

T.C.  
SAKARYA ÜNİVERSİTESİ  
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

**DÖKÜM KUMU VE ATIK DÖKÜM KUMUNDAN  
SİLİKA ESASLI AEROJEL ÜRETİMİ VE  
KARAKTERİZASYONU**

**YÜKSEK LİSANS TEZİ**

**Ahmet Emre ÇİMEN**

**Enstitü Anabilim Dalı** : **METALURJİ VE MALZEME  
MÜHENDİSLİĞİ**  
**Tez Danışmanı** : **Prof. Dr. Nil TOPLAN**

**Şubat 2021**

## **BEYAN**

Tez içindeki tüm verilerin akademik kurallar çerçevesinde tarafımdan elde edildiğini, görsel ve yazılı tüm bilgi ve sonuçların akademik ve etik kurallara uygun şekilde sunulduğunu, kullanılan verilerde herhangi bir tahrifat yapılmadığını, başkalarının eserlerinden yararlanılması durumunda bilimsel normlara uygun olarak atıfta bulunulduğunu, tezde yer alan verilerin bu üniversite veya başka bir üniversitede herhangi bir tez çalışmasında kullanılmadığını beyan ederim.

Ahmet Emre ÇİMEN

06.01.2021

## **TEŐEKKÜR**

Yüksek lisans eğitimim ve tez çalışmam sırasında değerli yardımlarını ve fikirlerini esirgemeyen danışman hocam sayın Prof. Dr. Nil TOPLAN ve Prof. Dr. Hüseyin Özkan TOPLAN hocama, bu süreç boyunca sürekli yanımda olup manevi destek veren aileme teşekkür etmeyi borç bilirim.

# İÇİNDEKİLER

|   |    |
|---|----|
| TEŞEKKÜR.....   | i  |
| İÇİNDEKİLER .....   | ii |
| SİMGELER VE KISALTMALAR LİSTESİ.....                        | v  |
| ŞEKİLLER LİSTESİ .....                                      | vi |
| TABLolar LİSTESİ .....                                      | ix |
| ÖZET.....   | x  |
| SUMMARY .....   | xi |
| BÖLÜM 1.  |    |
| GİRİŞ .....   | 1  |
| BÖLÜM 2.  |    |
| AEROJELLER.....   | 3  |
| 2.1. Aerojel Tanımı ve Aerojellerin Tarihçesi.....          | 3  |
| 2.2. Aerojel Çeşitleri.....                                 | 4  |
| 2.2.1. Silika aerojel.....                                  | 4  |
| 2.2.2. Karbon aerojeller .....                              | 5  |
| 2.2.3. Alümina aerojeller .....                             | 5  |
| 2.2.4. Diğer aerojeller .....                               | 6  |
| 2.3. Silika Esaslı Aerojel Sentezi ve Sol-Jel Prosesi ..... | 6  |
| 2.3.1. Silika aerojellerin özellikleri .....                | 6  |
| 2.3.2. Silika aerojel sentezi ve sol-jel yöntemi.....       | 7  |
| 2.3.2.1. Jelin hazırlanması .....                           | 8  |
| 2.3.2.2. Jelin Kurutulması.....                             | 9  |

|   |    |
|---|----|
| BÖLÜM 3.  |    |
| LİTERATÜR ARAŞTIRMASI .....                       | 11 |
| <br>  |    |
| BÖLÜM 4.  |    |
| DENEYSEL ÇALIŞMALAR .....                         | 18 |
| 4.1. Amaç .....                                   | 18 |
| 4.2. Deneyin Yapılışı ve Akış şeması.....         | 18 |
| 4.2.1. Başlangıç malzemeleri.....                 | 18 |
| 4.2.2. Deneyin yapılışı.....                      | 20 |
| 4.3. Silika Esaslı Aerojel Karakterizasyonu ..... | 28 |
| 4.3.1. SEM analizi .....                          | 28 |
| 4.3.2. FESEM analizi.....                         | 29 |
| 4.3.3. FTIR analizi.....                          | 29 |
| 4.3.4. Termal analizi .....                       | 30 |
| 4.3.5. Faz analizi.....                           | 30 |
| 4.3.6. Bet analizi.....                           | 31 |
| <br>  |    |
| BÖLÜM 5.  |    |
| DENEYSEL SONUÇLAR VE İRDELEME .....               | 32 |
| 5.1. Giriş .....                                  | 32 |
| 5.2. Mikroyapı Analizi.....                       | 32 |
| 5.3. FTIR Analizi .....                           | 61 |
| 5.4. Termal Analiz.....                           | 68 |
| 5.5. Faz Analizi .....                            | 72 |
| 5.6. BET Analizi .....                            | 75 |
| <br>  |    |
| BÖLÜM 6.  |    |
| GENEL SONUÇLAR VE ÖNERİLER .....                  | 79 |
| 6.1. Genel Sonuçlar.....                          | 79 |
| 6.2. Öneriler .....                               | 80 |

|                |    |
|----------------|----|
| KAYNAKLAR..... | 81 |
| ÖZGEÇMİŞ ..... | 86 |

## SİMGELER VE KISALTMALAR LİSTESİ

|       |   |
|-------|---|
| ADK   | : Atık Döküm Kumu                             |
| BET   | : Brunauer Emmet ve Teller Analizi            |
| DK    | : Döküm Kumu                                  |
| DTA   | : Diferansiyel Termal Analiz                  |
| EDS   | : Enerji dağılımlı X-ışınları analizi         |
| FESEM | : Taramalı Elektron Mikroskobu                |
| FTIR  | : Fourier Dönüşümlü Kızılötesi Spektroskopisi |
| HMDZ  | : Hegzametildisilazan                         |
| MTMS  | : Metiltrimetoksisilan                        |
| SEM   | : Taramalı elektron mikroskobu                |
| TEOS  | : Tetraetoksilan                              |
| TG    | : Termogravimetri                             |
| TMCS  | : Trimetilklorosilan                          |
| TMOS  | : Tetrametoksisilan                           |
| XRD   | : X-ışınları Difraktometresi                  |

## ŞEKİLLER LİSTESİ

|   |    |
|---|----|
| Şekil 4.1. a. Döküm kumu, b. Atık döküm kumu ve c. NaOH'e ait makro görüntüler .....  | 19 |
| Şekil 4.2. Silika esaslı aerojel toz eldesi akış şeması.....  | 20 |
| Şekil 4.3. Döküm kumu (a) ve atık döküm kumu (b) karıştırma aşaması .....   | 22 |
| Şekil 4.4. a. Atık döküm kumu, b. Döküm kumu içeren karışımın filtre kağıdı ile süzülme işlemi. ....  | 22 |
| Şekil 4.5. a. Deney 4 ve b. Deney 5'de elde edilen jel görüntüleri.....   | 23 |
| Şekil 4.6. a. 60 °C'de 1 hafta yaşlandırma uygulanması için kullanılan Etüv ve b. numunelerin etüv içindeki görüntüleri.....                | 24 |
| Şekil 4.7. a) atık döküm, b) döküm kumu içeren aerojel yaşlandırılmadan önceki görüntüsü. ....  | 25 |
| Şekil 4.8. %80 ADK'na Etanol/saf su ilave edilmiş Aerojel.....  | 25 |
| Şekil 4.9. n-heptan ilavesi yapılmış atık döküm kumundan elde edilen silika esaslı aerojel .....  | 26 |
| Şekil 4.10. ADK'na a. n-heptan ilavesi yapıldıktan sonraki hali, b. kurutma aşaması sonrası elde edilen silika esaslı aerojel tozları ..... | 26 |
| Şekil 4.11. Döküm kumuna a. 1 mol KOH ve b. 1 mol NaOH bazları ilave edilerek hazırlanan çözeltiler.....                                    | 27 |
| Şekil 4.12. DK'na H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> ilavesi ile oluşturulan çözelti.....   | 27 |
| Şekil 5.1. (a) DK, (b) ADK başlangıç malzemesine ait 100X ve 5000X büyültmelerdeki SEM görüntüleri ve EDS analizleri.....                   | 34 |
| Şekil 5.2. (a) D1, (b) D2 kodlu numunelere ait 100X ve 10000X büyültmelerdeki SEM görüntüleri ve EDS analizleri.....                        | 35 |
| Şekil 5.3. (a) D3, (b) D4, (c)D5, (d) D6, kodlu numunelere ait 100x ve 5000x büyültmelerdeki SEM görüntüleri .....                          | 36 |



|   |    |
|---|----|
| Şekil 5.4. (e) D7, (f) D8, (g) D9 ve (h) D10 kodlu numunelere ait 100x ve 5000x büyültmelerdeki SEM görüntüleri ..... | 37 |
| Şekil 5.5. Döküm kumu başlangıç tozunun (a) 50.000X (b) 200.000X büyültmelerdeki FESEM görüntüleri. ....              | 39 |
| Şekil 5.6. Atık döküm kumu başlangıç tozunun (a) 50.000X (b) 200.000X büyültmelerdeki FESEM görüntüleri. ....         | 40 |
| Şekil 5.7. Döküm kumu başlangıç tozunun FESEM-EDS analizi .....   | 41 |
| Şekil 5.8. Atık döküm kumu başlangıç tozuna ait FESEM görüntüsü ve EDS analizi .....                                  | 41 |
| Şekil 5.9. D1 kodlu tozun (a) 50.000X (b) 200.000X büyültmelerdeki FESEM görüntüleri. ....                            | 42 |
| Şekil 5.10. D1 kodlu tozun FESEM-EDS analizi .....  | 43 |
| Şekil 5.11. D2 tozunun a) 50.000x (b) 200.000x büyültmelerdeki FESEM görüntüleri .....                                | 44 |
| Şekil 5.12. D2 kodlu numunenin FESEM-EDS analizi .....  | 45 |
| Şekil 5.13. D4 tozunun a) 50.000x (b) 200.000x büyültmelerdeki FESEM görüntüleri .....                                | 46 |
| Şekil 5.14. D4 tozunun FESEM-EDS analizi .....  | 47 |
| Şekil 5.15. D5 tozunun a) 50.000x (b) 200.000x büyültmelerdeki FESEM görüntüleri .....                                | 48 |
| Şekil 5.16. D5 kodlu tozun FESEM-EDS analizi .....  | 49 |
| Şekil 5.17. D6 kodlu tozun a) 50.000x (b) 200.000x büyültmelerdeki FESEM görüntüleri .....                            | 50 |
| Şekil 5.18. D6 kodlu tozun FESEM-EDS analizi .....  | 51 |
| Şekil 5.19. D7 kodlu tozun (a) 50.000x (b)200.000x büyültmelerdeki FESEM görüntüleri .....                            | 52 |
| Şekil 5.20. D7 kodlu tozun FESEM-EDS analizi .....  | 53 |
| Şekil 5.21. D8 kodlu tozun a) 50.000x (b) 200.000x büyültmelerdeki FESEM görüntüleri .....                            | 54 |
| Şekil 5.22. D8 kodlu tozun FESEM-EDS analizi .....  | 55 |
| Şekil 5.23. D9 tozunun a)50.000x (b)200.000x büyültmelerde ki FESEM görüntüleri .....                                 | 56 |

|   |    |
|---|----|
| Şekil 5.24. D9 kodlu tozun FESEM-EDS analizi .....  | 57 |
| Şekil 5.25. D10 kodlu tozun a) 50.000x (b) 200.000x büyültmelerdeki FESEM görüntüleri .....                         | 58 |
| Şekil 5.26. D10 kodlu tozun FESEM-EDS analizi .....   | 59 |
| Şekil 5.27. D11 tozunun a)50.000x (b)200.000x büyütmeleerde ki FESEM görüntüleri .....                              | 60 |
| Şekil 5.28. D11 tozunun FESEM-EDS analizi .....   | 61 |
| Şekil 5.29. D1 Kodlu numuneye ait FTIR Analizi.....   | 62 |
| Şekil 5.30. D2 kodlu numuneye ait FTIR analizi .....  | 63 |
| Şekil 5.31. D4 kodlu numuneye ait FTIR analizi .....  | 63 |
| Şekil 5.32. D5 kodlu numuneye ait FTIR analizi .....  | 64 |
| Şekil 5.33. D6 kodlu numuneye ait FTIR analizi .....  | 64 |
| Şekil 5.34. D7 kodlu numuneye ait FTIR analizi .....  | 65 |
| Şekil 5.35. D8 kodlu numuneye ait FTIR analizi .....  | 65 |
| Şekil 5.36. D9 Kodlu numuneye ait FTIR analizi.....   | 66 |
| Şekil 5.37. D1 kodlu numuneye ait a. TG grafiği, b. DTA grafiği.....  | 68 |
| Şekil 5.38. D2 kodlu numuneye ait a. TG grafiği, b. DTA grafiği.....  | 68 |
| Şekil 5.39. D4 kodlu numuneye ait a. TG, b. DTA grafiği .....   | 69 |
| Şekil 5.40. D5 Kodlu numuneye ait a. TG, b. DTA grafiği.....  | 69 |
| Şekil 5.41. D6 Kodlu numuneye ait a. TG, b. DTA grafiği.....  | 70 |
| Şekil 5.42. D7 Kodlu numuneye ait a. TG, b. DTA grafiği.....  | 70 |
| Şekil 5.43. D8 Kodlu numuneye ait a. TG, b. DTA grafiği.....  | 71 |
| Şekil 5.44. D9 Kodlu numuneye ait a. TG, b. DTA grafiği.....  | 71 |
| Şekil 5.45. a. Döküm kumu ve b. Atık döküm kumu başlangıç malzemesine ait XRD analizi .....                         | 73 |
| Şekil 5.46. a) D1, (b)D2, (c)D3, (d)D4, (e)D5, (f)D6, (g)D7, (h) D8, (ı) D9 (i) D10 tozlarına ait XRD verileri..... | 74 |
| Şekil 5.47. D5 tozundan elde edilen silika aerojel tozuna ait izoterm eğrileri.....                                 | 76 |
| Şekil 5.48. BET yüzey alanı grafiği .....   | 77 |

## TABLolar LİSTESİ

|  |    |
|--|----|
| Tablo 2.1. Silika arojellerin genel özellikleri .....                  | 5  |
| Tablo 4.1. Döküm kumunun spektral analizi .....                        | 19 |
| Tablo 5.1. Numune Kodları ve Parametreler .....                        | 32 |
| Tablo 5.2. Silika arojel tozlarına ait FTIR dalga boyu değerleri ..... | 62 |
| Tablo 5.3. D5 kodlu toza ait BET analiz verileri .....                 | 76 |

## ÖZET

Anahtar Kelimeler: Silika aerojel, döküm kumu, atık döküm kumu

Bu çalışmada silika esaslı aerojel üretimi için ticari silika esaslı kimyasallar yerine, döküm sanayinde kum kalıba döküm yönteminde kullanılan döküm kumu (DK) ve atık döküm kumundan (ADK) sol-jel metodu ile atmosferik kurutma şartlarında silika esaslı aerojel tozu üretimi gerçekleştirilmiştir. Baz kaynağı olarak KOH (MERCK 56.11 g/mol) ve NaOH (MERCK 40 g/mol), asit kaynağı olarak HCl (ISOLAB %37) ve H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> (ISOLAB %95-97), sililasyon ajanları olarak Etanol (ISOLAB %99.9), TEOS (ALDRICH %99.0), N-Heptan (ISOLAB %99.0) kullanılmıştır. Atmosferik şartlarda kurutulmuş silika esaslı aerojel tozlarının FTIR, XRD, SEM, FESEM-EDS DTA/TG cihazları kullanılarak karakterizasyonları gerçekleştirilmiştir.

# **SILICA BASED AEROGEL PRODUCTION AND CHARACTERIZATION FROM CAST SAND AND WASTE CASTING SAND**

## **SUMMARY**

Keywords: Silica aerogel, casting sand, waste casting sand.

In this study, instead of the commercial silica-based chemicals required for the production of silica-based aerogel, silica-based aerogel powder was produced from casting sand (DK) and waste casting sand (ADK) used in the casting industry using the sol-gel method under atmospheric drying conditions. KOH (MERCK 56.11 g/mol) and NaOH (MERCK 40 g/mol) as base source, HCl (ISOLAB 37%) and H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> (ISOLAB 95-97%) as acid sources, Ethanol (ISOLAB 99.9%) as silylation agents, TEOS (ALDRICH 99.0%), N-Heptane (ISOLAB 99.0%) were used. The characterizations of the silica based aerogel powders dried under atmospheric conditions were carried out using FTIR, XRD, SEM, FESEM-EDS DTA / TG devices.

## BÖLÜM 1. GİRİŞ

Aerogeller içerisinde %99 oranında hava barındırması sebebiyle gözenekli ve çok hafif malzemelerdir. Yoğunlukları 0,001 ile 0,5 g/cm<sup>3</sup> aralığında değişkenlik göstermektedir. Çok hafif olmasından kaynaklı uçuşu düşünülen malzeme, içi hava doluyken yoğunluğunun tespit edildiği için ve yer çekimini yenememesi nedeni ile uçamamaktadır. İçinde barındırdığı gözenekler malzeme içerisinde bir ağ gibi kuşatmakta ve onlara termal iletkenlik katsayısının ve dielektrik sabitinin düşük olması gibi özellikler sağlamaktadır. Sahip olduğu gözenekli yapı ve nanoboyutta olan parçacıklardan oluşan özgün mikroyapıları nedeniyle oldukça fazla uygulama alanı için incelenmiş ve farklı metotlar geliştirilmiştir [1].

Aerogeller, yüzey alanı yüksek, yığın yoğunluğu düşük, yüksek çapraz bağlanma yapıları ve sürekli gözeneklilik gibi pek çok ilginç niteliklere sahip olan gözenekli malzemelerdir. Bilinen yalıtım malzemelerine kıyasla aerogeller üstün ve verimli olduğundan; direkt olarak oksijen kaynağından verilen ateşi bile yalıtılabilen malzeme türüdür [2].

Aerogel doğal hammadde ve yapay hammaddelerden elde edilebilir. Bilinen aerogel türleri silika aerogel, alümina aerogel, karbon aerogel ve diğer aerogeller (nanotüp, yarı iletken metal aerogeller ve polimer aerogeller) şeklindedir. Silika aerogeller çevre dostu oluşları ve doğal hammaddelerden üretildikleri için en yaygın kullanım alanına sahip aerogellerdir. Silika aerogeller, sensör malzemesi, adsorbant, yalıtım malzemesi, katalizör, mimari, uzay ve havacılık, inşaat uygulamalarında potansiyel madde olarak kullanılabilir [3].

Üretimlerinin ilk basamağı genellikle düşük sıcaklıkta sol-jel metodu ile gerçekleştirilmektedir. Kurutma tipine göre değişik özellikler sergilemektedir.

Genellikle aerojeller çok düşük yoğunluklu, amorf yapıda, geniş yüzey alanına sahip ve termodinamik açıdan yarı kararlı olan malzemelerdir [2].

Türkiye’de hızla yükselişte olan otomotiv sanayisi ve bununla bağlantılı olan otomotiv yan sanayi sektöründeki üretimlerin de artış göstermesi sebebiyle, metal döküm sektörü üretim miktarları da artmıştır. Bunun yanında, üretim sonucunda oluşan döküm kumu atığının miktarlarında da artışlar gözlemlenmiştir. 2010 yılında 300.000 ton civarında olan atık döküm kumları, 2015 yılına gelindiğinde 420.000 ton seviyelerine yükselerek, 5 yıl içerisinde hızlı bir yükseliş göstermiştir. Ortalama olarak 1 ton metal döküm üretimi ardından 0,35 ton döküm atığı oluştuğu ve bu atığın %65’ni atık döküm kumu oluşturduğu bilinmektedir [4,5]. 2006 yılında Bakış ve ark. yapmış oldukları çalışmada, atık döküm kumlarının %96.73 SiO<sub>2</sub>, %0.59 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, %0.21 Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ve az miktarda diğer bileşikleri içerdiğini ortaya koymuştur [6].

Atık döküm kumunun geri kazanımı konusu hakkında daha önceden yapılan çalışmalarda, Başar [7] geri kazanım ve bertaraf yöntemleri, Kılıç [5] hazır beton olarak kullanımı, Bakış [6] asfalt beton karışımlarında, Gürkan [8] katyonik boyarmaddelerin adsorbsiyon çalışmalarında, Güney [9] karayollarında altyapı malzemesi olarak kullanımı, Güney [10] yüksek dayanımlı betonda kullanımı, Solmaz [11] ise atık döküm kumunun geçirimsiz perde yapılarak tekrar kullanımı konusunda çalışmalar yürütmüşlerdir.

Silika esaslı aerogel üretimi için gerekli olan hammaddeler (doğal hammaddeler ve ticari silika kaynakları) yerine mevcut çalışmada sanayide kullanılan döküm kumları ve döküm kumu atıkları kullanılmıştır. Böylece sol-jel yöntemi ile çözeltiye alınan, yaşlandırılan ve atmosfer basıncında kurutma ile birçok üstün özelliklere sahip silika esaslı aerogel tozu üretimi mevcut çalışmada amaçlanmıştır. Silika kaynağı olarak döküm kumu ve atık döküm kumunun kullanıldığı çalışmada; sol-jel metodu ile üretilen silika esaslı aerogel tozlarının mikroyapısı, faz yapısı, oluşan bağlar ve reaksiyon sıcaklıkları SEM/FESEM-EDS, XRD, FTIR ve DTA/TG analizleri ile belirlenmiştir.

## **BÖLÜM 2. AEROJELLER**

### **2.1. Aerojel Tanımı ve Aerojellerin Tarihçesi**

Aerojeller içerisinde %99 oranında hava barındırması sebebiyle gözenekli ve çok hafif malzemelerdir. Yoğunlukları 0,001 ile 0,5 g/cm<sup>3</sup> aralığında değişkenlik göstermektedir [1].

Aerojeller, yüksek yüzey alanı, düşük yığın yoğunluğu, yüksek çapraz bağlanma yapıları ve sürekli gözeneklilik gibi birçok ilginç özelliğe sahip gözenekli malzemelerdir. Aerojeller diğer yalıtım malzemelerinden çok daha üstün ve verimli özelliklere sahip olup; direkt olarak oksijen kaynağından yansıyan ateşi bile yalıtılabilen bir malzeme türüdür [1]. Sahip olduğu gözenekli yapısı ve nanometre boyutundaki parçacıklardan oluşan özgün mikroyapıları sebebiyle oldukça fazla uygulama alanları için incelenmiş ve üretim metodları geliştirilmiştir [2].

Üretimlerinin ilk basamağı genellikle düşük sıcaklıkta sol-jel metodu ile gerçekleştirilmektedir. Kurutma tipine göre değişik özellikler sergilemektedir. Genellikle aerojeller çok düşük yoğunluklu, amorf yapıda, geniş yüzey alanına sahip ve termodinamik açıdan yarı kararlı olan malzemelerdir [2].

1932 yılında S. Kistler tarafından aerojel kavramı jel içerisindeki sıvının büzülme olmaksızın gaz ile yer değiştirdiği malzemeler olarak ortaya çıkarılmıştır. Duman benzeri görüntü oluşturdıkları için donmuş duman olarak da adlandırılırlar. İlk olarak 1932 yılının başlarında silika jeller esas alınarak Steven Kistler tarafından sentezlenmiştir [1].



Kistlerden önceki dönemlerde jellere buharlaştırma ile kurutma uygulanırken Kistler süper kritik kurutma yöntemiyle jeli kurutma işlemini gerçekleştirmiştir. Silika aerojellerin yapısında herhangi bir bozulma olmadan elde edilmesi daha kolay olduğu için Kistler daha çok bu konuya yoğunlaşmış aynı zamanda zayıf mekanik özellik gösteren alümina aerojeller de üretmiştir [1]. Bu çalışmaların yanısıra demir oksit, kalay oksit, selüloz, nitro selüloz, nikel tartarat, jelatin ve yumurta akı içeren aerojellerle ilgili de çalışmalar yapmıştır.

Kistler Pasifik Üniversitesindeki çalışmalarının ardından Monsanto'dan gelen iş teklifini kabul etmiş ve yapmış olduğu mevcut çalışmalar ile aerojel Santocel adında ticarileştirilerek; ticari anlamda elde edilen bu aerojeller öncelikli olarak kozmetik ürünlerinde ve diş macunlarında kullanılmıştır [12].

1970 yılında Fransa'da bir üniversitedeki araştırma konusu olan gözenekli yapılarda roket yakıtı ya da hidrojen depolanması konusu Aerojellere olan ilgiyi yeniden arttırmıştır [13]. 1980 yılında üretimlerinin gerçekleşmesinden sonra 1990 yılında karbon aerojel eldesi gerçekleşmiştir [14]. Kompozit aerojellerin üretiminin gerçekleşmesinden itibaren sonra aerojelle ilgili çalışmalar artmıştır. Günümüzde aerojeller silika, karbon, alümina, kompozit aerojeller gibi türleri vardır [1].

## **2.2. Aerojel Çeşitleri**

### **2.2.1. Silika aerojel**

Silika aerojeller ilk olarak 1930'lu yıllarda üretilmiş ancak beklenen gelişimi gösterememiştir. Son yıllarda başlangıç maddeleri ve parametreler değiştirilerek yapılan deney ve çalışmalarda dikkatleri üzerine çekmiştir. Silika Aerojeller, sensör malzemesi, adsorbant, yalıtım malzemesi, katalizör, mimari, uzay ve havacılık, inşaat uygulamalarında potansiyel madde olarak kullanılabilir [6].

Hücre yapısının açık olması, düşük yoğunluğa sahip olması, geniş yüzey alanı ve yüksek termal yalıtım özelliği, yüksek gözeneklilik, kırılma özelliği ve dielektrik

sabitinin çok düşük olması gibi üstün nitelikleri sebebiyle tercih edilir. Tablo 2.1.'de silika esaslı aerojellerin genel özellikleri verilmiştir.

Tablo 2.1. Silika aerojellerin genel özellikleri [13].

| Özellik                 | Değeri                     |
|-------------------------|----------------------------|
| Porozite                | %80-99.8                   |
| Porozite çapı           | 20-150 nm                  |
| Termal iletkenlik       | 0,017-0,021 W/m.K          |
| Dielektrik sabiti       | 1,1                        |
| Yoğunluk                | 0,003 g/cm <sup>3</sup>    |
| Yüzey Alanı             | 500-1000 m <sup>2</sup> /g |
| Primer Parçacık Çapı    | 2-5 nm                     |
| Kırılma İndeksi         | 1-1,05                     |
| Isıl genleşme Katsayısı | 2-4.10 <sup>-6</sup> 1/K   |

### 2.2.2. Karbon aerojeller

Karbon aerojeller, kovalent bağlı, nanometre boyutunda malzemelerdir. Ağ yapısı üç boyutlu simetrik ve asimetric olabilir. Yüksek gözeneklilik, yüksek yüzey alanı sahip olduğu özelliklerindedir. Kontrol edilebilir porozite özelliği sayesinde toz, katı hal gibi değişik formlarda üretilebilirler. Karbon aerojeller inert, çevre dostu, zehirsiz ve gözenek yapısı kontrolü basit olduğu için son yıllarda bilim insanlarının araştırma konusu haline gelmiştir.

Karbon aerojeller, organik aerojellerin pirolizi yöntemi ile elde edilirler. Resorsinolformaldehit (RF) aerojeller genellikle karbon aerjel üretiminde kullanılan en bilindik metottur. RF metodu ile organik aerjel sentezi sırasında, pH, tepkime zamanı, sıcaklık ve derişim basitçe kontrol edilebilir.

Yüksek absorblama özelliğinden dolayı reaktif boya atık işlemede kullanılır. Ayrıca çevre dostu olduklarından organik kirleticilerin uzaklaştırılması, atık suların arındırılması, iyon giderme ve çeşitli yalıtım alanlarında kullanılabilir [15,16].

### 2.2.3. Alümina aerojeller

Alümina aerojellerin yüzey alanın yüksek olması, hammaddesinin bol olması ve sahip olduğu fiziksel özelliklerden dolayı bu alanda çalışmalar yapılmıştır. Başlangıç

malzemesi olan metal elementleri sol jel yöntemi ile kullanılıp proses süresi uzatılarak metal oksit aerogeller üretilir. Hidroliz reaksiyonu ile üretilmiş alümina aerogeller son yıllarda sıklıkla kullanılmaya başlanmıştır. Hidroliz reaksiyonunda kullanılan metal türü ve hidroksil, metalin merkezinde bir araya gelerek Al-OH yapısını oluşturur. Süreç ilerledikçe metalin merkezinde hidroksillerin arttığı gözlemlenir. Proses işlemlerinin sonucunda metal- oksit-metal yapısı (Al-O-Al) ortaya çıkmaktadır [17]. Metal Alkoksitlerin kurutulması sonucunda metal (alümina) aerogel elde edilirler [18]. Üretim aşamasında kullanılan tri-sec-butoksit yüksek vizkoziteye sahiptir. Tri-sec-butoksit malzemesinin atmosfer içinde barınan nem ile hidroliz tepkimelerini oluşturmasını engellemek amacı ile şırınga ile havayı ve bir takım alkoksitlerin arındırılması yapılmaktadır [51]. Koçer, alümina esaslı aerogel tozu üretimi çalışmasında alümina aerogellerin silika aerogellere göre daha iyi termal yalıtım sağladığını belirtmiştir [19].

#### **2.2.4. Diğer aerogeller**

Karbon aerogeller, silika aerogeller ve alümina aerogeller dışında nanotüp, yarı iletken metal aerogeller ve polimer aerogeller de diğer aerogel türlerinden sayılabilmektedir. Bunlara ilaveten, bakır katkılı metal aerogeller ilk 2002 yılında üretilmiş olup; saydamlık, geçirgenlik ve fotoluminesans özelliklerinin getirdiği avantajlarla eşsiz bir yapıya sahip olmuştur. Elastik duman olarak tanımlanan madde ise, aerogel ve nanotüpün bir araya gelerek verimli yapının oluşması sağlanmış olmasına rağmen çıkan ürünün mezo gözenekli ve tek parça olamaması sebebi ile aerogel olarak tanımlanamamıştır [20].

### **2.3. Silika Esaslı Aerogel Sentezi ve Sol-Jel Prosesi**

#### **2.3.1. Silika aerogellerin özellikleri**

Silika aerogeller, yüksek gözenekli, geniş iç yüzey alanına sahip ve düşük ısı iletkenliği gibi nitelikleri ile yüksek performanslı bir malzemedir. Benzersiz nitelikleri ile çok

sayıda alanda uygulama potansiyeli bulunmaktadır. Ek olarak boya ve vernikler için dolgu maddesi olarak kullanılabilir [15].

Mikro, mezo, makro gözenek türlerinin üçünü de içeren silika arojellerin daha çok mezo gözenek yapısında olduğu görülmekte olup; %99 üzerinde gözeneklilik içerirler. Arojellerin hacim büzülmesi hidrojel ve arojel hacmi bilinirse hesaplaması yapılabilmektedir. Yığın yoğunluğu ve iskelet yoğunluğu olarak kullanılan iki yoğunluk terimi ile silika arojellerin karakterizasyonu ifade edilebilir [13].

Silika arojeller şeffaf bir yapıya sahip olması gözenekli bir madde için alışlagelmiş bir özellik değildir. Nanometrik gözenek boyutu ve yüksek gözeneklilik özelliği ile yalıtım malzemesi olarak tercih edilmektedir.

Silika arojeller hem hidrofobik hem de hidrofilik olarak endüstrilerde üretilebilmektedir. Hidrofilik özelliği taşıyabilmesi için arojelin yapısında silanol (Si-OH) bulunmalıdır. Bunun sebebi silanol isimli maddenin suyu adsorplama özelliğidir. Hidrofobik veya hidrofilik yapı taşımasındaki temel ayırım yüksek sıcaklıklarda kritik kurutma veya düşük sıcaklıklarda kurutma işlemleri sebebiyledir. Eğer arojellere yüksek sıcaklıklarda süper kritik kurutma işlemi uygulanırsa hidrofobik nitelik taşıyacaktır. Buna karşılık arojellere CO<sub>2</sub> ile düşük sıcaklıklarda kurutma işlemi gerçekleştirilir ise hidrofilik özellik kazanacaktır.

Hidrofobik nitelik arttırılmak istenilirse, kurutma sırasında veya jelleşme aşamasında yüzey modifikasyonu için ajan eklenilebilir. Diğer yöntem ise kurutma işleminden sonra ısı olarak yüzey modifikasyonu yapmaktır.

### **2.3.2. Silika arojel sentezi ve sol-jel yöntemi**

Doğal veya atık hammaddelerden sol-jel yöntemi ile silika arojel sentezi gerçekleştirir. Sol-jel sentezi reaksiyona girecek malzemelerin hidrolizi ve kondenzasyonuna dayanır. Proses sol çözeltisi oluşturulup ardından çözeltinin jelleşmesi ve son olarak da kurutulması esasına dayanır [21,22].

Katıda oluşan 1-100 nm çaplı katı partiküllere kolloid, kolloidlerin sıvı içerisinde dispersiyonlarına sol denir [23]. Jel ise sol partiküllerinin kondenzasyonu sonucunda oluşan iki fazlı malzemelerdir. Kullanılan çözücüye göre, su kullanımında akuajel, alkol çözücü kullanımında alkojel olarak isimlendirilir. Yaşlandırma işlemi sonrasında çözücülerin uzaklaştırılması amacıyla kurutma işlemi yapılır.

Sol jel yöntemi aşamaları aşağıdaki gibidir:

- Jelin Hazırlanması
- Jelin Yaşlandırılması
- Jelin Kurutulması

### **2.3.2.1. Jelin hazırlanması**

Asit veya baz katalizör altında silika başlatıcı malzemesinin hidrolizi ve kondenzasyonu reaksiyonu sonucunda sol jeller oluşur. Oldukça gözenekli silis matrisine sahiptirler. Kondenzasyon ve hidroliz reaksiyonları sonucunda gözenekler çözücü ile doludur. Karışım yapısal çökmeye uğramadan ıslak jelden çıkartılabilirse aerojel oluşabilir [24].

TEOS (tetraethoxysilane), MTMS (methyltrimethoxysilane), SS (sodyum silikat), TMOS (tetrametilortosilikat), TriEOS (triethoxysilane) silika esaslı aerojel üretiminde yaygın olarak kullanılan başlatıcı maddelerdir [25]. Asit-baz ikilisi, asit veya baz katalizör eşliğinde jelleşme oluşur. Yaygın kullanılan katalizörler hidroklorik asit, silisik asit, amonyum hidroksit, amonyum florür ve ogzalik asittir. Silika başlatıcı madde ve katalizör önceden belirlenmiş koşullar doğrultusunda karıştırılıp bekletilmesi ile jel hazırlanır.

### **2.3.2.2. Jelin yaşlandırılması**

Malzeme oluşumunda jelleşme çok önemlidir. Jelleşme sonrası reaksiyona girmeyen ve jelin içerisinde bulunan alkoksitlerin yüzeyden arındırılması ve bağ yapısını

güçlendirmek için yaşlandırma işlemi yapılır [5,13]. Yaşlandırma işlemi basit olarak nitelendirilirse jel içine alkol/su karışımının emdirilmesi ve bileşimde oluşan değişiklikleri kapsar [22,26].

Yaşlandırma aşamasında silika esaslı aerogelin katılık ve mukavemeti artmakta ve bağ yapısı kuvvetlenmektedir. Kurutma aşamasında oluşan büzölmeleri engellemek için yaşlanma süresi kısa tutulmalıdır [15].

