



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

KİMYA ANABİLİM DALI

**İNDİRGENMİŞ GRAFEN OKSİT/Au NANOPARTİKÜLLERLE
MODİFİYE EDİLMİŞ KARBON KEÇE ÜZERİNDE
ELEKTROKATALİTİK HİDROJEN ÜRETİMİ**

YÜKSEK LİSANS TEZİ

Murat BİLGİ

DANIŞMAN

Doç. Dr. Didem BALUN KAYAN

AKSARAY, 2020

Aksaray Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü'nün 182305401 numaralı Yüksek Lisans öğrencisi Murat BİLGİ tarafından hazırlanan "İNDİRGENMİŞ GRAFEN OKSİT/Au NANOPARTİKÜLLERLE MODİFİYE EDİLMİŞ KARBON KEÇE ÜZERİNDE ELEKTROKATALİTİK HİDROJEN ÜRETİMİ" adlı tez çalışması aşağıdaki jüri tarafından OY BİRLİĞİ ile Kimya Anabilim Dalında YÜKSEK LİSANS TEZİ olarak kabul edilmiştir.

Danışman: Doç. Dr. Didem BALUN KAYAN

Aksaray Üniversitesi

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

Üye: Prof. Dr. Ayfer MENTES

Aksaray Üniversitesi

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

Üye: Dr. Öğr. Üyesi Ersan TURUNÇ

Mersin Üniversitesi

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

Tez Savunma Tarihi: 28/08/2020

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

Doç. Dr. Mehmet Ali HİNİS

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.

Murat BİLGİ

TEŞEKKÜR

Yüksek lisans eğitimim boyunca bana yol gösteren, araştırmamın gerçekleştirilmesi ve değerlendirilmesi sırasında yardımlarını esirgemeyen danışman hocam Sayın Doç. Dr. Didem BALUN KAYAN'a teşekkür ederim.

Ayrıca yüksek lisans eğitimim süresince bana her konuda yardımcı olan ve desteğini hep yanımda hissettiğim sevgili aileme saygı ve teşekkürlerimi sunarım.

Murat BİLGİ
AKSARAY, 2020

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 Genel Bilgiler	3
2.1.1 Enerji kaynakları.....	3
2.1.2 Hidrojen enerjisi	4
2.1.3 Hidrojen üretimi.....	5
2.1.3.1 Fosil kaynaklardan hidrojen üretimi	6
2.1.3.2 Yenilenebilir kaynaklardan hidrojen üretimi	7
2.1.4 Elektrokataliz	10
2.1.5 Katı elektrotlar	12
2.1.6 Karbon elektrotlar	13
2.1.7 Modifiye elektrotlar	14
2.1.8 Karbon keçe	14
2.1.9 Grafen	16
2.1.10 Kompozit ve nanoyapılı materyaller	17
2.1.11 Altın nanopartikül	18
2.2 Çalışmada Kullanılan Yöntemler	20
2.2.1 Dönüşümlü voltametri	20
2.2.2 Tafel polarizasyon eğrileri.....	21
2.2.3 Elektrokimyasal impedans spektroskopisi.....	23
2.2.4 Taramalı elektron mikroskobu.....	25
2.3 Önceki Çalışmalar	26
3. MALZEME VE YÖNTEM	30
3.1 Kullanılan Kimyasal Maddeler	30
3.2 Kullanılan Malzemeler	30
3.2.1 Elektrokimyasal hücreler	30
3.2.2 Elektrotlar	30
3.3 Kullanılan Cihazlar.....	31
3.3.1 Elektrokimyasal çalışma ünitesi	31
3.3.2 Taramalı elektron mikroskobu.....	31
3.4 Yöntem	31
3.4.1 Karbon keçe elektrodun hazırlanması	31
3.4.2 Karbon keçe/indirgenmiş grafen oksit elektrodun hazırlanması	31
3.4.3 Karbon keçe/indirgenmiş grafen oksit/altın nanopartikül elektrodun hazırlanması.....	32
3.4.4 Karbon keçe/altın nanopartikül elektrodun hazırlanması	32
4. ARAŞTIRMA BULGULARI	33
4.1 Kompozit Yapıların Yüzey ve Yapısal Analizleri	33
4.2 Suyun Elektrolizi ile Hidrojen Oluşumunun İncelenmesi.....	36
4.2.1 Voltametrik çalışmalar.....	37
4.2.2 Tafel polarizasyon eğrileri.....	38

4.2.3 Elektrokimyasal impedans spektroskopisi.....	40
4.2.4 Stabilité çalıřmaları	41
5. SONUÇ VE ÖNERİLER.....	44
KAYNAKLAR	45
ÖZGEÇMİŐ.....	52



YÜKSEK LİSANS TEZİ

İNDİRGENMİŞ GRAFEN OKSİT/Au NANOPARTİKÜLLERLE MODİFİYE EDİLMİŞ KARBON KEÇE ÜZERİNDE ELEKTROKATALİTİK HİDROJEN ÜRETİMİ

Murat BİLGİ

**Aksaray Üniversitesi
Fen Bilimleri Enstitüsü
Kimya Anabilim Dalı**

Danışman: Doç. Dr. Didem BALUN KAYAN

ÖZET

Bu çalışmada, sudan elektrokimyasal olarak hidrojen elde etmek amacıyla elektroliz sistemindeki aşırı gerilimi düşürerek, hidrojen gazı oluşum reaksiyonunun hızını arttırmak amacıyla katalitik aktivesi yüksek, ekonomik ve kararlı yeni bir elektrokatalizör geliştirilmesi amaçlanmıştır. Elektrot malzemesi olarak karbon keçe (C), indirgenmiş grafen oksit (rGO) ile kaplanmış ve altın elektrodepozisyonu ile üzerinde Au nanopartiküller oluşturulmuştur. Karbon keçe üzerinde sentezlenen rGO/Au nanopartikül yapısının, hidrojen oluşum reaksiyonunun aktivitesini arttırdığı belirlenmiştir. Elde edilen kompozit yapıların yüzey özellikleri taramalı elektron mikroskopuyla (SEM) ve yüzeylerin kimyasal kompozisyonları enerji dağılım X-Ray spektroskopisiyle incelenmiştir. Sudan hidrojen üretimindeki katalitik aktiviteleri, dönüşümlü voltametri (CV), Tafel polarizasyon eğrileri, elektrokimyasal impedans spektroskopisi (EIS) gibi elektrokimyasal yöntemlerle incelenmiştir.

Anahtar Kelimeler: Hidrojen oluşum reaksiyonu, Karbon keçe, İndirgenmiş grafen oksit, Altın nanopartikül.

Ağustos, 2020; 52 sayfa

M.Sc. THESIS

ELECTROCATALYTIC HYDROGEN PRODUCTION ON CARBON FELT MODIFIED WITH REDUCED GRAPHEN OXIDE/Au NANOPARTICLES

Murat BİLGİ

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

Supervisor: Assoc. Prof. Dr. Didem BALUN KAYAN

ABSTRACT

In this study, to get hydrogen electrochemically from water, it is aimed to develop a new electrocatalyst with high catalytic activity to increase the rate of hydrogen evolution reaction (HER) by reducing the overvoltage in the electrolysis system. As the electrode material, carbon felt (C) was coated with reduced graphene oxide (rGO) and Au nanoparticles were formed by gold electrodeposition. It was determined that the rGO/Au nanoparticles film synthesized on carbon felt increases the hydrogen evolution reaction activity. The surface properties of the composite structures determined by scanning electron microscopy (SEM) and the chemical composition of the surfaces analyzed by energy dispersed X-ray spectroscopy (EDX). Electrocatalytic activities of the composite structures in the hydrogen production from water were investigated by electrochemical methods such as cyclic voltammetry (CV), Tafel polarization curves and electrochemical impedance spectroscopy (EIS).

Keywords: Hydrogen evolution reaction, Carbon felt, Reduced graphene oxide, Au nanoparticles.

August, 2020; 52 pages

ŞEKİLLER DİZİNİ

Şekil 2.1. Volkan eğrisi.....	12
Şekil 2.2. Karbon keçe	16
Şekil 2.3. Grafen	16
Şekil 2.4. Grafen, grafen oksit ve indirgenmiş grafen oksitin kimyasal yapıları.....	17
Şekil 2.5. Farklı şekillerdeki altın nanopartiküller.....	19
Şekil 2.6. Klasik dönüşümlü voltamogram örneği	21
Şekil 2.7. Anodik ve katodik polarizasyon eğrileri	22
Şekil 3.1. Elektrokimyasal hücre standı.	30
Şekil 4.1. a) Karbon keçe, b) karbon keçe/rGO taramalı elektron mikroskobu (SEM) görüntüleri.	33
Şekil 4.2. a) Karbon keçe, b) karbon keçe/rGO elektrot yüzeylerinin EDS analizleri	34
Şekil 4.3. a) Karbon keçe/rGO/Au ve b) karbon keçe/Au kompozit yapılarının SEM görüntüleri.	35
Şekil 4.4. a) Karbon keçe/rGO/Au ve b) karbon keçe/Au kompozit yapılarının EDS analizleri.....	36
Şekil 4.5. Karbon keçe, karbon keçe/rGO, karbon keçe/Au ve karbon keçe/rGO/Au nanopartikül elektrotların 0,5 M H ₂ SO ₄ içerisinde kaydedilen dönüşümlü voltamogramları ($v=10\text{mV.s}^{-1}$).....	37
Şekil 4.6. Karbon keçe, karbon keçe/rGO, karbon keçe/Au ve karbon keçe/rGO/Au nanopartikül elektrotların 0,5 M H ₂ SO ₄ içerisinde kaydedilen Tafel polarizasyon eğrileri ($v=1\text{mV.s}^{-1}$).	39
Şekil 4.7. Karbon keçe, karbon keçe/rGO, karbon keçe/Au ve karbon keçe/rGO/Au nanopartikül elektrotların 0,5 M H ₂ SO ₄ içerisinde kaydedilen Nyquist diyagramları (-0,8V)	40
Şekil 4.8. Farklı potansiyeller uygulandığında karbon keçe/rGO/Au nanopartikül elektrodun 0,5 M H ₂ SO ₄ içerisinde kaydedilen Nyquist diyagramları	41
Şekil 4.9. Karbon keçe/rGO/Au nanopartikül elektrodun 0,5 M H ₂ SO ₄ elektrolit ortamında kaydedilen ilk ve 600 döngü sonucundaki dönüşümlü voltamogramları.....	42
Şekil 4.10. Karbon keçe/rGO/Au nanopartikül elektrodun 0,5 M H ₂ SO ₄ elektrolit ortamında -0,8V'ta kaydedilen kronoamperomogramı.....	42

ÇİZELGELER DİZİNİ

Çizelge 2.1. Hidrojen üretim yöntemleri.	6
Çizelge 2.2. Rayon ve PAN öncüsüne dayanan karbon keçenin temel fiziksel ve üretim özellikleri	15



SİMGELER VE KISALTMALAR

Au	Altın
AuNP	Altın nanopartikül
C	Karbon Keçe
CA	Kronoamperometri
CV	Dönüşümlü Voltametri
dk	Dakika
EDS	Enerji Dağılım Spektroskopisi
EİS	Elektrokimyasal İmpedans Spektroskopisi
GO	Grafen oksit
HER	Hidrojen Oluşum Tepkimesi
Hz	Hertz
K	Kelvin
M	Molar
M-H	Metal-Hidrojen
MPa	Megapascal
mL	Mililitre
mm	Milimetre
mV	Milivolt
nm	Nanometre
PAN	Poliakrilonitril
PEM	Proton değişim membranı
rGO	İndirgenmiş Grafen Oksit
SEM	Taramalı Elektron Mikroskobu
SOEC	Katı oksit elektroliz hücreleri
i_0	Değişim akım yoğunluğu
η	Aşırı gerilim
Ω	Ohm

1. GİRİŞ

Enerji bir ülkenin sosyal ve ekonomik gelişiminde ve yaşam standartlarının yükseltilmesinde en önemli faktördür. Sanayinin ve teknolojinin zaman içerisinde büyük gelişim göstermesi, artan kentleşme ve bununla birlikte dünya nüfusunun hızla artması enerjiye olan ihtiyacı daha fazla arttırmıştır. Enerji, 21.yüzyılda insanlık için vazgeçilemez bir ihtiyaç haline gelmiştir.

Günümüzün enerji ihtiyacının büyük bir bölümünü fosil kökenli yakıtlar oluşturmaktadır. Sınırlı rezervlere sahip olan bu kaynakların fiyatlarının sürekli artması, insan sağlığına ve çevreye olan zararları ve artan enerji talebine karşılık rezervlerinin azalması nedeniyle hem artan enerji talebine cevap vermek hem de çevresel etkisi daha az olan yenilenebilir, alternatif enerji kaynaklarının araştırılmasını zorunlu hale getirmiştir. Hidrojen uygulamaları sonucu karbondioksit oluşmaması ve herhangi bir sera etkisi olmayan hidrojene yönelik çalışmalar giderek artmış ve daha fazla araştırılır hale gelmiştir. Hidrojen üretimi için hem fosil kaynaklardan hem de yenilenebilir kaynaklardan çok sayıda üretim yöntemi bulunmaktadır. Petrol, kömür, doğal gaz gibi hidrokarbonlardan, doğal ya da endüstriyel biyokütleden ve sudan hidrojen elde edilebilir. Bu yöntemlerden içerisinde suyun elektrolizi ile hidrojen elde edilmesi en uygun olanıdır. Elektroliz ile yüksek miktarlarda ve oldukça saf hidrojen elde edilebilmektedir. Ancak elektroliz sisteminde harcanan elektrik nedeniyle bu yöntemin maliyetli olmasına neden olmaktadır.

Suyun elektrolizi ile hidrojen üretimi, önemli enerji kayıpları ile ilişkilidir. Elektrotlarda oluşan aşırı gerilimler elektrot verimini düşürmekte bu da daha fazla elektrik harcanmasına neden olmakta dolayısıyla maliyetler artmaktadır. Bu dezavantajın giderilmesi için elektroliz sistemindeki aşırı gerilimlerin giderilmesi yani kullanılan elektrotların düşük aşırı gerilimli olması gerekir. Suyun elektrolizi ile hidrojen üretimi amacıyla elektrot geliştirme çabaları devam etmekte yapılan çalışmalar düşük aşırı gerilime, yüksek katalitik etkinliğe sahip, kararlı ve ekonomik yeni elektrot geliştirme araştırmaları artarak devam etmektedir.

Bu tez kapsamında sudan elektrokimyasal olarak hidrojen elde etmek amacıyla elektroliz sistemindeki aşırı gerilimleri düşürerek, hidrojen gazı oluşum reaksiyonunun hızını artırmak amacı ile katalitik aktivesi yüksek yeni elektrokatalizör geliştirilmesi amaçlanmıştır. Bu çalışmada elektrot malzemesi olarak karbon keçe kullanılmıştır. Karbon keçe; düşük maliyete, geniş bir yüzey alanına ve gözenekliliğe, iyi bir mekanik stabiliteye sahiptir. Karbon keçe (C), düzenli üç boyutlu yapıya sahip karbon fiberlerden oluşan düzlemsel karbonlu malzemedir. Enerji ve çevre alanlarında genellikle elektrot olarak yaygın olarak kullanılmaktadır.

Karbon keçe elektrotlar, grafen oksit (GO) ile modifiye edilmesiyle ve altın nanopartiküllerin (AuNP) elektrodepozisyonu ile hazırlanmıştır. Hazırlanan elektrotlar elektroliz sisteminde katot olarak kullanılmış ve 0,5 M H_2SO_4 çözeltisinde hidrojen gazı üretimine katalitik etkisi incelenmiştir. Yüksek elektrokatalitik aktiviteye sahip altın, indirgenmiş grafenoksit/karbon keçenin üzerine nano boyutta ayrıştırılmıştır. Böylece saf altın elektrota oranla çok az miktarda altın kullanılarak elektrotun maliyeti azaltılmış ve aynı zamanda katalitik etkinliği arttırılmış, ekonomik yeni bir elektrokatalizör geliştirilmiştir.

Elde edilen kompozit yapıların, sudan hidrojen üretimindeki katalitik aktiviteleri dönüşümlü voltametri, Tafel polarizasyon eğrileri, elektrokimyasal impedans spektroskopisi gibi elektrokimyasal yöntemlerle incelenmiştir. Hazırlanan elektrotların yüzey yapıları taramalı elektron mikroskopu (SEM) ile incelenmiş, elektrot yüzeyinin kimyasal bileşimi ise enerji dağılımlı X-ray spektroskopisi (EDX) ile belirlenmiştir.

2. KAYNAK ÖZETLERİ

2.1 Genel Bilgiler

2.1.1 Enerji kaynakları

Enerji kaynakları, insanlığın günlük ihtiyaçlarını karşılarken, üretim ve tüketim aşamalarının tüm basamaklarında gereksinim duyduğu temel ihtiyaçlarından birisidir. Sanayi devrimi ile birlikte üretim ve tüketim olanaklarının gelişimine paralel olarak enerji kaynakları da değişmekte ve gelişme göstermektedir.

Enerji kaynakları genel olarak iki farklı şekilde sınıflandırılmaktadır. Oluşum koşulları ve tükenebilirliğine göre yenilenebilir ve yenilenemez enerji kaynakları olarak ikiye ayrılırken diğer yaklaşıma göre ise birincil ve ikincil enerji kaynakları olarak sınıflandırılmaktadır. Milyonlarca yılda oluşmuş olan petrol, doğal gaz, kömür gibi fosil yakıtlar ile nükleer yakıtlar yenilenemeyen enerji kaynakları olarak adlandırılmaktadır. Yenilenebilir enerji kaynakları ise daimi olarak kullanılabilir, kendisini yenileyebilen kaynakları ifade etmektedir. Enerjinin herhangi bir değişim ya da dönüşüme uğramamış şekli birincil (primer) enerji olarak bilinmektedir. Birincil enerji kaynakları, petrol, kömür, doğal gaz, nükleer, güneş, hidrolik, biyokütle ve rüzgârdır. Birincil enerjinin dönüştürülmesi sonucu elde edilen enerji ise ikincil (sekonder) enerji olarak tanımlanmaktadır. Elektrik, benzin, mazot, motorin, kok kömürü, ikincil kömür, petrokok, hava gazı, sıvılaştırılmış petrol gazı (LPG) bu tip enerji kaynaklarındandır (Koç ve Şenel, 2013).

Sera gazları içinde en önemlisi ve en yaygını karbondioksit gazıdır. Bu gazın % 75'inin kömür, petrol, doğal gaz gibi fosil enerji kaynaklarının yanmasından ortaya çıktığı bilindiğinden, iklim değişikliğini önleme çabası, fosil yakıt kullanımını azaltma, iklim değişikliğine etkisi çok daha az olan veya hiç olmayan başka enerji kaynaklarının kullanılmasını gündeme getirmektedir (URL-1). Uluslararası Enerji Ajansının hazırladığı Yıllık Dünya Enerji Görünümüne (World Energy Outlook 2019) göre 850 milyon insanın hala elektriğe ulaşımı olmamasına rağmen mevcut enerji politikalarında herhangi bir değişiklik yapılmadığı takdirde, enerji ihtiyacının 2040 yılına kadar her yıl %1,3 artarak devam edeceği belirtilmektedir. Fosil yakıtlara

bağımlılık sürdükçe petrol, kömür ve gaz rezervleri azalacak, enerji maliyetleri daha da yükselecek ve çevre problemleri artarak devam edecektir.

Günümüzde kullanılan ve belirli limitlerde bulunan enerji kaynaklarına göre daha ekonomik, çevreye olan etkileri diğer enerji kaynaklarına göre daha temiz olan, doğal olarak doğada bulunan ve sürekli üretilen enerji kaynaklarına alternatif enerji kaynakları denilmektedir (URL-2). Sınırlı miktardaki fosil enerji kaynaklarının hızla tükenmesi ve oluşturduğu sera gazlarının çevreyi olumsuz etkileri dünyayı yeni alternatif enerjilere yönlendirmektedir. Bu kaynaklar; güneş enerjisi, rüzgâr enerjisi, hidrolik enerji, jeotermal enerji, biyokütle enerjisi ve hidrojen enerjisi olarak sıralanabilmektedir.

