



**T.C.**  
**NECMETTİN ERBAKAN**  
**ÜNİVERSİTESİ**  
**FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ**



**GRAFEN ESASLI İLETKEN DESENLERİN  
HAZIRLANMASI VE ELEKTROKİMYASAL  
KARAKTERİZASYONU**

**Kübra SOĞANCI**

**YÜKSEK LİSANS TEZİ**

**Nanobilim ve Nanomühendislik  
Anabilim Dalı**

**Aralık-2019**  
**KONYA**  
**Her Hakkı Saklıdır**

## TEZ KABUL VE ONAYI

Kübra SOĞANCI tarafından hazırlanan “GRAFEN ESASLI İLETKEN DESENLERİN HAZIRLANMASI VE ELEKTROKİMYASAL KARAKTERİZASYONU” adlı tez çalışması 16/12/2019 tarihinde aşağıdaki jüri tarafından oy birliği ile Necmettin Erbakan Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü NANOBİLİM VE NANOMÜHENDİSLİK Anabilim Dalı’nda YÜKSEK LİSANS TEZİ olarak kabul edilmiştir.

### Jüri Üyeleri

#### Başkan

Prof. Dr. Mustafa ERSÖZ

#### Danışman

Doç. Dr. Erhan ZOR

#### Üye

Prof. Dr. Haluk BİNGÖL

### İmza

.....

.....

.....

Yukarıdaki sonucu onaylarım.

Prof. Dr. Süleyman Savaş DURDURAN  
FBE Müdürü

Bu tez çalışması Necmettin Erbakan Üniversitesi Bilimsel Araştırma Projeleri Koordinasyon Birimi tarafından 191210001 nolu proje ile desteklenmiştir.

## **TEZ BİLDİRİMİ**

Bu tezdeki bütün bilgilerin etik davranış ve akademik kurallar çerçevesinde elde edildiğini ve tez yazım kurallarına uygun olarak hazırlanan bu çalışmada bana ait olmayan her türlü ifade ve bilginin kaynağına eksiksiz atıf yapıldığını bildiririm.

## **DECLARATION PAGE**

I hereby declare that all information in this document has been obtained and presented in accordance with academic rules and ethical conduct. I also declare that, as required by these rules and conduct, I have fully cited and referenced all material and results that are not original to this work.



Kübra SOĞANCI

16/12/2019

## ÖZET

### YÜKSEK LİSANS TEZİ

## GRAFEN ESASLI İLETKEN DESENLERİN HAZIRLANMASI VE ELEKTROKİMYASAL KARAKTERİZASYONU

**Kübra SOĞANCI**

**Necmettin Erbakan Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü  
Nanobilim ve Nanomühendislik Anabilim Dalı**

**Danışman: Doç. Dr. Erhan ZOR**

**2019, 78 Sayfa**

**Jüri**

**Doç. Dr. Erhan ZOR  
Prof. Dr. Mustafa ERSÖZ  
Prof. Dr. Haluk BİNGÖL**

Geleceğin “mucize materyali” olarak adlandırılan grafen, balmumu yapısında dizilmiş  $sp^2$ -bağlı karbon atomlarının oluşturmuş olduğu iki boyutlu tek tabakalı bir karbon temelli nanomateryal olup, çok ince ve çok dayanıklı bir malzemedir. Grafen, geniş yüzey alanı, göstermiş olduğu mükemmel elektron transfer performansı, yüksek mekanik mukavemet ve oldukça yüksek termal iletkenlik gibi özelliklerinden dolayı fizik, kimya, biyoloji, biyoteknoloji, mühendislik, tıp ve özellikle nanoteknoloji alanlarında transistörlerden pillere, elektronik cihazlardan tekstil ürünlerine, ilaç geliştirme sistemlerinden sensörler alanına önemli bir yer tutmaya başlamıştır.

Bu tez çalışmasında, nanobilim ve nanoteknolojinin parlayan yıldızı olan grafen materyaline yakın özellik sergileyen grafen esaslı nanomateryalin (indirgenmiş grafen oksit) pratik ve ekonomik bir yöntem kullanılarak esnek ve şeffaf yüzeylere düzenli desenlenmesi gerçekleştirildi. Bu amaçla öncelikle başlangıç maddesi olarak grafit kullanılarak kimyasal yükseltgenme metodu ile grafen oksit (GO) elde edildi. GO'nun yapısal karakterizasyonu Ultraviyole-Görünür bölge (UV-Vis) spektroskopisi, Fourier dönüşümlü kızılötesi (FTIR) spektroskopisi ve Raman spektroskopisi teknikleri ile, morfolojik karakterizasyonu taramalı elektron mikroskopu (SEM), geçirimli elektron mikroskopu (TEM) ve atomik kuvvet mikroskopu (AFM) teknikleri ile gerçekleştirildi. Hazırlanan GO dispersiyonu katı mürekkep yazdırma cihazı ile desenlenmiş membran yüzeyine vakum filtrasyonu ile filtre edildi. GO tabaka kalınlığının kontrolünü sağlayan bu sistem sonrasında, elde edilen desen hidrofilik transfer metodu ile polietilen tereftalat (PET) yüzeyine transfer edildi. Elde edilen GO desenler iletkenlik kazandırmak amacıyla indirgenerek indirgenmiş grafen oksit (iGO) elde edildi. Elde edilen grafen esaslı iletken desenlerin elektrokimyasal davranışları dönüşümlü voltametri (CV) ve elektrokimyasal impedans spektroskopisi (EIS) teknikleri ile incelendi. Elektrokimyasal karakterizasyon sonucunda en uygun GO miktarı ile elde edilen iletken deseninin  $16 \mu\text{g/mL}$  GO içeren orta boy elektrot deseni olduğu gözlemlendi.

**Anahtar Kelimeler:** Desenleme, Grafen, Grafen Oksit, İletken Desenler, Nanobilim, Nanoteknoloji, Voltametri

## **ABSTRACT**

## **MS THESIS**

### **PREPARATION OF GRAPHENE BASED CONDUCTIVE PATTERNS AND THEIR ELECTROCHEMICAL CHARACTERIZATION**

**Kübra SOĞANCI**

**THE GRADUATE SCHOOL OF NATURAL AND APPLIED SCIENCE  
OF NECMETTİN ERBAKAN UNIVERSITY  
THE DEGREE OF MASTER OF SCIENCE  
IN NANOSCIENCE AND NANOENGINEERING**

**Advisor: Assoc. Prof. Dr. Erhan ZOR**

**2019, 78 Pages**

**Jury  
Assoc. Prof. Dr. Erhan ZOR  
Prof. Dr. Mustafa ERSÖZ  
Prof. Dr. Haluk BİNGÖL**

Graphene defined as "miracle material of the future" is a very thin and strong carbon-based nanomaterial that is a one-atom-thick planar sheet of  $sp^2$ -bonded carbon atoms which are arranged in a two-dimensional honeycomb lattice. Thanks to its features such as a large surface area, excellent electron transfer performance high mechanical strength and pretty high thermal conductivity features, graphene has taken an important place from the transistors to batteries, from electronic devices to textile products, from drug development to sensors in the fields of physics, chemistry, biology, biotechnology, engineering, medicine and especially in nanotechnology.

In this thesis, graphene-based material (reduced graphene oxide) which shows similar characteristics to graphene nanomaterial that is the shining star of nanoscience and nanotechnology, was patterned onto flexible and transparent surfaces using a practical and economical method. For this purpose, graphene oxide (GO) was obtained by chemical oxidation method using graphite as starting material. The structural characterization of GO was performed by Ultraviolet-Visible (UV-Vis) spectroscopy, Fourier Transform infrared (FTIR) spectroscopy and Raman spectroscopy techniques, and the morphological characterization by scanning electron microscope (SEM), transmission electron microscope (TEM) and atomic force microscope (AFM) techniques. The prepared graphene oxide dispersion was filtered by vacuum filtration to the patterned membrane surface with a solid printing device. After this system which provides control of the GO layer thickness, the obtained pattern was transferred onto the desired polyethylene terephthalate (PET) surface by hydrophilic transfer method. The GO patterns were reduced to provide conductivity and reduced graphene oxide (rGO) was obtained. The electrochemical behavior of the GO conductive patterns was investigated by using cyclic voltammetry (CV) and electrochemical impedance spectroscopy (EIS) techniques. As a result of electrochemical characterization, it was observed that the most conductive pattern obtained with the optimum amount of GO was a medium-sized electrode pattern containing 16  $\mu\text{g/mL}$  graphene oxide.

**Keywords:** Conductive Patterns, Graphene, Graphene Oxide, Nanoscience, Nanotechnology, Patterning, Voltammetry

## ÖNSÖZ

Bu çalışma, Necmettin Erbakan Üniversitesi Ahmet Keleşoğlu Eğitim Fakültesi Fen Bilgisi Eğitimi Bölümü Matematik ve Fen Bilimleri Eğitimi Anabilim Dalı Öğretim Üyelerinden Doç. Dr. Erhan ZOR danışmanlığında tamamlanarak Necmettin Erbakan Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü'ne Yüksek Lisans Tezi olarak sunulmuştur.

Bu tez çalışmasının seçiminde, hazırlanmasında ve araştırılmasında her türlü bilgi, öneri ve deneyimleriyle bana yön veren, ihtiyaç duyduğum her konuda yardımlarını esirgemeyen, tecrübelerinden yararlanırken göstermiş olduğu hoşgörü ve sabırdan dolayı değerli danışman hocam Sayın Doç. Dr. Erhan ZOR'a sonsuz saygı ve teşekkürlerimi bir borç bilirim.

Çalışmalarım sırasında desteğini esirgemeyen, bilgi, öneri ve deneyimleriyle bana yön veren Sayın Prof. Dr. Haluk BİNGÖL'e sonsuz saygı ve teşekkürlerimi sunarım. Paylaştıkları bilgileri, fikirleri ve deneyimleriyle bana katkıda bulunan Sayın Prof. Dr. Sabri ALPAYDIN'a ayrıca teşekkür ederim.

Fizikokimya laboratuvarında birlikte çalıştığım değerli arkadaşlarıma bana destek ve katkılarından dolayı teşekkürlerimi sunarım. Bilim ve Teknoloji Araştırma ve Uygulama Merkezi bünyesinde Arş. Gör. Tuğba Selcen ATALAY KALSEN'e bana her konuda destek olup azmi öğrettiği için teşekkür ederim.

Son olarak, hayatım boyunca her türlü maddi ve manevi desteğini bir an olsun eksik etmeyen, beni sevgiyle yetiştiren anne ve babama, saygı, sevgi ve destekleri ile her zaman yanımda olan Mehmet YILMAM ve sevgili kardeşlerime tüm kalbimle teşekkür ederim.

Kübra SOĞANCI  
KONYA-2019

## İÇİNDEKİLER

|                                                                             |            |
|-----------------------------------------------------------------------------|------------|
| <b>ÖZET .....</b>                                                           | <b>iv</b>  |
| <b>ABSTRACT.....</b>                                                        | <b>v</b>   |
| <b>ÖNSÖZ .....</b>                                                          | <b>vi</b>  |
| <b>İÇİNDEKİLER .....</b>                                                    | <b>vii</b> |
| <b>SİMGELER VE KISALTMALAR .....</b>                                        | <b>ix</b>  |
| <b>1. GİRİŞ .....</b>                                                       | <b>1</b>   |
| 1.1. Nanobilim ve Nanoteknoloji .....                                       | 1          |
| 1.2. Nanobilim ve Nanoteknolojinin Tarihçesi .....                          | 1          |
| 1.3. Nanobilim ve Nanoteknolojinin Önemi .....                              | 2          |
| 1.3. İletken Desenler ve İletken Desen Eldesinde Kullanılan Malzemeler..... | 5          |
| 1.4. Grafen ve Özellikleri .....                                            | 6          |
| 1.4.1. Grafenin tarihçesi.....                                              | 7          |
| 1.4.2. Grafenin yapısı.....                                                 | 10         |
| 1.4.3. Grafenin genel özellikleri .....                                     | 11         |
| 1.5. Grafen Esaslı Malzemeler.....                                          | 13         |
| 1.6. Grafen Esaslı Desenlerin Eldesi .....                                  | 14         |
| 1.6.1. Kimyasal buhar biriktirme (CVD) yöntemi.....                         | 16         |
| 1.6.2. Perde baskılama yöntemi .....                                        | 17         |
| 1.6.3. Mürekkep püskürtmeli yazdırma yöntemi .....                          | 18         |
| 1.6.4. Püskürtme (sprey) kaplama yöntemi .....                              | 19         |
| 1.6.5. Vakum filtrasyonu yöntemi .....                                      | 20         |
| 1.7. Voltametri .....                                                       | 21         |
| 1.7.1. Voltametrinin tarihi ve tanımı.....                                  | 21         |
| 1.7.2. Voltametrinin çalışma prensibi .....                                 | 23         |
| 1.7.3. Voltametri deneylerinde kullanılan elektrotlar .....                 | 24         |
| 1.7.4. Dönüşümlü voltametri .....                                           | 26         |
| 1.7.5. Diferansiyel puls voltametrisi .....                                 | 27         |
| 1.7.6. Elektrokimyasal impedans spektroskopisi (EIS) .....                  | 28         |
| <b>2. KAYNAK ARAŞTIRMASI .....</b>                                          | <b>30</b>  |
| <b>3. MATERYAL VE YÖNTEM.....</b>                                           | <b>37</b>  |
| 3.1. Kullanılan Kimyasal Maddeler .....                                     | 37         |
| 3.2. Kullanılan Cihazlar .....                                              | 37         |
| 3.3. Grafen Oksit Sentezi .....                                             | 38         |
| 3.4. Grafen Oksit (GO)'in Şeffaf ve Esnek Yüzeye Aktarımı .....             | 38         |
| 3.5. Elektrokimyasal Ölçümler .....                                         | 41         |

|                                                                                                   |           |
|---------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------|
| <b>4. ARAŞTIRMA SONUÇLARI VE TARTIŞMA.....</b>                                                    | <b>43</b> |
| 4.1. Grafen Oksit (GO) Sentezi .....                                                              | 43        |
| 4.2. Grafen Oksitin Karakterizasyonu .....                                                        | 44        |
| 4.3. Transfer İşleminin Gerçekleştirilmesi .....                                                  | 48        |
| 4.4. Çalışma Elektrotu İçin GO Transferinin Gerçekleştirilmesi .....                              | 50        |
| 4.5. Elektrot Yüzeyinde Grafen Oksitin İndirgenmesi .....                                         | 51        |
| 4.6. Işık Mikroskobu Karakterizasyonu.....                                                        | 52        |
| 4.7. Elektrokimyasal Karakterizasyon .....                                                        | 54        |
| 4.7.1. Dönüşümlü voltametri (CV) ve elektrokimyasal impedans spektroskopisi (EIS) ölçümleri ..... | 54        |
| 4.7.2. Diferansiyel puls voltametrisi (DPV) .....                                                 | 59        |
| <b>5. SONUÇLAR VE ÖNERİLER .....</b>                                                              | <b>61</b> |
| 5.1. Sonuçlar .....                                                                               | 61        |
| 5.2. Öneriler .....                                                                               | 61        |
| <b>KAYNAKLAR .....</b>                                                                            | <b>63</b> |
| <b>ÖZGEÇMİŞ .....</b>                                                                             | <b>68</b> |



## SİMGELER VE KISALTMALAR

### Simgeler

|    |        |
|----|--------|
| Au | Altın  |
| Cu | Bakır  |
| i  | Akım   |
| Pt | Platin |

### Kısaltmalar

|                                |                                              |
|--------------------------------|----------------------------------------------|
| AFM                            | Atomik kuvvet mikroskobu                     |
| CuNP                           | Bakır nanopartikül                           |
| CVD                            | Kimyasal buhar biriktirme                    |
| CV                             | Dönüşümlü voltametri                         |
| DPV                            | Diferansiyel puls voltametrisi               |
| EIS                            | Elektrokimyasal impedans spektroskopisi      |
| FT-IR                          | Fourier dönüşümlü kızıl ötesi spektroskopisi |
| FTO                            | Flor katkılı kalay oksit                     |
| GCE                            | Camsı karbon elektrot                        |
| GEM                            | Grafen esaslı malzeme                        |
| GO                             | Grafen oksit                                 |
| HMDE                           | Asılı cıva damla elektrot                    |
| H <sub>2</sub> O <sub>2</sub>  | Hidrojen peroksit                            |
| H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> | Sülfürik asit                                |
| H <sub>3</sub> PO <sub>4</sub> | Fosforik asit                                |
| IDE                            | Entegre geliştirme ortamı                    |
| iGO                            | İndirgenmiş grafen oksit                     |
| İTO                            | İndiyum kalay oksit                          |
| KMnO <sub>4</sub>              | Potasyum permanganat                         |
| LED                            | Işık yayan diyotlar                          |
| MEMS                           | Mikro elektro-mekanik sistemler              |
| MFE                            | Cıva film elektrot                           |
| nSM                            | Nitroselüloz membran                         |
| PDMS                           | Polidimetilsiloksan                          |
| PEDOT:PSS                      | Poli(3,4-Etilendioksitiyofen)                |
| PET                            | Polietilen tereftalat                        |
| RE                             | Referans elektrot                            |
| RFID                           | Radyo frekansı tanımlama sistemleri          |
| SAM                            | Self-assembled monolayers                    |
| SEM                            | Taramalı elektron mikroskobu                 |
| SiO <sub>2</sub>               | Silikon dioksit                              |
| SPE                            | Perde baskılı elektrot                       |
| STM                            | Taramalı tünelleme mikroskobu                |

|        |                                          |
|--------|------------------------------------------|
| TEM    | Geçirimli elektron mikroskobu            |
| TGA    | Termogravimetrik analiz                  |
| UV-Vis | Ultraviyole-görünür bölge spektroskopisi |
| WE     | Çalışma elektrodu                        |
| WPM    | Mum baskılı membranlar                   |
| XPS    | X-ışını fotoelektron spektroskopisi      |



## 1. GİRİŞ

### 1.1. Nanobilim ve Nanoteknoloji

Nanobilim ve nanoteknoloji çok küçük yapısal maddelerin üretiminin araştırılması ve bu maddelerin sergilediği özelliklerden fayda sağlanması üzerine çalışmalar gerçekleştirilen alanlardır. Bu alanların esas amacı hayat kalitesini yükseltmek ve verimli kaynak kullanımını sağlamak olarak ifade edilebilir (Sağlam ve Emül, 2016). Yunanca νάνος (nannos) kelimesinden türetilmiş olan “nano” öneki “cüce” anlamına gelmektedir. Uluslararası Birim Sistemi’ne (Fransızca: Système international d’unités, kısaca SI) göre ise nano kelimesi “çok küçük” olarak tanımlanmaktadır ve bir atom boyutundan birkaç kat daha büyük olan metrenin milyarda biri ( $10^{-9}$  m) 1 nanometre olarak ifade edilmektedir (Şekil 1.1). Araştırmacıların nano boyuttaki maddelere artan ilgisinin temel nedeni nano boyutlarda malzemelerin sahip oldukları özelliklerin makroskopik boyutlardaki özelliklerinden tamamen farklı olması ve nano boyuta yaklaştıkça birçok farklı ve yararlı özelliklerle karşılaşılmasıdır (Ramsden, 2009).



Şekil 1.1. Nanoboyut ve nanoteknolojinin çalışma alanı skalası

### 1.2. Nanobilim ve Nanoteknolojinin Tarihçesi

Nanoteknoloji düşüncesini ilk olarak Nobel ödüllü fizikçi Richard Feynman öne sürmüştür. 1960'lı yıllarda, Feynman nanoboyuttaki malzemelerin davranış değişikliğinin önemini vurgulamıştır. Böylece bilim insanlarının dikkatlerini çekmiş ve yol göstermiştir (Ekli, 2010).

Dr. Eric Drexler ise nanoteknoloji terimini ilk kullanan kişidir. Biyolojik sistemlerden esinlenerek molekül malzemeler yapılabileceğini önermiştir.

Modern nanobilim ve nanoteknoloji yeni bir çalışma alanı olarak görülmesine rağmen nanomalzemeler yüzyıllardır kullanılmıştır. Örneğin, alternatif ölçekli altın ve gümüş parçacıkları yüzlerce yıl önce Ortaçağ kiliselerinde vitray pencerelerde yer almıştır. Milattan sonra (MS) IV. yüzyıla ait olan Kral Lycurgus Kupası (Şekil 1.2) 70 nm boyutlarında altın ve gümüş partiküller içeren camdan yapılmıştır. Bu kupa, ışığı farklı alışı özelliklerine göre çeşitlilik göstermiş olup ışığı geçirdiğinde kırmızı, ışığı yansıttığında ise yeşil renkli görülmüştür. VI-XVII. yüzyıllar arasında altın klorür, gümüş ve bakır nanopartiküller ve diğer metallerin klorürleri ile oksitlerinin nanopartikülleri kullanılarak seramik ve cam malzemeler üretilmiştir. Belli ışıklandırma şartlarında farklı renkte çözelti yayyan “yakut” renkli altın nanotanecikler içeren kolloidal çözeltiyi Michael Faraday 1857 yılında keşfetmiştir (Zor, 2016).



Şekil 1.2. Lycurgus Kupası'nın ışık etkisiyle renk değişimi (Ateş, 2015)

1985’de R.E. Smalley, H. W. Kroto ve R.F. Curl karbon elementinin yeni bir formu olan futbol topuna benzer, 60 karbon atomunu içeren fullereni keşfetmişlerdir. 1991 yılında ise Japon fizikçi Sumino Iijima 1985’de keşfedilen karbon nanotüpleri üretmeye başlamıştır (Anonim, 2019a).

### 1.3. Nanobilim ve Nanoteknolojinin Önemi

Nanoteknoloji ismi çoğu insanlara fizik bilimini hatırlatsa da birçok konuda olduğu gibi daha çok kimyacıları temel alan bir çalışma alanıdır. Malzemelerin birçok etkileşim ve yüzey özellikleri nanometre boyutlarında kimyasal kompozisyonu ve morfolojisi tarafından belirlenip ortaya çıkarılır. Malzemelerin bu yüzey özelliklerinin kontrollü ve akıllı bir şekilde kullanımı da tabii ki nanoteknoloji biliminden

geçmektedir. Nanoteknoloji bilimi, üretilen nano boyuttaki malzemelerin özelliklerinin geleneksel malzemelere oranla ne kadar değişebileceğinin fark edilmesiyle günümüzün gelecek vadeden teknolojisi haline gelmiştir (Yeşiltepe ve ark., 2016).

Nanoteknoloji uygulamaları denilince birçok insanın aklına pahalı ve ileri teknoloji gerektiren cihazlar, yüksek sıcaklıklara dayanabilen veya nanometre boyutunda işlem yapabilen aygıtlar gelmektedir. Oysaki doğadaki örnekler ele alındığında birçok tepkime ve malzemenin üretimi oda sıcaklığında, sulu ortamlarda normal şartlar altında gerçekleşmektedir. “Lotus Yaprığı” örneğinde görüldüğü üzere doğadaki canlılar yüzey özellikleri birbirine yakın olan koşullarda kolayca ve hızlıca kontrol edebilmektedirler. Asya'da yaşayan farklı dinlerdeki insanlar Lotus bitkisini saflığın sembolü olarak kabul etmişlerdir. Bunun sebebinin, lotus bitkilerinin kendi kendini temizleyen özelliği olduğu düşünülmektedir (Lotus etkisi). Lotus bitkisinin yüzeyinde bulunan mikron ve nano seviyesindeki çukur ve tepecikli yapılar sayesinde bitkinin yaprakları kesinlikle ıslanmamaktadır ve yapraklarının toprağa yönelimli olması sebebiyle su damlacıkları toprağa doğru kayarken üzerinde bulunan küçük böcekleri ve diğer kirliliklerin yüzeyden atılmasını sağlamaktadır (Şekil 1.3) (Süzer, 2006).



**Şekil 1.3.** Su damlacıkları yaprak yüzeyinde yuvarlanır ve kir parçacıklarını toplar (Anonim, 2019b)

Nanobilim ve nanoteknoloji çok çeşitli alanlarda hızla yaşamımıza girmektedir (Bhushan, 2010). Nanoteknoloji üzerine yapılan araştırmalar, malzeme ve üretim,

elektronik, tıp ve sağlık hizmetleri, enerji, biyoteknoloji, gen mühendisliği, bilişim teknolojileri ve ulusal güvenlik gibi çeşitli alanlarda devrim niteliğinde gelişmeler olabileceğini göstermektedir. Bu nedenle nanoteknolojiden, genel olarak geleceğin sanayi devrimi olarak bahsedilmektedir (Şenel Zor, 2017).

Gelecekteki birkaç on yıl içerisinde nanoteknolojik gelişmeler sayesinde insan vücudunun içerisinde bulunan tümörlü dokuyu bulup iyileştiren, ameliyat gerçekleştiren nanorobotlar icat edilebilecek, insan beyninin kapasitesi ek nanohafızalarla güçlendirilebilecek, fabrikaların çevreye vermiş olduğu kirliliği önleyen nanoparçacıklar üretilebilecektir. Ulusal güvenliği ilgilendiren konularda nano malzeme bilimi, yeni savunma sistemlerinin geliştirilmesinde, haberalma/gizlilik konularına yönelik çok küçük boyutlarda aygıtların yapılmasında kullanılacaktır. Daha dayanıklı ve daha hafif nanomalzemeler üretilecek ve sonuç olarak insanın günlük hayatında kullandığı giysiler değişiklik gösterebileceği gibi, uzay araştırmalarında ve havacılıkta yeni roket ve uçak tasarımlarının ortaya çıkması mümkün olacaktır (TUBITAK, 2004).

Nanoteknoloji disiplinler arası çalışma gerektiren bir bilim alanıdır (Nouailhat, 2006). Bir alanda yapılan çalışmanın başka bir alanda çalışan bilim insanlarının anlaması için iki farklı alanda çalışan insanların bir araya gelerek çalışmalarını beraber sürdürmeleri gerekmektedir. Nano yapılar tasarlayan bir bilim insanı tek bir alanda değil birçok alanda bilgiye sahip olmalı ve kendini geliştirmelidir (Ak, 2009).

Bilim ve teknolojinin ilerlemesi ile nanoteknolojide grafenin kullanımı önemli yer tutmuştur. Yakın gelecekte arabaların, uyduların ve uçakların bir nano malzeme olan grafen esaslı yeni nanokompozit malzemelerden imal edilebileceği öngörülmektedir. Bunun yanında, biyoelektronik cihazların ve nano elektroniklerin üretiminde önemli bir rol oynaması beklenmektedir (Şekil 1.4). Nanoteknolojinin gelişmesi ile birlikte birçok alanda iletken desenler üzerine çalışmalar yapılmaktadır. Desenlemeler için hangi malzemelerin daha elverişli olacağı üzerine araştırmalar sürmektedir.



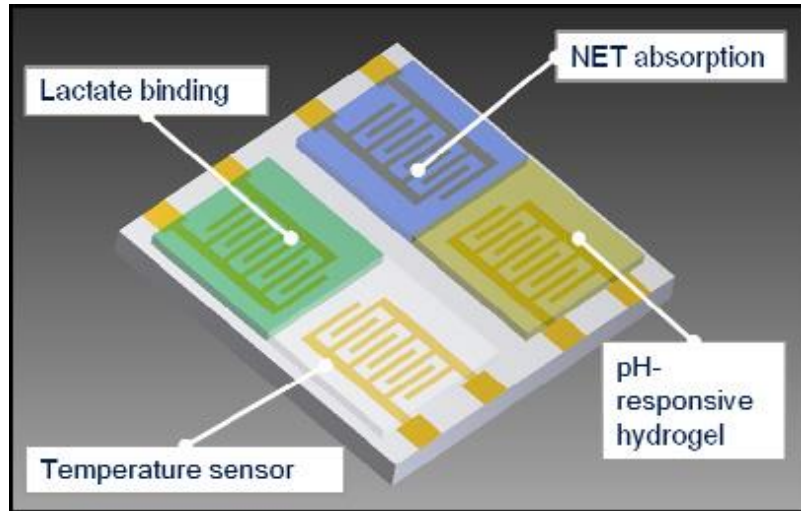
Şekil 1.4. Grafen esaslı malzemelerin kullanım alanları (Zor, 2016)

#### 1.4. İletken Desenler ve İletken Desen Eldesinde Kullanılan Malzemeler

Sürekli gelişen elektronik teknolojisi ile alternatif saydam, esnek ve iletken malzemelere ihtiyaç duyulmaktadır. Bu iletken malzemeler ve bu malzemelerin homojen bir şekilde düzenli olarak desenlemeleri üzerine gerçekleştirilen çalışmaların sayısı gün geçtikçe artmaktadır (Şekil 1.5). Günümüzde nanoteknolojinin hızla gelişmesi nanomalzemelerin eldesi ile daha küçük yüzeylere, daha düzenli ve homojen desenlemelerin gerçekleştirilmesini mümkün kılmaktadır.

