

ÇANKIRI KARATEKİN ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

YÜKSEK LİSANS TEZİ

İNDİRGENMİŞ GRAFEN OKSİT SENTEZİNİN KARAKTERİZASYONU

Burak İNAN

KİMYA MÜHENDİSLİĞİ ANABİLİM DALI

ÇANKIRI
2025

Her hakkı saklıdır

TEZ ONAYI

Burak İNAN tarafından hazırlanan “İndirgenmiş Grafen Oksit Sentezinin Karakterizasyonu” adlı tez çalışması 06.02.2025 tarihinde aşağıdaki jüri tarafından oy birliği ile Çankırı Karatekin Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Kimya Mühendisliği Anabilim Dalında **Yüksek Lisans Tezi** olarak kabul edilmiştir.

Danışman : Prof. Dr. Ahmet YARTAŞI

Jüri Üyeleri :

Başkan : Prof. Dr. Ahmet YARTAŞI
Kimya Mühendisliği Anabilim Dalı
Çankırı Karatekin Üniversitesi

Üye : Dr. Öğr. Üyesi Muhammed Bora AKIN
Kimya Mühendisliği Anabilim Dalı
Çankırı Karatekin Üniversitesi

Üye :Dr. Öğr. Üyesi Havva MUMCU ŞİMŞEK
Kimya ve Kimyasal İşleme Teknolojileri Bölümü,
Osmaniye Korkut Ata Üniversitesi

Yukarıdaki sonucu onaylarım

Prof. Dr. Ersoy YILMAZ

Enstitü Müdürü

ETİK İLKE VE KURALLARA UYGUNLUK BEYANNAMESİ

Çankırı Karatekin Üniversitesi Lisansüstü Eğitim-Öğretim ve Sınav Yönetmeliğine göre hazırlamış olduğum “İndirgenmiş Grafen Oksit Sentezinin Karakterizasyonu” konulu tezin bana ait, özgün bir çalışma olduğunu; çalışmamın hazırlık, veri toplama, analiz ve bilgilerin sunumu olmak üzere tüm aşamalarında bilimsel etik ilke ve kurallara uygun davrandığımı, tezin içerdiği yenilik ve sonuçları başka bir yerden almadığımı, tezde kullandığım eserleri usulüne göre kaynak olarak gösterdiğimi, tezin Çankırı Karatekin Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü’nden başka bir bilim kuruluna akademik amaç ve unvan almak amacıyla vermediğimi ve bu çalışmanın Çankırı Karatekin Üniversitesi tarafından kullanılan “Bilimsel İntihal Tespit Programı’yla tarandığını, “intihal içermediğini” beyan ederim. Çalışmamla ilgili yaptığım bu beyana aykırı bir durumun saptanması halinde ortaya çıkacak tüm ahlaki ve hukuki sonuçlara razı olduğumu bildiririm. Çankırı Karatekin Üniversitesi Lisansüstü Eğitim-Öğretim ve Sınav Yönetmeliğinin ilgili maddeleri uyarınca gereğinin yapılmasını arz ederim (06/02/2025).

Burak İNAN

ÖZET

Yüksek Lisans Tezi

İNDİRGENMİŞ GRAFEN OKSİT SENTEZİNİN KARAKTERİZASYONU

Burak İNAN

Çankırı Karatekin Üniversitesi
Fen Bilimleri Enstitüsü
Kimya Mühendisliği Anabilim Dalı

Danışman: Prof. Dr. Ahmet YARTAŞI

Grafen sentez yöntemleri içerisinde sanayi ölçekli proseslere uygulanabilir ve en ekonomik yöntem, kimyasal indirgenme yöntemidir. Kimyasal indirgenme yöntemi içerisinde toksik etkiler içermeyen ve indirgenme verimi yüksek olan çalışmalar ilgi çekmektedir. Bu çalışmada toksik etkiler içermeyen, çevre dostu ve ekonomik bileşiklerden indirgen şekerler tercih edilmiştir. İndirgen şekerlerden glikoz, fruktoz ve galaktozun indirgenmiş grafen oksit sentezinde performanslarının değerlendirilmesi hedeflenmektedir. Bu hedefle 4 parametre ve 3 seviyeden oluşan $L_9(3^4)$ deney tasarım modeli kullanılarak Taguchi yöntemi ile kalite kriterlerine ait optimizasyon çalışması gerçekleştirildi. Parametre olarak sıcaklık (80-150-250°C), indirgen şeker (glikoz-fruktoz-galaktoz), bazik ortam (sodyum hidroksit-potasyum hidroksit-amonyak) ve pH(3-7-9) seçilmiştir. Karakterizasyon ve optimizasyon için seçilen kalite kriterleri BET ile yüzey alanı ölçümü (YA), XRD ile kristal boyutu (KB), SEM+EDS ile karbonun oksijene atomik oranı (C/O), RAMAN ile D/G pik oranı, ZETA-SİZER ile zeta potansiyeli (ZP), parçacık boyut dağılımı analizleri (PB), ve FTIR ile yapı karakterizasyonu gerçekleştirilmiştir. Elde edilen sayısal sonuçlar kullanılarak her bir kalite kriteri için parametrelere ait optimum noktalar ve seviyeleri belirlenmiştir. Her biri kalite kriterlerine ait iyileşme oranları $L_{9/34}$ deney tasarımındaki en iyi sonuçlar, grafen oksit örneğine ait referans alınarak hesaplanmıştır. Bu sonuçlara göre iyileşme oranları, C/O için %314,7, ZP için %45,71, PB için % 67,26, YA için 121,1, D/G için -%6,6 ve KB için %54,4 iyileşme oranları elde edilmiştir. Optimizasyon sonuçları ve iyileşme oranları göstermiştir ki, indirgen şekerlerin indirgenmiş grafen oksit sentezi üzerinde, toksik etkileri olan kimyasallar yerine kullanımının alternatif olabileceğini göstermiştir.

2025, 64 sayfa

ANAHTAR KELİMELER: İndirgenmiş grafen oksit, Kimyasal indirgenme,

ABSTRACT

Master of Science Thesis

CHARACTERIZATION OF REDUCED GRAPHENE OXIDE SYNTHESIS

Burak İNAN

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

Advisor: Prof. Dr. Ahmet YARTAŞI

The chemical reduction method is the most cost-effective technique for synthesizing graphene, and it may be used in large-scale operations. Studies with a high reduction efficiency and no harmful consequences are of interest in the chemical reduction approach. Reduced sugars derived from cost-effective and ecologically friendly substances without harmful effects were favored in this study. Its goal is to assess how well-reduced carbohydrates such as glucose, fructose, and galactose perform in the production of reduced graphene oxide. The $L_9(3^4)$ experimental design model, which has four parameters and three levels, was used in the Taguchi method to optimize the quality criterion. The parameters that were chosen were temperature (80-150-250°C), reduced sugar (glucose-fructose-galactose), basic medium (sodium hydroxide-potassium hydroxide-ammonia), and pH (3-7-9). Surface area measurement (YA) with BET, crystal size (KB) with XRD, atomic ratio of carbon to oxygen (C/O) with SEM+EDS, D/G peak ratio with RAMAN, zeta potential (ZP) with ZETA-SIZER, particle size distribution analysis (PB), and structure characterization with FTIR were selected for characterization and optimization. For each quality criterion, the optimal points and levels of the parameters were identified using the numerical findings. The graphene oxide sample's best findings from the L934 experiment design were used to compute the improvement rates for each quality criterion. The recovery rates found were as follows: 314.7% for C/O, 45.71% for ZP, 67.26% for PB, 121.1% for YA, -6.6% for D/G, and 54.4% for KB. Utilizing reduced sugars rather than chemicals that harm the manufacture of reduced graphene oxide may be an alternative, according to optimization results and recovery rates.

2025, 64 pages

Keywords: Reduced graphene oxide, Chemical reduction,

ÖNSÖZ VE TEŞEKKÜR

Tez sürecimin başından itibaren desteğini üzerimden hiç esirgemeyen, yol gösteren, çalışmamın niteliğinin artmasına vesile olan, maddi ve manevi desteğini hep yanımda hissettiğim danışmanım Prof. Dr. Ahmet YARTAŞI hocama şükranlarımı sunarım.

Bu süreçte yorulmadan bütün sorularıma geri dönüş yapan, sabırla bana yardımcı olan, beni yönlendiren, laboratuvar deneylerinin planlanması ve yürütülmesi sürecinde rehberliği ile katkı sağlayan, değerli hocam Doç. Dr. Haluk KORUCU'ya sonsuz teşekkür ederim.

Lisans ve yüksek lisans sürecimde hep yanımda olan, bana olan inancı ve koşulsuz sevgisi ile bana güç veren sevgili aileme teşekkür ederim.

Son olarak bu süreçte her yokuşta elimden tutup, sevgisi, bana olan inancı ve güveni ile işlerimi kolaylaştıran sevgili sözlüm Burcu ÖZDEMİR'e sonsuz teşekkür ederim.

Burak İNAN

Çankırı, Şubat 2025

İÇİNDEKİLER

ÖZET.....	i
ABSTRACT	ii
ÖNSÖZ VE TEŞEKKÜR.....	iii
İÇİNDEKİLER	iv
SİMGELER DİZİNİ	vi
KISALTMALAR DİZİNİ	vii
ŞEKİLLER DİZİNİ	viii
ÇİZELGELER DİZİNİ	x
1. GİRİŞ.....	1
1.1 Karbonun Allotropları.....	1
1.1.1 Grafit.....	2
1.1.2 Elmas.....	2
1.1.3 Fulleren.....	3
1.1.4 Karbon nanotüpler	3
1.1.5 Grafen yapısı, özellikleri ve mekanik performansı	4
1.2 Grafen Oksit (GO).....	4
1.2.1 Grafen oksit sentez yöntemleri	5
1.2.2 Grafen oksitin özellikleri.....	6
1.2.3 Grafen oksitin kullanım alanları.....	6
1.3 Grafen Sentez Teknikleri ve Optimizasyon Yöntemleri.....	8
1.3.1 Mikro mekanik ayırıştırma yöntemi.....	8
1.3.2 Silisyum karbür ile grafen üretimi.....	9
1.3.3 Kimyasal buhar biriktirme (CVD) ile grafen üretimi.....	10
1.3.4 Kimyasal indirgeme yöntemi ile indirgenmiş grafen oksit üretimi	10
1.3.5 Termal tavlama yöntemi ile indirgenmiş grafen oksit üretimi.....	11
1.3.6 Fotokaliz varlığında indirgeme ile grafen oksit sentezi.....	12
1.3.7 Elektrokimyasal indirgeme yöntemi ile grafen sentezi	12
1.3.8 Grafenin teknoloji ve enerjideki uygulamaları.....	13
1.4 Grafen Oksit ve İndirgenmiş Grafen Oksidin Karakterizasyonu ve Kalite Değerlendirme Yöntemleri	14
1.4.1 Taramalı elektron mikroskobu	14

1.4.2 FTIR spektroskopisi	15
1.4.3 Yüzey alanı ölçümü	16
1.4.4 Zeta potansiyeli ve parçacık boyut dağılımı ölçümü	17
1.4.5 Raman spektroskopisi	18
1.4.6 X ışınları saçılımı	19
1.5 Deney Tasarımı.....	20
1.5.1 Taguchi deney tasarımı ve aşamaları	20
1.6 Çalışmanın Amaç ve Gerekçesi.....	25
1.6.1 Grafen oksit sentezi ve performans değerlendirmesi	26
2. LİTERATÜR ÖZETİ.....	28
3. MATERYAL VE YÖNTEM	32
3.1 Materyel.....	32
3.2 Deneyel Yöntem	33
3.2.1 Grafen oksit sentezi için Hummers yönteminin kullanılması	33
3.2.2 Grafen oksitten kimyasal indirgeme metodu ile indirgenmiş grafen oksit sentezi	34
3.3 Deneyel Yöntem	35
3.4 İndirgenmiş Grafen Oksit Sentezinde Deney Tasarımının, Parametrelerin ve Seviyelerin Belirlenmesi.....	36
3.5 Grafen Oksit ve L ₉ (3 ⁴) İndirgenmiş Grafen Oksit Sentezi için Belirlenen Kalite Özellikleri.....	37
4. BULGULAR VE TARTIŞMA	40
4.1 Kalite Kriterlerine İlişkin Grafiklerin ve Görüntülerin Analizi	40
4.1 Tartışma.....	49
5. ANALİZ VE OPTİMİZASYON	53
5.1 Taguchi Yöntemi Kullanılarak L ₉ (34) Deney Tasarımı ile İndirgenmiş Grafen Oksit Numuneleri için Optimizasyon Sonuçları.....	54
6. SONUÇ VE ÖNERİLER	59
KAYNAKLAR	60
ÖZGEÇMİŞ.....	Hata! Yer işareti tanımlanmamış.

SİMGELER DİZİNİ

eV	Elektronvolt
mL	Mililitre
mV	Milivolt
N	Tekrar sayısı
nm	Nanometre
S^2	Deney bulgularındaki varyans
$\bar{y}$	Deney sonuçlarının ortalaması
Y_i	i 'nci deneye ait sonuç değeri
Ω	Ohm



KISALTMALAR DİZİNİ

BET	Brunauer-Emmett-Teller
CVD	Kimyasal buhar biriktirme yöntemi
DoE	Deneyisel tasarım yöntemi
FTIR	Fourier dönüşümlü kızılötesi spektroskopisi
GO	Grafen oksit
rGO	İndirgenmiş grafen oksit
OLED	Organik ışık yayan diyot
KB	Kristal Boyutu
PB	Parçacık Boyutu
SEM	Taramalı elektron mikroskobu
S/N	Sinyal gürültü oranı
TCO	Şeffaf iletken oksitler
XRD	X-ışını kırınımı
YA	Yüzey Alanı
ZP	Zeta potansiyeli

ŞEKİLLER DİZİNİ

Şekil 1.1 Karbonun farklı allotroplarına ait kristal yapılar (Majeed 2024).....	2
Şekil 1.2 Mikromekanik eksfoliasyon yöntemi ile grafen üretimi (Korucu 2019).....	8
Şekil 1.3 Grafen sentez mekanizması için gerçekleştirilen silisyum karbür tabakalarına ise işlem uygulanarak gerçekleştirilen grafen sentez mekanizması (Korucu 2019)	9
Şekil 1.4 Kimyasal buhar biriktirme yöntemi ile grafen sentezi (Korucu 2019).....	10
Şekil 1.5 GO içeren TiO ₂ nanopartiküllerinin UV ışını ile rGO sentezi (Topaç 2014) .	12
Şekil 1.6 Taramalı elektron mikroskobu (SEM-EDS) cihaza ait görsel	15
Şekil 1.7 FTIR-ATR spektroskopisi analizlerinin gerçekleştirildiği cihaza ait görsel ...	16
Şekil 1.8 Yüzey alanı ölçüm (BET) cihazına ait görsel	16
Şekil 1.9 Nano akışkanlar için Zeta Potansiyeli özellikleri (Majeed 2024).....	17
Şekil 1.10 Zeta sizer cihazı	18
Şekil 1.11 Raman spektroskopisi cihazı.....	18
Şekil 1.12 Grafit, grafen oksit ve grafene ait XRD örüntüleri (Johra <i>et al</i> 2013).....	19
Şekil 1.13 XRD cihazına ait görsel	20
Şekil 1.14 Taguchi yöntemi kullanılarak seçilen diziler (Madhav1989)	23
Şekil 3.1 Grafitten modifiye Hummers yöntemi ile grafen oksit sentezinin şematik gösterimi (Lin <i>et al.</i> 2015)	34
Şekil 3.2 Deneysel kurulum grafen oksit sentezi için hummers yönteminin kullanılması	34
Şekil 3.3 Grafen oksitten kimyasal indirgenme yöntemi ile indirgenmiş grafen oksit sentezinin Şematik gösterimi	35
Şekil 3.4 Yüksek sıcaklık ve yüksek basınç koşullarında indirgenmiş grafen oksit sentezi için deneysel sistem	35
Şekil 3.5 L ₉ (3 ⁴) ile indirgenmiş grafen oksit performans şeması.....	39
Şekil 4.1 L ₉ (3 ⁴) deney tasarımı ile indirgenmiş grafen oksit sentezine ait FTIR grafikleri	40
Şekil 4.2 L ₉ (3 ⁴) deney tasarımı ile indirgenmiş grafen oksit sentezi deneylerine ait Raman grafikleri.....	41
Şekil 4.3 L ₉ (3 ⁴) deney tasarımı ile Grafitten modifiye Hummers yöntemi ile grafen oksit sentezinin şematik gösterimi sentezi deneylerine ait XRD grafikleri.....	42

Şekil 4.4 Grafit ve Grafen oksit örneklerine ait SEM+EDS görüntüleri	42
Şekil 4.5 $L_9(3^4)$ deney tasarımı ile Grafitten modifiye Hummers yöntemi ile grafen oksit sentezinin şematik gösterimi sentezi deneylerine ait SEM+EDS görüntüleri	44
Şekil 4.6 $L_9(3^4)$ deney tasarımı ile Grafitten modifiye Hummers yöntemi ile grafen oksit sentezinin şematik gösterimi sentezi deneylerine ait BET görüntüleri.....	45
Şekil 4.7 Grafit ve grafen oksit örneklerine ait Zeta-Sizer görüntüleri.....	46
Şekil 4.8 $L_9(3^4)$ deney tasarımı ile grafitten modifiye Hummers yöntemi ile grafen oksit sentezinin şematik gösterimi sentezi deneylerine ait Zeta-Sizer görüntüleri.....	47
Şekil 4.8 $L_9(3^4)$ deney tasarımı ile grafitten modifiye Hummers yöntemi ile grafen oksit sentezinin şematik gösterimi sentezi deneylerine ait Zeta-Sizer görüntüleri (Devam)...	48
Şekil 4.8 $L_9(3^4)$ deney tasarımı ile grafitten modifiye Hummers yöntemi ile grafen oksit sentezinin şematik gösterimi sentezi deneylerine ait Zeta-Sizer görüntüleri (Devam)...	49
Şekil 5.1 $L_9(3^4)$ deney tasarımı ile EDS-C/O sonuçlarına dayalı Taguchi yöntemiyle elde edilen S/N ana etki grafiklerinin gösterimi	54
Şekil 5.2 $L_9(3^4)$ deney tasarımı için raman-D/G sonuçlarına dayalı Taguchi yöntemiyle elde edilen S/N ana etki grafiklerinin gösterimi	55
Şekil 5.3 $L_9(3^4)$ deney tasarımı için XRD-KB sonuçlarına dayalı Taguchi yöntemiyle elde edilen S/N ana etki grafiklerinin gösterimi	55
Şekil 5.4 $L_9(3^4)$ deney tasarımı için BET-YA sonuçlarına dayalı Taguchi yöntemiyle elde edilen S/N ana etki grafiklerinin gösterimi	56
Şekil 5.5 $L_9(3^4)$ deney tasarımı için zeta potansiyeli sonuçlarına dayalı Taguchi yöntemiyle elde edilen s/n ana etki grafiklerinin gösterimi	57
Şekil 5.6 $L_9(3^4)$ deney tasarımı için Zeta-PB sonuçlarına dayalı Taguchi yöntemiyle elde edilen S/N ana etki grafiklerinin gösterimi	57

ÇİZELGELER DİZİNİ

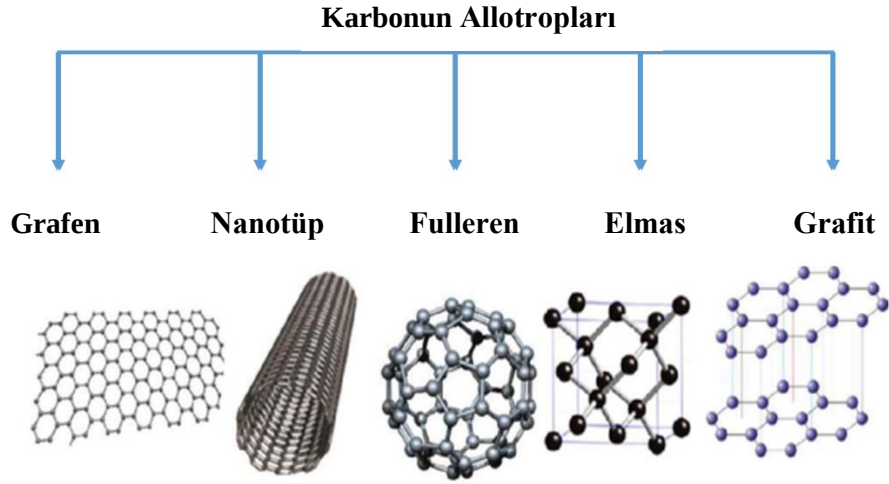
Çizelge 1.1 Oplam serbestlik derecesinin hesaplanması (Madhav1989).....	22
Çizelge 3.1 $L_9(3^4)$ rGO deney tasarımında kullanılan parametreler ve seviyeleri.....	36
Çizelge 3.2 $L_9(3^4)$ rGO sentezi için deney tasarım modeli ve kodlanmamış seviyeleri	37
Çizelge 3.3 Grafen oksit ve indirgenmiş grafen oksit ait kalite kriterleri ve ağırlıkları .	38
Çizelge 5.1 $L_9(3^4)$ tasarımı kullanılarak yapılan rGO sentezi üzerinde tekrarlanan kalite kriterlerinden elde edilen deneysel bulgular.....	53
Çizelge 5.2 $L_9(3^4)$ deney tasarımı ile rGO sentezi deneylerine ilişkin ortalama deneysel sonuçlar.....	53
Çizelge 5.3 $L_9(3^4)$ Deney tasarımı ile sentezlenen rGO örneklerinde, sentezlenen GO-Ref örneği referans alınarak hesaplanan iyileşme oranları.....	58

1. GİRİŞ

Karbon tüm canlı organizmaların yapısında bulunan yaşam için temel taşlarından olan bir elementtir. Atom numarası 6 olan karbon, periyodik tablonun 14. grubuna aittir. Organik kimyanın temelini oluşturan karbon, benzersiz bir bağlanma kapasitesine sahiptir. Bu özellikleri sayesinde, karbon atomları çeşitli zincirler ve yapılar oluşturabilir. Karbonun bu yapısal çeşitliliği, elementin hem organik hem de inorganik birçok bileşik oluşturmasını sağlar. Karbonun bu özellikleri, onun nanoteknolojide ve ileri malzeme üretiminde geniş bir kullanım alanına sahip olmasına katkıda bulunmaktadır (Mohamed 2021).

1.1 Karbonun Allotropları

Karbonun allotropları, atomlarının farklı şekillerde düzenlenmesiyle oluşur. Bu allotroplar, karbon atomlarının bağlanma biçimlerine göre farklı fiziksel ve kimyasal özellikler sergiler. Karbonun bilinen başlıca allotropları arasında elmas, grafit, grafen, fulleren ve karbon nanotüpler yer alır. Elmas, karbon atomlarının üç boyutlu bir kafes yapısında düzenlenmesiyle oluşurken, grafit tabaka benzeri bir yapıya sahiptir. Grafen ise tek bir atom kalınlığındaki bir karbon tabakasından oluşur ve grafitin bir bileşeni olarak kabul edilir. Bu allotroplar, karbonun elektriği iletme kapasitesi, sertliği, ısı dayanıklılığı gibi birçok farklı özelliğini gösterir. Örneğin, elmas, doğadaki en sert maddelerden biri olarak bilinirken, grafit yumuşak ve kaygan bir yapıya sahiptir. Grafenin ise yüksek elektrik iletkenliği ve mekanik dayanıklılığı, onu modern teknolojinin en dikkat çekici materyallerinden biri haline getirmiştir (Majeed 2024). Grafit, elmas, fulleren, karbon nanotüp ve grafen gibi çeşitli karbonun allotroplarına ait yapılar Şekil 1.1 de verilmiştir.



Şekil 1.1 Karbonun farklı allotroplarına ait kristal yapılar (Majeed 2024)

1.1.1 Grafit

Grafit, karbonun tabakalı yapıya sahip allotroplarından biridir. Bu yapıda, karbon atomları, altıgen bir düzende bir araya gelerek tabakalar oluşturur. Bu tabakalar arasında güçsüz Van der Waals bağları mevcut olup, bu da tabakaların birbirine kolayca kaymasına olanak tanır. Grafitin bu özelliği, onu yağlayıcı malzemeler ve kalem uçları gibi uygulamalarda ideal bir materyal yapar. Grafit, elektrik iletkenliği açısından da oldukça ilgi çekicidir. Elektrik akımını iletme kapasitesi, tabakalar arasında serbestçe hareket edebilen elektronların varlığına dayanır. Ayrıca, yüksek sıcaklıklara dayanıklılığı sayesinde çelik üretiminde elektrot malzemesi olarak kullanılır. Grafit, modern teknolojiye ise özellikle grafen ve grafen oksit gibi türevlerinin sentezinde temel bir materyal olarak ön plana çıkmaktadır (Korucu 2019).

1.1.2 Elmas

Elmas, karbon atomlarının dört yüzlü kristal yapıda sp^3 hibridizasyonu ile bağlandığı bir karbon allotrop türüdür. Her karbon atomu diğer dört karbon atomuna bağlanır ve 0,154 nm'lik bir mesafe ile ayrılır. C-C-C arasındaki bağın açısı $109,5^\circ$ 'dur. Her karbon atomu ile dört komşu karbon atomu arasında güçlü kovalent bağlar oluşur. Bu nedenle elmas en sert malzemeler olarak kabul edilir ve karbon atomlarını parçalamak zordur ve bu

nedenle sıkıştırmaya karşı yüksek direnç gösterir. Ek olarak, elmas mükemmel fotonik ve ısı iletkenliğine sahiptir, ancak elektriksel olarak iletken olması gerekmez. Ultraviyole ışıktan kızılötesi ışığa kadar geniş bir spektrumla optik olarak saydamdır. Ayrıca kimyasal olarak stabildir ve diğer katılarla düşük sürtünme ve aşınma ile sonuçlanan düşük yapışma özelliği gösterir. Elmas, atmosferik basınç altında 1000 °C 'ye ve vakum altında 1400 °C 'ye kadar yüksek sıcaklık ortamına dayanır, ancak bu koşulların ötesinde grafitte dönüşür (Mohamed 2021).