Yenilenebilir enerji kaynaklarının en büyük çevresel özellikleri, doğada sürekli var olmaları sebebiyle yenilenebilir olmaları, karbon salınımlarını azaltarak doğaya zarar vermemeleri, temiz ve sürdürülebilir enerji kaynağı olmalarıdır (Yılmaz vd., 2018). Sürdürülebilir ekonomi vizyonunun sağlanabilmesi açısından dünya gündeminin de merkezinde yer alan yenilenebilir enerji kaynakları, üretim ve tüketim faaliyetleri için önemli olan yüksek enerji talebini karşılamada ve enerji güvenliğini sağlamada etkin bir rol oynamaktadır (Dertli vd., 2018). Hidrojen, geleneksel yakıtlara kıyasla yüksek enerji verimi nedeniyle, fosil yakıtların yerine geçebilecek bununla birlikte çok yönlü, verimli ve sürdürülebilir temiz enerji taşıyıcılarından biridir.

2.1.2 Hidrojen enerjisi

Hidrojen Yunanca su anlamına gelen “hydro” ve oluşturan anlamına gelen “genes” sözcüklerinden meydana gelmiştir (Ball, 1985). Hidrojen 1766 yılında Henry Cavendish tarafından civa üzerinde üretilerek keşfedilmiştir (Cavendish, 1766). Hidrojen bilinen elementlerin en hafifidir ve evrende en çok bulunan gazdır (Heiserman, 1991). Oldukça reaktif olan periyodik tablonun ilk elementi olan hidrojen, döteryum ve trityum olmak üzere iki izotopa sahiptir ve evrenin yaklaşık % 90’ını oluşturmakla birlikte geleneksel yakıtlar içerisinde birim ağırlık başına maksimum enerji içeriğine sahiptir. Örneğin benzinle karşılaştırıldığı zaman birim kütle başına benzinden yaklaşık 2,6 kat daha fazla enerji içermektedir (Balat, 2008). Hidrojenin enerji depolama kapasitesi mükemmeldir, çünkü birim ağırlıkta yaklaşık 33 kWh enerji üretebilmektedir (İbrahim, 2018).

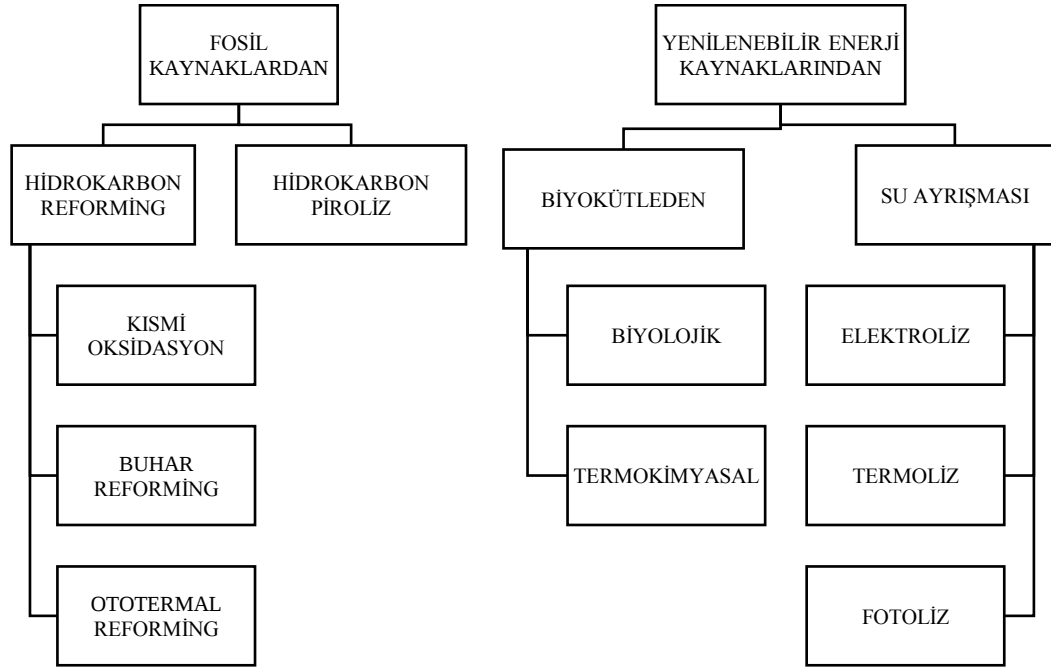
Hidrojen doğada serbest halde bulunmaz ve birçok farklı kaynaktan farklı yöntemler kullanılarak elde edilir. Hidrojen yakıt olarak kullanıldığında atmosfere atılan ürün sadece su veya su buharıdır. Çevreyi kirleten hiçbir gaz ve zararlı kimyasal madde oluşumu söz konusu değildir. Hidrojen enerjisinin insan ve çevre sağlığını tehdit edecek bir etkisi yoktur. Tüm gazlarla karşılaştırıldığında hidrojen, en düşük molekül ağırlığına, en yüksek termal iletkenliğe, en yüksek ortalama moleküler hıza, en düşük viskoziteye ve en düşük yoğunluğa sahiptir. Hidrojenin yakıt olarak kullanılmasında diğer tüm yakıtlarda olduğu gibi kendi doğası gereği hidrojen, bazı tehlikelere sahiptir. Güvenli kullanımını sağlamak için ek teknik kontroller gereklidir. Herhangi bir yakıtın güvenli kullanımı, üç yanma faktörünün ateşleme kaynağı (kivılcım veya ısı), oksidan (hava) ve yakıtın bulunduğu durumların önlenmesine odaklanır. Özellikle, hidrojen havada geniş bir yanıcı konsantrasyon aralığına (% 4-74) ve benzine veya doğal gaza göre daha düşük bir tutuşma enerjisine sahiptir, bu da daha kolay tutuşabileceği anlamına gelir. Hidrojen neredeyse görünmez bir alevle yandığından, özel alev dedektörleri gereklidir (URL-3; Dicks vd., 2018; Dawood vd., 2020).

2.1.3 Hidrojen üretimi

Hidrojen bir doğal yakıt olmayıp, birincil enerji kaynaklarından yararlanılarak su, fosil yakıtlar ve biyokütle gibi değişik hammaddelerden üretilen sentetik bir yakıttır (Tutar vd., 2011). Günümüzde küresel hidrojen üretimi günde bir milyar metreküpü aşmaktadır. Üretilen hidrojen, petrol (% 30), doğal gaz (% 48), kömür (% 18) ve suyun elektrolizinden (% 4) üretilmektedir (Gupta vd., 2009).

Hidrojen, fosil yakıtlar ve yenilenebilir kaynaklardan farklı hammaddeler, farklı yöntemler ve teknolojiler kullanılarak üretilir. Hidrojenin son kullanım noktasında sıfır karbon emisyonu olmasına rağmen, hidrojenin temiz enerji olarak kabul edilmesi için, hidrojenin üretim yolu ve üretmek için kullanılan enerjinin temizliği önemlidir. Çizelge 2.1’de hidrojen üretim yöntemleri gösterilmektedir.

Çizelge 2.1. Hidrojen üretim yöntemleri.



Elektroliz işleminde hidrojen elde etmek için uygulanan elektrik enerjisi, örneğin rüzgâr, su ve güneş enerjisi ile temiz ve sürdürülebilir enerji kaynaklarından sağlandığında, hidrojen, tüm uygulamalar için yakıt hücreleriyle birlikte kullanılabilen temiz, çevre dostu ve CO₂ içermeyen bir enerji kaynağı olarak kabul edilmektedir (Rossmeisl vd., 2005).

2.1.3.1 Fosil kaynaklardan hidrojen üretimi

Fosil kaynaklardan hidrojen üretimi için birçok farklı yöntem kullanılmaktadır. En çok kullanılan ve en gelişmiş olanlar, hidrokarbon reformasyonu ve piroliz yöntemleridir. Hidrokarbon reformasyon prosesi, hidrojen üretimi için en gelişmiş ve en ekonomik yöntem olup, hidrokarbona ek olarak reforming prosesi için diğer reaktan buhar veya oksijen olabilir ve bu prosesler buhar reforming ve kısmi oksidasyon reaksiyonu olarak bilinir. Birincisi endotermik, ikincisi ekzotermiktir. Bu iki reaksiyon sıfır net entalpi değişikliği ile birleştirildiğinde oto-termal reaksiyon olarak adlandırılır. Bugüne kadar, hidrojen üretimi için en yaygın olarak kullanılan hidrokarbon metandır (Chen vd., 2008).

Hidrokarbonların piroliz işleminde hidrojen kaynağı hidrokarbonun kendisi olup termal bozunmaya uğramasıyla gerçekleşir. Piroliz, hidrokarbonun (su veya oksijen olmadan) hidrojen ve karbona ayrıştırıldığı bir başka hidrojen üretilen yöntemidir (Holladay vd., 2009). Genel reaksiyonu şu şekildedir:



Sıcaklık aralığına bağlı olarak, piroliz işlemleri düşük (500 °C'ye kadar), orta (500-800 °C) ve yüksek sıcaklıklara (800 °C'nin üzerinde) gerçekleşir (Kalamaras ve Efstathiou, 2013).

2.1.3.2 Yenilenebilir kaynaklardan hidrojen üretimi

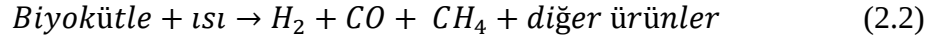
Yenilenebilir enerji kaynaklarından hidrojen üretimi için farklı prosesler uygulanmaktadır. Biyokütle tabanlı teknolojiler ve suyun ayrıştırılması yöntemleri en yaygın kullanılan yöntemlerdendir.

Biyokütleden hidrojen üretimi

Biyokütle, enerji bitkileri, bitki kalıntıları, ormanlardan ve orman kalıntılarından odun, çim, endüstriyel kalıntılar, hayvan ve belediye atıkları gibi çeşitli malzemelerinden elde edilen yenilenebilir birincil enerji kaynağıdır. Bitkiler, güneş enerjisini absorplayarak, yaşamlarını sağlayan fotosentez sürecini gerçekleştirmek için kullanırlar. Depolanan bu enerji biyokütle enerjisi olarak adlandırılmaktadır (Demirbaş, 2001). Biyokütleden hidrojen enerji elde edilmesinde, termokimyasal ve biyolojik prosesler kullanılmaktadır.

Termokimyasal dönüşüm işlemleri gazlaştırma, piroliz ve doğrudan sıvılaştırma olarak alt gruplara ayrılmaktadır. Biyokütle, yüksek sıcaklıklarda 1000 K'nin üzerinde gazlaştırılabilen, biyokütle parçacıkları gaz ve odun kömürü üretimiyle sonuçlanan kısmi oksidasyona uğramaktadır. Kömür, proses sonunda hidrojen, karbonmonoksit, karbondioksit ve metan oluşturmak üzere indirgenmektedir (Ni vd., 2006; Lukajtis vd., 2018). Piroliz, biyokütlenin sıvı yağlara, katı odun kömürüne ve gaz halindeki bileşenlere dönüştürülmesi için hava yokluğunda, 0.1-0.5 MPa'da 650-800 K sıcaklıkta biyokütlenin ısıtılması işlemidir (Ni vd., 2006). Piroliz yoluyla hidrojen üretiminin etkinliği, katalizörün tipine, sıcaklığa, biyokütle ısıtma hızına ve

işlem süresine bağlı olarak değişmektedir. Pirolizin genel reaksiyonu aşağıdaki gibidir.

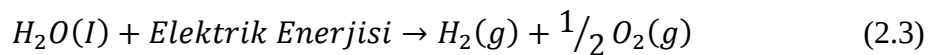


Biyolojik hidrojen üretiminin tüm süreçleri temel olarak hidrojen üreten bir enzimin varlığına bağlıdır. Bu enzimlerin miktarının veya doğal aktivitesinin genel süreci sınırlayabileceği varsayımsal olarak mümkündür (Hallenbeck ve Benemann, 2003). Biyolojik hidrojen üretim prosesleri temokimyasal ve elektrokimyasal işlemlerden daha çevre dostu olup, daha az enerji yoğunluğu gerektirmektedir. Çoğunlukla fotosentetik veya fermentatif organizmalar tarafından kontrol edilmektedirler. Hidrojen gazı üretim için kullanılan başlıca biyolojik süreçler direkt ve dolaylı biyofotoliz, foto fermantasyon ve karanlık fermantasyondur. Biyohidrojen üretimi, karbonhidrat bakımından zengin ve toksik olmayan hammaddeler kullanılarak anaerobik ve fotosentetik mikroorganizmalar ile gerçekleştirilebilir (Kapdan ve Kargi, 2006).

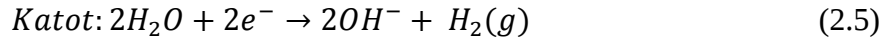
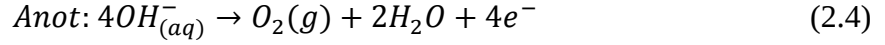
Suyun ayrıştırılması ile hidrojen üretimi

Sudan hidrojen üretimi elektroliz, termoliz ve foto-elektroliz gibi ayırma işlemleriyle gerçekleştirilmektedir. Gerekli enerji, yenilenebilir enerji kaynaklarından sağlandığında, üretilen hidrojen kullanılacak en temiz enerji taşıyıcısı olarak tanımlanmaktadır.

Elektroliz, elektrik enerjisi kullanılarak suyun hidrojen ve oksijene ayrılması işlemidir. Su, elektroliz teknolojilerinde hammadde olarak kullanılmaktadır. Elektroliz için gereken elektrik enerjisi, yenilenebilir (örneğin güneş, rüzgâr, hidroelektrik, vb.) veya yenilenemeyen (fosil yakıt veya nükleer bazlı) kaynaklardan üretilmektedir (Bhandari vd., 2013). Suyun elektrolizi, basitliği, düşük bakım gereksinimi ve kolay kullanımı nedeniyle umut verici bir teknoloji olarak kabul edilmektedir (Zeng vd., 2014). Genel elektroliz denklemi aşağıdaki gibidir. Denklemden sonra açıklamalarına yer verilir.



Elektroliz işleminde en basit şekliyle, suyun hidrojen ve oksijene ayrışması için iki elektrottan geçen bir elektrik akımı kullanılmaktadır. Suyun doğrudan ayrıştırılması sonucunda saf hidrojen elde edilirken, karbon içeren herhangi bir ürün oluşmamaktadır. Su molekülü ayrışarak, aşağıdaki reaksiyonla anotta oksijen gazı ve katotta hidrojen gazı üretilmektedir. Denklemden sonra açıklamalarına yer verilir.



Ticari olarak satılan düşük sıcaklık elektrolizörlerinin sistem verimleri % 56-73 civarındadır (1 atm ve 25 °C'ta 70.1–53.4 kWh / kg H₂) (Turner vd., 2008). Bir elektrokimyasal hücrede, suyu ayırmak için gereken potansiyel değeri 1,23 V olup, aşırı gerilim olarak adlandırılan bu değer, kullanılan elektrot malzemesine ve yüzey yapısına bağlı olarak değişmektedir (Eftekharı vd., 2017).

Elektroliz temel olarak, elektrik enerjisinin hidrojen formundaki kimyasal enerjiye, yararlı bir yan ürün olarak oksijene dönüştürülmesidir. Bugüne kadar geliştirilen ve yaygın olarak kullanılan elektroliz teknolojileri alkali, proton değişim membranı (PEM) ve katı oksit elektroliz hücreleridir (SOEC). En yaygın elektroliz teknolojisi alkalidir, ancak proton değişim membranı (PEM) elektrolizi ve katı oksit elektroliz hücreleri (SOEC) birimleri gelişmektedir.

Termoliz olarak da adlandırılan termokimyasal su ayrışmasında, suyu hidrojen ve oksijene ayırtmak için tek başına ısı kullanılır. Suyu ayırtmak için en basit termokimyasal işlem, suyun yüksek bir sıcaklığa ısıtılmasını ve hidrojenin denge karışımından ayrılmasını içerir. Basit olmasına rağmen, suyun ayrışması, sıcaklık genellikle 2500°C'in üzerine çıkana kadar etkilenmez. Böylece Gibbs fonksiyonu (ΔG) sıfır olur ve hidrojen, denge karışımından ayrılabilir. Suyun 2500°C'ta ayrışacağı bilinmektedir, ancak bu sıcaklıkta kararlı malzemeler ve ayrıca sürdürülebilir ısı kaynakları kolayca bulunmamaktadır. Suyun tek aşamalı termal ayrışması aşağıdaki gibi ifade edilmektedir (Holladay vd., 2009; Funk, 2001).



Bu tür yüksek sıcaklıklarda malzeme ve ayrılma ile ilgili sorunlar, şu anda doğrudan ayrışmayı mümkün kılmamaktadır (Steinfeld, 2005).

Fotoelektroliz, suyu doğrudan hidrojen ve oksijene ayırtmak için güneş ışığını kullanıldığı bir yöntemdir. Fotovoltaiklerde kullanılanlara benzer yarı iletken malzemeler kullanılmaktadır. Genel olarak, görünür ışık enerjisi bazı foto-katalizörler yardımıyla absorbe edilmekte, daha sonra su, hidrojen ve oksijene ayrılmaktadır. Fotoelektrot, güneş enerjisini emen ve aynı zamanda su molekülünün oksijen ve hidrojene doğrudan ayrışması için gerekli voltajı yaratan yarı iletken bir cihazdır. Fotoelektroliz, suyun elektrolizini çalıştırmak için bir fotoelektrokimyasal ışık toplama sistemi kullanır. Yarı iletken fotoelektrot, güneş radyasyonuna maruz kalan sulu bir elektrolite batırılırsa, üretilen hidrojen ve oksijenin reaksiyonlarını desteklemek için yeterli elektrik enerjisi üretecektir. Reaksiyon, yarı iletken malzemenin tipine ve 10-30 mA/cm²'lik bir akım yoğunluğu üreten güneş yoğunluğuna bağlıdır. Bu akım yoğunluklarında, elektroliz için gerekli voltaj yaklaşık 1.35 V'tur (Kalamaras ve Efstathiou, 2013). Bazı foto katalizörler, görünür ışığı ve uygun dalga boylarındaki enerjiyi emmek için kullanılır. Foto katalizörler, bazı bileşik tuzları, bileşik yarı iletkenler, foto sentetik boyalar, bazı mavi-yeşil alg türlerinin bozulmamış hücreleri, yeşil-kırmızı algler ve bazı fotosentetik bakterilerdir (Kothari vd., 2008).

2.1.4 Elektrokataliz

Birçok kimyasal reaksiyon termodinamik olarak mümkün olmasına karşın çok yavaş olarak yürür. Bu tür reaksiyonların hızlarını tepkimede harcanmaksızın arttıran maddelere "katalizör" denir. Hızı azaltan maddelere "inhibitör" denir. Katalizörün fiziksel hali değişse de kimyasal yapısında hiçbir değişiklik olmaz. Tepkimeye giren maddeler ile katalizör aynı fazda bulunuyorsa bu tür katalizörlere homojen katalizör denir. Heterojen katalizde ise katalizör ve tepkimeye giren maddeler farklı fazlarda bulunurlar. Bu tür işlemlerde, tepkimeye giren moleküller katalizör yüzeyine adsorplanır ve tepkime yüzeyde gerçekleşir (Çavuşoğlu, 2010). Elektrokimyasal tepkimelerde bu rolü elektrot üstlenir. Elektrot üzerinde bir çözünme, birikme,

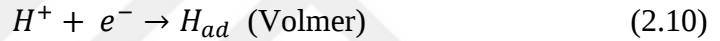
değişme olmuyorsa yük transfer reaksiyonlarında elektrot, katalizör olarak davranır ve buna yük transfer katalizörü ya da elektrokatalizör adı verilir.

