



## Yeni Bir Yaklaşımla Elde Edilen Grafen Oksit Sentezlerinde SEM ve TEM Analizleri

Ömer Laçın\*

<sup>1</sup>Kimya Mühendisliği / Fen Bilimleri Enstitüsü, Atatürk Üniversitesi, Türkiye  
ORCID ID 0000-0002-5276-3056, [olacin@atauni.edu.tr](mailto:olacin@atauni.edu.tr)

(3th International Conference on Applied Engineering and Natural Sciences ICAENS 2022, July 20-23, 2022)

(DOI: 10.31590/ejosat.1137870)

**ATIF/REFERENCE:** Laçın, Ö. (2022). Yeni Bir Yaklaşımla Elde Edilen Grafen Oksit Sentezlerinde SEM ve TEM Analizleri. *Avrupa Bilim ve Teknoloji Dergisi*, (39), 76-79.

### Öz

Hummers yöntemine yeni bir yaklaşım getirerek elde edilen grafen oksite sentezlerinin, taramalı ve geçirimli elektron mikroskopu analizleri incelenered literatürdeki diğer grafen oksit sentezlerine uyup uymadıkları incelenmiştir. SEM analizlerinden; oksijen içeren fonksiyonel grupların, grafit bazal düzleminde karbon atomları ile kovalent olarak bağlanıp  $sp^2$  konjuge sistemini bozduğunu dolayısıyla dalgali, katlanmış bölgeli, ince ve esnek tabakalı bir nano yüzey morfolojisinin hakim olduğu, tabakalar arası boşlukların grafitte göre daha geniş olduğu gözlenmiştir. TEM analizlerinden; ultra ince bir ipeksi görünüm sergilediği ve kenarlarının katlanmış peçe şeklinde bir morfolojiye sahip olduğu, elektron ışını altında karanlık ve yarı saydam alanlar ortaya çıktığı gözlenmiştir. Bu sonuçların da literatürdeki grafen oksit sentezlerine uyum sağladıkları belirlenmiştir.

**Anahtar Kelimeler:** Grafit, Grafen oksit, Hummers Yöntemi, Nanomalzeme, SEM, TEM.

## SEM and TEM Analyses of Graphene Oxide Syntheses Obtained with a New Approach

### Abstract

Graphene oxide syntheses obtained by bringing a new approach to Hummers method, scanning and transmission electron microscopy analyzes were examined and it was examined whether they fit other graphene oxide syntheses in the literature. From SEM analysis; , it was observed that oxygen-containing functional groups covalently bond with carbon atoms in the basal plane of graphite and deconstruct the  $sp^2$  conjugate system, so the morphology of a nano-surface with wavy, folded regions, thin and flexible layers prevails, and the inter-layer gaps are wider than in graphite.. From TEM analysis; it was observed that it exhibits an ultra-thin silky appearance and its edges have a folded veil-shaped morphology, dark and translucent areas appear under the electron beam. It has been determined that these results were compatible with the graphene oxide syntheses in the literature.

**Keywords:** Graphite, Graphene oxide, Hummers Method, Nanomaterial, SEM, TEM.

## 1. Giriş

Karbon allotroplarından biri olan grafit; güçlü kovalent bağlarıyla bağlanmış karbon atomları ve altıgen bazal düzlemler arasında ise Van Der Walls bağlarıyla bağlanmasıyla üç boyutlu ve çok tabakalı bir kristal yapı sergilemektedir. Zayıf Van Der Walls bağları, tabakaların birbirlerinden kolayca ayrılmasına neden olmaktadır. Ayrıca grafit; kolay elde edilebilir, düşük maliyetli, grafen oksit (GO) ve grafene kolayca dönüşümü nedeniyle son yıllarda çok rağbet görmektedir [1-2].

GO'nun sentez şartlarına göre;  $sp^2$  hibritleşmesi yapan karbon atomlarının  $sp^3$  hibritleşmesi yapan karbon atomlarına oranının kontrollü bir şekilde değişebilir, elektronik ve optik özelliklerinin ayarlanabilir ve hidrofilikliği ile suda çok iyi disperse olması nedeniyle, kaplama teknolojilerinden savunma sanayiine ve enerji depolamadan biyomedikale kadar çok geniş bir uygulama alanı bulmaktadır. Ayrıca, sentez aşamalarında hem reaktanların hem de yan ürünlerin tehlikeli maddeler içermesinden dolayı da grafitten grafen oksit eldesi üzerine farklı yöntemlerle çalışmalar yapılmaktadır [3-9].

