

T.C.  
SAKARYA ÜNİVERSİTESİ  
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

**SİLİKA ESASLI DOĞAL HAMMADDE VE  
ATIKLARDAN AEROJEL TOZU ÜRETİMİ VE  
KARAKTERİZASYONU**

**YÜKSEK LİSANS TEZİ**

**Nazan SARAÇ**

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

**Ağustos 2018**

T.C.  
SAKARYA ÜNİVERSİTESİ  
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

**SİLİKA ESASLI DOĞAL HAMMADDE VE  
ATIKLARDAN AEROJEL TOZU ÜRETİMİ VE  
KARAKTERİZASYONU**

**YÜKSEK LİSANS TEZİ**

**Nazan SARAÇ**

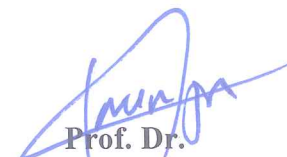
**Enstitü Anabilim Dalı**

**: METALURJİ VE MALZEME  
MÜHENDİSLİĞİ**

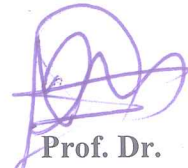
**Bu tez 15.08.2018 tarihinde aşağıdaki jüri tarafından oybirliği / oyçokluğu ile  
kabul edilmiştir.**



**Prof. Dr.  
Nil TOPLAN  
Jüri Başkanı**



**Prof. Dr.  
Onuralp YÜCEL  
Üye**



**Prof. Dr.  
Mustafa ZENGİN  
Üye**

## 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 bulunduğunu, tezde yer alan verilerin bu üniversite veya başka bir üniversitede herhangi bir tez çalışmasında kullanılmadığını beyan ederim.

Nazan SARAÇ

15.08.2018



## TEŐEKKÜR

Yüksek lisans eğitimin ve tez çalışmalarım boyunca her konuda beni destekleyen, yönlendiren, değerli bilgi ve deneyimleriyle tüm süreçte desteğini aldığım sevgili tez danışmanım Prof. Dr. Nil TOPLAN'a ve Prof. Dr. H. Özkan TOPLAN başta olmak üzere tüm bölüm hocalarıma şükranlarımı ve saygılarımı sunarım.

Laboratuvar olanakları konusunda teknik olarak ve analiz esnasında desteklerini ve yardımlarını benden esirgemeyen Sakarya Üniversitesi Metalurji ve Malzeme Mühendisliği Laboratuvar teknikerlerine ve sayın hocam Arş. Gör. Dr. Tuğba TUNÇ PARLAK'a ve ayrıca değerli hocam Dr. Öğr. Üyesi Murat TUNA'ya teşekkürlerimi sunarım. 2016-50-01-041 numaralı tez çalışmam maddi açıdan destek olan Sakarya Üniversitesi Bilimsel Araştırma Projeleri (BAP) Komisyon Başkanlığına ve yetkililerine teşekkür ederim.

Ayrıca tez hazırlığım esnasında bana her konuda destek olan tüm arkadaşlarıma ve son olarak bugünlere gelmemde en büyük yardım ve sonsuz desteklerini gördüğüm sevgili aileme teşekkürlerimi sunarım.



# İÇİNDEKİLER

TEŞEKKÜR .....	i
İÇİNDEKİLER .....	ii
SİMGELER VE KISALTMALAR LİSTESİ .....	v
ŞEKİLLER LİSTESİ .....	vi
TABLOLAR LİSTESİ .....	x
ÖZET .....	xi
SUMMARY .....	xii
BÖLÜM 1.	
GİRİŞ .....	1
BÖLÜM 2.	
AEROJELLER .....	3
2.1. Aerojelin Tarihçesi .....	3
2.2. Aerojel Nedir? .....	4
2.3. Aerojel Çeşitleri .....	5
2.3.1. Karbon arojeller .....	5
2.3.2. Silika arojeller .....	6
2.3.3. Alümina arojeller .....	7
2.3.4. Diğer arojeller .....	8
BÖLÜM 3.	
SİLİKA ESASLI AEROJELLER .....	9
3.1. Silika Aerojellerin Özellikleri .....	9
3.2. Silika Aerojel Sentezi ve Sol-Jel Yöntemi .....	10

3.2.1. Jelin hazırlanması .....	11
3.2.2. Jelin yaşlandırılması .....	11
3.2.3. Jelin kurutulması .....	12
3.2.3.1. Atmosfer basıncında kurutma.....	13
3.2.3.2. Dondurarak kurutma .....	13
3.2.3.3. Süper kritik şartlarda kurutma .....	15
3.3. Hidrofobik Aerojel ve Sililasyon .....	16
3.4. Silika Aerojel Kullanım Alanları .....	18
3.5. Literatür Araştırması .....	21
<b>BÖLÜM 4.</b>	
<b>DENEYSEL ÇALIŞMALAR .....</b>	<b>28</b>
4.1. Amaç .....	28
4.2. Silika Esaslı Doğal Hammaddeler .....	30
4.2.1. Perlit .....	30
4.2.2. Kuvars .....	31
4.2.3. Zeolit .....	31
4.2.4. Pomza .....	32
4.3. Silika Esaslı Aerojel Üretiminde Kullanılan Malzemeler .....	33
4.4. Silika Aerojel Tozunun Üretimi .....	33
4.4.1. Sodyum silikat çözeltisinin hazırlanması .....	33
4.4.2. Silika jelin yaşlandırılması .....	34
4.4.3. Atmosferik şartlarda kurutma .....	36
4.5. Silika Aerojel Karakterizasyonu .....	37
4.5.1. FTIR analizi .....	37
4.5.2. SEM analizi.....	39
4.5.3. FESEM analizi .....	39
4.5.4. Termal analiz.....	40
4.5.5. BET analizi .....	40
4.5.6. XRD analizi .....	41

## BÖLÜM 5.

DENEYSEL SONUÇLAR VE İRDELEME .....	43
5.1. Giriş .....	43
5.1.1. Mikroyapı analizi .....	43
5.1.2. Termal analiz .....	61
5.1.3. FTIR analizi .....	75
5.1.4. BET analizi .....	85
5.1.5. Faz analizi .....	96

## BÖLÜM 6.

GENEL SONUÇLAR VE ÖNERİLER .....	102
6.1. Genel Sonuçlar .....	102
6.2. Öneriler .....	104
KAYNAKLAR .....	106
ÖZGEÇMİŞ .....	112

## SİMGELER VE KISALTMALAR LİSTESİ

SEM	: Taramalı Elektron Mikroskobu
EDS	: Enerji dağılımlı X-ışınları analizi
XRD	: X-ışınları Difraktometresi
DTA	: Diferansiyel Termal Analiz
FESEM	: Taramalı Elektron Mikroskobu
FTIR	: Fourier Dönüşümlü Kızılötesi Spektroskopisi
BET	: Brunauer Emmet ve Teller Analizi
TMOS	: Tetrametoksisilan
TEOS	: Tetraetoksilan
TriEOS	: Trietoksisilan
MTMS	: Metiltrimetoksisilan
SS	: Sodyum silikat
TMCS	: Trimetilklorosilan
HMDZ	: Hegzametildisilazan
PEDS	: Polietoksidisiloksan
$P_0$	: Doymuş buhar basıncı
$P$	: Buhar basıncı
$n_m$	: Tek tabaka kapasitesi
$E_I-E_L$	: Net adsorpsiyon
TG	: Termogravimetri
DSC	: Diferansiyel Taramalı Analiz

## ŞEKİLLER LİSTESİ

Şekil 2.1.	Aerojel, en hafif katı malzemeye ait makroyapı görüntüleri .....	4
Şekil 2.2.	Sol-jel teknolojisi ile sentezlenmiş farklı şekillerdeki karbon aerojeller, (a) Öğütülmüş toz (b) Silindirik monolit .....	6
Şekil 3.1.	Atmosferik şartlarda üretilen hidrofobik silika aerojel akış şeması ...	12
Şekil 3.2.	Metoksilasyon metodu ile hidrofobik aerojel üretim şeması .....	17
Şekil 3.3.	Eş öncü metodu ile hidrofobik aerojel üretim şeması .....	17
Şekil 3.4.	Sililasyon metodu ile hidrofobik aerojel üretim şeması .....	18
Şekil 3.5.	Aerojel granülleri ve granül bazlı sıvanın cephelerde kullanımı .....	19
Şekil 3.6.	Aerojel dolgulu pencere camı ve paneli .....	20
Şekil 4.1.	Silika aerojel üretim akım şeması .....	29
Şekil 4.2.	(a,b) Perlit tozundan elde edilen sodium silikat çözeltisinin karıştırma ve (c) Filtre işlemleri .....	34
Şekil 4.3.	Silika aerojelin oda sıcaklığında (a,b) yaşlandırılması ve (c,d,e) silika jel oluşum aşamaları .....	35
Şekil 4.4.	Hazırlanan çözeltilerde etüv içerisinde yaşlandırma işlemi .....	36
Şekil 4.5.	Kurutma işleminden sonra elde edilen silika aerojel tozları .....	37
Şekil 4.6.	FTIR Spektroskopisi çalışma prensibi .....	38
Şekil 4.7.	FTIR Cihazı .....	38
Şekil 4.8.	SEM Cihazı .....	39
Şekil 4.9.	FESEM Cihazı .....	40
Şekil 4.10.	Termal Analiz Cihazı .....	40
Şekil 4.11.	BET cihazı .....	41
Şekil 4.12.	Rigaku marka XRD cihazı .....	42
Şekil 5.1.	Silika aerojel başlangıç malzemelerinin (a) Perlit, (b) Kuvars, (c) Pomza, (d) Zeolit, (e) Pencere camı, (f) Soda şişesi, (g) Borcam SEM görüntüleri .....	45

Şekil 5.2.	Farklı doğal hammadde ve atık tozlarından üretilen silika aerojel tozlarına ait SEM görüntüleri .....	47
Şekil 5.3.	Perlit tozundan üretilen silika aerojel tozunun (a) 100.000X, (b) 300.000X büyütmedeki FESEM görüntüleri .....	48
Şekil 5.4.	Perlitten üretilen silika aerojel tozunun farklı büyütmelelerde görüntüsü ve FESEM-EDS analiz sonuçları .....	49
Şekil 5.5.	Kuvars tozundan üretilen silika aerojel tozunun (a) 100.000X, (b) 300.000X büyütmedeki FESEM görüntüleri .....	50
Şekil 5.6.	100.000X büyütmede kuvars tozundan elde edilen silika aerojel tozunun FESEM –EDS sonuçları .....	51
Şekil 5.7.	Pomza tozundan üretilen silika aerojel tozunun (a) 100.000X, (b) 300.000X büyütmedeki FESEM görüntüleri .....	52
Şekil 5.8.	100.000X büyütmede pomza tozundan elde edilen silika aerojel tozunun FESEM –EDS sonuçları .....	53
Şekil 5.9.	100.000X büyütmede zeolit tozundan elde edilen silika aerojel tozunun FESEM –EDS sonuçları .....	53
Şekil 5.10.	Zeolit tozundan üretilen silika aerojel tozunun (a) 100.000X, (b) 300.000X büyütmedeki FESEM görüntüleri .....	54
Şekil 5.11.	Pencere camı tozundan üretilen silika aerojel tozunun (a) 100.000X, (b) 300.000X büyütmedeki FESEM görüntüleri .....	55
Şekil 5.12.	100.000X büyütmede pencere camı tozundan elde edilen silika aerojel tozunun FESEM-EDS sonuçları .....	56
Şekil 5.13.	100.000X büyütmede soda şişesi camı tozundan elde edilen silika aerojel tozunun FESEM-EDS sonuçları .....	56
Şekil 5.14.	Soda şişesi tozlarından üretilen silika aerojel tozunun (a) 100.000X, (b) 300.000X büyütmedeki FESEM görüntüleri .....	57
Şekil 5.15.	Borcam tozundan elde edilen silika aerojel tozunun (a) 100.000X, (b) 300.000X büyütmedeki FESEM görüntüleri .....	58
Şekil 5.16.	100.000X büyütmede borcam tozundan elde edilen silika aerojel tozunun FESEM-EDS sonuçları .....	59
Şekil 5.17.	100.000X ve 300.000X büyütmede silika aerojel tozlarının FESEM görüntüleri .....	60

Şekil 5.18.	Perlit tozundan elde edilen silika aerojel tozunun DTA grafiği.....	62
Şekil 5.19.	Kuvars tozundan elde edilen silika aerojel tozunun DTA grafiği.....	63
Şekil 5.20.	Pomza tozundan elde edilen silika aerojel tozunun DTA grafiği .....	63
Şekil 5.21.	Zeolit tozundan elde edilen silika aerojel tozunun DTA grafiği.....	64
Şekil 5.22.	Pencere camı tozundan elde edilen silika aerojel tozunun DTA grafiği .....	65
Şekil 5.23.	Soda şişesi camı tozundan elde edilen silika aerojel tozunun DTA grafiği .....	65
Şekil 5.24.	Borcam tozundan elde edilen silika aerojel tozunun DTA grafiği .....	66
Şekil 5.25.	Silika aerojel tozlarının DTA grafikleri .....	66
Şekil 5.26.	(a) Kuvars, (b) Perlit, (c) Pomza, (d) Zeolit, (e) Pencere camı, (f) Soda şişesi, (g) Borcam tozlarından elde edilen silika aerojel tozlarının DTA grafikleri .....	67
Şekil 5.27.	Perlit tozundan elde edilen silika aerojel tozunun TG grafiği .....	68
Şekil 5.28.	Kuvars tozundan elde edilen silika aerojel tozunun TG grafiği.....	69
Şekil 5.29.	Pomza tozundan elde edilen silika aerojel tozunun TG grafiği .....	69
Şekil 5.30.	Zeolit tozundan elde edilen silika aerojel tozunun TG grafiği .....	70
Şekil 5.31.	Pencere camı tozundan elde edilen silika aerojel tozunun TG grafiği .....	71
Şekil 5.32.	Soda şişesi tozundan elde edilen silika aerojel tozunun TG grafiği ...	71
Şekil 5.33.	Borcam tozundan elde edilen silika aerojel tozunun TG grafiği .....	72
Şekil 5.34.	(a) Perlit, (b) Kuvars, (c) Pomza, (d) Zeolit, (e) Pencere camı, (f) Soda şişesi, (g) Borcam tozlarından elde edilen silika aerojel tozlarının TG grafikleri .....	74
Şekil 5.35.	Perlit tozundan elde edilen silika arojelin FTIR analizi .....	76
Şekil 5.36.	Kuvars tozundan elde edilen silika aerojel tozunun FTIR analizi .....	76
Şekil 5.37.	Pomza tozundan elde edilen silika arojelin FTIR analizi .....	77
Şekil 5.38.	Zeolit tozundan elde edilen silika aerojel tozunun FTIR analizi .....	78
Şekil 5.39.	Pencere camı tozundan elde edilen silika aerojel tozunun FTIR analizi .....	79
Şekil 5.40.	Soda şişesi tozundan elde edilen silika arojelin FTIR analizi .....	79
Şekil 5.41.	Borcam tozundan elde edilen silika arojelin FTIR analizi .....	80

Şekil 5.42. (a) Perlit, (b) Kuvars, (c) Pomza, (d) Zeolit, (e) Pencere camı, (f) Soda şişesi, (g) Borcam tozlarından elde edilen silika aerojel tozlarının FTIR analiz grafikleri .....	81
Şekil 5.43. Perlit tozundan elde edilen silika aerojel tozuna ait izoterm eğrileri .....	88
Şekil 5.44. Kuvars tozundan elde edilen silika aerojel tozuna ait izoterm eğrileri .....	89
Şekil 5.45. Pomza tozundan elde edilen silika aerojel tozuna ait izoterm eğrileri .....	89
Şekil 5.46. Zeolit tozundan elde edilen silika aerojel tozuna ait izoterm eğrileri .....	90
Şekil 5.47. Pencere camı tozundan elde edilen silika aerojel tozuna ait izoterm eğrileri .....	90
Şekil 5.48. Soda şişesi camı tozundan elde edilen silika aerojel tozuna ait izoterm eğrileri .....	91
Şekil 5.49. Borcam tozundan elde edilen silika aerojel tozuna ait izoterm eğrileri .....	91
Şekil 5.50. Perlit tozundan elde edilen silika aerojel tozuna ait gözenek boyutu dağılımı .....	50
Şekil 5.51. Kuvars tozundan elde edilen silika aerojel tozuna ait gözenek boyutu dağılımı .....	93
Şekil 5.52. Pomza tozundan elde edilen silika aerojel tozuna ait gözenek boyutu dağılımı .....	93
Şekil 5.53. Zeolit tozundan elde edilen silika aerojel tozuna ait gözenek boyutu dağılımı .....	94
Şekil 5.54. Pencere camı tozundan elde edilen silika aerojel tozuna ait gözenek boyutu dağılımı .....	94
Şekil 5.55. Soda camı tozundan elde edilen silika aerojel tozuna ait gözenek boyutu dağılımı .....	95
Şekil 5.56. Borcam tozundan elde edilen silika aerojel tozuna ait gözenek boyutu dağılımı .....	95
Şekil 5.57. Perlit tozundan elde edilen silika aerojel tozuna ait XRD grafiği.....	97
Şekil 5.58. Kuvars tozundan elde edilen silika aerojel tozuna ait XRD grafiği....	98



