



## Modifiye Hummers Yöntemi ile Grafen Oksit Sentezinde Bor Bileşiklerinin Kullanılması

### Use of Boron Compounds in Graphene Oxide Synthesis via the Modified Hummers Method

Esra YILMAZ MERTSOY \*, Haluk KORUCU \*

Çankırı Karatekin Üniversitesi, Mühendislik Fakültesi, Kimya Mühendisliği Bölümü, Çankırı, Türkiye

© Afyon Kocatepe Üniversitesi

#### Özet

Bu çalışmada grafitten Hummers Tour metodu ile grafen oksit sentezinin performans değerlendirilmesi üzerinde durulmuştur. Hummers Tour metodunda tüm şartlar aynı kalacak şekilde sadece fosforik asit, borik asit veya boraks dekahidrat bileşikleri değiştirilerek, bu kimyasalların grafen oksit sentezi üzerindeki etkilerinin değerlendirilmesi hedeflenmiştir. Grafen oksit örneklerinde; BET analizi ile yüzey alan (YA), FTIR ile yapı karakterizasyonu, ZETA-SIZER ile Zeta Potansiyeli (ZP) ve Parçacık boyut dağılımı (PB), SEM+EDS ile oksidasyon dereceleri (C/O), XRD analizi ile kristal boyutu (KB) ve Raman analizi ile yapıdaki kusur oranı (ID/IG) analiz edilerek, örnekler arasındaki iyileşme oranları belirlenmiştir. İyileşme oranları grafit örneğinin özelliklerini referans alınarak belirlenmiştir. İyileşme oranları için en iyi sonuçlar; YA için % 7,7 ve PB için %37,9 ile fosforik asit ile sentezlenen grafen oksit örneğinde ve C/O oranı için %97,4 , ZP için %100,5 ve KB için ise % 84,30 ile boraks dekahidrat ile sentezlenen grafen oksit örneğinde elde edilmiştir. D/G için iyi iyileşme oranı % 67,85 ile borik asit le sentezlenen grafen oksit örneğinde elde edilmiştir. Çalışma sonuçları göstermiştir ki grafen oksit sentezinde fosforik asit yerine bor bileşiklerinin kullanılması avantajlı olmaktadır.

#### Abstract

In this study, the performance evaluation of graphene oxide synthesis from graphite by the Hummers Tour method was focused on. In the Hummers Tour method, it was aimed to evaluate the effects of these chemicals on graphene oxide synthesis by changing only phosphoric acid, boric acid, or borax decahydrate compounds so that all conditions remain the same. In graphene oxide samples; Surface area (YA) by BET analysis, structure characterization by FTIR, Zeta Potential (ZP) and Particle size distribution (PB) by ZETA-SIZER, oxidation degrees (C/O) by SEM+EDS, crystal size (KB) by XRD analysis and defect rate in structure (ID/IG) by Raman analysis were analyzed and the recovery rates between the samples were determined. The recovery rates were determined by reference to the characteristics of the graphite sample. The best results for recovery rates; It was obtained in the graphene oxide sample synthesized with phosphoric acid with 7.7% for YA and 37.9% for PB, and in the graphene oxide sample synthesized with borax decahydrate with 97.4% for C/O ratio, 100.5% for ZP and 84.30% for KB. The recovery rate for D/G was obtained in the graphene oxide sample synthesized with boric acid at 67.85%. The results of the study have shown that it is advantageous to use boron compounds instead of phosphoric acid in the synthesis of graphene oxide.

**Anahtar Kelimeler:** Grafen oksit ; Hummers metodu; Borik asit; Boraks deka hidrat; BET yüzey alanı; Parçacık boyutu

**Keywords:** Graphene oxide ; Hummers method; Boric acid; Borax decahydrate; BET surface area; Particle size

#### 1. Giriş

Grafenin iletkenlik, mekanik, mukavemet ve sertlik gibi olaganüstü özelliklere sahip olması sebebiyle, son yıllarda araştırmacıların ilgisini çekmektedir (Farjadian et al. 2020, Gao et al. 2024). Grafen bazlı malzemelerin biyosensörler, yakıt hücreleri, enerji depolama cihazları, ilaç/gen dağıtım sistemleri gibi biyomedikal uygulamalar ve atık su yönetimi dahil olmak üzere bir çok alanda kullanımı mümkün olmaktadır (Bai et al 2020, Korucu 2022, Jia et al. 2022, Song et al. 2019). Grafen oksidin sentezi için bir oksitleyici ajan varlığında konsantrasyonunu üzerine grafit eklenmesi ile grafitin oksidasyonunu içerir. Grafen oksidin hazırlanmasına yönelik metotlarda, Brodie kuvvetli