### **2.3.2.2. Jelin Kurutulması**

Jelin kurutulmasındaki amaç jelin iskelet yapısına zarar vermeden ve aynı zamanda büzölme miktarını en aza indirmek için çözücünün uzaklaştırılmasıdır. Bu amaçla 3 tip kurutma yöntemi vardır [25,27].

- Dondurarak Kurutma
- Süper Kritik Kurutma
- Atmosferik Şartlarda Kurutma

Dondurarak Kurutma işlemi -50 ile -85 °C sıcaklık aralığında dondurulan çözücü yüksek vakum altında bekletilmesi ile çözücünün uzaklaştırılması esasına dayanır. Kısa sürede gerçekleşebilmesi, ucuz olması ve süper kritik kurutmaya göre tehlikesinin düşük olması bu yöntemin en büyük avantajlarından [26,28,29]. Dondurarak kurutulan jeller buharlaşarak kurutulan jellere göre gözenek hacmi daha büyüktür [30].

Süper kritik kurutma işlemi gazlara uygulanan yüksek basınca rağmen sıvı hale geçemeyeceği kritik sıcaklık (Tc) olan süper kritik sıcaklığa ısıtılması ve çözücü- CO<sub>2</sub> yer değiştirmesi esasına dayanır. 50-100 atm basınç 300-600 °C sıcaklıklarda organik çözücülerde patlayıcılık ve yanıcılık gibi tehlikeler ortaya çıkabilmektedir [14, 28, 31]. Süper kritik kurutmada bu yanıcılık ve patlayıcılık gibi tehlikelerinin yanı sıra maliyeti de dezavantajlarından birisidir [14].

Atmosferik şartlarda kurutma işleminde atmosfer basıncından başka bir basınç kullanılmadan ortam şartlarında kurutma yapılarak yüzey modifikasyonu gerçekleştirilmiş arojeller elde edilir. Bu yöntem özellikle süper kritik kurutma yöntemine göre daha güvenli ve maliyeti daha az olduğu için son zamanlarda daha tercih edilebilir olmuştur [14, 26, 32, 33].

Bu çalışmada, DK ve ADK kullanılarak elde edilen jellere atmosferik şartlarda kurutma işlemi uygulanmış ve silika esaslı arojel tozları elde edilmiştir.

### **BÖLÜM 3. LİTERATÜR ARAŞTIRMASI**

Silika esaslı aerjel üretimi hakkında daha önceden yapılmış olan çalışmalara bakıldığı zaman, farklı başlangıç maddeleri, farklı katalizör, farklı kurutma ve farklı yüzey sililasyon ajanlarının denendiği gözlemlenebilir [34-40]. Değiştirilen her parametrelerin mikroyapı, gözenek boyut dağılımında farklılık gösterdiği saptanmıştır.

Bu bölümde önceki çalışmalardan elde edilen literatür bilgileri özetlenmiştir.

Getir, silika kaynağı olarak TMOS kullanılmış olduğu çalışmasında, sol haline getirmiş olduğu numuneleri, şırınga içinde jelleştirilmiştir ve yaşlandırma ile kurutma basamağında ise numuneler şırıngadan çıkartılmıştır. 550°C’de ısıl işlem uyguladıktan sonra 1 cm çapında, 4 cm boyunda silindirik monolitik (opak-şeffaf) yapı elde edilmiştir. Sol oluşturma aşamasında, asit katalizör olarak kullanılan asetik asitin farklı miktarlarında (2-4 ml) ve derişimlerinde (0,05-0,1 M) çalışmalar yapılmıştır. Yapılan çalışmada asit miktarları arttıkça yüzey alanının düştüğü gözlemlenmiştir. Yaşlandırma sırasında kullanılan amonyum hidroksit deęişiminin monolitik silika aerjelin yüzey alanına etkisinin de olduğu belirlenmiştir. Araştırılan diğer parametreler ise jelleşme, yaşlandırma ve kurutma sıcaklıklarıdır. Jelleşme sıcaklığı (30-60°C) ve yaşlandırma sıcaklığı (70-85°C) deęiştirildiğinde monolitik silika aerjel yüzey alanında ve ortalama gözenek çap deęerlerinde deęişim belirlenmiştir. Jelleşme ve yaşlandırma sıcaklıkları arttıkça monolitik silika aerjel yapısının daha şeffaf ve kırılğan olduğu gözlenmiştir. Kurutma sıcaklığı (40-100 °C) arttıkça yüzey alanının azaldığı belirlenmiştir. Deneysel çalışmalarda aynı şartlarda elde edilen yüzey alan deęerleri birbirine yakın çıkarak, deneylerin tekrarlanabilirliği gözlenmiştir. Son olarak farklı TMOS/Polietilenglikol (PEG) oranında çalışmalar yapılmıştır. TMOS/PEG oranı arttıkça yüzey alanında azalma gözlenmiştir. Üretilen numunelerin Fourier kızılötesi spektroskopisi (FTIR) analiziyle bağ yapıları, Termal gravimetrik



analiz (TGA) sonuçlarıyla termal dayanıklılığı araştırılmıştır. Taramalı elektron mikroskopu (SEM) analizleriyle de yapının monolitikliği ve gözenekliliği doğrulanmıştır [34].

Enes, silika kaynağı olarak TEOS kullanmış olduğu numunelerde, HCl katalizörünü sabit tutup, NH<sub>4</sub>OH, KOH, NaOH baz katalizörlerini kullanmıştır. En yüksek yüzey alanı HCl-KOH asit baz çifti olarak elde edildiğini saptamıştır. Yapılan diğer çalışmada ise sentezlenen silika aerojellere farklı oranlarda genişletilmiş grafit ilave edilerek kompozit silika aerogel üretimi gerçekleştirilmiştir. Sentezlenen silika aerojellere metilen mavisi adsorpsiyonunda; pH, başlangıç metilen mavisi derişimi, sıcaklık etkileri incelenmiştir. Deneysel sonuçlar; Langmuir, Freundlich ve Temkin adsorpsiyon izotermine uygulanmıştır. İzotermilerin Langmuire uyduğu görülmüştür. Farklı sıcaklıklarda elde edilen izoterm verileri termodinamik denklemlere uygulanmıştır ve  $\Delta H$ ,  $\Delta S$  ve  $\Delta G$  termodinamik parametreler sırasıyla; 25,4 kJ/mol, 78,3 J/mol K,  $\Delta G$  (30,40,50 °C) için sırasıyla -1,89; -0,37 ve -0,36 kJ/mol olarak belirlenmiştir [35].

Çok, yapmış olduğu çalışmada silika aerojelleri atmosferik kurutma yolu ile iki aşamalı bir sol-jel yöntemi ile sentezlemiştir. Kurutma sırasında büzülme derecesini kontrol edebilmek için farklı içeriklere sahip çeşitli silanlar (n-hekzan içerisinde % 6, % 10 veya % 20) kullanılarak ıslak jeller üzerinde iki aşamalı bir yüzey modifikasyonu gerçekleştirmiştir. Bu amaçla tek fonksiyonlu (TMCS) ve üç fonksiyonlu silanlar (MTMS, MTES ve MEMO) seçmiştir. Silile edici ajanların türünün ve miktarının, ortaya çıkan aerojellerin mikroyapısı, gözenek özellikleri ve hidrofobik yapısı üzerindeki etkisi FTIR, SEM ve BET analizleri ve temas açısı ölçümleri yapılarak belirlemiştir. Karakterizasyon sonrası elde edilen verileri göre; MTES'in klasik olarak kullanılan TMCS'ye kıyasla rekabetçi bir performans sergilemekte olduğu; bunun sebebinin ise MTES'in %10'u ile modifiye edilmiş silika aerojellerin, çok yüksek özgül yüzey alanına (BET = 964 m<sup>2</sup>/g) sahip, iyi geliştirilmiş bir mezogözenekli yapıda elde edildiği ve yüksek hidrofobikliğe ( $\Theta = 137^\circ$ ) sahip olması olarak belirtilmektedir. Öte yandan, organik olarak işlevselleştirilmiş silan MEMO ve MTMS de düşük içeriklerde (%6 ve %10'da) kayda değer sonuçlar (oldukça gelişmiş gözenekli ağ ve yüksek derecede hidrofobiklik ile monolitik yapı sergilediğini belirtmiştir. Sert S., elde ettiği

bu sonuçların, yüzey modifikasyonu sırasında üç işlevli silanların eklenmesine yönelik gelecekteki girişimleri teşvik edebileceğini çok önemli olarak görmüştür. Bunun sebebi olarak bu silanlar yüksek sililasyon performansı sağlar ve ortam koşullarında iyi nitelikli silika aerojel sentezine neden olduğunu ileri sürmüştür. [36]

Wu ve ark. sol-jel prosesini kullanarak yapmış olduğu çalışmada, metiltrimetoksisilan (MTMS) ve trimetilklorosilan (TMCS) / etanol (EtOH) / n-Hekzan sililasyon ajanlarını kullanarak iki aşamalı yüzey modifikasyonu ile atmosferik basınçta kurutma yöntemi ile silika aerojel sentezi gerçekleştirmiştir. TEOS, plastik bir beher içinde yardımcı öncü MTMS ve EtOH ile iyice karıştırılmış ve ardından deiyonize su ve HCl, pH = 2.5'i ayarlamak için ilave edilmiş ve oda sıcaklığında 8 saat hidroliz uygulamıştır. Amonyak çözeltisi ve kalan EtOH, yoğunlaşma reaksiyonunu desteklemek için pH = 8'i ayarlamak üzere ilave edilmiş ve 30 dk sonra ıslak jel elde edilmiştir. Ağ yapısını güçlendirmek amacı ile 60 °C'de 5 saat yaşlandırılmış ve yaşlandırmadan sonra, yüzeyi yeterince modifiye etmek ve esas olarak H<sub>2</sub>O / EtOH solüsyonları içeren gözenek suyunu boşaltmak için 2 gün boyunca TMCS / EtOH / n-Hekzan solüsyonlarına daldırılmıştır. Jeller daha sonra 10 dakika boyunca n-Hekzan içine daldırılmış ve reaksiyona girmemiş ajanları ve reaksiyon ürünlerini çıkarmak için iyice yıkanmıştır. Çözücünün çıkarılmasından sonra, yüzeyi modifiye edilmiş silika jeller, silika jellerdeki gözenek sıvısının buharlaşmasını kontrol etmek için 55 ° C'de bir fırında kurutma sıcaklığının kademeli olarak artırılmasıyla n-Heksan bakımından zengin bir atmosferde 55 °C'de 3 saat, 80 °C'de 4 saat ve 130 °C'de 2 saat kurutulmuştur. Son olarak, silika arojeller bir fırın ile soğutarak elde edilmiştir. Silika arojellerin spesifik yüzey alanı, gözenek hacimleri ve boyut dağılımları, bir Tristar 3000 analizörü ile 77 K'da ölçülen Brunauer – Emmitt – Teller (BET) analizleri ile mikroyapısı ve morfolojisi SEM ile kimyasal bağ türleri FTIR ile temas açısı ölçümleri, arojellerin hidrofobiklik derecesini ölçmek için bir temas açısı cihazı (JC2000A) ile ağırlık kaybı davranışını incelemek için havada termogravimetrik ve diferansiyel termal analiz (TG-DTA) ölçümleri yapılmıştır. Elde edilen silika arojeller gözeneklilik %87.7-92.3, yoğunluk 0.27-0.17 g/cm<sup>-3</sup> ve spesifik yüzey alanı 852–1005 m<sup>2</sup>/g<sup>-1</sup> aralığında gözeneklilik, yoğunluk ve spesifik yüzey alanları ile üç boyutlu nano-gözenekli yapı sergilemiştir. Silis ağının yüzeyinde Si – CH<sub>3</sub> fonksiyonel gruplarının varlığı, 156°

kadar yüksek temas açısı ile hidrofobik özellik ile sonuçlanmıştır. Yüzey modifikasyonu sırasında gözenek suyunun yer değiştirmesinin teşvik edilmesi, silika aerojellerin omurgasını güçlendirerek iyi termal ve hidrofobik stabilitelere yol açmıştır. Olası yüzey modifikasyonu mekanizması ve iki aşamalı bir modifikasyonla solvent değişimi önerilmektedir [37].

Chen ve arkadaşları yapı malzemelerini işlevselleştirmek için silika aerjel bazlı hava temizleme kaplamasının performansını araştırmıştır. Hava temizleme işlevi, fotokatalizör silika aerjeller gibi geniş yüzey alanına sahip bir silika ağı üzerinde desteklendiğinde artan bir fotokatalitik aktiviteden gelir. Çalışmada silika aerjel ilk olarak olivinden düşük enerji tüketimi yöntemi ile ortam basıncında kurutma yoluyla sentezlenmiş ve fotokatalitik anataz kristallerinin yüklenmesine destek olarak uygulanmıştır. Olivin silikadan hazırlanan sodyum silikat su Amberlyst 15 reçinesinden geçirilerek pH 2.0-3.0 civarında silisik asit elde edilip ardından silis hidrojelini oluşturmak için 0.5 M amonyum hidroksit eklenerek silisik asidin pH'ı 4.5-6.0'a ayarlanmıştır. Silika hidrojel ağını güçlendirmek için 36 ve 48 saatlik yaşlandırma süreleri seçilmiştir. Silika hidrojelini gözenek sıvısının yüzeyinde oluşan gerilimi düşürmek amacıyla düşük yüzey gerilimli etanol ve n-heptan kullanılmıştır. Yapıdaki suyu uzaklaştırmak için iki gün boyunca etanol ve n-heptan kullanılmıştır. Yüzey modifikasyonunu sağlamak ve polar olmayan silil grupları ile yer değiştirmek için TMCS ve n-heptan kullanılmıştır. Ardından atmosferik şartlarda kurutma işlemi yapılmıştır. Silika aerjel, silika yüzeyindeki  $-CH_3$  gruplarını çıkarmak için önce 500 °C'de 4 saat boyunca kalsine edilmiştir. Daha sonra 1 g silika aerjel tartılıp sonrasında bir havan ile öğütüldü ardından da silika aerjel, 500 ml etanol mutlak solüsyon içinde dağıtılarak ve silika ile oluşan titanya arasında daha yavaş bir hidroliz reaksiyonu ve zıt yüke sahip olmak için az miktarda sülfürik asit eklenerek pH 3-4'e ayarlanmıştır. Daha sonra, nemli hava ile teması önlemek amacıyla çözeltiye hızlı bir şekilde 4.16 g TP (Titanyum izopropoksit) ilave edilmiş ve dispersiyon ortamının su içeriği hacimce %2.5'e ulaşıncaya kadar bir şırınga pompası kullanılarak 12 saat boyunca yavaşça su ilavesi yapılmıştır. Kompozitin sentezinden sonra, elde edilen numune süzülmuş ve 2 kez 100 ml etanol ile ve 4 kez 100 ml saf su ile yıkanmıştır. Son olarak ise numune gece boyunca 105 ° C'de kurutulmuş ve ardından 3 saat 300 °C'de kalsine edilmiştir.

Silika aerogel-TiO<sub>2</sub> kompoziti, 100 x 200 x 1 mm boyutunda bir cam plaka üzerine kaplanmıştır. Spesifik olarak, 1 g silika aerogel-TiO<sub>2</sub> kompozit tozu, 30 mL damıtılmış su içinde dağıtılıp ardından süspansiyonun cam plaka üzerine kaplanması yapıp gece boyunca oda sıcaklığında kurutulmuştur. Kaplanmış cam levha, fotokatalitik test için kullanılmıştır. Silika aerogel titanya kompozitlerinin ortaya çıkan fotokatalitik özellikleri, karşılaştırma amaçlı ISO 22197-1 standardı kullanılarak UV ışığı altında NO'nun fotokatalitik dönüşümü test edilerek değerlendirilmiştir. Gözenek boyutu ve spesifik yüzey alanının analizi için BET, kimyasal bağ yapısı için FTIR, faz dağılımı için XRD analizleri uygulanmıştır. Spesifik yüzey alanı ve gözenek boyutu, titanya katkılmasından sonra önemli ölçüde azalmıştır. Silika aerogelde hazırlanan anatazın kristal boyutu yaklaşık 12 nm ve bu, modifiye edilmiş silika aerogelin ortalama gözenek boyutunun altındadır. Üretilen silika aerogelde, yüksek bir özgül yüzey alanı (694 m<sup>2</sup> / g) ve gözenek hacmi (2.99 cm<sup>3</sup> / g), düzgün bir gözenek boyutu dağılımı ve mezogözenekli yapı ile elde edilmiştir. Titanya kristalleri ile silika aerogel kaplamanın fotokatalitik aktivitesi %99.6 olması onun yapı malzemesi olarak umut verici bir fotokatalizör olduğunu göstermiştir [38].

Shewale ve ark. ortam basıncında kurutma yaptıkları silika aerogellerin hidrofobik ve fiziksel özellikleri üzerine sililasyon ajanları olan trimetilklorosilan (TMCS) ve heksametildisilazan (HMDZ) etkisini incelemiştir. Hidrojellerin hazırlanması için, 1.36 özgül ağırlığına sahip olan sodyum silikat öncüsünü (cam suyu, SiO<sub>2</sub>: Na<sub>2</sub>O = 3.3) distile edilmiş saf su ile seyrelme yapılarak 1.04 özgül ağırlığında sodyum silikat çözeltisi oluşturulmuştur. Hazırlanan sodyum silikat çözeltisine 3 mol asetik asit eklenip, çözelti hazırlanmıştır. 90 saniye karıştırma işleminin ardından sol, silindirik cam konektörlere aktarılıp ağzı alüminyum folyo ile kapatılmıştır. 50 °C'de 3 saat yaşlandırma işleminin ardından ıslak jel sodyumun kısmi uzaklaştırılması için yarım saat bekletilmiştir. Metanol ve hekzan ile çözücü değiştirme işlemi gerçekleştirmiştir. Ardından ıslak jeller sililasyon ajanı ve hekzan karışımı içerisine aktarılıp 24 saat boyunca yüzey modifikasyonu uygulanmıştır. Modifiye edilmiş jeller hekzan ile 2 defa 24 saat yıkama işlemine tabi tutulmuştur. Daha sonra jeller sırasıyla 50, 100, 150 ve 200 °C de 3 saat kurutma işlemine tabi tutularak hidrofobik silika aerogel elde etmişlerdir. Aerogel numunelerinin fiziksel ve hidrofobik özelliklerini incelemek için,

sililasyon ajanı /  $\text{Na}_2\text{SiO}_3$  molar oranı, toplam silile edici karışım hacmi 30 ml'de sabit tutularak 2.4 ila 5.6 arasında değiştirildi. Aerojeller yoğunluk, hacim küçülme yüzdesi, gözeneklilik, optik iletim yüzdesi için FTIR, SEM, TG-DTA ve temas açısı ölçümü ile karakterize edilmiştir. Yüzey modifiye edici ajan olarak TMCS kullanılarak üretilen aerojeller düşük yoğunluklu (0.04 g / cc), daha hidrofobik (1498) ve daha az şeffaf (%10) olduğu bulunmuştur. Sililasyon maddesi olarak HMDZ kullanılarak modifiye edilen aerojellerin daha yoğun (0.1 g /  $\text{cm}^3$ ), daha az hidrofobik (1438) ve oldukça şeffaf (%70) olduğu bulunmuştur. TMCS ile modifiye edilmiş silika aerojellerin termal stabilitesinin, HMDZ modifiye silika aerojellere (430 °C) kıyasla biraz daha fazla (450 °C) olduğu bulunmuştur. Bu nedenle, silika yüzeyinin uçlarını kapatan polar olmayan grupların aynı olduğu sonucuna varılabilir; bunların fiziksel özellikleri sililasyon maddesinin doğasına bağlı olarak geniş bir aralıkta değiştiği sonucuna varmıştır [39].

Saraç, yapmış olduğu çalışmada doğal silika kaynağı olan perlit ve kuvarstan atmosfer basıncında kurutma yöntemi ile silika aerojel sentezlemiştir. 30 gram perlit tozu, 500 ml beher içinde 300 ml 1 M NaOH çözeltisi ile karıştırılmıştır. Hazırlanan karışım, perlit tozunu NaOH solüsyonunda büyük miktarda çözmek için ısıtılmış bir karıştırıcıda 100 ° C'de 1.5 saat kaynatılmıştır. Ardından karışım filtre kağıdı kullanılarak süzümüştür. Süzme sonrası sodyum silikat çözeltisi, dinlendirildikten sonra silika aerojel hazırlamak için kullanılmıştır. Çözeltinin pH'ı hazırlanan 1M HCl asit çözeltisi ile nötralize edilerek 6-7'ye ayarlanmıştır. Hazırlanan jel, oda sıcaklığında 3 gün yaşlandırılma işleminin ardından yaşlanan jel süzümüştür ve çözeltiden ayrılmıştır. Jeldeki sodyum nitrat kalıntıları, su ile distile edilerek yıkanarak uzaklaştırılmış ve böylece Na oranı minimuma indirilmiştir. Silika jel 50 ° C'de 1 gün hacimce %20 Etanol /  $\text{H}_2\text{O}$  çözeltisine batırılarak yaşlandırma işlemine devam edilmiştir. Hacimce %70 Etanol / TEOS solüsyonu hazırlanmış ve jel bu solüsyonda 1 gün 60 ° C'de ıslatılmıştır. Jel, etanol / TEOS solüsyonunu çıkarmak için n heptan ile birkaç kez yıkanmıştır Aerojeller, 50 °C'de ve oda sıcaklığında 1 gün boyunca hacimce %70 Etanol / TEOS solüsyonunda yaşlandırılmıştır. Modifiye edilmiş jeller, havada kurutulmadan önce oda sıcaklığında heptan içinde 24 saat daha yaşlandırma uygulanmıştır. Son olarak silika aerojel, kısmen kapalı durumda 1 günde 50°, 75° ve 125°C'de kurutulmuştur. Elde edilen silika aerojel tozları, 1 gün boyunca oda

sıcaklığında dinlendirilip ve SEM, FESEM, XRD, FTIR ve DSC/TG cihazları ile analizleri yapılarak karakterizasyon yapılmıştır. FESEM analizi ile milyonlarca küçük pordan oluşan gözenekli süngerimsi yapılar ile üç boyutlu ve gözenekli ağ yapısı nedeniyle silika arojellerinin çok düşük yoğunluğa ve yüksek gözeneklilik değerlerine sahip olduğu; DTA analizi ile oksidasyon dehidrasyon, dekompozisyon, ekzotermik ve endotermik pikler gözlenmiştir. Silika arojel tozlarının TG eğrileri şunu göstermektedir; büyük ölçekte ağırlık kaybı, metil gruplarının termal ayrışması nedeniyle oluşur. FTIR analizi, Si-C piklerinin titreşimden, moleküllerin asimetric ve simetric bağlarından ve bağların hareketinden kaynaklanan güçlü ve belirgin Si-O-Si piklerinden, adsorpsiyondan kaynaklanan CH piklerinden ve fiziksel olarak adsorbe edilmiş sudan kaynaklanan OH adsorpsiyon piklerinden kaynaklandığını göstermiştir. Perlit ve kuvars esaslı silika arojeller,  $244 \text{ m}^2 / \text{g}$  ve  $384 \text{ m}^2 / \text{g}$  olarak yüksek BET yüzey alanları ve 16 nm ve 12 nm olarak ortalama gözenek boyutları göstermektedir. Mevcut işlem, etkili silika arojel tozlarının üretimi için çok uygundur. Doğal silika hammaddelerinden ortam basınçlı kurutma yöntemiyle arojel üretimi çok önemlidir ve birçok endüstriyel alan için faydalı olduğu sonucunu belirtmiştir [40].

## **BÖLÜM 4. DENEYSEL ÇALIŞMALAR**

### **4.1. Amaç**

Silika aerojel üretimi için gerekli olan ticari hammaddeler yerine kum kalıba döküm sektöründe kullanılan döküm kumlarının ve döküm kumu atıklarının silika esaslı aerojel üretiminde kullanılarak atmosfer basıncında kurutma ile birçok üstün özelliklere sahip silika esaslı aerojel tozu üretimi mevcut çalışmada amaçlanmıştır. Bu çalışmada, silika kaynağı olarak döküm kumu ve atık döküm kumunu kullanarak, sol-jel metodu ile silika esaslı aerojel tozu üretimi gerçekleştirilmiştir.

Otomotiv sanayinin Türkiye’de hızlı yükselişe geçmesi ve buna bağlı olarak otomotiv yan sanayicilerinin de üretimlerinin artması sebebiyle, metal döküm sektörü üretim miktarları da artmıştır. Üretim miktarındaki artış; sonrasında atık döküm kumu miktarlarında da artışa yol açmış olup; bu çalışmada ise halihazırda kum kalıba döküm yöntemi ile şekilli parça üretiminde kullanılan silika esaslı döküm kumu ve bu kumun şekillendirme amaçlı defalarca çeşitli ilaveler yapılarak kullanılması sonucu oluşan atık döküm kumları hammadde girdisi olarak kullanılarak sol-jel tekniği ile silika esaslı aerojel tozu üretimi yapılmıştır.

### **4.2. Deneyin Yapılışı ve Akış şeması**

#### **4.2.1. Başlangıç malzemeleri**

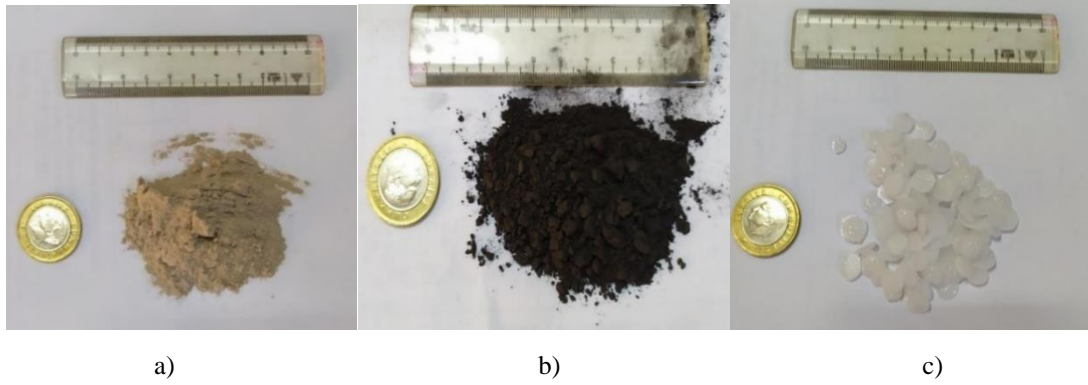
Baz kaynağı olarak KOH (merck kimya 56.11 g/mol), NaOH (MERCK 40 g/mol), silika kaynağı olarak döküm kumu, atık döküm kumu, silasyon Ajanları olarak n Heptan (ISOLAB %99.0), TEOS (ALDRICH %99.0, Etanol (ISOLAB %99.9), asit kaynağı olarak ise HCl (ISOLAB %37), H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> (ISOLAB %95-97) kullanılmıştır.

Dalođlu Döküm Makina San. ve Tic. Ltd. Őti. firmasından tedarik edilen kumun spektral analizi Tablo 4.1.'de belirtilmiŐtir. Üretim döngüsünde atık döküm kumuna ise tablodaki bileŐenlere ek olarak bentonit ve kömür tozu ilavesi yapılmıŐtır.

Tablo 4.1. Döküm kumunun spektral analizi

| Kimyasal BileŐim                       | Deđer |
|--|-------|
| % SiO <sub>2</sub>                     | 98,37 |
| % Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>       | 0,13  |
| % CaO+ MgO                             | 0,05  |
| % Na <sub>2</sub> O + K <sub>2</sub> O | 0,13  |
| % Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>       | 0,7   |
| % Kızdırma Kaybı                       | 0,2   |
| SinterleŐme Sıcaklıđı °C               | >1500 |
| % Kil                                  | 0,17  |

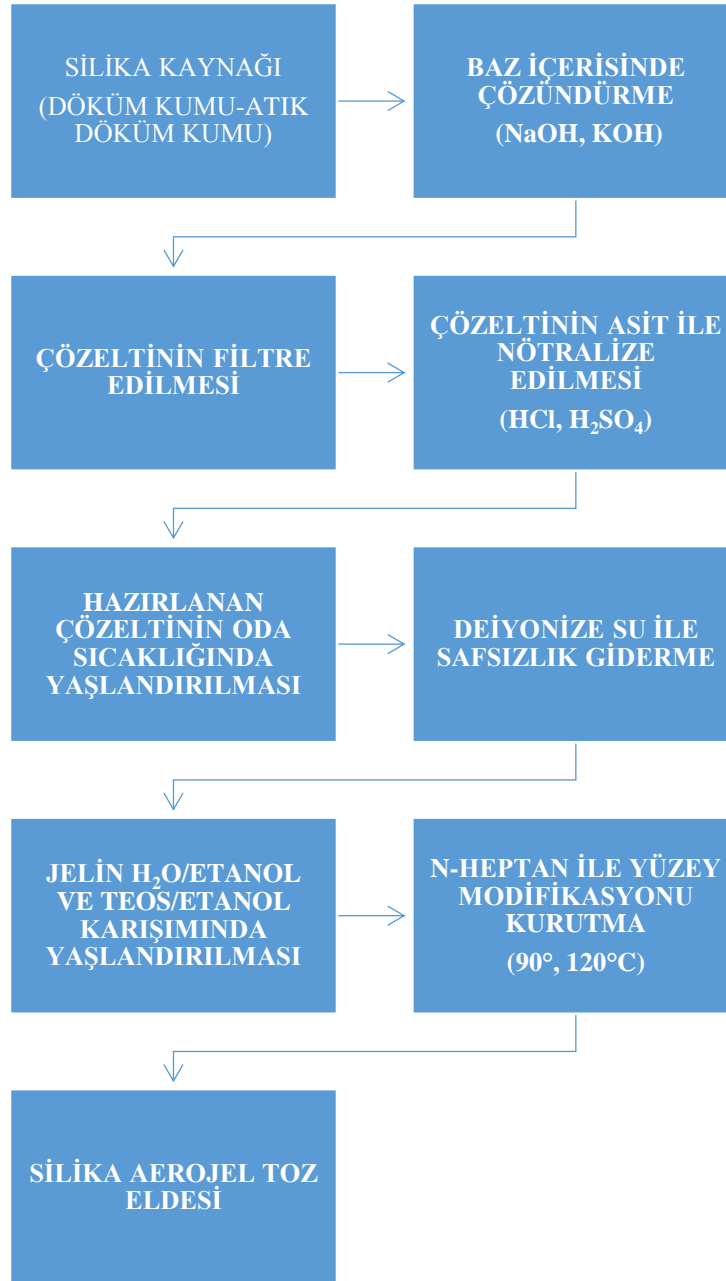
Mevcut çalıŐmada silika hammaddesi olarak kullanılan Döküm kumu Atık döküm kumu ve deneysel çalıŐmada kullanılan NaOH'e ait makro görüntüler Őekil 4.1.'de verilmiŐtir.



Őekil 4.1. a. Döküm kumu, b. Atık döküm kumu ve c. NaOH'e ait makro görüntüler

Döküm kumu ve Atık döküm kumundan silika esaslı aerjel toz eldesinin akıŐ Őeması Őekil 4.2.'de gösterilmiŐtir.





Şekil 4.2. Silika esaslı aerogel toz eldesi akış şeması

#### 4.2.2. Deneyin yapılışı

Deney 1 ve 2. Döküm sektöründe kullanılan döküm kumu ve atık döküm kumundan silika aerogel eldesi

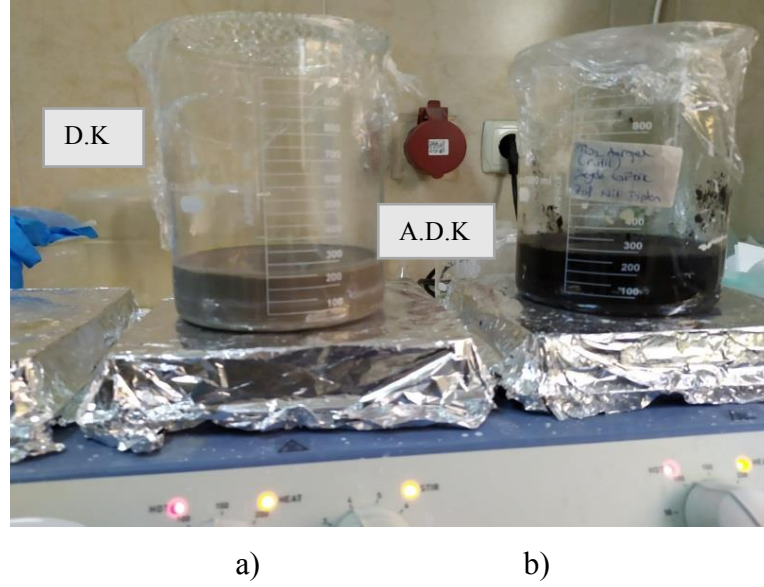
Başlangıç maddeleri;

- 20 g döküm kumu veya atık döküm kumu
- 10 g NaOH
- 250 mL saf su

Karışımı ısıtıcı üzerinde 150°C 4 devir karıştırma hızında 4 saat boyunca sıcaklık 70 °C de sabitlenecek derecede karıştırıldı. Şekil 4.3.'de döküm kumu ve atık döküm kumu karıştırma aşaması görülmektedir. 4 saat sonra karışım filtre kağıdı kullanılarak süzülme işlemi yapılmış ve filtre kağıdının üzerinde kalan atıklar kurutulması ve analizi yapılması için ayrı kaba konulmuştur. Şekil 4.4.'te süzme işlemi gösterilmiştir. Filtre kağıdından süzülen karışımın pH dengesini sağlamak için 21 ml HCl 200 ml saf su çözeltisi kullanılarak nötrleme işlemi yapılmıştır. Etüvde 70 °C de 2 hafta yaşlandırma işlemi yapılmıştır.

2 hafta sonrasında pH'ında meydana gelen düşüş nedeni ile karışıma 10 g NaOH ve 200 ml saf su çözeltisi eklenilerek pH dengelenmiş ve 2 hafta oda sıcaklığında yaşlandırma işlemi yapılmıştır. Karışım safsızlıkları gidermek amacı ile ısıtılmış saf suda 3 defa yıkanma işleminin ardından süzülmüştür.

Süzme işleminin ardından hacimce %80 Etanol/saf su karışıma eklenmiş ve etüvde 60°C'de 1 gün bekletilmiştir. Daha sonra karışıma %100 Etanol koyulup etüvde 60 °C' de 1 gün bekletilmiştir. Ardından da hacimce %70 Etanol/TEOS içerisinde 60 °C de bekletilmiştir. Tekrardan süzme işlemi yapılarak %100 n-heptan içerisinde 1 gün bekletilmiştir. Ardından 50 °C de 1 saat 90°C'de 4 saat ve 125 °C'de 1 gün kurutma işlemi yapılmıştır.



Şekil 4.3. Döküm kumu (a) ve atık döküm kumu (b) karıştırma aşaması



Şekil 4.4. a. Atık döküm kumu, b. Döküm kumu içeren karışımın filtre kağıdı ile süzülme işlemi.