Desenlenebilir malzemeler olarak iletken polimer ve metaller en yaygın kullanılan materyallerdir. Bu malzemelerin birçok avantajı olmasına rağmen, grafen ile kıyaslandığında bazı önemli eksiklikleri vardır. Örneğin altın, gümüş ve bakır gibi metaller olağanüstü iletkenlik sağlamalarına karşın, altın ve gümüş endüstriyel üretimler için pahalı bakır ise kolayca okside olabilmektedir.





**Şekil 1.5.** Parametre seçici kaplamalar ile çok dizili bir impedans sensörünün şeması (Schröter ve ark., 2012)

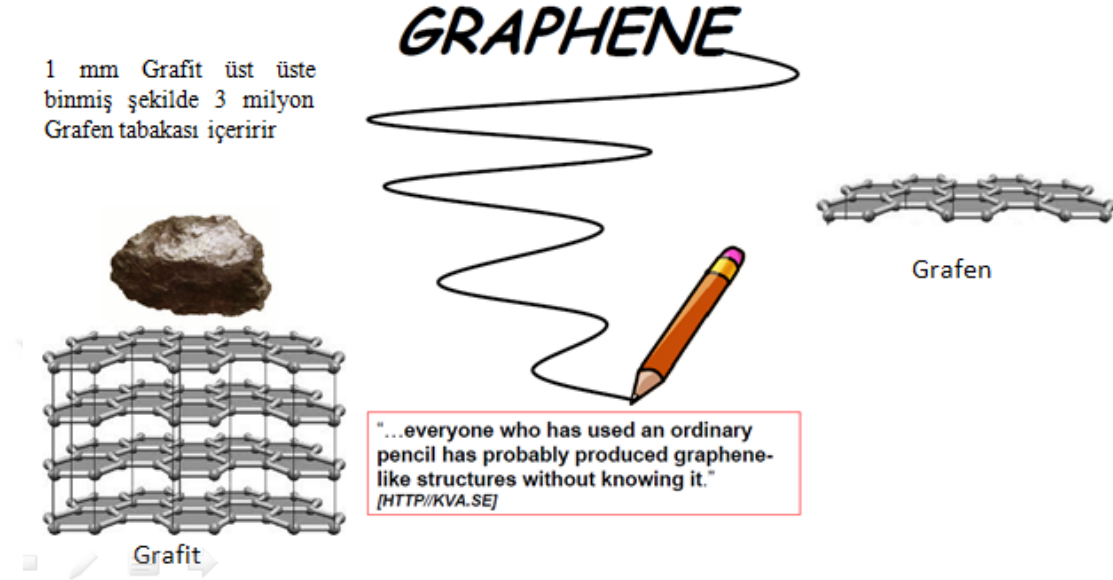
İletken polimerler esnek yüzeylere transferde büyük avantajlar sağlamalarına rağmen, tek başlarına düşük iletkenlik, zayıf termal özellik ve bazı kimyasallara karşı kararsızlık göstermelerinden dolayı oldukça sınırlı kullanım alanı bulmaktadır. Karbon temelli bir nanomateriyal olan ve çoğu özelliği ile grafene eşdeğer görülen karbon nanotüpün düşük dağılıbilirlik göstermesi ve üretim maliyetlerinden dolayı kullanımı kısıtlı kalmıştır. Bu sonuçlar irdelendiğinde pratik şekilde desenlenebilir yeni iletken materyallere olan ihtiyaç, dolayısıyla üretimleriyle ilgili araştırmalar halen güncel bir nitelik taşımaktadır. Literatürdeki bu eksikliği eşsiz özellikleri ile grafen nanomalzemesi tamamlamaya başlamış ve bu konudaki araştırmaların sayısı hızla artmaktadır (Huang ve ark., 2011). Grafen birçok avantajlı özelliklerinden dolayı desenlemelerde de kullanılmaktadır.

#### 1.4. Grafen ve Özellikleri

Bilim ve teknolojinin ilerlemesi ile nanoteknolojide grafenin kullanımı önemli yer tutmuştur. Bilim dünyasında önemli bir yeri olan grafen esasen çok zor bulunan bir malzeme değildir. Bildiğimiz kurşun kalemlerin içindeki grafit, grafen tabakalarının üst üste binmesinden oluşmaktadır. Basit bir örnek olarak; kurşun kalemle bir kağıda çizgi çekildiğinde birçok grafen tabakası elde edilebilir (Şekil 1.6). Grafen  $sp^2$  hibritleşmesi gerçekleştiren karbon atomlarının oluşturduğu 2 boyutlu yapısı sayesinde önemli özelliklere sahiptir. Grafen yapısı itibarıyla ısıyı da çok iyi iletmektedir. Grafen en ince malzeme olmasına rağmen güçlü karbon bağları sayesinde en sağlam malzeme özelliğine sahiptir. Elde edilen araştırmalar sonucunda elmas keskilerine bile dayanıklı



olduğu ispatlanan grafenin kullanım alanları ise oldukça fazladır. Desenlenmiş grafen malzemesinin kullanım imkânlarının yanı sıra elektronik özellikleri de birçok nedenden dolayı, hem teorik hem de deneysel olarak birçok bilim insanının dikkatini çekmiştir (Çiftçi ve ark., 2016).



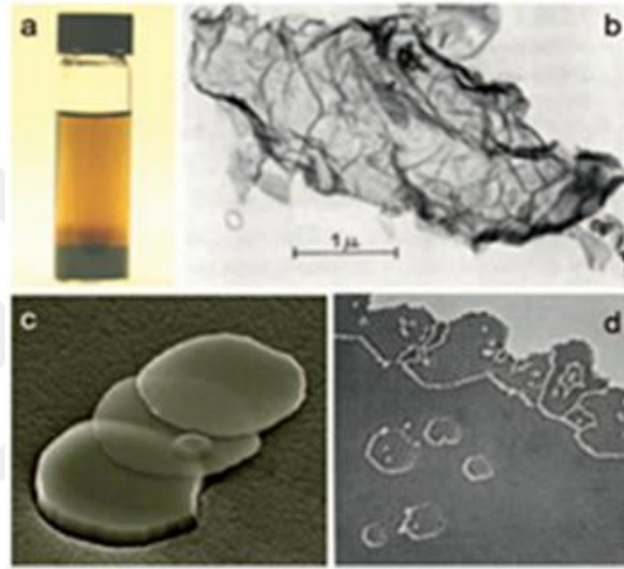
Şekil 1.6. Grafit ve grafen (Anonim, 2019c)

#### 1.4.1. Grafenin tarihçesi

Bol ve doğal olarak grafen tabakalarından meydana gelen grafit, yaklaşık 500 yıldır bir mineral olarak bilinmektedir. Orta çağlarda bile, bitişik tabakalar arasındaki katmanlı morfoloji ve zayıf dağılma kuvvetleri, markalama aletlerinin yapımında, günümüzde kurşun kalemelerde grafit şeklinde kullanılmıştır (Allen ve ark., 2009).

Tam olarak grafenin ilk keşfi 2004 yılında Manchester Üniversitesi'nden Prof. Dr. Andre Geim ve Prof. Dr. Konstantin Novoselov tarafından başarılı bir şekilde 17 atom kalınlığında saf grafen tabakasının izolesi şeklinde gerçekleştirilmiştir (Öztürk, 2015). İngiliz kimyager Benjamin Brodie (1859) grafiti kuvvetli asitlerle muamele ederek "karbonik asit" diye adlandırdığı ve karbonun yeni bir formu olduğunu öne sürdüğü molekül kütlesi 33 olan "graphon"u keşfettiğini düşünmüştür. Şekil 1.7-a.'da görüldüğü gibi, aslında elde ettiği, günümüzde yüzeyi yoğun olarak hidroksil ve epoksi grupları ile kaplı grafen tabakaları olarak bilinen GO'nun çok küçük parçalarının oluşturduğu solüsyonu elde etmiştir. Sonraki yüzyıl boyunca grafen oksitin ince tabakalı yapısı üzerine birçok çalışma gerçekleştirilmiştir fakat grafenin tarihsel gelişimindeki diğer en önemli gelişme atomik düzlemlerden oluşan "karbonik asit" in varlığının kanıtı

olmuştur. Ruess ve Vogt (1948) TEM gridi üzerine damlattıkları grafen oksit solüsyonunu TEM ile incelemişler ve birkaç nanometre kalınlığında buruşuk tabakaları görmeyi başarmışlardır. Bu çalışmalar Ulrich Hofmann'ın grubu tarafından devam ettirilmiştir. Boehm ve ark. (1962) indirgenmiş grafen oksitin mümkün olan en ince tabakasını elde etmeye çalışmışlar ve bu tabakaların bazılarını tek tabaka olarak tanımlamışlardır (Şekil 1.7-b). Daha sonraki yapılan hem teorik hem deneysel çalışmalar grafenin çeşitli metal numuneler üzerine izole edilmesi ve özelliklerinin incelenmesi üzerine olmuştur. Şekil 1.7-c.'de gösterildiği gibi ultra-ince grafitik filmler elde edilmiş olup lokal STM görüntüleri alınmış ve tek tabakalı grafen elde edilmiştir (Şekil 1.7-d.).



**Şekil 1.7.** Grafenin tarihi; su içerisinde kahverengi grafit oksit solüsyonu 150 yıl önce (Brodie, 1859) tarafından gözlemlenmiştir (a). Ultra ince grafitik tabakaların 1960 yılların başında alınan geçirimsiz elektron mikroskopu (TEM) görüntüsü (Boehm ve ark., 1962) (b). İnce grafitik tabakaların taramalı elektron mikroskopu (SEM) görüntüsü (c). Platin üzerine büyütülen grafen tabakalarının STM görüntüsü (d) (Geim, 2011)

2004'te izole edilmiş birkaç katmanlı tabakalar olarak üretilmesinden beri, grafen birçok üstün ve dikkate değer özelliği (örneğin elektronik, termal, mekanik ve tribolojik özellikler) nedeniyle çok büyük ilgi görmüştür. Grafenin potansiyel uygulamaları saydam elektrotları, çok yüksek frekanslı transistörleri, geçirimsiz kimyasal bariyeri, mikro ve nanoelektromekanik sistemleri (MEMS) içerir. Bugüne kadar, grafenin elektronik ve termal özelliklerine ilişkin çok sayıda çalışma yapılmıştır (Gao ve ark., 2014).

Grafenin tarihini özet şeklinde ele alacak olursak ;

1560'larda Simonio ve Lyndiana Bernacotti tarafından geliştirilen grafit içeren ilk kalem üretildi.

1924: John Desmond Bernal tarafından tanımlanan grafitin katmanlı yapısı ele alındı.

1947: Grafenin elektriksel özelliklerinin teorik olarak incelenmesi gerçekleşti (Tek bir grafit tabaka halinde).

2004: Grafenin, Andre Geim ve Konstantin Novoselov tarafından grafitten ilk izolasyonu yapıldı.

2007: Bağlantısız grafen nanomembranlar deneysel olarak izole edildi.

2008: Grafenin sıvı fazda yazdırılabilmesi yani grafen mürekkepleri üretilmesi gerçekleşti.

2009: Şeffaf elektrotlar olarak kullanılan grafenin, ekranlar ve güneş pilleri için ideal olduğu fark edildi.

2010: Grafen ve grafen bazlı dokunmatik ekranların büyük ölçekli üretimi gerçekleşmeye başladı.

2010: Andre Geim ve Konstantin Novoselov saf grafen tabakalarının izolasyonunu gerçekleştirerek Nobel Ödülünü aldı.

2012: Yüksek verimli grafen fotodetektörler geliştirildi.

2012: Mürekkep püskürtmeli basılı grafen elektroniğinin keşfi gerçekleşti.

2013: Grafen amiral gemisi; grafen teknolojilerini 10 yıl içinde ticarileştirme süreci için başlatıldı.

2014-2015: Pil elektrotlarında kullanılan grafen performansı elde edildi.

2015: Çok yüksek hassasiyete sahip grafen bazlı manyetik alan sensörü icat edildi.

2016: Otomobillerde ve uçaklarda kullanılan hafif ve güçlü grafen kompozitler elde edildi.

2016: Cep telefonu ekranı, pil ve soğutma sisteminde grafenin kullanılmasının önemi arttı.

2016: Ultra hızlı grafen fotodetektörlerin yüksek bant genişliğinde veri iletimi sağlaması gerçekleşti.

2017: Geniş alanlı güneş pillerinde grafen arayüzey olarak kullanıldı (Desmond, 2016).

Yukarıda sıralanmış olan grafen tabanlı çalışmaların gelecekteki rolü Tablo 1.1’de ele alınmıştır.

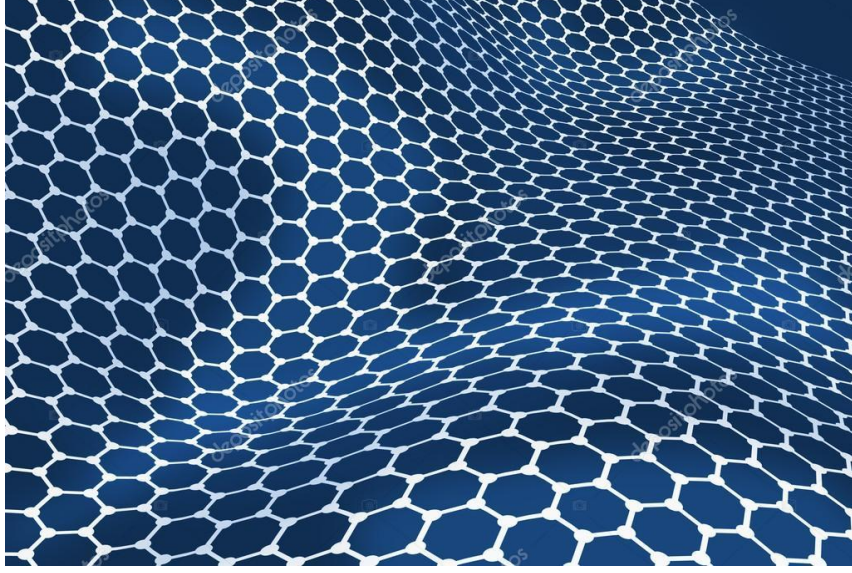
**Tablo 1.1.** Grafen malzemesinin gelecekteki rolü (Anonim, 2019d)

|                 | <b>Kompozitler</b>                                                      | <b>Enerji</b>                                                                                                           | <b>Veri</b>                                        | <b>Elektronik</b>                               | <b>Sensör ve Görüntüleme</b>                                                                        | <b>Biyomedikal Teknolojiler</b>       |
|-----------------|-------------------------------------------------------------------------|-------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|----------------------------------------------------|-------------------------------------------------|-----------------------------------------------------------------------------------------------------|---------------------------------------|
| 2022 ve Öncesi  | Fonksiyonel Kaplama ve Yüzey Modifikasyonu<br><br>Yapısal Malzemeler    | Hızlı Şarj Edilen Piller<br><br>İleri Fotovoltaik                                                                       | Gelişmiş Uzun Mesafeli Optik İletişim              | Düşük Maliyetli Yazdırılabilir Elektronik       | Fotodedektörler ve Fiziksel, Kimyasal Sensörler<br><br>Geniş Bant Cmos Kameralar ve Spektrometreler | Biyosensörler                         |
| 2023-2029       | Çok Fonksiyonlu İnşaat Malzemeleri<br><br>Su Arıtma ve Tuzdan Arındırma | Esnek Güneş Hücreleri Depo Lojistiği İçin Süper Kapasitörler<br><br>Çok İşlevli Fotovoltaik Ulaşım İçin Yakıt Hücreleri | İleri Ağ Altyapıları                               | Yüksek Frekans Elektronik<br><br>Esnek Cihazlar |                                                                                                     | Sinirsel Arayüzler                    |
| 2030 ve Sonrası |                                                                         |                                                                                                                         | 6G ve Ötesi Kablosuz Ağlar<br><br>Çipte Optik Veri | Dönme Tabanlı Mantık Cihazları                  |                                                                                                     | İlaç Taşınımı<br><br>Biyoelektrik Tıp |

Bu tablodan görülebileceği gibi çok farklı alanlarda çok farklı uygulama potansiyeline sahip olan grafenin gelecekte önemli bir nanomalzeme olacağı şüphe götürmez bir gerçektir.

#### 1.4.2. Grafenin yapısı

Grafen iki boyutlu, bir atom kalınlığında, mekanik, elektrik, termal ve optik özellikleri ile bilimde çığır açan yeni keşfedilmiş bir karbon allotropudur. Şekil 1.8’de gösterilen iki boyutlu (2D) yapısından dolayı geniş yüzey alanı sağlayan grafit temelli malzemelerin temel yapı taşı olan grafenin, hızlı elektron taşınımı, yüksek ısı ve elektrik iletkenliği, mükemmel mekanik sağlamlık ve biyouyumluluk gibi özellikler sergilemesi bu materyalin saydam iletken elektrotlar, biyosensörler ve elektrokimyasal sensörler, süperkapasitörler, bataryalar, yakıt hücreleri ve biyomedikal uygulamalar (ilaç taşınımı) gibi pek çok alanda uygulanabilirliğini sağlamaktadır (Chen ve ark., 2013; Morales-Narváez ve ark., 2013).

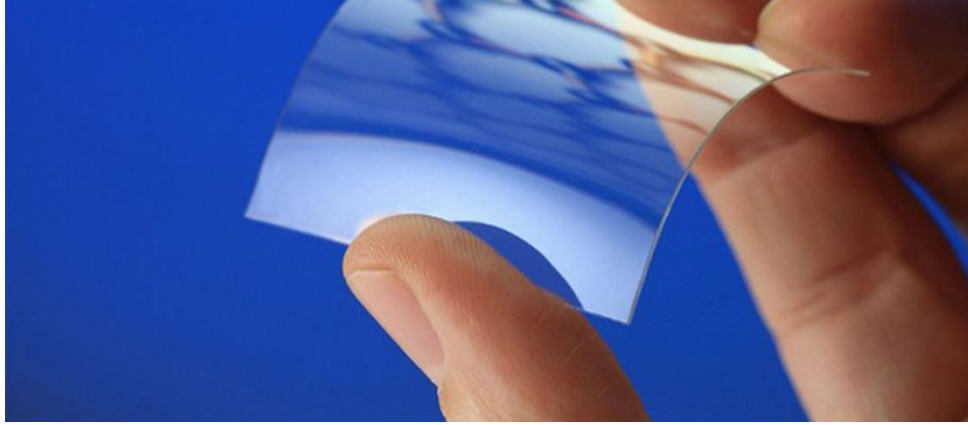


**Şekil 1.8.** Grafen (Anonim, 2019e)

Grafen, yüksek yüzey alanı, göstermiş olduğu mükemmel elektron transfer performansı, yüksek mekanik mukavemet ve oldukça yüksek termal iletkenlik gibi özelliklerinden dolayı, transistörlerden pillere, elektronik cihazlardan tekstil ürünlerine, ilaç gelişim sistemlerinden sensörler alanına, fizik, kimya, biyoloji, biyoteknoloji, mühendislik, tıp ve özellikle nanoteknoloji alanlarında önemli bir yer tutmaya başlamıştır. Bu eşsiz özellikleriyle mükemmel bir destekleyici materyal olarak düşünülmekte ve hem akademik hem de endüstriyel alanda büyük ilgi çekmektedir (Zor, 2016).

#### **1.4.3. Grafenin genel özellikleri**

Grafen, keşfinden bu yana önemli kimyasal ve fiziksel özelliklere sahip olmasıyla oldukça dikkat çekmiştir. Grafen çelikten 200 kat daha güçlü bir yapıya sahiptir ve grafitin tek bir katmanından oluşmaktadır. Grafen eşsiz elektron taşıma özelliğine sahiptir. Yani elektrik akımını ileten taşıyıcı elektronların malzeme içinde ışık hızına yakın hızlarda hareket edebilmesi ve elektrik akımının hızlı bir şekilde gerçekleşmesidir. Sonuç olarak da daha hızlı bilgisayarlar, performansı yüksek elektronik aygıtlar üretmenin önü açılmıştır (Çiftçi ve ark., 2016).



**Şekil 1.9.** Grafenin saydamlık özelliği (Anonim, 2019f)

Tek katman altıgen karbon atomlarından oluşan grafenin en belirgin özellikleri şöyle sıralanabilir:

- Çok sağlam bir yapıya sahiptir
- Oda sıcaklığında bilinen en iyi iletkenidir.
- Çok saydam ve esnektir (Şekil 1.9). Esnek bir yapıya sahip olan grafen ilerleyen zamanlarda kol saatleri, bantlar ve çeşitli giyilebilir teknolojilerin önünü açacaktır.
- Grafen ince ve hafif malzemedir.
- Grafeni esas çekici kılan şey ise grafenin içinde elektronların fotonlar gibi hızlı hareket edebiliyor olmalarıdır.
- Grafen çok zor bulunan bir malzeme değildir (Çiftçi ve ark., 2016).

Grafen elde etme yöntemleri genel olarak iki kategoride incelenebilir. Bunlardan ilki direk olarak bir yüzey (altlık) üzerine grafen büyütme metodu, diğeri ise grafitin ve grafit oksitin mekanik olarak ayrıştırılmasına dayanan metottur. Bu metotlar kendi içlerinde aşağıdaki gibi alt kategorilerde sınıflandırılabilir (Ferrari ve ark., 2015);

#### Yüzey Üzerine Grafen Biriktirme Yöntemi

- Kimyasal Buhar Biriktirme Yöntemi
- Epitaksiyel Büyüme Yöntemi

#### Ayrıştırma (Eksfoliasyon) Yöntemi

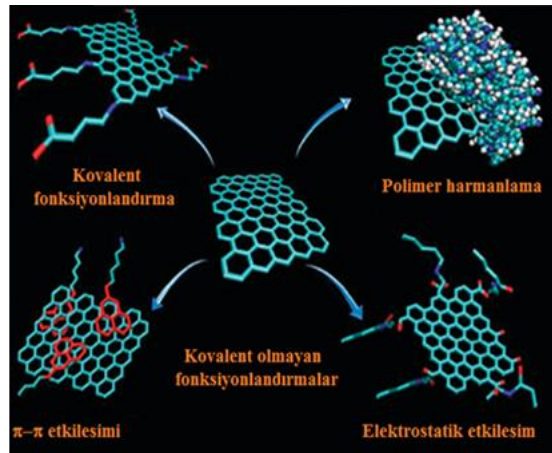
- Mikro Mekanik Ayrıştırma Yöntemi
- Elektrokimyasal Yöntem
- Çözücü Dispersiyonu Yöntemi
- Grafitin Kimyasal Yükseltgenmesi ve İndirgenmesi Yöntemi



Grafen uygulamalarının gittikçe artan potansiyelinden dolayı fonksiyonel grafen materyallerinin hazırlanması için yeni metotlarının geliştirilmesi nano çalışan bilim insanları için en önemli konulardan biri haline gelmektedir. Grafenin güçlü agregasyon (yığın oluşturma) ve zayıf çözünürlük özelliklerinden dolayı suda ve organik çözücülerde kolay bir şekilde dağılma olmadığı bilinmektedir (Zor, 2016; Dreyer ve ark., 2010).

### 1.5. Grafen Esaslı Malzemeler

Grafenin ve türevlerinin kimyasal olarak fonksiyonlandırılması genel anlamda kovalent ve kovalent olmayan fonksiyonlandırma olmak üzere iki başlık altında incelenmektedir. Grafen yüzeyindeki kimyasal fonksiyonlandırmalar, genellikle grafen yüzeyi ile güçlü  $\pi$ - $\pi$  etkileşimi gösterebilecek aromatik halka içeren bileşiklerle ve elektrostatik etkileşim gösterebilecek yapılarla kovalent olmayan fonksiyonlandırmalar sonucunda elde edilmektedirler (Şekil 1.10). Diğer taraftan, kovalent fonksiyonlandırmalarda çoğunlukla grafen oksit (GO) ve indirgenmiş grafen oksit (iGO) türevlerinden çıkılmakta ve oksijen grupları içeren hidrofilik yüzeylerinden veya kenarlarından kovalent olarak kolay bir şekilde fonksiyonlandırılabilirler. Sonuç olarak, her iki yöntemle fonksiyonlandırılmış grafen tabakaları elde edilmiş olmaktadır. Ayrıca, polimer yapılarla harmanlama ile de fonksiyonlandırıldıkları metotlar bulunmaktadır (Chen ve ark., 2012).



Şekil 1.10. Grafen ve türevlerinin genel fonksiyonlandırılma metotları (Chen ve ark., 2012)

Grafen oksit sentezi için genellikle üç farklı prosedür kullanılmaktadır. Bunlar;

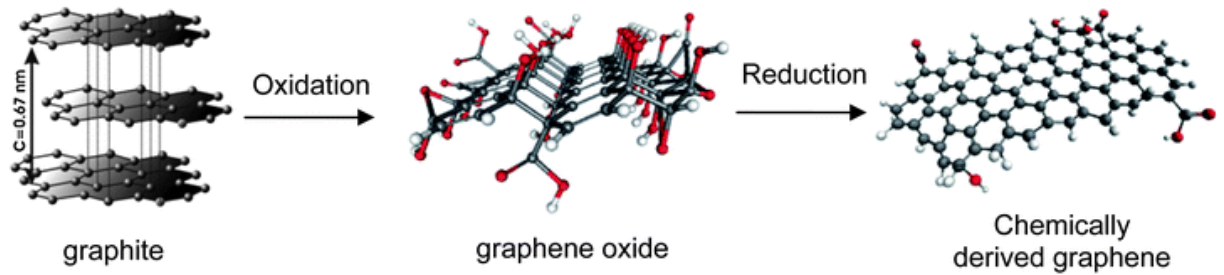
- ✓ Hummers metodu
- ✓ Tour metodu
- ✓ İlave  $\text{KMnO}_4$ 'lü Hummers metodu

Literatürde oldukça popüler olan yeni grafen tabanlı materyallerin hazırlanmasında ve kimyasal fonksiyonlandırılmasında başlangıç maddesi olarak (GO) kullanılmaktadır (Zor, 2016).

Grafen materyali, (GO) ve (iGO) türevlerine göre kimyasal olarak daha inert bir yapıya sahiptir. Bunun sebebi, GO ve iGO'nun yüzeylerinde oksijen içeren (hidroksil, epoksi, karboksil grupları) grupların bulunması ve bu grupların grafen yüzeyinde  $sp^2$  deformasyonuna yol açmasıdır (Zor, 2016).

GO'dan iGO elde etmek için birçok farklı indirgeme yöntemleri kullanılmaktadır (Şekil 1.11). Genel olarak termal, kimyasal ve elektrokimyasal yöntemler kullanılarak iGO elde edilmektedir. Literatürde iGO'nun eldesi için birkaç yöntem aşağıdaki gibidir:

- GO'nun doğrudan bir etüv içerisinde yüksek sıcaklıklarda ısıtılmasıyla iGO eldesi.
- Hidrojen plazmasında bozunma ile iGO eldesi
- GO'nun hidrazin, sodyum bor hidrür, hidrojen iyodür, askorbik asit gibi kimyasallarla etkileşmesi sonucu iGO eldesidir (Dağcı, 2015).



Şekil 1.11. Grafitten grafen oksit eldesi ve grafen oksitin indirgenmesi ile indirgenmiş grafen oksit eldesinin şematik gösterimi (Allen ve ark., 2009)

Bu tez çalışmasının temel amaçlarından birisi olan GO eldesidir. Tour metodu ile elde edilmiş olan grafen oksitin esnek yüzeye transferi gerçekleştirilmiştir.