oksidan olarak dumanlı nitrik asit ve potasyum klorat kullandı (Brodie 1859). Staudenmaier ise sülfürük asit ve nitrik asit kombinasyonunu potasyum klorat ile birlikte kullandı (Staudenmaier 1898). Hummers ve Offemann'ın (1958) geliştirdiği yöntemde sülfürük asit, sodyum nitrat ve potasyum permanganat kullanıldı (Hummers and Offeman 1958). Hummers yöntemi ile birlikte, patlama riski, asit sisi ( $\text{ClO}_2$ ), zehirli gazların salınması ( $\text{NO}_2$  ve  $\text{N}_2\text{O}_4$ ), uzun reaksiyon süreleri, zahmetli saflaştırma işlemlerinin önüne geçilmektedir (Korucu et al. 2018). Tour, Hummers metodunu geliştirmektedir sodyum nitrat yerine fosforik asit kullanması ile  $\text{NO}_x$  gazı oluşumunu engelleyerek farklı bir yaklaşım getirmiştir. Araştırmacılar

grafen oksitin kullanımının yaygınlaşması ile daha çevreci ve verimli yöntemler üzerine çalışmalar yapmaktadır (Marcano *et al.* 2010). Bu hedefle Hummers yönteminde borik asidin kullanıldığı bir çalışmada, borik asidin grafen oksitin yapısına ait kusurlarının giderimin de olumlu etki göstermiştir (Zhang *et al.* 2022). Ülkemizde de bor bileşiklerinin yaygın bir şekilde üretilmesi, bor bileşiklerinin Hummers yönteminde  $\text{NaNO}_3$  veya  $\text{H}_3\text{PO}_4$  yerine kullanılmasının önünü açmaktadır. Literatürde yaygın olarak grafen oksit sentezi sonrası süspansiyon çözeltiler hazırlanarak borik asidin, grafen oksidin yapısı içerisinde katkı edilmesi çalışılmıştır (Banu and Ayça 2022, Mannan *et al.* 2018). Ancak, Hummers yönteminde grafen oksit sentezinin bor bileşikleri kullanılarak karakterizasyonunun yapıldığı bir çalışmaya rastlanılmamıştır.

Bu çalışmada Hummers yönteminde grafen oksitin özellikleri iyileştirme hedefi ile, aynı şartlar altında fosforik asit, borik asit veya boraks dekahidrat kullanımının performanslarının değerlendirilmesi amaçlanmıştır.

## 2. Materyal ve Metot

Bu çalışmada Modifiye Hummers metoduyla grafen oksit sentezinde, fosforik asit, borik asit ve boraks dekahidratın performanslarının değerlendirilmesi hedeflenmiştir. Bu hedefle tüm deney şartları ve kimyasal oranları aynı kalmak şartıyla, fosforik asit, borik asit ve boraks dekahidratın üç farklı deney için kullanılarak, bu üç kimyasalın grafen oksit sentezi üzerine performansları değerlendirilmiştir. Kullanılan fosforik asit referans deney alınarak borik asit ve boraks dekahidratın performansları kıyaslanmıştır. Gerçekleştirilen deneyler çift cidarlı cam reaktör içerisinde, sıcaklık kontrolü ise sirkülasyonlu su banyosuna bağlı çift cidarlı cam reaktörler ile gerçekleştirılmıştır. Her deney için, 2g grafit örneği üzerine 50mL sülfürik asit alınmış, üzerlerine 20mL fosforik asit (birinci deney için) veya 20g borik asit (ikinci deney için) veya 20g boraks dekahidrat (üçüncü deney için) eklenmiş ve üzerlerine her deney için 6g potasyum permanganat eklenmiş ve 16 saat boyunca 5 °C'de karıştırılmıştır. Daha sonra karışımının her birinin üzerine 50 mL distile su ilave edilerek reaksiyon sıcaklığı 95°C çıkarılmış 6 saat boyunca karıştırılmıştır. Süre sonunda karışım soğumaya bırakılarak üzerlerine 5 mL hidrojen peroksit ve 5 mL hidroklorik asit ilavesi yapılarak reaksiyon sonlandırılmıştır. Her bir deney çözeltisi 5 L kaplara alınarak pH 3 oluncaya kadar dekantasyon işlemi ile yıkama yapılmıştır. Örnekler, santrifüj edilerek son yıkaması yapılmış ve 60 °C'de etüvde kurutulmuştur.

**Çizelge 1.** Grafen oksite ait kalite kriterleri

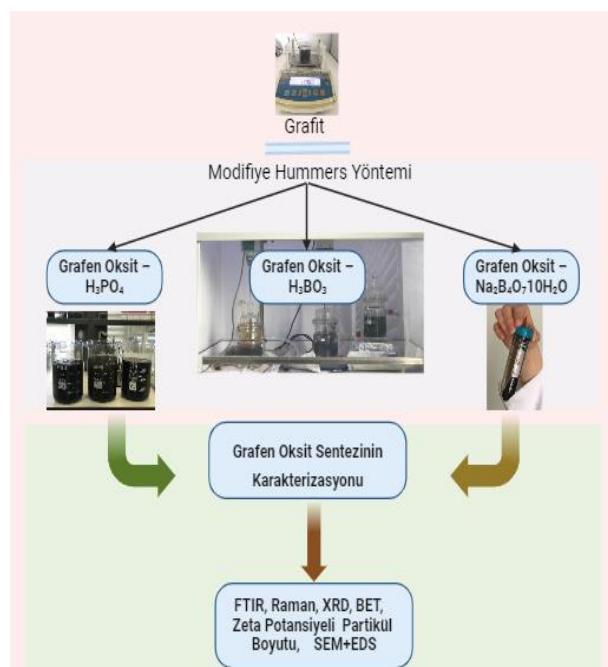
Sentezlenen grafen oksit örneklerini performanslarının değerlendirilmesi amacıyla Zeta Sizer analizi ile Zeta Potansiyeli ölçümü ve Parçacık boyut dağılım analizi gerçekleştirilmiştir.