1.1.3 Fulleren

Fulleren, karbon atomlarının kapalı bir kafes yapısı oluşturduğu allotroplardan biridir. Bu yapı, karbon atomlarının beşgen ve altıgen halkalar halinde düzenlenmesiyle meydana gelir. En bilinen fullerene türü olan C₆₀, futbol topuna benzeyen bir geometriye sahiptir ve 60 karbon atomundan oluşur. Fullerenlerin keşfi, karbon kimyasında yeni bir dönemin başlangıcını işaret etmiş ve nanoteknoloji alanında çığır açıcı gelişmelere yol açmıştır. Fullerenler, benzersiz fiziksel ve kimyasal özelliklere sahiptir. Yüksek stabilite, elektronik iletkenlik ve oldukça düşük yoğunluk, bu materyalleri elektronik, enerji depolama ve biyomedikal uygulamalarda kullanışlı hale getirmektedir. Özellikle, fullerene türevleri güneş pilleri ve organik elektronik cihazlar için umut verici malzemeler olarak değerlendirilmektedir. Ayrıca, fullereneğin ilaç taşınımında ve antioksidan olarak biyomedikal kullanımları da araştırılmaktadır (Altuntepe 2024).

1.1.4 Karbon nanotüpler

Karbon nanotüpler, grafen tabakalarının silindirik şeklinde kıvrılmasıyla oluşan, karbonun bir başka allotropudur. Tek duvarlı karbon nanotüpler ve çok duvarlı karbon nanotüpler olmak üzere iki temel tipi vardır. Bu yapıların çapı nanometre boyutlarında, uzunluğu ise mikrometre seviyesindedir (Öztekin 2023). Bu sıra dışı geometrik yapı, karbon nanotüplere olağanüstü mekanik, termal ve elektriksel özellikler kazandırır. Karbon nanotüpler, çelikten daha güçlü ve aynı zamanda çok daha hafif bir yapıya sahiptir. Elektrik iletkenliği açısından bakıldığında, bazı karbon nanotüpler bakırdan daha iyi

iletkenlik gösterebilir. Ayrıca, mükemmel ısı iletkenlikleri sayesinde elektronik devrelerde soğutma çözümleri ve enerji depolama sistemlerinde de kullanılmaktadır. Karbon nanotüplerin esnekliği ve dayanıklılığı, onları özellikle nanomalzeme ve nanokompozit üretiminde vazgeçilmez kılmaktadır. Günümüzde, bu malzemelerin ticari olarak geniş ölçekli üretimi ve uygulanabilirliği üzerinde yoğun bir şekilde çalışılmaktadır(Yiğit 2021).

1.1.5 Grafen yapısı, özellikleri ve mekanik performansı

Grafen, tek katmanlı grafit tabakalarından oluşmaktadır. Altıgen iki boyutlu bir kafes içinde düzenlenmiş, yakından bağlanmış karbon atomlarından oluşan bir karbon allotropudur. sp^2 hibrit, son derece ince bir nükleer kalınlığa (0.345 nm) ve atomik karbon-karbon bağları uzunluğu 0.142 nm olan bir petek yapısına sahiptir. Her karbon atomu σ bağı yoluyla üç komşu karbon atomuna ve π bağından kalan p elektronu çevreleyen atomlarla bağlanır. Her karbon atomu arasındaki bağ çok güçlüdür. Bu nedenle, kuvvet uygulandığında karbon atomları arasında yanlış hizalama ve yeniden düzenleme olmaz. Grafen en güçlü ve en ince nanomalzemelerdir (Gizem 2021). Tek katmanlı grafen, 130 GPa'lık bir gerilme direncine, Young'ın 1.0 TPa modülüne ve çeliğin on katı yükleme kapasitesine sahiptir. Ayrıca bakırdan bir milyon kat daha iletkenidir. Grafitte grafen tabakaları 0.335 nm ile ayrılır ve zayıf van der Waals kuvvetleri ile üst üste dizilir (Urade *et al.* 2023).

1.2 Grafen Oksit (GO)

Grafen oksit (GO), grafin tabakalarının oksitlenmesiyle elde edilen, yapısında oksijen içeren fonksiyonel gruplar bulunduran bir nanomalzemedir. Bu fonksiyonel gruplar arasında hidroksil (-OH), epoksi (-O-), karbonil (-C=O), ve karboksil (-COOH) grupları yer alır. Oksijen grupları genellikle tabakanın kenarlarında ve yüzeyinde düzensiz bir şekilde dağılmıştır (Yu *et al.* 2020). Bu yapısal özellik, grafen oksiti grafenden ayıran temel farklardan biridir. Oksijen gruplarının varlığı, grafen oksitin polar bir yapıya sahip olmasını sağlar, bu da onun su gibi polar çözücülerde kolayca dağılabilmesine olanak tanır. Ancak bu gruplar, karbon-karbon bağlarının düzenini bozarak grafenin

yüksek iletkenlik özelliğini azaltır. Grafen oksitin tabaka yapısı, grafen ile benzer olsa da yüzeydeki fonksiyonel gruplar nedeniyle kalınlık ve kristal yapıda bozulmalar meydana gelir. Grafen oksitin yapısal özelliği, kimyasal modifikasyonlara açık bir materyal olmasını sağlar. Özellikle indirgeme süreçleriyle oksijen grupları uzaklaştırıldığında, elektriksel iletkenlik gibi özellikleri grafene yakın hale getirilebilir. Bu nedenle, grafen oksit hem doğrudan kullanımı hem de indirgenmiş grafen oksit üretimi için önemli bir başlangıç malzemesidir (Farjadian *et al.* 2020).

1.2.1 Grafen oksit sentez yöntemleri

Grafit, GO sentezi için hammadde olarak kullanılabilir. Grafit oksidasyonundan elde edilen GO, oksidasyon derecesine bağlı olarak elektriksel ve mekanik özellikleri etkileyen bir iletken, yarı iletken veya yalıtkan olabilir. Grafenin bant aralığı esas olarak oksijen konsantrasyonuna bağlıdır ve bu nedenle oksijen konsantrasyonu arttıkça bant aralığı artar ve yalıtılmış GO ile sonuçlanır (Ajala *et al.* 2022). GO yapısı ve özellikleri sentez yönteminden ve oksidasyon derecesinden etkilenecektir. GO, Brodie, Staudenmaier, Hummers ve Marcon Tour gibi farklı yöntemler kullanılarak grafitten sentezlendi. 1859'da Brodie, grafit malzemeyi oksitleyerek grafen oksit sentezini keşfetti. Brodie, GO sentezinin öncüsüydü, Brodie bu oksidasyonu potasyum klorat ve nitrik asitle 60 °C 'de üç ila dört gün boyunca gerçekleştirdi. Brodie, hazırlanan GO'nun temel analizinde, elde edilen ürünün oksijen, karbon ve hidrojen içerdiğini ortaya çıkardı (Brodie 1859). 40 yıl sonra Staudenmaier, asidik ortamı geliştirerek ve Brodie'nin yöntemine benzer iyi GO özelliklerine ulaşmak için reaktif sülfürik asit (H_2SO_4) gibi daha az riskli hale getirerek Brodie'nin yöntemini değiştirdi (Staudenmaier 1898). Oksidasyon oranını ve Brodie'nin yöntem verimliliğini arttırmak için karışım daha sonra $KClO_3$ ve HNO_3 ile seyreltilti. Her iki yöntemde de patlayıcı gaz olan ClO_2 çevreye salınır ve havada patlama eğilimindedir. Hummers yöntemi, daha az reaksiyon süresine yol açan ve bu yöntem için avantajlı olan yan ürün ClO_2 gazının oluşumunu önlemek için $KMnO_4$, $NaNO_3$ ve konsantre H_2SO_4 ile reaksiyona sokarak önceki yöntemlere benzer oksidasyon derecesine sahip grafen oksit sentezleyebilmek için Hummer yöntemini geliştirdi (Hummers and Offeman 1958). Marcano ve Tour, sodyum nitratı fosforik asitle değiştirerek Hummer yöntemini değiştirdi. Fosforik asit çevreye

sodyum nitrattan daha az zararlıdır. Ayrıca grafiti oksitlemek için sülfürik asit ve potasyum permanganatın etkinliğini artırır. Hazırlanan grafen oksit daha yüksek derecede oksidasyona sahip olmasına ve herhangi bir toksik gaz ortaya çıkmadığı için son yıllarda araştırmacılar tarafından yaygın olarak tercih edilmektedir (Marcano *et al.* 2010).

1.2.2 Grafen oksitin özellikleri

Brodie, Hummer, Staudenmaier, Marcano ve Tour gibi bilim adamları tarafından birçok girişimde bulunulmuş olsa da grafen oksit yapısı henüz doğrulanmadı. Bunun nedeni, elde edilen grafen oksidin amorf doğası ve stokiyometrik atomik bileşiminin olmamasıdır (Korucu *et al.* 2023). GO, değişen oranlarda karbon, oksijen ve hidrojenden oluşan stokiyometrik olmayan bir kimyasal bileşiktir ve bu, işleme tekniklerinden önemli ölçüde etkilenir. GO'nun kimyasal olarak pul pul dökülmesi sırasında, oksijenin grafene girmesi, oksijen epoksit grupları, karbonil, hidroksil ve fenol grupları ile kanıtlanmıştır (Guo *et al.* 2022). Bu, oksijenin grafen yapısına sokulduğu ve düzlem içi işlevselleştirme kusuru ve düzlem içi kafes kusurları ile sonuçlandığı anlamına gelir. Bu nedenle, GO 'nun bu kusurlar mümkün olduğunca azaltılarak üstün özellikleri elde edilmesi onun endüstriyel açıdan kullanımının avantajlı hale getirmektedir (Han *et al.* 2021).

1.2.3 Grafen oksitin kullanım alanları

Grafen oksit, geniş yüzey alanı, oksijen içeren fonksiyonel grupları ve kimyasal olarak modifiye edilebilir yapısıyla birçok farklı alanda uygulama potansiyeli sunmaktadır. Bu özellikler, GO'yu malzeme bilimi, enerji, çevre ve biyomedikal alanlarında önemli bir araştırma konusu haline getirmiştir (Jiříčková *et al.* 2022). Grafen oksit, enerji depolama sistemlerinde elektrot malzemesi olarak yaygın bir şekilde kullanılmaktadır. Süperkapasitörler ve lityum-iyon pillerde, yüksek yüzey alanı ve iyonik iletkenliği sayesinde enerji depolama kapasitelerini artırmak için ideal bir malzeme olarak değerlendirilmektedir (Yu *et al.* 2021). GO 'nun yüksek yüzey alanı ve hidrofilik yapısı, adsorpsiyon süreçlerinde etkili bir malzeme olmasını sağlar. Ayrıca, antibakteriyel

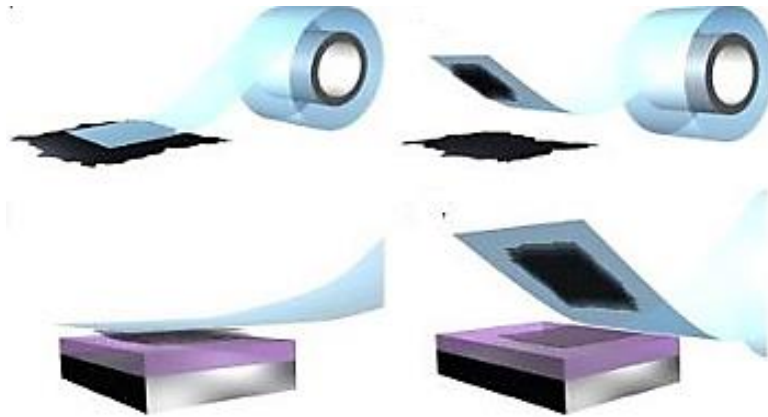
özellikleri sayesinde mikroorganizmaların sudan arındırılmasında da katkı sağlar. Grafen oksitin biyomedikal alandaki potansiyeli oldukça geniştir. Özellikle ilaç taşınımında, biyouyumlu bir taşıyıcı olarak dikkat çeker (Cacaci *et al.* 2020). GO, yüzeyindeki fonksiyonel gruplar sayesinde ilaç moleküllerini bağlayarak kontrollü salınım sağlayabilir. Bunun yanı sıra, biyosensörlerin geliştirilmesinde, proteinlerin ve DNA'nın tespit edilmesi gibi uygulamalarda kullanılmaktadır. Fototermal terapi gibi kanser tedavi yöntemlerinde de grafen oksit, ışığa duyarlı yapısıyla hedeflenen hücrelerin yok edilmesinde etkili bir araç olarak kullanılmaktadır (Itoo *et al.* 2020). Grafen oksitin benzersiz optik ve elektriksel özellikleri, elektronik ve optoelektronik cihazlarda geniş bir kullanım alanı sunar. Özellikle esnek ekranlar, LED'ler ve sensörlerin üretiminde grafen oksit bazlı materyaller kullanılmaktadır (Kandulna *et al.* 2023). Grafen oksit, polimer, seramik ve metal matrisli kompozitlerin güçlendirilmesinde yaygın olarak kullanılmaktadır. Yüksek mekanik dayanımı ve yüzey modifikasyonu kolaylığı, kompozitlerin mukavemet, ısı dayanımı ve aşınma direnci gibi özelliklerini geliştirmektedir. Bu tür kompozitler, otomotiv, havacılık ve yapı sektörlerinde hafif ve dayanıklı malzeme ihtiyacını karşılamak için tercih edilmektedir (Razaq *et al.* 2022) Grafen oksit, kimyasal reaksiyonlarda katalizör veya katalizör taşıyıcı olarak da kullanılmaktadır. Yüzeyindeki oksijen grupları, katalitik aktiviteyi artırarak daha verimli reaksiyon süreçlerine olanak sağlar. Özellikle, hidrojen üretimi ve organik kimya reaksiyonlarında grafen oksit tabanlı katalizörlerin kullanımı yaygınlaşmaktadır (Priyadharshini *et al.* 2022). Grafen oksitin antibakteriyel özellikleri, tıbbi ve çevresel uygulamalarda büyük bir potansiyel sunmaktadır. Bakteriyel hücre zarlarına zarar verme yeteneği, GO'yu hijyenik yüzey kaplamaları ve biyomedikal cihazlarda bir malzeme olarak ön plana çıkarmaktadır. Ayrıca, bazı çalışmalarda virüslerin etkisiz hale getirilmesinde de etkili olduğu gösterilmiştir (Pulingam *et al.* 2021). Grafen oksit, çevre koruma uygulamalarında da etkin bir şekilde kullanılmaktadır. Özellikle, hava ve su kirliliği gibi sorunların çözümünde, kimyasal kirleticilerin giderilmesinde ve atık su arıtımında önemli bir rol oynar. Ayrıca, fotokatalitik reaksiyonlarla zararlı kimyasalların bozunmasında kullanılarak çevre temizliği için yenilikçi bir çözüm sunar (Tohamy *et al.* 2020).

1.3 Grafen Sentez Teknikleri ve Optimizasyon Yöntemleri

Grafen ve türevlerinin sentezi, bu malzemenin üstün özelliklerinden faydalanmak için oldukça önemlidir. Çeşitli sentez yöntemleri, farklı saflık, verim ve maliyet avantajları sunmaktadır. Bu yöntemler, mekanik, kimyasal ve buhar temelli teknikler olarak sınıflandırılabilir. Taguchi metodu gibi optimizasyon yaklaşımları, grafen sentez süreçlerinde kaliteyi artırmak için etkili stratejiler sunmaktadır.

1.3.1 Mikro mekanik ayrıştırma yöntemi

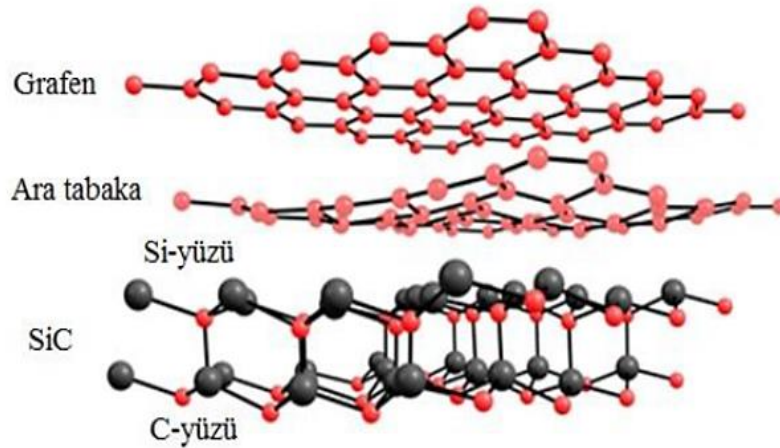
Mikro mekanik ayrıştırma yöntemi, basitliği nedeniyle araştırma ortamlarında yaygın olarak kullanılan bir tekniktir. Bu yöntemde grafit katmanları, yapışkan bant yardımıyla soyularak tek katmanlı grafen elde edilir. Üretilen grafenin kalitesi yüksek olsa da, bu yöntem endüstriyel ölçekte uygulanabilir olmaktan uzaktır. Yöntemin basit ve ekonomik yapısı nedeniyle temel araştırmalarda kullanımı devam etmektedir. Mikro mekanik yöntem, ölçeklenebilirliği sınırlı olsa da, özellikle saf grafen elde etmek isteyen araştırmacılar için faydalı bir araçtır. Alternatif yöntemlerle birleştirildiğinde, üretim maliyetlerinin azaltılması ve verimin artırılması mümkün olabilir. Böylelikle, bu yöntem temel bilimden ileri uygulamalara kadar geniş bir yelpazede kullanılabilir (Novoselov *et al.* 2024, Geim and Novoselov 2007). Şekil 1.2’de mikro mekanik ayrıştırma yöntemi ile grafen sentezine ait görsel verilmiştir.



Şekil 1.2 Mikromekanik eksfoliasyon yöntemi ile grafen üretimi (Korucu 2019)

1.3.2 Silisyum karbür ile grafen üretimi

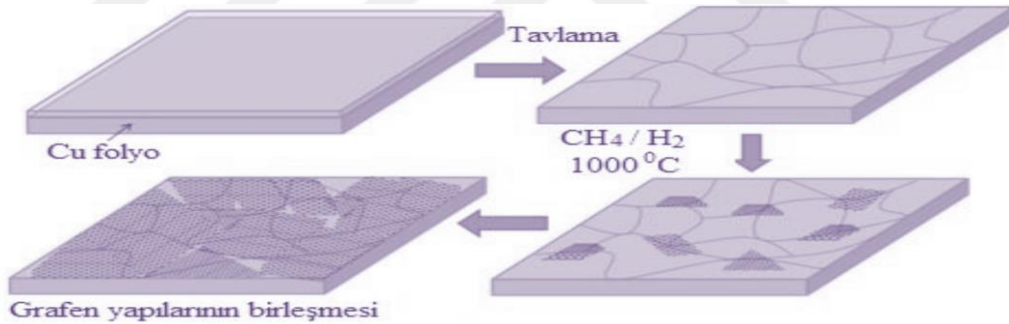
Grafen üretimi için iki yaklaşım, metal yüzeylerde tek kristal epitaksiyel büyüme ve grafitleşme yöntemleridir. 1970'lerde ortaya atılan bir fikir, epitaksiyel büyümenin grafen üretimini sağlayabileceği iki farklı mekanizmayı öne sürmüştür. İlk mekanizma, karbidlerin ısı ile bozunmasına dayanırken, ikinci mekanizma, hidrokarbonların kimyasal buhar biriktirme yöntemiyle metal veya metalik yüzeylerde grafenin epitaksiyel olarak oluşmasını içerir. Silisyum karbür, yaklaşık 1300°C'de vakum altında termal olarak aktive edildiğinde, silisyum atomlarının süblimleşmesi sonucu yüzeyde karbon bakımından zenginleşmiş bölgeler kalır. Bu bölgelerin yeniden düzenlenmesi, yeterince yüksek sıcaklıklarda grafitleşmeye yol açar. Silisyum karbür (SiC) yöntemi, genellikle termal ayrışma yoluyla grafen üretimi için kullanılır. Bu yöntemde, SiC kristalleri yüksek sıcaklıkta işleme tabi tutulur ve karbon atomlarının grafen yapıları oluşturduğu bir yüzey elde edilir. Yöntem, özellikle elektronik uygulamalar için yüksek kaliteli grafen üretimi açısından avantaj sağlar. SiC tabanlı grafen üretiminde işlem sıcaklıklarının ve sürelerinin optimize edilmesi, maliyetleri düşürmek ve verimliliği artırmak açısından önem taşır (Lie *et al.* 2009). Grafen, Şekil 1.3'te gösterildiği üzere, silisyum karbür tabakalarının ısıtılmasıyla sentezlenmektedir.



Şekil 1.3 Grafen sentez mekanizması için gerçekleştirilen silisyum karbür tabakalarına ise işlem uygulanarak gerçekleştirilen grafen sentez mekanizması (Korucu 2019)

1.3.3 Kimyasal buhar biriktirme (CVD) ile grafen üretimi

Kimyasal buhar biriktirme yöntemi, geniş yüzey alanlarına sahip yüksek kaliteli grafen üretimi için en etkili tekniklerden biridir. Kimyasal buhar biriktirme (CVD) tekniği, geniş ölçekli grafen üretimi için en yaygın kullanılan yöntemdir. Grafen, çoğunlukla Cu, Ru, Ir ve Ni gibi metaller üzerinde CVD yöntemiyle büyütülebilmektedir. Bu yöntemde, hidrokarbon gazlar (metan) yüksek sıcaklıklarda metal bir katalizör (bakır veya nikel) üzerinde ayrışarak grafen tabakaları oluşturur. Kimyasal buhar biriktirme yöntemi, özellikle elektronik ve optik özellikler gerektiren uygulamalarda tercih edilir (Zhang *et al.* 2013). Kimyasal buhar biriktirme yöntemi ile üretilen grafen, düşük hata oranına ve yüksek saflığa sahiptir. Ancak enerji tüketimi ve işlem maliyetleri yüksek olduğu için ticari ölçekte uygulanabilirliği sınırlıdır (Şimşek 2019). Şekil 1.4'te, Cu folyo yüzeyinde kimyasal buhar biriktirme (CVD) tekniği kullanılarak grafenin oluşumu şematik olarak gösterilmektedir.



Şekil 1.4 Kimyasal buhar biriktirme yöntemi ile grafen sentezi (Korucu 2019)

1.3.4 Kimyasal indirgeme yöntemi ile indirgenmiş grafen oksit üretimi

Kimyasal indirgeme yöntemi, grafen oksitin (GO) indirgenmiş grafen okside (rGO) dönüştürülmesini sağlayan, yaygın olarak kullanılan bir tekniktir. Bu yöntem, GO üzerinde bulunan zayıf vander-walls bağları ile birine bağlı olan oksijen içeren fonksiyonel grupların indirgeyici ajanlar yardımıyla uzaklaştırılması esasına dayanır. İndirgeme işlemi sırasında genellikle sodyum bor hidrür veya hidrazin hidrat gibi pahalı toksik etkileri olan kimyasallar tercih edilir. Son yıllarda çevreye duyarlı, toksik ve

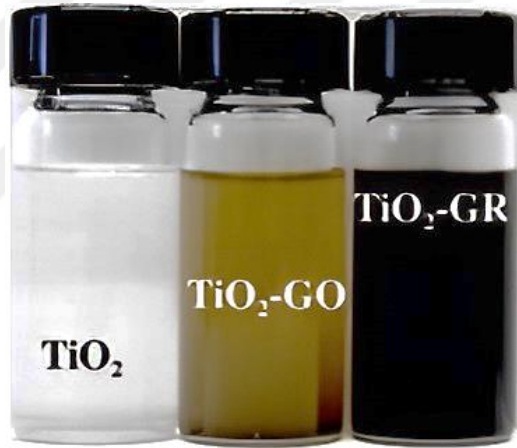
zararlı etkileri olmayan bileşiklerin kullanımı önem kazanmıştır. Literatürde askorbik asit, bitki ekstraktları gibi doğal içerikli birçok çalışma gerçekleştirilmiştir. Bu tez çalışmasında indirgen ajan olarak indirgen şekerleri kullanılması hedeflenmekte olup, bunlar fruktoz, glikoz ve galaktozdur. Kimyasal indirgeme, yüksek saflıkta ve geniş yüzey alanına sahip rGO üretimi açısından etkili bir yöntem olarak kabul edilir (Korucu 2022). Grafen oksit indirgenmesi, sadece elektriksel iletkenliği geri kazandırmakla kalmaz, aynı zamanda yüzey alanını artırarak mekanik özelliklerde iyileşme sağlar. Örneğin, Hummers yöntemi ile sentezlenen GO 'nin kimyasal olarak indirgenmesi, grafenin sıfır bant aralığına yaklaşmasını sağlar ve bu durum onu elektronik uygulamalar için daha uygun hale getirir (Tarcan *et al.* 2020).