Şekil 5.59. Zeolit tozundan elde edilen silika aerojel tozuna ait XRD grafiđi.....	98
Şekil 5.60. Pomza tozundan elde edilen silika aerojel tozuna ait XRD grafiđi.....	99
Şekil 5.61. Borcam tozundan elde edilen silika aerojel tozuna ait XRD grafiđi...	99
Şekil 5.62. Pencere camı tozundan elde edilen silika aerojel tozuna ait gözenek boyutu dağılımı .....	100
Şekil 5.63. Soda şişesi camı tozundan elde edilen silika aerojel tozuna ait gözenek boyutu dağılımı .....	100

## TABLolar LİSTESİ

Tablo 2.1. Silika arojellerin genel özellikleri .....	7
Tablo 3.1. Hidrofobik silika arojel üretiminde kullanılan sililasyon ajanları .....	14
Tablo 4.1. Deneysel çalışmalarda kullanılan doğal hammadde ve atık malzemelerin kimyasal analizi .....	28
Tablo 4.2. Perlit ve kuvars tozlarının fiziksel özellikleri .....	33
Tablo 5.1. Silika arojel tozu kaynakları .....	43
Tablo 5.2. Silika arojel tozlarına ait FTIR dalga boyu değerleri .....	75
Tablo 5.3. Literatür ve üretilen silika arojel tozlarına ait FTIR analiz sonuçları	84
Tablo 5.4. Silika arojel tozlarının BET yüzey alanı sonuçları .....	86
Tablo 5.5. Silika arojel tozlarının BET gözenek hacmi sonuçları .....	86
Tablo 5.6. Silika arojel tozlarının BET gözenek boyutu sonuçları .....	86
Tablo 5.7. Silika arojel tozlarının BET nanopartikül boyut sonuçları .....	87
Tablo 5.8. Silika arojel tozlarının gözeneklilik verileri .....	88
Tablo 5.9. Silika arojel tozlarının XRD analiz verileri .....	102

## ÖZET

Anahtar kelimeler: Silika aerogel, sol-jel yöntemi, atmosferik kurutma

Mevcut çalışmada, doğal silika esaslı hammaddeler (perlit, zeolit, pomza, kuvars) ve atık malzemeler (pencere camı, borcam, soda şişesi camı tozu) kullanılarak sol-jel yöntemi ile silika aerogel tozu üretimi amaçlanmıştır. Hazırlanan NaOH çözeltisinde silika kaynağı tozların reflux işlemi ile çözünmesi sağlanmış ve ardından filtre edilerek sodyum silikat çözeltisi elde edilmiştir. Çözeltinin pH'ı HCl asit kullanılarak nötralize edilmiş ve kapalı bir konumda oda sıcaklığında yaşlandırma işleminin ilk evresi başlatılmıştır. Hacimce %20'lik H<sub>2</sub>O/Ethanol, %70'lik Ethanol/TEOS ve n-heptan içerisinde 1'er gün boyunca etüvde bekletilerek yaşlandırma işlemine devam edilmiştir. Silika aerogel yapısındaki bağları kuvvetlendirmek ve malzeme dayanımını arttırmak için yaşlandırma evresinde özellikle TEOS (tetraethylorthosilicate) ile yüzey modifikasyonu gerçekleştirilmiştir. Yaşlandırma işleminin sonunda, farklı sıcaklıklarda belirlenen süre boyunca atmosfer basıncında kurutma ile jel yapısındaki sıvı uzaklaştırılmış ve son olarak oda sıcaklığında bekletilerek silika aerogel tozları üretilmiştir. Elde edilen silika aerogeller SEM, FESEM, EDS, XRD, DTA, FTIR, XRD ve BET cihazları kullanılarak karakterize edilmiş ve farklı doğal ve atık malzemelerden üretilen silika aerogellerin özellikleri karşılaştırmalı olarak detaylandırılmıştır.

Araştırmada elde edilen karakterizasyon sonuçlarına göre; SEM, FESEM analizi ile silika aerogel tozlarının üç boyutlu, süngerimsi gözenekli ağyapısı sayesinde düşük yoğunluğa ve birçok delikten oluşan gözenekli süngerimsi yapıları ile yüksek porluluk değerlerine sahip olduğu tespit edilirken, DTA analizi ile oksidasyondan kaynaklı ekzotermik ve dehidratasyon, dekompozisyon tepkimelerinden kaynaklı endotermik piklerin oluştuğu görülmüştür. FTIR analizi ile titreşimden kaynaklı Si-C pikleri, moleküllerin hareketinden ve bağlarının asimetrik ve simetrik bağlanmalarından kaynaklı güçlü ve belirgin Si-O-Si pikleri, adsorpsiyondan kaynaklı C-H pikleri ve fiziksel olarak adsorbe edilmiş sudan kaynaklanan O-H adsorpsiyon pikleri meydana gelmiştir. BET analizi ile tozlara ait yüzey alanı, gözenek hacmi, gözenek çapı, nanopartikül boyutu sonuçları ve adsorpsiyon-desorpsiyon izoterm eğrileri elde edilmiştir.

# **AEROGEL POWDER PRODUCTION AND CHARACTERIZATION FROM SILICA BASED NATURAL RAW AND WASTE MATERIALS**

## **SUMMARY**

Keywords: Silica aerogel, sol-gel method, atmospheric drying

In this current study, it was purposed to produce silica aerogel powder using natural silica based raw materials (perlite, zeolite, pumice, quartz) and waste materials (window glass, borate, soda bottle glass dust) by sol-gel method. In the prepared NaOH solution, silica source powders were dissolved by reflux process and then filtered to obtain a sodium silicate solution. The pH of the solution was neutralized using HCl acid and the first step of the aging process was initiated at room temperature in the closed position. The aging process was continued as the volume in the %20 H<sub>2</sub>O/Ethanol, %70 Ethanol/TEOS and n-heptane for 1 day with keeping in oven. Surface modification with TEOS (tetraethylorthosilicate) was carried out at the aging stage in order to strengthen the bonds in the silica aerogel structure and to increase the material strength. The final of aging step, the liquid in the gel structure was removed by drying under atmospheric pressure for a period of time determined at different temperatures, and finally silica aerogel powders were produced at room temperature. The obtained silica aerogel powders was characterized using SEM, FESEM, EDS, XRD, DTA, FTIR, XRD and BET devices and the properties of silica aerogels produced from different natural and waste materials are comparatively detailed.

According to the characterization results achieved in this thesis research; they were found that silica aerogels have very low density due to the three-dimensional and porous network and high porosity values with porous spongy structures made up of millions of holes with SEM, FESEM analysis; endothermic peaks were observed from dehydration, decomposition reactions and exothermic peaks were observed from oxidation with DTA analysis. The FTIR analysis showed that Si-C peaks originated from vibration, strong and prominent Si-O-Si peaks originating from asymmetric and symmetrical bonds of molecules and movement of the bonds, C-H peaks originated from adsorption and O-H adsorption peaks originating from physically adsorbed water. Surface area, pore volume, pore diameter, nanoparticle size results and adsorption-desorption isotherm curves of the powders were obtained by BET analysis.

## BÖLÜM 1. GİRİŞ

Aerojel, hava ile bünyesindeki sıvı bileşenin yer değiştirmesi ile elde edilen silika esaslı katı maddelerdir ve ilk olarak 1931 yılının başlarında Stefan Kistler tarafından üretilmiştir. Aerojellerin çok küçük gözeneklerden meydana gelen yüzeyi, süngeri anımsatır. Bünyesinde %99,8 oranda hava bulunduğundan, çok yalıtkan, hafif ve düşük yoğunluğa sahip malzemelerdir.

Aerojeller dünyanın en hafif ve yoğunluğu en düşük katısı olarak bilinmektedir. Bir malzeme için böyle gazla (hava ile) dolu olmak çok fazla karşılaşılan bir konu değildir. 1 gramı 250 m<sup>2</sup>'den 3000 m<sup>2</sup>'ye kadar değişen aralıkta yüzey alanına sahip olabilmektedir. Yani bir futbol sahasından çok daha büyük bir alana 2-3 cm<sup>3</sup> aerojel yerleştirebilir. Aerojelin çok düşük özgül ağırlığı onun çok hafif bir malzeme olarak kabul görmesini ve çok yüksek yüzey alanı süper-yalıtkan gözenekli bir malzeme olarak sentezlenmesini sağlamaktadır.

Aerojellerin karbon aerojel, silika aerojel, alümina aerojel, metal aerojel ve nanotüp aerojel gibi türleri bulunmaktadır. Doğal hammaddelerden sentezlendiği ve çevre dostu olduğu için en yaygın kullanılanı silika aerojellerdir. Silika aerojeller yüksek yüzey alanı, yüksek gözeneklilik, düşük yoğunluk, düşük dielektrik sabiti ve yüksek porozite gibi üstün özelliklere sahiptir. Aerojeller jelin hazırlanması, yaşlandırılması ve kurutulması aşamaları olmak üzere sol-jel yöntemi ile sentezlenmektedir. Silika kaynağı olarak sentezlenmiş çözelti ile sol hazırlanmakta ve katalizör eklendiğinde jelleşme başlangıcı gözlemlenmektedir. Meydana gelen jeller ara maddesine bağlı olarak hydrojel, alkojel, aquajel ve aerojel olarak sınıflandırılmaktadır. Katalizör ile birlikte gerçekleştirilen hidroliz aşamasında iki aşamalı asit-baz, asit veya baz katalizörü kullanılmaktadır. Siloksanın çapraz bağ seviyesinin artması ve silika güçlü ağına yeni monomerlerin ilave olması yaşlandırma işlemidir. Yaşlanma esnasında aerojelin mukavemeti artarak bağları

kuvvetlenmektedir. Kurutma prosesinin gerçekleştirilmesindeki amaç jelin bağ iskelet yapısını koruyarak ve güçlendirerek büzölmeleri yok edecek kadar en aza indirmektir. Bu nedenle çözücüü jelin yapısından tamamen uzaklaştırmak önemli bir husustur.

Aerojel, pencere uygulamaları, mimari süsleme alanları, termal ve akustik yalıtım, uzay ve havacılık prosesleri, katalizör dolguları, yakıt pilleri, kimyasal sensörler, ilaç ve salım sistemleri, gibi birçok önemli sanayi alanlarında kullanılmaktadır. Sızıntı gidericide kimyasal adsorbant, boyalarda yoğunlaştırıcı ve emici amacıyla birçok kullanım alanları bulunmaktadır. Aerojeller süper yalıtım özellikleri ile tekne kazanlarında maksimum enerji kazancı sağlamaktadır. Ayrıca bu üstün özelliklere sahip malzemelerin mimari alanda ve binalarda kullanımı çok yaygındır. Aerojeller, yalıtım panellerine yerleştirilerek de kullanım alanı bulmaktadır.

Gerçekleştirilen bu çalışmada, doğal ve atık 7 farklı silika başlangıç malzemeleri kullanılarak atmosferik basınçta kurutma ile silika aerojel tozları sentezlenmiştir. Mevcut çalışmada kullanılan doğal ve atık malzemelerden silika esaslı aerojel tozu üretimine literatürde rastlanmamıştır. Silika kaynağı olarak perlit, kuvars, zeolit, pomza, pencere camı tozu, soda şişesi camı tozu ve borcam tozları kullanılmıştır. Bu farklı başlangıç silika kaynaklarının, silika aerojel tozu mikroyapısına, kimyasal bağ yapısına, termal analiz değerlerine, kristal yapılarına, yüzey alanı ve gözenek çapı değerlerine olan etkileri incelenmiştir. Silika aerojel tozu elde edebilmek için sol-jel yöntemi ile sodyum silikat çözeltisi hazırlanmış ve HCl asit katalizörü kullanılarak jelleşme sağlanmıştır. Ardından çeşitli kimyasallar kullanılarak yaşlandırma işlemi ile silika aerojel tozlarının bağ yapısı güçlendirilmiştir. Atmosferik basınçta kurutma ile üstün özelliklere sahip silika aerojel tozları sentezlenmiştir.

## **BÖLÜM 2. AEROJELLER**

### **2.1. Aerojelin Tarihçesi**

Aerojel, hava ile içerisindeki sıvı bileşenin yer değiştirmesi prosesinden oluşan silika esaslı katı malzemelerdir. Duman benzeri görüntü oluşturdıkları için donmuş duman olarak adlandırılırlar. İlk olarak 1931 yılının başlarında silika jeller esas alınarak Steven Kistler tarafından sentezlenmiştir [1].

Steven Kistler Kaliforniya Stockton'da Pasifik Üniversitesinde ilk aerojelleri hazırladı. Kistler Pasifik Üniversitesindeki çalışmalarının ardından Monsanto'dan gelen iş teklifini kabul etti ve yapmış olduğu mevcut çalışmalar ile aerojel Santocel adında ticarileştirildi. Ticari anlamda elde edilen bu aerojeller öncelikli olarak kozmetik ürünlerinde ve diş macunlarında kullanıldı [2].

1970'lerde Fransa Lyon'daki Claud Bernard Üniversitesinde Teichner'in grubu ve diğer gruplar aerojel elde etme prosesini önemli ölçüde kolaylaştırmalarına rağmen; aerojele olan ilgi giderek azalırken, Fransız hükümetinin uzay roketlerinin oksijenini ve yakıtını depolamak için Amerikalı bilim adamlarından üstün özellikli bir malzeme bulmalarını istemesi ile aerojel yeniden gündeme gelerek gözde olmuştur.

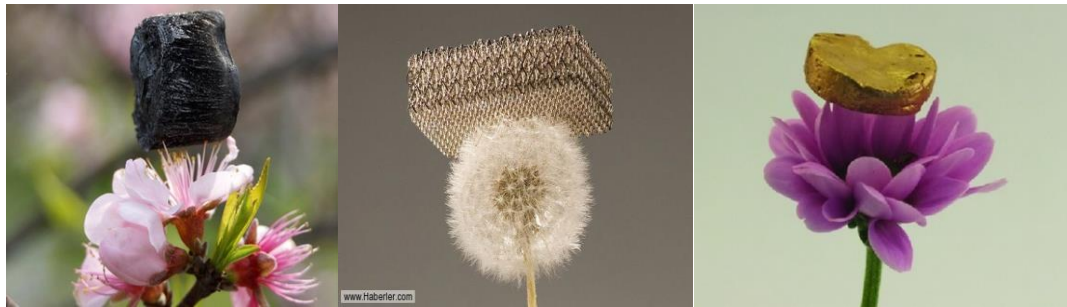
Aspen Systems Aerojel çalışmalarına ve geliştirmeye NASA ile birlikte 1993 yılında başlarken; 1999'da Cabot Hoechst, projesini satın almıştır. Aynı zaman diliminde Aspen Systems aerojelleri SBIR ödülüne layık görülerek yılın teknolojisi olarak adlandırıldı. Bu ödülle beraber 2001'de Aspen Aerojels şirketi temelleri atılırken ardından Cabots Aerojel seri üretimine Nanogel markası ile başlandı [2].

## 2.2. Aerojel Nedir?

Aerojel Dünya üzerinde sentezlenen katı gözenekli ve porlu malzemeler arasında en az yoğunluğa sahip olan açık gözenekli malzemedir. Yaklaşık olarak %95'i hava olan bu katı malzemenin yoğunluğu  $0,001$  ile  $0,5 \text{ g/cm}^3$  aralığında değişmektedir. Çok hafif olduğundan dolayı uçuşması düşünülen bu malzeme yoğunluğu içi hava doluyken tespit edildiği için ve yer çekimini yenememesi nedeni ile uçamaz.