Asidik çözeltilerde HER genel denklemi ve denge potansiyeli şu şekilde verilir:



$$E_{eq} = E^0 + \frac{1}{2f} \ln \frac{(\alpha_{H^+}^*)^2}{\alpha_{H_2}^*} \quad (2.9)$$

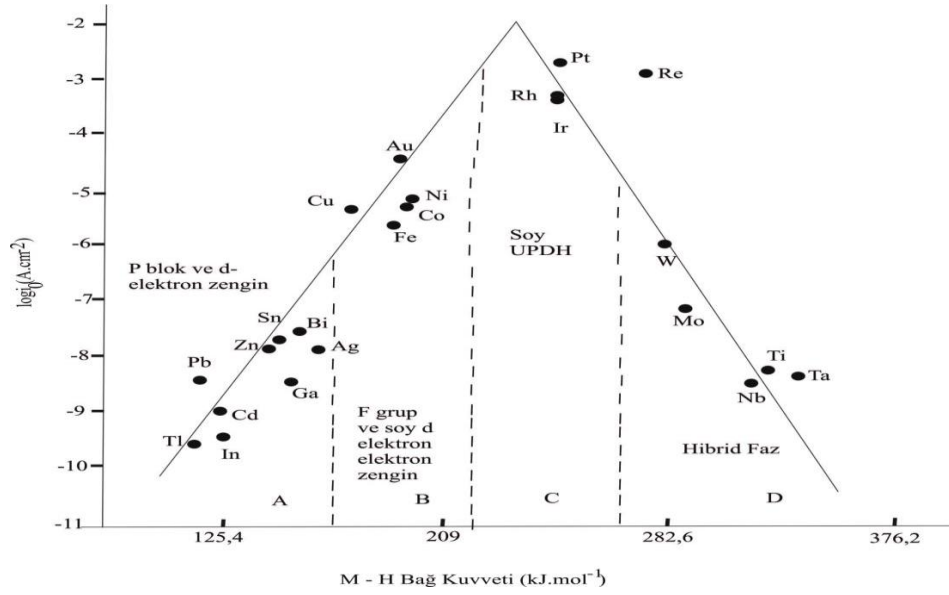
E^0 standart hidrojen elektrot potansiyelidir (sıfır olduğu varsayılır), $f = F/RT\alpha_{H^+}^*$ ise çözelti hacmindeki protonların aktivitesidir. $\alpha_{H_2}^*$ çözeltinin hidrojen fugasitesidir. Denge potansiyelinin (yani açık devre potansiyeli) belirlenmesi Pt-black elektrodunda gerçekleştirilir (Lasia, 2019). Asit ortamında hidrojen gelişimindeki ilk adım daima Volmer reaksiyonu veya elektrokimyasal hidrojen adsorpsiyonudur:



İkinci adım için iki olasılık vardır:



Şekil 2.1’de Trasatti tarafından HER için çizilen Volkan eğrisi gösterilmektedir. Bu grafikte bazı metallerin üzerinde gerçekleşen $2H^+ + 2e^- \rightarrow H_2$ tepkimesinin, değişim akım yoğunluklarına karşı M-H bağ enerjileri grafiğe geçirilmiştir.



Şekil 2.1. Volkan eğrisi.

HER için en uygun metal katalizörünün, volkan eğrisinin zirvesine yakın olan metaller olduğu bilinmektedir. Değişim akım yoğunluğu yüksek olan metalin elektrokatalitik özelliği yüksektir. Grafiğe göre, M-H bağ enerjisi arttıkça değişim akım yoğunluğu (i_0) önce artmakta, sonra azalmaktadır. Üzerinde en yüksek değişim akım yoğunluğu gösteren metaller, Pt ve Pt grubu metalleridir. Volkan eğrisi, farklı katalizörlerin katalitik aktivitelerini anlamak için kapsamlı bir temel oluşturmakta ve yüksek verimli katalizörlerin tasarımında yararlı bir kaynak olarak kullanılmaktadır.

2.1.5 Katı elektrotlar

Elektrokimyasal çalışmalarda, grafit, camı karbon, karbon keçe, karbon pasta, pirolitik grafit, lif karbon gibi karbon elektrotlar, soy metallerden Au, Pt, Pd, Ag veya bu malzemelerden modifiye elektrotlar, değişik tipte katı elektrotlar olarak kullanılmaktadırlar. Kullanılan elektrotlar, tel, levha, disk şeklinde olabileceği gibi sabit, döner veya titreşen katı elektrotlar şeklinde de hazırlanabilmektedirler.

Elektroanalitik ölçümlerde kullanılan malzemeler için olması gereken ideal elektrot özelliklerini şu şekilde sıralayabiliriz (Swain, 2007):

- Yüksek elektrik iletkenliği
- Sert ve dayanıklı
- Yığın boyunca homojen mikroyapı

- Tekrarlanabilir fiziksel, kimyasal ve elektronik özellikler
- İyi kimyasal inertlik, düşük ve kararlı arka plan akımı
- Geniş bir potansiyel aralığında morfolojik ve mikroyapısal kararlılık
- Çok çeşitli redoks sistemleri için hızlı elektron transfer kinetiği
- Kolayca üretilir, şekillendirilebilir ve maliyeti düşük olmalıdır.

2.1.6 Karbon elektrotlar

Elementel karbon genellikle üç şekilde ele alınır: grafit, elmas ve amorf karbon. Grafit ve amorf karbon, yüksek elektrik iletkenliği, kimyasal kararlılığı, çok yönlülüğü ve düşük maliyeti nedeniyle elektrokimyada yaygın olarak kullanılmaktadır. Elektrokimyasal uygulamalar için, bu malzemeler çubuklar, tozlar ve elyaflar halinde üretilir veya uygun bağlayıcılar kullanıldığında iletken kompozitler oluşturabilirler (Domenech-Carbo, 2009). Grafit, camı karbon, karbon pasta, karbon keçe, karbon nanotüp gibi değişik karbon elektrotları da bulunmaktadır.

Karbon elektrotlarla yapılan voltametrik yöntemlerde hem yükseltgenme, hem de indirgenme bölgesinde geniş bir çalışma aralığına imkân tanımaktadırlar (sulu ortamda yaklaşık -1,8V ile +1,8V potansiyel aralığında). Karbon elektrotların geniş potansiyel aralığında çalışmasına olanak sağlamaları, düşük artık akım göstermeleri, zengin yüzey kimyasına sahip olmaları, ucuz olmaları, kimyasal olarak inert olmaları gibi özellikleri, bu elektrotların elektroanalizdeki önemlerini arttırmıştır (Yılmaz, 2016).

Karbon yüzeylerde elektron aktarım hızları metal elektrotlardan daha yavaştır. Bu yüzden farklı aktifleştirme ve modifikasyon teknikleri ile kullanılmaktadırlar. Elektrodu ön işlemde geçirerek aktive etmek, tekrarlanabilir ve hassas sonuçlar elde etmek için çeşitli teknikler belirlenmiştir. Karbon bazlı elektrotlar elektroanaliz için yaygın olarak kullanıldığından, ön işlemlerde; mekanik parlatma, solventle temizleme, vakum ısıtma işlemi, lazer bazlı ısıtma işlemi, mikrodalga plazma tedavisi, radyo frekansı plazma tedavisi, elektrokimyasal polarizasyon gibi teknikler kullanılmaktadır (Nesekumar, 2018). Karbon elektrot malzemeleri, tipine ve her birinin nasıl işlendiğine bağlı olarak farklı mikro yapılara ve yüzey kimyalarına sahiptirler.

2.1.7 Modifiye elektrotlar

Voltametrde kullanılan elektrotların sınırlı olması nedeniyle elektrotların kimyasal veya elektrokimyasal özellikleri değiştirilerek modifiye elektrotlar hazırlanmaktadır. Katı elektrotlarda tekrarlanabilir veri elde etmek amacıyla, (çoğunlukla yüzey safsızlıklarının (oksitlerin) giderilmesi) kimyasal ve elektrokimyasal olarak yüzey ön işlemlerine ihtiyaç duyulmaktadır (Koryta vd., 1993).

Kimyasal olarak modifiye edilmiş bir elektrot; arayüzün elektrokimyasal, optik ve diğer özelliklerini değiştiren monomoleküler, çok moleküler, iyonik veya polimerik bir film ile kaplanmış iletken veya yarı iletken bir malzeme olarak tanımlanır. Yapılan modifikasyonla daha fazla seçicilik, hassasiyet, kimyasal ve elektrokimyasal stabilite, ayrıca daha geniş bir kullanılabilir potansiyel aralığı ve kirlenmeye karşı daha iyi direnç amaçlanmaktadır (Edwards vd., 2007, Bard ve Faulkner, 2001).

2.1.8 Karbon keçe

Karbon keçe, geniş bir yüzey alanına ve gözenekliliğe sahiptir, bu da redoks reaksiyonu için ideal bir özelliktir. Mükemmel elektrolitik verimlilik ve nispeten düşük bir maliyetle mekanik stabilite sağlayabilmesi, iyi elektronik iletkenliği, düşük fiyatla ticari olarak temin edilebilir, hafiflik ve kararlılık gösteren özelliği nedeniyle elektrot olarak tercih edilen bir materyaldir. Karbon keçe, mikro-karbon fiberlerden (yaklaşık 7 µm çapında) yapılmış ve yüksek gözenekliliğe sahip rastgele üç boyutlu yapıya (>% 90) sahip bir mikroeletrot grubudur. Geniş bir yüzey alanına (0.3-30 m²/g olarak tahmin edilir) sahiptir. Tüm bu özelliklere ek olarak gözenekli yapısı, çözelti akışına karşı çok düşük bir difüzyon bariyeri oluşturmaktadır (Wang ve Hasebe, 2009).

Bunların yanında karbon keçelerin hidrofobik yüzey yapıları, indirgenme ve yükseltgenme reaksiyonları için zayıf kinetikleri, sulu çözeltilerdeki yetersiz ıslanabilirlik ve elektrokimyasal aktiviteleri ile ilgili bazı dezavantajları vardır. Üzerinde herhangi bir işlem yapılmamış yani üretildiği haliyle karbon keçenin, elektrot olarak kullanıldığı durumdaki performansı kısmen düşüktür. Karbon keçe elektrotları daha aktif hale getirmek için farklı koşullar altında çeşitli modifikasyon

yöntemleri uygulanmaktadır. Modifikasyon işleminden sonra, karbon keçenin elektrokimyasal aktivitesi önemli ölçüde artırılabilir.

Karbon keçe elektrotlar çeşitli modifikasyon işlemleri sonucunda geniş kullanım alanı bulmaktadırlar. Vanadyum redoks akış pilleri, lityum iyon pilleri, kapasitörler ve süperkapasitörler, elektrokimyasal güneş enerjisi, biyoyakıt ve mikrobiyal yakıt hücreleri ve atık su arıtımı gibi uygulamalarda karbon keçe bazlı elektrotlar kullanılmaktadırlar. Ayrıca elektrofenton prosesi yöntemi ile sulu bir ortamda kalıcı organik kirleticileri uzaklaştırmak için bir katot malzemesi olarak olarak kullanılmaktadır.

Genel olarak grafit ve karbon keçelerinin imalatında yaygın olarak kullanılan iki tip hammadde kullanılmaktadır. Bunlar, rejenere bir selüloz olan poliakrilonitril (PAN) ve rayonudur (Çizelge 2.2).

Çizelge 2.2. Rayon veya PAN öncüsüne dayalı karbon keçenin temel fiziksel ve üretim özellikleri (URL-4).

Özellikler	Karbon keçe	
	PAN	Rayon
Kütle yoğunluğu (gcm^{-3})	0.14	0.09-0.10
Karbon içeriği (%)	98.5	≥ 99
Gerilme direnci (MPa)	0.18	0.13
Proses Sıcaklığı ($^{\circ}\text{C}$)	1500	1400

Keçe malzemenin üretim işlemi genellikle iğne ile delme ve daha sonra grafitleme ile yapılmaktadır. İğne ile delme işlemi, üretilen keçelerin iç yapısını, tekstil yapılarını veya kalınlık homojenliğini belirleyen önemli bir adımdır (HuongLe vd., 2017). Karbon keçe üretiminde dikey olarak yerleştirilen iğnelerle, elyafı delme işlemi gerçekleştirilmektedir. Daha sonra katmanlar yeniden düzenlenmiş liflerle takviye edilmekte ve katmanlar birbirleriyle sıkıştırılarak bütünleştirilmektedir. Şekil 2.2’de üretim sonucunda karbon keçenin son hali görülmektedir.

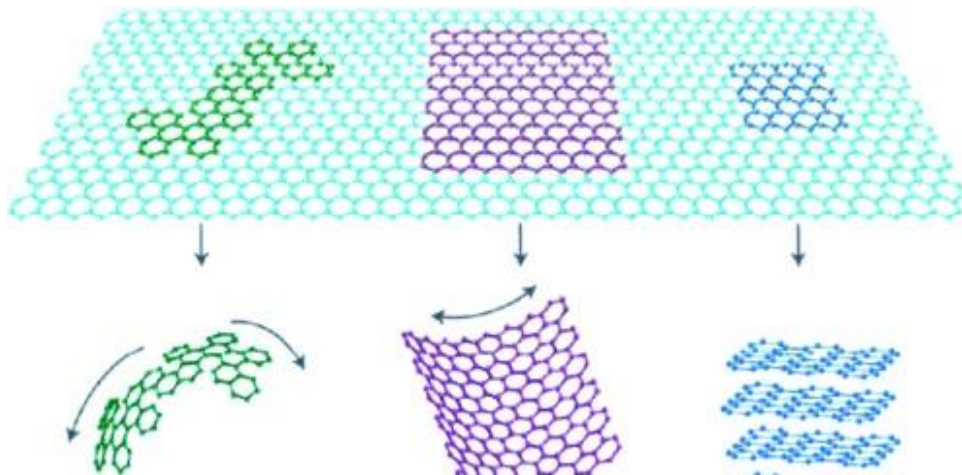


Şekil 2.2. Karbon keçe.

Sahip olduğu bu dezavantajların giderilmesi için literatürde birçok farklı modifikasyon yöntemi uygulanmaktadır. Plazma, termal ve kimyasal işlemler keçenin hidrofobik yüzeyini hidrofilik olarak değiştirir. Metalik nanopartiküller, karbon nanotüpler, karbon nanofiberler veya grafen modifikasyonları ile iletkenliği ve elektroaktif yüzeyin geliştirilmesinde uygulanmaktadır (Kim vd., 2011). En uygun modifikasyon seçimi üretilen elektrotların amacına bağlı olarak belirlenmelidir.

2.1.9 Grafen

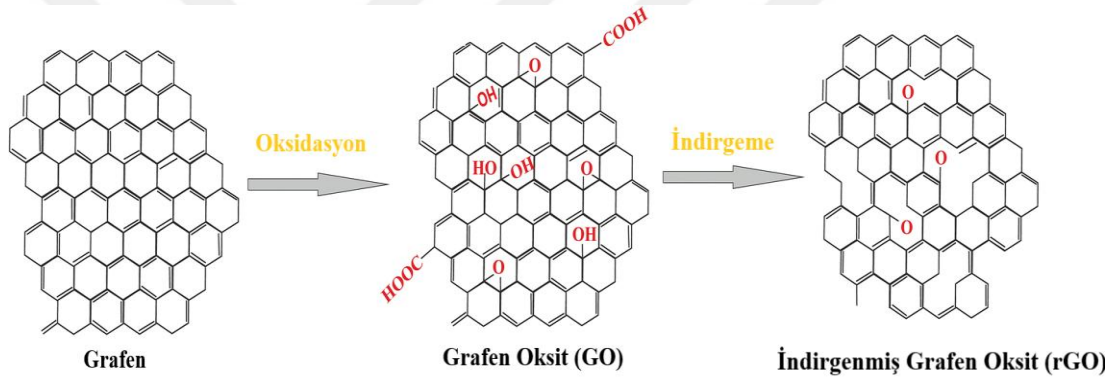
Karbon keçe elektrotların sahip olduğu dezavantajlarını gidermek için termal, kimyasal, karbon nanotüp, metalik nanopartiküller gibi farklı modifikasyon yöntemleri uygulanmaktadır. Bu modifikasyon yöntemlerinden birisi de grafendir. Grafen modifikasyonu ile iletkenliğin ve elektroaktif yüzeyin geliştirilmesi amaçlanır. Grafenin yapısı Şekil 2.3'te gösterilmiştir.



Şekil 2.3. Grafen (Rao, vd., 2009).

Grafen, altı üyeli halkalarla düzenlenmiş karbon atomu katmanlarını içeren, eşsiz özelliklere sahip iki boyutlu bir malzemedir. Grafen sahip olduğu iyi elektriksel, fiziksel, termal, optik ve mekanik özellikleri nedeniyle geniş kullanım alanı bulunmaktadır. Aynı zamanda yüksek teorik özgül yüzey alanına ($2620 \text{ m}^2.\text{g}^{-1}$) sahip, esnek bir materyal olup, taşıdığı iyi özellikleri nedeniyle hibrit ve kompozit malzemelerde yaygın olarak kullanılmaktadır.

Grafen oksit (GO), epoksitler, alkoller ve karboksilik asitler gibi oksijenli fonksiyonel gruplar içeren bir grafen türevi olup, kimyasal analizi, karbon/oksijen oranının yaklaşık üçe bir olduğunu gösterir (Tiginyanu vd., 2011). Grafen oksit, çeşitli yöntemlerle indirgenerek, indirgenmiş grafen oksit elde edilmektedir. Şekil 2.4'te grafenin indirgenmiş grafen oksite dönüşmesi gösterilmektedir.



Şekil 2.4. Grafen, grafen oksit ve indirgenmiş grafen oksitin kimyasal yapıları.

Grafen oksitin yüzeyinde bol miktarda fonksiyonel grup bulunması, polimer ve polar molekülü nanokompozitler için sabitleme yerleri olarak kullanılmasını mümkün kılar. Metal ve metal oksit nanoparçacıklarının grafen tabakalar üzerinde dağılması, yeni katalitik, enerji depolama ve optoelektronik özelliklere sahip potansiyel olarak ilginç malzemeler geliştirmek için yeni bir yol sağlamaktadır (Rasmi vd., 2011; URL-5, Wu vd., 2012; Rao vd., 2009). Hidrofobik özellik gösteren indirgenmiş grafen oksitin az katmanlı yapıları (<10 katman), grafene yakın özellikler göstermektedir (URL-6).

2.1.10 Kompozit ve nanoyapılı materyaller

Kompozit tanımı en genel anlamıyla, iki veya daha fazla farklı maddenin veya malzemenin kullanım amacına yönelik karıştırılması veya belli bir düzende bir araya

getirilmesiyle hazırlanan sistemler için kullanılmaktadır. Kompoziti oluşturan madde ya da malzemeler arasında birincil kimyasal etkileşimler bulunmamaktadır. Kompozitin hazırlanmasında temel amaç, farklı maddelerin iyi özelliklerini bir malzeme altında toplayabilmektir (Saçak, 2012). Nano malzemeler, genel olarak boyutu 1 ile 100 nm arasında olan malzemeleri ifade etmektedir. Nano boyutlu malzemelerin bir matris içinde kullanımı ile nano kompozitler oluşturulacağı gibi malzeme yüzeylerinin kaplanması ile de fiziksel ve kimyasal olarak gelişmiş yeni nanokaplı malzemeler elde edilmektedir. Nano malzemeler, otomotiv, elektronik, havacılık, savunma, sürdürülebilir enerji, biyoteknoloji ve ilaç dağıtım sistemleri gibi birçok farklı alanda kullanılmaktadırlar.

Nanomalzemeler daha geniş yüzey alanı, daha fazla nüfuz edilebilirlik, aktivite ve daha iyi kimyasal seçicilik sağlamaktadırlar. Daha büyük yüzey alanının avantajı, yığın malzemeye göre daha yüksek bir yüzey aktivitesidir, bu da daha hızlı kimyasal reaksiyon hızlarına ve daha yüksek katalitik aktiviteye neden olmaktadır. Elektrot yüzeylerinde nano yapılar, yüksek yüzey/hacim oranı oluşturdıklarından, elektrokimyasal sinyalleri arttırmaktadırlar. Elektroaktif yüzey alanındaki artış, daha düşük tespit limitleri ve daha yüksek hassasiyet sağlamaktadır. Yüksek yüzey alanlı bir elektrodun elde edilmesindeki temel zorluk, elektrot yüzeyinde üretilen yapıların büyüklüğü ve dağılımı üzerindeki kontroldür (Ghasemi vd., 2013; Reijnders, 2006).