Grafen oksitin özellikleri; morfolojisine, doğasına ve reaksiyon şartlarına bağlı olduğundan farklı şartlarda sentezlenen grafen oksitin özellikleri de farklı olmaktadır. Dolayısıyla sentezlenen her grafen oksit literatüre önemli bir katkı sağlamaktadır [9].

Bu çalışmada, Hummers yöntemindeki  $NaNO_3$  konsantrasyonunun değiştirilmesi ile elde edilen sentezlerin, GO'ya dönüşümünün SEM ve TEM analizleri ile incelenmesi ve literatürdeki GO sentezlerine uyumluluğunun belirlenmesi amaçlanmıştır.

## 2. Materyal ve Metot

### 2.1. Kullanılan Materyal ve Kimyasallar

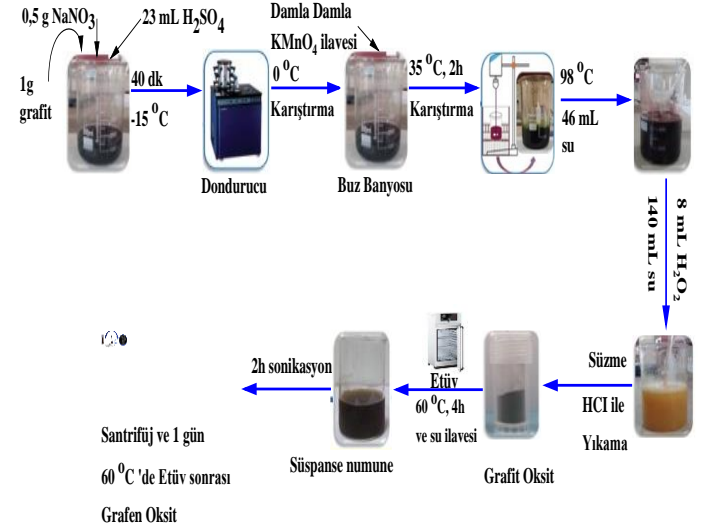
Ultrasonik banyo 150w (çalışkan lab.), ısıtıcı manyetik karıştırıcı (ıka yellowline msh basic), pH metre (mettler toledo), santifürj cihazı, etüv, termometre, 250 ml'lik cam reaktör ve çeker ocak materyalleri kullanılmıştır.

325 meş grafit (merck),  $NaNO_3$  (merck), %98'lik  $H_2SO_4$  (merck),  $KMnO_4$  (merck), ultra deiyonize su, %30'luk  $H_2O_2$  (merck) ve %37'lik HCl (fluka) kimyasalları kullanılmıştır.

### 2.2. Deneysel Sistem

Çalışmanın deneysel sistemi Şekil 1'de verilmiştir. Karıştırma hızı, homojen bir süspansiyonun gözlemlendiği 500 rpm olarak belirlenmiştir. Oksidasyon reaksiyonu için 250 mL'lik cam reaktöre; 1 gr grafit tozu, 0-0,50 g  $NaNO_3$ , 23 ml  $H_2SO_4$  ilave edilmiş ve belirlenen hızda 30 dk süre boyunca karıştırılmıştır. Elde edilen karışımlara uygulama sırasına göre; GO-Na0 ve GO-Na0.50 kodları verilmiştir. Bu karışımlara, buz banyosunda 500 rpm  $0^\circ C$ 'de 3 gr  $KMnO_4$  ilave edilmiş ve Eşitlik 1-2'deki oksidasyon reaksiyonları gerçekleştirilmiştir. Patlama riskini indirmek için, sıcaklığın  $5^\circ C$ 'yi geçmeyecek şekilde  $KMnO_4$

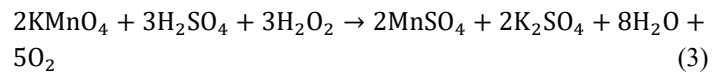
ilavesinin çok yavaş ve kontrollü bir şekilde yapılmasına dikkat edilmiştir.



Şekil 1. Deneysel Sistem

Reaksiyonda oluşan  $HSO_4^-$  iyonları grafit bazal düzlemine saldırırken, ortamdaki  $Na^+$  iyonları grafit tabakaları arasında girer ve burada d aralığını genişletir [14].

Eşitlik 1-2'deki reaksiyonlar sonunda elde edilen koyu yeşil renkli grafit oksiti, mekanik olarak grafen okside dönüştürmek amacıyla, sıcaklık  $35^\circ C$ 'ye ayarlanıp  $50^\circ C$ 'yi geçmeyecek şekilde numune 2 saat boyunca karıştırılmıştır. Süre sonunda açık kahverengiye dönen karışımın sıcaklığı  $98^\circ C$ 'ye yükseltilip 46 mL ultra saf su, kontrollü bir biçimde ilave edilmiştir. Bu esnada karıştırmaya 15 dk devam edilmiş ve rengin koyu kahverengiye dönüştüğü gözlemlenmiştir. Daha sonra, 140 mL ultra saf su ve 8 mL  $H_2O_2$  ilavesiyle  $KMnO_4$  fazlası, Eşitlik 3'de gösterildiği gibi suda çözünen mangan sülfat tuzuna dönüştürülmüştür (bu esnada renk sarıya dönüşmüştür).