Zeta Potansiyeli ile örneklerin dispersiyon ve çözünebilme özellikleri, Parçacık Boyut Dağılımı ile de örneklerde ait nano boyut analizi gerçekleştirilmiştir. Zeta Potansiyeli değeri -30 mV ile -60 mV arasındaki değerleri dispersiyon özellikte olduğunu ve bu değer -60 mV yaklaştıkça daha iyi dispersiyon kabiliyetinde olduğunu gösterir (Şimşek *et al.* 2018). Parçacık boyut analizinde ise ortalama parçacık boyut değeri ve dağılımlar verilmektedir. Grafen oksidin nano özelikte olması istediği için parçacık boyut dağılımı ortalaması küçük değer hedeflenir (Korucu *et al.* 2023). FTIR analizi ile oksijen içerikli fonksiyonel grup karakterizasyonu gerçekleştirılmıştır. Grafitin yapısına ait olmayan oksijen gruplarının yapıya ilave olarak grafen oksidin sentezinin gerçekleştirilmesi gereklidir. BET analizi ile yüzey alanı ölçümleri gerçekleştirılmıştır. Grafen oksidin kullanım alanları sebebiyle yüzey alanının da büyük değerler hedeflenir. SEM+EDS ile oksidasyon derecesinin bir ölçüsü olan C/O oranı hesaplanmış ve yapıya ilave olan oksijen içerikli gruplardan dolayı düşük değerler hedeflenmiştir. Raman analizi ile yapıdaki kusur derecesine ifade eden D/G pik oranı hesaplanmış, yapıdaki kusur az olması istediği için düşük değerler hedeflenmiştir. XRD analizi ile kristal boyutu sonuçları elde edilerek, tabakalar arası mesafe azalarak küçük kristal boyutu değerleri elde edilmesi hedeflenmiştir (Guliyeva *et al.* 2023). Grafen oksit örnekleri Hummers yöntemi ile incelenen üç deney için, yedi farklı kriter ile karakterize edilmiştir.

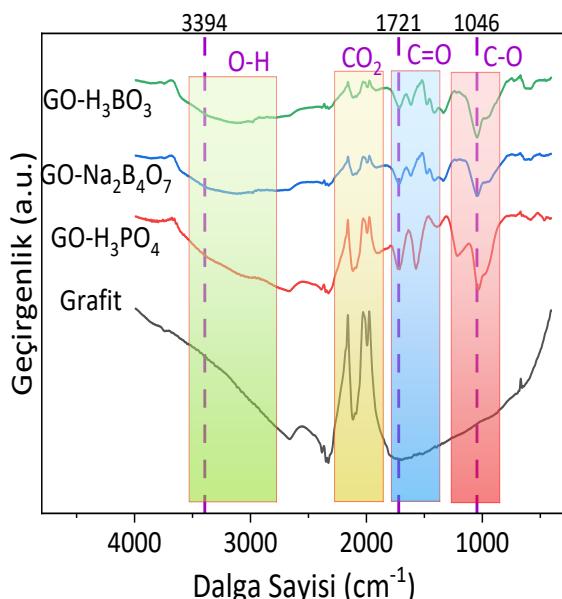
Çalışmada grafen oksit malzemelerin karakterizasyonu için, BET analizi Quantachrome - Nova Touch LX<sup>4</sup> ile, FTIR analizi Bruker-Tensor 2 ile, SEM+EDS analizi Carl Zeiss-Sigma 300 VP ile, Zeta Potansiyeli ve Parçacık Boyut Dağılımı analizi Malvern - Zetasizer Nano ZS ile Çankırı Karatekin Üniversitesi Merkezi Araştırma Laboratuvarında gerçekleştirılmıştır. Raman analizleri Thermo DXR cihazı ile Namık Kemal Üniversitesi merkezi araştırma laboratuvarında, XRD analizleri ise Bruker D8 Discover cihazı ile Bayburt Üniversitesi merkezi araştırma laboratuvarında gerçekleştirılmıştır.

Çizelge 1'de grafen oksidin karakterizasyonu için belirlenen kalite kriterlerine ait özellikler açıklanmaktadır. Seçilen kalite kriterlerine göre yöntemler arasında performans değerlendirilmesi yapılmıştır. Şekil 1'de ise çalışmaya ait akış diyagramı verilmiştir.

