



**T.C.  
AKSARAY ÜNİVERSİTESİ  
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ**

**NANOTEKNOLOJİ ANABİLİM DALI**

**ELEKTROKATALİTİK HİDROJEN ÜRETİMİNDE  
g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>/Ni NANOKOMPOZİT YAPISININ  
AKTİFLİĞİNİN İNCELENMESİ**

**YÜKSEK LİSANS TEZİ**

**Pelin BOZKURT**

**DANIŞMAN**

**Prof. Dr. Didem BALUN KAYAN**

**AKSARAY, 2023**

Aksaray Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü'nün 202358406 numaralı Yüksek Lisans öğrencisi Pelin BOZKURT tarafından hazırlanan “**ELEKTROKATALİTİK HİDROJEN ÜRETİMİNDE g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>/Ni NANOKOMPOZİT YAPISININ AKTİFLİĞİNİN İNCELENMESİ**” adlı tez çalışması aşağıdaki jüri tarafından OY BİRLİĞİ/OY ÇOKLUĞU ile Nanoteknoloji Anabilim Dalında YÜKSEK LİSANS TEZİ olarak kabul edilmiştir.

**Danışman: Prof. Dr. Didem BALUN KAYAN**

Aksaray Üniversitesi

Bu tezin, kapsam ve kalite olarak Yüksek Lisans Tezi olduğunu onaylıyorum/onaylamıyorum.....

**Üye: Prof. Dr. Hacı ÖZİŞİK**

Aksaray Üniversitesi

Bu tezin, kapsam ve kalite olarak Yüksek Lisans Tezi olduğunu onaylıyorum/onaylamıyorum.....

**Üye: Doç. Dr. Ersan TURUNÇ**

Mersin Üniversitesi

Bu tezin, kapsam ve kalite olarak Yüksek Lisans Tezi olduğunu onaylıyorum/onaylamıyorum.....

Tez Savunma Tarihi: 27/07/2023

Jüri tarafından kabul edilen bu tezin Yüksek Lisans Tezi olması için gerekli şartları yerine getirdiğini onaylıyorum.

.....

Prof. Dr. Mehmet Ali HINIS

Fen Bilimleri Enstitüsü Müdürü

## DOĞRULUK BEYANI

Yüksek lisans tezi olarak sunduğum bu çalışmayı, akademik kurallara ve bilimsel etik, ahlak ve geleneklere aykırı düşecek bir yol ve yardıma başvurmaksızın yazdığımı, yararlandığım eserlerin kaynakçada gösterilenlerden oluştuğunu, çalışmamda kullandığım verilerin orijinalliğini ve her türlü intihalden uzak olduğunu beyan ederim.

Enstitü tarafından belli bir zamana bağlı olmaksızın, tezimle ilgili yaptığım bu beyana aykırı bir durumun saptanması durumunda, ortaya çıkacak tüm ahlaki ve hukuki sonuçlara katlanacağımı bildiririm.

**Pelin BOZKURT**

## TEŞEKKÜR

Yüksek lisans tez çalışmamın her aşamasında ve her ihtiyaç duyduğumda destek ve yönlendirmesini gördüğüm, lisansüstü eğitimimde yoluma ışık tutan hiçbir koşulda benden yardımlarını ve tecrübelerini esirgemeyen, mütevaziliği ve hoşgörüsüyle motivasyon sağlayan değerli danışman hocam Sayın Prof. Dr. Didem BALUN KAYAN'a katkısından dolayı sonsuz teşekkür ederim.

Bu süreçte gerek laboratuvar çalışmalarına sağlamış olduğu katkı için gerekse bilgi ve tecrübeleri ile verdiği destek için saygıdeğer hocam Doç. Dr. Talat BARAN'a çok teşekkür ederim.

Her konuda en büyük destekçim olan ve varlıklarıyla hayatımı anlamlandıran sevgili aileme çok teşekkür ederim.

Hem bu süreçte hem de yaşamımın her alanında tüm varlığıyla yanımda olan, yaşam yolculuğumdaki en büyük şansım ve mucizem, desteğini ve sevgisini her an hissettiğim, hayat arkadaşım, biricik eşim Ali BOZKURT'a varlığı ve göstermiş olduğu tüm yardımseverlikleri adına çok teşekkür ederim.

Pelin BOZKURT  
AKSARAY, 2023

## İÇİNDEKİLER

|                                                                                       |      |
|---------------------------------------------------------------------------------------|------|
| TEŞEKKÜR .....                                                                        | i    |
| İÇİNDEKİLER .....                                                                     | ii   |
| ÖZET.....                                                                             | iv   |
| ABSTRACT .....                                                                        | v    |
| ŞEKİLLER DİZİNİ .....                                                                 | vi   |
| ÇİZELGELER DİZİNİ .....                                                               | vii  |
| SİMGELER VE KISALTMALAR .....                                                         | viii |
| 1. GİRİŞ .....                                                                        | 1    |
| 2. KAYNAK ÖZETLERİ .....                                                              | 3    |
| 2.1 Enerji .....                                                                      | 3    |
| 2.2 Enerji Kaynakları .....                                                           | 3    |
| 2.2.1 Yenilenemez (Tükenir) enerji kaynakları .....                                   | 5    |
| 2.2.2 Yenilenebilir (Tükenmez) enerji kaynakları.....                                 | 5    |
| 2.3 Hidrojen Gazı .....                                                               | 7    |
| 2.3.1 Hidrojen gazının fiziksel özellikleri .....                                     | 7    |
| 2.3.2 Hidrojen gazının kimyasal özellikleri.....                                      | 8    |
| 2.4 Hidrojenin Tarihsel Gelişimi .....                                                | 8    |
| 2.5 Hidrojen Enerjisi .....                                                           | 9    |
| 2.5.1 Hidrojen enerjisi kullanımının avantajları .....                                | 11   |
| 2.5.2 Hidrojen enerjisi kullanımının dezavantajları .....                             | 12   |
| 2.5.3 Hidrojenin kullanım alanları.....                                               | 13   |
| 2.6 Hidrojenin Üretim Yöntemleri .....                                                | 14   |
| 2.6.1 Tükenmez (Yenilenebilir) enerji kaynaklarından hidrojen üretim yöntemleri ..... | 14   |
| 2.6.1.1 Biyokütle enerjisi ile hidrojen üretimi .....                                 | 14   |
| 2.6.1.2 Fotoelektrokimyasal yöntemler .....                                           | 18   |
| 2.6.2 Fosil yakıtlar kullanılarak hidrojen üretimi .....                              | 22   |
| 2.6.2.1 Kömürün gazlaştırılması ile hidrojen üretimi .....                            | 23   |
| 2.6.2.2 Buhar re-forming yöntemi ile hidrojen üretimi .....                           | 23   |
| 2.6.2.3 Kvaerner yöntemi (termal parçalama) ile hidrojen üretimi .....                | 23   |
| 2.7 Sudan Hidrojen Üretimi .....                                                      | 24   |
| 2.7.1 Elektroliz .....                                                                | 24   |
| 2.7.2 Elektrokimyasal hücre .....                                                     | 25   |
| 2.7.2.1 Referans elektrotlar .....                                                    | 26   |
| 2.7.2.2 Karşı elektrotlar .....                                                       | 26   |
| 2.7.2.3 Çalışma elektrodu .....                                                       | 26   |
| 2.8 Elektroanalitik Yöntemler ve Sınıflandırılması .....                              | 26   |
| 2.8.1 Döngüsel voltametri (CV) .....                                                  | 27   |
| 2.8.1.1 Voltametrde kullanılan elektrot türleri .....                                 | 29   |
| 2.8.2 Kronoamperometri (CA) yöntemi .....                                             | 32   |
| 2.8.3 Tafel polarizasyon eğrileri.....                                                | 34   |
| 2.8.4 Elektrokimyasal impedans spektroskopisi (EIS).....                              | 36   |
| 2.9 Nanomalzemeler ve Özellikleri.....                                                | 38   |
| 2.10 Grafitik Karbon Nitrür (g-C <sub>3</sub> N <sub>4</sub> ) ve Özellikleri .....   | 40   |
| 2.11 Nikel Ferrit (NiFe <sub>2</sub> O <sub>4</sub> ) ve Özellikleri .....            | 42   |
| 2.12 Nikel ferrit sentezinde kullanılan yöntemler .....                               | 43   |
| 3.MALZEME VE YÖNTEM .....                                                             | 44   |
| 3.1 Çalışmada Kullanılan Kimyasallar.....                                             | 44   |

|                                                                                                                                                                                                                                                    |           |
|----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------|
| 3.2 Kullanılan Malzemeler .....                                                                                                                                                                                                                    | 44        |
| 3.2.1.Elektrokimyasal hücre .....                                                                                                                                                                                                                  | 44        |
| 3.2.2 Elektrotlar .....                                                                                                                                                                                                                            | 45        |
| 3.2.3 KGE/g-C <sub>3</sub> N <sub>4</sub> /NiFe <sub>2</sub> O <sub>4</sub> modifiye elektrodun hazırlanması .....                                                                                                                                 | 45        |
| 3.2.4 KGE/g-C <sub>3</sub> N <sub>4</sub> /NiFe <sub>2</sub> O <sub>4</sub> /Ni modifiye elektrodun hazırlanması.....                                                                                                                              | 45        |
| 3.3 Ölçümlerde Kullanılan Cihazlar.....                                                                                                                                                                                                            | 46        |
| 3.3.1 Elektrokimyasal çalışma ünitesi .....                                                                                                                                                                                                        | 46        |
| 3.3.2 Taramalı elektron mikroskobu.....                                                                                                                                                                                                            | 46        |
| 3.3.3 Ultrasonik karıştırıcı .....                                                                                                                                                                                                                 | 46        |
| 3.4 Yöntem .....                                                                                                                                                                                                                                   | 46        |
| 3.4.1 Nikel ferrit (NiFe <sub>2</sub> O <sub>4</sub> ) ve grafitik karbon nitrür (g-C <sub>3</sub> N <sub>4</sub> ) yapılarının sentezi ve g-C <sub>3</sub> N <sub>4</sub> /NiFe <sub>2</sub> O <sub>4</sub> kompozit yapısının oluşturulması..... | 46        |
| 3.4.2 Grafitik karbon nitrür-nikel ferrit çözeltisinin hazırlanması .....                                                                                                                                                                          | 47        |
| 3.4.3 Grafitik karbon nitrür-nikel ferrit süspansiyonunun kalem grafit elektroda uygulanması .....                                                                                                                                                 | 47        |
| 3.4.4 g-C <sub>3</sub> N <sub>4</sub> /NiFe <sub>2</sub> O <sub>4</sub> /Ni modifiye elektrodunun hazırlanması.....                                                                                                                                | 47        |
| <b>4. ARAŞTIRMA BULGULARI VE TARTIŞMA.....</b>                                                                                                                                                                                                     | <b>48</b> |
| 4.1 Elektrot Yüzeyinin Karakterizasyonu .....                                                                                                                                                                                                      | 48        |
| 4.2 Suyun Elektrolizi ile Hidrojen Oluşumunun İncelenmesi.....                                                                                                                                                                                     | 50        |
| 4.2.1 Döngüsel voltametri çalışmaları .....                                                                                                                                                                                                        | 50        |
| 4.2.2 Tafel polarizasyon eğrileri.....                                                                                                                                                                                                             | 52        |
| 4.2.3 Elektrokimyasal impedans spektroskopisi.....                                                                                                                                                                                                 | 54        |
| 4.2.4 Stabilitate çalışmaları .....                                                                                                                                                                                                                | 56        |
| <b>5. SONUÇ VE ÖNERİLER.....</b>                                                                                                                                                                                                                   | <b>58</b> |
| <b>KAYNAKLAR .....</b>                                                                                                                                                                                                                             | <b>60</b> |
| <b>ÖZGEÇMİŞ.....</b>                                                                                                                                                                                                                               | <b>68</b> |

## YÜKSEK LİSANS TEZİ

### ELEKTROKATALİTİK HİDROJEN ÜRETİMİNDE g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>/Ni NANOKOMPOZİT YAPISININ AKTİFLİĞİNİN İNCELENMESİ

Pelin BOZKURT

Aksaray Üniversitesi  
Fen Bilimleri Enstitüsü  
Nanoteknoloji Anabilim Dalı

Danışman: Prof. Dr. Didem BALUN KAYAN

#### ÖZET

Alternatif bir enerji kaynağı olarak sudan hidrojen üretimi temiz bir enerji kaynağı olarak kabul edilmektedir. Suyun elektrolizi ile hidrojen üretimi yoğun olarak çalışılan bir araştırma konusudur. Literatürde bu konuda birçok çalışma olmasına rağmen; aktif, kararlı ve ekonomik elektrokatalizörlerin geliştirilmesi için yoğun araştırmalar devam etmektedir.

Bu çalışmada, hidrojen üretimi ile ilgili önceki çalışmalar göz önünde bulundurularak, suyun elektrolizinden hidrojen elde etmek için elektroliz sisteminde gerekli olan aşırı potansiyeli azaltarak hidrojen oluşumunda katalitik aktivitesi yüksek, ekonomik ve kararlı yeni bir elektrokatalizör geliştirilmesi amaçlanmaktadır. Bu nedenle, uygun maliyetli ve katalitik bir aktif malzeme olarak grafit karbon nitrür (g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>)/nikel ferrit (NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>)/Ni nanokompozit yapısı ile modifiye edilmiş kalem grafit elektrot geliştirilmiştir. Böylece yüzey alanı yüksek, sentezlenmesi kolay ve yüzeyinde çok sayıda fonksiyonel grup bulunan bir elektrot hazırlanması sağlanmıştır.

İlk olarak, g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> kompozit yapısının katalitik aktivitesi, döngüsel voltametri (CV), Tafel polarizasyon eğrileri ve elektrokimyasal impedans spektroskopisi (EIS) gibi çeşitli elektrokimyasal yöntemlerle hidrojen oluşum reaksiyonu için incelenmiştir. Daha sonra Ni nanoparçacıkları ile modifiye edilen yüzey, aynı elektrokimyasal yöntemlerle test edilmiş, hazırlanan elektrokatalizörün performansı değerlendirilmiştir. Ayrıca kronoamperometri yöntemiyle stabilite çalışmaları gerçekleştirilmiş ve tüm yüzeylerin yapısal özellikleri taramalı elektron mikroskobu ve enerji dağılımlı X-Ray spektroskopisi tekniği ile incelenmiştir.

**Anahtar Kelimeler:** Hidrojen Üretimi, Grafitik Karbon Nitrür, Nikel Ferrit, Nanokompozit.

Temmuz, 2023; 68 sayfa

## **M.Sc. THESIS**

# **INVESTIGATION OF THE ACTIVITY OF g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>/Ni NANOCOMPOSITE STRÜKTÜRE IN ELECTROCATALYTIC HYDROGEN PRODUCTION**

**Pelin BOZKURT**

**Aksaray University  
Graduate School of Natural and Applied Sciences  
Department of Nanotechnology**

**Supervisor: Prof. Dr. Didem BALUN KAYAN**

## **ABSTRACT**

Hydrogen production from water as an alternative energy source is considered a clean energy resource. Hydrogen generation by the electrolysis of water is an intensely studied research topic. Although there are many studies in the literature on this subject; intensive research is still being carried out for the development of active, stable and economical electrocatalysts.

In this study, considering previous studies on hydrogen production from water electrolysis, it is aimed to develop a new, economical and stable electrocatalyst with high catalytic activity in order to increase the hydrogen gas evolution reaction by reducing the required overpotential in the electrolysis system. Therefore, a pencil graphite electrode modified with graphitic carbon nitride (g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>)/nickel ferrite (NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>)/Ni nanocomposite structure as a cost-effective and catalytic active material. Thus, an electrode with a high surface area, easy to synthesize, and a large number of functional groups on the surface was prepared.

First, the catalytic activity of the g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> composite structure were investigated for the hydrogen evolution reaction by various electrochemical methods such as cyclic voltammetry (CV), Tafel polarization curves and electrochemical impedance spectroscopy (EIS). Then the surface modified by Ni nanoparticles and performance of the as-prepared electrocatalyst tested by the same electrochemical methods. Further, the stability studies were performed by chronoamperometry and the structural properties of the all surfaces were investigated by scanning electron microscopy and energy dispersive X-Ray spectroscopy technique.

**Keywords:** Hydrogen Production, Graphitic Carbon Nitride, Nickel Ferrite, Nanocomposite.

**July, 2023; 68 pages**



## ŞEKİLLER DİZİNİ

|                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                      |    |
|------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|----|
| Şekil 2.1. Hidrojen enerji sisteminin şematik gösterimi. ....                                                                                                                                                                                                                                                                                        | 10 |
| Şekil 2.2. Direkt biyofotoliz işlemi.....                                                                                                                                                                                                                                                                                                            | 15 |
| Şekil 2.3. Dolaylı biyofotoliz ile hidrojen üretim aşamaları .....                                                                                                                                                                                                                                                                                   | 16 |
| Şekil 2.4. Karanlık fermantasyon yöntemi ile hidrojen üretimi.....                                                                                                                                                                                                                                                                                   | 17 |
| Şekil 2.5. Fotofermantasyon yöntemi ile hidrojen üretimi .....                                                                                                                                                                                                                                                                                       | 18 |
| Şekil 2.6. Güneş-hidrojen üretim sistemleri .....                                                                                                                                                                                                                                                                                                    | 19 |
| Şekil 2.7. Fotovoltaik sistemle(elektroliz) hidrojen üretimi .....                                                                                                                                                                                                                                                                                   | 20 |
| Şekil 2.8. Fotosentez ve yapay fotosentez reaksiyonu gösterimi .....                                                                                                                                                                                                                                                                                 | 21 |
| Şekil 2.9. Fotokatalitik yöntemle suyun ayrıştırılması .....                                                                                                                                                                                                                                                                                         | 21 |
| Şekil 2.10. Elektrokimyasal hücre düzeneği.....                                                                                                                                                                                                                                                                                                      | 26 |
| Şekil 2.11. Elektroanalitik yöntemlerin sınıflandırılması .....                                                                                                                                                                                                                                                                                      | 27 |
| Şekil 2.12. Tersinir bir elektrot tepkimesinde elde edilmiş olan potansiyel-akım eğrileri . ....                                                                                                                                                                                                                                                     | 28 |
| Şekil 2.13. Döngüsel voltametri potansiyelin tarama hızı ile değişimi.....                                                                                                                                                                                                                                                                           | 29 |
| Şekil 2.14. Voltametrik çalışma elektrotlarının sınıflandırılması.....                                                                                                                                                                                                                                                                               | 30 |
| Şekil 2.15. a) CA yapılan çalışmalarda potansiyel-zaman dalga şekli b) Konsantrasyonun zamanla değişimi, c) Akımın zaman değişimi. ....                                                                                                                                                                                                              | 33 |
| Şekil 2.16. Tafel polarizasyon eğrileri yardımıyla korozyon akım ve potansiyel değerlerinin bulunması. ....                                                                                                                                                                                                                                          | 35 |
| Şekil 2.17. Nyquist diyagramı .....                                                                                                                                                                                                                                                                                                                  | 38 |
| Şekil 2.18. Nanomalzemelerin kullanım alanları.....                                                                                                                                                                                                                                                                                                  | 40 |
| Şekil 2.19. Grafitik karbon nitrür elde yöntemleri.....                                                                                                                                                                                                                                                                                              | 41 |
| Şekil 2.20. Grafitik karbon nitrürün özellikleri .....                                                                                                                                                                                                                                                                                               | 41 |
| Şekil 2.21. NiFe <sub>2</sub> O <sub>4</sub> yapısı .....                                                                                                                                                                                                                                                                                            | 42 |
| Şekil 3.1. Elektrokimyasal hücre standı.....                                                                                                                                                                                                                                                                                                         | 44 |
| Şekil 4.1. a) g-C <sub>3</sub> N <sub>4</sub> /NiFe <sub>2</sub> O <sub>4</sub> kompozit yapısının a) 20.000 büyütme oranında, b) 40.000 büyütme oranında SEM görüntüleri, g-C <sub>3</sub> N <sub>4</sub> /NiFe <sub>2</sub> O <sub>4</sub> /Ni nanokompozit yapısının c) 20.000 büyütme oranında, d) 40.000 büyütme oranında SEM görüntüleri. .... | 48 |
| Şekil 4.2. g-C <sub>3</sub> N <sub>4</sub> / NiFe <sub>2</sub> O <sub>4</sub> yapısının EDS analizi.....                                                                                                                                                                                                                                             | 49 |
| Şekil 4.3. g-C <sub>3</sub> N <sub>4</sub> /NiFe <sub>2</sub> O <sub>4</sub> /Ni yapısının EDS analizi .....                                                                                                                                                                                                                                         | 50 |
| Şekil 4.4. KGE, KGE/g-C <sub>3</sub> N <sub>4</sub> /NiFe <sub>2</sub> O <sub>4</sub> ve KGE/g-C <sub>3</sub> N <sub>4</sub> /NiFe <sub>2</sub> O <sub>4</sub> /Ni nanokompozit elektrotların 0,5 M H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> içerisinde kaydedilen dönüşümlü voltamogramları ( $v=10\text{mV.s}^{-1}$ ).....                                   | 51 |
| Şekil 4.5. 0,5 M H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> içerisinde ve 1 mV.s <sup>-1</sup> tarama hızında kaydedilen KGE, KGE/g-C <sub>3</sub> N <sub>4</sub> /NiFe <sub>2</sub> O <sub>4</sub> ve KGE/g-C <sub>3</sub> N <sub>4</sub> /NiFe <sub>2</sub> O <sub>4</sub> /Ni nanokompozit yapısının Tafel eğrileri.....                                      | 52 |
| Şekil 4.6. KGE, KGE/g-C <sub>3</sub> N <sub>4</sub> /NiFe <sub>2</sub> O <sub>4</sub> ve KGE/g-C <sub>3</sub> N <sub>4</sub> /NiFe <sub>2</sub> O <sub>4</sub> /Ni nanokompozit yapısının -0,7V'ta 0,5 M H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> içerisinde kaydedilmiş, 0,1Hz-100 kHz frekans aralığında olan Nyquist diyagramları. ....                     | 55 |
| Şekil 4.7. Farklı potansiyellerde 0,5 M H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> içinde kaydedilen KGE/g-C <sub>3</sub> N <sub>4</sub> /NiFe <sub>2</sub> O <sub>4</sub> /Ni nanokompozit filmin 0,1Hz-100 kHz frekans aralığındaki Nyquist diyagramları. ....                                                                                                 | 56 |
| Şekil 4.8. g-C <sub>3</sub> N <sub>4</sub> /NiFe <sub>2</sub> O <sub>4</sub> /Ni nanokompozit elektrodun 0,5 M H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> elektrolit ortamında -0,8V'ta kaydedilen kronoamperomogramı. ....                                                                                                                                      | 57 |

## ÇİZELGELER DİZİNİ

|                                                                                                                                                                                                                                        |    |
|----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|----|
| Çizelge 2.1. Enerji kaynaklarının sınıflandırılması .....                                                                                                                                                                              | 4  |
| Çizelge 2.2. Hidrojenin özellikleri.....                                                                                                                                                                                               | 7  |
| Çizelge 2.3. Hidrojenin tarihsel gelişim süreci.....                                                                                                                                                                                   | 8  |
| Çizelge 2.4. $\text{NiFe}_2\text{O}_4$ sentez yöntemleri .....                                                                                                                                                                         | 43 |
| Çizelge 4.1. KGE, KGE/g- $\text{C}_3\text{N}_4/\text{NiFe}_2\text{O}_4$ ve KGE/g- $\text{C}_3\text{N}_4/\text{NiFe}_2\text{O}_4/\text{Ni}$ nanokompozit elektrotların Tafel eğrilerinden hesaplanan elektrokimyasal parametreleri..... | 53 |



## SİMGELER VE KISALTMALAR

|                                      |                                         |
|--------------------------------------|-----------------------------------------|
| <b>AgCl</b>                          | Gümüş Klorür                            |
| <b>Akb</b>                           | Atomik Kütle Birimi                     |
| <b>CA</b>                            | Kronoamperometri                        |
| <b>CV</b>                            | Dönüşümlü Voltametri                    |
| <b>EDS</b>                           | Enerji Dağılım Spektroskopisi           |
| <b>EİS</b>                           | Elektrokimyasal İmpedans Spektroskopisi |
| <b>Fe</b>                            | Demir                                   |
| <b>g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub></b>  | Grafitik Karbon Nitrür                  |
| <b>Hz</b>                            | Hertz                                   |
| <b>K</b>                             | Kelvin                                  |
| <b>M</b>                             | Molar                                   |
| <b>m<sup>3</sup></b>                 | Metreküp                                |
| <b>mg</b>                            | Miligram                                |
| <b>ml</b>                            | Mililitre                               |
| <b>N</b>                             | Azot                                    |
| <b>Na<sub>2</sub>HPO<sub>4</sub></b> | Di Sodyum Hidrojen Fosfat               |
| <b>Ni</b>                            | Nikel                                   |
| <b>NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub></b> | Nikel Ferrit                            |
| <b>NiSO<sub>4</sub></b>              | Nikel (II) Sülfat                       |
| <b>Pt</b>                            | Platin                                  |
| <b>SEM</b>                           | Taramalı Elektron Mikroskobu            |
| <b>µL</b>                            | Mikrolitre                              |

## 1. GİRİŞ

Özellikle çağımızda alternatif enerji kaynaklarının arayışı sürerken, uzun zamandır bilim insanlarının gündeminde yer alan bir konu olmakla beraber, özellikle çevreye zararının minimum düzeyde tutulabilmesi, yenilenebilir ve düşük maliyete sahip olması bu kaynakların taşınması gereken en önemli niteliklerdir. Bu anlamda bugüne kadar; rüzgâr enerjisi, hidrolik enerji, hidrojen enerjisi, biyokütle ve jeotermal enerji gibi alternatif enerjilere yönelmeler olmuştur. Bu kaynaklar özellikle verimlilik ve maliyetin düşüklüğü amaçlarına hizmet eder nitelikte olmalıdır. Gerekli olan kriter ve koşulları optimize eden çözüm yaklaşımları içermelidir. Bu anlamda hidrojen enerjisi, bu alternatiflerden ilkinin oluşturmaktadır (Veziroğlu, 1998).

Fosil kaynaklar dediğimiz yenilenemez enerji kaynaklarının kullanımı günümüzde oldukça yaygın olsa da, bu kaynaklar çevreye ve insan sağlığına zarar vermekle beraber kullanımı sınırlıdır ve zamanla tükenecektir. Bu yakıtların yerine tercih edilebilecek yenilenebilir enerji kaynakları ise, kaynaklarını doğadan aldıklarından, evren var olduğu sürece sınırsız ve sürekliliği olan ekonomik enerji kaynakları olarak varlıklarını sürdüreceklerdir. Bu nedenle alternatif enerji kaynakları araştırılarak, üretimi için gerekli şartlar sağlanmalı ve fosil yakıtlar yerine kullanılabilirliğini yaygınlaştıracak ve kolaylaştıracak yöntem ve çalışmalar geliştirilmelidir.

Yenilenebilir enerji kaynakları arasında özellikle son zamanlarda bilim insanlarının dikkatini çeken ve 21. yüzyılın enerjisi olarak değerlendirilen hidrojen, bu kaynaklar arasında oldukça dikkat edicidir. Doğal bir yakıt olmayan hidrojen, çeşitli kaynak ve yöntemlerle üretimi sağlanan sentetik bir yakıttır. İçerisine yenilenebilir enerji kaynak türlerinin de dahil edildiği, birçok farklı kaynak türü ile üretimi sağlanabilmektedir (Ün, 2003). Enerji talebinin her geçen artması ve kaynakların bunun neticesinde tükeniyor olması, insanları doğal olarak bir arayışa sürüklemiş, fosil kaynakların yerine geçebilecek, çevre dostu ve çok yönlü bir enerji olarak görülen hidrojen bu açıdan, geleceğin enerjisi için uygun bir aday olarak görülmüştür.

Hidrojen gazının üretimi için kullanılan yöntemler arasında en basit yöntem suyun elektroliziyle hidrojen gazı üretimidir. Elektrolizde elektrik enerjisi kullanılarak, suyun hidrojen ve oksijene ayrıştırılması sağlanırken, katotta indirgenme reaksiyonu sonucu hidrojen gazı oluşurken anotta ise yükseltgenme reaksiyonu sonucu oksijen

gazı oluşur. Elektroliz hidrojen üretimi için elbette basit bir yöntem olmakla beraber, sistemin bazı dezavantajları mevcuttur ve iyi bir sistem için bunların giderilmesi veya optimize edilmesi gerekmektedir. Sistemde oluşan aşırı gerilim yani sistem için gerekli aşırı potansiyel elektroliz sisteminin en büyük dezavantajıdır ve bunun giderilebilmesi için uygun bir elektrot ve çalışma ortamı araştırılmalı, akım yoğunluğu ve elektrot yüzey alanının artması sağlanmalıdır. Bu sayede istenilen özelliklerde ve daha etkin bir elektrot geliştirilmesi mümkün olabilmektedir.