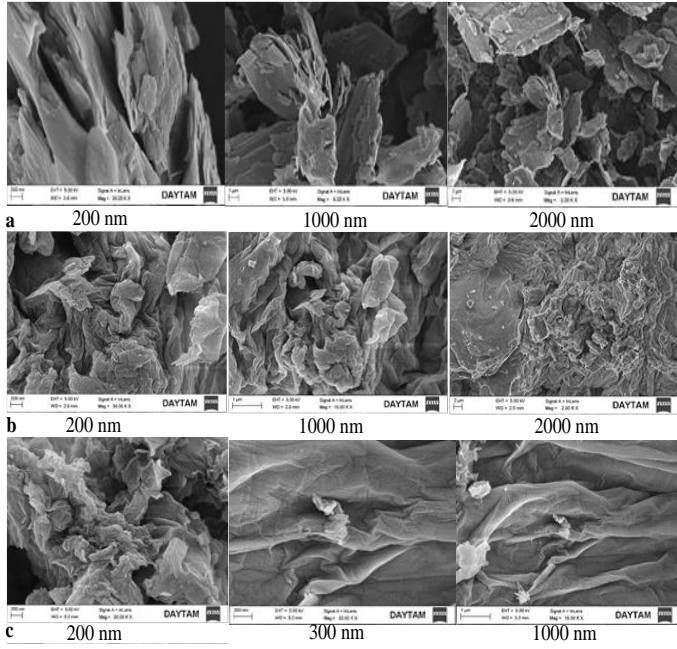
Nihai karışım, 1 gün boyunca oda sıcaklığında bekletildikten sonra süzülmesi ve katı numune bünyesindeki metal iyonlarının giderilmesi için %10'luk HCl ile daha sonra ortamdaki reaksiyona girmeyen asit fazlasının giderilmesi için ise saf su ile nötr olana kadar birkaç kez yıkanmıştır. Daha sonra numune,  $60^\circ C$ 'deki etüvde 4 saat kurutulduktan sonra saf su ilave edilerek grafen oksit süspansiyonu elde edilmiş, 2 saat boyunca sonikasyona (güç: 150 W ve frekans: 33 KHz) tabi tutulmuş ve 5 dk boyunca 3000 dev.dk<sup>-1</sup> hızda santrifüj edilmiştir. Son olarak, katı numune  $60^\circ C$ 'de etüvde 1 gün boyunca kurutulmuş grafit oksit sentezleri elde edilmiştir.

### 2.3. Taramalı ve Geçirimli elektron mikroskobu

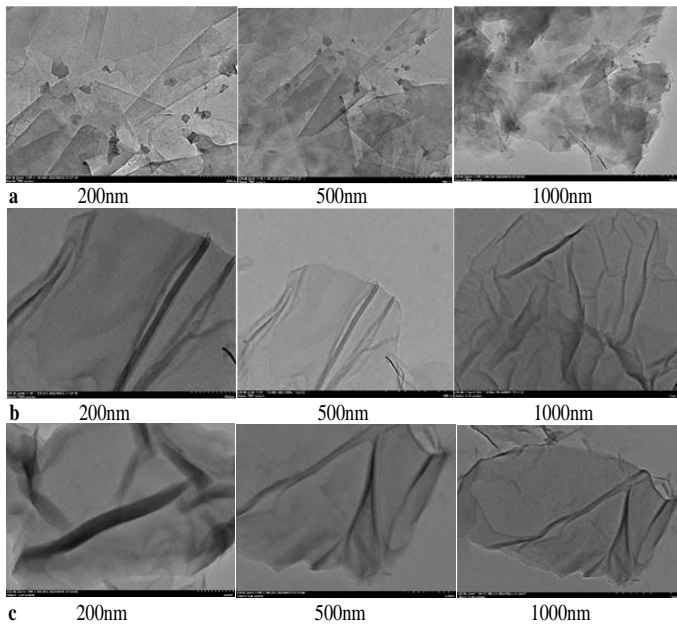
Çalışmada SEM görüntüleri için Zeiss Sigma 300 model cihaz kullanılmıştır. SEM cihazı ile, 500-100.000 aralığında büyütme uygulanarak numuneyi hızlıca taranmış ve yüksek kaliteli görüntüler elde edilmiştir. TEM görüntüleri için ise Hitachi hightech ht7700 model cihaz kullanılmıştır. TEM ile, numunelerin mikro ve nano ölçeklerde kristal yapısı belirlenmiştir [10].