No	Sembol	Açıklama	Bilgi	Hedef Dğer
1	FTIR	Yapı analizi	Fonksiyonel gruplar	
2	PB	Zeta Sizer	Partikül Boyutu	En küçük en iyi
3	ZP	Zeta Potansiyeli	Dispersiyon özelliği	En küçük en iyi
4	D/G	Raman	Yapıdaki kusur	En küçük en iyi
5	KB	XRD	Kristal boyutu	En küçük en iyi
6	YA	BET	Yüzey alanı	En büyük en iyi
7	EDS	C/O oranı	Oksidasyon Derecesi	En küçük en iyi



Şekil 1. Deney sistemine ait akış diyagramı

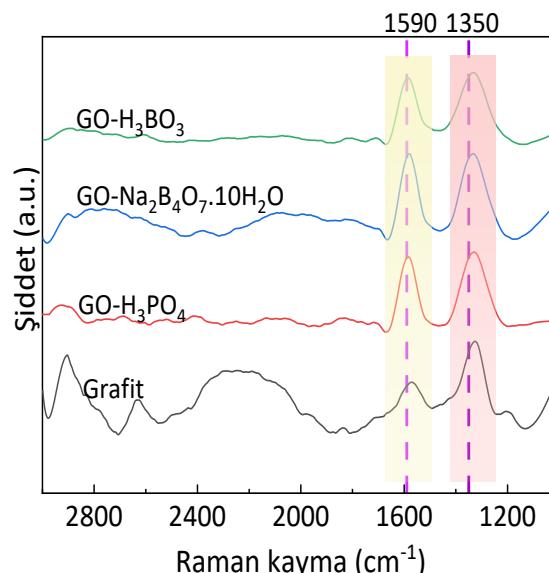


Şekil 2. Grafit ve grafen oksit örneklerine ait FTIR spektrumları

### 3. Bulgular

Şekil 2'de FT-IR analizi grafiklerinde görüldüğü üzere, sentezlenen grafen oksit örneklerinde, grafitin yapısına ait olmayan, O-H pikleri 3391 cm<sup>-1</sup> ve 1410 cm<sup>-1</sup> de, C=O piki

1721cm<sup>-1</sup> de, C=C piki 1680 - 1620 cm<sup>-1</sup>de, C-O piki 1221 cm<sup>-1</sup> ve 1046 cm<sup>-1</sup> de, gözlemlenmiştir. FTIR analizi sonuçları, grafitten Hummers-TUOR metodu ile borik asit, boraks dekahidrat ve fosforik asit kullanımı ile grafen oksit sentezinin başarıyla gerçekleştiğini göstermiştir. Bor bileşikleri kullanılarak sentezlenen grafen oksit örneklerinde O-H piklerinin fosforik asit ile sentezlenen grafen oksit piklerine göre yayın ve geniş olduğu görülmüştür. Buda bor bileşikleri kullanılarak sentezlenen grafen oksit piklerinde O-H gruplarının fazla olduğunu göstergesidir. Ayrıca bor bileşikleri kullanılarak sentezlenen grafen oksit örneklerinin fosforik aside göre daha yoğun C=O ve C-O piklerin görülmemesi yapıya ilave olan oksijen içerikli fonksiyonel grupların daha fazla olduğunu göstermiştir.

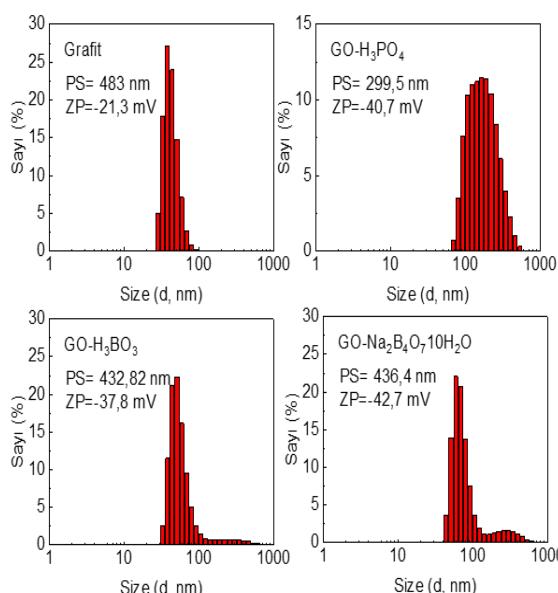


Şekil 3. Grafit ve grafen oksit örneklerine ait Raman grafikleri

Şekil 3'de, Raman spektroskopisindeki ID/IG oranı, grafen oksit için kritik bir parametredir. ID bandındaki (yaklaşık 1350 cm<sup>-1</sup>) şiddetin artması, grafitin yapısına eklenen fonksiyonel grupların ilave olması ile yapıda meydana gelen kusurları göstermektedir. IG bandına (yaklaşık 1590 cm<sup>-1</sup>) oluşumu ise yapıdaki sp<sup>2</sup> karbon çiftlerinin bağ gerilmesinden kaynaklanan birinci dereceden saçılımlardır. ID/IG pik oranındaki artış, yapıya bağlanan fonksiyonel gruplara ilave olarak kusurlu grafen oksit yapısına da işaret etmektedir. Raman grafikleri analizi,

grafitten Hummers-Tour metodı ile borik asit, boraks dekahidratın ve fosforik asit kullanımı ile ID pikine ait şiddetin artığı ve IG pikinin dikey olarak şiddetinin artığı gözlemlenmiştir. Bu yöntemlere ait grafen oksit sentezinin başarılı olduğu göstermiştir (Chaloupkova et al. 2023).