Aerojeller, bir diğer silika esaslı malzeme olan cam ile karşılaştırıldığında çok daha az yoğunluğa ve gözenekli yapıya sahiptir. Boyutları milimetrenin milyarda biri kadar olan gözenekler, malzemenin içini kaplar. Aerojel, bilinen köpüklerden ve diğer yalıtım malzemelerinden çok daha üstün ve verimli özelliklere sahip olup; oksijen kaynağından direkt yansıyan ateşi bile yalıtabilen bir malzemedir [3].

Aerojeller düşük yığın yoğunluğu, yüksek yüzey alanı, sürekli gözeneklilik ve yüksek çapraz bağlanma yapıları gibi birçok ilginç özelliğe sahip gözenekli malzemelerdir. Gözenekli yapısı ve nanometre boyutundaki parçacıklardan oluşan özgün mikroyapıları nedeniyle çarpıcı sayıda uygulama alanları için incelenmiş ve üretim metodları geliştirilmiştir [4].



Şekil 2.1. Aerojel, en hafif katı malzemeye ait makro görüntüler [5].

Jelde meydana gelen sıvı fazın gaz faz ile yer değiştirmesi sonucu meydana gelen çok düşük yoğunluktaki aerojellerin bir diğer dikkat çekici özelliği ise çevre dostu malzeme olmalarıdır. Aerojel doğaya parçalanmak için bırakıldı zaman geriye yalnızca kum bırakması bu sentetik malzemenin daha da çok tercih edilmesini sağlamaktadır. İlk zamanlarda, aerojeller silika tabanlı hammaddelerden elde edilen



sıvı jelin yüksek sıcaklık ve basınç ile muamele edilerek sonrasında ise kurutulması ile üretiliyordu. Son zamanlarda ise arojeller doğal ve atık silika kaynakları, atık metaloksitler, karbon ve karbon nanotüpler, organik polimer hammaddelerinden üretilmektedir [3]. Şekil 2.1.'de arojelerle ait makro görüntüler verilmiştir [5].

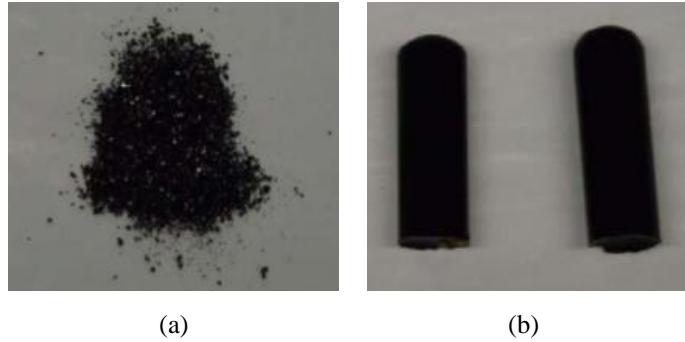
### 2.3. Aerojel Çeşitleri

#### 2.3.1. Karbon arojeller

Üç boyutlu simetrik ve asimetrik ağ yapısı olan karbon arojeller, kovalent bağlı, adsorban özellik sergileyen nanometre boyutunda malzemelerdir. Yüksek gözenekliliğe ve yüksek yüzey alanına sahiptirler. Gözenek yapısı, kontrol edilebilir özelliğe sahiptir. Bu nedenle toz, yaprak ve katı hal gibi çok farklı formlarda üretilirler. Karbon arojeller zehirsiz, inert, çevreye zarar vermeyen yapıda oldukları için ve özellikle nano gözenek yapısını optimize edebilmek zor olmadığı için, son yıllarda bilim adamları üretimi için çok daha etkili yollar bulabilmek adına karbon arojel araştırmaları üzerine yoğunlaşmışlardır [6].

Karbon arojeller, üç aşamada gerçekleştirilen sol-jel prosesi ile poliüretan ve poliüre, resorsinol-formaldehit (RF), fenol-furfural (PF), melamin-formaldehit'den (MF), üretilmektedir. Bu metotlar arasında resorsinol-formaldehit (RF) metodu karbon arojel hazırlamak için bilinen en basit yoldur. Ayrıca bu metotla partikül boyutu, sıcaklık, pH, reaksiyon zamanı ve konsantrasyon gibi hazırlama şartları kolaylıkla kontrol edilebilmektedir [7].

Karbon arojeller Şekil 2.2.'de görüldüğü gibi farklı şekillerde olmaktadır. Bunlardan bir tanesi monolitik karbon arojel'dir. Bu monolitik yapı, (sürekli olan) yüksek yüzey alanına sahiptir ve yüksek elektriksel iletkenlik sağlar. Bu formdaki kimyasal kompozisyona sahip karbon arojellerin, fiziksel özellikleri ve mikro yapısı büyük oranda kontrol edilebilir. Çok yüksek yüzeyli karbon arojel tozları ise sol-jel üretim yöntemine bağlıdır. Aktivasyon işlemine bağlı değildir [8].



Şekil 2.2. Sol-jel teknolojisi ile sentezlenmiş farklı şekillerdeki karbon arojeller (a) Öğütülmüş toz (b) Silindirik monolit [8].

Gözenekli karbonlar ile ilgili yüksek yüzey alanı, iyi gelişmiş gözenek yapısı, ayarlanabilir gözenekli yüzey kimyası ve iletken karbon çerçevesi gibi benzersiz özelliklerinden ötürü birçok kapsamlı araştırma yapılmaktadır. Bu nedenle, yenilenebilir enerji, adsorpsiyon/ayırma, ilaç, kataliz ve çevresel temizleme de dahil olmak üzere bir dizi spektrumda kullanım alanı bulmaktadır [9].

### 2.3.2. Silika arojeller

Silika arojel, açık hücreli, yüksek gözenekliliğe sahip, oldukça düşük yoğunluklu, yüksek yüzey alanı ve termal yalıtım özelliği, çok düşük kırılma indeksi ve dielektrik sabiti gibi sıradışı ve üstün özelliklere sahiptir. Yüksek ölçüde gözeneklilik ve düşük yoğunluk gibi özellikleri sayesinde, sentezlenen silika arojeller sensör malzemesi, katalizör ve adsorbant olarak kullanım alanı bulmaktadır [7]. Silika arojeller, başlangıç hammaddesi olarak yağ kili kullanarak yüksek spesifik yüzey alanı ve gözenek hacmi ile sentezlenebilmektedir. Silika arojeller mezo-gözenekli yapılarının yanısıra düşük yoğunluğu, gözenekli yapısı, yüksek yüzey alanı ve çok düşük termal iletkenlik gibi dikkat çeken özellikleri ile yalıtım malzemesi olarak tercih edilen bir arojel çeşididir [10]. Bu üstün ve arzu edilen özellikleri sebebiyle silika arojeller; iç hapsetme füzyonu olarak termonükleer füzyon tepkimelerinde, potansiyel malzeme olarak ise verimli termal

yalıtım, mimari, uzay ve havacılık, inşaat uygulamalarında çok fazla kullanılmaktadır [11].

Silika aerojeller 1930'lu yıllarda ilk üretilmesine rağmen beklenen gelişimi başlarda gösterememiştir. Fakat dikkat çekici bir oranda son yıllarda değişik parametreler ve farklı başlangıç hammaddeleri kullanılarak yapılan deneyler ve çalışmalar önem kazanmıştır. Mükemmel özellikleri ve birçok teknolojik araştırmalardaki mevcut ve potansiyel kullanımları sebebi ile her gün daha fazla dikkat çekmeye başlamıştır. Tablo 2.1.'de silika aerojellerin bazı genel özellikleri verilmiştir [12].

Tablo 2.1. Silika aerojellerin genel özellikleri [12].

Özellik	Değeri
Yoğunluk	0,003 g/cm <sup>3</sup>
Yüzey Alanı	500-1000 m <sup>2</sup> /g
Gözeneklilik	% 80-99,8
Gözenek Çapı	20-150 nm
Primer Parçacık Çapı	2-5 nm
Isıl İletkenlik	0,017-0,021 W/m.K
Isıl Genleşme Katsayısı	2-4.10 <sup>-6</sup> 1/K
Ses Hızı	100 m/s
Dielektrik Sabiti	1,1
Kırılma İndeksi	1-1,05

### 2.3.3. Alümina aerojeller

Metal elementleri başlangıç malzemesi olarak kullanılarak, sol jel yönteminin proses süresinin uzatılması yolu ile metal oksit aerojeller üretilmiştir. Son yıllarda yaygın olarak kullanılan alümina aerojellerin proses aşamaları hidroliz tepkimesiyle oluşmaktadır. Hidroliz esnasında kullanılan metal ile hidroksil metalin merkezinde buluşarak (Al-OH) yapısını meydana getirir ve ardından metalin merkezinde daha da artan hidroksiller tespit edilmeye başlar. Bu proses aşamaların en sonunda metal-oksit-metal yapısı (Al-O-Al) meydana gelmektedir [13].

#### **2.3.4. Diğer arojeller**

Aerojel çeşitlerine nanotüp ve yarı iletken metal arojeller örnek olarak verilebilir. 2002 yılında ilk üretimi gerçekleştirilmiş bakır katkılı metal arojeller saydamlık, geçirgenlik ve fotoluminesas özellikleri sayesinde eşsiz bir yapıya sahiptir. Değişik yöntemlerle arojel ve nanotüp'ün bir araya gelerek verimli bir yapının oluşumu sağlanmıştır. Bu oluşan malzeme mezo gözenekli ve tek parça olamamasından dolayı mevcut bilinen arojel tanımıyla örtüşmemiş ve elastik duman olarak tanımlanmıştır [14].

## **BÖLÜM 3. SİLİKA ESASLI AEROJELLER**

### **3.1. Silika Aerojellerin Özellikleri**

Silika aerjel yüksek porozite, geniş iç yüzey alanı ve düşük ısı iletkenliği gibi üstün özellikleri ile nanoyapısal bir malzemedir. Bu eşsiz özellikleri nedeniyle çok sayıda potansiyel uygulama alanı vardır. Silika aerjeller sensör malzemesi, katalizör ve adsorbent olarak, gözeneklilik ve çok düşük yoğunlukları sayesinde çok fazla kullanım alanı bulmaktadır. Ayrıca bunlara ilave olarak boya ve vernikler için dolgu maddesi olarak kullanılmaktadır [15].

Silika aerjel mikro, mezo ve makro gözenek olarak adlandırılan üç gözenek tipini de içerir. Fakat gözeneklerden büyük bir kısmı mezo gözenek yapısındadır. Gözeneklilik %99 üzerine çıkabilmektedir. Aerojelerdeki hacim büzülmesi, hidrojel ve aerjellerin hacmi kullanılarak hesaplanabilmektedir. Silika aerjellerin karakterizasyonu için iki yoğunluk terimi kullanılmaktadır. Bunlar yığın yoğunluğu ve iskelet yoğunluğudur [7].

Silika aerjeller şeffaf yapıya sahiptirler. Gözenekli bir madde için bu alışılmadık bir özelliktir. Aerojeller için ışığın dalga boyuyla kıyaslama yapıldığında çok daha küçük dalga boyunda oldukları tespit edilmiştir. Bir diğer önemli özelliği ise termal iletkenliğidir. Silika aerjeller gözenekliliği ve nanometrik gözenek boyutu sayesinde yalıtım malzemesi olarak kullanılmaktadır. Havadan daha düşük termal iletkenlik katsayısına sahiptir.

Silika aerjeller üretim koşullarına göre hidrofobik veya hidrofilik olmak üzere modifiye özellik göstermektedir. Aerojelin eşsiz yapısındaki silanol (Si-OH) polar malzemeye hidrofilik özelliği sağlamaktadır. Çünkü bu grup su ile hidrojen bağı

yapabilmektedir. Genel olarak aerojellere yüksek sıcaklıklarda süper kritik kurutma yapıldığında hidrofobik, CO<sub>2</sub> ile düşük sıcaklıkta kurutma gerçekleştirildiğinde ise hidrofilik özellik kazanmaktadır. Bu oluşan farklılık son aşamada yapılan kurutma prosesi süresince farklı yüzey formlarının meydana gelmesinden kaynaklanmaktadır.

Hidrofobikliği artırmak için iki yol bulunmaktadır:

1. Kurutma sırasında ajan eklemek veya jelleşme esnasında yüzey modifikasyonu için ajan eklemek.
2. Kurutma işleminden sonra ısı olarak yüzey modifikasyonu yapmaktır [7].

### **3.2. Silika Aerojel Sentezi ve Sol-Jel Yöntemi**

Silika aerojeller sol-jel yöntemi kullanılarak sentezlenmektedir. Gözenek çökmesini önleyecek şekilde kurutulmuş sol-jel malzemelerdir. Ortaya çıkan maddenin yüksek gözenekliliği alışılmadık fiziksel özelliklere neden olur. Silika aerojeller düşük ısı iletkenliği, yüksek yüzey alanı, düşük yoğunluk gibi özelliklere sahiptir. Termal, optik ve yapısal özelliklerin bu eşsiz bileşimi kimyasal sensörler, ısı yalıtımı ve toz toplayıcılar gibi birçok uygulama alanında kullanılmasını sağlar. Hidrofilik aerojeller ortam havasına özellikle nemli ortamlara maruz bırakıldıklarında zamanla bozulabilirler. Yapısal istikrarsızlık hidrofilik aerojellerin kullanımını sınırlamakta olup; buda hidrofobik aerojellerin sentezinde önemli araştırmaların yapılmasını tetikler ve silika aerojellere hidrofobik özellik kazandırmak için çeşitli sililasyon ajanları kullanılmaktadır [16]. Şekil 3.1.'de atmosferik şartlarda üretilen hidrofobik silika aerojel sentez akış şeması verilmiştir.

Silika aerojel sentezi sol-jel yöntemi ile jelin hazırlanması, jelin çeşitli ajanlar ile yaşlandırılması ve jelin atmosfer basıncında kurutulması olmak üzere üç aşamadan oluşmaktadır [18].

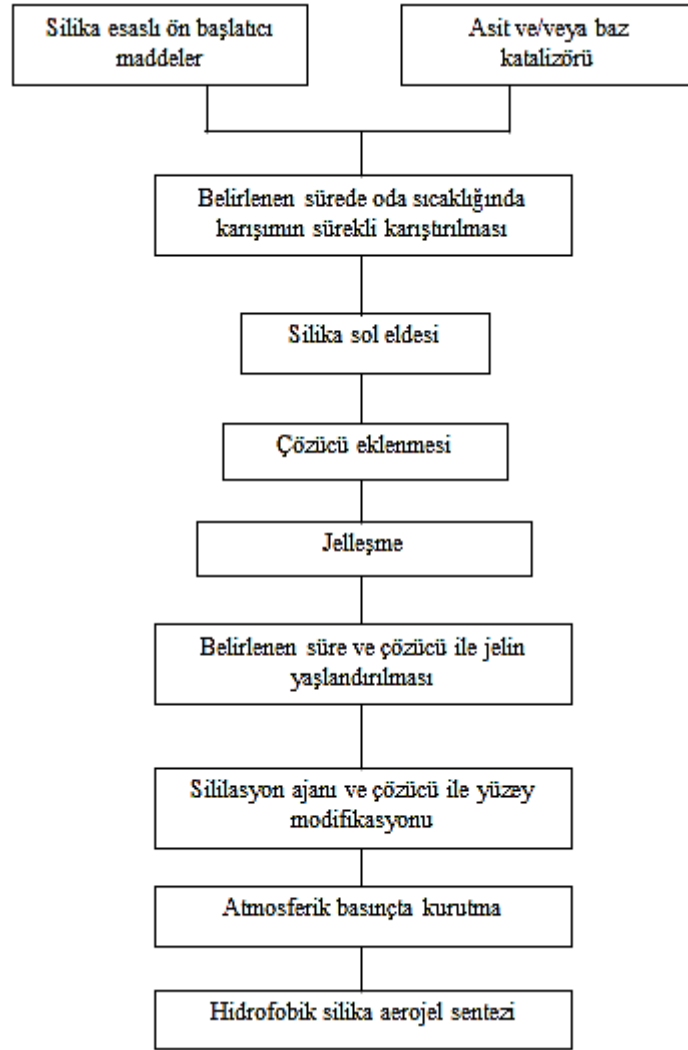
### 3.2.1. Jelin hazırlanması

Silika sol jelleri genellikle bir asit ve/veya baz katalizör varlığında silika başlatıcılarının hidrolizi ve polikondenzasyonu reaksiyonları ile oluşturulur. Elde edilen silis matrisi oldukça gözeneklidir. Ve sol-jel gözenekleri hidroliz ve kondenzasyon reaksiyonları ürünü sayesinde çözücü ile doldurulur. Eğer çözücü karışımı önemli bir yapısal çöküşe uğramadan ıslak sol jelden çıkabilirse aerjel oluşabilir [16].

