



DÜZCE
ÜNİVERSİTESİ

LİSANSÜSTÜ EĞİTİM ENSTİTÜSÜ

**YENİ SİLAN MODİFİYELİ GRAFEN OKSİT / POLİMER HİBRİT
NANOKOMPOZİT SENTEZİ**

AGAMYRAT AKJAYEV

**YÜKSEK LİSANS TEZİ
KOMPOZİT MALZEME TEKNOLOJİLERİ**

**DANIŞMAN
PROF. DR. DİLEK NARTOP**

DÜZCE, 2025

T.C.
DÜZCE ÜNİVERSİTESİ
LİSANSÜSTÜ EĞİTİM ENSTİTÜSÜ

YENİ SİLAN MODİFİYELİ GRAFEN OKSİT / POLİMER HİBRİT
NANOKOMPOZİT SENTEZİ

Agamyrat AKJAYEV tarafından hazırlanan tez çalışması aşağıdaki jüri tarafından Düzce Üniversitesi Lisansüstü Eğitim Enstitüsü Kompozit Malzeme Teknolojileri Anabilim Dalı'nda **YÜKSEK LİSANS TEZİ** olarak kabul edilmiştir.

Tez Danışmanı

Prof. Dr. Dilek NARTOP

Düzce Üniversitesi

Jüri Üyeleri

Prof. Dr. Dilek NARTOP

Düzce Üniversitesi

Doç. Dr. Sema ALLI

Düzce Üniversitesi

Doç. Dr. Elvan HASANOĞLU ÖZKAN

Gazi Üniversitesi

Tez Savunma Tarihi: 04/07/2025

BEYAN

Bu tez çalışmasının kendi çalışmam olduğunu, tezin planlanmasından yazımına kadar bütün aşamalarda etik dışı davranışımın olmadığını, bu tezdeki bütün bilgileri akademik ve etik kurallar içinde elde ettiğimi, bu tez çalışmasıyla elde edilmeyen bütün bilgi ve yorumlara kaynak gösterdiğimi ve bu kaynakları da kaynaklar listesine aldığımı, yine bu tezin çalışılması ve yazımı sırasında patent ve telif haklarını ihlal edici bir davranışımın olmadığını beyan ederim.

04 Temmuz 2025

Agamyrat AKJAYEV

TEŐEKKÜR

Bu alıőmanın gerekleőtirilmesinde, deęerli bilgilerini benimle paylaőan, kendisine ne zaman danıősam bana kıymetli zamanını ayırıp sabırla ve byk bir ilgiyle bana faydalı olabilmek iin elinden geleninin fazlasını yapan, bana her konuda destek olan, gler yzn ve samimiyetini benden hi esirgemeyen kıymetli danıőman hocam Prof. Dr. Dilek NARTOP'a teőekkr bir bor biliyor ve Őkranlarımı sunuyorum.

Tez alıőmama deęerli katkılarını esirgemeyen Do. Dr. Elvan HASANOęLU ZKAN'a Őkranlarımı sunarım.

Lisansst eęitimim esnasında bana srekli yardımda bulunarak yol gsteren, destek veren Do. Dr. Sema ALLI'ya sonsuz teőekkrlerimi sunarım.

Bu alıőma boyunca yardımlarını ve desteklerini esirgemeyen bana srekli moral veren sevgili anneme, babama, kardeőlerime ve benim neőe kaynaęım olan birbirinden gzel yeęenlerime teőekkrlerimi sunarım.

Ayrıca, bana bu srete maddi ve manevi olarak her konuda destek olan Mehmet CANTAŐ ve mer AKSOY'a teőekkrlerimi iletiyorum.

Bu tez alıőması, Dzce niversitesi BAP-2024.05.03.1470 numaralı Bilimsel Araőtırma Projesiyle desteklenmiőtir.

04 TEMMUZ 2025

Agamyrat AKJAYEV

İÇİNDEKİLER

Sayfa No

ŞEKİL LİSTESİ.....	vii
ÇİZELGE LİSTESİ.....	viii
SİMGELER	x
ÖZET	xi
ABSTRACT	xii
1. GİRİŞ.....	1
2. KURAMSAL TEMELLER.....	3
2.1. NANOKOMPOZİTLER.....	3
2.1.1. Polimer Nanokompozitler	4
2.1.2. Polimer Nanokompozitlerin Üretim Yöntemleri.....	4
2.1.3. Polimer Nanokompozitlerin Kullanım Alanları.....	5
2.2. GRAFEN OKSİT	6
2.2.1. Grafen.....	6
2.2.2. Grafen Oksit	8
2.2.3. Grafen Oksitin Kullanım Alanları	9
2.2.4. Silan Modifiyeli Grafen Oksit.....	10
2.3. GRAFEN OKSİT NANOKOMPOZİTLER.....	10
2.3.1. Grafen Oksit Nanokompozitlerin Kullanım Alanları.....	11
2.3.2. Literatür Araştırması	11
3. MATERYAL ve METOD.....	15
3.1. KİMYASALLAR.....	15
3.2. CİHAZLAR.....	15
3.2.1. Element Analizi (EA)	15
3.2.2. Fourier Dönüşümlü Kızılötesi Spektroskopisi (FT-IR).....	15
3.2.3. Jel Geçirgenlik Kromatografisi (GPC)	15
3.2.4. Taramalı Elektron Mikroskopu-Enerji Dağılımlı X-Işını Spektroskopisi (SEM-EDX).....	15
3.2.5. X-Işını Fotoelektron Spektrometresi (XPS).....	15
3.2.6. Termogravimetrik ve Diferansiyel Termal Analiz Cihazı (TG-DTA)	16
4. DENEYSEL ÇALIŞMA.....	17
4.1. SİLAN MODİFİYELİ GRAFEN OKSİT / POLİMER HİBRİT NANOKOMPOZİTLERİN SENTEZİ	17
4.1.1. SiGO-Pgly-Sal Hibrit Nanokompozit Sentezi.....	17
4.1.2. SiGO-Pgly-mSal Hibrit Nanokompozit Sentezi	18
4.1.3. SiGO-Pgly-The Hibrit Nanokompozit Sentezi	18
4.1.4. SiGO-mTsc-Ps Hibrit Nanokompozit Sentezi	19
4.1.5. SiGO-Tsc-Ps Hibrit Nanokompozit Sentezi.....	20
5. BULGULAR VE TARTIŞMA	21

5.1. SİLAN MODİFİYELİ GRAFEN OKSİT / POLİMER HİBRİT NANOKOMPOZİTLERİN KARAKTERİZASYONU	21
5.1.1. Hibrit Nanokompozitlerin Element Analizi ve GPC Sonuçları.....	21
5.1.2. Hibrit Nanokompozitlerin FT-IR Spektrumları.....	22
5.1.3. Hibrit Nanokompozitlerin SEM-EDX Analizleri.....	26
5.1.4. Hibrit Nanokompozitlerin XPS Spektrumları	28
5.1.5. Hibrit Nanokompozitlerin TG-DTA Analizi	33
6. SONUÇLAR VE ÖNERİLER.....	35
7. KAYNAKLAR.....	36
8. EKLER	42
8.1. EK 1: HİBRİT NANOKOMPOZİTLERİN FT-IR SPEKTRUMLARI	42
8.2. EK 2: HİBRİT NANOKOMPOZİTLERİN SEM-EDX ANALİZLERİ	45
8.3. EK 3: HİBRİT NANOKOMPOZİTLERİN XRD SPEKTRUMLARI.....	47
8.4. EK 4: HİBRİT NANOKOMPOZİTİN TG-DTA EĞRİSİ.....	50
ÖZGEÇMİŞ.....	51

ŞEKİL LİSTESİ

Sayfa No

Şekil 2. 1. Çeşitli nano ölçekli malzeme türleri [16].	3
Şekil 2. 2. Karbon allotropları [27].	7
Şekil 2. 3. Grafen ve grafen oksit (GO) yapısı [30].	8
Şekil 2. 4. Modifiye Hummers Yöntemi ile GO üretim aşamaları [32].	9
Şekil 4. 1. SiGO-Pgly-Sal hibrit nanokompozitin reaksiyon şeması.	17
Şekil 4. 2. SiGO-Pgly-mSal hibrit nanokompozitin reaksiyon şeması.	18
Şekil 4. 3. SiGO-Pgly-Thc hibrit nanokompozitin reaksiyon şeması.	19
Şekil 4. 4. SiGO-mTsc-Ps hibrit nanokompozitin reaksiyon şeması.	19
Şekil 4. 5. SiGO-Tsc-Ps hibrit nanokompozitin reaksiyon şeması.	20
Şekil 5. 1. SiGO-Pgly-Sal hibrit nanokompozite ait FT-IR spektrumları.	23
Şekil 5. 2. SiGO-Pgly-mSal hibrit nanokompozite ait FT-IR spektrumları.	23
Şekil 5. 3. SiGO-Pgly-Thc hibrit nanokompozite ait FT-IR spektrumları.	24
Şekil 5. 4. SiGO-mTsc-Ps hibrit nanokompozite ait FT-IR spektrumları.	25
Şekil 5. 5. SiGO-Tsc-Ps hibrit nanokompozite ait FT-IR spektrumları.	25
Şekil 5. 6. SiGO-Pgly-Sal hibrit nanokompozite ait SEM-EDX analizi.	26
Şekil 5. 7. SiGO-mPgly-Sal hibrit nanokompozite ait SEM-EDX analizi.	27
Şekil 5. 8. SiGO-Pgly-Thc hibrit nanokompozite ait SEM-EDX analizi.	27
Şekil 5. 9. SiGO-mTsc-Ps hibrit nanokompozite ait SEM-EDX analizi.	28
Şekil 5. 10. GO ait XPS spektrumu.	29
Şekil 5. 11. SiGO-Pgly-Sal hibrit nanokompozite ait XPS spektrumu.	30
Şekil 5. 12. SiGO-Pgly-mSal hibrit nanokompozite ait XPS spektrumu.	31
Şekil 5. 13. SiGO-Pgly-Thc hibrit nanokompozite ait XPS spektrumu.	32
Şekil 5. 14. SiGO-mTsc-Ps hibrit nanokompozite ait XPS spektrumu.	33
Şekil 5. 15. SiGO-Tsc-Ps hibrit nanokompozite ait TG-DTA eğrisi.	34
Şekil 8. 1. SiGO-Pgly-Sal hibrit nanokompozite ait FT-IR spektrumları.	42
Şekil 8. 2. SiGO-Pgly-mSal hibrit nanokompozite ait FT-IR spektrumları.	43
Şekil 8. 3. SiGO-Pgly-Thc hibrit nanokompozite ait FT-IR spektrumları.	43
Şekil 8. 4. SiGO-mTsc-Ps hibrit nanokompozite ait FT-IR spektrumları.	44
Şekil 8. 5. SiGO-Tsc-Ps hibrit nanokompozite ait FT-IR spektrumları.	44
Şekil 8. 6. SiGO-Pgly-Sal hibrit nanokompozite ait SEM-EDX analizi.	45
Şekil 8. 7. SiGO-mPgly-Sal hibrit nanokompozite ait SEM-EDX analizi.	45
Şekil 8. 8. SiGO-Pgly-Thc hibrit nanokompozite ait SEM-EDX analizi.	46
Şekil 8. 9. SiGO-mTsc-Ps hibrit nanokompozite ait SEM-EDX analizi.	46
Şekil 8. 10. GO ait XPS spektrumu.	47
Şekil 8. 11. SiGO-Pgly-Sal hibrit nanokompozite ait XPS spektrumu.	47
Şekil 8. 12. SiGO-Pgly-mSal hibrit nanokompozite ait XPS spektrumu.	48
Şekil 8. 13. SiGO-Pgly-Thc hibrit nanokompozite ait XPS spektrumu.	48
Şekil 8. 14. SiGO-mTsc-Ps hibrit nanokompozite ait XPS spektrumu.	49
Şekil 8. 15. SiGO-Tsc-Ps hibrit nanokompozite ait TG-DTA eğrisi.	50

ÇİZELGE LİSTESİ

	<u>Sayfa No</u>
Çizelge 2. 1. Grafenin yapısal ve fiziksel özellikleri [24].	6
Çizelge 2. 2. Karbon allotroplarının özelliklerinin kıyaslanması [3].	7
Çizelge 2. 3. Modifiye Hummers yönteminin kıyaslanması.	9
Çizelge 5. 1. Hibrit nanokompozitlere ait bazı veriler.....	21
Çizelge 5. 2. Hibrit nanokompozitlere ait FT-IR titreşim frekansları (cm^{-1}).	22
Çizelge 5. 3. Hibrit nanokompozite ait TG-DTA analiz verileri.	33



KISALTMALAR

EA	Element Analizi
FT-IR	Fourier Dönüşümlü Kızılötesi Spektroskopisi
GPC	Jel Geçirgenlik Kromatografisi
XPS	X-Işını Spektroskopisi
SEM-EDX	Taramalı Elektron Mikroskobu-Enerji Dağılımlı X-Işını Spektroskopisi
TG-DTA	Termogravimetrik ve Diferansiyel Termal Analiz
GO	Grafen Oksit
PDI	Polidispersite İndeksi



SİMGELER

g	Gram
mmol	Milimol
mL	Mililitre
eV	Elektronvolt
v	Gerilme titreşimi
°C	Santigrat derece
h	Saat



ÖZET

YENİ SİLAN MODİFİYELİ GRAFEN OKSİT / POLİMER HİBRİT NANOKOMPOZİT SENTEZİ

Agamyrat AKJAYEV

Düzce Üniversitesi

Lisansüstü Eğitim Enstitüsü, Kompozit Malzeme Teknolojileri Anabilim Dalı

Yüksek Lisans Tezi

Danışman: Prof. Dr. Dilek NARTOP

Temmuz 2025, 50 sayfa

Grafen oksit bazlı polimer nanokompozitler, sahip oldukları termal, elektriksel, mekanik, antibakteriyel, korozyon ve aşınma direnci özelliklerinden ötürü endüstriyel uygulama alanına (inşaat, biyomedikal, otomotiv, ambalaj, enerji, savunma, tıp, biyosensör uygulamaları...) sahip ilgi gören malzemelerdir. Lisansüstü tez çalışma kapsamında, çeşitli analitlerin tespiti için potansiyel biyosensörler olarak ve/veya çeşitli hastalık etkeni patojenlere karşı potansiyel antimikrobiyal ajanlar olarak, 5 (beş) yeni silan modifiyeli grafen oksit / polimer hibrit nanokompozitler, template olarak 3-kloropropil-fonksiyonelleştirilmiş silika jel, poli(propilen glikol)bis(2-aminopropil eter) / 4-formil-3-metoksifenoksimetil)polistiren ve salisilaldehit / 5-metilsalisilaldehit / tiyosemikarbazit / 4-metil-3-tiyosemikarbazitin kondenzasyon reaksiyonu ile sentezlendi. Yeni grafen oksit-polimer hibrit nanokompozitlerin yapısı element analizi, fourier dönüşümlü kızılötesi spektroskopisi, jel geçirgenlik kromatografisi, taramalı elektron mikroskobu-enerji dağılımlı X-ışını spektroskopisi, X-ışını fotoelektron spektrometresi, termogravimetrik ve diferansiyel termal analizi ile karakterize edildi.

Anahtar Sözcükler: Grafen oksit, 3-kloropropil-fonksiyonelleştirilmiş silika jel, polimer, tiyosemikarbazit, aldehit

ABSTRACT

SYNTHESIS OF NOVEL SILANE-MODIFIED GRAPHENE OXIDE / POLYMER HYBRID NANOCOMPOSITE

Agamyrat AKJAYEV

Düzce University

Graduate School, Department of Composite Material Technologies

Master's Thesis

Supervisor: Prof. Dr. Dilek NARTOP

July 2025, 50 pages

Graphene oxide based polymer nanocomposites are materials of interest with industrial applications (construction, biomedical, automotive, packaging, energy, defense, medicine, biosensor applications...) due to their thermal, electrical, mechanical, antibacterial, corrosion, and wear resistance properties. Within the scope of the graduate thesis study, 5 (five) novel silane modified graphene oxide/polymer hybrid nanocomposites were synthesized by the condensation reaction of 3-chloropropyl-functionalized silica gel, poly(propylene glycol)bis(2-aminopropyl ether)/4-formyl-3-methoxyphenoxymethyl)polystyrene and salicylaldehyde/5-methylsalicylaldehyde/thiosemicarbazide/4-methyl-3-thiosemicarbazide as templates, as potential biosensors for the detection of various analytes and/or as potential antimicrobial agents against various disease-causing pathogens. The structure of the novel graphene oxide-polymer hybrid nanocomposites was characterized by elemental analysis, Fourier transform infrared spectroscopy, gel permeation chromatography, scanning electron microscopy-energy dispersive X-ray spectroscopy, X-ray photoelectron spectrometry, thermogravimetric, and differential thermal analysis.

Keywords: Graphene oxide, 3-chloropropyl-functionalized silica gel, polymer, thiosemicarbazide, aldehyde

1. GİRİŞ

Grafen, karbon atomlarının bal peteği yapısında kovalent bağlar ile bağlı olduğu tek tabakalı iki boyutlu kafes yapısıdır. 2004 yılında Geim ve Novoselov adlı bilim adamları tarafından keşfedilmiş olup, 2010 yılında Fizik alanında Nobel ödülü alınmıştır. Grafen, polimer nanokompozitlerin mekanik, elektrik, termal ve gaz bariyer özelliklerini iyileştirme potansiyeline sahip önemli bir malzemedir. Grafen oksit (GO), hidrofilik özelliğe sahip, grafenin kimyasal yöntemlerle oksitlenmesi sonucu elde edilen malzemedir. Grafen oksit, içerdiği fonksiyonel grupları (hidroksil, epoksi, karbonil ...) sebebiyle polimer matris ile güçlü etkileşim gösterir. Küçük boyuta ve geniş yüzey alanına sahip olması, mekanik dayanıklılığı ve optik özellikleri sebebiyle polimer nanokompozit eldesinde tercih edilen malzemedir [1-3]. Kimyasal olarak değiştirilmiş olan grafen oksit, fonksiyonel gruplarının varlığı ve hidrofilik yapısının yanı sıra, düşük sitotoksikite, yüksek biyouyumluluk ve yüzey işlevselleştirme gibi özellikleri sebebiyle biyolojik uygulamalar için önemli bir malzemedir. GO, ayrıca, proteinler ve nükleik asit gibi biyomoleküllerle etkileşime girebilme özelliğine sahip malzemedir [4]. Grafen oksit, katmanlarındaki aktif oksijen içeriği sebebiyle, yeni fonksiyonel grupların oluşumuyla sonuçlanan kimyasal reaksiyonlar vermeye yatkın malzemedir [5]. Grafen oksit, çimento hidrasyonunda değişiklik yapabilen, çimento bazlı malzemelerin mukavemetini ve dayanıklılığını arttırabilen inert bir nanomalzemedir [6].

Nanokompozitler, termal kararlılığa, kimyasal dirence sahip, en az biri 100 nm'den küçük boyutta farklı yapılarda iki veya daha fazla faz içeren hibrit malzemelerdir [7]. Polimer nanokompozitler, mekanik ve termal olarak üstün özelliklere sahip inorganik-organik dolgu maddeleri içeren polimer esaslı malzemelerdir [8]. Grafen bazlı malzemeler, geniş yüzey-hacim oranları, hidrofilik doğaları, sulu ortamda yüksek dağılımları ile, dayanıklılık, hidrofilik özellik, yüksek biyouyumluluk, üstün elektrokimyasal ve mekanik özellikleri ile oldukça ilgi görmekte ve araştırılmaktadırlar. Grafen oksit bazlı malzemeler, bakteri, mantar ve virüslere karşı geniş antibakteriyel aktiviteye, sitotoksik ve genotoksik etkiye sahiptirler [9]. Ayrıca, yüksek hassasiyet, ucuzluk, hızlı tepki ve basit çalışma prensibi gibi özellikleri sebebiyle biyosensör olarak kullanılmaktadır [10]. Grafen oksit bazlı polimer nanokompozitler, yüksek elektriksel ve termal özellikleri

sebebiyle geniş uygulama alanlarına (havacılık, otomotiv, denizcilik, spor, biyomedikal, enerji sektörleri...) sahip malzemelerdir [11]. GO bazlı polimer nanokompozitlerin mekanik ve kimyasal direncini, termal kararlılığı artırmak amacıyla kullanılan inorganik dolgu maddelerinden biri silandır [12].

Lisansüstü tez çalışması kapsamında, potansiyel uygulama alanlarına sahip biyosensörler ve antimikrobiyal ajanlar olarak yeni grafen oksit polimer hibrit nanokompozitlerin sentezlenmesi amaçlanmıştır.



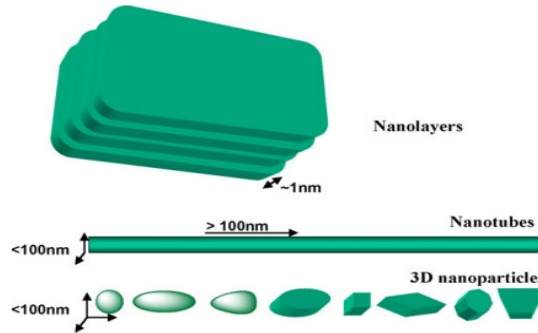
2. KURAMSAL TEMELLER

2.1. NANOKOMPOZİTLER

Nanokompozitler, fazlarından en az birinin boyutu 100 nanometrenin altında olan çok fazlı malzemeler olarak tanımlanmaktadır [1]. Lif takviyeli, tabaka veya tanecik şeklinde üretilen nanokompozitlerin üstün özelliklere sahip olmasının sebebi, içerisindeki matris malzemesi ile takviye malzemesi (yüksek alan/hacim oranı) arasındaki ara yüzey alanının fazla olmasıdır. Matrise eklenen takviye malzemesi, matrisin fiziksel ve mekanik özelliklerini geliştirmektedir [13], [14].