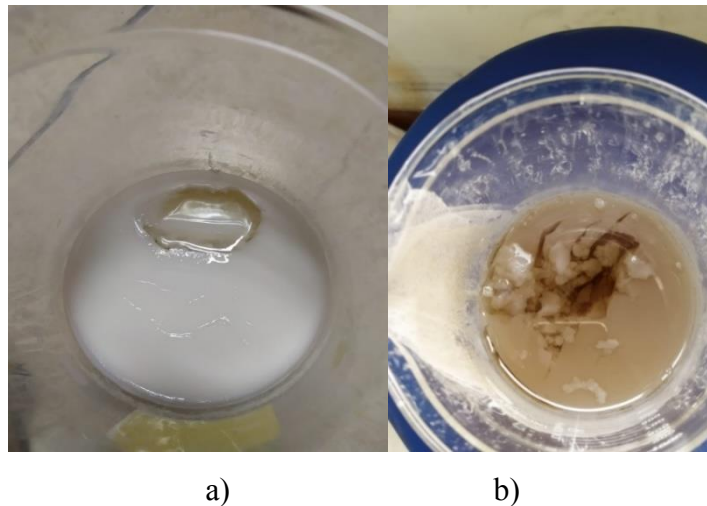
Deney 3. Halkalı değirmende öğütme (HDÖ) işleminin ardından  $65 \mu\text{m}$  altı tozlara deney 2 parametresi uygulanarak silika esaslı aerojel tozu üretilmiştir.

Kurutma işlemi  $90^{\circ}\text{C}$ 'de 1 gün ve  $120^{\circ}\text{C}$ 'de bir gün uygulanmıştır.

Deney 4 ve 5. Verimi arttırmak için başlangıç hammaddelerine 600 rpm dönme hızı ile 1 saat mekanik aktivasyon işlemi uygulama.

Mekanik aktive edilmiş başlangıç tozları ısıtıcı üzerinde 150°C’de 4 devir/dk karıştırma hızında 4 saat boyunca sıcaklık 70°C’de sabitlenerek karıştırılmıştır. 4 saat sonra karışım filtre kağıdı kullanılarak süzülme işlemi yapılmış ve filtre kağıdının üzerinde kalan atıklar kurutulması ve analizi yapılması için ayrı kaba konulmuştur. Filtre kağıdından süzülen karışım pH dengesini sağlamak için 5 molarlık HCl kullanılarak nötrleme işlemi yapılmıştır.

2 hafta oda sıcaklığında yaşlandırma işlemi yapılmıştır. Şekil 4.5.’te yaşlandırma sonrası Deney 4 ve 5 de elde edilen jelin makro görüntüleri verilmiştir. Karışım safsızlıkları gidermek amacı ile kaynatılmış saf suda 3 defa yıkanma işleminin ardından süzülmüştür. Süzme işleminin ardından hacimce %80 Etanol/saf su karışıma eklenmiş ve etüvde 60°C’de 1 gün bekletilmiştir. Daha sonra karışıma %100 Etanol koyulup etüvde 60 °C de 1 gün beklenilmiştir. Ardından da hacimce %70 Etanol/TEOS içerisinde 60 °C de bekletilmiştir. Tekrardan süzme işlemi yapıp %100 n-heptan içerisinde 1 gün bekletilmiştir. Ardından 90 °C de 4 saat ve 125 °C de 1 gün kurutma işlemi yapıldı.

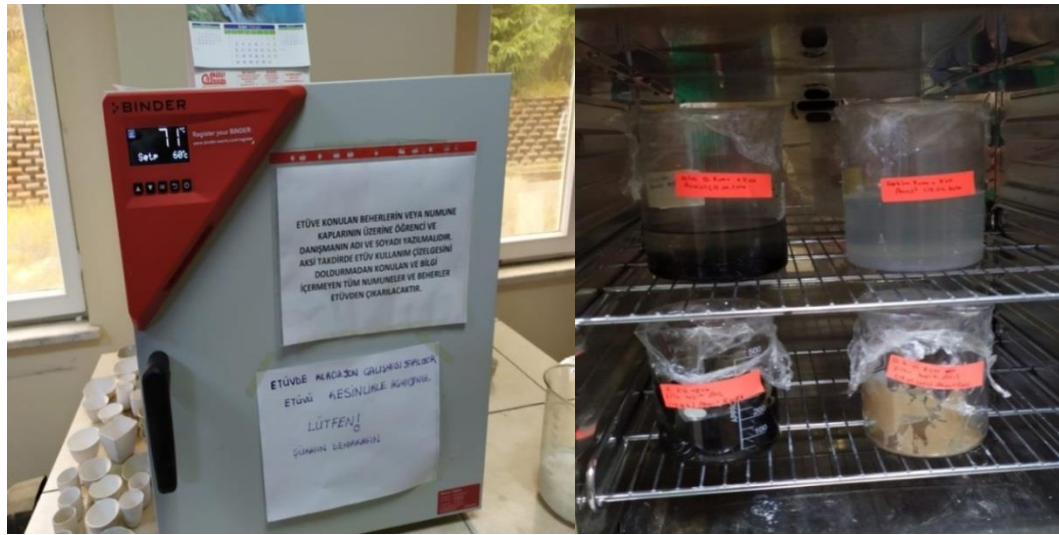


Şekil 4.5. a. Deney 4 ve b. Deney 5’de elde edilen jel görüntüleri.

Deney 6 ve 7. NaOH yerine KOH bazı ile aerojel tozu üretimi

Baz kaynağı deęiřimi ile döküm kumu ve atık döküm kumundan silika esaslı aerojel tozu üretimini gerçekleştirilmiştir. Baz kaynağı olarak kullanılan sodyum hidroksit yerine (NaOH) Potasyum Hidroksit (KOH) aynı mol (1 mol) oranda kullanılmış ve önceki deneylerdeki aynı parametreler kullanılarak aerojel tozu üretilmiştir. Yařlandırma iřlemi Őekil 4.6.'da gösterildięi gibi etüvde 60 °C'de 1 hafta bekletilmiştir. Őekil 4.7.'de yařlandırılmaya bırakılan atık döküm kumundan elde edilen silika aerojelin görüntüsü verilmiştir.

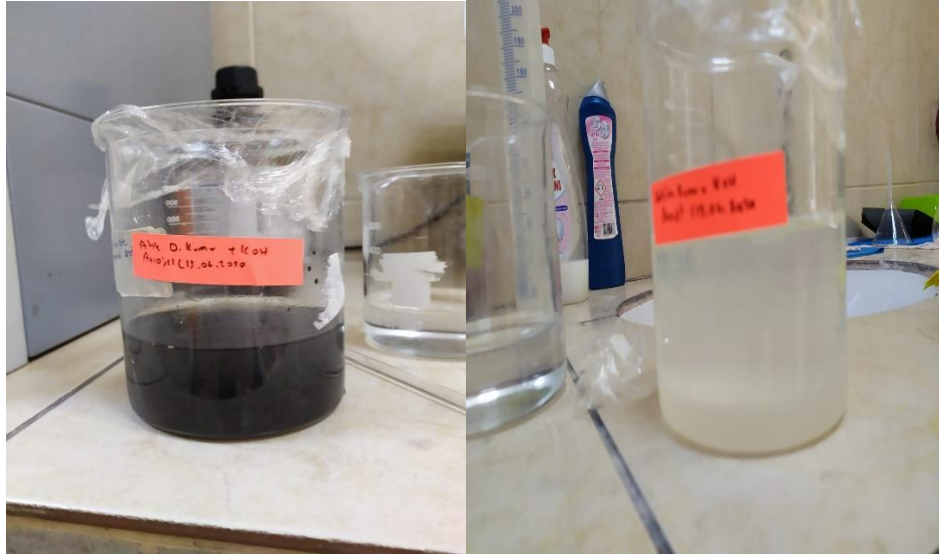
Yařlandırılma ařamasından sonra Őekil 4.8.'de gösterildięi gibi %80 Etanol/saf su karıřıma eklenmiş ve etüvde 60 °C'de 1 gün bekletilmiş ve ardından hacimce %70 Etanol/TEOS çözeltisi içerisinde 60°C'de bekletilmiştir. Tekrardan süzme iřlemi yapılp Őekil 4.9.'da gösterildięi gibi %100 n-heptan içerisinde 1 gün bekletilmiştir.



a)

b)

Őekil 4.6. a. 60 °C'de 1 hafta yařlandırma uygulanması için kullanılan Etüv ve b. numunelerin etüv içindeki görüntüleri

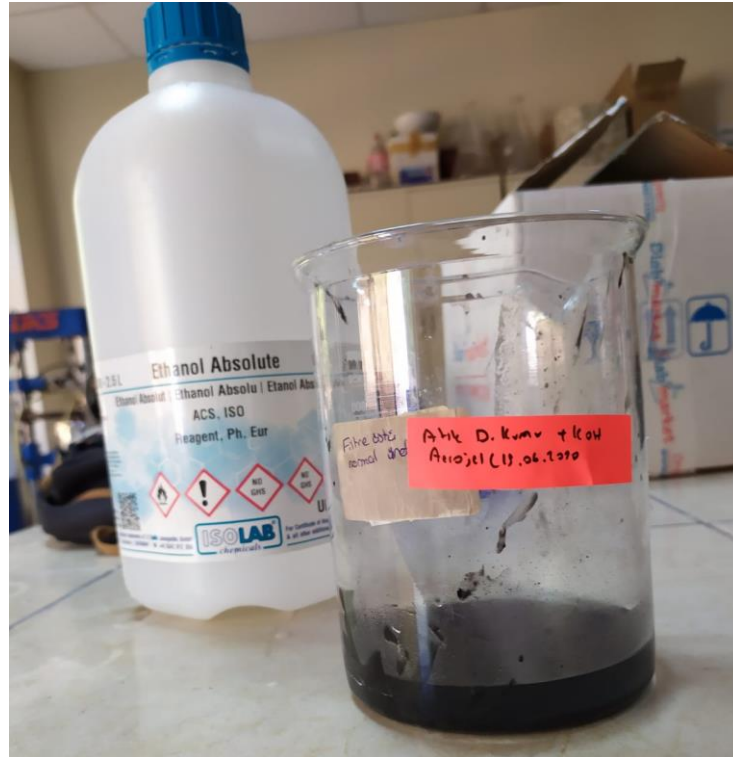


a)

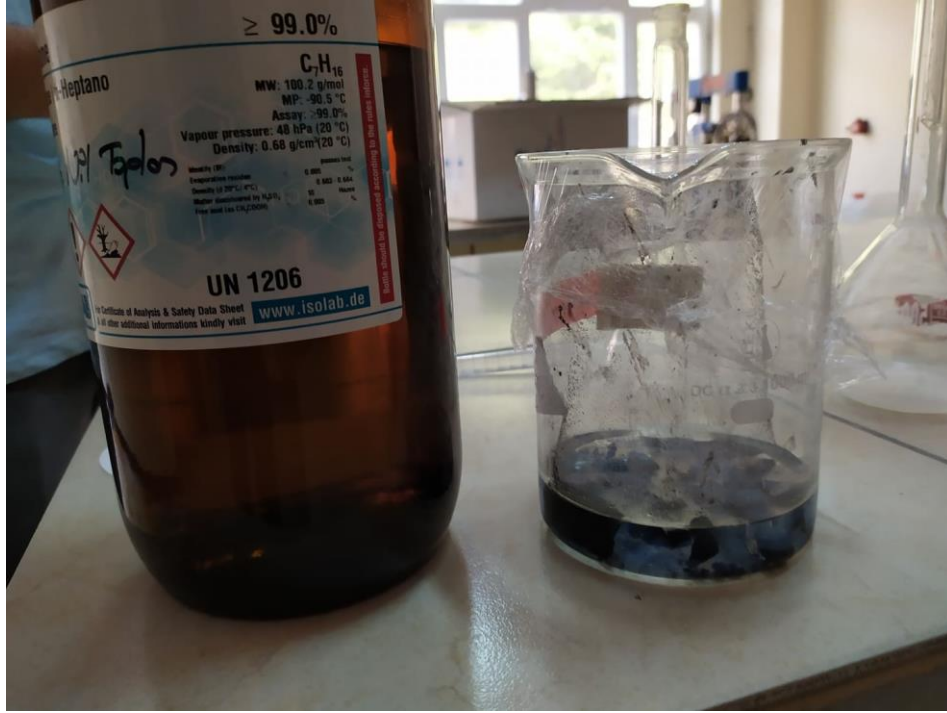
b)

Şekil 4.7. a) atık döküm, b) döküm kumu içeren aerojel yaşlandırılmadan önceki görüntüsü.

Şekil 4.10.'da atık döküm kumundan elde edilen silika esaslı aerojelin n-heptan ilavesinden sonraki görüntüsü (a) ve kurutma sonrasında elde edilen (b) görüntüsü verilmiştir.



Şekil 4.8. %80 ADK'na Etanol/saf su ilave edilmiş Aerojel



Şekil 4.9. n-heptan ilavesi yapılmış atık döküm kumundan elde edilen silika esaslı aerojel



a)

b)

Şekil 4.10. ADK'na a. n-heptan ilavesi yapıldıktan sonraki hali, b. kurutma aşaması sonrası elde edilen silika esaslı aerojel tozları

Deney 8 ve 9. Baz kaynağı olarak NaOH ve KOH kullanılan çözeltiye Asit oranının etkisi incelendi.

Döküm kumu tozuna 1 mol NaOH ve 1 mol KOH bazları ilave edilerek hazırlanmış çözeltiler. Şekil 4.11.'de gösterildiği gibi ısıtıcı üzerinde 3 saat boyunca karıştırılmıştır.

5 molarlık HCl/sıvı çözeltisi ilave edilerek nötrleme yapılmış ve yaşlandırılmaya bırakılmıştır. Ardından diğer deneylerdeki aynı parametreler uygulanmıştır.



Şekil 4.11. Döküm kumuna a. 1 mol KOH ve b. 1 mol NaOH bazları ilave edilerek hazırlanan çözeltiler

### Deney 10. HCl yerine H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> kullanımının etkisi

NaOH+250ml saf su + Döküm kumu çözeltiye alınıp süzülme işleminin ardından asit türünün etkisini incelemek için 1 molar H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> ilave edilip yaşlandırılmaya bırakılmıştır. Oluşan jelin makro görüntüsü Şekil 4.12.'de gösterilmiştir.



Şekil 4.12. DK'na H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> ilavesi ile oluşturulan çözelti

Deney 11. Deney 10' da süzme sırasında filtre kağıdından geçemeyen atıkların tekrar kazanımı sağlamak amacıyla saf su + NaOH çözeltisi içerisinde ısıtıcı üzerinde 3 saat



tekrar karıştırma işlemi yapılmıştır. Karıştırma işlemi ardından tekrar süzülerek H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> ilave edilerek jelleştirme işlemlerine geçirilmiştir.

Tüm Deneyleerde Kullanılan parametreler aşağıda verilmiştir;

- Karıştırma süresi (3h, 4h)
- Öğütme (halkalı değirmen)
- 1 saat Aktivasyon yapılması (Mekanik aktivasyon)
- Baz türü değiştirilmesi NaOH/ KOH
- Asit türü değiştirilmesi HCl/ H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>
- Asit miktarı değiştirilmesi 1M/5M
- Filtre kağıdı süzme atığının tekrar kullanılması

### **4.3. Silika Esaslı Aerojel Karakterizasyonu**

Döküm kumu ve Atık Döküm kumu başlangıç malzemesini içeren silika esaslı aerojel tozlarının özelliklerinin belirlenmesi için karakterizasyon işlemi uygulanmıştır. SEM ve FESEM (Field Emission Scanning Electron Microscopy) ile tozların elementel analizleri ve mikroyapılarının analizi yapılmıştır. Faz analizi için XRD, yapıdaki bileşiklerin ve bağ türlerinin belirlenmesi için FTIR (Fourier Transform Infrared Spectroscopy), doğrusal olarak artan sıcaklık altında meydana gelen fiziksel değişimler için ise Termal Analiz yöntemi olan TG (Termogravimetri) ve DTA (Diferansiyel Termal Analiz) analizleri uygulanmıştır.

#### **4.3.1. SEM analizi**

Taramalı elektron mikroskobu (SEM) görüntü ve numune analizi yapılabilme olanağı sağlar. Numune üzerinde çok yüksek büyütme ve çözünürlüklerle görüntüleri bu analiz ile elde edilebilmektedir. Numunenin elektron kaynağından demet olarak gönderilen elektronlar tarafından numune boyunca taranması ve numune ile etkileşimlerinin algılayıcı tarafından görüntü oluşturulması prensibine dayanır

Bu çalışmada döküm kumu ve atık döküm kumu başlangıç tozları ve sentezlenen silika esaslı aerogellerin mikroyapıları ve elementel analizi için SEM analizi yapılmıştır. 50.000X büyütme kadar tozların mikroyapısını belirlemek için kullanılmıştır. Toz numunelerin elementel dağılımı için EDS analizi yapılmıştır. Elde edilen veriler Deneysel sonuçlar ve irdeleme bölümünde verilmiştir.

#### **4.3.2. FESEM analizi**

Nano boyutta olan numuneler üzerinde SEM analizi çok yüksek büyütmeyle yapılamadığı için detaylı olarak mikroyapı incelemede yetersiz kalabilir. FESEM analizi çok yüksek büyütmeyle yüksek çözünürlüklerde mikroyapı görüntüleri alabilmemizi ve EDS ile kullanıldığı zaman ise daha ayrıntılı alan tarayabilmemizi sağlayan tekniktir.

X-ışını kaynağından gönderilen elektronlar, içinde buldukları manyetik alan sayesinde hızlandırılarak yüzeye Z şeklinde tarama yapılması mantığına dayanır. Döküm kumu ve Atık döküm kumundan üretilmiş numunelere 200.000X büyütme kadar çıkılarak inceleme yapılmıştır. Elde edilen görüntüler ve EDS analizi sonuçları deneysel sonuçlar ve irdeleme bölümünde verilmiştir.

#### **4.3.3. FTIR analizi**

Döküm kumu ve atık döküm kumundan sentezlenen silika esaslı aerogellerin yapısında bulundurduğu farklı bağlara ait titreşim frekansları ölçülmesi maksadı ve fonksiyonel gruplar hakkında bilgi sahibi olabilmek için FTIR analizi gerçekleştirilmiştir. Üretilen tozların analizi Perkin Elmer Spectrum Two FTIR cihazı kullanılarak 400-4000  $\text{cm}^{-1}$  dalga boyu aralığında yapılmıştır.

FTIR analizi amacı analiz edilecek numunenin iç yapısında bulunan bağların titreşim hareketinde bulunması ile açığa çıkan frekanslara karşılık gelen adsorbsiyon pikleridir. Kısa süre içerisinde numune sayısının düşük olduğu durumlarda bile sonuç vermesi, geniş spektrumlar vermesi ve kalibrasyon kaydının yapılabilmesi sebebiyle güvenilir

ve ucuz olması nedeniyle geniş uygulama imkanı sağlar [41,42]. Elde Edilen FTIR Spektrumları deneysel sonuçlar ve irdeleme bölümünde verilmiştir.

#### 4.3.4. Termal analizi

Üretilen numunelerin değişen sıcaklık altında fiziksel özelliklerindeki değişimi ölçmek amacı ile Termal Analiz uygulanmıştır. Numunelerde oluşan ağırlık kaybı ve değişimlerini ölçmek için Termogravimetri (TG), oluşan reaksiyonların endotermik, ekzotermik olup olmadığını ve ısı miktarı değişikliğini ölçmek için ise DTA (Diferansiyel Termal Analiz), DSC (Diferansiyel Taramalı Analiz) kullanılır [43].

Atık döküm kumu ve döküm kumundan elde edilen silika esaslı aerojel tozlarına Netzsch STA 449 DTA-TG cihazı ile 10 °C/dak hızla ve 1200°C sıcaklığa doğrusal yükselecek kadar termal analiz uygulanmıştır. Artan sıcaklık altında kütlede ki değişim deneysel sonuçlar ve irdeleme bölümünde verilmiştir.

#### 4.3.5. Faz analizi

Sentezlenen silika esaslı aerojele ait faz analizini yapabilmek için numunelere XRD analizi uygulanmıştır. XRD analizi numune üzerine X ışınları gönderilmesi ve X ışınlarını kırınımı sonucunda yansıyan ışınların cihazın veri tabanındaki verilerle karşılaştırılması esasına dayanır [44].

Döküm kumundan ve atık döküm kumundan elde edilen numunelerin faz yapısını incelemek için Rigaku D/MAX/2200/PC XRD cihazı kullanılarak dalga boyu  $\lambda=1,54056$  nm olan  $CuK\alpha$  kullanılarak tarama hızı 1°/dk. ve tarama açısı 2 $\theta$ , 10 ile 90° arasında belirlenmiştir. Elde edilen XRD sonuçları deneysel sonuçlar ve irdeleme bölümünde verilmiştir.

#### 4.3.6. Bet analizi

Sentezlenen silika esaslı aerojele ait yüzey alanını gözenek dağılımı ve boyutunu belirlemek için Bet analizi uygulanmıştır. Teknik olarak Bet analizi, analizi gerçekleştirilecek numune yüzeyinin moleküler kaplanması için gerekli olan gaz oranını saptayarak ve Bet izoterm denleminden faydalanarak yüzey alanını belirlenmesini sağlamaktadır. Micromeritics Gemini VII cihazı ile 77 K sıcaklığında sıvı azot gazı ortamında adsorplama yöntemiyle yüzey alanı, gözenek hacmi ve boyut ölçümü gerçekleştirilir [45].

## BÖLÜM 5. DENEYSEL SONUÇLAR VE İRDELEME

### 5.1. Giriş

Bu çalışmada silika kaynağı olarak döküm kumu ve atık döküm kumu kullanılarak sol-jel yöntemi ile silika esaslı aerogel tozları elde edilmiştir. Elde edilen tozların SEM-FESEM-EDS analizleri ile mikroyapıları, FTIR analizi ile kimyasal bağ yapıları, faz yapıları XRD ile, sıcaklık değişimi ile oluşan fiziksel ve kimyasal değişimler DTA termal analiz cihazı ile, gözenek çapı ve yüzey alanı ise BET analizi ile detaylandırılmıştır.

### 5.2. Mikroyapı Analizi

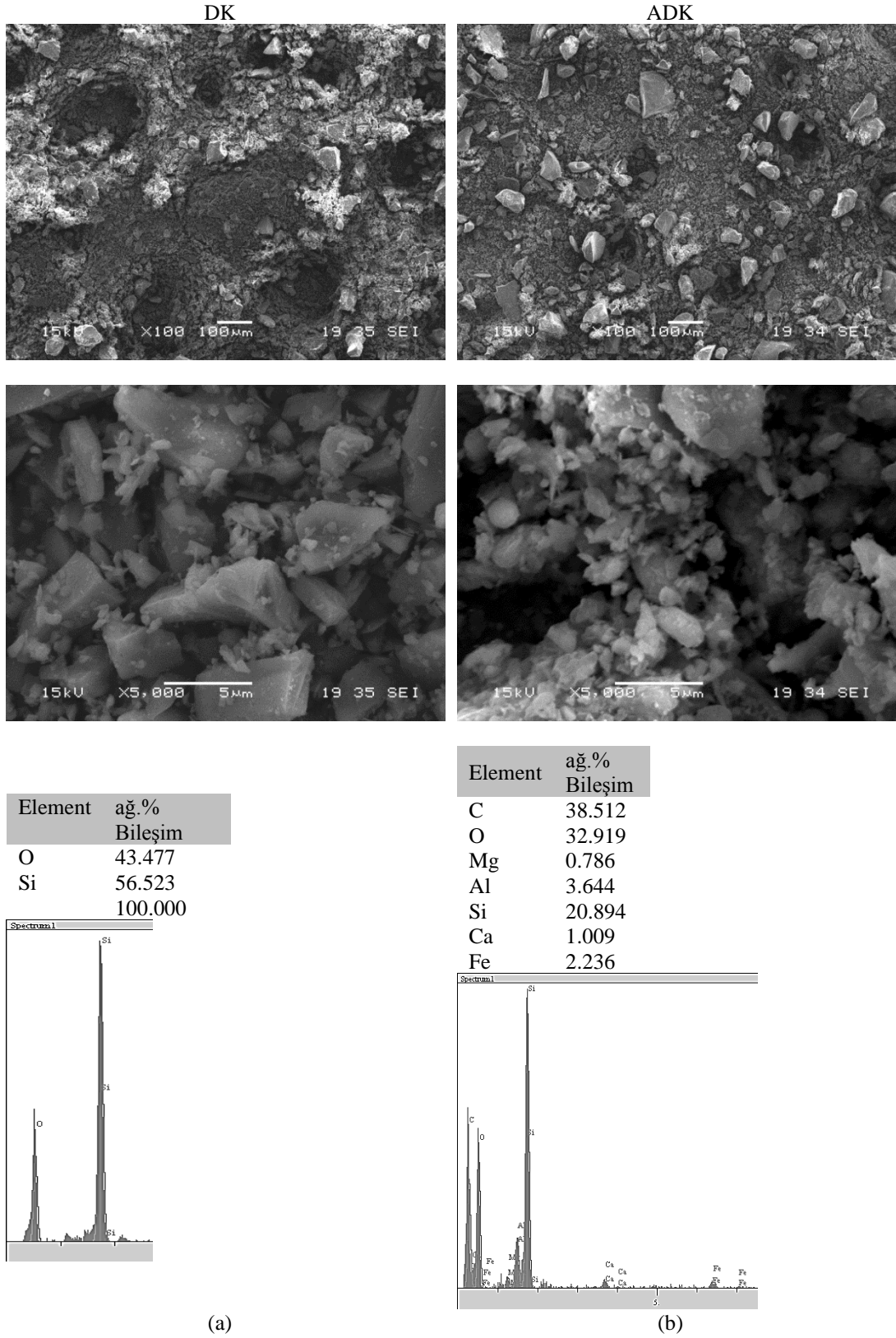
Döküm kumundan ve atık döküm kumundan sol jel yöntemi ile elde edilmiş silika esaslı aerogel tozlarının mikroyapı görüntüleri SEM-FESEM-EDS analizleri ile detaylandırılmıştır. Tozların gözenek ve tane yapısı nano boyutta olduğu için yüksek büyütme FESEM cihazı, SEM cihazına göre daha net ve detaylı görüntüler ortaya çıkarmıştır. Tablo 5.1.'de üretimde silika aerogel üretiminde kullanılan numune kodları ve parametreleri verilmiştir.

Tablo 5.1. Numune Kodları ve Parametreler

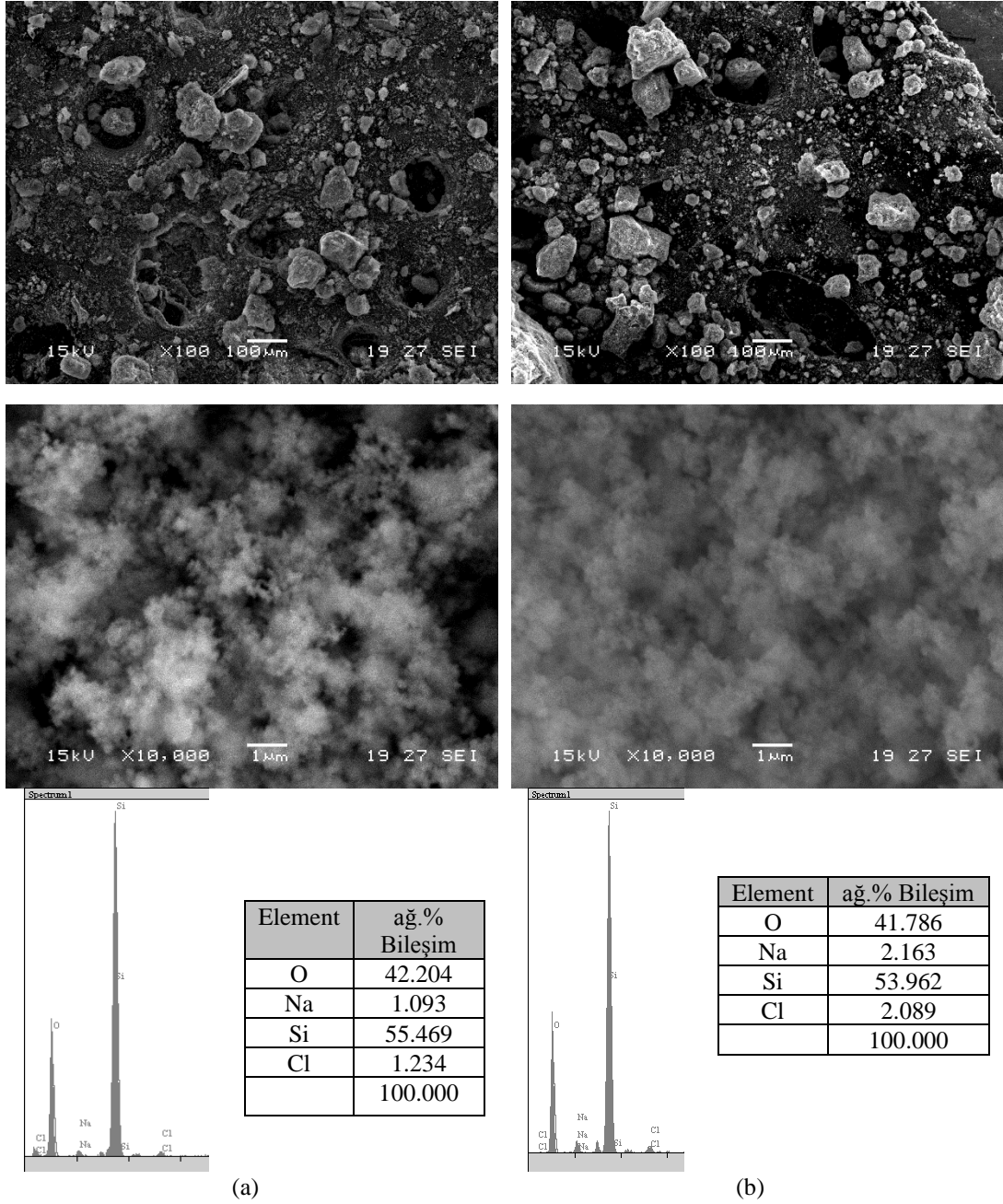
| Numune Kodu | Parametre   |
|-------------|---|
| D1          | Döküm Kumu + NaOH +HCl  |
| D2          | Atık Döküm Kumu + NaOH +HCl   |
| D3          | 1 saat aktive Döküm Kumu +NaOH +HCl                                 |
| D4          | 1 saat aktive Döküm kumu +NaOH +5HCl                                |
| D5          | 1 saat aktive Atık Döküm kumu +NaOH +5HCl                           |
| D6          | Döküm kumu +KOH+HCl   |
| D7          | Atık Döküm kumu + KOH+HCl   |
| D8          | Döküm kumu +NaOH+5HCl   |
| D9          | Döküm kumu +KOH+5HCl  |
| D10         | Döküm kumu + NaOH+H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>                    |
| D11         | D11 Filtre üstünden elde edilen NaOH+H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> |

Şekil 5.1.'de döküm kumu ve atık döküm kumuna ait farklı büyültmelerde (100X ve 5000X) SEM mikroyapı analizleri ve genel EDS analizleri verilmiştir. Mikroyapılarda tozlardaki aglomerasyon, toz tane boyut aralığının geniş olması, toz şekillerinin karmaşık şekilli toz tane yapısında olması gözlenmekle birlikte EDS analizlerinde silika bileşimine ilave olarak atık döküm kumunda Ca, Al, Mg, Fe ve C pikleri de tespit edilmiştir.

Şekil 5.2.a'da döküm kumundan elde edilmiş D1 (DK +NaOH+HCl) ve b'de atık döküm kumundan elde edilmiş D2 kodlu (ADK+NaOH +HCl) tozlarına ait farklı büyültmelerdeki (100X ve 500X) SEM mikroyapı analizleri ve genel EDS analizleri verilmiştir. EDS analizinde silikayı oluşturan Si ve O elementlerinin yanısıra tespit edilen Na ve Cl pikleri; çözeltiye alma ve yaşlandırma aşamalarında ilave edilen NaOH ve HCl' den kaynaklanmakta olup; yapılan yıkama işleminin yeterli seviyede olmadığını göstermektedir.