1.3.5 Termal tavlama yöntemi ile indirgenmiş grafen oksit üretimi

Termal tavlama yöntemi, grafen oksidin yüksek sıcaklıklarda işlenerek indirgenmiş grafene dönüştürülmesini sağlayan bir tekniktir. Bu yöntem, grafen oksit tabakalarının oksijen içeren gruplardan arındırılması için yüksek sıcaklık ve inert gaz ortamı gerektirir. Genellikle, bu işlem 800-1000°C gibi yüksek sıcaklıklarda gerçekleştirilir. Termal tavlama yöntemi, kimyasal indirgeme yöntemine göre daha çevreci bir alternatif sunar, çünkü kimyasal reaktiflere ihtiyaç duymaz. Ancak, yüksek sıcaklık kullanımı enerji maliyetlerini artırabilir. Buna rağmen, elde edilen rGO 'nun elektriksel iletkenliği ve mekanik özellikleri, bu yöntemin endüstriyel uygulamalar için cazip bir seçenek olduğunu göstermektedir. Termal yöntemle elde edilen rGO 'nun, çimento kompozitlerinde üstün mekanik dayanım sağladığı ifade edilmiştir. Bu durum, yöntemin hem nano-malzeme sentezi hem de inşaat sektörü gibi farklı alanlarda uygulanabilirliğini artırmaktadır. Grafen oksidi indirgeme işlemi, termal tavlama süreci kullanılarak oldukça kolaydır. Ancak, bu stratejinin bazı olumsuz yönleri de vardır. Öncelikle, yüksek sıcaklıklara ulaşmak için gereken enerji ve bunun üretim maliyetlerine etkisi üzerinde durulabilir. İkinci olarak, daha önce gösterildiği gibi, yüksek sıcaklıklara maruz kalmak grafen oksit katmanının hasar görmesine yol açabilir (Bedeloğlu ve Taş 2016, Korucu 2019).

1.3.6 Fotokataliz varlığında indirgeme ile grafen oksit sentezi

Son yıllarda, grafen oksidin fotokatalitik indirgenmesiyle ilgili araştırmaların hızla arttığı görülmektedir. Fotokatalitik indirgeme süreçlerinde genellikle yarı iletken malzemeler kullanılmıştır. Örneğin, Titanyum dioksit (TiO_2) gibi yarı iletkenlerin ışık altında GO'yu indirgediği gösterilmiştir. Grafen oksidi ve titanyum dioksit, bir çözeltide ultraviyole ışınlarına maruz kaldığında, renkleri açık kahverengiden koyu kahverengiye ve nihayetinde siyaha doğru kademeli olarak değişir. Eğer grafen oksit başarıyla indirgenmişse, renk siyaha dönüşecektir. Yapılan bir çalışmada, azot doplu TiO_2 'nin görünür ışık altında GO'nun indirgenmesinde yüksek verimlilik sağladığı belirtilmiştir (Lu *et al.* 2014).



Şekil 1.5 GO içeren TiO_2 nanopartiküllerinin UV ışını ile rGO sentezi (Topaç 2014)

1.3.7 Elektrokimyasal indirgeme yöntemi ile grafen sentezi

Elektrokimyasal tekniklerle grafit pul pul dökülmesi, son zamanlarda grafenin seri üretimi için basit ama yine de yüksek verimli bir yöntem haline gelmiştir. Bu yöntem, elektrotların genişlemesini sağlamak için sulu veya sulu olmayan bir elektrolit ve elektrik akımında elektrot olarak grafit folyolar, plakalar, çubuklar ve grafit tozları gibi çeşitli grafit formlarının kullanılmasını içerir (Su *et al.* 2011). Elektrotlar uygulanan güce göre Katodik (Negatif) ve Anodik (Pozitif) elektrotlar olmak üzere iki tipte olabilir. Grafit çubukları elektrolitle doldurulmuş bir elektrokimyasal hücreye

yerleřtirdiler. 5V 'luk kalıcı bir akım uygulandı. Birkaç dakikalık elektroliz, anotta siyah bir malzemenin birikmesine neden oldu. Ürünü hücreden izole etmek için pul pul dökölme işlemi 4 saat boyunca sürdürölldü. Daha sonra 1000 rpm'de santriföljlendi. Elde edilen dağılımın son derece kararlı olduğı bulundu. Toz haline getirilmiş kuru grafen, dispersiyonun deiyonize su ve alkol ile yıkanması ve ardından vakumlu kurutma ile elde edildi (Shams *et al.* 2015).

1.3.8 Grafenin teknoloji ve enerjideki uygulamaları

Grafenin hafif yapısı, elektriksel ve termal özellikleri, güçlü mekanik ve mukavemet özellikleri nedeniyle birçok farklı uygulamalarda yaygın olarak yer almaktadır. Grafenin çok yönlölülüğü, şeffaf yapısından kaynaklanmaktadır ve bu yapı birçok üründe kullanılmaktadır. Bunlar arasında organik ışık yayan diyot ekranları, sıvı kristal iletken oksit (OLED) ekranlar, şeffaf iletken oksitler (TCO) içeren ekranlar, piller ve süperkapasitörler için elektrotlar yer alır. Castro *et al.* (2016) göre, grafenin iki boyutlu altıgen karbon yapısı, onu elektronik ve elektriksel bileşenlerde kullanılmak için ideal bir malzeme haline getirmektedir. Ancak, elektrikli cihaz bileşenlerinin küçölmesinin bir tavan noktası noktasına ulaştığı görölmemektedir, ancak grafen bu sınırın ötesine geçme fırsatı sunmaktadır. Son birkaç yılda, grafen bilgisayar teknolojisinde dokunmatik ekran teknolojisinde de kullanılmaya başlanmıştır. Dokunmatik ekranlar yapmak için indiyum kalay oksit yaygın bir malzemedir. İndiyum, doğal olarak nadir bir element olduğundan, dokunmatik ekranlar için indiyum yerine kullanılabilecek malzemeler araştırılmaktadır. Birçok kiři, grafenin yakında indiyumu ikame edebileceğini düşünmektedir. Grafenin esneklik özelliğı, onu çeşitli esnek teknik ürünlerde istenilen bir bileşen yapmaktadır. Şu anda grafenden yapılmış esnek ekranlara sahip akıllı telefonlar piyasada mevcuttur (Geim ve Novoselov 2017). Son zamanlarda, grafen kompozitlerinin popülerliğı artmaktadır. Grafen kompozitleri, birçok giyilebilir elektronik, medikal tekstil ve çok fonksiyonlu kumaşlar için tercih edilen malzeme haline gelmiştir. İletken nanofabrik tekstiller, grafenin olağanüstü özelliklerinin kullanıldığı bir alandır (Tiyek vd. 2016). Grafen, yüksek yüzey alanı nedeniyle piller ve süper kapasitörler gibi enerji depolama cihazlarında uygulanır. Li-İon pillerde grafen yaygın olarak anot olarak kullanılır. Grafen ayrıca daha uzun ömürlü piller ve daha hızlı

şarj süresi sunar (Abdelkader *et al.* 2017). Grafen nano gözenekli membranlar, gözenek boyutuna ve uygulanan basınca bağlı olarak % 33 ila % 100 verimlilikle sudan tuzu ayırma ve filtreleme işlemlerinde kullanılabilir. Tuzlu suyun tuzdan arındırma kapasitesi, zarın gözenek boyutuna, kimyasal bileşimin miktarına ve uygulanan basınca bağlıdır. Grafen membranlar, tuzun % 97 'sini deniz suyundan ayırma kapasitesine sahiptir (Cohen and Grossman 2012).

1.4 Grafen Oksit ve İndirgenmiş Grafen Oksidin Karakterizasyonu ve Kalite Değerlendirme Yöntemleri

Grafen oksit ve indirgenmiş sentezinin karakterizasyonu için çeşitli yöntemler tercih edilmektedir. Bu tezin amacı, grafen oksidi (GO) ve indirgenmiş grafen oksidi (rGO) karakterize etmek ve kalitelerini değerlendirmektir. Bu görev, çeşitli stratejiler gerektirir. Sentetik GO ve rGO, kalite kriterlerini belirlemek için çeşitli görüntüleme spektroskopisi, X-ışını kırınımı, taramalı elektron mikroskobu, yüzey alanı ölçümü, zeta potansiyeli ve Fourier dönüşümlü kızılötesi spektroskopisi (FTIR) cihazları kullanılarak değerlendirilir.

1.4.1 Taramalı elektron mikroskobu

SEM-EDS analizi, yüzey analizi tekniğine hızlı, ucuz ve tahribatsız bir yöntemdir. SEM-EDS, grafen oksit oksidasyon işleminin verimliliğini elde etmek için önemli bir tekniktir. Yüzey topografyasının yüksek çözünürlüklü görüntülerini üretmek için yüksek odaklı elektron ışını kullanılır. Cihaz analiz edilecek olan malzemenin yüzeyini tarayan çok ince bir elektron ışını göndererek, elektron ve foton dedektörleri ile tarama gerçekleştirerek, sinyalleri alır ve yüzey yanıtını mikroskobik bir görüntüye dönüştürür. Kimyasal analiz için malzemeye elektromanyetik sinyaller gönderilir ve enerji dağıtıcı X-ışını spektroskopisi (EDS) olarak adlandırılır. SEM+EDS sonuçlarından elde edilen karbonun oksijene oranı değerleri ile sentezlenen grafen oksit ve indirgenmiş grafen oksitteki, farklılıklar analiz edilmeye çalışılmıştır. Grafit, grafen oksit yapıların EDS analizinde, saf karbon yapısından dolayı grafitin C/O oranı 85~100 olarak çıkmaktadır. Oksidasyon işleminden grafen oksitteki C/O oranı 2-3 arasında değişmektedir.

Kimyasal indirgenme işlemi ile birlikte mümkün olduğunda yüksek olması hedeflenir (Korucu 2022). Şekil 1.6'da taramalı elektron mikroskobu (SEM-EDX) ait görsel verilmiştir.



Şekil 1.6 Taramalı elektron mikroskobu (SEM-EDS) cihaza ait görsel

1.4.2 FTIR spektroskopisi

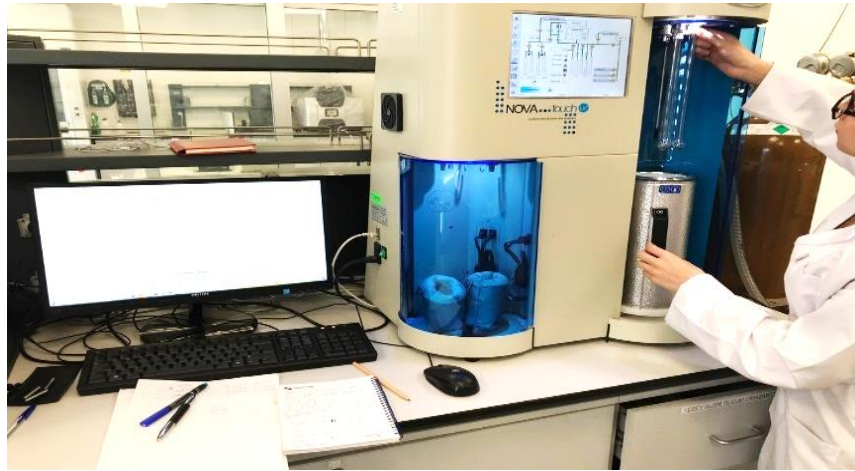
FTIR-ATR spektroskopisi, grafen oksit yapısında çok önemli olan hidroksil, karboksil ve epoksi grupları gibi fonksiyonel grupların kimyasal bağlanma etkileşimlerini ve mevcudiyetini ölçer. Aynı şekilde grafen oksitin indirgenmesi esnasında yapıdan uzaklaştırılan fonksiyonel gruplara ait piklerin kaybolması, indirgenmenin performansı hakkında bilgi vermektedir (Hidayah *et al.* 2017). FTIR'dan elde edilen sonuçlar absorptans veya geçirgenlik (y eksen) ve radyasyon dalga boyu (x eksen) olarak 4000-400 cm dalga boyu (orta kızılötesi bölge) aralığında gösterilebilir. Bu teknik, örneklerle ait absorptansları ve geçirgenlikleri farklı frekanslarda yoğunlukları ile birlikte gösterir. (Rattana *et al.* 2012). Grafen oksit ve indirgenmiş grafen oksit sentezinde sentezin verimi ve başarısı karar verme açısından etkili ve hızlı bir yöntemdir. Şekil 1.7'de FTIR-ATR spektroskopisi ait görsel verilmiştir.



Şekil 1.7 FTIR-ATR spektroskopisi analizlerinin gerçekleştirildiği cihaza ait görsel

1.4.3 Yüzey alanı ölçümü

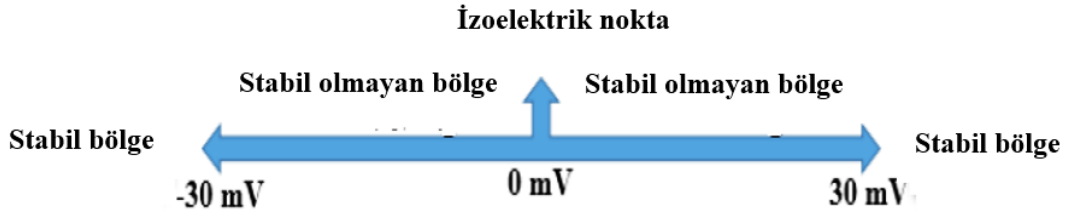
BET(Brunauer-Emmett-Teller) yöntemi, malzemelere ait yüzey alanı ölçümlerini gerçekleştirebilmek için yüksek saflıkta azot gazının fiziksel olarak soğurulmasına dayanan bir ölçüm metodudur. Yüzey alanı ölçümü değerleri, malzemenin yüzeyine gönderilen azot gazının, sıvılaştırılmış nitrojenin kaynama noktasında ve atmosfer basıncında, adsorplanan azot gazı miktarı, BET metoduna göre hesaplanması elde edilir. (Qi *et al.* 2015). Şekil 1.8’te yüzey alanı ölçüm BET cihazına ait görsel verilmiştir. Grafen oksit ve indirgenmiş grafen oksit sentezinde yüzey alanı değerleri, hem kullanım alanları için hemde malzemenin karakterizasyonu için büyük önem taşımaktadır.



Şekil 1.8 Yüzey alanı ölçüm (BET) cihazına ait görsel

1.4.4 Zeta potansiyeli ve parçacık boyut dağılımı ölçümü

Zeta potansiyeli (ZP), koloidal çözeltide nanopartiküllerin yüzey yükünün elde edilmesiyle ilgilenen analitik bir tekniktir. Yüklü bir parçacığın yüzeyi, ince bir zıt yük tabakasını çeker ve ona kuvvetli bir şekilde bağlanarak ince sıvı tabaka oluşturur. Parçacık çözelti içinde yayıldığında, serbestçe ilişkili iyonlardan oluşan ve elektriksel çift katmanın oluşmasına neden olan bir dış dağınık tabaka ile etkileşime girer. ZP, dış elektrik alanı varlığında numune çözeltisi boyunca elektrota doğru göç eden yüklü parçacıkların hız ölçümü yoluyla elde edilebilir. ZP değerleri aralığı +100 ila -100 mV arasındadır ve büyüklüğü koloidal stabilitenin bir göstergesidir. Normal olarak, ZP değerleri +30 mV'den yüksek veya -30 mV'den düşük olan nanopartiküller yüksek stabiliteyi gösterir. 30 mV'den düşük veya -30 mV büyük olan ZP değerleri, van der Waals parçacıklar arası kuvvetleri nedeniyle parçacıkların bir araya gelerek topaklanma ve çökelme olduğunu gösterir (Korucu *et al.* 2023). Şekil 1.9'da nano akışkanlar için Zeta Potansiyel özellikleri gösterilmiştir.



Şekil 1.9 Nano akışkanlar için Zeta Potansiyeli özellikleri (Majeed 2024)

100 nanometreden daha küçük parçacık boyutları, maddenin makro boyutlarındaki fiziksel özellikleri (elektriksel, optik, mekanik vb.), ile nano boyut bölgesi birbirine göre kıyaslandığında, çok farklı sonuçlar elde edilmektedir. Makro ölçekteki bir opak malzeme, nano ölçeğe geçtiğinde şeffaf hale gelebilir, çözünmeyen maddeler çözünür hale gelebilir. Grafen oksit ve indirgenmiş grafen oksit malzemelerinin nano formda olması, malzemenin özellikleri ve kullanım alanları açısından büyük önem taşımaktadır (Kiamahalleh *et al.* 2020). Şekil 1.10'da Zeta Sizer cihazına ait görsel verilmiştir.



Şekil 1.10 Zeta sizer cihazı

1.4.5 Raman spektroskopisi

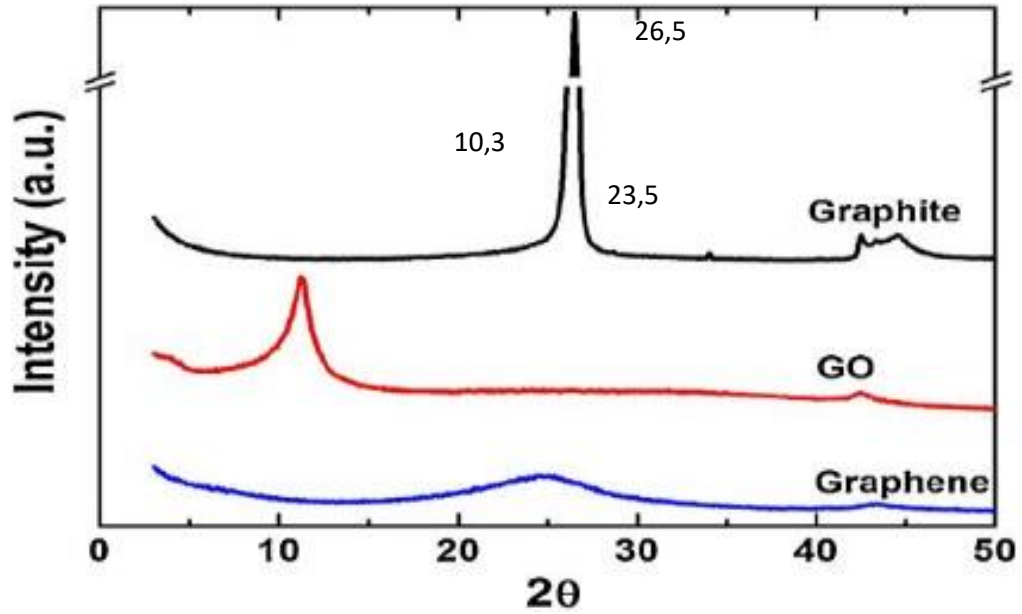
Raman spektroskopisi, grafen oksit dahil malzemeleri karakterize etmek için yaygın olarak kullanılan güçlü bir analitik tekniktir. Moleküler titreşimlerle etkileşime girerek benzersiz spektral bilgiler üreten yüksek odaklı bir lazer ışını kullanılır. Bu teknik özellikle grafen tabanlı malzemelerin yapısını ve kalitesini analiz etmede çok etkilidir. Raman spektroskopisindeki D / G oranı, grafen oksit için kritik bir parametredir. D bandının (yaklaşık 1350 cm^{-1} , karbon kafesteki kusurları veya bozuklukları gösterir) G bandına (yaklaşık 1590 cm^{-1} , sp^2 'ye bağlı karbon atomlarının titreşimiyle ilişkili) yoğunluk oranını ifade eder. Bu oran, grafen yapılarındaki bozukluk veya kusurların derecesini değerlendirmek için kullanılır ve daha yüksek bir D / G oranı daha fazla kusuru gösterir (Muzyka *et al.*2018). Şekil 1.11'de Raman spektroskopisi cihazına ait görsel verilmiştir.



Şekil 1.11 Raman spektroskopisi cihazı

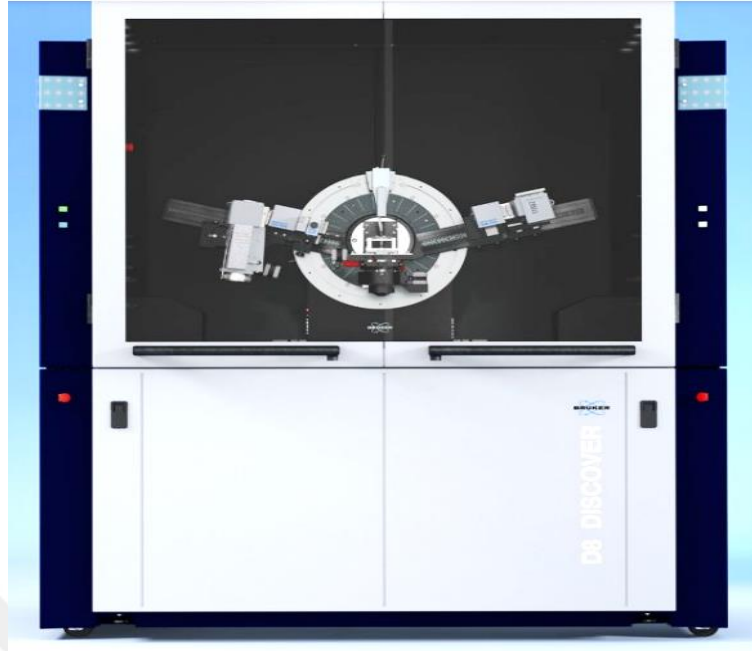
1.4.6 X ışınları saçılımı

X-ışını kırınımı (XRD), malzemenin kristal yapısını aydınlatır ve yapısındaki safsızlıkları tespit eder. Şekil 1.12, grafit, grafen oksit ve grafen için XRD desenlerini göstermektedir. XRD deseninde, grafit, $2\theta = 26.5^\circ$ 'de belirgin bir zirveye sahiptir. Oksidasyon süreçlerinin başlatılmasıyla, grafit zirvesi $2\theta = 9-13^\circ$ aralığındaki bir değere kayar ve grafen oksidin karakteristik özelliklerini gösterir. Grafen oksidin indirgenmesiyle birlikte, oksijen fonksiyonlarının giderilmesi nedeniyle grafen okside karşılık gelen zirve kaybolur ve $2\theta = 22-28^\circ$ aralığında yeni bir geniş zirve ortaya çıkar (Stobinski *et al.* 2014).



Şekil 1.12 Grafit, grafen oksit ve grafene ait XRD örüntüleri (Johra *et al.* 2013)

Grafen oksit (GO) indirgendikçe, fonksiyonel grupların (C-O-C, C=O, C-H, C-OH) kaldırılması nedeniyle katmanlar arası mesafe azalır. Grafen yapısındaki kusurlar, zirveyle ilişkili olan piklerin büyümesiyle gösterilir. Pik genişler ve düzensizlik arttıkça katmanlar arası mesafe artar. Kristal boyutunda bir azalma ile birlikte, gelişen piklerin büyüklüğü de azalır (Hidayah *et al.* 2017). Şekil 1.13'de kullanılan XRD cihazına ait görsel verilmiştir.



Şekil 1.13 XRD cihazına ait görsel

1.5 Deney Tasarımı

Deneysel tasarım, 1920'lerin başında İngiliz istatistikçi Ronald Fisher'ın tarım üzerine yaptığı araştırma ve araştırmalarla belirlendi. Bu yöntem, çeşitli gübrelerin ve iklim koşullarının farklı ürünler üzerindeki etkilerini ve tarımı belirlemek için yalnızca Amerika Birleşik Devletleri'ndeki tarım sektöründe yoğun bir şekilde kullanılmıştır. Deneysel tasarımın temelleri 1950'lerin başına kadar bilinmese de Japonya'da çok kullanılıyordu. Japon mühendisler bu yöntemler üzerinde yoğun bir şekilde çalıştılar ve deneysel tasarım yöntemlerini istatistiksel yöntemlere birlikte kullanabilmeyi başardılar. Taguchi metodu deney tasarımı ile birlikte kullanılan yöntemlerden bir tanesidir.

1.5.1 Taguchi deney tasarımı ve aşamaları

Japon bilim adamı Genichi Taguchi, 1980'lerde yeni bir yaklaşım getirdi ve süreç tasarım yöntemi geliştirdi. Taguchi yöntemine göre, kalite karakterizasyonunu sağlamanın ilk adımı, hedeflenen ürün üretiminden önce yapılan deneysel tasarım dizisidir. Taguchi yönteminin temel amacı; Belirlenen hedef değerde değişime sahip olan kontrol edilebilir faktörlerin belirlenmesi, kontrol edilemeyen faktörlerin ise en

uygun süreç adımlarının minimum düzeyde belirlenmesidir. Taguchi metodu, deney tasarımı kaliteyi artırmak ve süreç değişkenliklerini azaltmak amacıyla kullanılan güçlü bir araçtır. Bu metodoloji, istatistiksel deney tasarımı prensiplerini kullanarak bir ürün ya da sürecin belirli bir yanıt üzerinde maksimum etkiyi sağlayan faktör ve seviyelerini belirler. Taguchi metodu, deneylerin maliyetini düşürürken optimum sonuçların elde edilmesine olanak tanır. Bunun temelinde, faktörlerin ve seviyelerinin bir ortogonal dizi çerçevesinde düzenlenmesi yatar. Bu sayede, sınırlı sayıda deneyle tüm olası kombinasyonlar için genellenebilir sonuçlar elde edilebilir. Taguchi deney tasarımı, bir sürecin veya ürünün performansını geliştirmek için belirli adımlar çerçevesinde uygulanır.

Taguchi yönteminin deneysel tasarımıda yer alan adımlar şu şekildedir (Taguchi, 1995):

- Parametreleri ve bunların seviyelerini belirleyin.
- Uygun ortogonal diziyi seçin.
- Faktörleri ve seviyeleri ilgili sütunlara atayın.
- Deneyleri yapın ve sonuçları toplayın.
- Sonuçları analiz edin.

