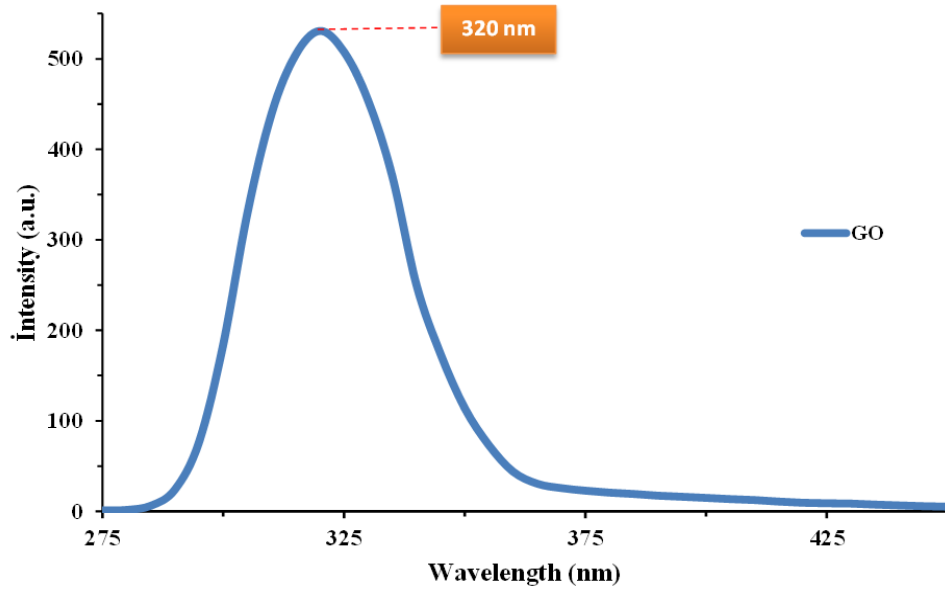
UV-vis spektrum sonuçları, GO’in yüzeyindeki oksijen içeren fonksiyonel grupların çoğunlukla kaldırıldığını ve grafen levhasının içindeki elektronik konjugasyonun indirgeme reaksiyonu yoluyla geri yüklendiğini göstermektedir (Yu et al., 2004).



Şekil 4.3 GO malzemesine ait UV-vis spektrumu.

4.1.4. GO Malzemesine ait FL Analizi

GO malzemesinin optik özelliklerinin belirlenmesinde absorbans ve fotolüminesans özellikleri oldukça önemli rol oynamaktadır. Bu çalışma kapsamında sentezlenen GO aromatik sp^2 alanlarının $\pi-\pi^*$ geçişlerinden kaynaklanan 225 nm ve C=O bağlarının $n-\pi^*$ geçişlerinden kaynaklanan 270 nm’de iki karakteristik pike sahiptir (Lin et al., 2014; Song et al., 2014). GO’ye ait 225 nm’deki absorbans değeri uyarıldığında 320 nm’de bir emisyon bandı verdiği görülmektedir (Şekil 4.4).

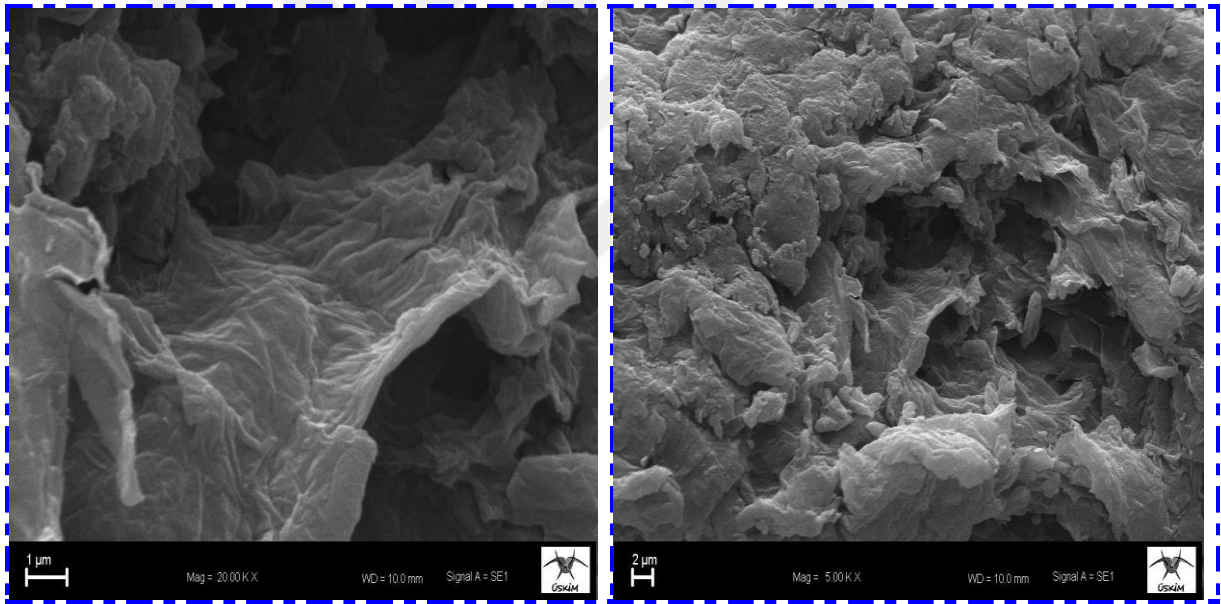


Şekil 4.4 GO Malzemesine ait FL spektrumu.

4.1.5. GO Malzemesinin SEM analizi

Bileşiklerin Taramalı Elektron Mikroskobu (SEM-EDX) görüntüleri Kahramanmaraş Sütçü İmam Üniversitesi Kimya Bölümünde bulunan “JEOL JSM – 5600” cihazı ile alınmıştır

Tez kapsamında sentezlenen GO’ye ait SEM görüntüleri **Şekil 4.5**’de verilmiştir. SEM görüntüleri incelendiğinde, GO yapısının aralarında belirli mesafe bulunan bir yaprak gibi katmalara sahip olduğu görülebilmektedir. Katmanlı yapıların kısa aralıklı kümeler oluşturduğu ve bu kümelerin kendi içerisinde dış bükey bir görsel oluşturduğu gözlemlenmiştir. Görüntülerde genel olarak oval yapıların mevcut olduğu gözlemlenmiştir. Kısa ara katman alanı ve kısmen güçlü Van der waals etkileşimlerinden dolayı, GO örneklerinin kümeler oluşturması beklenen bir sonuçtur. SEM grafikleri, bir mikrometreden birkaç mikrometreye değişen, katmanlı yapıları sahip genişletilmiş yanal boyut tabakalarını açıkça göstermektedir.



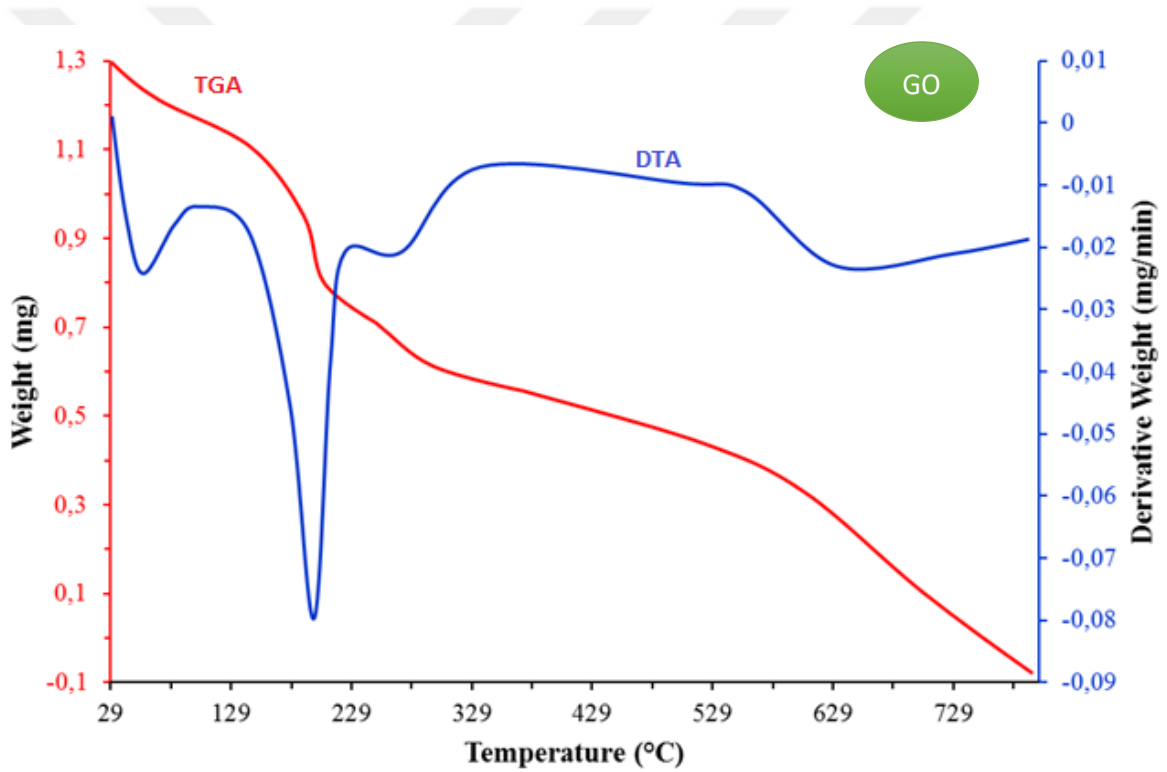
Şekil 4.5 GO Malzemesine ait SEM görüntüleri

4.1.6. GO Malzemesinin TGA analizi

Bileşiklerin Termogravimetrik Analiz (TGA) spektrumları Kahramanmaraş Sütçü İmam Üniversitesi Kimya Bölümünde bulunan “Perkin Elmer STA 6000” cihazı ile alınmıştır.

GO malzemesi için termogravimetrik analiz çalışmaları N₂ atmosferinde ve dakikada 10 °C ısıtma hızıyla, 30 °C ile 800 °C sıcaklık aralığında yapılmıştır (**Şekil 4.6**). GO sentezi sonrası yıkama aşamasında bol su kullanıldığından, oda sıcaklığında kurutma işlemi sırasında GO’ın yüzeyinde yoğun su molekülleri birikir. GO sentezinde, suyla yıkama sonrası oda sıcaklığında kurutma, GO’ın yüzeyinde yoğun su birikimine yol açar. GO’ın su seven yapısı

bu nemi tutar, bu da ısı dayanımını ve elektriksel iletkenliğini azaltır. GO malzemesinin termal bozunması dört basamakta gerçekleşmiştir. GO malzemesinin TGA ve DTA (Diferansiyel Termal Analiz) eğrileri incelendiğinde; yaklaşık 40 °C’ de kütle kaybının gerçekleştiği ve kütle kaybını doğrulayacak şekilde endotermik bir DTA piki olduğu gözlemlenmektedir. GO malzemesinin adsorbe ettiği H₂O moleküllerinin bir kısmı 40 °C’ deki kütle kaybına dahildir. 190 °C’de gerçekleşen ikinci kütle kaybı ise GO malzemesi üzerindeki (-COOH), (-OOH), (-O-) ve (-OH) gibi fonksiyonel grupların bir kısmını ve geriye kalan H₂O moleküllerinin uzaklaşmasını içermektedir. Kütle kaybının endotermiktir işlemle gerçekleştiği şiddetli bir DTA pikiyle desteklenmektedir. 300 °C’de Üçüncü ve 650 °C’de dördüncü kütle kaybı meydana gelirken, 800 °C’ deki kütle kaybı GO malzemesinin tamamen bozunması ile sonuçlanmıştır.