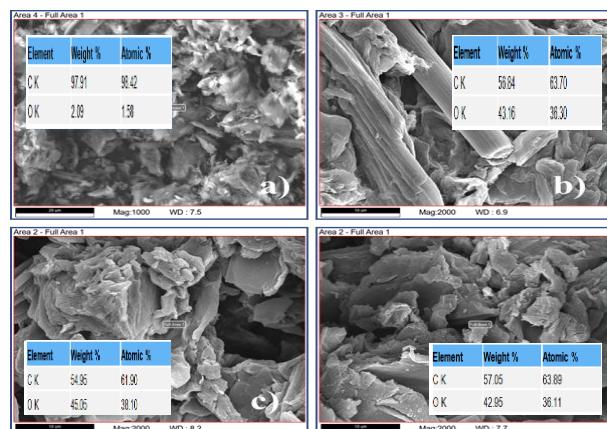
Şekil 4'de Zeta Potansiyeli ve Parçacık boyutu analizi sonuçları verilmiştir. Grafen oksidin suyu seven ve suda dağılabilirlik özelliğinden dolayı zeta potansiyeli değerleri önem arz etmektedir. Değerlerin eksi yönde azalması dispersiyon özelliğinin iyileşmesine yorumlanır. Grafen oksit örneklerinin Zeta potansiyeli değerlerinde grafite göre bir düşüş gözlenmiştir. Yöntemler arasında en iyi değeri boraks dekahidrat vermiştir. Parçacık boyutu değerlerinde, boyut dağılımı ve ortalama parçacık boyutu olarak verilmiştir. Parçacık boyut dağılımında 100nm altında taneciklerin içermesi malzemenin nano özellikte olduğunu gösterir (Sanchez et al. 2024). Sentezlenen grafen oksit örneklerinin grafite göre daha fazla nano tanecikler içeriği deney sonuçlarından da görülmektedir.



**Şekil 4.** Grafit ve grafen oksit örneklerine ait ZETA-SİZER sonuçları

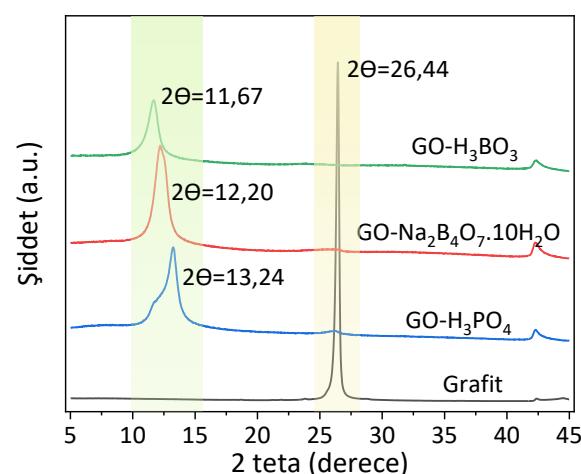
Şekil 5'te grafit ve grafen oksit örneklerine ait SEM görüntüleri ve Çizelge 2'de EDS sonuçları verilmiştir. SEM görüntülerinde iki boyutlu grafen oksit tabakalarının düzlemler halinde kıvrılmış, katlanmış şekilde olduğu görülmektedir. Bu kıvrımların oluşmasının sebebi grafen oksidin oluşumu sırasında ortaya çıkan oksijen içeren fonksiyonel gruplardan ve bunun sonucu oluşan yapısal kusurlardan kaynaklanmaktadır (Muniyalakshmi et al. 2020). EDS analizi verilerine göre ise grafite ait C:O oranı 62,29 değerinden, grafen oksit örnekleri sentezi ile 1,77 ile 1,65 arasında değişmiştir. Çizelge 2'deki SEM+EDS sonuçları, boraks dekahidrat kullanarak sentezlenen grafen oksit örneklerinin oksidasyon performansının en iyi

olduğunu, borik asit ve fosforik asit ile sentezlenen grafen oksit örneklerinde ise birbirine yakın sonuçlar elde edildiğini göstermiştir.



**Şekil 5.** a) Grafit b) GO-H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> c) GO-Na<sub>2</sub>B<sub>4</sub>O<sub>7</sub>·10 H<sub>2</sub>O d) GO-H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> ait SEM+EDS sonuçları

Şekil 6'da grafit ve grafen oksit örneklerine ait XRD grafikleri verilmiştir. Saf grafit, XRD deseninde 002 düzleminde  $2\theta = 26^\circ$  de bir pik gösterir. Oksidasyon sonrası (002) düzlem piki oksijen fonksiyonel gruplarının varlığı nedeniyle daha düşük açılara ( $9-13^\circ$  civarına) kayar. Grafitin yapısının tamamen grafen okside dönüşüğünün bir göstergesi olarak bu pik kaybolur. Sentezlenen grafen oksitlere ait olan piklerim  $9-13^\circ$  civarında ortaya çıktıgı görülmüştür (Surekha et al 2020). Bu çalışmada X-ışını Kırınım Desenlerinden anlaşıldığı üzere; grafitten, grafen oksidin sentezinin her metot için başarılı olduğu gözlemlenmiştir.