Bu çalışmada, suyun elektroliziyle hidrojen gazı üretiminde elektroliz sisteminin ihtiyaç duyduğu aşırı gerilimin azaltılarak, hidrojen oluşumuna ait akım yoğunluğunun artırılması amaçlanmıştır. Bu amaçla, ekonomik ve kolay ulaşılabilir bir elektrot olarak kalem grafit elektrodun yüzeyi, yüksek yüzey alanına sahip karbon bazlı kompozit bir yapı ile modifiye edilmiştir. Modifikasyonda kullanılan grafitik karbon nitrür ( $g-C_3N_4$ ), zengin yüzey özellikleri, yüksek termal kararlılığı, çevre dostu olması, hazırlama prosedürlerinin basit olması ve ekonomikliğı nedeniyle tercih edilmiştir. Diğer taraftan, doğada bolca bulunan, çeşitli manyetik, optik ve elektriksel özelliklerinden dolayı çok yönlü kullanım alanına sahip nikel ferrit ( $NiFe_2O_4$ ), kompozit yapının hazırlanmasında tercih edilmiştir.

Elektrokatalitik proseslerde, nanoyapılı malzemelerin katalitik aktiviteyi arttırmasından dolayı özellikle hidrojen oluşumunda yüksek katalitik aktivite gösterdiği bilinen soy metallerin nanoyapıları kullanılmaktadır. Ancak soy metallerin maliyetlerinin yüksek olması, hazırlanan elektrokatalizörlerin sürdürülebilir olmasını engellemektedir. Bu sebeple bu çalışmada,  $g-C_3N_4 / NiFe_2O_4$  kompozit yapısı üzerine elektodepozisyon yöntemiyle nikel nanopartikülleri dekore edilerek  $g-C_3N_4/NiFe_2O_4/Ni$  nanokompozit yapısı elde edilmiş, böylelikle suyun elektroliziyle hidrojen oluşumunda daha etkin ve daha ekonomik bir elektrokatalizör geliştirilmiştir.

## **2. KAYNAK ÖZETLERİ**

### **2.1 Enerji**

Özellikle çağımızda kullanıyor olduğumuz kaynakların sınırlı ve tükenebilir olması, alternatif birtakım enerji kaynaklarının araştırılmasını zorunlu hale getirmektedir. Enerji, içinde bulunduğumuz yüzyıldaki en önemli kavramlar içerisinde yer almakla beraber dünya nüfus oranındaki hızlı artış, buna ek olarak sanayileşme ve yaşanan yoğun teknolojik gelişmeler bu konuya olan ilgi ve talebi her geçen gün arttırmaktadır.

Dünyadaki en önemli oluşumlardan bir tanesi olan enerji, cisimsel bir varlık olmamakla birlikte, en bilinen tabiriyle iş yapabilme yetisi olarak tanımlanırken, bir sistemde devinime sebep olan güç olarak da ifade edilebilir.

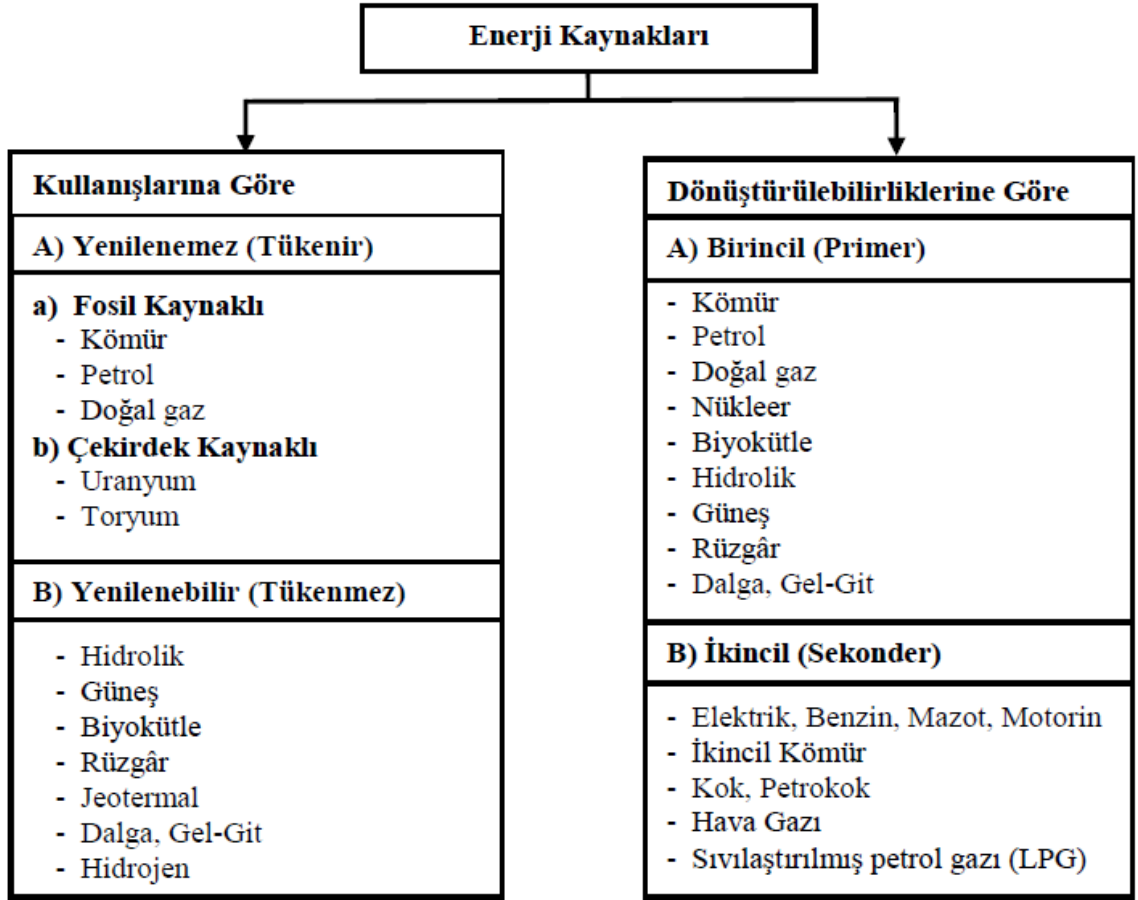
Enerjinin üretim faaliyetlerinde esas girdi olması, gerçekleşen her üretim faaliyetinin, belli bir düzeyde enerji tüketimini gerektirmektedir. Bu da insanoğlunun yaşamını idame ettirebilmesi için, yaşamının her alanında enerjiye ihtiyaç duyduğunu gösterir niteliktedir. Burada esas önemli husus, ihtiyaç duyulan bu enerjinin ne şekilde sağlandığı ve kullanıldığıdır. Bu noktada araştırılan ve ulaşılmak istenen, sağlanan bu enerjinin düşük maliyetli, sürekliliği bulunan, çevrede ve ekosistemde kirlilik yaratmayacak şekilde olmasıdır. Yıllardır süregelen, alternatif enerji kaynakları için yapılan yoğun araştırmaların altında yatan temel sebep de budur.

### **2.2 Enerji Kaynakları**

Enerji kaynakları, dünyada sosyal ve ekonomik gelişme ve ilerlemenin sağlanması noktasında oldukça önemli bir noktada yer almaktadır. Enerji, insanoğlunun yaşamında her alanda ve yapmış olduğu her aktivitede en mühim ihtiyacı olmasının yanı sıra çevresel birtakım değerlere zarar vermemesi ve yeterli ölçüde enerjinin sağlanarak kullanılabilmesi, enerji konusunda toplumların aynı zamanda en mühim problemidir (Geller, 2002).

Doğadan yeterli miktarda sağlanabilen, çevreyle dost ve ekonomik enerji kaynaklarının ehemmiyeti gün geçtikçe artmaktadır. Bununla beraber bu kaynakların sağlanması noktasında yoğun araştırma ve yapılan çalışmalar ciddi düzeylere ulaşmıştır. Çizelge 2.1’de enerji kaynakları kullanılışlarına ve dönüştürülebilirliklerine göre enerji kaynakları sınıflandırılmıştır.

**Çizelge 2.1.** Enerji kaynaklarının sınıflandırılması (Koç ve Şenel, 2013).



Enerji kaynaklarını iki şekilde sınıflandırabilmek mümkündür. Bunlardan ilki, enerji kaynaklarının kullanımları neticesinde tükenme durumları ya da yenilenebilirlikleri göz önünde bulundurularak yapılan bir sınıflandırmadır. Buna göre, tüketimine rağmen miktarında bir azalma ve doğal bir döngü içerisinde herhangi bir farklılaşma göstermeyen, tükenmeyen enerji kaynakları tükenmez (yenilenebilir) enerji kaynakları olarak değerlendirilirken; kullanımları neticesinde miktarında azalma gözlenen ve sonraki süreçte kendisini yenileyemeyen enerji kaynakları ise tükenir (yenilenemez) enerji kaynakları olarak değerlendirilir.

Yapılan bir diğer sınıflandırma ise, geri dönüştürülebilirliklerine göre yapılan sınıflandırmadır. Bu sınıflandırmaya göre enerji kaynakları, primer (birincil) ve sekonder (ikincil) enerji kaynakları olmak üzere iki grupta incelenmektedir (Koç ve Kaya, 2015).

### **2.2.1 Yenilenemez (Tükenir) enerji kaynakları**

Yenilenemeyen veya başka bir tabirle tükenir enerji kaynakları, kullanımı sonucunda zamanla tükenen ve tüketimi sürdüğü müddetçe çevreye vermiş olduğu zararların her geçen gün arttığı ve rezervi kısıtlı olan kaynaklardır (Selici vd., 2006).

Klasik enerji kaynakları olarak değerlendirilebilen bu kaynaklar, günlük olağan hayatımızın her bölümünde yoğun olarak yer bulmuş, özellikle de son iki asırdır hem üretim teknolojilerinin ilerleme göstermesi hem de ekonomik olmaları sebebiyle oldukça yaygın kullanım alanları bulmuşlardır. Sanayi devriminin gerçekleşmesiyle beraber kömür kullanımına bağlı olan enerji ihtiyacına sonraki senelerde doğal gaz ve petrol eklenmiş fakat bir süre yaşanan petrol krizi sonrasında fosil kaynaklara olan güven azalarak, bu kriz sonrası tüm dünya ülkeleri alternatif bazı enerji kaynaklarına yönelim göstermişlerdir (Gülbüz, 2009).

Fosil yakıtlar olarak da tanımlanan yenilenemez enerji kaynakları, tehlike arz eden ve oldukça ciddi boyutlara ulaşabilen birçok çevre sorununa neden olabilmektedir. Fosil yakıtların diğer bir deyişle yenilenemez enerji kaynaklarının kullanımı; atmosferdeki oksijen miktarını azaltarak, karbondioksit salınımına yol açarak asit yağmurlarına neden olmaktadır. İklim olaylarında meydana gelen değişiklikler, küresel ısınma ve yaratmış olduğu hava kirliliğiyle birlikte bunun sebebiyet verdiği birçok sağlık problemi de insanların farklı kaynaklar arayışını hızlandırmıştır.

Yine çağımızda her geçen gün artmakta olan enerji tüketimi, buna paralel olarak bu kaynakların yakın gelecekte tükenecek olması gerçeğini kaçınılmaz kılmakta ve hem insanoğlunun hem doğanın geleceği ve sürdürülebilir bir dünya için yenilenebilir enerjiye yönelimi zorunlu hale getirmektedir.

### **2.2.2 Yenilenebilir (Tükenmez) enerji kaynakları**

Yenilenebilir enerji kaynakları, kendisini doğada sürekli olarak yenileyebilen enerji kaynakları olup kullanımı sonucunda tükenmeyen enerji kaynaklarıdır. Doğal kaynaklardan elde edilen enerjiler oldukları için sürdürülebilirliği mevcut olan enerjiler olarak da tanımlanabilir. Tükenmez enerji kaynaklarının her biri, fosil enerji kaynaklarının aksine doğada kendiliğinden mevcut kaynaklardan elde edilirler. Bu



kaynaklar zamanla tükenmez, bu yüzden hem çevreye oldukça zararlı hem de zamanla tükenen fosil yakıtlara güçlü birer alternatiftirler.

Tüm yenilenebilir enerji kaynaklarının en büyük ortak özelliği, çevreye dost yani temiz enerji sistemleri olmalarıdır. Aynı zamanda sürdürülebilirlerdir ve tamamen yerli kaynaklardan elde edilebilirler. Bu da enerjide dışa bağımlılığın azalması anlamına gelmektedir. Yani, tüm dünya ülkeleri ile beraber artan nüfus miktarı, her geçen gün ilerleme kaydedilen teknoloji ve endüstri ile birlikte artan enerji gereksinimi, bu sayede dışa bağımlı olmadan ve çok daha ekonomik bir şekilde sağlanabilecektir (URL-1).

Fosil yakıtlar gibi tükenen kaynaklara öncelik tanınarak oluşturulan herhangi bir enerji politikası sürdürülebilir olmaktan fazlasıyla uzaktır (Uğurlu, 2006). Enerji kullanımının alışılmış kaynaklar ile sağlanmasının yol açtığı mahalli ve küresel birtakım çevresel etkiler, aynı zamanda bu sebeple çevrede ve insan sağlığında oluşan tahribatın açık bir şekilde görülmesi, yok denilebilecek düzeyde yayınıma sebep olan tükenmez enerji kaynaklarının özellikle çevresel açıdan oldukça önemli bir pozisyona gelmesine sebep olmuştur. Güvenli ve çok çeşitli enerji sağlanmasına katkılarının yanı sıra, sürdürülebilir kalkınmanın özünde, devamlılık ve kaynakların korunması ile çevreye verilen zararın minimuma indirilmesi fikri mevcuttur (Çağlar ve T. Altuntaşoğlu, 2003). Artık, geçmiş yıllardaki ekonomik ve temin edilmesi kolay olan enerji kavramı, yerini temiz ve ekonomik enerji kavramına çoktan bırakmış durumdadır (Sancar, 1992).

Oluşan yeni dünya düzenindeki birtakım politikaların özünde iki konunun önemi aşikârdır. Bunlardan birincisi teknoloji, diğeri enerjidir. Teknolojik olarak yeterli ilerlemeyi kaydedememiş toplumlar, ekonomik ve bol enerji kaynaklarına sahip olmak zorundadır (Önder, 2001). Tüm bu nedenler, yenilenebilir enerji kaynaklarının kullanımının, doğa ve insanın geleceğini güvence altına alabilmek için, mutlak surette hayati bir öneme sahip olduğunu ispatlar niteliktedir. Bu kaynaklar içerisinde bulunan ve 21. yüzyılın enerjisi olarak kabul gören hidrojen enerjisi, zamanla artan enerji ihtiyacı karşısında tükenen kaynaklara mükemmel bir alternatif olacaktır (Tutar ve Eren, 2011).

## 2.3 Hidrojen Gazı

Renksiz, kokusuz, zehirsiz ve oldukça yanıcıdır. Atomik kütlesi 1,00794 g/mol'dür. Sadece bir elektron ve protondan meydana gelmiş olan hidrojen, periyodik çizelgenin ilk ve aynı zamanda en hafif elementidir. Yeryüzünde mevcut elementler içerisinde en fazla bulunan elementler içerisinde yer almaktadır. Yeryüzündeki görünen maddelerin % 90'ından fazla miktarı hidrojenden meydana gelmiştir. Güneşse, bütünüyle hidrojenden meydana gelen bir yıldızdır. Dünyanın güneşten sağlamış olduğu enerji, hidrojenin füzyon tepkimesi neticesinde helyuma dönüşmesi ile birlikte ortaya çıkan enerjidir. İçten yanmalı motorda yakıldığında neredeyse hiç zararlı emisyon açığa çıkarmaz ve oluşan tek yan ürün sudur (Johnston vd., 2005). Evrende en fazla oranda bulunan element olmasına rağmen, dünyada saf halde bulunmayan hidrojen, suda oksijen ile birleşik olarak, kaynaklarda ve sayısız birçok hidrokarbon bileşiklerinde, karbon ve diğer elementlerle birleşik halde bulunmaktadır (Penner, 2006).

### 2.3.1 Hidrojen gazının fiziksel özellikleri

Havaya oranla çok daha düşük yoğunluğa sahip olan hidrojen, hava veya farklı gazlara kıyasla gözenekli yapıların içerisinde çok hızlı bir şekilde geçebilir ve diğer gaz formundaki maddelerin geçemeyeceği kadar küçük açıklıklardan geçebilir ve sızabilir.

İyi bir ısı ileticisi olan ve aynı zamanda sıvılaştırılması en zor gaz olan hidrojen gazının fiziksel özellikleri Çizelge 2.2'de verilmiştir (Kademli, 2017).

**Çizelge 2.2.** Hidrojenin özellikleri (Kademli, 2017).

| Özellik                         | Birim                     | Değer  |
|---------------------------------|---------------------------|--------|
| Yoğunluk                        | kg/m <sup>3</sup>         | 0,0838 |
| Moleküler Ağırlık               | Akb (atomik kütle birimi) | 2,0    |
| Yüksek Isıl Değer               | MJ/kg                     | 141,9  |
| Düşük Isıl Değer                | MJ/kg                     | 119,9  |
| Kaynama Sıcaklığı               | K                         | 20,3   |
| Donma Sıcaklığı                 | K                         | 14,0   |
| Sıvı Olarak Yoğunluk            | kg/m <sup>3</sup>         | 70,8   |
| Kritik Sıcaklık Noktası         | K                         | 32,94  |
| Kritik Basınç Noktası           | Bar                       | 12,84  |
| Kritik Yoğunluk Noktası         | kg/m <sup>3</sup>         | 31,4   |
| Kendiliğinden Tutuşma Sıcaklığı | K                         | 838,0  |

### 2.3.2 Hidrojen gazının kimyasal özellikleri

Kimyasal olarak çok aktif bir yapıya sahip olan hidrojen gazı, belirgin bir elektropozitifliğe sahiptir. Bu sebeple de kimyasal olarak reaksiyona girmiş olduğu elementleri indirger. Kimyasal reaksiyon hızı sıcaklıkla doğru olarak değişkenlik gösterirken, katalizör varlığında artmaktadır. Birçok elementle reaksiyona girmesine rağmen metal oksitler içerisinde son derece kararlı olanlar, hidrojen tarafından indirgenemez. Ancak elektroliz yöntemleri veya hidrojenden daha aktif metaller varlığında sementasyon gibi elektrokimyasal yöntemler vasıtası ile mümkün olabilir (Kademli, 2017).

### 2.4 Hidrojenin Tarihsel Gelişimi

Çekirdeğinde bir protona ve orbitalinde bir elektrona sahip olan hidrojen elementi, periyodik sistemdeki ilk elementtir. Evrende miktarı en fazla olan ve çevre dostu olan hidrojen, doğada bileşik formunda oldukça yaygın bir elementtir. Örneğin; insan bedeninin yaklaşık %10'unu teşkil ederken, yine suyun yaklaşık %11'ini hidrojen oluşturur. Ham petrolün ve kömürün yapısında karbonla birleşmiş bir halde bulunur. Doğadaki kil ve mineral maddeler, oksijenle birleşmiş vaziyette yapılarında ciddi oranlarda hidrojen barındırmaktadırlar. İnsan hayatı için bu denli önemli bir yerde olan hidrojenin tarihsel gelişiminden bahsetmek, ileriki dönemde yapılacak çalışmalara bir basamak oluşturması bakımından oldukça fayda sağlayacaktır (Şenaktaş, 2005).

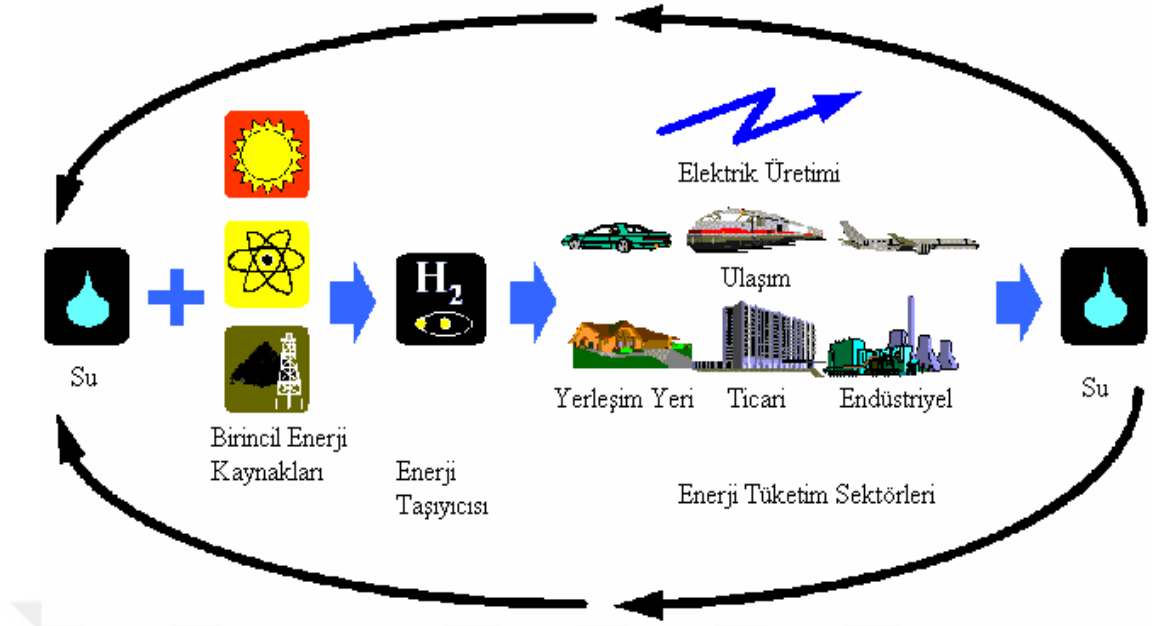
**Çizelge 2.3.** Hidrojenin tarihsel gelişim süreci (Şen, 2002).

| Tarih   | Bilim İnsanı       | Destek                                                                                               |
|---------|--------------------|------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| 16. yy. | Paracelsus         | Hidrojen gazının tabiatı ortaya çıkarılmıştır.                                                       |
| 16. yy. | Van Helmot         | Hidrojen, havanın özel bir türü olarak tanımlanmıştır.                                               |
| 1671    | Robert Boyle       | Demir tozu+seyreltik asit konsantrasyonunda hidrojene rastlanmıştır.                                 |
| 1766    | Henry Cavandish    | Hidrojen gazının özellikleri tanımlanmıştır.                                                         |
| 1783    | Lavoisier          | Hidrojen gazının adı verilmiştir.                                                                    |
| 1820    | Anonim             | Hidrojenin yenilenebilir enerji olarak kullanımı fikri doğmuştur.                                    |
| 1911    | Carl Bosch         | Hidrojen, gübre üretiminde kullanılmıştır.                                                           |
| 1970    | Enstitüler         | Hidrojen, enerji taşıyıcısı olarak düşünülmüştür.                                                    |
| 1974    | T. Nejat Veziroğlu | Çağdaş boyutta hidrojen enerjisi kullanılmaya başlanmış ve ilk defa bilimsel arenada tartışılmıştır. |

16.yüzyılda, Paracelsus, sülfürik asit içerisinde demir elementini çözmesiyle açığa çıkan gazı tanımladığı zaman, hidrojen gazının önemi ortaya çıkmaya başlamıştır. Helmut ise yanma konusunda bir etkisi olmayan ancak yanabilen bu gazı havanın özel bir türü olarak ifade etmiştir. Yine 17. yüzyılın sonlarına yaklaşıldığında, 1671 yılında, Robert Boyle seyreltik asitle birlikte demir tozunun reaksiyonunu ifade ederken hidrojen gazına rastlamıştır. 18. yüzyılın sonlarında, ilk kez 1766 senesinde İngiliz fizik ve kimyacı olan Henry Cavendish, hidrojeni tanımlayabilmiş ancak hidrojenin asitten çok metallere elde edilebildiği kanısına varmıştır. Buna ek olarak suyun oksijen ve hidrojen elementinden oluştuğunu belirtmiş, 1783 senesine gelindiğinde ise Lavoisier tarafından ilk kez bu gazı hidrojen adı verilmiştir. 1839'da, W. R. Grove, yakıt pilini keşfetmiştir ve bu keşif hidrojenin gereklilik ve önemiyetinin çok daha fazla artmasına sebep olmuştur. Yine bu yıllarda, hidrojenin tükenmez enerji kaynakları arasında gösterilerek bir enerji kaynağı olarak kullanılması fikri hayat bulmuştur. 19. yüzyılın başlarından 20. yüzyılın ortalarına kadar kömürden eldesi sağlanan bir ürün gazının Amerika ve Avrupa çevresinde kullanımı başlamıştır. Sonrasında içeriği belirlenen bu gaz, ışık ve ısı sağlaması sebebiyle mükemmel bir kaynak olarak değerlendirilmiştir. Bu gelişmelerin ardından, bazı büyük sahalarda doğalgaz yatakları bulunarak, kullanımına başlanmıştır. Kimyacı C. Bosch, 1911 yılında, nitrojen ve hidrojenden gübre üretim çalışmalarına öncü olmuştur. Hidrojenin tükenmez bir enerji kaynağı olarak kullanılması fikri, uzun bir süre önemsenmeyerek, sadece fikir düzeyinde kalabilmiştir. Fakat 1970'lere gelindiğinde ise, hidrojenin mükemmel bir enerji taşıyıcısı olabileceği fikri özümsemeye başlanarak, sonrasında bu konuda tartışma ve araştırmalar ivme kazanmıştır. Türk bilim insanı T. Nejat Veziroğlu'nun önderliğinde, enstitü müdürü olduğu Miami Üniversitesi Temiz Enerji Enstitüsü'nün 1974 yılında düzenlemiş olduğu "Hidrojen Ekonomisi Enerji Miami Konferansı (THEME)" ile ilk kez hidrojenin önemi dünyada ses getirmiştir. 1974 yılında artık bilinen hidrojen enerji sistemi ve ekonomisi, 1998 yılında ise artık iyi bilinen kavramlar olarak literatürde yer bulmuştur (Şen vd., 2002).

## 2.5 Hidrojen Enerjisi

Enerji kaynakları sınıflandırması içerisinde kullanılışlarına göre yenilenebilir enerji, dönüştürülebilirliklerine göre ise primer enerji kaynakları grubunda yer alan hidrojen enerjisi, 21. yüzyıla damga vuracak mükemmel bir enerji taşıyıcısıdır (Şekil 2.1).



Şekil 2.2. Hidrojen enerji sisteminin şematik gösterimi (Veziroğlu, 2000).

Hidrojen, primer bir enerji kaynağı olarak kabul edilir ve enerji üretimini yönlendirme yeteneğine sahip olmakla birlikte enerji üretimini kolaylaştırma eğilimindedir. Çünkü hidrojeninde mevcut enerji ileride kullanılmak üzere depolanabilir ve sonuç olarak yenilenemeyen kaynakların tüketiminden kaynaklanan sorunları azaltır (Lu vd., 2013).

Hidrojen enerjisi, fosil enerji kaynaklarının hızla tükeniyor olması ve çevreye vermiş oldukları zararlar düşünüldüğünde, üstün özellikleri sebebiyle “geleceğin enerjisi” olarak nitelendirilmektedir. Hidrojen, kolaylıkla ve güvenle istenilen her alana taşınabilmesinin yanı sıra, bu esnada çok az miktarda enerji kaybı olmaktadır. Bununla birlikte, hemen her alanda kullanılabilir, tükenmez ve temiz bir enerji kaynağıdır.

İçeriğinde karbon olmayan hidrojen, ucuz ve hafif bir enerji kaynağıdır. Aynı zamanda gelecek olan 5 milyar yılında yakıtı olacağı belirtilmektedir. Hidrojenin günümüzde diğer yakıtlara kıyasla daha az ekonomik olmasına rağmen, uzun vadede gerçekleşecek teknolojik gelişme ve kaydedilen ilerlemeler ile ilerleyen dönemlerde, enerji kullanımında çok büyük bir rol üstleneceği açıktır (Tutar ve Eren, 2011).

Enerji olarak hidrojen, gelecekte fosil yakıt kullanımının olumsuz ve zararlı etkilerini ortadan kaldıracaktır. Aynı zamanda dünyaya aktif ve efektif bir enerji sağlayacaktır. Gelecek yeni yüzyılın enerjisi olacak hidrojen, verimli ve temiz bir enerji sistemi olarak, hak ettiği değeri görecek (Gülşen vd., 2014).