1.5.5.1 Parametrelere ve seviyelerin belirlenmesi

Optimizasyon sürecinin amacının tanımlanmasının ardından, incelenecek ana etki öğelerinin belirlenmesi gerekmektedir. Taguchi teorisinde kontrol edilebilir etkiler "sinyal" olarak adlandırılırken, kontrolsüz etkiler "gürültü faktörleri" olarak adlandırılmaktadır. Majeed'e (2024) göre, deneysel tasarım, kontrol edilen etkilerin miktarı ve büyüklüğüyle belirlenir. Sürecin performans özelliklerini etkileyen faktörler belirlendikten sonra, bu faktörler için seviyeler oluşturulur. Deneysel tasarım modeline bağlı olarak iki, üç veya daha fazla parametre seviyesi seçilebilir. Taguchi yöntemi parametrelerin, seviyelerine ait optimum noktaları belirleyebilmek için başarılı bir yöntemdir (Korucu 2019). Taguchi yönteminde, Şekil 1.14'deki ortogonal tasarım

modellerinde uygun olanlar tasarım seçilerek, çok daha az sayıda deney gerçekleştirerek, sonuçlara ulaşmak mümkündür.

1.5.5.2 Uygun ortogonal dizinin seçiminin yapılması

Deney tasarımı yaparken, ortogonal diziler yaygın bir araçtır. Bu tür diziler, faktörleri ve seviyelerini eşit şekilde kullanılacak şekilde değiştirir. Deneysel tasarım matrisleri, ortogonal diziler için bir diğer isimdir. (Madhav 1989) göre, bu genellikle ortogonal deneysel tasarım matrisi olarak bilinir ve yaygın gösterimi $L_d(a)k$ şeklindedir.

d: Deneme sayısının toplamı

a: Parametre seviyeleri

k: Parametre sayısı

L: Ortogonal bir ızgara

Ortogonal diziyi nihai olarak seçmeden önce, parametrelerin toplam serbestlik derecelerinin belirlenmesi önemlidir. Bu, deney için en uygun tasarımın seçilmesine yardımcı olur. Toplam serbestlik dereceleri hesaplandıktan sonra yalnızca uygun diziler kullanılmalıdır. Parametre seviyelerinin serbestlik derecelerinin toplamı, toplam parametre serbestlik derecelerine eşittir (Korucu 2019). Dört parametre ve üç seviyeye sahip bir tasarım için seçilebilecek ortogonal dizi, Çizelge 1.1'de gösterilmiştir. Her parametrenin serbestlik derecesi, seviye sayısından bir eksiktir.

Çizelge 1.1 Oplam serbestlik derecesinin hesaplanması (Madhav1989)

Faktör / Etkileşim	Serbestlik Derecesi Hesaplaması	Serbestlik Derecesi
A	$VA=KA-1=3-1$	2
B	$VB=KB-1=3-1$	2
C	$VC=KC-1=3-1$	2
D	$VD=KD-1=3-1$	2
Toplam Serbestlik Derecesi	$VA+VB+VC+VD$	8

Seçilen deneysel tasarımda yapılan deneylerin sayısından bir eksik olan toplam serbestlik derecesi, tek mümkün olan serbestlik derecesidir. Şekil 1.14, verilen

Şekil 1.1'deki tasarıma en uygun ortogonal diziyi bulmak için kullanılabilecek Taguchi ortogonal dizi seçim tablosunu göstermektedir.

SEVİYE SAYISI													
PARAMETRE SAYISI	2		L4	3		L9	4		L' 16	5		L25	
	P=2	S=2		P=2	S=3		P=2	S=4		P=2	S=5		
	P=3	S=2		P=3	S=3		P=3	S=4		P=3	S=5		
	P=4	S=2		P=4	S=3		P=4	S=4		P=4	S=5		
	P=5	S=2	L8	P=5	S=3	L18	P=5	S=4	L' 32	P=5	S=5	L50	
	P=6	S=2		P=6	S=3		P=6	S=4		P=6	S=5		
	P=7	S=2		P=7	S=3		P=7	S=4		P=7	S=5		
	P=8	S=2		P=8	S=3		P=8	S=4		P=8	S=5		
	P=9	S=2	L11	P=9	S=3	L27	P=9	S=4		P=9	S=5		
	P=10	S=2		P=10	S=3		P=10	S=4		P=10	S=5		
	P=11	S=2		P=11	S=3					P=11	S=5		
	P=12	S=2		P=12	S=3					P=12	S=5		
	P=13	S=2	L16	P=13	S=3	L36							
	P=14	S=2		P=14	S=3								
	P=15	S=2		P=15	S=3								
	P=16	S=2		P=16	S=3								
	P=17	S=2	L32	P=17	S=3								
	P=18	S=2		P=18	S=3								
	P=19	S=2		P=19	S=3								
	P=20	S=2		P=20	S=3								
	P=21	S=2		P=21	S=3								
	P=22	S=2		P=22	S=3								
	P=23	S=2		P=23	S=3								
	P=24	S=2											
	P=25	S=2											
	P=26	S=2											
	P=27	S=2											
	P=28	S=2											
	P=29	S=2											
	P=30	S=2											
	P=31	S=2											

Şekil 1.14 Taguchi yöntemi kullanılarak seçilen diziler (Madhav1989)

1.5.5.3 Faktörlerin ve bunlara karşılık gelen seviyelerin sütunlara atanması

Parametreler ve seviyelerine ait veriler seçilen deney tasarımındaki ortogonal düzene göre işlenerek, bu deney tasarım planına göre deneyler gerçekleştirilir. Deney tasarımına göre gerçekleştirilen deneyler en az üç tekrar olarak gerçekleştirilir. Birine en yakın iki değer alınarak veriler işlenir (Korucu 2019).

1.5.5.4 Deneylerin yapılarak sonuçların elde edilmesi

Performans istatistiklerini seçerken geliştirilen tasarım modelleri için birçok performans kriterinin özellikleri göz önünde bulundurulur. Veri analizini etkinleştirmek için performans istatistiklerinin hedef değerini belirlemek çok önemlidir. S / N oranı, Taguchi tasarımlarında seçilen performans istatistiksel değeridir ve tasarımın sonuçlarının etkinliğini değerlendirmek için kullanılır. Sinyal-gürültü oranı (S / N) veya Taguchi kayıp fonksiyonu olarak bilinen, hedefe uygun üç farklı işlev vardır. Bu, istenen sonuçlar olarak "küçük en iyi", "en büyük en iyi" ve "nominal en iyi" kullanılarak S / N oranlarını hesaplamak için aşağıdaki formüller kullanılır (Karna *et al.* 2012).

Denklem (1.1), (1.2) ve (1.3), sırasıyla performans sonuçlarının küçük, büyük veya nominal hedef değerle ilişkilendirildiği durumları temsil eder. Bu denklemler, tasarımın etkinliğini değerlendirmek için kullanılır ve tasarım parametrelerinin optimize edilmesine katkı sağlar.

En düşük (küçük) en iyi olduğu durumda;

$$SN_S = -10 \log \left(\frac{1}{n} \sum_{i=1}^n y_i^2 \right) \quad (1.1)$$

En yüksek en iyi olduğu durumda;

$$SN_L = -10 \log \left(\frac{1}{n} \sum_{i=1}^n \frac{1}{y_i^2} \right) \quad (1.2)$$

Nominal en iyi olduğu durumda;

$$SN = -10 \log \left(\frac{\bar{y}^2}{s^2} \right) \quad (1.3)$$

Burada: $\tilde{y} = \left(\frac{1}{n} \sum_{i=1}^n y_i\right)$ ve $S^2 = \left(\frac{1}{n-1} \sum_{i=1}^n (y_i - \tilde{y})^2\right)$

Eşitliklerde, y_i i'nci deneye ait sonuç değerini, n tekrar sayısını, $\tilde{y}$ deney sonuçlarının ortalamasını ve S^2 deney bulgularındaki varyansı ifade etmektedir (Taguchi, 1995).

1.5.5.5 Çalışmanın değerlendirilmesi

Parametreler için en iyi değerleri bulmak amacıyla, deneysel tasarımdan elde edilen veriler üzerinde testler yapılması gereklidir. Optimum faktörler ve seviyeler belirlendikten sonra, yalnızca bu faktörler ve değerler kullanılarak bir model oluşturulur. Bu işlem tamamlandığında, model doğrulama denemeleri yapmak ve varyans ve faktör etki analizleri gibi çeşitli çalışmalar için kullanılabilir (Korucu 2019).

1.6 Çalışmanın Amaç ve Gerekçesi

Nanoteknolojinin gelişimi ile grafen oksit gibi karbon bazlı nanomalzemeler, birçok farklı alanda önemli bir araştırma konusu haline gelmiştir. Grafen oksit, benzersiz yapısal özellikleri ve işlevselliği ile özellikle enerji depolama, biyomedikal uygulamalar, sensörler ve çevre mühendisliği gibi alanlarda geniş bir kullanım potansiyeline sahiptir (An *et al.* 2023). GO 'nun kimyasal olarak indirgenmesi ile grafene yakın özellikler kazandırılması, bu materyalin performansını ve uygulama çeşitliliğini artırmada önemli bir yöntem olarak öne çıkmaktadır. Kimyasal indirgeme işlemlerinde kullanılan indirgeme ajanlarının türü ve uygulama parametreleri, elde edilen ürünün özelliklerini doğrudan etkilemektedir. Bu bağlamda, doğal karbonhidratlar olan glikoz, fruktoz ve galaktoz gibi çevre dostu ve sürdürülebilir indirgeme ajanları, grafen oksit sentezinde geleneksel kimyasal ajanlara alternatif olarak dikkat çekmektedir. Bu maddeler, düşük toksisiteleri ve biyolojik olarak parçalanabilir olmaları nedeniyle çevresel açıdan avantaj sağlamaktadır. Andre Geim ve Konstantin Novoselov'un grafen üzerine yaptıkları geliştirmeler, 2010 yılında onlara Nobel Fizik Ödülü'nü kazandırmıştır. Karbon atomlarının iki boyutlu bir desen halinde düzenlendiği tek bir katman, olağanüstü iki boyutlu malzeme olan grafeni oluşturur. Elmaslar, grafit,

karbon nanotüpler ve fullerens gibi karbon allotropları bunu oluşturur. Araştırmacılar, grafenin benzersiz özellikleri nedeniyle buna ilgi duymaktadır (Lee *et al.* 2013). Son yıllarda, grafenin güneş hücreleri, enerji depolama cihazları, sensörler, fotodetektörler, polimer kompozitler ve nanokompozitlerdeki potansiyel kullanımı üzerine yapılan araştırmalar artmıştır (Korucu 2019).

1.6.1 Grafen oksit sentezi ve performans değerlendirmesi

Son yıllarda grafen oksitten kimyasal indirgenme yöntemi ile indirgenmiş grafen oksit sentezine yönelik çalışmalara yoğun ilgi oluşmuştur. Literatürde ağırlık olarak çalışmalar hidrazin ve sodyum bor hidrür üzerine yoğunlaşmıştır. Araştırmacılar pahalı ve toksik kimyasallar kullanmak yerine alternatif çevreye duyarlı kimyasallar kullanarak indirgenmiş grafen oksit sentezi ilgi çekmektedir. Biz bu çalışmada süt şekerleri olan glikoz, fruktoz ve galaktozun, indirgenmiş grafen oksit sentezinde kullanılarak indirgeme performanslarının değerlendirilmesini hedefliyoruz. Bu, galaktoz, glikoz ve fruktoz yaygın monosakkaritleri içerir. Bunlara 'indirgeyici şekerler' denir çünkü aldehit grubunun varlığı, karboksilik asit oluşturmak için kolayca oksidasyona uğramalarına neden olur ve bu süreçte reaktif reaktifler kolayca indirgenir. Literatürde yapılan çalışmalar incelendiğinde, istatistiksel deneysel tasarım yöntemi kullanılarak doğal içerikli indirgeyici ajanların performanslarının bir deney tasarım içinde değerlendirildiği göre bir metot kullanılmamıştır. Bu tezde, grafen oksit sentezi sürecinde yer alan kimyasal indirgeme işlemini daha derinlemesine anlamak için istatistiksel deneysel tasarım tekniği (DoE) kullanılmıştır. DoE yaklaşımları, parametreler için en iyi değerlerin belirlenmesi, yanıtları etkileyen değişkenlerin incelenmesi ve optimizasyon prosedürleri gibi süreçlerde büyük iyileşmeler sağlar. Tam faktöriyel tasarımlar gibi diğer deneysel tasarım (DoE) metodolojilerine kıyasla, Taguchi deneysel tasarımı kısmi faktöriyel tasarımın bir alt kümesi daha basit ve daha ucuz bir şekilde uygulanabilir. Gereken özelliklere sahip ürünü elde etmek için ideal kombinasyon oranlarının belirlenmesi önemlidir.

Grafen oksit, bu tezde ilk olarak Hummers tekniğiyle üretilmiştir. Ardından, oluşturulan grafen oksit örneklerinin kimyasal indirgenmesiyle indirgenmiş grafen oksit elde

edilmiştir. Deneyler, 4 parametre ve 3 seviyeye sahip $L_9 (3^4)$ ortogonal deneysel tasarım modelleri kullanılarak gerçekleştirilmiştir. $L_9 (3^4)$ ortogonal deneysel tasarım modeline uygun olarak, sonuçlar Raman analizi verileri kullanılarak belirlenmiştir. Bu veriler, D/G pik oranı, kristal büyüklüğü (XRD analizi ile belirlenen), yüzey alanı (BET analizi ile belirlenen), karbon-oksijen oranı (SEM+EDS analizi ile belirlenen) ve Zeta potansiyeli ile parçacık boyutu dağılımını (ZETA analizi ile belirlenen) içermektedir.

Taguchi yaklaşımını her bir çalışma verisi setine uygulayarak, her bir metrik için tatlı nokta belirlenebilmiştir. Ayrıca, $L_9 (3^4)$ ortogonal deneysel tasarım modelindeki her bir kriter için optimum sonuçlar, grafen oksit örnekleri referans alarak elde edilmiş ve iyileşme oranları hesaplanmıştır. Referans testleriyle karşılaştırıldığında, optimum parametre değerleriyle yapılan deneylerden elde edilen sonuçlar daha iyiydi.

2. LİTERATÜR ÖZETİ

Araştırmacılar son yıllarda grafen oksit ve indirgenmiş grafen oksit sentezi üzerinde çalışmalara büyük ilgi göstermektedir. Bu sebeple grafen oksit ve indirgenmiş grafen oksit sentezi üzerine yeni yaklaşımlar metotlar geliştirilmektedir. Kimyasal indirgenme metodu ile indirgenmiş grafen oksit sentezi üzerindeki son yıllardaki çalışmalar çevreye duyarlı toksit etkileri olmayan çalışmalar ilgi görmektedir. Çalışmanın bu kısımda, tez konusu ile ilgili literatür araştırmaları yapılmış ve aynı alanda benzer konu içeren araştırmalara yer verilmiştir.

İncelenen çalışmada; indirgeyici özelliği ve toksik olmayan özellikleri sebebiyle glikoz grafen oksitin indirgenmesinde indirgeyici bir ajan olarak çalışır, ancak glikozun grafen oksitin indirgenmesindeki performansı biraz düşük kalmaktadır. Ancak, amonyak ile pH artırmak veya demir folyo gibi katalizörler kullanılması ile indirgenme verimi artırılabilir. Amonyak çözeltisinde, grafen oksit, glikozu oksitleyerek laktonlara dönüştürerek aldonik asit oluşturur. Grafen oksitin glikoz ile indirgenmesi neticesinde, çözelti rengi açık kahverengiden siyaha dönüşür. Bu renk değişimi fonksiyonel grupların yapıdan uzaklaşmasına bağlı olarak karbon atomlarının yapraklar arasındaki π - π yapısının kısmi restorasyonu bağlanabilir. İndirgenmiş grafen oksit sentezi esnasında tabaka kenarlarında kıvrılmalar ve büzölmeler meydana gelir. Buda yapıda meydana gelen kusur oranını artırdığını bildirmişlerdir (Sova 2012, Silva *et al.* 2018).

Glikozun demir gibi metallerin varlığında indirgenme performansının incelendiği bu çalışmada grafen oksitin indirgenme performansını artırdığı ve indirgenmiş grafen oksitin deoksijenlenmesini artırarak, grafitik yapının geri kazanılmasına yardımcı olduğunu bulunmuştur (Hernández-Chávez *et al.* 2019). Bazı uygulamalar için belirli miktarda fonksiyonel gruplara sahip indirgenmiş grafen oksit istenir. Bunun için glikoz kullanılarak fonksiyonel gruplar açısından kısmen indirgenmiş grafen oksit üretmek için tek adımlı hidrotermal yöntemle sağlanabilir (Muhammad *et al.* 2021)

Grafen oksitin dispersiyon özelliklerini iyileştirmek için amonyak ortamında D-fruktoz ve D-galaktoz kullanılarak indirgenmiş grafen oksit sentezinin hedeflendiği bu çalışmada, grafen oksitin yapısında bulunan fonksiyonel grupların başarılı bir şekilde uzaklaştırılarak indirgenmiş grafen oksit sentezi gerçekleştirilmiştir. Bununla birlikte, D-fruktozun indirgeme verimliliği D-galaktozunkinden daha yüksek bulunmuştur. Ayrıca sentezlenen indirgenmiş grafen oksitin elektrokimyasal performansı göz önüne alındığında, D-Fruktoz D-galaktozdan daha iyi performans gösterdiği tespit edilmiştir (Xu *et al.* 2016).

Grafen oksit kimyasal indirgeme aşamasındaki kritik noktalardan biri, çevresel açıdan önemli olan indirgeyici malzeme seçiminin vurgulandığı bu çalışmada hidrazin gibi kanserojen maddeler yerine daha çevreci kimyasalların seçilmesi hedefi askorbik asit ve sodyum borohidrürün indirgenme performanslarının değerlendirilmesi hedeflenmiştir. Bu hedefle her iki bileşik için $L_9 (3^2)$ deney tasarım modeli oluşturularak yüksek sıcaklık ve pH'ın etkisinin indirgenmiş grafen oksit sentezi üzerinde etkisinin TOPSİS bazlı Taguchi metodu kullanılarak analiz edilmiştir. İndirgenme performansı üzerinde yüksek sıcaklık ve yüksek pH olumlu etki gösterdiği tespit edilmiştir. İyileşme oranları incelendiğinde sodyum bor hidrür ile gerçekleştirilen tasarımda Askorbik aside göre daha iyi sonuçlar alınsa da çevreye duyarlı ve maliyetler açısından da düşünüldüğünde, sodyum bor hidrür yerine Askorbik asit gibi doğal içerikli indirgeyici ajanların indirgenmiş grafen oksit sentezinde kullanımı bir alternatif olacaktır (Korucu 2022).

Glikoz, fruktoz ve sakarozun grafen oksitin indirgenmesinde kullanıldığı çalışmada, ilk olarak Hummers metodu ile grafen oksit sentezi gerçekleştirilmiştir. Glikoz, fruktoz ve sakarozun indirgenme performansını artırmak için amonyak ortamında grafen oksidin indirgenmesi başarılı bir şekilde gerçekleştirilmiştir. Bu yöntemin avantajı hem indirgeyici maddelerin kendilerinin hem de oksitlenmiş ürünlerin çevre dostu olmasıdır. İndirgeyici şekerlerin oksitlenmiş ürünlerinin hazırlandığı gibi, indirgenmiş grafen oksidin stabilize edilmesinde önemli bir rol oynayabileceğini bildirmişlerdir (Zhu *et al.* 2010).

İncelenen çalışmada, şekerlerin düşük pH ortamında Fe^{3+} a karşı indirgeme potansiyelini tespit etmek için optimize edilmiş bir yöntem geliştirilmiştir. Şekerler, NaOH kullanırken genel olarak bilinen davranışa kıyasla düşük pH'ta farklı davranır. Düşük pH koşullarında, glikozun açık zincirli aldehit yapısının oluşumu engellenir. Fruktoz, açık yapıyı üretme konusunda daha yüksek bir kabiliyete sahiptir ve bu da daha güçlü indirgeyici özelliklerle sonuçlandığından bahsetmişlerdir (Kunz *et al.* 2011).

Sodyum ve potasyum hidroksitinin kullanılarak alkali ortam elde edildiği ve glikozun ultrasonikasyon işlemine tabi tutularak indirgenmiş grafen oksit sentezi gerçekleştirilmiştir. Glikozun indirgeyici özelliği, grafen oksitten glikoza oksitlenmiş moleküllerin bağlanmasını sağlar ve grafen oksit indirgenir. KOH ile indirgenmiş grafen oksit örneklerinde 3.67 eV ile 2.48 eV arasındaki bant aralığındaki ve 0.39 nm'lik düzlemler arası mesafe elde edilmiştir. Elde edilen değerler saf grafene göre biraz yüksek çıktığı belirtilmiştir (Teixeira *et al.* 2023).

Grafitten Hummers yöntemi ile grafen oksit sentezlendiği bu çalışmada, indirgen şekerlerden glikoz, fruktoz ve sükrozun, %30 luk amonyum hidroksit çözeltisi ilave edilerek bazikleştirilen ortam içerisinde indirgenme performanslarının değerlendirilmesi hedeflenmiştir. FTIR ve UV-Vis analizlerinden indirgenmiş grafen oksit sentezinin başarılı olduğu anlaşılmıştır. Glikoz, fruktoz ve sükroz ile sentezlenen indirgenmiş grafen oksit örneklerinde enerji bant aralıklarının sırasıyla 3,32 eV, 338 eV ve 368 eV bulunmuştur (Rashid *et al.* 2021).

Gümüş nitrat ve grafen oksidin hem indirgeyici hem de stabilize edici ajanlar olarak işlev gören galaktoz kullanılarak indirgenmiş Grafen Oksit-gümüş nanohidrid sentezlenmiştir. Sentezlenen indirgenmiş grafen oksit-gümüş nano kompozitlerin kristal boyutu 11.83 nm ve ortalama parçacık boyutunun 11nm olduğunu bildirmişlerdir. Ek olarak, en düşük elektrik direnci (68.82 Ω) ve en yüksek elektrik iletkenliği ($14.52 \times 10^{-3} \text{ Sm}^{-1}$) sergiledi. Sonuç olarak, bu örnek üstün elektriksel özellikler onu çeşitli elektrikli cihaz uygulamaları için ideal hale getirdiği çalışmada vurgulanmıştır (Nor Ismail *et al.* 2024).

Glikoz kullanılarak gümüş iyonları ve grafen oksidin eş zamanlı olarak indirgenmesi, GO üzerinde daha küçük boyutlu ve daha homojen nanoparçacıkların oluşmasını sağlamıştır. Bu yöntem, hem grafen tabakalarının tekrar yığılmasını önlemiş hem de oluşturulan malzemenin Raman saçılma sinyalini artırarak katalitik uygulamalar için uygun bir altlık oluşturmuştur. Çalışmalarda, indirgeme sürecinin sıcaklık ve reaksiyon süresi gibi parametrelerle kontrol edilmesinin, malzemenin özelliklerini önemli ölçüde etkilediği vurgulanmıştır (Pourbeyram *et al.* 2019).

Glikozun indirgeme ajanı olarak kullanıldığı çalışmalarda, grafen oksidin indirgenmesi sırasında hem GO'nun oksijen içeren gruplarının verimli bir şekilde giderildiği hem de gümüş nanoparçacıkların rGO yüzeyinde homojen olarak dağıldığı belirtilmiştir. XRD, TEM ve UV-Vis analizleri, glikozla indirgenmiş rGO'nun yüksek yüzey alanına ve iyileştirilmiş elektriksel özelliklere sahip olduğunu göstermiştir (Tang *et al.* 2013).

Doğal şekerlerin indirgeme süreçlerinde reaksiyon süresi, pH ve sıcaklık gibi parametrelerin önemini ortaya koymuştur. Örneğin, farklı şekerler kullanılarak sentezlenen rGO'nun yüzey alanı, fonksiyonel grupların varlığı ve adsorpsiyon kapasitesi analiz edilmiştir. Bu parametrelerin doğru bir şekilde optimize edilmesiyle, çevresel ve ekonomik açıdan sürdürülebilir bir sentez süreci geliştirilmiştir (Wang *et al.* 2017).

3. MATERYAL VE YÖNTEM

Bu tez çalışmasında grafitten Modifiye Hummers yöntemi ile grafen oksit sentezlenmiştir. Sentezlenen grafen oksit örnekleri Kimyasal indirgenme metodunda indirgen şekerlerden, glikoz, fruktoz ve galaktoz kullanılarak indirgenme işlemi gerçekleştirilmiştir. Çalışma sıcaklığı (80-150-250°C) seçilmiş olup deneyler basınçlı reaktörde gerçekleştirilmiştir. Çalışma ortamında bazik ortam (NaOH, KOH, NH₄OH) ve ortam pH (3-7-9) etkileri değerlendirilmiştir. Çalışma için L₉(3⁴) deney tasarım modeli ile Taguchi metodu uygulanarak optimizasyon çalışması gerçekleştirilmiştir.