Nanokompozitlerin mikroskobik yapılarda veya kritik hacimlerde kullanımı için dikkat edilmesi husus, çok ölçekli yapısal tasarım ve nanokompoziti istenen mikro bileşenlere entegre etme tekniklerinin geliştirilmesini gerektirmektedir [15].

Nanokompozitlerin fiziksel özelliklerini geliştirmek ve yeni malzemeler tasarlamak için nano boyutlara sahip malzemeler (nanopartiküller, nanotüpler ve nanotabakalar) kullanılır.



Şekil 2. 1. Çeşitli nano ölçekli malzeme türleri [16].

Nanotabakalar, karakterize edilebilen nanometre ölçeğinde olan tek boyutlu materyallerdir (katmanlı silikatlar, katmanlı çift hidroksitler ...). Bir ile birkaç nanometre arasında değişen katmanlar halindedirler. Nanotüpler, iki boyutunun nanometre boyutunda, üçüncü boyutunun da daha büyük ve uzatılmış yapıda olduğu malzemelerdir (nanofiberler ...). Nanopartiküller, üç boyutu da nanometre boyutunda olan malzemelerdir (silikalar...) [16].

2.1.1. Polimer Nanokompozitler

Polimer nanokompozitler, polimer matrislerin içerisinde nano boyutta dolgu maddelerinin homojen şekilde dağıtılmasıyla elde edilen gelişmiş malzemelerdir [17]. Bu yapıların özelliği, moleküler düzeyde bütünleşmiş olmaları ve bu sayede geleneksel kompozitlere kıyasla üstün fiziksel ve kimyasal özellikler göstermeleridir. Nano boyutta inorganik maddeler (örneğin kil, silikat, metal oksitler) ve organik faz (genellikle bir polimer) bir araya getirilerek organik-inorganik nanokompozitler oluşturulur. Bu malzemeler, hafiflik, yüksek dayanım ve çok işlevli özellikleri (mekanik, termal, elektriksel) nedeniyle sanayide ve akademik çalışmalarda ilgi görmektedirler [18].

Optik ve manyetik uygulamalara yönelik inorganik nanoparçacıklar ile polimer matrislerden oluşan nanokompozitler, küçük boyutlu parçacıkların optik (ışık soğurma, fotoluminesans...) ve manyetik (süpermanyetizma...) özelliklerinde büyük değişimler oluşturmaktadır. Özellikle yeni işlevsel nano dolgu maddeleri ve sentez teknikleriyle optoelektronik ve magneto-optik alanlarda yenilikçi nanokompozit malzemelerin geliştirilmesi ilgi görmektedir [19].

2.1.2. Polimer Nanokompozitlerin Üretim Yöntemleri

Polimer nanokompozitlerin üretilmesinde genel olarak, eriyik halde karıştırma, in-situ polimerizasyon ve çözelti ortamında hazırlama yöntemleri kullanılmaktadır.

Eriyik halde karıştırma yöntemi, polimerin yumuşama noktasının üzerinde ısıtılarak tabakalı kil ile kesme kuvveti altında karıştırılması işlemidir. Bu yöntemle polimer zincirleri kil tabakalarının arasına girer ve rastgele dağılmış polimer nanokompozit elde edilir. Günümüzde en yaygın kullanılan nanokompozit üretim yöntemlerindedir.

İn-situ polimerizasyon yönteminde, kil monomer ve başlatıcının bulunduğu çözeltiye katılır ve şişerek monomerlerin tabakalar arasına girmesi sağlanır. Monomerler kilin içinde polimerleşir. Bu da kil tabakalarının ayrılmasına ve yüksek düzeyde homojen dağılım sağlanmasına yol açar.

Çözelti ortamında üretim yönteminde ise, organokil ve polimer aynı çözücü içinde çözülerek karıştırılır. Polimer zincirleri kil tabakaları arasına yerleşir ve çözücü uzaklaştırıldığında polimer nanokompoziti oluşur. Bu yöntem ince film üretiminde kullanılabilir. Sadece belirli polimer/çözücü çiftleri ile uygulanabilir [20].

2.1.3. Polimer Nanokompozitlerin Kullanım Alanları

Günümüzde doğal malzeme kaynaklarının azalması, alternatif malzeme arayışlarını arttırmıştır. Bu bağlamda polimerler, düşük yoğunluk, esneklik, işlenebilirlik ve üstün mekanik davranışları nedeniyle öne çıkmakta ve geniş uygulama yelpazesi sunmaktadırlar. Polimerlerin içine nano boyutta dolgu maddeleri entegre edilerek oluşturulan polimer nanokompozitler, saf polimerlere göre çok daha üstün özellikler sergilemektedirler. Bu yapıların mekanik, termal, elektriksel ve bariyer özellikleri daha gelişmiştir [14].

Polimer nanokompozitlerin ilk örnekleri 1960'lı yıllarında Toyota araştırma laboratuvarlarında naylon 6 matrisi içinde montmorillonit kil kullanılarak geliştirilmiştir. Bu tür nanokompozitler hem termal hem de mekanik özellikleri sebebiyle otomotiv sektöründe ilk olarak Toyota Camry modelinde emniyet kemeri parçalarında kullanılmıştır [21].

Polimer nanokompozitler, yakıt verimliliği ve karbon emisyonlarının azaltmasına olan katkısı, daha yüksek mukavemet, diğer dolgulu kompozitlere göre 10 kat daha hafif olmaları açısından otomotiv ve havacılık sektöründe dış şasi panelleri, iç mekan parçaları ve hafif yapısal bileşenlerinde kullanılmaktadırlar [14]. Normalde yalıtkan olan polimer matrislere iletken taneciklerin (karbon nanotüpler, iletken polimerler...) eklenmesiyle elde edilen iletken polimer nanokompozitler, korozyon önleme sistemlerinde, şarjlı pillerde, elektrokimyasal hücrelerde ve elektroeolojik sistemlerde kullanılmaktadırlar [22]. Polimer nanokompozitler, sağlık ve biyoteknoloji uygulamalarında protein, DNA, RNA gibi biyomoleküllerin ayrıştırılması ve saflaştırılmasında ve enzim immobilizasyonunda kullanılmaktadırlar. Ayrıca, gen taşıyıcı sistem olarak da kullanılabilirler.

Özetle, polimer nanokompozitler, çok yönlü yapıları ve kolay işlenebilir olmalarıyla elektronik, otomotiv, tıp ve enerji gibi alanlarda yüksek potansiyel sunmaktadır. Düşük dolgu oranlarıyla bile yüksek performans gösteren bu yapılar; sürdürülebilirlik, verimlilik ve fonksiyonellik açısından geleceğin malzemeleri arasında yer almaktadır [14].

Polimer nanokompozit malzemelerde, polimerlerin sınırlı fiziksel özelliklerini aşmak için grafen gibi dolgu maddeleriyle takviye edilmesi önemlidir. Grafenin olağanüstü özellikleri ve polimerle iyi arayüzey etkileşimi, nanokompozitlerin performansını arttırmaktadır. İşlevselleştirme ile homojen dağılım sağlanmakta ve aglomerasyon

önlenmektedir. Bu durum ise, grafen/polimer nanokompozitlerin ileri teknoloji uygulamalarında sürdürülebilir kullanımı arttırmaktadır [23].

2.2. GRAFEN OKSİT

2.2.1. Grafen

Grafen, karbon atomlarının iki boyutlu, altıgen (bal peteği benzeri) düzende dizilmesiyle oluşan bir karbon allotropudur. Grafen, 2004 yılında Novoselov ve arkadaşları tarafından keşfedilmiş olup ve o tarihten bu yana bilim dünyasında büyük ilgi görmektedir.

Grafen, tek atom kalınlığında olmasına rağmen son derece sağlamdır. Her bir karbon atomu komşu üç karbon atomu ile sp^2 hibritleşme yaparak σ (sigma) bağları oluşturur. Kalan p-z orbitalleri, π (pi) bağlarını oluşturur ve bu bağlar yüksek elektrik iletkenliği sağlar. Bu sayede elektronlar grafende kütleleri yokmuş gibi hareket ederler. Bu durum grafene yarı metalik ve süper iletken özellik kazandırır [3], [24].

Grafenin yapısal ve elektronik özelliklerinin iyi anlaşılması, nanoteknoloji açısından büyük önem taşır. Örneğin, karbon nanotüplerin bant yapısının kökenini açıklamada, karbonun diğer allotroplarının elektronik davranışlarını anlamada ve grafen tabanlı elektronik cihazların geliştirilmesinde önemli rol oynamaktadır [25].

Çizelge 2. 1. Grafenin yapısal ve fiziksel özellikleri [24].

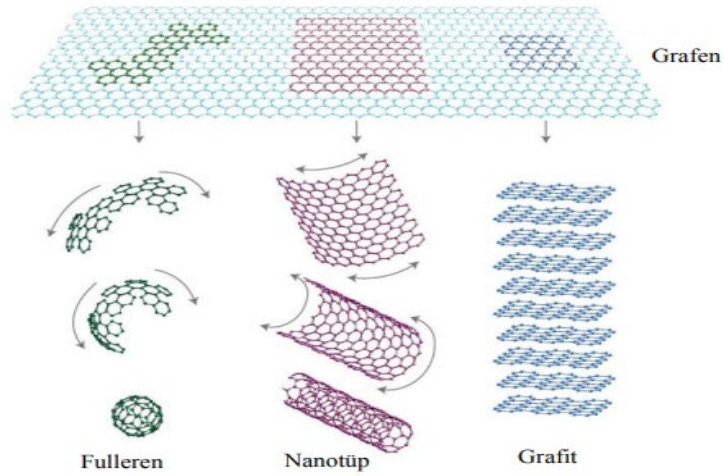
Özellik	Açıklama
Hafiflik	Tek atom kalınlığında olması nedeniyle çok hafiftir
Mukavemet	En sağlam malzemelerden biridir
Esneklik	Bükülebilir, uzayabilir yapıya sahiptir
Elektriksel iletkenlik	Süper iletkene yakın davranış gösterir
Kimyasal uygunluk	Kolayca fonksiyonelleştirilebilir, yüzeyi değişebilir

Grafen, karbonun diğer allotropları olan fulleren, karbon nanotüp ve grafit gibi yapılardan biridir. Ancak grafen, doğada bilinen tek iki boyutlu kristal yapıdaki malzeme örneğidir.

Çizelge 2. 2. Karbon allotroplarının özelliklerinin kıyaslanması [3].

Özellik	Grafen	Karbon nanotüp	Grafit	Fulleren
Yüzey alanı (m ² /g)	2630	1315	10	5
Termel iletkenlik (W/mK)	5000	>3000 (çok duvarlı knt)	3000	0,4
Mobility (cm ² /Vs)	15000 SiO üzerinde 200000 serbest halde	100000	13000	0,56
Young modülü (TPa)	1	0,64	1,06	0,01
Optik geçirgenlik (%)	97,7	-	-	-

Grafen, oksijen içeriğine göre farklı türevlerde bulunabilir: grafen oksit (GO) ve indirgenmiş grafen oksit (rGO). Bu türevler, grafenin işlenebilirliğini ve uygulama alanını çeşitlendirmektedir [26].



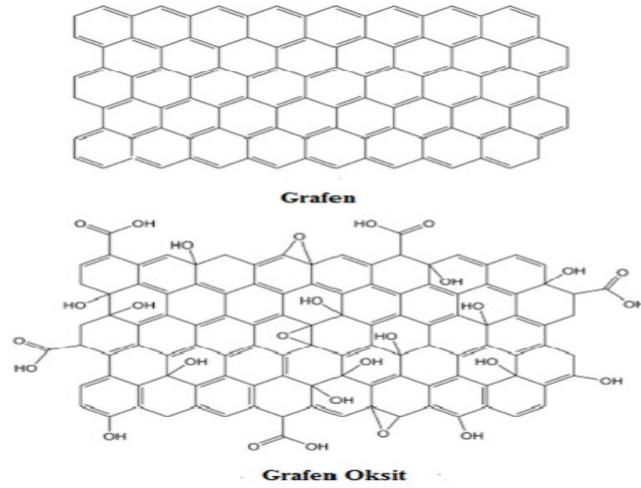
Şekil 2. 2. Karbon allotropları [27].

Grafen, doğadaki en üstün malzemelerden biri olduğu için çelikten 100 kat daha güçlü,

elmastan daha sert, bakırdan %60 daha iletken ve %98 optik geçirgenliğe sahip olan bu olağanüstü özellikleri sayesinde 2004'ten itibaren bilimsel araştırmalarda büyük ilgi görmüş ve farklı üretim yöntemleri geliştirilmiştir. Başlıca grafen üretim yöntemleri mekanik ayrıştırma, epitaksiyel büyüme, kimyasal buhar biriktirme ve kimyasal ayrıştırma [28]. Grafenin üretiminde hammadde olarak grafit kullanılmaktadır. Grafit, birbirine gevşek bağlarla tutunan çok sayıdaki grafen tabakalarının üst üste bindiği haldir.

2.2.2. Grafen Oksit

Grafen oksit (GO), oksijen içeren fonksiyonel gruplarla zenginleştirilmiş, suda dağılılabilen, biyolojik sistemlerle uyumlu olan grafen türevidir [4]. Yüzeyinde epoksi, hidroksil, karboksil gibi fonksiyonel gruplar barındırır. Bu gruplar sayesinde elektronik, optik ve mekanik özellikleri ayarlanabilir hale gelir. Ancak oksidasyonla sp^2 karbon bağları bozulduğu için iletkenlik düşer ve GO yalıtkan hale gelir [29].



Şekil 2. 3. Grafen ve grafen oksit (GO) yapısı [30].

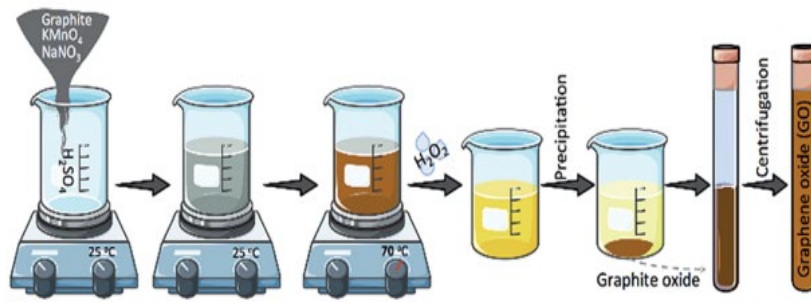
Bilinen en yaygın grafen oksit sentezleme yöntemi, Hummers yöntemidir: grafit, $NaNO_3$ ve $KMnO_4$ ile H_2SO_4 reaksiyona sokulur. Oksidasyon sonucunda, grafit tabakalarına epoksi ve hidroksil grupları girer. Bu sayede tabakalar arası mesafe artar ve grafit, grafen okside dönüşür. Ancak bu yöntem sırasında yüksek ısı açığa çıkar, zehirli gazlar (NO_x , $ClO_2 \dots$) oluşabilir ve patlama riski taşır [29].

Bu sebeple Klasik Hummers Yöntemindeki eksiklikleri gidermek amacıyla 1958'de Modifiye Hummers Yöntemi geliştirilmiştir. Toksik gaz oluşumunu azaltmak, oksidasyon verimini arttırmak, GO'da daha fazla fonksiyonel grup elde etmek, daha iyi tabaka ayrışması sağlamak, maliyeti ve çevresel etkileri düşürmek amaçlanmıştır.

Böylece GO sentezi, Modifiye Hummers Yöntemi ile daha güvenli, çevre dostu ve verimli hale getirilmiştir [31].

Çizelge 2. 3. Modifiye Hummers yönteminin kıyaslanması.

Klasik Hummers Yöntemi	Modifiye Hummers Yöntemi
NaNO ₃ kullanılır ve NO _x gazı çıkar	NaNO ₃ yerine H ₃ PO ₄ (fosforik asit) kullanılır
Tam oksidasyon zayıftır	Ön oksidasyon (K ₂ S ₂ O ₈ , P ₂ O ₅ ile) eklenir
Oksidasyon süresi kısa ama eksiktir	Süre uzatılır, daha fazla karboksil ve hidroksil grubu oluşur
Küçük partiküller tercih edilir	Geniş partikül için genişletme yapılır



Şekil 2. 4. Modifiye Hummers Yöntemi ile GO üretim aşamaları [32].

2.2.3. Grafen Oksitin Kullanım Alanları

2004 yılından beri grafen elektronik cihazlar, güneş pilleri, sensörler, piller, süperkapasitörler, hidrojen depolama ve nanomalzeme alanlarında yaygın şekilde araştırılmakta ve kullanılmaktadır. Yüksek kimyasal kararlılığı, geniş yüzey alanı ve elektron taşıma kapasitesi grafeni katalizör taşıyıcı olarak ayrıca ideal kılmaktadır. Ancak sudaki düşük çözünürlüğü, grafenin atıksu arıtımı gibi uygulamalarda kullanımını sınırlamaktadır. Bu noktada, yüzeyindeki hidroksil, epoksi ve karboksil grupları sayesinde suda daha iyi çözünen grafen oksit tercih edilmektedir. Grafen oksit atıksu arıtım uygulamalarının yanısıra boya giderim çalışmaları için de ön plana çıkmaktadır [33]. GO membranlar, yüksek su geçirgenliği ve iyon seçiciliği sayesinde, tuzdan arındırma (desalinasyon), moleküler ayırma ve iyon değişimi gibi alanlarda yüksek potansiyele sahip nano filtrasyon malzemeleri olarak kullanılmaktadırlar.

Grafen oksit, yüksek taşıma kapasitesi, yüzey fonksiyonelliği, hedefe yönlenebilme

yeteneđi ve düşük toksisitesi sayesinde, günümüzün kanser tedavisi ve ilaç taşıma sistemleri için en umut verici nano malzemelerden biri haline gelmiştir [34].

Grafen oksit, çimento kompozitlerine eklendiğinde hidrasyonu iyileştirerek dayanım ve dayanıklılığı arttıran inert bir nanomalzemedir. Özellikle, işlenebilirlik ve uzun vadeli performans sergilemesi açısından gelecekteki araştırmalar için önemli bir malzeme haline gelmiştir [35].

2.2.4. Silan Modifiyeli Grafen Oksit

Yüzeyinde heterojen olarak dağılmış çok sayıda fonksiyonel grup (epoksi, hidroksil, karboksil vb.) bulunması grafen oksiti kimyasal indirgeme ve işlevselleştirme (fonksiyonelleştirme) işlemleri için uygun ve reaktif hale getirir. Polimer matrislerde grafen oksitin daha iyi dağılabilmesi ve GO ile polimer arasındaki arayüzey bağ kuvvetinin artırılması için yüzey modifikasyonları yapılır ve işlevselleştirme sağlanır [36].

Grafen oksite özgün işlevsellik kazandırmak için en yaygın yöntemlerden biri, silan bileşikleriyle yüzey modifikasyonu işlemidir. Silan ajanları, hem organik (polimer) hem de inorganik (GO) yapılarla bağ yapabilen moleküllerdir. En çok kullanılan silan grupları sırasıyla, vinil grupları, epoksi grupları, amino grupları ve merkaptto grupları şeklinde sıralanabilir. Bu gruplar, dağılabilirlik, suya karşı dayanıklılık, arayüzey yapışması ve alev geciktiricilik gibi özellikleri arttırlar.

Grafen oksit/polimer nanokompozitlerde, özellikle amino gruplarıyla modifiye edilmiş GO sıkça tercih edilir. Amino grupları, polimerle daha güçlü kimyasal bağlar oluşturur ve kompozit performansını artırır. Grafen oksitin yüzeyinde bulunan fonksiyonel gruplar, GO'nun işlenebilirliğini, dağılımını ve polimerlerle etkileşimini arttırmak için farklı kimyasal işlemlerle modifiye edilmesini mümkün kılar. Bu da gelişmiş özelliklere sahip GO/polimer nanokompozitlerin geliştirilmesini sağlar [37].

2.3. GRAFEN OKSİT NANOKOMPOZİTLER

Grafen oksit nanokompozitler, grafitin kimyasal oksidasyonu ile elde edilen yüzeyinde bol miktarda oksijenli fonksiyonel grup (karboksil, hidroksil, epoksi ...) taşıyan 2 boyutlu karbon türevi olan ve yüksek yüzey alanı, iyi hidrofiliklik, kolay işlevselleştirilebilirlik ve mekanik dayanıklılığı sayesinde ideal bir dolgu maddesi grafen oksitin, polimer,

seramik veya metalik matrislerle birleştirilmesi ile oluşan malzemelerdir. Bu birleşim mekanik, termal, elektriksel, optik ve biyolojik özelliklerde büyük iyileşmeler sağlar. Fonksiyonel gruplar sayesinde grafen oksit özellikle çeşitli polimerlerle güçlü arayüzey etkileşimleri kurar ve homojen bir şekilde dağılabilir.

2.3.1. Grafen Oksit Nanokompozitlerin Kullanım Alanları

Son yıllarda nanoteknolojide meydana gelen gelişmelerle birlikte grafen oksit, çok çeşitli alanlarda kullanılabilen ileri fonksiyonel bir nanomalzeme olarak dikkat çekmektedir. Grafen oksit bazlı nanokompozitlerin yapı özellikleri ve çeşitli uygulama alanlarındaki potansiyeli yapılan araştırmalar sayesinde artmaktadır [4].