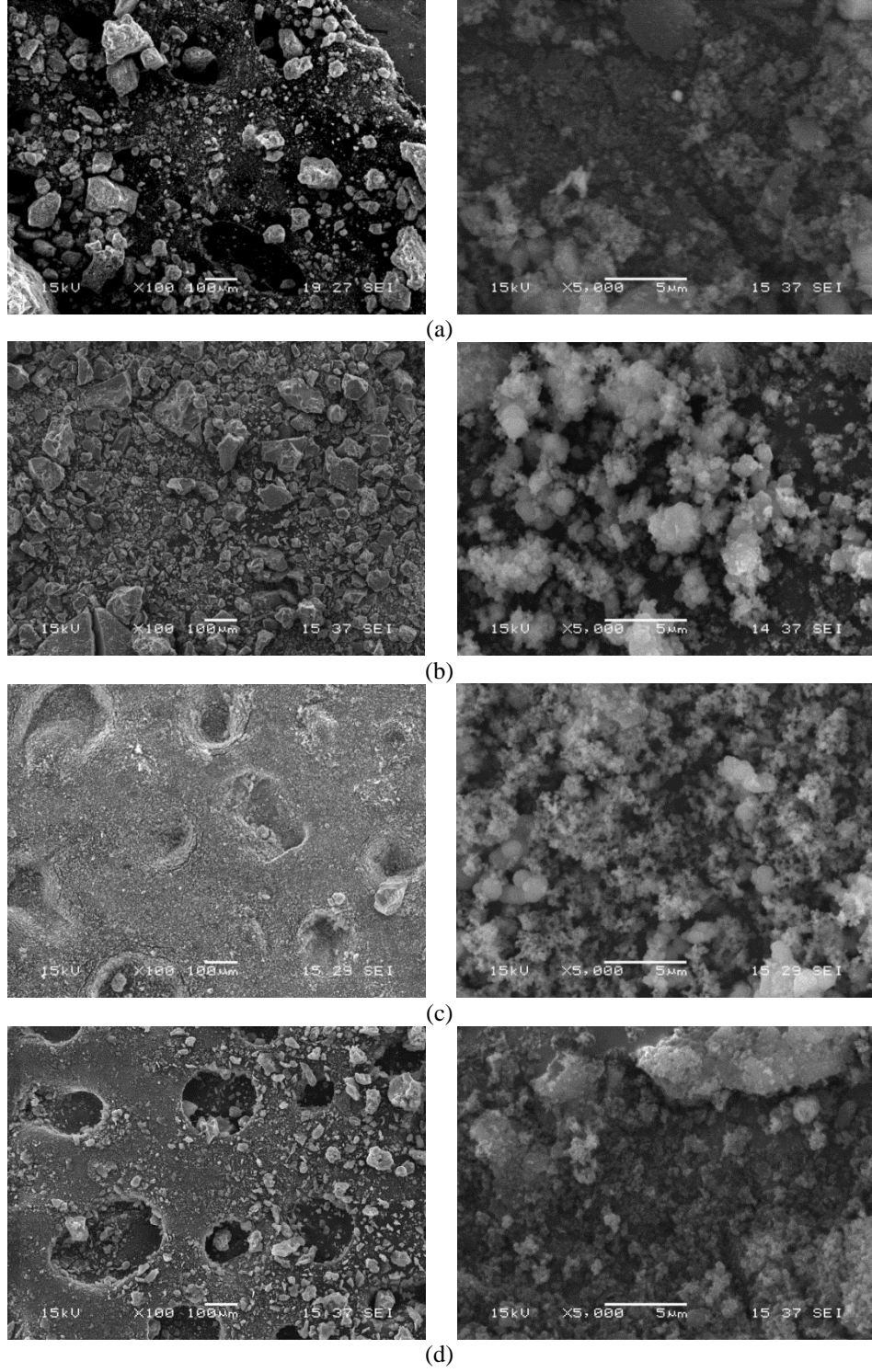


Şekil 5.1. (a) DK, (b) ADK başlangıç malzemesine ait 100X ve 5000X büyültmelerdeki SEM görüntüleri ve EDS analizleri

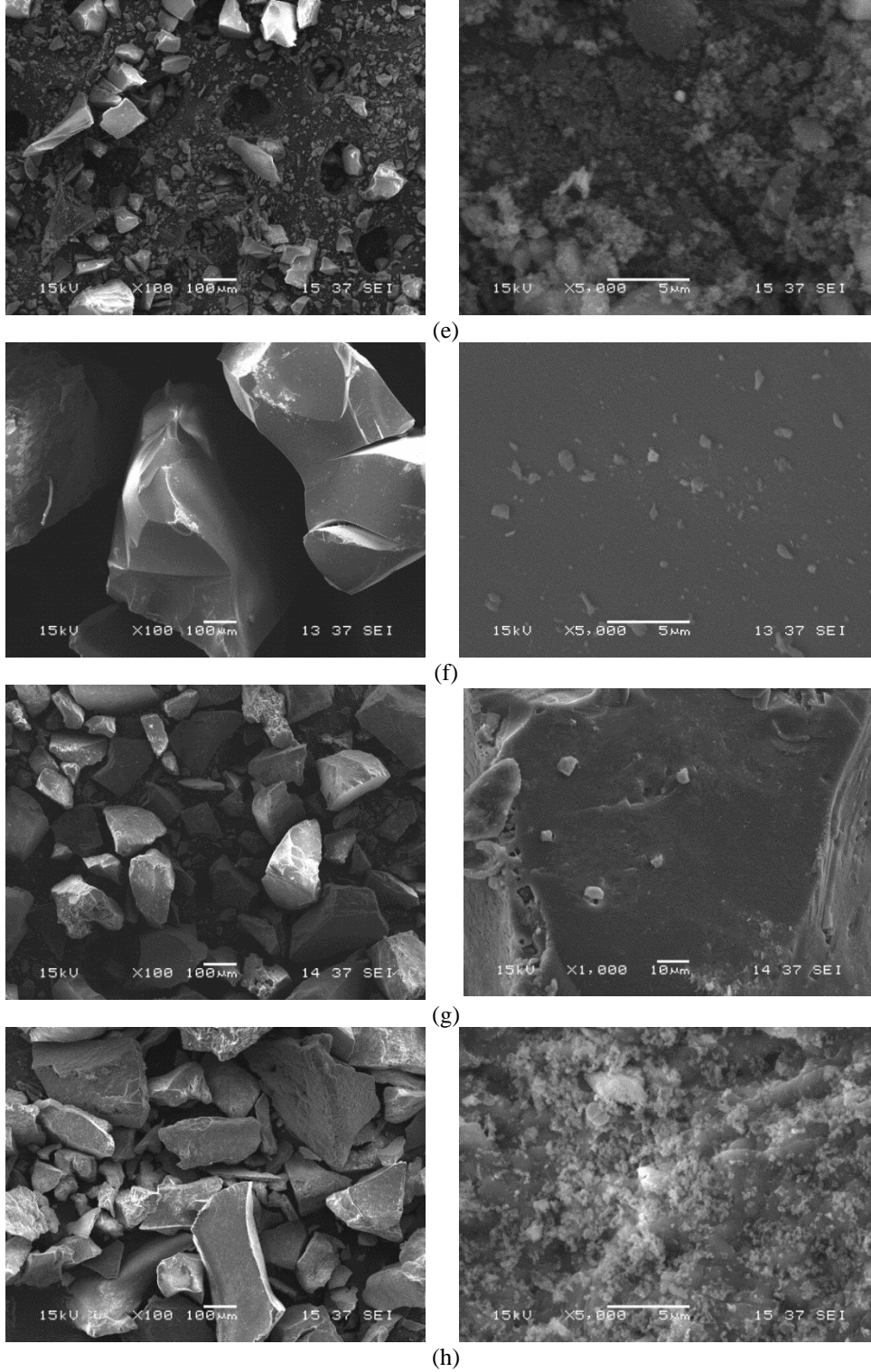


Şekil 5.2. (a) D1, (b) D2 kodlu numunelere ait 100X ve 10000X büyültmelerdeki SEM görüntüleri ve EDS analizleri





Şekil 5.3. (a) D3, (b) D4, (c) D5, (d) D6, kodlu numunelere ait 100x ve 5000x büyültmelerdeki SEM görüntüleri



Şekil 5.4. (e) D7, (f) D8, (g) D9 ve (h) D10 kodlu numunelere ait 100x ve 5000x büyültmelerdeki SEM görüntüleri

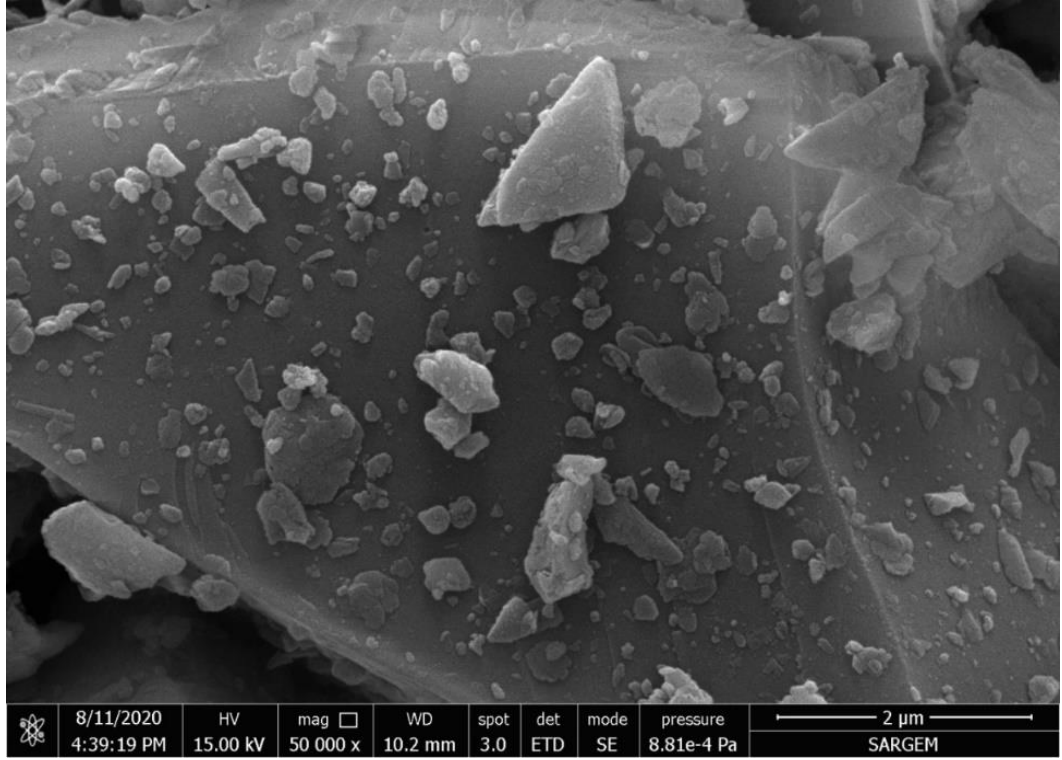
Şekil 5.3.'de sırasıyla (a) D3 kodlu 1 saat aktive Döküm Kumu +NaOH +HCl, (b) D4 kodlu 1 saat aktive Döküm kumu +NaOH +5HCl, (c) D5 kodlu 1 saat aktive Atık Döküm kumu +NaOH +5HCl, (d) D6 kodlu Döküm kumu +KOH+HCl (e) D7 Atık

Döküm kumu + KOH+HCl, (f) D8 Döküm kumu +NaOH+5HCl, (g) D9 Döküm kumu +KOH+5HCl, (h) D10 Döküm kumu + NaOH+H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> tozlarının farklı büyütmelelerdeki (100X ve 5000X) SEM görüntüleri verilmiştir.

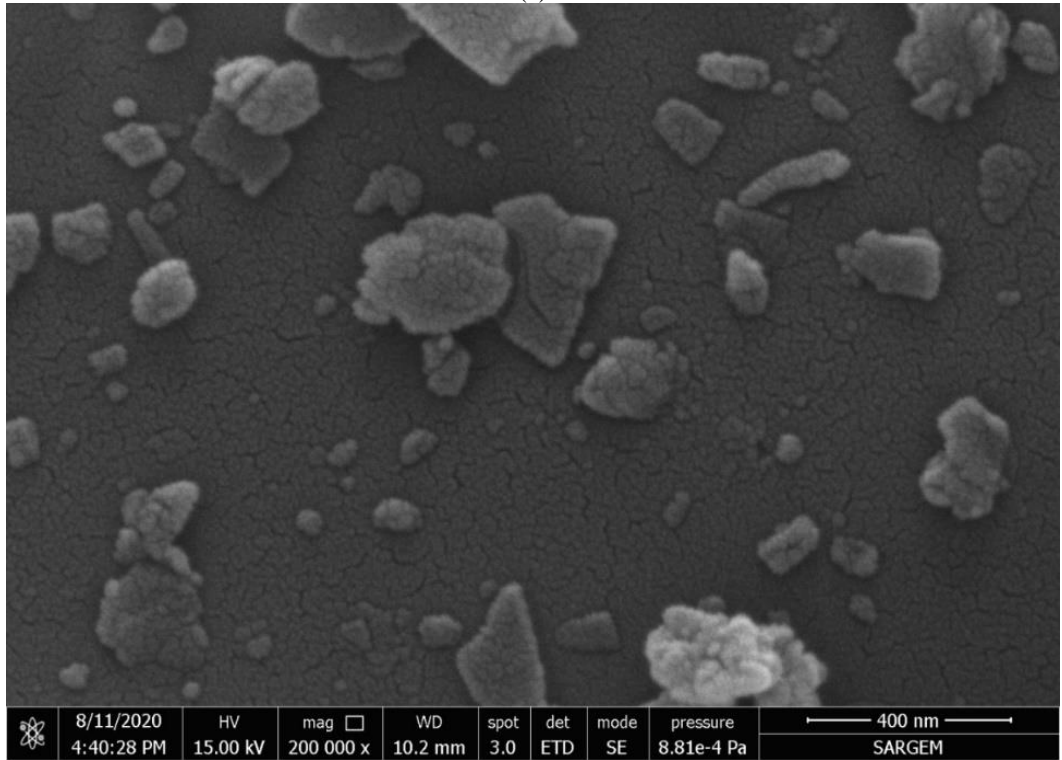
SEM görüntülerine genel olarak bakıldığında toz tane boyut aralığının geniş olması, toz şekillerinin karmaşık şekilli toz tanelerine sahip olması ve tane boyutunun nano seviyelerde olması sebebinden dolayı aglomerasyon gözlemlenmiştir. Silika aerojel üretim kademelerinin son aşaması olan atmosferik şartlarda kurutmadan sonra üretilen toz partiküllerinin mikroyapıları incelenmiş tüm üretilen tozlara öğütme işlemi uygulanmamıştır. Tozların düşük büyütmelelerde farklı tane boyut aralığında gözlenmesinin sebebi bu duruma dayanmaktadır.

Öncelikle Şekil 5.4.'te döküm kumu başlangıç tozlarının 50.000X ve 200.000X büyütmelelerde FESEM görüntülerinde incelenmiş olup; işlem görmemiş başlangıç tozunun keskin köşeli, geniş tane boyut aralığında değişen toz yapısına sahip olduğu görülmektedir. Mevcut başlangıç tozunun silika esaslı aerojel üretim aşamalarından sonraki yapısı da detaylandırılacaktır.

Atık Döküm kumu başlangıç tozlarının 50.000X 200.000X büyütmedeki FESEM mikroyapı görüntüsü Şekil 5.5.'te döküm kumu ve atık döküm kumuna ait EDS sonuçları ise sırası ile Şekil 5.6.ve Şekil 5.7.'de verilmektedir.

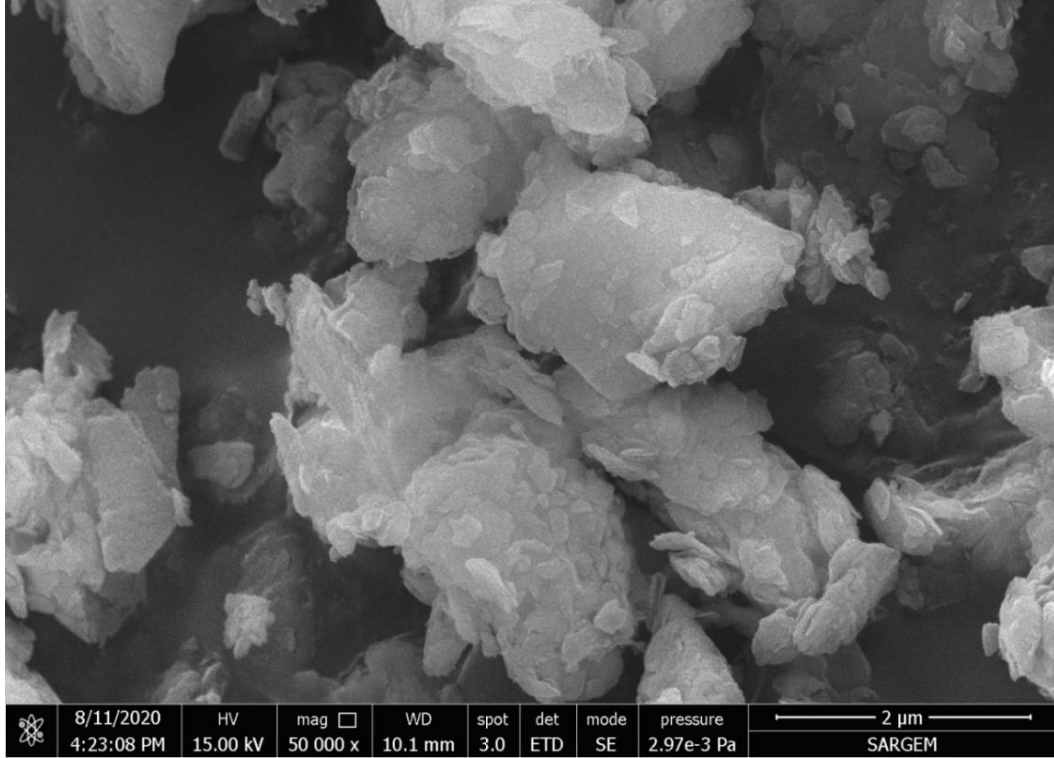


(a)

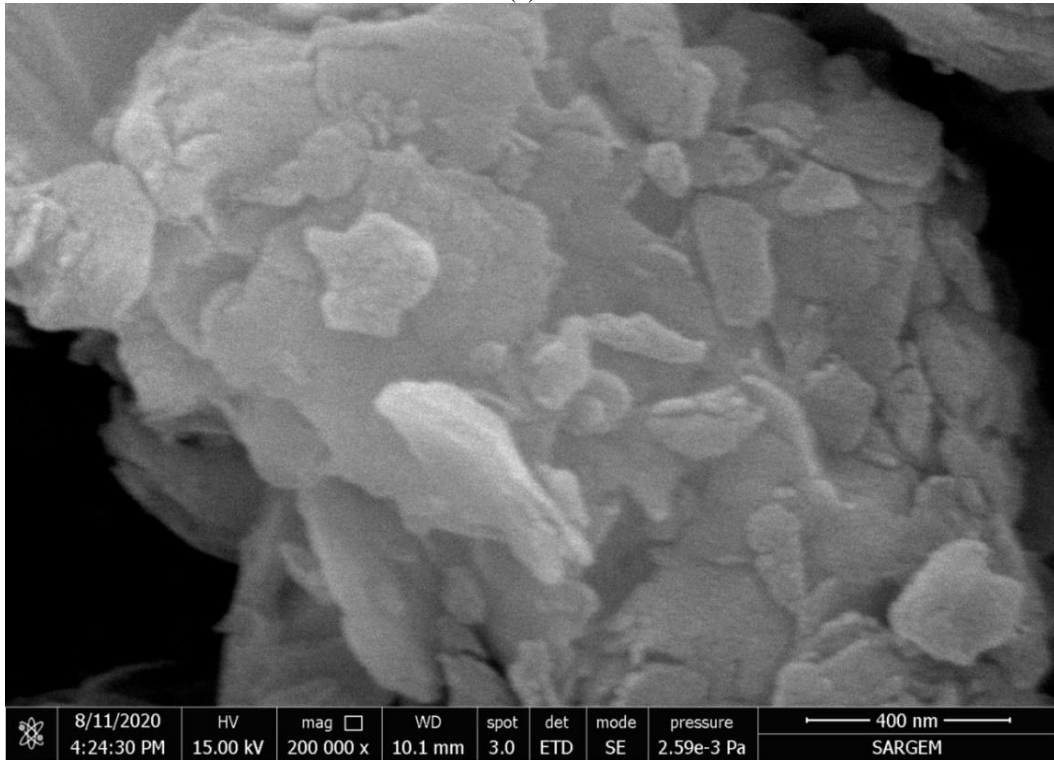


(b)

Şekil 5.5. Döküm kumu başlangıç tozunun (a) 50.000X (b) 200.000X büyültmelerdeki FESEM görüntüleri.

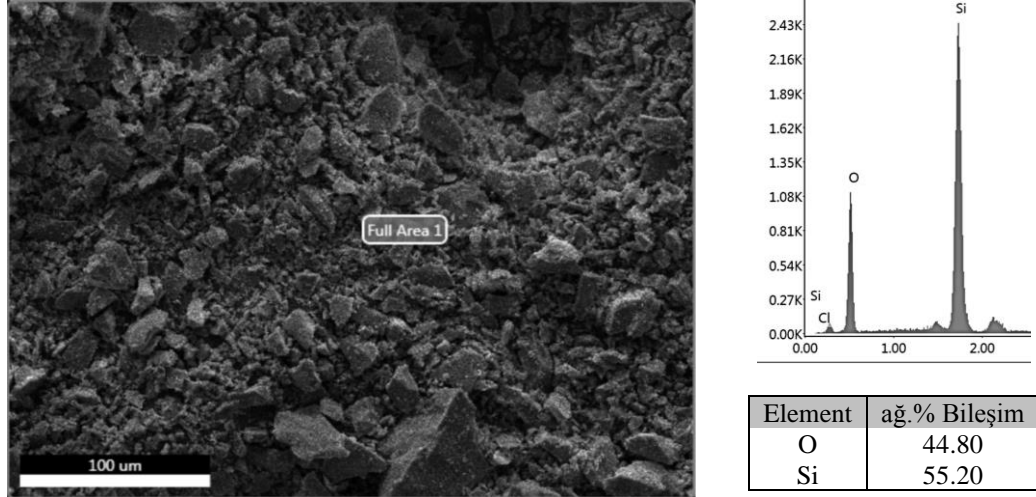


(a)

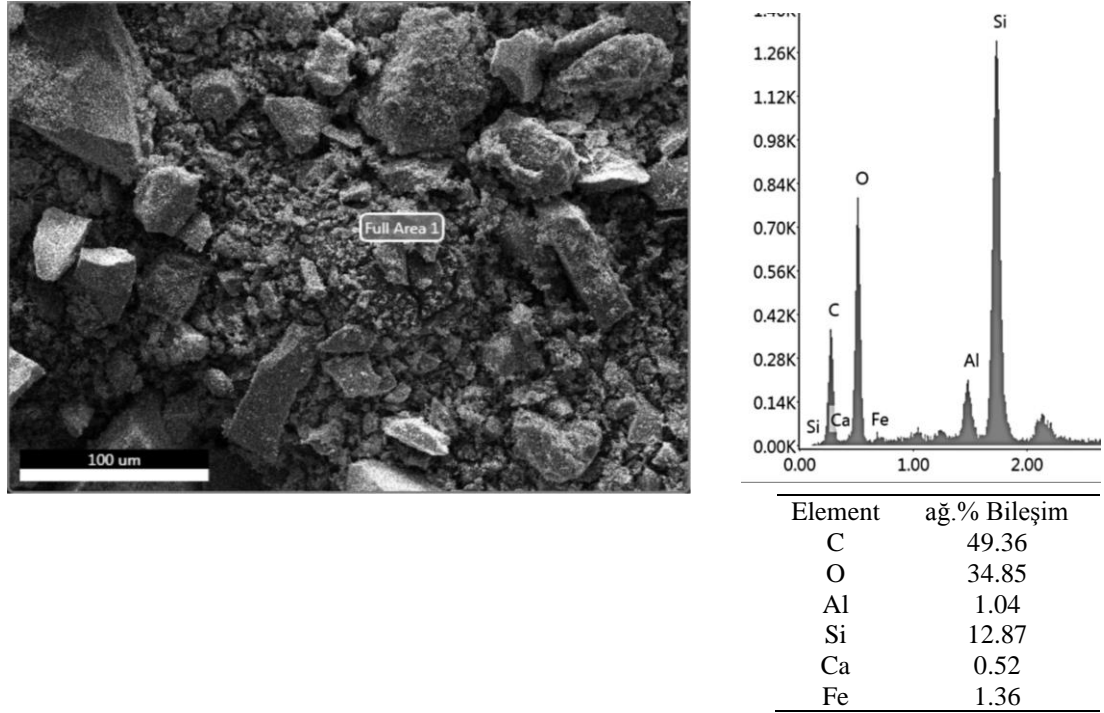


(b)

Şekil 5.6. Atık döküm kumu başlangıç tozunun (a) 50.000X (b) 200.000X büyültmelerdeki FESEM görüntüleri.

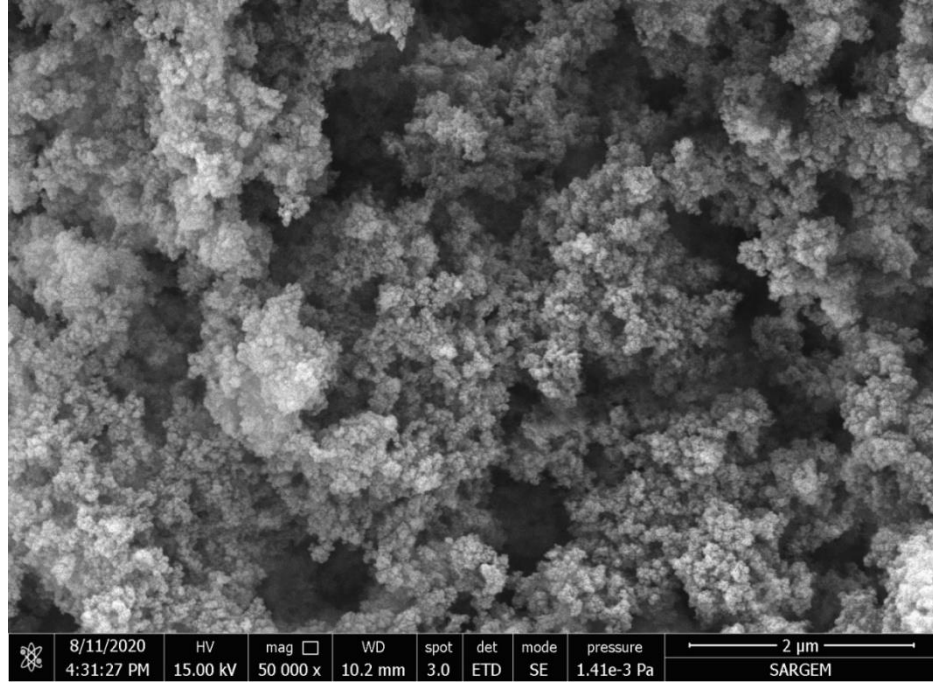


Şekil 5.7. Döküm kumu başlangıç tozunun FESEM-EDS analizi

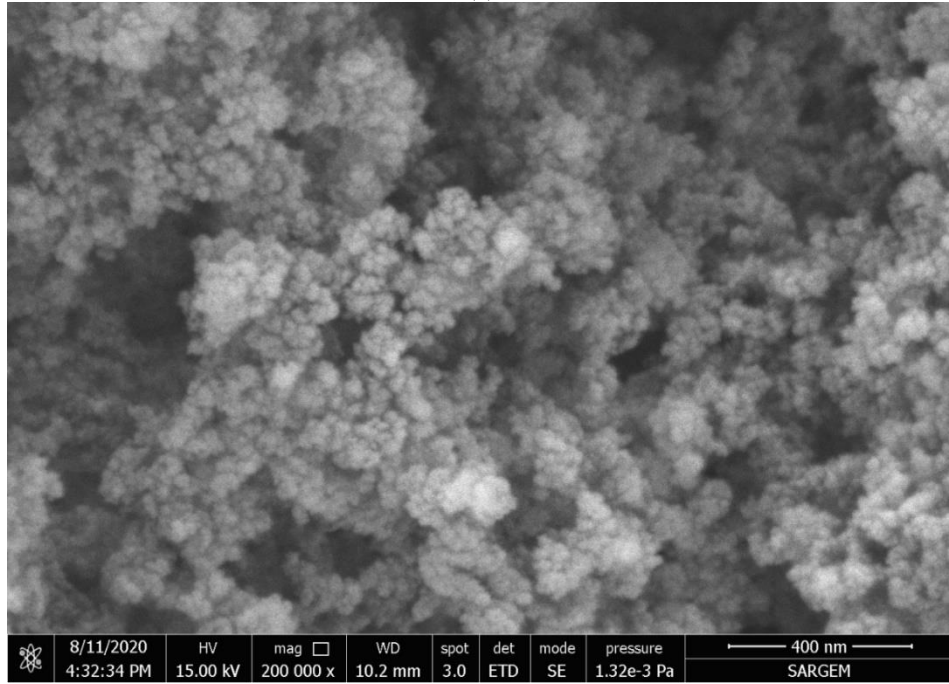


Şekil 5.8. Atık döküm kumu başlangıç tozuna ait FESEM görüntüsü ve EDS analizi

DK ve ADK' na ait SEM-EDS mikroyapı analizlerinde tespit edilen elementler FESEM-EDS analizinde de tespit edilmiştir. Atık döküm kumunun FESEM-EDS analizindeki C elementi tozları incelemek için kullanılan karbon banttın kaynaklanmaktadır. D1 kodlu (Döküm Kumu+NaOH+HCl) tozların 50.000X ve 200.000X büyültmelerdeki FESEM mikroyapıları görüntüleri Şekil 5.8., EDS sonuçları ise Şekil 5.9.'da verilmiştir.

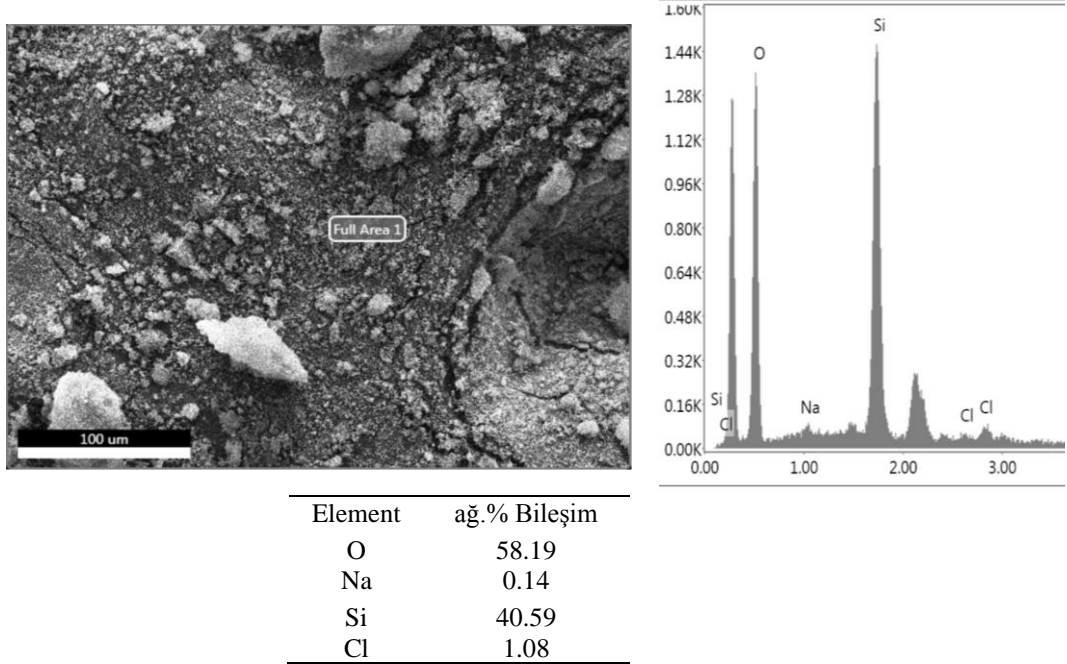


(a)



(b)

Şekil 5.9. D1 kodlu tozun (a) 50.000X (b) 200.000X büyültmelerdeki FESEM görüntüleri.

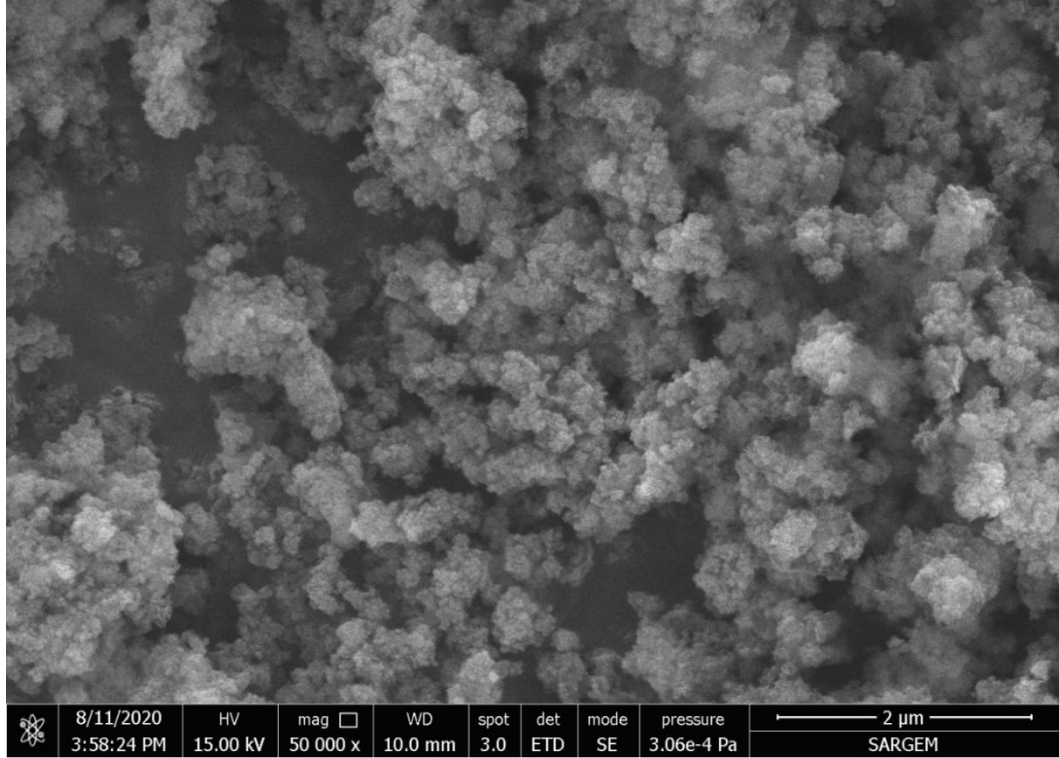


Şekil 5.10. D1 kodlu tozun FESEM-EDS analizi

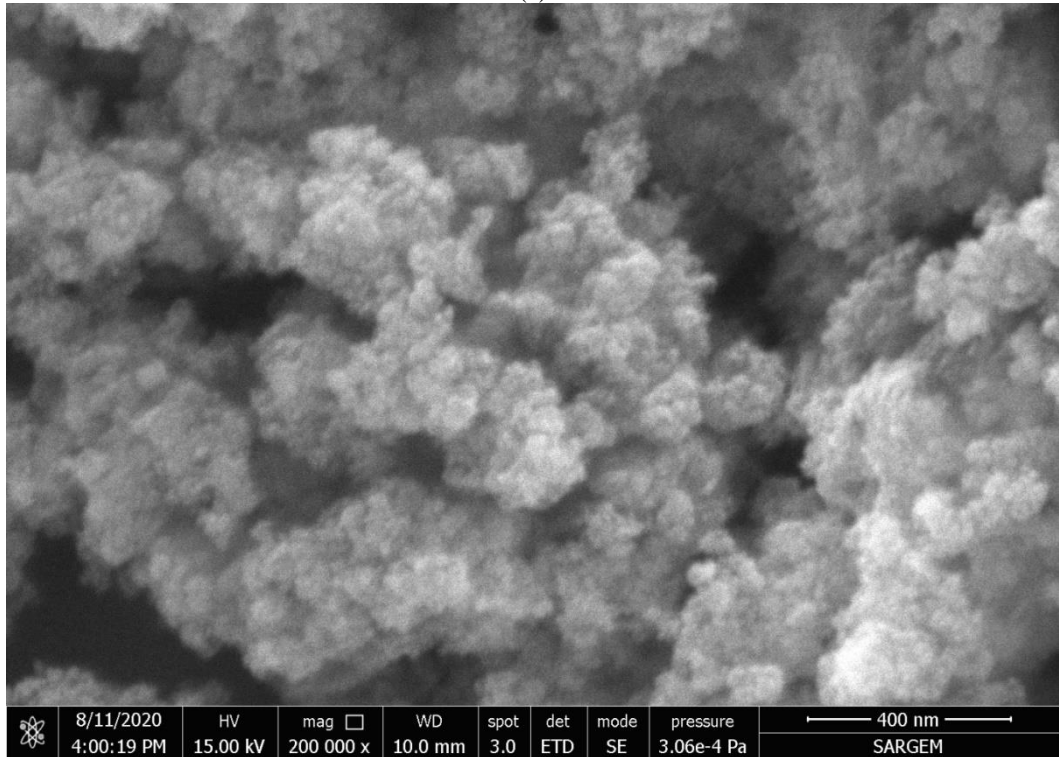
D1 kodlu numuneye ait FESEM sonuçlarına bakıldığı zaman, toz tane boyutunun nano seviyede olduğunu farklı büyütmelelerde yapılan incelemeler göstermektedir. Yüzeyin süngerli yapıya sahip olduğu gözlemlenmektedir. EDS sonuçlarına baktığımız zaman %58.19 O ve % 40.59 Si elementlerinin yapıda bulunduğu gözlemlenmektedir. Sol-jel aşamaları sırasında NaOH ve HCl' den yapıya geçen Na ve Cl'nin distile su ile yapıdan mümkün olduğunca uzaklaştığı görülmektedir.