Silika aerjel üretiminde kullanılan başlatıcı maddeler genelde; TMOS (tetramethoxysilane), TEOS (tetraethoxysilane), TriEOS (triethoxysilane), MTMS (methyltrimethoxysilane), SS (sodium silicate), TMOS (tetrametilortosilikat) olarak sıralanabilir [16]. Jelleşme katalizör eşliğinde gerçekleşmektedir. Katalizör olarak asit-baz katalizör ikilisi, asit veya baz katalizörü kullanılmaktadır. Katalizör olarak hidroklorik asit, okzalik asit, silisik asit, amonyum hidroksit ve amonyum florür kullanılmaktadır. Belirlenen silika esaslı ön başlatıcı ve katalizörler kullanılarak bir karışım hazırlanır, belli şartlar altında karıştırılarak ve bekletilerek jel hazırlanmış olur [19].

### 3.2.2. Jelin yaşlandırılması

Yaşlanma, bir jelin oluşumu ile çözücünün uzaklaştırılması arasındaki zamanı ifade eder. Gözenek sıvısı jel ağında kaldığı sürece, jel sabit değildir ve pek çok dönüşüme maruz kalır. Elde edilmiş jel için, yüzey fonksiyonel gruplar arasındaki kondenzasyon jel noktasından sonra da devam eder. Bu işlem gerçekte arzu edilebilir çünkü kontrol altına tutmak için mekanik olarak daha güçlü ve daha kolay olan fazla çapraz bağlı şebekeye sebep olur [20].



Şekil 3.1. Atmosferik şartlarda üretilen hidrofofik silika arojel akış şeması [17].

### 3.2.3. Jelin kurutulması

Kuruma esnasında jellerin iskeletini korumak ve büzülmesini en aza indirmek için çözücüyü jelden uzaklaştırmak gerekir. Islak bir jelden arojel yapmak için, sol-jel matrisinden sıvı çözücünün çıkarılması bazı zorlukları da beraberinde getirebilir. Çünkü modifiye edilmemiş bir ıslak jelin hassas nanoyapısı sıvı-buhar arayüzeyinde ki yüzey gerilimi nedeni ile kuruma esnasında var olan büyük kılcal kuvvetlere dayanamaz. Islak jel kururken, kılcal kuvvetler nanoyapıda kırılmaya neden olur. Arojel üretiminde gözenek çökmesini önlemek için 3 yöntem uygulanabilir. Her biri yüzey gerilimi etkilerinden dolayı kılcal kuvvetleri en aza indirmek veya ortadan kaldırmak üzere tasarlanmıştır [16].



1. Yüzey modifikasyonunu takiben ortam basınçlı kurutma
2. Dondurarak kurutma
3. Süperkritik şartlarda kurutma

### 3.2.3.1. Atmosfer basıncında kurutma

Bu kurutma tekniği ıslak jelin ortam basıncında kurutulması için tasarlanmıştır. Nanoyapı üzerinde etki yapan kılcal kuvvetleri azaltmak ya da nanoyapının bu kuvvetlere dayanma kabiliyetini arttırmak için uzun çözücü değişimi ile kimyasal işlem gerektirir. Atmosfer basıncında kurutma yapılarak ve sililasyon ajanları ile yüzey modifikasyonu sağlanarak malzemeye hidrofobik özellik kazandırılır. Tablo 3.1.'de önemli sililasyon ajanları ve bağ yapıları verilmiştir [16].

### 3.2.3.2. Dondurarak kurutma

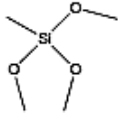
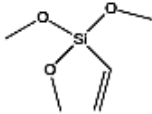
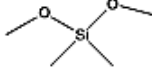
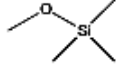
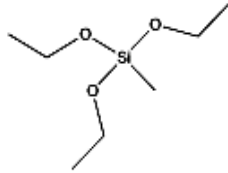

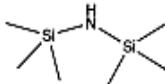
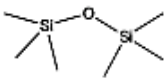
Dondurarak kurutma prosesi, indirgenmiş basınç ve düşük sıcaklık altında hidrojeldeki suyun dehidrasyonunu içermektedir. Islak jel dondurulur ve çözücünün düşük basınçlarda süblime edilmesine izin verilir. Dondurucu kurutma teknoloji kullanılarak üretilen arojeller düşük yoğunluğa, yüksek poroziteye ve mekanik kuvvete sahiptir [21].

Dondurma basamağı, tüm dondurarak kurutma prosesinde en kritik öneme sahiptir. Tüm kurutma işlemlerinin süblimasyonla sağlanabilmesi için konsantre sıvı bariyerlerinin bulunmaması gerekir. Genellikle donma sıcaklıkları -50 ila -85°C arasındadır. Dondurarak kurutma esnasında kullanılan donma yöntemi, oluşan buzun yapısını, birincil kurutmada su buharı ve nihai kurutulmuş ürünün kalitesini etkiler. Dahası, buz kristali morfolojisi ve boyut dağılımı üzerinde etkili olur [22].

Aşırı kristal boyutu, hücresel zarları ve nihai ürün dokusunu etkileyebilir. Donma oranı, buz kristallerinin boyutunu ve dolayısıyla kuru katmanın gözenekliliğini kontrol eder ve bu da kuruma süresini etkileyebilir. Genellikle, dondurma oranı ne kadar düşükse, buz parçacıklarının boyutu da o kadar yüksek olur ve bunların sayısı

ve spesifik yüzey o kadar düşük olur. Buna ek olarak, dondurucu sıcaklığı düşürmek için basınç modülü artar ve tabaka kalınlığı azalır [22].

Tablo 3.1. Hidrofobik silika aerojel üretiminde kullanılan sililasyon ajanları [16].

Sililasyon Ajanları	Bağ yapıları	Kısaltma
Metiltrimetoksisilan $\text{Si}(\text{OCH}_3)_3\text{CH}_3$		<i>MTMS</i>
Viniltrimetoksisilan $\text{H}_2\text{C}=\text{CHSi}(\text{OCH}_3)_3$		<i>VTMS</i>
Dimetildimetoksisilan $\text{Si}(\text{OCH}_3)_2(\text{CH}_3)_2$		<i>DMDMS</i>
Trimetilmetoksisilan $\text{Si}(\text{OCH}_3)(\text{CH}_3)_3$		<i>TMMS</i>
Metiltrietoksisilan $\text{Si}(\text{OC}_2\text{H}_5)_3\text{CH}_3$		<i>MTES</i>
Trimetilklorosilan $\text{Si}(\text{CH}_3)_3\text{Cl}$		<i>TMCS</i>
Hegzametildisilazan $\text{H}(\text{N}(\text{Si}(\text{CH}_3)_3)_2$		<i>HMDZ</i>
Hegzametildisiloksan $\text{O}(\text{Si}(\text{CH}_3)_3)_2$		<i>HMDSO</i>

Birincil kurutma aşamasında, malzemede bulunan suyun yaklaşık %95'i süblime edilir ve basınç çok düşük seviyelere indirilirken, sıcaklık çözücünün

süblimleştirilmesini kolaylaştırmak için yükseltilir. İkincil kurutmada donmamış su moleküllerinin ortadan kaldırılması amaçlanır. Hem kalıntı çözücünün uzaklaştırılması hem de vakum basıncının düşürülmesi için bu adımda sıcaklık birincil kurutma işleminde gerekli olandan daha yüksek değerlere yükseltilir [23].

### 3.2.3.3. Süperkritik şartlarda kurutma

Süperkritik kurutma tekniği ilk olarak Kistler tarafından 1930'da geliştirilmiştir. Süperkritik ekstraksiyon metodları, çözücüyü süperkritik noktanın üzerine getirerek ve süperkritik akışkan olarak sol-jel matrisinden bunu uzaklaştırarak sıvı/buhar sınır çizgisini önlemekte ve kılcal gerilmeler oluşmamaktadır. Süperkritik ekstraksiyon yöntemlerinin de çeşitli türleri vardır. Bunlar yüksek sıcaklık, düşük sıcaklık, hızlı süperkritik kurutma teknikleridir [16].

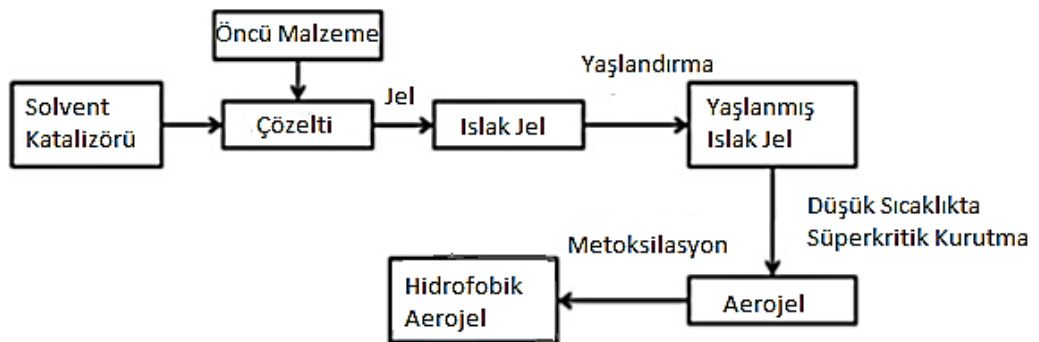
Organik çözücülerin çoğu tehlikeli, patlayıcı ve yanıcı özellikler sergilemektedir. Yüksek kritik basınç ve sıcaklıklarda kurutma prosesini gerçekleştirmek zorluklarında beraberinde getirmektedir. Bu yüzden bu şartlar altında süperkritik kurutma yaparken çeşitli güvenlik ve koruma önlemleri alınmalıdır. Bu kurutma yönteminde uygulanacak basınç ve sıcaklık çözücünün kritik nokta sıcaklık ve basıncından daha yüksek değerlerde seçilmelidir. Çözücü olarak etanol ve karbondioksit, süperkritik kurutmada sık sık kullanılmaktadır. Ayrıca metoksi gruplar, arojellerin hidrofobik hale gelmesine ve silika arojelleri daha yüksek kalitelere ulaştırmaya yardımcı olur [12].

Bazı kimyasal katkıları alkoksit çözeltilere ilave edilerek arojelin kurutma hızını ayarlanmaktadır. Bu kullanılan kimyasallar jel gözenekleri içindeki buhar basıncını, gözenek boyutunu ve kurutma esnasındaki zorlanmayı ayarlamaktadır. Bunlara örnek olarak formamid ( $\text{NH}_2\text{CHO}$ ), gliserol ( $\text{C}_3\text{H}_8\text{O}_3$ ), oksalik asit ( $\text{C}_2\text{H}_2\text{O}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ ) verilebilir ve çözeltilere ilave edildiklerinde jel oluşumu prosesinde jel yoğunluğunun ve jel dayanımının artmasını sağlamaktadırlar [24].

### 3.3 Hidrofobik Aerojel ve Sililasyon

Hidrofobik bir yüzey suyu iterken, hidrofilik bir yüzey suyu çekmektedir. Ancak çok çeşitli yüzey davranışı vardır, çoğu yüzey ne tamamen hidrofilik ne tamamen hidrofobiktir. Bir numunenin genel hidrofobikliğinin ana belirleyicilerinden biri malzemenin yüzeyindeki fonksiyonel grupların su ile ne derece etkileşime girdiğidir. Bu etkileşimler moleküller arası kuvvetler (dipol-dipol etkileşimler ve hidrojen bağları), asit/baz kimyası ve su içeren diğer yüzey reaksiyonları türlerini içerir. Hidrofobik, yüksek yüzey alanlı silis aerojelleri yüzeyi modifiye edilmiş jellerin ortam basıncı şartlarında kontrollü olarak kurutulmasıyla elde edilir. Çeşitli sililasyon ajanları kullanılarak malzemeye hidrofobik özellik kazandırılabilir [25].

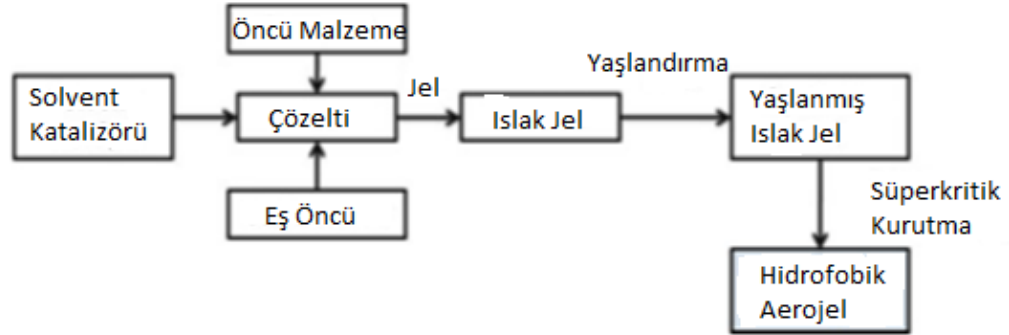
Sililasyon ajanlarından hazırlanan silika aerojeller Si-OR ve Si-OH gruplarına sahiptir. Si-OH grupları aerojelleri hidrofilik hale getirir. Si-OH grupları su ile güçlü hidrojen bağına tabi olabilir. Nemli ortamlarda silika aerojellerin önemli miktarda su alımının, malzemelerin zamanla parçalara ayrılmasına neden olduğu görülmüştür. Malzemenin hidrofobik olması için kullanılan 3 teknik vardır. Bunlar Şekil 3.2., 3.3., 3.4.'de açıklanmıştır [16].



Şekil 3.2. Metoksilasyon metodu ile hidrofobik aerojel üretim şeması [16].

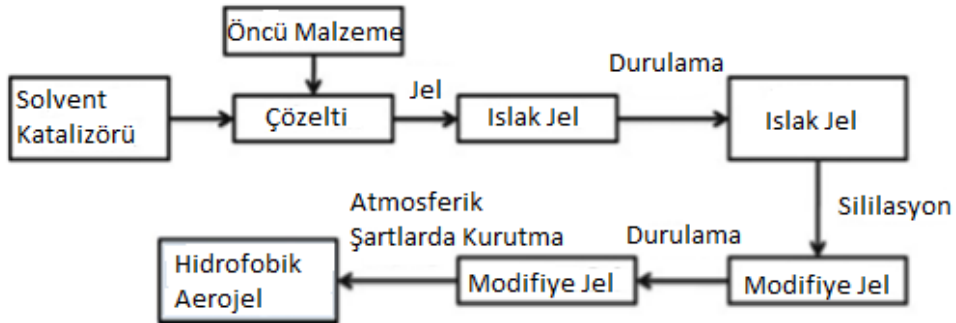
Şekil 3.2.'de öncü kimyasal, çözücü, katalizör ve su karıştırılarak bir çözelti elde edilir. Islak jel oluşturulur ve belirlenen şartlarda ıslak jel yaşlandırılır. Düşük sıcaklıkta süperkritik kurutma ile kurutulur. Kurutma işlemini takiben elde edilen

aerojel yüksek sıcaklıkta bir reaktörde metoksilasyon işlemine tabi tutulur ve hidrofobik aerojel elde edilir [16].



Şekil 3.3. Eş öncü metodu ile hidrofobik aerojel üretim şeması [16].

Şekil 3.3.'de öncü malzeme, solvent katalizörü ve çözücü kullanılarak sıvı çözelti elde edilir. Hidrofobik özellik kazandırmak için çözeltilere eş öncü eklenir ve hazırlanan jel yaşlandırılarak kurutma aşamasına hazır hale getirilir. Yaşlandırılan jel süperkritik şartlarda kurutulur ve hidrofobik aerojel elde edilebilir [16].



Şekil 3.4. Sililasyon metodu ile hidrofobik aerojel üretim şeması [16].

Şekil 3.4.'de kuruma öncesi ıslak jellerin yüzey kimyasını değiştirmek için sililasyon işlemi yapılır. Bu teknikte ıslak jeller, standart sol-jel kimyası kullanılarak hazırlanır. Daha sonra ıslak jeller çeşitli solvent değişimlerine tabi tutulur ve ıslak jelin yüzeyini modifiye eden bir sililasyon ajanı ile ıslatılır. Sililasyon sonucunda, nano yapı daha elastik olur ve ortam basıncında kurutulabilen hidrofobik aerojel üretilir [16].