Grafen oksit nanokompozitler, elektriksel, mekanik ve termal özellikleri sebebiyle elektronik ve enerji sistemleri, su arıtma ve filtrasyon, biyomedikal uygulamalar, gıda ambalajı, kompozit ve yapı malzemeleri (polimer matrisli yapısal malzemeler, ısı ve elektriksel olarak iletken kompozitler, yüzey kaplamalar ...) gibi birçok alanda kullanılmaktadırlar.

Grafen oksit nanokompozitlerin enerji, çevre, sağlık ve gıda gibi kritik sektörlerde kullanımları da mevcuttur.

Grafen oksit bazlı nanokompozitler adsorban olarak boya ve ağır metal iyon tayininde kullanılmaktadırlar.

Spesifik yüzey alanına sahip olmaları sebebiyle grafen oksit nanokompozitlerin biyosensör, katalizör uygulamaları mevcuttur. Elektriksel, optik, elektrokimyasal mekanik ve termal sensörler olarak kullanılmaktadırlar [38].

2.3.2. Literatür Araştırması

Zhu ve arkadaşları, bakır (salen) kompleksinin grafen oksit yüzeyine in-situ yöntemle immobilizasyonu gerçekleştirmiş ve bu nanohibritleri, termoplastik poliüretan (TPU) matrisine ekleyerek TPU/GO nanokompoziti elde etmişlerdir [39].

Ansari ve arkadaşları, (3-aminopropil)metoksisilan ile fonksiyonelleştirilmiş grafen oksit kullanılarak bakır(II) Schiff bazı kompozit (Cu-NH-GO) sentezlenmişler, yapısal ve morfolojik analizler (XRD, FTIR, TGA, SEM, TEM) ile kompozitin oluştuğunu göstermişlerdir. Cu-NH-GO kompozitin, aril halojenürlerin fenilboronik asit ile çapraz bağlanma reaksiyonlarında yüksek katalitik aktivite (%84) sergilediğini ve dört kullanım

sonrasında katalizörün yüksek verimliliğini (~%80) koruduğunu, geri kazanılabilirliğinin iyi olduğunu rapor etmişlerdir [40].

Hua ve arkadaşları, aldehit ile fonksiyonelleştirilen grafen oksit kullanılarak yüksek verim ile üç farklı grafen oksit membran sentezlemişlerdir. Membranların termal stabilite gösterdiklerini ve uzun süreli kullanımda kararlılıklarını koruduklarını bildirmişlerdir [41].

Wang ve arkadaşları, grafen oksit ile doldurulmuş polidimetilsiloksan (PDMS) nanokompozitleri elde etmişler ve bu kompozitlerin elektriksel ve dielektrik özelliklerini araştırmışlar. GO'ı, farklı sıcaklıklarda ısı ile indirgenmişler (rGO) ve düşük dolgu oranlarında bile güçlü doğrusal olmayan iletkenlik sergilediğini rapor etmişlerdir [42].

Kumar ve arkadaşları, yüksek iletkenliğe sahip olan polianilin aşılı indirgenmiş grafen oksit (PANi-g-rGO) kompozit hazırlamak için GO'ya amin korumalı 4-aminofenol aşılamışlar. GO'nun geri akıtılması ve tiyonil klorür buharlarına maruz bırakılması nedeniyle GO'da kısmi bir indirgeme meydana geldiğini gözlemlemişler. Elde edilen kompozitin 8,66 S/cm gibi yüksek bir oda sıcaklığında elektrik iletkenliği ve iyi bir çevrim kararlılığı olduğunu göstermişlerdir [43].

Pokharel ve arkadaşları, grafen ve grafen nanoparçacık içeren hibrit dolgu maddeleriyle hazırlanan poliüretan nanokompozitler sentezleyerek, elektriksel ve mekanik özelliklerini incelemişlerdir. %3 hibrit dolgu ile Young modülünün %200 arttığını, yüzey direncinin $10^{9,5}$ ohm/sq değerine ulaştığını ve kopma uzamasının korunduğunu gözlemlemişlerdir [44].

Paszkievicz, karbon nanotüpler ve grafen gibi tek boyutlu ve iki boyutlu iletken nanoparçacıklar kullanılarak, in-situ polimerizasyon yoluyla polyester (PET, PTT) ve elastomer (PTT-PTMO) bazlı hibrit nanokompozitler elde etmişlerdir. Nanofillerin, polimerlerin mekanik, termal ve bariyer özelliklerini arttırdığı, özellikle düşük oranlarda bile belirgin iyileştirmeler sağladığı tespit etmiştir. Sentezlenen nanokompozitlerin, modern uygulamalara yönelik yüksek performanslı, hafif ve iletken malzeme olduklarını rapor etmiştir [45].

Chatterjee, karbon nanotüp (CNT) ve grafen gibi nanomalzemelerin polimer matrislerdeki etkilerini incelemiş ve PA12 ve epoksi bazlı kompozitlerde CNT ve grafen dolgu maddeleri kullanarak, malzemelerin mekanik dayanımı, elektriksel ve termal iletkenliği önemli ölçüde arttırdığını, karbon nanofillerin polimerleri çok yönlü olarak

geliştirme potansiyeline sahip olduğunu rapor etmiştir ortaya koymuştur [46].

Bayer, çalışmasında, %0,05 ve %0,1 oranlarında grafen oksit takviyesinin çimentolu kompozitlerin mekanik ve dayanıklılık özelliklerini iyileştirdiğini gözlemlemiştir. %0,1 GO eklenmesiyle 28 günlük basınç dayanımının %20'ye, eğilme dayanımının %10'na arttığını, klorür geçirgenliğinin %18,85 oranında azaldığını tespit etmiş ve GO'in, çimentolu sistemler için etkili bir güçlendirici olarak öne çıktığını bildirmiştir [47].

Sreeja ve arkadaşları, grafen oksit takviyesinin çimento harcının basınç, eğilme ve ayırık çekme dayanımını arttırdığını ve C-S-H jel oluşumunu hızlandırdığını, %0,08 GO içeren harçlarda homojen mikroyapı özellikleri sergilendiğini bildirmişlerdir. GO'in, İnşaat Mühendisliğinde umut verici bir nanomalzeme olduğunu rapor etmişlerdir [48].

Khazae ve arkadaşları, piperazinle fonksiyonelleştirilmiş grafen oksiti, bifonksiyonel asit-baz heterojen katalizör olarak kullanılmış ve sulu etanolde çeşitli 2-amino-3-siyano-4H-kromen türevlerini yüksek verimle elde etmişlerdir. Katalizörün kolayca geri kazanıldığı ve altı kez yeniden kullanıldığı yöntemi, çevre dostu, verimli ve tekrar kullanılabilir bir sentez yöntemi olarak bildirmişlerdir [49].

Sitko ve arkadaşları, tiyosemikarbazit (TSC) ile fonksiyonelleştirilmiş grafen oksiti (GO-TSC), sudan Hg(II) iyonlarının seçici ve etkili giderimi maksatlı sentezlemişlerdir. GO-TSC'in nanoadsorban olarak, 231 mg/g maksimum adsorpsiyon kapasitesi ve %90-95 giderim oranıyla düşük dozda (5 mg/L) ve kısa sürede, yüksek performans gösterdiğini, yüksek seçicilik ve geniş pH aralığında etkili olduğunu rapor etmişlerdir [50].

Lee ve arkadaşları, aminle fonksiyonelleştirilmiş grafen oksiti (fGO), poliüretan (PU) matrisine dahil ederek nanokompot elde etmişlerdir. fGO, güçlü ara yüzey etkileşimleri sayesinde PU'nun termal kararlılığını ve mekanik özelliklerini arttırdığını bildirmişlerdir [51].

Chen ve arkadaşları, sentezledikleri silan fonksiyonlu grafen oksiti (PVSQ-GO), su bazlı poliüretan kaplamalarda kullanmış ve %0,5 katkı ile önemli ölçüde korozyon direnci sağladığını tespit etmişlerdir. PVSQ-GO'in hidrofobik yapısı ve poliüretan ile etkileşimi sayesinde, korozif ortamların geçişini engelleyerek en düşük korozyon oranını gösterdiğini rapor etmişlerdir [52].

Huang ve arkadaşları, 3-aminpropil-trietoksisilan ile fonksiyonelleştirilen grafen oksit bazlı katı katalizörün, Knoevenagel kondenzasyonunda %90 verim ve yedi kez yeniden kullanılabilirlik ile, yüksek katalitik performans gösterdiğini bildirmişlerdir [53].

Körođlu, iki farklı silan ajanı 3-aminopropiltrioksisilan ve 3-glisidoksi-propiltrimetoksi (APTES ve GPTMS) ile modifiye edilmiş grafen oksit (GO) katkılı PCL/PVP polimerik nanokompozit malzemeleri, elektrospinleme yöntemiyle elde etmiş ve gıda ambalajı olarak kullanılabilirliğini araştırmıştır. Özellikle %0,5 APTES ile modifiye edilmiş GO katkılı nanokompozit kaplanan çileklerin 25 gün sonunda tazeliđini en iyi şekilde koruduđunu gözlemlemiş ve nanokompozitlerin yenilikçi gıda ambalajı malzemesi olarak kullanılabilirliğini rapor etmiştir [54].

3. MATERYAL VE METOD

3.1. KİMYASALLAR

Deneysel çalışmada kullanılan grafen oksit, 3-kloropropil-fonksiyonelleştirilmiş silika jel, poli(propilen glikol) bis(2-aminopropil eter), 4-formil-3-metoksifenoksimetil)polistiren, salisilaldehit, 5-metilsalisilaldehit, 2-tiyofenkarboksaldehit, 4-metil-3-tiyosemikarbazit kimyasallar ve çözücüler Sigma-Aldrich ve Merck firmalarından tedarik edildi.

3.2. CİHAZLAR

3.2.1. Element Analizi (EA)

Silan modifiyeli grafen oksit / polimer hibrit nanokompozitlerin element analizleri, Thermo Scientific marka Flash 2000 model cihaz ile yapıldı.

3.2.2. Fourier Dönüşümlü Kızılötesi Spektroskopisi (FT-IR)

Silan modifiyeli grafen oksit / polimer hibrit nanokompozitlerin FT-IR spektrumları, Thermo Scientific marka Nicolet İS5 cihaz ile belirlendi.

3.2.3. Jel Geçirgenlik Kromatografisi (GPC)

Silan modifiyeli grafen oksit / polimer hibrit nanokompozitlerin Tosoh marka EcoSEC HLC-8320 GPC sistemi ile alındı.

3.2.4. Taramalı Elektron Mikroskobu-Enerji Dağılımlı X-Işını Spektroskopisi (SEM-EDX)

Silan modifiyeli grafen oksit / polimer hibrit nanokompozitlerin SEM-EDX görüntüleri, Quanta 400F Field Emission model cihaz ile alındı.

3.2.5. X-Işını Fotoelektron Spektrometresi (XPS)

Silan modifiyeli grafen oksit / polimer hibrit nanokompozitlerin XPS analizleri, PHI 5000 VersaProbe marka cihaz ile elde edildi.

3.2.6. Termogravimetrik ve Diferansiyel Termal Analiz Cihazı (TG-DTA)

Silan modifiyeli grafen oksit / polimer hibrit nanokompozitlerin termal analizleri, Shimadzu marka DTG 60H-DSC 60 model cihaz ile elde edildi.

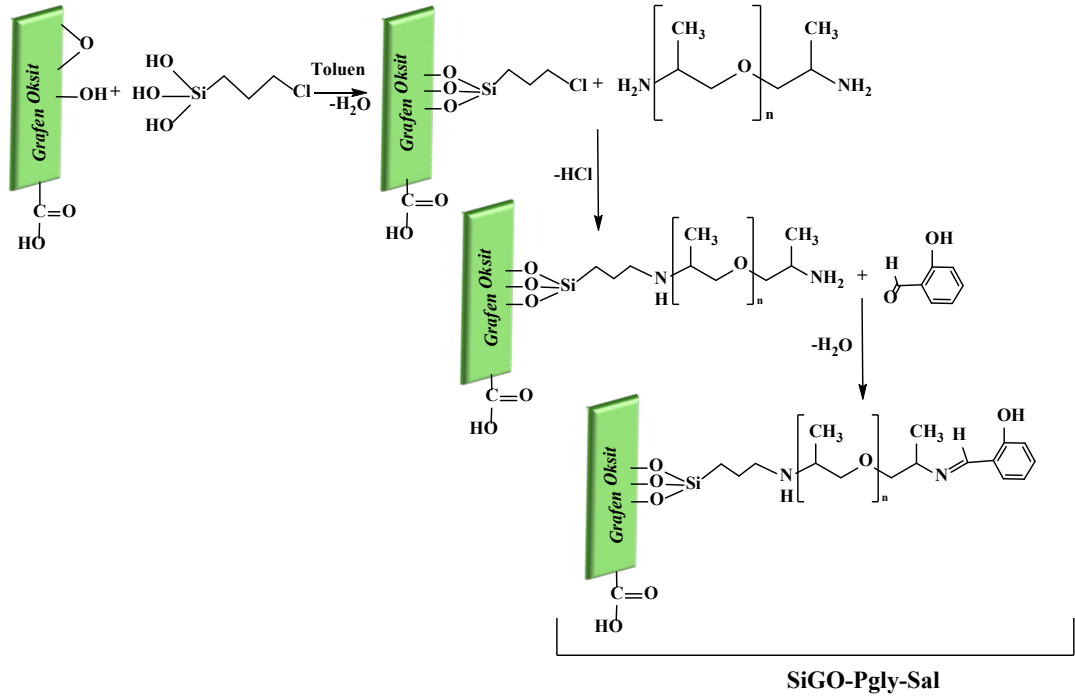
4. DENEYSEL ÇALIŞMA

4.1. SİLAN MODİFİYELİ GRAFEN OKSİT / POLİMER HİBRİT NANOKOMPOZİTLERİN SENTEZİ

Tez çalışması kapsamında, template olarak kondenzasyon reaksiyonu ile 5 (beş) yeni silan modifiyeli grafen oksit / polimer hibrit nanokompozit (SiGO-Pgly-Sal, SiGO-Pgly-mSal, SiGO-Pgly-Thc, SiGO-mTsc-Ps, SiGO-Tsc-Ps) sentezlendi.

4.1.1. SiGO-Pgly-Sal Hibrit Nanokompozit Sentezi

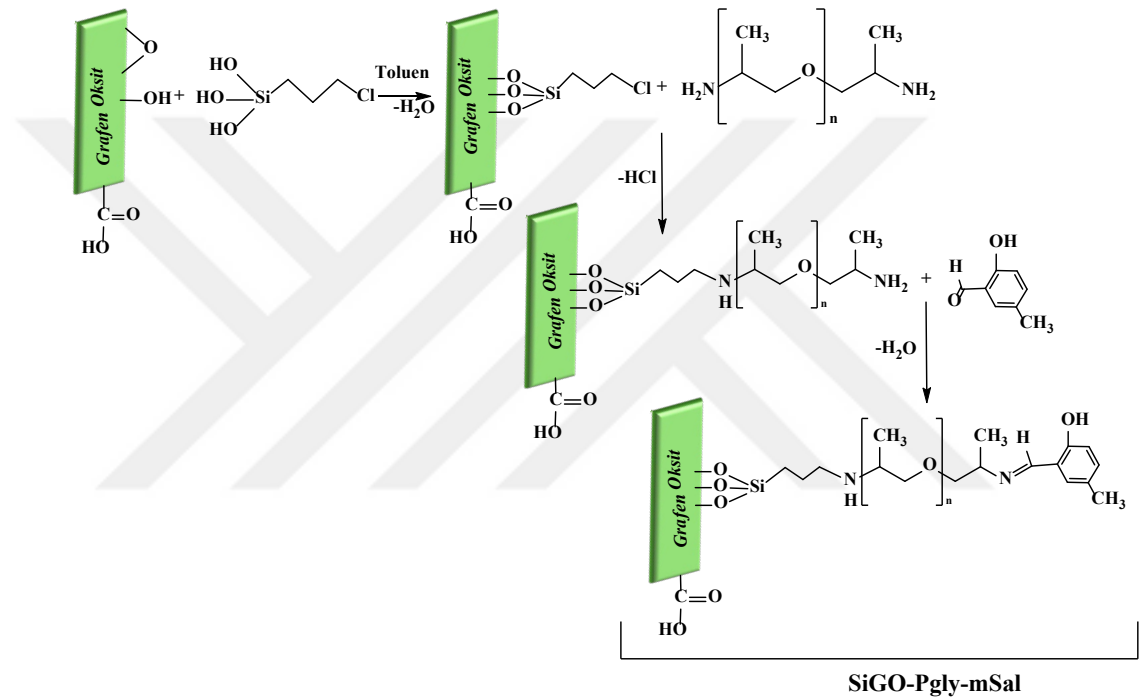
0,5 gram (25 mL toluen) grafen oksit ile 0,34 gram (30 mL toluen) 3-kloropropil-fonksiyonelleştirilmiş silika jel 90 °C sıcaklıkta, 72 saat boyunca geri soğutucu altında karıştırıldı. Çözeltiye, 6,80mL (10 mL toluen) poli(propilen glikol)bis(2-aminopropil eter) eklenerek 12 saat daha aynı sıcaklıkta (12 saat oda sıcaklığında) karıştırma işlemine devam edildi. Çözeltiye 2,11 mL (10 mL toluen) salisilaldehit ilave edilerek 90 °C sıcaklıkta, 5 saat (62 saat oda sıcak.) daha geri soğutucu altında karıştırıldı. Süzme, saflaştırma ve kurutma işlemlerinden sonra siyah renkli ürün elde edildi.



Şekil 4. 1. SiGO-Pgly-Sal hibrit nanokompozitin reaksiyon şeması.

4.1.2. SiGO-Pgly-mSal Hibrit Nanokompozit Sentezi

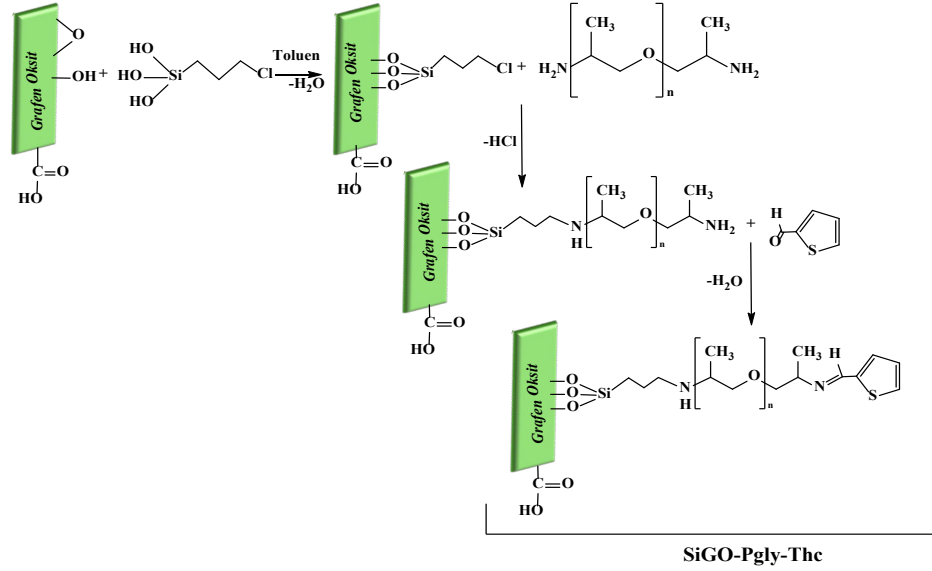
0,5 gram (25 mL toluen) grafen oksit ile 0,34 gram (30 mL toluen) 3-kloropropil-fonksiyonelleştirilmiş silika jel 90 °C sıcaklıkta, 72 saat boyunca geri soğutucu altında karıştırıldı. Çözeltiye, 6,80mL (10 mL toluen) poli(propilen glikol)bis(2-aminopropil eter) eklenerek 12 saat daha aynı sıcaklıkta (12 saat oda sıcak.) karıştırma işlemine devam edildi. Çözeltiye 2,70 gram (10 mL toluen) 5-metilsalisilaldehit ilave edilerek 90 °C sıcaklıkta, 5 saat (62 saat oda sıcak.) daha geri soğutucu altında karıştırıldı. Süzme, saflaştırma ve kurutma işlemlerinden sonra siyah renkli ürün elde edildi.



Şekil 4. 2. SiGO-Pgly-mSal hibrit nanokompozitin reaksiyon şeması.