**Şekil 6.** Grafit ve grafen oksit örneklerine ait XRD grafikleri

X-ışını Kırınım Düzeninde, hesaplanan kristal boyut değerinin küçük olması arzu edilir. Kristalin boyutu azaldıkça, az tabaklı düzenli plakaların oluştuğunu gösterir. Grafen oksit örneklerinde kristal boyutu Debye-Scherrer denklemi ile hesaplanmıştır (Abdel-Aal et al. 2020).

$$\gamma(002) = \frac{0,9 * \lambda}{\beta * \cos(\theta)} \quad (1)$$

$\tau$  (002) yönündeki kristal boyutu,  $\lambda$  ise x-ışını dalga boyu 0,15406 nm'dir,  $\beta$  maksimum kırınım genişliğinin yarısıdır,  $\theta$  ise kırınım açısıdır. Grafit ve grafen oksit örneklerine ait hesaplanan kristal boyut değerleri Çizelge 2'de verilmiştir.

Çizelge 2'de grafit ve grafen oksit örneklerine ait BET yüzey alanı ölçümleri verilmiştir. BET ölçümlerinde ( $m^2/g$ ) amaçlanan değer maksimumdur. Yüksek yüzey alanı, kütle aktarım hızını, adsorpsiyon kapasitesini, mikro gözenekleri ve lamel boyutunu olumlu yönde etkiler. Sentezlenen grafen oksit örneklerinin YA değerlerinin 11,14 ile 13,36 arasında değerler elde edilmiştir.

#### 4. Tartışma ve Sonuç

Çalışmamızdaki Şekil 2'deki FTIR sonuçlarından anlaşılmaktadır ki, Modifiye Hummers yönteminde grafen oksit sentezinde borik asit ve boraks dekahidrat kullanımının başarılı olduğu görülmüştür. Çizelge 2'deki EDS sonuçlarındaki incelendiğinde boraks dekahidratın, mevcut yöntemde kullanılan fosforik aside göre daha fazla oksijen içeren grupları içermesinden dolayı C/O oranları düşük çıkarak oksidasyon performansının daha iyi olduğu görülmektedir. FTIR analizinde boraks dekahidrat ve borik asitteki pik şiddetlerinin, mevcut yöntemde kullanılan fosforik aside göre daha baskın ve yayvan olduğu, bu da yapıya bağlanan fonksiyonel grupların daha fazla olduğuna işaret etmektedir. Boraks dekahidrat ve borik asidin yapısında içermiş olduğu oksijen içerikli gruplar grafen oksidin yapısına yerleşerek oksidasyon performansını artırmıştır. Zeta potansiyeli ölçümleri birbirine yakın değerler verse de, parçacık boyutu sonuçlarında grafen oksidin yapısına bor bileşiklerinin yerleşmesinden ötürü, borik asit ve boraks dekahidratın kullanılarak sentezlenen grafen oksit örneklerinin parçacık boyutunda bir artış gerçekleşmiştir. Raman

analizleri incelendiğinde borik asit kullanılarak sentezlenen grafen oksit örneklerinin daha az kusurlu yapı içerdiği, ID/IG değerlerinin düşük çıkışından anlaşılmıştır. Borik asit grafen oksidin yapısındaki kusurlu bölgelere yerleşerek kusur oranını azaltmıştır. XRD analizleri ile borik asit ve boraks dekahidratın kullanılarak sentezlenen grafen oksit örneklerinin fosforik aside göre daha küçük kristal boyutuna sahip örnekler elde edildiği gözlenmiştir.

Çizelge 2 de grafit referans alınarak hesaplanan iyileşme oranları incelendiğinde, yüzey alanı (BET) ve parçacık boyutu (ZETA-SIZER) için en iyi değer sırasıyla % 7,7 ve % 37,9 ile fosforik asitilen sentezlenen grafen oksit örneği vermiştir. Zeta Potansiyeli, kristal boyutu (XRD) ve C/O (EDS) ait iyileşme oranları değeri sırasıyla % 100,5, %84,30 ve % 97,4 ile boraks dekahidrat ile sentezlenen grafen oksit örneği vermiştir. Yapıdaki kusur oranı D/G (Raman) ait iyileşme oranı % 67,85 ile borik asit ile sentezlenen grafen oksit örneğinde elde edilmiştir.