3.1 Materyal

Deneysel çerçeve içinde kullanılan ekipmanlar şu şekilde sıralanmıştır: bir mekanik karıştırma sistemi (MTOPS) ve bir manyetik karıştırma sistemi (IKA C-MAG HS10). Grafen oksit sentezi sırasında reaksiyon sıcaklığını düzenlemek amacıyla soğutma ve ısıtma işlemleri için bir dolaşım cihazı (POLYSCIENCE 15-R) kullanılmıştır. Kimyasal indirgeme yöntemi için reaksiyon ortamı olarak bir basınç reaktörü (Parr 4520) görev almıştır. Ayırma ve yıkama işlemleri için bir SİGMA santrifüj (3-30ks) kullanılmıştır. Kurutma işlemleri için hem vakumlu fırın hem de atmosferik fırın kullanılmıştır.

Bu tezdeki tüm faaliyetlerde gereken su, Tip 2 standartlarına uygun olarak tasarlanmış bir Merck Milipore Essential 10 cihazı ile temin edilmiştir. Kimyasal indirgeme yöntemleriyle indirgenmiş grafen sentezi için analitik saflıkta glikoz, fruktoz ve galaktoz kullanılmış, ithal kimyasallar tercih edilmiştir. Ayrıca, grafitten grafen oksit üretmek için geliştirilmiş Hummers yöntemi, 50 µm doğal grafit, H₃PO₄, H₂SO₄, KMnO₄, H₂O₂ ve HCl gerektirmiştir.

Çalışmada, sentezlenen grafen oksit ve indirgenmiş grafen oksit örneklerinin karakterizasyonu, fonksiyonel grupların tayini için FTIR-ATR (BRUKER TENSOR 2), BET yüzey alanı ölçümü (QUANTACHROME NOVA TOUCH LX2), Zeta Potansiyeli ve Parçacık boyut dağılımı ZETA-SIZER (MALVERN NANO-ZS) ile Çankırı

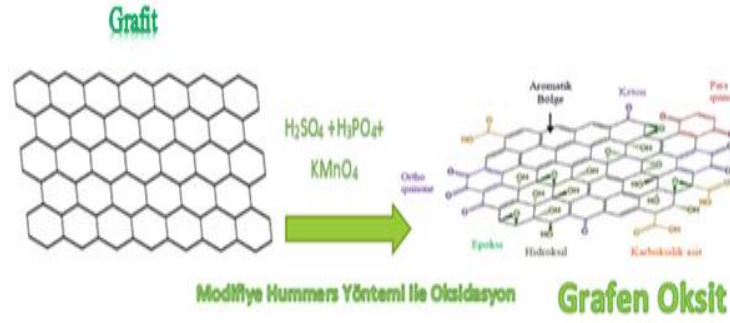
Karatekin Üniversitesi Merkezi Araştırma Laboratuvarında gerçekleştirilmiştir. Raman (THERMO DXR) analizleri Namık Kemal Üniversitesi merkezi araştırma laboratuvarında, XRD (BRUKER D8 DISCOVER) analizleri Bayburt Üniversitesi merkezi araştırma laboratuvarında gerçekleştirilmiştir.

3.2 DeneySEL Yöntem

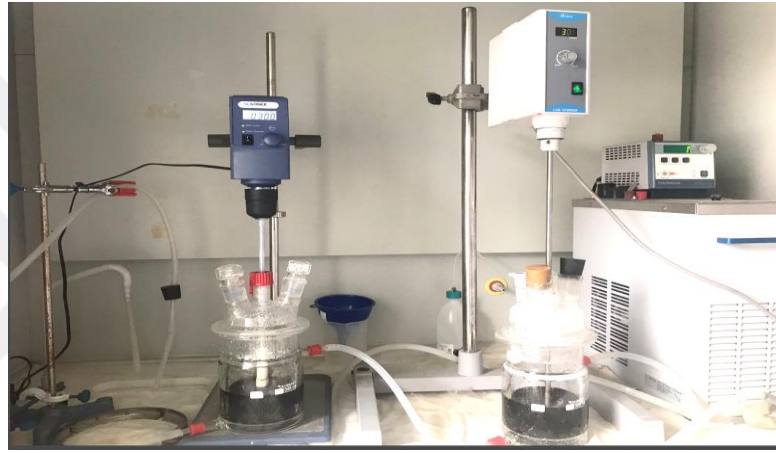
Bu tez çalışmasında grafitten Modifiye Hummers yöntemi ile grafen oksit sentezlenmiştir. $L_9(3^4)$ deneysel tasarımı ile grafen oksitten kimyasal indirgenme methodu ile indirgenmiş grafen oksit sentezinin Taguchi yöntemi ile optimizasyonu hedeflenmektedir.

3.2.1 Grafen oksit sentezi için Hummers yönteminin kullanılması

Grafitten Hummers yöntemi ile grafen oksit sentezinde, çift cidarlı cam reaktöre içine 20 g grafit, 20 g fosforik asit (H_3PO_4) ve 460 mL sülfirik asit (H_2SO_4) konularak reaksiyon sıcaklığı $5^\circ C$ 'ye ayarlanmıştır. Daha sonra kuvvetli bir oksitleyici olan 60 g potasyum permanganat ($KMnO_4$) çözeltiye yavaş yavaş olacak şekilde ilave edilmiştir. Karışım $5^\circ C$ 'de 6 saat boyunca mekanik karıştırıcıyla karıştırılmış ardından kademeli olarak önce $15^\circ C$ ve sonra $25^\circ C$ çıkartılarak karıştırma işlemine 16 saat daha devam edilmiştir. Karışıma 200 mL saf su eklenerek hidrasyon sıcaklığı için reaksiyon sıcaklığı $95^\circ C$ 'ye çıkarılıp 6 saat daha karıştırılmıştır. Ardından çözelti oda sıcaklığına ulaşınca kadar soğumaya bırakılmıştır. Oda sıcaklığına ulaşan çözelti 20 mL hidrojen eklenmiş ve sarımsı kahverengi renkli üründen metal iyonlarını uzaklaştırmak için 5 mL hidroklorik asit çözeltisi ilave edilerek reaksiyon sonlandırılmıştır. Yıkama ve safsızlıklardan ayırma işlemleri dekantasyon yöntemi uygulandığı çalışmada saf su ilavesi yapılarak çözeltinin pH'sı 2-3 civarına gelinceye kadar devam edilmiştir. Ardından santrifüj ile son yıkaması tamamlanarak ıslak katısı elde edilen grafen oksit örneği, $50^\circ C$ 'deki etüvde kurutulmuştur. Şekil 3.1'de grafitten, modifiye Hummers yöntemiyle grafen oksit sentezinin şematik gösterimi verilmiştir. Şekil 3.2'de ise grafen oksit sentezi için kullanılan Hummers yöntemine ait deneysel kurulum gösterilmiştir.



Şekil 3.1 Grafitten modifiye Hummers yöntemi ile grafen oksit sentezinin şematik gösterimi (Lin *et al.* 2015)

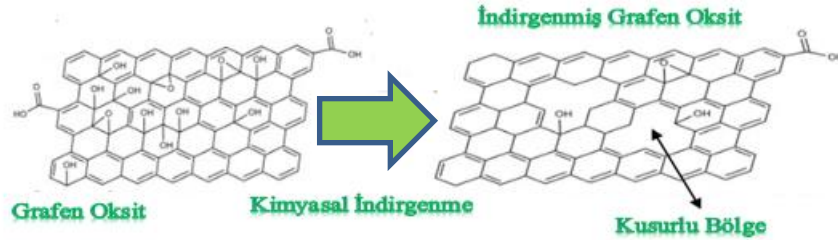


Şekil 3.2 Deneysel kurulum grafen oksit sentezi için hummers yönteminin kullanılması

3.2.2 Grafen oksitten kimyasal indirgeme metodu ile indirgenmiş grafen oksit sentezi

Sentezlenen grafen oksit örnekleri, kimyasal indirgeme yönteminde $L_9(3^4)$ tasarımına göre indirgenmiş grafen oksit elde etmeye yönelik olarak işlenmiştir. Grafen oksit örneklerinden 2 gram alınıp, 400 mL su içinde, deney tasarımındaki parametrelere uygun şekilde 24 saat boyunca işlem uygulanmıştır. Distile su, aseton ve etanol ile gerçekleştirilen santrifüjle yıkama işlemi, son üründeki kirlenmelerin etkili bir şekilde uzaklaştırılmasını sağlamıştır. Son aşama olarak, elde edilen ürün 80°C ve 0.2 atm koşullarında vakumlu fırında kurutulmuştur.

Şekil 3.3’ de grafen oksitten kimyasal indirgenme yöntemi ile indirgenmiş grafen oksit sentezinin şematik gösterimi verilmiştir. Şekil 3.4’de $L_9(3^4)$ deney tasarımı ile gerçekleştirilen deney sistemine ait görsel verilmiştir.



Şekil 3.3 Grafen oksitten kimyasal indirgenme yöntemi ile indirgenmiş grafen oksit sentezinin Şematik gösterimi



Şekil 3.4 Yüksek sıcaklık ve yüksek basınç koşullarında indirgenmiş grafen oksit sentezi için deneysel sistem

3.3 Deneysel Yöntem

Bu tez çalışmasında yöntem olarak Taguchi yöntemini ile optimizasyon çalışması gerçekleştirilmiştir. Bu hedefle ilk olarak hedefler ve amaçlar belirlenmiştir. Ardından bu amaç ve hedeflere ilişkin kalite karakteristikleri seçilerek, $L_9(3^4)$ deney tasarımına ait parametreler ve seviyeleri belirlenmiştir. Tasarıma ait kalite karakteristiklerine ait sonuçlar Taguchi yöntemi kullanılarak Minitab programı ile analiz gerçekleştirilmiştir. Analiz sonucunda her bir kalite kriterin parametrelerine ait optimum seviyeler

belirlenmiştir. Kalite kriterlerine ait, $L_9(3^4)$ deney tasarımındaki en iyi sonuçlar, grafen oksit örneğindeki sonuçlar referans alınarak iyileşme oranları belirlenmiştir.

Bu tez, aşağıda belirtilen beş deneysel tasarım aşamasından oluşmaktadır.

- $L_9(3^4)$ deney tasarımının seçilmesi
- $L_9(3^4)$ deney tasarımına ait parametreler ve seviyelerin belirlenmesi
- $L_9(3^4)$ deney tasarımına ait kalite kriterlerinin parametreler ve seviyelerinin belirlenmesi
- $L_9(3^4)$ deney tasarımında her bir kalite kriterine ait sonuçların Taguchi yöntemi ile analiz edilerek, parametreler ve seviyelerine ait optimum noktalar ve seviyelerin belirlenmesi
- $L_9(3^4)$ deney tasarımındaki en iyi kalite kriterleri sonuçları grafen oksit örnekleri referans alınarak, her bir kalite kriterine ait iyileşme oranı hesaplanmıştır.

3.4 İndirgenmiş Grafen Oksit Sentezinde Deney Tasarımının, Parametrelerin ve Seviyelerin Belirlenmesi

Grafitten Modifiye Hummers yöntemi ile grafen oksit sentezlenerek, sentezlenen grafen oksit örnekleri kimyasal indirgenme metodunda kullanılarak indirgenmiş grafen oksit sentezinin optimizasyonu gerçekleştirildi. Bu amaçla, 4 parametre ve 3 aşamadan oluşan bir $L_9(3^4)$ ortogonal deneysel tasarım planı oluşturulmuştur. Çizelge 3.2, $L_9(3^4)$ ortogonal deneysel tasarım planı için kalite kriterlerinin kodlanmış ve kodlanmamış seviyelerini sunarken, Çizelge 3.1, parametreleri ve seviyelerini göstermektedir.

Çizelge 3.1 $L_9(3^4)$ rGO deney tasarımında kullanılan parametreler ve seviyeleri

	Sembol	Parametre	Seviyeler		
			1	2	3
Grafen Oksit Sentezi	A	Sıcaklık (°C)	80	150	250
	B	İndirgen Çeşidi	Glikoz	Fruktoz	Galaktoz
	C	Bazik Ortam Çeşidi	NaOH	KOH	NH ₄ OH
	D	pH	3	7	9

Çizelge 3.2 $L_9 (3^4)$ rGO sentezi için deney tasarım modeli ve kodlanmamış seviyeleri

Deney No.	Kodlanmış Seviyeler			Kodlanmamış Seviyeler				
	A	B	C	D	A	B	C	D
GO1	1	1	1	1	80	Glikoz	NaOH	3
GO2	1	2	2	2	80	Fruktoz	KOH	7
GO3	1	3	3	3	80	Galaktoz	NH ₄ OH	9
GO4	2	1	2	3	150	Glikoz	KOH	9
GO5	2	2	3	1	150	Fruktoz	NH ₄ OH	3
GO6	2	3	1	2	150	Galaktoz	NaOH	7
GO7	3	1	3	2	250	Glikoz	NH ₄ OH	7
GO8	3	2	1	3	250	Fruktoz	NaOH	9
GO9	3	3	2	1	250	Galaktoz	KOH	3

3.5 Grafen Oksit ve $L_9 (3^4)$ İndirgenmiş Grafen Oksit Sentezi için Belirlenen Kalite Özellikleri

Grafen oksit ve indirgenmiş grafen oksit sentezi için belirlenen kalite kriterlerinin sayısal bulguları kullanılarak indirgenmiş grafen oksit sentezi için optimizasyon çalışmaları yapılmıştır.

Raman analizindeki 1350 cm^{-1} 'deki D piki ve 1585 cm^{-1} 'deki G piki değerleri, ilk kalite kriterleridir. Yüksek bir D/G oranı, daha fazla indirgenme şiddeti ve daha az tabaka sayısını işaret eder; bu da indirgenmiş grafen oksit üretimi için istenen bir özelliktir.

Hesaplanan kristalin X-Işını Kırınım Deseni (XRD), bir kalite kriteridir. Kristal boyutunun küçülmesi, az katmanlı düzenli plakaların oluştuğunu gösterir.

Üçüncü ve dördüncü kalite kriterleri ölçümü Zeta-Sizer ile yapılmıştır. Bu ölçümlerde GO dispersiyonlarında stabilitenin iyileştirilmesi amacıyla parçacık boyutu dağılım analizi (nm) ve zeta potansiyeli ölçümü (mV) yapılmıştır. GO karakterizasyonda, parçacık boyutu ve zeta potansiyel değerlerinin küçük olması tercih edilir.

Beşinci kalite kriteri olarak BET cihazı ile rGO ait yüzey alanı (m^2/g) ölçümü yapılmış olup, indirgenmiş grafen oksit kullanım alanları itibarıyla gözenekli bir yapıya sahip olması istendiği için, yüzey alanı değerlerinin büyük olması istenir.

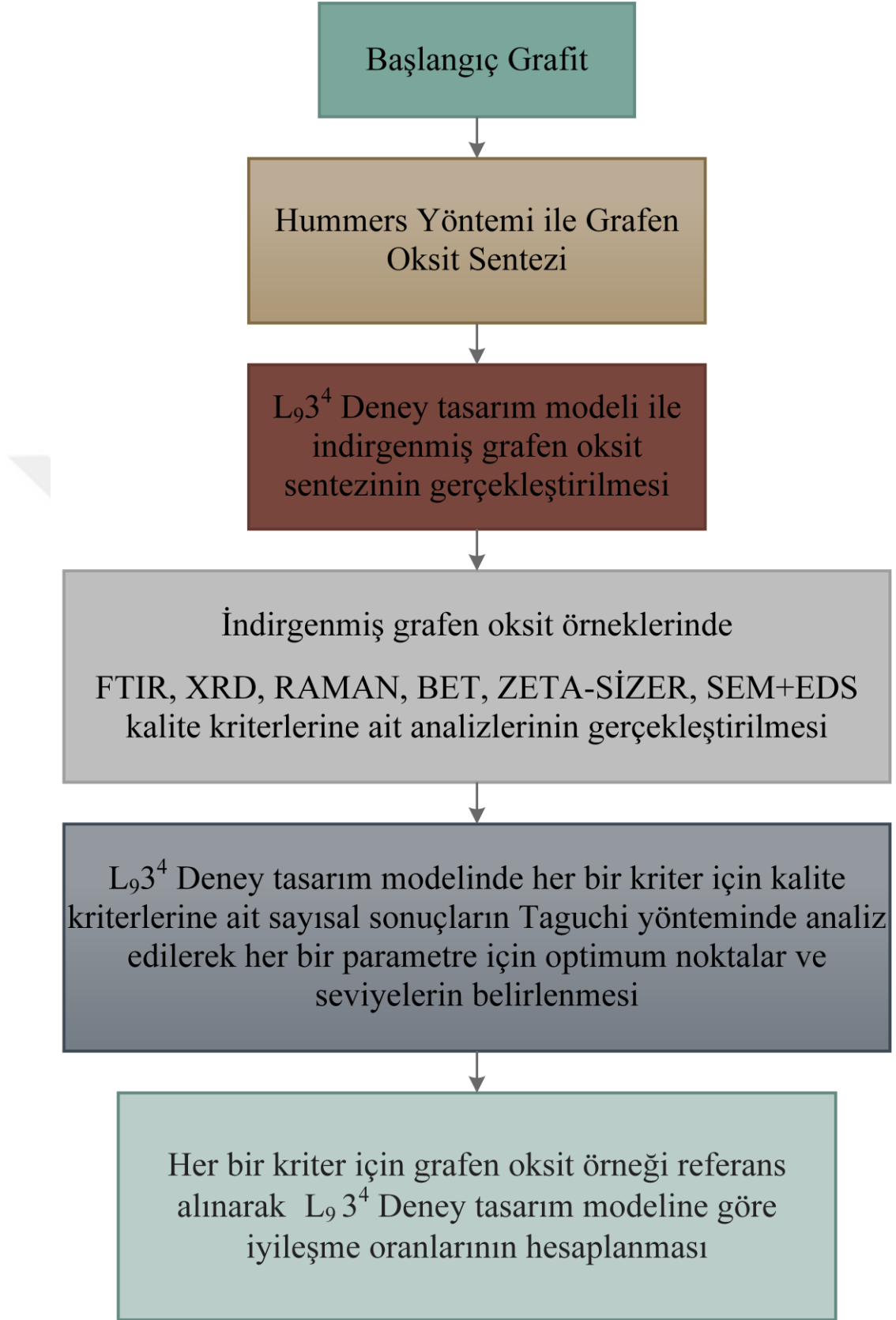
Tarama elektron mikroskobu-enerji dağılımı X-ışını analizi (SEM-EDX), oksidasyon derecesini değerlendirmek için kullanılan altıncı kalite kriteri olan karbon-oksijen (C/O) atomik oranını sağlar. Yüksek bir azalma, indirgenmiş grafen oksit (rGO) için optimaldir, bu nedenle bu değerin yüksek olması gerekmektedir.

Grafen oksit ve indirgenmiş grafen oksit için kalite kriterleri Çizelge 3.3'te ayrıntılı olarak verilmiştir. Taguchi, bu tablodan yararlanarak; bu Çizelge, işlemle belirlenen kalite kriterlerinin normalize edilmiş değerlerini, önemli sıralama ağırlıklarını, ideal hedef değerini ve hedef bilgilerini içermektedir.

Şekil 3.5, indirgenmiş grafen oksit üretimi için Taguchi yöntemi, Hummers yöntemi ve Taguchi yöntemini içeren kimyasal indirgeme tekniğinin akış diyagramını sunmaktadır. Taguchi yöntemi indirgenmiş şekerleri kullanırken, Hummers yöntemi başlangıç materyali olarak grafen oksit kullanmaktadır.

Çizelge 3.3 Grafen oksit ve indirgenmiş grafen oksit ait kalite kriterleri ve ağırlıkları

Kalite Kriterleri	Sembol	Açıklama	Ana Bilgiler	GO Hedefi	rGO Hedefi
RAMAN Analizi	ID/IG	D Pikinin-G Pikinin Şiddetine Oranı	Yapıdaki Kusurlar	En Büyük Tercih Edilir	En Küçük Tercih Edilir
ZETA- ζ İER	ZP	Zeta Potansiyeli	Dispersiyon	En Küçük Tercih Edilir	En Küçük Tercih Edilir
ZETA- ζ İER	PB	Parçacık Boyut Dağılımı	Nano Özellikler	En Küçük Tercih Edilir	En Küçük Tercih Edilir
BET Yüzey Alanı	YA	Yüzey Alanı	Gözenek Özellikleri	En Büyük Tercih Edilir	En Büyük Tercih Edilir
SEM-EDS Analizi	C/O	Karbon-Oksijen Oranı	Oksidasyon Derecesi	En Küçük Tercih Edilir	En Büyük Tercih Edilir
XRD Analizi	KB	Kristal Boyutu	Düzensiz Karbon	En Küçük Tercih Edilir	En Küçük Tercih Edilir
FTIR Spektroskopisi	ATR	Yapı Karakterizasyonu	Fonksiyonel Gruplar	Grafik Yorumu	Grafik Yorumu



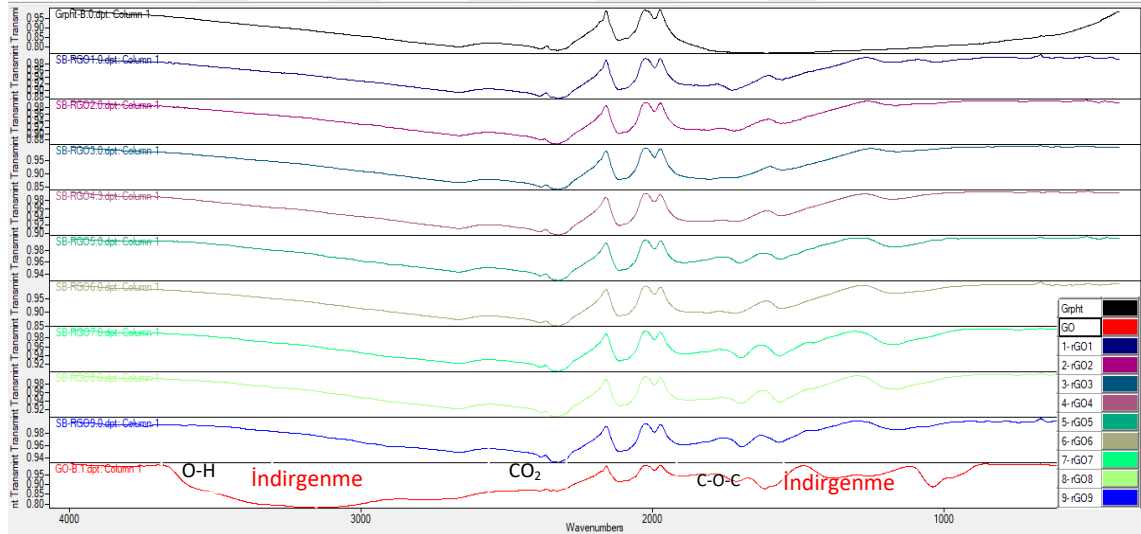
Şekil 3.5 L₉(3⁴) ile indirgenmiş grafen oksit performans şeması

4. BULGULAR VE TARTIŞMA

Çalışmada, $L_9(3^4)$ deneysel tasarımı kullanılarak indirgenmiş grafen oksit sentezi ve Hummers tekniği ile grafitten üretilen grafen oksit ile ilgili kalite kriterlerine ait grafik ve resimlerin analiz ve yorumlaması ilk olarak yapılmıştır.

4.1 Kalite Kriterlerine İlişkin Grafiklerin ve Görüntülerin Analizi

Çalışmanın bu bölümünde, grafitten Hummers yöntemi ile sentezlenen grafen oksit, kimyasal indirgeme metodunda üretilen grafen oksit ile karşılaştırılarak $L_9(3^4)$ deney tasarımı ile indirgenmiş grafen oksit sentezindeki kalite kriterlerine ait oksidasyon ve indirgenme neticesinde parametrelerin etkileri incelenmiş ve yorumlanmıştır. $L_9(3^4)$ deney tasarımı ile indirgenmiş grafen oksit sentezine ait FT-IR analizi grafikleri Şekil 4.1’de verilmiştir.