4.1.3. SiGO-Pgly-Thc Hibrit Nanokompozit Sentezi

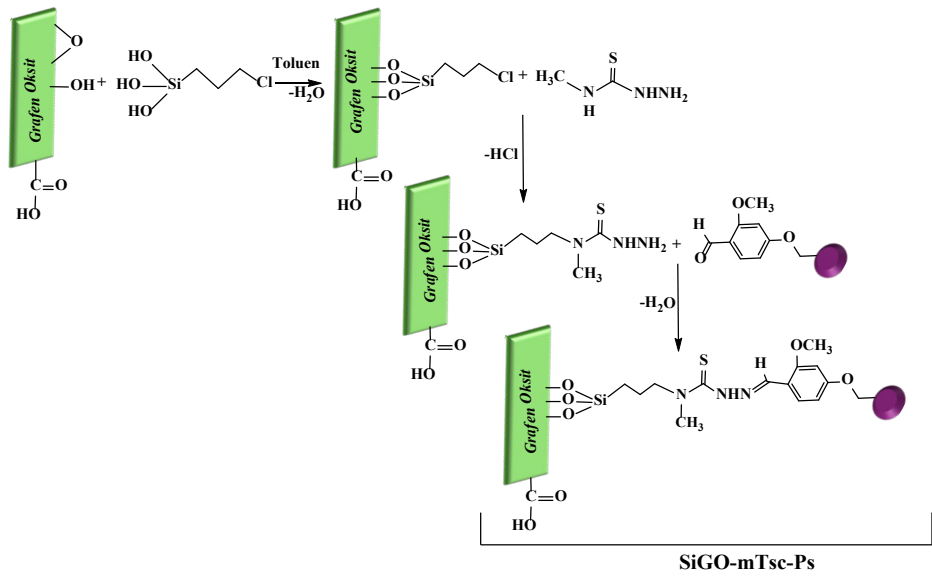
0,5 gram (25 mL toluen) grafen oksit ile 0,34 gram (30 mL toluen) 3-kloropropil-fonksiyonelleştirilmiş silika jel 90 °C sıcaklıkta, 72 saat boyunca geri soğutucu altında karıştırıldı. Çözeltiye, 6,80 mL (10 mL toluen) poli(propilen glikol)bis(2-aminopropil eter) eklenerek 10 saat daha aynı sıcaklıkta (38 saat oda sıcak.) karıştırma işlemine devam edildi. Çözeltiye 1,85 mL (10 mL toluen) 2-tiyofenkarboksaldehit ilave edilerek 90 °C sıcaklıkta, 13 saat daha (63 saat oda sıcak.) geri soğutucu altında karıştırıldı. Süzme, saflaştırma ve kurutma işlemlerinden sonra siyah renkli ürün elde edildi.



Şekil 4. 3. SiGO-Pgly-Thc hibrit nanokompozitin reaksiyon şeması.

4.1.4. SiGO-mTsc-Ps Hibrit Nanokompozit Sentezi

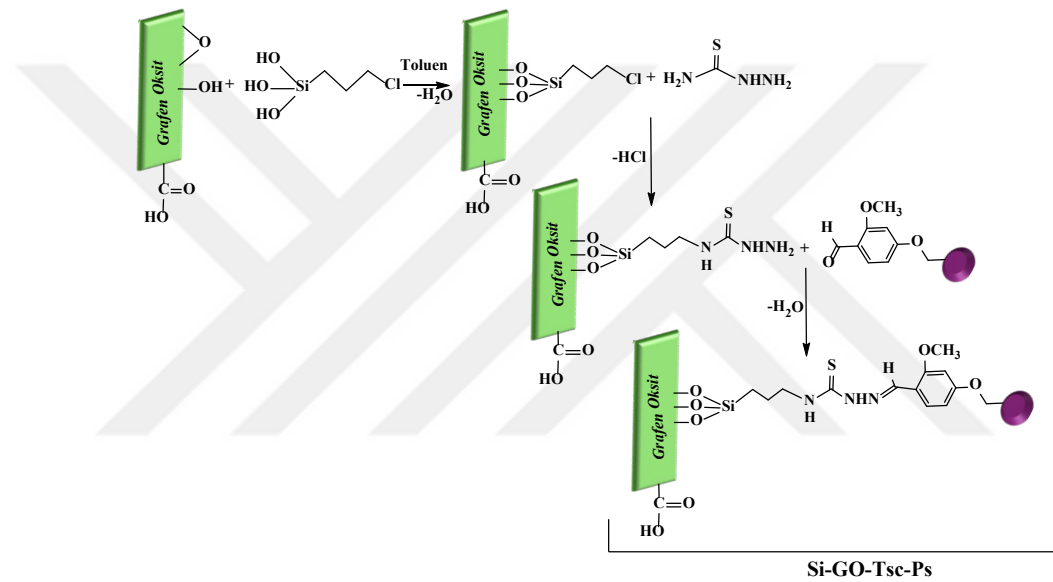
0,5 gram (25 mL toluen) grafen oksit ile 0,34 gram (30 mL toluen) 3-kloropropil-fonksiyonelleştirilmiş silika jel 90 °C sıcaklıkta, 72 saat boyunca geri soğutucu altında karıştırıldı. Çözeltiye, 0,35 gram (30 mL toluen) 4-metil-3-tiyosemikarbazit eklenerek 4 saat daha aynı sıcaklıkta karıştırma işlemine devam edildi. Çözeltiye 0,22 gram (30 mL toluen) 4-formil-3-metoksifenoksimetil)polistiren ilave edilerek 90 °C sıcaklıkta, 46 saat daha geri soğutucu altında karıştırıldı. Süzme, saflaştırma ve kurutma işlemlerinden sonra siyah renkli ürün elde edildi.



Şekil 4. 4. SiGO-mTsc-Ps hibrit nanokompozitin reaksiyon şeması.

4.1.5. SiGO-Tsc-Ps Hibrit Nanokompozit Sentezi

0,5 gram (25 mL toluen) grafen oksit ile 0,34 gram (30 mL toluen) 3-kloropropil-fonksiyonelleştirilmiş silika jel 90 °C sıcaklıkta, 72 saat boyunca geri soğutucu altında karıştırıldı. Çözeltiye, 0,3 gram (10 mL toluen) tiyosemikarbazit eklenerek 10 saat daha aynı sıcaklıkta (38 saat oda sıcak.) daha aynı sıcaklıkta karıştırma işlemine devam edildi. Çözeltiye 0,22 gram (10 mL toluen) 4-formil-3-metoksifenoksimetil)polistiren ilave edilerek 90 °C sıcaklıkta, 13 saat daha (63 saat oda sıcak.) daha geri soğutucu altında karıştırıldı. Süzme, saflaştırma ve kurutma işlemlerinden sonra siyah renkli ürün elde edildi.



Şekil 4. 5. SiGO-Tsc-Ps hibrit nanokompozitin reaksiyon şeması.

5. BULGULAR VE TARTIŞMA

Tez çalışması kapsamında sentezlenen yeni silan modifiyeli grafen oksit / polimer hibrit nanokompozitlerin (SiGO-Pgly-Sal, SiGO-Pgly-mSal, SiGO-Pgly-Thc, SiGO-mTsc-Ps, SiGO-Tsc-Ps) yapıları element analizi, FT-IR, GPC, SEM-EDX, XPS ve TG/DTA spektroskopik yöntemler kullanılarak aydınlatıldı.

5.1. SİLAN MODİFİYELİ GRAFEN OKSİT / POLİMER HİBRİT NANOKOMPOZİTLERİN KARAKTERİZASYONU

5.1.1. Hibrit Nanokompozitlerin Element Analizi ve GPC Sonuçları

Silan modifiyeli grafen oksit / polimer hibrit nanokompozitlerin (SiGO-Pgly-Sal, SiGO-Pgly-mSal, SiGO-Pgly-Thc, SiGO-mTsc-Ps, SiGO-Tsc-Ps) element analiz ve GPC ve bazı analitik verileri Çizelge 5.1’de sunuldu.

Çizelge 5. 1. Hibrit nanokompozitlere ait bazı veriler.

Sembol	Renk	$(M_w, M_n, \text{g.mol}^{-1}), \text{PDI}$	Element Analizi			
			Hesaplanan (Bulunan) %			
			C	H	N	S
SiGO-Pgly-Sal	Siyah	(1547, 1349), 1,15	65,16	6,33	1,49	-
			(65,66)	(6,93)	(1,65)	-
SiGO-Pgly-mSal	Siyah	(1339, 1203), 1,11	65,31	6,39	1,48	-
			(64,33)	(6,35)	(1,71)	-
SiGO-Pgly-Thc	Siyah	(2179, 1801), 1,21	64,22	6,25	1,50	1,71
			(63,70)	(6,12)	(1,74)	(1,83)
SiGO-mTsc-Ps	Siyah	(1509, 1423), 1,06	63,38	5,90	2,22	1,69
			(61,88)	(6,47)	(2,88)	(1,68)
SiGO-Tsc-Ps	Siyah	(2453, 2302), 1,10	63,21	5,84	2,23	1,70
			(63,46)	(6,21)	(2,65)	(1,70)

5.1.2. Hibrit Nanokompozitlerin FT-IR Spektrumları

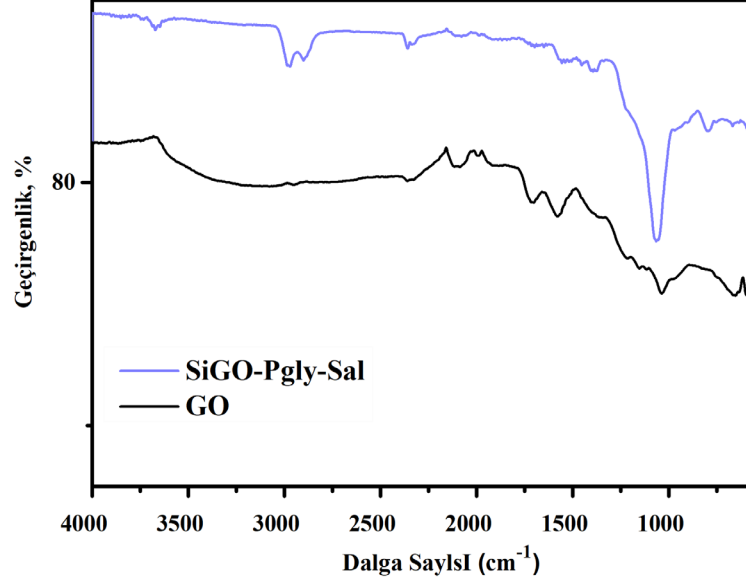
Silan modifiyeli grafen oksit / polimer hibrit nanokompozitlerin (SiGO-Pgly-Sal, SiGO-Pgly-mSal, SiGO-Pgly-Thc, SiGO-mTsc-Ps, SiGO-Tsc-Ps) FT-IR spektrum verileri Çizelge 5.2’de sunuldu.

Çizelge 5. 2. Hibrit nanokompozitlere ait FT-IR titreşim frekansları (cm^{-1}).

Sembol	$\nu(\text{OH})$ $\nu(\text{CH})_{\text{aro.}}$	$\nu(\text{NH})$	$\nu(\text{C=O})_{\text{carb.}}$ $\nu(\text{C=C})_{\text{aro.}}$	$\nu(\text{CH=N})$	$\nu(\text{C=S})$	$\nu(\text{Si-O-Si})$
GO	3180 -	-	1703 1579	-	- -	- -
SiGO-Pgly-Sal	3672 2901	2972	1698 1557	1651	- -	1066
SiGO-Pgly-mSal	3671 2900	2973	1714 1556	1634	- -	1055
SiGO-Pgly-Thc	3671 2900	2971	1720 1557	1680	- -	1067
SiGO-mTsc-Ps	3673 2900	2987	1707 1546	1647	967	1054
SiGO-Tsc-Ps	3672 2901	2986	1698 1548	1650	800	1066

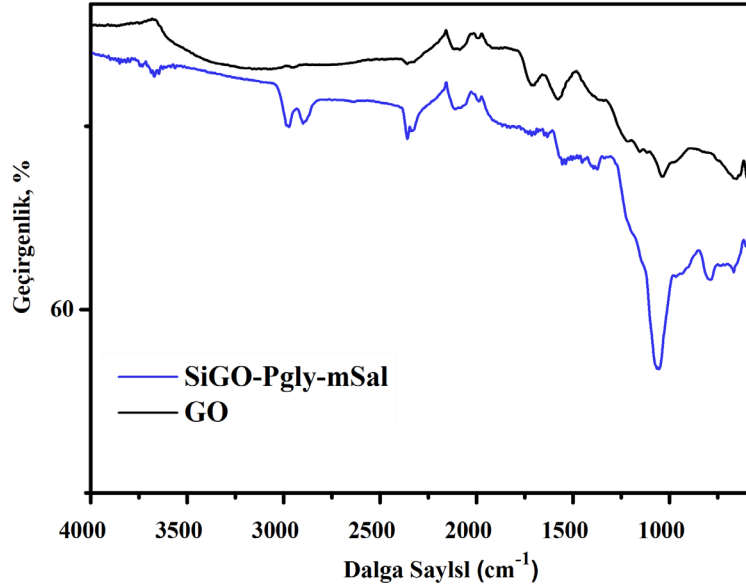
GO bileşiğine ait hidroksil $\nu(\text{OH})$, karboksil $\nu(\text{C=O})$ ve aromatik $\nu(\text{C=C})$ gerilme titreşimleri sırasıyla 3180 cm^{-1} , 1703 cm^{-1} ve 1579 cm^{-1} ’de belirlendi.

SiGO-Pgly-Sal hibrit nanokompozite ait hidroksil $\nu(\text{OH})$, karboksil $\nu(\text{C=O})$ ve aromatik $\nu(\text{C=C})$ gerilme titreşimleri sırasıyla 3672 cm^{-1} , 1698 cm^{-1} ve 1557 cm^{-1} ’de belirlendi. Aromatik $\nu(\text{CH})$ gerilme titreşimi 2901 cm^{-1} ’de, $\nu(\text{NH})$ gerilme titreşimi 2972 cm^{-1} ’de, azometin $\nu(\text{CH=N})$ gerilme titreşimi 1651 cm^{-1} ’de ortaya çıktı. $\nu(\text{Si-O-Si})$ gerilme titreşimi 1066 cm^{-1} ’de gözlemlendi [55].



Şekil 5. 1. SiGO-Pgly-Sal hibrit nanokompozite ait FT-IR spektrumları.

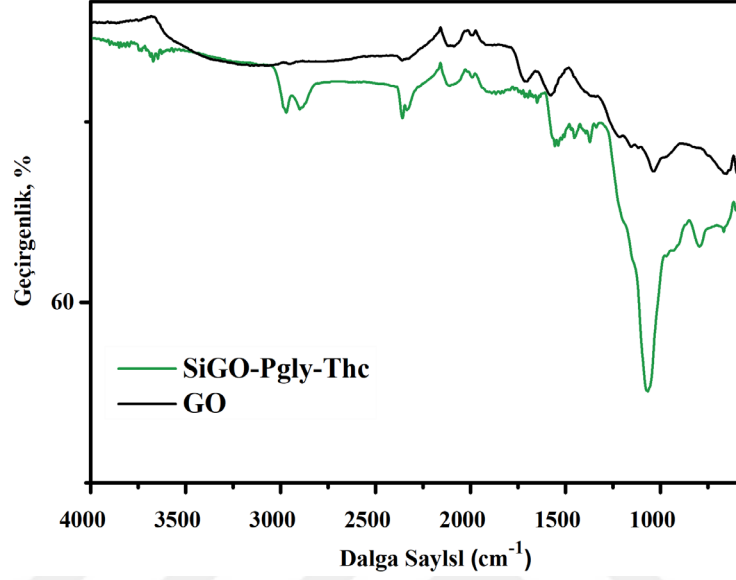
SiGO-Pgly-mSal hibrit nanokompozite ait hidroksil $\nu(\text{OH})$, karboksil $\nu(\text{C}=\text{O})$ ve aromatik $\nu(\text{C}=\text{C})$ gerilme titreşimleri sırasıyla 3671 cm^{-1} , 1714 cm^{-1} ve 1556 cm^{-1} 'de belirlendi. Aromatik $\nu(\text{CH})$ gerilme titreşimi 2900 cm^{-1} 'de, $\nu(\text{NH})$ gerilme titreşimi 2973 cm^{-1} 'de, azometin $\nu(\text{CH}=\text{N})$ gerilme titreşimi 1680 cm^{-1} 'de ortaya çıktı. $\nu(\text{Si-O-Si})$ gerilme titreşimi 1066 cm^{-1} 'de gözlemlendi [55].



Şekil 5. 2. SiGO-Pgly-mSal hibrit nanokompozite ait FT-IR spektrumları

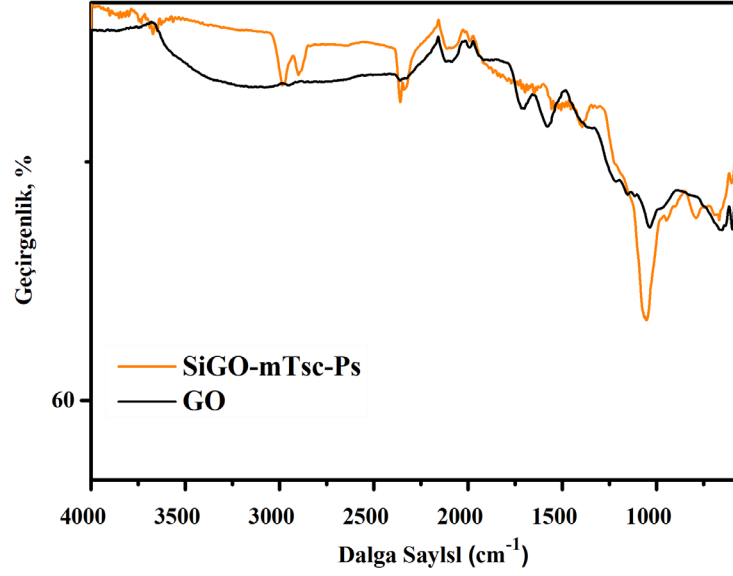
SiGO-Pgly-Thc hibrit nanokompozite ait hidroksil $\nu(\text{OH})$, karboksil $\nu(\text{C}=\text{O})$ ve aromatik

$\nu(\text{C}=\text{C})$ gerilme titreşimleri sırasıyla 3671 cm^{-1} , 1720 cm^{-1} ve 1557 cm^{-1} 'de belirlendi. Aromatik $\nu(\text{CH})$ gerilme titreşimi 2900 cm^{-1} 'de, $\nu(\text{NH})$ gerilme titreşimi 2971 cm^{-1} 'de, azometin $\nu(\text{CH}=\text{N})$ gerilme titreşimi 1680 cm^{-1} 'de ortaya çıktı. $\nu(\text{Si-O-Si})$ gerilme titreşimi 1067 cm^{-1} 'de gözlemlendi [55].



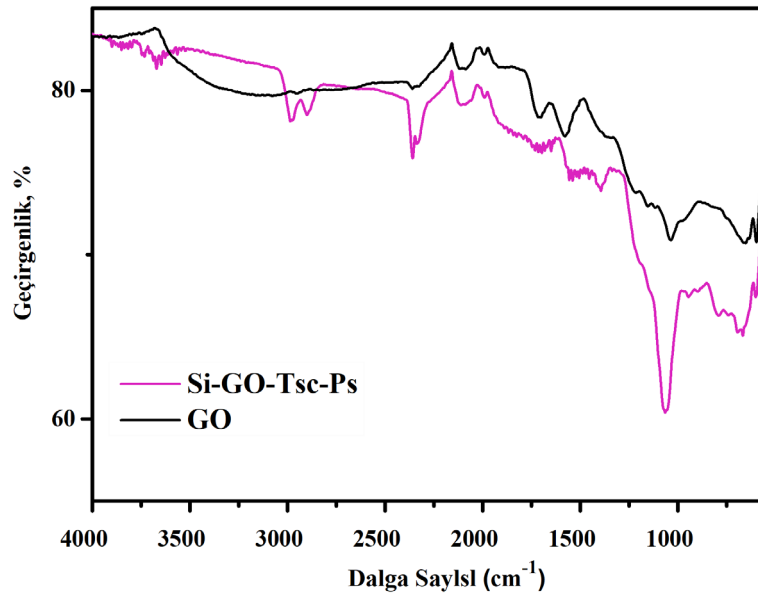
Şekil 5. 3. SiGO-Pgly-Thc hibrit nanokompozite ait FT-IR spektrumları.

SiGO-mTsc-Ps hibrit nanokompozite ait hidroksil $\nu(\text{OH})$, karboksil $\nu(\text{C}=\text{O})$ ve aromatik $\nu(\text{C}=\text{C})$ gerilme titreşimleri sırasıyla 3672 cm^{-1} , 1707 cm^{-1} ve 1546 cm^{-1} 'de belirlendi. Aromatik $\nu(\text{CH})$ gerilme titreşimi 2900 cm^{-1} 'de, $\nu(\text{NH})$ gerilme titreşimi 2987 cm^{-1} 'de, azometin $\nu(\text{CH}=\text{N})$ gerilme titreşimi 1647 cm^{-1} 'de ortaya çıktı. $\nu(\text{Si-O-Si})$ gerilme titreşimi 1054 cm^{-1} 'de gözlemlendi [55]. $\nu(\text{C}=\text{S})$ gerilme titreşime ait pik 967 cm^{-1} 'de ortaya çıktı [56].



Şekil 5. 4. SiGO-mTsc-Ps hibrit nanokompozite ait FT-IR spektrumları.

SiGO-Tsc-Ps hibrit nanokompozite ait hidroksil $\nu(\text{OH})$, karboksil $\nu(\text{C}=\text{O})$ ve aromatik $\nu(\text{C}=\text{C})$ gerilme titreşimleri sırasıyla 3672 cm^{-1} , 1698 cm^{-1} ve 1548 cm^{-1} 'de belirlendi. Aromatik $\nu(\text{CH})$ gerilme titreşimi 2901 cm^{-1} 'de, $\nu(\text{NH})$ gerilme titreşimi 2986 cm^{-1} 'de, azometin $\nu(\text{CH}=\text{N})$ gerilme titreşimi 1650 cm^{-1} 'de ortaya çıktı. $\nu(\text{Si-O-Si})$ gerilme titreşimi 1066 cm^{-1} 'de gözlemlendi. $\nu(\text{C}=\text{S})$ gerilme titreşime ait pik 800 cm^{-1} 'de ortaya çıktı [56].