### 1.6. Grafen Esaslı Desenlerin Eldesi

Son zamanlarda karbon nanotüp esaslı yazdırılabilir mürekkepler geliştirilmesine rağmen, karbon nanotüpün düşük dağılıbilirlik göstermesi bir dezavantaj oluşturmakla birlikte kullanımı kısıtlı kalmıştır. Bu sonuçlar irdelendiğinde kullanılan malzeme ve tekniklerin bazı avantajlı yönlerinin olmasına rağmen, pratik şekilde desenlenebilir yeni iletken materyallere olan ihtiyaç açıkça görülmektedir.



Literatürdeki bu eksikliği eşsiz özellikleri ile grafen tamamlamaya başlamıştır (Huang ve ark., 2011).

Geleceğin “mucize materyali” olarak adlandırılan grafen, balmumu yapısında dizilmiş karbon atomlarının oluşturmuş olduğu iki boyutlu tek tabakalı bir karbon temelli nanomateriyal olup çok ince ve çok dayanıklı bir malzemedir. Grafen, geniş yüzey alanı, göstermiş olduğu mükemmel elektron transfer performansı, yüksek mekanik mukavemet ve oldukça yüksek termal iletkenlik gibi özelliklerinden dolayı fizik, kimya, biyoloji, biyoteknoloji, mühendislik, tıp ve özellikle nanoteknoloji alanlarında transistörlerden pillere, elektronik cihazlardan tekstil ürünlerine, ilaç geliştirme sistemlerinden sensörler alanına önemli bir yer tutmaya başlamıştır. Bu eşsiz özellikleriyle mükemmel bir destekleyici materyal olarak düşünülmekte ve hem akademik hem de endüstriyel alanda büyük ilgi çekmektedir. Son yıllarda biyomoleküller, metal nanopartiküller ya da polimerik modifikasyon ile kovalent ya da kovalent olmayan bir etkileşim yoluyla yeni özelliklere sahip olan grafen ve türevlerinin araştırılmasına ve genişleyen grafen uygulamalarına olan ilgi bir çığ gibi büyümektedir. Kalp atış hızı, nem oranı, oksijen saturasyonu, solunum hızı ve sıcaklığı ölçmek için geliştirilmiş bir sensör olan fitness bandı bu artan ilgi sonucu ortaya çıkan bir biyoteknolojik uygulama olarak ifade edilebilir (Şekil 1.12).

Son yıllarda, özellikle grafenin çeşitli katı yüzeylere transfer edilmesi konusunda artan talep, pahalı ve iş gücü gerektiren CVD (kimyasal buhar biriktirme) gibi metotların yanı sıra yeni ve basit tekniklere olan ihtiyacı ortaya çıkarmıştır (Morales-Narváez ve ark., 2013).



**Şekil 1.12.** ICFO'nun fitness bandı, kalp atış hızı, nem oranı, oksijen saturasyonu, solunum hızı ve sıcaklığı ölçmek için geliştirilmiş bir sensör (Anonim, 2019g)

Plastik ve organik malzemeler üzerine desenlenen baskılı elektronikler, elektronik cihazların üretimi için kullanılabilecek düşük maliyetli bir teknolojiye yol açmıştır. Bu bağlamda inorganik ya da organik yarı iletkenler, metaller ya da yalıtkan malzemeler gibi çeşitli materyallerin konjugasyonu, radyo frekansı tanımlama (RFID) sistemleri, ışık yayan diyotlar (LED), süper kapasitörler, ince film transistörler ve güneş pilleri gibi cihazların üretimine olanak tanınmıştır. Bu alandaki temel sanayi ekipmanlarını perde baskılama (screen-printed), fleksografi (ambalaj kaplama), mürekkep püskürtmeli yazdırma ve litografi oluşturmaktadır. Bu metotlar yüksek kurulum maliyetleri sahip olmakla birlikte tek avantajlı yönleri büyük ölçekli üretim için uygun olmalarıdır. Bunun yanı sıra, litografi tekniği temiz oda imkânları, ekipmanlarıyla pahalı fotorezist ve geliştiricilere ihtiyaç duyulan kimyasal ve fotokimyasal işlemlere dayanan bir tekniktir. Şablon ile film baskılama ve mürekkep püskürtmeli yazdırma tekniklerinde elde edilen mürekkebin viskozitesi ve polimerleşmesi ise temel sorunu oluşturmaktadır. Ayrıca yazdırılacak yüzeyin işlemde geçirilmesi ve yazdırma sıcaklığı mürekkep püskürtmeli yazdırma tekniğinin diğer dezavantajlarını oluşturmaktadır. Bu teknolojilerin hepsi uzman eleman ihtiyacı olan tekniklerdir (Morales-Narváez ve ark., 2013).

Grafen esaslı iletken desenlerin eldesinde birçok yöntem kullanılmaktadır. Bunlardan en çok kullanılanları;

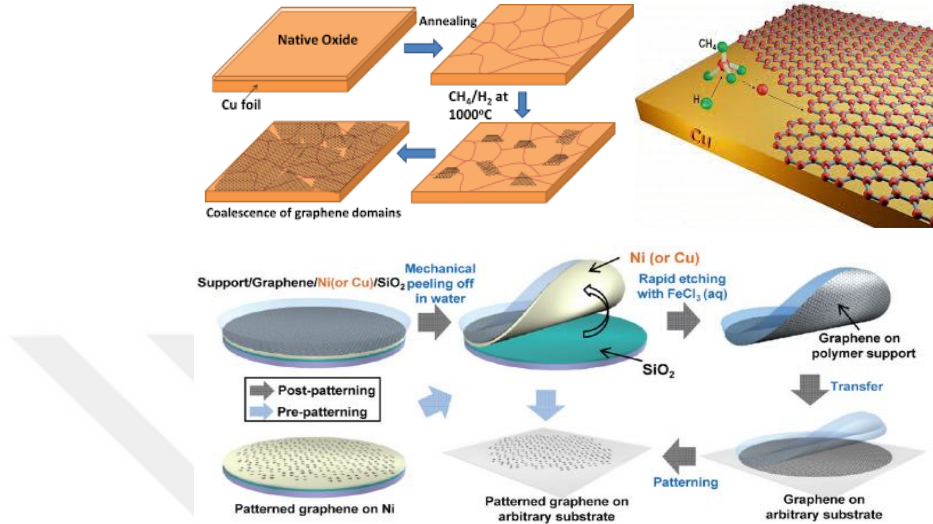
1. Kimyasal Buhar Biriktirme (CVD) Yöntemi
2. Perde Baskılama Yöntemi
3. Mürekkep Püskürtmeli Yazdırma Yöntemi
4. Püskürtme (Sprey) Kaplama Yöntemi
5. Vakum Filtrasyonu Yöntemi şeklinde verilebilir.

Bu yöntemler aşağıda kısaca açıklanmıştır.

#### **1.6.1. Kimyasal buhar biriktirme (CVD) yöntemi**

Grafenin yüzeye aktarılmasında en çok kullanılan tekniklerden birisi tek tabaka grafen elde edilebilen CVD yöntemidir (Şekil 1.13). Bu yöntem temel olarak yüksek sıcaklıkta bakır ya da nikel folyo (altlık) üzerine biriktirilen grafen filmlerinin altlık olarak kullanılan metalin uygun çözücü sisteminde aşındırılması ve çok basamaklı transfer işlemleri sonrasında uygun malzemeler üzerine aktarılabilmesidir (Gao ve ark., 2014; Lee ve ark., 2010). Bu yöntemde genellikle poli(metil metakrilat) ve/veya polidimetilsiloksan (PDMS) gibi tamamen uzaklaştırılamayan ve hatta transfer edilen

grafene zararı verebilen ve kusurların ortaya çıkmasına sebep olan polimerler kullanılmaktadır (Kratzer ve ark., 2015). Bu yüzden araştırmacılar grafene transferi için alternatif yaklaşımlar ve farklı metod arayışları içerisine girmişler ve bu alanda özellikle çözelti ortamında işleme tabi tutulabilen grafene ve türevleri önemli bir yer tutmaya başlamıştır (Liu ve ark., 2015).



**Şekil 1.13.** CVD metodu ile metal altlık üzerinde grafene biriktirilmesinin şematik olarak gösterilmesi ve transfer aşamaları (Lee ve ark., 2010).

Yöntem temel olarak gaz fazındaki malzemenin ısı parçalanması ile partiküle dönüşümüne dayanmaktadır. İşlem akışı, kısaca başlangıç malzemesinin gaz fazına geçtiği bölgeye gaz akışı verilerek buharın reaktöre taşınması burada ısı parçalanması ile sağlanmaktadır (Gürmen ve Ebin, 2010).

### 1.6.2. Perde baskılama yöntemi

Perde baskılama yöntemi, bloklama kalıbı tarafından mürekkebi geçirmeyen alanlar dışında mürekkebi bir alt tabakaya aktarmak için desenlenmiş bir örgünün kullanıldığı bir baskı tekniğidir. Elektrokimyasal sensörler alanında kullanılan bir örneği perde baskılı elektrotlardır.

Bir perde baskılı elektrot (SPE), basit, çok yönlü, düşük maliyetli, taşınabilir, kolayca kullanılan, güvenilir, küçük boyutlu ve seri üretim kapasitesine sahiptir. Bu nedenle, elektroanalitik kimya alanında yaygın olarak uygulanmaktadır. Ayrıca, bir SPE camsı bir karbon elektrot (GCE) gibi geleneksel elektrotların aksine temizleme işlemi gerektirmez. SPE yüzeyi modifiye edilerek büyük yetenekler kazandırılabilir; bu modifikasyonlar sadece iletken film oluşumunu değil, aynı zamanda nanomalzemelerin veya (biyo) moleküllerin yüzeye immobilizasyonunu da sağlamaktadır. Bu çok

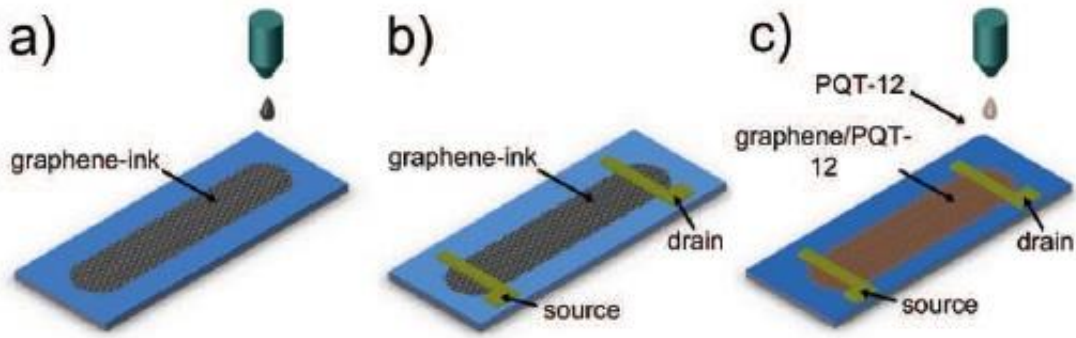
yönlülük, küçültülmüş boyutlarıyla ve taşınabilir cihazlara entegre edilebilme yetenekleri ile birlikte, yalnızca çevresel tayin süreçlerinde değil, aynı zamanda gıda, tarımsal ve biyomedikal analizde de yerinde analiz için hedef analitlerin tayinini uygun hale getirir. Bir SPE genellikle grafit veya altın vb. çalışma elektrodu, referans gümüş elektrodu ve grafit karşıt elektrotun polimerik esnek plastik materyalin üzerine perde baskısı yöntemiyle basılmasıyla elde edilir (Şekil 1.14). Chan ve ark. (2016) tarafından gerçekleştirilen bir çalışmada sensör çalışmaları için grafen esaslı malzemenin SPE yüzeyine modifikasyonu damlatma-kurutma metodu ile gerçekleştirilmiştir. Bu metot literatürde oldukça fazla kullanılmakta olup bazen homojen yüzey eldesinde stabilizasyon problemlerine yol açabilmektedir.



Şekil 1.14. Perde baskılı elektrot (Anonim, 2019h)

### 1.6.3. Mürekkep püskürtmeli yazdırma yöntemi

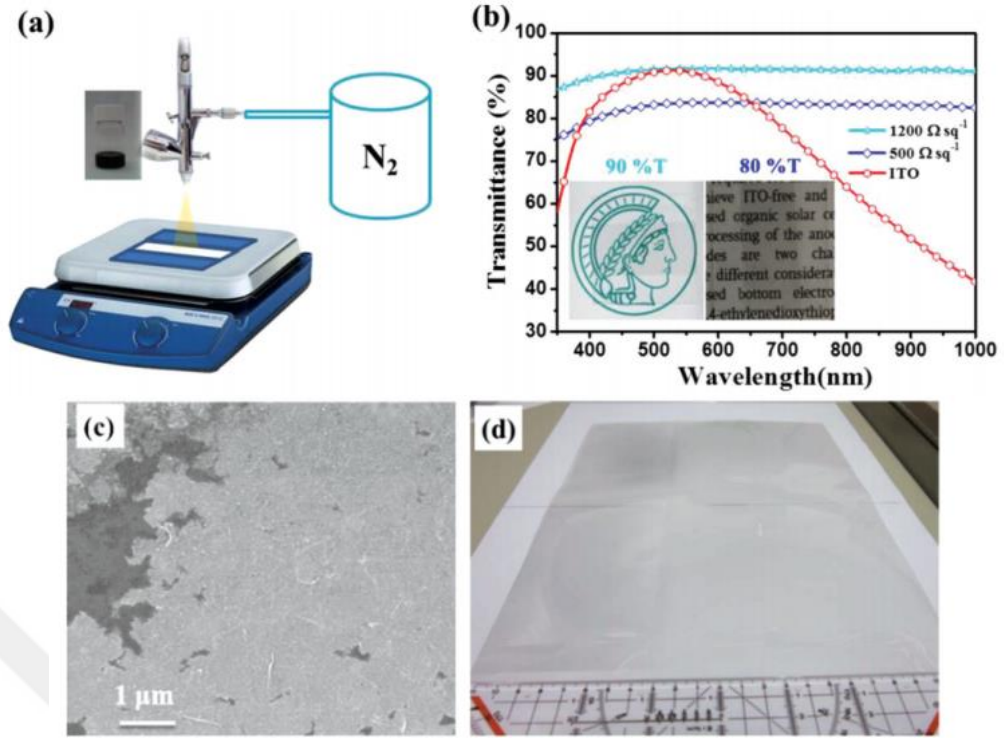
Mürekkep püskürtmeli yazdırma gibi baskı teknikleri, düşük maliyetli, seri üretimin kolaylığı ve esneklik gibi avantajlara sahip elektronik cihazların üretimi için geleneksel fotolitografiye rekabetçi alternatiflerdir (Şekil 1.15). Diğer baskı teknikleriyle (örneğin perde baskılama) karşılaştırıldığında, mürekkep püskürtmeli baskı, çeşitli alt tabakalarla uyumluluk, temassız ve maskesiz modellemenin mevcudiyeti, düşük sıcaklıkta işlem gerektirmemesi gibi önemli avantajlarından dolayı daha fazla dikkat çekmiştir (Torrissi ve ark., 2012).



**Şekil 1.15.** Grafen mürekkep (a), daha sonra kaynak ve drenaj (b) ve son olarak organik yarı iletken (c) (Torrise ve ark., 2012)

#### 1.6.4. Püskürtme (sprey) kaplama yöntemi

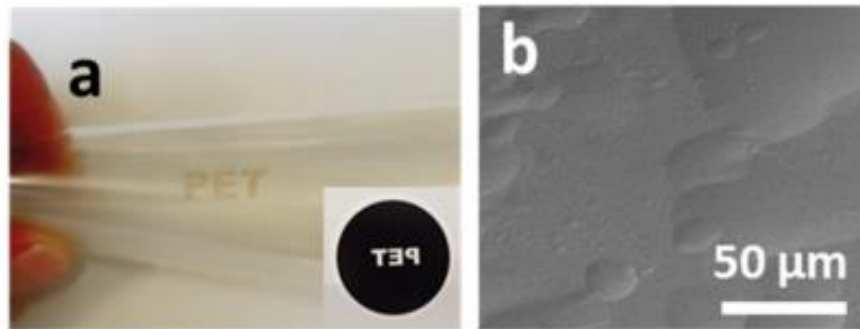
Püskürtme (Sprey) kaplama yöntemi, hazırlanmış olan bir mürekkebin taşıyıcı bir inert gaz ile doldurulduğu mürekkep haznesinden istenilen yüzeye püskürtülmesi ile gerçekleştirilen bir desenleme yöntemidir. Örneğin, Liu ve ark. (2015) hazırlamış oldukları grafen/polimer (PEDOT:PSS) hibrit çözeltisini spreycaplama tekniği ile istenilen yüzey üzerine (PET ve SiO<sub>2</sub> kaplı altlık) transfer etmişler, geçirgenlik ve iletkenlik özelliklerini inceleyerek İTO ile kıyaslamışlardır (Şekil 1.16). Yürütülen bu çalışma, geniş yüzey uygulamaları için grafen transferine pratik bir imkân sunarken, bu teknik farklı yüzeylere farklı desenleme gerçekleştirilmesine olanak tanımamaktadır.



**Şekil 1.16.** Grafen/polimer (PEDOT:PSS) hibrit çözeltisinin spreylendirme tekniği ile istenilen yüzey üzerine transferinin şematik gösterimi (a); elde edilen şeffaf ve esnek yüzeylerin geçirgenlik ve iletkenlik özelliklerinin incelenmesi ve İTO ile kıyaslanması (b); TEM görüntüsü (c); fotoğrafı (d) (Liu ve ark., 2015).

#### 1.6.5. Vakum filtrasyonu yöntemi

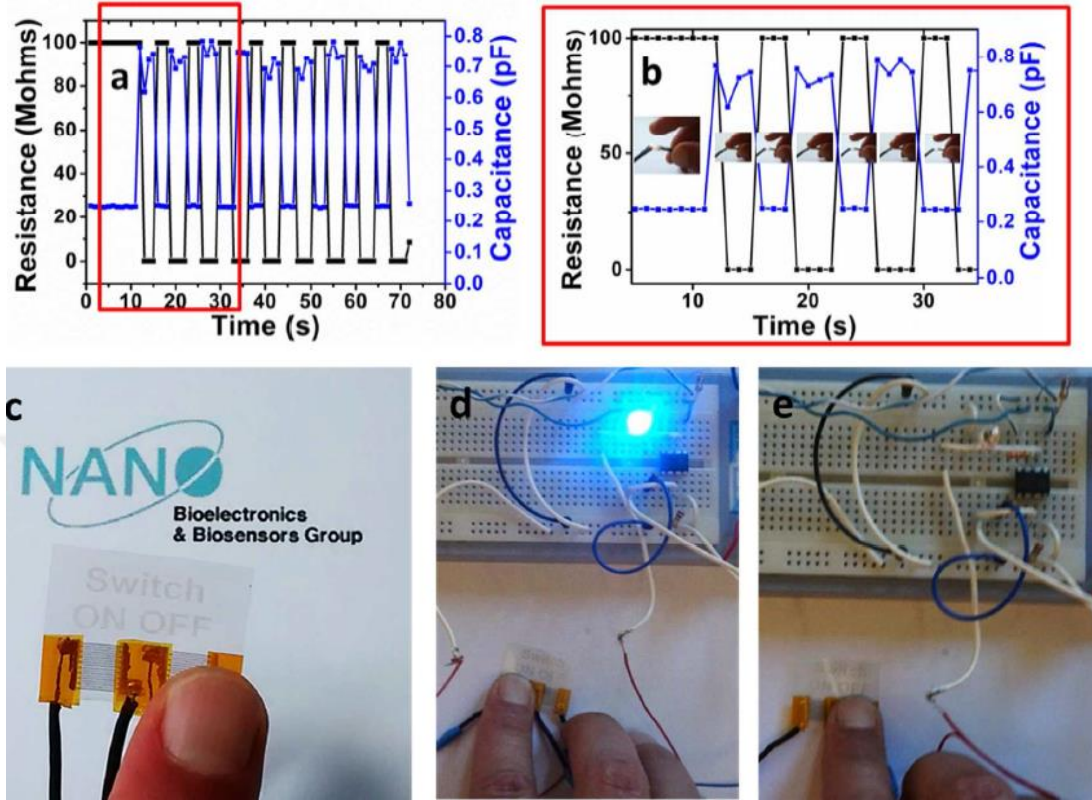
Vakum filtrasyonu ile GO transferinin gerçekleştirilmesi ve istenilen desenlerin elde edilmesinde kullanılan en başarılı çalışmalardan birisi Baptista-Pires ve ark. tarafından gerçekleştirilmiştir. İstenilen desenler belli bir çizim programında çizilmiş ve araştırmacılar PET (poli(etilen tereftalat)), kağıt gibi materyaller üzerine GO'nun transferini gerçekleştirmişlerdir (Şekil 1.17) (Baptista-Pires ve ark., 2016).



**Şekil 1.17.** Membran üzerine desenlenen GO'nun PET üzerine transferi (a) ve SEM görüntüsü (b) (Baptista-Pires ve ark., 2016)



GO'nun transferini gerçekleştiren araştırmacılar çalışmanın devamı olarak kimyasal metotla GO'yu indirgeyerek (iGO-indirgenmiş grafen oksit) dokunmaya duyarlı cihaz üretmişlerdir (Şekil 1.18).



**Şekil 1.18.** Hassas cihaza dokunun (a). Dokunulduğunda dayanım / kapasitans değişimi (b). (a) 'daki ilk 30 sn'nin yakınlığı. Bu deney için kullanılan IDE (c). Devreye bağlı IDE (d). Bir LED'i dokunulduğunda (e) (Baptista-Pires ve ark., 2016)

Bu tez çalışmasının da dahil olduğu vakum filtrasyonu yöntemi son yıllarda ilgi alanı olmakla birlikte deneysel transfer yaklaşımları halen araştırma geliştirme aşamasındadır.

## 1.7. Voltametri

### 1.7.1. Voltametrinin tarihi ve tanımı

Tarihsel olarak, voltametri olarak adlandırdığımız elektrokimya dalı 1922'de Çek Cumhuriyeti kimyageri Jaroslav Heyrovsky tarafından polarografinin keşfinden sonra geliştirilmiş ve 1959 yılında Heyrovsky'e kimya nobel ödülünü kazandırmıştır (Bingöl, 2007). Heyrovsky ilk çalışmasında katot olarak damlayan cıva havuzunu kullanmıştır (Şekil 1.19).





Bunlardan en yaygın olarak kullanılan dönüşümlü ve diferansiyel puls voltametrisidir.

### 1.7.2. Voltametrinin çalışma prensibi

Dönüşümlü voltametri (CV) deneyleri için basit bir hücre Şekil 1.20’de verilmiştir. Voltametrinde deneyler genellikle klasik üç elektrotlu sistemlerde gerçekleştirilir. Basit bir yaklaşımla, üç elektrotun birbirine oldukça yakın bir şekilde çözeltiye daldırılması gerekmektedir. Voltametrik deneyin yapıldığı elektrokimyasal hücre,

- ✓ Çalışma elektrodu (WE),
- ✓ Referans elektrot (RE)
- ✓ Karşıt (yardımcı, CE) elektrottan oluşur (Özgen, 2018).



Şekil 1.20. Üç elektrotlu elektrokimyasal hücre

Voltametrinde tek bir hücre sistemi kullanılır. Hücreler (örnek tutucular) boy, şekil ve materyal çeşitlilikleri içermektedir. Hücre materyali, örnekle minimum reaksiyonu verecek şekilde seçilir (cam, teflon, polietilenden). Hücre inşası için genel materyal hem kimyasal ilgisizliği hem de görünebilirliği açısından ısıya dayanıklı camdır. Hücre büyüklüğü, hacim, maliyet ve örneğin seyreltilmesine bağlıdır.

Deneyin başlangıcında hücre, çözücü, elektrolit ve elektroaktif türlerden birini içerir. Deneyden önce ortamda bulunan çözünmüş oksijenin uzaklaştırılması gerekir.

Çünkü, katodik akım sinyallerine girişim yapabilir. Bunun için genellikle çözültiden Ar veya N<sub>2</sub> gibi inert gazlar geçirilir.

### 1.7.3. Voltametri deneylerinde kullanılan elektrotlar

#### 1.7.3.1. Çalışma elektrodu (WE)

Çalışma elektrodu üzerinde maddelerin, yükseltgenmesinden dolayı oluşan akıma anodik akım, indirgenmesinden dolayı oluşan akıma katodik akım denir. Bu elektrotlar yapılan çalışmaya bağlı olarak soy (inert) veya soy olmayan metallerden seçilebilir. GC (camsı karbon), Pt (platin), Au (altın), HMDE (asılı cıva damla elektrot) ve MFE (cıva film elektrot) voltametriye tercih edilen genel çalışma elektrotlarıdır (Şekil 1.21). Genel anlamda bir çalışma elektrodu;

- ✓ İyi bir iletken olmalı,
- ✓ Çalışılan potansiyel aralığında inert olmalı,
- ✓ Negatif potansiyel sınırı yüksek olmalı,
- ✓ İstenilen geometrik şekil kolaylıkla verilebilir ve kolay işlenebilir olmalıdır.



Şekil 1.21. Camsı karbon çalışma elektrodu

#### 1.7.3.2. Referans elektrot (RE)

Referans elektrotlar, 100  $\mu$ A akım geçmesinde bile gerilim değeri sabit kalan yani polarize edilemeyen elektrotlardır (Şekil 1.22). Birçok olayda referans elektrot mümkün olduğunca çalışma elektroduna yakın olurken, bazı olaylarda kirlenmeden sakınmak için referans elektrodun farklı bir bölmede olması istenir.

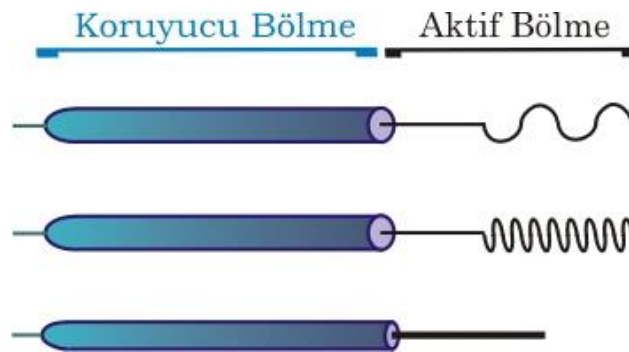


Şekil 1.22. Referans elektrot (Anonim, 2019i)

### 1.7.3.3. Karşıt elektrot

Deneylerde gözlenen akım WE (çalışma elektrodu) üzerindedir. Burada meydana gelen faradayik akımı dengeleyecek (potentiyostatik döngü) olan çalışma elektrotunda karşıt reaksiyon gerçekleşir. Yani, WE’da indirgenme oluyorsa karşıt elektrotunda yükseltgenme meydana gelir. Fakat buradaki reaksiyonla fazla ilgilenilmez. Çünkü birçok deneyde küçük akımların meydana gelmesi ve deney süresinin oldukça kısa olmasından dolayı karşıt elektrotta meydana gelen elektrolitik ürünler WE üzerinde önemli bir etkide bulunamaz. Ancak, gerekli akımı sağlaması için yüzeyi geniş tutulur.

Karşıt elektrotlar ince platin, altın tel veya grafit tel kullanılarak elde edilir (Şekil 1.23).