### 3.4. Silika Aerojel Kullanım Alanları

Aerojeller üç boyutlu birbirine bağlı eşsiz bir nano yapıya sahip olduğu için gözenekli malzemelerin önemli bir sınıfıdır. Yapısal birçok avantajından dolayı aerojeller, süperkapasitörler ve lityum-sülfürlü pillerde mükemmel elektrokimyasal performans sergilemektedir. Aerojeller son zamanlarda yüksek yüzey alanları, iyi geliştirilmiş gözenek yapısı ve ayarlanabilir gözenekli yüzey kimyası gibi benzersiz özelliklerinden dolayı kapsamlı bir araştırmaya tabi tutulmuşlardır. Bu nedenle, yenilenebilir enerji, adsorpsiyon-ayırma, ilaç, kataliz ve çevresel temizleme de dahil olmak üzere bir dizi spektrumda kullanım bulmaktadırlar [26].

Aerojellerin ısı iletkenlik katsayısı düşük değerde olup, istenilen ve beklenen yüksek ısı ve ses yalıtımı özelliğine sahiptirler. Bu mevcut durum, hem yaz hemde kış aylarında yazın dışarıdan gelecek olan ısı kazancını azaltmakta ve kışın binaların ısı kaybını olabildiğince yok etmektedir. Bu sebepten dolayı aerojeller hem ısıtma hemde soğutma malzemesi olarak yaygın bir şekilde kullanılmaktadır. Aerojellerin ışığı çevreye düzgün ve eşit oranda yansıtma özelliği bulunmaktadır. Bu özelliği ile iç mekanlarda parlamayı da engelleyerek görsel konfor koşullarını oluşturmaktadır. İleri düzeyde hidrofobik özelliği ile bina ve yapıları rutubet ve küf etkenlerinden korumakta olan aerojellerin aynı zamanda fiziksel dayanımı da oldukça fazladır.

Doğaya parçalanmaya bırakılmış olan bir aerojelden (silika aerojellerde) geriye sadece çevreye zarar vermeyen doğal bir atık malzeme olan kum kalmaktadır. Dolayısıyla kullanım için yararlı ömrünü bitirmiş olan bir aerojelin geri dönüşümü sağlandığında doğaya zarar vermeyen bir yapıya dönüştüğü için, mimarlıkta aerojel kullanımının geri dönüşüm açısından sürdürülebilirliğine katkı sağladığı söylenebilmektedir [27].

Aerojeller üstün özellikleri sayesinde tarihsel dış cephelerde yaygın kullanım alanı bulmaktadır. Şekil 3.5.'de de görüldüğü üzere, aerojel granüllerinden elde edilen granül bazlı sıvanın cephe yapımında birçok avantajı bulunmaktadır. Bu avantajlar,

bulunduğu çevreye ve iklime uygun tasarım; termal, görsel ve akustik konfor koşullarını sağlamak; enerji korunumu ve ısı yalıtımı olarak sıralanabilir [28].



Şekil 3.5. Aerojel granülleri ve granül bazlı sıvanın cephelerde kullanımı [28].

Bu üstün özelliklere sahip aerojellerin mimari yapılarda ve binalarda kullanımı üç şekilde sağlanmaktadır. Birincisi, yaygın olarak bina dış cephelerinde ışığı geçiren katkı malzemesi olarak kullanımıdır. Bu sayede dış cephe proseslerinde ışık geçirgenliği özelliği ile pencere gibi yapı malzemelerinde çok fazla kullanılmaktadır. İkincisi, dış cephelerde mantolamada sık sık kullanılan yapı malzemelerinin yerine fiber donanımlı aerojel kullanımı olarak belirtilebilir. Üçüncüsü ise yalıtım malzemesi olarak vakumlu panellere yerleştirilerek kullanılmasıdır. Silika aerojellerin ısı iletkenlik katsayısı normal hava şartlarında 0,018 W/mK iken, çok daha az basınç altında bu değer 0,008 W/mK'e kadar düştüğü tespit edilmiştir. Şekil 3.6.'da aerojel dolgulu pencere camı ve panel örnekleri verilmektedir [29].



Şekil 3.6. Aerojel dolgulu pencere camı ve paneli [29].

Aerojelin çevre dostu olan bu yapısı, bu malzemenin birçok alanda kullanımına yatırım yapılmasının en belirgin sebeplerinden biridir. Genel ve yaygın olarak kullanım alanları sıralanırsa; uzay gemilerinde ve pek çok sanayi alanında elektrik,

ısı ve ışık yalıtımında, nem çekmede, kozmetik ve kimyasal malzemelerin kıvamının koyulaştırılmasında, çeşitli süs ve aksesuar eşyalarının ve spor malzemelerinin yapımında, kurşun geçirmez özelliği ile çelik yelek üretiminde, ateşe olan dayanımı ve kararlılığı ile itfaiyeci kıyafetlerinde, boya kimyasında yalıtıcı, yoğunlaştırıcı ve emici özelliklerde kullanılmaktadır.

Silika aerojellerin gelecek yıllarda güvenlik ve yalıtım sektörlerinde yaygın bir şekilde kullanım alanı bulabileceğinin en büyük kanıtlarından birisi de kinetik enerjiyi emen bir yapıya sahip olmasıdır. Geleceğin arabalarında aerojeller kullanılarak kaza etkilerinin azaltılması da beklenen kullanım alanlarından biridir. Yakın bir zamanda diz üstü bilgisayar ve uçak kontrol sistemlerinde de aerojeller önemli bir etki yaratacaktır [30].

### **3.5. Literatür Araştırması**

Silika aerogel eldesi için yapılan literatür araştırmasında farklı karıştırma hızlarında ve kurutma sıcaklıklarında, farklı başlangıç maddeleri ve asit-baz katalizörleri kullanılarak farklı özelliklere sahip silika aerojellerin elde edildiği gözlemlenmiştir. Her bir çalışmada, yapılan analizler sonucunda gözenek ve kimyasal yapılarının; gözenek boyut dağılımı ve hacminin; iletkenlik ve porozitesinin farklılık gösterdiği belirlenmiştir. Bu bölümde başlangıç maddeleri ve çalışma şartlarına göre silika aerogel üretim çalışmaları sıralanmış ve elde edilen analiz sonuçları özetlenmiştir.

Gui-Mei ve arkadaşları, farklı yüzey modifikasyonu ajanları (HMDZ, TMCS, DMCS) kullanarak atmosferik basınçta petrol kil külü esaslı silika aerojeller sentezlemişlerdir. Yüzey modifikasyonu ajanlarının çeşitlerine dayanarak silika aerogelin yapısal özellikleri belirlenmiştir. İlk olarak OSA (oil shale ash) 550°C'de 2 saat boyunca serbest haldeki hidrokarbonları uzaklaştırmak için fırında yakılmıştır ve kalsine edilmiştir. 100 g kalsine edilmiş OSA, ağırlıkça %30'luk sülfürik asit (500 g) çözeltisi ile karıştırılmıştır. Karışım sabit karıştırma hızında 2 saat boyunca 100°C'de ısıtılmıştır. Ardından karışım filtre edilmiş ve pH değeri 7 olana kadar distile su ile yıkanmıştır. Sodyum silikat çözeltisi elde etmek için



karışıma ağırlıkça %30'luk NaOH çözeltisinden 400 g alınarak eklenmiştir ve 2 saat boyunca sabit karıştırma hızında kaynatılmıştır. Oluşturulan sodyum silikat filtre edilmiştir ve distile su ile yıkanmıştır. Silika solun pH değerini 5'e getirmek için  $\text{NH}_4\text{OH}$  katalizörü kullanılmıştır. Jel  $50^\circ\text{C}$ 'de 24 saat boyunca kapalı konumda bekletilmiştir. Silika hidrojel içerisindeki su heksanla  $50^\circ\text{C}$ 'de 24 saat boyunca muamele edilerek değiştirilmiştir. Jellerin yüzey modifikasyonu 24 saat boyunca  $50^\circ\text{C}$ 'de heksan içerisinde %5'lik sililasyon ajanı ile gerçekleştirilmiştir. Son olarak yüzeyi modifiye edilmiş ıslak jel heksanla tekrarlı bir şekilde yıkanmıştır ve 80, 120 ve  $180^\circ\text{C}$ 'de 2 saat boyunca fırında kurutulmuştur. Daha sonra elde edilen silika aerogeller karakterizasyon için oda sıcaklığında bekletilerek soğuması sağlanmıştır. Ardından FTIR (Fourier Transform Infrared Spectroscopy) analizi ile kimyasal bağlanma durumu ve bileşiklerin tanımlanması ile ilgili araştırmalar yapılmıştır. Yüzey alanı BET metodu kullanılarak belirlenmiştir. Kurumuş jelin termal davranışı ise TG/DSC kullanılarak saptanmıştır. Aerogel mikroyapısı SEM ile belirlenmiştir. Elde edilen aerogellerin gözenek boyut dağılımı ise BJH metodu ile belirlenmiştir. Analiz sonuçlarına göre HMDZ ile modifiye edilmiş aerogelin, DMCS ve TMCS ile modifiye edilmişe göre çok daha düşük yoğunluk, yüksek spesifik yüzey alanı, geniş gözenek hacmi ve yüksek poroziteye sahip olduğu gözlemlenmiştir [31].

Vinjamur ve arkadaşları süperkritik kurutma ile pirinç kabuğu külü kullanarak silika aerogel üretmişlerdir. Pirinç kabuğunu  $700^\circ\text{C}$ 'de 6 saat boyunca fırında yakmışlardır ve pirinç kabuğu külü elde etmişlerdir. 5 gram pirinç kabuğu külü 1 N'lik 150 ml NaOH sulu çözeltisi ile karıştırılmış ve karışım 1 saat boyunca  $90^\circ\text{C}$ 'de reflux edilmiştir. Ardından çözelti filtre edilir ve elde edilen sodyum silikat kullanılmak üzere dolapta bekletilmiştir. Sodyum silikat çözeltisinden 5 ml örnek alınarak 15 ml kerosen içine dökülmüştür ve belirli bir süre karıştırılmıştır. Silika jel elde etmek için; çözeltinin pH'ı 6-7 aralığına sabit karıştırma hızında HCl asit eklenerek ayarlanmıştır. Sol çözeltisi nötralizasyon işleminden sonra bir süre beklenmiştir ve jelleşme meydana gelmiştir. Jel kapalı şartlar altında 1 gün boyunca  $40^\circ\text{C}$ 'de yaşlandırılmıştır. Kerosen, su, NaCl ve diğer emrütelerin jelden uzaklaştırılması için seyreltik ve saf etanol ile çözücü değişimi yapılmıştır. Etanol

ile deęişim 4 defa tekrarlanmıřtır ve 40°C’de yařlandırılmıřtır. Yařlandırma iin ortalama zaman 38 saattir. Ardından ıslak alkojel 6 saat boyunca 50°C’de 150 bar basınta CO<sub>2</sub> ile sperkritik řartlarda kurutulmuř ve silika arojel elde edilmiřtir. Arojel eldesi sonrasında, ıslak jel mikro partikllerinin paracık boyutunu ve paracık boyut daęılımını lmek iin LDPSA (Laser Diffraction Particle Size Analyzer) kullanılmıřtır. Spesifik yzey alanı BET (Brunauer-Emmett-Teller) metodu ile belirlenmiřtir. Gzenek hacmi ve ortalama gzenek boyutu BJH (Barrett-Joyner-Halenda) kullanılarak llmřtir. Arojel mikro partikllerinin mikroyapısı SEM ile incelenmiřtir. İncelenen bu alıřmada, yapılan analiz sonularına gre arojel mikro partiklleri yksek BET yzey alanına sahiptir ve 640 m<sup>2</sup>/g llmřtir. Gzenek hacmi 1,38 cm<sup>3</sup>/g llmřtir. En kk ortalama partikl boyutu 1200 rpm yařlandırma hızında 116,6 μm olarak belirlenmiřtir [32].

Nazriati ve arkadařları, silika kaynaęı olarak kspe kl kullanarak atmosferik basınta silika arojel elde etmiřlerdir. İlk olarak 10 gram kspe kl, 60 ml 2 N’lik NaOH zltisi ierisine atılmıřtır ve elde edilen karıřım sodyum silikat zltisi elde etmek ve silikayı zmek iin 1 saat boyunca sabit karıřtırma hızında kaynatılmıřtır. Karıřım oda sıcaklıęında soęumaya bırakılmıřtır ve ardından filtre edilmiřtir. Filtre edilmiř sodyum silikat zltisi silika arojel hazırlamak iin kullanılmıřtır. Sodyum silikat zltisinin elde edilmesinin ardından iki method kullanılarak silika arojel retilmiřtir. Her iki metot da sodyum silikat zltisi, asidik iyon deęiřtirici reine ile karıřtırılmıřtır ve karıřım 1 saat boyunca silisik asit retmek iin karıřtırılmıřtır. Silisik asite sabit karıřtırma ile TMCS eklenmiřtir ve TMCS eklendikten sonra birkaç dakika boyunca karıřtırmaya devam edilmiřtir. Ardından HMDS eklenmiřtir ve karıřım birkaç dakika boyunca karıřtırılmıřtır. Bylece yzey modifikasyonu sililasyon ajanları ile saęlanmıřtır. Birinci metot da, jel formu saęlamak iin karıřım 1 N NH<sub>4</sub>OH ile titre edilmiřtir. Hidrojel 40°C’de 18 saat, 60°C’de 1 saat boyunca jel yapısını glendirmek iin yařlandırılmıřtır. Ardından jel 80 °C’de atmosfer basıncında 24 saat boyunca kurutulmuřtur. İkinci metot da TMCS ve HMDS nin eklenmesinin ardından, hidrojel yavařa heksan ierisine atılmıřtır. Jel formu eldesin de piridin eklenmiřtir ve ardından 40°C’de 18 saat, 60°C’de 1 saat boyunca jel yařlandırılmıřtır. Son olarak, jel heksandan filtre

edilerek ayrılmıştır ve atmosfer basıncında 80°C’de 24 saat boyunca kurutulmuştur. Sentezlenen silika aerojellere gerçekleştirilen analiz ve deneysel çalışmalar sonucunda, yüksek yüzey alanlı ve düşük yoğunluklu hidrofobik aerjel elde edilmiştir. Çeşitli şartlar altında yapılan ölçümlerde BET yüzey alanı 450 ile 1114 m<sup>2</sup>/g aralığında, gözenek hacmi ise 0,75 ile 2,16 m<sup>2</sup>/g aralığında saptanmıştır [33].

Lattuada ve arkadaşları çalışmalarında silika aerjel sentezleyerek, yaşlandırmanın aerjel üzerindeki etkisini araştırmışlardır. Polietoksidisiloksan (PEDS) ve tetraetilortosilikat (TEOS) kimyasallarını silika kaynağı olarak kullanarak silika sol elde etmişler ve 21 ml etanol ile 1 ml distile su ekleyerek, 5-10 dakika boyunca oda sıcaklığında sabit karıştırma ile karışım seyreltilmiştir. 0,36 ml 5,5 M amonyum hidroksit çözeltisi eklendikten sonra yaşlanma oluşmaya başlamıştır. Yaşlanma esnasında yüzeyin havayla temas etmemesi için jelin üstü 0,4 ml etanol ile kapatılmıştır. Yaşlandırma işlemi farklı zaman dilimlerinde (2, 4, 6, 8, 16 ve 24 saat) ve farklı sıcaklıklarda (55, 65 ve 75°C) sağlanmıştır. Numune belli bir süre atmosfer basıncında yaşlanmaya bırakılmıştır. Yaşlandırılmış jel 65°C’de 24 saat boyunca, 60 ml heksametildisiloksan (HMDS); 0,24 ml HCl asit (%37’lik) ve 2,2 ml etanolden oluşan karışım içerisine daldırılarak hidrofobiklik sağlanmıştır. Son olarak hidrofobik jel atmosfer basıncında 150°C’de 2 saat boyunca kurutulmuştur. Yapılan analizler sonucunda, yaşlandırma zamanının artırılmasıyla silika aerjel numunelerin yoğunluğunun düştüğü gözlemlenmiştir. Ayrıca yaşlandırma zamanının gözenek hacmi ve gözenek çapı üzerindeki etkisi de araştırılmıştır. Yaşlandırma zamanı arttıkça gözenek hacmi ve çapının da arttığı belirlenmiştir. Silika aerjelin fraktal boyutuna etkisi ise 16 saat yaşlanmaya kadar azalan eğimdeyken, 16 saatten sonra artmaya başlamıştır. Son olarak BET yüzey alanı da araştırılmış ve artan yaşlandırma zamanıyla azaldığı gözlemlenmiştir [34].