2.1.11 Altın nanopartikül

Altın, bazı çalışmalarda platine kıyasla belli bir derişime kadar oksijeni absorplamadığı için, daha iyi bir elektrot malzemesidir. Yüksek akım değerlerinde, 1 M HClO₄ çözeltisinde altın elektrodun anodik sınırı +1.5 V olmasına karşın; küçük akım değerlerinde bu sınır +0.8 V'tur. Çünkü +0.8 V'ta elektrot yüzeyinde altın oksit oluşur. Bu da küçük de olsa bir akıma neden olur. Dolayısıyla küçük akım koşullarının da dikkate alınması gerekir (Yılmaz, 2016). Yığın olarak altın elektrot kullanılması çok maliyetli bir işlem olup, çok az miktarda altın kullanılarak, farklı malzemelerin elektrokatalitik etkinliğini arttırmak daha tercih edilen bir işlemdir. Kullanılacak altın miktarı nanopartikül seviyesinde olduğu zaman oluşturulacak kompozit elektrodun maliyeti azaltılmış ve aynı zamanda katalitik etkinliği artırılmış olacaktır.

Altın kolloidler olarak da adlandırılan altın nanopartiküller (AuNP'ler) en kararlı metal nanoparçacıklardır. AuNP'lerin sentez yöntemleri arasında en popüler olanı, 1951'de Turkevitch tarafından geliştirilen, suda HAuCl_4 'ün sitrat ile indirgenmesidir. Bu yöntemle yaklaşık olarak 20 nm AuNP'ler elde edilmektedir (Daniel ve Astruc, 2004).

Altın nanopartiküller farklı yöntemler ve farklı çıkış maddeleri kullanılarak istenilen boyutta ve şekilde sentezlenebilmektedir. Şekil 2.5'te farklı şekillerde elde edilen altın nanopartikülleri göstermektedir.



Şekil 2.5. Farklı şekillerdeki altın nanopartiküller (Ramalingam, 2019).

Altın nanoparçacıkların çok yönlü yüzey kimyası, küçük moleküller, polimerler ve biyolojik tanıma molekülleri ile kaplanmalarına izin verir, böylece uygulama alanlarını genişletir (Ramalingam, 2019). Altın nanopartiküllerin benzersiz nano yapısı, kayda değer yüzey alanı, mükemmel elektrik iletkenliği ve oda sıcaklığında iyi elektron hareketliliği ve benzersiz termal ve mekanik özelliklere sahiptir (Amir vd., 2020).

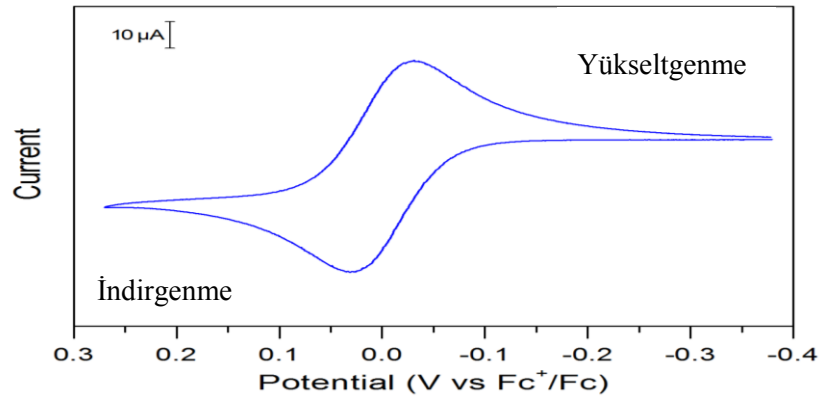
Altın NP'ler küresel, çubuk şeklinde, tel, üçgen, oktahedral ve tetrahedral gibi çeşitli şekiller gösterir (Xia, vd., 2008). Şimdiye kadar, çapı 2nm ila 150nm arasında değişen altın nanopartiküller ve nanoküreler, nanoçubuk gibi farklı şekiller, farklı kimyasal ve biyolojik yöntemler kullanılarak hızlı bir şekilde sentezlenebilmektedir. Altın nanopartiküller (AuNP'ler), katalizör sistemindeki yüzey alanını ve elektron aktarım hızını arttırmak için sensörlerin elektrot yüzeyi olarak kullanılır (Yola vd., 2015). Altın nanopartiküllerin grafen oksit ile oluşturduğu yapılar üzerine farklı alanlarda çalışmalar bulunmaktadır. Fotokataliz, sensörler, elektrokimyasal kapasitörler, güneş pilleri, ilaca dirençli kanser tedavisi ve manyetik hipertermi tedavisindeki spesifik uygulamalar, antimikrobiyal ajanlar vb. Au ve Ag

nanoparçacıkları kullanılarak daha fazla araştırma yapılmaktadır (Amir vd., 2020). Nano boyutlu AuNP'ler elektrot iletkenliğini artırma, elektron aktarım hızını kolaylaştırma ve analitik hassasiyeti artırma yeteneğine sahiptir. Bununla birlikte, AuNP'lerin elektrokatalitik özellikleri esas olarak boyut, şekil ve taşıyıcı malzemelere bağlıdır (Solak vd., 2013). Altın nanopartikül uygulamalarının birçoğu geliştirilme aşamasındadır.

2.2 Çalışmada Kullanılan Yöntemler

2.2.1 Dönüşümlü voltametri

Voltametri; yükseltgenebilen veya indirgenebilen elektroaktif inorganik ve organik maddelerin çeşitli ortamdaki çözeltilerinden uygun deney şartlarında elde edilen akım şiddeti-potansiyel eğrilerinin özelliklerini inceleyen ve değerlendiren bir analiz tekniğidir (Yılmaz, 2016). Dönüşümlü voltametri (CV) bir potansiyel tarama tekniğidir ve elektrokimyacıların elektroliz mekanizmalarını araştırmak için kullandıkları tekniklerden birisidir. Dönüşümlü voltametri için gerekli ekipman, bir test çözeltisine daldırılmış üç elektroda (çalışma, referans ve yardımcı) bağlı geleneksel bir üç elektrotlu potansiyostattan oluşmaktadır. Elektrokimyasal bir hücrede çalışma elektrodu ile referans elektrodu arasında değeri zamanla değiştirilen potansiyel uygulanarak, üç elektrotlu sistemlerde çalışma elektrodu ile karşı elektrot, iki elektrotlu sistemlerde ise çalışma elektrodu ile referans elektrodu arasındaki akımın ölçülmesidir. Çalışma elektrodu olarak civa hariç katı elektrot kullanıldığında elde edilen bu eğriye voltamogram denir. Dönüşümlü voltametri, difüzyon kontrolünü sağlamak için hareketsiz bir çözelti içinde gerçekleştirilmektedir. Döngüsel bir voltamogram, çalışma elektroduna doğrusal bir potansiyel taraması, zamanla doğrusal olarak artan veya azalan bir potansiyel uygulanarak elde edilmektedir. Şekil 2.6'da klasik bir dönüşümlü voltamogram örneği görülmektedir.



Şekil 2.6. Klasik dönüşümlü voltamogram örneği (Elgrishi vd., 2018).

Dönüşümlü voltametri, moleküler türlerin indirgenme ve yükseltgenme süreçlerini araştırmak için yaygın olarak kullanılan güçlü ve popüler bir elektrokimyasal tekniktir. Ayrıca, kataliz içeren elektron transferi ile başlatılan kimyasal reaksiyonları incelemek için de çok değerlidir. Dönüşümlü voltametri; elektrot potansiyelinin E_1 ve E_2 potansiyel limitleri arasında belirli bir tarama hızında süpürülmesini içerir. E_2 sınırına ulaşıldığında, döngüsel bir tarama elde etmek için tarama E_1 'e geri döndürülür. Tarama, mevcut potansiyelin bir grafiğidir ve redoks işleminin meydana gelme potansiyelini göstermektedir. Potansiyel eksenini aynı zamanda tarama hızı ile ilişkili bir zaman eksenidir (Chooto, 2019; Mabbott, 1983). Bu işlem sırasında ölçülen akım genellikle elektrot yüzey alanına normalleştirilir ve akım yoğunluğu olarak adlandırılır. Akım yoğunluğu daha sonra uygulanan potansiyele göre kaydedilir ve döngüsel bir voltamogram elde edilir. Elde edilen voltamogramdan indirgenme yükseltgenme potansiyelleri, kaç adımda indirgenip yükseltgendiğini ve bunların kararlılığı belirlenebilmektedir. Deneyin tarama hızı, uygulanan potansiyelin ne kadar hızlı taranacağını kontrol eder. Daha hızlı tarama hızları, difüzyon katmanının boyutunda bir azalmaya yol açar; sonuç olarak, daha yüksek akımlar gözlenir.

2.2.2 Tafel polarizasyon eğrileri

Elektrolizi başlatabilmek için elektrotların denge potansiyellerinin farkı kadar olan bir potansiyel değeri uygulanmaktadır ancak bazen bu yeterli olmamaktadır. Bu durumda uygulanması gereken dış potansiyel değerinin daha büyük olması gerekir. Aşırı gerilim (η) ile gösterilen bu değer, gerçek elektrot potansiyeli (E) ile denge potansiyeli (E_{eq}) arasındaki fark olarak tanımlanır.

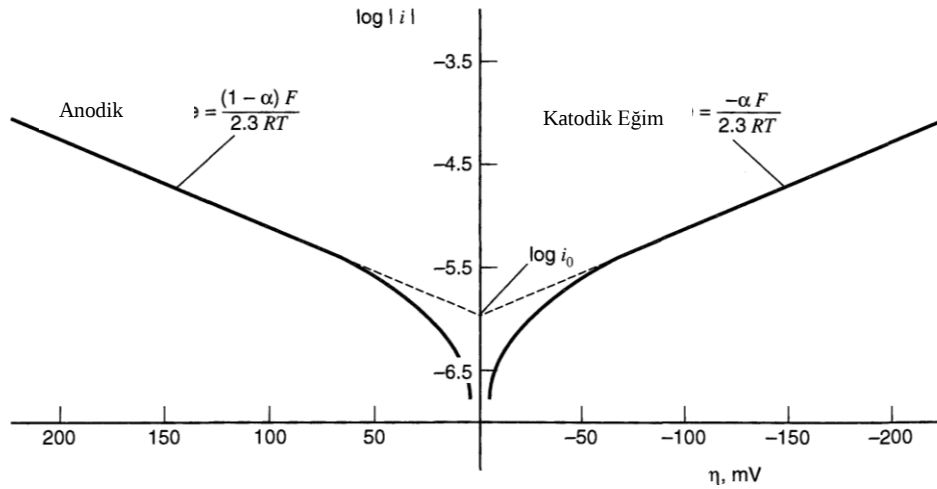
$$\eta = E - E_{eq} \quad (2.13)$$

Polarizasyondan dolayı E daima E_{eq} 'den küçüktür. Bu nedenle aşırı gerilim daima negatif işaretlidir. Aşırı gerilim, anot ve katot potansiyellerindeki artışların bileşkesi olarak ortaya çıkar. Aşırı gerilimin akım yoğunluğuyla nasıl değiştiği Tafel tarafından geliştirilen bir bağıntıyla anlatılabilir (Zeren, 1999; Yılmaz, 2016).

$$\eta = a + b \log i \quad (2.14)$$

Bu bağıntıda a ve b birer sabittir. i ise; A/cm^2 cinsinden akım yoğunluğudur. a sabiti metale özgü bir sabittir. b sabiti ise Tafel eğimidir ve ara yüzde meydana gelen tepkimenin cinsine bağlı olarak değişmektedir.

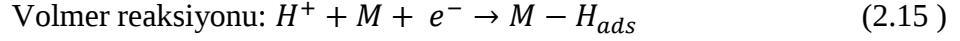
Akım yoğunluğunun mutlak değerinin dekadik logaritmasına karşı aşırı gerilimin çizilmesi Tafel grafiğini verir (Şekil 2.7). Tafel denklemindeki eğim, elektrokatalizörün aktifliği hakkında bilgi vermektedir.



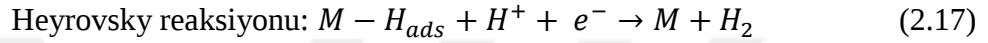
Şekil 2.7. Anodik ve katodik polarizasyon eğrileri ($\alpha = 0.5$, $T = 298$ K, $i_0 = 10^{-6}$ A/cm²).

Yük transfer katsayısı olan $\alpha = 0,5$ ve hidrojen oluşumunda elektron transfer sayısı n için ise $n=1$ olduğunda $b=120$ mV.dec⁻¹ olarak belirlenmiştir. Tek elektron transferinin gerçekleştiği Volmer tepkimesinin en yavaş basamak olarak hız belirleyen basamak olduğu tespit edilmiştir. İki hidrojen atomunun elektron transferi olmadan yeniden birleşimi (rekombinasyon) olan Tafel tepkimesinin hız belirleyici basamak olması için Tafel eğimi 30 mV.dec⁻¹ olarak belirlenmekte ve tepkime, Volmer–Tafel mekanizmasını izleyerek devam etmektedir. Tafel eğimi 40 mV.dec⁻¹

olarak hesaplandığında, hız belirleyici basamak Heyrovsky tepkimesi olup, hidrojen oluşumu Volmer–Heyrovsky mekanizması üzerinden gerçekleşmektedir. Asidik ortam için Tafel, Volmer ve Heyrovsky reaksiyonları için Tafel eğimlerinin hesaplanması için gerekli bağıntılar ve 25 °C için değerleri verilmiştir (Yu vd., 2019; Cao vd., 2014; Zheng vd., 2013). Bağıntılarda F; Faraday sabiti (96485 C.mol⁻¹), R (8.314 J.mol⁻¹K⁻¹); ideal gaz sabiti olup T (298 K) ise mutlak sıcaklıktır.



$$b = 2,3 \times \frac{RT}{\alpha F} \quad \text{Tafel eğimi} = 120 \text{ mV.dec}^{-1} \quad (2.16)$$



$$b = 2,3 \times \frac{RT}{(1+\alpha)F} \quad \text{Tafel eğimi} = 40 \text{ mV.dec}^{-1} \quad (2.18)$$



$$b = 2,303 \times \frac{RT}{2F} \quad \text{Tafel eğimi} = 30 \text{ mV.dec}^{-1} \quad (2.20)$$

Hız belirleme basamağına göre ya Volmer + Heyrovsky veya Volmer + Tafel reaksiyonları ile hidrojen oluşumu gerçekleşmektedir. Arzu edilen bir elektrokatalizör, aynı anda küçük bir Tafel eğimine (b) ve yüksek bir değişim akım yoğunluğuna (i_0) sahip olmalıdır (Theerthagiri vd., 2020).

2.2.3 Elektrokimyasal impedans spektroskopisi

İmpedans, bir alternatif akımın akışına karşı olan direncin ölçüsüdür. Elektrokimyasal impedans spektroskopisi (EİS), bir sistemin karmaşık elektrik direncini analiz etmek için güçlü bir yöntemdir. İmpedans terimi elektrik mühendisi, matematikçi ve fizikçi Oliver Heaviside tarafından oluşturulmuştur. EİS genellikle sinüzoidal alternatif akım potansiyelinin elektrokimyasal bir hücreye uygulanması sonucunda hücre içinden geçen akımı ölçer. EİS, klasik teknikler arasında benzersizdir çünkü frekans alanındaki akım ve uygulanan potansiyel farkı arasındaki ilişkiyi ölçmektedir. İmpedansı ölçmek için, bir elektrokimyasal sistemi belirli bir frekans seti için küçük (ideal olarak sonsuz) sinüzoidal gerilime (potansiyostatik

mod) veya akım (galvanostatik mod) bozulmasına maruz kalır ve sonuçta ortaya çıkan sinüzoidal akım veya voltaj tepkisi kaydedilir (Ciucci, 2019; Munoz vd., 2017). İmpedans, bir devre elemanının akım akışına direnme kabiliyeti olarak tanımlanır ve bu nedenle, dirençle aynı birimde (ohm) ölçülen bir devrede elektrik akımına karşı kuvvettir.

Bir elektrot yüzeyine bir salınım potansiyeli uygulandığında, ortaya çıkan akım uygulanan potansiyel ile aynı frekansa sahiptir, ancak faz dışı olabilmektedir. Bu faz kayması, elektrokimyasal sistemin direnç ve kapasitif özelliklerine bağlı olarak değişmektedir. Faz kayması elektrot yüzeyindeki fiziksel işlemleri izlemek için kullanılabilir. Bir elektroda belirli bir frekans aralığı (ω) üzerindeki bir sinüzoidal potansiyel $E(t)$ uygulanır ve elde edilen sinüzoidal akım ölçülür. Elde edilen alternatif akım $I(t)$, uygulanan potansiyel ile aynı frekansa sahiptir, ancak faz dışıdır. Faz kayması, sinüs dalgalarının periyodunu ifade eden faz açısı (θ) olarak verilir. Bu faz açısı (veya faz kayması) elektrokimyasal sistemin kapasitif, dirençli ve endüktif karakterini temsil eder.

Denklemlerde uygulanan potansiyel $E(t)$ 'yi , sonuçta ortaya çıkan akımı $I(t)$, t zamanı, I^0 , mevcut salınımların büyüklüğünü ifade etmektedir (Munoz vd., 2017).

$$E(t) = E^0 \sin(\omega t) \quad (2.21)$$

$$I(t) = I^0 \sin(\omega t - \theta) \quad (2.22)$$

Sistemin (Z) impedansı Ohm Yasası denklemine benzer bir ifade ile hesaplanabilmektedir:

$$Z = \frac{E_t}{I_t} \quad (2.23)$$

Elektrokimyasal impedans spektroskopisi verileri farklı grafiklerle değerlendirilebilmektedir. Elektron transfer kinetiği üzerinde çalışırken elektrokimyasal literatürde en sık kullanılanlar Nyquist diyagramlarıdır. Cole-cole diyagramları veya karmaşık impedans düzlem diyagramları olarak da bilinen Nyquist diyagramları, reel direnç ve sanal direnç eksenleriyle ifade edilir. Diyagramdaki her deney noktası farklı bir frekansa karşılık gelmektedir (Munoz vd., 2017). Elektrokimyasal impedans spektroskopisi tekniği piller, yakıt hücreleri ve korozyon

gibi çeşitli uygulamalar için yaygın olarak kullanılmaktadır (Nara vd., 2020). EIS ölçümleri kolay bir şekilde elektron transfer hızı, çift katmanlı kapasitans, temas direnci ve çözelti direnci hakkında bilgiler vermektedir. Sonuç olarak, EIS tekniği geliştirilmiş elektroanalitik özelliklere sahip olan optimal kompozit kompozisyonun belirlenmesini mümkün kılmakta ve sonuçlar voltametrik ölçümlerle de desteklenebilmektedir (Montes vd., 2015).

2.2.4 Taramalı elektron mikroskobu

Taramalı Elektron mikroskobu (SEM), odaklanmış bir elektron demeti ile numune yüzeyinin taranarak bu elektron demetinin etkileşimleriyle oluşan bir dizi sinyalin, çeşitli dedöktörler tarafından toplanması sonucunda numune yüzeyini görüntüleyen böylece numunenin yüzey topografisi, bileşimi ve diğer özellikleri hakkında bilgi veren bir yöntemdir. Bir taramalı elektron mikroskobunda görüntü oluşumu temel olarak; elektron demetinin incelenen örneğin yüzeyi ile yaptığı fiziksel etkileşmelerin (elastik, elastik olmayan çarpışmalar ve diğerleri) sonucunda ortaya çıkan sinyallerin toplanması ve incelenmesi prensibine dayanmaktadır. Morfolojik kontrast ve bileşim bilgisi, sırasıyla, ikincil elektronlar (enerjileri 50 eV'tan küçük olan) ve geri saçılan elektronlar (50 eV'tan büyük enerjili) olarak bilinen spesifik tipte yayılan elektronların seçilmesiyle ayrı ayrı elde edilmektedir. Gelen elektron demetindeki elektronların, malzemedeki atomlarla yapmış olduğu çarpışma sonucu ortaya çıkan elektronlar yardımıyla dedöktörler tarafından algılanan sinyaller daha sonra bilgisayar ekranlarında, numunenin yüzey görüntüsü yüksek kaliteli görüntülere dönüştürülür. SEM, yüzey rölyefinin gri tonlamalı görüntülerini üretir; bu nedenle renk bilgisi mevcut değildir. Elde edilen mikro grafikler, gözlenen örneklerin kompozisyon verilerini sağlar. Hem bağlı atom yoğunluğu hem de topografik bilgi sağlarlar. Atom numarası yüksek olanlar elde edilen görüntülerde daha açık görünürken, atom numarası düşük olanlar ise daha koyu renkli gözükmetedir. Ayrıca, elektronlarla bombardımana tutulan bir örnekten üretilen X-ışınları ayrıntılı element bilgisi sağlamaktadır (Goldstein vd., 2018; Pedernana vd., 2020; URL-5).