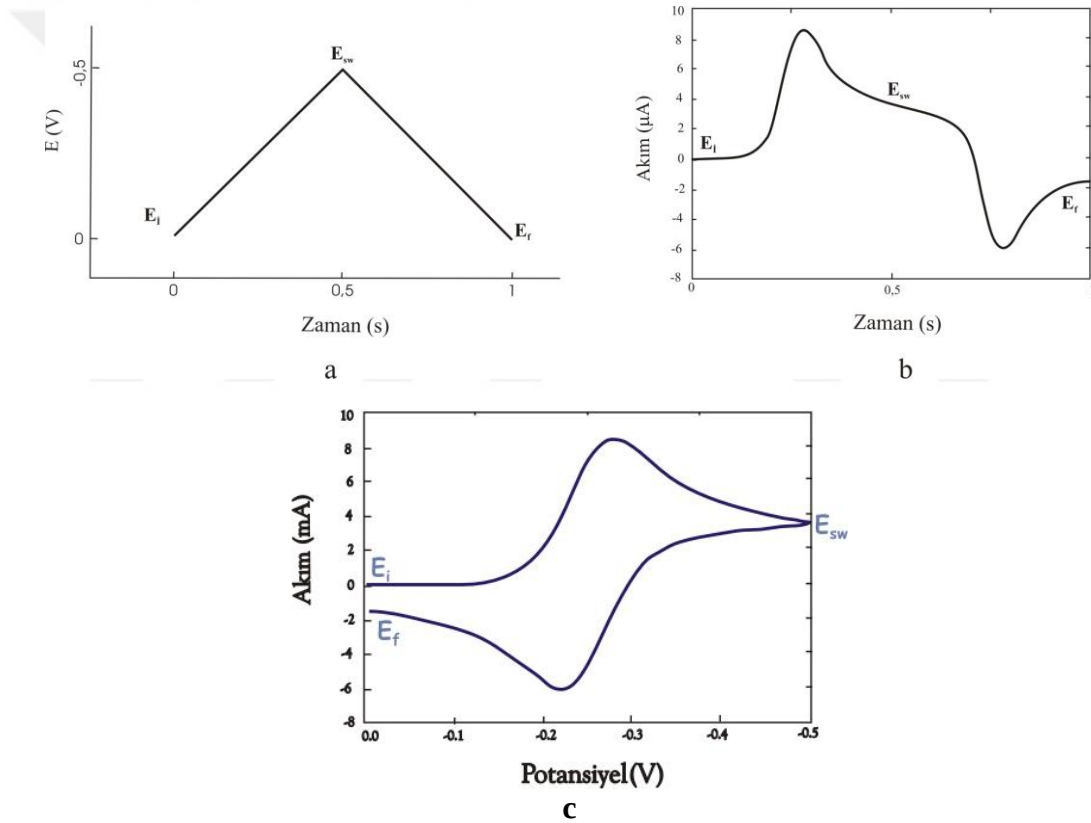


Şekil 1.23. Karşıt elektrot

#### 1.7.4. Dönüşümlü voltametri

Belirlenen sabit potansiyelde akım değişmelerine dayalı bu metotların oldukça pratik ve ucuz olması yaygın olarak kullanılmasına neden olmuştur. Çok detaylı elektrokimyasal hücrelerde (elektrotlar, destek elektrolit, inert atmosfer vb.) uygulanan voltametrik metotların içerisinde özellikle dönüşümlü voltametri en geniş bilginin elde edilebildiği metot olma özelliği taşımaktadır (Bingöl, 2007).

Dönüşümlü voltametrinin temeli olan ve asıl incelenmek istenen akım-potansiyel eğrileri elde edilir. Bu eğrilere *dönüşümlü voltamogram* ifadesi kullanılır. Bunlara ait örnek Şekil 1.24’de verilmiştir.



Şekil 1.24. Dönüşümlü voltametri de üçgen dalga formunda; potansiyel-zaman değişimi (a), akım-zaman değişimi (b), potansiyel-akım değişimi (c) (Zor, 2016)

Dönüşümlü voltametrinin kullanıldığı birçok çalışma alanı bulunurken, en geniş kullanım alanları aşağıda özetlenmiştir (Bingöl, 2007).

✓ Redoks reaksiyonlarının karakterizasyonu

- Formal potansiyellerin tespiti
- Elektrokimyasal reaksiyonların tersinirliğinin belirlenmesi
- Bir türün indirgenme-yükseltgenme mekanizmasını belirleme

- ✓ Elektrot reaksiyonunda rol oynayan maddelerin yüzeye adsorpsiyonu ve kinetiğinin belirlenmesi
- ✓ Elektrokimyasal reaksiyondan önce veya sonra oluşan ardışık kimyasal reaksiyonların izlenmesi
- ✓ Enzim ve polimer immobilizasyonları
- ✓ Kendiliğinden düzenlenen tek tabakalar (Self-assembled monolayers-SAM) ile ilgili çalışmalarda
- ✓ Korozyon çalışmaları
- ✓ Kimyasal sensörler

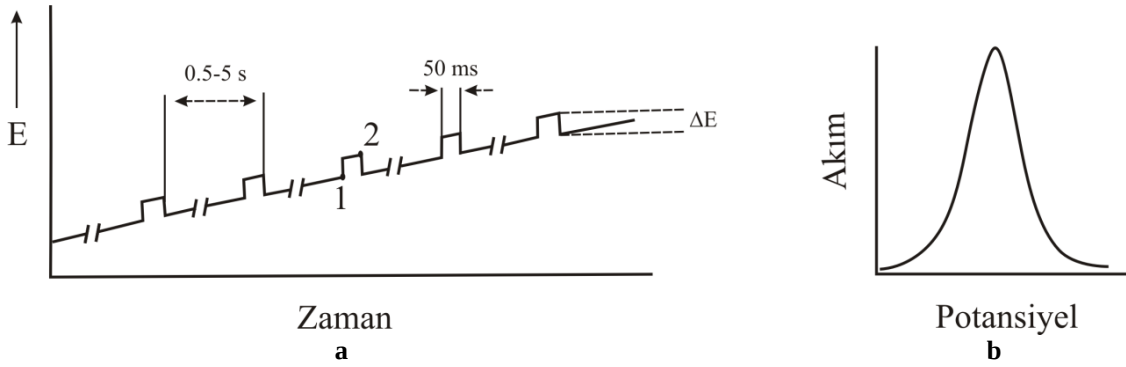
Dönüşümlü voltametri metodu ile gerçekleşen redoks reaksiyonları ile iyonofor bünyesinde bulunan fonksiyonel gruplar hakkında yorum yapılabilirdiği gibi iyonofor-metal etkileşiminin gerçekleştiği asıl fonksiyonel grupların (bağlanma grubunun) belirlenmesinde de kullanılabilir. İyonoforun yapısında bulunan elektro aktif grupların davranışlarına bağlı olarak elde edilen sinyallerden voltamogramlar, ortamdaki moleküler tanınmaya ait karakterizasyon çalışmalarının yapılmasına imkân tanımaktadır. Bu teknikte genellikle üç elektrot sistemin bağlandığı elektrokimyasal çalışma standı ve bir potansiyostat yardımı ile ölçümler alınmaktadır (Şekil 1.25).



Şekil 1.25. Kullanılan çalışma standı, İvium

#### 1.7.5. Diferansiyel puls voltametrisi

Moleküler algılama çalışmaları için kullanılan voltametrik metotlardan bir tanesi de diferansiyel puls voltametrisidir (DPV). Bu metotla, destek elektrolit yükleme akımını ortadan kaldırmak için geliştirilmiş ve bundan dolayı voltametrik ölçümlerin tayin sınırı daha da düşürülebilmektedir. Faradaik akım/yükleme oranını artışı sağlamak için basamaklı dalga şekli (Şekil 1.26) kullanılır (Öztekin, 2008).



**Şekil 1.26.** Diferansiyel puls voltametrisi için uyarıcı sinyal değişimi (a) ve elde edilen diferansiyel eğri (b) (Zor, 2016)

Diferansiyel puls voltametrisi damlayan cıva elektrotlara ve katı elektrotlara uygulanabilir. Voltametrik puls metotlarının avantajı akımın örneklendiği noktalarda kapasitif akımın minimum olmasıdır. Bu nedenle sinyal/gürültü oranı iyileştirilmiş olup,  $10^{-7}$ - $10^{-8}$  M derişimlerin tayinine imkân vermektedir. Diferansiyel puls teknikleri birçok elektro aktif türün eser miktarlarının tayininde sıklıkla kullanılmaktadır. Bu durumda yarı dalga potansiyeli aşağıdaki eşitlikten hesaplanabilir (Zor, 2012).

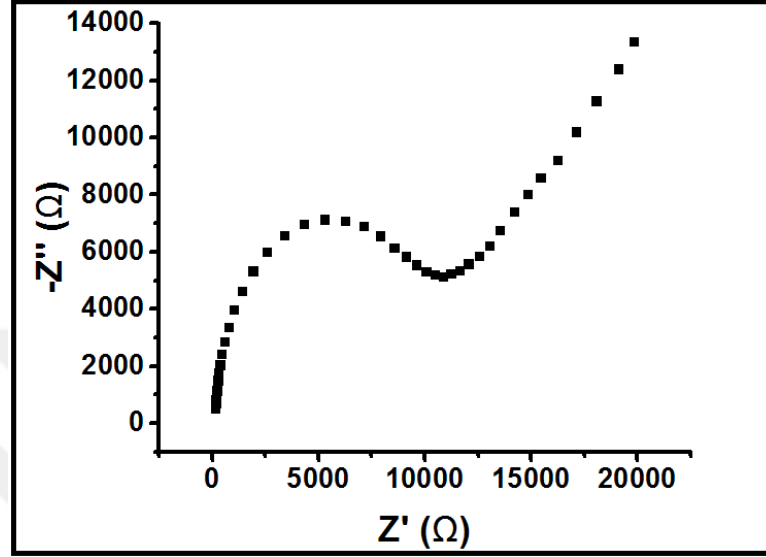
$$E_P = E_{1/2} - \Delta E/2$$

Doğrusal puls polarografisi, diferansiyel puls polarografisi gibi birçok puls tekniği olmasına rağmen en çok tercih edilen elektrokimyasal yöntem diferansiyel puls voltametrisidir. Bu yöntemde yavaş bir biçimde yükselen sinyal üzerine yükseklikleri sabit voltaj pulslarının çakıştırılması ile oluşan uyarıcı sinyal kullanılmaktadır. Akımın pulstan hemen önce ve pulsun sonuna doğru iki defa ölçülmesi ile oluşan fark sinyal olarak kaydedilmektedir (Zor, 2012). Akımın iki kez ölçülmesi DPV'yi diğer elektrokimyasal yöntemlerden ayıran, oldukça hassas ve geniş kullanım alanına sahip bir teknik olmasını sağlayan özelliğdir (Güler, 2018).

#### 1.7.6. Elektrokimyasal impedans spektroskopisi (EIS)

Elektrokimyasal impedans spektroskopisi (EIS), elektrokimyasal sistemlerin mekanik ve kinetik özellikleri hakkında bilgi veren bir yöntemdir. Elektrokimyasal impedans spektroskopisi zaman sabitleriyle ilişkili olarak elektrot-çözelti arayüzeyi hakkında bilgi edinmeyi amaçlar ve bu özelliğinden dolayı diğer elektrokimyasal tekniklerden farklıdır. Bir devredeki toplam direncin ölçüsü olan impedansın zamanla

ilişkisi, belirli frekans aralıkları kullanılarak indüktif ve kapasitans değişimlerden etkilenen direncin ölçümüne dayanmaktadır (Şekil 1.27). Bu teknik, özellikle korozyon, biyosensörler, metal kaplama ve iletken polimer karakterizasyonu gibi alanlarda rağbet görmektedir (Tunç, 2017).



Şekil 1.27. Tipik bir elektrokimyasal impedans spektrumu

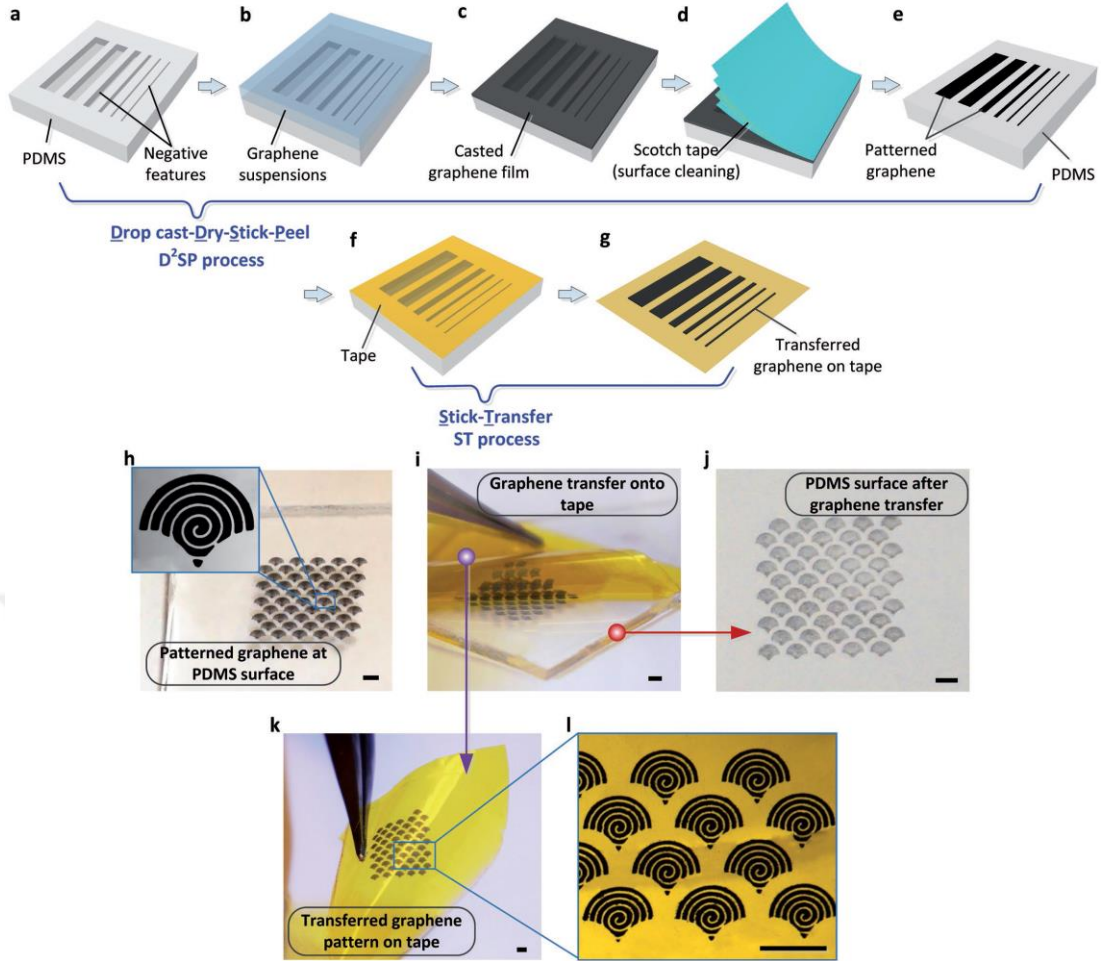


## 2. KAYNAK ARAŞTIRMASI

Karbon nanomalzemelerin en önemlilerinden biri olan grafen, mükemmel elektrik iletkenliği, mekanik dayanıklılık, termal özellikleri ve eşsiz bazı diğer özellikleri sayesinde son yıllarda nanoteknoloji alanında sentezi ve eldesi başta olmak üzere kompozit madde üretimi, enerji ile ilgili alanlar, transistörler ve sensörler gibi önemli birçok alanlarda büyük ölçüde büyüyen uygulama sahaları bulmaktadır. Bu alanda çalışan bilim insanları çoğu araştırmalarını grafen temel alarak yapmışlardır.

Grafenle ilgili çalışmalar malzeme mühendisleri, fizikçiler ve kimyacılar tarafından çok fazla kullanılmakta olup sensör uygulamaları sadece camsı karbon elektrot yüzeyinde, taşınabilir olmayan sistemlerde, laboratuvar uygulamalarında kalmaktadır. Bunun temel sebebi bu tarz sensörlerin üç elektrotlu sistemlerde desenleme ile ilgili grafen tabanlı çalışmalar çok az sayıda yer almaktadır. Aşağıda da bunlarla ilgili yapılmış desenleme çalışmaları sıralanmıştır.

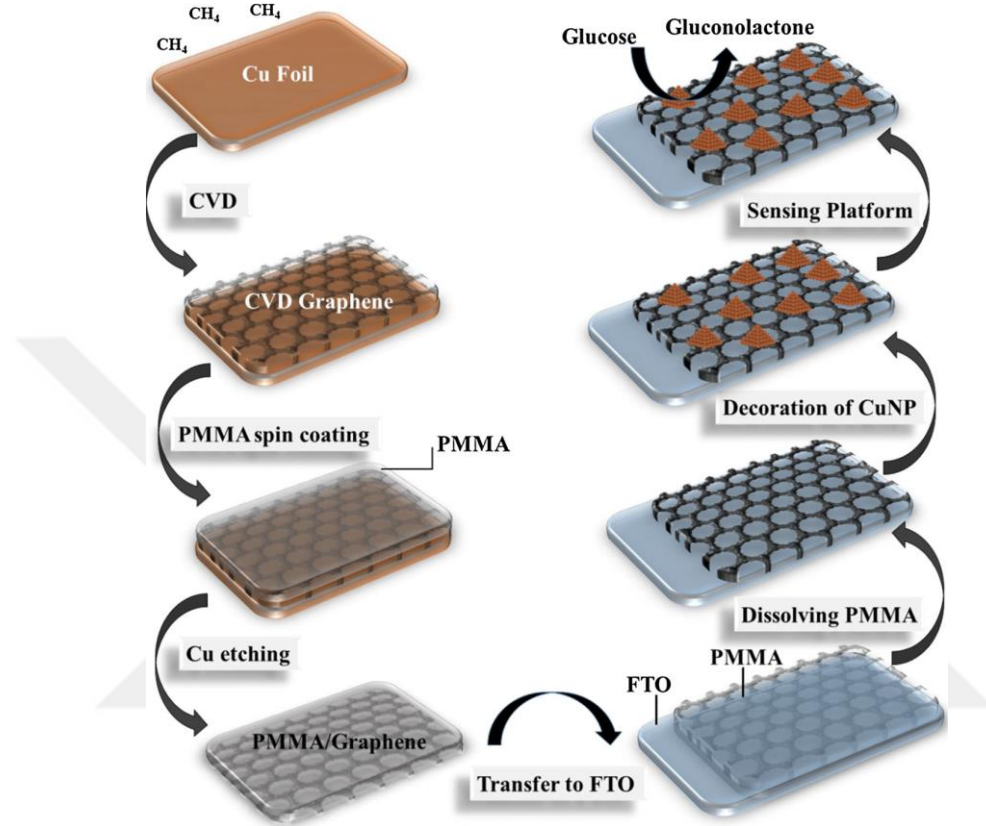
Oren ve çalışma ark.'ın (2017) yaptığı çalışmada, esnek mikro-ölçek sensörlerini gerçekleştirmek için grafen bazlı nanomateryallerin çeşitli bant türlerine desen ve transfer edilmesi için basit ve çok yönlü bir yöntem elde edilmiştir (Şekil 2.1). Metot, grafen solüsyonları ile negatif özellikler içeren desenli polidimetilsiloksan (PDMS) yüzeyine bir grafen filmin damlatılması, PDMS yüzeyinin dokusuz olmayan alanlarından fazla grafenin çıkarılması için Scotch bandın uygulanması ve daha sonra desenli grafenin içeriden aktarılması esasına dayanmıştır. Bu yöntemin uygulanması kolaydır, ancak negatif özellikler içeren bir PDMS substratına ihtiyaç duyulması dışında pahalı ekipman kullanımını gerektirmez. Bu yöntem, farklı yapışkan bant türleri üzerinde grafen bazlı nanomalzemelerin mikro-şekillendirilmesinde yüksek birçok yönlülüğe sahiptir. Uygulama tanıtımı amacıyla, insan hareketinin davranışını gösteren önemli sinyallerin gerçek zamanlı olarak izlenmesini sağlamak için bantlar üzerine esnek mekanik sensörler ve sensör dizileri, akıllı eldivenler geliştirilmiştir. Bu teknoloji, bant üzerindeki grafen tabanlı sensörlerin düşük maliyetli, ölçeklenebilir üretimi için yeni bir yol açacağı düşünülmüştür (Oren ve ark., 2017).



**Şekil 2.1.** Bant üzerindeki grafen deseninin şematik gösterimi. Yumuşak litografi ile PDMS substratında oluşturulan modeller (a). Grafen solüsyonlarının PDMS levhasının tüm yüzeyine damlatılması (b). PDMS yüzeyinde oluşan bir grafen film (c). Scotch bandı kullanılarak çıkarılmış negatif desenlerin dışındaki grafen film (d). PDMS'deki negatif kalıpların içinde oluşan grafen modelleri (e). PDMS yüzeyine yapıştırılmış bir hedef bant (f). Hedef bant üzerine aktarılan grafen desenleri (g). Grafen desen ve transfer sürecinin ana basamaklarını gösteren optik görüntüler. Ölçek çubukları 1 mm'yi temsil eder (h, i). PDMS yapılarında elde edilen grafen modelleri (h). PDMS substratındaki negatif desenler 15.4 mikron derinliğindedir. PDMS negatif kalıpları içindeki grafen 10.3  $\mu\text{m}$  kalınlığında, poliimid bant üzerine grafen deseni için transfer sürecinin uygulanması (i). Grafen transferi sonrası PDMS yüzeyi (j). Poliimid bant üzerine aktarılan grafen desenleri (k,i,l) (Oren ve ark., 2017)

Soğancı ve ark. (2018) yaptıkları bir çalışmada enzimatik olmayan bir biyosensör tasarlamışlardır (Şekil 2.2). Bu amaçla, tek katmanlı bir grafen film Cu folyo üzerinde kimyasal buhar biriktirme yöntemi ile hazırlanmış ve flor katkılı kalay oksit (FTO) kaplamalı cam lamına aktarılmıştır. Bundan sonra, bakır nanopartikülleri (CuNP), üzerinde DC magnetron püskürtülmesine dayanan inert-gaz yoğunlaşma yöntemi ile dekore edilmiştir. Hazırlanan CuNP ile dekore edilmiş grafen filmi, glikoz tayini için enzimatik olmayan bir sensör platformu olarak kullanılmıştır. Sensör platformu, 4 saniyeden daha kısa bir tepki süresi ve  $730.52 \mu\text{A mM}^{-1} \text{cm}^{-2}$  hassasiyetini  $7.2 \mu\text{M}$  tayin

sınırına sahip lineer konsantrasyon aralığı (0.01-1.0 mM) ile sergilediği gözlenmiştir. Elektrokimyasal incelemeler, CuNP grafen filminin yapıldığı sensör platformunun glikoza karşı mükemmel bir performans gösterdiğine işaret etmiştir. (Soganci ve ark., 2018).

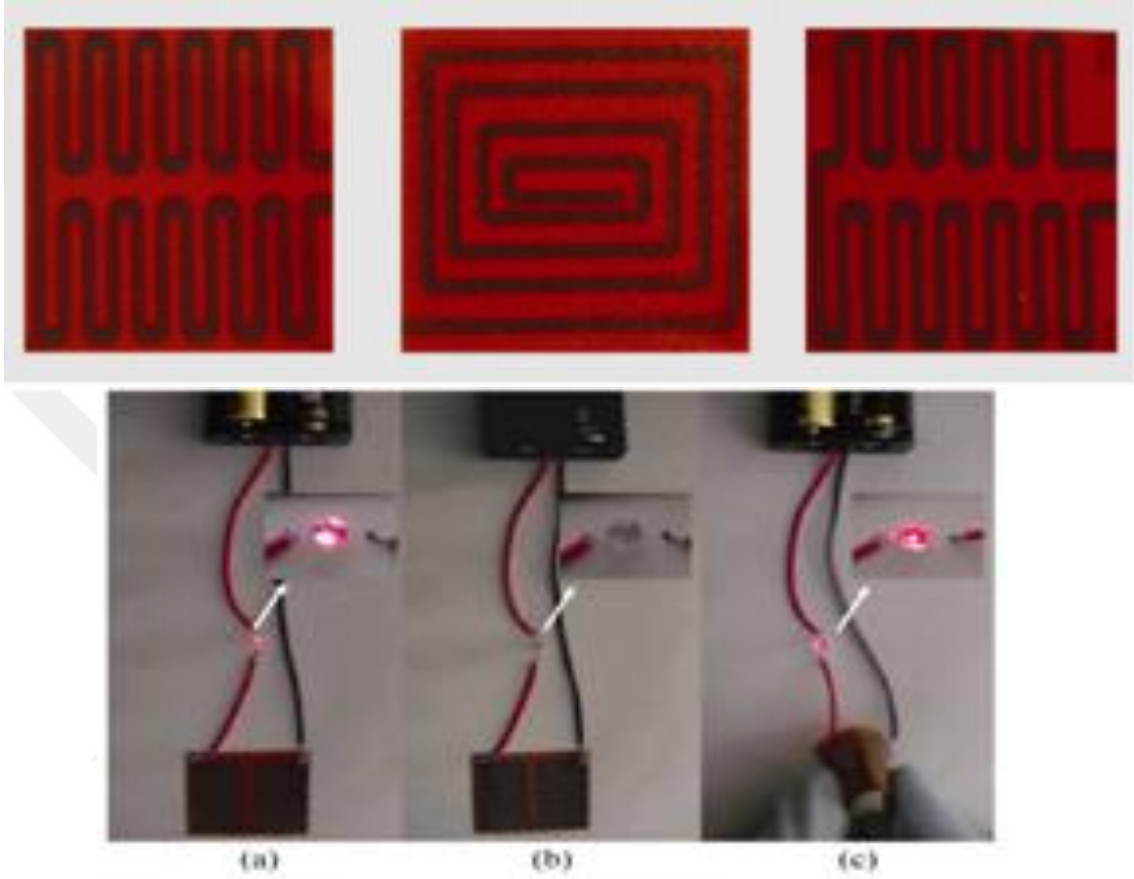


Şekil 2.2. Enzimatik olmayan sensör platformunun tasarımının şematik gösterimi (Soganci ve ark., 2018).

Huang ve ark. grafen esaslı iletken mürekkepler üretmişler ve mürekkep püskürtmeli yazıcı ile (ink-jet) elektrik devreleri ve kimyasal sensörler için esnek iletken desenlemeler yapmayı başarmışlardır (Şekil 2.3). Ancak bu metottaki temel sıkıntılar özetlenecek olursa:

- (i) Üretilen mürekkebin yazdırılabilmesi için yüzeyin hidrofilik bir polimer ile işleme tabi tutulması gerekmektedir ve bu işlemin uygulanması zaman alıcı bir süreç olup pahalı polimerler kullanılmasından dolayı masraflı bir metot olmasına neden olmaktadır.
- (ii) Yüzeye yazdırılmak istenen iletken devre/desenlerin yazdırma işlemini tek defada gerçekleştirebilmek her zaman mümkün olmayabilmektedir, çünkü hazırlanan mürekkep içerisindeki GO miktarı ancak belirli bir değerde olabilmektedir (ink-jet

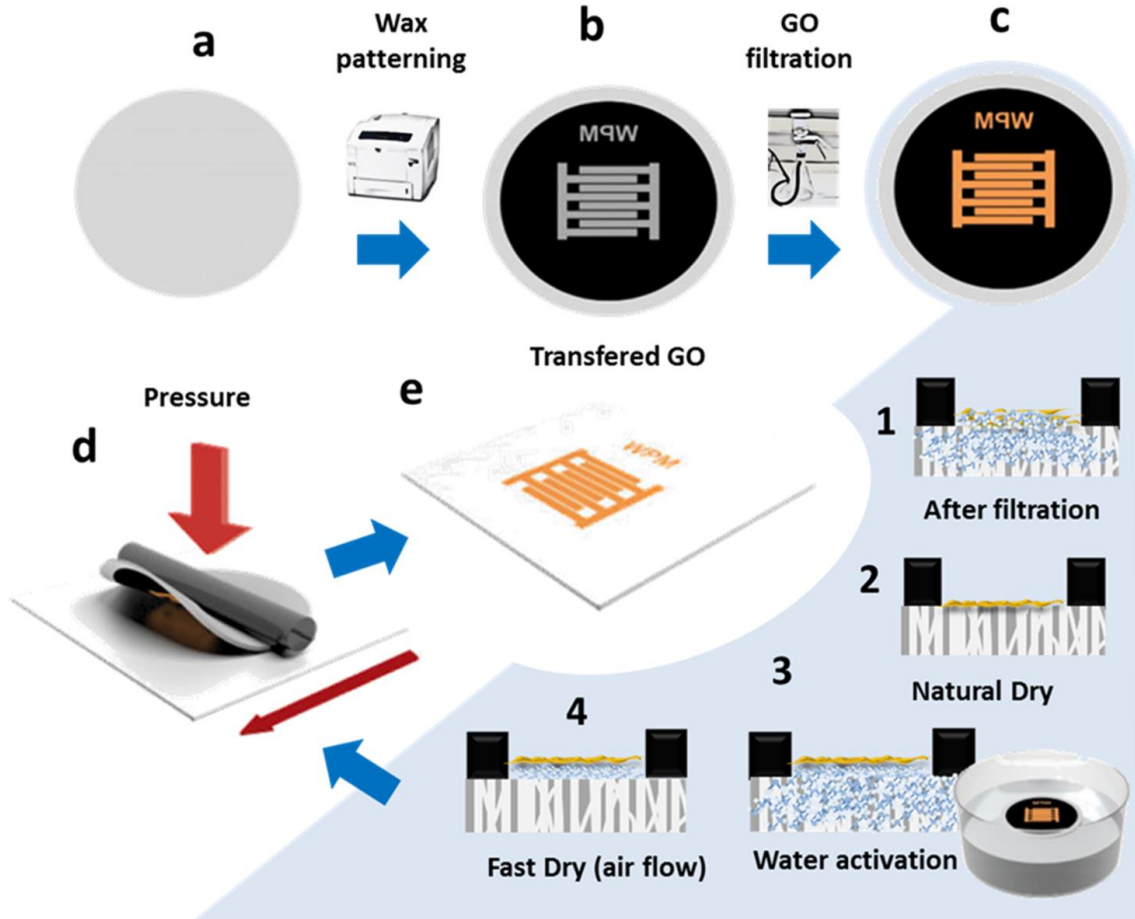
yazıcılar için mürekkep viskozitesi önemli bir parametredir) ve yazdırma işlemi tekrarlanmak zorunda kalılabilmektedir (Huang ve ark., 2011).  
Sonuç olarak yazdırılan desenlerde mikro boyutlarda hatalar gözlenebilmektedir.