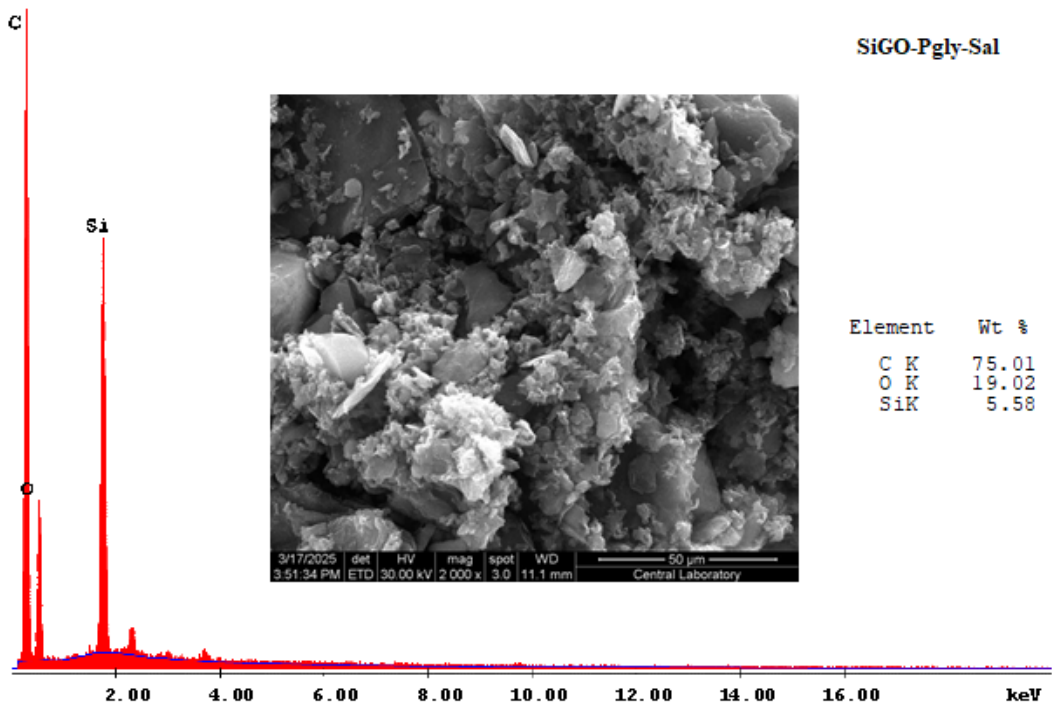


Şekil 5. 5. SiGO-Tsc-Ps hibrit nanokompozite ait FT-IR spektrumları.

5.1.3. Hibrit Nanokompozitlerin SEM-EDX Analizleri

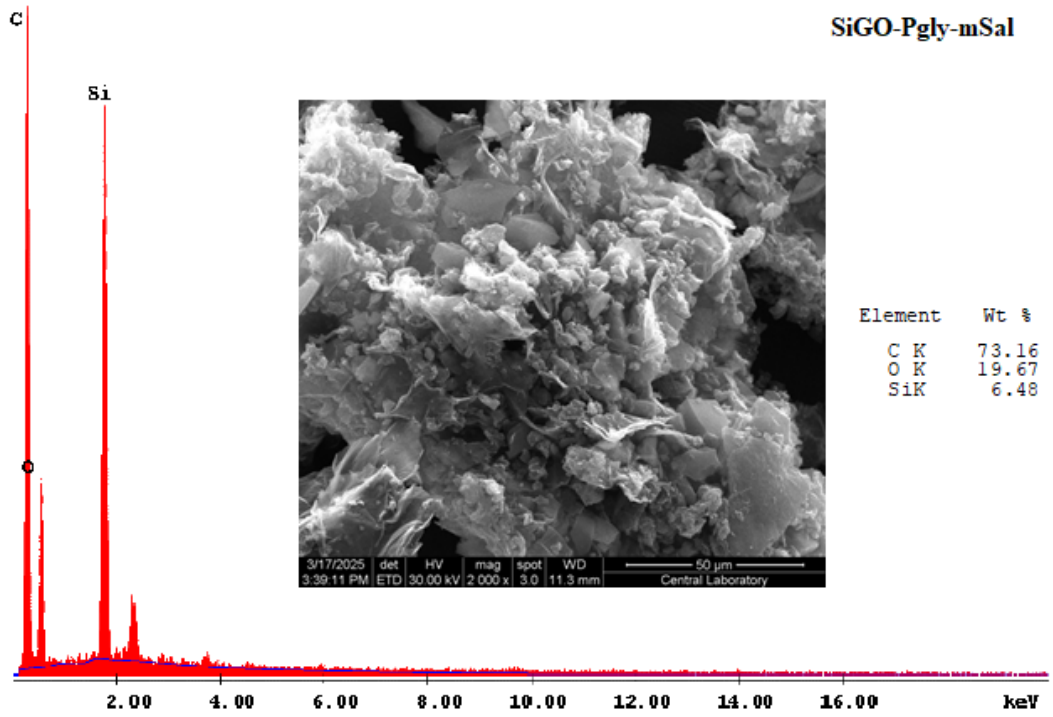
SEM görüntüleri ile, GO yüzeyindeki fonksiyonel gruplar ile polimerik yapıların etkileşime girmesi ile oluşan silan modifiyeli grafen oksit / polimer hibrit nanokompozitlerin (SiGO-Pgly-Sal, SiGO-Pgly-mSal, SiGO-Pgly-Thc, SiGO-mTsc-Ps, SiGO-Tsc-Ps) morfolojileri hakkında bilgi edinildi. EDX analiz verileri ile, hibrit nanokompozitlerin kimyasal yapıları belirlendi.

SiGO-Pgly-Sal hibrit nanokompozitin, SEM görüntüsünden küçük boyutlu kıvrımlı buruşuk katmanlı bir yapıya sahip olduğu ve EDX analizinden C, N, O, Si elementlerini içerdiği görüldü.



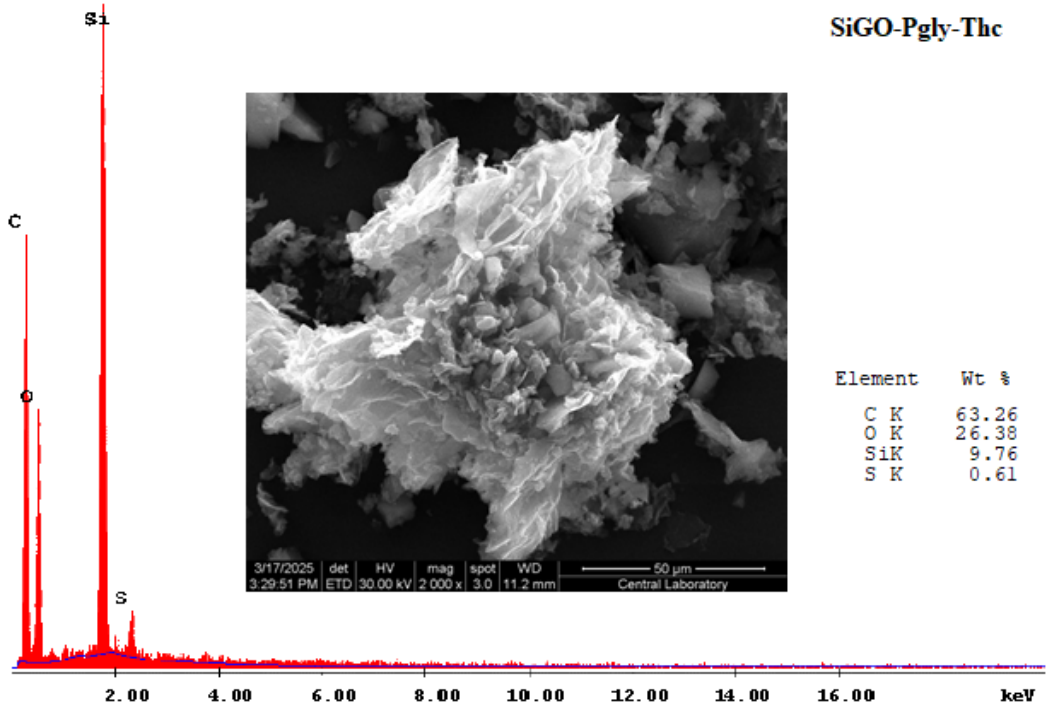
Şekil 5. 6. SiGO-Pgly-Sal hibrit nanokompozite ait SEM-EDX analizi.

SiGO-Pgly-mSal hibrit nanokompozitin, SEM görüntüsünden küçük boyutlu kıvrımlı tabakalı pul yapıya sahip olduğu ve EDX analizinden C, N, O, Si elementlerini içerdiği görüldü.



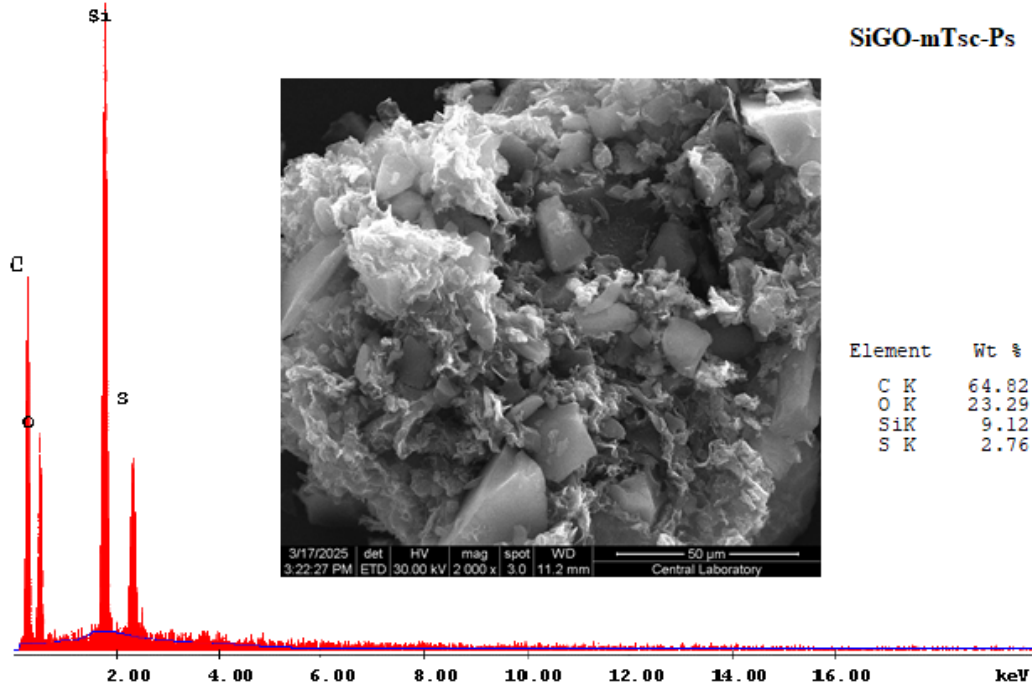
Şekil 5. 7. SiGO-mPgly-Sal hibrit nanokompozite ait SEM-EDX analizi.

SiGO-Pgly-Thc hibrit nanokompozitin, SEM görüntüsünden küçük boyutlu kristal tabakalı bir yapıya sahip olduğu ve EDX analizinden C, N, O, S, Si elementlerini içerdiği görüldü.



Şekil 5. 8. SiGO-Pgly-Thc hibrit nanokompozite ait SEM-EDX analizi.

SiGO-mTsc-Ps hibrit nanokompozitin, SEM görüntüsünden küçük boyutlu kıvrımlı katmanlı kristal bir yapıya sahip olduğu ve EDX analizinden C, N, O, S, Si elementlerini içerdiği görüldü.

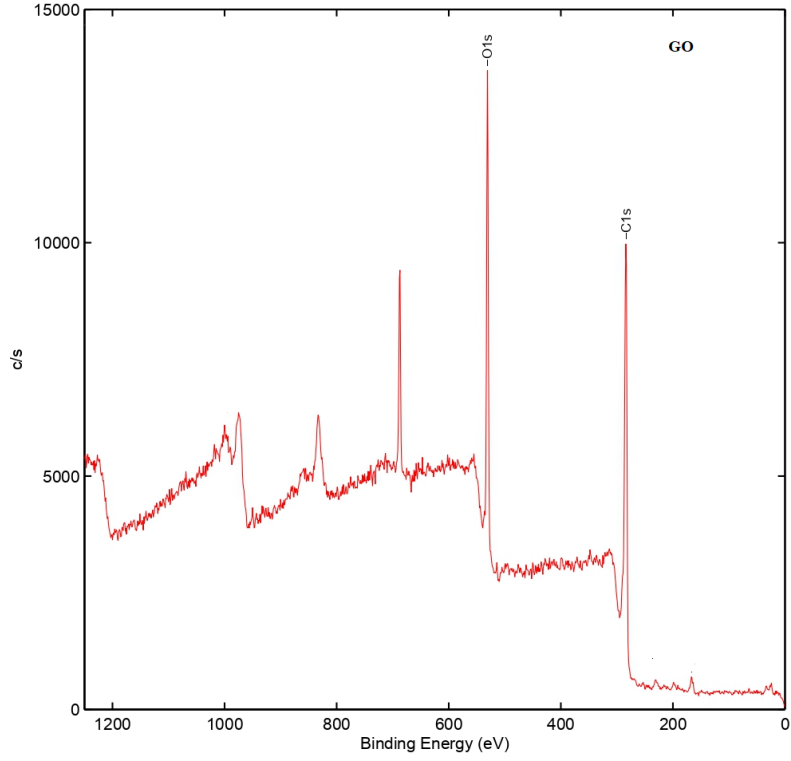


Şekil 5. 9. SiGO-mTsc-Ps hibrit nanokompozite ait SEM-EDX analizi.

5.1.4. Hibrit Nanokompozitlerin XPS Spektrumları

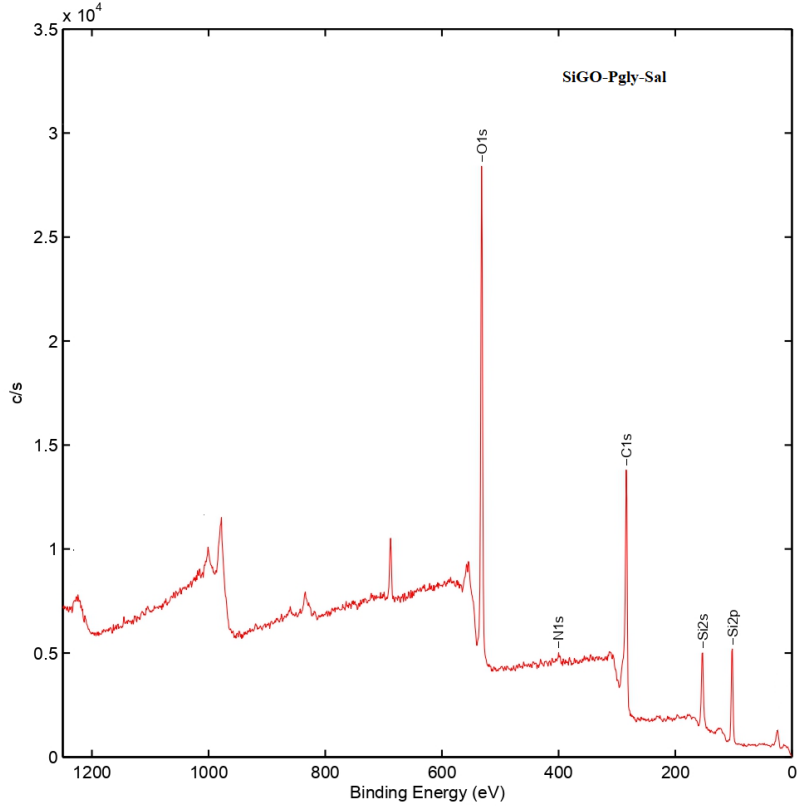
XPS analizi ile, silan modifiyeli grafen oksit / polimer hibrit nanokompozitlerin (SiGO-Pgly-Sal, SiGO-Pgly-mSal, SiGO-Pgly-Thc, SiGO-mTsc-Ps, SiGO-Tsc-Ps) elektronik özellikleri incelendi. Hibrit nanokompozitlerin kalitatif analizi hakkında bilgi edinildi. GO yüzeyindeki fonksiyonel gruplara polimerik tiyosemikarbazonların bağlanması doğrulandı.

GO bileşiminin kimyasal bileşiminin, karakteristik bağlanma enerjilerine sahip karbon ve oksijen elementlerini içerdiği XPS spektrumu ile belirlendi. C1s ve O1s spektrumlarına ait keskin pikler sırasıyla 287.36 eV (C-C bağı) ve 534.68 eV'da (C-O bağı) gözlemlendi [49].



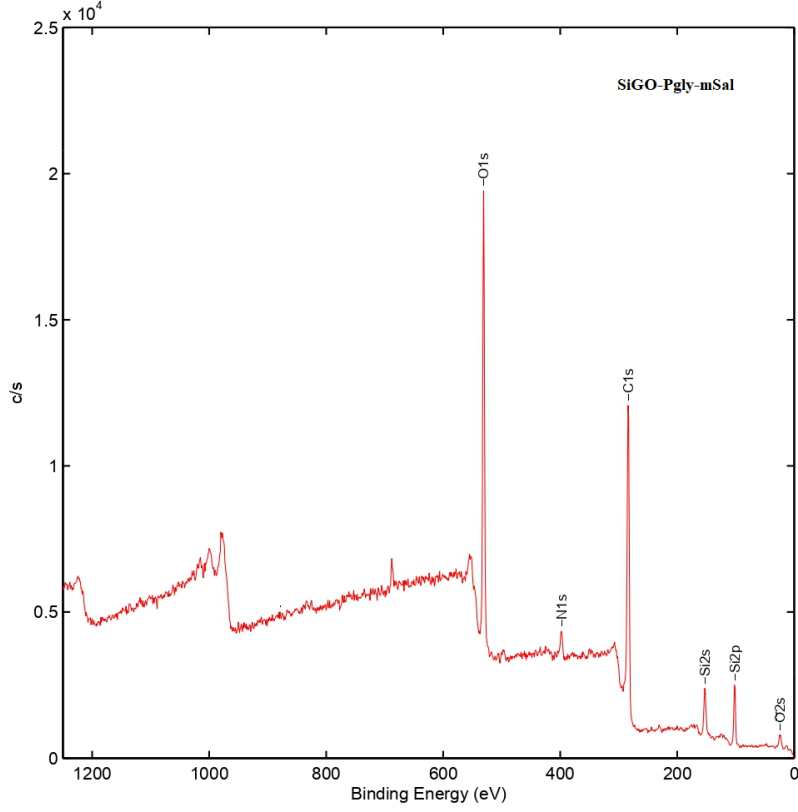
Şekil 5. 10. GO ait XPS spektrumu.

SiGO-Pgly-Sal hibrit nanokompozitin kimyasal bileşiminin, karakteristik bağlanma enerjilerine sahip karbon, oksijen, azot ve silisyum elementlerini içerdiği XPS spektrumu ile belirlendi. GO ile karşılaştırıldığında, SiGO-Pgly-Sal hibrit nanokompozitte; C1s ve O1s spektrumlarına ait keskin pikler sırasıyla 280.08 eV (C-N bağı) ve 541.76 eV'da (Si-O bağı) gözlemlendi. Si2s spektrumuna ait 105.36 eV ve 156.32 eV'da iki pik gözlemlendi. Bu durum GO'e silisyumun modifikasyonunu göstermektedir [49]. Ayrıca, N1s çekirdek seviyesi pikinin 400,01 eV'da gözlenmesi, azometin grubunun (-CH=N-) varlığını göstermektedir [57].



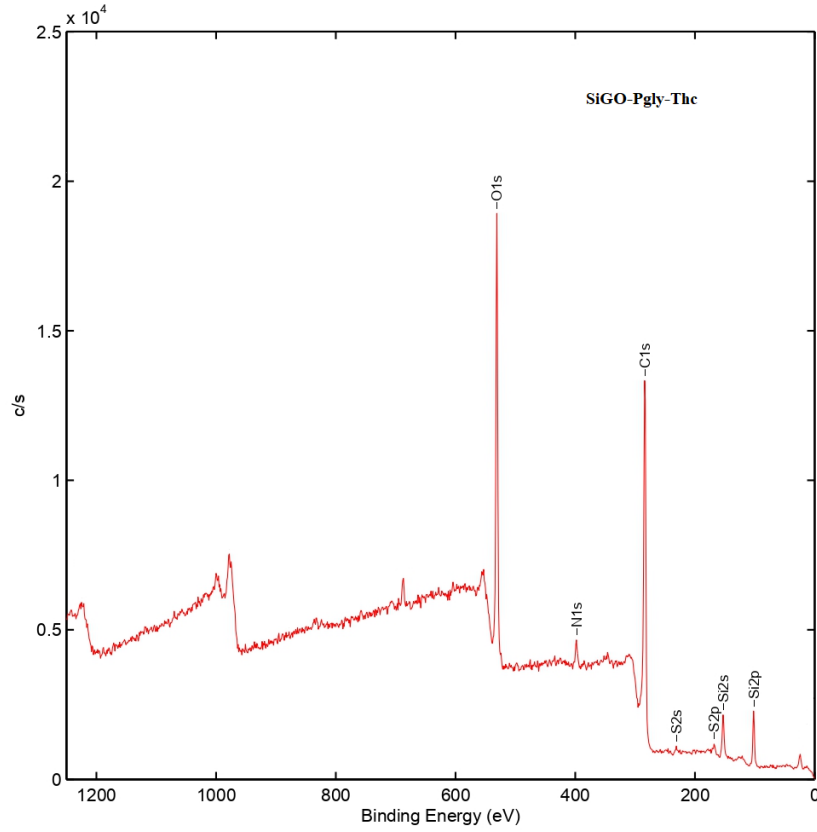
Şekil 5. 11. SiGO-Pgly-Sal hibrit nanokompozite ait XPS spektrumu.