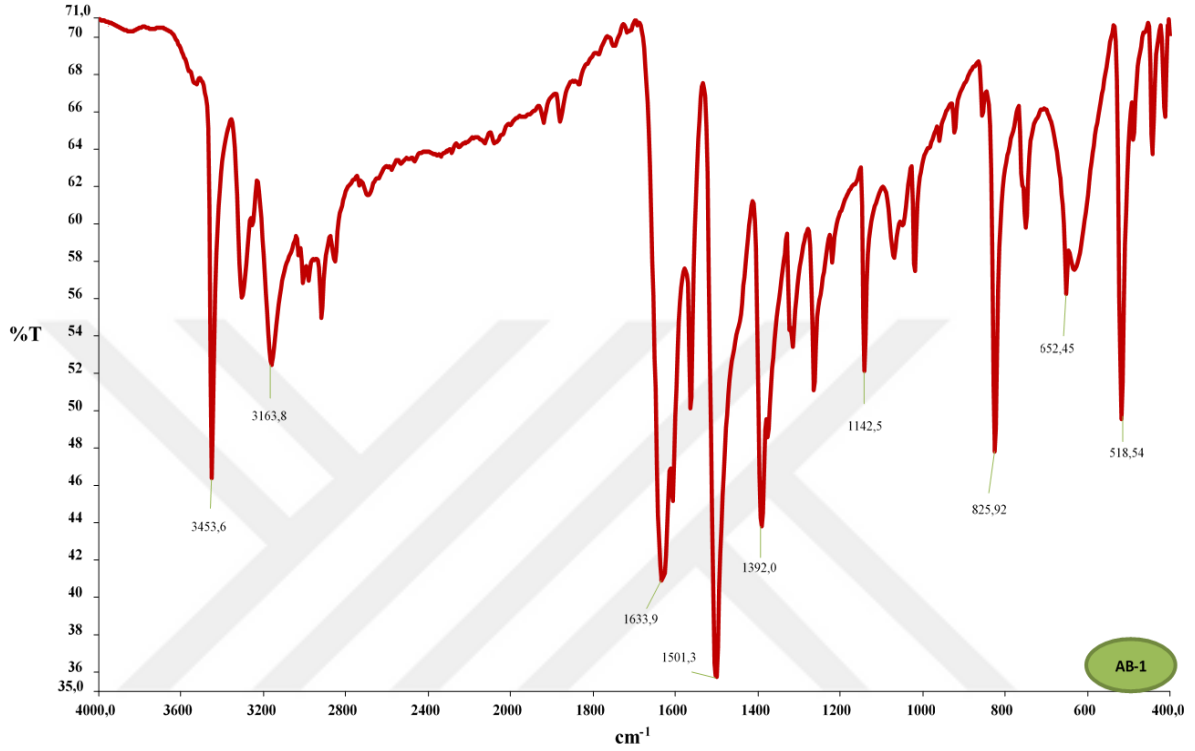
Şekil 4.6 GO Malzemesine ait TGA şekli

4.2. Hibrit Malzemelerinin Analizleri

4.2.1. Organik- İnorganik hibrit malzemelerin FTIR spektrumları

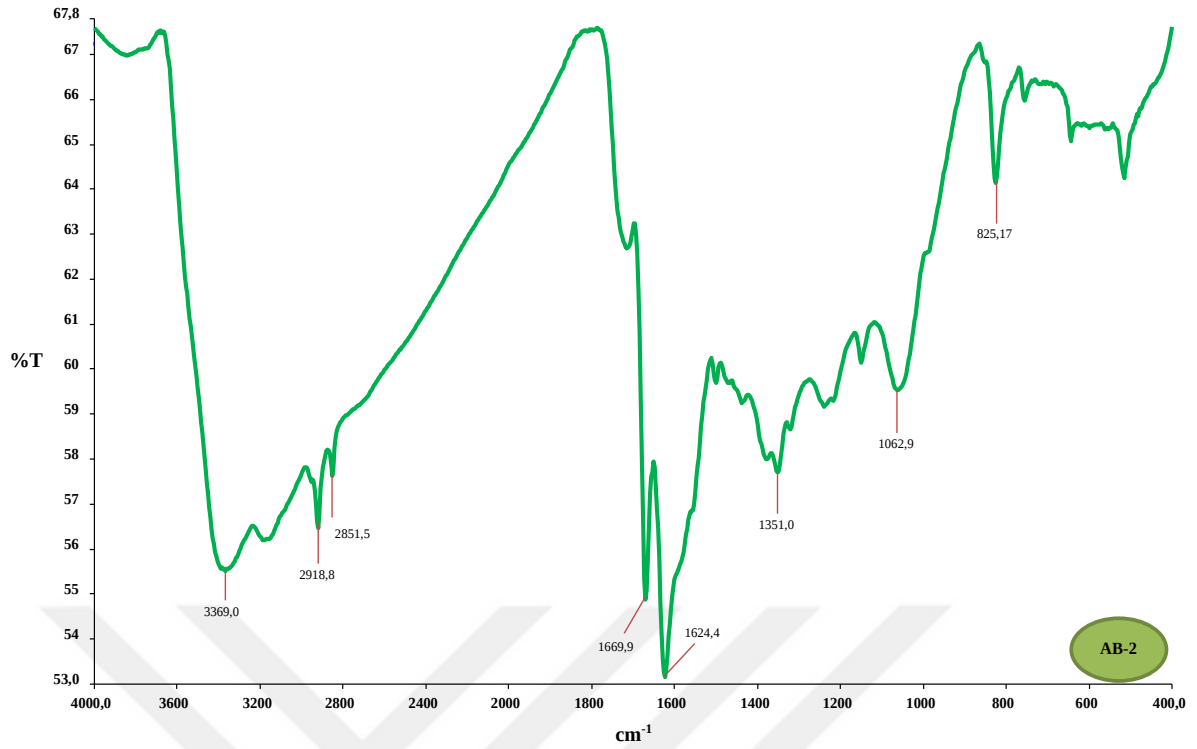
Hibritlerin hazırlanmasında kullanılan organik bileşiklerden 2-amino-5-kloro pridin, 2-amino-4-metil pridin ve 2-amino-5-metil pridin bileşiklerinin FTIR spektrumları ek dosyada **Şekil S1-3'**de verilmiştir. Organik bileşiklerin karakteristik olan amino ve imin gruplarına ait titreşim bantları keskin ve şiddetli bantlar olarak literatürdeki değerlerle uyumlu bir

şekilde bulunduğu görülmektedir. Organik bileşiklere ait primer amin gruplarından kaynaklanan titreşim bantları $3455\text{-}3452\text{ cm}^{-1}$ aralığında gözlenmiştir. 2-amino-4-metil pridin bileşiğinde 2950 cm^{-1} de gözlenen orta şiddetteki bantlar alifatik $\text{V}(\text{C-H})$ titreşimlerinden ileri gelmektedir. Her üç organik bileşiğin ortak olarak içerdiği $\text{V}(\text{HC=N})$ titreşim bandı $1634\text{-}1626\text{ cm}^{-1}$ aralığında gözlenmiştir (Şekil 4.7).



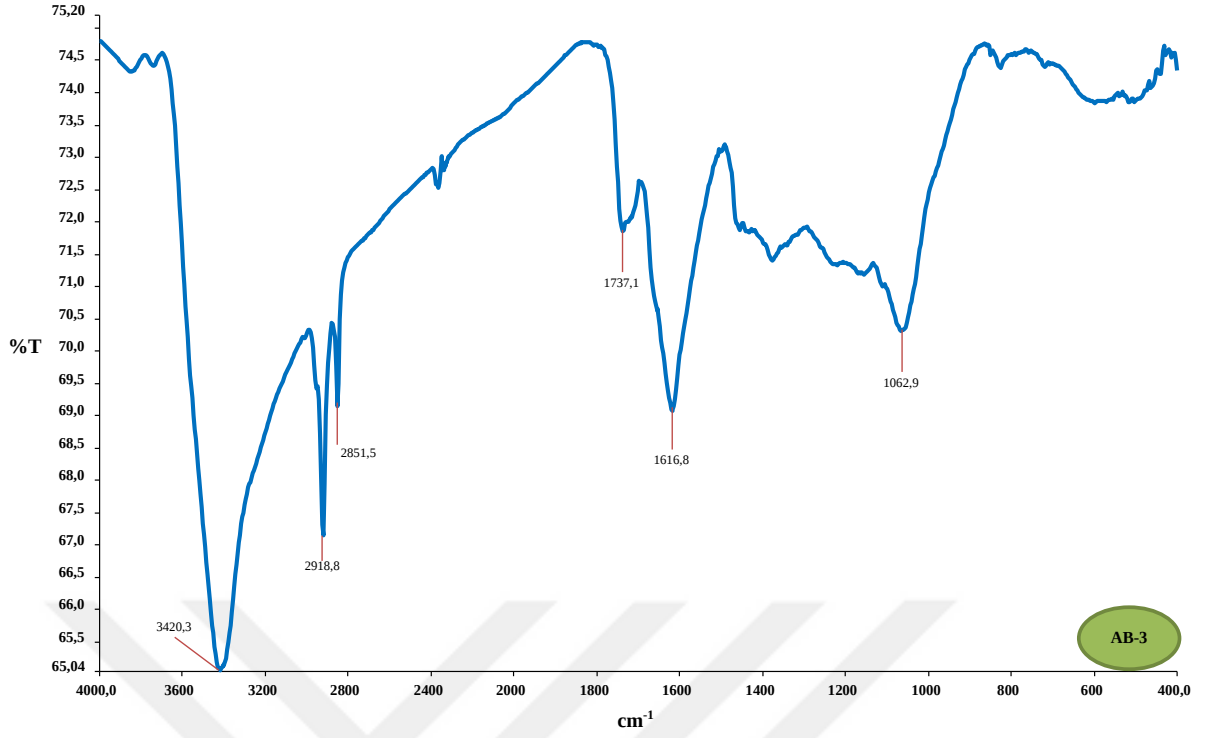
Şekil 4.7 AB-1 Hibrit Malzemesine ait FTIR spektrumu

Diğer taraftan hibrit bileşikler olarak sentezlenen AB-1, AB-2 ve AB-3 hibritlerinin FTIR spektrumları Şekil 4.8-410'da verilmiştir. Hibrit bileşikler fonksiyonel grup olarak karboksil, karbonil, hidroksil, epoksi ve peroksi gruplarını içermektedir. Tez kapsamında sentezlediğimiz hibritlerde GO'nin karboksil grubu ile pridin türevlerinin amino grupları arasındaki etkileşim sonucu amid türevleri oluşmaktadır. Amid grubunun karakteristik özelliklerinden biri olan $3400\text{-}3150\text{ cm}^{-1}$ aralığında $\text{V}(\text{N-H})$ gerilme titreşiminden kaynaklanan ikili bant AB-1 hibritinde açık olarak görülmektedir. AB-2 ve AB-3 hibrit malzemelerinde bu pik H_2O veya $\text{V}(\text{OH})$ grubuna ait geniş pik içinde kalmıştır (Şekil 4.8). Bu aralıkta hibritlerin içerdiği adsorbe H_2O molekülleri, karboksil grubu, $\text{V}(\text{OH})$ grubu titreşim bantları, serbest hidroksil grubundan kaynaklanan $\text{V}(\text{OH})$ bantları ve amid grubu $\text{V}(\text{N-H})$ titreşim bantları aynı bölgede görüldüğü için spektrumlarda geniş bir aralık olarak gözlenmiştir.



Şekil 4.8 AB-2 Hibrit Malzemesine ait FTIR spektrumu

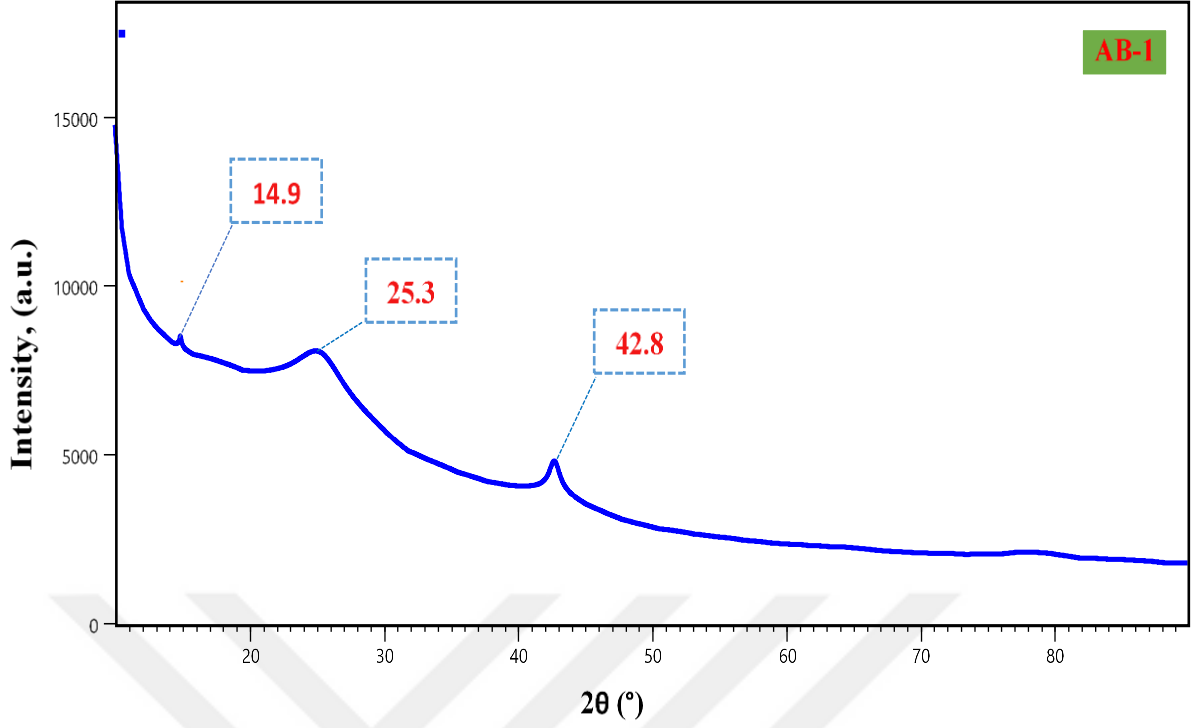
AB-3 hibritinin içerdği organik bileşiğin pridin halkası üzerinde bulunan alifatik metil grubuna ait titreşim bantları 2920 cm^{-1} civarında gözlenmiştir (**Şekil 4.9**). Hibrit bileşiklerinin karakteristik gruplarından biri olan karbonil grubuna ait $\text{V}(\text{C}=\text{O})$ titreşim bantları $1737\text{--}1662\text{ cm}^{-1}$ aralığında gözlenmiştir. Pridin halkasında bulunan –imin grubuna ait titreşim bantları $1624\text{--}1617\text{ cm}^{-1}$ aralığında gözlenmektedir.