### 2.5.1 Hidrojen enerjisi kullanımının avantajları

Mükemmel bir enerji taşıyıcısı olan hidrojen, birçok üstün özelliğe sahiptir. Bu özelliklere kısaca değinilecek olursa,

- Tükenmez enerji kaynakları da içerisinde olmak üzere herhangi bir enerji kaynağının kullanımıyla üretilen hidrojen, elektrik kullanımıyla üretilmekte ve büyük oranda da elektriğe çevrimi gerçekleştirilebilmektedir.
- Günümüzde kullanımı en yaygın olan enerji kaynakları olan fosil kaynakların dönüşümü, yalnızca bir aşamada sağlanabilirken, hidrojenin ise kullanımı sağlanacak enerji türüne dönüşümü birçok yolla sağlanabilmektedir.
- Kullanımı sağlanacak enerji türüne dönüşümünde hidrojen, son kullanımda, optimum enerji verimliliğine sahip bir enerji kaynağıdır.
- Fosil yakıtlara kıyasla %39 oranında daha efektif bir enerji kaynağı olması nedeniyle, primer enerji kaynaklarını koruduğu söylenebilir.
- Büyük çaplı depolamada gaz şeklinde, uzay ve hava ulaşımı için sıvı formda, yine taşıtlar ve daha küçük çaplı depolamalar için metal hidrit şeklinde kullanılabilir.
- Birçok şartta elektrikten daha verimli ve ucuz bir enerji olan hidrojen, tanker ve boru hatları vasıtasıyla uzak mesafelere taşınabilmektedir.
- Prosedür ve çeşitli güvenlik ekipmanları olarak diğer yakıtlara kıyasla farklılık gösteriyor olsa bile, güvenlik sıralaması incelendiğinde metan(doğal gaz) ve propanın arasında yer aldığı görülmekte bu da onlardan daha fazla riskli olmadığı anlamına gelmektedir.
- Zehirlenme ve yangın tehdidi göz önüne alındığında en güvenilir yakıtlardan biri olduğu söylenebilir.
- Güneş enerjisi veya elektrikten üretilen hidrojen; taşınması, depolanması veya son kullanımı sırasında çevreye zarar verecek herhangi bir kirlenici açığa çıkarmaz.
- Herhangi bir yakıt hücresinde tüketimi veya yanması sonucunda, son ürün olarak yalnızca su açığa çıkarken, eğer yanma işlemi çok yüksek derecelerde gerçekleşirse havada bulunan oksijen ve azot gazlarından NO<sub>x</sub> oluşabilmekte fakat bu kontrol edilebilir bir problem olmakla beraber, diğer yakıtlarla aynı orandadır.

- Kullanma veriminin oldukça yüksek ve çevreye vermiş olduğu zararın minimum olması dikkate alındığında, bu enerji sistemlerinin etkin maliyet olarak en düşük oranlara sahip olduğu söylenebilir (Barbir, 2003; Dinçer, 2002; Veziroğlu, 2003).

### 2.5.2 Hidrojen enerjisi kullanımının dezavantajları

Birçok avantajının olmasının yanı sıra elbette hidrojen enerjisi kullanımının bazı dezavantajları da mevcuttur.

- Havadan hafif bir gaz olan hidrojen, hızlı bir şekilde atmosfere yükselmekte ve bu sebeple oluşan kayıpların ivedilikle tespit edilememesiyle ekonomik kayıplar meydana gelebilmektedir (URL-3).
- Depolama açısından birtakım zorluklara sahip olan hidrojen, henüz tam olarak araştırılamamış olduğu ve bilhassa geliştirme çalışmaları halen sürdüğü için, depolama ve destek alt yapısı henüz tam anlamıyla oluşturulamamıştır.
- Molekül boyutları oldukça küçük boyutlara sahip olan hidrojen, bu özelliğiyle sızıntılara karşı çok daha hassas ve duyarlı hale getirmekte, bu da yeterli miktarda enerji yoğunluğunun sağlanması için daha yüksek basınçlarda depolama yapılması zorunluluğunu yaratır.
- Hidrojenin uçucu ve oldukça yanıcı olması, taşınmasını güçleştirir.
- Hali hazırda bulunmasına rağmen, günümüz teknolojisinde elektroliz gibi üretme işlemleri nispeten pahalıdır. Bilim insanları bu konuda titizlikle çalışıyor ve kullanımını daha kolay kılacak çeşitli teknolojilerin keşfi için yoğun uğraşlar veriyor olsalar bile, o vakte kadar fiyatlar nispeten pahalı kalmaya devam edecek gibi görünmektedir.
- Hidrojenin tükenmez bir enerji kaynağı ve aynı zamanda çevre dostu olduğu tartışmasız kabul edilmesine rağmen, üretim süreçlerinde bileşenlerinin ayrılması safhasında ne yazık ki halen fosil yakıtlar kullanılmakta ve bu da çevre dostu olan bu enerjiyi bir bakımdan çevreye zararlı konuma taşımaktadır.
- Yine hidrojenin depolanmasını zorlaştıran bazı karakteristik özellikleri aynı zaman taşınmasını da güçleştirmektedir. Pazara ulaşımı büyük oranda tanker ve boru hatları ile sağlanan hidrojen, sıkıştırılmış veya sıvılaştırılmış şekilde taşındıkları için, sızıntılara neden olabilmekte bu da riskli ve sakıncalı durumlar ortaya çıkarabilmektedir.

- Yenilenebilir enerji kaynağı olması ve neredeyse hiç kirlletici olmamasına rağmen, günümüzde mevcut fiyat etiketi ve şuan bu teknolojiyi destekleyecek altyapının eksikliği nedeniyle her ne kadar yaygınlık göstermese de, bilim insanları ilerleyen dönemlerde bu eksikliklerin giderilmesiyle bir enerji taşıyıcısı olarak hidrojenin elektriği yakalayacağını öngörmektedirler (URL-4).

### 2.5.3 Hidrojenin kullanım alanları

- Günümüzde hidrojen hakkında yapılan çok çeşitli çalışmaların büyük bir bölümü ulaşım sektörü hedefli görünmekle birlikte, özellikle içten yanmalı motorlarda yakıt olarak kullanılabilen hidrojen, ciddi anlamdaki üstünlüğünü ise yakıt pillerinde göstermektedir.
- Yakıt pilleri, uygulamaya geçmiş durumda olmakla beraber, çalışmaların bu alanda yoğunlaşmasının belirgin sebepleri vardır. Özellikle otomotiv sektöründe rekabet oldukça fazla, pazar çeşitli ve oldukça büyük, günümüz teknolojinde üretim ve kullanım yüksek maliyetlidir ve burada sağlanacak az miktarlardaki ekonomik bir maliyet avantajı bile hem üreticiye hem tüketiciye ciddi fayda sağlamaktadır (Ün, 2007). Depolama koşullarının sıvı veya gaz halinde olmasının, prosedürüne uygun şekilde depolandığı takdirde, yakıt olarak kullanılmasında engel oluşturmaz. Bazı otomobil üreticileri, hidrojenle çalışan otomobiller geliştirmişlerdir. Hidrojenin benzinden %50 daha verimli yandığı ve daha az kirliliğe sebep olduğu düşünülürse, bu oldukça yerinde bir uygulamadır (Kükrer, 2007). Araçlardan çıkan egzoz gazlarının, insan ve çevre sağlığını olumsuz yönde etkileyen en önemli nedenlerden biri olan hava kirliliğinde büyük oranda payı olduğu düşünüldüğünde, hidrojenin çevre dostu bir yakıt olarak kullanılabilecek olması bu sektördeki kullanımını arttıracaktır.
- Sabit kullanım alanları olarak nitelendirdiğimiz ev ve iş yerlerinde kullanım alanları oldukça fazla olan yakıt hücreleri; ısıtma, soğutma ve elektrik gibi enerji ihtiyaçlarını karşılamak amacıyla kullanılabilmektedir. Örneğin; günümüzde Japonya’da bazı evlerde yakıt hücresi ile elektrik üretimi yapılarak ısınma bu şekilde sağlanmaktadır. Sabit kullanım alanları olarak bahsedilen bu alanların bu şekilde ilerleme ve başarılarla, kısıtlı kullanımı artmakta ve bu pazar bu sayede hızlı bir büyüme sağlamaktadır. Bu teknolojiye dayalı elektrik üretimi gelişerek ve hızlanarak artmaya devam edecek, kısa süreli elektrik



kesintilerinin bile yaşantımızı ciddi sekteye uğrattığı günümüzde, hidrojen mükemmel bir alternatif olacaktır (Ün, 2007).

- Bunlara ek olarak yakıt hücreleri ve hidrojenin, birçok seyyar kullanım sahası mevcuttur. Bunlar içerisinde çeşitli mobil araç uygulamaları, dijital ve video kameralar, dizüstü bilgisayar ve bataryalar en çok bilinenleridir. Bu konuda şu anda en büyük pazar cep telefonları ve dizüstü bilgisayarlar olarak görülmektedir (Ün, 2007).
- Hidrojen, ısı ve patlama enerjisi gerektiren hemen her alanda kullanılır.
- Kömürde benzin eldesi için hidrojen kullanılır.
- Bazı organik bileşiklerin sentetik olarak elde edilmesinde, sıvı yağdan katı yağ üretimi süreçlerinde de yine hidrojen kullanılır.
- Hidrojen enerjisinin büyük bir bölümü amonyak ( $\text{NH}_3$ ) elde etmek için kullanılır.
- Petrol rafinerileri için önemli bir gaz olan hidrojen, metanol üretimi için kullanılmasının yanı sıra hava yardımıyla soğutulamayan dinamo gibi bazı parçaların soğutma işleminde de kullanılır.
- Füze ve roket yakıtı olarak da kullanılmaktadır (URL-5).

## **2.6 Hidrojenin Üretim Yöntemleri**

Hidrojen, yenilenebilir ve yenilenemez enerji kaynaklarından elde edilebilmektedir.

### **2.6.1 Tükenmez (Yenilenebilir) enerji kaynaklarından hidrojen üretim yöntemleri**

#### **2.6.1.1 Biyokütle enerjisi ile hidrojen üretimi**

Bu yöntemler, termokimyasal ve biyolojik süreçler olarak iki kategoride incelenebilmektedir.

#### **Termokimyasal yöntemler**

##### *Piroliz Yöntemi ile Hidrojen Üretimi*

Bu işlem, 0,1-0,5 MPa basınç ve 650-800 K sıcaklık aralıklarında, oksijenden yoksun bir ortam içerisinde ısı işlemine maruz bırakılan biyokütlenin organik katı kömür, sıvı yağ veya içeriği gaz olan bileşiklere dönüştürülmesidir. Düşük ve hızlı piroliz şeklinde iki sınıfta incelenir. Düşük piroliz pek fazla tercih edilmemektedir, bunun sebebi

ürünlerin genelde organik kömür oluşudur. Yüksek sıcaklıklarda gerçekleşen hızlı piroliz ise, maddenin her üç halinde de bulunabilir (Salama, 2018). Bu süreçler için sıcaklık, katalizör türü, ısınma hızı gibi çeşitli kontrol parametreleri oldukça önemlidir (Duman ve Yanık, 2017).

#### *Gazlaştırma Yöntemi ile Hidrojen Üretimi*

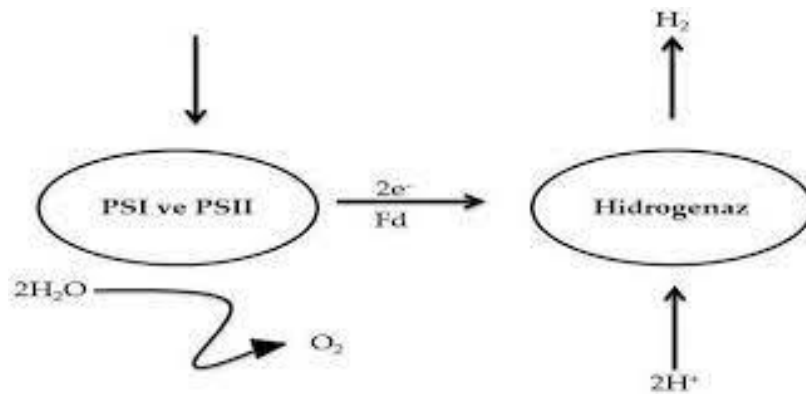
Bu yöntemin aynı zamanda piroliz yönteminin farklı bir formu olduğu da söylenebilir. Temelde hidrojen, metan, karbondioksit ve karbonmonoksit gibi bileşiklerin azot içerisindeki kısmi oksidasyonuna dayanan bu yöntemin, biyokütle içerisinde mevcut nem oranı nedeniyle ısı etkililiği oldukça düşüktür. 800-1000°C gibi oldukça yüksek sıcaklık aralıklarında dahi gazlaştırma tekniği yardımıyla katran üretimi gerçekleştirilebilir. Süreç sonunda ise biyokütlenin kısmi oksidasyona uğraması ile gaz ve karbonlu madde üretilebilir.

Biyokütle+ısı+buhar  $\rightarrow$  H<sub>2</sub> + CO + CO<sub>2</sub> + CH<sub>4</sub> + hafif ve ağır hidrokarbonlar + karbonlaşma (Seçer vd., 2018).

#### **Biyolojik Yöntemler**

##### *Direkt Biyofotoliz Yöntemi*

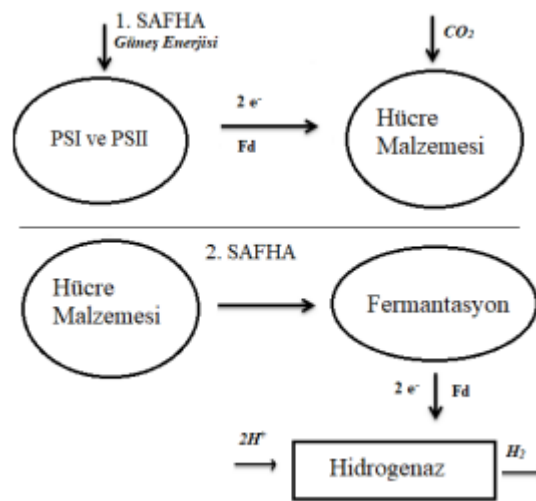
Bu yöntemde esas olan, hidrojen üretiminin gerçekleşmesi için güneş enerjisinin kimyasal enerjiye dönüştürülmesi olup, bu süreçte de mevcut iki fotosentetik sistem fotosentez sürecini yönetmektedir (Şekil 2.2).



**Şekil 2.2.** Direkt biyofotoliz işlemi (Şentürk, 2010).

Bahsi geçen iki sistemden ilki PSI (fotosistem I), karbondioksit miktarını azaltmak için kullanılacak olan indirgeyici üretmekten sorumlu olup, bir diğer sistem ise suyu ayrıştırıp oksijen miktarını açığa çıkaracak olan PSII (fotosistem II)'dir. Hidrojenaz içeren yeşil algler ve mavi-yeşil algler, bu yolla hidrojen üretebilirlerken, bazı yeşil bitkilerde karbon miktarında azalmanın sebebi bunun azlığından kaynaklanmaktadır. Şekil 2.3'te bu süreç gösterilmekte olup, burada PSII'nin güneş enerjisini adsorbladığında üretilen elektronlar, sonrasında PSI aracılığı ile soğurularak güneş enerjisi olan Fd (ferredoksine) aktarılır. Fd, üretilen elektronları kabul ederek, hidrojen enerjisini açığa çıkarabilir. Burada dikkat edilmesi gereken esas husus, oksijene karşı hassas olduğu bilinen hidrojenazın, üretimin devamlılığının sağlanması maksadı ile oksijen miktarının % 0,1 değerinin altındaki düzeylerde tutulması gerekliliğidir (Bolatkhani vd., 2019).

#### *Dolaylı Biyofotoliz Yöntemi*

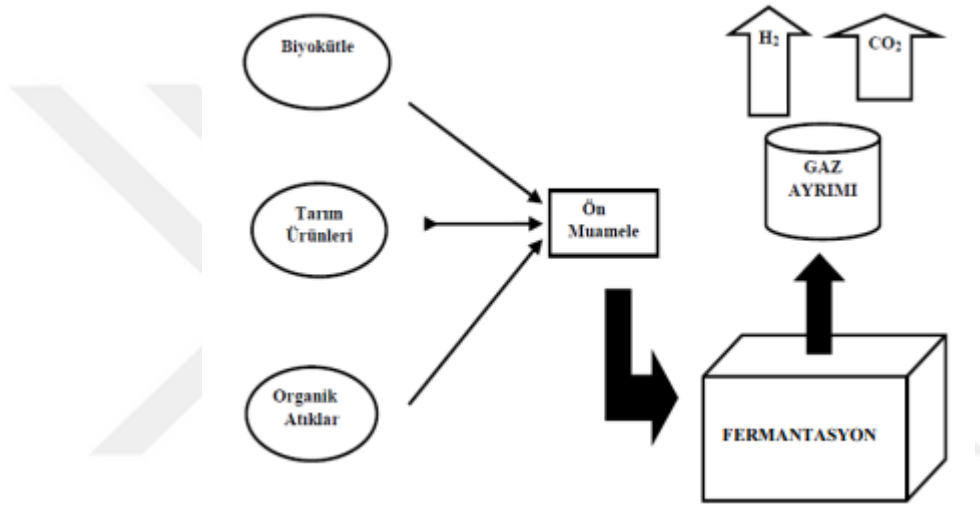


**Şekil 2.3.** Dolaylı biyofotoliz ile hidrojen üretim aşamaları (Ni vd., 2006).

Karanlık ve aydınlık olmak üzere iki farklı döngüden oluşan dolaylı biyofotoliz yönteminde, ışık döngüsü olan birinci aşamada mikroalg ve siyanobakteriler fotosentez eşliğinde başka tür enzimler yardımıyla oksijen ve karbonhidrat üretimi gerçekleştirirler. Karanlık döngü denilen bir diğer basamakta ise, üretilen bu organik maddeler hidrojenaz enziminde önce çözünebilir metabolitlere, sonrasında ise karbondioksit ve hidrojene dönüşümünü sağlarlar (Genç, 2009; Hallenbeck ve Benemann, 2002; Javed vd., 2022).

### *Karanlık Fermantasyon Yöntemi ile Hidrojen Üretimi*

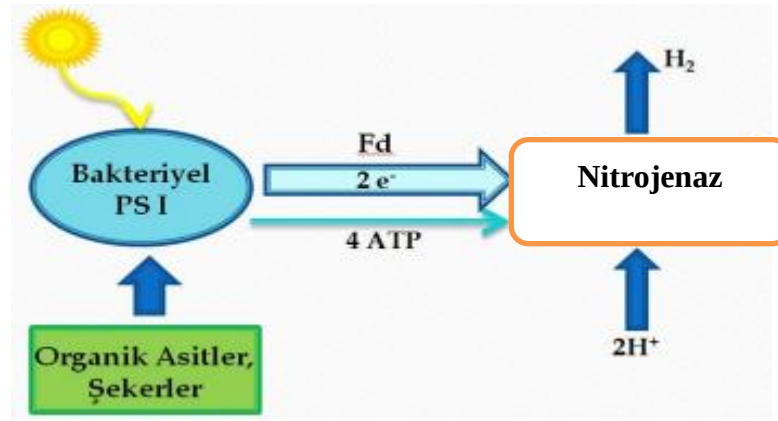
Karanlık fermantasyon, karbonhidrat içeriği olarak zengin olan substratların, herhangi bir ışık kaynağına gerek duyulmadan, fermantasyon yöntemi kullanılarak anaerobik ortam eşliğinde biyohidrojene dönüştürülmesi işlemidir (Şekil 2.4). Bu işlemde genellikle karbonhidrat içeriği olarak zengin olan substrat yüzeylerinde olgunlaşan birtakım alg türleri kullanılabilirle beraber, ek olarak öncelikli tercih anaerobik bakteri kullanımıdır. Kullanılan bakteri türüne bağlı olarak, 25 °C ile 80 °C üzerindeki sıcaklıklar arasında gerçekleştirilebilir (Şentürk ve Büyükgüngör, 2010).



**Şekil 2.4.** Karanlık fermantasyon yöntemi ile hidrojen üretimi (Benemann ve Hallenbeck, 2002).

### *Fotofermantasyon Yöntemi ile Hidrojen Üretimi*

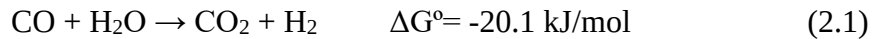
Fotosentetik bakteriler yardımıyla, organik asit veya biyokütleden, güneş enerjisi kullanılarak gerçekleştirilen hidrojen üretim yöntemidir (Şekil 2.5).



**Şekil 2.5.** Fotofermantasyon yöntemi ile hidrojen üretimi (Benemann ve Hallenbeck, 2002).

Azot miktarı sınırlandırılmış bir çevrede, herhangi bir ışık kaynağı veya güneş enerjisi kullanımı ile anaerobik ortamda, hidrogenaz (hidrojen molekülünün parçalanmasında rol alan enzim) ve nitrogenaz (fotofermantasyon yöntemiyle hidrojen üretimi için kullanılıyor olan ana enzim) enzimleri kullanılarak fotosentetik bakteriler yardımıyla gerçekleştirilir (Koku vd., 2003). Hidrojen üretimi için gerekli olan anaerobik ortamın devamlılığı, fotofermantasyonu gerçekleştiren mikro boyuttaki organizmaların PSII'lerinin olmaması ve bu sebeple aktif olarak suyu parçalayamamaları nedeni ile oksijen üretimi gerçekleştirememeleri sonucu sağlanmış olur (Genç, 2009).

#### *Biyolojik Olarak Suyun Gazı Dönüşümü*

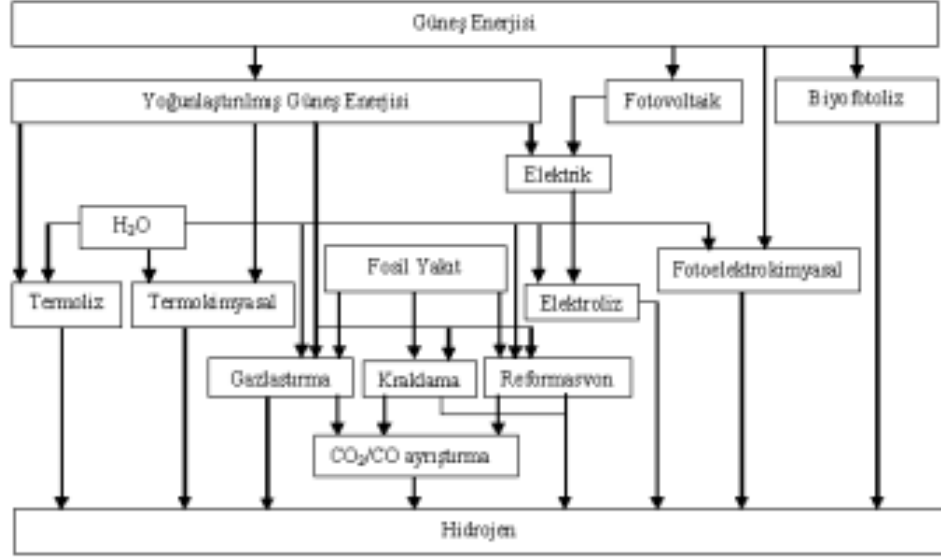


Bazı heterotrofik bakterilerin karbon monoksit gazını substrat olarak kullanmaları neticesinde karanlık ortam şartlarında hidrojen üretimi gerçekleştirilebilir. Burada karbon monoksitin görevi, anaerobik ortamda bazı proteinlerin sentezini sağlamaktır (Ensign ve Ludden, 1991). Yöntemde kullanılan karbonun kaynağını yalnızca sistemdeki karbon monoksitten sağlaması, bu bakterilerin karanlık ortamda hayatta kalabilmelerini sağlamaktadır (Yasin vd., 2015). Bu yöntem henüz laboratuvar düzeyinde olup, bu konudaki çalışmalar yetersiz ve sınırlıdır.

#### **2.6.1.2 Fotoelektrokimyasal yöntemler**

Güneş enerjisi ile hidrojen üretimi yani fotoelektrokimyasal yöntemler; fotovoltaiik, fotoelektrokimyasal ve fotobiyolojiksel yöntemler olarak üç ana başlık altında

incelenebilir. Güneş enerjisi yoluyla eldesi sağlanan bu enerji çeşitleri düşük sıcaklık ve yüksek sıcaklık altında kullanılır (Şekil 2.6.) (Touili vd., 2018).

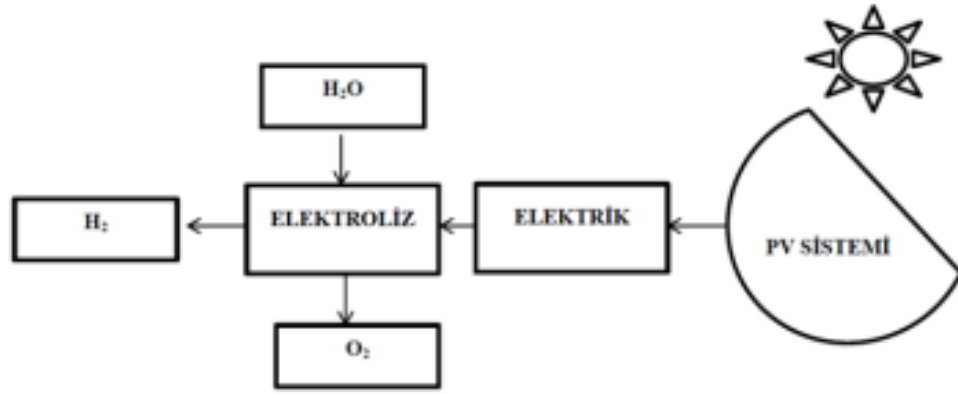


Şekil 2.6. Güneş-hidrojen üretim sistemleri (Joshi vd., 2010; Steinfeld, 2005).

### Düşük sıcaklık uygulamasıyla gerçekleştirilen hidrojen üretimi

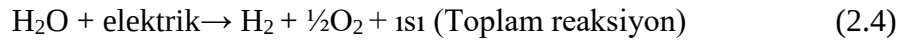
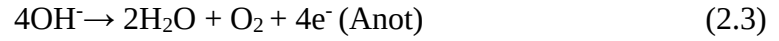
#### Fotovoltaik Hidrojen Üretimi

Sistem için ihtiyaç duyulan enerji, direkt olarak güneş enerjisinin elektrik enerjisine dönüştürülmüş olduğu fotovoltaik gözelerden sağlanmakla birlikte burada gerekli olan elektrik enerjisi, yoğunlaştırılmış halde bulunan güneş enerjisi vasıtası ile buhar eldesiyle sağlanarak, buhar türbinleri ile üretimi sağlanan enerji yine sistemde kullanılmaktadır. Maliyet düşük ve çevrim verimi yüksektir. Şekil 2.7’de fotovoltaik (PV) sistemle hidrojen üretiminin aşamaları gösterilmiştir.



**Şekil 2.7.** Fotovoltaik sistemle (elektroliz) hidrojen üretimi (Joshi vd., 2010).

Sistem çalışma prensibi olarak incelenecek olursa, hücre yapısı içeriği karbon olan levha ve genellikle düzlem bir metal, elektrolit sıvısı ve bunlarla birlikte iki adet de elektrolitten meydana gelmiştir. Elektrotun doğru akım kaynağına bağlanması ile birlikte iletken bir sıvı katkısı ile anottan (pozitif elektrot) katoda (negatif elektrot) doğru akım aktarılarak, işlem bitiminde ise su katottan gelen hidrojen ve anottan gelen oksijene ayrılmaktadır. Bu elektrokimyasal reaksiyonlar aşağıda mevcut olan eşitliklerde gösterilmiştir (Amikam vd., 2018) :

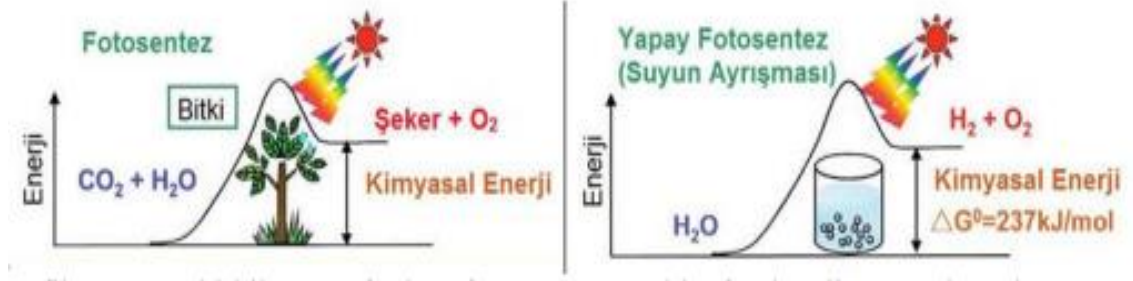


İki adım halinde üretim yapan bu elektrolizör sistemler, birinci adımda silisyum veya buna benzer maddeler ile yapılan güneş pilleri ile elde edilen akım, ikinci adımda ise hücredeki elektrotlar yardımıyla aktarılarak oksijen ve hidrojene ayrıştırılır. Fotovoltaik yöntem (elektroliz) ile üretilen hidrojen verimi, elektrik olarak değerlendirilirse yaklaşık olarak %80 dolaylarındadır (Özdemir ve Mutlubaş, 2019).