SiGO-Pgly-mSal hibrit nanokompozitin kimyasal bileşiminin, karakteristik bağlanma enerjilerine sahip karbon, oksijen, azot ve silisyum elementlerini içerdiği XPS spektrumu ile belirlendi. GO ile karşılaştırıldığında, SiGO-Pgly-mSal hibrit nanokompozitte; C1s ve O1s spektrumlarına ait keskin pikler sırasıyla 283.72 eV (C-N bağı) ve 538.12 eV'da (Si-O bağı) gözlemlendi. Si2s spektrumuna ait 105.16 eV ve 163.36 eV'da iki pik gözlemlendi. Bu durum GO'ye silisyumun modifikasyonunu göstermektedir [49]. Ayrıca, N1s çekirdek seviyesi pikinin 400,00 eV'da gözlenmesi, azometin grubunun (-CH=N-) varlığını göstermektedir [57].



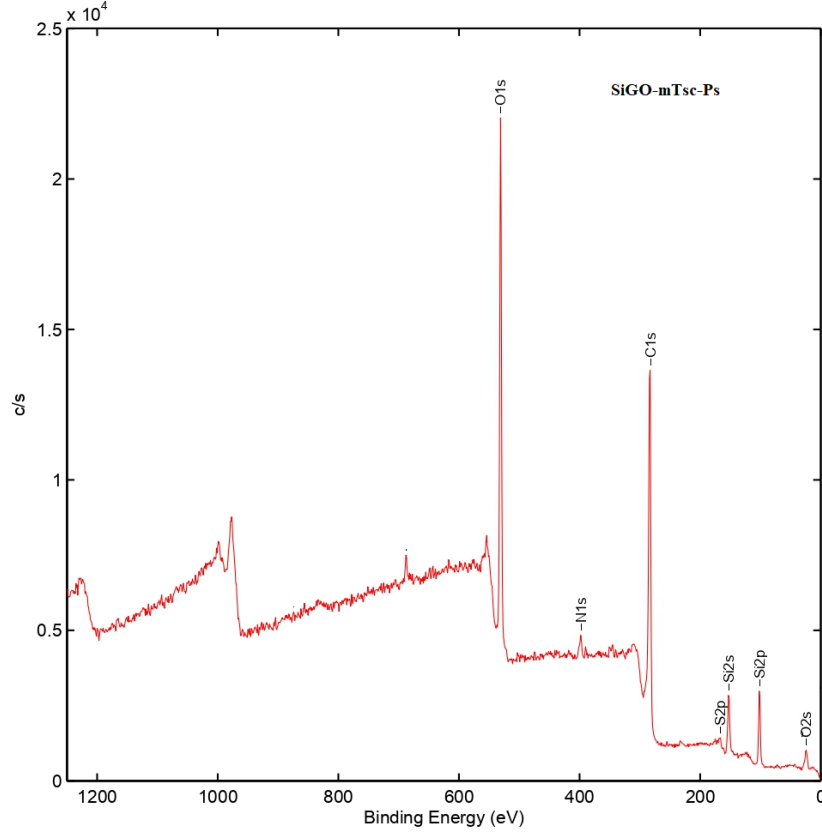
Şekil 5. 12. SiGO-Pgly-mSal hibrit nanokompozite ait XPS spektrumu.

SiGO-Pgly-Thc hibrit nanokompozitin kimyasal bileşiminin, karakteristik bağlanma enerjilerine sahip karbon, oksijen, azot, kükürt ve silisyum elementlerini içerdiği XPS spektrumu ile belirlendi. GO ile karşılaştırıldığında, SiGO-Pgly-Thc hibrit nanokompozitte; C1s ve O1s spektrumlarına ait keskin pikler sırasıyla 283.02 eV (C-N bağı) ve 538.07 eV'da (Si-O bağı) gözlemlendi. Si2s spektrumuna ait 105.36 eV ve 155.59 eV'da iki pik gözlemlendi. Bu durum GO'ye silisyumun modifikasyonunu göstermektedir [49]. Ayrıca, N1s çekirdek seviyesi pikinin 399.37 eV'da gözlenmesi, azometin grubunun (-CH=N-) varlığını göstermektedir [57]. C-S bağına atfedilen S2s spektrumuna ait pikler ise 171.01 eV ve 230.76 eV'da ortaya çıktı [50].



Şekil 5. 13. SiGO-Pgly-Thc hibrit nanokompozite ait XPS spektrumu.

SiGO-mTsc-Ps hibrit nanokompozitin kimyasal bileşiminin, karakteristik bağlanma enerjilerine sahip karbon, oksijen, azot, kükürt ve silisyum elementlerini içerdiği XPS spektrumu ile belirlendi. GO ile karşılaştırıldığında, SiGO-mTsc-Ps hibrit nanokompozitte; C1s ve O1s spektrumlarına ait keskin pikler sırasıyla 285.91 eV (C-N bağı) ve 541.76 eV'da (Si-O bağı) gözlemlendi [49]. Si2s spektrumuna ait 105.36 eV ve 156.32 eV'da iki pik gözlemlendi. Bu durum GO'e silisyumun modifikasyonunu göstermektedir [49]. Ayrıca, N1s çekirdek seviyesi pikinin 399.27 eV'da gözlemlenmesi, azometin grubunun (-CH=N-) varlığını göstermektedir [57]. S2s spektrumuna ait pik ise 170.68 eV'da (C=S bağı) ortaya çıktı [50].



Şekil 5. 14. SiGO-mTsc-Ps hibrit nanokompozite ait XPS spektrumu.

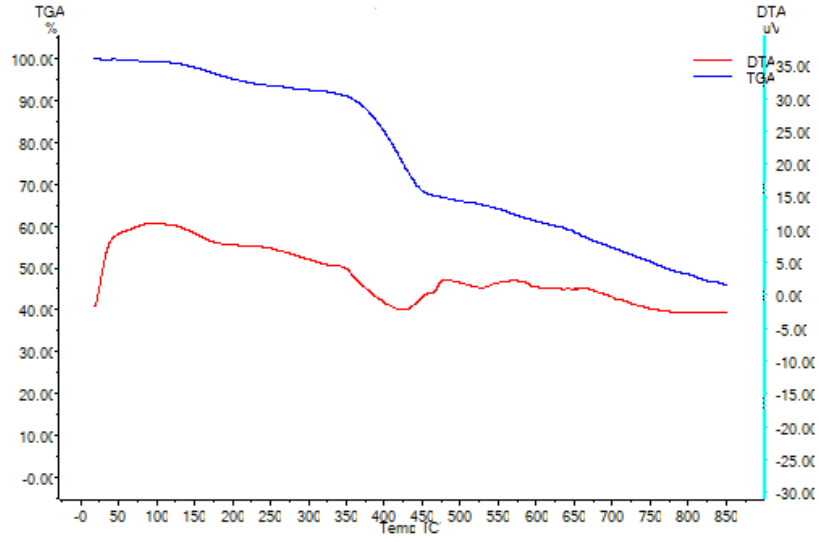
5.1.5. Hibrit Nanokompozitlerin TG-DTA Analizi

Yeni silan modifiyeli grafen oksit / polimer hibrit nanokompozitin (SiGO-mTsc-Ps) TG-DTA analiz verileri Çizelge 5.3’de sunuldu.

Çizelge 5. 3. Hibrit nanokompozite ait TG-DTA analiz verileri.

Sembol	Adım	T_i (°C)	T_s (°C)	Kalan kütle 800 °C’de (wt %)
SiGO-Tsc-Ps	1.	143,46	271,34	94,85
	2.	338,89	528,69	73,44

SiGO-Tsc-Ps hibrit nanokompozite ait, termal bozunma eğrisi bileşiminin %73.44 kütle kaybı ile iki adımda ayrıştığını gösterdi. İlk adım başlangıç (T_i) ve son bozunma sıcaklık (T_s) değerleri sırasıyla 143.46 °C ve 271.34 °C olarak, ikinci adım başlangıç (T_i) ve son bozunma sıcaklık (T_s) değerleri sırasıyla 338.89 °C ve 528.69 °C olarak belirlendi. Yüksek ayrışma sıcaklıkları SiGO-Tsc-Ps hibrit nanokompozitin termal olarak kararlı olduğunu gösterdi.



Şekil 5. 15. SiGO-Tsc-Ps hibrit nanokompozite ait TG-DTA eğrisi.

6. SONUÇLAR VE ÖNERİLER

Lisansüstü tez çalışması kapsamında, grafen oksit, 3-kloropropil-fonksiyonelleştirilmiş silika jel, poli(propilen glikol)bis(2-aminopropil eter) / 4-formil-3-metoksifenoksimetil)polistiren ve salisilaldehit / 5-metilsalisilaldehit / tiyosemikarbazit / 4-metil-3-tiyosemikarbazitin reaksiyonu sonucu 5 (beş) adet yeni silan ile fonksiyonelleştirilmiş grafen oksit / polimer hibrit nanokompozit (SiGO-Pgly-Sal, SiGO-Pgly-mSal, SiGO-Pgly-Thc, SiGO-mTsc-Ps, SiGO-Tsc-Ps) elde edildi.

Sentezlenen yeni silan modifiyeli grafen oksit / polimer hibrit nanokompozitlerin yapısı element analizi, fourier dönüşümlü kızılötesi spektroskopisi, jel geçirgenlik kromatografisi, taramalı elektron mikroskobu-enerji dağılımlı X-ışını spektroskopisi, X-ışını fotoelektron spektrometresi ve termogravimetrik ve diferansiyel termal analizi kullanılarak karakterize edildi.

Grafen oksit bazlı polimer nanokompozitler elektrokimyasal, mekanik, termal, biyolojik ve farmakolojik özellikleri sebebiyle potansiyel uygulama alanlarına (biyomedikal, biyosensör, inşaat, havacılık, enerji...) sahip olan ilgi çekici malzemelerdir.

Bu amaçla, tez çalışması kapsamında sentezlenen yeni silan modifiyeli grafen oksit / polimer hibrit nanokompozitlerin çeşitli analitlerin tayini için potansiyel elektrokimyasal biyosensörler olarak kullanılabilirliklerinin araştırılması planlanmıştır.

Yanı sıra, potansiyel antimikrobiyal ajanlar olarak yeni silan modifiyeli grafen oksit / polimer hibrit nanokompozitlerin çeşitli patojenlere karşı antibakteriyel ve antifungal özelliklerinin incelenmesi planlanmıştır.

7. KAYNAKLAR

- [1] K. S. Novoselov, A. K. Geim, S. V. Morozov, D. Jiang, Y. Zhang, S. V. Dubonos, ... & A. A. Firsov, "Electric field effect in atomically thin carbon films", *Science (1979)*, c. 306, sayı 5696, ss. 666-669, 2004.
- [2] A. D. Oliveira, & C. A. G. Beatrice, Polymer nanocomposites with different types of nanofiller, S. Sivasankaran (Editör), *Nanocomposites-Recent Evolutions*. London, United Kingdom, IntechOpen 2019, ss 103-144, 2019.
- [3] İ. Tiyek, U. Dönmez, B. Yıldırım, M. H. Alma, M. S. Ersoy, Ş. Karataş, M. Yazıcı, "Kimyasal yöntem ile indirgenmiş grafen oksit sentezi ve karakterizasyonu", *SAÜ Fen Bil. Der.* c. 20, sayı 2, ss 349-357, 2016.
- [4] A. N. Ghulam, O. A. L. Dos Santos, L. Hazeem, B. P. Backx, M. Bououdina, & S. Bellucci, "Graphene oxide (GO) materials-applications and toxicity on living organisms and environment", *Journal of Fonctional Biomaterials*, c. 13, sayı 77, 2022.
- [5] D. Hua, R. K. Rai, Y. Zhang, & T. S. Chung, "Aldehyde functionalized graphene oxide frameworks as robust membrane materials for pervaporative alcohol dehydration", *Chem Eng Sci*, c. 161, ss. 341-349, 2017.
- [6] M. Devasena, & S. Nandhini, "Review on graphene oxide composites", *Journals Pub*, c. 2, sayı 1, 2016.
- [7] N. A. Zulkefli, R. Mustapha, S. M. Jusoh, C. M. R. Ghazali, M. Awang, M. N. F. Norrahim, & R. A. Ilyas, "Hybrid nanofiller reinforcement in thermoset and biothermoset applications: A review", *De Gruyter*, 2023.
- [8] K. I. Winey, & R. Vaia, "Polymer Nanocomposites" *Mrs Bulletin*, c. 32, ss. 314-322, 2007.
- [9] Y. Chang, S. T. Yang, J. H. Liu, E. Dong, Y. Wang, A. Cao, ... & H. Wang, "In vitro toxicity evaluation of graphene oxide on A549 cells", *Toxicol Letters*, c. 200, sayı 3, ss. 201-210, 2011.
- [10] S. Priyadarsini, S. Mohanty, S. Mukherjee, S. Basu, & M. Mishra, "Graphene and

graphene oxide as nanomaterials for medicine and biology application”, *Journal of Nanostructure in Chemistry*, c. 8, ss. 123-137, 2018.

- [11] J. Phiri, P. Gane, & T. C. Maloney, “General overview of graphene: Production, properties and application in polymer composites”, *Materials Science and Engineering B: Advanced Functional Solid-State Materials*, c. 215, ss. 9-28, 2017.
- [12] Ç. O. Nurcihan, “Grafen oksit, silan modiyeli grafen oksit ve tio2 katkılı polikaprolakton ve kitosan nanokompozitlerinin yiyecek ambalajında kullanımı”, Yüksek Lisans Tezi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Gazi Üniversitesi, Ankara, Türkiye, 2022.
- [13] A. Dural Erem, & G. Özcan, “Polimer esasli nanokompozitler ve tekstil uygulamaları”, *Tekstil ve Muhendis*, c. 20, sy 89, ss. 36-47, 2013.
- [14] F. Şen, H. Palancıoğlu, & K. Aldaş, “Polimerik nanokompozitler ve kullanım alanları”, *Makine Teknolojileri Elektronik Dergisi*, c. 7, sayı 1, 2010.
- [15] Y. Dzenis, “Structural nanocomposites”, *Science*, c. 319, ss. 419-420, 2008.
- [16] A. P. Kumar, D. Depan, N. S. Tomer, & R. P. Singh, “Nanoscale particles for polymer degradation and stabilization-Trends and future perspectives”, *Progress in Polymer Science*, c. 34, ss. 479-515, 2009.
- [17] S. Fu, Z. Sun, P. Huang, Y. Li, & N. Hu, “Some basic aspects of polymer nanocomposites: A critical review”, *Nano Materials Science*, c. 1, sy 1, ss. 2-30, 2019.
- [18] F. Orman & A. Altinten, “Sıcaklık kontrolü ile polistiren/kil nanokompozit sentezi ve karakterizasyonu”, *Journal of the Faculty of Engineering and Architecture of Gazi University*, c. 32, sayı 2, ss. 303-312, 2017.
- [19] S. Li, M. M. Lin, M. S. Toprak, D. K. Kim, & M. Muhammed, “Nanocomposites of polymer and inorganic nanoparticles for optical and magnetic applications”, *Nano Reviews*, c. 1, sayı 1, ss. 5214, 2010.
- [20] F. Şener, “Metalosen Poliolefinlerle Polimer Nanokompozit Eldesi”, Yüksek lisans tezi, Fen Bilimleri Enstitüsü, İstanbul Teknik Üniversitesi, İstanbul, Türkiye, 2009.
- [21] N. Eser, “Bazı halloysit-polimer nanokompozitlerin hazırlanması ve

- karakterizasyonu”, Yüksek lisans tezi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Ankara Üniversitesi, Ankara, Türkiye, 2010.
- [22] T. Z. Yurdağül, “Poliinden/poli(oksümetilen) iletken karışımlarının hazırlanması ve özelliklerinin incelenmesi”, Yüksek lisans tezi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Gazi Üniversitesi, Ankara, Türkiye, 2007.
- [23] S. J. Lee, S. J. Yoon, & I. Y. Jeon, “Graphene/polymer nanocomposites: preparation, mechanical properties, and application”, *Polymers*, c.14, sayı 4733, 2022.
- [24] M. Akın, “Grafen tabanlı alan etkili transistörler”, Yüksek lisans tezi, Elektrik-Elektronik Mühendisliği Anabilim Dalı, Fen Bilimleri Enstitüsü, Necmettin Erbakan Üniversitesi, Konya, Türkiye, 2021.
- [25] İ. B. Ateş, “Grafen ve grafen benzeri iki boyutlu dırac malzemelerinde elektronların elektrostatik ve manyetik hapsi”, Yüksek lisans tezi, Fizik Anabilim Dalı, Fen Bilimleri Enstitüsü, Ankara Üniversitesi, Ankara, Türkiye, 2023.
- [26] A. Özkan, “Grafen oksit ve indirgenmiş grafen oksit katkılı biyopolimer nanokompozitlerin ekstrüzyon yöntemi ile hazırlanması ve karakterizasyonu”, Yüksek lisans tezi, Metalurji ve Malzeme Mühendisliği Anabilim Dalı, Malzeme Programı, Fen Bilimleri Enstitüsü, Yıldız Teknik Üniversitesi, İstanbul, Türkiye, 2024.
- [27] E. P. Randviir, D. A. C. Brownson, & C. E. Banks, “A decade of graphene research: Production, applications and outlook”, *Materials Today*, c. 17, sayı 9, 2014.
- [28] O. Hasret, “Katkılı grafen ve grafen oksit kaplanan alüminyum yüzeylerin mekanik davranışları”, Yüksek lisans tezi, Enerji Bilimi ve Teknolojileri Anabilim Dalı, Fen Bilimleri Enstitüsü, Niğde Ömer Halisdemir Üniversitesi, Niğde, Türkiye, 2024.
- [29] M. Yazıcı, İ. Tiyek, M. S. Ersoy, M. H. Alma, U. Dönmez, B. Yıldırım, ... K. Yıldız, “Modifiye Hummers yöntemiyle grafen oksit (GO) sentezi ve karakterizasyonu”, *Gazi University Journal of Science*, c. 4, sayı 2, ss. 43-50, 2016.
- [30] Ş. Özcan, “Kimyasal yöntemlerle grafen ve grafen oksit üretimi ve li-hava pil uygulamaları”, Yüksek lisans tezi, Metalurji ve Malzeme Mühendisliği Anabilim Dalı, Fen Bilimleri Enstitüsü, Sakarya Üniversitesi, Sakarya, Türkiye, 2015.
- [31] M. Öksüz, “Grafitten sentezlenen grafen oksit üzerinden grafen iplik eldesi ve

karakterizasyonu”, Doktora tezi, Kimya Mühendisliği Anabilim Dalı, Fen Bilimleri Enstitüsü, Gebze Teknik Üniversitesi, Gebze, Türkiye, 2018.