Şekil 4.9 AB-3 Hibrit Malzemesine ait FTIR spektrumu

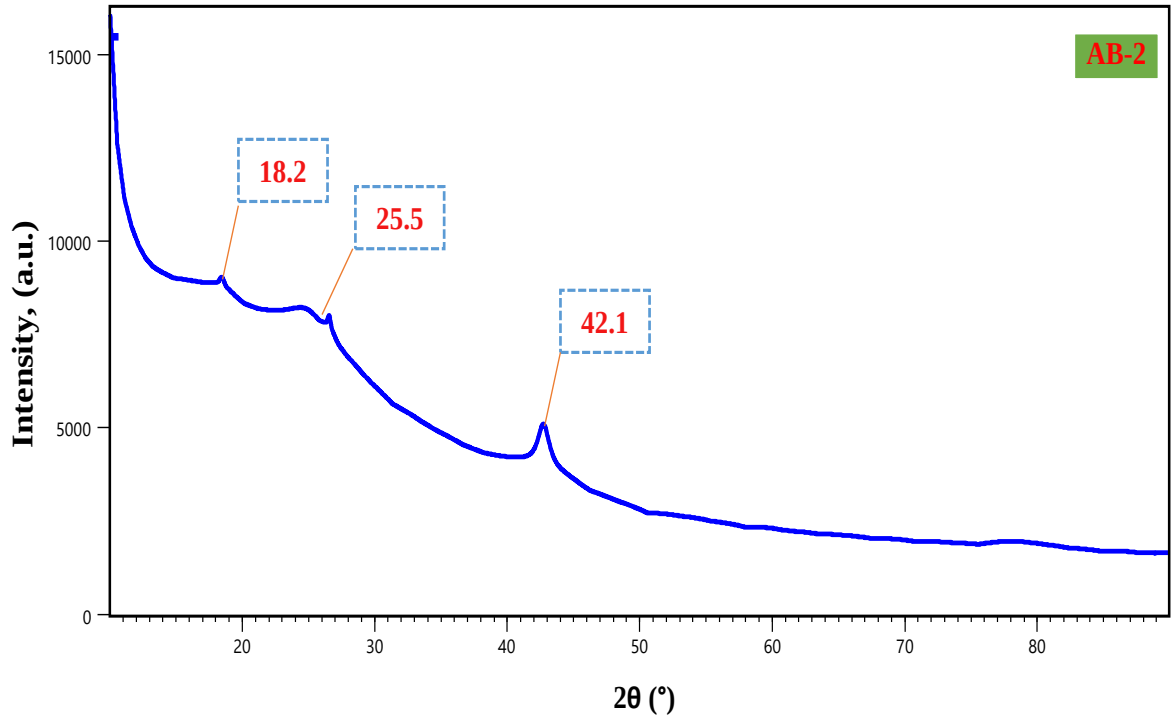
4.2.2. Hibrit Malzemelerin XRD Analizi

GO bileşiğinin iç alanlarında bulunan OH⁻ grupları ve dış alanlarında bulunan karbonil ve karboksil grupları gibi fonksiyonel gruplar 2θ değerindeki kaymaya neden olurlar. GO bileşiğine ait XRD spektrumu Şekil 4.10’da verilmiştir. GO bileşiğinin kenarlarında yer alan karboksil gruplarıyla etkileşerek ortaya çıkan AB-1, AB-2 ve AB-3 hibrit bileşiklerinin XRD spektrumları, fonksiyonel grupların etkileşime girmesiyle mevcut piklerde kaymalar görülmektedir.



Şekil 4.10 AB-1 Hibrit Malzemesine ait XRD spektrumu.

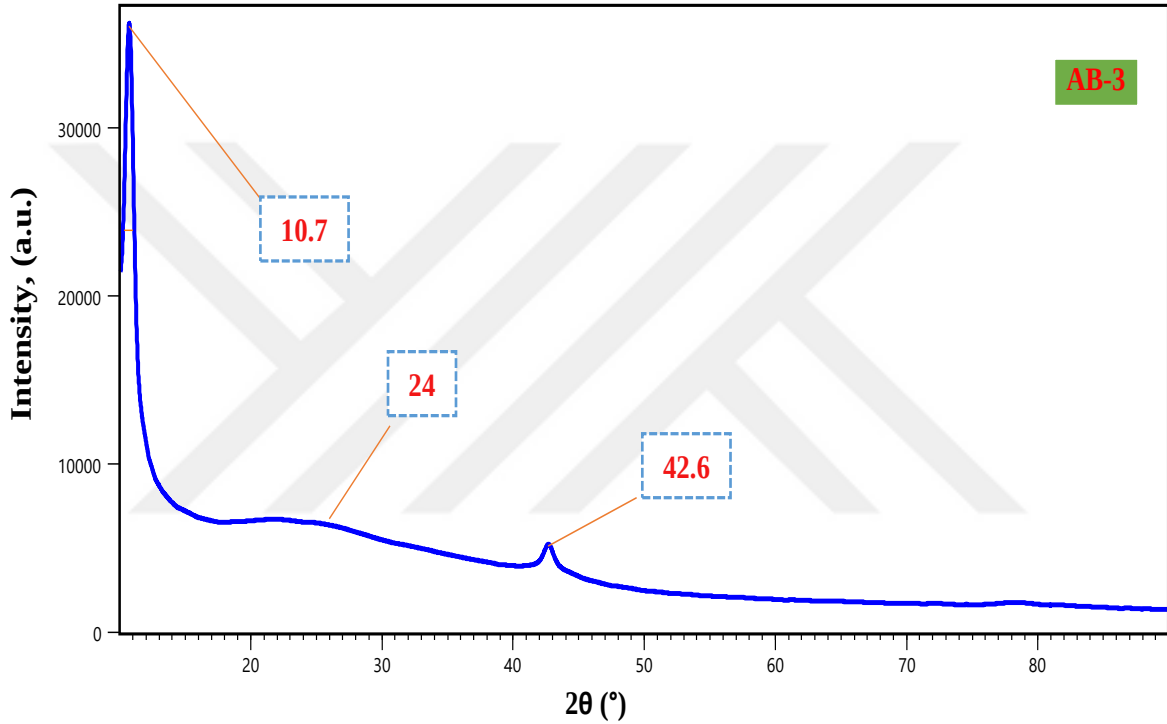
GO bileşiğinin XRD spektrumunda bulunan $2\theta = 10.53^\circ$ deki keskin ve sivri pikin, AB-1 hibrit bileşiğinin XRD spektrumunda $2\theta = 14.9^\circ$ ye, ve AB-2 hibrit bileşiğinin XRD spektrumunda ise $2\theta = 18.42^\circ$ ye AB-3 hibrit bileşiğinin XRD spektrumunda ise $2\theta = 10.7^\circ$ ye kaydığı görülmektedir (Şekil 4.11).



Şekil 4.11 AB-2 Hibrit Malzemesine ait XRD spektrumu.

GO malzemesinin XRD spektrumunda bulunan $2\theta = 21.1^\circ$ 'deki piki, AB-1 hibrit bileşiğinin XRD spektrumunda $2\theta = 25.3^\circ$ 'ye, AB-3 hibrit bileşiğinin XRD spektrumunda ise $2\theta = 24^\circ$ 'ye kaydığı gözlemlenmektedir. AB-2 hibrit bileşiğinin XRD spektrumunda ise $2\theta = 21.1^\circ$ 'deki pik, $2\theta = 21.6^\circ$, $2\theta = 24.9^\circ$ ve $2\theta = 26.5^\circ$ 'de üç adet spektrum olarak ortaya çıkmıştır.

Benzer şekilde, GO bileşiğinin XRD spektrumunda bulunan $2\theta = 42.50^\circ$ 'deki piki, AB-1 hibrit bileşiğinin XRD spektrumunda $2\theta = 42.75^\circ$ 'ye, AB-2 hibrit bileşiğinin XRD spektrumunda ise $2\theta = 42.67^\circ$ 'ye ve AB-3 hibrit bileşiğinin XRD spektrumunda ise $2\theta = 42.60^\circ$ 'ye kaydığı görülmektedir (**Şekil 4.12**).



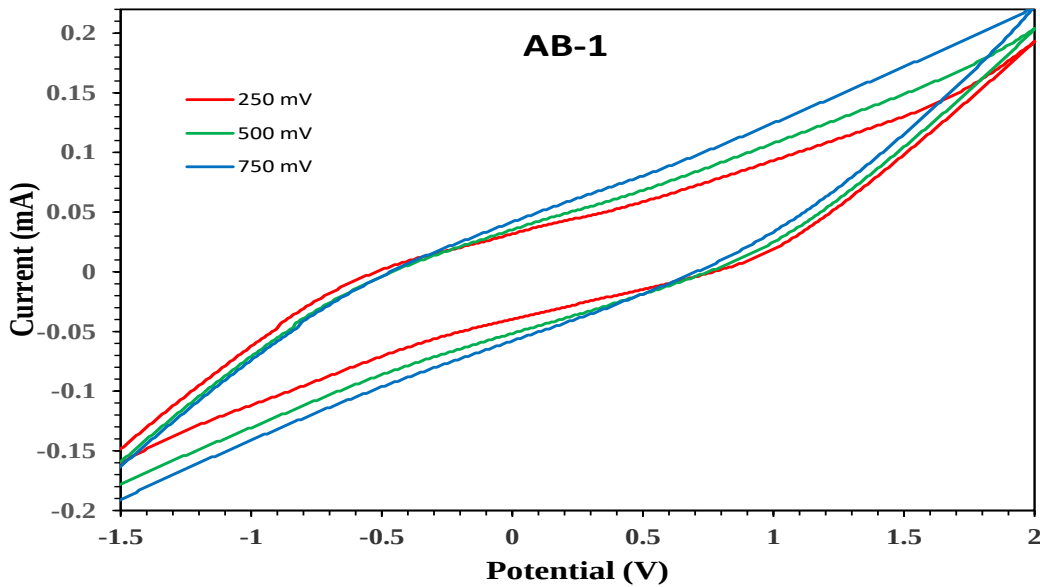
Şekil 4.12 AB-3 Hibrit Malzemesine ait XRD spektrumu.

GO bileşiğinin XRD spektrumunda gözlemlenen pik, hibrit bileşiklere ait XRD spektrumlarında yoğunluğu düşük ve genişlemiş olarak ortaya çıkmaktadır. GO bileşiğinin XRD spektrumunda bulunan $2\theta = 10.53^\circ$ 'deki piki için Bragg yasasına göre düzlemler arası d mesafesi hesaplanmış ve AB-1 bileşiği için 5.95 Å , $d=0.59 \text{ nm}$, AB-2 bileşiği için 4.81 Å , $d=0.48 \text{ nm}$ ve AB-3 bileşiği için 8.28 Å , $d=0.83 \text{ nm}$ olarak bulunmuştur. AB-1, AB-2 ve AB-3 bileşiklerine ait XRD spektrum verileri ve hesaplamalarına ait tablolar ek dosya da **Tablo 1-3**'de ve hibrit bileşiklere ait XRD spektrumları ise **Şekil 23,24,25**'de verilmiştir.