Zhu ve arkadaşları, atmosferik basınçta sol-jel metodu ile silika ve silika/titanyum aerjelleri üreterek karakterizasyon çalışmaları yapmışlardır. Bu çalışmada kimyasal olarak TEOS (tetraetoksisilan), TTIP (titanyumizopropoksit), HMDZ (heksametildisilazin), etanol, okzalik asit, hegzan kullanılmıştır. Silika aerjel 0,008 M okzalik asit ve 0,5 M amonyak ile TEOS, etanol kullanılarak

hazırlanmıştır. Silika/Titanyum aerojelleri ise başlangıç maddesi olarak TEOS ve TTIP kullanılarak hazırlanmıştır. Kompozit SiO<sub>2</sub>/TiO<sub>2</sub> aerojellerinin faz ayrımını önlemek için, silika sol ilk olarak TEOS'un etanol ile hidrolizi sonucu hazırlanmıştır. Titanyum başlangıç maddesi çözeltisi TTIP ve etanolden oluşmaktadır. Titanyum öncüsü ve silika sol birlikte karıştırılıp 0,5 M'lık amonyum ile reaksiyona sokulmuştur. TEOS:TTIP:EtOH:H<sub>2</sub>O (0,008 M okzalik asit):H<sub>2</sub>O (0,5 M amonyum) molar oranları son olarak 1:1:8:5:0,2'de tutulmuştur. Jelleşmenin ardından hidrojeldeki su 36 saat içerisinde 3 kez etanol ile ve ardından hegzan ile yer değiştirmiştir. Jel oda sıcaklığında 24 saat boyunca hegzan içerisinde sililasyon ajanı ile modifiye edilmiştir. Reaksiyona girmemiş sililasyon ajanı 36 saat boyunca 3 kez heksan ile yıkanmıştır. Daha sonra çözücü boşaltılmıştır ve silika ve kompozit SiO<sub>2</sub>/TiO<sub>2</sub> jelleri bir alüminyum folya ile kaplanmış ve çevre basıncında kurutulmuştur. Son olarak oda sıcaklığında soğutulmuş ve karakterizasyon için kullanılmıştır. Yapılan analizler sonucu aerojellerin mikro yapıları, taramalı elektron mikroskobu (SEM) ve transmisyon elektron mikroskobu (TEM) ile gözlemlenmiştir. Spesifik yüzey alanı BET (Brunauer-Emmett-Teller) yöntemi ile hesaplanırken gözenek boyutu dağılımı ve gözenek hacmi BJH (Barrett-Joyner-Halenda) yöntemi ile tespit edilmiştir. Analiz sonuçlarına göre aerojellerin yüksek ve süperhidrofobik özelliğe sahip olduğu görülmüştür. SEM mikroyapı sonuçlarına göre üç boyutlu nano gözenekli yapıda oldukları saptanmıştır. Sentezlenen aerojeller 10-20 nm küresel katı kümeler ve aralarında 80 nm'nin altında gözenekler içeren gözenekli bir ağ yapısına sahiptir ve yapılan analiz sonuçlarında yüksek BET yüzey alanı, yüksek porozite ve düşük yoğunluklu aerojeller elde edilmiştir [35].

Mahadik ve arkadaşları sililasyon ajanları konsantrasyonlarının, silika aerojellerin yüzey serbest enerjisi üzerindeki etkisini araştırmışlardır. Sol, metanol içerisinde seyreltilmiş TEOS kullanılarak hazırlanmıştır. Çözelti içerisinde 0,001 M'lık okzalik asit eklenmiştir. TEOS-Metanol-Ogzalik asit molar oranları; 1:2.7:0.18x10<sup>-4</sup> olarak sabit tutulmuştur. Sol 1 saat boyunca karıştırılmış ve ardından 12 saat boyunca oda sıcaklığında bekletilmiştir. Amonyum hidroksit ve amonyum florür (NH<sub>4</sub>OH: NH<sub>4</sub>F<sub>3</sub> 0,02:0,22x10<sup>-2</sup>) karışımından oluşan baz katalizörü sola eklenmiştir. Elde

edilen sol alüminyum folyo ile sarılmıştır ve silika ağ yapısını güçlendirmek için 40 dakika boyunca 50°C’de fırında bekletilmiştir. Yaşlandırmanın ardından jel küçük küp parçacıkları halinde kesilmiş ve parçalar 10 dakika boyunca metanol içerisinde bekletilmiştir. Jel içerisindeki metanol 50°C’de heksan ile değiştirilmiştir. Sistem, 4 saat boyunca 120 dev/dak’da çalkalanmıştır. Jelleri hidrofobik yapabilmek için, 16 saat boyunca 50°C’de sililasyon ajanlarına (TEOS, HMDZ) daldırılmıştır. Kullanılan sililasyon ajanlarının konsantrasyonu, çözücünün 3% ile %12’si arasında değişmektedir. Son olarak alkojel parçaları atmosferik basınç şartlarında 50°C’de 1 saat, 150°C’de 2 saat fırında bekletilerek kurutulmuştur. Yapılan FTIR analizleri sonucunda; modifiye edilmemiş ve modifiye edilmiş aerogel numunelerin spektrumlarındaki yaklaşık 1100 cm<sup>-1</sup> de göze çarpan zirve, silika dioksitin asimetrik büküm modundan kaynaklanmaktadır. HMDZ ve TMCS sililasyon ajanları kullanılarak modifiye edilmiş aerogellerin FTIR spektrumu, 3450 ve 1550 cm<sup>-1</sup> de gözlenen -OH bağına atfedilen piklerin yoğunluğunun, modifiye edilmemiş silis aerogellerine kıyasla azaldığını göstermiştir. Modifiye edilmiş silis aerogellerinin spektrumunda yaklaşık 1450 ve 2900 cm<sup>-1</sup>’de gözlemlenen yoğun absorpsiyon tepeleri C-H bağının germe ve bükme işlemlerinden kaynaklanırken; 840 ve 1250 cm<sup>-1</sup> civarında gözlenen pikler ise Si-C bağından kaynaklanmaktadır. Kullanılan sililasyon ajanlarının konsantrasyon artışıyla, aerogellerin temas açısı ve yüzey gerilimi artarken; yüzey enerjisi azalmaktadır. Yoğunluk analizleri sonucunda ise, sililasyon ajanlarının derişim artışı ile yoğunlukta azalma gözlemlenmiştir [36].

Wang ve arkadaşları, atmosfer basıncında kurutma ile silika esaslı kompozit aerogel sentezi üzerinde çalışmışlardır. Farklı renklerde ve fonksiyonlarda elde edilen silika bazlı kompozit aerogellerin çeşitli analizleri yapılmıştır. Silika kaynağı olarak PEDS (Polyethoxydisiloxane) kullanılmıştır. 30 g PEDS numunesi 200 ml etanol içerisinde 10 dakika boyunca karıştırılarak çözdürülmüş ve 500 ml amonyumhidroksit çözeltiye ilave edilerek 30 dakika sonrasında jelleşme gözlemlenmiştir. 40°C’de 2 saat yaşlandırmanın ardından, alkojel 200 ml heksan içerisinde 5 saat boyunca kuvvetli bir şekilde karıştırılmıştır. Ardından jel filtrasyon ile toplanır ve tekrar 200 ml heksan içerisine 5 saat boyunca karıştırılmıştır. Son

olarak jeller, 100 ml heksan içerisinde 2 saat boyunca TMCS (5 ml) ile modifiye edilerek filtre edilmiş ve 150°C'de 30 dakika boyunca atmosfer basıncında kurutulmuştur. Renkli silika aerojel üretim aşamasında ise tek farklılık, yaşlanma öncesinde PEDS çözeltisine metal tuzu ilave edilmesidir. Elde edilen silika aerojel tozlarının gözenek boyut dağılımı ve ortalama gözenek çapı BJH adsorpsiyon ve desorpsiyon metodu ile belirlenmiştir. Yüzey alanları BET (Brunauer-Emmett-Teller) metodu ile analiz edilirken kimyasal yapı FTIR ile gözlemlenmiştir. Aerojel tozlarının termal iletkenliği ise oda sıcaklığında geçici sıcak tel yöntemi (transient hot wire method) ile ölçülmüştür. Aerojel tozlarının mikroyapı özelliklerini belirlemek için FESEM (Field-emission scanning electron microscopy) cihazı kullanılmıştır. Üretilen tüm silika ve silika esaslı kompozit arojeller için belirtilen analizler yapılmıştır. Elde edilen sonuçlar gösteriyor ki silika arojeller 500 ile 1000 m<sup>2</sup>g<sup>-1</sup> aralığında değişen yüksek BET yüzey alanına sahiptirler. Ortalama gözenek boyutu 8-20 nm, yoğunluk 0,03 ile 0,2 g.cm<sup>-3</sup> ve termal iletkenlik 0,0221 ile 0,04 W.m<sup>-1</sup>.K<sup>-1</sup> değerleri arasında değişmektedir. Ayrıca yüksek gözenek çapının artan kurutma sıcaklığı ile elde edildiği gözlemlenmiştir [37].

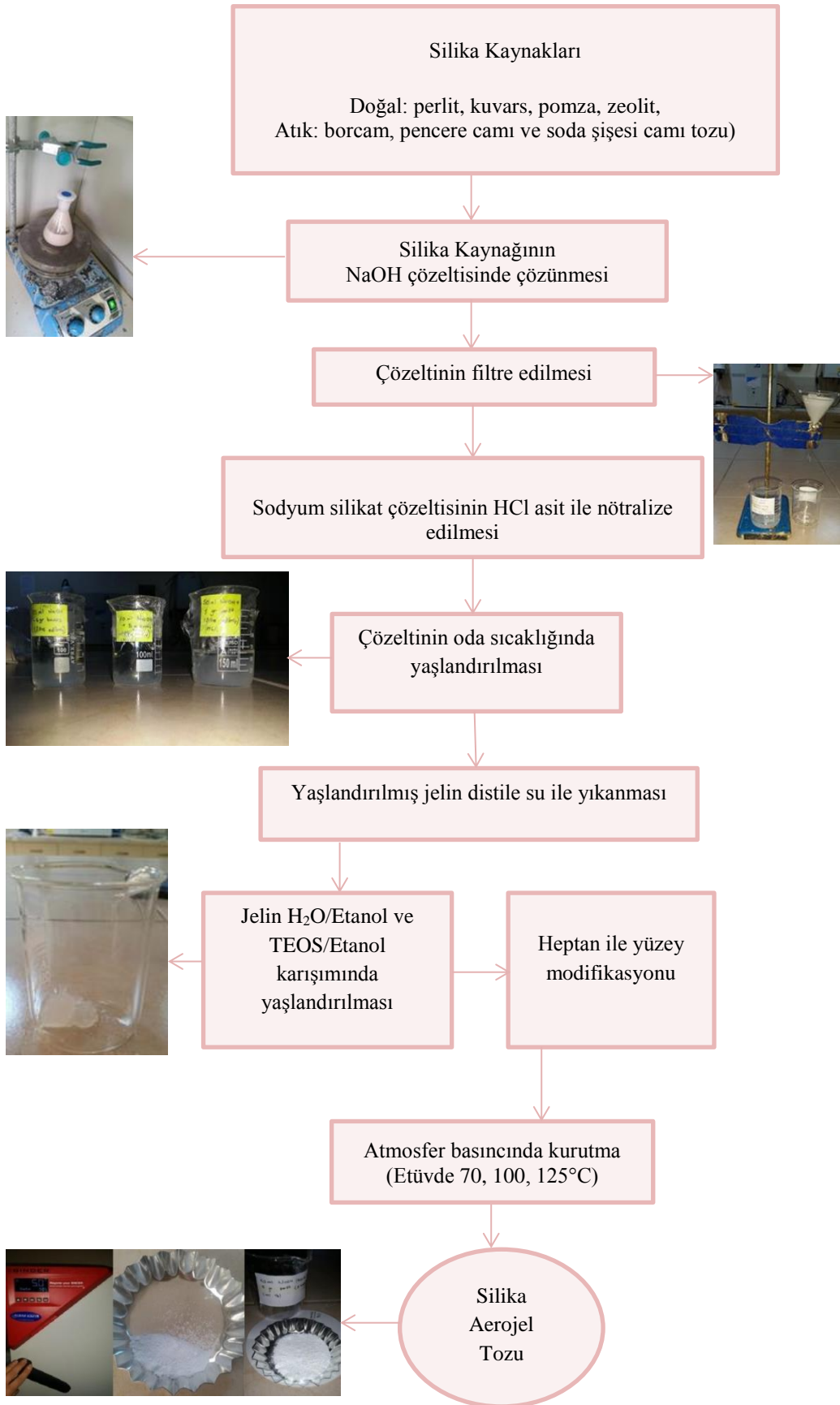
## BÖLÜM 4. DENEYSEL ÇALIŞMALAR

### 4.1. Amaç

Mevcut çalışmada, doğal silika esaslı hammaddeler (perlit, zeolit, pomza, kuvars) ve atık malzemeler (pencere camı, borcam, soda şişesi camı tozu) kullanılarak sol-jel yöntemi ile silika esaslı aerojel tozu üretimi amaçlanmıştır. Aerojel tozu üretiminde günümüze kadar yapılmış çalışmalardan farklı olarak, çevre dostu hammaddeler kullanılmış ve farklı başlangıç maddeleri ile üstün özelliklere sahip silika aerojel tozu sentezi gerçekleştirilmiştir. Kullanılan hammaddelerin kimyasal analizleri Tablo 4.1.'de verilmiştir.

Tablo 4.1. Deneysel çalışmalarda kullanılan doğal hammadde ve atık malzemelerin kimyasal analizi

Bileşenler (ağ. %)	Perlit	Kuvars	Pomza	Zeolit	Pencere camı	Soda şişesi	Borcam
CaO	0,50	0,07	3,25	2,38	12,0	34,36	0,20
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	14,33	0,02	13,20	13,10	2,0	2,49	4,34
SiO <sub>2</sub>	74,0	98,0	72,45	76,97	72,0	52,95	77,32
K <sub>2</sub> O	4,95	1,74	5,07	4,64	-	1,44	0,33
Na <sub>2</sub> O	4,97	0,15	3,18	0,19	14,0	2,07	4,83
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0,97	0,02	1,95	1,68	-	1,11	0,22
MgO	0,28	-	0,65	0,94	-	2,32	0,31
TiO <sub>2</sub>	-	-	0,14	0,10	-	0,42	0,11
MnO	-	-	0,08	-	-	-	-
ZrO <sub>2</sub>	-	-	0,03	-	-	-	-
SO <sub>3</sub>	-	-	-	-	-	0,21	-
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	-	-	-	-	-	2,48	-
Cl	-	-	-	-	-	0,05	-
Cr <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	-	-	-	-	-	0,10	-
B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	-	-	-	-	-	-	12,34



Şekil 4.1. Silika aerojel tozunun üretim akım şeması



Hazırlanan 1 M'lık NaOH çözeltisinde silika kaynağı tozların reflux işlemi ile çözünmesi sağlanmış ve ardından filtre edilerek sodyum silikat çözeltisi elde edilmiştir. Çözeltinin pH'ı HCl asit kullanılarak nötralize edilmiş ve kapalı bir konumda oda sıcaklığında yaşlandırma işleminin ilk evresi başlatılmıştır. Hacimce %20'lik H<sub>2</sub>O/Ethanol karışımında 50°C'de, %70'lik Ethanol/TEOS karışımında 60°C'de ve n-heptan içerisinde 50°C'de 1'er gün boyunca etüvde bekletilerek yaşlandırma işlemine devam edilmiştir. Silika aerojel yapısındaki bağları kuvvetlendirmek ve malzeme dayanımını arttırmak için yaşlandırma evresinde özellikle TEOS (tetraethylorthosilicate) ile yüzey modifikasyonu gerçekleştirilmiştir. Yaşlandırma işleminin sonunda, farklı sıcaklıklarda belirlenen süre boyunca atmosfer basıncında kurutma ile jel yapısındaki sıvı uzaklaştırılmış ve son olarak oda sıcaklığında 1 gün bekletilerek silika aerojel tozları üretilmiştir. Şekil 4.1.'de farklı hammadde ve atık malzemelerden silika aerojel üretim akım şeması görülmektedir. Elde edilen silika arojeller SEM, FESEM, EDS, DTA, FTIR, XRD ve BET cihazları kullanılarak karakterize edilmiş ve farklı doğal ve atık malzemelerden üretilen silika arojellerin özellikleri karşılaştırmalı olarak detaylandırılmıştır.