Enerji Dağılım Spektroskopisi (EDS) ya da SEM-EDS tekniği olarak adlandırılabilen bu yöntemde analiz edilen malzemenin elementel bileşimini karakterize etmek için, elektron demeti tarafından bombardıman edilen numuneden yayılan X-ışınları kullanılır. Örneğe çarpan elektron, örnekteki atomun iç yörüngesinden bir elektron

kopmasına neden olunca, enerji dengelenmesi gereği bir üst yörüngedeki elektron bu seviyeye geçer, geçerken de ortama bir X ışını yayar ve buna da karakteristik X ışını adı verilir. Ortaya çıkan X ışının enerjisi her atoma özeldir ve SEM’de incelenen malzemenin element bakımından muhtevasının nitel ve nicel olarak tespit edilmesine yardımcı olmaktadır (URL-4).

2.3. Önceki Çalışmalar

Günümüzde ana enerji kaynakları olan fosil yakıtların tükenmesi ve yanma ürünlerinin çevreye olumsuz etkileri sonucunda umut verici enerji kaynaklarından biri olan hidrojen enerjisine olan ilgi her geçen gün artmaktadır. Elektroliz ile hidrojen üretimine yönelik materyallerin geliştirilmesine yönelik araştırmalar da artarak devam etmektedir. Genel olarak araştırmalar, düşük aşırı gerilime, yüksek katalitik etkinliğe sahip, kararlı ve ekonomik elektrotların geliştirilmesine yöneliktir.

Koca vd. (2019), yaptıkları çalışmalarında karbon keçe (CF) üzerine nikel (Ni) ve galyum (Ga) kapladıklarını ve bazik ortamda hidrojen gazı çıkışını incelediklerini bildirmişlerdir. Elde ettikleri akım potansiyel eğrilerine göre, düşük miktarda Ga çöktürülmüş karbon keçe nikel elektrotlarının, diğer karbon keçe-nikel ve karbon keçe-galyum elektrodundan daha düşük aşırı gerilime sahip olduğunu bildirmişlerdir. Kararlılık testleri sonucunda CF/NiGa elektrodunun 96 saatlik elektroliz süresinde yüksek kararlılık gösterdiğini bildirmişler. Düşük miktarda Ga biriktirilmiş CF/Ni elektrodun, düşük aşırı gerilime sahip olması, ucuz, hafif ve kararlı olmasından dolayı geliştirilen elektrodun endüstriyel su elektrolizi için katot olarak kullanılabileceğini belirtmişlerdir.

Anwer vd. (2019), mangan oksit (MnO_2) kaplı karbon keçe elektrot ile donatılmış mikrobiyal elektroliz hücrelerinin (MEC), kaplanmamış karbon keçe elektroda kıyasla akım yoğunluğu açısından daha iyi performans sağladığını belirtmişlerdir. MnO_2 kaplı karbon keçe elektrokatalizörü elektrokimyasal çöktürme yöntemiyle hazırlanmış ve Fourier dönüşümlü kızılötesi spektroskopisi (FTIR), taramalı elektron mikroskopisi (SEM) ve X-ışını kırınımı (XRD) teknikleri kullanılarak karakterize edilmiştir. Katalizör kompozisyonunun MEC performansı üzerindeki etkisi, biyofilm ve katı elektrot arasındaki elektron transferini araştırmak için dönüşümlü voltametri yöntemi de kullanılmıştır. Mangan oksit kaplı karbon keçe elektrodunun katot

performansı, biyoyakıt üretimini ve elektron transfer hızını arttırdığını ve mikrobiyal elektroliz hücrelerinin maliyetlerini önemli ölçüde azalttığını bildirmişlerdir.

Lou vd. (2018), esnek süper kapasitörler için düşük maliyetli elektrot geliştirmek için bazik ortamda ve dondurarak kurutma yöntemi ile karbon keçeyi aktive etmişlerdir. Aktifleştirilmiş karbon keçenin, gelişmiş bir esneklik, oldukça artan spesifik bir yüzey alanına ($2109 \text{ m}^2.\text{g}^{-1}$), artan elektriksel iletkenliğe (311 S.m^{-1}), sulu elektrolite karşı mükemmel bir ıslanabilirlik özelliği gösterdiğini belirtmişlerdir. Çok yüksek bölgesel kapasitans değeri (1441 mF.cm^{-2}), yüksek spesifik kapasitans (280 F.g^{-1}), 5000 döngüden sonra bile % 87 oranında tutma sağladığını belirtmişlerdir. Elde edilen aktifleştirilmiş karbon keçenin malzeme içinde hızlı elektron transferine ve ek akım toplayıcıları kullanmadan, serbest duran bir elektrot olarak doğrudan kullanımına izin veren iyi elektrik iletkenliğine ve mekanik esnekliğe sahip olduğunu bildirmişlerdir.

Mehboob vd. (2018), yaptıkları çalışmada karbon keçe elektrot, hidrotermal yöntemle SnO_2 nanoparçacıkları ile modifiye edilmiştir. Transmisyon elektron mikroskopisi, X-ışını kırınımı ve X-ışını fotoelektron spektroskopisinin karakterizasyon teknikleriyle karbon keçe liflerinin yüzeyi üzerinde SnO_2 nanopartikül kümelerinin başarılı bir şekilde biriktiği belirlenmiştir. Taramalı voltametri, özellikle katot redoks çiftleri ($\text{VO}^{2+} / \text{VO}_2^+$) için SnO_2 karbon keçe SnO_2^- depozisyonu ile oluşturulan elektrotlarda daha hızlı reaksiyon kinetiğini ortaya çıkardığını belirtmişlerdir. Karbon keçenin elektrokimyasal yüzey alanı, SnO_2 nanopartiküllerinin varlığında artırılmış, bu elektrotlara sahip vanadyum redoks akış pilleri, 150 mAcm^{-2} 'lik yüksek akım yoğunluğunda %77,3 enerji verimliliği gösteren stabilite gösterdiklerini bildirmişlerdir. Ayrıca karşılık gelen spesifik deşarj kapasitesinin de % 23,7 oranında arttığını belirtmişlerdir. Bu performans artışı, aktivasyon potansiyellerinin düşürülmesine, daha hızlı reaksiyon kinetiklerine ve özellikle $\text{VO}^{2+}/\text{VO}_2^+$ çiftleri için vanadyum redoks reaksiyonları için azaltılmış yük transfer direncine bağlanarak açıklamışlardır.

Boylu (2014), yaptığı çalışmasında elektroliz sistemindeki aşırı gerilimleri düşürmek ve hidrojen gazı oluşum reaksiyonunun hızını arttırmak için karbon keçenin yüzeyine farklı miktarlarda ve farklı akımlar uygulayarak bakır (Cu) ve molibden (Mo) çöktürmüştür. Belirlenen uygun çöktürme akımı uygulanarak, farklı

oranlarda Mo ve Cu çöktürülmüş, elektrodun katalitik etkisi daha da arttırılmaya çalışılmıştır. Hazırlanan elektrotların hidrojen gazı çıkışına katalitik etkileri 1 M KOH çözeltisi içerisinde incelenmiştir. Karbon keçe yüzeyine Mo ve Cu bir arada çöktürüldüğünde hazırlanan elektrotlar sadece Cu veya Mo çöktürülmüş elektrotlara göre daha düşük hidrojen aşırı gerilimi göstererek katalitik etkilerinin arttığı belirtilmiştir.

Çağlayan (2013), yaptığı çalışmada elektroliz sistemindeki aşırı gerilimleri düşürmek ve hidrojen gazı çıkışını arttırmak için karbon keçenin yüzeyine demir ve platini farklı miktarlarda ve farklı akımlar uygulayarak çöktürmüş, bu elektrotların hidrojen gazı çıkışına katalitik etkilerini bazik ortamda incelemiştir. Bu amaçla farklı miktarlarda demiri (0,1 mg, 0,5mg ve 1,0 mg) karbon keçe üzerine çöktürerek, farklı çöktürme akım yoğunluklarında (25mA, 50mA, 75mA, 100mA, 150mA, 200mA, 250mA ve 300mA) çalışarak en uygun akım yoğunluğu ve Fe miktarını belirlemiştir. Daha sonrasında FePt kaplamalar doğrudan karbon keçe yüzeyine değil Fe ile modifiye edilmiş karbon keçe yüzeyine farklı oranlarda ve miktarlarda Fe:Pt bir arada çöktürmüş, en iyi katalitik etkinliğin, Fe:Pt = 25:75 oranında ve 100 mg Fe+Pt çöktürülmüş elektrotta elde edildiğini belirtmiştir.

Gündoğdu (2012), çalışmasında elektroliz sistemindeki aşırı gerilimleri düşürmek ve hidrojen gazı çıkışını arttırmak için karbon keçenin yüzeyini katalitik etkinliği yüksek platin ve nikel ile kaplamıştır. Bu amaçla karbon keçe yüzeyine öncelikli olarak 1g Ni çöktürmüş (C/Ni), daha sonra Ni çöktürülmüş C üzerine çok az miktarlarda Ni ve Pt, farklı oranlarda ve farklı sürelerde akım uygulanarak çöktürülmüştür. Hazırlanan elektrotlar CV, SEM ve EDX teknikleri ile karakterize edilmiştir. Elektrotların hidrojen gazı çıkışına katalitik etkileri 1M KOH çözeltisinde incelenmiştir. Elde ettiği deneysel bulgulara göre en düşük ayrışma gerilimi ve hidrojen aşırı gerilimi en etkin olduğu belirlenen 25:75 oranında toplam 100 mg Ni+Pt çöktürülmüş C/Ni-NiPt (25:75) elektrodun elektroliz sistemine sabit 3,0 V potansiyel 1 saat uygulandığında bu elektrotta en fazla hidrojen gazı elde edildiğini belirtmiştir.

İşcanlı (2010), karbon keçe elektrodun aktifliğini arttırmak için farklı sürelerde nikel, bakır ve nikel-bakır çöktürülmüş karbon keçe elektrotlarda bazik ortamda (1 M KOH) hidrojen gazı çıkışını incelemiştir. Atmosfer koşullarında katodik polarizasyon eğrilerden yararlanılarak tüm elektrotlar için hidrojen çıkışından itibaren -1,2V, -

1,3V, -1,4V aşırı gerilimlerdeki akım yoğunluklarını belirlemiştir. Akım yoğunluklarının C-Keçe, C-Keçe/Cu, C-Keçe/Cu-Ni, C-Keçe/Ni sırasına göre artış gösterdiğini bildirmiştir. Hidrojen aşırı geriliminin çöktürülen Ni miktarının artması ile azaldığını belirtmiş, en düşük aşırı gerilimin 30 dakika Ni çöktürülmüş karbon keçe katotta oluştuğunu bildirmiştir.

Karcı (2010), yaptığı çalışmada kobalt (Co), nikel (Ni) ve nikel ile birlikte kobalt çöktürülmüş karbon keçe elektrotlarda bazik ortamda hidrojen gazı çıkışı incelemiştir. İki elektrot tekniğini kullanarak katodik polarizasyon eğrileri elde etmiş ve eğrilerden deneysel ayrışma gerilimleri ve aşırı gerilimler belirlenmiştir. Elde edilen sonuçlara göre en düşük hidrojen aşırı gerilimi NiCo elektrotta gözlenmiştir. Aşırı gerilimlerin Ni, Co, karbon keçe sırasıyla arttığı belirlenmiştir. Elektroliz yöntemi ile sisteme sabit 3 V potansiyel uygulanarak katotta açığa çıkan hidrojen hacimlerini ölçülmüş, nikel-kobalt çöktürülmesi ile oluşturulan katotlarda elde edilen hidrojen gazı hacimlerinin diğer elektrotlardan daha fazla olduğu belirtilmiş ve hidrojen gazı hacimlerinin sırasıyla karbon keçe, Co, Ni, NiCo şeklinde arttığı bildirilmiştir.

3. MALZEME VE YÖNTEM

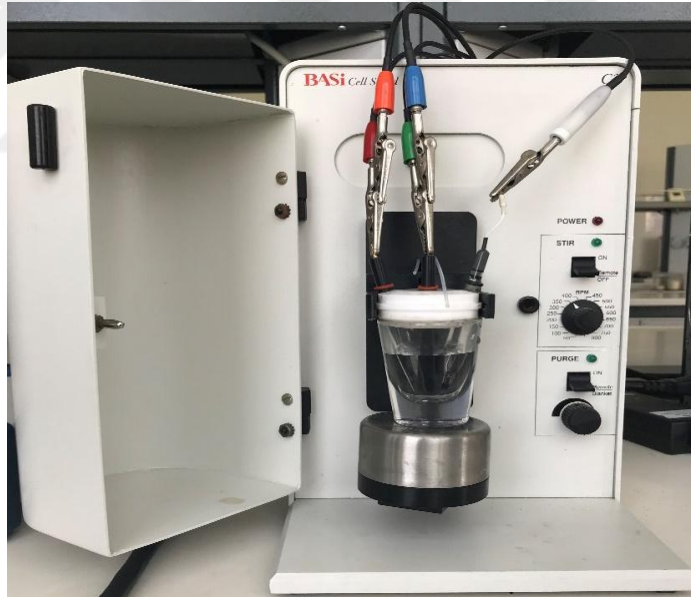
3.1 Kullanılan Kimyasal Maddeler

Bu çalışmada karbon keçe (C) (Alfa Aesar), 2mg/mL grafen oksit (%99 saflıkta, Sigma-Aldrich) çözeltisi, hidrojen tetrakloroaurat (III) (HAuCl₄) (% 99,9 metal bazlı) ve destek elektrolit olarak sülfürik asit (H₂SO₄) (Merck), kullanılmıştır.

3.2 Kullanılan Malzemeler

3.2.1 Elektrokimyasal hücreler

Tüm voltametrik çalışmalar, Tafel polarizasyon eğrileri, elektrokimyasal impedans spektroskopisi ve kronoamperometri gibi elektrokimyasal ölçümler, standart cam hücre içinde gerçekleştirilmiştir. Elektrokimyasal hücrede, çalışma elektrodu, karşı elektrot ve Ag/AgCl/Cl⁻ referans elektrot kullanılmıştır (Şekil 3.1).



Şekil 3.1. Elektrokimyasal hücre standı.

3.2.2 Elektrotlar

Çalışma elektrodu olarak karbon keçe, 1cmx1cmx0,32cm (boy x en x kalınlık) boyutlarında kesilerek hazırlanmıştır. Hazırlanan karbon keçe elektrodun yüzeyi indirgenmiş grafen oksit filmi ile kaplanmış, daha sonra altın elektrodpozisyonu ile üzerinde altın nanopartiküller oluşturulmuştur. 0,5 mm çapında ve 7,5 cm

uzunluğunda Pt tel, karşı elektrot kullanılmıştır. Referans elektrot olarak BASİ marka MF-2052 model Ag/AgCl/Cl⁻ elektrot kullanılmıştır.

3.3 Kullanılan Cihazlar

3.3.1 Elektrokimyasal çalışma ünitesi

Dönüşümlü voltametri, elektrokimyasal impedans spektroskopisi, kronopotansiyometri ve Tafel polarizasyon eğrilerinin ölçümlerinde Gamry Instruments Reference 600 Potansiyostat/Galvanostat/ZRA Elektrokimyasal Çalışma Ünitesi kullanılmıştır.

3.3.2 Taramalı elektron mikroskobu

Elektrot yüzeyinde sentezlenen kompozit yapıların yüzey özellikleri Taramalı Elektron Mikroskobu (ZEISS), ve yapıların kimyasal kompozisyonları bu cihaza entegre edilmiş Enerji Dağılımlı X-Işını Spektrometresiyle incelenmiştir.

3.4 Yöntem

3.4.1 Karbon keçe elektrodun hazırlanması

Çalışma elektrodu olarak, yaklaşık 0,32 cm kalınlığında olan karbon keçeden, 1 cm x 1 cm boyutlarında kesilerek elektrot malzemeleri hazırlanmıştır. Karbon keçe örnekler saf su ile yıkanıp 15 dk saf suda bekletildikten sonra 105°C sıcaklıktaki etüvde 15 dk kurutularak bekletilmiştir. Kurutulan karbon keçeler, nikel kaplanmış paslanmaz çelik tele geçirilmiş ve sadece karbon keçe açıkta kalacak şekilde diğer kısımlar parafilm ile kapatılarak çalışma elektrotları hazırlanmıştır.

3.4.2 Karbon keçe/İndirgenmiş grafen oksit (rGO) elektrodun hazırlanması

Hazırlanan karbon keçe elektrodun her iki yüzeyine 2mg/mL'lik grafen oksit çözeltisinden 1 damla (~ 0.09g) pipet ile damlatılmıştır. Grafen oksit damlatılan her iki yüzey, 70°C'a ayarlanan etüvde 30 dakika süreyle kurutulmuştur. Böylece karbon keçe üzerinde film şeklinde grafen oksit tabakası oluşturulmuştur. Daha sonra, -1 mA/cm² olacak şekilde kronopotansiyometri yöntemiyle, 30 dk süresince, 0,5 M

H₂SO₄ içerisinde, grafen oksit tabakası elektrokimyasal olarak indirgenerek, karbon keçe üzerinde indirgenmiş grafen oksit tabakası (Karbon keçe/rGO) elde edilmiştir.

Hazırlanan Karbon keçe/rGO elektrot, saf su içerisinde 5 dakika bekletilerek yıkanmış ve elektrokimyasal ölçümler öncesinde de 0,5 M H₂SO₄ içerisinde 30 dk bekletilerek kullanıma hazır hale getirilmiştir.

3.4.3 Karbon keçe/İndirgenmiş grafen oksit (rGO)/Altın nanopartikül elektrodun hazırlanması

Hazırlanan karbon keçe/rGO elektrot yüzeyine Au nanopartiküllerin elektrodepozisyonu, 0,5 M H₂SO₄ içerisinde hazırlanan 1 mM H_{AuCl}₄ çözeltisinde -0,5V ile +1V potansiyel aralığında 50 mV/s tarama hızıyla 4 döngü olacak şekilde dönüşümlü voltametri yöntemiyle gerçekleştirilmiştir.

Elde edilen karbon keçe/rGO/Au nanokompozit yapısı, elektrokimyasal ölçümler öncesinde saf suda ve 0,5 M H₂SO₄ çözeltisi içerisinde beşer dakika bekletilerek yıkanmış, böylelikle yapı üzerinde biriken safsızlıklar uzaklaştırılmış, elektrokimyasal ölçümler için hazır hale getirilmiştir.