4.2.3. Hibrit Materyallerinin Elektrokimyasal Özellikleri

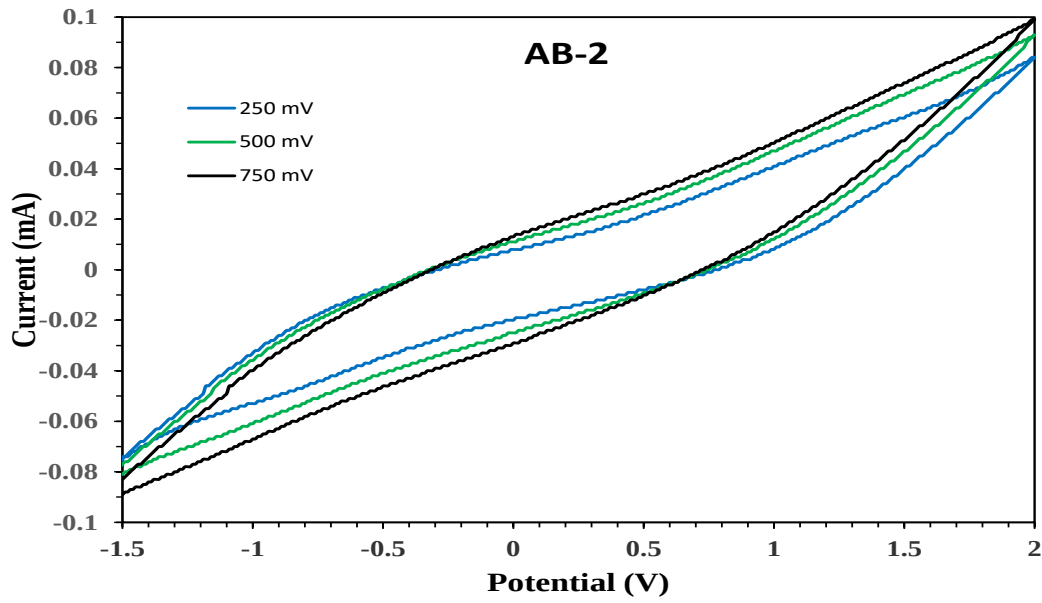
Sentezlenen AB-1, AB-2 ve AB-3 hibrit materyaller DMF çözücüsü ortamında çözülerek üzerine 2.0 M Tris tampon çözeltisi ($\text{pH} = 7.2$) eklendi. Siklik voltammetrik ölçümlerde

referans elektrot olarak Ag/AgCl, karřıt elektrot olarak platin tel elektrot ve alıřma elektrodu olarak ise camsı karbon (glassy carbon) elektrot kullanılmıřtır. Elektrokimyasal mler -2.0 volt ile +2.0 volt arasında yapıldı ve anodik ve katodik pik potansiyelleri belirlendi. Ayrıca, belirtilen aralıkta mler 250, 500 ve 750 mVs⁻¹'de incelendi. AB-1, AB-2 ve AB-3 hibrit materyallerinin siklik Voltamogramları [řekil 4.13-4.15](#)'te verilmiřtir. AB-1 hibrit materyalinin siklik Voltamogramı incelendiğinde, birer adet anodik (E_{pa}) ve katodik (E_{pc}) pik potansiyeline sahip olduėu grlmektedir. Anodik pik potansiyelleri -0.58 V ile -0.66 V arasında iken katodik pik potansiyelleri ise 0.91 V ile 0.75 V arasındadır. Anodik pikler negatif blgede gzlenirken katodik pikler ise pozitif blgede gzlenmiř ve redoks iřlemlerinin dnřmsz olduėu belirlenmiřtir. Anodik ve katodik pik potansiyelleri tarama hızının artmasına baėlı olarak daha pozitif blgelere kaymaktadır.



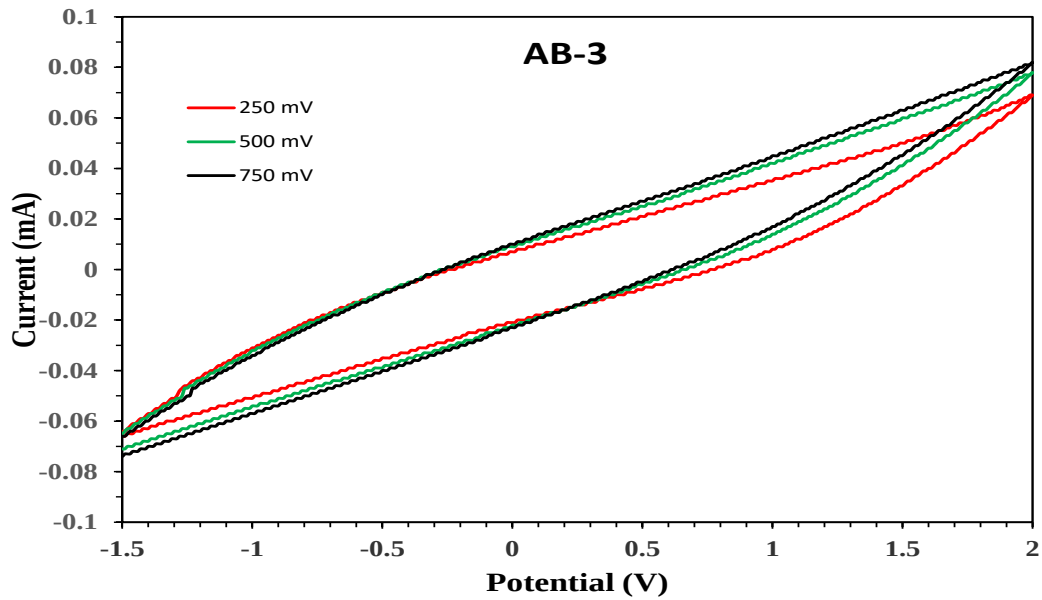
řekil 4.13 AB-1 Hibrit Malzemesine ait Siklik Voltamogram Grafiėi.

AB-2 hibrit bileřiėi 250 ve 750 mVs⁻¹ tarama hızlarında diėer hibritler gibi birer adet ykseltgenme ve indirgenme potansiyelleri vardır. Ykseltgenme potansiyelleri -0.60 V ile -0.70 V arasında iken indirgenme potansiyeli ise 0.65 V civarındadır. Diėer taraftan, 500 mVs⁻¹ tarama hızında, hibrit materyalin iki adet ykseltgenme potansiyeli olduėu belirlenmiřtir. Ykseltgenme potansiyelleri -0.21 V ile -0.66 V'tadır. 500 mVs⁻¹ tarama hızındaki katodik pik sayısı ise bir adettir. AB-2 hibrit materyali iin de redoks iřlemleri dnřmsz olarak gerekleřmiřtir ([řekil 4.14](#)).



Şekil 4.14 AB-2 Hibrit Malzemesine ait Siklik Voltamogram Grafiği.

AB-3 hibrit bileşiğinin siklik Voltamogramı da AB-1 hibrit materyaline benzer şekilde birer adet anodik ve katodik pik potansiyeline sahiptir. Anodik pik potansiyellerinin -0.29 V ile -0.44 V arasında olduğu ve katodik pik potansiyelinin ise 0.75 V ile 0.91 V arasında olduğu belirlenmiştir. Bu hibrit bileşiğinde de dönüşümsüz olarak redoks işlemlerinin gerçekleştiği görülmüştür ([Şekil 4.15](#)).

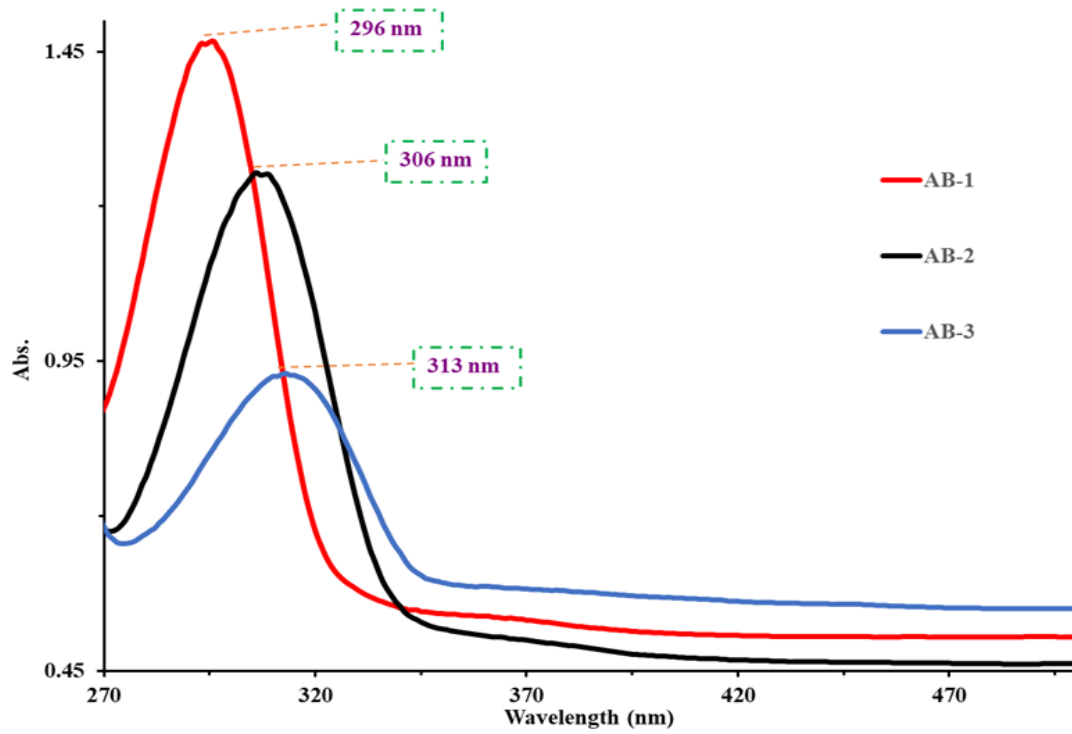


Şekil 4.15 AB-3 Hibrit Malzemesine ait Siklik Voltamogram Grafiği.

4.2.4. Hibrit Materyallerinin Elektronik Özellikleri

GO'in UV-vis spektrumu DMF çözücü ortamında incelendi. GO'in UV-vis spektrumunda gözlenen $\pi \rightarrow \pi^*$ ve $n \rightarrow \pi^*$ geçişleri literatürlerle uyumlu olarak gözlemlendi ([Karabörk et al.,](#)

2018b). AB-1, AB-2 ve AB-3 hibrit materyallerinin UV-vis spektrumları da benzer şekilde DMF çözelti ortamında incelenmiş ve hibritlerin spektrumları **Şekil 16**'da verilmiştir. Hibrit bileşiklerin UV-vis spektrumları incelendiğinde her bir hibritin ikişer adet absorpsiyon bandının olduğu görülmektedir. Hibrit materyallerin absorpsiyon bantları 305—375 nm arasındadır. Yüksek enerjili bölgede AB-1, AB-2 ve AB-3 hibritlerinin 296, 306 ve 313 nm'deki bantları $\pi \rightarrow \pi^*$ ve $n \rightarrow \pi^*$ geçişlerinden kaynaklanmaktadır. Bu elektronik geçişler hibrit materyalin yapısında yer alan -C=O, -COOH, pridin, -NH- gibi grupların varlığından ileri gelmektedir.

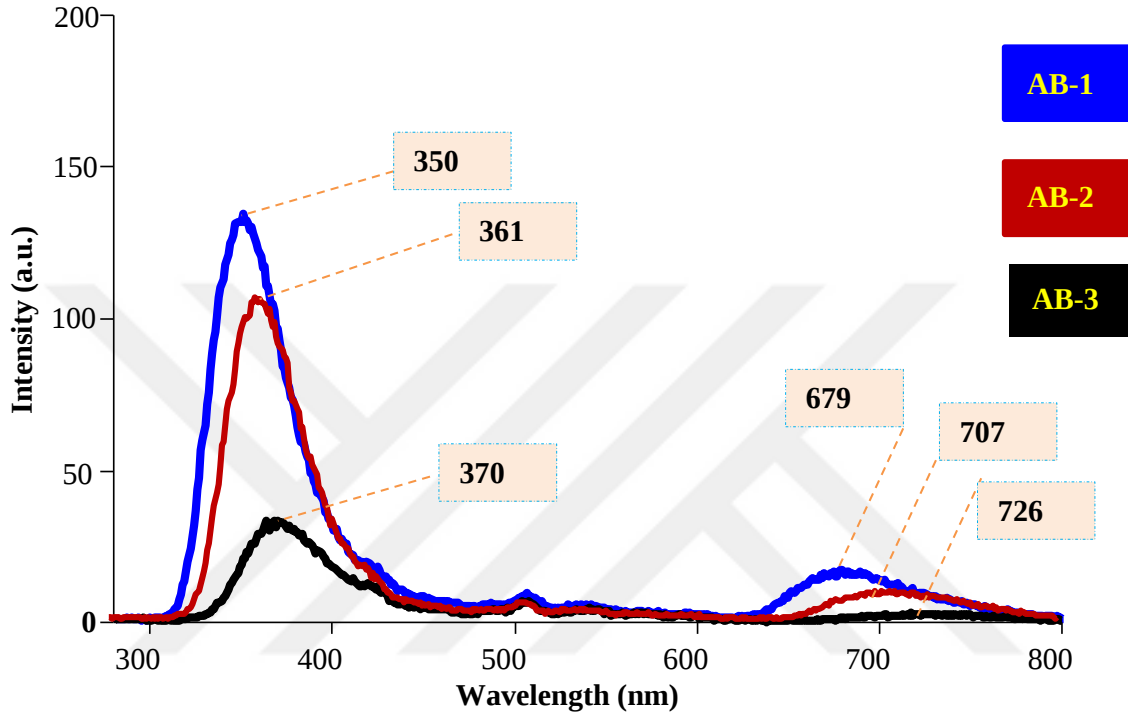


Şekil 4.16 AB-1, AB-2 ve AB-3 Hibrit Malzemelerine ait UV-vis spektrumları.