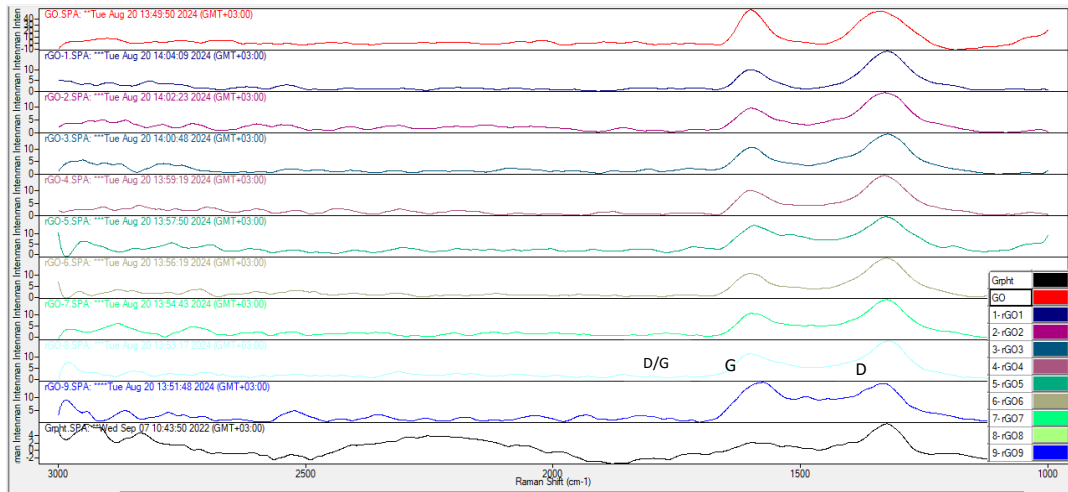


Şekil 4.1 $L_9(3^4)$ deney tasarımı ile indirgenmiş grafen oksit sentezine ait FTIR grafikleri

FTIR testleri, grafen oksit örneğinde grafen olmayan yapısal piklerin varlığını ortaya koymuştur. Bunlar arasında 3391 cm^{-1} ve 1410 cm^{-1} 'deki O-H pikleri, 1721 cm^{-1} 'deki C=O piki, $1680 - 1620\text{ cm}^{-1}$ arasında C=C piki, 1221 cm^{-1} 'deki C-O piki ve 1046 cm^{-1} 'deki bir diğer pik yer almaktadır. Grafen oksitten farklı olarak, indirgenmiş grafen oksit sentezinde 3391 cm^{-1} ve 1410 cm^{-1} 'deki O-H grup pikleri gözlemlenmemiştir. Grafen oksit ile karşılaştırıldığında, indirgenmiş formda

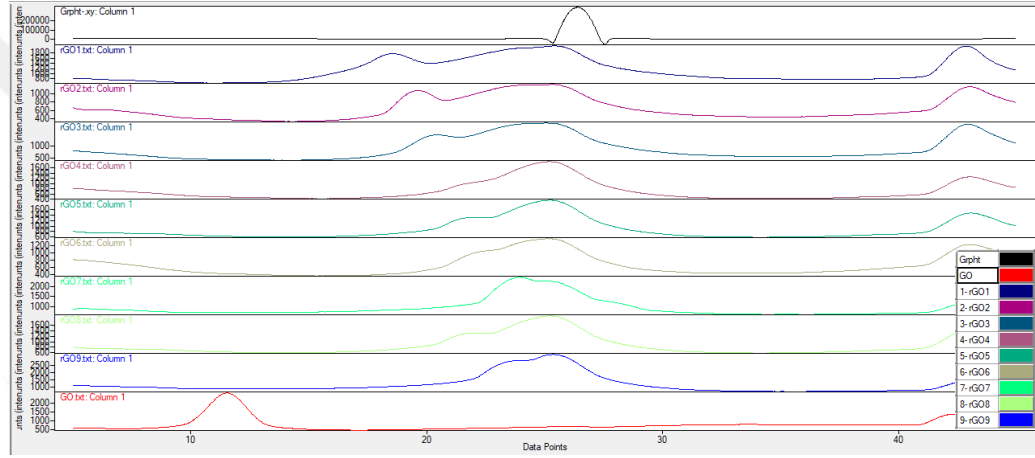
1221 cm^{-1} 'deki C-O piki, 1046 cm^{-1} 'deki C-O uzama piki ve 1680- 1620 cm^{-1} arasında C=C uzama pikinde daha zayıf bir sinyal gözlemlenmiştir. Grafen oksidin indirgenmiş grafen oksite indirgenmesinin ardından, FTIR verileri oksijen içeren fonksiyonel grupların varlığında bir azalma göstermiştir; bu da grafen oksitten indirgenmiş grafen oksit sentezinin etkili olduğunu düşündürmektedir.

$L_9(3^4)$ deney tasarımı ile indirgenmiş grafen oksit sentezine ait Raman analizi grafikleri Şekil 4.2'de verilmiştir. Raman spektroskopisindeki ID/IG oranı, grafen oksit ve indirgenmiş grafen oksit sentezinde önemli bir parametredir. Grafitin yapısına eklenen fonksiyonel grupların ilave olması ile yapıda ID bandındaki (yaklaşık 1350 cm^{-1}) şiddetin artmasına sebep olur ve bu da meydana gelen kusurların bir göstergesidir. Grafitin yapısında olmayan G bandının (yaklaşık 1590 cm^{-1}) oluşumu ise yapıdaki sp^2 karbon çiftlerinin bağ gerilmesinden kaynaklanan birinci dereceden saçılmalardır. Grafen oksit ve indirgenmiş grafen oksit yapıları, G bandı oluştuğunda gözlemlenir. İndirgenmiş grafen oksit sentezlendiğinde, G piki daha uzun dalga boylarına kayar, bu da daha fazla düzensizlik, daha az oksijen ve OH grubu olduğu anlamına gelir, yani daha az katman bulunur. Ancak, bu azalma, indirgenmenin büyüklüğü hakkında yeterli bilgi sağlamaz. Buna karşılık, indirgeme sırasında yapısal kusurların ortaya çıkması, D pikinin daha belirgin ve geniş olmasına yol açar. Yapıya bağlı fonksiyonel grupların ve hatalı yapılarının varlığı, ID/IG piki oranındaki artışla gösterilir.



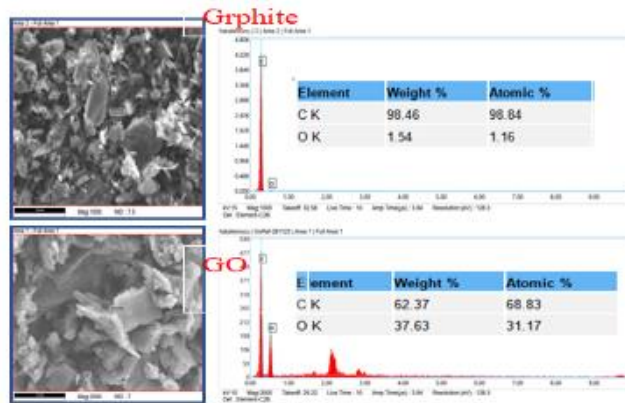
Şekil 4.2 $L_9(3^4)$ deney tasarımı ile indirgenmiş grafen oksit sentezi deneylerine ait Raman grafikleri

Saf grafitin XRD deseninde 002 düzlemi, $2\theta = 26^\circ$ 'da bir pike sahiptir. Oksidasyon işleminden sonra, 002 düzlemi pikinin $2\theta = 26^\circ$ 'daki zirvesi kaybolur ve oksijen fonksiyonel gruplarından dolayı $9-13^\circ$ aralığında daha düşük açılarda bir pik oluşur. Bu pik kaybolduğunda, grafitin yapısal olarak grafen okside dönüştüğü anlamına gelir. Yaklaşık $10-13$ derecelerde, sentetik grafen oksidi temsil eden pikler görünür. İndirgeme işleminden sonra düzlem pikin $22-26^\circ$ 'ya kayması, oksijen içeren fonksiyonel grupların azalmasından kaynaklanır ve bu durum indirgenmiş grafen okside etkin dönüşümünü gösterir. Şekil 4.3, $L_9(3^4)$ deneysel tasarımının indirgenmiş grafen oksit üretimi için XRD analiz grafiklerini göstermektedir.



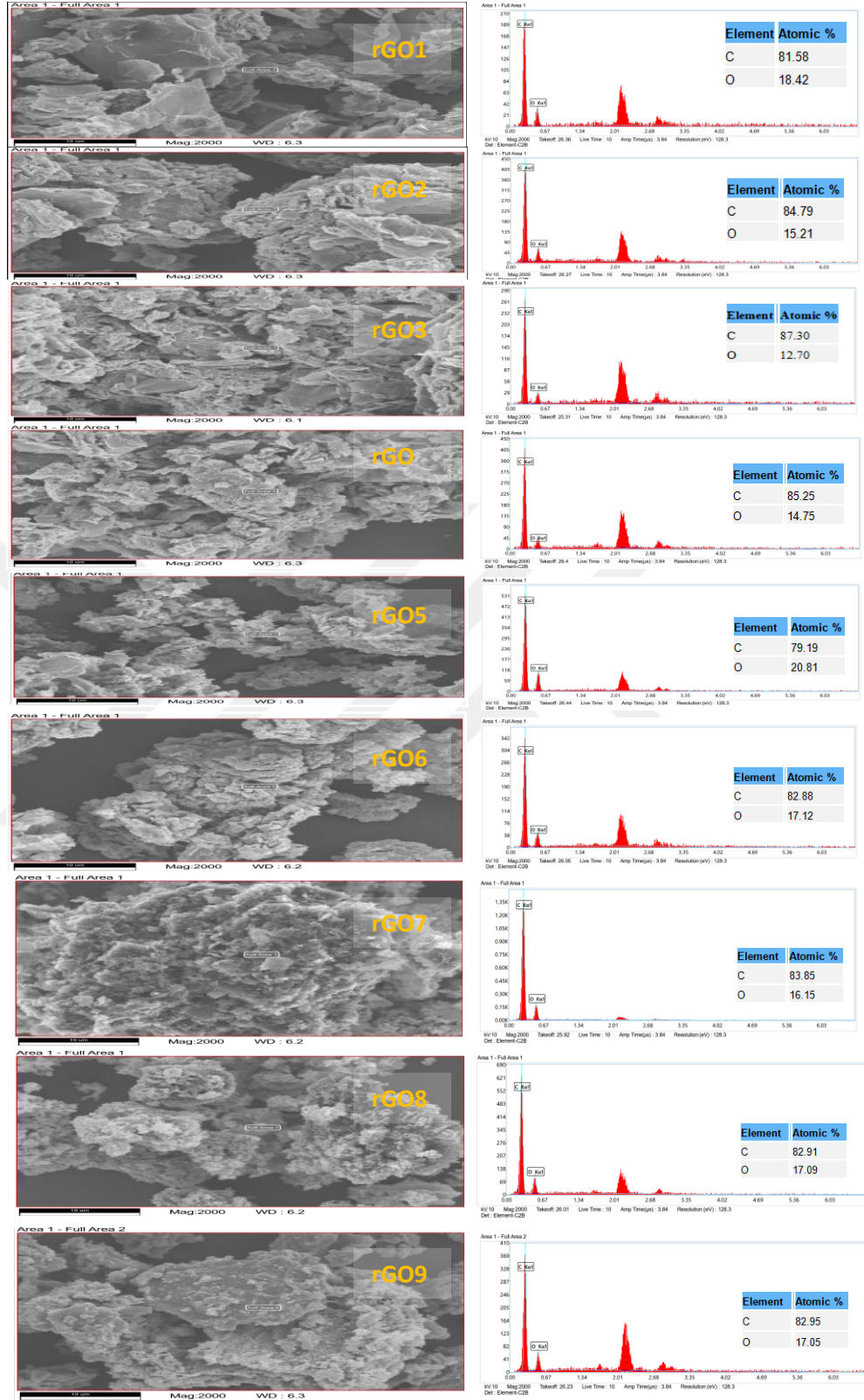
Şekil 4.3 $L_9(3^4)$ deney tasarımı ile Grafitten modifiye Hummers yöntemi ile grafen oksit sentezinin şematik gösterimi sentezi deneylerine ait XRD grafikleri

Grafit ve grafen oksit örneklerine ait SEM+EDS görüntüleri Şekil 4.4'de verilmiştir.



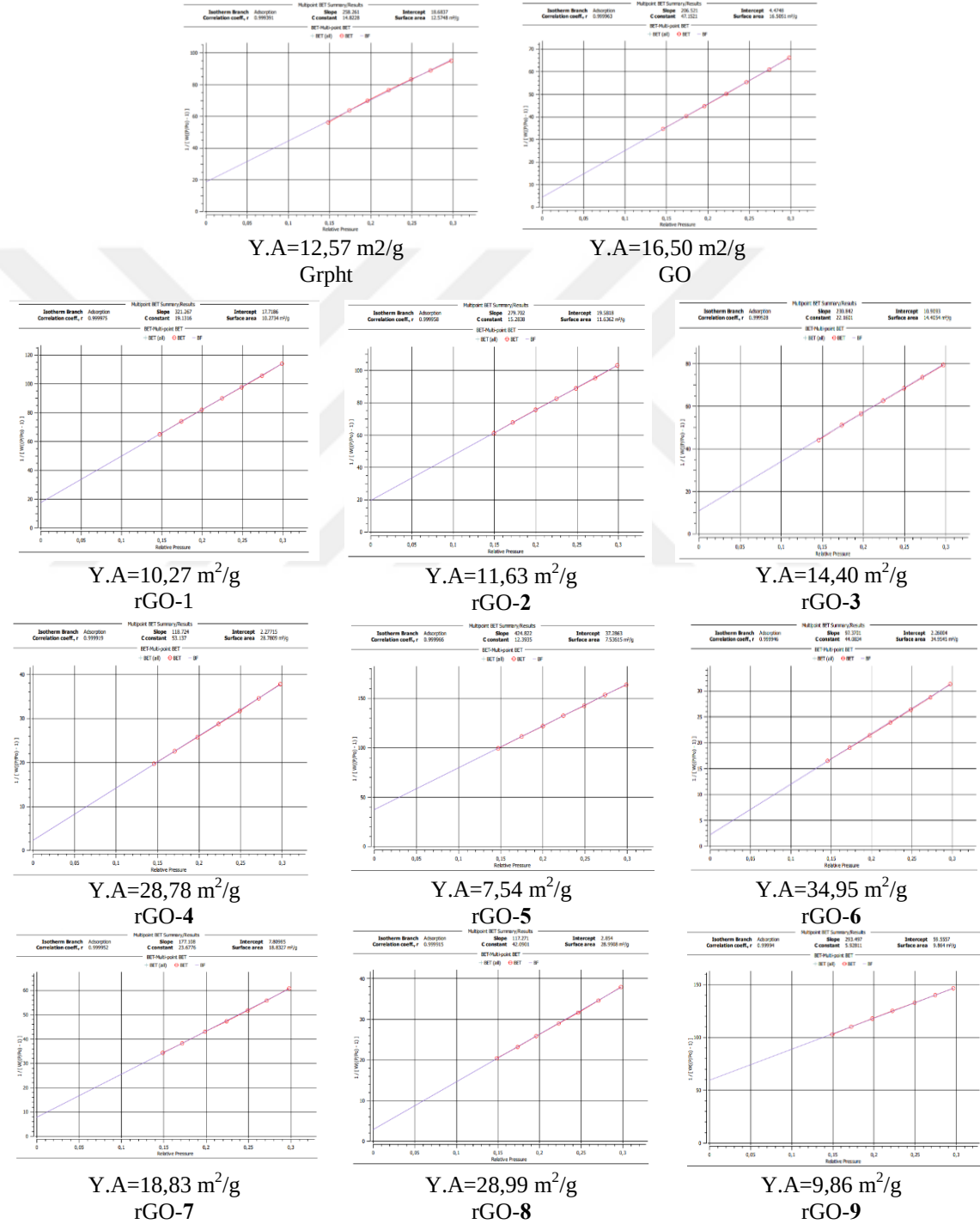
Şekil 4.4 Grafit ve Grafen oksit örneklerine ait SEM+EDS görüntüleri

Grafit ve oksidasyon sonrasında grafen oksit örneğine ait C:O oranları sırasıyla 85,2' den - 2,2 aralığına düştüğü gözlenmiştir. Oksijen içerikli fonksiyonel grupların grafen oksitin yapısına yerleşmesi ile C/O oranında elde edilen değerin 2-3 aralığında olması sentezin başarılı olduğunu göstermektedir. Hummers yöntemi ile sentezlenen grafen oksit örneğinde $L_9(3^4)$ deney tasarımı ile kimyasal indirgenme metodunda indirgenmiş grafen oksit sentezine ait SEM-EDS sonuçları verilmiştir. Kimyasal indirgenme neticesinde indirgenmiş grafen oksit örneklerinde C/O oranlarındaki artması, karbonla tek bağ yapan fonksiyonel grupların miktarının azalmasına bağlanabilir. $L_9(3^4)$ deney tasarımı ile sentezlenen indirgenmiş grafen oksit örneklerindeki C/O oranlarının 3,81 ile 7.09 değerleri arasında değiştiği gözlenmiştir. Bu sonuçlar göstermektedir ki, $L_9(3^4)$ deney tasarımına ait C/O oranlarındaki artış, kimyasal indirgeme metodu ile indirgenmiş grafen oksit sentezinin başarılı olduğunu göstermektedir. $L_9(3^4)$ deney tasarımı ile indirgenmiş grafen oksit sentezine ait SEM+EDS analizi grafikleri Şekil 4.5'de verilmiştir.



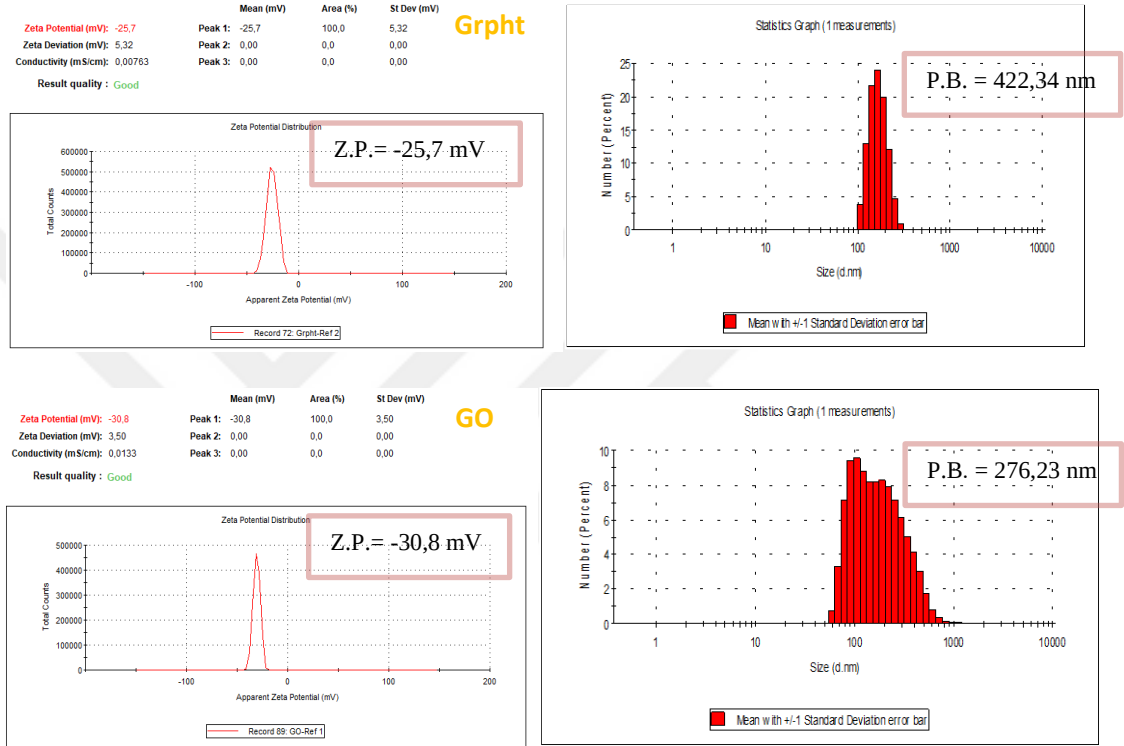
Şekil 4.5 $L_9(3^4)$ deney tasarımı ile Grafitten modifiye Hummers yöntemi ile grafen oksit sentezinin şematik gösterimi sentezi deneylerine ait SEM+EDS görüntüleri

Şekil 4.6 'da grafit, grafen oksit ve L₉(3⁴) deney tasarımı ile sentezlenen indirgenmiş grafen oksit örneklerindeki BET yüzey alanı sonuçları verilmiştir. L₉ (3⁴) deney tasarımına ait indirgenmiş grafen oksit sentezine ait sonuçlar 9,86 m²/g ile 34,95 m²/g arasında değişmektedir.



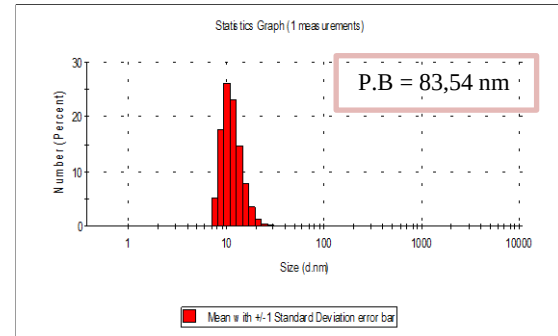
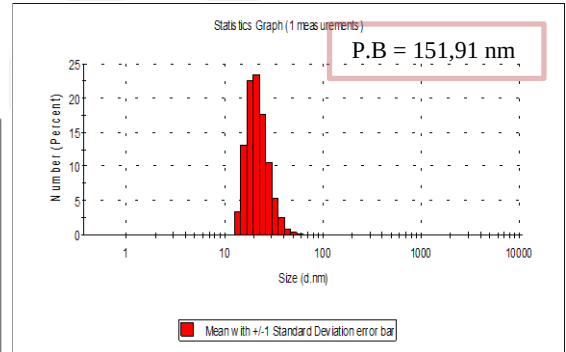
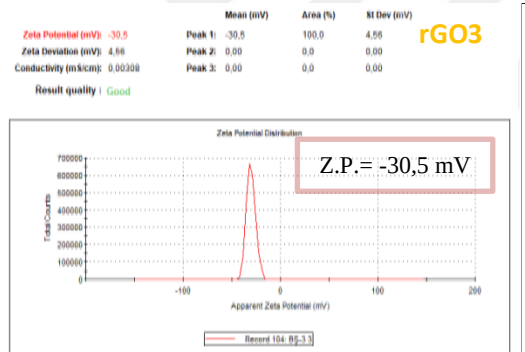
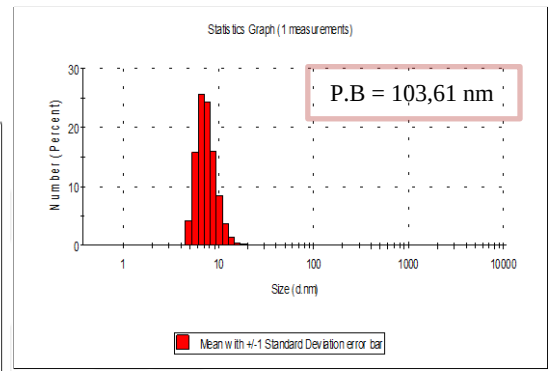
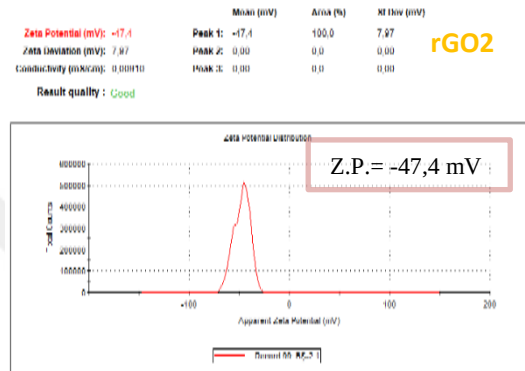
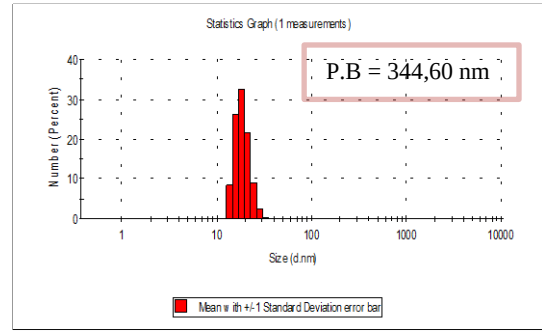
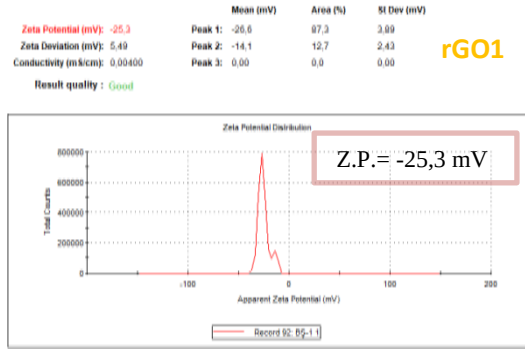
Şekil 4.6 L₉(3⁴) deney tasarımı ile Grafitten modifiye Hummers yöntemi ile grafen oksit sentezinin şematik gösterimi sentezi deneylerine ait BET görüntüleri

Şekil 4.7’ da grafit ve Hummers yöntemi ile sentezlene grafen oksit örneklerine ait Zeta Potansiyel ölçümleri ve Partikül Büyüklüğü Dağılım ölçümlerinin sonuçları verilmiştir. Zeta potansiyel sonuçları grafit için -25,7 mV, grafen oksit için ise -30,8 mV ölçülmüştür. Ortalama parçacık boyutu değerleri grafit için 422,34 nm ve grafen oksit için 276,23 nm ölçülmüştür.



Şekil 4.7 Grafit ve grafen oksit örneklerine ait Zeta-Sizer görüntüleri

L₉ (3⁴) deney tasarımına ait indirgenmiş grafen oksit sentezine ait sonuçlar şekil 4.8’ de verilmiştir. Zeta potansiyeli sonuçları 20,9 mV ile 47,4 mV arasında değişmektedir. Ortalama parçacık boyutu değerleri ise 84,62 nm ile 344,60 nm arasında değişmektedir.