3.4.4 Karbon keçe/Altın nanopartikül elektrodun hazırlanması

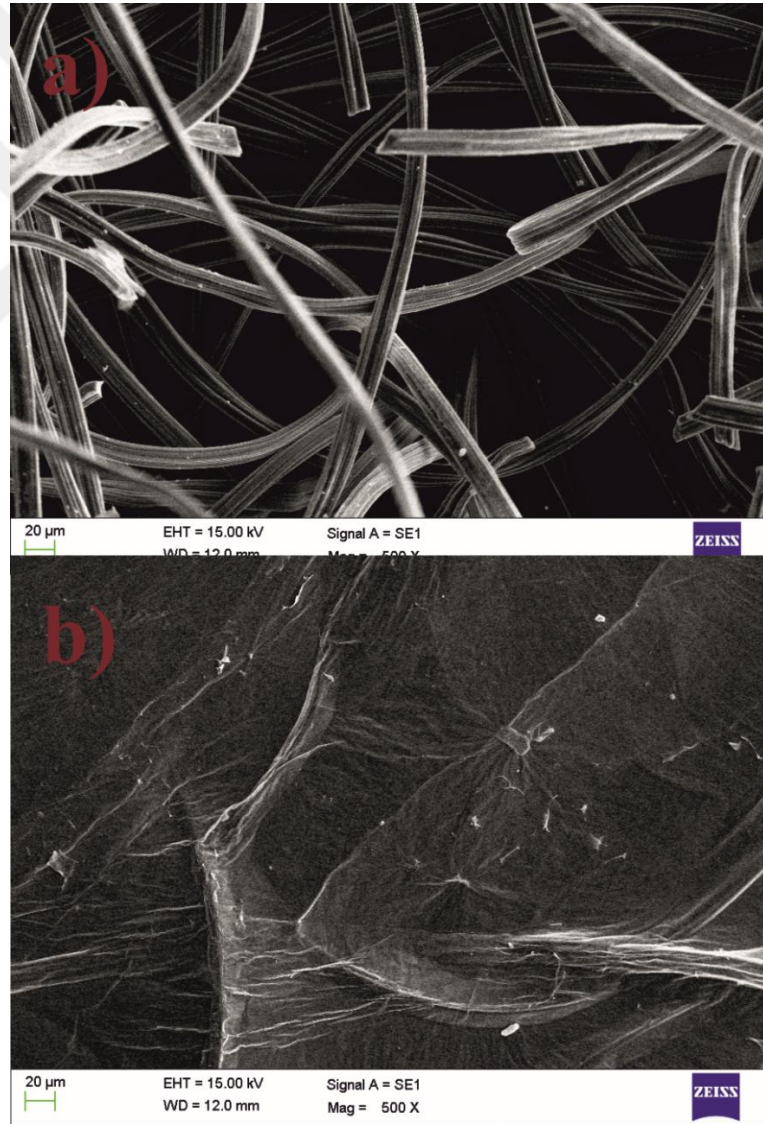
Suyun elektroliziyle hidrojen eldesinde, hazırlanan karbon keçe/rGO/Au nanokompozit yapısında indirgenmiş grafen oksit filminin etkisini anlamak amacıyla, Au nanopartiküller, direkt olarak karbon keçe yüzeyine elektrokimyasal olarak ayrıştırılmıştır. Bunun için, 0,5 M H₂SO₄ çözeltisi içerisinde hazırlanan 1mM H_{AuCl}₄ çözeltisinde -0,5V ile +1V potansiyel aralığında 50 mV/s tarama hızıyla 4 döngü olacak şekilde Au nanopartiküllerin elektrodepozisyonu dönüşümlü voltametri tekniğiyle gerçekleştirilmiştir.

Elde edilen karbon keçe/Au yapısı, elektrokimyasal ölçümler öncesinde saf suda ve 0,5 M H₂SO₄ çözeltisi içerisinde beşer dakika bekletilerek yıkanmış, böylelikle yapı üzerinde biriken safsızlıklar uzaklaştırılmış, elektrokimyasal ölçümler için hazır hale getirilmiştir.

4. ARAŞTIRMA BULGULARI

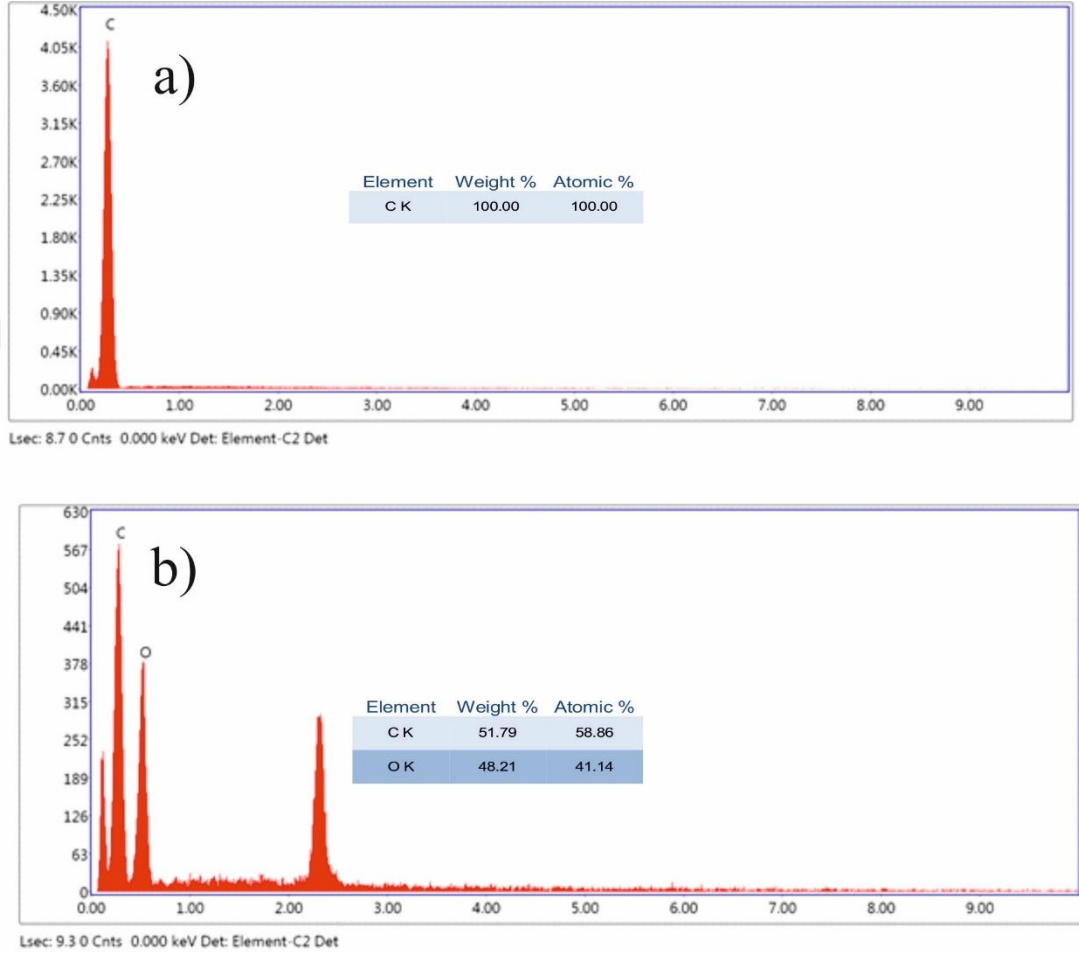
4.1 Kompozit Yapıların Yüzey ve Yapısal Analizleri

Elektrokimyasal ölçümler öncesi kullanıma hazırlanan karbon keçe, karbon keçe/rGO ve karbon keçe/rGO/Au nanopartikül elektrotların yüzeyleri taramalı elektron mikroskopuyla (SEM) incelenmiştir (Şekil 4.1). Şekil 4.1a'da çıplak karbon keçenin uzun çubuklar şeklinde karbon liflerden oluştuğu görülmektedir. Karbon keçe üzerine grafen oksitin kaplanmasıyla elde edilen aynı büyütme oranındaki görüntüde (b) indirgenmiş grafen oksitin tipik buruşuk çarşaf yapısı izlenebilmektedir.



Şekil 4.1. a) Karbon keçe, b) karbon keçe/rGO elektrot yüzeylerinin taramalı elektron mikroskopu (SEM) görüntüleri.

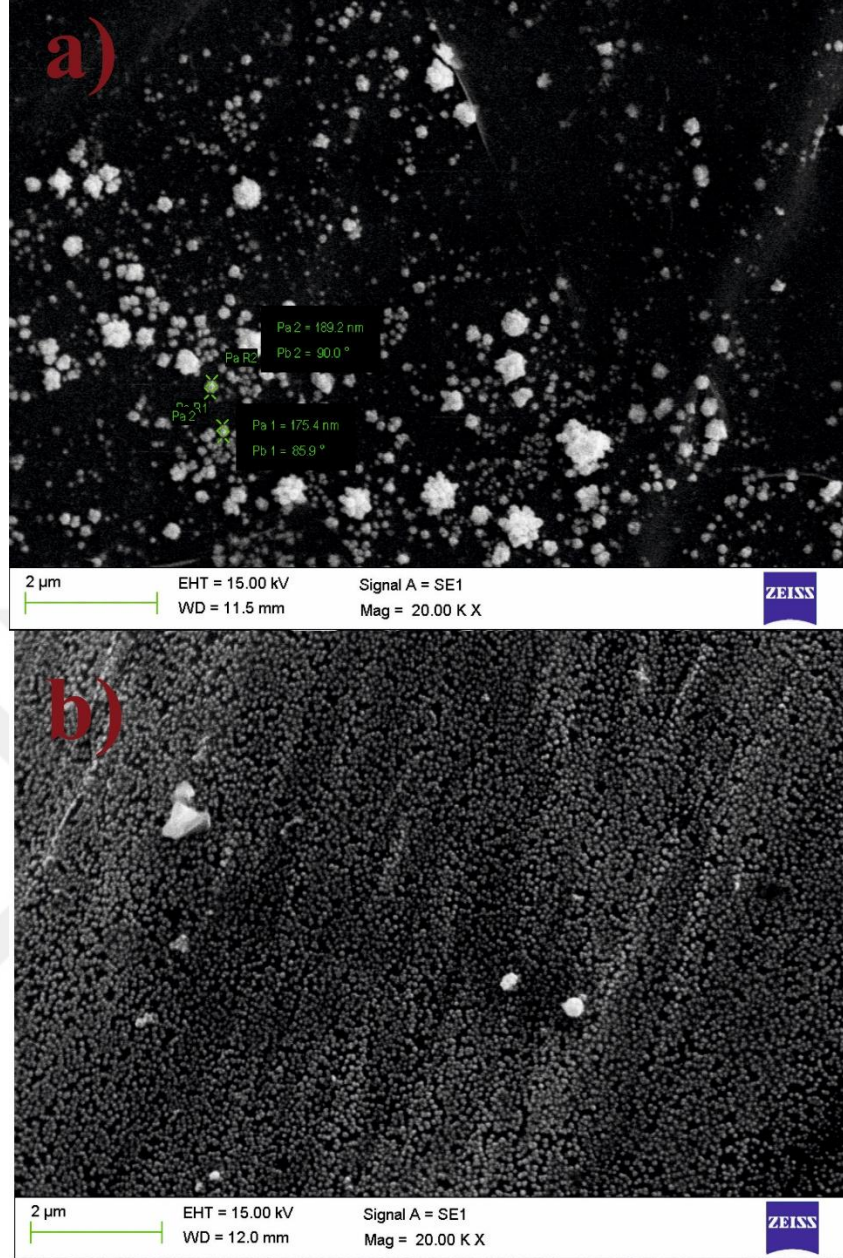
Hazırlanan elektrotların kimyasal kompozisyonları enerji dağılım spektrometresi ile analiz edilmiştir. Karbon keçe ve karbon keçe/rGO elektrotların yüzey özellikleri Şekil 4.2’de görülmektedir.



Şekil 4.2. a) Karbon keçe, b) karbon keçe/rGO elektrot yüzeylerinin EDS analizleri.

Şekil 4.2.a’da görüldüğü gibi karbon keçe karbon içeriği %100 iken, yüzeyde indirgenmiş grafen oksit olduğunda, yapıya oksijen atomlarının katıldığı görülmektedir.

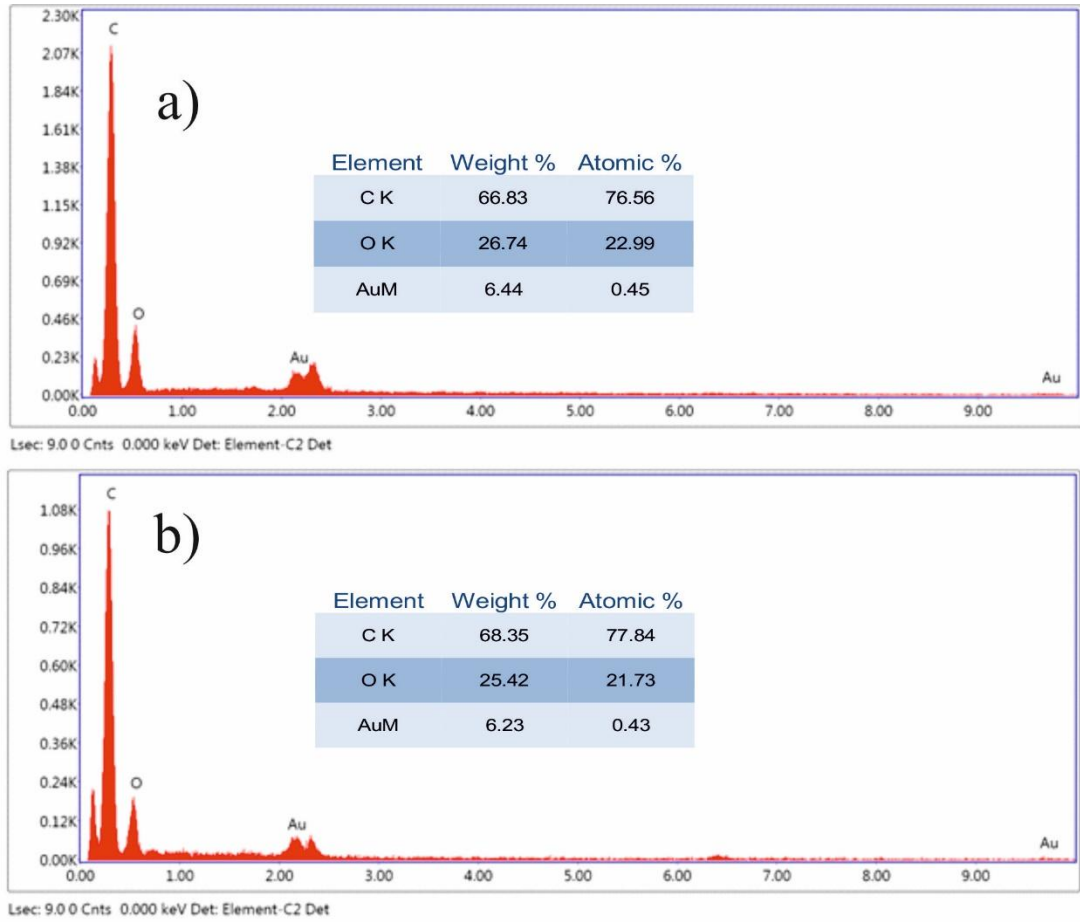
Karbon keçe /rGO yapısı üzerine altının elektrodpozisyonu sonucunda elde edilen yapıda altın parçacıklarının nano düzeyde indirgenmiş grafen oksit tabakası üzerine homojen bir şekilde ayrıştığı Şekil 4.3.a’da görülmektedir. Yüzeye ayrıştırılan altın partiküllerinin büyüklüğü yaklaşık 175-190 nm olarak tespit edilmiştir.



Şekil 4.3. a) Karbon keçe/rGO/Au ve b) karbon keçe/Au kompozit yapılarının SEM görüntüleri.

Ayrıca hidrojen oluşumundaki etkisini görmek amacıyla, karbon keçe üzerine elektrodpozisyonu gerçekleştirilen altının yapıya katıldığı Şekil 4.3.b’de görülmekte ancak karbon keçe/rGO filmi üzerine ayrıştığından daha farklı bir şekilde istiflendiği görülmektedir.

Hazırlanan karbon keçe/rGO/Au ve karbon keçe/Au kompozit yapılarının kimyasal kompozisyonları enerji dağılım spektrometresi ile analiz edilmiştir (Şekil 4.4).



Şekil 4.4. a) Karbon keçe/rGO/Au ve b) karbon keçe/Au kompozit yapılarının EDS analizleri.

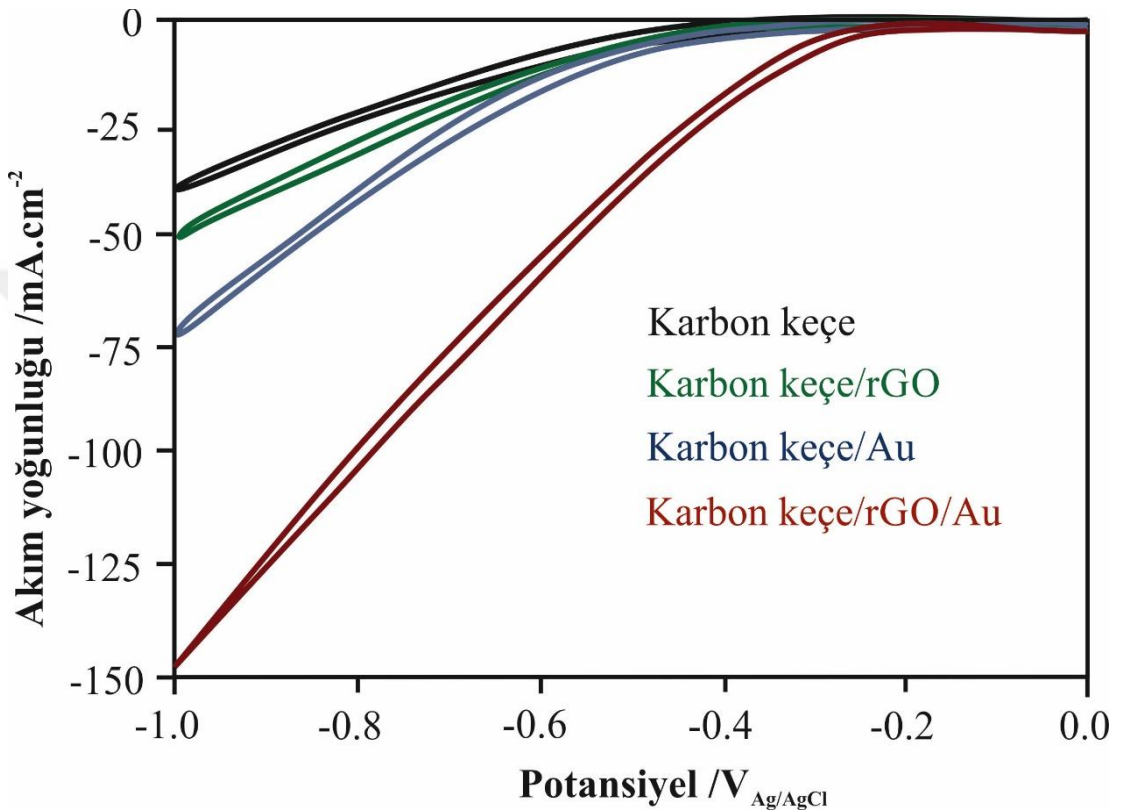
Şekil 4.4’de görüldüğü gibi, aynı şartlarda elektrodpozisyonu gerçekleştirilen altının her iki yapıya yaklaşık aynı oranda katıldığı tespit edilmiştir.

4.2. Suyun Elektrolizi ile Hidrojen Oluşumunun İncelenmesi

Suyun elektrolizi ile hidrojen oluşumu tepkimesi, karbon keçe/rGO ve karbon keçe/rGO/Au nanopartiküller ile modifiye edilmiş elektrot üzerinde incelenmiştir. Dönüşümlü voltametri, Tafel polarizasyon eğrileri ve elektrokimyasal impedans spektroskopisi tekniklerinin kullanıldığı incelemeler, karşılaştırma amaçlı olarak çıplak karbon keçe ve indirgenmiş grafen oksit tabakası içermeyen karbon keçe/Au elektrotlar üzerinde de tekrarlanmıştır.

4.2.1. Voltametrik çalışmalar

İlk olarak hazırlanan çıplak karbon keçe elektrodun 0,5 M H₂SO₄ içerisinde 0,0V ile -1,0V potansiyel aralığında 10mV.s⁻¹ tarama hızıyla dönüşümlü voltamogramı kaydedilmiş, daha sonra karbon keçe/rGO ve karbon keçe/rGO/Au nanopartikül elektrotlar üzerinde aynı şartlarda voltamogramlar elde edilmiştir (Şekil 4.5).



Şekil 4.5. Karbon keçe, karbon keçe/rGO, karbon keçe/Au ve karbon keçe/rGO/Au nanopartikül elektrotların 0,5 M H₂SO₄ içerisinde kaydedilen dönüşümlü voltamogramları ($v=10\text{mV.s}^{-1}$).