D2 Kodlu (Atık Döküm kumu + NaOH +HCl) tozun 50.000X ve 200.000X büyütmelelerde FESEM mikroyapı görüntüleri Şekil 5.10., EDS sonuçları ise Şekil 5.11.'de verilmiştir.



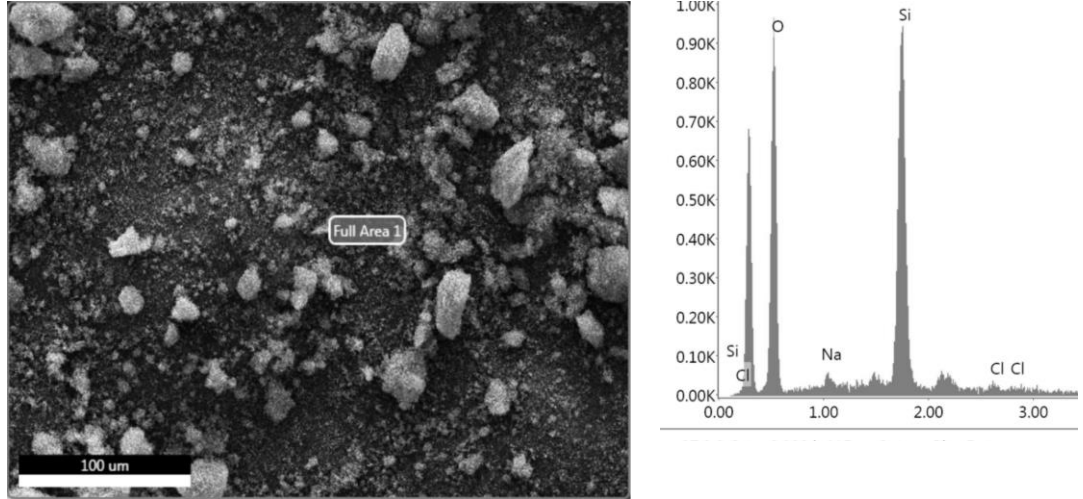


(a)



(b)

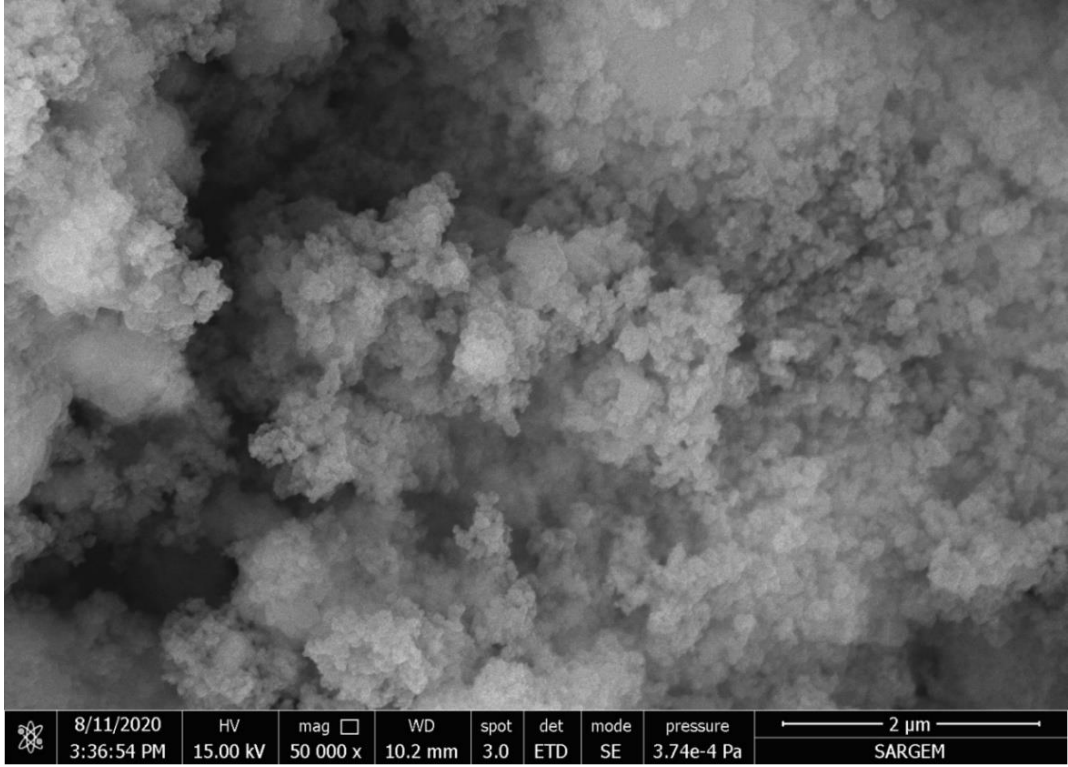
Şekil 5.11. D2 tozunun a) 50.000x (b) 200.000x büyütmelelerdeki FESEM görüntüleri



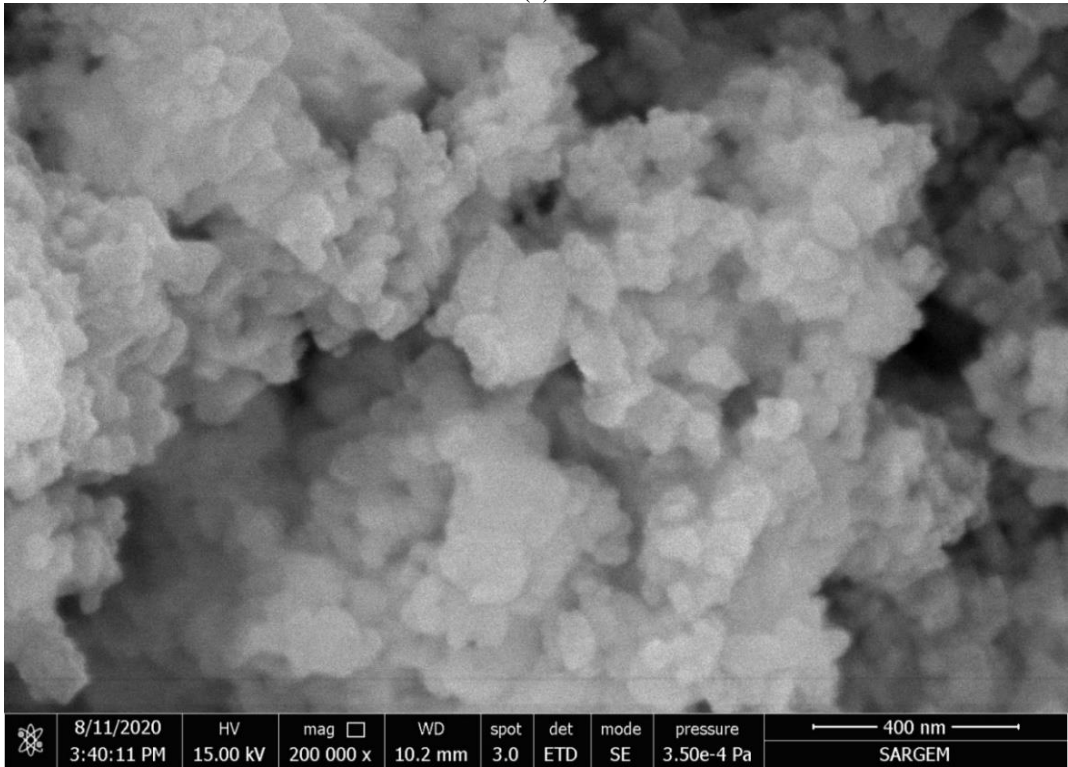
Şekil 5.12. D2 kodlu numunenin FESEM-EDS analizi

D2 kodlu numuneye ait FESEM sonuçlarına bakıldığında aglomerasyona rağmen toz tane boyutlarının nano seviyelerde olduğu gözlemlenmiştir. EDS sonuçlarında %59.12 O ve % 39.34 Si elementlerinin yapıda bulunduğu bunların yanı sıra sol-jel aşamaları sırasında NaOH ve HCl ilavelerinden yapıya geçen Na ve Cl'nin distile su ile yıkama işlemlerinden sonra yapıdan mümkün olduğunca uzaklaştırıldığı görülmektedir.

1 saat aktivasyon yapılmış D4 (1 saat Aktive döküm kumu +NaOH+5HCl) kodlu numunenin 50.000X ve 200.000X büyültmelerde mikroyapı görüntüleri Şekil 5.12., EDS sonuçları ise Şekil 5.13.'de verilmiştir.

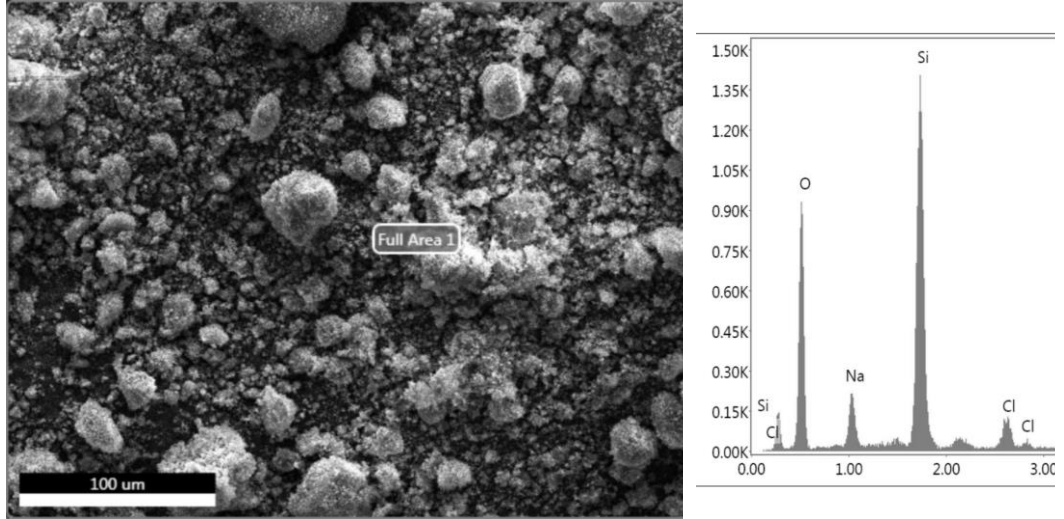


(a)



(b)

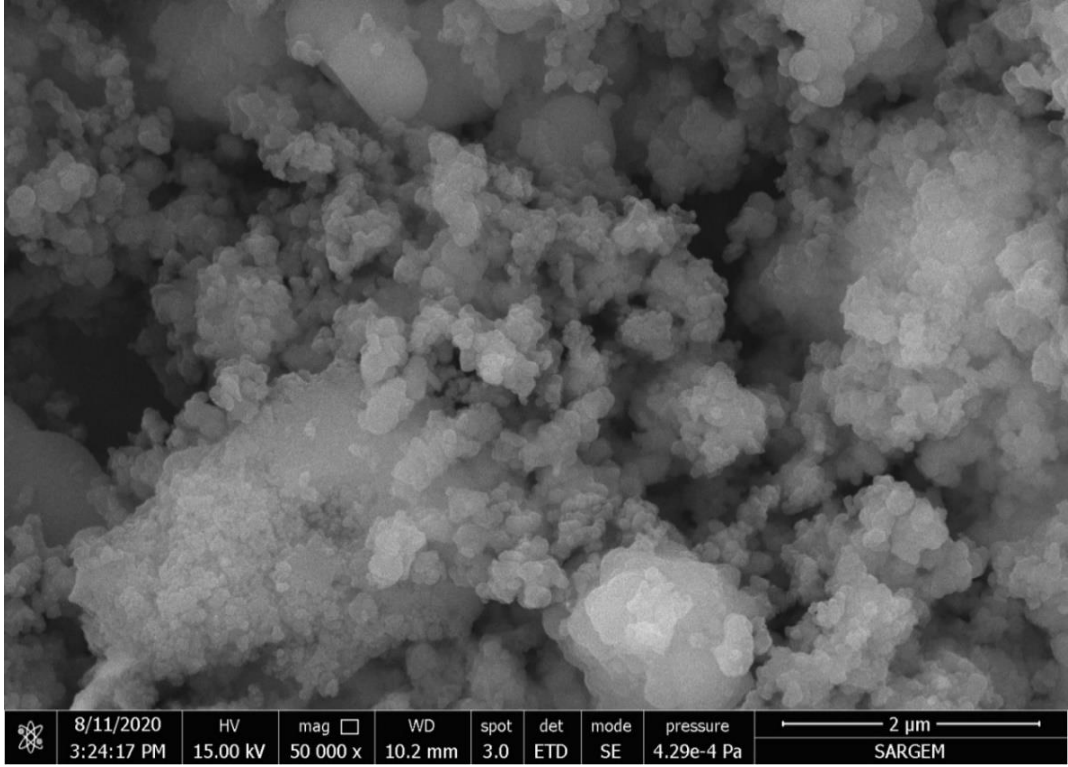
Şekil 5.13. D4 tozunun a) 50.000x (b) 200.000x büyütmeledeki FESEM görüntüleri



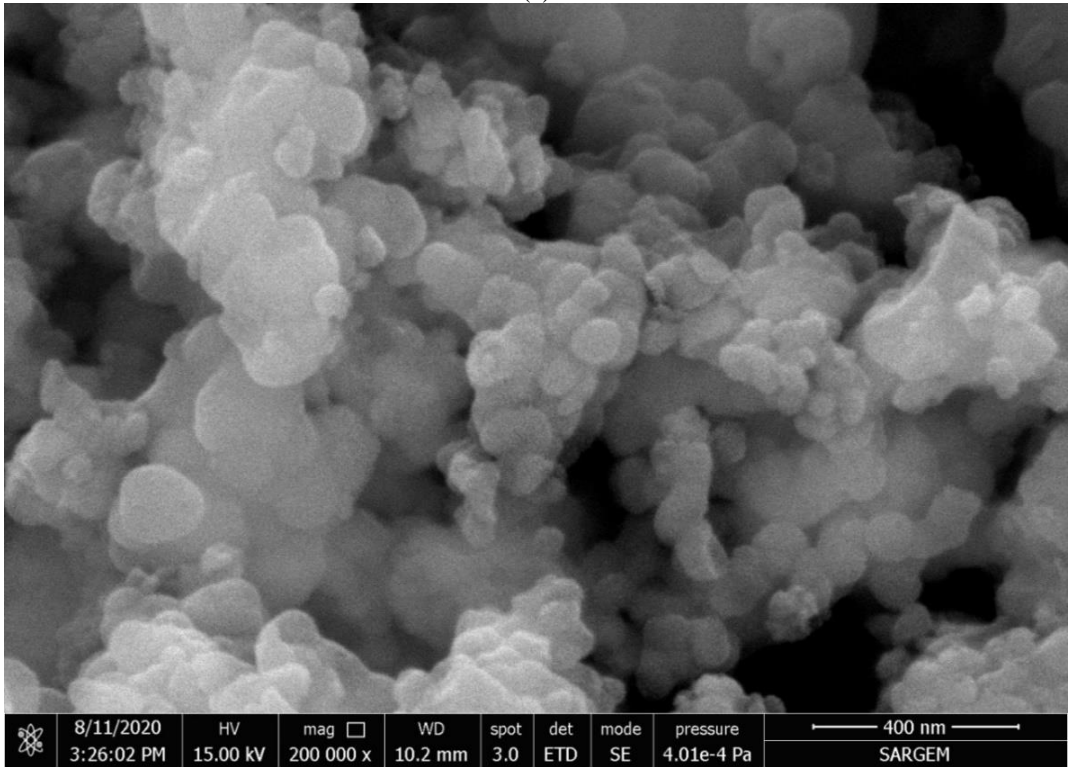
Şekil 5.14. D4 tozunun FESEM-EDS analizi

D4 kodlu numuneye ait FESEM sonuçlarına bakıldığı zaman, aglomerasyona rağmen toz tane boyutunun nano seviyede olduğu EDS sonuçlarına bakıldığında %46.97 O ve % 39.40 Si elementlerinin yapıda bulunduğu gözlemlenmektedir. Sol-Jel aşamaları sırasında kullanılan HCl miktarının artışı yapıda Na ve Cl miktarını arttırdığı ve distile su ile yıkamanın yetersiz kaldığını da EDS analizi göstermektedir.

1 saat aktivasyon yapılmış D5 (1 saat Aktive atık döküm kumu +NaOH+5HCl) kodlu numunenin 50.000X-200.000X büyültmelerdeki mikroyapı görüntüleri Şekil 5.14., EDS sonuçları ise Şekil 5.15.'de verilmiştir.

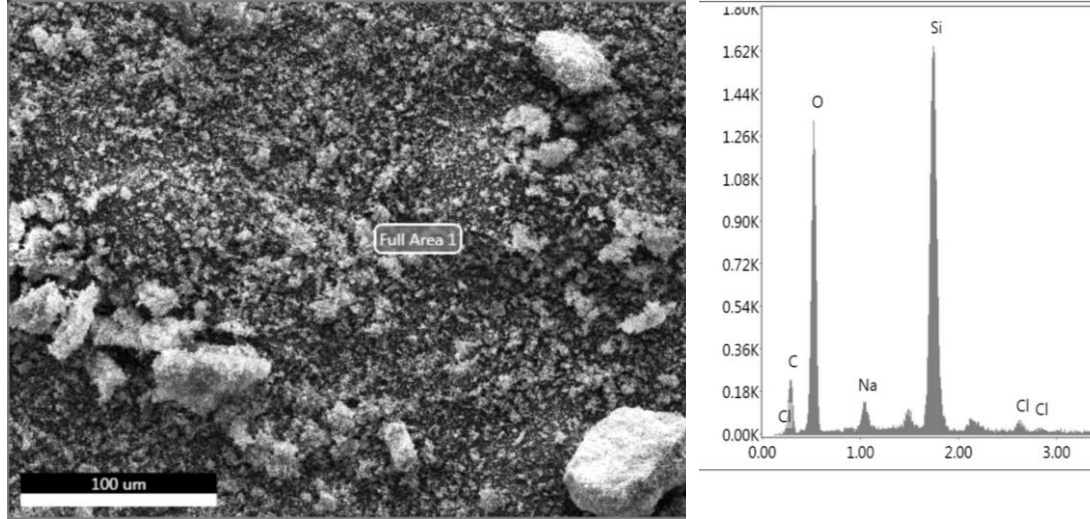


(a)



(b)

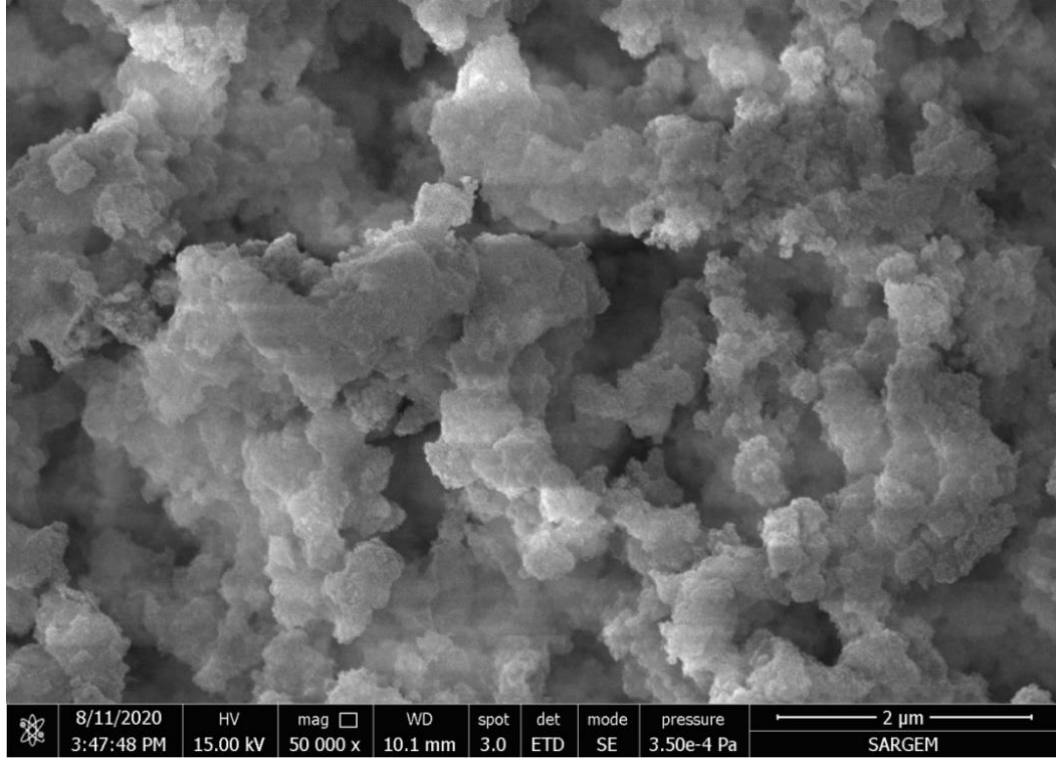
Şekil 5.15. D5 tozunun a) 50.000x (b) 200.000x büyültmelerdeki FESEM görüntüleri



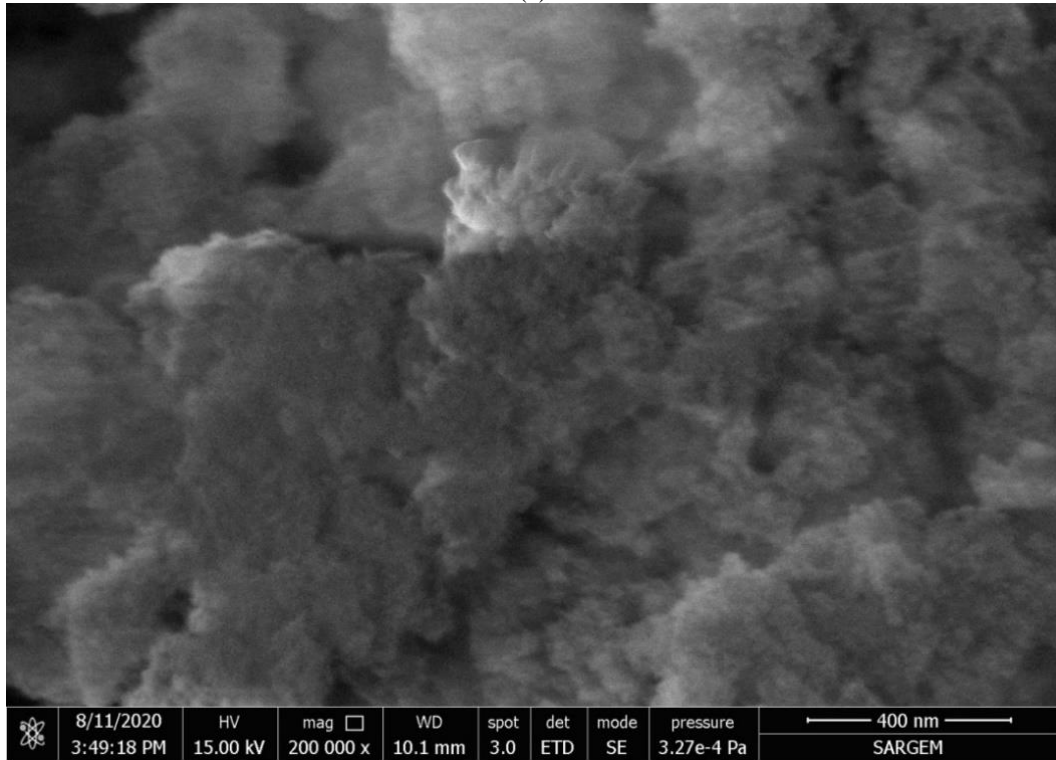
Şekil 5.16. D5 kodlu tozun FESEM-EDS analizi

D5 kodlu atık döküm kumundan elde edilen numuneye ait FESEM mikroyapı analizinde aglomerasyona uğramış nano seviyede toz tane boyutu EDS sonuçlarında %46,77 O ve %26,07 Si elementlerinin yapıda bulunduğu gözlemlenmektedir. Sol-jel aşamaları sırasında kullanılan HCl miktarının artışına rağmen, D4 kodlu döküm kumundan elde edilen numuneye göre Na ve Cl % oranları daha düşük tespit edilmiştir. Yıkama işleminin bu bileşimde daha başarılı sonuçlanmıştır.

Sodyum Hidroksit yerine Potasyum Hidroksit içeren D6 (döküm kumu +KOH+HCl) kodlu numunenin 50.000X-200.000X büyültmelerde mikroyapı görüntüleri Şekil 5.16., EDS sonuçları ise Şekil 5.17.'de verilmiştir.

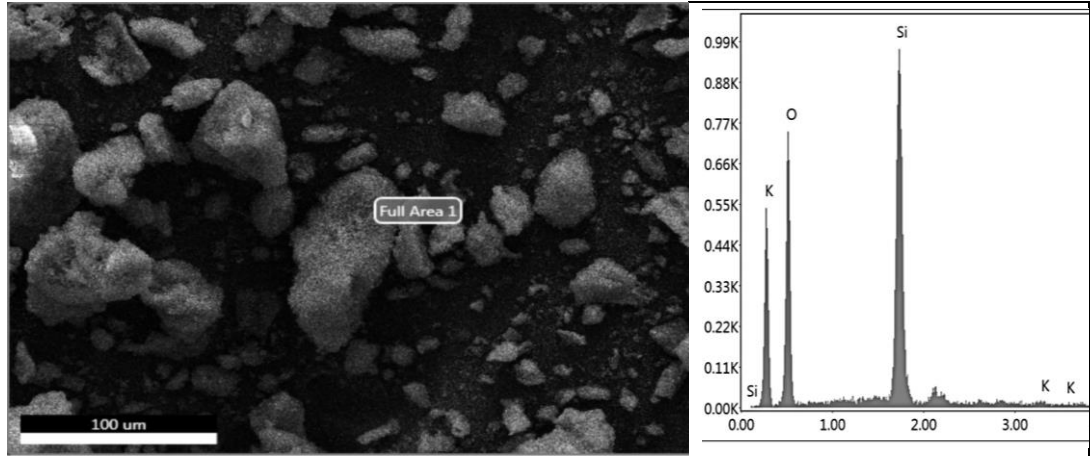


(a)



(b)

Şekil 5.17. D6 kodlu tozun a) 50.000x (b) 200.000x büyültmelerdeki FESEM görüntüleri



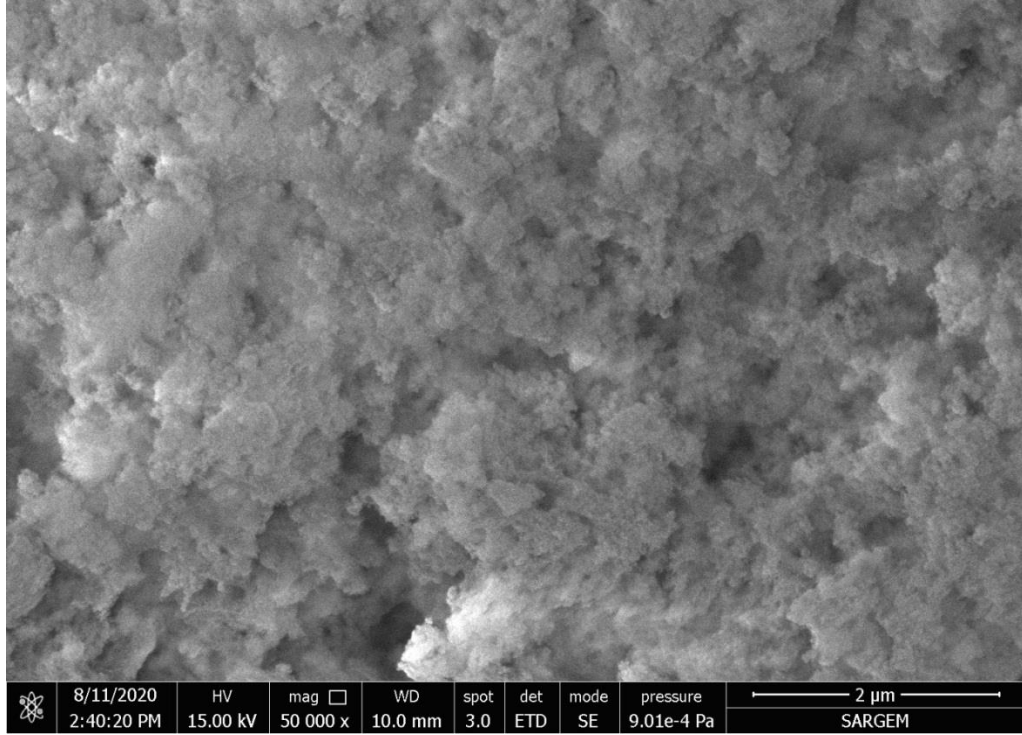
| Element | ağ.% Bileşim |
|---------|--------------|
| O       | 54.39        |
| Si      | 44.51        |
| K       | 1.10         |

Şekil 5.18. D6 kodlu tozun FESEM-EDS analizi

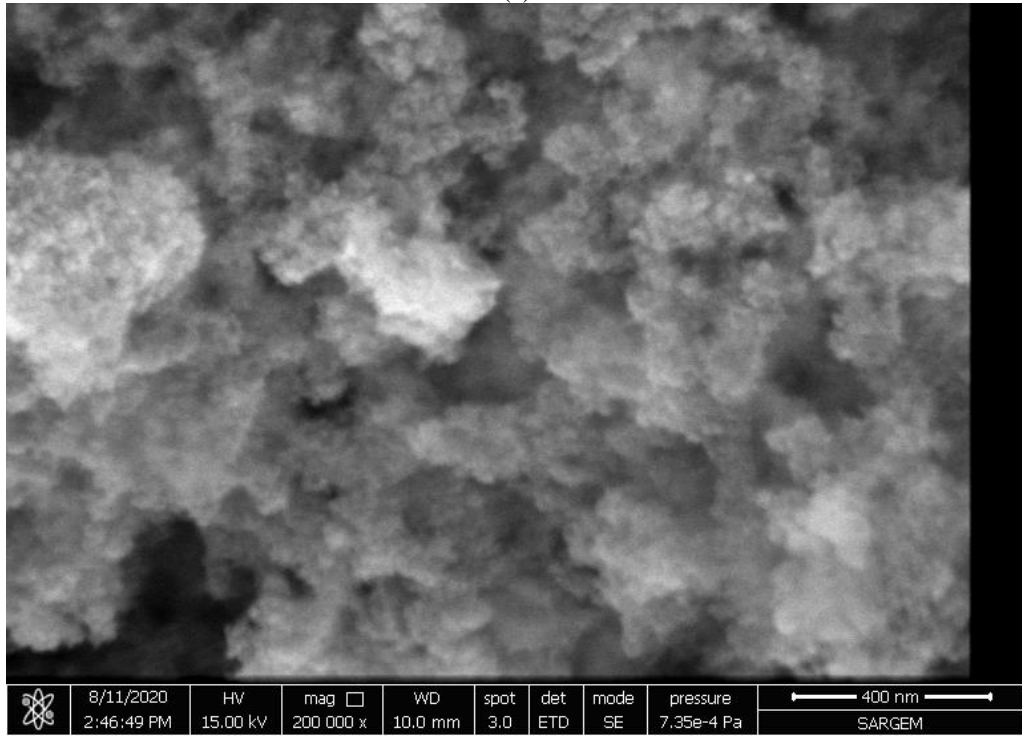
D6 kodlu numuneye ait FESEM sonuçlarına bakıldığında toz tane boyutundaki nano seviye, aglomere olmuş toz taneleri 200.000X büyültmedeki çok net olmayan mikroyapıda toz boyutundaki azalan yöndeki değişim dikkat çekmekte olup; EDS analizi sonuçlarına göre ağ. %54,39 O ve %44,51 Si elementlerinin yapıda bulunduğu gözlemlenmektedir. Yapı içerisinde NaOH yerine kullanılan KOH'tan dolayı K piki tespit edilmiştir. Saf su ile yapılan distile işleminin mümkün olduğunca yapıdan K ve Cl'nin uzaklaştırdığı gözlemlenmiştir.

Sodyum Hidroksit yerine Potasyum Hidroksit içeren D7 (Atık döküm kumu +KOH+HCl) kodlu numunenin 50.000X ve 200.000X büyültmelerde mikroyapı görüntüleri Şekil 5.18., EDS sonuçları ise Şekil 5.19.'da verilmiştir.