Modifiye Hummers yöntemi ile grafen oksit sentezinde fosforik asit yerine boraks dekahidrat veya borik asit kullanımı başarılı olmuştur. Ülkemizde bor yataklarının fazla olması ve bor bileşiklerine yönelik üretim yapan tesislerin olması sebebiyle, bu ürünlerin katma değere sahip proseslerde kullanılabilir ve uygulanabilirliğini gösteren çalışmalar büyük önem taşımaktadır (Guliyev 2015). Boraks dekahidrat doğal bir bor bileşiği olması ve daha önceden grafen oksit sentezinde kullanılan bir çalışmaya rastlanılması sebebiyle sonuçlar ilgi çekici olmuştur. Çalışmamızda Hummers yönteminde fosforik asit yerine alternatif olarak boraks dekahidrat ve borik asit kullanımı ile grafen oksidin özelliklerini iyileştirmede daha başarılı olduğunu göstermiştir.

**Çizelge 2.** Modifiye Hummers yöntemleri ile sentezlenen grafen oksit örneklerine ait iyileşme oranları

Yanıtlar	Ref <sup>a</sup> Grafit	GO-H <sub>3</sub> PO <sub>4</sub>	GO-Na <sub>2</sub> B <sub>4</sub> O <sub>7</sub> 10H <sub>2</sub> O	GO-H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub>	İyileşme Oranı % GO-H <sub>3</sub> PO <sub>4</sub>	İyileşme Oranı (%) GO-Na <sub>2</sub> B <sub>4</sub> O <sub>7</sub> 10H <sub>2</sub> O	İyileşme Oranı % GO-H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub>
BET (YA-m <sup>2</sup> /g)	12,41	13,36	12,52	11,14	7,7 <sup>b</sup>	0,9	-10,2
ZP (ZP-mV)	-21,3	-40,7	-42,7	-37,8	91,1	100,5	77,5
ZP (PB-nm)	483	300	436	433	37,9	9,7	10,4
Raman (D/G)	2,83	0,97	0,99	0,91	65,72	65,01	67,85
XRD (KB-nm)	40,51	8,42	6,36	7,56	79,11	84,30	81,33
SEM-EDS (C/O)	62,29	1,75	1,63	1,77	97,2	97,4	97,2

Grafite<sup>a</sup> göre % iyileşme oranlarının kalite kriterlerine göre hesaplanması

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

<sup>b</sup> ((13,36/12,41)-1)\*100 =7,65

#### Kısaltmalar

GO: Grafen Oksit

GO-H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub>: Grafen oksit fosforik asit sentezi

GO-Na<sub>2</sub>B<sub>4</sub>O<sub>7</sub>10H<sub>2</sub>O: Grafen oksit boraks sentezi

GO-H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub>: Grafen oksit borik asit sentezi

KB: Kristal boyutu

PB: Parçacık boyutu

YA: Yüzey alanı

ZP: Zeta Potansiyeli

#### Etik Standartlar Bildirgesi

Yazarlar tüm etik standartlara uyduklarını beyan ederler.

#### Yazarlık Katkı Beyanı

Yazar 1: Kaynaklar, Araştırma, Görülselleştirme, Yazma – orijinal taslağ Görülselleştirme, Analiz ve Yorumlama, Yazma – orijinal taslağ

Yazar 2: Araştırma, Fikir Sahibi, Deney tasarımı, Deneyleme, Biçimsel analiz, Doğrulama, Metodoloji, Yazma – orijinal taslağ

**Çıkar Çatışması Beyanı**

Yazarların bu makalenin içeriğiyle ilgili olarak beyan edecekleri hiçbir çıkar çatışması yoktur.

**Verilerin Kullanılabilirliği**

Bu çalışma sırasında oluşturulan veya analiz edilen tüm veriler, yayınlanan bu makaleye dahil edilmiştir.

**Teşekkür**

Bu araştırma Çankırı Karatekin Üniversitesi Bilimsel Araştırma Projeleri Koordinatörlüğü tarafından desteklenmiştir (Proje No: MF081123B33)

**5. Kaynaklar**

Abdel-Aal, S. K., Beskrovnyi, A. I., Ionov, A. M., Mozhchil, R. N., & Abdel-Rahman, A. S. (2021). structure investigation by neutron diffraction and x-ray diffraction of graphene nanocomposite CuO-rGO prepared by low-cost method. *physica status solidi* 218(12):2100138.  
<https://doi.org/10.1002/pssa.202100138>

Bai Y., Xu T., and X. Zhang, 2020. "Graphene-based biosensors for detection of biomarkers," *Micromachines* 11(1):60  
<https://doi.org/10.3390/mi11010060>

Banu, E. T., and Ayça, D. (2022). An Alternative Pre-Treatment Sterilization Solution Synthesis Utilizing Boric Acid Doped Graphene Oxide. *Iran. J. Chem. Eng.* 41(11):3718-3725  
<https://doi.org/10.30492/IJCCE.2022.532683.4806>

Brodie, B. C. 1859. On the atomic weight of graphite. *Philosophical transactions of the royal society of London*, 149: 249-259.  
<https://doi.org/10.1098/rstl.1859.0013>

Chaloupková, Z., Belza, J., & Poláková, K. (2023). Detection of Graphene Oxide in Single HeLa Cells based on MCR-Raman Spectroscopy. *Automation, Robotics & Communications for Industry* 4(5):186-196  
<https://doi.org/10.1039/D3AY01122D>