#### *Fotokatalitik ve Fotoelektrokimyasal Hidrojen Üretimi*

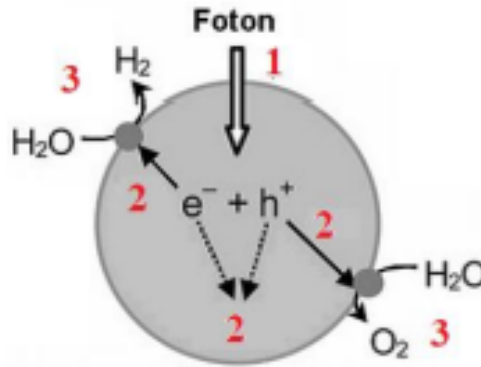
Yenilenebilir hidrojen ve aynı zamanda çevre dostu enerji sistemleri için oldukça önemli bir noktadadır. Fotokatalitik hidrojen üretimi, fotosentez ile oldukça benzerdir. Bu açıdan bakıldığında, yüksek oranda Gibbs serbest enerji değişimi ile gözlenen suyun ayrışmasıyla hidrojen üretiminin, suni bir fotosentez olarak tanımlanması

oldukça yerinde olur. Suni fotosentez olarak nitelendirdiğimiz bu işlemde, Gibbs serbest enerjisinin tek başına yeterli olamaması nedeni ile fotokatalizöre ihtiyaç duyulmaktadır (Şekil 8) (Carrasco vd., 2019).



**Şekil 2.8.** Fotosentez ve yapay fotosentez reaksiyonu gösterimi (Kudo ve Miseki, 2009).

Şekil 2.9’da görüldüğü gibi fotokatalitik yöntemde üç temel aşama ile birlikte suyun ayrıştırılması sağlanmaktadır.



**Şekil 2.9.** Fotokatalitik yöntemle suyun ayrıştırılması (Aslan, 2014).

Birinci aşamada, yarı iletken özellikli bir fotokatalizör yüzeyine iletimi sağlanan fotonlar absorplama gerçekleştirerek, bu sayede de elektron boşluk çiftlerinin birbirinden ayrılması sağlanır, hemen devamında gerçekleşen ikinci aşamada ise bu ayrılan yükler tepkimenin gerçekleşecek olduğu bölgeye iletilir. Üçüncü ve son aşamada ise yüzeyde bulunan aktif bölümlerde, uyarılan elektron suyu indirgeyerek hidrojenin ve su içerisindeki boşluğu yükselterek de oksijenin üretimi tamamlanmış olur.

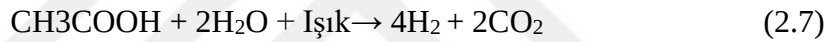
Tepkimenin tamamlanabilmesi için, yollanan fotonun enerjisinin, yarı iletken olan fotokatalizörün bant aralığından büyük olması gerektiği unutulmamalıdır. Yöntemde



karşılaşılan en büyük problem ise, sistemde meydana gelmiş olan oksijenin bazı sulu çözeltilerde çözünüp hidrojen üretimi için birtakım aksamalar meydana getirmesidir (Lee vd., 2019).

#### *Fotobiyolojik Olarak Hidrojen Üretimi*

Bu yöntem, ışığa bağlı ve ışıktan bağımsız süreçler olarak iki temel başlıkta incelenebilir. Işığa bağımlı olanlar direkt ve indirekt fotofermantasyon içerikli iken, diğer yöntem ise karanlık fermantasyonu kapsamaktadır. Burada hidrojen üretimi gerçekleştirildiği esnada bazı bakteri ve yeşil alglerin fotosentetik aktivitesinden yararlanılır. Aşağıda yönteme ait reaksiyon denklemleri verilmiştir (Poudyal vd., 2015).



Bu teknikte karşılaşılan en güçlü problem, güneş sabitinin üzerinde tutulması gerekliliğinden ötürü boyutları minimize edilemeyen alglerdir. Aynı zamanda yine sorun oluşturan bir başka detay ise, hidrojen üretiminin yanında gerçekleşen ve varlığı ile hidrojen farklılaşım enzim sistemi için bazı hasarlara sebebiyet veren oksijenin de üretiliyor olmasıdır (Özdemir ve Mutlubaş, 2019).

#### **Yüksek sıcaklık uygulamaları kullanılarak gerçekleştirilen hidrojen üretimi**

Bu yöntemler güneş termoliz, güneş karbonsuzlaştırma, güneş termal esaslı elektrolizör ve güneş termokimyasal çevrimler olarak incelenebilir.

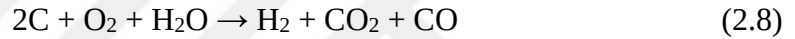
#### **2.6.2 Fosil yakıtlar kullanılarak hidrojen üretimi**

En basit haliyle tanımlanacak olursa, bu grupta yer alan prosesler için; oksijen, hava veya buharın ısıtılması sonucunda bir reaktör içerisinde bir araya getirilerek böylelikle hidrojenin hem sudan hem de hidrokarbon kaynaklarından kazanımı sağlanmakla birlikte, ham madde ve su moleküllerinin parçalanmasıyla beraber hidrojen, karbon monoksit ve karbondioksit meydana gelir. Başka bir yöntemde ise hava ve buhar

varlığı olmadan, hidrokarbon kökenli kaynaklar ısı yardımıyla karbon ve hidrojene parçalanarak ayrışır (URL-6).

#### **2.6.2.1 Kömürün gazlaştırılması ile hidrojen üretimi**

Kullanılan en eski teknik olup, üretimi yapılan bu gazın hidrojen oranı %60 iken ilaveten yüksek oranlarda karbon monoksit içermektedir. Tüm yöntemler ile gerçekleştirilen total hidrojen üretiminin yaklaşık %18'lik kısmı kömürün gazlaştırılması ile gerçekleştirilir. Açığa çıkan karbonmonoksitin çevreye vermiş olduğu zarar ve gerçekleştirmek için gerekli olan yüksek sıcaklıklar nedeniyle fazla tercih edilmemektedir. Sistemde çoğunlukla nikel bazlı katalizörler tercih edilir. Burada gerçekleşen temel süreçte, oldukça yüksek sıcaklıklarda (900°C) kömürün oksijen ve buhar ile tepkimeye girmesi sağlanarak; süreç sonunda hidrojen, karbon monoksit ve karbondioksit oluşumunun gözlenmesidir (URL-6).



#### **2.6.2.2 Buhar re-forming yöntemi ile hidrojen üretimi**

Endüstride yaygın olarak kullanılan yöntemler arasındadır. Yöntemin verimli ve ekonomik olması tercih edilmesinin en önemli iki sebebidir. Elde edilen verim yaklaşık %75 oranındayken, kalan %25'lik bölüm ise ısı kaynağı olarak kullanılabilir (Lovins, 2004). Yöntemin esası, hidrokarbon ve buharın çoğunlukla nikel bazlı kullanılan bir katalizör eşliğinde, yüksek sıcaklıklarda (750-1000°C) tepkimeye sokulması ve neticesinde de karbon oksit ve hidrojen eldesinin gerçekleşmesidir, sistemin dışarıdan ısı alması gereklidir. Reformasyonu sağlanan gazın yoğun karbon monoksit içermesi, hidrojen veriminin artırılması amacıyla reformerden çıkmasıyla beraber karbon monoksit-şift sürecinden geçirilerek, fazla miktardaki karbon monoksit karbondioksit ve hidrojene dönüştürülür. Farklı ve çeşitli hammaddelerin kullanımıyla buhar re-forming süreçlerini çoğaltmak mümkündür. Bunlar, doğal gaz (metan) reformasyonu, benzin buhar reformasyonu, metanol ve etanol reformasyonu, LPG buhar reformasyonu olarak çoğaltılabilir (URL-6).

#### **2.6.2.3 Kvaerner yöntemi (termal parçalama) ile hidrojen üretimi**

Bu yöntemde aktif karbon ve hidrojen, petrol ya da doğal gazdan elektrik akımı yardımıyla karbondioksit oluşumu gerçekleşmeden üretilir. Hidrokarbonların hidrojen

ve saf haldeki karbona ayrışabilmeleri için, yaklaşık 1600°C gibi yüksek sıcaklıklara ihtiyaçları vardır. Verim neredeyse %100 iken; sıcak buhar, aktif karbon ve hidrojen bu işlem sonucu oluşan ürünlerdir (Şahin, 2006). Fosil yakıtlarda kullanılan temel yöntemler olup bunlara ek olarak; kısmi oksidasyon, sıcaklık özdenetimli dönüşüm (SD), termal yollar ile doğal gazın parçalanması, ototermal reformasyon, termal disosiyasyon gibi yöntemler de mevcuttur.

## **2.7 Sudan Hidrojen Üretimi**

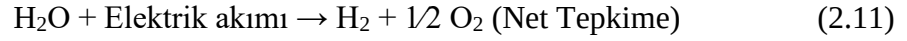
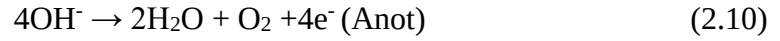
### **2.7.1 Elektroliz**

Çalışmamızın temelini oluşturan ve yenilenebilir enerji kaynakları ile hidrojen üretimini içeren suyun elektrolizi ile hidrojen üretimi, farklı bir kısımda incelenmiştir.

Yeryüzünde bulunan göl, nehir ve okyanuslar düşünüldüğünde, aslında hidrojen su biçiminde varlık gösteren ve yeryüzünde en bol bulunan enerji kaynaklarından biridir demek hatalı olmaz. Bu açıdan değerlendirildiğinde, ekonomik bir hammadde olduğu aşikâr olan sudan hidrojen üretimi, günümüzde birçoğunu fosil kaynaklardan sağladığımız enerji ihtiyacımız için çok iyi bir alternatif ve aynı zamanda ciddi önem taşıyan bir projedir (Willner, 1988). Suyun hidrojen ve oksijene ayrışması için, yüksek sıcaklık ya da serbest enerjiye ihtiyaç duyulmaktadır ve gerekli bu enerji de fotoliz ve doğru akım ya da elektrik ve ısı şeklinde sistem için sağlanabilir (URL-7).

Temelde en basit ifade ile tanımlanacak olursa, elektrik akımı yardımıyla suyun oksijen ve hidrojene ayrılması işlemine elektroliz denir. Elektrolizin oluşabilmesi, elektrokimyasal hücreye anot ve katot denge potansiyellerinin toplamından daha büyük potansiyelde bir dış akımın uygulanmasına bağlıdır. Suyun elektrolizi yönteminde, elektrokimyasal hücrede mevcut iki elektrot arasında elektrik akımının iletimini sağlayarak suyun hidrojen ve oksijene ayrılabilmesi için bir elektrolitik hücre kullanımı gereklidir (Bockris, 1975; Escher ve Hanson, 1975; Hilderbrandt, 1975; Ohta, 1988). Anotta yükseltgenme reaksiyonu neticesinde oksijen açığa çıkarken, katotta indirgenme reaksiyonu neticesinde hidrojen gazı oluşur. Yöntem, temelde basit ancak iyi kurulmuş bir teknolojiye ve yüksek verimliliğe sahiptir (= % 70).

Elektroliz yöntemi, yüksek saflıklarda hidrojen üretimine olanak tanır. Bu aşamada gerçekleşen reaksiyonlar aşağıdaki eşitliklerde verilmiştir:



Suyun ayrıştırılması için ısı enerjisi ve serbest enerji değişimine ihtiyaç vardır. Eşitlik 2.9 ve eşitlik 2.10'da gaz veya sıvı formda bulunan su, tersinir şartlar altında aynı sıcaklık ve basınç altında oksijen ve hidrojen gazlarına ayrıştıklarında geçerlidir. Oda sıcaklığında 25°C (298 K) de 2.9 ve 2.10 numaralı denklemlerdeki termodinamik değişkenler için;

$$\Delta H = \Delta G + Q \quad (2.12)$$

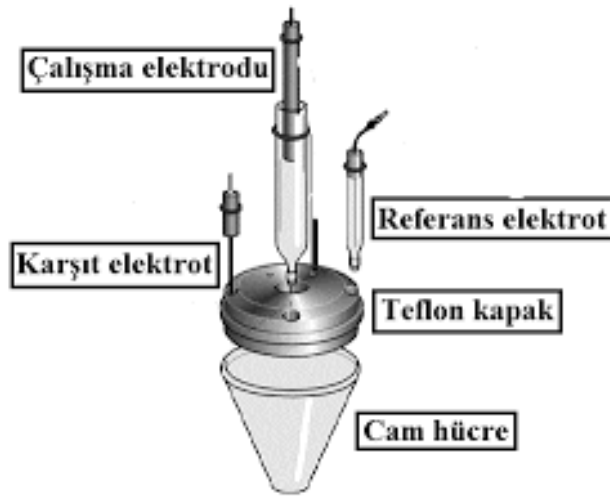
Tersinir süreçler için;

$$Q = T\Delta S \quad (2.13)$$

Eşitlik 2.12'de  $\Delta H$  entalpi değişimini,  $\Delta G$  Gibbs serbest enerji değişimini ve  $Q$  ise ısı enerjisi miktarını ifade eder. Eşitlik 2.13'te yer alan,  $\Delta S$  entropi değişikliğini ve  $T$  mutlak sıcaklığı belirtir. Terim olarak  $T\Delta S$  ise, suyun  $T$  mutlak sıcaklığında oksijen ve hidrojene ayrılması için ihtiyaç duyulan ısı miktarını belirtir. Sıcaklığın yükselmesi, entropi değişikliğini bir miktar azaltır (Ohta vd., 1985). Hem suyun hem de açığa çıkan oksijen ve hidrojenin, gaz formundaki sıcaklıkları için, entalpiye karşılık sıcaklık grafikleri incelendiğinde ortaya çıkan veriler, suyu oda sıcaklığında ayrıştırmak için ihtiyaç duyulan enerjinin %85'inden çoğunun Gibbs serbest enerjisi olduğunu açıklığa kavuşturmuştur. Bu da bu süreçte bu denli büyük miktarlardaki enerji gerekliliğinin sebebini açıklamaktadır (Ohta, 1988).

### 2.7.2 Elektrokimyasal hücre

Elektrokimyasal hücre sistemleri, çalışma elektrodu, referans elektrot ve karşı elektrot içeren üçlü elektrot sisteminden meydana gelmektedir (Şekil 2.10). Genellikle referans elektrot olarak Ag/AgCl ve karşı elektrot olarak genellikle platin tercih edilmektedir (Karabilgin, 2012).



**Şekil 2.10.** Elektrokimyasal hücre düzeneği (Sağır, 2018).

#### **2.7.2.1 Referans elektrotlar**

Karşılaştırma elektrotlarıdır. Elektrokimyasal işlemin gerçekleşmesi için, elektrotlardan bir tanesinin değerinin bilinmesi gerekir ve sabit bir potansiyele sahip olup burada kullanılmakta olan elektrolit çözeltisinin bileşenlerinden bağımsız olmalıdır. Sistemde bu rolü ise referans elektrot üstlenmekte ve çalışma elektrodunun potansiyelini saptayabilmek için potansiyelinin referans alındığı elektrottur.

#### **2.7.2.2 Karşı elektrotlar**

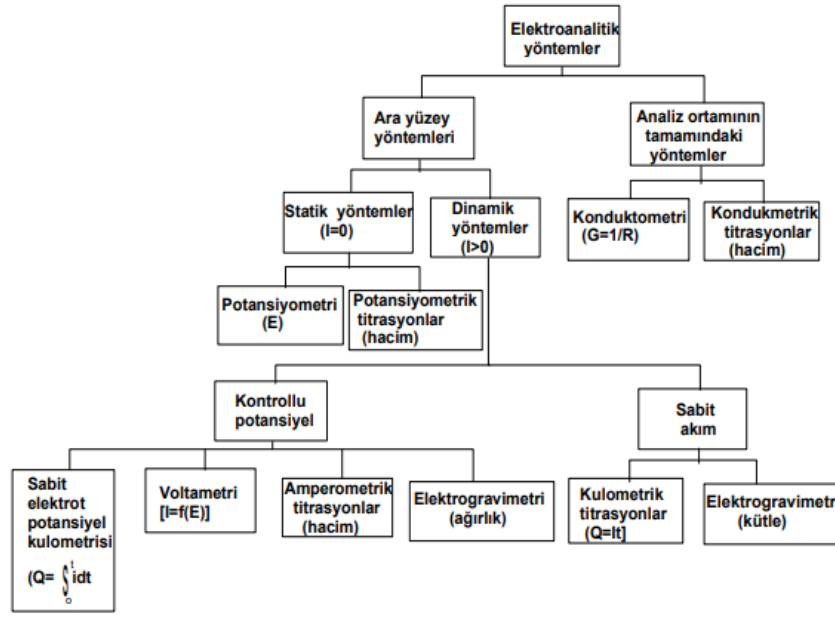
Genellikle platin, altın, karbon, metal oksit ve grafit karşı elektrot kullanımında tercih edilirken, karşı elektrodun sistemdeki rolü devrenin tamamlanmasını sağlamaktır.

#### **2.7.2.3 Çalışma elektrotları**

Seçimi yapılırken yüzey morfolojisi ile birlikte aktivitesi göz önüne alınan çalışma elektrodu, aynı zamanda üzerinde elektrokimyasal tepkimenin gerçekleştiği elektrottur (Köseoğlu, 2013).

### **2.8 Elektroanalitik Yöntemler ve Sınıflandırılması**

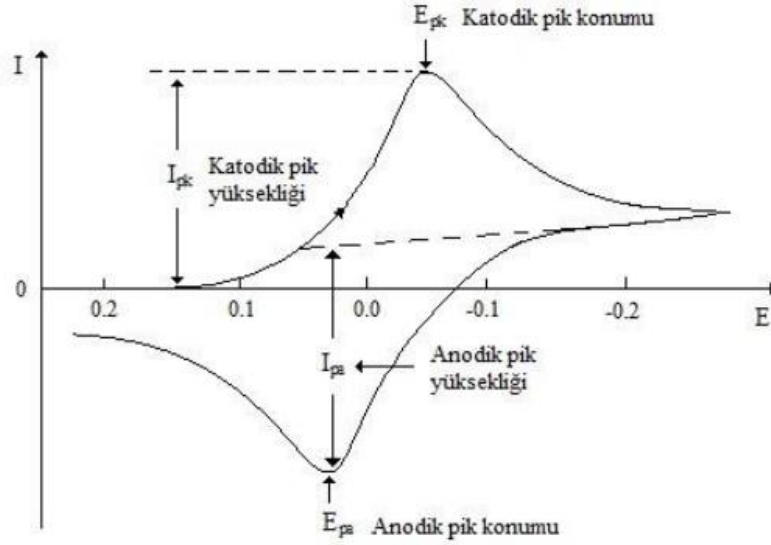
Elektroanalitik yöntemlerin sınıflandırılması Şekil 2.11’de verilmiştir. Bu çalışmada, elektrokimyasal ölçümler yapılırken kullanılan döngüsel voltametri (CV), Tafel polarizasyon eğrileri, elektrokimyasal impedans spektroskopisi (EIS) ve kromamperometri yöntemleri incelenecektir.



Şekil 2.11. Elektroanalitik yöntemlerin sınıflandırılması (Skoog vd., 1998).

### 2.8.1 Döngüsel voltametri (CV)

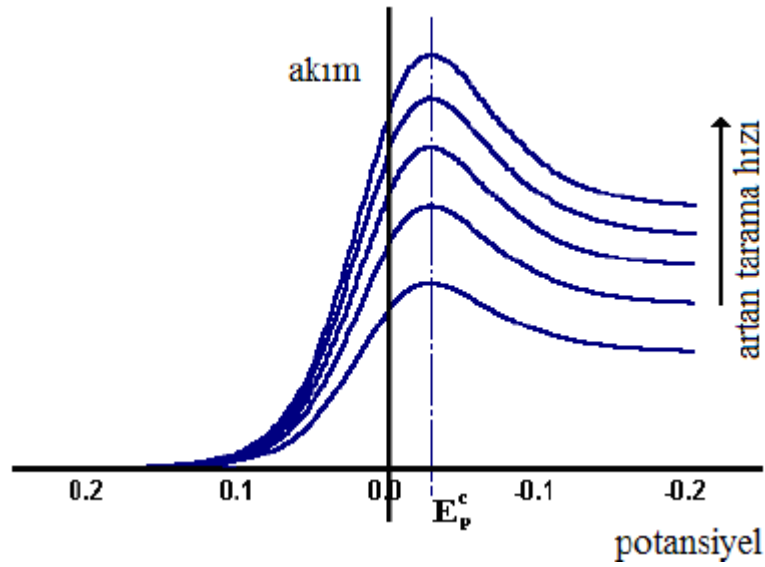
Voltametri yönteminin çalışma ilkesi incelendiğinde; iki ya da üç elektrotlu hücrelerde uygulaması sağlanabilen, üç elektrotlu elektroliz sistemlerinde çalışma elektrotu ve karşı elektrot, iki elektrotlu sistemlerde ise çalışma ve referans elektrot arasından, polarize olması mümkün olan bir indikatör elektrot ile referans elektrot arasına değeri süreç içerisinde farklılaşan bir potansiyel uygulanması neticesinde oluşan akımın ölçülmesi olarak değerlendirilebilir (Bond, 1980; Yıldız ve Genç, 1993). CV yöntemi, çözelti içerisindeki elektrotlar ve çözelti arasında bulunan farklı elektroaktif türlerin şekilde incelenmesi fırsatını tanıyan en uygun voltametrik yöntemler içerisinde yer almaktadır. Bu yöntemde, potansiyel önce doğrusal bir şekilde artar ve pik noktasına ulaştıktan sonra yine doğrusal bir şekilde azalarak başlangıç noktasına ulaşır ve bu sayede elektrokimyasal tepkimelerin nitel ve nicel durumları konusunda fikir verir (Şekil 2.12).



**Şekil 2.12.** Tersinir bir elektrot tepkimesinde elde edilmiş olan potansiyel-akım eğrileri (Yaman, 2017).

Bu yöntem ile beraber tercih edilen çalışma elektrodunun tersinirlik durumu, reaksiyon neticesinde ortaya çıkan ürünlerin kararlı olup olmadığı, çeşitli nicel analizler, adsorbsiyonun gerçekleşmesi ve bu elektrotun hızı ile indirgenme ve yükseltgenme tepkimeleri gibi çeşitli değişkenler üzerinde çalışma yapılabilmesi sebebi ile elektroanalitik yöntemler kullanılarak yapılan çalışmaların büyük çoğunluğunda tercih edilmektedir.

Çalışma elektroduna doğrusal artış gösteren bir potansiyel değerin uygulanması ile belirli bir değere ulaşılır ve sonrasında aynı potansiyel doğrusal olarak bu defa tam tersi yönde olacak şekilde tatbik edilir. Başlangıçta sistemdeki türlerde indirgenme olayı gerçekleşiyorsa zıttı bir şekilde yükseltgenme gerçekleştirirlerken, başlangıçta yükseltgenme olayı gerçekleşiyorsa yine zıttı bir şekilde indirgenme gerçekleşir ve bu sayede bu türlerin kararlılıkları veya bu indirgenme-yükseltgenme işlemlerinin kaç basamakta gerçekleştiği konusunda bilgi sahibi olmak mümkün hale gelir. Burada dikkat edilmesi gereken nokta ise, sisteme uyguladığımız potansiyel değerlerinin reaksiyonun başladığı değerlerde olmamasına dikkat etmektir (Güney, 2010; Mülazımoğlu, 2008; Şahin, 2007).



Şekil 2.13. Döngüsel voltametride potansiyelin tarama hızı ile değişimi (İsbir, 2007).

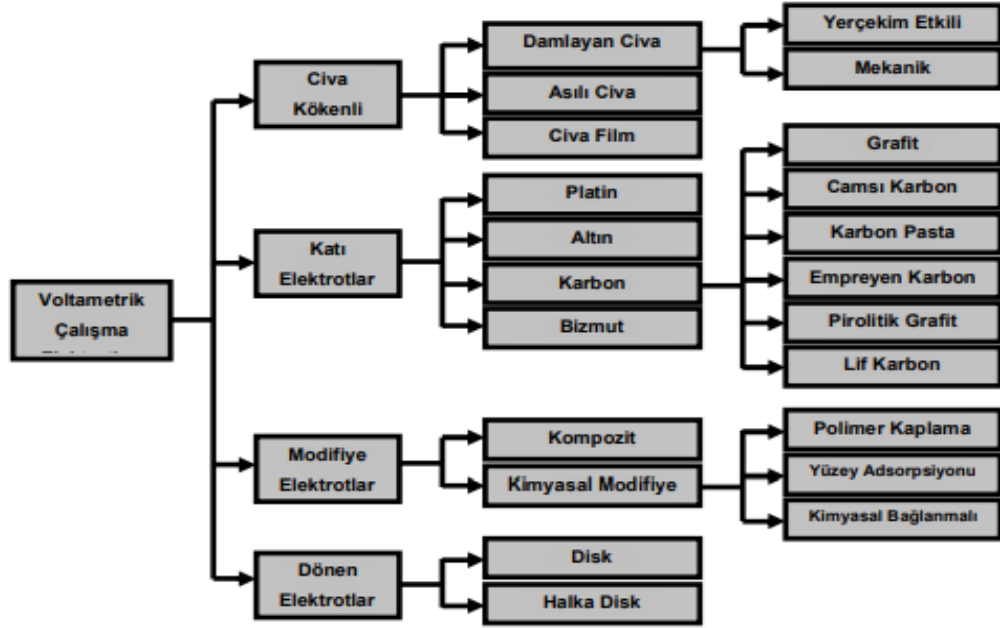
#### 2.8.1.1 Voltametri de kullanılan elektrot türleri

Elektrolizde gerekli güç ihtiyacının en az seviyeye getirilebilmesi için burada kullanılan her tür elektrotun muhakkak sahip olması gereken üç temel nitelik mevcuttur. Bunlardan ilki, kullanılan malzemenin elektrik iletkenliği mutlaka iyi olmalıdır. Bir diğer özellik ise, tercih edilen elektrot düşük aktivasyon üst potansiyeline yani düşük Tafel eğimine sahip olmalıdır. Son olarak da, elektrokimyasal işlem esnasında kesinlikle pasifleşmemeli yani reaksiyonun ilerlemesine mani olacak bir oluşum elektrot üzerinde gözlenmemelidir. Tercih edilen elektrotun katı bir elektrot olması halinde ise hücre performansının yeterli ve etkili seviyede olabilmesi için birtakım farklı özelliklere de sahip olması gereklidir. Bunlar:

- Kullanılacak olan elektrotun hazırlanması ve üretilmesi kolay olmalıdır.
- Elektrokimyasal hücre içerisinde mevcut olan bileşenlere karşı, korozyon direnci yüksek olmalıdır.
- Ekonomik olmalıdır.
- Boyutsal olarak kararlı ve yüksek dayanımda olmalıdır (URL-8).

Şekil 2.14’te sıklıkla kullanılan elektrotlar sınıflandırılmıştır.





**Şekil 2.14.** Voltametrik çalışma elektrotlarının sınıflandırılması (Yaman, 2017).

### Civa kökenli elektrotlar

Anodik çalışma aralığının dar olduğu civa kökenli elektrotların, daha pozitif potansiyellerde çalışmanın zorunlu olduğu durumlarda, elektrot malzemesinin çalışma aralığının buna müsaade etmesi gereklidir. Yani malzeme, Anodik çözünme açısından çok daha pozitif değerlerde olmalıdır. Bu yüzden, bu nitelikleri taşıyan bazı soy metaller (altın veya platin gibi) elektrot yapımı için tercih edilir. Bu şekilde elde edilmiş olan katı elektrotlar, istediğimiz anodik çalışma aralığını bizlere sağlar ancak yüzey yenilenmelerinin olmaması ve çeşitli etkilerle meydana gelen yüzey kirlilikleri, elektrotların kullanımı ile elde edilen sonuçların tekrarlanabilirlik açısından istenilen düzeyde olmamasına sebebiyet verir.

### Katı elektrotlar

Katı elektrot sınıfında yer alan ve kullanımı oldukça yaygın olan platin elektrotlar, direkt olarak kullanılabildikleri gibi modifikasyonu sağlanarak (yüzeyi farklı kimyasal işlemlere maruz bırakılarak) da kullanılabilirler. Bir diğer katı elektrot türü olan altın ise, belirli bir konsantrasyona kadar oksijeni emmediğinden dolayı, yapılan çalışmaların bazılarında platine kıyasla çok daha iyi bir elektrot malzemesidir. Platin gibi, direkt olarak veya modifiye edilerek de kullanılabilir.

Çalışma aralığının oldukça yüksek, elektriksel direncinin düşük ve yüzey yapısının ise tekrarlanabilir olması gibi nitelikleri sayesinde karbon elektrotlar, ideal bir elektrot materyali olarak kabul edilir. Yapılan elektrokimyasal işlemlerde grafit, camsı karbon, karbon pasta ve karbon film gibi farklı formlarda kullanılabilir.