## **4.2. Silika Esaslı Doğal Hammaddeler**

### **4.2.1. Perlit**

Perlit, düşük yoğunluğu sayesinde çok hafif ve yüksek gözenekli, ısı ile genleşme özelliğine sahip bir kayadır. Doğadan bir çeşit taş olarak çıkarılan perlit öğütülüp toz hale getirilir ve sonrasında çok yüksek sıcaklıklarda pişirilerek, bu toz taneleri mısır tanesi gibi patlayarak hafif perlit tozlarını oluştururlar. Pişirme süresi ve sıcaklığı ile orantılı olarak değişik granül boyutlarında üretilmektedir. Herhangi bir işlem görmemiş perlitin rengi açık griden parlak siyaha doğru değişim göstermekte olup, genleştiğinde ise tamamen beyazlaşır. Bileşiminde bulunan %2 ile %6 oran aralığındaki suyun perlitin kararlılığını sağlaması en belirgin özelliklerinden biridir [38]. Türkiye, Yunanistan, Japonya ve ABD perlit kaynakları bakımından zengin ülkelerdir. Ülkemiz perlit kaynakları açısından çok zengindir. Dünya perlit

rezervlerinin %74'ü ülkemizde bulunmakta olup; yaklaşık 7,7 milyar ton perlit rezervimizin olduğu bilinmektedir. Bu rezervin 2 milyar tonu aşan %34'lük bölümünün ise Kars'ta bulunduğu belirtilmektedir. Hammadde olarak çok ekonomik olan bu doğal hammadde kaynağımızın katma değeri çok daha yüksek ürünlere dönüştürülmesi mevcut tez çalışmasının temel hedeflerinden birisidir. Ekonomik açıdan ise maliyeti düşüktür. Perlit üstün özellikleri sayesinde inşaat, tarım, gıda, ilaç ve kimya, metalurji gibi pek çok alanda kullanım yeri bulmakta olup; kullanım alanları:

1. Isı ve ses yalıtıcı gevşek dolgu maddesi olarak,
2. Yüzey döşemelerde ısı ve ses yalıtıcı olarak,
3. Toprağın fiziksel özelliklerini artırıcı "substrate" maddesi olarak,
4. Kimyasal ürünlerin üretiminde özellikle ilaç ve gıda sanayisinde süzme yardımcı maddesi olarak,
5. Sıvılaştırılmış gaz tanklarının ısı yalıtımında,
6. Soğuk depolarının yalıtımında,
7. Katkı maddesi özelliği ile seramik yapı malzemeleri ve cam sanayiinde ve
8. Kimya sektöründe dolgu malzemesi olarak sıralanabilir [39].

#### **4.2.2. Kuvars**

Yoğunluğu  $2,65 \text{ g/cm}^3$  ve sertliği 7 olan ve saf silisyum dioksit ( $\text{SiO}_2$ ) kristallerinden oluşan kuvars ham maddesine doğada çok rastlanır. Hekzagonal yapıda kristalleşen kuvars doğada kristal ya da amorf olarak bulunabilir. Silika kaynağı kuvars, yapısında bulunan yabancı bileşenlerin miktarına ve türüne göre, yarı saydam, saydam veya renkli olabilirler [40].

Kuvars Dünya'nın yüzeyinde en bol ve yaygın olarak bulunabilen ve bütün sıcaklıklarda oluşabilen minerallerden biridir. Hem mekanik hem kimyasal ayrışmaya karşı son derece dayanıklıdır [41]. Kuvars yüzey temizleme (kumlama-raspalama), boya, deterjan, kimya sanayi, sıva yapı sistemleri, arıtma tesisleri, seramik ve cam malzemelerinde kullanılmaktadır [42].

### 4.2.3. Zeolit

Doğal ve saf zeolitlerin kullanımının yaygınlaştırılması, 1950'li yılların başından sonra deniz ve gölssel tüflerde de zeolit ham maddesine rastlanması ile hızlanmıştır. Adsorpsiyon ve moleküler elek özelliği, saf silis içeriği, düşük yoğunlu sayesinde hafifliği, gözenek boyutu ve yapısı gibi zeolitlerin başlıca özellikleri pek çok endüstriyel sektörde kullanılmalarını sağlamıştır. Kullanım alanları tarım ve hayvancılık, enerji, kirlilik kontrolü ve önlenmesi, metalürji ve malzeme, diğer alanlar olmak üzere son yıllarda artış göstermiştir [43].

### 4.2.4. Pomza

Pomza cam yapısında olup volkanik kayaç sınıfındadır. Asidik pomza dünyada en çok bulunan ve kullanılan çeşididir. Yeryüzündeki oluşumu sırasında ani soğuma, gazların genişip yapıyı ani bir şekilde terketmesi sonucu dikkat çekici bir gözenekli yapı meydana gelmiştir. Bu gözenekli yapısı sayesinde ısı ve ses yalıtımı oldukça yüksek ve verimlidir. Pomza'nın yoğunluğu  $0,5-1 \text{ gr/cm}^3$  aralığında gözlemlenmekte olup kristal suyu yapısında içermez. Son yıllarda teknolojinin gelişmesi ve çevre dostu üretimin yaygınlaşması pomza hammaddesi kullanımını artırmıştır [44].

Türkiye'de doğadan çıkarılan ve üretilen pomzanın neredeyse tamamı inşaat sektöründe kullanım alanı bulmaktadır. Pomzanın ikinci dikkat çekici kullanımı ise aşındırıcı sanayidir. Yapısı sayesinde hafif aşındırıcı olarak adlandırılan pomza doğal ve yapay madeni eşyaların ve metallerin cilalanmasında kullanılmaktadır. Genel olarak pomza; tekstilde, tarımda, yapı aksesuarlarında ve restorasyonunda, filtrasyon işlemlerinde, elektronik sektöründe, kozmetik ve kimya sektöründe, mobilya sektöründe, plastik, metal ve cam sektöründe geniş kullanım alanları bulmaktadır [45].

### 4.3. Silika Esaslı Aerojel Üretiminde Kullanılan Malzemeler

Silika esaslı aerojel tozu üretmek için; silika kaynağı olarak perlit (genleştirilmiş perlit Genper San. Tic. Ltd. şirketinden), kuvars (Kale seramik), zeolit (Mec enerji), pomza (Nevşehir ilinden) doğal hammaddeleri ile pencere camı tozu, soda şişesi camı tozu ve borcam tozları gibi atık malzemeler kullanılmıştır. Kullanılan doğal hammadde ve atık malzeme tozlarına ait kimyasal kompozisyonlar Tablo 4.1.'de verilmiştir. Tablo 4.2.'de ise silika esaslı aerojel tozu üretiminde kullanılan doğal hammaddelerden perlit ve kuvarsa ait fiziksel özellikler görülmektedir. Silika esaslı aerojel üretim sürecinde sodyum hidroksit (NaOH, % 99'luk), n-heptan (C<sub>7</sub>H<sub>16</sub>, %99'luk, yüzey modifikasyonu sırasında reaksiyona girmeyen TEOS'u uzaklaştırmak için), etanol (C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>OH, % 99,5'luk, silika aerojelin üretiminde yapıdaki suyun uzaklaştırılması amacıyla), hidroklorik asit (HCl, %37'lik), tetraethylorthosilicate (TEOS, %98'lik, (C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>O)<sub>4</sub>Si) ve elde edilen jelin yıkanması ve çözeltiliye alma aşamalarında distile su kullanılmıştır. Sodyum hidroksit, n-heptan, etanol ve hidroklorik asit Merck Kimya şirketinden, Tetraethylorthosilicate kimyasalı ise Alfa Aesar şirketinden temin edilmiştir.

Tablo 4.2. Perlit ve kuvars tozlarının fiziksel özellikleri [46-48].

Fiziksel Özellikler	Perlit	Kuvars
Renk	Beyaz ve gri	Açık beyaz
Sertlik (Mohs)	5-6	7
Özgül ağırlık (kg/m <sup>3</sup> )	2200 – 2400	2650
Yoğunluk (kg/m <sup>3</sup> )	1100 - 1200	500-2500
Yumuşama Noktası (°C)	871 -1093	870-900
Ergime noktası (°C)	1260 -1343	1785
Özgül ısı (cal/ g.°C)	0,2	0,15-0,2
Isı iletkenliği (W/m·K)	0,040 - 0,055	0,05
pH	6,5 – 8	6,5 - 8



#### 4.4. Silika Aerojel Tozunun Üretimi

##### 4.4.1. Sodyum silikat çözeltisinin hazırlanması

Ön başlatıcı olarak kullanılan perlit tozu referans olarak alırsa; 30 gram perlit tozu 300 ml 1 M'lık NaOH çözeltisi ile 500 ml'lik Erlen-meyer içerisinde karıştırılmıştır. Hazırlanan karışım ısıtıcı karıştırıcıda 1.5 saat boyunca 100°C'de kaynatılarak perlit tozunun büyük oranda NaOH çözeltisi içerisinde çözünmesi sağlanmıştır. Reflux edilen karışım soğuması için oda sıcaklığında bir süre bekletilmiş ve ardından çözünmeyen kalıntıyı uzaklaştırmak amacıyla karışım filtre edilmiştir. Filtre işlemi esnasında Chmlab Group'dan temin edilen 125 mm çapındaki filtre kâğıtları kullanılmıştır. Şekil 4.2.'de sodyum silikat çözeltisinin eldesi gösterilmiştir. Filtre edilen çözelti sodyum silikat çözeltisi olup, silika aerojel üretiminde kullanılmıştır.

Perlit tozuna uygulanan tüm proses aşaması kuvars, zeolit, pomza, pencere camı tozu, soda şişesi camı tozu ve borcam tozuna da uygulanmış ve böylece 7 farklı hammadde ve atıktan silika aerojel tozu üretimi gerçekleştirilmiştir.



Şekil 4.2.(a,b) Perlit tozundan elde edilen sodyum silikat çözeltisinin karıştırma ve (c) Filtre işlemleri

#### 4.4.2. Silika jelin yaşlandırılması

Hazırlanan sodyum silikat çözeltisi dinlendirildikten sonra silika aerogel hazırlamak için kullanılmıştır. Çözeltinin pH'ı hazırlanan 1M'lık HCl asit çözeltisi ile nötrale edilerek 6-7 aralığına ayarlanmıştır. Ağzı kapalı konumda çözelti oda sıcaklığında 3 gün boyunca yaşlandırma işlemi için bekletilmiştir. Ardından yaşlandırılmış jel filtre edilerek çözeltilerden ayrıştırılmıştır. Jel distile su ile yıkanarak bünyesindeki sodyum nitrat kalıntıları uzaklaştırılmış ve böylece Na oranı en aza indirilmiştir. Şekil 4.3.'de jelin yaşlandırılması ve oluşumu gösterilmiştir.



Şekil 4.3. Silika aerogelin oda sıcaklığında (a,b) yaşlandırılması ve (c,d,e) silika jel oluşum aşamaları



Elde edilen silika jel hacimce %20'lik H<sub>2</sub>O/Ethanol çözeltisinde 1 gün boyunca 50°C'de bekletilerek yaşlandırma işlemine devam edilmiştir. Hacimce %70'lik Ethanol/TEOS çözeltisi hazırlanmıştır ve jel bu çözelti içerisinde 1 gün boyunca 60°C'de etüvde bekletilmiştir. Jel içerisindeki Ethanol/TEOS çözeltisini uzaklaştırmak için n-heptan ile birkaç kez yıkanmıştır. Daha sonra n-heptan içerisinde etüvde 50°C'de 1 gün ve oda sıcaklığında n-heptan içerisinde 1 gün boyunca bekletilerek yaşlandırma işlemi sürdürülmüştür. Hazırlanan bu çözeltiler ve sililasyon ajanı TEOS içerisinde jelin yaşlandırılması ve modifiye edilmesindeki amaç jelin iskelet yapısını güçlendirmek ve bağları sağlamlaştırmaktır. Şekil 4.4.'de elde edilen jelin hazırlanan çözeltilerde etüv içerisinde yaşlandırılması gösterilmiştir.

#### 4.4.3. Atmosferik şartlarda kurutma

Son aşama olan atmosferik şartlarda kurutma için; silika aerojel etüvde 70, 100 ve 125°C'de 1 gün boyunca bekletilerek kurutulmuştur. Elde edilen silika aerojel tozları 1 gün boyunca oda sıcaklığında dinlendirilmiş ve ardından karakterizasyon için kullanılmıştır. Şekil 4.5.'de elde edilen silika aerojel tozları gösterilmiştir.



Şekil 4.4. Hazırlanan çözeltilerde etüv içerisinde yaşlandırma işlemi



Şekil 4.5. Kurutma işleminden sonra elde edilen silika aerojel tozları

#### 4.5. Silika Aerojel Tozlarının Karakterizasyonu

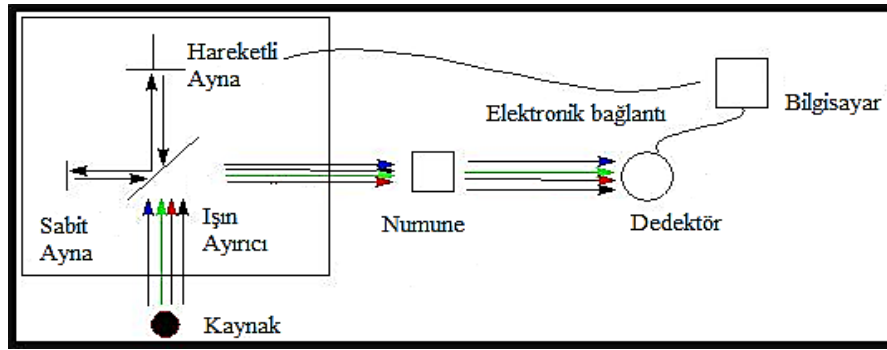
Farklı doğal hammadde ve atık malzemelerden üretilen silika esaslı aerojel tozlarının özelliklerini belirlemek için karakterizasyon çalışmaları yapılmıştır. FTIR (Fourier Transform Infrared Spectroscopy) analizi ile kimyasal bağlanma durumu ve bileşiklerin tanımlanması, ortalama gözenek çapı ve spesifik yüzey alanı BET metodu ile, TG/DSC analizi ile kurumuş jelin termal davranışı, SEM (scanning electron microscopy) ve FESEM (Field Emission Scanning Electron Microscopy) analizleri ile üretilen tozların mikroyapıları ve XRD ile faz tayini yapılmıştır.

##### 4.5.1. FTIR analizi

Üretilen silika aerojel tozlarının kimyasal bağlarını belirlemek için FTIR analizi yapılmıştır. 4000-400  $\text{cm}^{-1}$  dalga boyu aralığında yani mikro dalga ile elektromanyetik spektlerin görünür bölgesi arasında bulunan geçişe IR bölgesi denmektedir [49]. Ayırmalı spektrum duyarlılık değişmeden ve yarık veya prizma kullanılmadan elde edilebilir ve spektrum çok kısa sürede dalga boyu tek tek taranmadan kaydedilebilir. Ayrıca kaydedilen bu spektrumda bantlar analiz



esnasında şiddetli ve çok net gözlemlenirken, S/N (Signal/Noise–Sinyal/Gürültü) oranı diğer kullanılan yöntemlere göre çok daha fazladır. Şekil 4.6.'da verilmiş olan çalışma prensibi akış şemasından da anlaşılacağı üzere ışık oluşum kaynağından çıktıktan sonra bir ışın ayırıcıya (beamsplitter) gelerek hem hareketli hem sabit aynaya aktarılır. Ardından ışınlar aktarılmış oldukları aynadan yansarak ışın ayırıcıya geri gelerek buradan da örneğin konumlandığı noktaya gider. Heterokromatik yapıda olan bu ışın, tek dalga boyuna getirilerek monokromatik yapıya geçişi sağlanır. Son olarak ışın örnek ile temas ettikten sonra algılayıcılar tarafından algılanır ve sinyale dönüştürülerek bilgisayar ile ölçülebilecek seviyeye gelir [50].



Şekil 4.6. FTIR Spektroskopisi Çalışma Prensibi [50].

Üretilen tüm silika esaslı aerojel tozlarına ve kullanılan başlangıç doğal hammadde ve atık malzemelerine FTIR analizi yapılmıştır. FTIR analizi için Şekil 4.7.'de gösterilen FTIR cihazı kullanılmıştır.



Şekil 4.7. FTIR cihazı [50].