Farjadian F. et al. 2020,, "Recent Developments in Graphene and Graphene Oxide: Properties, Synthesis, and Modifications: A Review," *ChemistrySelect*, 5(33): 10200–10219  
<https://doi.org/10.1002/slct.202002501>

Gao, B., Feng, X., Zhang, Y., Zhou, Z., Wei, J., Qiao, R., ... & Zhang, X. (2024). Graphene-based aerogels in water and air treatment: a review. *Chemical Engineering Journal*, 484:149604  
<https://doi.org/10.1016/j.cej.2024.149604>

Guliyev, R. (2015). An investigation of borogypsum utilization for the production of triple superphosphate containing boron fertilizers. *Fresenius Environmental Bulletin*, 24(3):748-754.  
<https://doi.org/10.30728/boron.311162>

Guliyeva, N. A., Abaszade, R. G., Khanmammadova, E. A., & Azizov, E. M. (2023). Synthesis and analysis of nanostructured graphene oxide. *Journal of Optoelectronic and Biomedical Materials*, 15(1):23-30.  
<https://doi.org/10.15251/JOBM.2023.151.23>

Hummers, W. S. and Offeman, R.E. 1958. Preparation of graphitic oxide. *Journal of the American Chemical Society*, 80(6): 1339.  
<https://doi.org/10.1021/ja01539a017>

Jia Y., Zhang, J., Zhang C., Han D., Han J., Tao Y., 2022. Practical Graphene Technologies for Electrochemical Energy Storage, *Advanced Functional Materials*, 32(42), 1-17.  
<https://doi.org/10.1002/adfm.202204272>

Korucu, H. 2022. Evaluation of the performance on reduced graphene oxide synthesized using ascorbic acid and sodium borohydride: Experimental designs-based multi-response optimization application. *Journal of Molecular Structure*, 1268:133715.  
<https://doi.org/10.1016/j.molstruc.2022.133715>

Korucu, H., Mohamed, A. I., Yartaşı, A., & Uğur, M. 2023. The detailed Characterization of graphene oxide. *Chemical Papers*, 1-20.  
<https://doi.org/10.1007/s11696-023-02897-y>

Marcano, D.C., Kosynkin, D.V., 2010. Berlin, J.M., Sinitskii, A., Sun, Z., Slesarev, A., Alemany, L.B., Lu, W. and Tour, J.M. Improved synthesis of graphene oxide. *ACS Nano*, 4(8): 4806-4814.  
<https://doi.org/10.1021/nn1006368>

Mannan, M. A., Hirano, Y., Quitain, A. T., Koinuma, M., & Kida, T. (2018). Boron doped graphene oxide: synthesis and application to glucose responsive reactivity. *J. Mater. Sci. Eng.*, 7(5):1-6.  
<https://doi.org/10.4172/2169-0022.1000492>

Muniyalakshmi, M., Sethuraman, K., & Silambarasan, D. (2020). Synthesis and characterization of graphene oxide nanosheets. *Materials Today: Proceedings*, 21, 408-410.  
<https://doi.org/10.1016/j.matpr.2019.06.375>

Sanchez, S. N. B., da Silveira Salla, J., Cesconeto, L. P., da Rocha, G. L., Virmond, E., & Moreira, R. D. F. P. M. (2024). Synthesis of multi-layer graphene oxide from HCl-treated coke and Brazilian coals by sulfuric acid thermal exfoliation and ozone oxidation. *Heliyon*, 10(9):30546  
<https://doi.org/10.1016/j.heliyon.2024.e30546>

Song, S., Shen, H., Wang, Y., Chu, X., Xie, J., Zhou, N., & Shen, J. (2020). Biomedical application of graphene: From drug delivery, tumor therapy, to theranostics. *Colloids and Surfaces B: Biointerfaces*, 185: 110596.  
<https://doi.org/10.1016/j.colsurfb.2019.110596>

Staudenmaier, L. 1898. Verfahren zur Darstellung der Graphitsäure. Berichte der Deutschen Chemischen Gesellschaft, **31(2)**: 1481-1487.

Şimşek, B., Ultav, G., Korucu, H. and Yartaşı, A., 2018. Improvement of the graphene oxide dispersion properties with the use of TOPSIS based Taguchi application. Periodica Polytechnica Chemical Engineering, **62(3)**: 323-335  
<https://doi.org/10.3311/PPch.11412>

Surekha, G., Krishnaiah, K. V., Ravi, N., & Suvarna, R. P. (2020, March). FTIR, Raman and XRD analysis of graphene oxide films prepared by modified Hummers method. In Journal of Physics: Conference Series 1495(1):012012  
<https://doi.org/10.1088/1742-6596/1495/1/012012>

Zhang, Q., Yang, Y., Fan, H., Feng, L., Wen, G., & Qin, L. C. (2022). Synthesis of graphene oxide using boric acid in hummers method. Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects, **652 (2022)**: 129802  
<https://doi.org/10.1016/j.colsurfa.2022.129802>