Çalışmamızda kullanmış olduğumuz grafit elektrotların kullanım sahaları elektrokimyasal işlemlerde oldukça geniştir. Doğal oluşumlu olan grafitin, kül içeriğinden dolayı, yapay formunun kullanımı tercih edilir.

Yaygın kullanıma sahip diğer bir karbon elektrot türü ise camsı karbon elektrotlardır. Bunlar bazı polimer yapılarının 1800°C civarı sıcaklıklarda degradasyonları ile oluşurlar ve sert içerikli materyaller oldukları için her çalışma öncesinde parlatılarak, yüzey temizliği sağlanabilir.

Karbon pasta elektrotlar, toz halindeki grafitin organik bir sıvı (nujol) ile karıştırılıp pasta hazırlığından sonra, sıkıştırma işlemi ile bir tüp içerisine dolumu gerçekleştirilir. Bakır veya platin tel yardımıyla ile de elektriksel bağlantı sağlanmış olur. Potansiyel çalışma aralıkları oldukça geniş olan karbon pasta elektrotların yapım ve yüzey yenilenmeleri kısa bir zaman diliminde gerçekleştirilebilmektedir.

Kullanımına son yıllarda başlanan ve üretimi için özel teknikler gerekli olan mikro karbon elektrotlar, daha fazla mikro elektrot olarak şeklinde kullanılmakla birlikte yaklaşık 5-10 µm çapında lif formunda sahip karbon tellerdir. Karbonun farklı bir yapay formu ise pirolitik grafittir. Hidrokarbon içerikli maddelerin 1200°C'ın üzerindeki sıcaklık değerlerinde degradasyonu ile eldesi sağlanır.

Son olarak bir diğer katı elektrot çeşidi olan bizmut elektrotlara kısaca değinilecek olursa, bizmut elektrot üzerinden çıkış yapan hidrojenin potansiyelinin çok yüksek oluşu, onun katodik bölgede kullanılma ihtimalini meydana getirmiştir. Zehirlilik ve uçuculuk oranının civaya göre oldukça düşük olması ona bu anlamda üstünlük sağlayan özelliklerdir (Yıldız ve Genç, 1993).

### **Modifiye elektrotlar**

Modifiye elektrotlara ihtiyaç duyulmasının sebebi, kullanımı gerçekleşen elektrot materyallerinin sınırlı çalışma şartlarına sahip olmasıdır. Bu sebeple, kimyasal veya

elektrokimyasal özelliklerin istenilen şekilde değişimi sağlanarak modifiye elektrotlar geliştirilmektedir. Yüzeyin farklı bir materyalle kaplanması yoluyla istenilen kimyasal ve elektrokimyasal üstünlüklerdeki farklı ve yeni bir elektrot elde edilmesi yöntemi modifikasyon olarak nitelendirilirken, oluşan bu yeni elektrot ise modifiye elektrot olarak isimlendirilmektedir (Karabilgin, 2012; Şahin, 2007). Modifiye elektrotlar kompozit ve kimyasal modifiye elektrotlar iki grupta incelenebilir.

### **Kompozit elektrotlar**

Modifikasyonda görevli kimyasal maddenin, direkt olarak iletken elektrot malzemesine katılarak, homojenizasyonu sağlanarak hazırlanan bu yeni elektrot kompozit elektrot olarak tanımlanır.

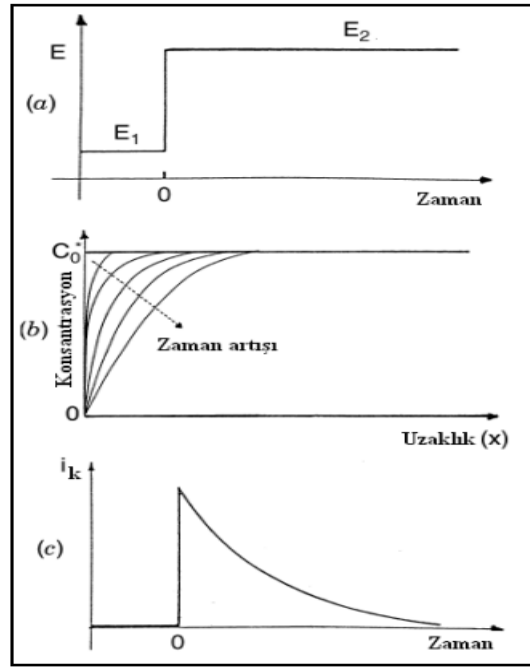
Modifikasyondan sorumlu madde, karbon eşliğinde sıkıştırılarak pellete dönüştürülerek yapılabildiği gibi; nujol veya karbon tozu yardımıyla pasta formuna getirilerek de uygulanabilir.

### **Kimyasal modifiye elektrotlar**

Burada modifiye edici kimyasalın; kaplanacak elektrotun yüzeyine kimyasal bağ oluşturarak ya da kimyasal adsorbsiyon ile tutunması sağlanabilir. Ek olarak modifikasyona uygun seçilen bir monomerin modifiye edilecek elektrot yüzeyinde elektropolimerizasyon işlemine tabi tutularak veya direkt elektrotun yüzeyi üzerinde polimer bir film tabakası oluşturularak da bu elektrotlar hazırlanabilir (Yıldız ve Genç, 1993).

#### **2.8.2 Kronoamperometri (CA) yöntemi**

Kronoamperometri yönteminin kullanılmasıyla, indikatör (çalışma) elektrotun potansiyeli, yüzeyde mevcut olan tür derişimlerinin hemen hemen 0 değerinde olduğu bir potansiyel değeri ( $E_1$ ) ve elektrokimyasal sistem içerisinde bulunan elektronların iletim hızlarının oldukça yüksek olduğu bir potansiyel değere ( $E_2$ ) birdenbire farklılaştırılması yoluyla durağan şartlarda zaman ve akım arasındaki ilişkinin incelenmesi sağlanmaktadır (Şekil 2.15). Buradaki  $E_1$  ve  $E_2$  potansiyellerin tercihi için CV diyagramlarına bakılarak karar verilmesi daha isabetli bir karar olacaktır.



**Şekil 2.15.** a) CA yapılan çalışmalarda potansiyel-zaman dalga şekli b) Konsantrasyonun zamanla değişimi, c) Akımın zaman değişimi.



Reaksiyonun herhangi bir elektrot yüzeyinde ilerlediği, tepkime başladığı sırada çözeltinin içerisinde sadece O türünün bulunduğu kabul edilirse;

Seçilen elektrota bir indirgenme veya yükseltgenmenin gerçekleşmediği  $E_1$  potansiyel değerinin uygulanmasının ardından bu potansiyel değerinin birdenbire  $E_2$  potansiyel değerine değiştirilmesinin ardından, seçilen  $E_2$  değerinde belirli bir zaman diliminde sabit bırakılır. Şekil 2.15.a’da görüldüğü üzere belirli bir süre sabit kalan  $E_2$  potansiyeli uygulandığı anda, 2.14 nolu denklemde belirtilen tersinir reaksiyon meydana gelir ve yüzeyde O konsantrasyonu 0 olur. Bununla birlikte, elektrot yüzeyinde oluşan bu değişiklik, elektrot yüzeyine gerçekleşen madde yayılımına neden olur. Bu yayılım sonucunda elektrot yüzeyine ulaşan O maddesi indirgenerek R maddesine dönüşmüş olur. Bu şekilde yüzeyde oluşan R maddesi ve tükenen O maddesi, yayılımla yüzeye ulaşmış olan O maddesinin miktarı ile sınırlanmış olur.

Bir elektrot yüzeyinde  $O + ne \leftrightarrow R$  reaksiyonunun yürüdüğünü ve başlangıçta çözeltide yalnız O maddesinin bulunduğunu varsayalım. Önce çalışma elektroduna herhangi bir redoks reaksiyonunun olmadığı (indirgenme veya yükseltgenme)  $E_1$

potansiyeli uygulanır. Sonra ani olarak elektrodun potansiyeli  $E_2$ 'ye değiştirilir.  $E_2$  potansiyeli, elektroaktif maddenin indirgenmesi difüzyon kontrollü olacak şekilde seçilir. Potansiyel  $E_2$  değerinde belirli bir süre sabit tutulur.  $E_2$  potansiyeli uygulanır uygulanmaz,  $O + ne \leftrightarrow R$  gösterilen reaksiyon meydana gelir ve elektrot yüzeyinde O konsantrasyonu sıfır olur. Bunun sonucunda elektrot yüzeyi civarında O türünün konsantrasyonundaki farklılıktan dolayı elektrot yüzeyine doğru difüzyonla madde taşınması meydana gelir. Elektrot yüzeyine difüzyonla gelen O türü hemen indirgenir ve R türüne dönüşür. Dolayısıyla elektrot yüzeyinde tüketilen O türü ve oluşturulan R türünün miktarları, difüzyonla elektrot yüzeyine gelen O türünün miktarı ile sınırlanır (Büyükkaya, 2011). Sistemin belirli bir süre sabit tutulduğu  $E_2$  potansiyelinde meydana gelen akımın zamanla değişimi Cottrell eşitliği ile ifade edilir:

$$i = \frac{nFD^{1/2}C_0}{\pi^{1/2}t^{1/2}} \quad (2.15)$$

Eşitliğe göre akım,  $t^{-1/2}$ 'ye göre grafiğe geçirildiğinde orijinden geçen bir doğru elde edilmektedir. Burada,  $i$ , herhangi bir  $t$  anındaki akımdır ve birimi A'dır.  $n$ : molekül başına aktarılan elektron sayısı,  $F$ : Faraday sabiti,  $A$ : elektrot yüzey alanı ( $\text{cm}^2$ ),  $D$ : O maddesinin yayılım katsayısı ( $\text{cm}^2/\text{s}$ ),  $C_0$ : O maddesinin konsantrasyonu ( $\text{mol}/\text{cm}^3$ ) ve  $t$ : zaman (s)'dir.

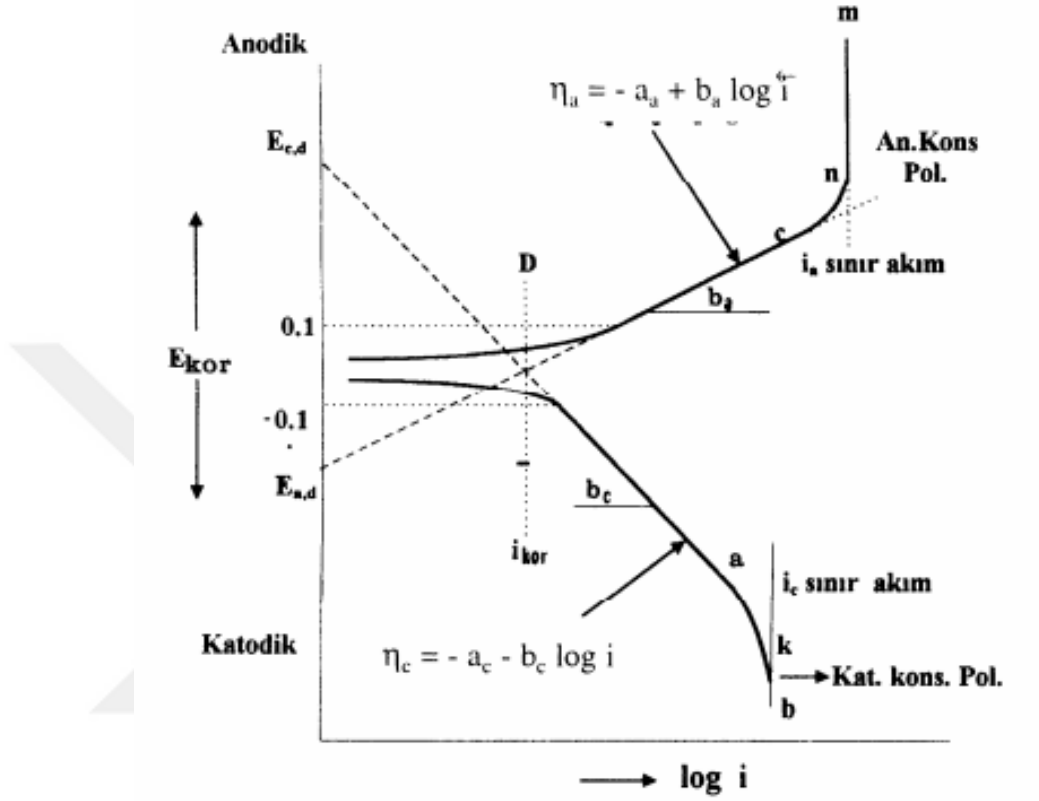
Elde edilen bu grafik yardımıyla bir elektrot reaksiyonunda;

- Reaksiyonun yayılım kontrolünün varlığı,
- Elektroaktif türün yayılım katsayısı,
- Taşınan elektron sayısı ve elektrot tepkime mekanizması,
- Elektron transferinin gerçekleştiği basamağa ait kimyasal tepkimenin hız sabiti gibi bazı verilerin eldesi mümkün hale gelir (Uçar, 1998).

### 2.8.3 Tafel polarizasyon eğrileri

Tafel polarizasyon eğrileri kullanılarak, korozyona maruz kalmış bir metal için oluşturulan katodik ve anodik potansiyel eğrileri, deneysel yöntemle saptanır ve bu değerlerin çizgisel bölümleri uzatıldığında doğruyu kestiği noktalardan korozyon hızı ve korozyon potansiyeli sistem için belirlenebilir (Küstü, 2008).

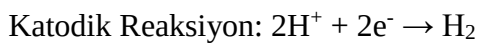
Sistemde belirlenmiş olan çalışma elektrodunun referans elektroda karşı voltmetrede belirlenmiş değer olan korozyon potansiyeli değerinden başlanıp, katodik ve anodik yönlerde yarı logaritmik olarak çizilen potansiyel ve akım yoğunluk eğrileri yoluyla korozyon hızı veya akımı belirlenebilir (Şekil 2.16) (Altınöz, 1995).



**Şekil 2.16.** Tafel polarizasyon eğrileri yardımıyla korozyon akım ve potansiyel değerlerinin bulunması.

$$E = a + b \log i \quad (2.16)$$

E materyal potansiyelini, i akım yoğunluğunu, a ve b sabitleri ifade eder. “b” değeri Tafel eğiminin hesaplanmasıyla elde edilen değerdir. Elde edilen grafik yardımıyla Stern-Geary denklemi elde edilebilmektedir (Stern ve Geary, 1957):



Burada M, bir metali temsil etmektedir. Redoks tepkimelerinde denge anında:

$\alpha$  ve  $\beta$ , sırasıyla anodik ve katodik tafel sabitleri olmak üzere; Tafel grafik eğimi yardımıyla, polarizasyon direnci hesaplanabilir.

$$R_p = \frac{\Delta E}{\Delta i} \quad (2.17)$$

Korozyon direnci ise eşitlik 2.18 yardımı ile hesaplanır.

$$i_{kor} = \frac{\alpha \beta}{2.3(\alpha + \beta)} \frac{1}{R_p} \quad (2.18)$$

Hidrojen oluşumu tepkime mekanizması, asidik ortam şartlarında üç farklı reaksiyon basamağı ile belirlenebilmektedir. Volmer basamağı olarak isimlendirilen ilk olası basamak adsorbe hidrojen atomunun ( $H_{ad}$ ) meydana geldiği basamaktır:



Adsorbe hidrojen atomunun olduğu bu basamaktan sonra iki farklı olası adım mevcut olmakla beraber, bunlardan ilki olan Hevrosky reaksiyonu ile adsorplanan hidrojen atomuna bir elektron transferi ile  $H_2$  gazı oluşmaktadır:



Bu adımlardan ikincisi, adsorbe olan iki hidrojen atomunun bir araya gelerek  $H_2$  gazı çıkışını oluşturduğu Tafel basamağıdır:



Bu basamaklar arasındaki fark ise, hızı belirleyen basamağın hangi basamak olduğudur. Belirlenen Tafel eğiminin  $b=120$  mV/decade olması durumunda Volmer basamağı hızı belirleyen basamak,  $b=40$  mV/decade olması durumunda Hevrosky basamağı hızı belirleyen basamak ve yine Tafel eğiminin  $b=30$  mV/decade olarak belirlendiği durumda ise hızı belirleyen basamak Tafel basamağıdır (Chung vd., 2014).

#### 2.8.4 Elektrokimyasal impedans spektroskopisi (EIS)

Uzun süredir korozyon hızının ölçülmesi için başarıyla kullanılan bir yöntem olan EIS tekniği, bir sistemdeki elektrokimyasal yapı hakkında birçok soruya yanıt verdiği için birçok sektörde tercih edilmektedir. Elektrot üzerine etkisi doğru akım kaynakları ile

gerçekleştirilen elektrokimyasal yöntemlere kıyasla çok daha az olduğu için, güvenilir veriler elde edilmektedir (Cogger ve Evans, 1999).

İdeal koşullar için, direncin, voltaj ile akım arasındaki orana eşit olduğunu belirten Ohm yasası incelenerek yöntemin daha iyi anlaşılması mümkün hale gelir:

$$R = \frac{E}{I} \quad (2.22)$$

Eşitlikte; E, doğru akım potansiyelini belirtir ve burada potansiyelin birimi volt (V), akımın birimi amper (A) ve direncin birimi ise ohm ( $\Omega$ ) dur.

Sistemde farklı türdeki devre elemanlarının kullanılması veya frekans değerinin sıfır olmadığı hallerde, direnç kavramını impedans kavramı karşılamakta ve eşitlik böylece 2.24'deki gibi olmaktadır (Gerengi, 2008).

$$Z = \frac{E}{I} \quad (2.23)$$

Eşitlik 2.23'te Z değeri impedansı belirtmektedir. Sinüs akım dalgasını ifade edecek olursak;

$$I = A \cdot \sin(\omega t + \Phi) \quad (2.24)$$

Eşitlik 2.24'te I akımı, A değeri maksimum akımın şiddetini,  $\omega$  frekans değerini,  $\Phi$  ise faz değişimini ifade eder.

Elektrokimyasal sistem, eşdeğer elektriksel devre terimleri ile ifade edilirse,  $R_0$  sistemdeki kararsız direnç değeri, çalışma elektroduyla referans elektrot arasındaki dirence eşittir.  $R_p$  polarizasyon direnci elektrot ile çözelti ara yüzeyinde bulunur. Elektrokimyasal reaksiyonun derecesi yardımıyla polarizasyon direnci hesaplanabilir.

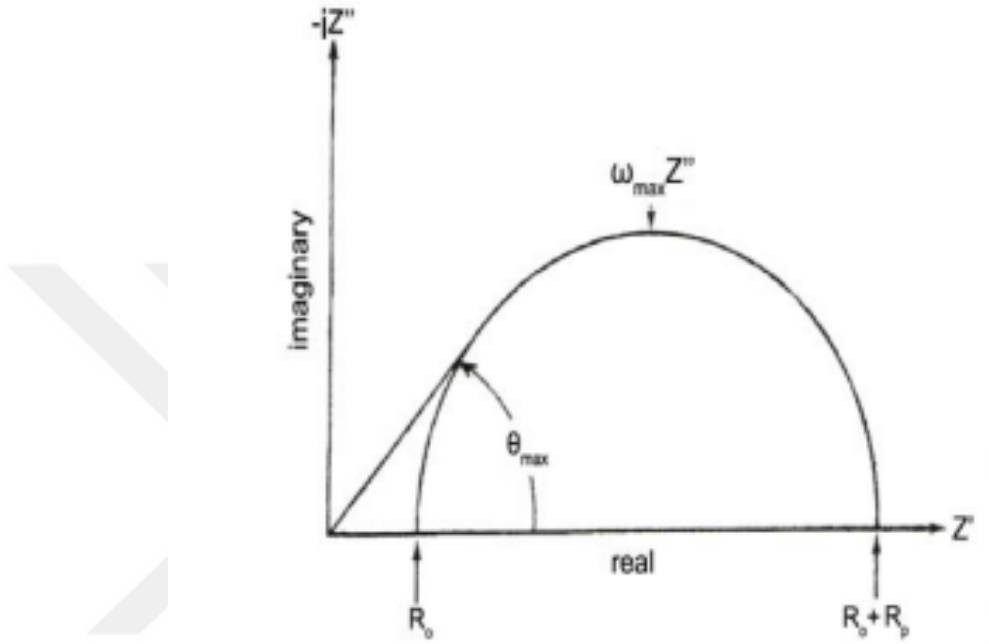
Elektrokimyasal impedans ölçümlerinin amacı, aslında elektrokimyasal sistemin bir nevi doğrulanmasıdır. Bu sisteme uygun, eşdeğer bir devre modellemesi yapmak istenir. Genellikle bu sistemlerde frekans aralığı 0,001-10000 Hz olarak tercih edilir. Sadece elde edilen eğrinin şeklinden hareketle kimyasal sistemin davranışı belirlenebilir (Şekil 2.17).



Nyquist grafiğinde; hayali impedans değerine ( $Z''$ ) ne karşı gerçek impedans değeri ( $Z'$ ) çizildiğinde elde edilen grafik bir devreye uygun gelmektedir ve buradan:

$$\omega^{\theta_{\max}} = 1/CR_p[(1+R_p)/R_0] \quad (2.25)$$

$$\omega^{\theta_{\max}} = 2\pi f^{\theta_{\max}} \quad (2.26)$$



**Şekil 2.17.** Nyquist diyagramı

Grafik yardımı ile  $R_p$ ,  $R_0$  ve  $C$  değeri hesaplanabilmektedir. Burada yarım dairenin çapının küçülmesi, sisteme gösterilen direncin azaldığı anlamına gelir. Frekans değeri elektrokimyasal sistemdeki davranışa bağlı olduğu için, elektrokimyasal sistem Bode grafiği kullanılarak Nyquist grafiğine oranla daha iyi belirlenebilmektedir. Genellikle veriler yarım daire şeklinde olduğunda Nyquist diyagramları tercih edilirken, dağınık olması durumunda ise Bode diyagramı kullanılmaktadır (Küstü, 2008).

## 2.9 Nanomalzemeler ve Özellikleri

Nanoteknoloji, boyutları oldukça küçük yapıların olağanüstü özelliklerini kullanılabilir pozisyona erdirtirebilmek amacıyla çeşitli geliştirilmiş farklı yöntemler yardımı ile nanometrik skalada bulunan çeşitli malzeme, makine veya araçların yapımına olanak sağlayan teknolojilerdir.

Boyut olarak bakıldığında bir nanometre, metrenin milyarda birine ( $10^{-9}$  m) eşittir. Yani yaklaşık olarak insanda mevcut bir saç telinin yüz binde biri, kan hücrelerinin binde biri ve DNA yapısının yarısı büyüklüğünde bir büyüklüktür (URL-9).

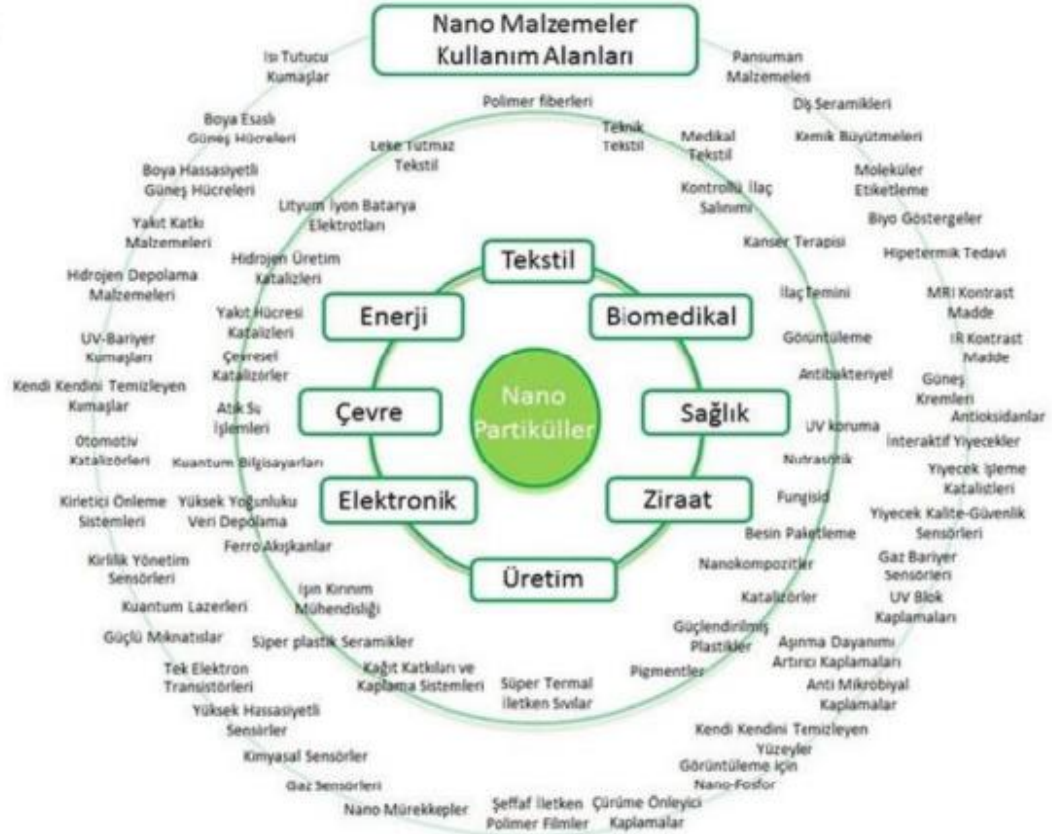
Kısaca nanoteknoloji, milyarda bir boyutlara sahip olan malzemelerin fiziksel, kimyasal ve biyolojik yapılarının araştırıldığı ve incelendiği, bunların kullanım alanlarıyla ilgilenmekte olan disiplinler arası bir sahadır (Alagarasi, 2011).

Bu noktada nanomalzemeler ise, nanoteknolojinin mihenk taşlarıdır ve bu boyutta benzersiz manyetik, elektriksel ve optik özelliklere sahiptirler. Nanoteknolojiyi bu denli önemli kılan sebep ise, bu boyuttaki malzemelerin makro boyuttaki çeşitli özelliklerinin, nano boyuta geçtiğinde kayda değer bir biçimde farklılaşmasıdır (Rao vd., 2007). Nanomalzemeler, yapısal olarak en az bir yönde nano skalaya sahiptirler. Boyutsal morfolojilerine göre, 0D (nanopartiküller), 1D (tabakalı veya lamelli yapılar), 2D (telsi yapılar) ve 3D (kütlesel nano yapıları malzemeler) yapılarda olabilirler.

Bu malzemeler, 1 ile 100 nm aralığındaki boyutlarda, tüpler, elyaflar ve nano ölçekli parçacıklar gibi yapısal elemanlardan meydana gelmektedirler. Bu nano boyutlarda ortaya çıkan benzersiz özelliklerden ötürü son dönemlerde nanomalzemelere duyulan ilgi ve bu konudaki çalışmalar artmıştır.

Makro boyuttan nano boyuta inildiğinde, oluşan nanomalzemenin en az bir boyutunun nano ölçekte olması sebebi ile yüzey alanı önemli ölçüde artmaktadır. Yüzey alanının önemli ölçüde artması ise, malzemenin elektriksel, mekanik ve ısı özelliklerini etkileyen yapıların kimyasal aktivitesinin artmasına sebep olur. Burada yüzey alanı artışına ek olarak davranış değişikliğinin sebeplerinden bir diğeri de kuantum etkisidir. Atomik seviyelerde, bu etki nanomalzemelerin optik, elektrik ve manyetik davranışları için oldukça önemli bir rol oynamaktadır (Değirmenci, 2019)

Bütün bu özellikleri sebebiyle, tıp, tekstil, elektronik, otomotiv ve biyomedikal gibi çeşitli alanlarda önemli kullanım potansiyeline sahiptirler (Şekil 2.18) (Değirmenci, 2019).