**Şekil 2.3.** Poliimid altlık üzerine transfer edilmiş iletken grafen desenleri ve elde edilen esnek devrelerin: Pıl bağlanmış devrenin düz durumda iken göstermiş olduğu davranış (LED ampul yanmaktadır) (a); devreye pıl bağli değil iken durum (yanma yok) (b) ; pıl bağli devrenin esnetildiği durumda iken göstermiş olduğu davranış (LED ampul yanmaktadır) (c) (Huang ve ark., 2011).

Baptista-Pires ve arkadaşlarının gerçekleştirmiş olduğu bu çalışmada su ile aktifleştirilmiş mum baskılı membranlar (WPM) kullanarak GO'nun hızlı bir şekilde modellenmesi ve aktarılması için bir yöntem geliştirmişlerdir (Şekil 2.4). Balmumu baskı teknolojisi, kullanıcı tarafından mikrometre ile seçilen istenen şekil veya görüntü kullanılarak kolayca gerçekleştirilebilen düşük maliyetli ve çok yönlü bir teknolojidir. Vakum filtrasyonu ile birleştirilmiş bu teknoloji, nitroselüloz membran üzerinde desenli bir GO ağı bırakarak GO'nun şekli ve kalınlığı üzerinde kontrol sağlanmış. Bu şekilde, desenli GO'ları esnek alt tabakalara aktarmak için su ile aktive olan bir mekanizma geliştirilmiştir. Balmumu yazıcı makinesine uyan rulodan ruloya mekanizması, bu tekniği plastik, kağıt veya tekstil elektronik platformlarının hızlı yapımı için uygun hale

getirmiştir. Araştırmacılar bu tekniği kullanarak, polietilen tereftalat (PET) üzerinden dokunmaya duyarlı bir cihaz üretmişlerdir (Baptista-Pires ve ark., 2016).

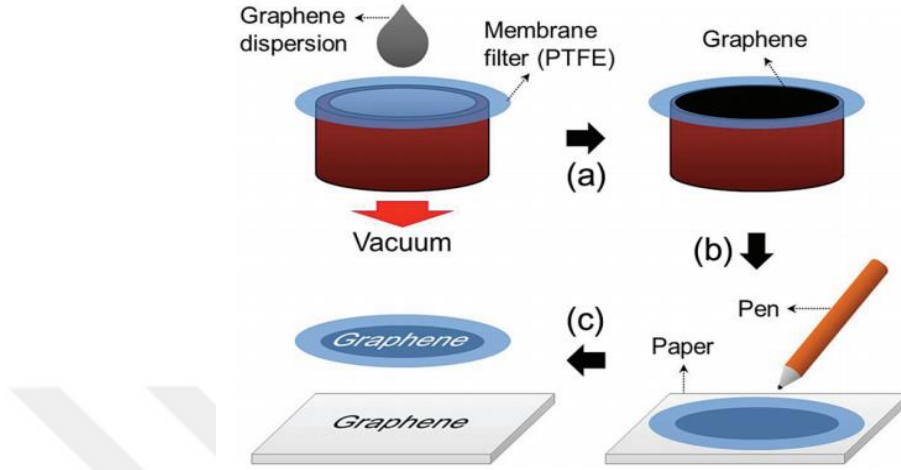


**Şekil 2.4.** GO'nun (a) nitroselüloz membran, (b) WPM, (c) filtrelerden hemen sonra GO - (c1) tabakalarla modifiye edilmiş WPM; (c2) doğal kuruduktan sonra; (c3) su aktivasyonundan sonra; (c4) hava akımı ile hızlı kuruduktan sonra - (d) GO'nun alt tabakaya basınçla aktarılması, (e) GO modelinin aktarılması (Baptista-Pires ve ark., 2016).

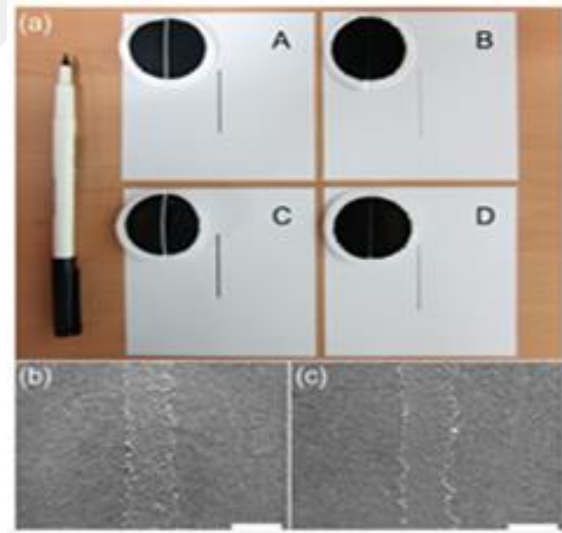
CVD, yazdırma (ink-jet temelli) ve sprey kaplama (püskürtme) tekniklerinin yanı sıra, daha ucuz ekipmanlar ile istenilen desenlerin arzu edilen yüzeye daha pratik bir şekilde transferini sağlayan vakum filtrasyonu metodu büyük ilgi çekmeye başlamıştır. Bu metot hazırlanan grafen esaslı dispersiyonun vakum ile membran yüzeyine toplanması ve sonrasında yüzeyine grafen (veya türevi) biriktirilen bu membran ile istenilen desenlerin elde edilmesine dayanmaktadır ve farklı şekilde uygulamaları bulunmaktadır (Şekil 2.5). Örneğin, Hyun ve ark. bu metodu kullanarak grafen dispersiyonunun filtre edilmesi ile tabaka kalınlığı kontrol edilebilen katlanabilir elektronik devreler elde etmiş ve elde edilen devrelerin elektrik iletkenliklerini test



etmişlerdir. Çalışmada elde edilen devrelerin sadece kağıt üzerine transferi gerçekleştirilmesi, birçok alanda özellikle elektrokimyasal sensörler alanında çözelti içerisinde uygulama yapmaya elverişli değildir (Şekil 2.6) (Hyun ve ark., 2013).



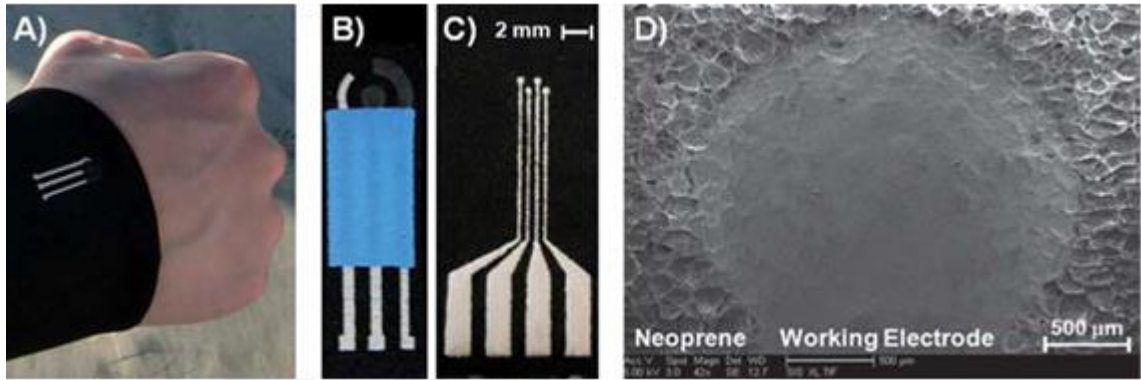
**Şekil 2.5.** Grafen devrelerin kağıt altlık üzerine transfer basamakları: Grafen dispersiyonu filtre edilir (a); Filtre kağıdı ters çevrilerek transfer edilecek kağıt üzerine konulur ve istenilen desenlemeler kalem yardımıyla filtre kağıdı üzerine bastırılarak çizilir (b); filtre kağıdı altlık üzerinden ayrılır (c) (Hyun ve ark., 2013)



**Şekil 2.6.** Şekilde çizim aşamasında farklı sayıda desenleme gerçekleştirilen filtre kağıtları gösterilmiştir (a). Ayrıca elde edilen desenlerin SEM görüntüleri (b) birden fazla çizilen desen; tek defa çizim ile desenleme (b) (Hyun ve ark., 2013)

Bir başka çalışmada, sentetik kauçuk neopren içeren su altı giysilerinde giyilebilir elektrokimyasal sensörler geliştirilmiştir (Şekil 2.7). Bu giyilebilir sensörler, deniz ortamlarında çevresel kirleticilerin ve güvenlik tehditlerinin varlığını belirleyebilmiştir. Benzersiz elastik ve süper hidrofobik morfolojisi sayesinde, neopren

su ortamları için kalın film elektrokimyasal sensörlerde çekici bir alt tabakadır ve görünür kusurları olmayan yüksek çözünürlüklü baskılar elde edilmesini sağlamıştır. Neopren esaslı sensör, deniz suyu örneklerinde ağır metal kirleticileri ve aromatik nitro patlayıcıların voltametrik tespiti için incelenmiştir. Ayrıca, deniz suyundaki fenolik kontaminantların amperometrik tayinine yönelik giyilebilir bir substrat üzerindeki enzim ( tirozinaz) immobilizasyonu ile bu alanda giyilebilir bir biyosensör olarak geliştirilen ilk örneğini sunmuşlardır (Malzahn ve ark., 2011).



**Şekil 2.7.** Bir su altı giysisinde perde baskılı elektrot (SPE) (A). Üç elektrot konfigürasyonu, bir Ag/AgCl referans elektrotunun yanı sıra doğrudan neopren üzerine basılmış karbon işleme ve karşı elektrotları içerir. Merkez: Neopren üzerinde iki farklı SPE tasarımı - (B) ek bir izolatör tabakası (mavi) içeren (A)'ya eşdeğer üç elektrot konfigürasyonu; 4 gümüş elektrot dizisi (C). Neopren substrat üzerindeki çalışma elektrot alanını gösteren elektrot mikro grafiği (D) (Malzahn ve ark., 2011) .



### 3. MATERYAL VE YÖNTEM

#### 3.1. Kullanılan Kimyasal Maddeler

Bu tez çalışmasında grafit tozu (99,99 %),  $H_2SO_4$  ve  $H_3PO_4$ ,  $H_2O_2$  (30%),  $KMnO_4$  (99%),  $[Fe(CN)_6]^{3-/4-}$ , *L*-askorbik asit, fosfat tamponu tableti (phosphate buffered saline tablet) ticari olarak global bir firmadan (Sigma) temin edilmiş olup aksi belirtilmediği sürece herhangi bir saflaştırma yapılmadan kullanılmıştır.

#### 3.2. Kullanılan Cihazlar

Deney esnasında çözücü olarak saf su kullanılmıştır ve direnci 18,2 M  $\Omega$  cm olan Direct-Q3 (Millipore) ultra saf su cihazı ile elde edilmiştir.

Deneylerde kullanılmak üzere sentezlenen GO'nun yapısal analizlerinde infrared spektrumları için Nicolet IS5 FT-IR spektrometresi, UV-Vis absorpsiyon spektroskopi ölçümleri Shimadzu UV-1800 çift ışınli spektrofotometre, Raman spektrumları için Renishaw-inVia Raman spektrometresi kullanılmıştır. Morfolojik analizinde ise Tecnai G2-F30 geçirimli elektron mikroskobu (TEM) ve ZEISS EVO LS10 marka taramalı elektron mikroskobu (SEM) kullanılmıştır. Grafen esaslı materyallerin eldesinde Heidolph marka karıştırırmalı ısıtıcı kullanılmıştır. Çözeltilerin karıştırılması, grafen tabanlı materyallerin su içerisinde dağıtılarak homojen hale getirilmesi için Bandelin marka ultrasonik banyo ile homojenizatör kullanılmıştır. Transfer işlemi için 0.22  $\mu$ m 47 mm boyutunda olan nitroselüloz membran (nSM) yüzeyine laboratuvarımızda mevcut olan katı mürekkep yazdırma Xerox katı mürekkep yazıcı (wax printing) yazıcı kullanılmıştır. Filtrasyon işlemi için KNF LABOPORT Mini Laboratuvar Vakum Pompası kullanılmıştır. Elektrokimyasal ölçümler için BASi C3 elektrokimyasal hücre standı ile kombine edilmiş Autolab PGSTAT302N - High Performance cihazı kullanılmıştır (Şekil 3.1).



Şekil 3.1. Autolab PGSTAT302N (a) ve karıştırıcı ısıtıcı (b) (Sağlam, 2017)

Tez çalışmamızda yürütülmesi planlanan yöntemler 3 basamakta toplanmıştır. Basamaklar aşağıda detaylı olarak verilmiştir;

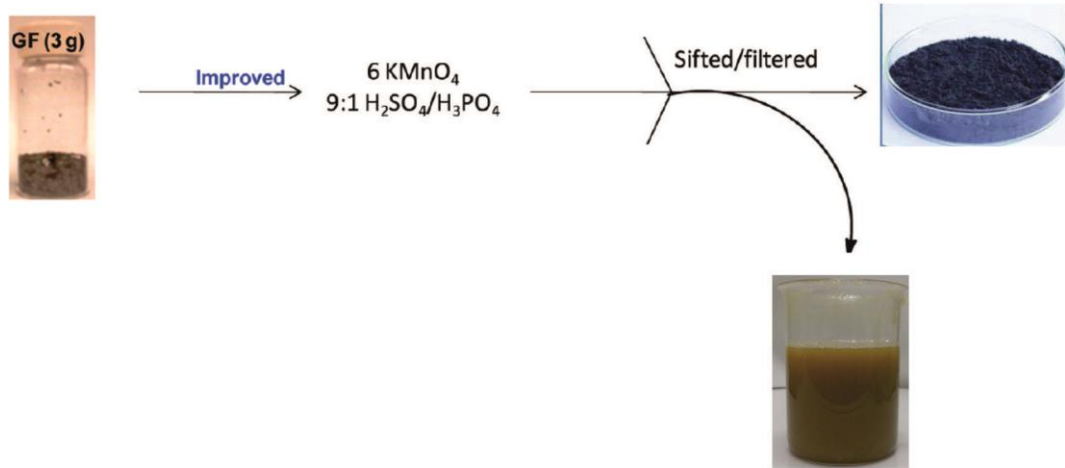
1. GO sentezi
2. GO'nun şeffaf ve esnek yüzeye aktarımı ve indirgenmesi
3. Elektrokimyasal ölçümler

şeklindedir.

Bu basamaklarda gerçekleştirilen işlemler aşağıda detaylandırılmıştır.

### 3.3. Grafen Oksit Sentezi

Tezin bu basamağında GO sentezi için Tour metodu kullanıldı (Marcano ve ark., 2018). Tour metodu için 9:1 oranında  $H_2SO_4/H_3PO_4$  (360: 40 mL) karışımı 3.0 g grafit tozu üzerine eklendi ve ardından 18.0 g  $KMnO_4$  karışıma yavaş bir biçimde ilave edildi. 35 ile 40°C'ye kadar hafif ekzoterm olan reaksiyon daha sonra 50°C'ye ısıtıldı ve 12 saat süresince karıştırıldı. Reaksiyon oda sıcaklığına soğutuldu ve çözelti buza (400 mL) döküldü. Bu karışım üzerine dikkatli bir şekilde 3 mL  $H_2O_2$  (% 30) baget çubuk ile karıştırılarak eklendi (Şekil 3.2).

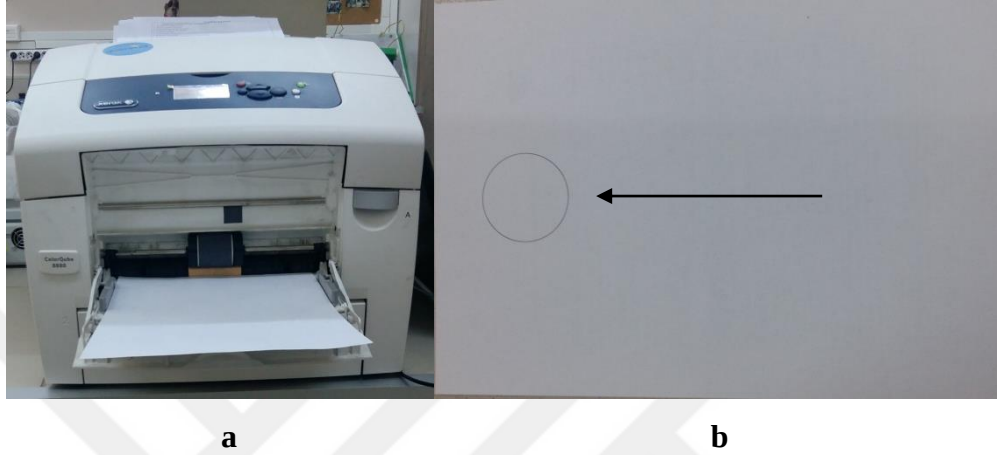


Şekil 3.2. Tour metodu ile GO sentezi (Marcano ve ark., 2018)

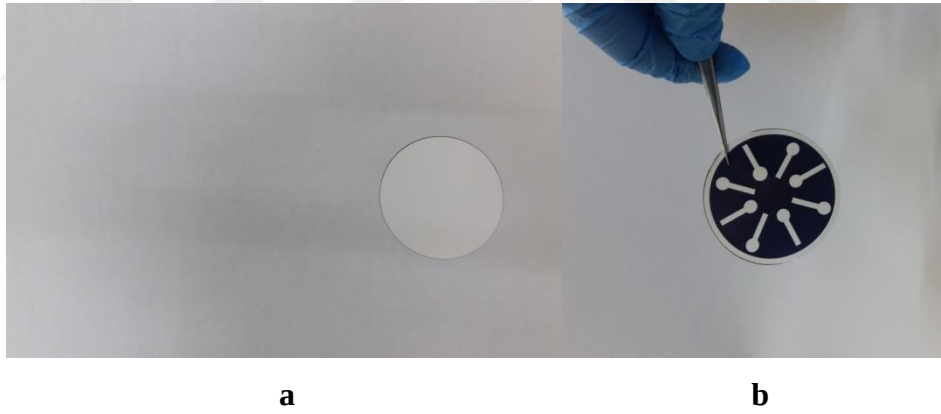
### 3.4. Grafen Oksit (GO)'in Şeffaf ve Esnek Yüzeye Aktarımı

GO ve grafen esaslı malzemelerin (GEM) şeffaf ve esnek yüzeye aktarımı basamaklar halinde gerçekleştirildi. İlk basamakta istenilen desen Corel Draw vb. çizim

programında tasarlananın ardından  $0.22\ \mu\text{m}$  gözenek boyutuna sahip 47 mm  $\phi$ ındaki nitroselüloz membran (nSM) yüzeyine (Şekil 3.3) laboratuvarımızda mevcut olan katı mürekkep yazdırma (wax printing) yöntemi ile yazdırıldı (Şekil 3.4). Aynı yöntemle sabit ve düzenli desenler elde etmek için birçok farklı desen dizaynı ile transferlerde yapıldı.



**Şekil 3.3.** Katı mürekkep yazdırma cihazı (a) ve membran boyutunda Corel Draw programında çizilerek yazdırılmış halka şekli (b)



**Şekil 3.4.** nSM'nin yazıcıda yazdırılmamış (a) ve yazdırılmış hali (b)

Filtrasyon işlemi yapılmadan önce *GO* çözeltisinin homojen olması için 5 dakika sonikatörde bekletildi (Şekil 3.5).

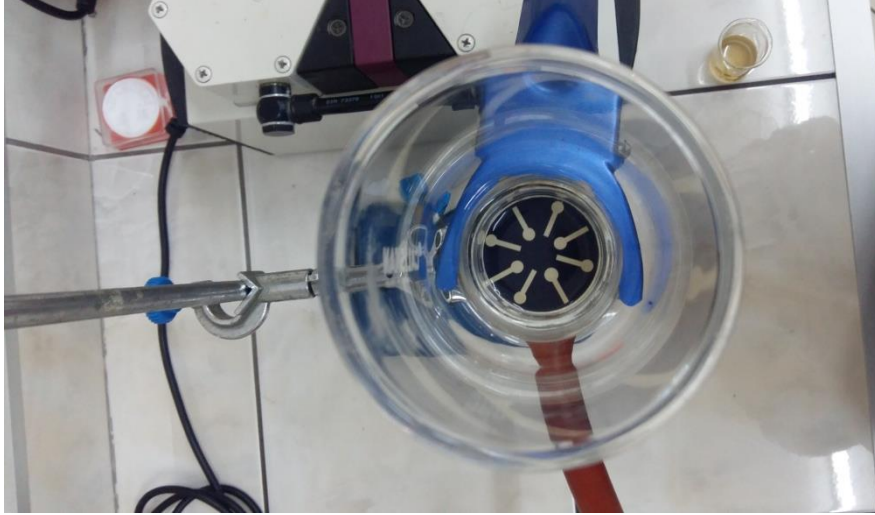


**a** **b**  
Şekil 3.5. GO çözeltisi (a) ve kullanılan sonikatör (b)

İkinci basamakta sonikasyon işlemi ile dağıtılan GO çözeltisi ile filtrasyon işlemi gerçekleştirildi (Şekil 3.6). Filtrasyon işlemi yaklaşık 30 dakika süre ile uygulandı ve bu işlem sırasında filtrasyon işlemi belli aralıklarla kontrol edildi (Şekil 3.7).

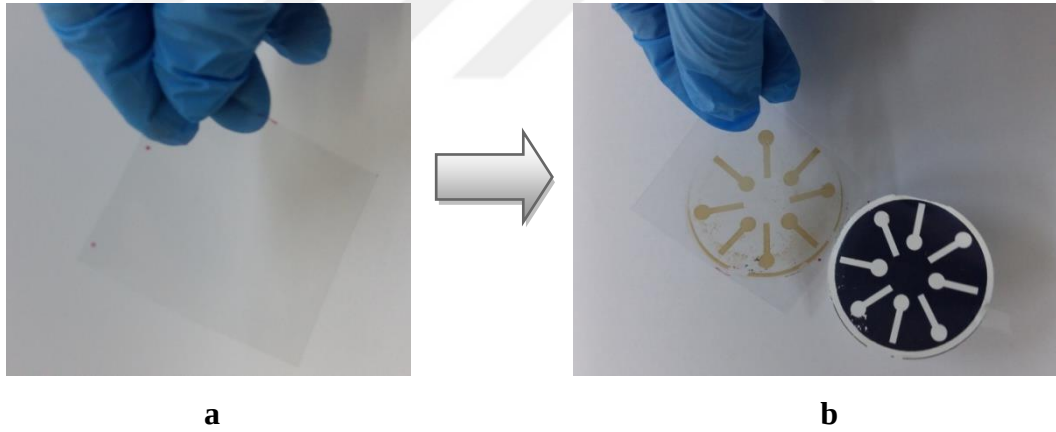


Şekil 3.6. Filtrasyon düzeneği



**Şekil 3.7.** Membran yerleştirilmiş filtrasyon düzeneği

Son basamakta ise filtrasyon işlemi tamamlanan membran çok kurumadan, hafif nemli bir şekilde alınıp şeffaf yüzey olarak kullanılacak olan polietilen tereftalat (PET) vb. şeffaf yüzeylere laboratuvarımızda mevcut olan katı mürekkep yazdırma cihazı (wax printer) ile transfer edildi (Şekil 3.8).

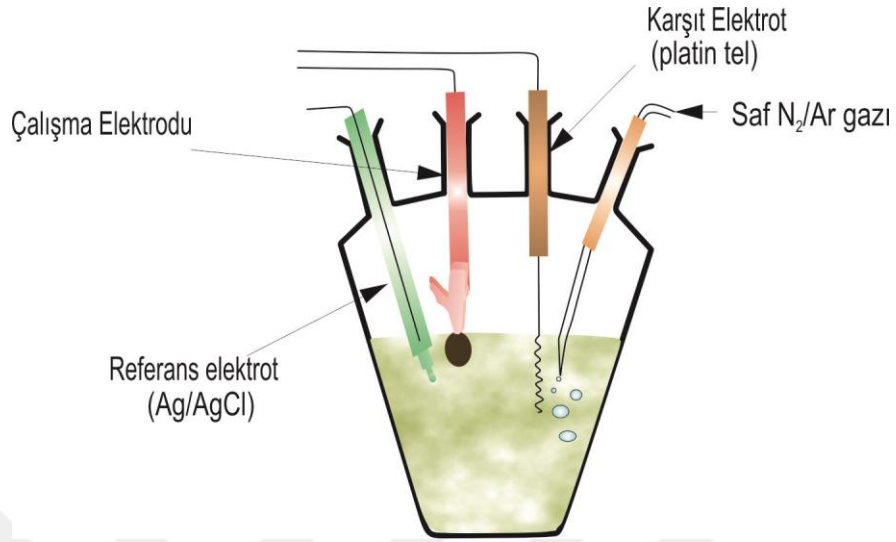


**Şekil 3.8.** Transfer öncesi PET (a) ve transfer sonucunda PET( polietilen tereftalat) yüzeyinde oluşan desen (b)

### 3.5. Elektrokimyasal Ölçümler

Tez kapsamında elde edilen şeffaf ve esnek elektrotların elektrokimyasal davranışlarını incelemek için 1.0 mM  $[\text{Fe}(\text{CN})_6]^{3-/4-}$  içeren pH'sı 7,01 olan fosfat tampon çözeltisi (PBS) içerisinde dönüşümlü voltametri (CV), elektrokimyasal impedans spektroskopisi (EIS) ve diferansiyel puls tekniği kullanıldı. Bu basamakta 3 elektrotlu elektrokimyasal hücre sistemi kullanıldı. Çalışma elektrotu olarak elde edilen şeffaf ve esnek elektrotlar, karşıt elektrot olarak platin tel ve referans elektrot olarak

Ag/AgCl elektrot kullanılmıştır. Elektrokimyasal ölçümlerde kullanılan hücre Şekil 3.9’da gösterilmiştir.



Şekil 3.9. Üç elektrotlu elektrokimyasal hücre

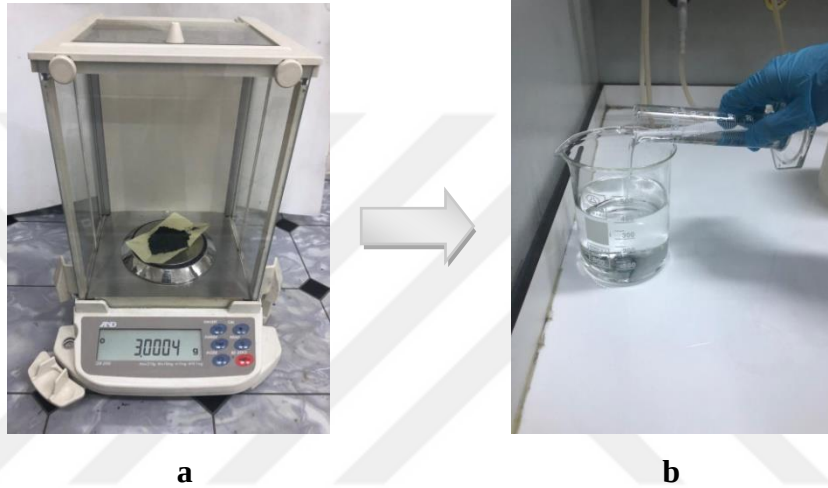
Çalışma elektrotu olarak elde edilen şeffaf ve esnek elektrotlar gümüş katısı ile temas sağlanarak ölçümler alındı.