4.2.5. Hibrit Materyallerin FL Analizi

AB-1, AB-2 ve AB-3 hibrit malzemelerinin 296, 306 ve 313 nm'de gösterdiği absorbans değerlerine karşılık, 300-400 nm aralığında kuvvetli emisyon bantları oluşturduğu görülmüştür. Bunun yanında 650-750 nm aralığında zayıf emisyon bantları görülmektedir. 2-amino-4-metil pridin fonksiyonel grubunun GO levhasına bağlanmasıyla oluşan AB-1 hibrit malzemesinin sahip olduğu 350 nm'deki emisyon bandı, 2-amino-5-metil pridin fonksiyonel grubunun GO levhasına bağlanmasıyla oluşan AB-3 hibrit malzemesinde hafif kırmızıya kayma göstererek 361 nm'de ortaya çıkmıştır. 2-amino-5-kloro pridin fonksiyonel grubunun GO levhasına bağlanmasıyla oluşan AB-2 hibrit malzemesinde ise 'Cl' grubunun

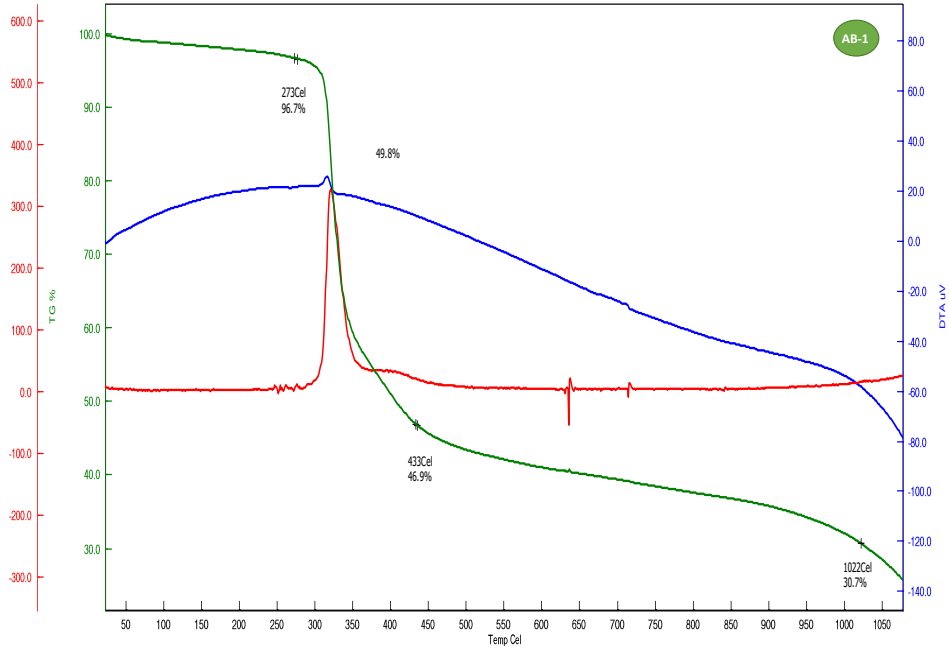
etkisiyle AB-3 malzemesine kıyasla daha fazla kırmızıya kayma göstererek 370 nm’de bir emisyon bandı gözlemlenmiştir. Ayrıca molekül içi elektronik geçişlerden kaynaklı olarak AB-1, AB-2 ve AB-3 hibrit malzemeleri sırasıyla 679, 707 ve 726 nm’de zayıf emisyon bandları göstermişlerdir. Hibrit malzemelere ait Fotoluminesans spektrumlarını gösteren grafik **Şekil 4.17**’de görülmektedir.



Şekil 4.17 AB-1, AB-2 ve AB-3 Hibrit Malzemelerine ait FL spektrumları.

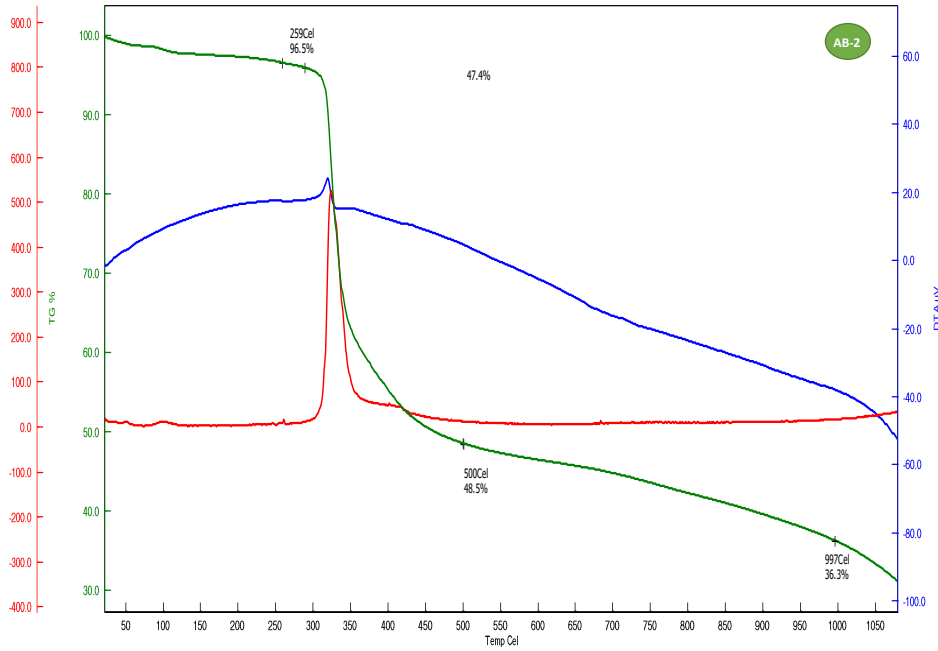
4.2.6. Hibrit Materyallerinin Termal Özelliklerinin İncelenmesi

AB-1, AB-2 ve AB-3 hibrit materyallerinin termal özellikleri 25-1000 °C sıcaklık aralığında incelenmiş ve elde edilen termal eğriler **Şekil 4.18-4.20**’de verilmiştir. Hibritlerin termogravimetrik eğrileri benzer bozunma prosesleri göstermektedir. AB-1 hibrit bileşiğinin termogram eğrisinde 273°C sıcaklığa kadar kararlıdır. Bu sıcaklıktan 433 °C’ye kadar hibrit materyalin yaklaşık %50 kadarı bozunmaktadır. Kütle kaybının olduğu sıcaklıkta diferansiyel termal analiz eğrisinde bir ekzotermik pik gözlenmiştir. Diğer kütle kaybı ise 433 °C’den başlayarak yaklaşık 900 °C civarına kadar devam etmekte ve bu sıcaklık arasındaki kütle kaybı ise %46.9 oranındadır.



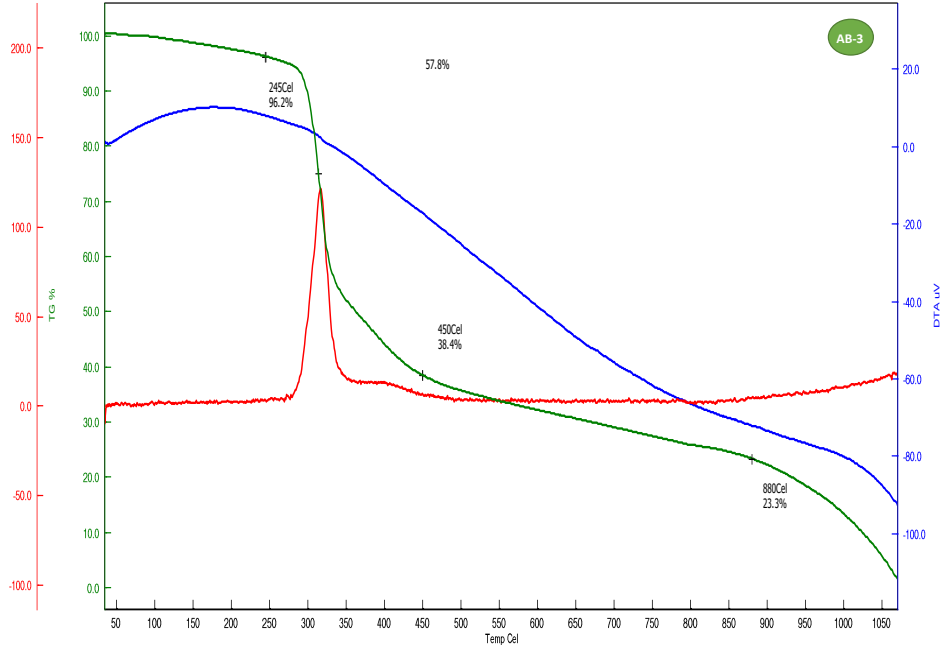
Şekil 4.18 AB-1 Hibrit Malzemesine ait TGA/DTA eğrisi.

AB-2 hibrit bileşiğinin termogravimetrik eğrisinde termal bozunma olayı iki basamakta gerçekleşmektedir. Birinci basamak 259 °C’de başlayarak 500 °C’ye kadar devam etmektedir. İkinci basamaktaki bozunma olayı ise yaklaşık 850 °C’ye kadar devam etmektedir. Hibrit bileşiklerin tamamı benzer termal bozunma davranışı göstermişlerdir (Şekil 4.19).



Şekil 4.19 AB-2 Hibrit Malzemesine ait TGA/DTA eğrisi.

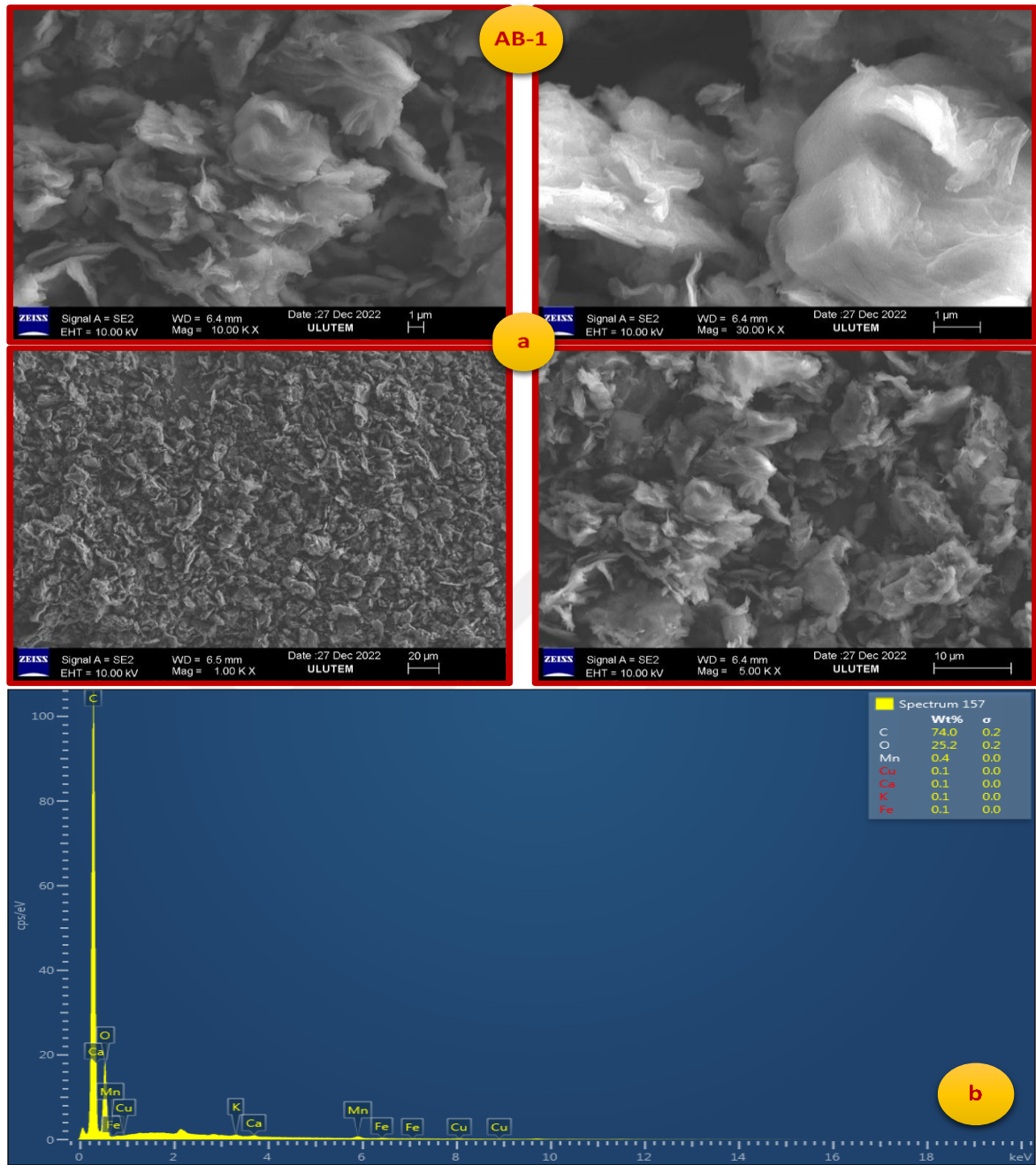
AB-3 hibrit bileşiği AB-1 ve AB-2'ten farklı olarak üç basamakta bozunmaktadır. En büyük kütle kaybı ilk kütle kaybının olduğu basamakta olmuştur. İkinci kütle kaybı 250-500 °C sıcaklık aralığında gözlenmiştir. Üçüncü ve son basamakta ise en az kütle kaybının olduğu basamaktır (Şekil 4.20).



Şekil 4.20 AB-3 Hibrit Malzemesine ait TGA/DTA eğrisi.