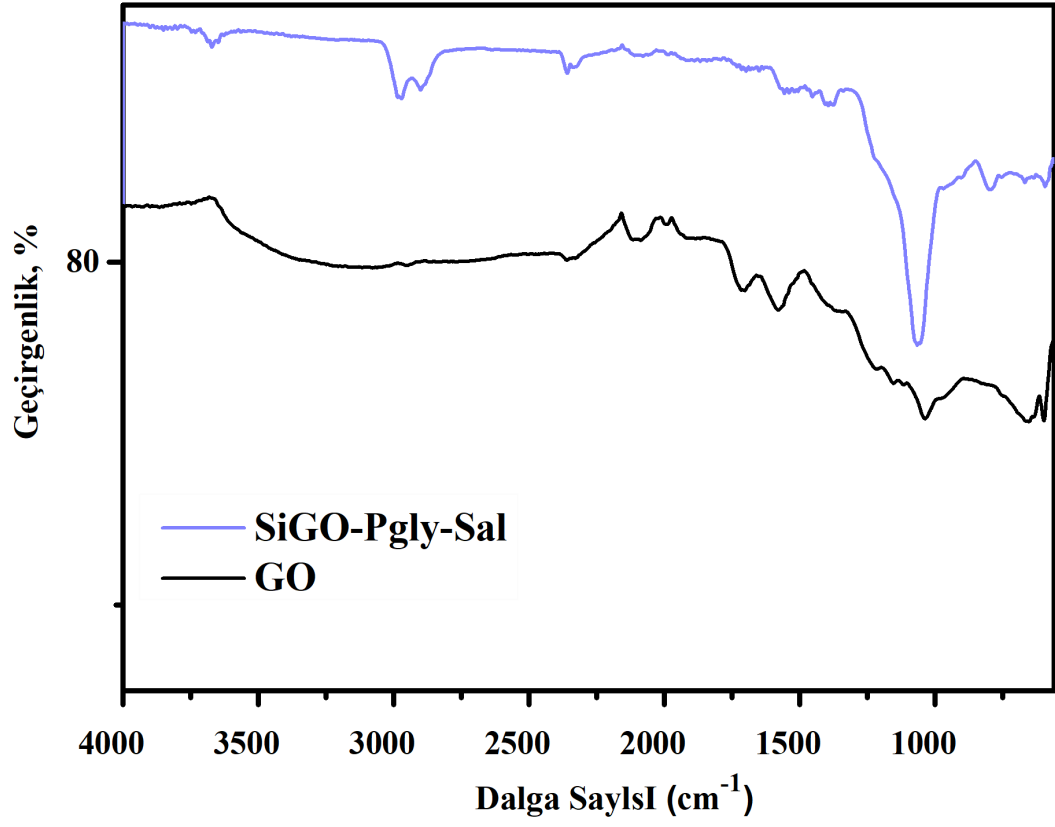
- [32] S. J. Firoozinezhad, M. H. M. Moghadam, M. H. Ghanian, M. K. Ashtiani, H. Alimadadi, H. Baharvand, ... & A. Scherberich, “Polycaprolactone-templated reduced-graphene oxide liquid crystal nanofibers towards biomedical applications”, *RSC Advances*, c. 7, sayı 63, ss. 39628-39634, 2017.
- [33] G. Çelikdağ, “Manyetik kobalt ferrit/grafen oksit ve kobalt/indirgenmiş grafen oksit nanokompozitlerinin sentezi yapısal tanımlamaları ve sulu çözeltilerden boyar madde gideriminde kullanılması”, Yüksek lisans tezi, Kimya Anabilim Dalı, Anorganik Anabilim Dalı, Fen Bilimleri Enstitüsü, Atatürk Üniversitesi, Erzurum, Türkiye, 2016.
- [34] S. C. Ray, “Application and Uses of Graphene Oxide and Reduced Graphene Oxide”, *Applications of Graphene and Graphene-Oxide Based Nanomaterials*, Elsevier, ss. 39-55, 2015.
- [35] S. Nandhini, & M. Devasena, “Review on Graphene Oxide Composites”, *International Journal of Nanomaterials and Nanostructures*, c. 2, sayı 1, 2016.
- [36] S. Samanta, S. Singh, & R. R. Sahoo, “Simultaneous chemical reduction and surface functionalization of graphene oxide for efficient lubrication of steel-steel contact”, *RSC Advances*, c. 5, sayı 76, ss. 61888-61899, 2015.
- [37] N. Çanga Oymak, “Grafen oksit, silan modiyeli grafen oksit ve TiO₂ katkılı polikaprolakton ve kitosan nanokompozitlerinin yiyecek ambalajında kullanımı”, Yüksek lisans tezi, Kimya Mühendisliği Anabilim Dalı, Fen Bilimleri Enstitüsü, Gazi Üniversitesi, Ankara, Türkiye, 2022.
- [38] A. Baruah, R. Newar, S. Das, N. Kalita, M. Nath, P. Ghosh, ... & M. Narayan, “Biomedical applications of graphene-based nanomaterials: recent progress, challenges, and prospects in highly sensitive biosensors”, *Discover Nano*, c. 19, sayı 103, 2024.
- [39] Y. Zhu, Y. Shi, Z. Huang, L. Duan, Y. Hu, & X. Gong, “Preparation of Schiff base decorated graphene oxide and its application in TPU with enhanced thermal stability”, *RSC Advances*, c. 6, sayı 93, ss. 90018-90023, 2016.
- [40] R. M. Ansari, & B. R. Bhat, “Copper (II) Schiff base-graphene oxide composite as an efficient catalyst for Suzuki-Miyaura reaction”, *Chemical Physics*, c. 517, ss. 155-160, 2019.

- [41] D. Hua, R. K. Rai, Y. Zhang, & T. S. Chung, “Aldehyde functionalized graphene oxide frameworks as robust membrane materials for pervaporative alcohol dehydration”, *Chemical Engineering Science*, c. 161, ss. 341-349, 2017.
- [42] Z. Wang, J. K. Nelson, H. Hillborg, S. Zhao, & L. S. Schadler, “Graphene oxide filled nanocomposite with novel electrical and dielectric properties”, *Advanced Materials*, c. 24, sayı 23, ss. 3134-3137, 2012.
- [43] N. A. Kumar, H. J. Choi, Y. R. Shin, D. W. Chang, L. Dai, & J. B. Baek, “Polyaniline-grafted reduced graphene oxide for efficient electrochemical supercapacitors”, *ACS Nano*, c. 6, sayı 2, ss. 1715-1723, 2012.
- [44] P. Pokharel, S. H. Lee, & D. S. Lee, “Thermal, mechanical, and electrical properties of graphene nanoplatelet/graphene oxide/polyurethane hybrid nanocomposite”, *Journal of Nanoscience and Nanotechnology*, c. 15, sayı 1, ss. 211-214, 2015.
- [45] S. Paszkiewicz, “Polymer hybrid nanocomposites containing carbon nanoparticles. In situ synthesis and physical properties”, Phd thesis, Institute of Materials Science and Engineering, West Pomeranian University of Technology in Szczecin, Szczecin, 2014.
- [46] S. Chatterjee, “Structural and Physical Effects of Carbon Nanofillers in Thermoplastic and Thermosetting Polymer Systems”, *Digital Comprehensive Summaries of Uppsala Dissertations from the Faculty of Science and Tehnology* 913, ss. xiv+96, Uppsala, 2012.
- [47] İ. R. Bayer, “Graphene Oxide-Reinforced Cementitious Concrete Composites That Incorporates Silica Fume And Fly Ash”, *Uluslararası Mühendislik Araştırma ve Geliştirme Dergisi*, c. 15, sayı 2, 2023.
- [48] K. Sreeja, & T. Naresh Kumar, “Effect of graphene oxide on fresh, hardened and mechanical properties of cement mortar”, *Materials Today: Proceedings*, c. 46, ss. 2235-2239, 2021.
- [49] A. Khazaei, R. Jahanshahi, S. Sobhani, J. Skibsted, & J. M. Sansano, “Immobilized piperazine on the surface of graphene oxide as a heterogeneous bifunctional acid-base catalyst for the multicomponent synthesis of 2-amino-3-cyano-4H-chromenes”, *Green Chemistry*, c. 22, sayı 14, ss. 4604-4616, 2020.
- [50] R. Sitko, M. Musielak, M. Serda, E. Talik, B. Zawisza, A. Gagor, & M. Malecka,

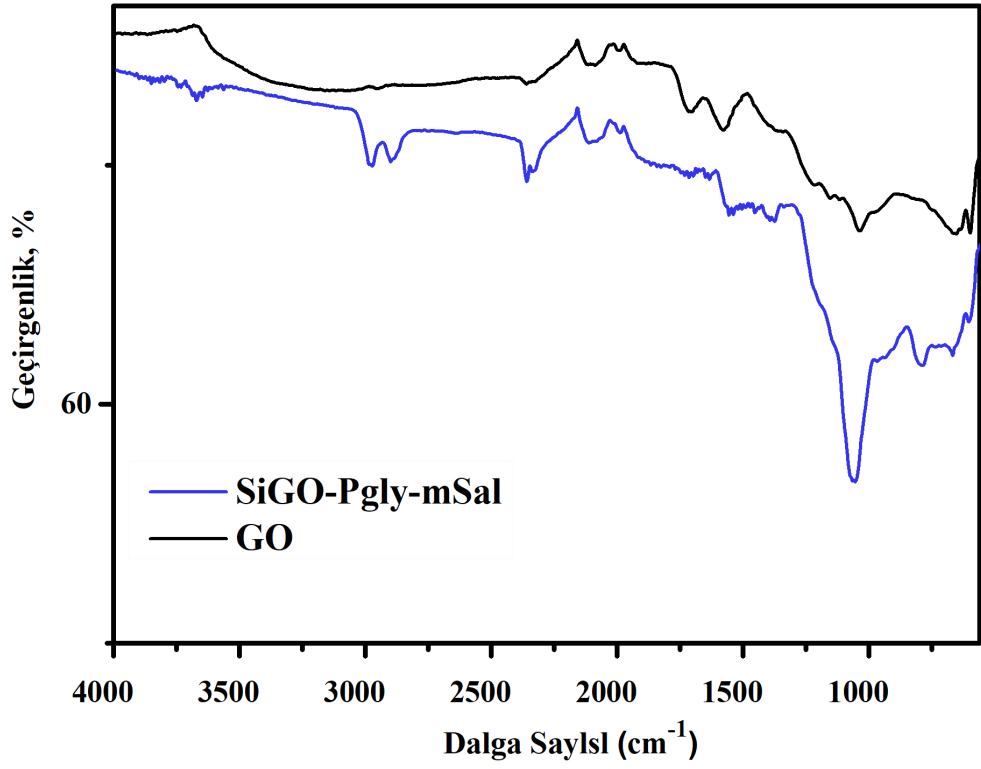
- “Thiosemicarbazide-grafted graphene oxide as superior adsorbent for highly efficient and selective removal of mercury ions from water”, *Separation and Purification Technology*, c. 254, 2021.
- [51] J. H. Lee, & S. H. Kim, “Fabrication of silane-grafted graphene oxide and its effect on the structural, thermal, mechanical, and hysteretic behavior of polyurethane”, *Scientific Reports*, c. 10, sayı 1, 2020.
- [52] C. Chen, S. Wei, B. Xiang, B. Wang, Y. Wang, Y. Liang, & Y. Yuan, “Synthesis of silane functionalized graphene oxide and its application in anti-corrosion waterborne polyurethane composite coatings”, *Coatings*, c. 9, sayı 9, 2019.
- [53] J. Huang, S. Ding, W. Xiao, Y. Peng, S. Deng, & N. Zhang, “3-Aminopropyl-triethoxysilane Functionalized Graphene Oxide: A Highly Efficient and Recyclable Catalyst for Knoevenagel Condensation”, *Catal Letters*, c. 145, sayı 4, ss. 1000-1007, 2015.
- [54] D. Köroğlu, “Silan Modifiyeli grafen oksit katkılı nanokompozit fiberlerin gıda ambalaj malzemesi olarak kullanılabilirliğinin incelenmesi”, Yüksek lisans tezi, Kimya Mühendisliği Anabilim Dalı, Fen Bilimleri Enstitüsü, Gazi Üniversitesi, Ankara, Türkiye, 2023.
- [55] M. S. Magossi, V. A. Maraldi, M. S. Magossi, N. L. D. Filho, & D. R. Carmo, “Silica gel functionalized with 4-amino-5-(4pyridyl)-4h-1,2,4-triazole-3-thiol and their use as a copper sorbent and electromediator for voltammetric detection of ascorbic acid”, *Electroanalysis*, c. 30, sayı 11, ss. 2660-2667, 2018.
- [56] A. A. Aly, E. M. Abdallah, S. A. Ahmed, M. K. Awad, M. M. Rabee, S. M. Mostafa, & S. Bräse, “Metal complexes of new thiocarbohydrazones of Cu(I), Co(II), and Ni(II); identification by NMR, IR, mass, UV spectra, and DFT calculations”, *Journal of Sulfur Chemistry*, c. 44, sayı 3, ss. 282-303, 2023.
- [57] J. Bu, L. Yuan, N. Zhang, D. Liu, Y. Meng, & X. Peng, “High-efficiency adsorption of methylene blue dye from wastewater by a thiosemicarbazide functionalized graphene oxide composite”, *Diam Relat Mater*, c. 101, Oca. 2020.

8. EKLER

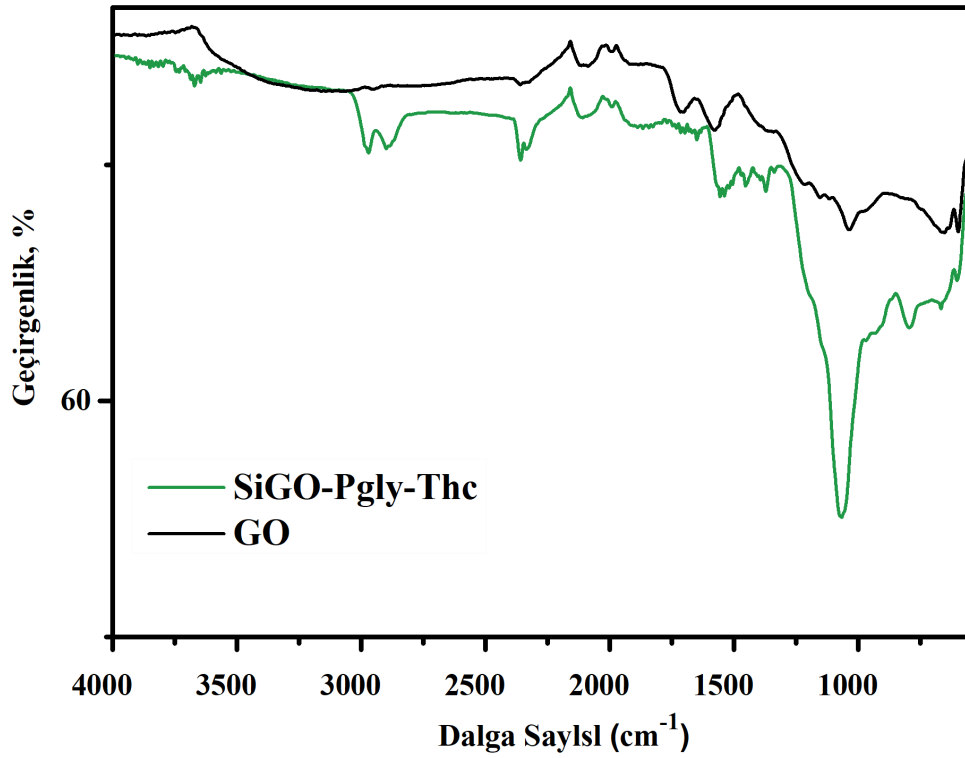
8.1. EK 1: HİBRİT NANOKOMPOZİTLERİN FT-IR SPEKTRUMLARI



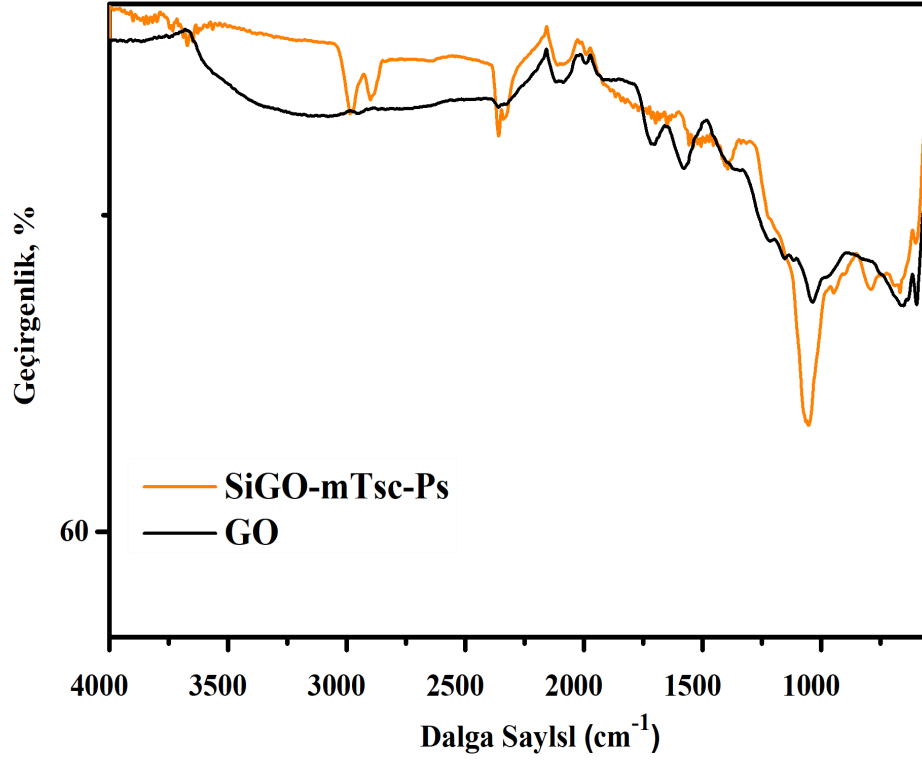
Şekil 8. 1. SiGO-Pgly-Sal hibrit nanokompozite ait FT-IR spektrumları.



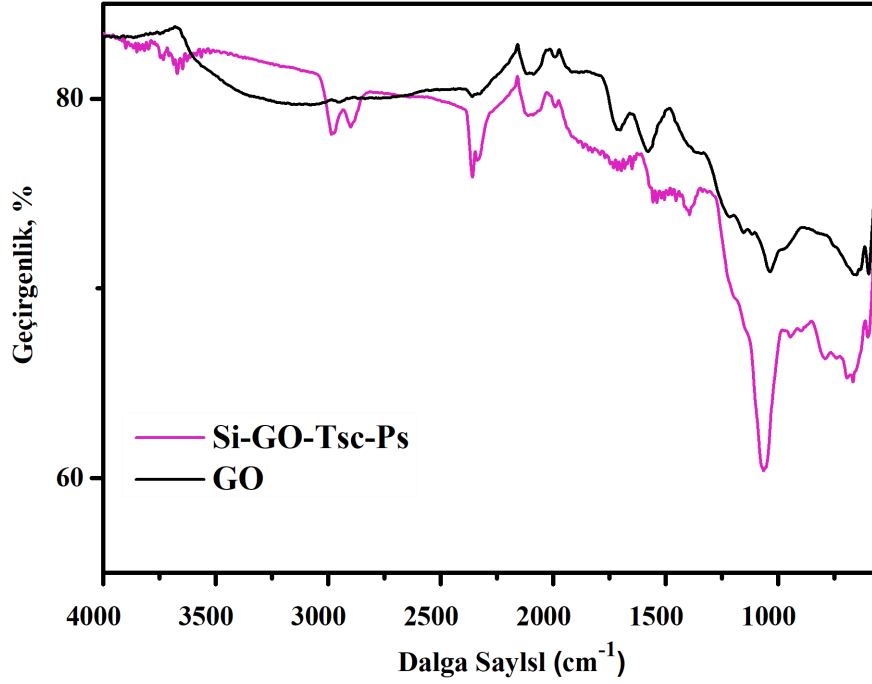
Şekil 8. 2. SiGO-Pgly-mSal hibrit nanokompozite ait FT-IR spektrumları.



Şekil 8. 3. SiGO-Pgly-The hibrit nanokompozite ait FT-IR spektrumları.

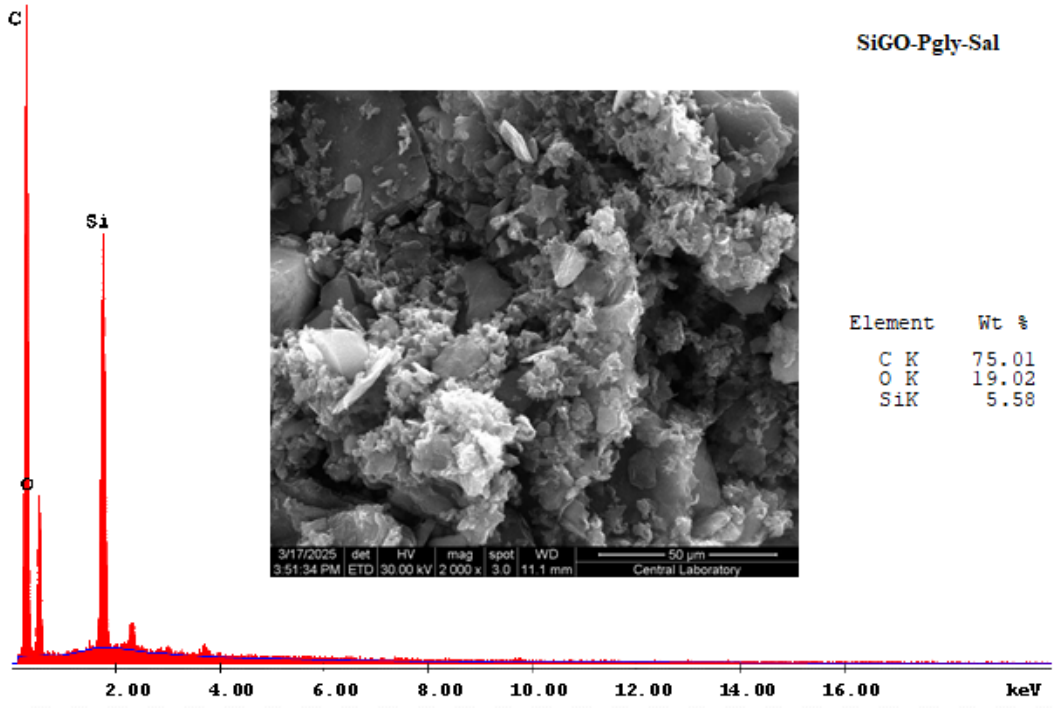


Şekil 8. 4. SiGO-mTsc-Ps hibrit nanokompozite ait FT-IR spektrumları.