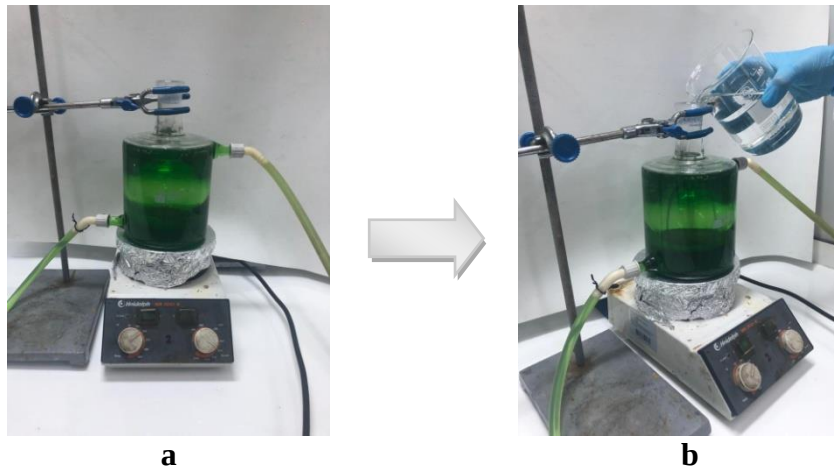
## 4. ARAŞTIRMA SONUÇLARI VE TARTIŞMA

### 4.1. Grafen Oksit (GO) Sentezi

Tezin bu basamağında *GO* sentezi için Bölüm 3.3'de bahsedilen Tour metodu kullanıldı (Marcano ve ark., 2018). Bu metot için, 3 gram grafit tozu tartılarak ceketli balona alınıp üzerine yavaş yavaş  $H_2SO_4/H_3PO_4$  (360:40 mL) karışımı eklendi (Şekil 4.1). Ceketli balon çeker ocakta bulunan karıştırıcıya 800 rpm değerine ayarlanarak konuldu (Şekil 4.2).



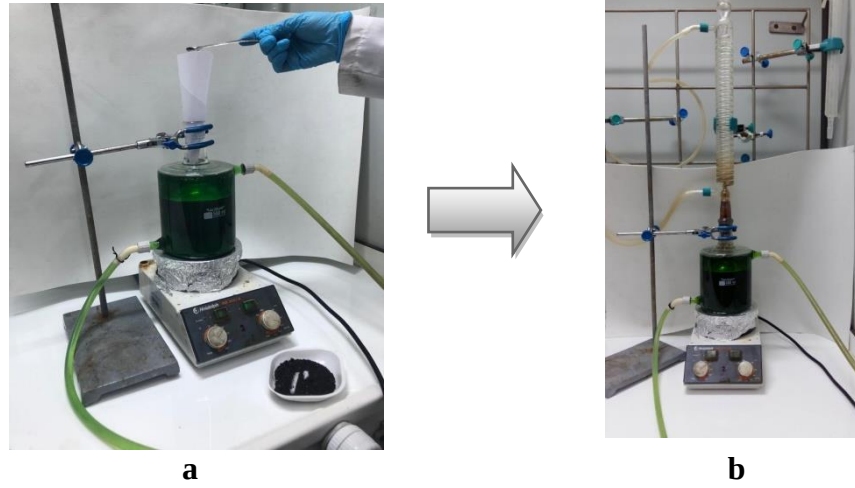
Şekil 4.1. 3 gram grafit tozu (a) ve  $H_2SO_4/H_3PO_4$  (360:40 mL) karışımı (b)



Şekil 4.2. Grafit tozu (a) ve üzerine eklenen  $H_2SO_4/H_3PO_4$  (360:40 mL) karışımı (b)

Sirkülatörlü soğuk su banyosu ile soğutulan karışım üzerine 18 gram potasyum permanganat ( $KMnO_4$ ) dikkatlice yavaş yavaş ilave edildi (Şekil 4.3-a). Karışım  $50^\circ C$ 'ye ısıtılarak, soğutucu takıldı ve 12 saat boyunca karıştırıldı (Şekil 4.3-b).

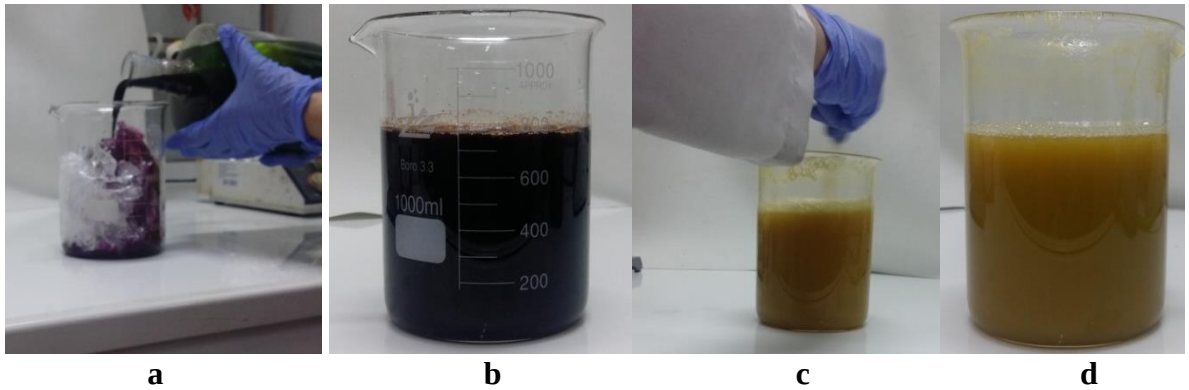




**Şekil 4.3.** Potasyum permanganat ( $\text{KMnO}_4$ ) eklenmesi (a) ve soğutucunun takılması (b)

Daha önceden bir kap içerisinde saf sudan hazırlanan dondurulmuş buz bir beher içerisine alındı. Heterojen karışım 12 saat sonunda buz halindeki saf suya aktarıldı (Şekil 4.4-a). Şekil 4.4-b'deki karışım üzerine 2-3 ml  $\text{H}_2\text{O}_2$  baget çubuk ile karıştırılarak eklendi (Şekil 4.4-c) ve çözeltinin sarı-kahverengi rengini aldığı gözlemlendi (Şekil 4.4-d).

Şekil 4.4-d'de olan grafen oksit çözeltisi çeşitli yıkama işlemlerinden geçtikten sonra belli oranlarda seyreltilerek desenlemelerde kullanıldı.



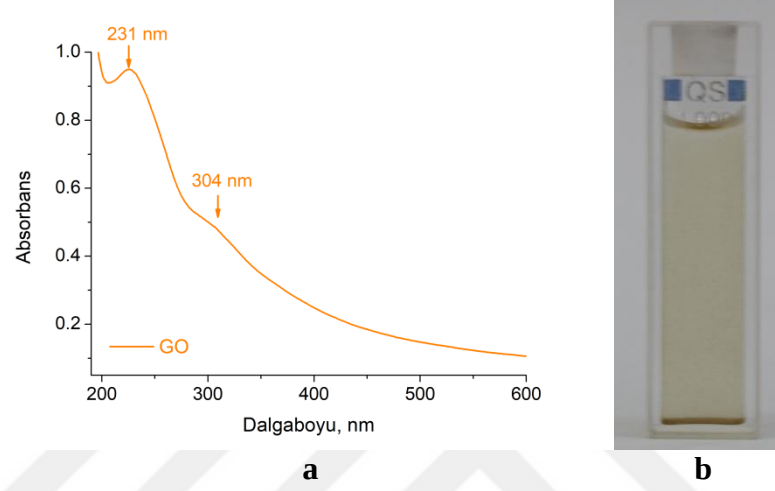
**Şekil 4.4.** Grafen oksitin elde edilmiş basamakları: Heterojen karışımın buz üzerine eklenmesi (a), heterojen buz karışımı (b), hidrojen peroksitin eklenmesi (c), hidrojen peroksitin eklenmesi sonucu oluşan sarı-kahverengi karışım (d)

## 4.2. Grafen Oksitin Karakterizasyonu

Elde edilen GO UV-Vis, Raman, FT-IR, TEM ve SEM metotları ile karakterize edildi. Şeffaf yüzeye transfer edilen GO desenlerin karakterizasyonu ışık mikroskobu ile

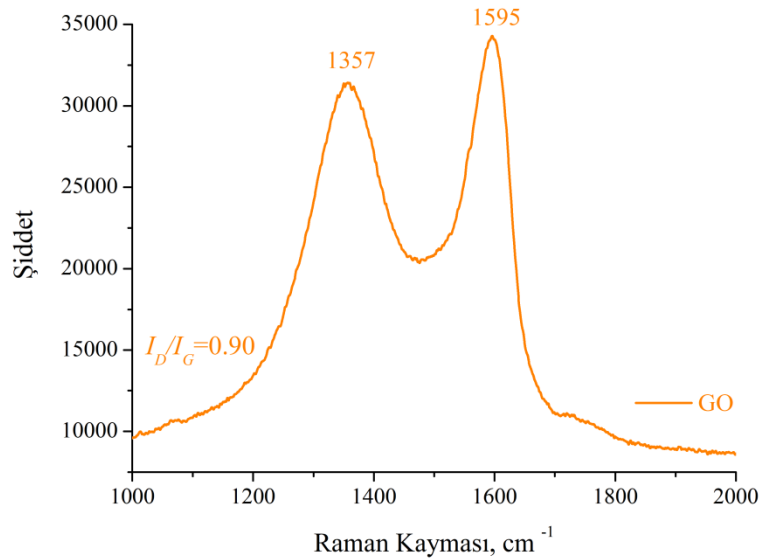
gerçekleştirildi. Ölçümler sonucunda GO'nun başarılı bir şekilde elde edildiği görüldü. Bu basamaklarda elde edilen sonuçlar sırasıyla aşağıda açıklanmıştır.

Şekil 4.5'de GO'nun kahverengi tondaki çözeltisine ait resim ve UV-Vis spektrumu gösterilmektedir. GO'nun sudaki çözeltisine ait UV-Vis spektrumu incelendiğinde 231 nm'de yapıdaki C=C bağından kaynaklanan  $\pi-\pi^*$  geçişi ve 304 nm'de C=O gruplarına ait  $n-\pi^*$  geçişine atfedilen zayıf pikler gözlemlenmiştir (Chen ve ark., 2011).



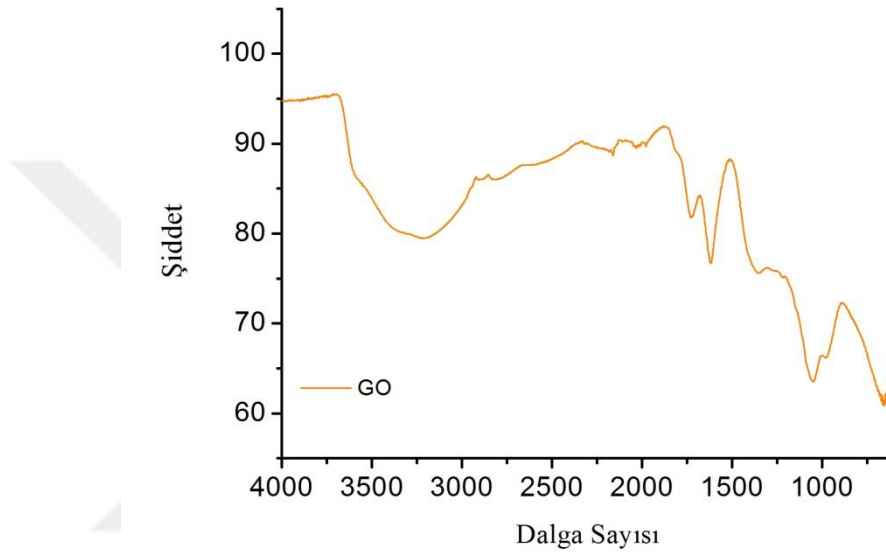
Şekil 4.5. GO solüsyonuna ait UV-Vis spektrumu (a) ve çözeltinin fotoğrafı (b)

GO'nun Raman analizi yapıldığında, Şekil 4.6'da verilen spektrumda görüldüğü gibi 1357 ve 1595  $\text{cm}^{-1}$  değerlerinde iki tane karakteristik kuvvetli Raman pikleri elde edilmiştir (Stankovich ve ark., 2007). Bu karakteristik piklere ait şiddetler arasındaki oran ( $I_D/I_G$ ) değeri 0,90 olarak gözlenmiş olup, literatürle uyum içerisinde.



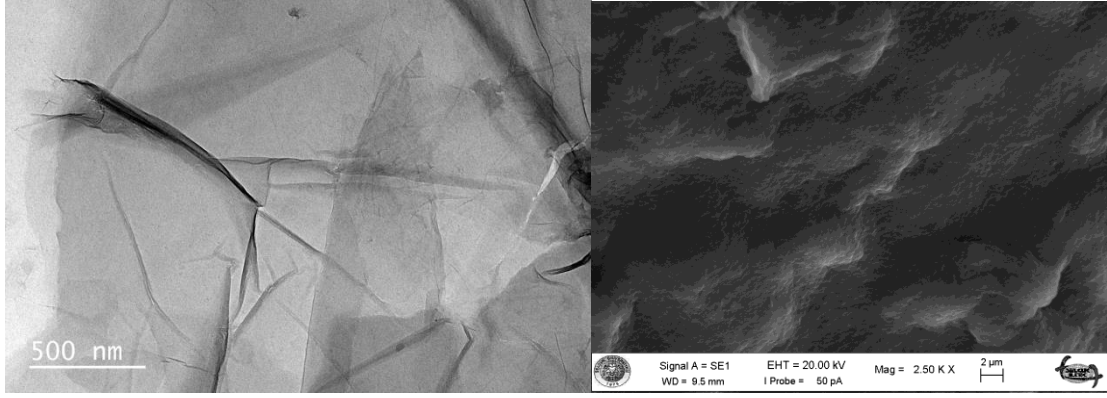
Şekil 4.6. GO'ya ait Raman analizi

FT-IR spektrumunda (Şekil 4.7) ise literatürdeki GO'ya ait genel karakteristik pikler elde edilmiştir. Elde edilen  $3200\text{ cm}^{-1}$  civarı geniş ve kuvvetli bant  $\text{--OH}$  gruplarının,  $2925\text{ cm}^{-1}$  absorpsiyon bantları  $\text{--CH}$  gruplarının,  $1731\text{ cm}^{-1}$ 'deki kuvvetli pik karbonil ( $\text{C=O}$ ) gruplarının ve  $1633\text{ cm}^{-1}$ 'deki kuvvetli pik aromatik karbon ( $\text{C=C}$ ) gruplarının varlığını gösterirken  $1399\text{--}1221\text{--}1059\text{ cm}^{-1}$ 'deki pikler de yapıdaki diğer oksijen içerikli grupların (karboksi, epoksi ve alkoksi) varlığını göstermektedir (Kumar ve ark., 2012; Travlou ve ark., 2013) .



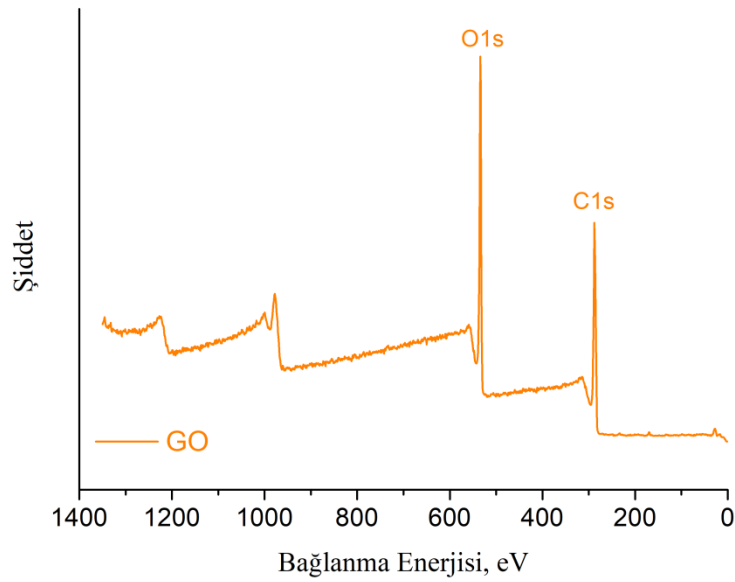
Şekil 4.7. GO'ya ait FT-IR spektrumu

Şekil 4.8 GO'nun geçirimli elektron mikroskobu (TEM) ve taramalı elektron mikroskobu (SEM) görüntüsü göstermektedir. Görüldüğü gibi grafen tabakaları yüzey üzerinde homojen bir şekilde (çarşaf görünümünde) yayılmıştır (Kumar ve ark., 2012). GO suda iyi dağılılabilen bir materyal olduğundan şekilden de görüldüğü gibi TEM gridi (ızgara) üzerinde geniş film tabakaları oluşturabilmektedir (Sreeprasad ve ark., 2011).



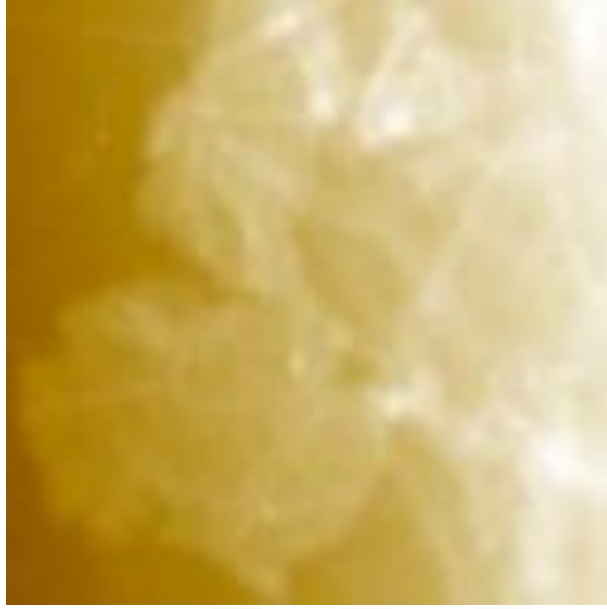
Şekil 4.8. GO'ya ait TEM ve SEM görüntüsü

Şekil 4.9'da verilen XPS sonuçlarında sırasıyla 285 ve 530 eV civarında kuvvetli C1s ve O1s pikleri elde edilmiştir. Elde edilen C:O oranının hemen hemen 2:1 olması en ideal GO yapısının elde edildiğini göstermektedir (Dreyer ve ark., 2010).



Şekil 4.9. GO'ya ait tam aralık XPS spektrumu

Tez çalışması kapsamında elde edilen grafen tabanlı materyallerin analizi için kullanılan diğer bir metot atomik kuvvet mikroskoptur (AFM). AFM görüntülerinde (Şekil 4.10) GO tabakaları yüzey üzerinde homojen ve birbirleri ile iç içe geçmiş şekilde bağlantılı olarak katlanmış bir çarşaf formunda yayılmıştır (Robinson ve ark., 2008).

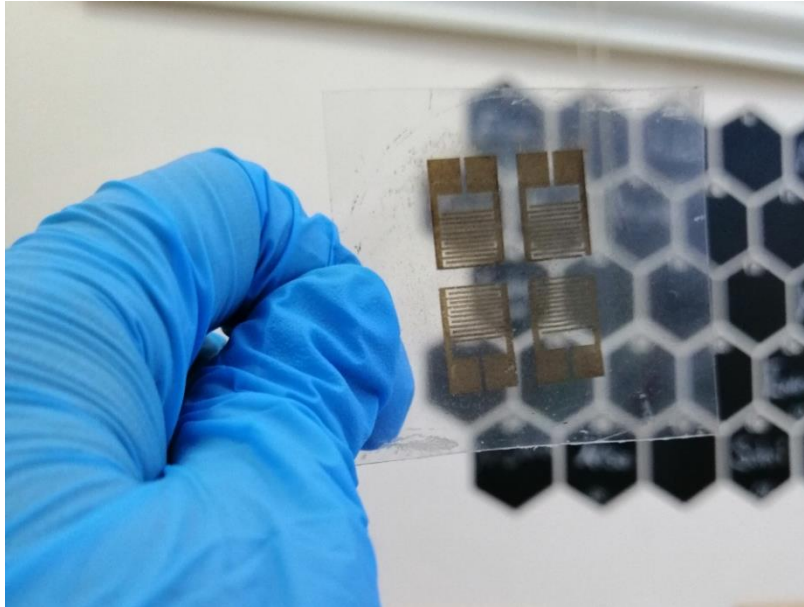


**Şekil 4.10.** GO'ya ait AFM görüntüsü

#### 4.3. Transfer İşleminin Gerçekleştirilmesi

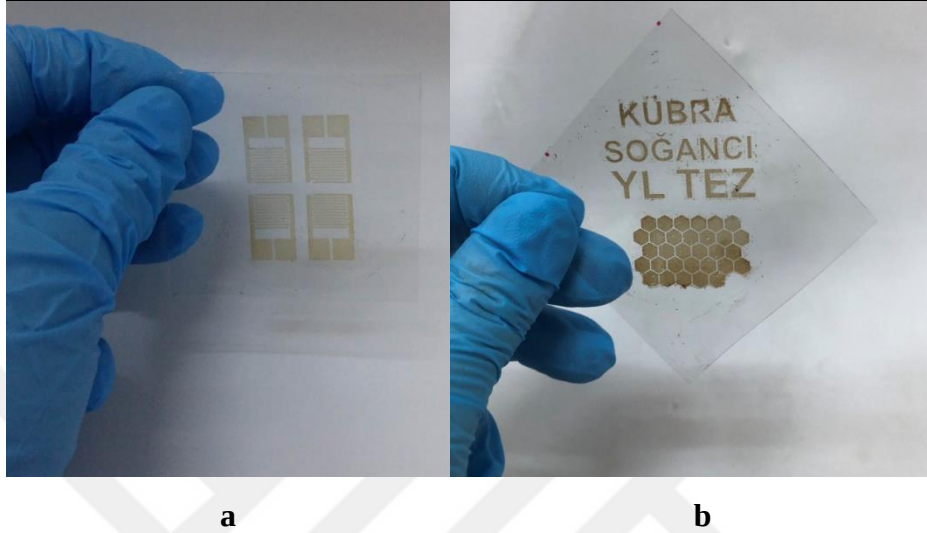
Elektrokimyasal çalışmalarda kullanılmak üzere çalışma elektrotumuzu elde etmeden önce Corel Draw programında çizilmiş farklı desenler filtrasyon yöntemi ile elde edildi. Transferlerin PET üzerine düzgün bir şekilde çıkması için vakum filtrasyonu yöntemi dikkatlice uygulandı.

Yapılan transfer işlemi sonucunda elde edilen iki elektrotlu iç içe geçmiş (interdigitated) elektrot deseni Şekil 4.11'de görülmektedir.

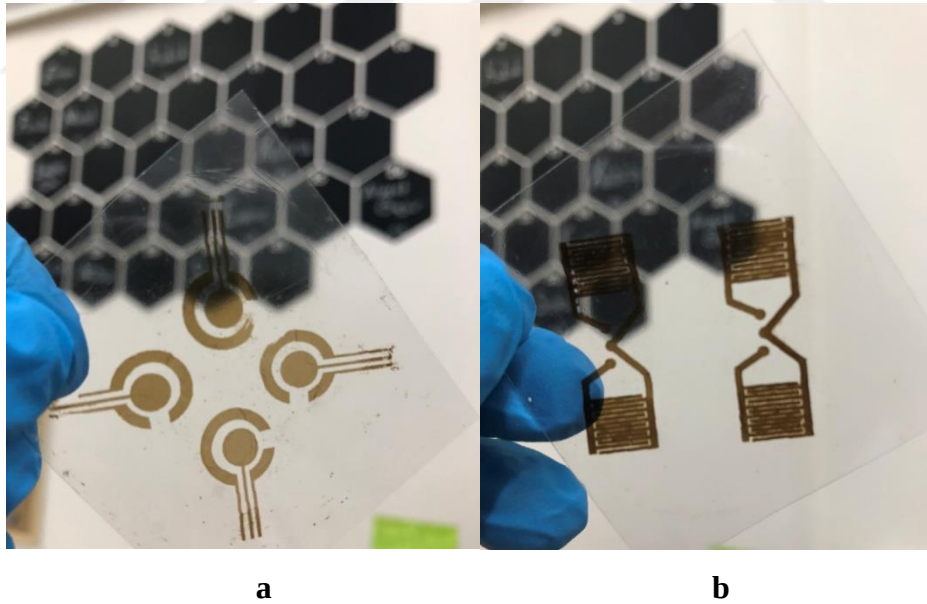


**Şekil 4.11.** GO ile elde edilen iki elektrotlu iç-içe geçmiş (interdigitated) elektrot desen görüntüsü

Çalışmada farklı desenlerin elde edilebildiğini göstermek amacıyla elde edilen, Corel Draw programında çizilmiş olan iki elektrotlu sistem ve yazı desenli sistem şekil 4.12’de, üç elektrotlu sistem, iki elektrotlu sistem, ay yıldız ve grafenin heksagonal yapısını gösteren transferlere ait desenler Şekil 4.13’de görülmektedir.



Şekil 4.12. İki elektrotlu sistem (a) ve yazı desenli transfer (b)







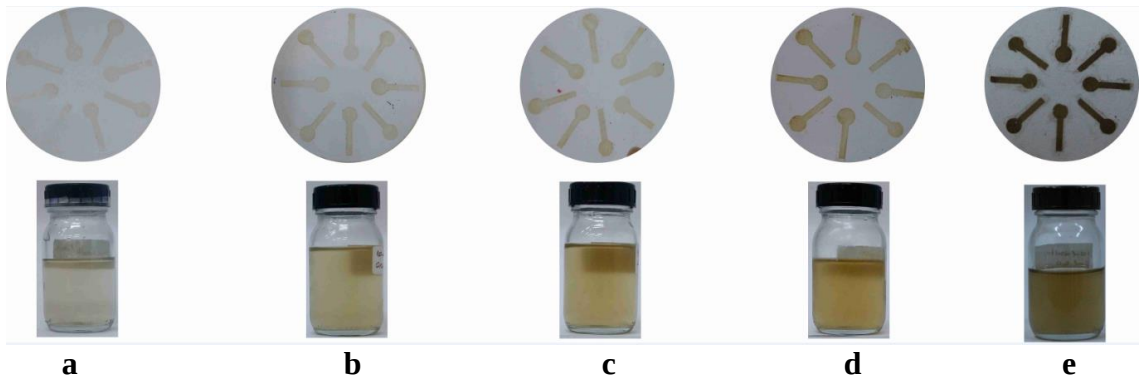
c

d

**Şekil 4.13.** Üç elektrotlu sistem şekil (a) elektrot sistemi (b) ay yıldız (c) ve grafenin heksagonal yapısını gösteren GO desenleri (d)

#### 4.4. Çalışma Elektrotu İçin GO Transferinin Gerçekleştirilmesi

Farklı desenlerin elde edilebilirliği ve GO 'nun homojen olarak transferinin gerçekleştirilebilirliği optimize edildikten sonra, tez çalışmasında kullanılacak olan ve elektrokimyasal davranışı incelenecek olan çalışma elektrotunun dizaynı ve desenin transferi incelenmiştir. Bu basamakta, membran yüzeyine filtrasyon işlemi için  $4 \mu\text{g/mL}$  ile  $20 \mu\text{g/mL}$  arasında farklı konsantrasyon değerlerinde GO solüsyonları hazırlandı. Bu solüsyonlar kullanılarak, Bölüm 3.4'de anlatılan filtrasyon ve esnek yüzeye transfer işlemleri sonucunda elde edilen desenler Şekil 4.14'de gösterilmiştir. Buradan görüldüğü üzere çözelti konsantrasyonu arttıkça GO solüsyonlarının ve transfer edilen elektrot desenlerinin renkleri açık kahverengiden koyu kahverengiye doğru bir değişim göstermektedir. Bu elektrotlar daha sonra indirgeme işlemine tabi tutularak elektrokimyasal çalışmalarda kullanıldı.



a

b

c

d

e

**Şekil 4.14.** Grafen oksit solüsyonunun beş farklı konsantrasyonu sonucunda beş farklı desen elde edilmiştir. a)  $4 \mu\text{g/mL}$  b)  $8 \mu\text{g/mL}$  c)  $12 \mu\text{g/mL}$  d)  $16 \mu\text{g/mL}$  e)  $20 \mu\text{g/mL}$



#### 4.5. Elektrot Yüzeyinde Grafen Oksitin İndirgenmesi

Transfer işlemi gerçekleştirilen elektrotlar birbirlerine temas etmeyecek biçimde Şekil 4.15-a'da görüldüğü gibi dizildi. Bir beher içerisine 250 mL *L*-askorbik asit çözeltisi (1 mg/mL) alındı. Beherdeki çözelti içerisine elektrotlar yüzeyi bozulmayacak şekilde yerleştirildi ve 300 rpm de düzenli kontroller altında 72 saat boyunca karıştırıldı. 72 saat sonunda açık kahverengi olan elektrotlar koyu kahverengi hatta siyah rengini alarak indirgenme işlemi gerçekleşti (Şekil 4.16).