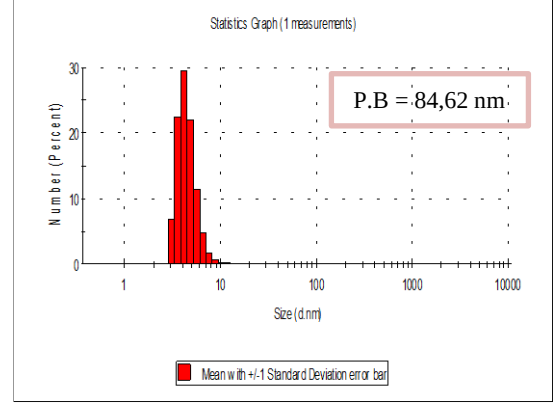
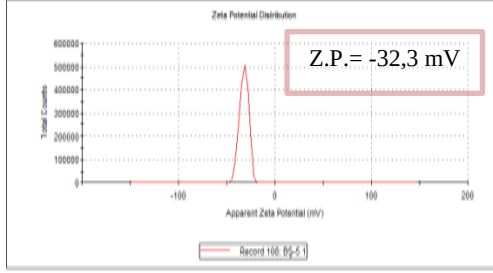


Şekil 4.8 $L_9(3^4)$ deney tasarımı ile grafitten modifiye Hummers yöntemi ile grafen oksit sentezinin şematik gösterimi sentezi deneylerine ait Zeta-Sizer görüntüleri

Zeta Potential (mV): -32,3
Zeta Deviation (mV): 4,60
Conductivity (mS/cm): 0.00232
Result quality : Good

Mean (mV)	Area (%)	St Dev (mV)
Peak 1: -32,3	100,0	4,60
Peak 2: 0,00	0,0	0,00
Peak 3: 0,00	0,0	0,00

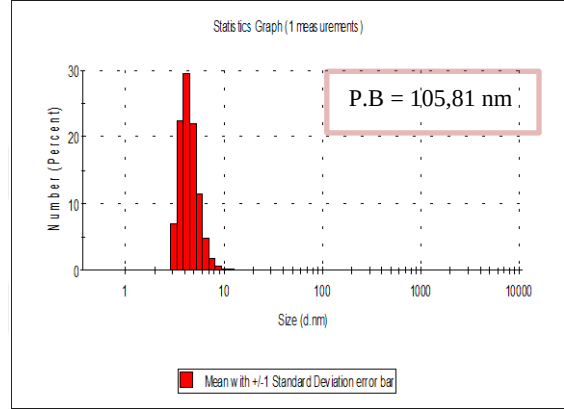
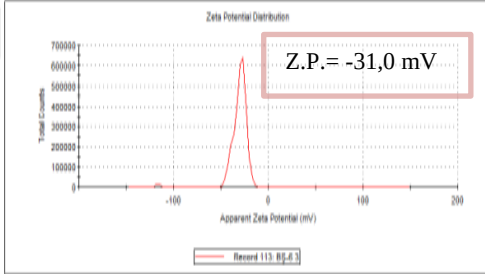
rGO5



Zeta Potential (mV): -31,0
Zeta Deviation (mV): 10,9
Conductivity (mS/cm): 0.0120
Result quality : Good

Mean (mV)	Area (%)	St Dev (mV)
Peak 1: -30,1	98,9	6,27
Peak 2: -116	1,1	1,63
Peak 3: 0,00	0,0	0,00

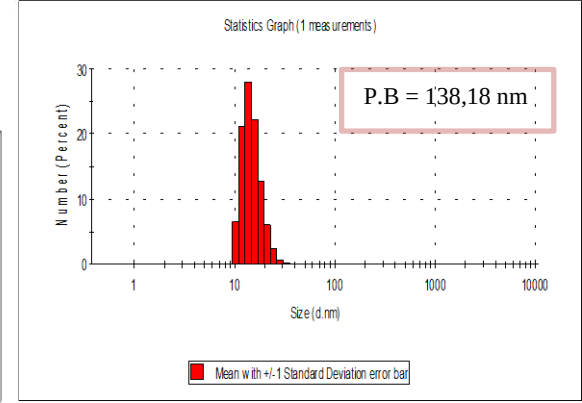
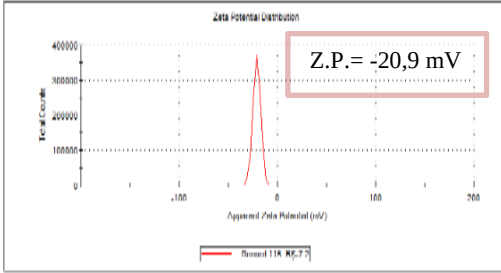
rGO6



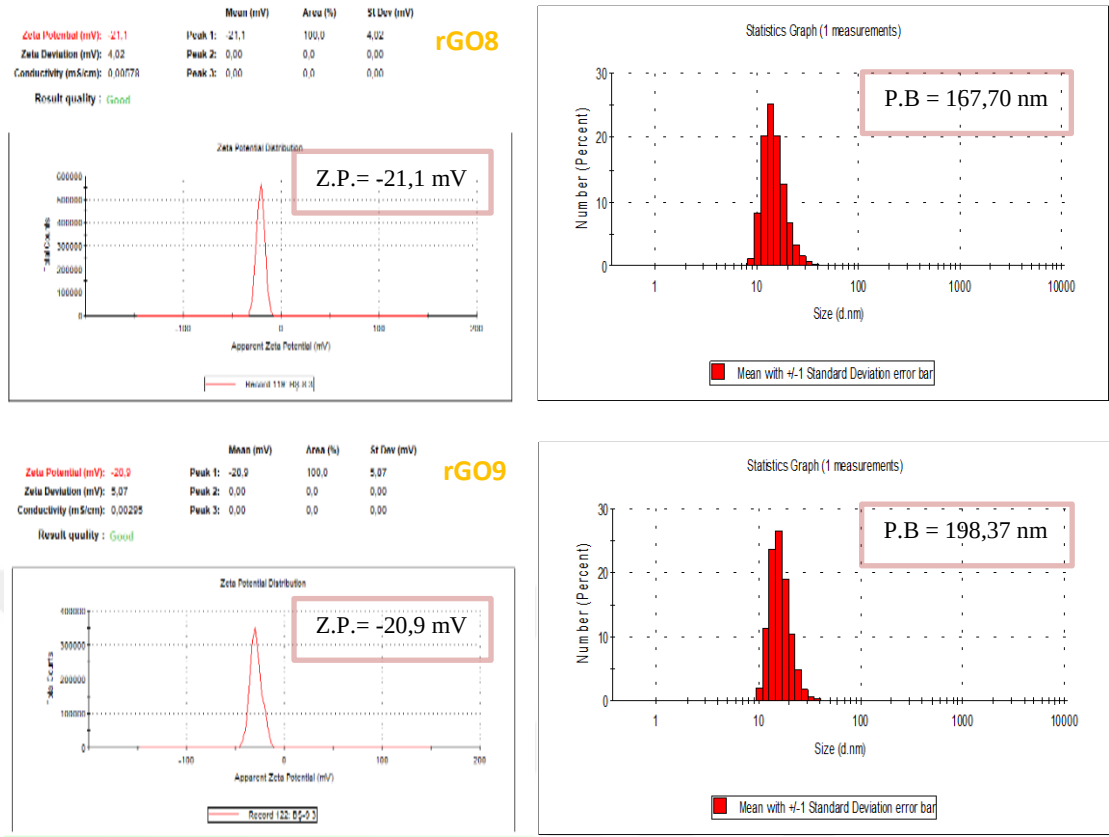
Zeta Potential (mV): -20,9
Zeta Deviation (mV): 3,87
Conductivity (mS/cm): 0.00576
Result quality : Good

Mean (mV)	Area (%)	St Dev (mV)
Peak 1: -20,9	100,0	3,87
Peak 2: 0,00	0,0	0,00
Peak 3: 0,00	0,0	0,00

rGO7



Şekil 4.8 $L_9(3^4)$ deney tasarımı ile grafitten modifiye Hummers yöntemi ile grafen oksit sentezinin şematik gösterimi sentezi deneylerine ait Zeta-Sizer görüntüleri (Devam)



Şekil 4.8 $L_9(3^4)$ deney tasarımı ile grafitten modifiye Hummers yöntemi ile grafen oksit sentezinin şematik gösterimi sentezi deneylerine ait Zeta-Sizer görüntüleri (Devam)

4.1 Tartışma

Bu çalışmada, indirgenmiş grafen oksit sentezi ve kalite kriterleri, literatürde yer alan diğer çalışmalarla karşılaştırıldığında dikkate değer benzerlikler ve farklılıklar göstermektedir. Hummers yöntemi ile grafen oksit sentezi ve $L_9(3^4)$ deney tasarımı kullanılarak gerçekleştirilen indirgeme işlemi, literatürde yaygın olarak kullanılan yöntemlerle uyumluluk göstermektedir. Özellikle FTIR, Raman, XRD ve SEM-EDS analizleri, grafen oksidin yapısal ve kimyasal özelliklerini karakterize etmek için literatürde sıkça başvurulan analiz teknikleridir.

FTIR analizinde, çalışmamızda gözlemlenen oksijen içerikli fonksiyonel grupların (O-H, C=O, C=C, C-O) pikleri, grafen oksidin kimyasal yapısını doğrulamak adına literatürdeki diğer çalışmalarla paralellik göstermektedir. Ancak, indirgenmiş grafen

oksitte O-H piklerinin kaybolması ve C-O ile C=C piklerindeki zayıflama, literatürde izah edildiği gibi indirgenme sürecinin etkilerini desteklemektedir. Bununla birlikte, bazı çalışmalar indirgenmiş grafen oksitte fonksiyonel grup kalıntılarının tamamen ortadan kalkmadığını ve bu kalıntıların indirgeme koşullarına bağlı olarak değişebileceğini belirtmektedir. Bizim çalışmamızda da indirgenmiş grafen oksitte bu grupların zayıf sinyallerle gözlemlenmesi, kullanılan indirgeme yönteminin kısmi bir indirgeme sağladığını göstermektedir.

Raman analizinde, ID/IG oranındaki artış ve D pikindeki genişleme, indirgenmiş grafen oksitte literatürle uyumlu olarak yapısal kusurların ve düzensizliklerin arttığını işaret etmektedir. Ancak, bazı literatür çalışmaları, indirgeme sırasında elde edilen ID/IG oranlarının indirgeme verimliliği hakkında daha net bir bilgi verebileceğini savunmaktadır. Çalışmamızda gözlemlenen oranlar, indirgenmiş grafen oksitin kısmen daha az düzenli yapıya sahip olduğunu ve oksijen içeriğinde azalma olduğunu destekler niteliktedir.

XRD analizinde, oksidasyon sonrası grafen oksitte düşük açılarda yeni piklerin oluşması ve indirgenmiş grafen oksitte bu pikin daha yüksek açılara kayması, literatürde yer alan diğer çalışmalarla örtüşmektedir. Bu durum, oksijen içerikli fonksiyonel grupların uzaklaştırılmasının yapısal dönüşüm sağladığını göstermektedir. Bununla birlikte, indirgeme sonrası pikin tam olarak grafit seviyesine dönmemesi, indirgenmiş grafen oksitin literatürde de sıkça belirtilen kısmi indirgenme özelliklerini yansıtmaktadır.

SEM-EDS analizinde, grafen oksit örneğinde C/O oranının düşmesi ve indirgenmiş grafen oksitte bu oranın artması, literatürdeki bulgularla örtüşmektedir. Ancak, çalışmamızda C/O oranının 3,81 ile 7,09 arasında değiştiği gözlemlenirken, bazı literatür çalışmaları bu değerin daha yüksek ya da daha düşük aralıklar gösterebileceğini ifade etmektedir. Bu farkın, kullanılan kimyasal indirgeme ajanı ve işlem koşullarındaki değişikliklerden kaynaklandığı düşünülmektedir.

Çalışmamızda elde edilen bulgular literatürdeki sonuçlarla büyük ölçüde uyumlu olmakla birlikte, özellikle indirgeme derecesi, yapısal düzensizlikler ve fonksiyonel grup kalıntıları gibi detaylarda farklılıklar gözlemlenmiştir. Bu farklılıklar, kullanılan deneysel tasarım, kimyasal ajan ve işlem parametrelerinden kaynaklanıyor olabilir. Bu bağlamda, indirgeme yönteminin optimize edilmesi ve alternatif indirgeme yollarının incelenmesi, daha yüksek verimlilik ve homojenlik sağlanması açısından literatüre katkı sağlayabilir.

Bu çalışmada elde edilen sonuçlar, indirgenmiş grafen oksit sentezi üzerine yapılan diğer literatür çalışmaları ile kıyaslanmıştır. Örneğin, Chen ve arkadaşlarının (2018) çalışmalarında, Hummers yöntemi kullanılarak sentezlenen grafen oksidin FTIR analizi sonucunda 3400 cm^{-1} civarında O-H piklerinin varlığı rapor edilmiştir. Ancak, çalışmamızda, indirgenmiş grafen oksitte O-H grup piklerinin kaybolduğu ve oksijen içeren fonksiyonel grupların azaldığı gözlemlenmiştir. Bu durum, indirgeme işleminin etkinliğini doğrulamakta ve literatürdeki bulgularla uyumlu sonuçlar sunmaktadır.

Raman spektroskopisi analizine baktığımızda, literatürde sıkça vurgulanan ID/IG oranındaki artışın, indirgenmiş grafen oksit sentezi sırasında yapısal kusurların bir göstergesi olduğu belirtilmektedir (Li ve ark., 2020). Bizim çalışmamızda da benzer şekilde, indirgenmiş grafen oksit için ID/IG oranında bir artış gözlemlenmiştir. Ancak, Li ve arkadaşlarının çalışmasında ID/IG oranı yaklaşık 1.2 olarak belirtilirken, bizim çalışmamızda bu oran 1.4 seviyelerinde ölçülmüştür. Bu fark, kullanılan indirgeme ajanlarının türü ve deneysel tasarım parametrelerinden kaynaklanıyor olabilir.

XRD analiz sonuçlarına göre, literatürde 002 düzleminin 2θ açısındaki değişimin, oksidasyon ve indirgenme süreçlerinin etkili olduğunu gösterdiği belirtilmiştir (Wang ve ark., 2019). Bizim çalışmamızda, grafen oksit örneklerinde bu pik $9-13^\circ$ aralığında gözlemlenirken, indirgenmiş grafen oksitte bu pikin $22-26^\circ$ aralığına kaydığı görülmüştür. Bu durum, literatürdeki bulgularla uyumlu olmakla birlikte, indirgeme sürecinin etkinliği açısından daha güçlü bir kanıt sunmaktadır.

SEM-EDS analizlerine ilişkin literatürde, C/O oranındaki değişimlerin indirgeme işleminin başarılı olup olmadığını gösterdiği ifade edilmektedir. Örneğin, Kim ve arkadaşlarının (2021) çalışmasında indirgenmiş grafen oksit için C/O oranı 3.5-6.8 arasında rapor edilmiştir. Çalışmamızda elde edilen C/O oranlarının 3.81 ile 7.09 arasında değişmesi, bu bulgularla büyük ölçüde örtüşmekte ve sentez yöntemimizin etkinliğini desteklemektedir. Bununla birlikte, C/O oranlarındaki bu artış, kullanılan indirgeme ajanı olarak ürenin etkin bir şekilde oksijen içeren fonksiyonel grupları uzaklaştırdığını göstermektedir.

Mevcut çalışma, literatürdeki benzer çalışmalarla büyük ölçüde uyumlu sonuçlar sunmuş ve bazı parametrelerde daha başarılı sonuçlar elde etmiştir. Bununla birlikte, elde edilen sonuçlar, kullanılan deney tasarımı ve indirgeme ajanının seçiminin sentez sürecinde ne kadar kritik bir rol oynadığını bir kez daha göstermektedir. Gelecek çalışmalarda, farklı indirgeme ajanlarının ve deney tasarım parametrelerinin etkileri daha ayrıntılı şekilde araştırılarak literatüre katkı sağlanabilir.

5. ANALİZ VE OPTİMİZASYON

Azaltılmış grafen oksit sentezi kalite kriterileri, Raman analiziyle D/G pikinin ölçülmesi, XRD ile kristalit büyüklüğü (CS), BET ile yüzey alanı (SA), SEM+EDS ile karbon-oksijen oranı (C/O), ZETA-SIZER ile zeta potansiyeli (ZP) ve ortalama partikül boyutu (PS), bu çalışmanın Çizelge 5.1'de tekrarlanmıştır. Kullanılan deneysel tasarım $L_9(3^4)$ idi. Bu kalite kriterlerine ait deneysel bulgular, Tablo 5.2'de ortalama değerler olarak gösterilmiştir.

Çizelge 5.1 $L_9(3^4)$ tasarımı kullanılarak yapılan rGO sentezi üzerinde tekrarlanan kalite kriterlerinden elde edilen deneysel bulgular

Deney	ID/IG		Zeta Potansiyeli (mV) Zeta-Sizer		Particle Size (nm) Zeta-Sizer		C/O SEM-EDS		Kristal Boyutu (XRD-A)		Yüzey Alanı (BET-m ² /g)	
	Seri 1	Seri 2	Seri 1	Seri 2	Seri 1	Seri 2	Seri 1	Seri 2	Seri 1	Seri 2	Seri1	Seri2
Grpht	2,96	3,74	-25,8	-25,7	461,3	422,3	85,21	62,29	406	405	12,57	10,58
GO	1,01	0,98	-30,8	-31,1	265,7	276,2	1,93	2,00	47,2	102,6	16,51	14,98
rGO1	1,85	1,52	-25,3	-23,8	344,6	356	4,43	4,41	40,5	55,6	10,76	10,27
rGO2	1,63	1,59	-47,4	-42,8	109,4	103,6	5,57	5,54	55,7	23,7	11,64	12,05
rGO3	1,49	1,73	-29,9	-28,7	151,9	171,8	9,15	7,19	59,2	55,5	14,41	14,79
rGO4	1,57	1,59	-31,1	-28,4	93,79	83,54	5,10	5,22	51,5	53,1	28,78	28,34
rGO5	1,30	1,29	-32,3	-31,7	84,63	76,97	3,81	3,99	47,5	34	7,54	7,30
rGO6	1,64	1,63	-32,3	-30,9	100,1	105,8	4,84	5,05	36,3	46,3	34,95	34,64
rGO7	1,57	1,52	-20,3	-20,9	138,2	122,3	5,19	4,61	140,7	120,9	18,83	18,53
rGO8	1,50	1,65	-21,2	-21,2	164	167,7	4,85	4,79	47,5	34	28,99	27,17
rGO9	0,98	1,13	-25,2	-25,3	198,4	209,1	4,87	4,45	48,1	51,7	9,86	6,54

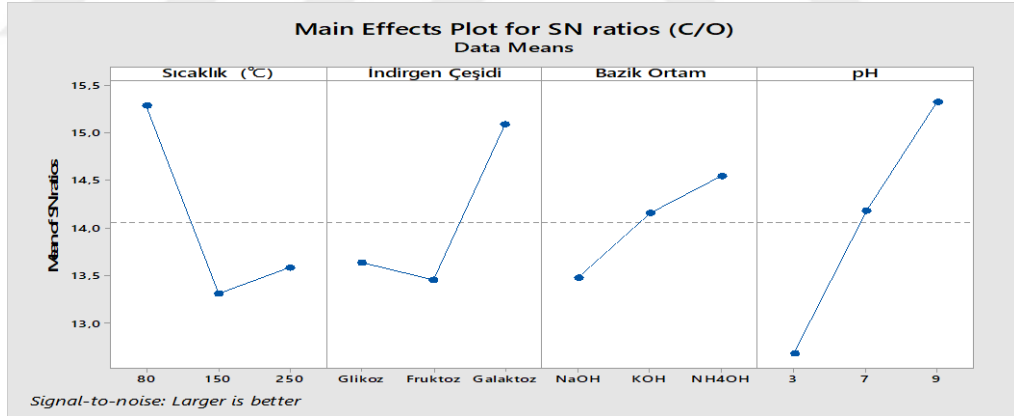
Çizelge 5.2 $L_9(3^4)$ deney tasarımı ile rGO sentezi deneylerine ilişkin ortalama deneysel sonuçlar

Deney	ID/IG	Zeta Potansiyeli (mV)	Particle Size (nm) Zeta-Sizer	C/O SEM-EDS	Kristal Boyutu (XRD-A)	Yüzey Alanı (BET-m ² /g)
	Seri Ort	Seri Ort	Seri Ort	Seri Ort	Seri Ort	Seri Ort
Grpht	3,35	-25,75	441,8	73,75	405,5	11,58
GO	0,99	-30,95	271,0	1,97	74,9	15,74
rGO1	1,69	-24,55	350,3	4,42	48,05	10,51
rGO2	1,61	-45,1	106,5	5,56	39,6	11,84
rGO3	1,61	-29,3	161,9	8,17	57,35	14,60
rGO4	1,58	-29,75	88,7	5,16	52,3	28,56
rGO5	1,29	-32	80,8	3,90	40,75	7,42
rGO6	1,63	-31,6	103,0	4,95	41,3	34,80
rGO7	1,55	-20,6	130,3	4,90	130,8	18,68
rGO8	1,57	-21,2	165,9	4,82	40,75	28,08
rGO9	1,05	-25,25	203,8	4,66	49,9	8,20

5.1 Taguchi Yöntemi Kullanılarak $L_9(3^4)$ Deney Tasarımı ile İndirgenmiş Grafen Oksit Numuneleri için Optimizasyon Sonuçları

Çizelge 5.1'de, $L_9(3^4)$ indirgenmiş grafen oksit üretimine ait kalite gereksinimleriyle ilgili testlerin sonuçları yer almaktadır. Eşitlikler 1.1.1-1.2'de sunulan denklemler kullanılarak, Şekil 5.1-5.6'da Taguchi Yöntemi'ne göre S/N değerlerine dayalı olarak parametrelerin optimum noktaları gösterilmiştir.

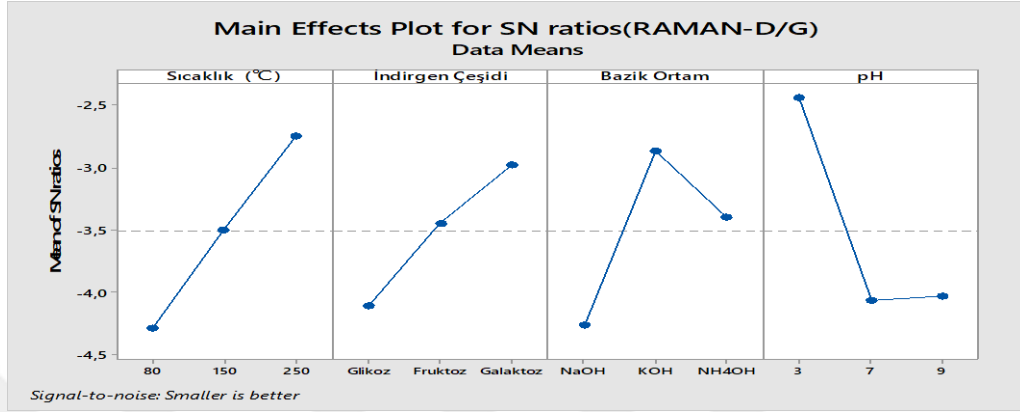
Şekil 5.1 de $L_9(3^4)$ deney tasarımı ile EDS-C/O sonuçları için Taguchi yöntemine göre parametreler ve seviyelerine ait optimum noktalar verilmiştir. SEM+EDS analizi ile indirgenme veriminin bir ölçüsü olan C/O oranları ile gerçekleştirilen optimizasyon sonuçlarında, sıcaklık artışı indirgenme verimi üzerinde olumsuz etki göstermiştir. İndirgen şekerler içinde en iyi performansı galaktoz göstermiştir. pH artışı indirgenme performansı üzerinde olumlu etki gösterirken, bazik ortam için en iyi performansı NH_4OH gerçekleştirmiştir.



Şekil 5.1 $L_9(3^4)$ deney tasarımı ile EDS-C/O sonuçlarına dayalı Taguchi yöntemiyle elde edilen S/N ana etki grafiklerinin gösterimi

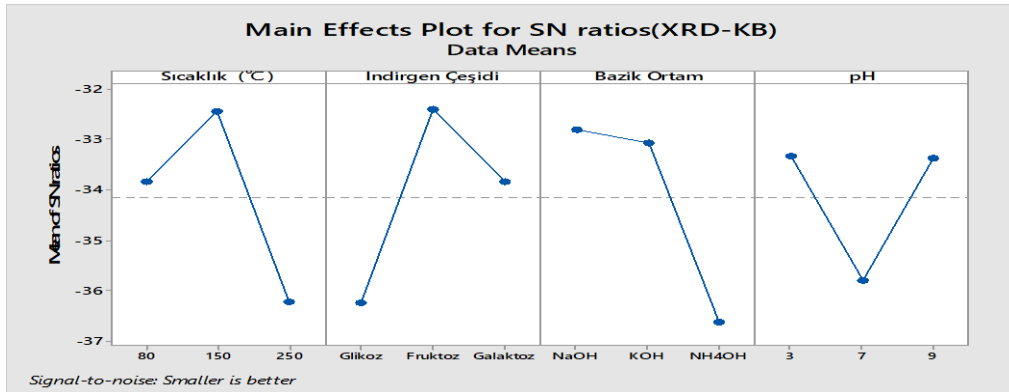
Şekil 5.2'de $L_9(3^4)$ deney tasarımı ile Raman-D/G sonuçları için Taguchi yöntemine göre parametreler ve seviyelerine ait optimum noktalar verilmiştir. Raman analizi ile yapıdaki kusur oranının bir göstergesi olan D/G oranları ile gerçekleştirilen optimizasyon sonuçlarında, sıcaklık artışı kusurlu yapının azaltılması üzerinde olumlu etki göstermiştir. Bunun sebebi yüksek sıcaklıkta indirgenme veriminin düşmesi ile yapıdaki

kusur oranının azalmasına bağlanabilir. İndirgen şekerler içinde en iyi performansı galaktoz göstermiştir. pH artışı yapıdaki kusur üzerinde olumsuz etki gösterirken, en az kusuru KOH vermiştir.