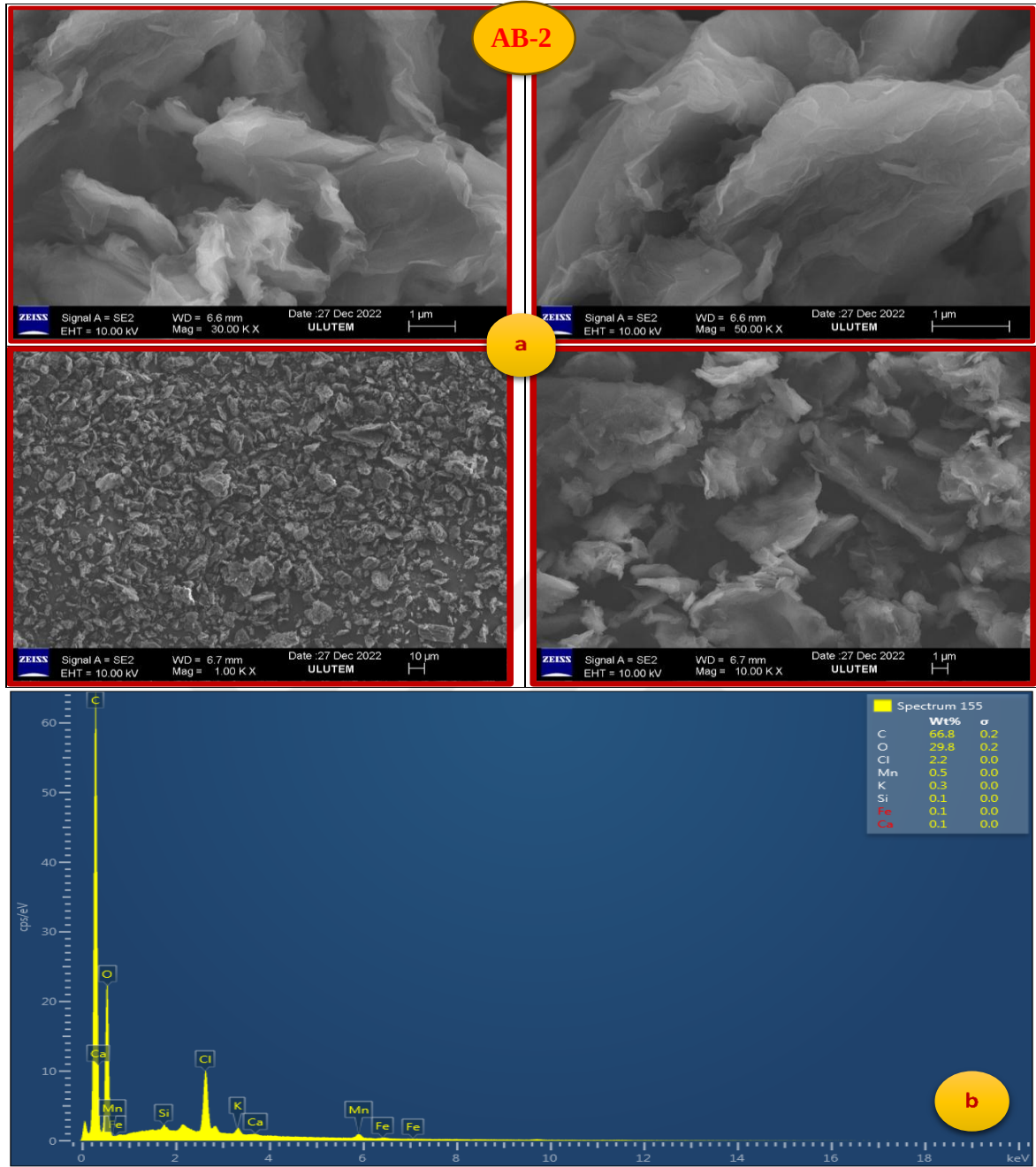
4.2.7. Hibrit Materyallerinin SEM Görüntüleri

GO yapısının katmanlı levha şeklindeki görünümü, 2-amino-4-metil piridin/2-amino-5-kloropridin/2-amino-4-metil piridin grubunun, levhaların dış kısımlarında yer alan karboksil grupları ile bağ yapması sonucu yer yer kırışıklıklar ve kümelenmelere oluşmaktadır. Fonksiyonel grupların karboksil gruplarıyla bağlanması, GO yapısının yüzeyindeki homojen dağılımlı yapıda değişikliğe neden olmuştur.



Şekil 4.21 AB-1 malzemesine ait (a) SEM görüntüleri ve (b) EDX verileri.

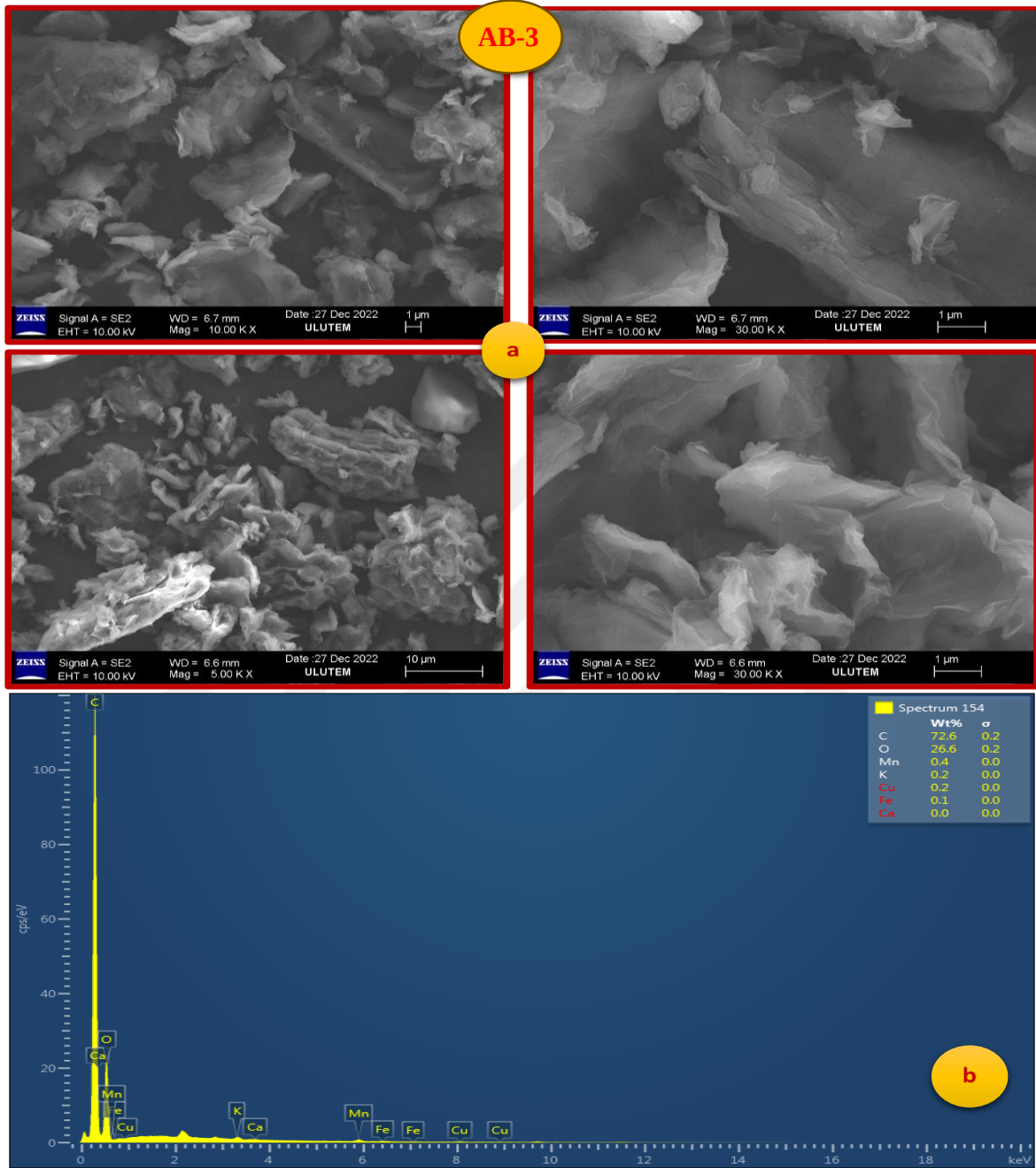
AB-1 malzemesinin SEM görüntülerinde bazı noktaların daha şeffaf ve daha az kümelenmeye sahip olmasının nedeni bu bölgelerde 2-amino-4-metil piridin grubunun GO malzemesiyle daha az etkileşime girmesinden kaynaklanmaktadır. AB-1 malzemesinin EDX verileri incelendiğinde GO malzemesinin verilerine kıyasla 'O' atomu oranında azalma meydana geldiği gözlemlenmektedir. Bu durum GO malzemesiyle 2-amino-4-metil piridin grubu arasında etkileşin oluştuğunu göstermektedir (Şekil 4.21).



Şekil 4.22 AB-2 malzemesine ait (a) SEM görüntüleri ve (b) EDX verileri.

GO malzemesinin 2-amino-5-kloropridin grubuyla etkileşmesi sonucu elde edilen AB-2 hibrit malzemesinin SEM görüntüleri incelendiğinde GO malzemesinin homojen dağılımlı ve şeffaf katmanlı yapısının değişime uğradığı gözlemlenmiştir. 2-amino-5-kloropridin gruplarının karboksil gruplarıyla etkileşmesi sonucu kümelenmiş gruplar oluşmuş ve katmanlı yapının azalmasına şeffaf görüntünün kaybolması eşlik etmiştir. AB-2 malzemesinin EDX verileri incelendiğinde; GO malzemesinin verilerine kıyasla, 'C' atomu oranında artış gözlemlenirken 'O' atomu oranında azalma gözlemlenmiştir. Ayrıca 2-amino-

5-kloropridin yapısı üzerinde yer alan ‘Cl’ atomunun belirli bir oranda gözlemlenmesi GO malzemesi ile 2-amino-5-kloropridin grubunun etkileştiğini göstermektedir (Şekil 4.22).



Şekil 4.23 AB-3 malzemesine ait (a) SEM görüntüleri ve (b) EDX verileri.

AB-3 malzemesinin SEM görüntüleri, AB-1 malzemesine büyük oranda benzemektedir. AB-3 malzemesinin 2-amino-5-metil pridin grubuyla etkileşmesi sonucu GO malzemesinin homojen görümlü yapraksı katmanlardan oluşan şeffaf görüntüsünde değişimler meydana gelmiştir. 2-amino-5-metil pridin grubunun yüzeyle etkileşmesi sonucu şeffaf alanların azaldığı ve yer yer kümelenmelerin olduğu gözlemlenmektedir. AB-3 malzemesinin EDX

verileri incelendiğinde AB-1 malzemesine benzer şekilde ‘C’ atomu oranında artış ‘O’ atomu oranında ise azalma meydana geldiği gözlemlenmektedir (**Şekil 4.23**).

AB-1 ve AB-3 malzemelerinin 2-amino-4-metil pridin ve 2-amino-5-metil pridin gruplarıyla etkileşmesi sonucu bu grupların üzerinde taşıdığı ‘CH₃’ grubu GO temelli hibrit malzemenin genel ‘C’ atomu oranında artışa sebep olmuştur. Yüzeyle yapılan etkileşim sayesinde ise ‘O’ atomu oranında azalmaya neden olmuştur.



5. SONUÇLAR

Tez çalışması kapsamında hibrit materyalin ana bileşenini oluşturan GO'ı elde etmek için grafen güçlü asidik ortamda yükseltgenmiş ve üzerinde -COOH, -OH, epoksi gibi fonksiyonel gruplar içeren türev elde edilmiştir. GO esaslı hibrit materyaller elde edebilmek için GO ile birlikte 2-amino 4-metil piridin (AB-1), 2-amino 5-kloro piridin (AB-2) ve 2-amino 5-metil piridin (AB-3) organik bileşikler kullanılmıştır. GO ile piridin türevleri arasındaki tepkimeden oluşan hibritler amit karakterine sahip materyaller elde edilmiştir.