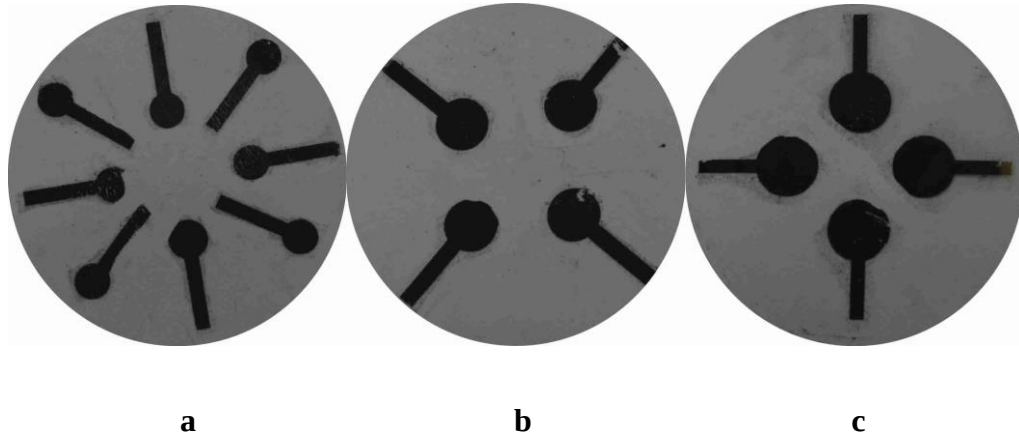


**Şekil 4.15.** Düzenli şekilde dizilmiş elektrotlar (a) 250 mL *L*-Askorbik asit çözeltisi (b)



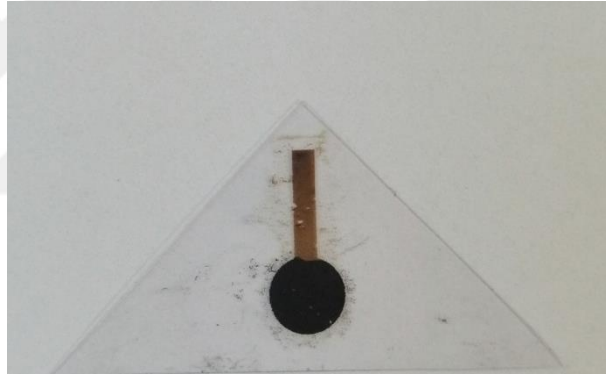
**Şekil 4.16.** Beher içerisinde indirgeme olmadan önce elektrotlar (a), beher içerisinde indirgeme sonrası elektrotlar (b)

İndirgenmiş elektrotlar üç farklı boyda Şekil 4.17-a'da küçük boy (*GO* miktarı/yüzey alanı: 80  $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ ), b'de orta boy (76  $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ ), c'de büyük boy (40  $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ ) olarak gösterilmiştir.



**Şekil 4.17.** İndirgeme sonrası küçük boy ( $GO$  miktarı /yüzey alanı:  $80 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ ) (a), orta boy ( $76 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ ) (b) ve büyük boy ( $40 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ ) (c) elektrotlar

İndirgeme işlemi yapıldıktan sonra elektrotun *L*-askorbik asit çözeltisini görmeyen kısmı ve gören kısmında oluşan renk farkı Şekil 4.18 ‘de görülmektedir. Bu sonuç uygulanan indirgeme işleminin gerçekleştiğini de göstermektedir.

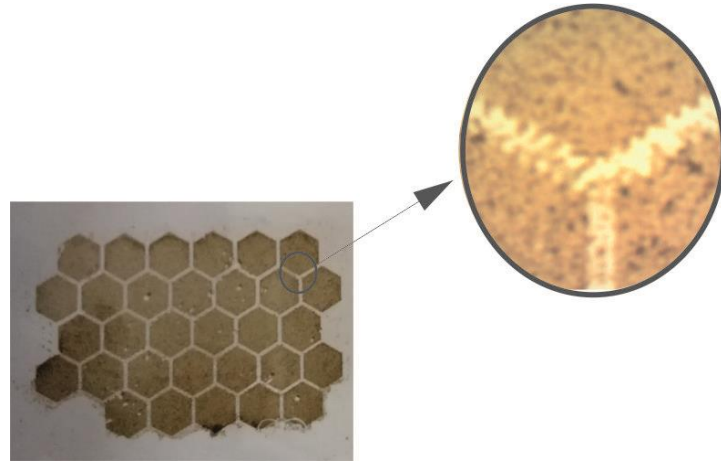


**Şekil 4.18.** *GO* indirgenmesinin gerçekleştiği yuvarlak kısım ve indirgemenin olmadığı kısım

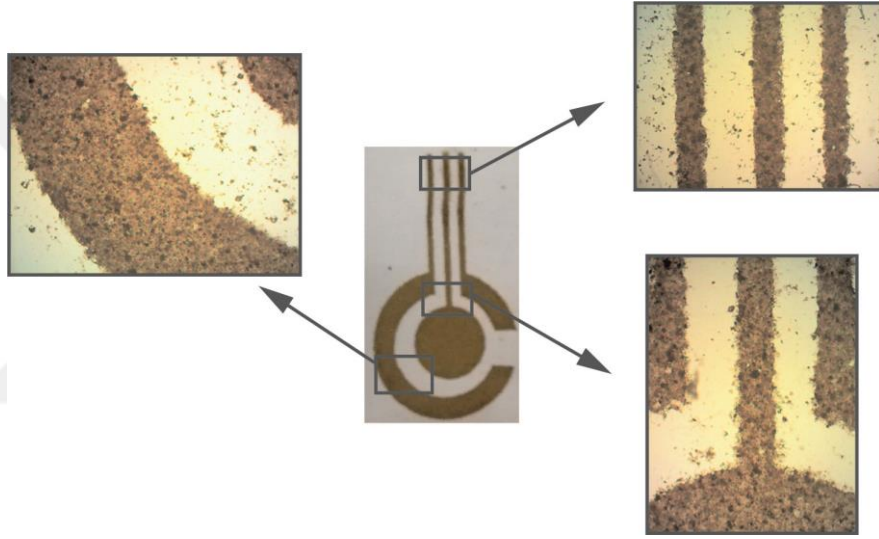
#### 4.6. Işık Mikroskobu Karakterizasyonu

Elde edilen desenlerin ışık mikroskobu altındaki görüntüsü alınarak yüzeydeki *GO* tabakasının homojenliği incelenmiştir. İndirgenmiş elektrot yüzeyinde diğer elektrotlara oranla rengin daha koyu ve yüzeyin daha homojen olduğu gözlemlenmiştir.

*GO*'nun bal peteği görüntüsü, üçlü elektrot sistemi ve *iGO* elektrodun mikroskop altındaki görünümü Şekil 4.19 ve Şekil 4.20’de gösterilmiştir. Işık mikroskobu altındaki görüntüler incelendiğinde homojen desenlerin elde edildiği görülmektedir.

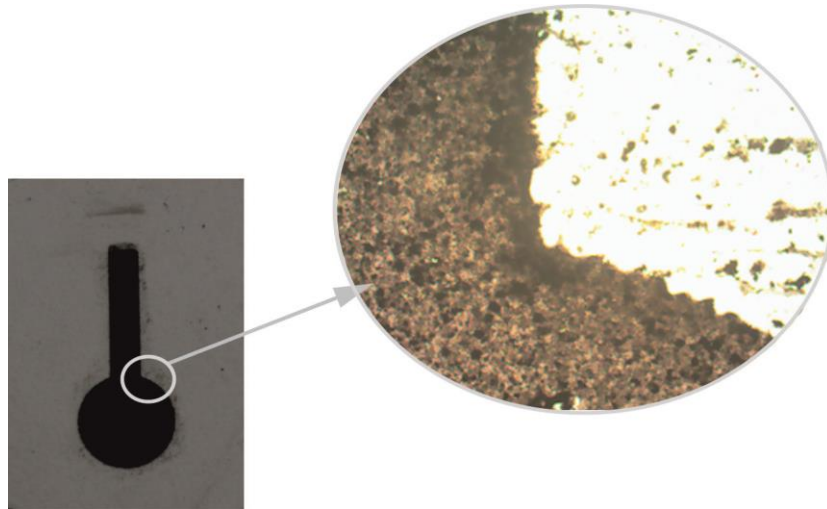


**a**



**b**

**Şekil 4.19.** GO 'in bal peteği (a) ve üçlü elektrot sistemi (b) şeklindeki desenlerinin mikroskop görüntüsü



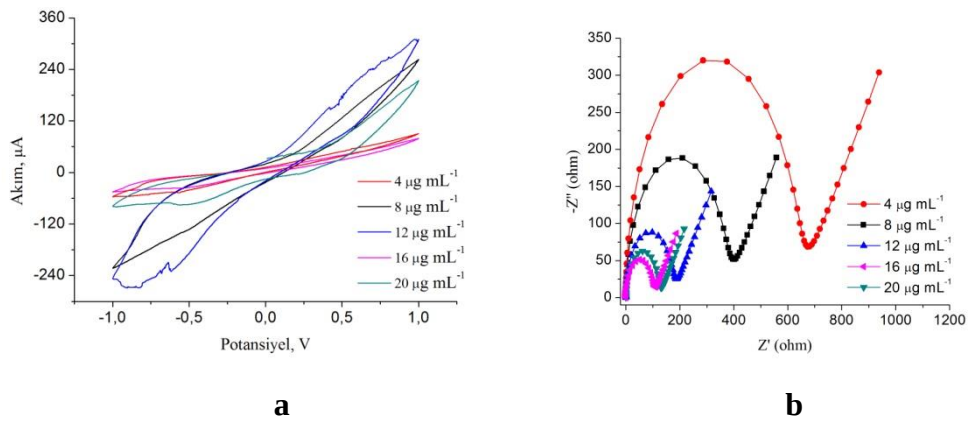
**Şekil 4.20.** Elde edilen iGO elektrot mikroskop görüntüsü

## 4.7. Elektrokimyasal Karakterizasyon

### 4.7.1. Dönüşümlü voltametri (CV) ve elektrokimyasal impedans spektroskopisi (EIS) ölçümleri

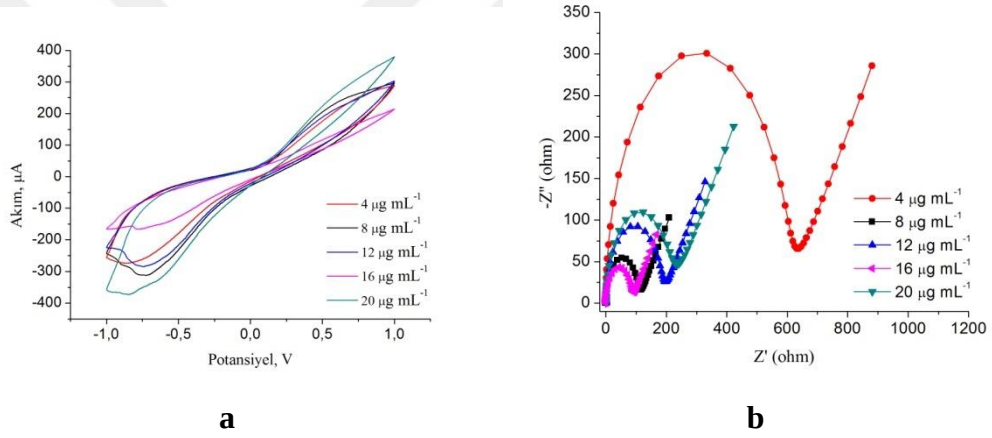
Elde edilen elektrotların elektrokimyasal davranışlarını incelemek için 1,0 mM  $[\text{Fe}(\text{CN})_6]^{3-/4-}$  içeren fosfat tampon çözeltisi (PBS) içerisinde dönüşümlü voltametri (CV) ve elektrokimyasal impedans spektroskopisi (EIS) teknikleri kullanıldı. Bölüm 4.4'de farklı miktarlarda grafen oksit içeren solüsyonlar kullanılarak elde edilen ve ardından indirgenme işlemine tabi tutulan beş elektrot deseni çalışma elektrotu olarak kullanılarak CV ve EIS ölçümleri gerçekleştirildi. Bu elektrotlara ait voltamogramlar ve impedans spektrumlarına ait Nyquist eğrileri her bir elektrot için ayrı ayrı ele alınarak aşağıda detaylı olarak açıklanmıştır.

Şekil 4.21-a büyük boy GO (GO miktarı/yüzey alanı: 10, 20, 30, 40, 50  $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ ) elektrot için beş farklı konsantrasyon değerinde transferi gerçekleştirilerek üretilen elektrotlar için dönüşümlü voltametri deneylerinde elde edilen -1.0 V ve +1.0 V arasındaki voltamogramları göstermektedir. Bu grafikten de görüldüğü gibi elektrokimyasal karakterizasyon yapılabilecek düzgün bir pik elde edilmemiştir. Şekil 4.21-b bu elektrotların impedans spektrumlarına ait Nyquist eğrilerini göstermektedir. Yarım daire şeklindeki eğrilerin yarıçaplarında önemli değişiklikler gözlemlenmiştir. İmpedans ölçümünde GO miktarı arttıkça direnç azalmıştır ve iletkenliğin arttığı gözlenmiştir. Bu artış, GO tabakalarının iletkenlikleri her ne kadar düşük olsa da, bu tabakaların birbiri üzerine binerek tabakalar arası boşlukları kapatmalarından dolayı elektron transferini artırdığına atfedilmiştir.



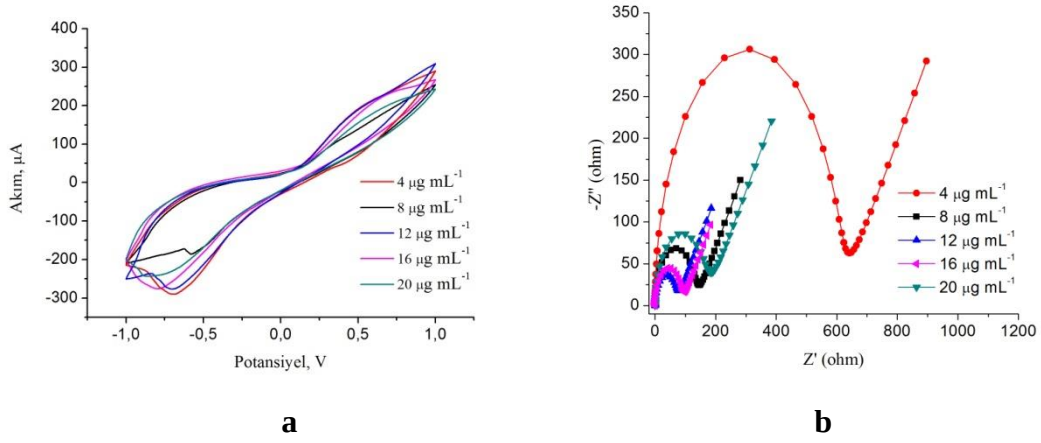
**Şekil 4.21.** Büyük boy GO elektrot için dönüşümlü voltamogramlar (a) ve Nyquist eğrileri (b)

Şekil 4.22-a büyük boy *iGO* (*GO* miktarı/yüzey alanı: 10, 20, 30, 40, 50  $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ ) elektrot için beş farklı konsantrasyon değerinde transferi gerçekleştirilerek üretilen elektrotlar için dönüşümlü voltametri deneylerinde elde edilen -1.0 V ve +1.0 V arasında alınan voltamogramları göstermektedir. Bu grafikten de görüldüğü gibi elektroaktif türe ait yarı tersinir pikler (+0.5 V ve -0.7 V potansiyel değerlerinde) elde edilmiştir. Şekil 4.22-b bu elektrotların impedans spektrumlarına ait Nyquist eğrilerini göstermektedir. Yarım daire şeklindeki eğrilerin yarıçaplarında önemli değişiklikler gözlemlenmiştir. İmpedans ölçümünde *iGO* miktarı arttıkça direnç azalmıştır ve iletkenliğin arttığı gözlenmiştir. Bu artış, *iGO* tabakalarının iletken oluşu ve birbiri üzerine binerek tabakalar arası boşlukları kapatmalarından dolayı elektron transferini artırmasına atfedilmiştir.



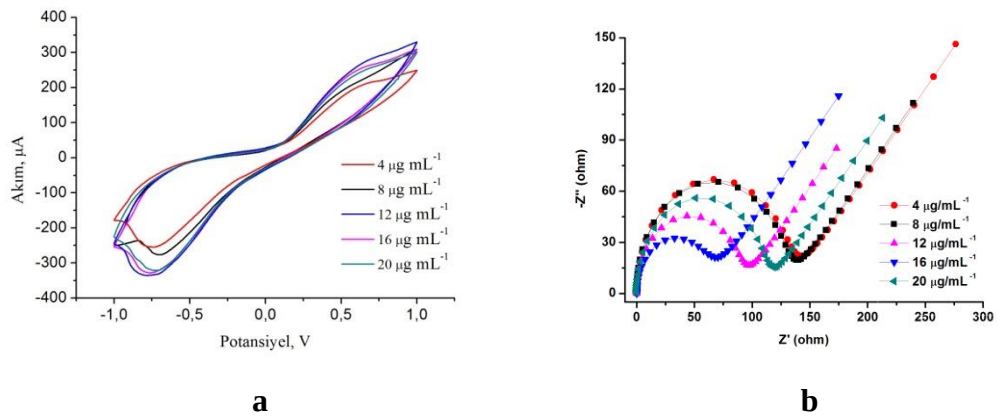
Şekil 4.22. Büyük boy *iGO* elektrot için dönüşümlü voltamogramlar (a) ve Nyquist eğrileri (b)

Şekil 4.23-a orta boy *GO* (*GO* miktarı/yüzey alanı: 19, 38, 57, 76, 95  $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ ) elektrot için beş farklı konsantrasyon değerinde transferi gerçekleştirilerek üretilen elektrotlar için dönüşümlü voltametri deneylerinde elde edilen -1.0 V ve +1.0 V arasında alınan voltamogramları göstermektedir. Bu grafikten de görüldüğü gibi elektroaktif türe ait yarı tersinir pikler (+0.5 V ve -0.7 V potansiyel değerlerinde) elde edilmiştir. Şekil 4.23-b bu elektrotların impedans spektrumlarına ait Nyquist eğrilerini göstermektedir. Yarım daire şeklindeki eğrilerin yarıçaplarında önemli değişiklikler gözlemlenmiştir. İmpedans ölçümünde *GO* miktarı arttıkça direnç azalmıştır ve iletkenliğin arttığı gözlenmiştir. Bu artış, *GO* tabakalarının iletkenlikleri her ne kadar düşük olsa da, bu tabakaların birbiri üzerine binerek tabakalar arası boşlukları kapatmalarından dolayı elektron transferini artırdığını göstermektedir.



**Şekil 4.23.** Orta boy GO elektrot için dönüşümlü voltamogramlar (a) ve Nyquist eğrileri (b)

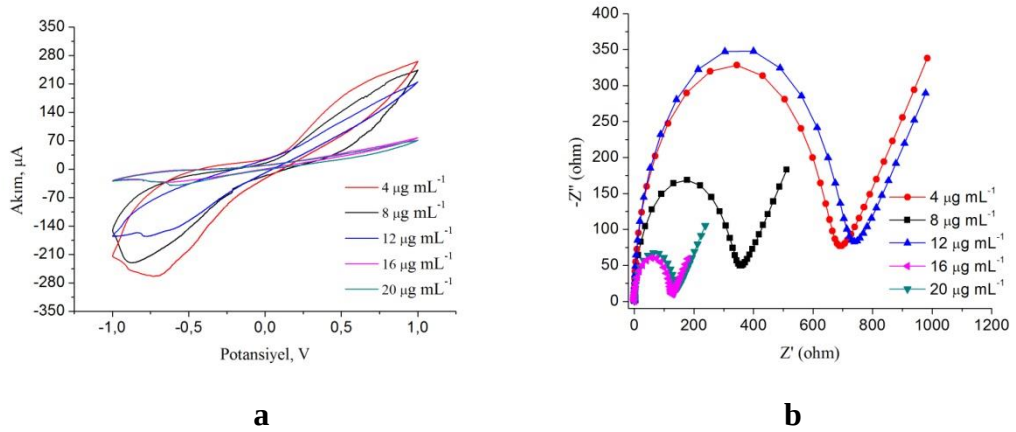
Şekil 4.24-a orta boy *iGO* (*GO* miktarı/yüzey alanı: 19, 38, 57, 76, 95  $\mu\text{g/cm}^2$ ) elektrot için beş farklı konsantrasyon değerinde transferi gerçekleştirilerek üretilen elektrotlar için dönüşümlü voltametri deneylerinde elde edilen -1.0 V ve +1.0 V arasında alınan voltamogramları göstermektedir. Bu grafikten de görüldüğü gibi elektroaktif türe ait yarı tersinir pikler (+0.5 V ve -0.7 V potansiyel değerlerinde) elde edilmiştir. Şekil 4.24-b bu elektrotların impedans spektrumlarına ait Nyquist eğrilerini göstermektedir. Yarım daire şeklindeki eğrilerin yarıçaplarında önemli değişiklikler gözlemlenmiştir. İmpedans ölçümünde *iGO* miktarı arttıkça direnç azalmıştır ve iletkenliğin arttığı gözlenmiştir. Bu artış, *iGO* tabakalarının iletken oluşu ve birbiri üzerine binerek tabakalar arası boşlukları kapatmalarından dolayı elektron transferini artırmasına atfedilmiştir. Ayrıca bu iletkenlik artışının yüzeydeki oksijen içeren grupların indirgenme sonrası uzaklaştırılması ile grafene benzer özellikler gösteren indirgenmiş grafen oksit yapısının elde edilmesine atfedilmiştir.



**Şekil 4.24.** Orta boy *iGO* elektrot için dönüşümlü voltamogramlar (a) ve Nyquist eğrileri (b)



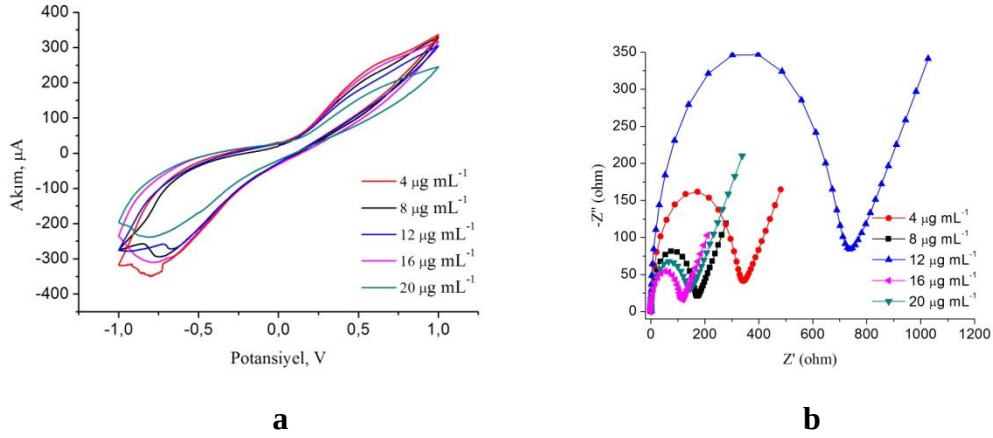
Şekil 4.25-a küçük boy *GO* (*GO* miktarı/yüzey alanı: 20, 40, 60, 80, 100  $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ ) elektrot için beş farklı konsantrasyon değerinde transferi gerçekleştirilerek üretilen elektrotlar için dönüşümlü voltametri deneylerinde elde edilen -1.0 V ve +1.0 V arasında alınan voltamogramları göstermektedir. Bu grafikten de görüldüğü gibi düzgün elektrokimyasal karakterizasyon yapılabilecek bir pik elde edilmemiştir. Şekil 4.25-b bu elektrotların impedans spektrumlarına ait Nyquist eğrilerini göstermektedir. Yarım daire şeklindeki eğrilerin yarıçaplarında önemli değişiklikler gözlemlenmiştir. İmpedans ölçümünde *GO* miktarı arttıkça direnç azalmıştır ve iletkenliğin arttığı gözlenmiştir. Bu artış, *GO* tabakalarının iletkenlikleri her ne kadar düşük olsa da, bu tabakaların birbiri üzerine binerek tabakalar arası boşlukları kapatmalarından dolayı elektron transferini artırdığını göstermektedir.



Şekil 4.25. Küçük boy *GO* elektrot için dönüşümlü voltamogramlar (a) ve Nyquist eğrileri (b)

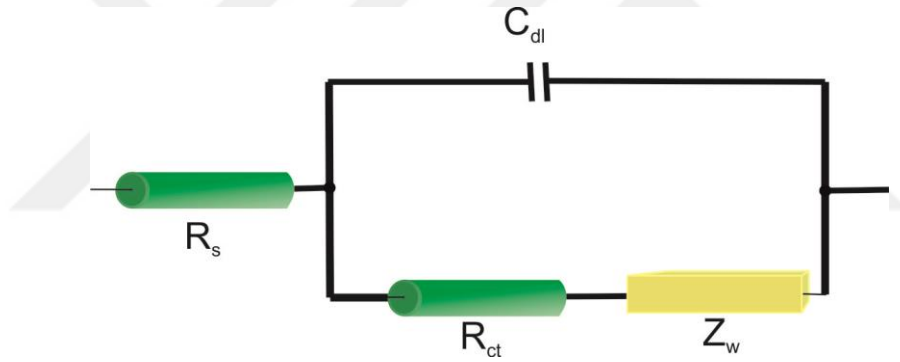
Şekil 4.26-a küçük boy *iGO* (*GO* miktarı/yüzey alanı: 20, 40, 60, 80, 100  $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ ) elektrot için beş farklı konsantrasyon değerinde transferi gerçekleştirilerek üretilen elektrotlar için dönüşümlü voltametri deneylerinde elde edilen -1.0 V ve +1.0 V arasında alınan voltamogramları göstermektedir. Bu grafikten de görüldüğü gibi elektroaktif türe ait yarı tersinir pikler (+0.5 V ve -0.7 V potansiyel değerlerinde) elde edilmiştir. Şekil 4.26-b bu elektrotların impedans spektrumlarına ait Nyquist eğrilerini göstermektedir. Yarım daire şeklindeki eğrilerin yarıçaplarında önemli değişiklikler gözlemlenmiştir. İmpedans ölçümünde *iGO* miktarı arttıkça direnç azalmıştır ve iletkenliğin arttığı gözlenmiştir. Bu artış, *iGO* tabakalarının iletken oluşu ve birbiri üzerine binerek tabakalar arası boşlukları kapatmalarından dolayı elektron transferini artırmasına atfedilmiştir.





Şekil 4.26. Küçük boy *iGO* elektrot için dönüşümlü voltamogramlar (a) ve Nyquist eğrileri (b)

Elde edilen sonuçlar Şekil 4.27’de gösterilen standart Randles eşdeğer devresine uygulanmıştır. İmpedans ölçümleri alınan elektrotların yük transfer direnci ( $R_{ct}$ ) değerleri Tablo 4.1’de gösterilmiştir.