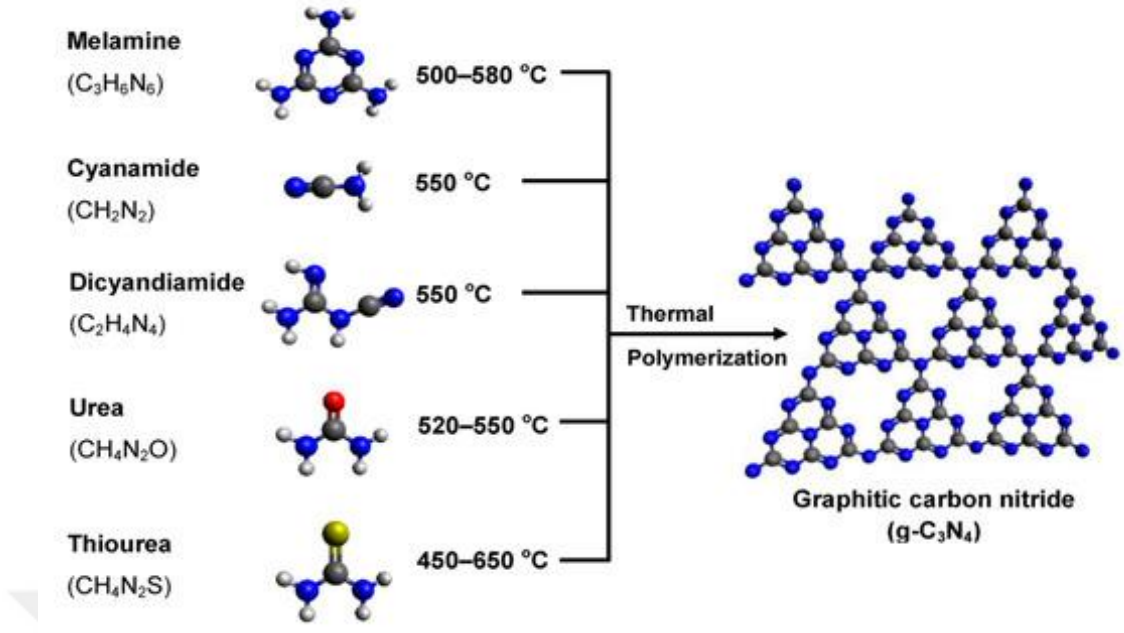


Şekil 2.18. Nanomalzemelerin kullanım alanları (URL-10).

## 2.10 Grafitik Karbon Nitrür (g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>) ve Özellikleri

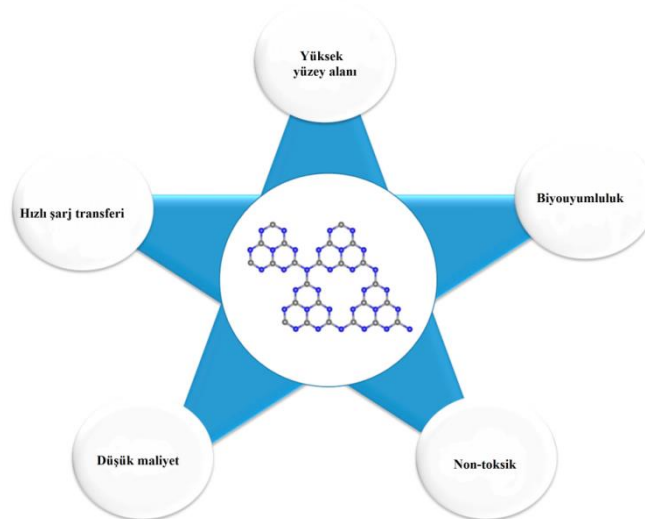
Konjuge yapılu bir polimer olan g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>, karbon ve nitrojenden meydana gelmiş, son dönemlerde isminden fazlasıyla söz ettirmeye başlamış, karbon dayanaklı kompozit bir maddedir (Magesa vd., 2019). g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub> hakkında yapılan araştırmalar ve çalışmalar neticesinde, farklı analitik birçok uygulamada kullanılabilirliği konusunda bilim insanları ve endüstriden oldukça fazla ilgi görmektedir.

Yapısındaki mevcut hidrojen ve karbon atomları, birbirlerine sp<sup>2</sup> hibritleşmesi ile bağlanmıştır. Bununla beraber, her biri C-N bağı ile birbirlerine bağlı olan C<sub>3</sub>N<sub>3</sub> (triazin) yapısı ile σ (sigma) bağı ile bağlanmış olan altıgen bir yapıya sahiptir (Wang vd., 2017). C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>'ün her biri uç kısımlarda nitrojen atomu ile bağ oluşturmakta ve bu sayede düzlemsel bir ızgara yapısına kavuşmuş olur.



**Şekil 2.19.** Grafitik karbon nitrür elde etme yöntemleri (Ong vd., 2016).

Sentez maliyetinin düşüklüğü ve yüzey alanının genişliği, görünür ışıkla çalışan mükemmel bir yarı iletken polimer oluşu, yüksek suda dağılılabilirlik, dikkate değer kimyasal kararlılık, toksik olmaması ve biyouyumlu bir madde olması ve bunun gibi birçok üstün katalitik özelliği  $g-C_3N_4$ 'ü ilgi çeken bir polimer haline getirmiştir (Azizi ve Edrisi, 2020; Liu vd., 2020).



**Şekil 2.20.** Grafitik karbon nitrürün özellikleri (İdris vd., 2020).

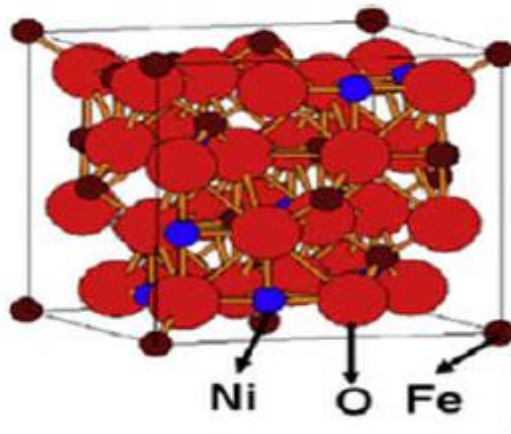
$g-C_3N_4$ , iki boyutlu grafen yapısındadır ve kimyasal-termal kararlılıkları son derece yüksek bir malzemedir. Bu sebeptendir ki; lityum içerikli metal anot ve iyon pillerde,

süperkapasitör ve çeşitli fotokatalizör uygulamalarda büyük yankı uyandırmıştır (Majdoub vd., 2020; Martin vd., 2014). Karbon nitrürün en kararlı allotropu olan g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>, karbon tabanlı birçok malzemeye kıyasla elektron bazında değerlendirildiğinde oldukça zengin yüzey özelliklerini barındırmaktadır (Iqbal vd., 2018).

Son olarak çalışmamızda kullandığımız şekilde g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub> içerikli kompozit yapıların, saf haldeki nazaran elektriksel iletkenliğinin çok daha iyi seviyelerde olması, aynı zamanda yüzey alanının yüksekliği ve elektrokimyasal kararlılıklarının daha gelişmiş seviyelerde yer alması, yapı bütünlüğünün daha iyi korunması gibi avantajlar bütünü barındırır (Sert ve Harputlu, 2022).

### 2.11 Nikel Ferrit (NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>) ve Özellikleri

Molekül formülü  $M^{+2}O.Fe_2^{3+}.O_3$  biçiminde olan ferrit yapıların, (M; Ni, Co, Zn, Fe, Cu gibi değerlik sayıları iki olan metaller) her birim hücreinde sekiz molekül mevcuttur (Şekil 2.21) (Vijaya ve Rangarajan, 1999-2000).



Şekil 2.21. NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> yapısı (Hunt vd., 1995).

Aynı zamanda dielektrik özellik gösteren ferrit yapılar, gözenekli yapıya sahiptirler. Nikel ferrit, ters spinel ferrit yapısında ve yumuşak manyetik bir malzemedir. Elektriksel öz dirençlerinin ve akım kayıplarının düşük olması spinel ferritleri mikrodalga frekanslar için ideal bir konuma taşırken, ferrit yapılar içerisinde kendine en sık kullanım alanı bulanlar spinel ferritlerdir.

Kimyasal yapıları  $MFe_2O_4$  şeklinde gösterilir. Çift değerliğe sahip metal iyonları ifade eden M yerine;  $Ni^{2+}$ ,  $Mg^{2+}$ ,  $Cr^{2+}$ ,  $Fe^{2+}$  gibi metaller yazılabilir ve spinel ferritlerin birim yapıları FCC (yüzey merkezli kübik) yapıdadır (Standley, 1972).

Nanokristal forma sahip nikel ferritler, düşük zorlayıcı alan ve yüksek elektrik direncine sahip olmalarının yanı sıra doğada bulunma miktarlarının da yüksek olması nedeni ile çeşitli uygulamalar için çok yönlü ve cezbedicilerdir (Abraham, 1994; Joshi, 2014).

Barındırdığı manyetik özellikleri ve sahip olduğu akım direnci yüksekliği nikel ferriti, güç dönüştürücülerinde kullanılmak üzere iyi bir çekirdek malzemesi yapar ve ek olarak manyetik ve elektronik üstün özellikleri sayesinde ileri teknolojik uygulama ve frekansı yüksek sistemler için kompozit malzemelerin elde edilmesinde kullanılmak üzere iyi bir seçenektir. Adsorpsiyon dengesindeki sapma kaybının yaklaşık 0 olmasından ötürü, telekomünikasyon ve çeşitli elektronik alanlarda kullanımı uygun olan bir malzemedir (Abraham, 1994; Azadmanjiri ve Ebrahimi, 2004; Ishanque vd., 2015; Dehghan vd., 2008; Salavati-Niasari vd., 2009).

## 2.12 Nikel Ferrit Sentezinde Kullanılan Yöntemler

Nikel ferrit sentezi için ortak çöktürme, termal parçalama, mikroemülsiyon ve hidrotermal sentez gibi yöntemler kullanılmaktadır. Çizelge 2.4'te sentez yöntemleri ve özelliklerine değinilmiştir.

**Çizelge 2.4.**  $NiFe_2O_4$  sentez yöntemleri (Özel, 2009).

| Yöntem                     | Sentez                      | Sıcaklık (°C) | Reaksiyon Periyodu | Çözücü         | Yüzey aktif ajan                        | Boyut dağılımı | Yüzey kontrol | Ürün miktarı |
|----------------------------|-----------------------------|---------------|--------------------|----------------|-----------------------------------------|----------------|---------------|--------------|
| <b>Ortak çöktürme</b>      | Basit, çevre şartlarında    | 20-90         | Dakikalar          | Su             | Gerekli, reaksiyon esnasında veya sonra | Görece dar     | İyi değil     | Yüksek       |
| <b>Termal parçalama</b>    | Komplike, inert atmosferde  | 100-320       | Saatler, günler    | Organik çözücü | Gerekli, reaksiyon esnasında            | Çok dar        | Çok iyi       | Yüksek       |
| <b>Mikro emülsiyon</b>     | Komplike, çevre şartlarında | 20-50         | Saatler            | Organik çözücü | Gerekli, reaksiyon esnasında            | Görece dar     | İyi           | Düşük        |
| <b>Hidro-termal sentez</b> | Basit, yüksek basınçta      | 220           | Saatler, günler    |                | Gerekli, reaksiyon esnasında            | Çok dar        | Çok iyi       | Orta         |

### 3.MALZEME VE YÖNTEM

#### 3.1 Çalışmada Kullanılan Kimyasallar

Yapılan tez çalışmasında, çalışma elektrodu olarak kalem grafit elektrot (KGE), yüzeyi g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>-NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> ile modifiye edilerek kullanılmıştır. İyi bir film oluşturma özelliğine sahip bor triflorür dietil etarat (BFEE), kompozit yapının elektrot yüzeyine daha iyi tutunması için kullanılmış, destek elektrolit olarak sülfürik asit (H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>) tercih edilmiştir. Elektrot yüzeyinin nikel parçacıklar ile modifikasyonu için nikel (II) sülfat (NiSO<sub>4</sub>), disodyum hidrojen fosfat (Na<sub>2</sub>HPO<sub>4</sub>) çözeltisinde hazırlanarak elektrolit olarak kullanılmıştır.

#### 3.2 Kullanılan Malzemeler

##### 3.2.1.Elektrokimyasal hücre

Tez çalışmasında uygulanan voltametrik ölçümler, Tafel polarizasyon eğrileri, elektrokimyasal impedans spektroskopisi (EIS) ve kronoamperometri (CA) gibi tüm elektrokimyasal çalışmalar, Şekil 3.1’de gösterilmiş olan elektrokimyasal hücre standında gerçekleştirilmiştir.



Şekil 3.1. Elektrokimyasal hücre standı.

### 3.2.2 Elektrotlar

Yapılan elektrokimyasal ölçümlerin tümünde çalışma elektrodu olarak KGE (2B serisi) kullanılmıştır. Grafit elektrodun polyester ile soğuk kaplama yapılarak dış cephesi izole edilerek 2 mm çaplı alt kısmı açıkta bırakılmış; geometrik alanı 0,0314 cm<sup>2</sup> olarak hesaplanmıştır. Yüzeyin temiz ve pürüzsüz olabilmesi için 200'den 2000 grite kadar farklı kalınlıklardaki zımpara kâğıtlarıyla her defasında yüzey temizlenmiştir. Hazırlanan elektrot 5 dakika süresince saf su içerisinde bekletilmiş sonrasında yıkanarak elektrokimyasal ölçümlerde kullanılmak üzere hazır hale getirilmiştir. Yapılan elektrokimyasal çalışmaların tümünde karşı elektrot olarak 0,5 mm çaplı ve 7,5 cm uzunluğunda platin (Pt) tel kullanılmıştır. Yapılan elektrokimyasal çalışmaların tümünde referans elektrot olarak MF-2052 model (BASİ) Ag/AgCl/Cl<sup>-</sup> elektrot kullanılmıştır.

### 3.2.3 KGE/g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> modifiye elektrodun hazırlanması

Hazırlanan 1 mg g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> kompozit yapısı 0,5 ml su içerisinde dispersiye edildikten sonra, elektrot yüzeyinde iyi bir film oluşturması amacıyla bu çözelti üzerine 10 µl bor triflorür dietil etarat ilave edilerek 40°C'ta 30 dk boyunca ultrasonik banyoda karıştırılarak g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> dispersiyon çözeltisi elde edilmiştir. Hazırlanan g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> dispersiyon çözeltisinden kalem grafit elektrot yüzeyine 5 µl mikro pipet yardımıyla enjekte edilmiştir.

Daha sonra hazırlanan elektrot 40°C'ta 50 dk boyunca etüvde bekletilerek kurutulmuştur. Oda sıcaklığına soğutulan elektrot suda 5 dk bekletilerek yıkanmış, elektrokimyasal ölçümlere hazır hale getirilmiştir.

Hazırlanan çalışma elektrodunun yüzeyinde daha sonra nikel elektrodepozisyonu ile nikel nanopartiküller oluşturulmuştur.

### 3.2.4 KGE/g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>/Ni modifiye elektrodun hazırlanması

0,05 M NiSO<sub>4</sub>, 0,1 M Na<sub>2</sub>HPO<sub>4</sub> çözeltisi içerisinde hazırlanmış, pH'ı 4'e ayarlanarak kullanılmıştır. Bu elektrolit içerisine daldırılan KGE/g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> elektroda, 800 s süreyle -0,8V sabit potansiyel uygulanarak kronoamperometrik olarak yüzeyde Ni nanopartikülleri oluşturulmuştur.



### 3.3 Ölçümlerde Kullanılan Cihazlar

#### 3.3.1 Elektrokimyasal çalışma ünitesi

Döngüsel voltametri (CV), Tafel polarizasyon eğrileri, elektrokimyasal impedans spektroskopisi (EIS) ve kronoamperometri (CA) ölçümlerinin tamamı, Gamry Instruments marka ve Interface 1000 Potansiyostat/Galvanostat/ZRA model elektrokimyasal çalışma ünitesi kullanılarak yapılmıştır.

#### 3.3.2 Taramalı elektron mikroskobu

Elektrot yüzeyi üzerinde oluşturulmuş olan nanokompozit yapıların yüzey özellikleri Taramalı Elektron Mikroskobu (ZEISS) ve yapıların kimyasal kompozisyonları bu cihaza entegre edilmiş Enerji Dağılımlı X-Işını Spektrometresi (EDS) yardımıyla incelenmiştir.

#### 3.3.3 Ultrasonik karıştırıcı

Çalışma elektrodu üzerinde kompozit film oluşturulurken çözeltilerin karıştırılıp homojenize olması amacıyla VWR marka ultrasonik temizleyici kullanılmıştır.

### 3.4 Yöntem

#### 3.4.1 Nikel ferrit ( $\text{NiFe}_2\text{O}_4$ ) ve grafitik karbon nitrür ( $\text{g-C}_3\text{N}_4$ ) yapılarının sentezi ve $\text{g-C}_3\text{N}_4/\text{NiFe}_2\text{O}_4$ kompozit yapısının oluşturulması

0,53 g  $\text{NiCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$  ve 2,22 g  $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$  tartılarak oda sıcaklığında 40 ml saf su içerisinde çözülmüştür. Daha sonra bu çözeltiye 3 g sodyum hidroksit ( $\text{NaOH}$ ), 15 ml saf suda çözünerek hazırlandığı çözeltilerden 10 dk süresince damlalar şeklinde ilave edilmiş ve böylelikle nikel ferrit ( $\text{NiFe}_2\text{O}_4$ ) yapısı elde edilmiştir.

Başlangıçta sentezlenecek grafitik karbon nitrür ( $\text{g-C}_3\text{N}_4$ ) yapısı için üre kullanılmıştır. Bunun için 10 g üre,  $550^\circ\text{C}$ 'ta 3 saat ısıtılarak bu yapı elde edilmiş daha sonra ilk aşamada elde edilen çözelti içerisine  $\text{g-C}_3\text{N}_4$  yapısından 1,5 g aktarılmıştır. Üzerine 10 g  $\text{NaOH}$  ilavesi ile elde edilen çözelti 2 saat boyunca  $90^\circ\text{C}$ 'ta karıştırılmıştır.

Süzme işleminden sonra bir kroze içerisine alınarak 80°C sıcaklıkta 12 saat boyunca etüvde bekletilerek kullanıma hazır hale getirilmiştir (Yılmaz Baran, Baran ve Çalışkan, 2021; Çalışkan ve Baran, 2021).

#### **3.4.2 Grafitik karbon nitrür-nikel ferrit çözeltisinin hazırlanması**

Sentezlenen g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> kompozit yapıdan 1 mg alınarak üzerine, iyi bir film oluşturma özelliğine sahip bor triflorür dietil eterat 10 µL ilave edilmiş, bu sayede kompozit yapının elektrot yüzeyine daha iyi tutturulması amaçlanmıştır. Elde edilen yapı 0,5 ml su içerisinde bir cam hücreye alınarak 40°C'ta 30 dk boyunca ultrasonik banyoda homojen hale getirilmiştir. Çözelti her deney öncesinde tekrar hazırlanmıştır.

#### **3.4.3 Grafitik karbon nitrür-nikel ferrit süspansiyonunun kalem grafit elektroda uygulanması**

Hazırlanan g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> çözeltisi, yüzeyi temizlenmiş 2 mm çapındaki kalem grafit elektrot yüzeyine elektronik pipet yardımıyla 5 µL, yüzeye homojen dağılacak şekilde damlatılmış, etüv 40 °C'a ayarlanarak elektrot 50 dk etüvde bekletilmiştir. 50 dk sonunda etüvden alınan elektrot, deney oda ısısında gerçekleşeceği için 15 dk oda ısısına gelmesi için beklenerek çalışmaya hazır hale getirilmiştir.

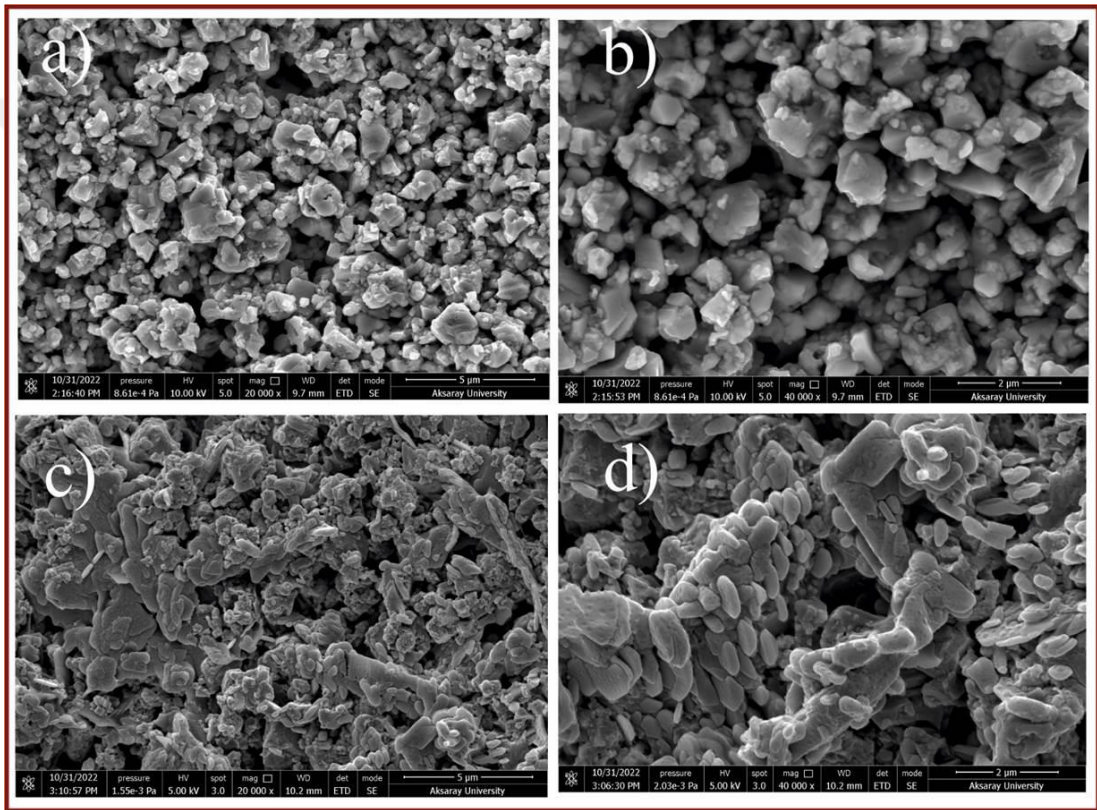
#### **3.4.4 g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>/Ni modifiye elektrodunun hazırlanması**

g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>-NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>/KGE elektrot yüzeyine uygulandıktan sonra, bu kompozit yüzeye Ni nanopartiküllerin elektrodepozisyonunu sağlamak amacıyla 50 ml 0,05 M NiSO<sub>4</sub> ihtiva eden 0,1 M Na<sub>2</sub>HPO<sub>4</sub> elektrolit çözeltisi pH'ı 4'e ayarlanarak kullanılmıştır. -0,9 V'ta 800s süreyle elektrokimyasal indirgeme işlemi yapılarak kronoamperometrik olarak yüzeyde Ni nanopartikülleri oluşturulmuştur. Hazırlanmış olan g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>-NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>/Ni modifiye elektrodu, elektrot yüzeyi herhangi bir yüzeye değmeyecek şekilde 5 dk saf suda bekletilmiş ve yapılacak olan ölçümler için hazır duruma getirilmiştir.

## 4. ARAŞTIRMA BULGULARI VE TARTIŞMA

### 4.1 Elektrot Yüzeyinin Karakterizasyonu

Suyun elektroliziyle açığa çıkan hidrojen oluşumunu inceleme amaçlı yapılacak çeşitli elektrokimyasal ölçümler gerçekleştirilmeden önce, çalışmada geliştirilmiş olan g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> ve g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>/Ni elektrodunun modifiye elektrotların karakterizasyon işlemleri SEM ve EDS teknikleriyle incelenmiştir. İlk olarak KGE yüzeyine kaplanmış g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> ve g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>/Ni kompozit yapılarının farklı büyütme oranlarında kaydedilen SEM görüntüleri incelenmiştir (Şekil 4.1).



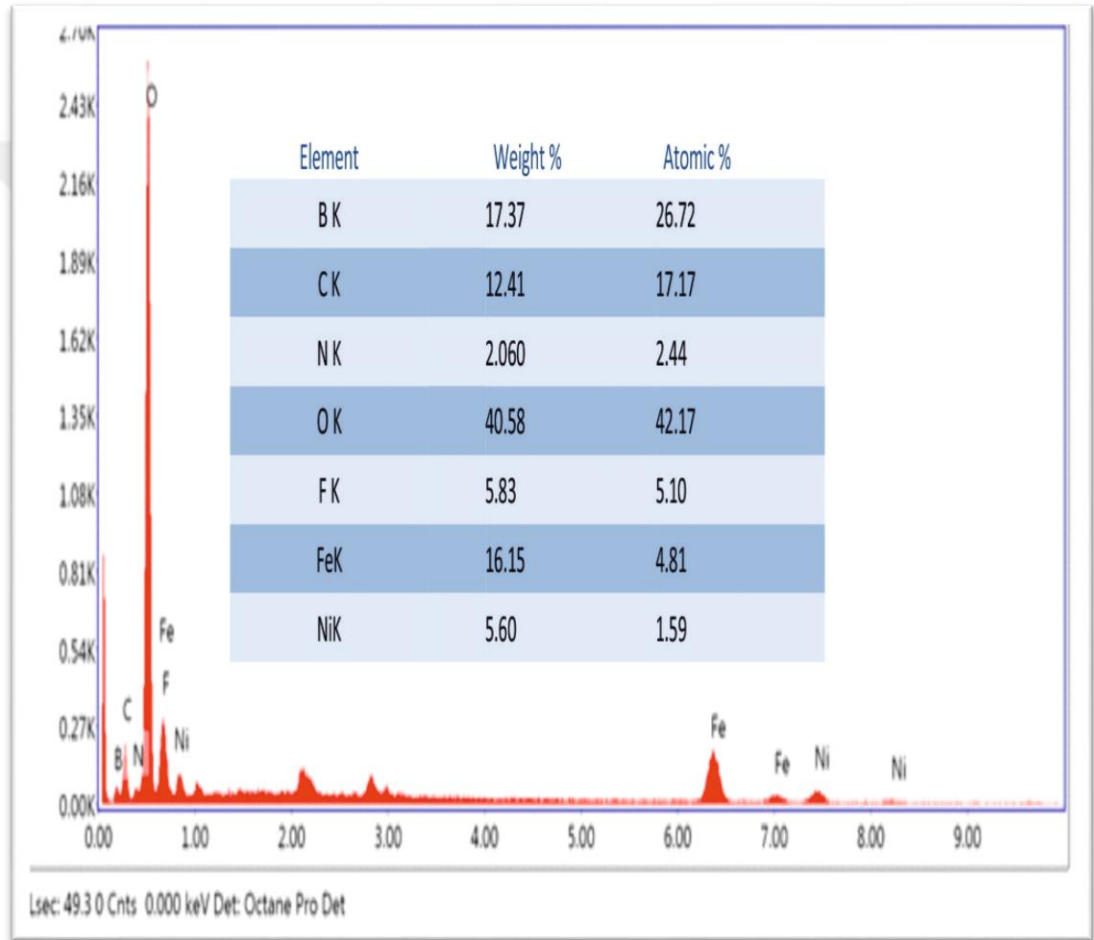
**Şekil 4.1.** g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> kompozit yapısının a) 20.000 büyütme oranında, b) 40.000 büyütme oranında SEM görüntüleri, g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>/Ni nanokompozit yapısının c) 20.000 büyütme oranında, d) 40.000 büyütme oranında SEM görüntüleri.

Yüzeyine g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> uygulanmış kalem grafit elektrodun poröz yapısı Şekil.4.1.a'da ve Şekil 4.1.b'de görülmektedir. Bu yapı, elektrokatalitik prosesler için çok önemli olan, oldukça yüksek yüzey alanı sunmaktadır.

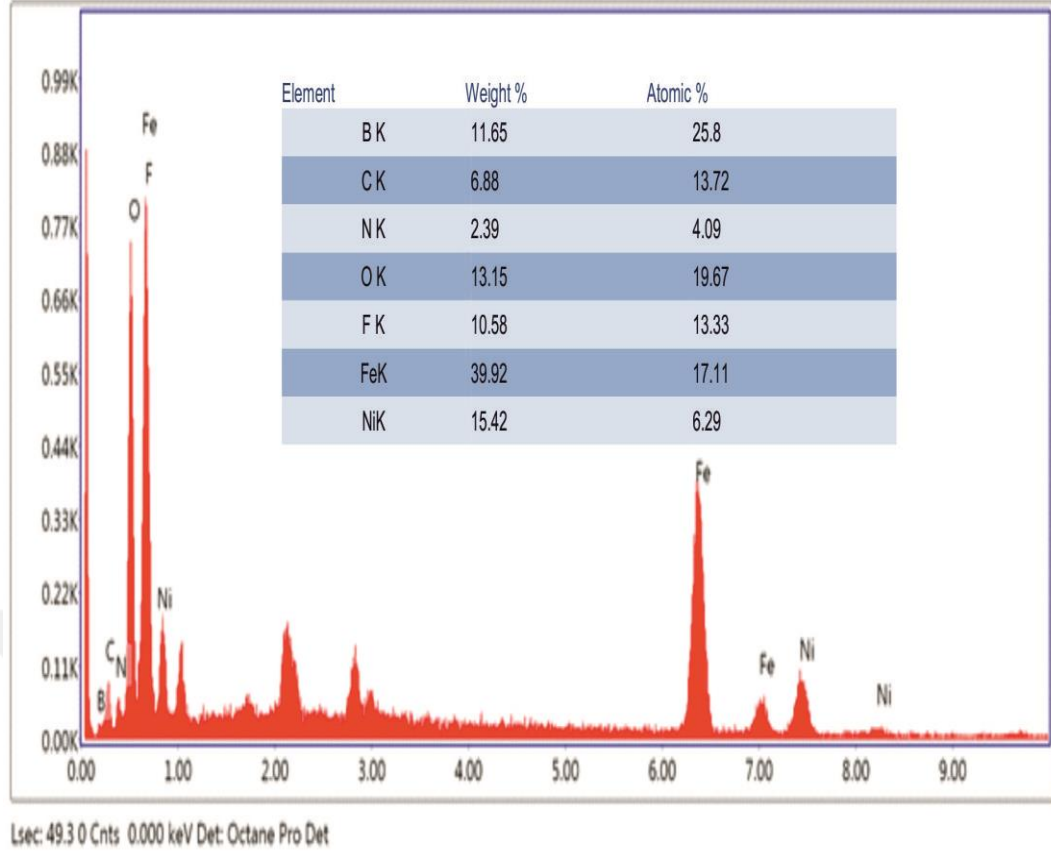
Şekil 4.1.c ve 4.1.d'de ise g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> yapısına Ni'in elektrodepozisyonu ile gerçekleştirilen g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>/Ni nanokompozit yapısının farklı büyüklüklerde

kaydedilmiş görüntüleri verilmektedir. Poröz elektrot yüzeyine, küresel Ni nanopartiküllerin oldukça homojen bir şekilde dağıldığı görülmektedir.