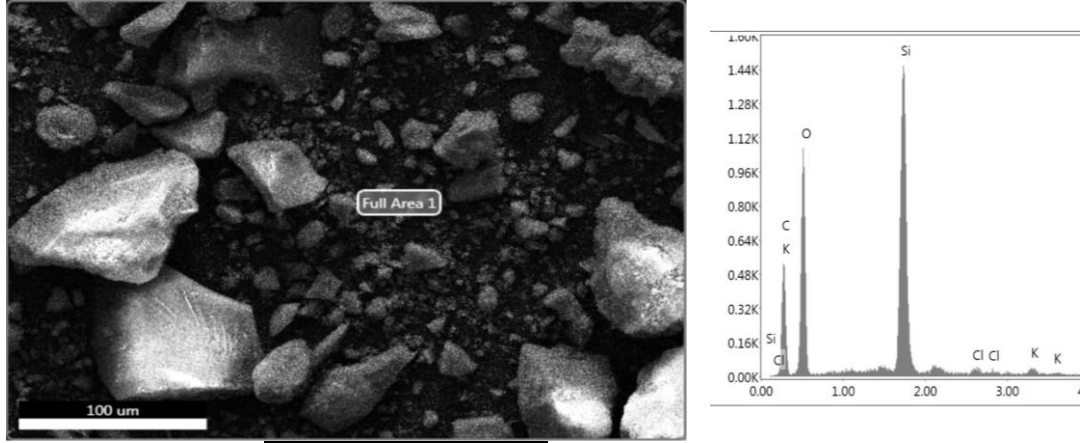


(a)



(b)

Şekil 5.19. D7 kodlu tozun (a) 50.000x (b)200.000x büyültmelerdeki FESEM görüntüleri

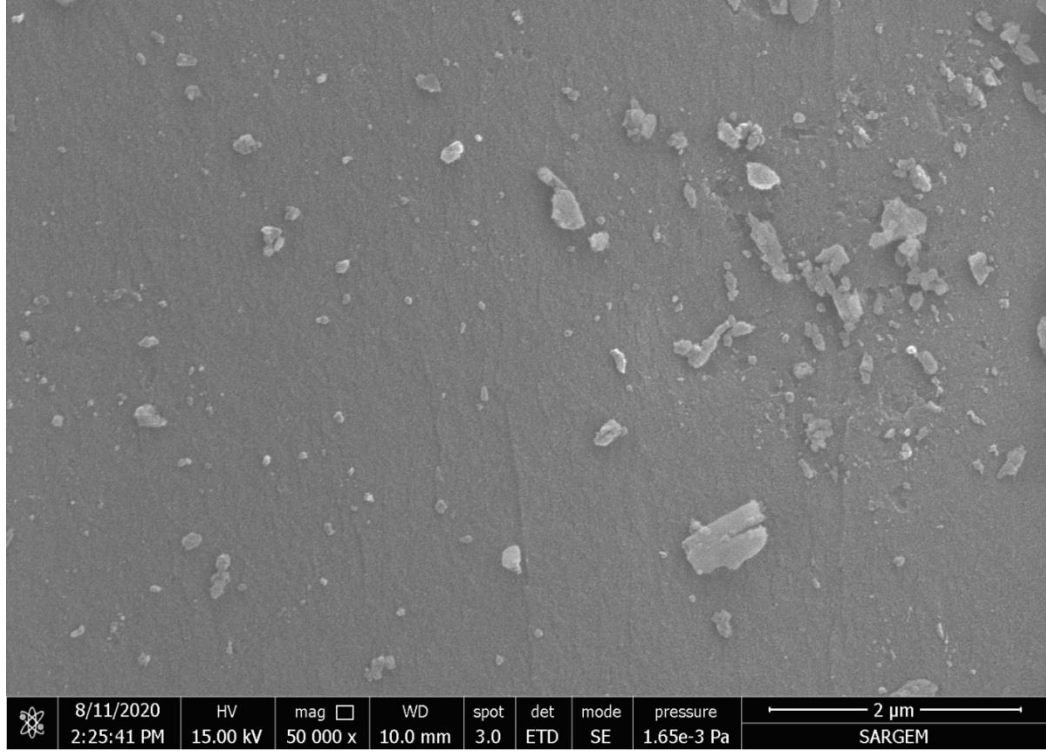


| Element | ağ.%  |
|---------|-------|
| C       | 38.88 |
| O       | 40.24 |
| Si      | 19.87 |
| Cl      | 0.39  |
| K       | 0.63  |

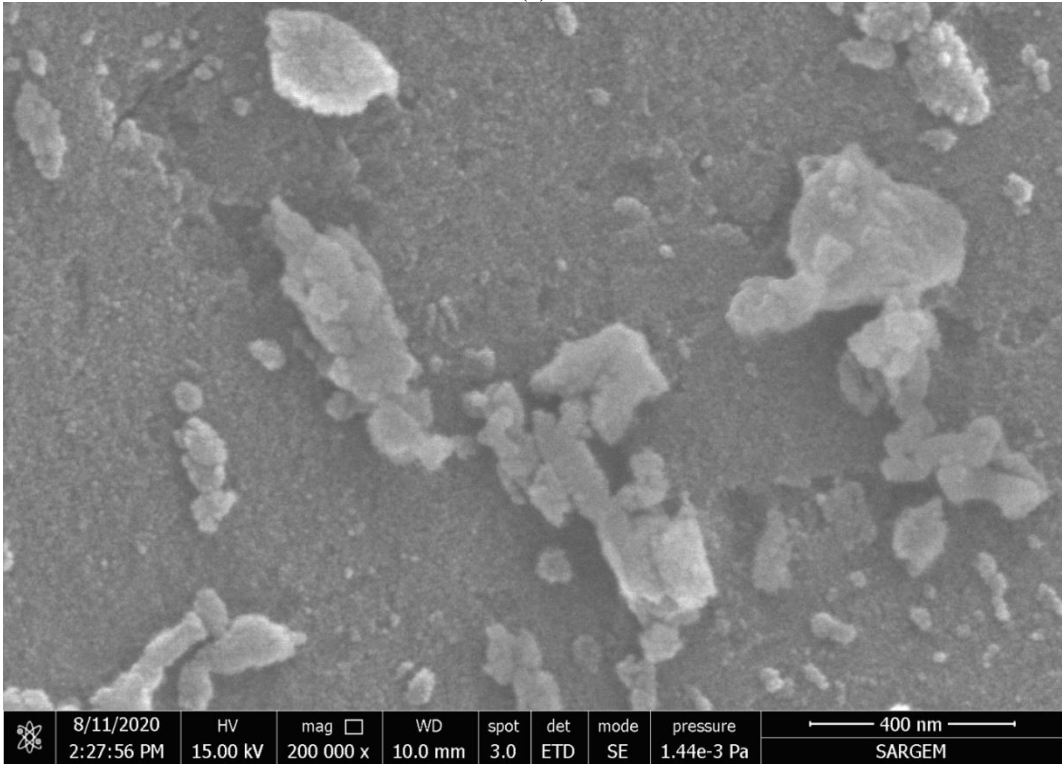
Şekil 5.20. D7 kodlu tozun FESEM-EDS analizi

D7 kodlu numuneye ait FESEM sonuçlarına bakıldığında toz tane boyutunun nano seviyede olduğu, toz boyutunun nano seviyede olmasından dolayı yer yer aglomere olmuş tanelere rastlanılmaktadır. EDS sonuçlarına göre ağ. %40,24 O ve %19,87 Si elementlerinin yapıda bulunduğu gözlemlenmektedir. Yapı içerisinde NaOH yerine kullanılan KOH' den dolayı K piki tespit edilmekle birlikte; saf su ile yapılan distile işleminin mümkün oldukça yapıdan K ve Cl elementlerini uzaklaştırdığı gözlemlenmiştir.

D8 (Döküm kumu +NaOH+5HCl) kodlu numunenin 50.000X-200.000X büyültmelerde mikroyapı görüntüleri Şekil 5.20., EDS sonuçları ise Şekil 5.21.'de verilmiştir.

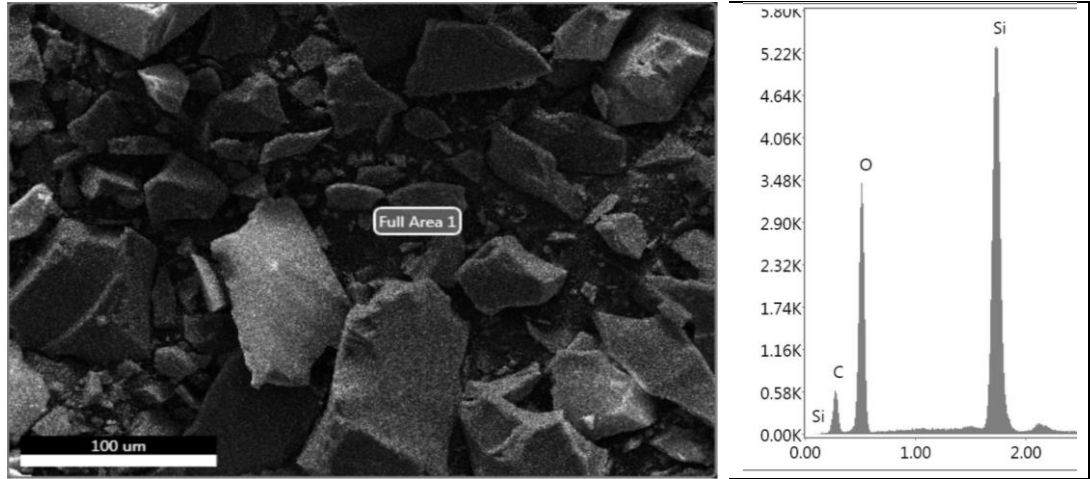


(a)



(b)

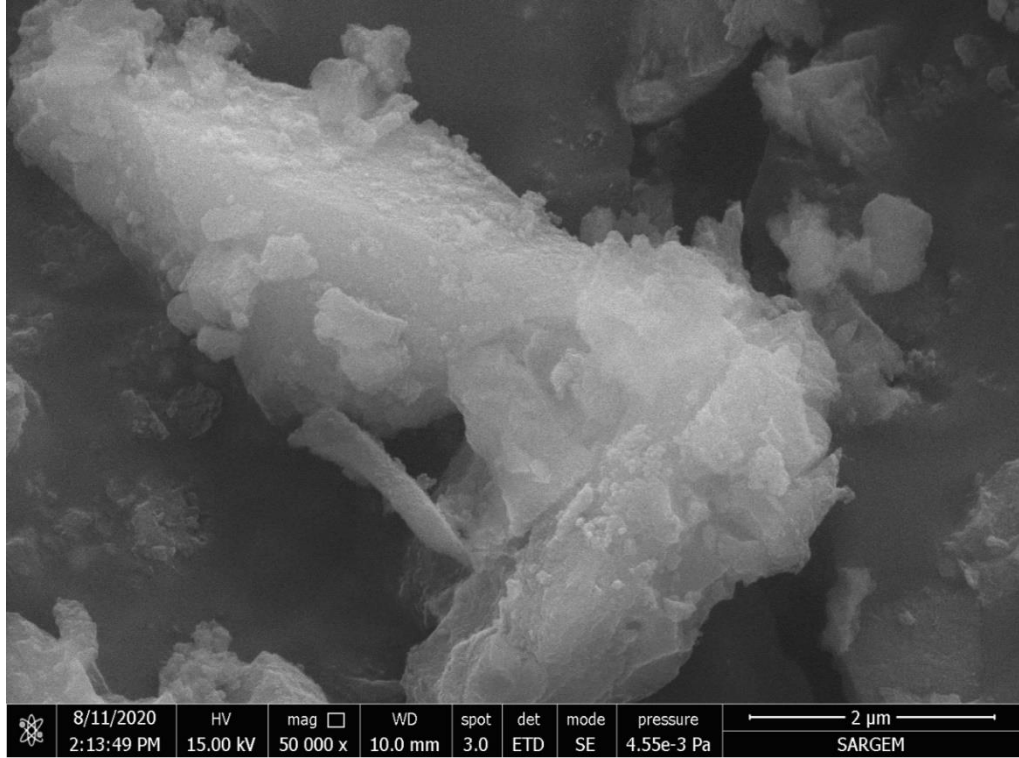
Şekil 5.21. D8 kodlu tozun a) 50.000x (b) 200.000x büyütmelerdeki FESEM görüntüleri



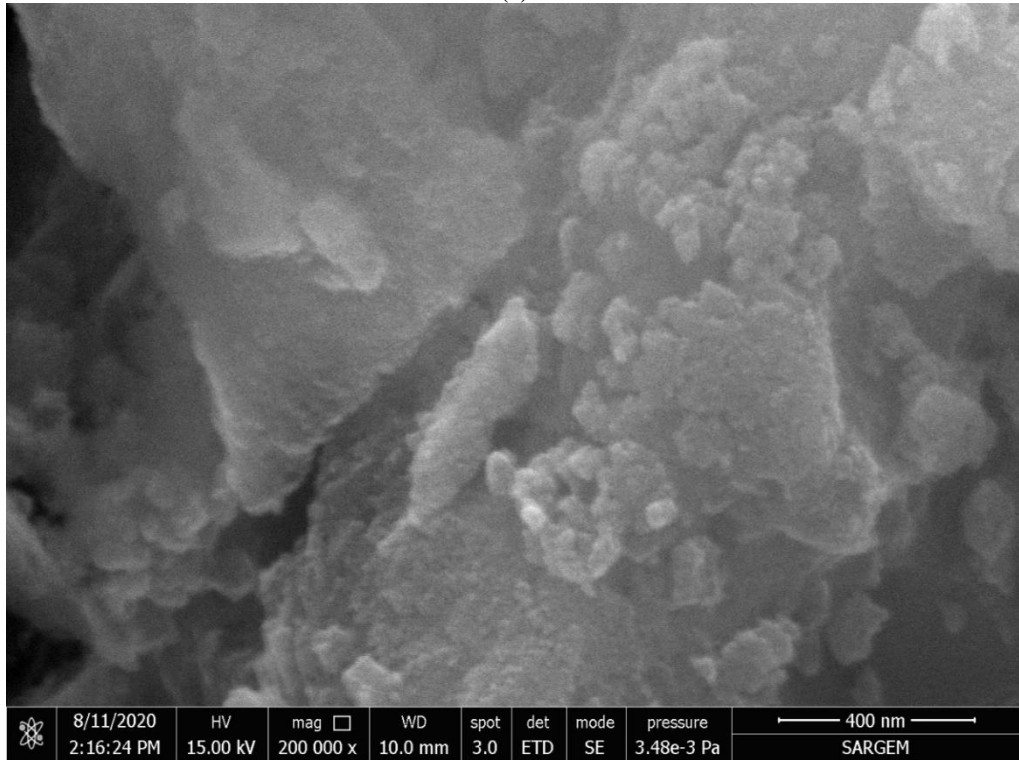
Şekil 5.22. D8 kodlu tozun FESEM-EDS analizi

D8 kodlu (Döküm kumu +NaOH+5HCl) numuneye ait FESEM sonuçları, nano boyutta, geniş tane dağılımına sahip gözenekli ve aglomere olmuş yapıya sahip olduğu gözlemlenmektedir. Distile su ile yapılan yıkama işlemleri ile yapıda istenmeyen ilavelerin uzaklaştığını göstermektedir. Tespit edilen C piki kullanılan karbon banttın kaynaklanmaktadır.

D9 (Döküm kumu +KOH+5HCl) kodlu numunenin 50.000X ve 200.000X büyütmelemlerde mikroyapı görüntüleri Şekil 5.22., EDS sonuçları ise Şekil 5.23.'de verilmiştir. Toz tane boyutunun büyük olması tozun kurutma aşamasından sonra öğütme işlemine tabi tutulmasından kaynaklı olduğu düşünülmektedir. Asit konsantrasyonunun artması nedeni ile standart uygulanan kaynar su ile 3 defa yıkama işleminin mevcut toz içinde yetersiz kaldığı belirtilebilir.

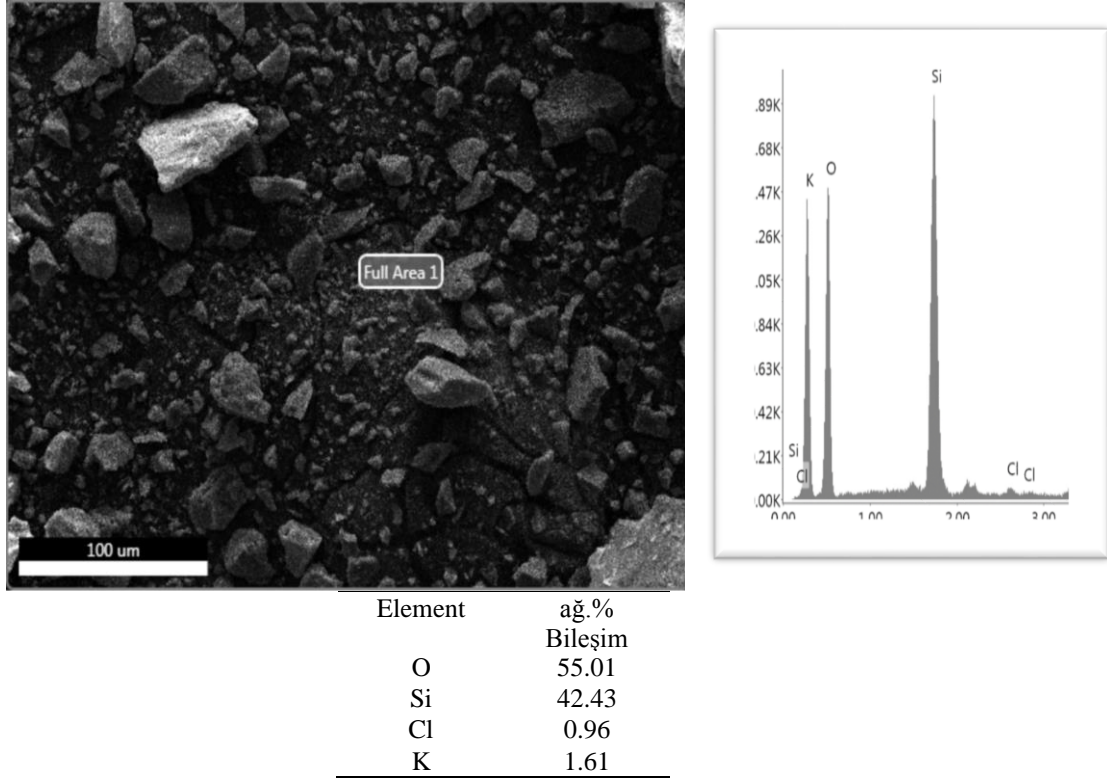


(a)



(b)

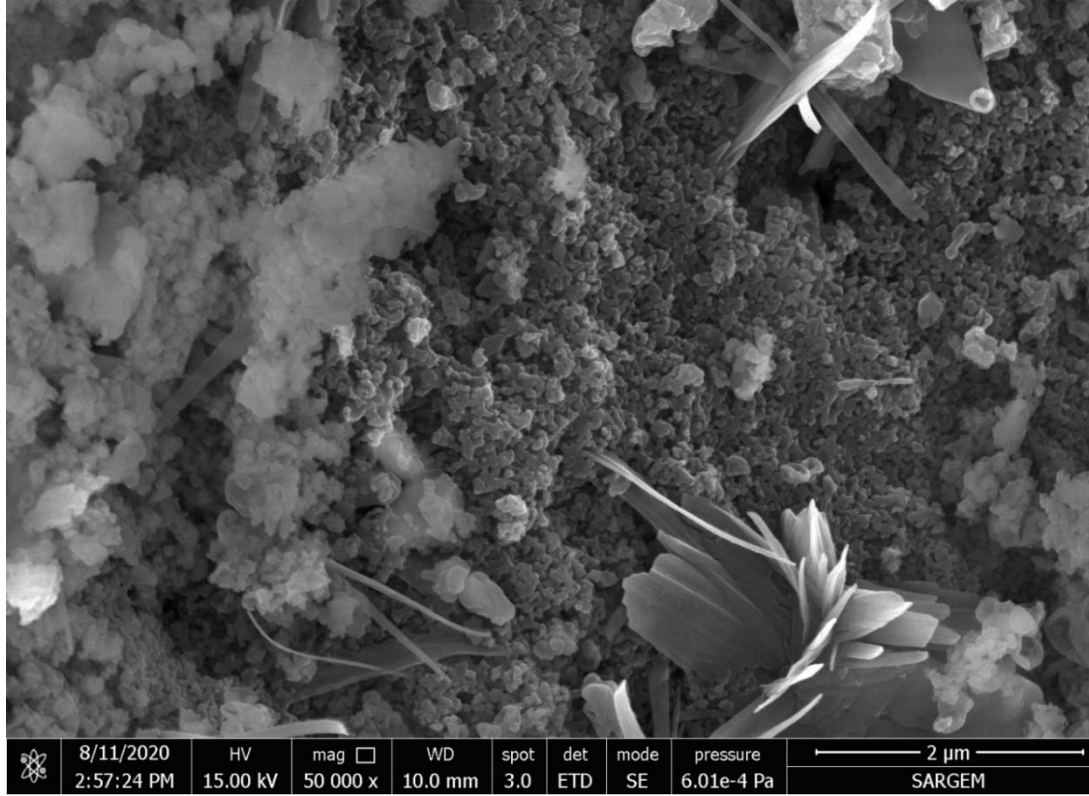
Şekil 5.23. D9 tozunun a)50.000x (b)200.000x büyütmelerde ki FESEM görüntüleri



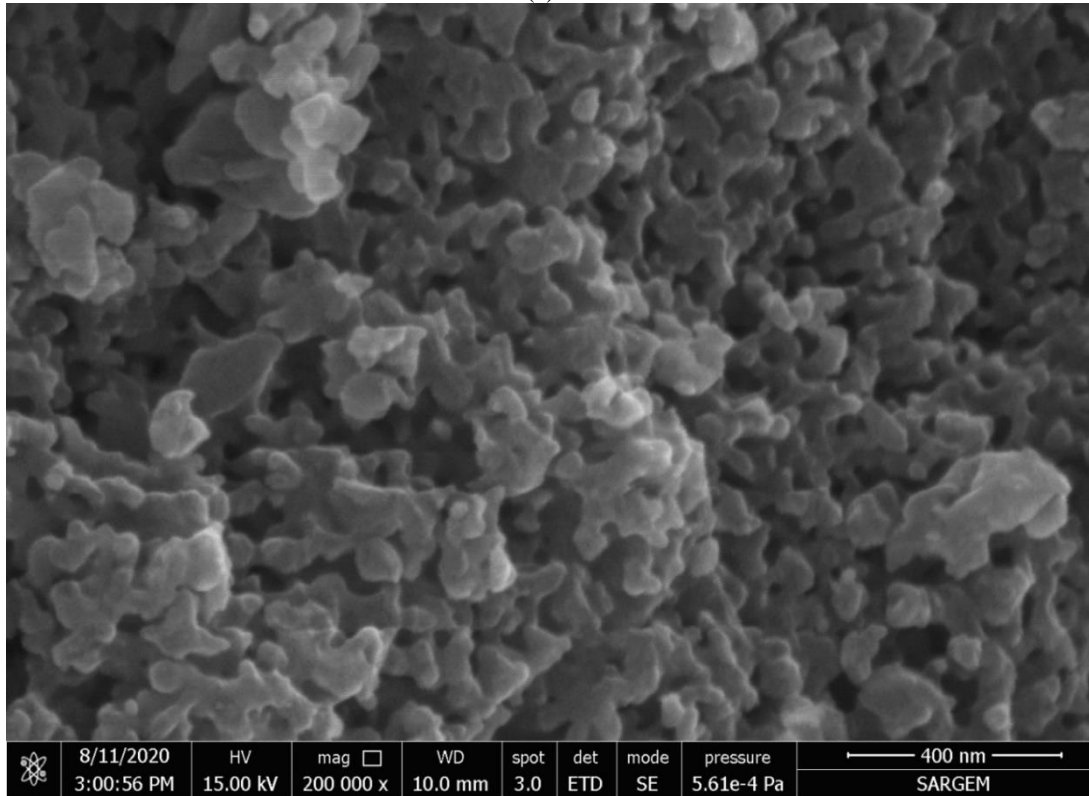
Şekil 5.24. D9 kodlu tozun FESEM-EDS analizi

Asit kaynağı değiştirilerek elde edilmiş D10 (Döküm kumu +NaOH+H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>) kodlu numunenin 50.000X-200.000X büyültmelerdeki mikroyapı görüntüleri Şekil 5.24., EDS sonuçları ise Şekil 5.25.'de verilmiştir. Yapılan incelemelerde hem kullanılan asite hem de baza ait bileşenlerin toz tanelerinden yeterince uzaklaştırılmadığı tespit edilmiştir.

D11 kodlu tozun (filtre edilmiş D10 atığından elde edilmiş) 50.000X-200.000X büyültmelerde mikroyapı görüntüleri Şekil 5.26., EDS sonuçları ise Şekil 5.27.'de verilmiştir. D11 kodlu numuneye ait FESEM sonuçlarına bakıldığında toz tane boyutunun nano seviyelerde olduğu, aglomere olan tozların küresel tane şekline sahip olduğu toz boyut dağılımının daha homojen olduğu belirtilebilir. EDS sonuçlarına göre ise ağ. %52,86 O ve %47,14 Si elementlerine ait piklerin yapıda bulunduğu gözlemlenmektedir. Distile su ile yapılan yıkama işlemleri ile yapıda istenmeyen ilavelerin uzaklaştığı da tespit edilmiştir.

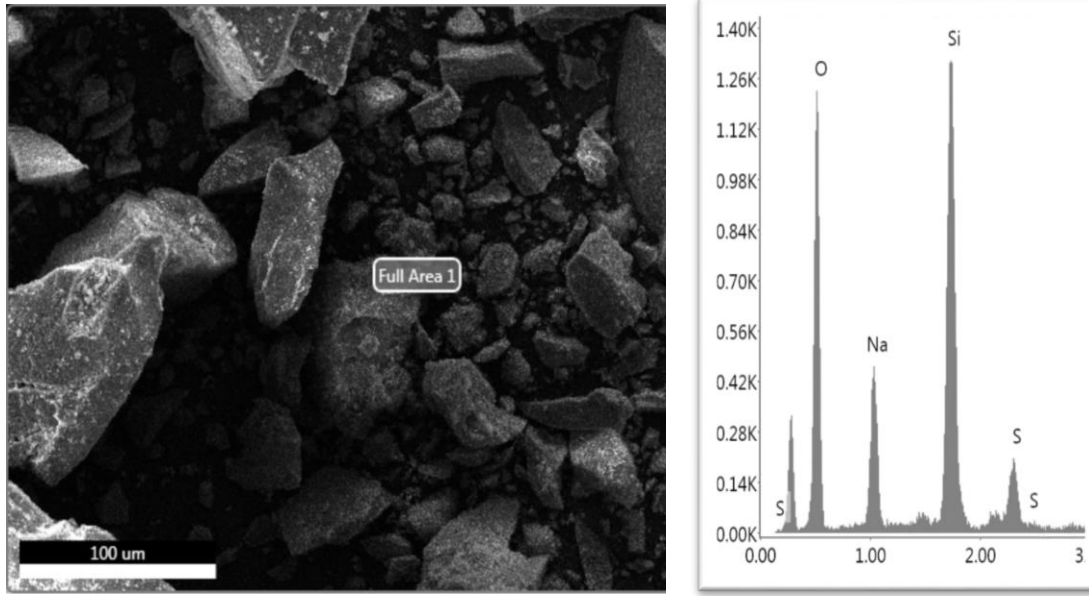


(a)



(b)

Şekil 5.25. D10 kodlu tozun a) 50.000x (b) 200.000x büyültmelerdeki FESEM görüntüleri



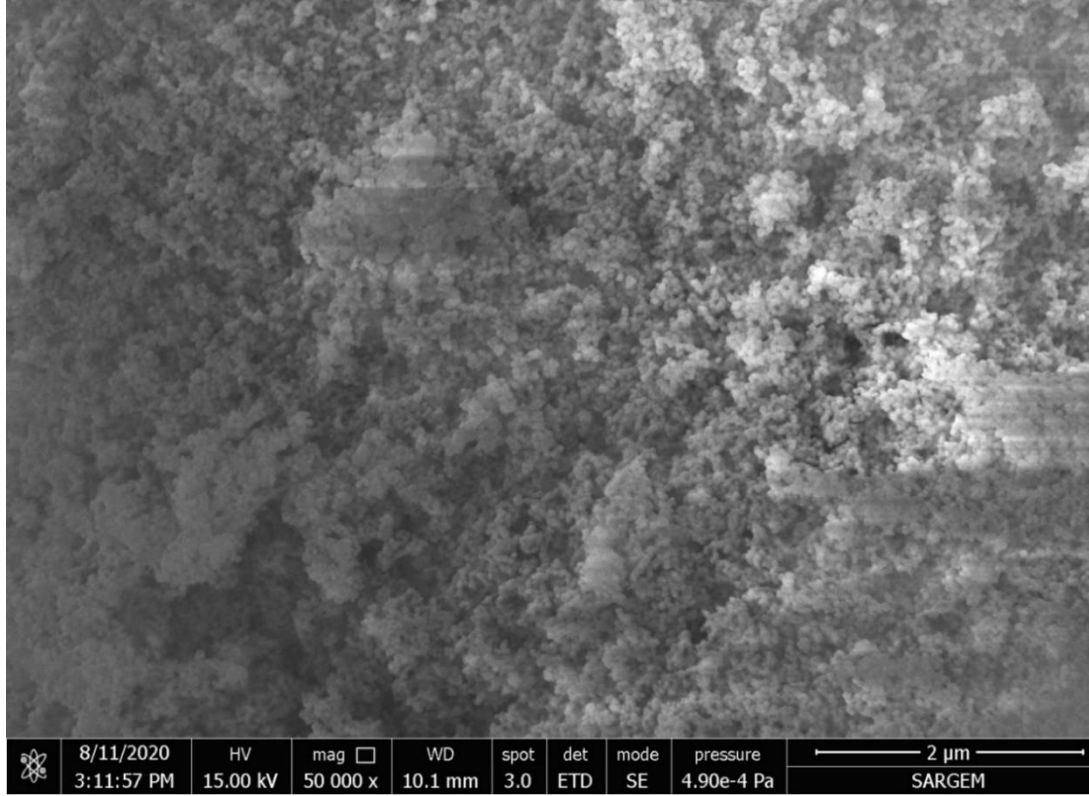
Şekil 5.26. D10 kodlu tozun FESEM-EDS analizi

Mermer, N.K., yapmış olduğu çalışmada uçucu kül, taban külü ve kumdan elde ettiği silika aerogellerin SEM mikroyapı analizini 100x, 1000x, 2500x, 5000x büyütmelerde incelemiştir. Tane boyutunun homojen olmadığını, köşeli tane yapısına, taneler arasında topaklanmaların olduğunu belirlemiştir [46].

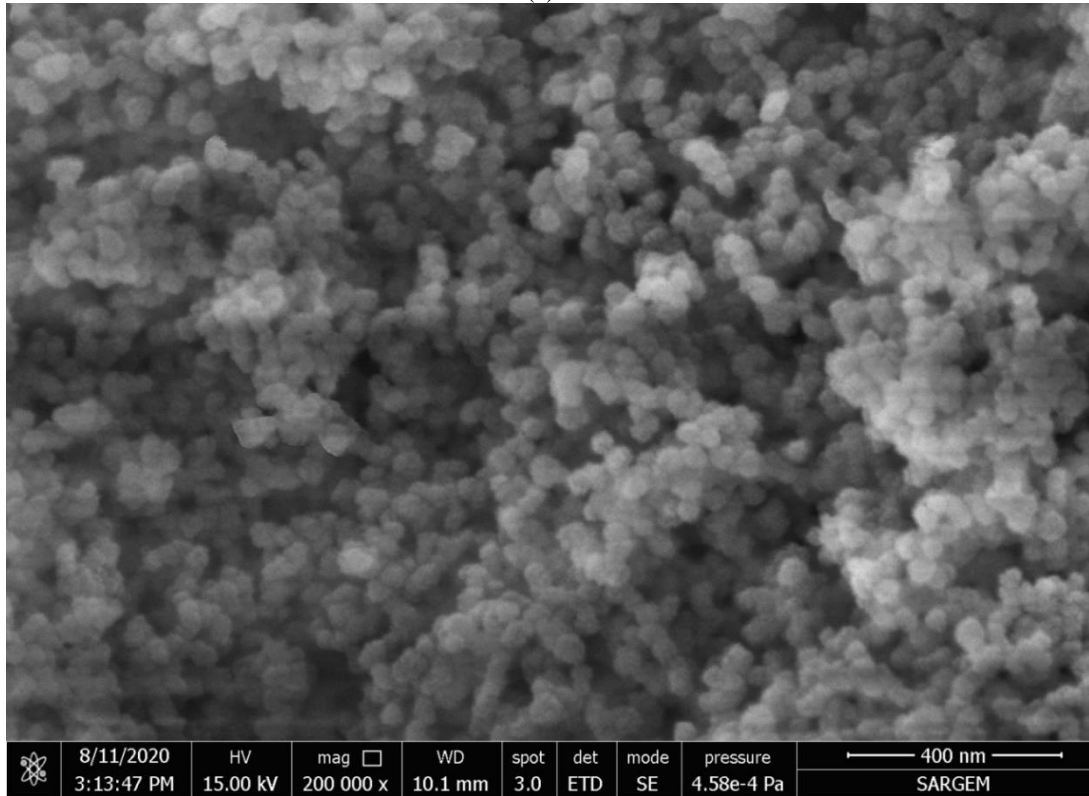
Çok ve ark. yapmış oldukları çalışmada %20 MTES, %20 MEMO, %20 TMCS, % 20 MTMS sililasyon ajanlarını içinde barındıran silika aerogelleri incelemiştir. Geniş gözenekli ve iri taneli nano boyutta görünüm elde etmiştir [36].

Shewale ve arkadaşları TCMS ve HDMZ modifikasyon ajanları kullanarak yapmış olduğu çalışmada, nano boyutta ve yüksek gözenekli mikroyapı saptamıştır [39].



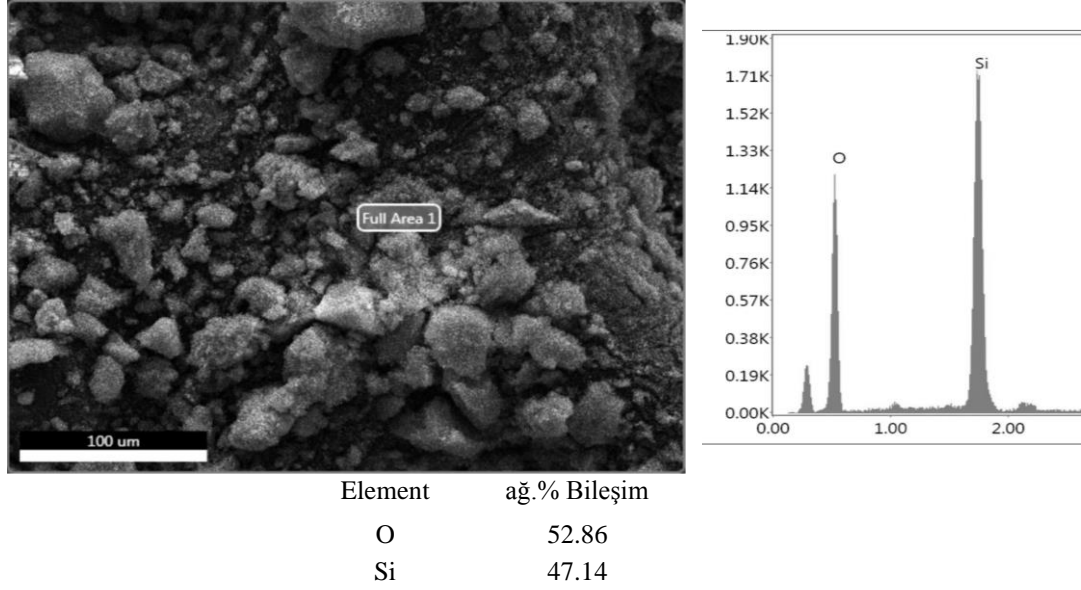


(a)



(b)

Şekil 5.27. D11 tozunun a)50.000x (b)200.000x büyütmelemlerde ki FESEM görüntüleri



Şekil 5.28. D11 tozunun FESEM-EDS analizi

Saraç, perlit, kuvars, pomza, soda şişesi, pencere camı hammaddelerinden ürettiği silika aerojeller de süngerimsi yapı ve delikli gözenekler saptamıştır. Aynı zamanda distile su ile yıkama işlemiyle yapıda istenmeyen ilavelerin uzaklaştırma işleminin yetersiz kaldığı veriler de elde etmiştir [47].

Mevcut çalışmada elde veriler ve literatürdeki bilgilerle karşılaştırıldığı zaman elde edilen verilerin kabul edilebilir olduğunu belirtebiliriz.

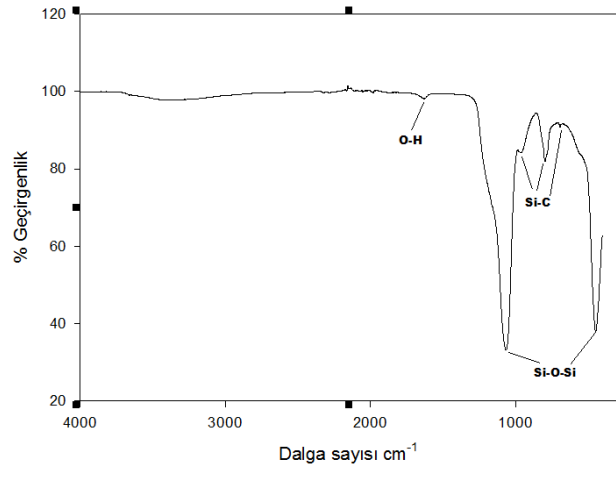
### 5.3. FTIR Analizi

Döküm kumu ve atık döküm kumundan üretilen silika esaslı aerjel tozlarının yapısında bulundurduğu farklı bağlara ait titreşim frekansları ölçülmesi maksadı ile fonksiyonel gruplar hakkında bilgi sahibi olabilmek için FTIR analizi gerçekleştirilmiştir. Spektrum 400-4000  $\text{cm}^{-1}$  dalga boyu aralığında yapılmıştır. 400-4000  $\text{cm}^{-1}$  dalga boyu arasındaki bu bölge küçük değişiklerin yaşandığı parmak izi bölgesidir. Numune kodları ve her numunede oluşan piklerin türü ve dalga boyları Tablo 5.2’de gösterilmektedir.