Sentezlenen bileşiklerin yapılarının karakterizasyonunda FTIR, UV-vis, SEM, EDX, Termogravimetrik analiz/Diferansiyel termal analiz (TGA/DTA) gibi yöntemler kullanılmıştır. Elde edilen hibritlerin karakterizasyonlarında kullanılan UV-vis, ve FTIR spektrumlarında GO ve hibrit materyallerin karakteristik bantlarını göstermektedir. Hibrit malzemelerin SEM görüntüleri GO malzemesinin homojen dağılımlı levha yüzeyinde meydana gelen kırışıklık ve kümelenmeler olduğunu göstermektedir. Şeffaf GO levha yüzeyinde yer yer koyu renklerin gözlemlenmesi GO levhası ile fonksiyonel gruplar arasında etkileşimin olduğunu göstermektedir. Ayrıca, GO malzemesinin XRD analizinde görülen piklerin Hibrit malzemelerin XRD analizlerinde kayma göstermeleri GO levhası ile fonksiyonel grupların etkileşimini desteklemektedir. Sentezlenen AB-1, AB-2 ve AB-3 hibrit materyallerin DMF çözücü ve Tris tampon çözeltisi (pH= 7.2) ortamında elektrokimyasal özellikleri incelendi. Siklik voltammetrik ölçümler -2.0 volt ile +2.0 volt arasında yapıldı ve anodik ve katodik pik potansiyelleri belirlendi. Ayrıca, elektrokimyasal ölçümler 250, 500 ve 750 mVs⁻¹ tarama hızlarında incelendi. AB-1 ve AB-2 hibrit materyallerinin siklik Voltamogramları incelendiğinde, birer adet anodik (Epa) ve katodik (Epc) pik potansiyeline sahip olduğu görülmektedir. Anodik ve katodik pik potansiyellerinden bu iki hibrit materyalde gerçekleşen redoks işlemlerinin dönüşümsüz olduğu görülmüştür. AB-3 hibrit materyalinde ise diğer iki hibrit materyalden farklı olarak iki adet anodik pik potansiyeli gözlenirken bir adet anodik pik gözlenmiş ve tüm redoks olayları dönüşümsüzdür. Ayrıca, anodik ve katodik pik potansiyelleri tarama hızının artmasına bağlı olarak daha pozitif bölgelere kaymaktadır.

Hibritlerin termogravimetrik bozunma eğrileri benzer bozunma prosesleri göstermektedir. TGA eğrilerinde hibrid materyallerin yaklaşık 300 °C sıcaklık civarına kadar kararlıdır. Hibrit materyallerin üç basamakta bozunduğu ve ilk basamaktaki bozunmanın toplam kütleinin %50 civarında olduğu belirlenmiştir. 450-1000 °C arasında ise geriye kalan organik

kalıntı yavaş yavaş termal olarak bozulmuştur. Bu durumda AB-1 hibrid malzemesinin GO' e oranla termal açıdan daha yüksek kararlılığa sahip olduğu söylenebilir.



KAYNAKLAR

- Amdeha, E. (2024). Biochar-based nanocomposites for industrial wastewater treatment via adsorption and photocatalytic degradation and the parameters affecting these processes. *Biomass Conversion and Biorefinery*, 14(19), 23293–23318. doi: 10.1007/s13399-023-04512-2
- Bal, M., Tümer, M., & Köse, M. (2022). Synthesis of reduced graphene oxide-based hybrid compounds and investigation of their sensing behavior against some nitroaromatic explosives. *Materials Chemistry and Physics*, 289, 126480. doi: 10.1016/j.matchemphys.2022.126480
- Bedeloğlu, A., & Teş, M. (2016). Graphene And Its Production Methods. *Afyon Kocatepe University Journal of Sciences and Engineering*, 16(3), 544–554. doi: 10.5578/fmbd.32173
- Bilici Baskan, M., & Atalay, N. (2014). Boron contamination in drinking - irrigation water and boron removal methods. *Pamukkale University Journal of Engineering Sciences*, 20(3), 78–84. doi: 10.5505/pajes.2014.47955
- Brodie, B. C. (1859). XIII. On the atomic weight of graphite. *Philosophical Transactions of the Royal Society of London*, 149, 249–259. doi: 10.1098/rstl.1859.0013
- Cho, H., Kim, S., Liang, H., & Kim, S. (2020). Electric-potential-induced uniformity in graphene oxide deposition on porous alumina substrates. *Ceramics International*, 46(10), 14828–14839. doi: 10.1016/j.ceramint.2020.03.008
- Cimilli Çatır, F. E. (2020). Grafen oksitin modifiye Hummers yöntemi ile sentezi ve film olarak Al/GO/n-InP diyot performansına etkileri. *Gümüşhane Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Dergisi*. doi: 10.17714/gumusfenbil.770061
- Çoğal, S. (2022). İki-Boyutlu Nanomalzemeler: Özellikleri, Sentez Yöntemleri ve Uygulama Alanları Üzerine Genel Bir Bakış. *Selçuk Üniversitesi Fen Fakültesi Fen Dergisi*, 48(2), 63–71. doi: 10.35238/sufefd.1103900
- Eda, G., Fanchini, G., & Chhowalla, M. (2008). Large-area ultrathin films of reduced graphene oxide as a transparent and flexible electronic material. *Nature Nanotechnology*, 3(5), 270–274.
- Gao, C., Yu, X.-Y., Xu, R.-X., Liu, J.-H., & Huang, X.-J. (2012). AlOOH-Reduced Graphene Oxide Nanocomposites: One-Pot Hydrothermal Synthesis and Their Enhanced Electrochemical Activity for Heavy Metal Ions. *ACS Applied Materials & Interfaces*, 4(9), 4672–4682. doi: 10.1021/am3010434
- Georgakilas, V., Otyepka, M., Bourlinos, A. B., Chandra, V., Kim, N., Kemp, K. C., Hobza, P., Zboril, R., & Kim, K. S. (2012). Functionalization of Graphene: Covalent and Non-Covalent Approaches, Derivatives and Applications. *Chemical Reviews*, 112(11), 6156–6214. doi: 10.1021/cr3000412

- Goenka, S., Sant, V., & Sant, S. (2014). Graphene-based nanomaterials for drug delivery and tissue engineering. *Journal of Controlled Release*, 173(1), 75–88. doi: 10.1016/j.jconrel.2013.10.017
- Hummers, W. S.; Offeman, R., & E. (1957). Preparation of Graphitic Oxide. *Journal of the American Chemical Society*, 208(1937), 1937.
- Karabörk, M., Maher Zubair, R., Uruş, S., & Tümer, M. (2018a). Synthesis and characterization of graphene oxide-based hybrid ligand and its metal complexes: Highly efficient sensor and catalytic properties. *Applied Organometallic Chemistry*, 32(7), 1–12.
- Karabörk, M., Maher Zubair, R., Uruş, S., & Tümer, M. (2018b). Synthesis and characterization of graphene oxide-based hybrid ligand and its metal complexes: Highly efficient sensor and catalytic properties. *Applied Organometallic Chemistry*, 32(7). doi: 10.1002/aoc.4393
- Karabörk, M., Muhammed, B. A., Tümer, M., & Uruş, S. (2022). Organosilane-functionalized graphene oxide hybrid material: Efficient adsorbent for heavy metal ions in drinking water. *Phosphorus, Sulfur and Silicon and the Related Elements*, 197(2), 133–143.
- Lin, L., Rong, M., Luo, F., Chen, D., Wang, Y., & Chen, X. (2014). Luminescent graphene quantum dots as new fluorescent materials for environmental and biological applications. *TrAC Trends in Analytical Chemistry*, 54, 83–102. doi: 10.1016/j.trac.2013.11.001
- Majumder, P., & Gangopadhyay, R. (2022). Evolution of graphene oxide (GO)-based nanohybrid materials with diverse compositions: An overview. In RSC Advances (Vol. 12, Issue 9). Royal Society of Chemistry.
- Masteri-Farahani, M., & Ghahremani, M. (2019). Surface functionalization of graphene oxide and graphene oxide-magnetite nanocomposite with molybdenum-bidentate Schiff base complex. *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, 130, 6–12. doi: 10.1016/j.jpcs.2019.02.006
- Mohammed, Z. A., Kılıçaslan, D., & Karabörk, M. (2024). INVESTIGATION OF THE EFFECTIVENESS IN THE SOLID PHASE EXTRACTION STUDIES OF THE GRAPHENE HYBRIDS. *Kahramanmaraş Sütçü İmam Üniversitesi Mühendislik Bilimleri Dergisi*, 27(3), 1033–1043. doi: 10.17780/ksujes.1453587
- Moosa, A. A., & Abed, M. S. (2021). Graphene preparation and graphite exfoliation. *TURKISH JOURNAL OF CHEMISTRY*, 45(3), 493–519. doi: 10.3906/kim-2101-19
- Moukadiri, H., Noukrati, H., Ben Youcef, H., Iraola, I., Trabadelo, V., Oukarroum, A., Malka, G., & Barroug, A. (2024). Impact and toxicity of heavy metals on human health and latest trends in removal process from aquatic media. *International Journal of Environmental Science and Technology*, 21(3), 3407–3444. doi: 10.1007/s13762-023-05275-z
- Novoselov, K. S., Geim, A. K., Morozov, S. V., Jiang, D., Zhang, Y., Dubonos, S. V.,

- Grigorieva, I. V., & Firsov, A. A. (2004). Electric Field Effect in Atomically Thin Carbon Films. *Science*, 306(5696), 666–669. doi: 10.1126/science.1102896
- Novoseov, K. S. (2011). GRAPHENE: MATERIALS IN THE FLATLAND. *International Journal of Modern Physics B*, 25(30), 4081–4106. doi: 10.1142/S0217979211059085
- Ojha, H. A., Snyder, R. S., & Davenport, T. E. (2014). Direct Access Compared With Referred Physical Therapy Episodes of Care: A Systematic Review. *Physical Therapy*, 94(1), 14–30. doi: 10.2522/ptj.20130096
- Özbolat, G., & Tuli, A. (2016). Ağır Metal Toksisitesinin İnsan Sağlığına Etkileri. *Arşiv Kaynak Tarama Dergisi*, 25(23783), 502–521. doi: 10.17827/aktd.253562
- Ramli, R., & Hidayat, R. (2023). Graphene Oxide Based on Biomass Waste: Synthesis and Applications. In *Graphene - A Wonder Material for Scientists and Engineers*. IntechOpen. doi: 10.5772/intechopen.107488
- Rani, S., Kumar, M., Garg, R., Sharma, S., & Kumar, D. (2016). Amide Functionalized Graphene Oxide Thin Films for Hydrogen Sulfide Gas Sensing Applications. *IEEE Sensors Journal*, 16(9), 2929–2934.
- Raptopoulou, C. P. (2021). Metal-Organic Frameworks: Synthetic Methods and Potential Applications. *Materials*, 14(2), 310. doi: 10.3390/ma14020310
- Sali, S., Mackey, H. R., & Abdala, A. A. (2019). Effect of graphene oxide synthesis method on properties and performance of polysulfone-graphene oxide mixed matrix membranes. *Nanomaterials*, 9(5).
- Shahriary, L., & Athawale, A. a. (2014). Graphene Oxide Synthesized by using Modified Hummers Approach. *International Journal of Renewable Energy and Environmental Engineering*, 2(1), 58–63.
- Simon, P., & Gogotsi, Y. (2011). *Carbon Electrolyte Systems*. XXX(Xx).
- Singh, S., Naik, T. S. S. K., Shehata, N., Aguilar-Marcelino, L., Dhokne, K., Lonare, S., Chauhan, V., Kumar, A., Singh, J., Ramamurthy, P. C., Khan, A. H., Khan, N. A., & Dehghani, M. H. (2023). Novel insights into graphene oxide-based adsorbents for remediation of hazardous pollutants from aqueous solutions: A comprehensive review. *Journal of Molecular Liquids*, 369, 120821. doi: 10.1016/j.molliq.2022.120821
- Smith, A. T., LaChance, A. M., Zeng, S., Liu, B., & Sun, L. (2019). Synthesis, properties, and applications of graphene oxide/reduced graphene oxide and their nanocomposites. *Nano Materials Science*, 1(1), 31–47. doi: 10.1016/J.NANOMS.2019.02.004
- Song, Y., Zhu, S., & Yang, B. (2014). Bioimaging based on fluorescent carbon dots. *RSC Advances*, 4(52), 27184. doi: 10.1039/c3ra47994c
- Staudenmaier, L. (1898). Verfahren zur Darstellung der Graphitsäure. *Berichte Der Deutschen Chemischen Gesellschaft*, 31(2), 1481–1487. doi: 10.1002/cber.18980310237
- Stergiou, A., Pagona, G., & Tagmatarchis, N. (2014). Donor-acceptor graphene-based