Yüzey karakterizasyonu için ayrıca g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> uygulanan elektrot yüzeyinin ve g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>/Ni nanokompozit uygulanan elektrot yüzeyinin EDS spektrumları incelenerek değerlendirilmiştir. g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> kompozit yapısının ve g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>/Ni nanokompozit yapısının kimyasal bileşimleri, içeriğinde var olan elementlerin yüzde oranları sırasıyla Şekil 4.2 ve Şekil 4.3'te verilmiştir.



**Şekil 4.2.** g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/ NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> kompozit yapısının EDS analizi.



**Şekil 4.3.** g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/ NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>/Ni yapısının EDS analizi.

g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> ile modifiye edilmiş kalem grafit elektrodun yüzeyinin kimyasal kompozisyonunda atomik yüzdesi 1.59 olan nikelin (Şekil 4.2), yapıya nikel nanopartiküllerin elektrodepozisyonu ile, Ni miktarının % 6.29'a yükseldiği tespit edilmiştir (Şekil 4.3).

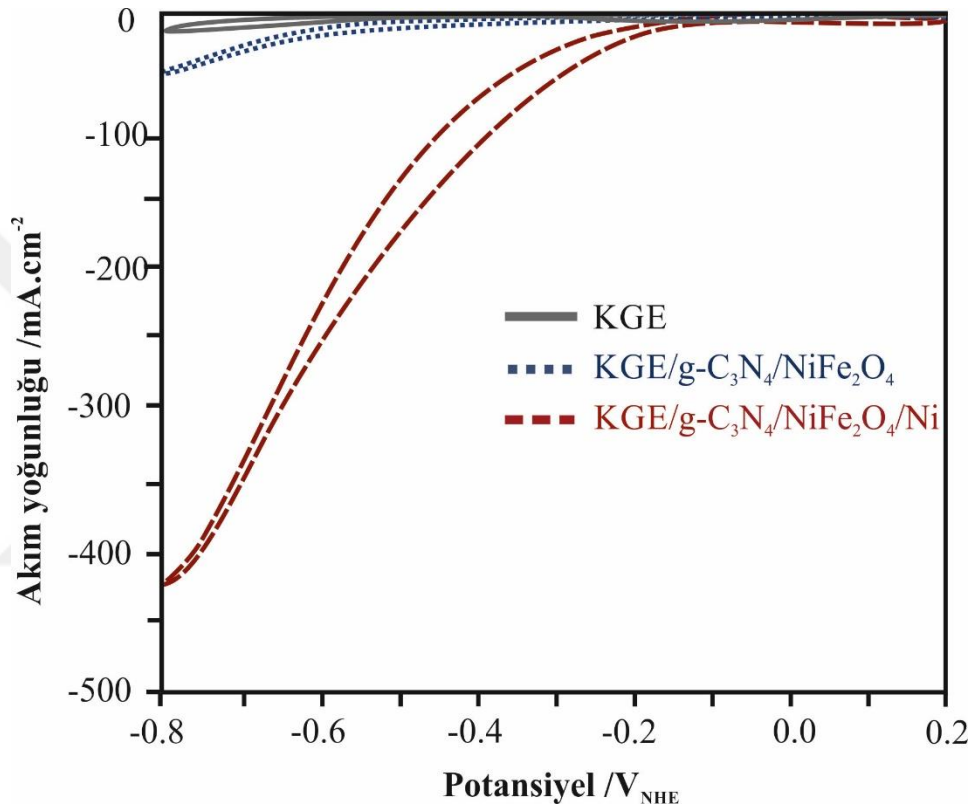
## 4.2 Suyun Elektrolizi ile Hidrojen Oluşumunun İncelenmesi

Bu doğrultuda geliştirilen elektrotların, suyun elektrolizinde gösterdikleri katalitik aktiviteleri, sulu asidik ortamda; dönüşümlü voltametri, Tafel polarizasyon eğrileri ve elektrokimyasal impedans spektroskopisi yöntemleri kullanılarak elektrokimyasal ölçümlerle incelenmiştir.

### 4.2.1 Döngüsel voltametri çalışmaları

Dönüşümlü voltametri çalışmalarında ilk olarak, çıplak kalem grafit elektrodun katalitik aktivitesi değerlendirilmiştir. Bunun için 0,5 M H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> elektrolit ortamında, 0V ile -1V potansiyel aralığında, 10 mV.s<sup>-1</sup> tarama hızında (v) dönüşümlü voltamogramlar kaydedilmiştir. Daha sonra çıplak kalem grafit elektrot yüzeyi g-

$C_3N_4/NiFe_2O_4$  yapısı ile modifiye edilerek aynı şartlarda voltamogramlar kaydedilmiştir. Elde edilen voltamogramlar incelendiğinde, modifiye elektrot yüzeyinde gerçekleşen hidrojen oluşumu reaksiyonuna ait olan akım yoğunluğunun arttığı gözlemlenmiştir. Daha sonra yapıya Ni nanopartiküllerin elektrodepozisyonuyla elde edilen  $g-C_3N_4/NiFe_2O_4/Ni$  nanokompozit yapının dönüşümlü voltamogramı alınmış, hidrojen oluşumuna ait akım yoğunluğunun oldukça belirgin bir şekilde arttığı gözlemlenmiştir (Şekil 4.4).



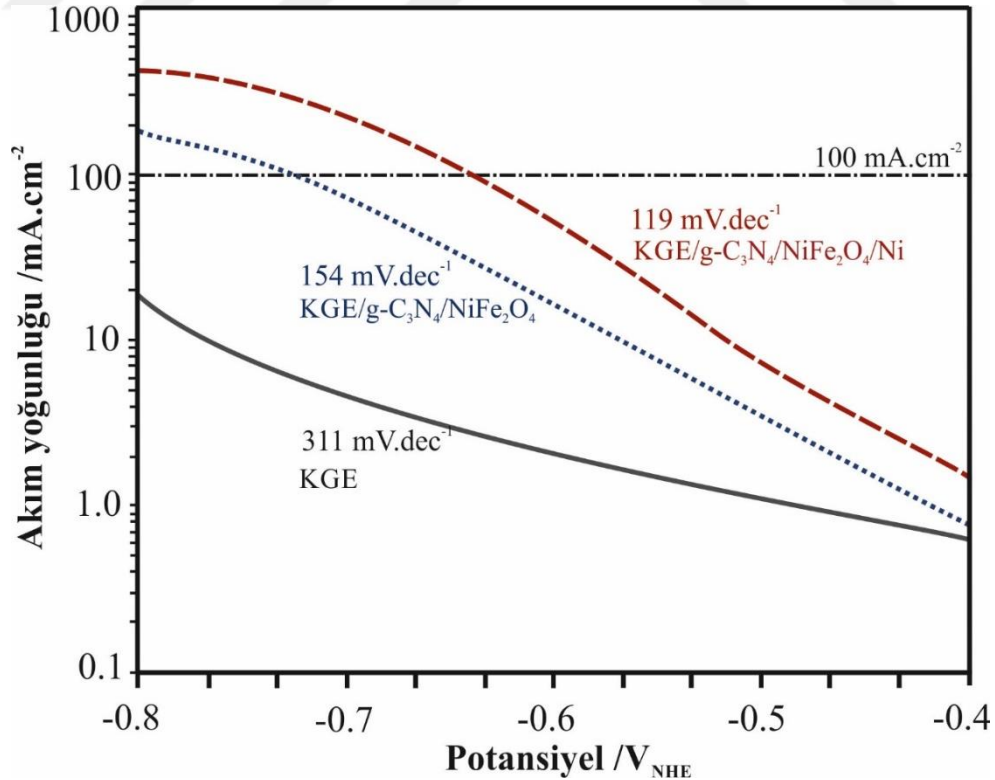
**Şekil 4.4.** KGE, KGE/ $g-C_3N_4/NiFe_2O_4$  ve KGE/ $g-C_3N_4/NiFe_2O_4/Ni$  nanokompozit elektrotların 0,5 M  $H_2SO_4$  içerisinde kaydedilen dönüşümlü voltamogramları ( $v=10 \text{ mV.s}^{-1}$ ).

Şekil 4.4 incelendiğinde,  $g-C_3N_4/NiFe_2O_4$  uygulanmış kalem grafit elektrot yüzeyinde, hidrojen oluşumuna ait akım yoğunluğunun  $-0,6V$ 'tan sonra arttığı,  $-0,8V$ 'ta yaklaşık  $46 \text{ mA.cm}^{-2}$ 'ye ulaştığı görülmüştür.  $g-C_3N_4/NiFe_2O_4$  uygulanmış elektrot yüzeyine Ni nanopartiküllerin ayrıştırılmasıyla elde edilen  $g-C_3N_4/NiFe_2O_4/Ni$  nanokompozit elektrot yapısında hidrojen çıkışına ait akım veriminin ise oldukça belirgin bir şekilde artış gösterdiği görülmektedir. Katalitik aktivitesinin yüksek olduğu bilinen Ni nanopartiküllerin yapıya katılmasıyla, yeni modifiye elektrot çok daha yüksek akım yoğunluğu değerlerine ulaşmıştır. Bu yapı üzerinde hidrojen çıkışının başladığı onset

potansiyel değeri, -0,25 V'a kadar düşmüştür. Böylelikle daha düşük enerji girdisiyle hidrojen oluşumu sağlanmıştır. -0,4V'tan itibaren akım yoğunluğunda daha yüksek artış olmuş, -0,8V'ta bu değer yaklaşık 425 mA.cm<sup>-2</sup>'ye ulaşmıştır. Elde edilen akım yoğunlukları karşılaştırıldığında, çıplak kalem grafit elektroda göre yaklaşık 85 kat daha yüksek akım yoğunluğu elde edilmiştir (-0,8V'ta). Bu da poröz bir kompozit yapı üzerine dekore edilen Nikel nanopartiküllerinin bu proseste yüksek katalitik aktivite gösterdiğini açıkça göstermektedir.

#### 4.2.2 Tafel polarizasyon eğrileri

Bir elektrot materyalinin katalitik aktivitesinin değerlendirilmesi için kullanılan elektrokimyasal yöntemlerden biri de Tafel polarizasyon eğrileri olarak nitelendirilen akım-potansiyel eğrileridir. Hazırlanan elektrotlar üzerinde meydana gelen hidrojen gazı oluşumu reaksiyonu, Tafel polarizasyon eğrileri yardımıyla da incelenmiştir (Şekil 4.5). Elektrokatalitik aktivite değerlendirmesi için oldukça önem taşıyan Tafel polarizasyon eğrilerinden birçok elektrokimyasal kinetik veri elde edilmektedir. Bunlar arasında düşük Tafel eğimi ve düşük potansiyellerde ulaşılan yüksek akım yoğunluğu, geliştirilen elektrodun ideal bir elektrokatalizör olduğunu göstermektedir.



Şekil 4.5. 0,5 M H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> içerisinde ve 1 mV.s<sup>-1</sup> tarama hızında kaydedilen KGE, KGE/g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> ve KGE/g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>/Ni nanokompozit yapısının Tafel eğrileri.



Şekil 4.5, çıplak KGE, KGE/g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> ve KGE/g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>/Ni nanokompozit yapılarının 0,5 M H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> içerisinde -0,4 V ile -0,8 V potansiyel aralığında 1 mV.s<sup>-1</sup> tarama hızıyla kaydedilen akım-potansiyel eğrilerini göstermektedir. Bu potansiyel aralığında üç elektrot kıyaslandığında, tüm potansiyellerde en yüksek akım yoğunluğunun KGE/g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>/Ni nanokompozit yapı üzerinde elde edildiği görülmektedir.

Tafel eğrilerinden yararlanarak her bir elektrot yüzeyi için hesaplanan Tafel eğimleri (b), belirli bir potansiyelde ( $\eta = -0,7V$ ) elde edilen akım yoğunlukları, aynı zamanda belirli bir akım yoğunluğuna (100 mA.cm<sup>-2</sup>) ulaşmak için uygulanması gereken potansiyel değerleri Çizelge 4.1’de özetlenmiştir.

**Çizelge 4.1.** KGE, KGE/g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> ve KGE/g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>/Ni nanokompozit elektrotların Tafel eğrilerinden hesaplanan elektrokimyasal parametreler.

| Elektrokatalizör                                                          | -b/mV.dec <sup>-1</sup> | i/ mA.cm <sup>-2</sup><br>( $\eta = -0,7V$ ) | $\eta/V$<br>(100 mA.cm <sup>-2</sup> ) |
|---------------------------------------------------------------------------|-------------------------|----------------------------------------------|----------------------------------------|
|                                                                           |                         |                                              |                                        |
| KGE                                                                       | 311                     | 7,2                                          | -1,12                                  |
| KGE/g-C <sub>3</sub> N <sub>4</sub> /NiFe <sub>2</sub> O <sub>4</sub>     | 154                     | 83,4                                         | -0,72                                  |
| KGE/g-C <sub>3</sub> N <sub>4</sub> /NiFe <sub>2</sub> O <sub>4</sub> /Ni | 119                     | 262,1                                        | -0,65                                  |

Çizelge 4.1’de özetlenen sonuçlara bakıldığında, KGE üzerinde hidrojen oluşumuna ait Tafel eğimi 311 mV.dec<sup>-1</sup>, KGE/g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> için 154 mV.dec<sup>-1</sup> ve KGE/g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>/Ni nanokompozit yapısı için 119 mV.dec<sup>-1</sup> olarak hesaplanmıştır. Bölüm 2.8.3’te anlatıldığı gibi, Tafel eğimi b=120 mV.dec<sup>-1</sup> olarak hesaplandığında hız belirleyen basamak olarak nitelendirilen en yavaş basamağın, Volmer basamağı olduğu bilinmektedir. KGE/g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>/Ni nanokompozit yapısı için 119 mV.dec<sup>-1</sup> olarak hesaplanan Tafel eğimi, 120 mV.dec<sup>-1</sup>’e yakın olduğundan, bu elektrotta gerçekleşen hidrojen çıkışı tepkimesinin Volmer-Heyrovsky basamaklarını izleyerek devam ettiği ve H<sub>ad</sub> oluşumu olarak bilinen Volmer basamağının hız belirleyen basamak olduğu söylenebilir (Balun Kayan vd., 2017).

Geliştirilen elektrodun katalitik aktifliğini gösteren bir parametre de birim yüzey alanına düşen akım yoğunluğudur. Tafel eğrilerinden elde edilen verilen

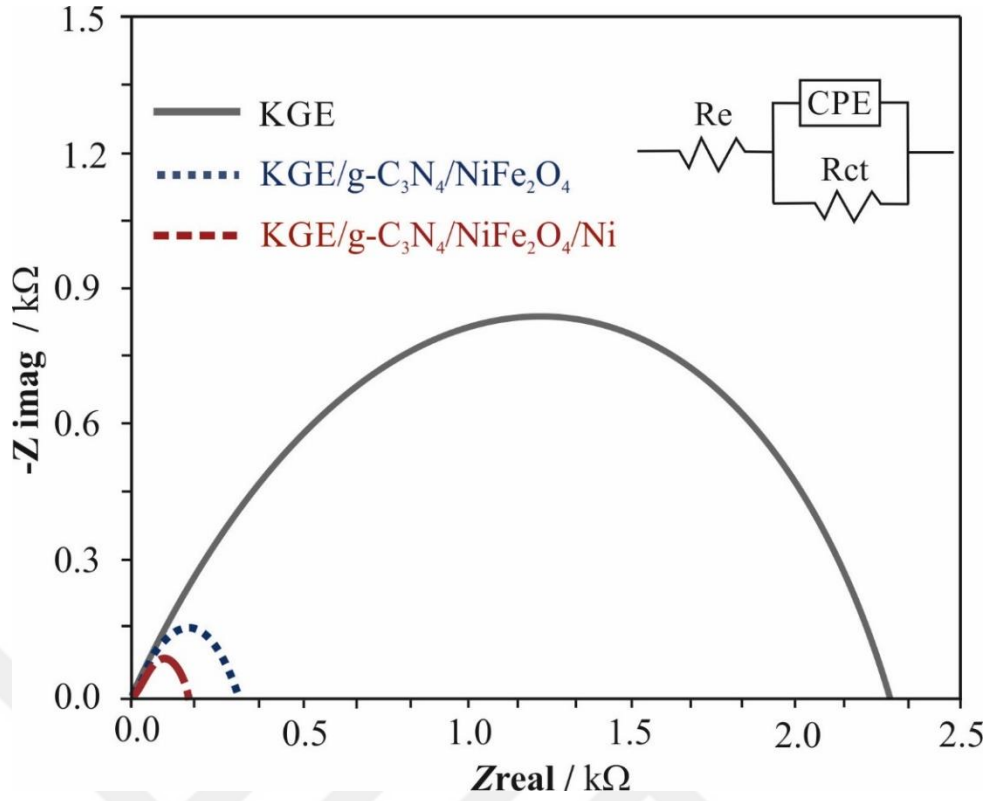


incelendiğinde  $100 \text{ mA.cm}^{-2}$  akım yoğunluğuna, KGE/g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> elektrot ile -0,72V'ta ulaşıldığı görülmüştür. Kompozit yapı Ni nanopartiküllerle dekore edildiğinde,  $100 \text{ mA.cm}^{-2}$  akım yoğunluğuna -0,65V gibi daha düşük potansiyel değerinde, dolayısıyla daha düşük enerji girdisiyle ulaşılmıştır.

Diğer taraftan, hidrojen gazı çıkışının belirgin bir şekilde artmaya başladığı bir potansiyel olarak belirlenen -0,7V'ta elde edilen akım yoğunlukları karşılaştırıldığında, herhangi bir işlem görmemiş kalem grafit elektrotta kaydedilen akım yoğunluğu  $7,2 \text{ mA.cm}^{-2}$  iken, yüzeye g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> kompozit yapısı uygulandığında elde edilen değer  $83,4 \text{ mA.cm}^{-2}$  ve bu yüzey üzerine Ni nanoparçacıkları uygulandığında  $262,1 \text{ mA.cm}^{-2}$  olarak kaydedilmiştir. Dolayısıyla, işlem modifiye edilmemiş kalem grafit elektroda g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> nanokompozit yapısı uygulandığında akım yoğunluğundaki artış yaklaşık 12 kat, bu yüzey üzerine Ni nanopartiküller de uygulandığına bu artış, yaklaşık 35 kat olarak belirlenmiştir.

#### 4.2.3 Elektrokimyasal impedans spektroskopisi

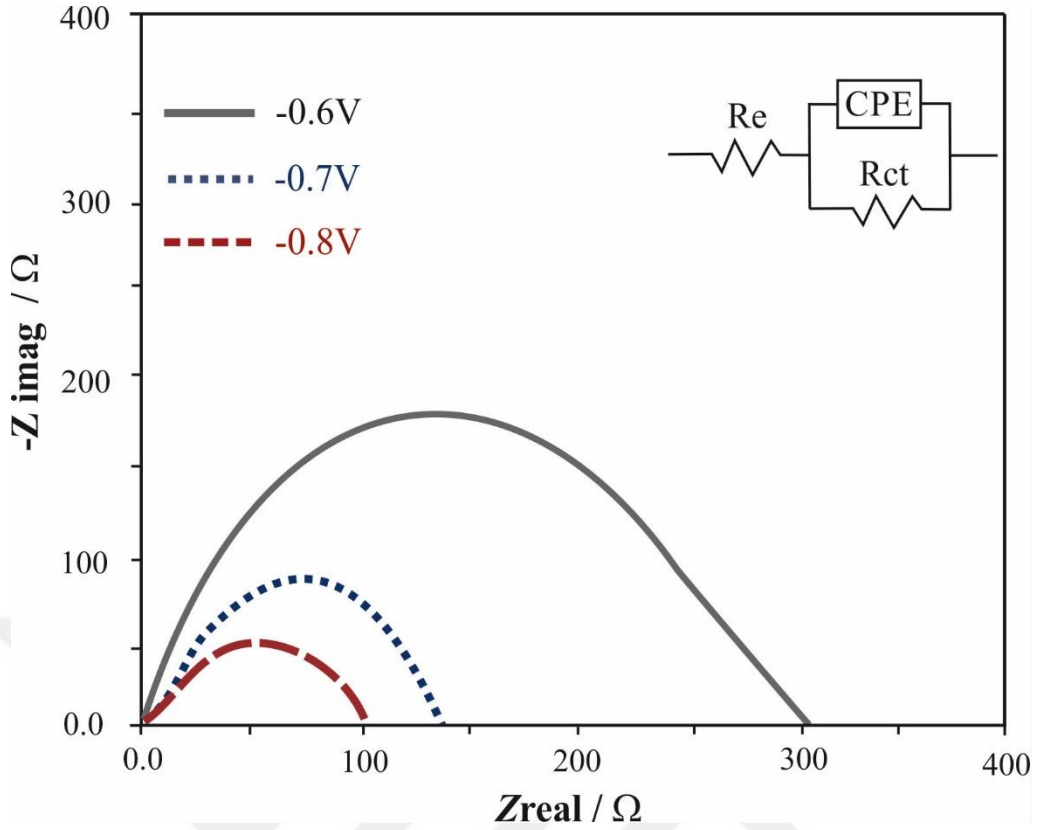
Elektrokimyasal prosesler değerlendirilirken sıklıkla kullanılan bir diğer yöntem elektrokimyasal impedans spektroskopisidir. EIS sonucunda elde edilen Nyquist diyagramları, elektrokatalizörlerin elektron aktarımı sırasındaki performansını değerlendirmekte, bu konuda bilgi vermektedir. Nyquist diyagramlarında hesaplanan direncin düşük olmasının anlamı hidrojen gazı oluşumu için kaydedilen akım yoğunluğunun yüksek olduğudur.



**Şekil 4.6.** KGE, KGE/g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> ve KGE/g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>/Ni nanokompozit yapısının -0,7V'ta, 0,1Hz-100 kHz frekans aralığında, 0,5 M H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> elektrolit ortamında kaydedilen Nyquist diyagramları.

KGE, KGE/g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> ve KGE/g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>/Ni elektrotlarının, kıyaslama yapabilmek amacıyla 0,5 M H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> içerisinde, 0,1 ile 100.000 Hz frekans aralığında, -0,7 V sabit potansiyelde kaydedilen Nyquist diyagramları Şekil 4.6'da görülmektedir. Burada her üç elektrot için Nyquist diyagramları incelendiğinde, hidrojen oluşumuna ait oluşan en yüksek direnç yaklaşık 2,3 kΩ olarak çıplak kalem grafit elektrot üzerinde gözlenmiştir. g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> yapısı üzerinde elde edilen yarım dairenin çapı, dolayısıyla hidrojen oluşumuna ait direnç 0,27 kΩ'a düşmüş ve son olarak g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>/Ni nanokompozit yapısı üzerinde en düşük direnç 0,18 kΩ olarak tespit edilmiştir.

Daha sonra, g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>/Ni nanokompozit yapısının farklı potansiyellerde elde edilen Nyquist diyagramları değerlendirilmiştir (Şekil 4.7).

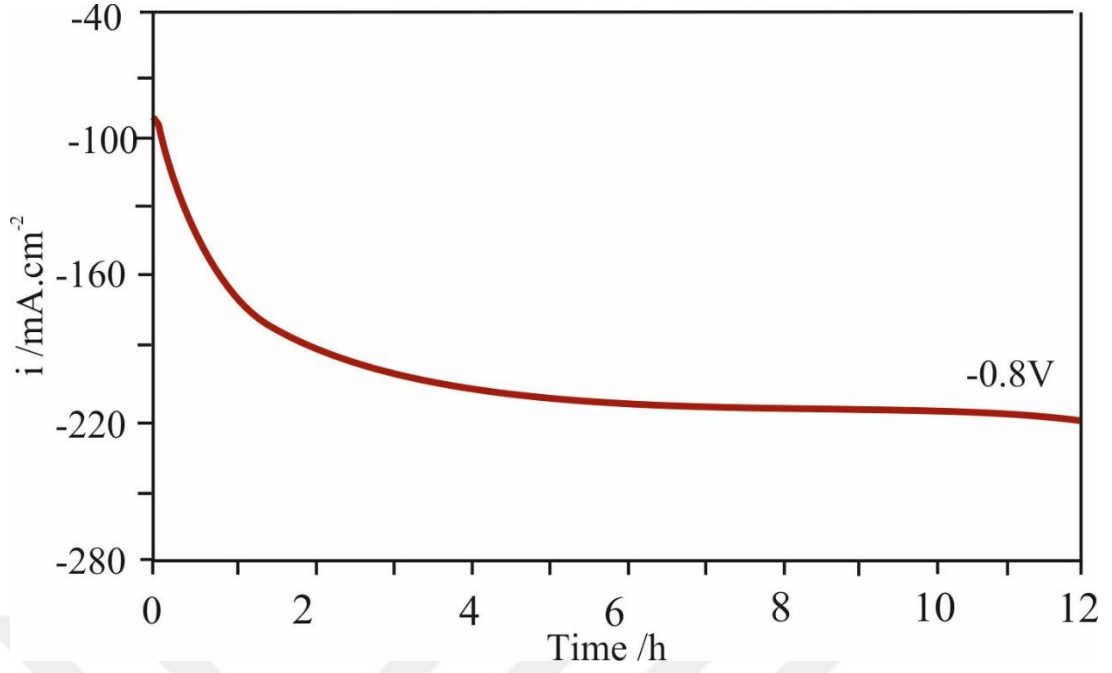


**Şekil 4.7.** KGE/g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>/Ni nanokompozit yapısının 0,5 M H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> elektrolit ortamında, 0,1Hz-100 kHz frekans aralığında, farklı potansiyellerde kaydedilen Nyquist diyagramları.

Şekil 4.7’de görüldüğü gibi, sulu ortamda negatif potansiyellere doğru gidildikçe elde edilen yarım dairelerin çapları küçülmüştür. Bu da hidrojen oluşumunun daha negatif potansiyellerde daha hızlı gerçekleştiğini göstermektedir. Nyquist diyagramlarından elde edilen tüm sonuçlar, Tafel polarizasyon eğrileri ve dönüşümlü voltamogramlarla uyum içersindedir.

#### 4.2.4 Stabilite çalışmaları

Geliştirilen elektrodun elektrokimyasal verimliliğinin öneminin yanı sıra sistemde ne kadar süre kararlı kalabildiği de oldukça önemlidir. Yapılan çalışma kapsamında geliştirilen KGE/g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>/Ni nanokompozit elektrodun stabilite çalışması kronoamperometri yöntemiyle incelenmiştir (Şekil 4.8).



**Şekil 4.8.** g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>/Ni nanokompozit elektrodun 0,5 M H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> elektrolit ortamında -0,8V'ta kaydedilen konoamperomogramı.

g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>/Ni nanokompozit yapısının elektrokatalitik kararlılığı -0,8V'luk sabit potansiyel uygulanarak konoamperometrik olarak da test edilmiştir. Yaklaşık 90 mA.cm<sup>-2</sup> ile başlayan akım yoğunluğu zamanla artarak yaklaşık 210 mA.cm<sup>-2</sup> değerine ulaşmış, 8 saatlik deney süresince sabit kalmıştır. Stabilitate testi sonucu, literatür verileriyle kıyaslanarak değerlendirildiğinde, geliştirilen elektrodun hidrojen oluşumunda katalitik aktivitesini uzun süre koruduğu tespit edilmiştir.