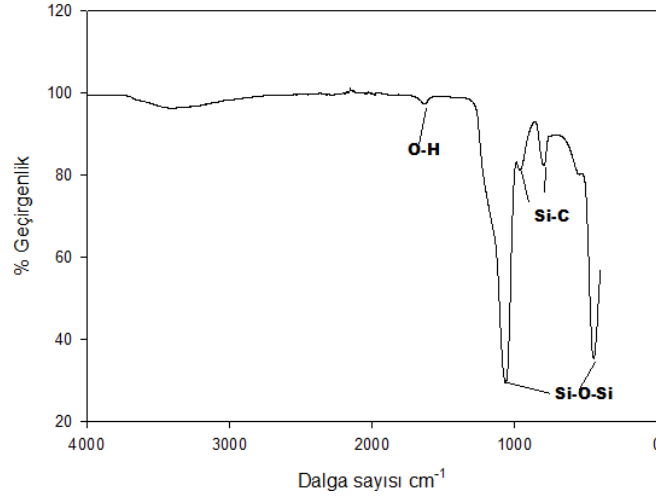
Tablo 5.2. Silika aerojel tozlarına ait FTIR dalga boyu değerleri

| Kodlar | Si-O-Si Asimetrik Pik | Si-O-Si Simetrik Pik | O-H Adsorbsiyon Pik | Si-C Pik     |
|--------|-----------------------|----------------------|---------------------|--------------|
| D1     | 1067                  | 450                  | 1633                | 965 -796-696 |
| D2     | 1067                  | 450                  | 1630                | 965-796      |
| D4     | 1066                  | 451                  | 1631                | 960-796      |
| D5     | 1069                  | 451                  | 1635                | 797          |
| D6     | 1069                  | 449                  | 1632                | 973-799      |
| D7     | 1067                  | 447                  | 1635                | 966-798      |
| D8     | 1060                  | 441                  | 1631                | 955-793      |
| D9     | 1060                  | 440                  | 1638                | 965-793      |

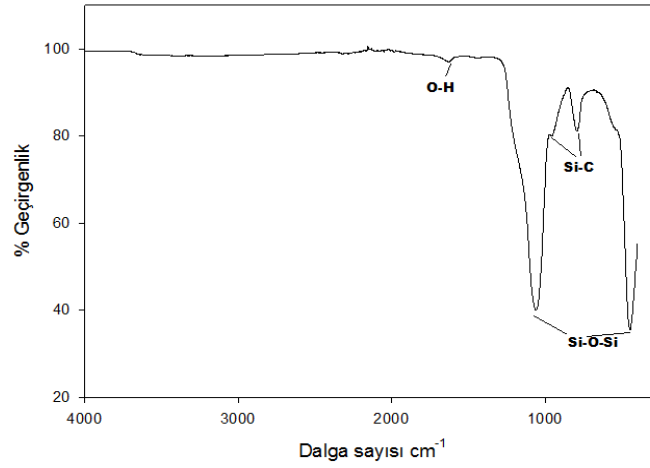
Şekil 5.28.'de D1 kodlu numuneye yapılan FTIR analizi sonuçları verilmiştir. 1067  $\text{cm}^{-1}$  de oluşan asimetrik ve 450  $\text{cm}^{-1}$  'de bağlanan simetrik Si-O-Si bağlanmaları dolayısı ile belirgin ve güçlü pik oluşmaktadır. Si-O-Si piklerinin oluşması sililasyon ajanı olarak kullanılan TEOS'dan -Si-CH<sub>3</sub> gruplarının aerojel yüzeyine geçtiğini göstermektedir. Titreşimden dolayı Si-C pikleri meydana gelmiştir. 1640  $\text{cm}^{-1}$ 'de fiziksel olarak emilen su dolayısı ile -O-H bağları oluşmuştur. Yüzeyde tutunan ve gözeneklerin içine nüfuz eden su -OH bağlarının oluşum kaynağıdır. FTIR analizinde oluşan piklerin şiddeti bağların kuvvetli oluşu ile doğru orantılıdır.



Şekil 5.29. D1 Kodlu numuneye ait FTIR Analizi



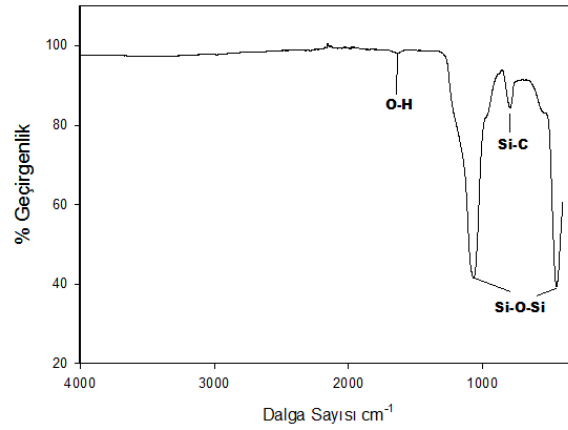
Şekil 5.30. D2 kodlu numuneye ait FTIR analizi



Şekil 5.31. D4 kodlu numuneye ait FTIR analizi

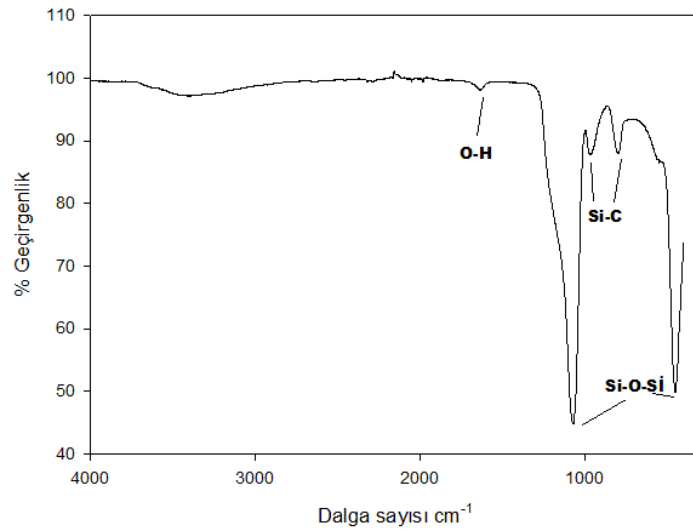
Şekil 5.29. D2 kodlu numuneye ait FTIR analizi sonuçları verilmiştir.  $1630\text{ cm}^{-1}$ 'de O-H ağ piki,  $1067$  ve  $450\text{ cm}^{-1}$ 'de belirgin ve güçlü Si-O-Si bağ pikleri,  $965$  ve  $796\text{ cm}^{-1}$ 'de Si-C ağ pikleri oluşmaktadır.

Şekil 5.30. D4 kodlu numuneye ait FTIR analizi sonuçları verilmiştir.  $1631\text{ cm}^{-1}$ 'de O-H ağ piki,  $1066$  ve  $451\text{ cm}^{-1}$ 'de belirgin ve güçlü Si-O-Si bağ pikleri,  $960$  ve  $796\text{ cm}^{-1}$ 'de Si-C ağ pikleri oluşmaktadır.



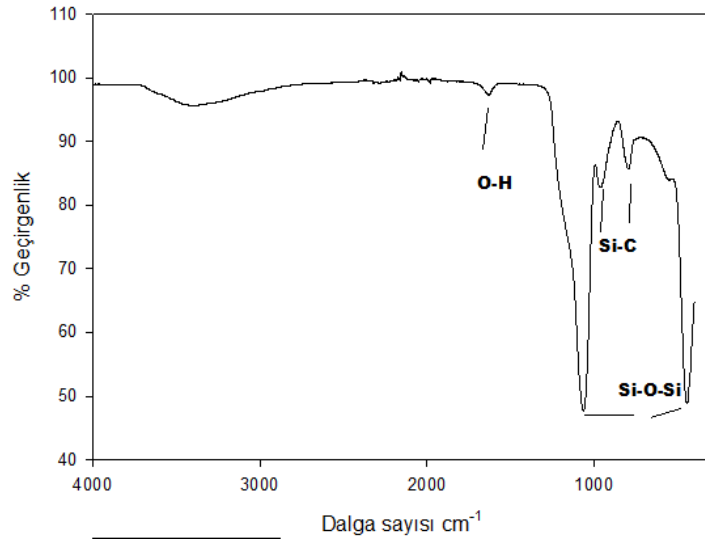
Şekil 5.32. D5 kodlu numuneye ait FTIR analizi

Şekil 5.31.'de D5 kodlu numuneye ait FTIR analizi sonuçları verilmiştir.  $1635\text{ cm}^{-1}$ 'de O-H ağ piki,  $1069$  ve  $449\text{ cm}^{-1}$ 'de belirgin ve güçlü Si-O-Si bağ pikleri,  $797\text{ cm}^{-1}$ 'de Si-C ağ pikleri oluşmaktadır.



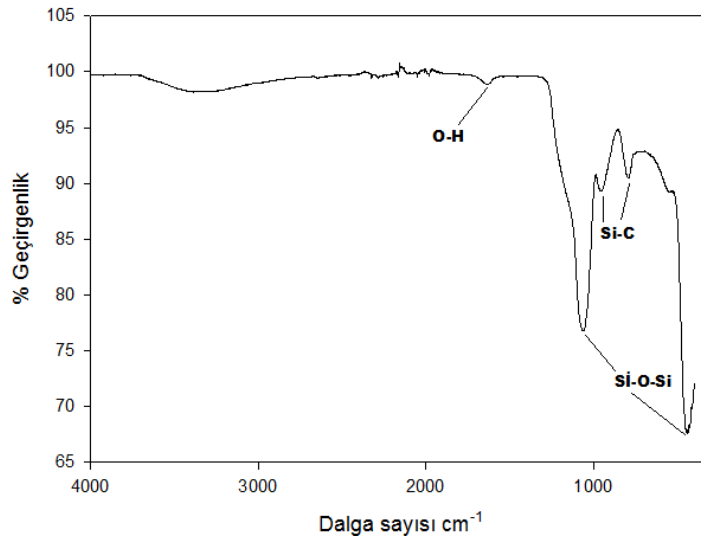
Şekil 5.33. D6 kodlu numuneye ait FTIR analizi

Şekil 5.32. D6 kodlu numuneye ait FTIR analizi sonuçları verilmiştir.  $1632\text{ cm}^{-1}$ 'de O-H ağ piki,  $1069$  ve  $447\text{ cm}^{-1}$ 'de belirgin ve güçlü Si-O-Si bağ pikleri,  $973$  ve  $799\text{ cm}^{-1}$ 'de Si-C ağ pikleri oluşmaktadır.



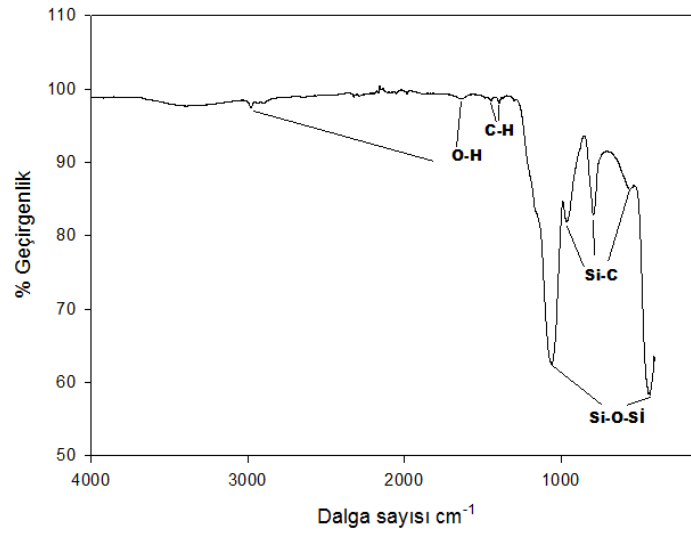
Şekil 5.34. D7 kodlu numuneye ait FTIR analizi

Şekil 5.33. D7 kodlu numuneye ait FTIR analizi sonuçları verilmiştir.  $1635\text{ cm}^{-1}$ 'de O-H ağ piki,  $1069$  ve  $447\text{ cm}^{-1}$ 'de belirgin ve güçlü Si-O-Si bağ pikleri,  $973$  ve  $799\text{ cm}^{-1}$ 'de Si-C ağ pikleri oluşmaktadır.



Şekil 5.35. D8 kodlu numuneye ait FTIR analizi

Şekil 5.34. D8 kodlu numuneye ait FTIR analizi sonuçları verilmiştir.  $1638\text{ cm}^{-1}$ 'de O-H ağ piki,  $1060$  ve  $440\text{ cm}^{-1}$ 'de belirgin ve güçlü Si-O-Si bağ pikleri,  $965$  ve  $793\text{ cm}^{-1}$ 'de Si-C ağ pikleri oluşmaktadır.



Şekil 5.36. D9 Kodlu numuneye ait FTIR analizi

Şekil 5.35. D9 kodlu numuneye ait FTIR analizi sonuçları verilmiştir.  $1638\text{ cm}^{-1}$ 'de O-H ağ piki,  $1060$  ve  $440\text{ cm}^{-1}$ 'de belirgin ve güçlü Si-O-Si bağ pikleri,  $1390$  ve  $1445\text{ cm}^{-1}$ 'de C-H bağ piki,  $965$  ve  $796\text{ cm}^{-1}$ 'de Si-C ağ pikleri oluşmaktadır.

Getir, TMOS başlangıç malzemesi ve farklı miktar ve derişimde  $\text{CH}_3\text{COOH}$  asit ilavesi yapılarak elde ettiği silika arojel çalışmasında  $3440$  ve  $1630\text{ cm}^{-1}$  dalga boylarında O-H adsorbsiyon pikini,  $1098\text{ cm}^{-1}$  dalga boyunda Si-O-Si asimetric bandını,  $803\text{ cm}^{-1}$  dalga boylarında Si-O-Si simetric bandı ve  $471\text{ cm}^{-1}$  dalga boyunda Si-O-Si ağ bandını saptamıştır. Yapılan FTIR analizi ile mevcut çalışmadaki değerler yakınlık göstermektedir [34].

Enes, TEOS başlangıç malzemesi ile HCl Asit katalizörünü sabit tutup KOH, NaOH,  $\text{NH}_4\text{OH}$  baz katalizörlerini kullanarak yapmış olduğu çalışmada, KOH bazı kullanılarak elde edilen N1 kodlu numunenin FTIR analizi sonucunda  $1072\text{ cm}^{-1}$  dalga boyunda Si-O-Si Asimetric bandı,  $794\text{ cm}^{-1}$  dalga boyunda Si-O-Si Simetric bandı,  $440\text{ cm}^{-1}$  dalga oyunda Si-O-Si ağ bandını,  $3448$ - $1643\text{ cm}^{-1}$  dalga boylarında ise -OH adsorbsiyon bandını saptamıştır. NaOH bazı kullanılarak elde edilen N2 kodlu numunede ise  $1072\text{ cm}^{-1}$  dalga boyunda Si-O-Si Asimetric bandı,  $794\text{ cm}^{-1}$  dalga boyunda Si-O-Si Simetric bandı,  $447\text{ cm}^{-1}$  dalga oyunda Si-O-Si ağ bandını,  $3494$ -

1643  $\text{cm}^{-1}$  dalga boylarında ise -OH adsorbsiyon bandını saptamıştır. Mevcut çalışmada bu verilere yakın değerler elde edilmiştir [35].

Çok ve arkadaşı iki aşamalı sililasyon ile sentezledikleri hidrofobik silika aerogelde 788 $\text{cm}^{-1}$  Si-O-Si simetrik bandı, 1084 $\text{cm}^{-1}$  Si-O-Si asimetrik bandı, 2980 $\text{cm}^{-1}$  C-H adsorbsiyon bandını, 840 ve 1250 $\text{cm}^{-1}$  dalga boylarında Si-C bandını tespit etmiştir. Mevcut çalışmada bu verilere yakın değerler elde edilmiştir [36].

Shewale yapmış olduğu çalışmada silika aerogel üzerine sililasyon ajanları olan HDMZ ve TMCS etkisini incelediği çalışmada 2950 ve 1400 $\text{cm}^{-1}$  C-H adsorbsiyon bandını, 1260 ve 850 $\text{cm}^{-1}$  Si-C bandını, 3500 ve 1600  $\text{cm}^{-1}$  O-H adsorbsiyon bandını, 1100 ve 800  $\text{cm}^{-1}$  dalga boylarında ise güçlü asimetrik ve simetrik Si-O-Si bağlarını tespit etmiştir. TMCS kullanarak modifiye edilen numunelerde HDMZ ile olan numunelere göre daha kuvvetli bağlar oluşturduğunu saptamıştır. Mevcut çalışmada bu verilere yakın değerler elde edilmiştir [39].

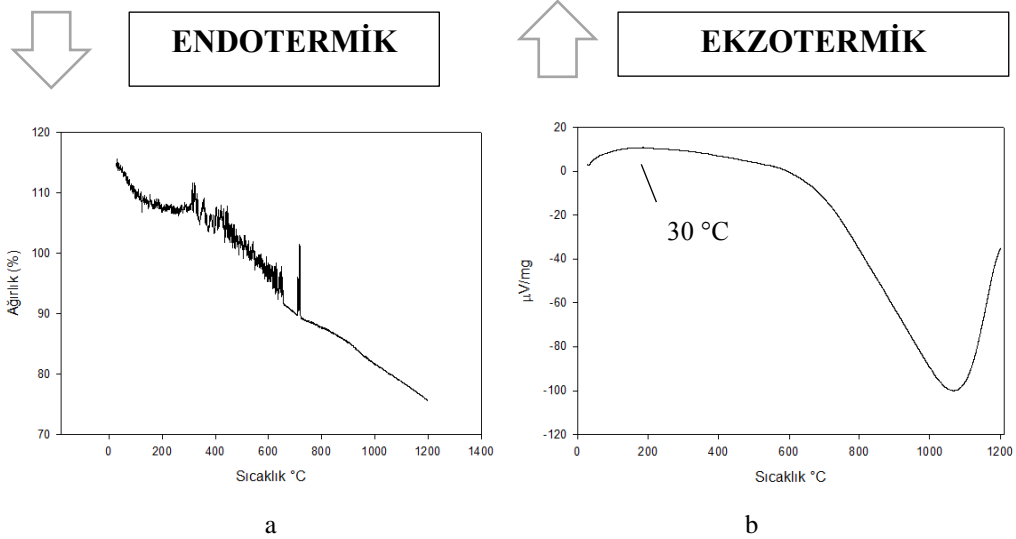
Saraç, yapmış olduğu çalışmada perlit, kuvars, pomza, zeolit, pencere camı, soda şişesi, borcam hammaddelerden üretmiş olduğu silika esaslı aerogel tozlarında 1024-1078  $\text{cm}^{-1}$  boyları arasında Si-O-Si asimetrik piki, 435-457  $\text{cm}^{-1}$  arasında Si-O-Si simetrik pikini, (785-796) ve (958-965)  $\text{cm}^{-1}$  dalga boyları arasında Si-C piki, 1635-1745  $\text{cm}^{-1}$  dalga boyları arasında O-H adsorbsiyon piki, 1322-1365 dalga boylarında ise C-H pikini tespit etmiştir [47].

Literatürde gösterilen veriler incelendiği takdirde mevcut çalışmada elde edilen verilerin literatürde var olan verilerle yakınlık gösterdiğini görebiliriz. Bu yakınlık da bize atık döküm kumu ve döküm kumundan silika esaslı aerogel bağ yapısının sağlandığını gösterir.



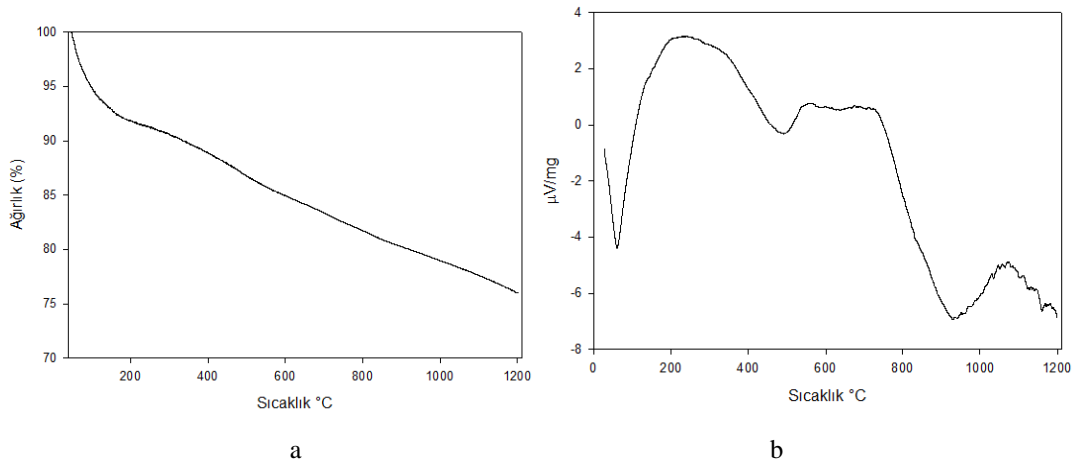
#### 5.4. Termal Analiz

Atık döküm kumu ve döküm kumundan elde edilen silika esaslı aerojel tozlarına TG cihazı ile 10 °C/dak hızla ve 1200°C sıcaklığa kadar termal analiz uygulanmıştır. Sıcaklık ve ağırlık kaybı arasındaki değişim ve DTA analiz sonuçları incelenmiştir.



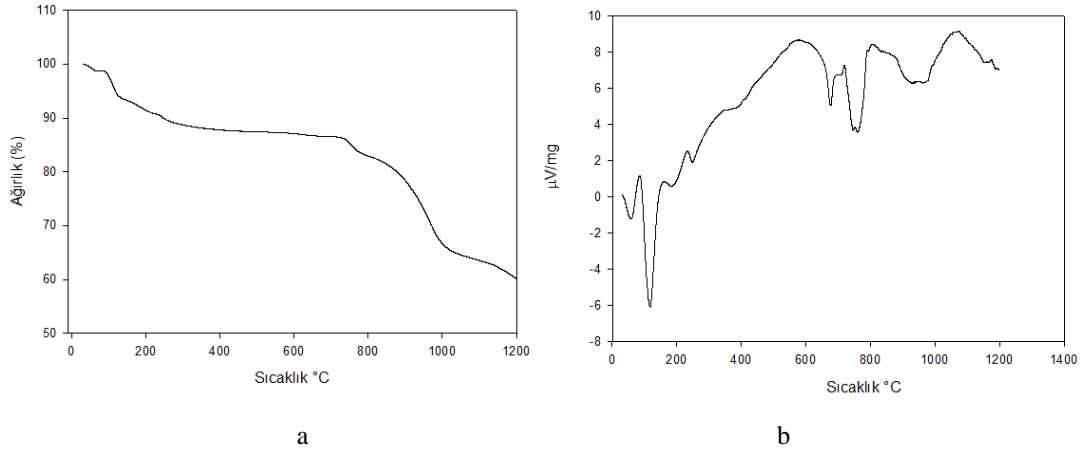
Şekil 5.37. D1 kodlu numuneye ait a. TG grafiği, b. DTA grafiği

D1 Kodlu numuneye ait TG-DTA analiz grafiği Şekil 5.36.'da verilmiştir. 30-200 °C aralığında yüzeyde bulunan fiziksel suların uzaklaştırılmasından kaynaklanan ağırlık kaybı gözlemlenmiştir. 250 ile 1100 °C aralığında birkaç adımda gerçekleşen dekompozisyon sebebi ile ağırlık kaybı yaşanmıştır.

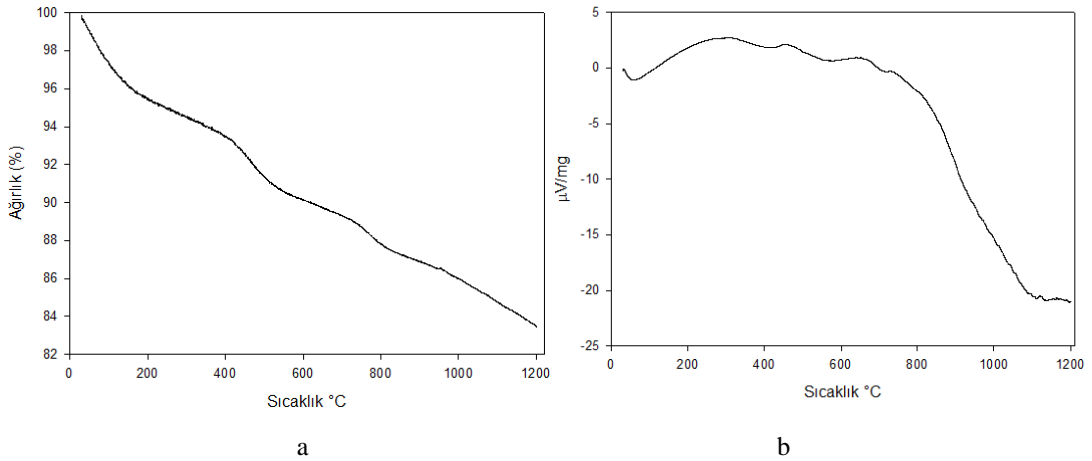


Şekil 5.38. D2 kodlu numuneye ait a. TG grafiği, b. DTA grafiği

D2 kodlu numuneye ait a. TG analiz grafiği b. DTA eğrisi Şekil 5.37.'de verilmiştir. 0-180 °C aralığında yüzeyde bulunan fiziksel suların uzaklaştırılmasından kaynaklanan ağırlık kaybı gözlemlenmiştir. 1200 °C sıcaklığına kadar artan sıcaklıkla beraber ağırlık kaybı devam etmiştir. 58 °C'de su moleküllerinin uzaklaşmasından kaynaklı endotermik pik gözlemlenmiştir. Toplam %14 ağırlık kaybı olmuştur.

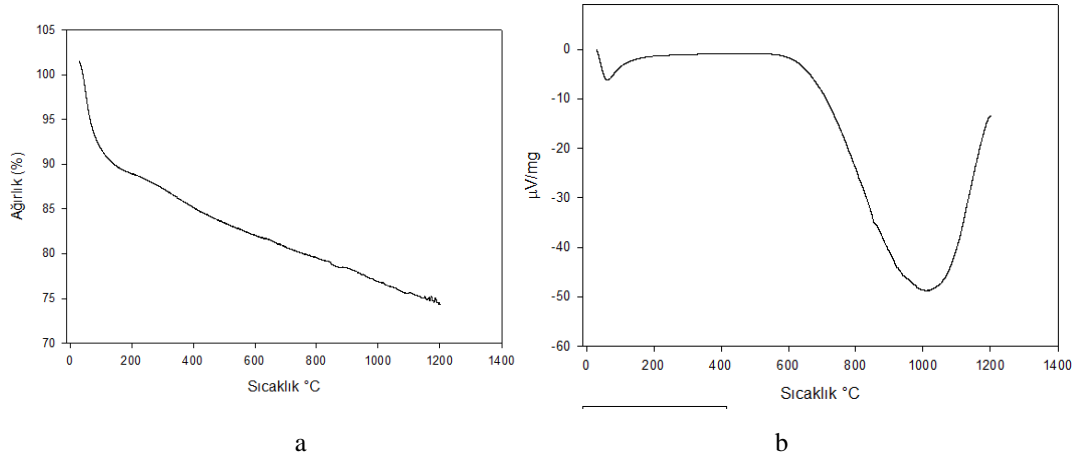


Şekil 5.39. D4 kodlu numuneye ait a. TG, b. DTA grafiği



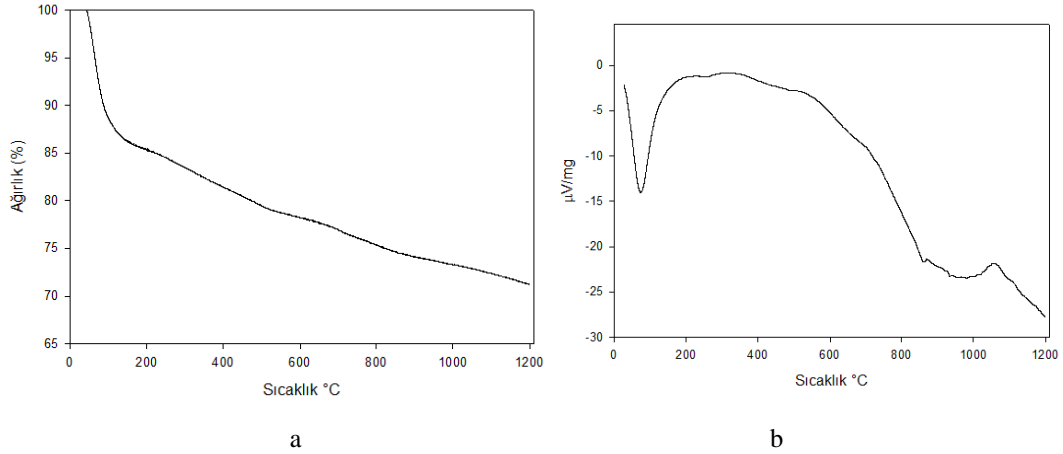
Şekil 5.40. D5 Kodlu numuneye ait a. TG, b. DTA grafiği

D4 kodlu numuneye ait a. TG analiz grafiği b. DTA eğrisi Şekil 5.38.'de verilmiştir. D5 kodlu numuneye ait a. TG analiz grafiği b. DTA eğrisi Şekil 5.39.'da verilmiştir. 0-200 °C aralığında yüzeyde var olan kristal suyun uzaklaştırılmasından kaynaklı ağırlık kaybı gözlemlenirken. 0-1200 °C aralığında artan sıcaklıkla doğru orantılı olarak ağırlık kaybı devam etmiştir. %15 toplam ağırlık kaybı olmuştur. 58 °C'de su moleküllerinin uzaklaşmasından kaynaklı endotermik pik gözlemlenmiştir.



Şekil 5.41. D6 Kodlu numuneye ait a. TG, b. DTA grafiği

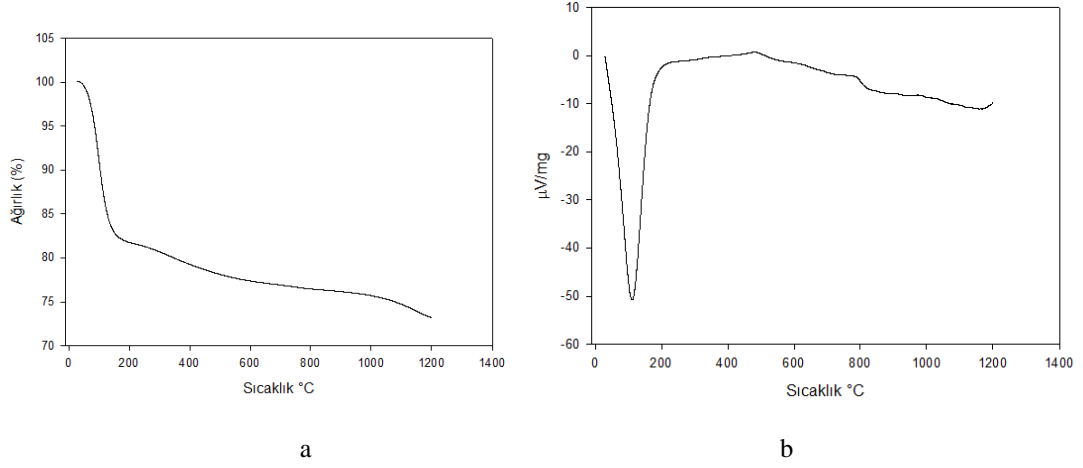
D6 kodlu numuneye ait a. TG analiz grafiği b. DTA eğrisi Şekil 5.40.'da verilmiştir. 0-190°C aralığında yüzeyde var olan kristal suyun uzaklaştırılmasından kaynaklı %12 ağırlık kaybı, 200-1200 °C metil gruplarının dekompozisyonunun sonucunda %13 ağırlık kaybı olmuştur. 61 °C de su moleküllerinin uzaklaşmasından kaynaklı endotermik pik, 1013 °C'de oluşan endotermik pikin sebebi metil gruplarının dekompozisyonundan kaynaklı olabilir.



Şekil 5.42. D7 Kodlu numuneye ait a. TG, b. DTA grafiği

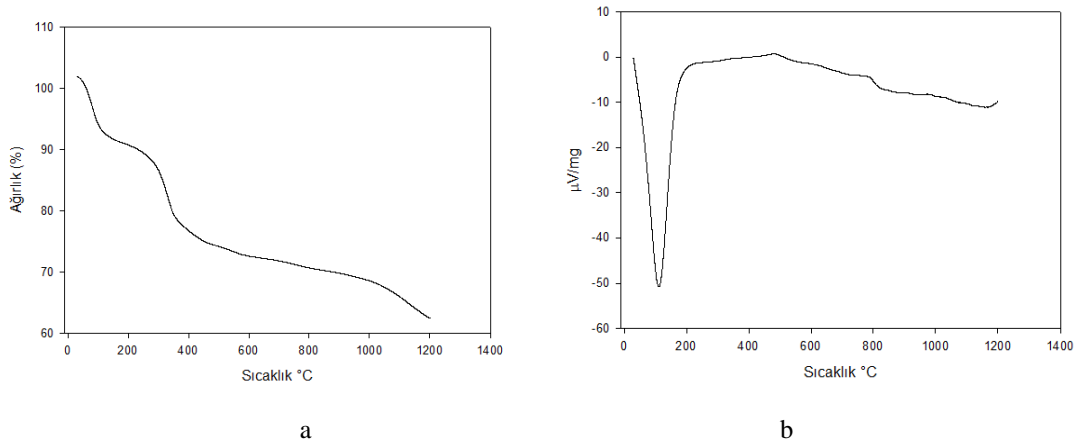
D7 kodlu numuneye ait a. TG analiz grafiği b. DTA eğrisi Şekil 5.41.'de verilmiştir. 0-150 °C arasında su moleküllerinin uzaklaştırılmasından kaynaklı gözlemlenmiştir. 200-1200 °C arasında artan sıcaklıklara doğru orantılı olarak ağırlık kaybı olmuştur.

70 °C'de su moleküllerinin buharlaşmasından kaynaklı endotermik pik oluştuğu gözlemlenmiştir.



Şekil 5.43. D8 Kodlu numuneye ait a. TG, b. DTA grafiği

D8 kodlu numuneye ait a. TG analiz grafiği b. DTA eğrisi Şekil 5.42.'de verilmiştir. 0-180 °C aralığında yüzeyde bulunan kristal suyun uzaklaştırılması sebebi ile %18 ağırlık kaybı ve 112 °C de suyun uzaklaştırılmasından kaynaklanan endotermik pik gözlenmiştir. 180 °C'den 1200 °C kadar ağırlık kaybı %7 azalarak devam etmiştir.



Şekil 5.44. D9 Kodlu numuneye ait a. TG, b. DTA grafiği

D9 kodlu numuneye ait a. TG analiz grafiği b. DTA eğrisi Şekil 5.43.'de verilmiştir. 0-400°C aralığında su ve çözücülerin uzaklaştırılmasından kaynaklı hızlı bir ağırlık kaybı, 400-1200 °C aralığında ise metil grupların dekompozisyonu sonucunda ağırlık

kaybı gözlemlenmiştir. 112 °C de suyun uzaklaştırılmasından kaynaklanan endotermik pik gözlenmiştir.