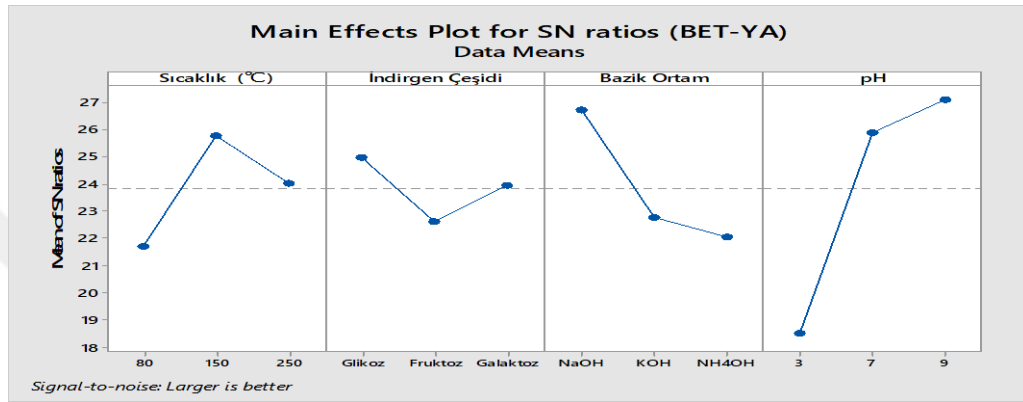
Şekil 5.2 $L_9 (3^4)$ deney tasarımı için raman-D/G sonuçlarına dayalı Taguchi yöntemiyle elde edilen S/N ana etki grafiklerinin gösterimi

Şekil 5.3’de $L_9 (3^4)$ deney tasarımı ile XRD-KB sonuçları için Taguchi yöntemine göre parametreler ve seviyelerine ait optimum noktalar verilmiştir. XRD analizi ile kristal boyutu ile gerçekleştirilen optimizasyon sonuçlarında, sıcaklık artışı 150°C kadar olumlu etki göstermiştir. İndirgen şekerler içinde en iyi performansı fruktoz göstermiştir. Yüksek ve düşük pH değerleri kristal boyutu üzerinde olumlu etki gösterirken, bazık ortam için en iyi performansı NaOH gerçekleştirmiştir.



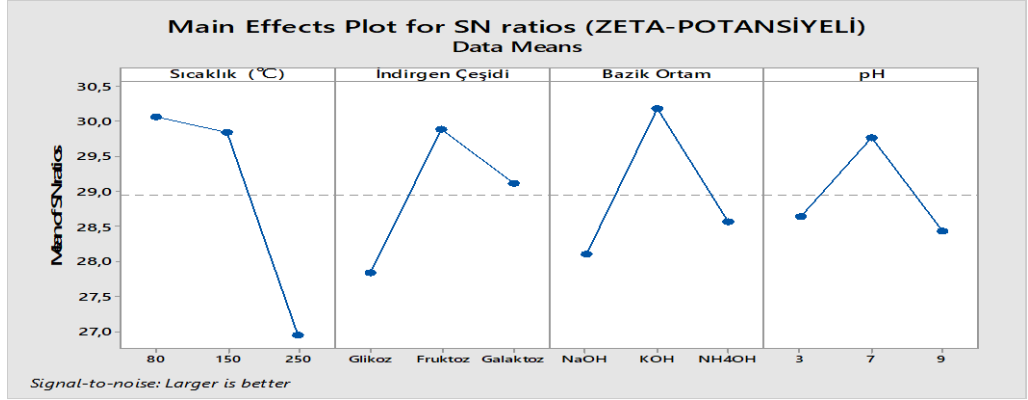
Şekil 5.3 $L_9 (3^4)$ deney tasarımı için XRD-KB sonuçlarına dayalı Taguchi yöntemiyle elde edilen S/N ana etki grafiklerinin gösterimi

Şekil 5.4’de $L_9(3^4)$ deney tasarımı ile BET-YA sonuçları için Taguchi yöntemine göre parametreler ve seviyelerine ait optimum noktalar verilmiştir. BET analizi ile yüzey alanı ölçümü ile gerçekleştirilen optimizasyon sonuçlarında, sıcaklık artışı 150 °C kadar olumlu etki göstermiştir. İndirgen şekerler içinde en iyi performansı glikoz göstermiştir. pH artışı yüzey alanı değerleri üzerinde olumlu etki gösterirken, bazık ortam için en iyi performansı NaOH gerçekleştirmiştir.



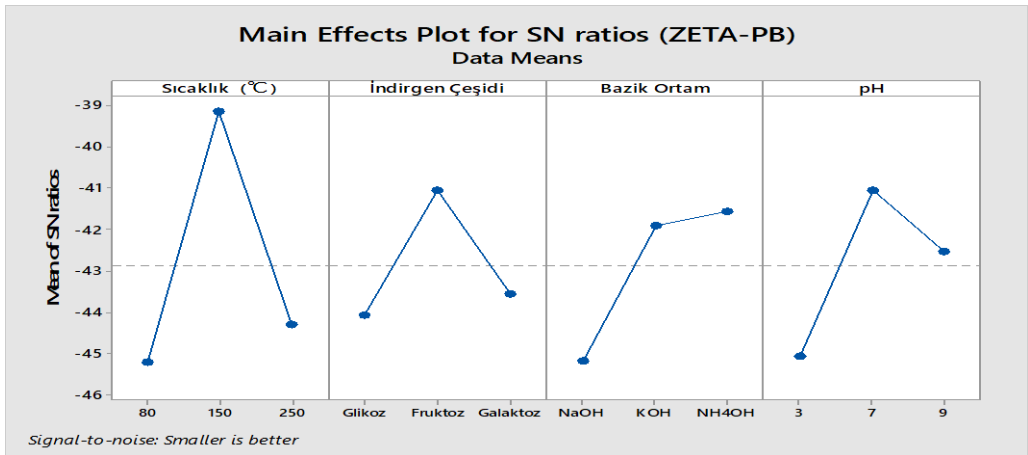
Şekil 5.4 $L_9(3^4)$ deney tasarımı için BET-YA sonuçlarına dayalı Taguchi yöntemiyle elde edilen S/N ana etki grafiklerinin gösterimi

Şekil 5.5 de $L_9(3^4)$ deney tasarımı ile Zeta-Potansiyeli sonuçları için Taguchi yöntemine göre parametreler ve seviyelerine ait optimum noktalar verilmiştir. Zeta analizi ile dispersiyon özelliğinin bir ölçüsü olan Zeta Potansiyeli ölçümleri ile gerçekleştirilen optimizasyon sonuçlarında, sıcaklık artışı ile dispersiyon özelliği üzerinde olumsuz etki göstermiştir. İndirgen şekerler içinde en iyi performansı fruktoz göstermiştir. pH=7 değeri dispersiyon özelliği için en iyi değer olup, bazık ortam için en iyi performansı KOH gerçekleştirmiştir.



Şekil 5.5 $L_9 (3^4)$ deney tasarımı için zeta potansiyeli sonuçlarına dayalı Taguchi yöntemiyle elde edilen s/n ana etki grafiklerinin gösterimi

Şekil 5.6 de $L_9 (3^4)$ deney tasarımı ile Zeta-PB sonuçları için Taguchi yöntemine göre parametreler ve seviyelerine ait optimum noktalar verilmiştir. Ortalama parçacık boyut ile gerçekleştirilen optimizasyon sonuçlarında, sıcaklık artışı 150 °C kadar olumlu etki göstermiştir. İndirgen şekerler içinde en iyi perfomansı fruktoz göstermiştir. pH=7 değeri dispersiyon özelliği için en iyi değer olup, bazık ortam için en iyi performansı NH_4OH gerçekleştirmiştir.



Şekil 5.6 $L_9 (3^4)$ deney tasarımı için Zeta-PB sonuçlarına dayalı Taguchi yöntemiyle elde edilen S/N ana etki grafiklerinin gösterimi

Çizelge 5.3 $L_9 (3^4)$ Deney tasarımı ile sentezlenen rGO örneklerinde, sentezlenen GO-Ref örneği referans alınarak hesaplanan iyileşme oranları

	Yanıtlar	^a GO-Ref	* $L_9 (3^4)$	İyileşme Oranı (GO-B2)
$L_9 (3^4)$ Deney tasarımı ile sentezlenen rGO İyileşme Oranları	ID/IG (Raman)	0,99	1,05	-% 6,6
	Zeta Potansiyeli(mv)	-30,95	-45,1	%45,71
	Parçacık Boyutu (PB-nm)	271	88,7	% 67,26
	Yüzey Alanı (YA-m ² /g) (BET)	15,74	34,8	% 121,1
	C/O (SEM+EDAX)	1,97	8,17	%314,7 ^a
	Kristal Boyutu(A) XRD	74,9	40,75	%54,4

* GO-Ref göre % iyileşme oranlarının kalite kriterleri için hesaplanması

Yüzde değişim = (((Yeni değer/Eski değer)-1) *100

Yüzde değişim ^a = ((8,17/1,97)-1) *100 =314,7

Çizelge 5.3’de $L_9 (3^4)$ Deney tasarımı ile sentezlenen rGO örneklerindeki kalite kriterlerine ait elde edilen en iyi sonuçlar, grafen oksit örneği referans alınarak iyileşme oranları hesaplanmıştır. Bu sonuçlara göre, Raman analizinde D/G pik oranı için %-6.6, XRD analizinde kristal boyutu değeri için %54,4 , SEM+EDS analizinde C/O oranı için % 314,7 , BET analizinde yüzey alanı değeri için %121,1 , Zeta analizi ile ortalama parçacık boyut dağılımı için % 67,26 ve Zeta potansiyeli ölçümü için % 45,71 değeri elde edilmiştir

6. SONUÇ VE ÖNERİLER

Bu tez çalışmasında grafitten Hummers yöntemi grafen oksit sentezlenmiş, sentezlenen grafen oksit örnekleri L₉ (3⁴) deney tasarımı kullanılarak indirgenmiş grafen oksit sentezinin kalite kriterlerine göre Taguchi yöntemi kullanılarak optimizasyonu gerçekleştirilmiştir. Deney tasarım modelinde yüksek sıcaklıklara çıkılarak solvo termal etki ile indirgenme işleminin performansının artırılması hedeflendi, ancak beklenen indirgenme performansına, indirgen şekerlerin yüksek sıcaklığın etkisi ile yapısının bozularak indirgenme performansında bir düşüşe sebep olduğu gözlenmiştir. Yüksek sıcaklıkta indirgenme performansının düşmesi ile daha az kusurlu yapılar elde edilmiştir. 150°C üzerinde çalışmak kalite kriterleri açısından olumsuz etki göstermiştir. İndirgeme verimi ve az kusurlu yapılar elde edilmesi açısından en iyi performansı galaktoz göstermiştir. Bazik ortam, indirgen şekerlerin performansını artırarak kalite kriterleri üzerinde olumlu etkiye sebep olmuştur.

Çalışma sonuçları göstermiştir ki hidrazin ve sodyum bor hidrür gibi toksik etkilere sahip pahalı kimyasallar yerine, çevreye duyarlı, ekonomik doğal içerikli yeşil sentez kapsamında bileşiklerin indirgenmiş grafen oksit sentezinde de kullanılabileceğini göstermiştir. Bu sayede indirgenmiş grafen oksidin toksik etkileri azaltılarak gıda, ilaç, kozmetik gibi insan sağlığına zararlı etkileri olmayan proseslerde tercih edilmesinin önünü açabilecektir.

KAYNAKLAR

- Abdelkader, A.M., Karim, N., Vallés, C., Afroj, S., Novoselov, K.S. and Yeates, S.G. 2017. Ultraflexible and robust graphene supercapacitors printed on textiles for wearable electronics applications. *2D Materials*, 4(3): 035016.
- Ajala, O.J., Tijani, J.O., Bankole, M.T. and Abdulkareem, A. S. 2022. A critical review on graphene oxide nanostructured material: Properties, synthesis, characterization and application in water and wastewater treatment. *Environmental Nanotechnology, Monitoring & Management*, 18, 100673.
- Altuntepe, Ü. 2024. Bor katkılı indirgenmiş grafen oksit sentezi ve karakterizasyonu, Yüksek Lisans Tezi, Niğde Ömer Halisdemir Üniversitesi, 47 sayfa, Niğde.
- An, Y.C., Gao, X.X., Jiang, W.L., Han, J.L., Ye, Y., Chen, T.M. and Ren, N.Q. 2023. A critical review on graphene oxide membrane for industrial wastewater treatment. *Environmental Research*, 223, 115409.
- Bedeloğlu, A. And Taş, M. 2016. Grafen ve grafen üretim yöntemleri. *Fen ve Mühendislik Bilimleri Dergisi*, 16(3): 544-554.
- Cacaci, M., Martini, C., Guarino, C., Torelli, R., Bugli, F. and Sanguinetti, M. 2020. Graphene oxide coatings as tools to prevent microbial biofilm formation on medical device. *Advances in Microbiology, Infectious Diseases and Public Health: Volume 14*, 21-35.
- Cohen-Tanugi, D. and Grossman, J.C. 2012. Water desalination across nanoporous graphene. *Nano letters*, 12(7): 3602-3608.
- Farjadian, F., Abbaspour, S., Sadatlu, M.A.A., Mirkiani, S., Ghasemi, A., Hoseini G. M. and Hamblin, M.R. 2020. Recent developments in graphene and graphene oxide: Properties, synthesis, and modifications: A review. *ChemistrySelect*, 5(33): 10200-10219.
- Geim, A.K. and Novoselov, K.S. 2007, The rise of graphene. *Nat. Mater.* 6(3): 183–191
- Gizem, A., Ç. 2021. Modifiye hummers yöntemi ve mikrodalga desteği ile indirgenmiş grafen oksit sentezinde parçacık boyutu ve mikrodalga süresi etkisinin belirlenmesi, Yüksek Lisans Tezi, Mersin Üniversitesi, 83 sayfa, Mersin.
- Guo, S., Garaj, S., Bianco, A. and Ménard-Moyon, C. 2022. Controlling covalent chemistry on graphene oxide. *Nature Reviews Physics*, 4(4): 247-262.
- Han, D.J., Kim, S. and Cho, E.S. 2021. Revealing the role of defects in graphene oxide in the evolution of magnesium nanocrystals and the resulting effects on hydrogen storage. *Journal of Materials Chemistry A*, 9(15): 9875-9881.
- Hernández-Chávez, G., Martinez, A. and Gosset, G. 2019. Metabolic engineering strategies for caffeic acid production in *Escherichia coli*. *Electron. J. Biotechnol.* 38: 19–26.
- Hidayah, N.M.S., Liu, W.W., Lai, C.W., Noriman, N.Z., Khe, C.S., Hashim, U. and Lee, H.C. 2017. Comparison on graphite, graphene oxide and reduced graphene oxide: Synthesis and characterization. In: *AIP conference proceedings* 1892: 1.
- Hummers W.S. and Offeman R.E. 1958. Preparation of graphitic oxide. *Journal of American Chemical Society*, 80:1339.
- Ito, A.M., Vemula, S.L., Gupta, M.T., Giram, M.V., Kumar, S.A., Ghosh, B. and Biswas, S. 2022. Multifunctional graphene oxide nanoparticles for drug delivery in cancer. *Journal of Controlled Release*, 350: 26-59.

- Jiříčková, A., Jankovský, O., Sofer, Z. and Sedmidubský, D. 2022. Synthesis and applications of graphene oxide. *Materials*, 15(3): 920.
- Kandulna, R., Das, U., Choudhary, R.B., Kachhap, B. and Kumar, A. 2023. Enriched properties of polypyrrole-copper oxide-reduced graphene oxide (PPY-CuO-rGO) hybrid nanocomposite for organic light emitting diodes (OLEDs) as electron transport layer (ETL) material. *Optik*, 292: 171393.
- Karna, S.K. and Sahai, R. 2012. An overview on Taguchi method. *International Journal Of Engineering And Mathematical Sciences*, 1(1): 1-7.
- Kiamahalleh, M.V., Gholampour, A., Tran, D.N., Ozbakkaloglu, T. and Losic, D. 2020. Physiochemical and mechanical properties of reduced graphene oxide cement mortar composites: Effect of reduced graphene oxide particle size. *Construction and Building Materials*, 250: 118832.
- Korucu, H. 2019. Karbon kaynaklı malzeme katkılı beton harçının fiziksel ve kimyasal özelliklerinin araştırılması: Bir deneysel tasarım tabanlı çok yanıtli optimizasyon uygulaması, Doktora Tezi, Çankırı Karatekin Üniversitesi, 157 sayfa, Çankırı
- Korucu, H. 2022. Evaluation of the performance on reduced graphene oxide synthesized using ascorbic acid and sodium borohydride: Experimental designs based multi response optimization application. *Journal of Molecular Structure*, 1268: 133715.
- Korucu, H., Mohamed, A.I., Yartaşı, A. and Uğur, M. 2023. The detailed characterization of graphene oxide. *Chemical Papers*, 77(10): 5787-5806.
- Kunz, T., Lee, E.J., Schiwiek, V., Seewald, T. and Methner, F.J. 2011. Glucose-a reducing sugar? Reducing properties of sugars in beverages and food. *Brew. Sci*, 64: 61-67.
- Li, Y., Tang, L. and Li, J. 2009. Preparation and electrochemical performance for methanol oxidation of Pt/graphene nanocomposites. *Electrochemistry Communications*, 11(4): 846-849.
- Lu, D., Zhang, M., Zhang, Z., Li, Q., Wang, X. and Yang, J. 2014. Self-organized vanadium and nitrogen co-doped titania nanotube arrays with enhanced photocatalytic reduction of CO₂ into CH₄. *Nanoscale research letters*, 9: 1-9.
- Majeed S.T. 2024 Optimization of boric acid removal with graphene oxide samples. Yüksek Lisans Tezi, Çankırı Karatekin Üniversitesi, 70 sayfa, Çankırı.
- Marcano D.C., Kosynkin D.V., Berlin J.M., Sinitskii A., Sun Z., Slesarev A., Alemany L.B., Lu W. and Tour J.M. 2010. Improved synthesis of graphene oxide, *American Chemical Society ACS Nano*, 4(8): 4806-4814.
- Mohammed İ.E. 2021. Farklı yöntemler kullanılarak grafen oksit sentezinin karakterizasyonu, Yüksek Lisans Tezi, Çankırı Karatekin Üniversitesi, 66 sayfa, Çankırı.
- Muhammad A.K.N.N., Ahmad, F., Teoh, S.L. and Yahaya, M.F. 2021. Caffeic acid on metabolic syndrome: A review. *Molecules*, 26: 5490.
- Muzyka, R., Drewniak, S., Pustelny, T., Chrubasik, M. and Gryglewicz, G. 2018. Characterization of graphite oxide and reduced graphene oxide obtained from different graphite precursors and oxidized by different methods using Raman spectroscopy. *Materials*, 11(7): 1050.
- Nor Ismail, F.N. and Ikhsan, N.I. 2024. One-pot synthesis and characterizations of highly conductive reduced graphene oxide-silver nanohybrid at various reaction time. *Fullerenes, Nanotubes and Carbon Nanostructures*, 1-8.

- Novoselov K.S., Geim A.K., Morozov S.V., Jiang D., Zhang Y., Dubonos S.V., Grigorieva, I.V. and Firsov, A.A. 2004. Electric field effect in atomically thin carbon films. *Science*, 306: 666– 669.
- Özetekin, D. 2023. İndirgenmiş grafen oksit sentezinin karakterizasyonu, Yüksek Lisans Tezi, Gazi Üniversitesi, 134 sayfa, Ankara.
- Phadke, M.S. 1989. *Quality Engineering Using Robust Design Book*. Library of Congress Cataloging AT & T Bell Laboratories, New Jersey, USA.
- Pourbeyram, S., Abdollahpour, J. and Soltanpour, M. 2019. Green synthesis of copper oxide nanoparticles decorated reduced graphene oxide for high sensitive detection of glucose. *Materials Science and Engineering: C*, 94: 850-857.
- Priyadharshini, S.D., Manikandan, S., Kiruthiga, R., Rednam, U., Babu, P. S., Subbaiya, R. and Govarthan, M. 2022. Graphene oxide-based nanomaterials for the treatment of pollutants in the aquatic environment: Recent trends and perspectives—A review. *Environmental Pollution*, 306: 119377.
- Pulingam, T., Thong, K.L., Appaturi, J.N., Lai, C.W. and Leo, B. F. 2021. Mechanistic actions and contributing factors affecting the antibacterial property and cytotoxicity of graphene oxide. *Chemosphere*, 281:130739.
- Rashid, A.R.A. and Rosli, H. 2021. Green synthesis of reduced graphene oxide by using reducing sugars. *Nano Hybrids and Composites*, 31: 17-24.
- Razaq, A., Bibi, F., Zheng, X., Papadakis, R., Jafri, S.H.M. and Li, H. 2022. Review on graphene-, graphene oxide-, reduced graphene oxide-based flexible composites: From fabrication to applications. *Materials*, 15(3): 1012.
- Shams, S.S., Zhang, R. and Zhu, J. 2015. Graphene synthesis: a review. *Materials Science-Poland*, 33(3): 566-578.
- Silva, R.O., Freitas Filho, J.D. and Freitas, J.C.R.D. 2018. D-glicose, uma biomolécula fascinante: história, propriedades, produção e aplicação. *Revista Virtual Quimica*. 10, 875–891.
- Sova, M. 2012. Antioxidant and antimicrobial activities of cinnamic acid derivatives. *Mini Rev. Med. Chem.* 12, 749–767.
- Stobinski, L., Lesiak, B., Malolepszy, A., Mazurkiewicz, M., Mierzwa, B., Zemek, J. and Bieloshapka, I. 2014. Graphene oxide and reduced graphene oxide studied by the XRD, TEM and electron spectroscopy methods. *Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena*, 195, 145-154.
- Su, C.Y., Lu, A.Y., Xu, Y., Chen, F.R., Khlobystov, A.N. and Li, L.J. 2011. High-quality thin graphene films from fast electrochemical exfoliation. *ACS nano*, 5(3): 2332-2339.
- Şimşek, B. 2019. TOPSIS based Taguchi design optimization for CVD growth of graphene using different carbon sources: Graphene thickness, defectiveness and homogeneity. *Chinese Journal of Chemical Engineering*, 27(3): 685-694.
- Taguchi, G. Chowdhury, S. Wu, Y. 2005. *Taguchi's quality engineering handbook*. John Wiley and Sons., 1662 sayfa, New Jersey, USA.
- Tang, X.Z., Li, X., Cao, Z., Yang, J., Wang, H., Pu, X. and Yu, Z.Z. 2013. Synthesis of graphene decorated with silver nanoparticles by simultaneous reduction of graphene oxide and silver ions with glucose. *Carbon*, 59: 93-99.
- Tarcan, R., Todor-Boer, O., Petrovai, I., Leordean, C., Astilean, S. and Botiz, I. 2020. Reduced graphene oxide today. *Journal of Materials Chemistry C*, 8(4): 1198-1224.

- Teixeira, J.V.U., Pimentel, G.J.C., Santos, A.A., Dias, L.F.G., Mastelaro, V.R. and Lisboa-Filho, P. N. 2023. Partially reduced graphene oxide produced by glucose in alkaline conditions using probe sonication: the role of the base in reduction. *Journal of materials research and technology*, 26: 1785-1797.
- Tiyek, İ., Dönmez U., Yıldırım B., Alma M.H., Ersoy M.S., Karataş Ş. ve Yazıcı M., 2016. Kimyasal yöntem ile indirgenmiş grafen oksit sentezi ve karakterizasyonu, *Sakarya Üniversitesi Fen Bilimleri Dergisi* 20 (2): 359-357.
- Tohamy, H.A.S., Anis, B., Youssef, M.A., Abdallah, A.E., El-Sakhawy, M. and Kamel, S. 2020. Preparation of eco-friendly graphene oxide from agricultural wastes for water treatment. *Desalination and Water Treatment*, 191: 250-262.
- Topaç E. 2014. İyileştirilmiş Hummers metodu ile indirgenmiş grafen oksit sentezi. Yüksek Lisans Tezi, Gebze Yüksek Teknoloji Enstitüsü Mühendislik ve Fenbilimleri Enstitüsü, Gebze.
- Urade, A.R., Lahiri, I. and Suresh, K.S. 2023. Graphene properties, synthesis and applications: a review. *Jom*, 75(3): 614-630.
- Wang, R., Yang, R. and Zhang, Y. 2017. A study of applying green glucose-reduced graphene oxide in advanced treatment of different dyes. *Desalin. Water Treat*, 70, 387-393.
- Xu, C., Shi, L., Ji, A., Shi, X., Wang, X. and Wang, X. 2016. Synthesis and characterization of reduced graphene oxide with D-fructose and D-galactose as reductants. *Journal of Nanoscience and Nanotechnology*, 16(9): 9914-9918.
- Yiğit, A. 2021. Organik moleküllerle modifiye edilen karbon nano tüplerin tasarımı, eldesi, karakterizasyonu ve antimikrobiyal özelliklerinin incelenmesi, Doktora tezi, Van Yüzüncü Yıl Üniversitesi, 221 sayfa, Van.
- Yu, J., Lin, M., Tan, Q. and Li, J. 2021. High-value utilization of graphite electrodes in spent lithium-ion batteries: From 3D waste graphite to 2D graphene oxide. *Journal of Hazardous Materials*, 401:123715.
- Yu, W., Sisi, L., Haiyan, Y. and Jie, L. 2020. Progress in the functional modification of graphene/graphene oxide: A review. *RSC advances*, 10(26): 15328-15345.
- Zhang, Y.I., Zhang, L. and Zhou, C. 2013. Review of chemical vapor deposition of graphene and related applications. *Accounts of chemical research*, 46(10): 2329-2339.
- Zhu, C., Guo, S., Fang, Y. and Dong, S. 2010. Reducing sugar: new functional molecules for the green synthesis of graphene nanosheets. *ACS Nano*, 4(4): 2429-2437.