- hybrid materials facilitating photo-induced electron-transfer reactions. *Beilstein Journal of Nanotechnology*, 5(1), 1580–1589.
- Tovide, O., Jaheed, N., Mohamed, N., Nxusani, E., Sunday, C. E., Tsegaye, A., Ajayi, R. F., Njomo, N., Makelane, H., Bilibana, M., Baker, P. G., Williams, A., Vilakazi, S., Tshikhudo, R., & Iwuoha, E. I. (2014). Graphenated polyaniline-doped tungsten oxide nanocomposite sensor for real time determination of phenanthrene. *Electrochimica Acta*, 128, 138–148. doi: 10.1016/j.electacta.2013.12.134
- Trache, D., Thakur, V. K., & Boukherroub, R. (2020). Cellulose nanocrystals/graphene hybrids—a promising new class of materials for advanced applications. *Nanomaterials*, 10(8), 1–34.
- Verma, S., Kim, K. H., Kumar, N., Bhattacharya, S. S., Naushad, M., & Dutta, R. K. (2022). Amine-amide functionalized graphene oxide sheets as bifunctional adsorbent for the removal of polar organic pollutants. *Journal of Hazardous Materials*, 429(November 2021), 128308.
- Wang, J., Wu, S. G., Zhang, H. J., Yue, H. Y., Xu, L., Ji, F., Xu, L., & Qi, G. H. (2013). Trimethylamine deposition in the egg yolk from laying hens with different FMO3 genotypes. *Poultry Science*, 92(3), 746–752. doi: 10.3382/ps.2012-02313
- Yetgin, S., & Çolak, M. (2020). Grafit Katkılı Polipropilen Kompozitlerin Mekanik ve Tribolojik Özelliklerinin İncelenmesi. *El-Cezeri Fen ve Mühendislik Dergisi*. doi: 10.31202/ecjse.688491
- Yu, H. X., Man, B. K. W., Chan, L. L. N., Lam, M. H. W., Lam, P. K. S., Wang, L., Jin, H., & Wu, R. S. S. (2004). Cloud-point extraction of nodularin-R from natural waters. *Analytica Chimica Acta*, 509(1), 63–70.
- Zhao, G., Ren, X., Gao, X., Tan, X., Li, J., Chen, C., Huang, Y., & Wang, X. (2011). Removal of Pb(II) ions from aqueous solutions on few-layered graphene oxide nanosheets. *Dalton Transactions*, 40(41), 10945. doi: 10.1039/c1dt11005e
- Zhu, C., Gerald, R. E., & Huang, J. (2021). Metal-Organic Framework Materials Coupled to Optical Fibers for Chemical Sensing: A Review. *IEEE Sensors Journal*, 21(18), 19647–19661. doi: 10.1109/JSEN.2021.3094092
- Zhu, C., Guo, S., Fang, Y., & Dong, S. (2010). Reducing Sugar: New Functional Molecules for the Green Synthesis of Graphene Nanosheets. *ACS Nano*, 4(4), 2429–2437. doi: 10.1021/nn1002387

ÖZGEÇMİŞ



EK DOSYA

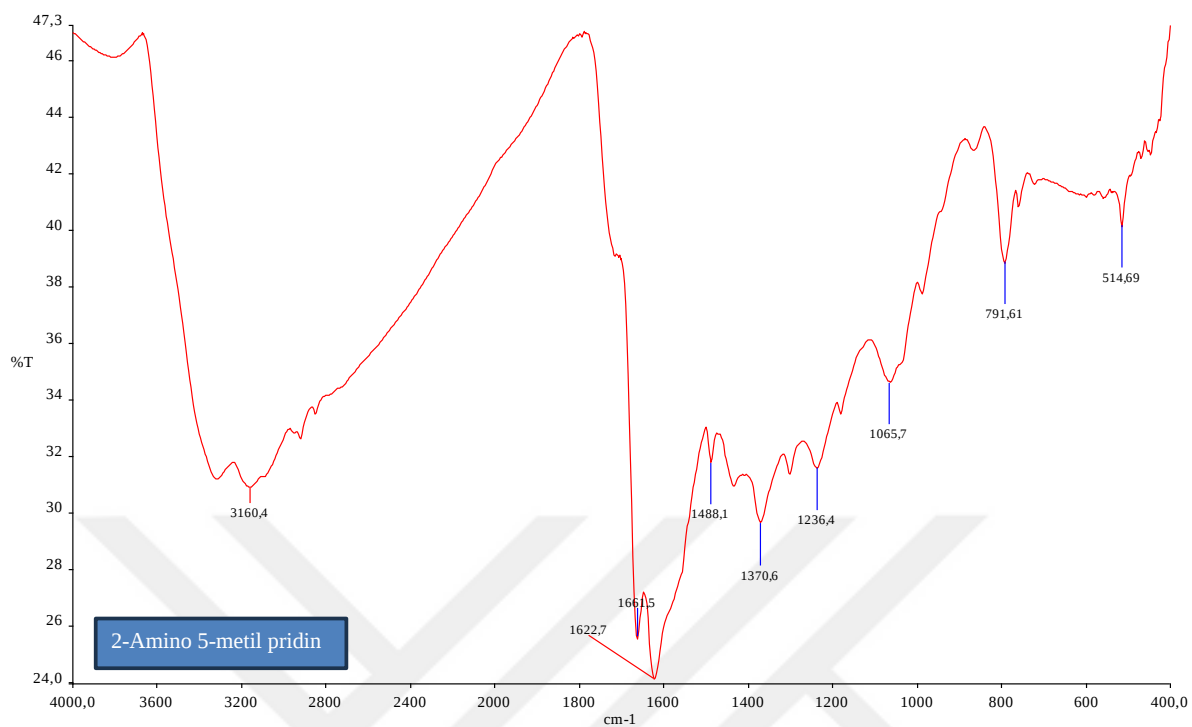


Fig. S 1 FTIR spectrum of 2-amino-5-methyl pyridine.

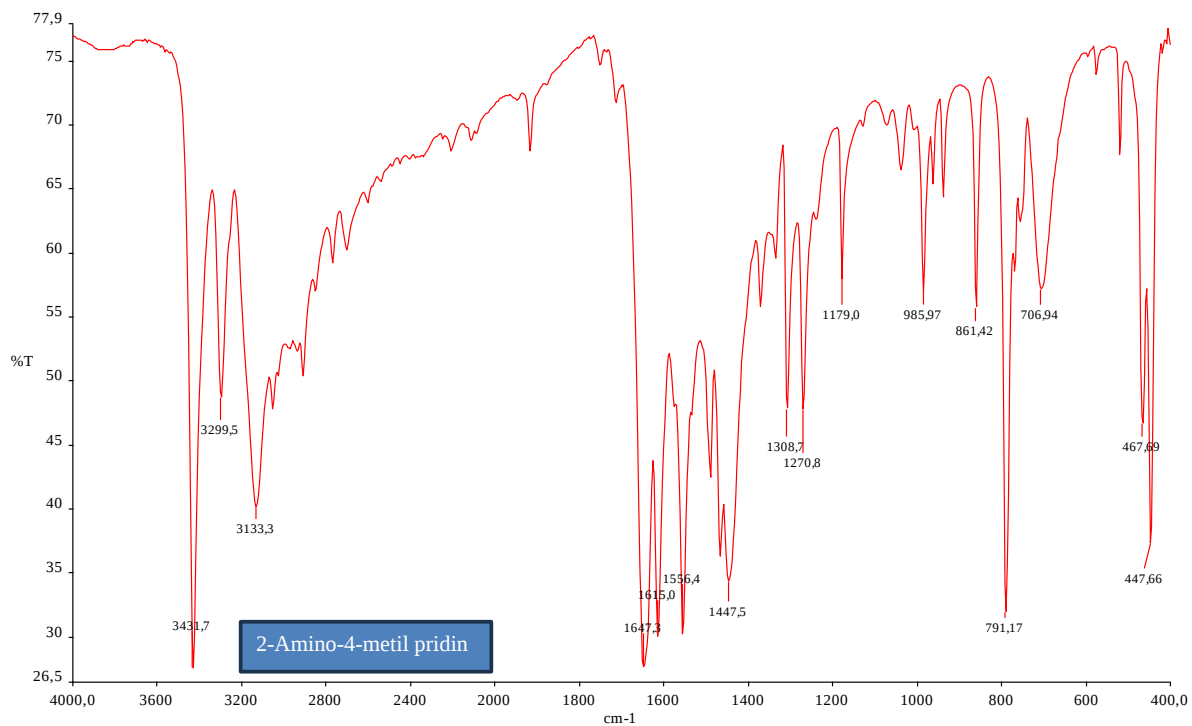


Fig. S 2 FTIR spectrum of 2-amino-4-methyl pyridine.

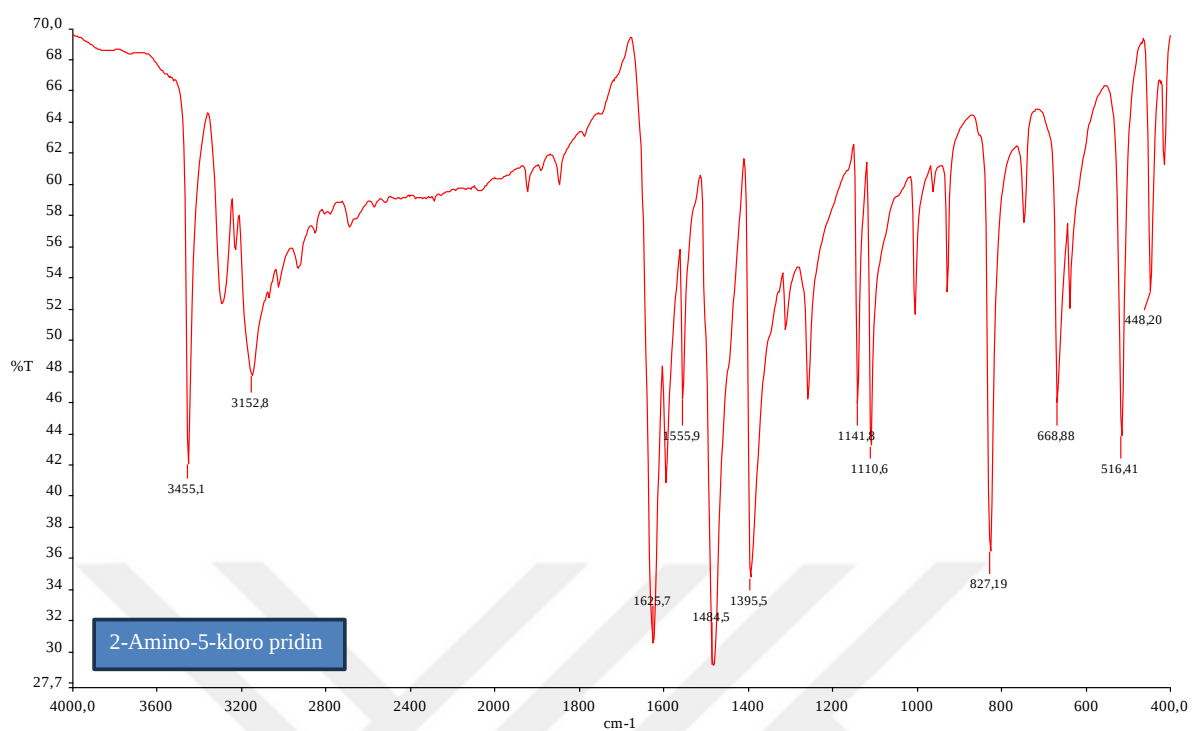


Fig. S 3 FTIR spectrum of 2-amino-5-chloro pyridine.

Tablo 1 AB-1 Hibrit bileşiğine ait XRD spektrum verileri ve hesaplamaları.

Pos. [°2θ]	Height [cts]	FWHM Left [°2θ]	d-spacing [Å]	Rel. Int. [%]	Backgr. [cts]	Matched by	Integral Breadth [°2θ]	Crystallite Size [Å]	Micro Strain [%]	hkl	Crystallite Size only [Å]	Micro Strain only [%]	FWHM Total [°2θ]
14.8823	292.46	0.1827	5.94790	31.20	9992.14		0.331205	351	-0.21401		351	0.84782	0.1827
25.2721	937.33	3.6258	3.52125	100.00	8430.49	98-061-7290	5.003531	25	4.35964		18	9.74041	3.6258
42.7508	840.37	1.0228	2.11344	89.66	4434.72	98-061-7290	1.696343	59	-0.06218		59	1.79970	1.0228

Tablo 2 AB-2 Hibrit bileşiğine ait XRD spektrum verileri ve hesaplamaları.

Pos. [°2θ]	Height [cts]	FWHM Left [°2θ]	d-spacing [Å]	Rel. Int. [%]	Backgr. [cts]	Matched by	Integral Breadth [°2θ]	Crystallite Size [Å]	Micro Strain [%]	hkl	Crystallite Size only [Å]	Micro Strain only [%]	FWHM Total [°2θ]
18.4205	258.24	0.7141	4.81264	33.91	8634.68		1.471777	64	-0.15828		64	3.73908	0.7141
21.6214	0.00	0.0967	4.10685	0.00	8112.83		1000000.00000	-1199	-0.14511		28415	0.00723	0.0967
24.8674	318.73	2.8461	3.57763	41.85	7686.48		3.869906	34	3.66329		23	7.62912	2.8461
26.5131	384.79	0.3914	3.35918	50.52	7265.98	98-007-6767	0.806634	125	-0.11407		124	1.34907	0.3914
42.6766	761.65	1.0338	2.11694	100.00	3969.17	98-007-6767	1.563069	69	0.38791		64	1.65510	1.0338

Tablo 3 AB-3 Hibrit bileşiğine ait XRD spektrum verileri ve hesaplamaları.

Pos. [°2θ]	Height [cts]	FWHM Left [°2θ]	d-spacing [Å]	Rel. Int. [%]	Backgr. [cts]	Matched by	Integral Breadth [°2θ]	Crystallite Size [Å]	Micro Strain [%]	hkl	Crystallite Size only [Å]	Micro Strain only [%]	FWHM Total [°2θ]
10.6725	13041.54	0.6908	8.28277	100.00	17399.93		0.745702	-2333	3.36211		123	3.36249	0.6908
42.6008	975.52	0.9034	2.12053	7.48	3906.28		1.240330	114	0.63257		80	1.33344	0.9034