Şekil 4.5 incelendiğinde, çıplak karbon keçe üzerinde suyun elektrolizi ile hidrojen oluşumuna ait akım yoğunluğunun, keçe üzerine rGO yapısının kaplanmasıyla arttığı gözlenmektedir. Karbon keçe/rGO yapısı üzerine Au nanopartiküllerin elektrodpozisyonuyla elde edilen karbon keçe/rGO/Au nanokompozit yapısı üzerinde elde edilen akım yoğunluğunun ise çok daha belirgin bir şekilde arttığı görülmektedir. Hidrojen oluşumunda oldukça yüksek katalitik aktiviteye sahip olduğu bilinen altının, karbon keçe/rGO yapısı üzerine nano ölçekte modifiye edilmesiyle, saf altın metali ile karşılaştırıldığında, daha düşük maliyetli bir elektrot geliştirilmiştir. Nano ölçekli metallerin, yüzey/hacim oranları çok yüksek

olduğundan, saf metallere göre çok daha iyi katalitik aktivite gösterdikleri bilinmektedir. Ayrıca rGO yapısı üzerine homojen bir şekilde dağılan Au nanopartiküllerin aktif hidrojen bölgeleri sağlaması nedeniyle, yapı üzerinde hidrojen adsorpsiyonu artmakta bu da daha hızlı hidrojen oluşumunu sağlamaktadır.

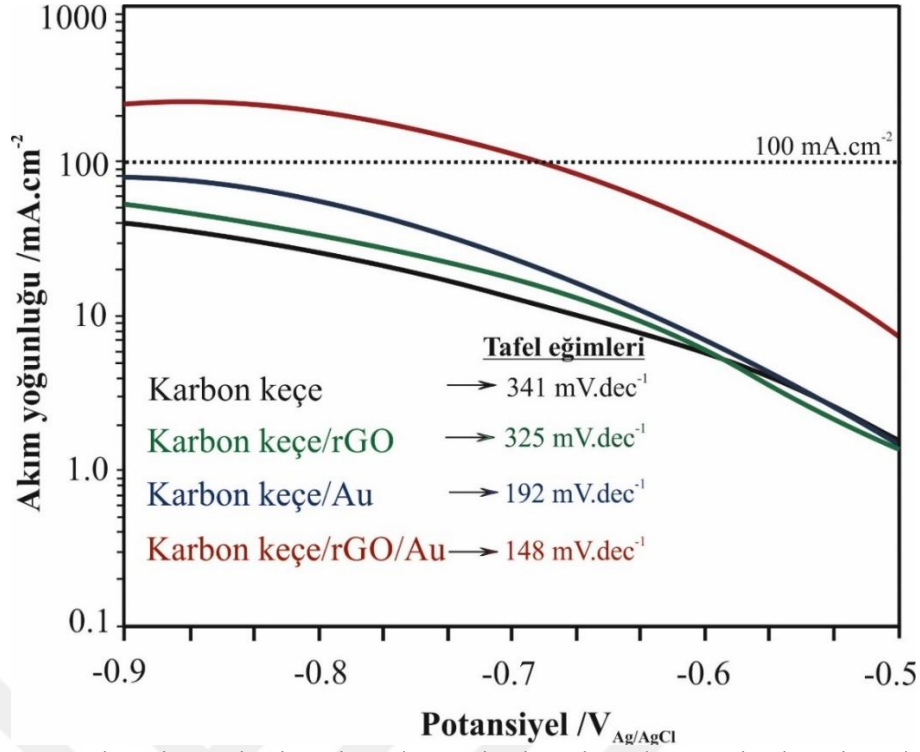
Diğer taraftan akım yoğunluğunda sağlanan artıştaki indirgenmiş grafen oksitin etkisinin daha iyi anlaşılabilmesi için yapıda rGO olmadığı şekilde, altının direkt olarak karbon keçe üzerine elektrodpozisyonu sağlanmış, elde edilen karbon keçe/Au elektrodu üzerinde, aynı koşullarda hidrojen çıkışı dönüşümlü voltametri ile incelenmiştir.

Şekil 4.5’den de görüldüğü üzere karbon keçe/Au ve karbon keçe/rGO/Au nanopartikül elektrotlar üzerinde hidrojen oluşumuna ait akım yoğunlukları arasında oldukça yüksek bir fark olduğu belirlenmiştir. Karbon keçe üzerindeki indirgenmiş grafen oksit filminin iyi bir medyatör özelliği göstererek, üzerindeki fonksiyonel gruplardan dolayı daha fazla metalin yüzeye adsorpsiyonunu sağlaması dolayısıyla elektriksel iletkenliği arttırması, daha yüksek aktif bölgeye sahip olması, karbon keçe/rGO/Au nanokompozit yapısının hidrojen oluşumuna ait daha yüksek akım yoğunluğuna ulaşmasını sağlamıştır.

4.2.2. Tafel polarizasyon eğrileri

Hazırlanan elektrotlar üzerinde hidrojen gazı çıkışı, Tafel polarizasyon eğrileriyle de incelenmiştir. Polarizasyon eğrileri, elektrokatalitik aktivitelerin değerlendirilmesinde oldukça önemlidir. Tafel eşitliğinde ($\eta = a + b \log i$) yer alan Tafel eğiminin (b) büyüklüğü, elektrot malzemesinin ilgili prosesteki katalitik aktivitesi hakkında bilgi vermektedir. Tafel polarizasyon eğrilerinden elde edilen; düşük Tafel eğimi ve yüksek akım yoğunluğu kullanılan elektrodun ideal bir elektrokatalizör olduğunu göstermektedir.

Şekil 4.6, çıplak karbon keçe, karbon keçe/rGO, karbon keçe/Au ve karbon keçe/rGO/Au nanopartikül elektrotların 0,5 M H_2SO_4 içerisinde -0,5V ile -0,9V potansiyel aralığında $1mV.s^{-1}$ tarama hızıyla kaydedilen akım-potansiyel diyagramlarını göstermektedir.



Şekil 4.6. Karbon keçe, karbon keçe/rGO, karbon keçe/Au ve karbon keçe/rGO/Au nanopartikül elektrotların 0,5 M H₂SO₄ içerisinde kaydedilen Tafel polarizasyon eğrileri ($v=1\text{ mV.s}^{-1}$).

Karbon keçe, karbon keçe/rGO, karbon keçe/Au ve karbon keçe/rGO/Au nanopartikül elektrotlar üzerinde, belirlenen potansiyel aralığında elde edilen eğriler değerlendirildiğinde hidrojen oluşumuna ait en yüksek akım yoğunluğunun karbon keçe/rGO/Au nanopartikül elektrot üzerinde kaydedildiği görülmektedir. Tafel eğimleri karşılaştırıldığında, karbon keçe için 341 mV.dec^{-1} , karbon keçe/rGO için 325 mV.dec^{-1} , karbon keçe/Au için 192 mV.dec^{-1} olarak hesaplanırken, yine en düşük Tafel eğimi, 148 mV.dec^{-1} olarak karbon keçe/rGO/Au nanopartikül elektrot için hesaplanmıştır.

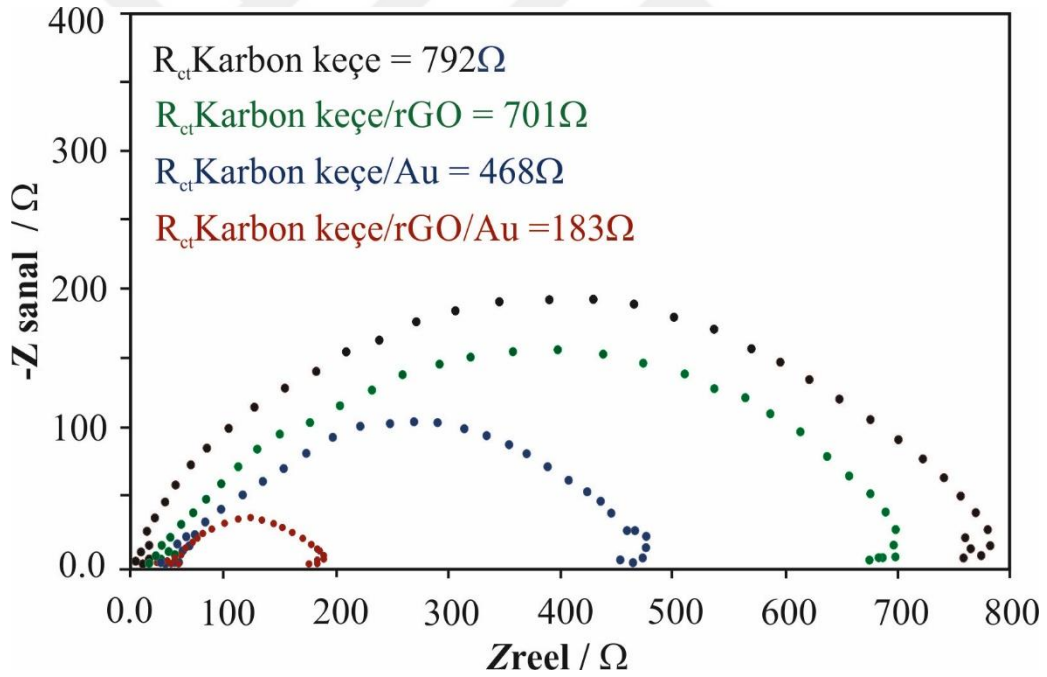
Tafel polarizasyon eğrilerinden değerlendirilen bir diğer parametre de, belirli bir akım yoğunluğuna ulaşmak için uygulanması gereken potansiyel değerleridir. Bu değerlerin, elektrokatalizörün etkinliği hakkında daha somut bilgi verdiği kabul edilmektedir. Örneğin 100 mA.cm^{-2} gibi belirli bir akım yoğunluğuna ulaşmak için uygulanması gereken potansiyel değeri ne kadar düşük olursa, elektrokatalizörün o kadar yüksek katalitik aktivite gösterdiği kabul edilmektedir.

Elde edilen diyagramlardan 100 mA.cm^{-2} akım yoğunluğuna ulaşmak için uygulanması gereken potansiyel değerleri karşılaştırıldığında, karbon keçe/rGO/Au

nanokompozit yapı için yaklaşık -0,66V gerekirken, diğer elektrotlar için daha yüksek potansiyel değerlerinin gerektiği görülmektedir.

4.2.3. Elektrokimyasal impedans spektroskopisi çalışmaları

Elektrokimyasal proseslerin kinetik incelemelerinde en yaygın kullanılan yöntemlerden birisi de elektrokimyasal impedans spektroskopisidir. Elektrokimyasal impedans spektroskopisi sonucunda elde edilen Nyquist diagramlarının değerlendirilmesiyle elektrokatalizörleerin elektron aktarımındaki performansları karşılaştırılmaktadır. Şekil 4.7’de karbon keçe, karbon keçe/rGO, karbon keçe/Au ve karbon keçe/rGO/Au nanopartikül elektrotların -0,8V sabit potansiyelde, 0,1 ile 100000 Hz frekans aralığında kaydedilen Nyquist diyagramları görülmektedir. Yarım daire şeklinde görülen bu dairelerin çaplarının büyüklüğü elektron aktarımına gösterilen direncin büyüklüğü olarak yorumlanmaktadır.

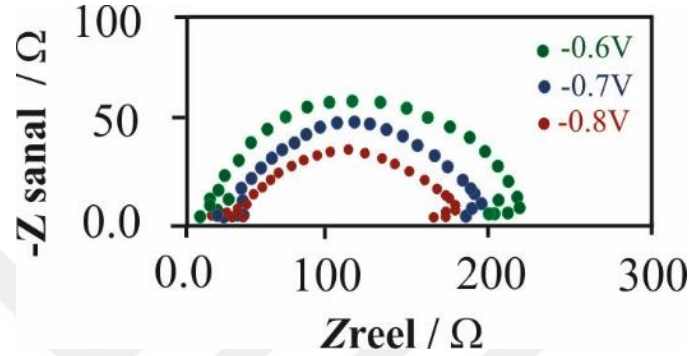


Şekil 4.7. Karbon keçe, karbon keçe/rGO, karbon keçe/Au ve karbon keçe/rGO/Au nanopartikül elektrotların 0,5 M H₂SO₄ içerisinde kaydedilen Nyquist diyagramları (-0,8 V).

Nyquist diyagramları incelendiğinde, karbon keçe elektroda ait yük transfer direncinin (R_{ct}) 792 Ω iken, yüzey rGO filmi ile kaplandığında 701 Ω ’a düştüğü görülmektedir. rGO filmi, Au nanopartiküller ile modifiye edildiğinde ise kaydedilen direnç 183 Ω ’a kadar düşmüştür. En küçük yük transfer direncinin elde edildiği bu

elektrot yüzeyinde elektron aktarımına gösterilen direncin en az olduğu sonucuna varılmıştır. Dolayısıyla hidrojen oluşumu tepkimesinin diğer elektrotlara kıyasla daha hızlı gerçekleştiği anlamına gelmektedir.

En düşük yük aktarım direncinin kaydedildiği karbon keçe/rGO/Au nanopartikül elektroda farklı sabit potansiyeller uygulandığında kaydedilen Nyquist diyagramları Şekil 4.8’de gösterilmiştir.

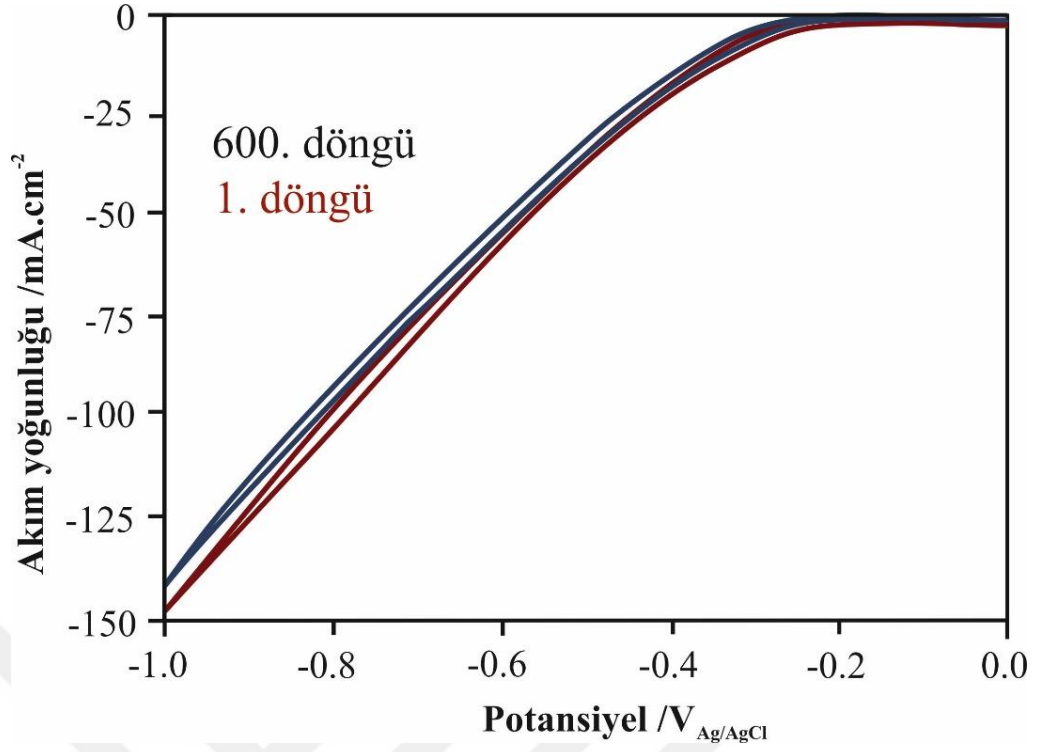


Şekil 4.8. Farklı potansiyeller uygulandığında karbon keçe/rGO/Au nanopartikül elektrodun 0,5 M H₂SO₄ içerisinde kaydedilen Nyquist diyagramları.

-0,6V, -0,7V ve -0,8V olmak üzere üç ayrı potansiyel uygulanarak kaydedilen Nyquist diyagramları incelendiğinde, uygulanan potansiyel değerleri büyüdükçe hidrojen oluşumu hızlanmakta, dolayısıyla elde edilen akım yoğunluğu artmaktadır.

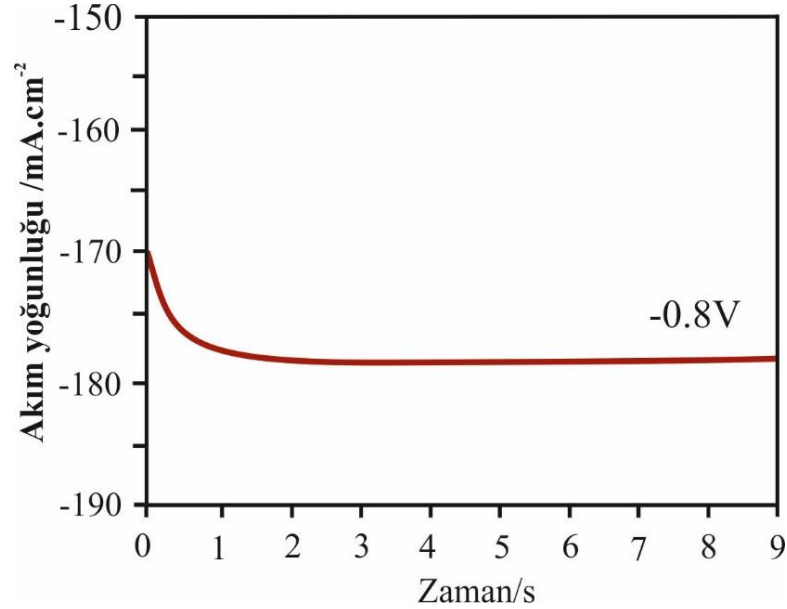
4.2.4. Stabilité çalışmaları

Geliştirilen bir elektrokatalizörün verimliliğinin yanında, kullanıldığı proseste uzun süre kararlı kalabilmesi de oldukça önemlidir. Bu çalışma kapsamında hazırlanan karbon keçe/rGO/Au nanopartikül elektrodun stabilitesi, 0,5 M H₂SO₄ elektrolit ortamında dönüşümlü voltametri ve kronoamperometri ölçümleriyle test edilmiştir. Dönüşümlü voltametri ile 0,0V ile -1,0V potansiyel aralığında 50 mV.s⁻¹ tarama hızıyla kaydedilen ilk döngü ve 600. döngü sonucunda elde edilen voltamogramlar karşılaştırıldığında akım yoğunluğunda ihmal edilebilir derecedeki fark, geliştirilen elektrokatalizörün katalitik aktivitesini uzun süre koruduğunu göstermektedir (Şekil 4.9).



Şekil 4.9. Karbon keçe/rGO/Au nanopartikül elektrodun 0,5 M H_2SO_4 elektrolit ortamında kaydedilen ilk ve 600 döngü sonucundaki dönüşümlü voltamogramları.

Karbon keçe/rGO/Au nanopartikül elektrodun stabilitesi, kronoamperometri yöntemi kullanılarak da test edilmiştir (Şekil 4.10).



Şekil 4.10. Karbon keçe/rGO/Au nanopartikül elektrodun 0,5 M H_2SO_4 elektrolit ortamında -0,8V'ta kaydedilen kronoamperomogramı.

-0,8V'ta kaydedilen kronoamperomogram incelendiğinde yaklaşık 170 mA.cm^{-2} ile başlayan akım yoğunluğunun artarak 180 mA.cm^{-2} civarına ulaştığı ve bu değerde yaklaşık 9 saat sabit kaldığı tespit edilmiştir.



5. SONUÇ VE ÖNERİLER

Suyun elektrolizi, yan ürün içermeyen hidrojen üretmek için en basit teknolojilerden birisidir. Elektroliz ile sudan hidrojen üretimi, hala araştırma geliştirme aşamasında olmasına rağmen, umut verici verimlilik ve maliyetler sergileyen hidrojen üretiminin yenilenebilir yollarından biridir. Ancak elektrik maliyeti nispeten yüksektir ve bu durum, elde edilen hidrojen fiyatında önemli bir rol oynamaktadır. Bu amaçla düşük aşırı gerilimli, yüksek katalitik aktiviteye sahip ve düşük maliyetli elektrot materyallerinin geliştirilmesine dair araştırmalar sürdürülmektedir.