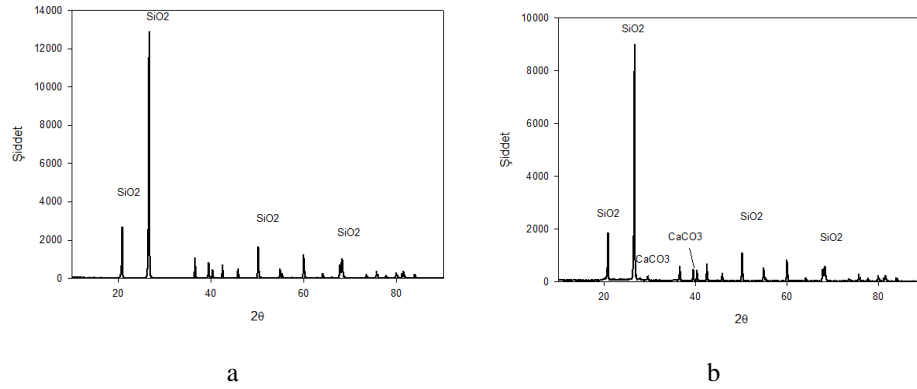
Hilonga ve ark. izopropanol bazlı TMCS ile modifiye edilmiş silika aerogel üzerinde yapmış oldukları TG-DTA analizinde; 200 °C'ye kadar gözlenen ağırlık kaybı, artık çözücünün ve su moleküllerinin aerojelden buharlaşmasından kaynaklanmakta olduğunu ve 450 °C sıcaklıkta ağırlıktaki keskin düşüşün aerojelde bulunan organik grupların (CH<sub>3</sub>) termal ayrışmasına bağlanabileceğini ve DTA eğrisindeki iki keskin ekzotermik pikin dikkate alınarak, yüzey metil gruplarının oksidasyonu doğrulanabilir olduğunu ortaya koymuştur [48].

Saraç, kuvars malzemesinden ürettiği silika aerogel üzerinde yaptığı TG-DTA analizinde; 200 °C ye kadar su moleküllerinin uzaklaştırılması sebebinden ağırlık kaybı, 250-1000 °C ye kadar metil gruplarının dekompozisyonundan kaynaklı belirgin bir ağırlık kaybı, 855 °C de -CH<sub>3</sub> gruplarının oksidasyon kaynaklı ekzotermik pik gözlemlenmiştir [40].

Shewale ve ark. ise ürettikleri aerogel içinde bulunan kristal suyun uzaklaşması sebebi ile 400 °C ye kadar ağırlık kaybı ve -CH<sub>3</sub> gruplarının dekompozisyonundan kaynaklı 450 °C'de ekzotermik piklerin oluştuğunu gözlemlenmiştir [39].

## 5.5. Faz Analizi

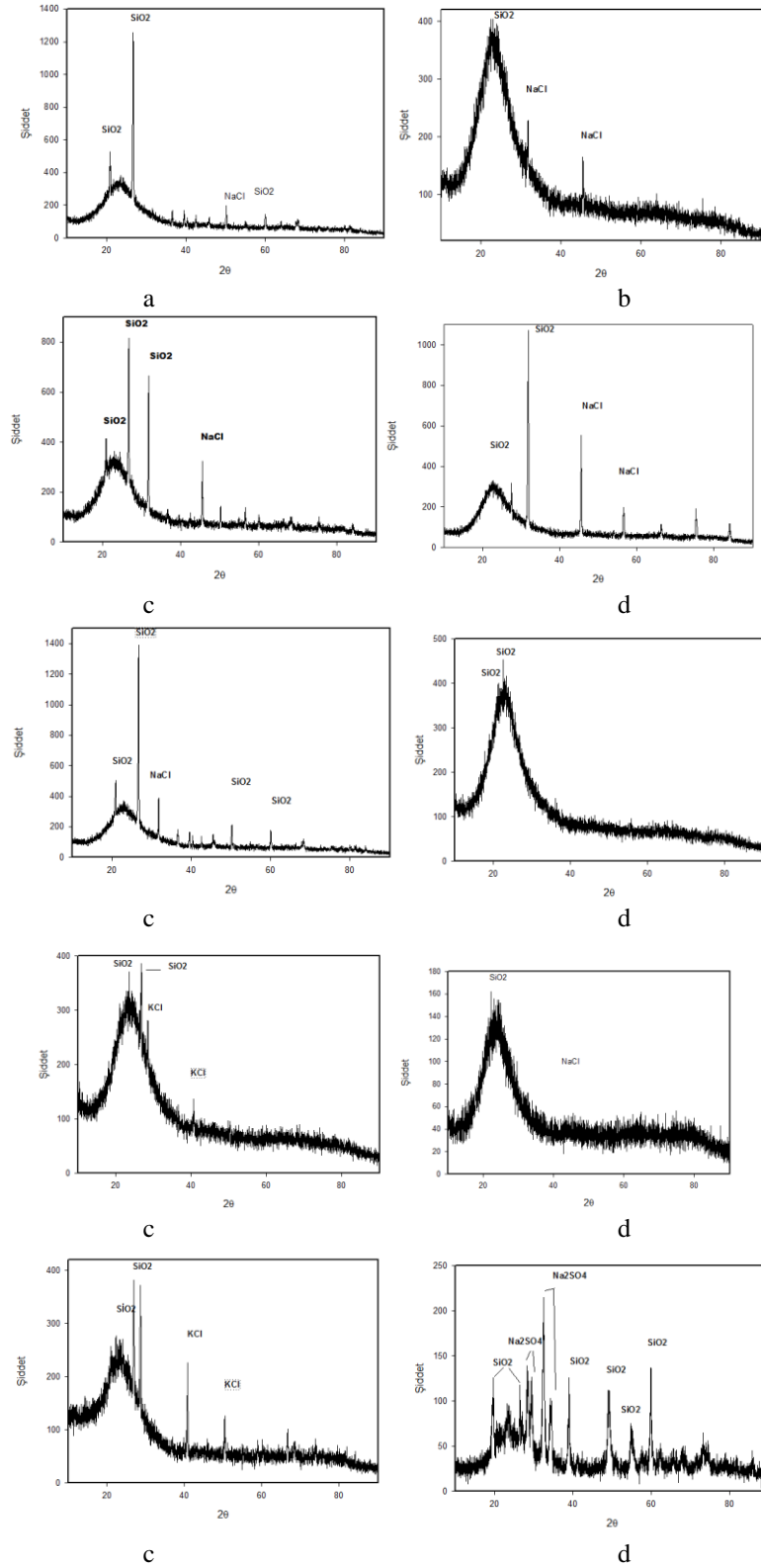
Döküm kumundan ve atık döküm kumundan elde edilen numunelerin faz yapısını incelemek için XRD analizi uygulanmıştır. Dalga boyu  $\lambda=1,54056$  nm olan CuK $\alpha$  kullanılarak tarama hızı 1°/dk. ve tarama açısı 2 $\theta$ , 10 ile 90° arasında belirlenmiştir. Silika hammadde kaynağı olarak kullanılan döküm kumu ve atık döküm kumuna uygulanan XRD analiz sonuçları Şekil 5.44.' de verilmiştir.



Şekil 5.45. a. Döküm kumu ve b. Atık döküm kumu başlangıç malzemesine ait XRD analizi

Döküm kumu başlangıç malzemesine yapılan XRD analizi sonucunda yapıda tamamen  $\text{SiO}_2$  pikleri gözlemlenirken, atık döküm kumu başlangıç malzemesine yapılan analizde ise  $\text{SiO}_2$  piklerinin yanı sıra  $2\theta = 29,39^\circ$ 'de  $\text{CaCO}_3$  pikleri gözlemlenmiştir.

Döküm kumu ve atık döküm kumlarıyla hazırlanan (a) D1, (b)D2, (c)D3, (d)D4, (e)D5, (f)D6, (g)D7, (h) D8, (i) D9 (i) D10 kodlu numunelere ait tozların XRD analizleri Şekil 5.45.'de verilmiştir.



Şekil 5.46. a) D1, (b)D2, (c)D3, (d)D4, (e)D5, (f)D6, (g)D7, (h) D8, (i) D9 (i) D10 tozlarına ait XRD verileri

Şekil 5.45.'de verilmiş olan XRD analizi görüntülerine bakıldığında  $2\theta = 20-40$  aralığında geniş  $\text{SiO}_2$  pikleri gözlemlenmiştir. f) D6 kodlu numune dışında kalan tüm numunelere genel olarak bakıldığı zaman tuz pikleri olan NaCl, KCl,  $\text{Na}_2\text{SO}_4$  pikleri gözlemlenmiştir. Asit derişimin arttırarak hazırlanan D4, D5, D9 kodlu numunelerde daha şiddetli pikler gözlemlenmiştir. Yıkama işleminin yetersiz kalmasından dolayı ortaya çıkan bu piklerin giderilmesi için daha fazla distile su ile yıkama işlemi yapılması gerekmektedir.

Saraç, yapmış olduğu çalışmada perlit, kuvars, pomza zeolit, pencere camı hammaddelerden üretmiş olduğu silika esaslı arojel tozlarında yaklaşık olarak  $22-23^\circ$ 'de amorf yapı gözlemlerken  $31$  ve  $45^\circ$ 'de NaCl kaynaklı pikler tespit etmiştir [47]. Shen ve arkadaşlarının atmosferik kurutma ile hazırladığı silika arojel'de ise  $22^\circ$ 'de amorf silika  $32$  ve  $46^\circ$  de NaCl piklerine rastlanmıştır [47]. Başlangıç malzemesi olarak  $\text{SiCl}_4$  kullanan Zhou ve arkadaşları  $23.2^\circ$ 'de amorf silika yapısına rastlanmıştır [48].

## 5.6. BET Analizi

BET analizi toz veya katı halde olan numunelerin yüzey alanı, gözenek boyutu gözenek türü ve gözenek dağılımının fiziksel adsorbsiyon yöntemiyle düşük basınç altında yüksek çözünürlük ile tespit edilmesini sağlar. Bet cihazı analizi yapılacak numunenin yüzeyinin moleküler tabanca vasıtasıyla kaplanması için gerekli olan gaz miktarının hesaplanıp "Brauner ve Emmet ve Teller" teorisi ile yüzey alanı hesabı yapar.

Bu çalışmada ortalama tane boyutu, yüzey alanı ve gözenek çapı ve hacmi hakkında fikir sahibi olmak amacıyla D5 kodlu toza BET analizi uygulanmıştır.

Analiz sonucunda elde edilen veriler Tablo 5.3.'de verilmiştir. Tablodaki veriler incelendiğinde yüzey alanının daha önceden yapılan silika arojel çalışmalarına kıyasla düşük olduğunu, gözenek çapının ve hacminin verilere yakın olduğunu ayrıca

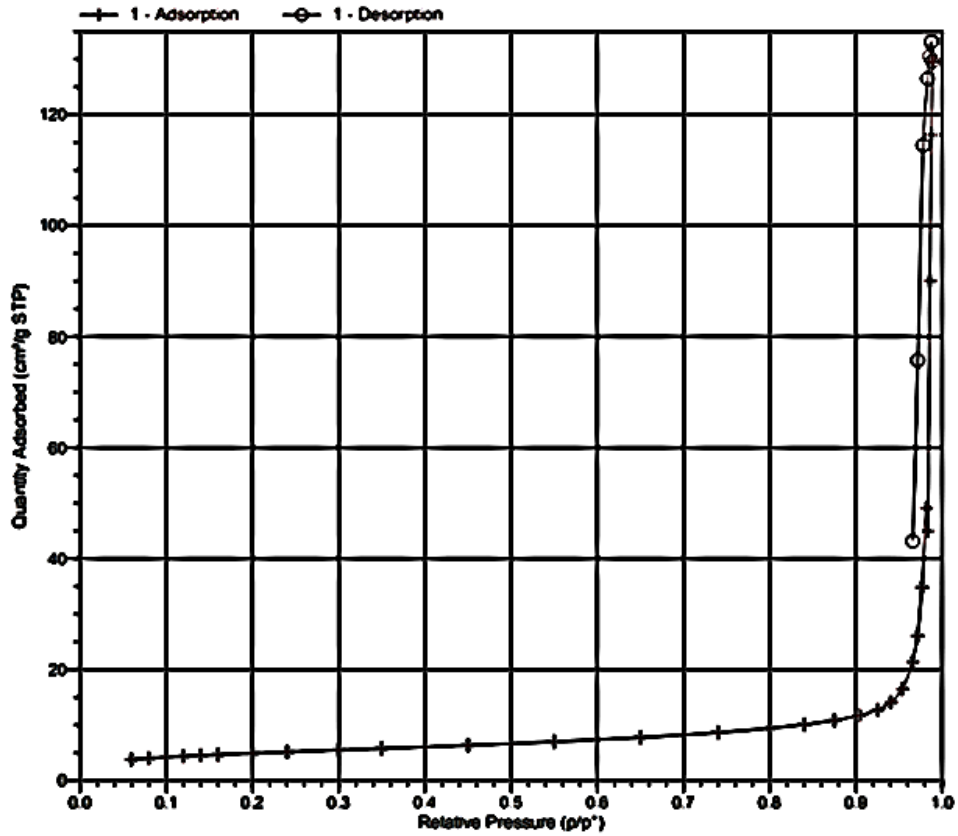


gözenek türünün mezogözenek olduğunu söyleyebiliriz. Getir Ş., çalışmasında kurutma sıcaklığının arttıkça aerogelin yüzey alanının azaldığını belirtmiştir [34].

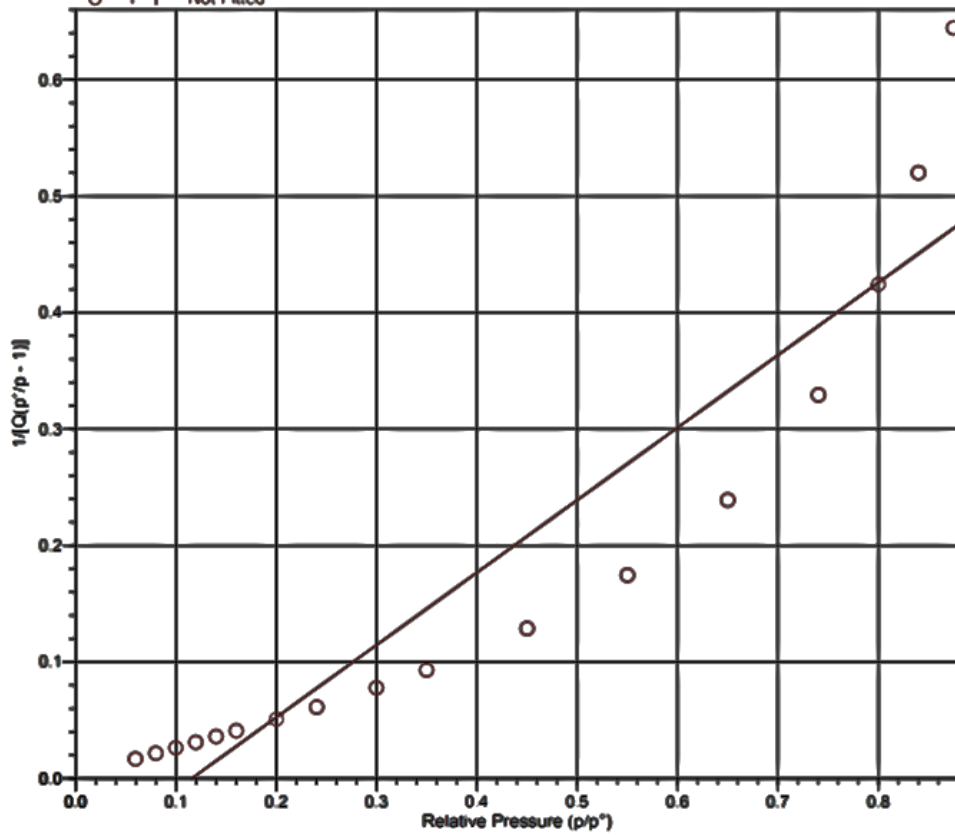
Tablo 5.3. D5 kodlu toza ait BET analiz verileri

|  |          |
|--|----------|
| Bet Yüzey Alanı (m <sup>2</sup> /g)                          | 7,9124   |
| Langmuir Yüzey Alanı (m <sup>2</sup> /g)                     | 36,7664  |
| BJH Adsorbsiyon Yüzey Alanı (m <sup>2</sup> /g)              | 15,9529  |
| Adsorbsiyon Toplam Gözenek Hacmi (cm <sup>3</sup> /g)        | 0,077510 |
| BJH Adsorbsiyon Kümülatif Gözenek Hacmi (cm <sup>3</sup> /g) | 0,017465 |
| Adsorbsiyon Ortalama Gözenek Çapı (nm)                       | 39,18380 |
| BJH Adsorbsiyon Ortalama Gözenek Genişliği (nm)              | 3,9269   |

Şekil 5.46.'da D5 tozuna uygulanan BET analizi ile elde edilen adsorbsiyon-desorbsiyon izoterm grafiği Şekil 5.47.'de BET yüzey alanı verileri verilmiştir.



Şekil 5.47. D5 tozundan elde edilen silika aerogel tozuna ait izoterm eğrileri



Şekil 5.48. BET yüzey alanı grafiği

Getir, 100 °C’de kurutma yaptığı silika aerjel numunesine uyguladığı BET analizinde 386,98 m<sup>2</sup>/g yüzey alanı, 23,76 Å ortalama gözenek çapına, 1,226 cc/g gözenek hacmine sahip olduğunu belirtmiştir [34].

Enes, NaOH baz katalizörü kullanarak sentezlediği aerjelde 69,5 m<sup>2</sup>/g yüzey alanı ve 14,9 Å ortalama gözenek çapına sahip olduğunu belirtmiştir [35]. Li ve Ark. Atmosferik kurutma yöntemiyle üretilecek hidrofobik silika aerjelde ise 736,2 m<sup>2</sup>/g yüzey alanı, 3,062 cm<sup>3</sup>/g BJH adsorbsiyon gözenek hacmine, 0,13 g/cm<sup>3</sup> yoğunluğa sahip olduğunu belirtmiştir [49].

Mermer, taban külünden sentezlediği aerjelde 338,28 m<sup>2</sup>/g yüzey alanı ve 24,31 nm ortalama gözenek genişliğini, uçucu külünden ürettiği numunede ise 355,44 m<sup>2</sup>/g yüzey alanı ve 18,53 ortalama gözenek genişliğine sahip olduğunu belirtmiştir [46].

Saraç, pomza tozundan elde ettiği silika arojelde 58,46 m<sup>2</sup>/g Bet yüzey alanına, 80,4 m<sup>2</sup>/g Langmuir yüzey alanına, 0,19 cm<sup>3</sup>/g gözenek hacmine, 128,01 Å gözenek boyutuna, 1026,3 Å ortalama tane boyutuna ve gözenek türünün mezo gözenekli olduğunu belirtmiştir [47].

Ramo ve ark. 200 Å altında gözenek boyutunda olan malzemelerde kurutma yapılırken oluşan çatlama ve büzülmenin daha fazla olabileceğini belirtmiştir [50].

## BÖLÜM 6. GENEL SONUÇLAR VE ÖNERİLER

### 6.1. Genel Sonuçlar

Mevcut çalışma silika kaynağı olarak atık döküm kumu ve döküm kumu kullanarak silika esaslı aerojel tozu üretimini ve üretilen tozların analiz yöntemleri ile karakterizasyonu işlemlerini kapsamaktadır.

- Silika esaslı aerojel tozu üretiminde silika kaynağı olarak döküm kumu ve atık döküm kumu kullanılmıştır.
- SEM ve FESEM analizi ile üretilen silika esaslı aerojel tozlarının gözenekli mikroyapıya sahip olduğu, toz tane boyutunun nano seviyede olduğu, yüzeyin süngerli yapıya sahip olduğu gözlemlenmektedir. EDS analizinde ise toz bileşiminde Si ve O elementlerinin hakim olduğu gözlenmiştir.
- FESEM ve EDS sonuçlarından HCl yerine H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> asit katalizörü kullanımının yapı içerisinde tuz oluşumunu arttırdığını ve yıkama işleminin yetersiz kaldığını gözlemlenmiştir.
- FTIR analizi ile asimetric ve simetric bağlanmadan dolayı belirgin ve güçlü Si-O-Si piklerinin meydana geldiği, titreşim hareketinden kaynaklı Si-C pikleri, adsorbe edilen sudan kaynaklı -OH pikleri tespit edilmiştir.
- FTIR analizi ile en büyük pik genişliğine sahip olan D1 numunesinin bağ yapısının en kuvvetli, en düşük pik genişliğine sahip D9 numunesinin bağ yapısının en düşük olduğu tespit edilmiştir.
- XRD analizi ile Silika esaslı arojellerin genel XRD sonuçlarına yakın sonuçlar elde edildiğini ve amorf yapının göstergesi olan geniş SiO<sub>2</sub> piklerinin varlığı saptanmıştır.
- XRD sonuçlarına genel olarak baktığımız zaman yapı içerisinde asit molar oranının artması tuz oluşumunu doğrudan etkilediği belirtilebilir.

- 1200°C sıcaklığına kadar yapılan Termal analiz sonuçlarına bakıldığı zaman aerjelde oluşan ağırlık kaybı en fazla olan %32 toplam ağırlık kaybı ile D9, en az olan ise %14 ağırlık kaybı oranı ile D2 numunesi olarak belirlenmiştir. Endotermik piklerin sebebinin kristal suyun uzaklaştırılması ve metil gruplarının dekompozisyonundan dolayı olabilir.
- D5 numunesine yapılan BET analizinin sonucunda yüzey alanının silika aerjel yüzey alanına göre düşük olduğuna, nanoboyutta gözenek genişliğine, gözenek türünün mezogözenekli olduğuna ve gözenek hacminin literatürdeki verilere benzer olduğunu göstermektedir.

Yapılan karakterizasyon testleri sonucunda literatürdeki silika esaslı aerjellere benzer sonuçlar elde edilmiştir.

## 6.2. Öneriler

Döküm kumu ve atık döküm kumundan silika esaslı aerjel tozu eldesi başarılı bir biçimde gerçekleştirilmiştir. Daha sonra ki çalışmalar için

- Üretilen yöntemin endüstriyel boyutlarına getirilmesi üzerine iyileştirilmeler yapılabilir.
- Deneysel parametrelerini arttırarak daha büyük boyutta üretimler hedeflenebilir.
- Yıkama miktarının arttırılarak yapıdaki tuz kalıntıları uzaklaştırabilir.
- Filtre kağıdından elde edilen atıkların tekrar çözeltiye alınarak üretiminin gerçekleşmesi ve ekonomik olarak maliyetin düşürülmesi üzerine daha fazla çalışmalar yapılabilir.
- Aynı deneysel parametreler üzerine farklı kurutma yöntemleri ile aerjel sentezi denenebilir.
- Aerojellerin mekanik özellikleri üzerine çalışmalar yapılabilir.

## KAYNAKLAR

- [1] www.kimyalog.com., Eriřim Tarihi:02.03.2017.
- [2] Senberber, F.T., Yıldırım, M., Karamahmut, N., Derun, E.M., Dissolution Behavior of Tincal in Acetic Acid Solutions, Ines International Academic Researches Congress, Side, Antalya, 2016.
- [3] Huijun, Y., Xiaofeng L., Junxia W., Minmin W., Shiyuan Y., Preparation and characterization of hydrophobic silica aerogel sphere products by coprecursor method, Solid State Sciences, 155-162, 2015
- [4] Çevre ve Şehircilik Bakanlığı, Sektörel Atık Kılavuzları, Döküm Sektörü, [https://webdosya.csb.gov.tr/db/cygm/editordosya/Demir\\_Dokum\\_Sanayi\\_Kilavuzu.pdf](https://webdosya.csb.gov.tr/db/cygm/editordosya/Demir_Dokum_Sanayi_Kilavuzu.pdf)., Eriřim Tarihi:02.03.2017.
- [5] Kılıç, M.Y., Tüylü M., Bursa'daki atık döküm kumlarının endüstriyel simbiyoz ile hazır beton üretiminde hammadde olarak kullanımı, Uludağ Üniversitesi Mühendislik Fakültesi Dergisi, 24(1), 99-110, 2019.
- [6] Bakış R., Koyuncu H., Demirbaş Y., An investigation of waste foundry sand in asphalt concrete mixtures, Waste Management & Research, 24(3), 269-274, 2006.
- [7] Başar, H. M., Dökümhanelerden kaynaklanan atıkların uygun geri kazanım/tekrar kullanım ve bertaraf yöntemlerinin incelenmesi, Doktora Tezi, İstanbul Teknik Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Kimya Mühendisliği, 2012.
- [8] Gürkan E.H., Çoruh S., Atık döküm kumu ile katyonik boyarmaddelerin adsorbsiyon çalışmaları, Celal Bayar Üniversitesi Fen Bilimleri Dergisi, 13(2), 515-521, 2017.
- [9] Güney, Y., Aydılek, A.H., Demirkan, M., Geoenvironmental behavior of foundry sand amended mixtures for highway subbases. Waste Management 26, 932– 945, 2006.
- [10] Güney, Y., Sari Y.D., Yalçın, M., Tuncan, A., Dönmez, S., Re-usage of waste foundry sand in high-strength concrete, Waste Management 30, 1705– 1713, 2010.

- [11] Solmaz, P., Atık döküm kumunun geçirimsiz perde yapılarak tekrar kullanımı, Yüksek Lisans Tezi, İstanbul Teknik Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü, İnşaat Mühendisliği, 2008.
- [12] www.aerogel.org., Erişim Tarihi: 25.02.2017
- [13] Yılmaz, Y. Farklı başlangıç maddeleri kullanılarak sol-jel yöntemiyle monolitik silika aerogel ve silika aerogel sentezi ve karakterizasyonu, Yüksek Lisans Tezi, Gazi Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Ankara, 2013.
- [14] Balkabak. D. Karbon Aerogel Üretimi ve Karakterizasyonu. Gazi Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Kimya Mühendisliği Bölümü, Yüksek Lisans Tezi, 2009.
- [15] Duygu Güler D., Silis Kumu, Feldspat ve Tetraetilortosilikattan Sol-jel Yöntemi ile Silika Aerogel Sentezi ve Karakterizasyonu, Yüksek Lisans Tezi, Gazi Üniversitesi Fen Bilimleri Fakültesi, Kimya Mühendisliği, 2012.
- [16] Fei, X., Jing, X., Hongji, X., Yuheng, L., Hongyu, Y., Zhiwei, T., Zhitao, L., Ruowen, F., Dingcai, W., Fabrication of novel powdery carbon aerogels with high surface areas for superior energy storage, Energy storage materials, 202-208, 2016.
- [17] Sam, Z., Dongliang, Z., Yen, H., Aerogel materials for aerospace, Chapter 14, 710-715, 2012.
- [18] [https://www.slideshare.net/cedric\\_cedric/aerogel-abdurrahma-budayc.](https://www.slideshare.net/cedric_cedric/aerogel-abdurrahma-budayc.), Erişim Tarihi: 14.03.2019.
- [19] Koçer, Ş.Ş., Alümina esaslı hammadde ve atıklardan alümina esaslı aerogel tozu üretimi ve karakterizasyonu, Yüksek Lisans Tezi, Sakarya Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü, Metalurji Ve Malzeme Mühendisliği, 2019.
- [20] Aegerter, M.A., Leventis, N. ve Koebel, M.M., Aerogels Handbook, Springer, New York Dordrecht Heidelberg London, 2011.
- [21] Radha, M. A. Atık Sularda Karbon Aerogel ile Ağır Metal Tutunması. Gazi Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Kimya Mühendisliği Bölümü, Yüksek Lisans Tezi, 2008.
- [22] Öz, D. C., Öz, B., & Kaya, N., Alümina Aerogellerin Fiziksel Özellikleri Üzerine Yaşlandırma ve Kurutma Süresinin Etkisi. Balıkesir Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Dergisi, 20(1), 198-211, 2018.
- [23] Abilov, A., Petrokimya Teknolojisinde Proses Modelleri Optimizasyon ve Kontrol Sistemleri, 1. basım, A.Ü. Fen Fakültesi Döner Sermaye İşletmesi Yayınları No:20, Ankara, 58-95, 1994.

- [24] Mackenzie J.D., Chung Y., Hu Y., Rubbery ormosils and their applications, *Journal of Non-Crystalline Solids*, 147, 271-279, 1992.
- [25] El Rassy, H., Buisson, P., Bouali, B., Perrard, A. ve Pierre, A.C., Surface Characterization of Silica Aerogels with Different Proportions of Hydrophobic Groups, Dried by the CO<sub>2</sub> Supercritical Method, *Langmuir*, 19:358–363, 2003.
- [26] Bozođlu, D. Aerojel Katkılı Polimer Kompozitlerin Hazırlanışı, Karakterizasyonu ve Dielektrik Özelliklerinin İncelenmesi. İstanbul Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Fizik Bölümü, Yüksek Lisans Tezi, 2014.
- [27] Zhang, X., Sui, Z., Xu, B., Yue, S., Luo, Y., Zhan, W., Liu, B. ve Mater, J., (2011). “Mechanically Strong and Highly Conductive Graphene Aerogel and Its Use as Electrodes for Electrochemical Power Sources, *Chem.*, 21:6494-6497.
- [28] Arıkan, A., Doku İskelelerinin Süperkritik Karbondioksit Ortamında Hazırlanması Ve Karakterizasyonu, Yüksek Lisans Tezi, Ankara Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü, Ankara. 2013.
- [29] Bono, M. S., Anderson, A. M., & Carroll, M. K. (2010). Alumina Aerogels Prepared Via Rapid Supercritical Extraction. *Journal Of Sol-Gel Science And Technology*, 53(2), 216-226.
- [30] Toygun, Ş., Köneçođlu, G., Kalpaklı, Y. (2013). General principles of sol-gel. *Journal of Engineering and Natural Sciences*, Sigma 31, 456-476.
- [31] Tang, Q., Wang, T., ‘Preparation of Silica Aerogel from Rice Hull Ash by Supercritical Carbon Dioxide Drying’, *Journal of Supercritical Fluids*, 35: 91-94, 2005.
- [32] Tamon, I., Ishizaka, M., Mikami, M. And Okazaki, M., “Poruos Structure of Organic and Carbon Aerogels Synthesized by Sol-gel Polycondensation of Resorcinol with Formaldehyde”, *Carbon*, 35: 791- 796, 1997.
- [33] Wu, D., Fu, R., Zhang, S., Dresselhaus, M.S. ve Dresselhaus, G., (2004). “Preparation of Low-Density Carbon Aerogels by Ambient Pressure Drying”, *Carbon*, 42:2033–2039.
- [34] Getir, Ş., Monolitik silika aerojel eldesi ve karakterizasyonu, Yüksek Lisans Tezi, Gazi Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü, Kimya Mühendisliği, 2019.
- [35] Enes, A., Silika aerojel sentezinde farklı katalizör kullanımının etkisi ve adsorpsiyon kapasitesinin belirlenmesi, Yüksek Lisans Tezi, Gazi Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü, Kimya Mühendisliği, 2019.



- [36] Çok, S. S., & Gizli, N., Hydrophobic silica aerogels synthesized in ambient conditions by preserving the pore structure via two-step silylation. *Ceramics International*, 46(17), 27789-27799, 2020.
- [37] Wu, G., Yu, Y., Cheng, X., & Zhang, Y., Preparation and surface modification mechanism of silica aerogels via ambient pressure drying. *Materials Chemistry and Physics*, 129(1-2), 308-314, 2011.
- [38] Chen Y.X., Hendrix Y., Schoolbach K., Brouwers H.J.H., A silica aerogel synthesized from olivine and its application as a photocatalytic support. *Construction and Building Materials*, 248, 2020.
- [39] Shewale, P. M., Rao, A. V., & Rao, A. P., Effect of different trimethyl silylating agents on the hydrophobic and physical properties of silica aerogels. *Applied Surface Science*, 254(21), 6902-6907, 2008.
- [40] Saraç N. Preparation of Silica Aerogel by Ambient Pressure Drying Process using Perlite and Quartz. *Metal Dünyası*, 318, 59-66, 2019.
- [41] Ono D, Bamba T, Oku Y, Yonetani T, Fukusaki E., Application of Fourier Transform Near-infrared Spectroscopy to Optimization of Green Tea Steaming Process Conditions. *J Biosci Bioeng*, vol:112 No. 3, 247-251, 2011.
- [42] Lin SY, Wang SL., Advances in Simultaneous DSC–FTIR Microspectroscopy for Rapid Solid-state Chemical Stability Studies: Some Dipeptide Drugs as Examples. *Adv Drug Delivery Rev*, 64 (2012) 461-478, 2011.
- [43] <https://acikders.ankara.edu.tr/mod/resource/view.php?id=10738>., Erişim Tarihi: 15.01.2019.
- [44] [www.rigaku.com/en/handhelds](http://www.rigaku.com/en/handhelds), Erişim Tarihi: 28.03.2019.
- [45] <http://blog.aku.edu.tr/evcin/files/2016/11/8.pdf>., Erişim Tarihi: 15.01.2019.
- [46] Mermer, N.K., Silika temelli aerogellerin sol-jel yöntemi ile sentezi ve yapısal özelliklerin incelenmesi, Doktora Tezi, Yıldız Teknik Üniversitesi Fen Bilimleri enstitüsü, Kimya Mühendisliği, 2018.
- [47] Saraç, N., Silika esaslı doğal hammadde ve atıklardan aerogel toz üretimi ve karakterizasyonu, Yüksek Lisans Tezi, Sakarya Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü, Metalurji Ve Malzeme Mühendisliği, 2018.
- [48] Hilonga A., Kim J., Sarawade P.B., Kim H.T., Low-density TEOS-based silica aerogels prepared at ambient pressure using isopropanol as the preparative solvent. *487*, 744-750, 2009.

- [49] Li M., Jiang H., Xu D., Hai D., Zheng W., Low density and hydrophobic silica aerogels dried under ambient pressure using a new co-precursor method. 452, 187-193, 2016.
- [50] Rao, A. V., Haranath, D. (1999). Synthesis of aerogel-type mesoporous silica. *Microporous and Mesoporous Materials*, 30, 267.
- [51] John F. Poco, Joe H. Satcher, Jr., and Lawrence W. Hrubesh, "Synthesis of High Porosity, Monolithic Alumina Aerogels", *Journal of Non-Crystalline Solids*, 285, 57-63, 2001.

## **ÖZGEÇMİŞ**

Ahmet Emre Çimen 02.06.1994 tarihinde Amasya' da doğdu. İlk ve orta öğretimini Kocaeli' de tamamladıktan sonra Merkez Bankası Derince Anadolu Lisesi'nden 2012 yılında mezun oldu. 2013 yılında başladığı Sakarya Üniversitesi Metalurji ve Malzeme Mühendisliği Bölümü'nü 2017 yılında bitirdi ve 2018 yılında Sakarya Üniversitesi Metalurji ve Malzeme Mühendisliği Bölümü'nde yüksek lisans eğitimine başladı. Halen Sakarya Üniversitesi Metalurji ve Malzeme Mühendisliği Bölümü'nde yüksek lisans öğrencisidir.