### 3. Araştırma Sonuçları ve Tartışma

Grafit ve sentezlenen örneklerde SEM-TEM mikrografları sırasıyla, Şekil 2-3'de verilmiştir.



Şekil 2. SEM Mikrografları, a) grafit b) GO-Na0 ve c) GO-Na0.50



Şekil 3. TEM Mikrografları, a) grafit, b) GO-Na0 ve c) GO-Na0.50

### 4. Sonuç

Şekil 2'de SEM mikrograflarından; oksijen içeren fonksiyonel grupların, grafit bazal düzleminde karbon atomları ile kovalent olarak bağlanıp  $sp^2$  konjuge sistemini bozduğunu dolayısıyla dalgalı, katlanmış bölge, ince ve esnek tabakalı bir nano yüzey morfolojisinin hakim olduğu, tabakalar arası boşlukların grafitte göre daha geniş olduğu gözlenmiştir. Oksijen içeren fonksiyonel gruplar, grafit bazal düzleminde karbon atomları ile kovalent olarak bağlanıp  $sp^2$  konjuge sistemini bozduklarından, dalgalı tabakaların birbirine yapışmış şekilde görünmesini sağladığı düşünülmektedir [11].

Şekil 3'de TEM mikrograflarından; sentezlenen örneklerde, ultra ince bir ipeksi görünüm sergilediği ve kenarlarının katlanmış peçe şeklinde bir morfolojiye sahip olduğu, elektron ışını altında karanlık ve yarı saydam alanlar ortaya çıktığı gözlenmiştir. Elektron ışını altında oluşan bu karanlık alanlar, yapının esnek ama tek tabakalı yarı saydam alanlar ise az tabakalı yapıyı göstermektedir. Bu yüzden ikiden fazla tabakalı yapıların dağılmadan bir arada bulunabilme imkanı olmaktadır [3].

Bu sonuçların da literatürdeki grafen oksit sentezlerine uyum sağladıkları belirlenmiştir.

### 5. Teşekkür

Bu çalışma, Atatürk Üniversitesi BAPSİS Birimi tarafından Temel Araştırma Projesi olarak desteklenmiştir.

### Kaynakça

- [1] A. Moosa, and M. Abed, (2021) "Graphene preparation and graphite exfoliation." *Turkish journal of Chemistry*, 45(3),493-519.
- [2] G. Dresselhaus, and S. Riichiro (1998) "Physical properties of carbon nanotubes", World scientific.
- [3] P. P. Brisebois, and M. Sij, (2020) "Harvesting graphene oxide—years 1859 to 2019: a review of its structure, synthesis, properties and exfoliation." *Journal of Materials Chemistry C*, 8(5), 1517-1547.
- [4] B. Paulchamy, G. Arthi, and B. D. Lignesh, (2015). "A simple approach to stepwise synthesis of graphene oxide nanomaterial." *J Nanomed Nanotechnol*, 6(1), 1.
- [5] İ. Tiyek, U. Dönmez, B. Yıldırım, M. H. Alma, M. S. Ersoy, and Ş. Karataş, (2016). "Kimyasal yöntem ile indirgenmiş grafen oksit sentezi ve karakterizasyonu." *Sakarya University Journal of Science*, 20(2), 349-357.
- [6] X. Huang, X. Qi, F. Boey, and H. Zhang, (2012). "Graphene-based composites." *Chemical Society Reviews*, 41(2), 666-686.
- [7] L. Sun, and B. Fugetsu (2013). "Mass production of graphene oxide from expanded graphite." *Materials Letters* 109: 207-210.
- [8] J.,Chen, B. Yao, C., Li and G. Shi, (2013). "An improved Hummers method for eco-friendly synthesis of graphene oxide." *Carbon*, 64, 225-229.
- [9] S. Shamailla, A.K.L. Sajjad, and A. Iqbal, (2016). "Modifications in development of graphene oxide synthetic routes." *Chemical Engineering Journal*, 294, 458-477.
- [10] Dimiev, A.M.; Polson, T.A., Contesting the two-component structural model of graphene oxide and reexamining the

chemistry of graphene oxide in basic media. *Carbon* **2015**, *93*, 544–554.

- [11] Wang, X., Hu, Y., Min, J., Li, S., Deng, X., Yuan, S., & Zuo, X. (2018). Adsorption characteristics of phenolic compounds on graphene oxide and reduced graphene oxide: a batch experiment combined theory calculation. *Applied Sciences*, *8*(10), 1950.