Bu çalışmada seçilen karbon keçe malzeme elektronik iletkenlik, kimyasal stabilite, geniş bir yüzey alanı, hafiflik ve düşük maliyet açısından mükemmel özelliklere sahiptir. Sahip olduğu dezavantajları gidermek ve iyi özelliklerini de geliştirmek amacıyla indirgenmiş grafen oksit filmiyle kaplanmış, elde edilen film, Au nanopartiküller ile modifiye edilmiştir. Geliştirilen karbon keçe/rGO/Au nanopartikül elektrodun suyun elektrolizi ile hidrojen oluşumundaki aktifliği, dönüşümlü voltametri, akım-potansiyel diyagramları ve elektrokimyasal impedans spektroskopisi gibi elektrokimyasal yöntemlerle incelenmiş, stabilite testleri uygulanmıştır. Karşılaştırma amaçlı olarak aynı elektrokimyasal ölçümler, çıplak karbon keçe, karbon keçe/rGO ve rGO içermeyen karbon keçe/Au elektrot için de tekrarlanmıştır. Ayrıca elde edilen tüm elektrot yüzeylerinin, morfolojik ve yapısal analizleri de taramalı elektron mikroskobu ve enerji dağılım spektroskopisi kullanılarak gerçekleştirilmiştir.

Bu tez çalışması sonucunda, karbon keçenin modifiye edilmesiyle elde edilen karbon keçe/rGO/Au nanokompozit elektrodun suyun elektrolizi ile hidrojen oluşumu tepkimesinde uzun süre elektrokatalitik aktiflik gösteren, ekonomik ve etkin bir elektrokatalizör olabileceği sonucuna varılmıştır.

Tez çalışmasında edinilen bilgi ve deneyimlerden yola çıkılarak, geliştirilen bu kompozit yapılar veya bunlara benzer sistemlerle sudan elektrokatalitik olarak hidrojen elde etmek amacıyla, etkin, ekonomik ve kararlı yeni elektrokatalizörler geliştirilebilecek sonuçlar ve bilgi birikimleri elde edilmiştir.

KAYNAKLAR

- Amir, M. N. I., Halilu, A., Julkapli, N. M. ve Ma'amor, A., 2020. Gold-graphene oxide nanohybrids: A review on their chemical catalysis, *Journal of Industrial and Engineering Chemistry*, 83, 1-13.
- Anwer, A. H., Khan, M. D., Khan, N., Nizami, A. S., Rehan, M. ve Khan, M. Z., 2019. Development of novel MnO₂ coated carbon felt cathode for microbial electroreduction of CO₂ to biofuels, *Journal of Environmental Management*, 249, 109376.
- Balat, H. ve Kırtay, E., 2010. Hydrogen from biomass – present scenario and future prospects, *International Journal of Hydrogen Energy*, 35, 14, 7416-7426.
- Balat, M., 2008. Potential importance of hydrogen as a future solution to environmental and transportation problems, *International Journal of Hydrogen Energy*, 33, 15, 4013-4029.
- Ball, D., 1985. Elemental etymology: What's in a name?, *Journal of Chemical Education*, 62, 9, 787.
- Balun Kayan, D., Koçak, D. ve İlhan, M., 2016. The activity of PANi-Chitosan composite film decorated with Pt nanoparticles for electrocatalytic hydrogen generation, *International Journal of Hydrogen Energy*, 41, 25, 10522-10529.
- Bard, A. J. ve Faulkner, L. R., 2000. *Electrochemical methods fundamentals and applications*, Second Edition, John Wiley&Sons Inc, New York, USA.
- Bhandari, R., Trudewind, A. C. ve Zapp, P., 2013. Life cycle assessment of hydrogen production via electrolysis, *Journal of Cleaner Production*, 85, 151-163.
- Cao, X., Han, Y., Gao, C., ve Xu, Y., 2014. Highly catalytic active PtNiCu nanochains for hydrogen evolution reaction, *Nano Energy*, 9, 301–308.
- Cavendish, H., 1766. Three papers, containing experiments on factitious air, *Philosophical Transactions*, 56, 141-184.
- Chen, H. L., Lee, H. M., Chen, S. H., Chao, Y. ve Chang, B. M., 2008. Review of plasma catalysis on hydrocarbon reforming for hydrogen production - interaction, integration, and prospects, *Applied Catalysis B: Environmental*, 85, 1-2, 1-9.
- Ciucci, F., 2019. Modeling electrochemical impedance spectroscopy, *Current Opinion Electrochemistry*, 13, 132-139.
- Chen, H., Zhou, K. ve Zhao, G., 2018. Gold nanoparticles: From synthesis, properties to their potential application as colorimetric sensors in food safety screening, *Trends in Food Science&Technology*, 78, 83-94.

- Chooto, P., 2019. Cyclic voltammetry and its applications, pp.1-39, in: Maxakato N.W. (Editor), Voltammetry, E-Publishing incorporated, Songkhla, Thailand.
- Çavuşoğlu, B. A., 2010. Metanolün elektrooksidasyonuna farklı elektrotların (Pt, Cu, Cu/PPy, Cu/PPy-Pd-Ru) etkisi, Yüksek Lisans Tezi, Çukurova Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Adana.
- Daniel, M. C., ve Astruc, D., 2004. Gold nanoparticles: assembly, supramolecular chemistry, quantum-size-related properties, and applications toward biology, catalysis, and Nanotechnology, Chemical Reviews, 104, 1, 293-346.
- Demirbaş, A., 2001. Biomass resource facilities and biomass conversion processing for fuels and chemicals, Energy Conversion and Management, 42, 11, 1357-1378.
- Dertli, G. ve Yinaç, P., 2018. Yenilenebilir enerji tüketimi, karbondioksit emisyonu, enerji ithalatı ve ekonomik büyüme: Türkiye örneği, Kahramanmaraş Sütçü İmam Üniversitesi Sosyal Bilimler Dergisi, 15, 2, 583-606.
- Dawood, F., Anda, M. ve Shafiullah, G. M., 2020. Hydrogen production for energy: an overview, International Journal of Hydrogen Energy, 45, 7, 3847-3869.
- Dicks, A. L. ve Rand, D. A. J., 2018. Fuel Cell Systems Explained, Third Edition, John Wiley & Sons Ltd, Glasgow, UK.
- Domenech-Carbo, A., 2009. Electrochemistry of porous materials, CRC Press, Boca Raton, USA.
- Edwards, G. A., Bergren A. J. ve Porter, M. D., 2007. Chemically modified electrodes, pp.295-327, in: Zoski, C. G. (Editor), Handbook of Electrochemistry, Elsevier B.V, Oxford, UK.
- Eftekhari, A., Babu, V. J. ve Ramakrishna, S., 2017. Photoelectrode nanomaterials for photoelectrochemical water splitting, International Journal of Hydrogen Energy, 42, 16, 11078-11109.
- Elgrishi, N., Rountree, J. K., McCarthy, B. D., Rountree, E. S., Eisenhart, T. T. ve Dempsey, J. L., 2018. A practical beginner's guide to cyclic voltammetry, Journal of Chemical Education, 95, 2, 197-206.
- İbrahim, A. A., 2018. Hydrogen production from light hydrocarbons, pp.39-62, in: Eyvaz M. (Editor), Advances in Hydrogen Generation Technologies, E-Publishing incorporated, London, United Kingdom.
- Funk, E. J., 2001. Thermochemical hydrogen production: past and present, International Journal of Hydrogen Energy, 26, 3, 185-190.
- Ghasemi, M., Daud, W. R. W., Hassan, S. H. A., Oh, S. E., Ismail, M., Rahimnejad, M. ve Jahim, J., 2013. Nano-structured carbon as electrode material in

microbial fuel cells: A comprehensive review, *Journal of Alloys and Compounds*, 580, 245-255.

Goldstein, J. I., Newbury, D. E., Michael, J. R., Ritchie, N. W. M., Scott, J. H. J. ve Joy, D. C., 2018. *Scanning electron microscopy and x-ray microanalysis*, Fourth Edition, Springer Science Business Media LLC, New York, USA.

Gupta, R. B. ve Pant, K. K., 2009. *Fundamentals and use of hydrogen as a fuel*, Gupta, R. B. (Editor), Hydrogen Fuel: Production, Transport, and Storage, CRC Press, Boca Raton, USA.

Heiserman, D., 1992. *Exploring chemical elements and their compounds*, First Edition, TAB Books, New York, USA.

Hino, R., Haga, K., Aita, H. ve Sekita, K., 2004. R&D on hydrogen production by high-temperature electrolysis of steam, *Nuclear Engineering and Design*, 233, 1-3, 363-375.

Holladay, J. D., Hu, J., King D. L. ve Wang, Y., 2009. An overview of hydrogen production Technologies, *Catalysis Today*, 139, 4, 244-260.

Holmen, A., 2009. Direct conversion of methane to fuels and chemicals, *Catalysis Today*, 142, 1-2, 2-8.

Huong Le, T. X., Cretin, M. ve Bechelany, M., 2017. Carbon felt based-electrodes for energy and environmental applications: a review, *Carbon*, 122, 564-591.

Kalamaras, C. M. ve Efstathiou, M. A., 2013. Hydrogen production technologies: current state and future developments, *Power Options for the Eastern Mediterranean Region*, Limassol, Cyprus, Conference Papers in Science, 2013.

Kapdan, K. I. ve Kargi, F., 2006. Bio-hydrogen production from waste materials, *Enzyme and Microbial Technology*, 38, 5, 569-582.

Karakashev, D., Angelidaki, I., O-Thong, S. ve Prasertsan, P., 2008. Thermophilic fermentative hydrogen production by the newly isolated *Thermoanaerobacterium thermosaccharolyticum* PSU-2, *International Journal of Hydrogen Energy*, 33, 4, 1204-1214.

Koca, B. M., Çelik, G., Kardaş, G. ve Yazıcı, B., 2019. NiGa modified carbon-felt cathode for hydrogen production, *International Journal of Hydrogen Energy*, 44, 27, 14157-14163.

Koç, E. ve Şenel, M. C., 2013. Dünyada ve Türkiye’de enerji durumu-genel değerlendirme, *Mühendis ve Makina Dergisi*, 54, 639, 32-44.

Koryta, J., Dvorak, J. ve Kavan, L., 1993. *Principles of electrochemistry*, Second Edition, John Wiley & Sons, West Sussex, England.

- Kothari, R., Buddhi, D. ve Sawhney R. L., 2008. Comparison of environmental and economic aspects of various hydrogen production methods, *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, 12, 2, 553-563.
- Lasia, A., 2019. Mechanism and kinetics of the hydrogen evolution reaction, *International Journal of Hydrogen Energy*, 44, 36, 19484-19518.
- Lee, J., Yun, N. ve Park, J., 2011. Anisotropic properties of needle punched, 18th International Conference on Composite Materials, 1-4.
- Liu, L., Chen, W. ve Li, Y., 2016. An overview of the proton conductivity of nafion membranes through a statistical analysis, *International Journal of Membrane Science*, 504, 1-9.
- Lukajtis, R., Holowacz, I., Kucharska, K., Glinka, M., Rybarczyk, P., Przyjazny, A. ve Kaminski, M., 2018. Hydrogen production from biomass using dark fermentation, *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, 91, 665-694.
- Lou, G., Wu, Y., Zhu, X., Lu, Y., Yu, S., Yang, C., Chen, H., Guan, C., Li, L. ve Shen, Z., 2018. Facile activation of commercial carbon felt as a low-cost freestanding electrode for flexible supercapacitors, *ACS Applied Materials Interfaces*, 10, 42503-42512.
- Mabbott, G. A., 1983. An introduction to cyclic voltammetry, *Journal of Chemical Education*, 60,9, 689-782.
- Mehboob, S., Ali, G., Shin, H. J., Hwang, J., Abbas, S., Chung, K. Y. ve Ha, Y. H., 2018. Enhancing the performance of all-vanadium redox flow batteries by decorating carbon felt electrodes with SnO₂ nanoparticles, *Applied Energy*, 229, 910-921.
- Montes, R., Bartoli, J., Baeza, M. ve Cespedes, F., 2015. Improvement of the detection limit for biosensors: advances on the optimization of biocomposite composition, *Microchemical Journal*, 119, 66-74.
- Munoz, J., Montes, R. ve Baeza, M., 2017. Trends in electrochemical impedance spectroscopy involving nanocomposite transducers: characterization, architecture surface and bio-sensing, *TrAC Trends in Analytical Chemistry*, 97, 201-215.
- Nara, H., Yokoshima, T. ve Osaka, T., 2020. Technology of electrochemical impedance spectroscopy for an energy-sustainable society, *Current Opinion in Electrochemistry*, 20, 66-67.
- Nesekumar, N., Berchmans, S. ve Alwarappan, S., 2018. Chemically modified carbon based electrodes for the detection of reduced glutathione, *Sensors and Actuators B: Chemical*, 264,448-466.

- Ni, M., Leung, D. Y. C., Leung, M. K. H. ve Sumathy, K., 2006. An overview of hydrogen production from biomass, *Fuel Processing Technology*, 87, 5, 461-472.
- Nikolaidis, P. ve Poullikkas, A., 2017. A comparative overview of hydrogen production processes, *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, 67, 597-611.
- Rao, C. N. R., Sood, A. K., Subrahmanyam, K. S. ve Govindaraj, A., 2009. Graphene: the new two- dimensional nanomaterial, *Angewandte Chemie*, 48, 7752-7777.
- Ramalingam, V., 2019. Multifunctionality of gold nanoparticles: plausible and convincing properties, *Advances in Colloid and Interface Science*, 271, 101989.
- Rasmi R. K., Chakrapani, K. ve Sampath, S., 2011. Ultra synthesis and characterization of exfoliated graphene- and graphene oxide-based composites, pp.33-42, in: Pati, S. K., Enoki, T. ve Rao, C.N.R. (Editor), *Nanocoatings Graphene and Its Fascinating*, World Scientific Publishing, Danvers, USA.
- Reijnders, L., 2006. Cleaner nanotechnology and hazard reduction of manufactured nanoparticles, *Journal of Cleaner Production*, 14, 2, 124-133.
- Rossmesl, J., Logadottir, A. ve Norskov, J. K., 2005. Electrolysis of water on (oxidized) metal surfaces, *Chemical Physics*, 319, 1-3, 178-184.
- Saçak, M., 2012 *Polimer Kimyası*, 6.Baskı, Gazi kitabevi, Ankara, Türkiye.
- Sorensen, B. ve Spazzafumo, G., 2018, *Hydrogen and fuel cells emerging technologies and applications*, Third Edition, Elsevier Academic Press, New York, USA.
- Solak, A. O., Üstündağ, Z., Atar, N. ve Yola, M. F, 2013. A novel voltammetric sensor based on p-aminothiophenol functionalized graphene oxide/gold nanoparticles for determining quercetin in the presence of ascorbic acid, *Journal of Electroanalytical Chemistry*, 698, 9-16.
- Steinfeld, A., 2005. Solar thermochemical production of hydrogen – a review, *Solar Energy*, 78, 5, 603-615.
- Swain, G. M., 2007. Solid electrode materials: pretreatment and activation, pp.111-153, in: Zoski, C. G. (Editor), *Handbook of Electrochemistry*, Elsevier B.V, Oxford, UK.
- Theerthagiri, J., Lee, S. J., Murthy, A.P., Madhavan, J. ve Choi, M. Y., 2020. Fundamental aspects and recent advances in transition metal nitrides as electrocatalysts for hydrogen evolution reaction: a review, *Current Opinion in Solid State and Materials Science*, 24, 1, 100805.

- Tiginyanu, I., Ursaki, V. ve Popa, V., 2011. Ultra-thin membranes for sensor applications, pp.330-353, in: Tiginyanu, I. ve Makhoulouf, A.S.H. (Editor), Nanocoatings and ultra-thin films Technologies and Applications, Electronic Age, Woodhead Publishing Limited, Philadelphia, USA.
- Turner, J., Sverdrup, G., Mann, M. K., Maness, P. C., Kroposki, B., Ghirardi, M., Evans, R. J. ve Blake, D., 2008. Renewable hydrogen production, International Journal of Energy Research, 32, 5, 379-407.
- Tutar, F. ve Eren, M., 2011. Geleceğin enerjisi: hidrojen ekonomisi ve Türkiye, Uluslararası İktisadi ve İdari İncelemeler Dergisi, 6, 1-26.
- Wu, Z. S., Zhou, G., Yin, L. C., Ren, W., Li, F. ve Cheng, H. M., 2012. Graphene/metal oxide composite electrode materials for energy storage, Nano Energy, 1, 1, 107-131.
- Xia, Y., Xiong, Y. ve Byungkwon, L., 2009. Shape- Controlled Synthesis of Metal Nanocrystals: Simple Chemistry Meets Complex Physics?, Angewandte International Edition Chemie. 48, 60-103.
- Yılmaz, A. E. ve Öziç, C. H., 2018. Türkiye'nin yenilenebilir enerji potansiyeli ve gelecek hedefleri, Ordu Üniversitesi Sosyal Bilimler Araştırmaları Dergisi, 8, 3, 525-535.
- Yılmaz, S., 2016. Uygulama örnekleriyle elektroanalitik kimya, 4. Baskı, Gazi Kitabevi, Ankara, Türkiye.
- Yola, M. L., Atar, N., Eren, T., Karimi-Maleh, H. ve Wang, S., 2015. Sensitive and selective determination of aqueous triclosan based on gold nanoparticles on polyoxometalate/reduced graphene oxide nanohybrid, RSC Advances, 81, 5, 65953-65962.
- Yu, P., Wang, F., Shifa, T.A., Zhan, X., Lou, X., Xia, F. ve He, J., 2019. Earth abundant materials beyond transition metal dichalcogenides: A focus on electrocatalyzing hydrogen evolution reaction, Nano Energy, 58, 244-276.
- Zeren, M. A., 1999. Elektrokimya Temel Bilgiler, Birsen Yayınevi, İstanbul, Türkiye.
- Zheng, Y., Jiao, Y., Zhu, Y., Li, L. H., Han, Y. ve Chen, Y., 2014. Hydrogen evolution by a metal-free electrocatalyst, Nat Commun, 5, 3783,1-8.
- Zhou, X., Zhang, X., Lv, Y., Lin, L. ve Wu, Q., 2019. Nano-catalytic layer engraved carbon felt via copper oxide etching for vanadium redox flow batteries, Carbon, 153, 674-681.
- URL-1 <http://www.mfa.gov.tr/21_-yuzyilda-enerji-kullanimi-ve-iklim-decisiklici.tr.mfa>, Erişim tarihi: 05.05.2020.

URL-2 <<https://www.enerjisistemlerimuhendisligi.com/hidrojen-enerjisini-avantaj-dezavantaj-ve-depolanmasi.html>>, Eriřim tarihi: 08.03.2020.

URL-3 <<https://www.energy.gov/eere/fuelcells/safe-use-hydrogen>>, Eriřim tarihi: 17.04.2020.

URL-4 <<https://www.hpmsgraphite.com/graphite-felt.html>>, Eriřim tarihi: 12.05.2020.

URL-5 <<https://www.hazerfen.com.tr/reduced-graphene-oxide-indirgenmis-grafen-oksit>>, Eriřim tarihi: 10.05.2020.

URL-6 <<https://www.taek.gov.tr/tr/sik-sorulan-sorular/148-malzeme-teknolojisi-sss/948-taramali-elektron-mikroskobu-sem-nasil-calisir.html>>, Eriřim tarihi: 26.04.2020.



ÖZGEÇMİŞ

Adı ve Soyadı : Murat BİLGİ

EĞİTİM BİLGİLERİ (Kurum ve Yıl)

Lisans : Süleyman Demirel Üniversitesi, Kimya Bölümü, 2006-2010

Yüksek Lisans : Aksaray Üniversitesi, Kimya Anabilim Dalı, 2018-2020

MESLEKİ DENEYİM VE ÖDÜLLERİ

1. Kredi Yurtlar Kurumu / Memur 2017-

TEZDEN ÜRETİLEN YAYINLAR, SUNUMLAR VE PATENTLER

Kongrelerde Sunulan Makaleler

1. Murat BİLGİ, Didem BALUN KAYAN. “Electrocatalytic hydrogen production on modified carbon felt electrode”, ICAT 2020 - 9th International Conference on Advanced Technologies (ICAT'20), 10-12 August 2020.