## 5. SONUÇ VE ÖNERİLER

Hidrojen, diğer geleneksel yakıtlara göre yüksek enerji verimine sahip, fosil yakıtların yerini alabilecek; bununla beraber çok yönlü, verimli ve sürdürülebilir temiz enerji taşıyıcısıdır. Yenilenebilir enerji kaynakları içerisinde hidrojen, 21. yüzyılın enerjisi olarak kabul edilmektedir. Bu çalışmada, hidrojen üretimi ile ilgili önceki çalışmalar göz önünde bulundurularak, suyun elektrolizinden hidrojen elde etmek için elektroliz sisteminde gerekli olan aşırı potansiyeli azaltmak, hidrojen gazı çıkışı reaksiyonunu hızlandırmak için katalitik aktivitesi yüksek, ekonomik ve kararlı yeni bir elektrokatalizör geliştirilmesi arzulanmaktadır.

Bu nedenle, uygun maliyetli ve katalitik bir aktif malzeme olarak  $g\text{-C}_3\text{N}_4/\text{NiFe}_2\text{O}_4/\text{Ni}$  nanokompozit yapısı ile modifiye edilmiş bir kalem grafit elektrot geliştirilmiştir. Böylece yüzey alanı yüksek, sentezlenmesi kolay ve yüzeyinde çok sayıda fonksiyonel grup bulunan bir elektrot hazırlanması sağlanmıştır. Burada elektrot materyali olarak tercih edilen  $g\text{-C}_3\text{N}_4$ , karbon nitrürlerin en kararlı allotropu olmakla birlikte birçok uygulama için tercih edilebilecek zengin yüzey özelliklerine sahiptir. Aynı zamanda, kolaylıkla bulunabilen başlangıç malzemelerinden hazırlanabilen grafitik karbon nitrür, toksik olmaması ve düşük maliyetli bir yarı iletken olması, mükemmel fizikokimyasal kararlılıkları ve çevreye zarar vermeme gibi avantajlarıyla da tercih sebebi olmuştur. Bunun yanında kullanılan bir diğer materyal olan  $\text{NiFe}_2\text{O}_4$ , nanoferrit yapısının en iyi örneklerinden bir tanesidir. Manyetik, optik, elektriksel özelliklerinden dolayı çok çeşitli kullanım alanlarına sahip olan  $\text{NiFe}_2\text{O}_4$ , doğada bol miktarda bulunan, çok yönlü ve teknolojik olarak da oldukça kullanışlı bir malzemedir.

Hidrojen gazı üretiminde kullanılan yöntemlere göre en kolay yöntem suyun elektrolizi olmakla birlikte, bu yöntemin dezavantajları da mevcuttur. Elektroliz sisteminde meydana gelen aşırı gerilimi yani sistem için gerekli aşırı potansiyeli düşürmek gereklidir. Bu nedenle akım yoğunluğu ve elektrot yüzey alanı büyük ölçüde artırılmalı ve bu dezavantajın giderilebilmesi için uygun bir elektrot ve çalışma ortamı araştırılmalıdır. Bu şekilde geliştirilen modifiye elektrotlarla, elektrot yüzeyi farklı bir çalışma aralığı sunmakla kalmayıp, aynı zamanda istenilen özellikte daha seçici ve daha hassas elektrotlar geliştirilebilmektedir.

Bu çalışmada, yöntemin dezavantajlarını minimuma indirerek, hidrojen gazı oluşumu reaksiyonunun etkin bir şekilde gerçekleştirilmesi amaçlandı. Bu sebeple; istenen özelliklere göre modifiye edilmiş, katalitik aktivitesi yüksek, ekonomik ve kararlı yeni bir elektrokatalizör geliştirildi. g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> katalitik aktivitesini değerlendirmek için dönüşümlü voltametri, Tafel polarizasyon eğrileri ve elektrokimyasal impedans spektroskopisi gibi yöntemler kullanılmış, sonrasında yüzeye elektrodpozisyonu sağlanan Ni nanoparçacıkları ile oluşan yeni yapı aynı elektrokimyasal yöntemlerle tekrar değerlendirilmiş ve karşılaştırma yapılmıştır. Yapılan değerlendirme sonucunda; kullanılan her üç yöntemin de birbiriyle uyumlu olduğu saptanmış ve elde edilen g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>/Ni nanokompozit elektrodun beklendiği gibi en yüksek hidrojen üretimini gerçekleştirdiği görülmüştür. Kronoamperometri yöntemi ile stabilite çalışmaları yapılarak, tüm yüzeylerin yapısal özellikleri SEM ve EDS ile incelenerek çalışma başarıyla tamamlanmıştır.

Tez çalışmasında elde edilen sonuçlardan yola çıkılarak, bu yapılara benzer şekilde sudan hidrojen gazı elde edebilmek amacıyla, aktifliği yüksek, kararlı ve ekonomik elektrokatalizörler geliştirilebilecek sonuçlar ve bilgi birikimleri elde edilmiştir.

## KAYNAKLAR

- Abraham, T., 1994. Economics of ceramic magnets, American Ceramic Society Bulletin, 73, 62-65.
- Alagarasi, A., 2011. Introduction to Nanomaterials, Chapter 1, 76.
- Altınöz, K., 1995. Korozyon ve korunma yöntemleri, Yüksek Lisans Tezi, İstanbul Üniversitesi, İstanbul.
- Amikam, G., Nativ, P. ve Gendel, Y., 2018. Chlorine-free alkaline seawater electrolysis for hydrogen production, International Journal of Hydrogen Energy, 43, 13, 6504-6514.
- Aslan, E., 2014. Nanoparçacık temelli hidrojen üretimi, Yüksek Lisans Tezi, Selçuk Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Konya.
- Aydın Ulukuş, N., 2021. Karbon nanotüp/Ni nanopartikül elektrokatalizörü üzerinde hidrojen gazı üretimi, Yüksek Lisans Tezi, Aksaray Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Aksaray.
- Azadmanjiri, J. ve Seyyed Ebrahimi, S.A., 2004. Influence of stoichiometry and calcination condition on the microstructure and phase constitution of NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> powders prepared by sol-gel autocombustion methods, Physica Status Solidi , 1, 3414-3417.
- Azizi, N. ve Edrisi, M., 2020. Preparation of choline sulfate ionic liquid supported on porous graphitic carbon nitride nanosheets by simple surface modification for enhanced catalytic properties, Journal of Molecular Liquids, 300,112263.
- Benemann, J.R. ve Hallenbeck, P.C., 2002. Biological hydrogen production; fundamentals and limiting processes, International Journal of Hydrogen Energy, 27, 1185-1193.
- Bockris, J. O'M., 1975. Energy the Solar-Hydrogen Alternative, The Architectural Press, London.
- Bolatkhan, K., Kossalbayev, B.D., Zayadan, B.K., Tomo, T., Veziroğlu T.N. ve Allakhverdiev, S.I., 2019. Hydrogen production from phototrophic microorganisms: Reality and perspectives, International Journal of Hydrogen Energy, 44, 12, 5799-5811.
- Bond, A.N., 1980. Modern Polarographic Methods in Analytic Chemistry, Marcel Dekker Incorporated, New York.
- Büyükkaya, F., 2011. Ferrosenli fosfazen bileşiklerinin elektrokimyasal davranışları, Yüksek Lisans Tezi, Ankara Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Ankara.
- Carrasco-Jaima, O.A., Hernandez, J.M.M., Torres-Martínez, L.M.T. ve Moctezuma, E., 2019. A comparative study on the photocatalytic hydrogen production of ATiO<sub>3</sub>

- (A = Zn, Cd and Pb) perovskites and their photoelectrochemical properties, *Journal of Photochemistry and Photobiology A: Chemistry*, 371, 98-108.
- Chung, D. Y., Park, S. K., Chung, Y. H., Yu, S. H., Lim, D. H., Jung, N., Ham, H. C., Park, H. Y., Piao, Y., Yoo, S. J. ve Sung, Y. E., 2014. Edge-exposed MoS<sub>2</sub> nano-assembled structures as efficient electrocatalysts for hydrogen evolution reaction, *The Royal Society of Chemistry, Nanoscale*, 6, 2131–2136.
- Cogger, N.D. ve Evans, N.J., 1999. An introduction to EIS measurement technique report, No. 6, Solartron Instruments.
- Çağlar, M. ve Altuntaşoğlu, Z.T., 2003. Sürdürülebilir kalkınma ve yenilenebilir enerji, Türkiye 9. Enerji Kongresi, Enerji sektöründe serbestleşme, yeni Politika, stratejiler ve sosyo-ekonomik Etkileri Cilt II, Dünya Enerji Konseyi-Türk Milli Komitesi, İstanbul.
- Çalışkan, M. ve Baran, T., 2021. Facile synthesis of biaryls by palladium nanoparticles adorned on kaolin/NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> composite as a magnetically retrievable nanocatalyst, *Colloid and Interface Science Communications*, 43, 100445.
- Değirmenci, Ü., 2019. Karbon tabanlı yeni hibrit nano-yapıların modellenmesi ve analizi, Doktora Tezi, İstanbul Teknik Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, İstanbul.
- Dehghan, R., Seyyed Ebrahimi, S. and Badiei, A., 2008. Investigation of the effective parameters on the synthesis of Ni-ferrite nanocrystalline powders by coprecipitation methods, *Journal of Non-Crystalline Solids*, 354, 5186- 5188.
- Dinçer, İ., 2002. Technical, environmental and exergetic aspects of hydrogen energy systems”, *International Journal of Hydrogen Energy*, 27, 265-285.
- Dinçer, İ., 2023. Hydrogen 1.0: A new age, *International Journal of Hydrogen Energy*, 48, 43, 16143-16147.
- Duman, G., Yanık, J., 2017. Two-step steam pyrolysis of biomass for hydrogen production, *International Journal of Hydrogen Energy*, 42, 27, 17000-17008.
- Ensign, S.A., Ludden, P.W., 1991. Characterization of the CO oxidation/H<sub>2</sub> evolution system of *Rhodospirillum rubrum*. Role of a 22-kDa Iron–Sulfur protein in mediating electron transfer between carbon monoxide dehydrogenase and hydrogenase, *Journal of Biological Chemistry*, 266, 27, 18395-18403.
- Escher, W.J.D., Hanson, J.A., Veziroğlu, T.N., 1975. *Hydrogen Energy*, 171-305.
- Geller, Howard, 2002. *Energy Revolution: Policies for a Sustainable Future*, Island Pres, Washington DC.
- Genç, N., 2009. Biyolojik hidrojen üretim prosesleri, Balıkesir Üniversitesi Fen bilimleri Enstitüsü Dergisi, 11, 2, 17-36.
- Gerengi, H., 2008. Tafel Polarizasyon (TP), Lineer Polarizasyon (LP), Harmonik Analiz (HA) ve Dinamik Elektrokimyasal İmpedans Spektroskopisi (DEIS)



- Yöntemleriyle Düşük Karbon Çeliği (AISI 1026), Pirinç-MM55 ve Nikalium-118 Alaşımlarının Yapay Deniz Suyunda Korozyon Davranışları ve Pirinç Alaşımlarına Benzotriazol'ün İnhibitör Etkisinin Araştırılması, Doktora Tezi, Eskişehir Osmangazi Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Eskişehir.
- Gülşen, H. E., Kumbur, H., ve Koyuncu G., 2014. Hidrojen enerjisi, üretim Mekanizmaları ve çevresel önemi, Akademik Platform, Mersin Üniversitesi, Mühendislik Fakültesi, Çevre Mühendisliği Bölümü, Mersin.
- Güler Şentürk, İ., Büyükgüngör, H., 2010. An examination of used different waste materials and biohydrogen production methods, Journal of Engineering and Natural Sciences, 28, 369-395.
- Güney, S., 2010. Modifiye elektrotların geliştirilmesi ve voltametrik tayinlerde kullanılmalarının incelenmesi, Doktora Tezi, İstanbul Teknik Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, İstanbul.
- Gürbüz, A., 2009. Enerji piyasası içinde yenilenebilir (temiz) enerji kaynaklarının yeri ve önemi, Uluslararası İleri Teknolojiler Sempozyumu, Karabük.
- Hallenbeck, P.C., Benemann, J.R., 2002. Biological hydrogen production; fundamentals and limiting processes, International Journal of Hydrogen Energy, 27, 11-12, 1185-1193.
- Hunt, C.P., Moskowitz, M.B., Banerjee, S.K., 1995. Magnetic Properties of Rocks and Minerals, Rock Physics and Phase Relations A Handbook of Physical Constants, American Geophysical Union, Washington DC.
- Idris, A.O., Ekemena O.O., Msagati, T.A.M., Kuvarega, A.T., Feleni, U. ve Mamba, B., 2020. Graphitic carbon nitride: a highly eletroactive nanomaterial for environmental and clinical sensing, Sensors, 20(20), 5743-5750.
- Iqbal, W., Yang, B., Zhao, X., Rauf, M., Waqas, M., Gong, Y., Zhang, J., Mao, Y., 2018. Controllable synthesis of graphitic carbon nitride nanomaterials for solar energy conversion, and environmental remediation: The road travelled and the way forward, Catalysis Science & Technology, 8, 4576-4599.
- Ishanque, M., Khan, M.A., Irshad, A., Khan, H.M., Iqbal, M.A., Islam, M.U. and Warsi, M.F., 2015. Impacts of yttrium substitution on FMR linewidth and magnetic properties of nickel spinel ferrites, Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 382, 98-103.
- İsbir, A.A., 2007. Bazı dibenzo-bis-imino podandların camısı karbon ve modifiye camısı karbon elektrotta elektrokimyasal davranışlarının incelenmesi, Doktora Tezi, Ankara Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Ankara.
- Javed, M.A., Zafar, A.M., Aly Hassan, A., Zaidi, A.A., Farooq M., el Badawy, A., Lundquist, T., Mohamed, M.M.A. and Al-Zuhair, S., 2022. The role of oxygen regulation and algal growth parameters in hydrogen production via biophotolysis, Journal of Environmental Chemical Engineering, 10, 1, 107003.

- Johnston, B., Mayo, M.C. ve Khare, A., 2005. Hydrogen: the energy source for the 21<sup>st</sup> century, *Technovation*, 25, 6, 569-585.
- Joshi, A.S., Dinçer, İ., Reddy, B.V., 2010. Exergetic assessment of solar hydrogen production methods, *International Journal of Hydrogen Energy*, 35, 4901–4908.
- Joshi, S., Kumor, M., Chhoker, S., Srivastava, G., Jewariaya, M. and Singh, V.N., 2014. Structural, magnetic, dielectric and optical properties of nickel ferrite nanoparticles synthesized by co-precipitation methods, *Journal of Molecular Structure*, 1076, 55-62.
- Kademli, M., 2017. Hidrojen teknolojisi, potansiyeli ve geleceği, *Mesleki Bilimler Dergisi*, 6, 2, 106-110.
- Karabilgin, E.E., 2012. Camsı karbon elektrot yüzeyinde 4-Nitro-1-Naftilaminin elektrokimyasal oksidasyonu ile yeni bir modifiye elektrot hazırlanması, *Yüksek Lisans Tezi, Selçuk Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Konya*.
- Koç, E., Kaya, K., 2015. Enerji Kaynakları–Yenilenebilir Enerji Durumu, *Mühendis ve Makina*, cilt 56, sayı 668, s. 36-47.
- Koç, E., Şenel, M.C., 2013. Dünyada ve Türkiye’de Enerji Durumu-Genel Değerlendirme, *Mühendis ve Makina*, 54(639), 32-44.
- Koku, H., Eroğlu, İ., Gündüz, U., Yücel, M., Türker, L., 2003. Kinetics of biohydrogen production by the photosynthetic bacterium *Rhodobacter sphaeroides* O.U. 001, *International Journal of Hydrogen Energy*, 28, 381–8.
- Köseoğlu, E., 2013. Suyun elektrolizinden hidrojen gazı üretimi için yeni bir yöntem geliştirilmesi, *Yüksek Lisans Tezi, Yıldız Teknik Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, İstanbul*.
- Kudo, A. ve Miseki, Y., 2009. Heterogeneous photocatalyst materials for water splitting, *Chemical Society Reviews*, 38, 253-278.
- Kükrer, B., 2007. Hidrojen enerjisinin gelişme potansiyeli ve Türkiye ekonomisi açısından değerlendirilmesi, *Yüksek Lisans Tezi, Anadolu Üniversitesi, Sosyal Bilimler Enstitüsü, Eskişehir*.
- Küstü, C., 2008. Asitli ortamdaki korozyona karşı schiff bazı temelli bazı yeni inhibitörlerin geliştirilmesi, *Yüksek Lisans Tezi, Ankara Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Ankara*.
- Lee, G.J., Chen, H.C. ve Wu, J.J., 2019. Co-doped ZnS nanoparticles for photoelectrochemical hydrogen production, *International Journal of Hydrogen Energy*, 44, 1, 110-117.
- Liu, W., Iwasa, N., Fujita, S., Koizumi, H., Yamaguchi, M., 2020. Porous graphitic carbon nitride nanoplates obtained by a combined exfoliation strategy for enhanced visible light photocatalytic activity, *Applied Surface Science*, 499, 1-9.

- Lu, H., Zahidi, A., Yang, C., Wang, M., ve Peng, B., 2013. Building the hydrogen economy in China: drivers, resources and technologies, *Renewable and Sustainable Reviews*, 23, 543-556.
- Magesa, F., Wu, Y., Tian, Y., Vianney, J., Buza, J., He, Q., Tan, Y., 2019. Graphene and graphene like 2D graphitic carbon nitride: Electrochemical detection of food colorants and toxic substances in environment, *Trends in Environmental Analytical Chemistry*, 23, 1-11.
- Majdoub, M., Anfar, Z., Amedlous, A., 2020. Emerging chemical functionalization of g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>: covalent/noncovalent modifications and applications, *American Chemical Society*, 14, 10, 12390–12469.
- Martin, D.J., Qiu, K., Shevlin, S.A., Handoko, A.D., Chen, X., Guo, Z., ve Tang, J., 2014. Highly efficient photocatalytic H<sub>2</sub> evolution from water using visible light and structure-controlled graphitic carbon nitride, *Angewandte Chemie International Edition*, 53, 35, 9240–9245.
- Mülazımoğlu, İ.E., 2008. Camsı karbon elektrot yüzeyine çeşitli flavonoid türevlerinin modifikasyonu, yüzey karakterizasyonu, elektrokimyasal ve spektroskopik özelliklerinin incelenmesi, Doktora Tezi, Selçuk Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Konya.
- Ni, M., Leung, D.Y.C., Leung, M.K.H. and Sumathy, K., 2006. An overview of hydrogen production from biomass, *Fuel Processing Technology*, 87, 461-472.
- Ohta, T., 1988. Photochemical and photoelectrochemical hydrogen production from water, *International Journal of Hydrogen Energy*, 13, 6, 333-339.
- Ong, W.J., Tan, L.L., Ng, Y.H., Yong, S.T., Chai, S.P., 2016. Graphitic carbon nitride (g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>)-based photocatalysts for artificial photosynthesis and environmental remediation: are we a step closer to achieving sustainability?, *Chemical Reviews*, 116, 7159-7329.
- Önder, İ., 2001. Yeni dünya düzeni ve enerji politikaları, Türkiye Üçüncü Enerji Sempozyumu, TMMOB, Ankara.
- Özdemir, Z.Ö. ve Mutlubaş, H., 2019. Enerji taşıyıcısı olarak hidrojen ve hidrojen üretim yöntemleri, *International Journal of Natural and Applied Sciences*, 2, 1, 16-34.
- Özel, F., 2009. Solvothermal yöntemle elde edilen demir oleat kullanarak süperparamanyetik demir oksit nanoparçacıklarının sentezi ve karakterizasyonu, Yüksek Lisans Tezi, Balıkesir Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Balıkesir.
- Penner, S.S., 2006. Steps toward the hydrogen economy, *Energy*, 31, 1, 33-43.
- Rao, C.N.R., Müller, A., Cheetham, A.K., 2007. *Nanomaterials Chemistry*, 18-31.
- Sağır, S., 2018. Dopaminin elektrokimyasal tayini için sensör elektrot geliştirilmesi, Yüksek Lisans Tezi, Necmettin Erbakan Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Konya.

- Salama, M.A., Ahmeda, K., Aktera, N., Hossaina, T., Abdullah, B., 2018. A review of hydrogen production via biomass gasification and its prospect in Bangladesh, *International Journal of Hydrogen Energy*, 43, 32, 14944-14973.
- Salavati-Niasari, M., Davar, F. and Mahmaudi, T., 2009. A simple route to synthesize nanocrystalline nickel ferrite (NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>) in the presence of octonoic acid as a surfactant, *Polhedron*, 28, 1455-1458.
- Sancar, M.S., 1992. Avrupa Topluluğu'nda enerji arzı-çevre dengesinin optimizasyonu ve Türkiye'deki uygulanabilirliği, DPT Uzmanlık Tezleri, Ankara.
- Seçer, A., Küçet, N., Fakı, E. and Hasanoğlu, A., 2018. Comparison of co-gasification efficiencies of coal, lignocellulosic biomass and biomass hydrolysate for high yield hydrogen production, *International Journal of Hydrogen Energy*, 43, 46, 21269-21278.
- Selici, T., Utlü, Z. ve İlten, N., 2006. Enerji kullanımının çevresel etkileri ve sürdürülebilir gelişme açısından değerlendirilmesi, III. Ulusal Yenilenebilir Enerji Kaynakları Sempozyumu, Mersin.
- Sert, B. ve Harputlu, E., 2022. Süperkapasitör performansını artırmak için grafitik karbon nitrür/grafen hibrit yapılarının kullanılması, Niğde Ömer Halisdemir Üniversitesi Mühendislik Bilimleri Dergisi, 11, 4, 1188-1195.
- Skoog, D.A., Holler, F.J., Nieman, T.A., 1998. Enstrümental Analiz İlkeleri, Bilim Yayıncılık, Ankara.
- Standley, K.J., 1972. *Oxide Magnetic Materials* 2nd ed., Oxford University Press.
- Steinfeld, A., 2005. Solar thermochemical production of hydrogen: a review, *Solar Energy*, 78, 603-615.
- Stern, M., Geary, A.L., 1957. A theoretical analysis of the shape of polarization curves, *Electrochemical Society*, 104, 56-63.
- Şahin, İ., 2007. Voltammetrik yöntemlerle bor tayini ve uygulamaları, Doktora Tezi, Balıkesir Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Balıkesir.
- Şahin, M., 2006. Hidrojen Enerjisi Teknolojileri, Anıl Reklam Matbaacılık LTD.ŞTİ., Ankara.
- Şen, Z., Karaosmanoğlu, F., Şahin, A.D., 2002. 4. Ulusal Temiz Enerji Sempozyumu, İstanbul, Bildiriler Kitabı, 85-90.
- Şenaktaş, B., 2005. Hidrojen enerjisi, üretimi ve uygulamaları, Yüksek Lisans Tezi, Pamukkale Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Denizli.
- Şentürk, G.İ., Büyükgüngör, H., 2010. Biyohidrojen üretim yöntemleri ve kullanılan farklı atık materyallerin incelenmesi, *Sigma Journal of Engineering and Natural Sciences*, 28, 362, 369-395.

- Tutar, F., Eren, M.V., 2011. Geleceğin enerjisi: hidrojen ekonomisi ve Türkiye, Uluslararası İktisadi ve İdari İncelemeler Dergisi, 6.
- Uğurlu, Ö., 2006. Türkiye’de çevresel güvenlik bağlamında sürdürülebilir enerji politikaları, Ankara Üniversitesi, Sosyal Bilimler Enstitüsü, Doktora Tezi, Ankara.
- Touili, S., Merrouni, A.B., Azouzoute, A., Hassouani, Y.E. and Amrani, A., 2018. A technical and economical assessment of hydrogen production potential from solar energy in Morocco, International Journal of Hydrogen Energy, 43, 51, 22777-22796.
- Uçar, M., 1998. Bazı dimetilaminoazobenzen ve metoksiazobenzen türevlerinin elektrokimyasal davranışlarının incelenmesi, Doktora Tezi, Ankara Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Ankara.
- Ün, Ü.T., 2003. 21.Yüzyılın Enerjisi Hidrojen, II.Yenilenebilir Enerji Kaynakları Sempozyumu, İzmir.
- Ün, Tezcan, Ü., 2007. Hidrojen Enerjisi, URL adres: <http://www.genbilim.com/> Erişim tarihi: 21.07.2023.
- Veziroğlu, T., 1998. Hydrogen Energy Technologies, UNIDO, Vienne, Austrai.
- Veziroğlu, T.N., 2000. Quarter Century of Hydrogen Movement 1974-2000. International Journal of Hydrogen Energy, 25, 1143-1150.
- Veziroğlu, T.N., 2003. Hydrogen energy system: A permanent solution to global problems, Clean Energy Research Institute University of Miami, 13, 3, 8.
- Vijaya, M.S., Rangarajan, G., 1999-2000. Materials Science, McGraw-Hill Publishing Company Limited, New Delhi.
- Wang, A., Wang, C., Fu, L., Yucheng, W.W., 2017. Recent advances of graphitic carbon nitride-based structures and applications in catalyst, sensing, imaging, and LEDs, Nano-Micro letters, 9, 1-21.
- Willner, I., Willner, B.S., 1988. Solar hydrogen production through photobiological, photochemical and photoelectrochemical assemblies, International Journal of Hydrogen Energy, 13, 10, 593-604.
- Yaman, S., 2017. Altın disk elektrotta anodik sıyırma voltammetrisi ile antimon tayini, Yüksek Lisans Tezi, Balıkesir Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Balıkesir.
- Yasin, M., Jeong, Y., Park, S., Jeong, J., Lee, E.Y., Lovitt, R.W., Kim, B.H., Lee J. And Chang, I.S., 2015. Microbial synthesis gas utilization and ways to resolve kinetic and mass-transfer limitations, Bioresource Technology, 177, 361–374.

Yılmaz Baran, N., Baran, T. ve Çalışkan, M., 2021. Production of Pd nanoparticles embedded on micro-sized chitosan/graphitic carbon nitride hybrid spheres for treatment of environmental pollutants in aqueous medium, Ceramics International, 47, 19, 27736-27747.

Yıldız, A., Genç, Ö., 1993, Enstrümental Analiz, Ankara.

URL-1 < <https://eusolar.ege.edu.tr/tr-3482/yenilenebilir-enerji-kaynaklari.html>>, Erişim tarihi:16.05.2023.

URL-2 <[www.youthforhab.org.tr](http://www.youthforhab.org.tr)>, Erişim tarihi: 20.06.2023

URL-3 <<https://sustainablefuture.com.tr/hidrojen-enerjisi-nedir/>>, Erişim tarihi:19.07.2023.

URL-4 <<https://www.cevrebilinci.com/hidrojen-enerjisi-nedir-ve-nasil-uretilir-avantajlari-ve-dezavantajlari/>>, Erişim tarihi : 12.03.2023.

URL-5 <<https://www.youtube.com/watch?v=dcMORWSve-o>> Erişim tarihi:21.07.2023.

URL-6 <[http://bilsenbesergil.blogspot.com/p/6\\_36.html](http://bilsenbesergil.blogspot.com/p/6_36.html)> Erişim tarihi:26.05.2023.

URL-7 <<https://www.eokultv.com/elektroliz-nedir-kullanim-alanlari-kimya-ayt/42238>> Erişim tarihi:19.07.2023.

URL-8 <[https://mme.deu.edu.tr/wpcontent/uploads/2017/10/Elektrometalurji\\_ders\\_notu\\_2019.pdf](https://mme.deu.edu.tr/wpcontent/uploads/2017/10/Elektrometalurji_ders_notu_2019.pdf)>, Erişim tarihi:20.07.2023.

URL-9 [http://bilsenbesergil.blogspot.com/p/9\\_3.html](http://bilsenbesergil.blogspot.com/p/9_3.html), Erişim tarihi:16.08.23.

URL-10 <https://prosafety.com.tr/nanomalzemeler/> , Erişim tarihi: 16.08.23.

## ÖZGEÇMİŞ

**Adı ve Soyadı** : Pelin BOZKURT

### EĞİTİM BİLGİLERİ (KURUM VE YIL)

**Lisans** : Atatürk Üniversitesi, Kimya Mühendisliği Bölümü, 2009-2014.

**Yüksek Lisans** : Aksaray Üniversitesi, Nanoteknoloji Bölümü, 2020-2023.

### MESLEKİ DENEYİM VE ÖDÜLLER

1. Belenay Tekstil A.Ş. / Satınalma Mühendisi / 2021-2022

2. Ramnur Tekstil A.Ş. / Laboratuvar Mühendisi / 2019-2021

3. Arhavi Halk Eğitim Merkezi / Kimya Öğretmeni / 2015-2016

4. Arhavi Orhan Yücel Mesleki ve Teknik Anadolu Lisesi/Fizik-Kimya Öğretmeni/2015

### TEZDEN ÜRETİLEN YAYINLAR, SUNUMLAR VE PATENTLER

Kongrelerde Sunulan Bildiriler

1. Pelin BOZKURT, Didem BALUN KAYAN. “Investigation of the Activity of g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>/Ni Nanocomposite Structure in Electrocatalytic Hydrogen Production”, ICNASSEN 2023 - 5<sup>th</sup> International Conference on Natural and Applied Science and Engineering (ICNASSEN’23), 26-28 May 2023.