Şekil 4.27. Randles eşdeğer devresi

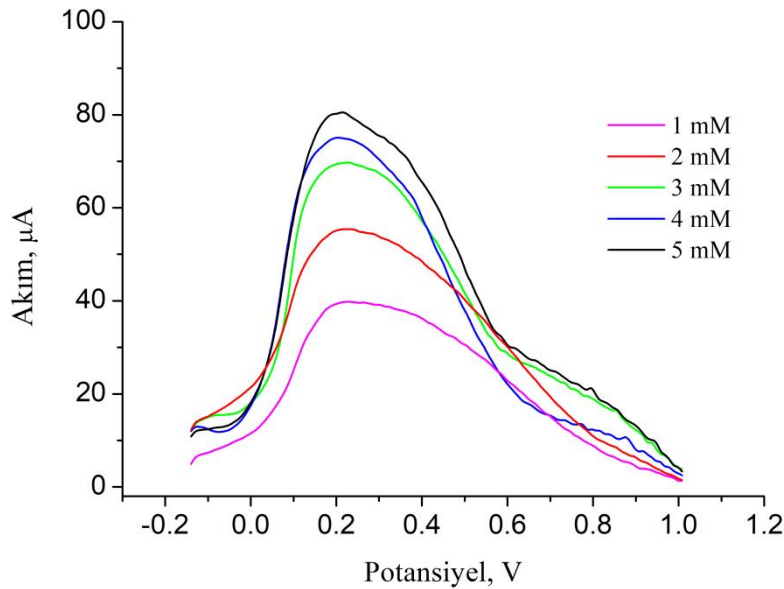
Tablo 4.1. Farklı konsantrasyon ve farklı boyutlardaki elektrotların  $R_{ct}$  değerleri

| Elektrotlar            | Büyük boy<br>GO<br>elektrot<br>$R_{ct}$ | Büyük boy<br><i>iGO</i><br>elektrot<br>$R_{ct}$ | Orta boy<br>GO<br>elektrot<br>$R_{ct}$ | Orta boy<br><i>iGO</i><br>elektrot<br>$R_{ct}$ | Küçük boy<br>GO<br>elektrot<br>$R_{ct}$ | Küçük boy<br><i>iGO</i><br>elektrot<br>$R_{ct}$ |
|------------------------|-----------------------------------------|-------------------------------------------------|----------------------------------------|------------------------------------------------|-----------------------------------------|-------------------------------------------------|
| 4 $\mu\text{g/mL GO}$  | 101                                     | 84,6                                            | 88,4                                   | 87,4                                           | 121                                     | 124                                             |
| 8 $\mu\text{g/mL GO}$  | 371                                     | 107                                             | 128                                    | 133                                            | 330                                     | 160                                             |
| 12 $\mu\text{g/mL GO}$ | 636                                     | 596                                             | 605                                    | 131                                            | 647                                     | 318                                             |
| 16 $\mu\text{g/mL GO}$ | 173                                     | 182                                             | 69,8                                   | <b>60,1</b>                                    | 691                                     | 689                                             |
| 20 $\mu\text{g/mL GO}$ | 124                                     | 212                                             | 110                                    | 165                                            | 133                                     | 129                                             |

Bu sonuçlardan da görüldüğü gibi Elektrokimyasal ölçümler sonucunda *GO* içeriği 16  $\mu\text{g/mL}$  solüsyonu ile hazırlanan elektrotların (*GO* miktarı/yüzey alanı: 76  $\mu\text{g/cm}^2$ ) en düşük direnç ( $R_{ct}$ ) değeri ile en iyi iletkenliği sağladığı gözlemlenmiştir.

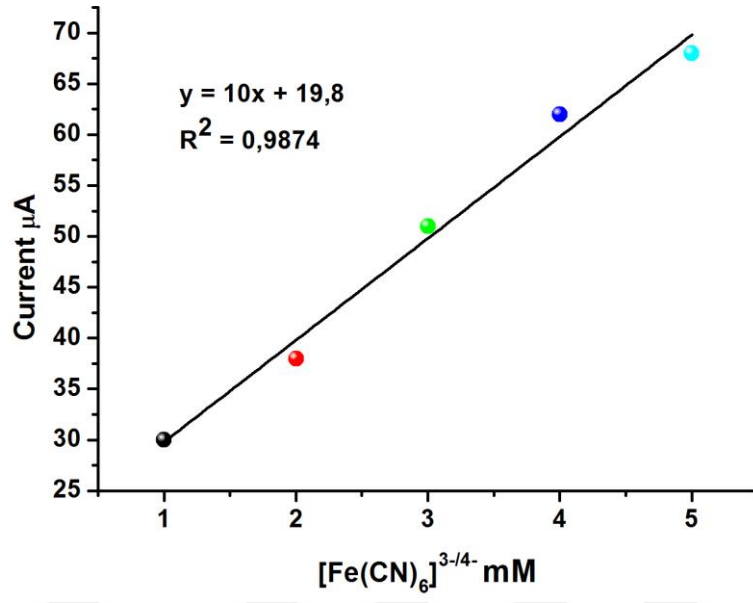
#### 4.7.2. Diferansiyel puls voltametrisi (DPV)

CV ve EIS ölçümlerine göre elektrokimyasal sistemler için en uygun elektrokimyasal davranışların 16  $\mu\text{g/mL}$  *GO* konsantrasyonuna ait orta boy *iGO* (76  $\mu\text{g/cm}^2$ ) elektrot ile elde edildiği tespit edilmiştir. Bu elektrot kullanılarak bir elektroaktif türün (redoks probunun) konsantrasyonu ile pik akımı arasındaki ilişkiyi incelemek için  $[\text{Fe}(\text{CN})_6]^{3-/4-}$  varlığında diferansiyel puls ölçümleri alınmıştır. Diferansiyel puls ölçümleri için farklı konsantrasyonlarda  $[\text{Fe}(\text{CN})_6]^{3-/4-}$  (1mM, 2mM, 3mM, 4mM, 5mM) kullanılmıştır ve anodik bölgede alınan ölçümler Şekil 4.28’de gösterilmiştir. Bu ölçümlere göre, konsantrasyon artışına bağlı olarak pik akımının da arttığı gözlemlenmiştir.



**Şekil 4.28.** 16  $\mu\text{g/mL}$  *GO* konsantrasyonuna ait orta boy *iGO* (*GO* miktarı/yüzey alanı: 76  $\mu\text{g/cm}^2$ ) elektrodun farklı konsantrasyondaki diferansiyel puls ölçümleri

Elde edilen diferansiyel puls voltamogramlarındaki pik akımlarının  $[\text{Fe}(\text{CN})_6]^{3-/4-}$  konsantrasyonuna karşı çizilen grafiğine göre lineer artış gösterdiği kalibrasyon grafiği Şekil 4.29’da gösterilmektedir.



Şekil 4.29.  $[\text{Fe}(\text{CN})_6]^{3-/4-}$  'nin lineer artan konsantrasyonu

DPV ile elde edilen bu sonuçlar, üretilen grafen esaslı desenlerin bir elektroaktif türün tayininde çalışma elektrotu olarak kullanılabileceğini göstermektedir.

## 5. SONUÇLAR VE ÖNERİLER

### 5.1. Sonuçlar

Bu tez çalışmasında nanobilim ve nanoteknolojinin parlayan yıldızı olan grafen nanomateriyalinin pratik ve ekonomik bir yöntem kullanılarak esnek ve şeffaf yüzeylere düzenli desenlenmesi gerçekleştirildi. Bu amaçla başlangıç maddesi olarak grafit kullanılarak Tour metodu ile grafen oksit (GO) sentezlendi, saflaştırıldı ve FT-IR, UV-Vis, Raman, XPS, AFM, SEM ve TEM metotları ile karakterizasyonu yapıldı. Elde edilen grafen oksitten desenlemeler için yeterli miktarda alınarak sıvı dispersiyon haline getirildi.

Transfer işlemi için elde edilen grafen oksitten belli miktarda alındı. Belli miktar alınırken GO çözeltisinin çok yoğun fazda olmamasına dikkat edildi. CorelDRAW çizim programı kullanılarak elektrokimyasal çalışmalar için uygun bir desen çizildi. Xerox katı mürekkep ofis yazıcısı ile çizilen desen membran yüzeyine açık tonlarda olacak şekilde yazdırıldı. Hazırlanan GO solüsyonu desenlenmiş membran yüzeyine vakum filtrasyonu ile filtre edildi. GO tabaka kalınlığının kontrolünü sağlayan bu sistem sonrasında, elde edilen desen katı yazdırma cihazı ile istenilen yüzeye transferi sağlandı. Diğer metotlara göre daha ekonomik, daha basit ve fizyolojik olarak daha kararlı olmasından dolayı bu metot seçilmiştir. İletkenlik kazandırmak/artırmak için transferi gerçekleştirilen elektrotların indirgenmesi gerçekleştirildi ve gümüş katısı ile temas sağlanarak ölçümler alındı. Elde edilen elektrotların indirgeme işleminin elektrokimyasal çalışmalar neticesinde iletkenliği arttırdığı gözlemlendi.

Gerçekleşen transfer işlemi sonrasında elektrotlar gümüş katısı ile temas sağlanarak elektrokimyasal ölçümler alındı. CV ve İmpedans ölçümleri sonucunda en iyi iletken elektrodun 16  $\mu\text{g/mL}$ 'lik GO süspansiyonu ile hazırlanan orta boy iGO elektrot ( $\text{GO miktarı/yüzey alanı: } 76 \mu\text{g/cm}^2$ ) olduğuna karar verildi ve diferansiyel puls ölçümünü bu elektrot üzerinde yapıldı, ve elektrokimyasal olarak uygun sonuçlar elde edilmiştir.

### 5.2. Öneriler

Bu tez kapsamındaki çalışmalardaki transfer işleminde wax printing yazıcı kullanıldı. Bu yazıcıyı kullanırken membran, A4 boyutundaki kağıda dikkatlice çıkarılabilir bant kullanılarak yapıştırılmalıdır. Desenlemenin daha güzel elde edilmesi

için yazıcıda katı mürekkep miktarı yeterli düzeyde olmalıdır. Filtrasyon sırasında filtre işlemi 30 dakikadan daha uzun veya 20 dakikadan daha kısa olmamasına dikkat edilmeli ve membran tamamen kuru halde olmamalıdır. Aksi takdirde uygun nitelikte homojen bir desenleme elde edilmemektedir. Dikkat edilmesi gereken başka bir nokta ise filtrasyon işlemi yapıldıktan sonra GO'nun miktarının fazla olması asetat kağıdına yazdırılması esnasında taşma sorununa sebep olmaktadır ve iyi bir desenleme gerçekleşmemektedir.

İndirgeme işlemi yaparken elektrotlar *L*-askorbik asit çözeltisine dikkatlice koyulmalıdır. Karıştırma 300 rpm değerini geçmemeli ve sürekli karışma işleminin devam edip etmediği kontrol edilmelidir.

Ölçümler alınırken dikkat edilmesi gereken birkaç önemli noktayı ele alırsak; üç elektrotlu sistem de elektrotlar birbirine yakın konumda olmalıdır. Elektrotların çözelti içerisinde olduğundan emin olunmalı ve kontak (değme) noktaları kontrol edilmelidir. Ölçüm bitiminde elektrokimyasal hücre ve elektrotların temizliğine önem gösterilmelidir.

Elde edilen grafen esaslı elektrot üç elektrotlu sistemlerde çalışma elektrodu olarak sensörlerde (kimyasal sensörler, biyosensörler, immünosensörler), ince, şeffaf, düz ve yer kaplamayan bir elektrot olduğundan dolayı mikro akışkan sistemlerde, mikroçiplerde kullanılabilme potansiyelinin olduğu kanaatindeyiz.

## KAYNAKLAR

- Ak, N., 2009. Nanoteknoloji eğitiminin lise düzeyine uyarlanması. Yüksek Lisans Tezi, Gazi Üniversitesi, Eğitim Bilimleri Enstitüsü, Ankara.
- Allen, M., Tung, V.C., Kaner, R.B., 2009. Honeycomb carbon : A review graphene. J. Am. Chem. Soc. 110, 132–145.
- Anonim, 2019a. Nanoteknolojinin tarihi.(<https://nano.aku.edu.tr/2016/05/12/nano-4/>), (Ziyaret Tarihi : 23.9.19).
- Anonim, 2019b. Biomimicry design : Inspired by nature : Lotus leaves inspire selfcleaningsuperhydrophobicsurfaces.(<http://bioimicryreport.blogspot.com/2014/02/lotus-leaves-inspire-self-cleaning.html>), (Ziyaret Tarihi 9.8.19).
- Anonim, 2019c. Grafit Tozu |asalmetal.com.(<http://www.asalmetal.com/Urun/grafit-tozu-58-20>), (Ziyaret Tarihi : 5.2.19).
- Anonim, 2019d. The graphene flagship announces its 2019-2030 graphene application roadmap|Graphene-Info.(<https://www.graphene-info.com/graphene-flagship-announces-its-2019-2030-graphene-application-roadmap>), (Ziyaret Tarihi: 5.2.19).
- Anonim, 2019e.Geleceğeyön veren malzeme &quot;Grafen&quot;. (<https://malzemebilimi.net/gelecege-yon-veren-malzeme-grafen.html>), (Ziyaret Tarihi : 4.3.19).
- Anonim, 2019f. Geleceğe yön verecek süper malzeme: Grafen | Bilim Ve Tekno. (<https://www.bilimvetekno.com/gelecege-yon-verecek-super-malzeme-grafen/>), (Ziyaret Tarihi : 4.5.19).
- Anonim, 2019g. Graphene-based wearables for health monitoring, food inspection and night vision -- ScienceDaily. (Ziyaret Tarihi : 5.3.2019).
- Anonim, 2019h. Kolin'in önemi. (<https://www.emaze.com/@AFRILFQC/KOLIN'IN-ÖNEMİ>), (Ziyaret Tarihi : 19.4.19).
- Anonim,2019i.Elektrotlar|ReferansKimya. (<http://www.referanskimya.com/ws.php?id=ec,04,0028>), (Ziyaret Tarihi : 2.5.19).
- Ateş, İ., 2015. Ortaöğretim kimya eğitiminde nanobilim ve nanoteknolojinin yeri. Yüksek Lisans Tezi, Marmara Üniversitesi, Eğitim Bilimleri Enstitüsü, İstanbul.
- Baptista-Pires, L., Mayorga-Martínez, C.C., Medina-Sánchez, M., Montón, H., Merkoçi, A., 2016. Water activated graphene oxide transfer using wax printed membranes for fast patterning of a touch sensitive device. ACS Nano 10, 853–860.

- Bhushan, B., 2010. Handbook of nanotechnology. Springer.
- Bingöl, H., 2007. Bazı geçiş metal iyonlarının sıvı/sıvı arayüzden tiyosemikarbazon yardımcı transferlerinin voltametrik metotla incelenmesi. Doktora Tezi, Selçuk Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Konya.
- Chan, K.F., Lim, H.N., Shams, N., Jayabal, S., Pandikumar, A., Huang, N.M., 2016. Fabrication of graphene/gold-modified screen-printed electrode for detection of carcinoembryonic antigen. Mater. Sci. Eng. C 58, 666–674.
- Chen, D., Zhang, H., Liu, Y., Li, J., 2013. Graphene and its derivatives for the development of solar cells, photoelectrochemical, and photocatalytic applications. Energy Environ. Sci. 6, 1362.
- Chen, J.-L., Yan, X.-P., Meng, K., Wang, S.-F., 2011. Graphene oxide based photoinduced charge transfer label-free near-infrared fluorescent biosensor for dopamine. anal. chem. 83, 8787–8793.
- Chen, Y., Zhang, B., Liu, G., Zhuang, X., Kang, E.-T., 2012. Graphene and its derivatives: Switching on and off. Chem. Soc. Rev. 41, 4688.
- Çiftçi, C., Eymirli, E.B., Çakal, M.A., 2016. TRA1 bölgesi linyit ve oltu taşı madenlerinin grafen hammaddesi olarak kullanımına yönelik analiz çalışması. T.C. Kuzeydoğu Anadolu Kalkınma Ajansı.
- Dağcı, K., 2015. Poli (pyronin y )ince filmlerinin vemüstakıl grafen /poli (pyronin y )/ gümüşnanopartikül elektrotların hazırlanması ,karakterizasyonu ve nitritin amperometrik tayininde kullanılması. Doktora Tezi, Atatürk Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Erzurum.
- Desmond, J., 2016. Grafenin tarihçesi. 2014/15 2016.
- Dreyer, D.R., Park, S., Bielawski, C.W., Ruoff, R.S., 2010. The chemistry of graphene oxide. Chem. Soc. Rev. 39, 228–240.
- Ekli, E., 2010. İlköğretim ikinci kademe öğrencilerinin nanoteknoloji hakkındaki temel bilgi ve görüşleri ile teknolojiye yönelik tutumlarının bazı değişkenler açısından araştırılması. Yüksek Lisans Tezi, Muğla Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Muğla.
- Ferrari, A.C., Bonaccorso, F., Fal'ko, V., Novoselov, K.S., Roche, S., Bøggild, P., Borini, S., Koppens, F.H.L., Palermo, V., Pugno, N., Garrido, J.A., Sordan, R., Bianco, A., Ballerini, L., Prato, M., Lidorikis, E., Kivioja, J., Marinelli, C., Ryhänen, T., Morpurgo, A., Coleman, J.N., Nicolosi, V., Colombo, L., Fert, A., Garcia-Hernandez, M., Bachtold, A., Schneider, G.F., Guinea, F., Dekker, C., Barbone, M., Sun, Z., Galiotis, C., Grigorenko, A.N., Konstantatos, G., Kis, A., Katsnelson, M., Vandersypen, L., Loiseau, A., Morandi, V., Neumaier, D., Treossi, E., Pellegrini, V., Polini, M., Tredicucci, A., Williams, G.M., Hee Hong, B., Ahn, J.-H., Min Kim, J., Zirath, H., van Wees, B.J., van der Zant, H.,



- Occhipinti, L., Di Matteo, A., Kinloch, I.A., Seyller, T., Quesnel, E., Feng, X., Teo, K., Rupesinghe, N., Hakonen, P., Neil, S.R.T., Tannock, Q., Löfwander, T., Kinaret, J., 2015. Science and technology roadmap for graphene, related two-dimensional crystals, and hybrid systems. *Nanoscale* 7, 4598–4810.
- Gao, L., Ni, G.-X., Liu, Y., Liu, B., Castro Neto, A.H., Loh, K.P., 2014. Face-to-face transfer of wafer-scale graphene films. *Nature* 505, 190–194.
- Geim, A.K., 2011. Random walk to graphene (Nobel Lecture). *Angew. Chemie Int. Ed.* 50, 6966–6985.
- Güler, P., 2018. Diferansiyel puls voltametrisi (DPV). (<https://prezi.com/co-hcpdkzydu/copy-of-diferansiyel-puls-voltametrisi-dpv/>), (Ziyaret Tarihi: 5.1.2019)
- Gürmen, S., Ebin, B., 2010. Nanopartiküller ve üretim yöntemleri. *TMMOB Met. Mühendisleri Odası* 31–38.
- Huang, L., Huang, Y., Liang, J., Wan, X., Chen, Y., 2011. Graphene-based conducting inks for direct inkjet printing of flexible conductive patterns and their applications in electric circuits and chemical sensors. *Nano Res.* 4, 675–684.
- Hyun, W.J., Park, O.O., Chin, B.D., 2013. Foldable graphene electronic circuits based on paper substrates. *Adv. Mater.* 25, 4729–4734.
- Kratzer, M., Bayer, B.C., Kidambi, P.R., Matković, A., Gajić, R., Cabrero-Vilatela, A., Weatherup, R.S., Hofmann, S., Teichert, C., 2015. Effects of polymethylmethacrylate-transfer residues on the growth of organic semiconductor molecules on chemical vapor deposited graphene. *Appl. Phys. Lett.* 106, 103101.
- Kumar, N.A., Choi, H.-J., Shin, Y.R., Chang, D.W., Dai, L., Baek, J.-B., 2012. Polyaniline-grafted reduced graphene oxide for efficient electrochemical supercapacitors. *ACS Nano* 6, 1715–1723.
- Lee, Y., Bae, S., Jang, H., Jang, S., Zhu, S.-E., Sim, S.H., Song, Y. Il, Hong, B.H., Ahn, J.-H., 2010. Wafer-scale synthesis and transfer of graphene films. *Nano Lett.* 10, 490–493.
- Liu, Z., Parvez, K., Li, R., Dong, R., Feng, X., Müllen, K., 2015. Transparent conductive electrodes from graphene/PEDOT:PSS hybrid inks for ultrathin organic photodetectors. *Adv. Mater.* 27, 669–675.
- Malzahn, K., Windmiller, J.R., Valdés-Ramírez, G., Schöning, M.J., Wang, J., 2011. Wearable electrochemical sensors for in situ analysis in marine environments. *Analyst* 136, 2912.
- Marcano, D.C., Kosynkin, D. V., Berlin, J.M., Sinitskii, A., Sun, Z., Slesarev, A.S., Alemany, L.B., Lu, W., Tour, J.M., 2018. Correction to m synthesis of graphene oxide. *ACS Nano* 12, 2078–2078.

- Morales-Narváez, E., Hassan, A.-R., Merkoçi, A., 2013. Graphene oxide as a pathogen-revealing agent: Sensing with a digital-like response. *Angew. Chemie Int. Ed.* 52, 13779–13783.
- Nanoteknolojinin tarihi, 2019.( <https://nano.aku.edu.tr/2016/05/12/nano-4/>), (Ziyaret Tarihi : 23.9.19).
- Nouailhat, A., 2006. An introduction to nanoscience and nanotechnology. British library, Fransa.
- Oren, S., Ceylan, H., Schnable, P.S., Dong, L., 2017. High-resolution patterning and transferring of graphene-based nanomaterials onto tape toward roll-to-roll production of tape-based wearable sensors. *Adv. Mater. Technol.* 2, 1–14.
- Özgen, E., 2018. Bazı hıv ilaçlarının etken maddelerinin voltametrik yöntemlerle belirlenmesi. Yüksek Lisans Tezi, Dicle Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Diyarbakır.
- Öztekin, Y., 2008. Camsı karbon elektrot yüzeyine çeşitli fenantrolin türevlerinin modifikasyonu, yüzey karakterizasyonu, elektrokimyasal ve spektroskopik özelliklerinin incelenmesi. Doktora Tezi, Selçuk Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Konya.
- Öztürk, A., 2015. İki elektrotlu hücrelerde grafen/sds süspansiyonlarının hazırlanması, karakterizasyonu ve grafen ince filmlerinin elektrokatalitik uygulamaları. Yüksek Lisans Tezi, Atatürk Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Erzurum.
- Ramsden, J., 2009. Applied nanotechnology : the conversion of research results to products. William Andrew Publishing, Oxford.
- Robinson, J.T., Perkins, F.K., Snow, E.S., Wei, Z., Sheehan, P.E., 2008. Reduced graphene oxide molecular sensors. *Nano Lett.* 8, 3137–3140.
- Sağlam, M.E., 2017. Suda çözünebilen kuantum noktaların sentezi ve sensör uygulamaları. Yüksek Lisans Tezi, Necmettin Erbakan Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Konya.
- Sağlam, N., Emül, E., 2016. Bilimlerin buluşma noktası : Nanoteknolojiye kısa bir bakış. *Yeni Türkiye Dergisi* 88, 1–4.
- Schröter, A., Walther, A., Fritzsche, K., Kothe, J., Rösen-wolff, A., 2012. Infection monitoring in wounds. *SciVerse Sci.* 6, 175–183.
- Şenel Zor, T., 2017. Etkinlik temelli ve nanoteknoloji eğitiminin fen bilimleri öğretmen adaylarının nanobilim ve nanoteknoloji farkındalıklarına ve kavramsal anlayışlarına etkisi. Yüksek Lisans Tezi, Necmettin Erbakan Üniversitesi, Eğitim Bilimleri Enstitüsü, Konya.
- Skoog, D., Holler, F.J., Nieman, T.A., 2004. Analytical instrumentation handbook - google kitaplar.

- Soganci, T., Ayranci, R., Harputlu, E., Ocakoglu, K., Acet, M., Farle, M., Unlu, C.G., Ak, M., 2018. An effective non-enzymatic biosensor platform based on copper nanoparticles decorated by sputtering on CVD graphene. *Sensors Actuators, B Chem.* 273, 1501–1507.
- Süzer, Ş., 2006. Ulusal Nanoteknoloji Araştırma Merkezi (UNAM): Nanobilim ve nanoteknolojide Türkiye'nin bir mükemmeliyet merkezi. *Bilim ve Teknik Dergisi* 5–7.
- Torrisi, F., Hasan, T., Wu, W., Sun, Z., Lombardo, A., Kulmala, T.S., Hsieh, G.W., Jung, S., Bonaccorso, F., Paul, P.J., Chu, D., Ferrari, A.C., 2012. Inkjet-printed graphene electronics. *ACS Nano* 6, 2992–3006.
- Travlou, N.A., Kyzas, G.Z., Lazaridis, N.K., Deliyanni, E.A., 2013. Functionalization of graphite oxide with magnetic chitosan for the preparation of a nanocomposite dye adsorbent. *Langmuir* 29, 1657–1668.
- TUBITAK, 2004. Ulusal bilim ve teknoloji politikaları-vizyon 2023 strateji belgesi (Versiyon19). ([http://www.emo.org.tr/ekler/118806694c9d9b1\\_ek.pdf?tipi=38&turu=X&sube](http://www.emo.org.tr/ekler/118806694c9d9b1_ek.pdf?tipi=38&turu=X&sube)), (Ziyaret Tarihi : 2.12.2018)
- Tunç, S., 2017. DNA hasarı tayini için grafene dayalı elektrokimyasal biyosensörlerin hazırlanması. Yüksek Lisans Tezi, Ordu Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Ordu.
- Yeşiltepe, D., Koç, İ., Gürmen, S., 2016. Ultrasonik spreysel piroliz tekniği : NiO / ZnO ve Ni / ZnO nanokompozit partiküllerinin üretilmesi 26–31.
- Zor, E., 2016. Grafen tabanlı modifiye elektrotların kiral yapıları ayırt etme özelliklerinin incelenmesi. Doktora Tezi, Selçuk Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Konya.
- Zor, E., 2012. Bazı azokaliksaren türevlerinin metal iyonlarına karşı göstermiş oldukları kromojenik kemosensör özelliklerinin spektrofotometrik ve voltametrik metotlarla incelenmesi. Yüksek Lisans Tezi, Selçuk Üniversitesi, Eğitim Bilimleri Enstitüsü, Konya.

## ÖZGEÇMİŞ

### KİŞİSEL BİLGİLER

**Adı Soyadı** : Kübra SOĞANCI  
**Uyruğu** : T.C.  
**Doğum Yeri ve Tarihi** : Meram, 1992  
**Telefon** : 05535943341  
**Faks** :  
**e-mail** : kbra92sgnc@gmail.com

### EĞİTİM

| Derece        | Adı, İlçe, İl                                  | Bitirme Yılı |
|---------------|------------------------------------------------|--------------|
| Lise          | : Meram 75.Yıl Lisesi, Meram Konya             | 2010         |
| Üniversite    | : Necmettin Erbakan Üniversitesi, Meram, Konya | 2014         |
| Yüksek Lisans | : Necmettin Erbakan Üniversitesi, Meram, Konya | Devam Ediyor |
| Doktora       | :                                              |              |

### İŞ DENEYİMLERİ

| Yıl       | Kurum                              | Görevi                  |
|-----------|------------------------------------|-------------------------|
| 2016-2017 | Konya Derbent Ortaokulu            | Fen Bilimleri Öğretmeni |
| 2016-2017 | Konya Derbent Çiftliközü Ortaokulu | Fen Bilimleri Öğretmeni |

### UZMANLIK ALANI

Fen Bilimleri, Grafen, Grafen Esaslı Şeffaf Elektrot Üretimi

### YABANCI DİLLER

İngilizce (Orta Düzey)

### YAYINLAR

*Ulusal ve Uluslararası yapılan bilimsel toplantılarda sunulan bildirileri*

*Poster olarak sunulan ve özeti yayınlanan bildirileri*

Kübra Soğancı, Haluk Bingöl, Erhan Zor, Preparation and Electrochemical Characterization of Graphene-Based Conductive Patterns, 15th Nanoscience and Nanotechnology Conference of Turkey (NanoTR15) November 3-6, 2019, Antalya, Turkey.