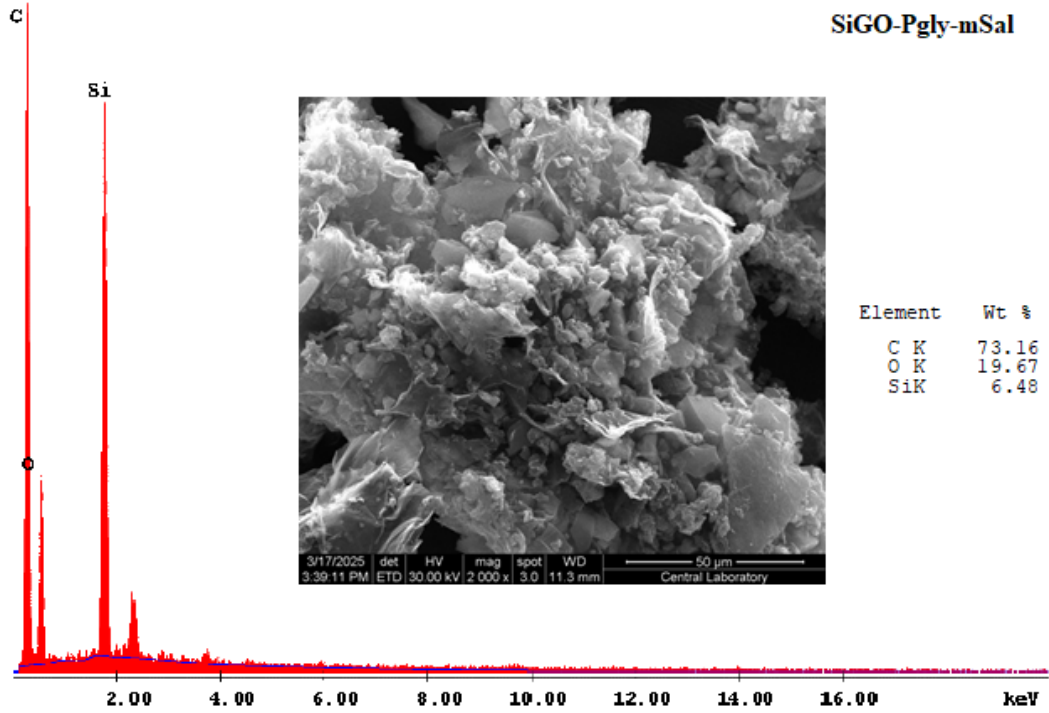


Şekil 8. 5. SiGO-Tsc-Ps hibrit nanokompozite ait FT-IR spektrumları.

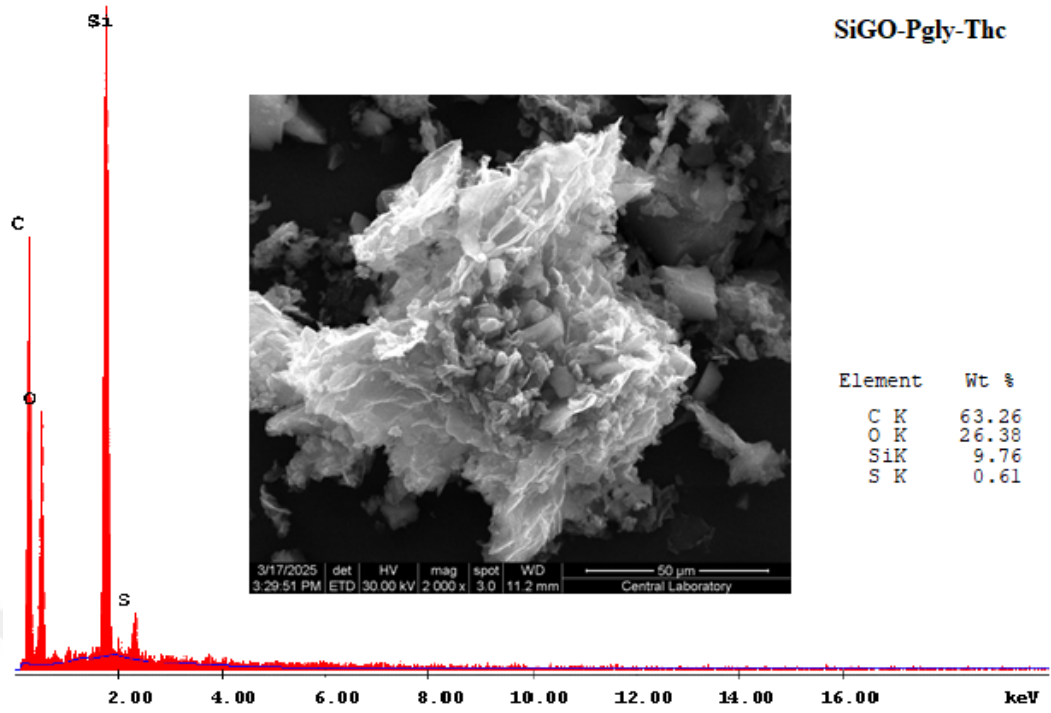
8.2. EK 2: HİBRİT NANOKOMPOZİTLERİN SEM-EDX ANALİZLERİ



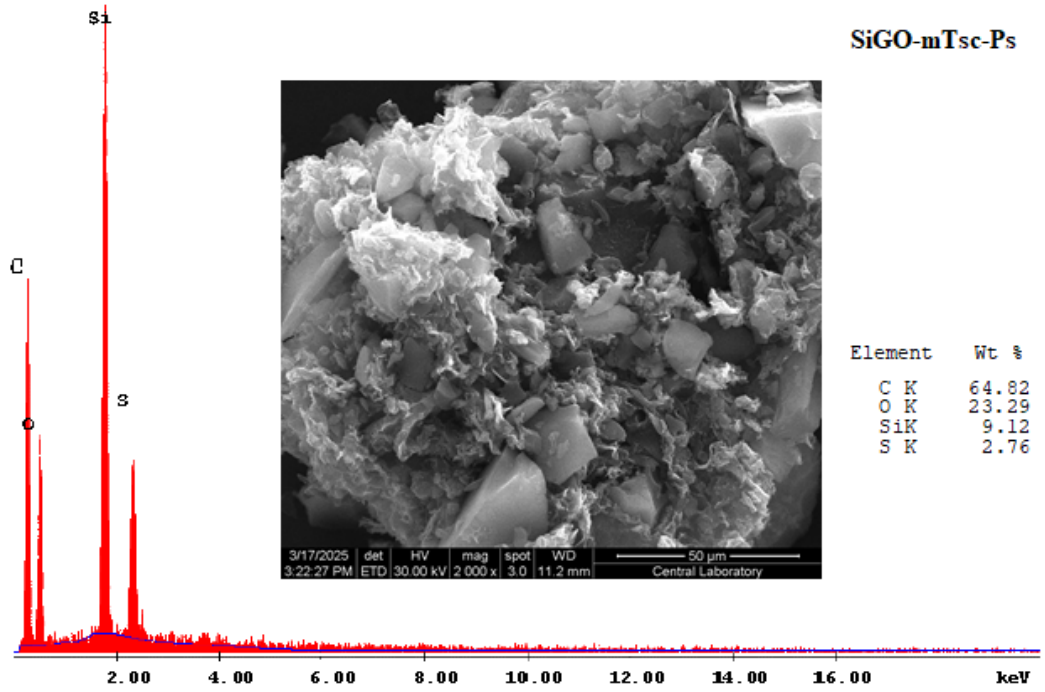
Şekil 8. 6. SiGO-Pgly-Sal hibrit nanokompozite ait SEM-EDX analizi.



Şekil 8. 7. SiGO-mPgly-Sal hibrit nanokompozite ait SEM-EDX analizi.

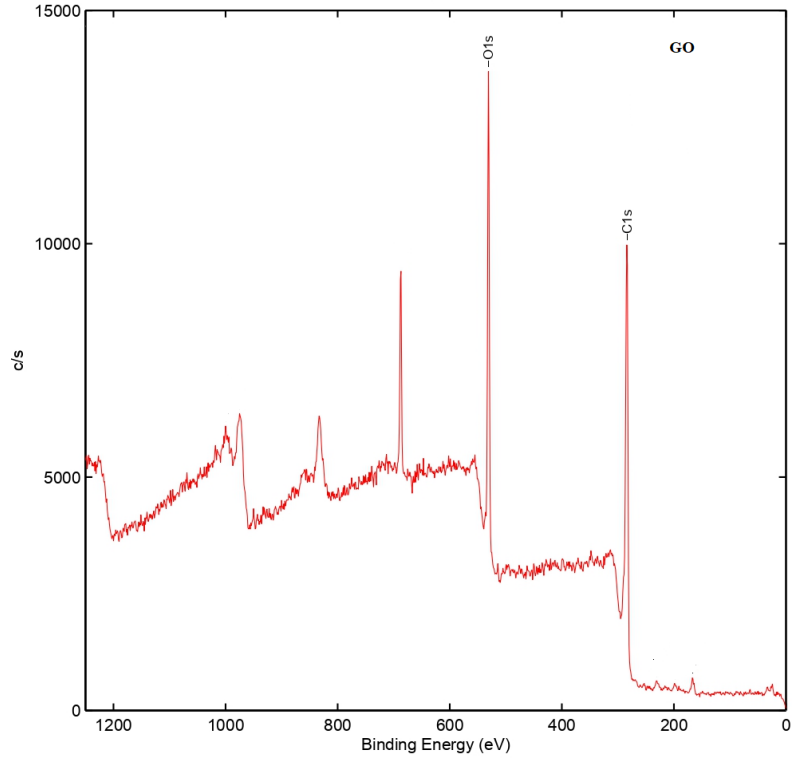


Şekil 8. 8. SiGO-Pgly-Thc hibrit nanokompozite ait SEM-EDX analizi.

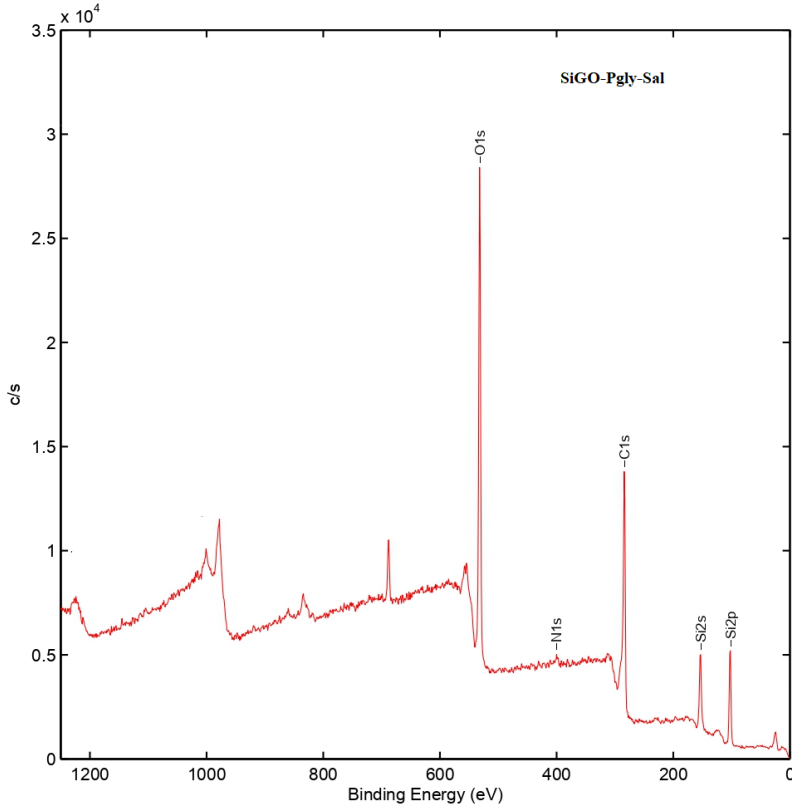


Şekil 8. 9. SiGO-mTsc-Ps hibrit nanokompozite ait SEM-EDX analizi.

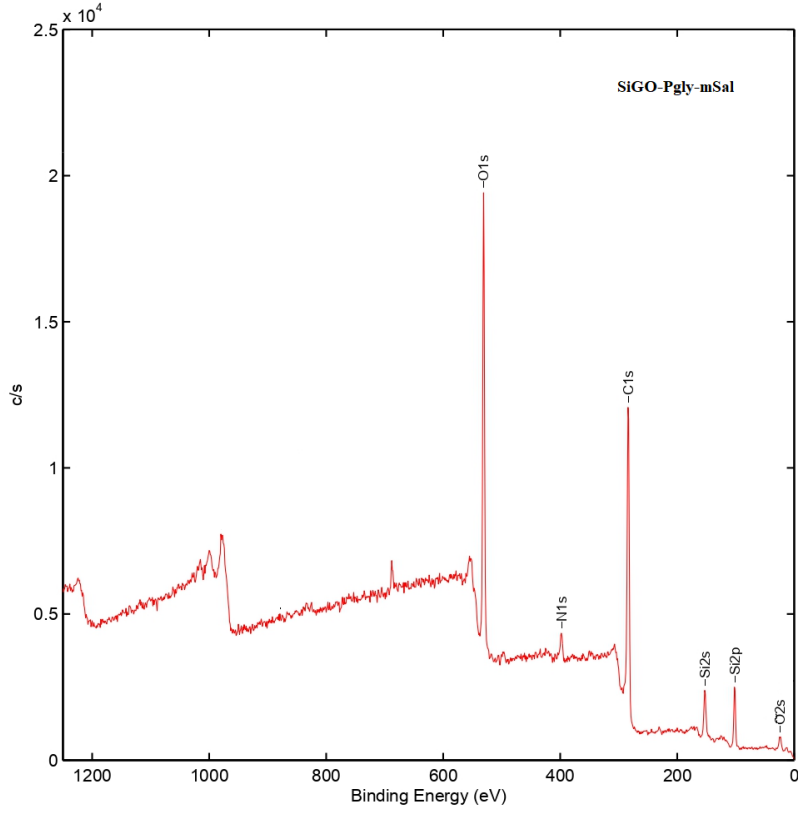
8.3. EK 3: HİBRİT NANOKOMPOZİTLERİN XRD SPEKTRUMLARI



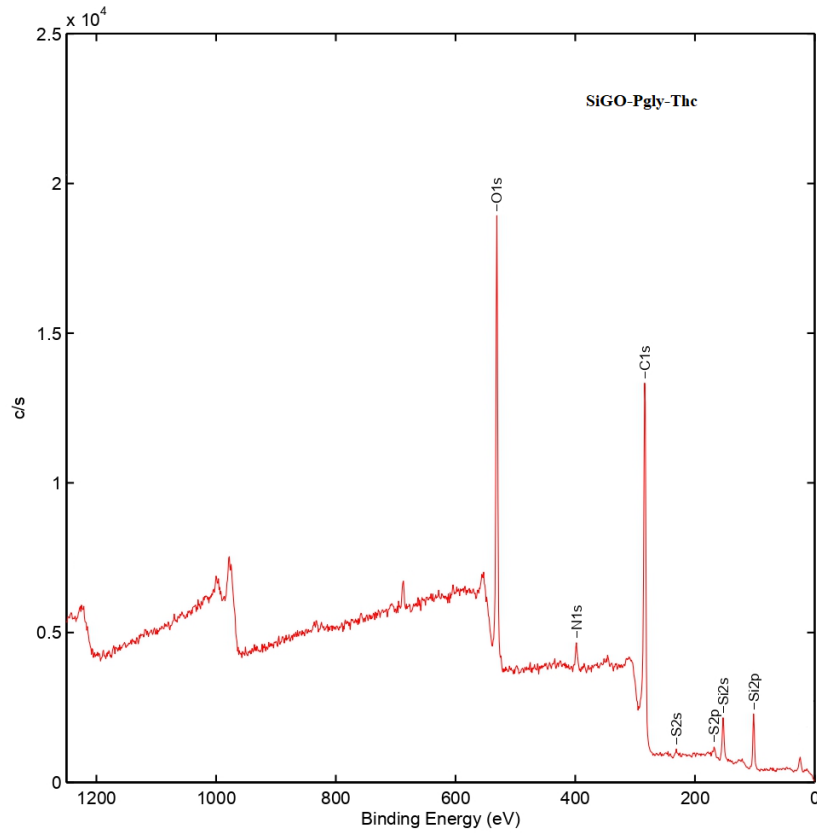
Şekil 8. 10. GO ait XPS spektrumu.



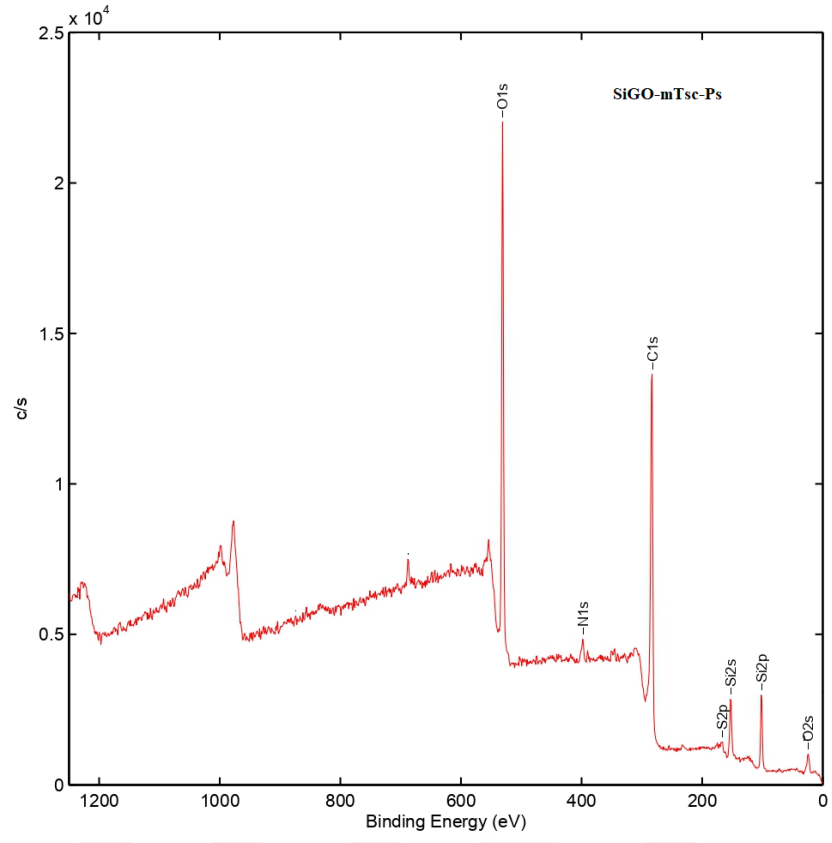
Şekil 8. 11. SiGO-Pgly-Sal hibrit nanokompozite ait XPS spektrumu.



Şekil 8. 12. SiGO-Pgly-mSal hibrit nanokompozite ait XPS spektrumu.

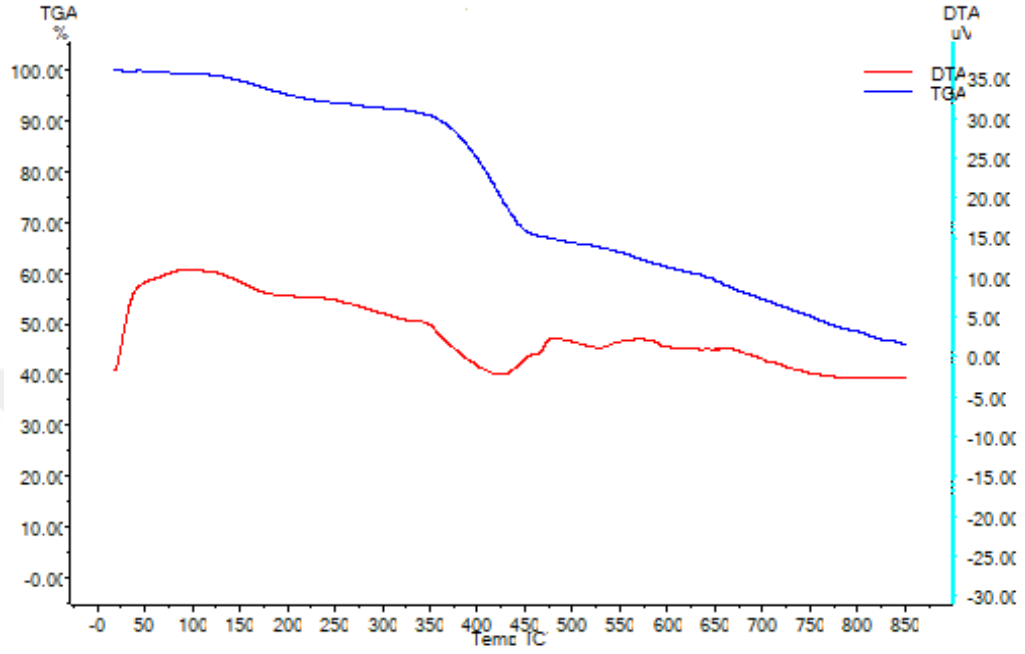


Şekil 8. 13. SiGO-Pgly-Thc hibrit nanokompozite ait XPS spektrumu



Şekil 8. 14. SiGO-mTsc-Ps hibrit nanokompozite ait XPS spektrumu.

8.4. EK 4: HİBRİT NANOKOMPOZİTİN TG-DTA EĞRİSİ



Şekil 8. 15. SiGO-Tsc-Ps hibrit nanokompozite ait TG-DTA eğrisi.

ÖZGEÇMİŞ

KİŞİSEL BİLGİLER

Adı Soyadı : Agamyrat AKJAYEV
Yabancı Dili : İngilizce, Rusça, Türkçe

ÖĞRENİM DURUMU

Derece	Alan	Okul/Üniversite	Mezuniyet Yılı
Y. Lisans	Kompozit Malzeme Teknolojileri	Düzce Üniversitesi	2025
Lisans	İnşaat Mühendisliği	Atatürk Üniversitesi	2020
Lise		R. Seyidov 1 nolu Lisesi	2009

TEZDEN ÇIKAN YAYINLAR

- A. Akjaye, D. Nartop, "Synthesis of silane-functionalized graphene oxide/polymer hybrid nanocomposite", *13th International May-19 Innovative Scientific Approaches Congress*, ss. 184-189, Samsun, Türkiye, May 19-20, 2025. ISBN: 979-8-89695-084-4