#### 4.5.2. SEM analizi

Taramalı Elektron Mikroskopunda (SEM) görüntü, analiz edilecek numune yüzeyinde elektron demetlerinin taratılması esnasında, numune ve elektronlar arasında meydana gelen etkilerin algılayıcılarda toplanması ve ardından bir katot ışını tüpünün ekranına verilerin aktarılmasıyla elde edilir [51]. Numunelerin mikro yapısal özelliklerini belirlemek için SEM analizi yapılmıştır. 50.000X büyütme kadar çıkılarak silika aerojel tozlarının mikroyapısı gözlemlenmiştir. Ayrıca tozlardaki elementlerin yüzdelerini incelemek için EDS analizi yapılmıştır. Şekil 4.8.'de görülen Jeol 6060 LV model taramalı elektron mikroskobu (SEM) kullanılmıştır.



Şekil 4.8. SEM cihazı

#### 4.5.3. FESEM analizi (Field Emission Scanning Electron Microscopy)

FESEM cihazı yüksek çözünürlüklerde ve büyütmelerde nano boyuttaki malzemelerin analizi için dizayn edilmiştir. FESEM'in mevcut X-Işını Dedektörü, analizörü ve yazılım arayüzü ile X-Işını Spektroskopisi kullanarak belirlenen noktada ve haritada kantitatif element analizi gerçekleştirilebilir. En verimli ve yaygın kullanım kolaylığı için analiz edilecek numune X-Y-Z haznesine talep edilen koordinata hassas bir biçimde yerleştirilebilir ve ardından tekrar görüntü alabilmek için bu koordinatlar kaydedilebilir [52].

Nano boyuttaki numunelerin mikro yapısal özelliklerini incelemek için FESEM cihazı kullanılmıştır. 300.000X büyütme kadar çıkılarak üretilen tozların yapısı

incelenmiş ve nano boyuttaki tozların yapısındaki elementleri belirlemek için EDS analizi de yapılmıştır. Şekil 4.9.'da kullanılan FESEM cihazı görülmektedir.



Şekil 4.9. FESEM cihazı

#### 4.5.4. Termal analiz ( DSC-TGA )

Termal analiz yönteminde doğrusal olarak seçilen aralıklarda arttırılan veya azaltılan sıcaklık ile numunenin kütleinde gözlemlenecek olan azalmalar, sıcaklığın veya zamanın fonksiyonu olarak kaydedilecektir. Analiz sonucunda tespit edilen sıcaklık kütle eğrileri termal bozunma eğrileri olarak adlandırılır. Sıcaklığın doğrusal olarak artışı ile oluşan kütle kayıpları genellikle yapıdan su ve benzeri uçucu bileşiklerin ayrılması ile gerçekleşmektedir. Termogravimetri cihazı kütle ve sıcaklık değişimini iyi bir şekilde gözlemleyen, hassas bir terazi ve ayrıca iyi bir fırın olmasının yanında analiz esnasında gazı önleyebilen parçalardan meydana gelmiştir [53].

Kullanılan termogravimetrik cihazın fırını  $5^{\circ}\text{C}/\text{dak}$  hızla doğrusal olarak yükseltilecek şekilde ayarlanmıştır. Analiz şartları hava atmosferi olup alümina DTA potası içinde inert alümina referans alınarak yapılmış ve  $1000^{\circ}\text{C}$ 'ye kadar aralıklarla çıkılarak sıcaklıkla kütle arasındaki değişim gözlemlenmiştir. Üretilen silika aerojel tozlarının sıcaklıkla kütleindeki değişim incelenerek elde edilen

eğriler yorumlanmıştır. Şekil 4.10.'da görülen Netzsch Marka STA 449 Model DTA-TG cihazı kullanılmıştır [53].



Şekil 4.10. Termal analiz cihazı (DTA)

#### 4.5.5 BET analizi

Gözenekli yapı içeren silika aerojel tozlarının yüzey alanlarını, boşluk hacimlerini ve dağılımlarını ölçmek için BET analizi gerçekleştirilmiştir. BET yöntemi, analiz edilecek numune tabakasının tek bir moleküler yapı ile kaplanması için mevcut gaz miktarının belirlenmesi prensibine dayanır. Analiz işleminden önce numuneler degas ünitesine yerleştirilerek 300°C'ye kadar ısıtma yapılarak saflaştırılır ve sudan arıtma işlemi yapılır. Ardından numuneler sıvı azot gazı kullanılarak analiz edilir [55]. Bu yapılan deneyler ile numunenin ne kadar miktarda azot adsorpladığını gösteren “adsorpsiyon izotermi” tespit edilmektedir. Daha sonrasında silika aerojel tozlarının yüzey alanı, spesifik gözenek boyutu ve hacmi, BJH gözenek boyutu değerleri ve adsorpsiyon-desorpsiyon eğrileri gözlemlenmiştir. Şekil 4.11.'de gösterilen Micromeritics/ASAP 2020 marka BET cihazı kullanılarak analiz yapılmıştır. BET cihazı ile 77 K sıcaklıktaki sıvı azot gazı ortamında, adsorpsiyon yöntemi ile yüzey alanı, gözenek boyutu ve gözenek hacmi ölçümü yapılmaktadır. Gözenek çapı 2 nm'den küçük olan numuneler için mikrogözenek, 2-50 nm aralığında mezogözenek, 50 nm'den büyük olanlarda ise makrogözenek yapı mevcuttur. Makrogözenekler yüksek basınçtan etkilenirken, mezo ve mikrogözenekler kimyasal ve ısıtma işleminden etkilenmektedir. Toz numunelerinin boyutu ve şekli tozların hazırlanma koşullarına göre değişiklik gösterebilmektedir.

Adsorplama şiddeti ve güçlerinin çok fazla olması, gözenekli malzemelerin en önemli özelliklerinden biridir [56,57].

BET izoterm denklemi:

$$\frac{p}{n_a(p_0 - p)} = \frac{1}{n_m C} + \frac{(C - 1)}{n_m C} * \frac{p}{p_0}$$

çizgisel biçimiyle verilir.  $P_0$  adsorplananın deney sıcaklığındaki doymun buhar basıncı,  $P$  adsorpsiyonun ölçüldüğü esnadaki buhar basıncı  $n_m$  tek tabaka kapasitesi,  $C$  ise ;

$$C = e^{\frac{E1-EL}{RT}}$$

Bağıntısına göre adsorpsiyon ısısının, yoğunlaşma ısısını aşan miktarının ölçüsü olan bir sabittir.  $(E1-EL)$  net adsorpsiyon ısısıdır.



Şekil 4.11. BET Cihazı

#### 4.5.6. Faz analizi ( XRD)

XRD her bir kristal fazın kendine özgü atomik dizilimlerine bağlı olarak X-ışınlarını karakteristik bir düzen içerisinde kırması esasına dayanır [54]. Üretilen silika aerojel tozlarına da bu analiz uygulanarak kristal yapısı belirlenmiştir. Yapılan XRD analizleri  $CuK\alpha$  ışın demeti kullanılarak dalga boyu  $\lambda=1,54056$  nm olan, tarama açısı ise  $2\theta$ , 5 ile  $50^\circ$  aralığında olup, tarama hızı ise  $1^\circ/dk$  olacak

şekilde Rigaku D/MAX/2200/PC marka XRD cihazı kullanılmıştır. Şekil 4.12.'de çalışmalarda kullanılan XRD cihazı görülmektedir.



Şekil 4.12. Rigaku marka XRD cihazı

## BÖLÜM 5. DENEYSEL SONUÇLAR VE İRDELEME

### 5.1. Giriş

Mevcut tez çalışmasında perlit, kuvars, pomza ve zeolit doğal hammaddeleri ile pencere camı tozu, soda şişesi tozu ve borcam tozu gibi silika esaslı atıkların kullanılmasıyla sol-jel yöntemi ile birlikte silika esaslı aerjel tozları elde edilmiştir. Kullanılan farklı doğal hammaddelerin ve atık malzemelerden üretilen silika aerjel tozlarının kimyasal bağ yapıları FTIR analizi ile, mikroyapıları SEM-FESEM-EDS ile, sıcaklıkla yapılarında meydana gelen fiziksel ve kimyasal değişimler DTA termal analiz cihazı ile, yüzey alanı ve gözenek çapı değerleri BET analizi ile ve faz yapısı XRD analizi ile detaylandırılmıştır.

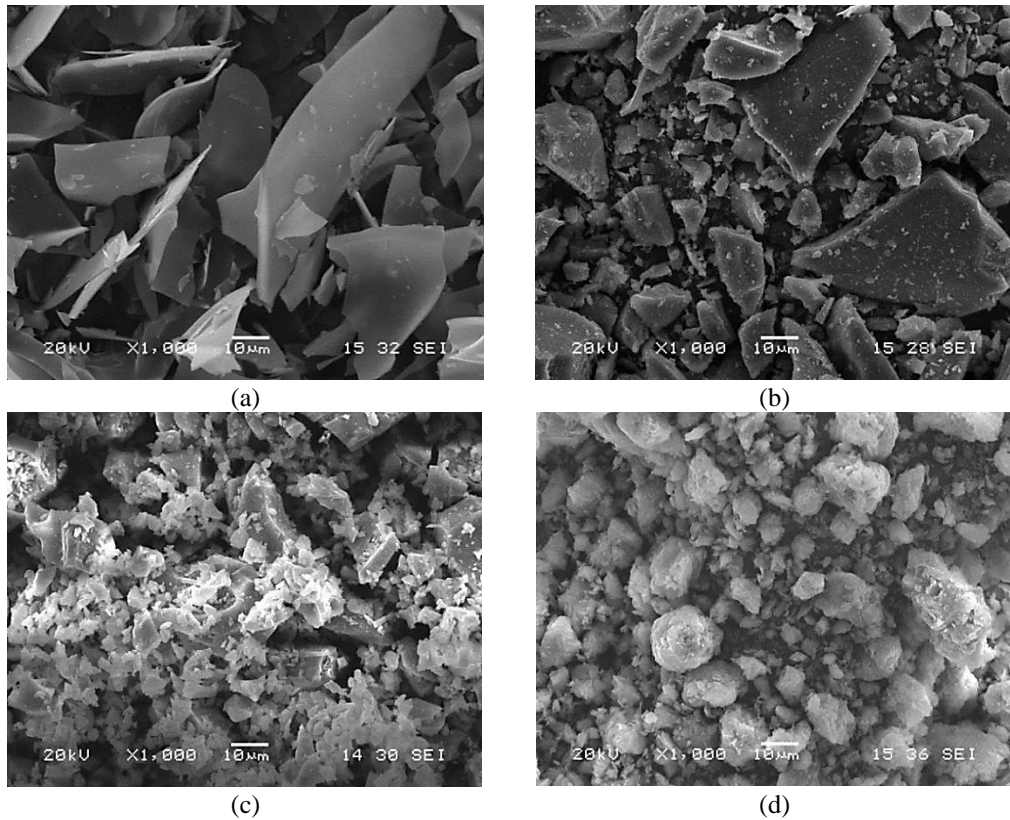
#### 5.1.1. Mikroyapı analizi

Hem silika kaynağı olarak kullanılan başlangıç hammadde ve atık malzemelerin hem de sentezlenen silika aerjel tozlarının mikroyapısal görüntüleri SEM-EDS ve FESEM-EDS analizleri yapılarak detaylandırılmıştır. Elde edilen silika aerjel tozlarının tane ve gözenek yapısı nano boyutta olduğu için yüksek büyütmelemlerde FESEM cihazı ile mikroyapılar incelenerek daha net ve detaylı görüntüler elde edilmiştir. Tablo 5.1.'de silika aerjel tozu üretiminde kullanılan doğal ve atık malzeme kaynakları kodlarıyla birlikte verilmiştir.

Tablo 5.1 Silika Aerjel Tozu Kaynakları

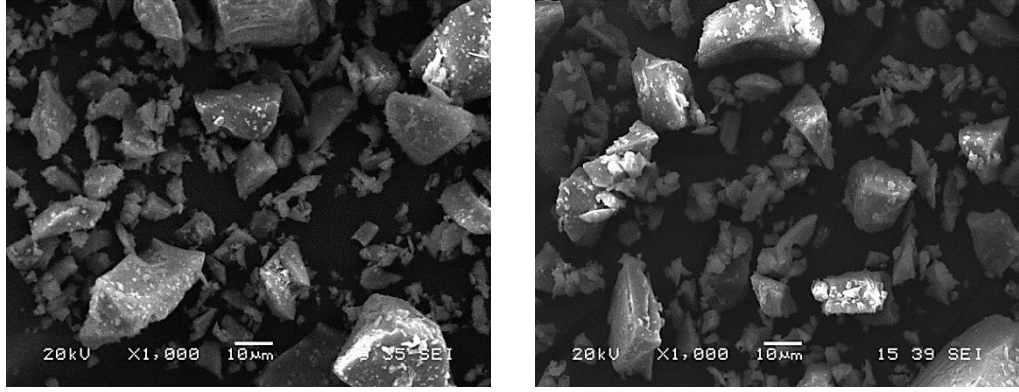
Numune Kodları	Başlangıç Silika Kaynakları
S1	Perlit
S2	Kuvars
S3	Pomza
S4	Zeolit
S5	Pencere Camı Tozu
S6	Soda Şişesi Camı Tozu
S7	Borcam Tozu

Silika esaslı aerojel üretiminde kullanılan doğal hammadde ve atık malzemelerin SEM mikroyapı görüntüleri Şekil 5.1.'de, üretilen silika aerojel tozları ise Şekil 5.2.'de görülmektedir. Doğal hammaddelerin mikroyapıları SEM görüntülerinden de gözlemlendiği üzere birbirinden farklılıklar sergilemiştir. Perlit tozu yaprağımsı tabakalı toz yapısında iken; kuvars keskin köşeli geniş toz boyut aralığında tozlardan, pomza ve zeolit tozları gözenekli küremsi toz yapısında, pencere, soda şişesi ve borcam tozlarının ise mekanik öğütme işleminden dolayı keskin köşeli toz tane yapısına sahip oldukları gözlenmiştir. SEM görüntülerinde üretilen tozların aglomerasyona uğradığı dikkat çekmekte olup; pomza tozundan üretilen silika aerojel tozunda tozlar daha net olarak gözlenebilmiş ve tüm üretilen tozlara FESEM analizi yapılarak nano mertebelerdeki toz boyutları detaylı olarak gözlenebilmiştir. S1 kodlu perlit numunesinden elde edilen silika aerojel tozunun 100.000X ve 300.000X büyütmedeki mikroyapısının FESEM görüntüsü Şekil 5.3.'de aynı numuneye ait EDS sonuçları da Şekil 5.4'de görülmektedir.



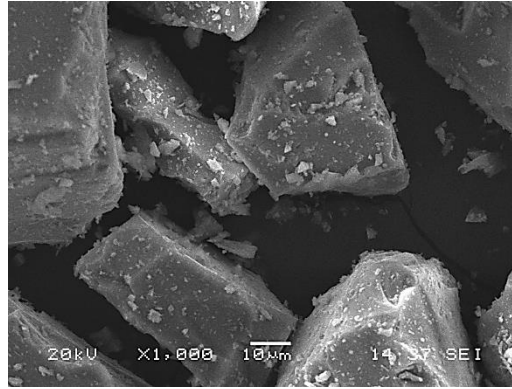
Şekil 5.1. Silika aerojel başlangıç malzemelerinin (a) Perlit, (b) Kuvars, (c) Pomza, (d) Zeolit, (e) Pencere camı, (f) Soda şişesi, (g) Borcam SEM görüntüleri





(e)

(f)



(g)

Şekil 5.1. (Devamı)

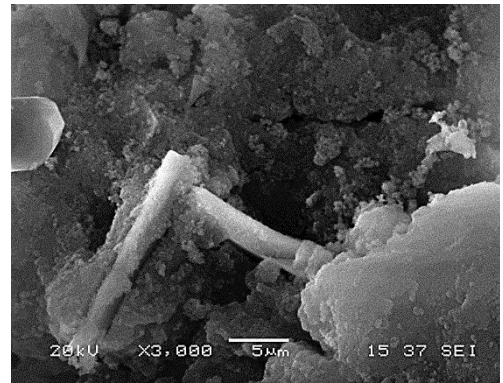
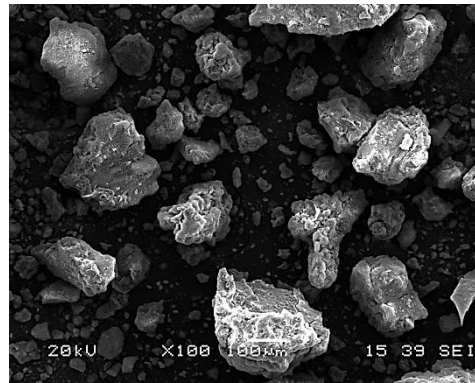
## Silika Aerojeller

Silika  
Kaynakları

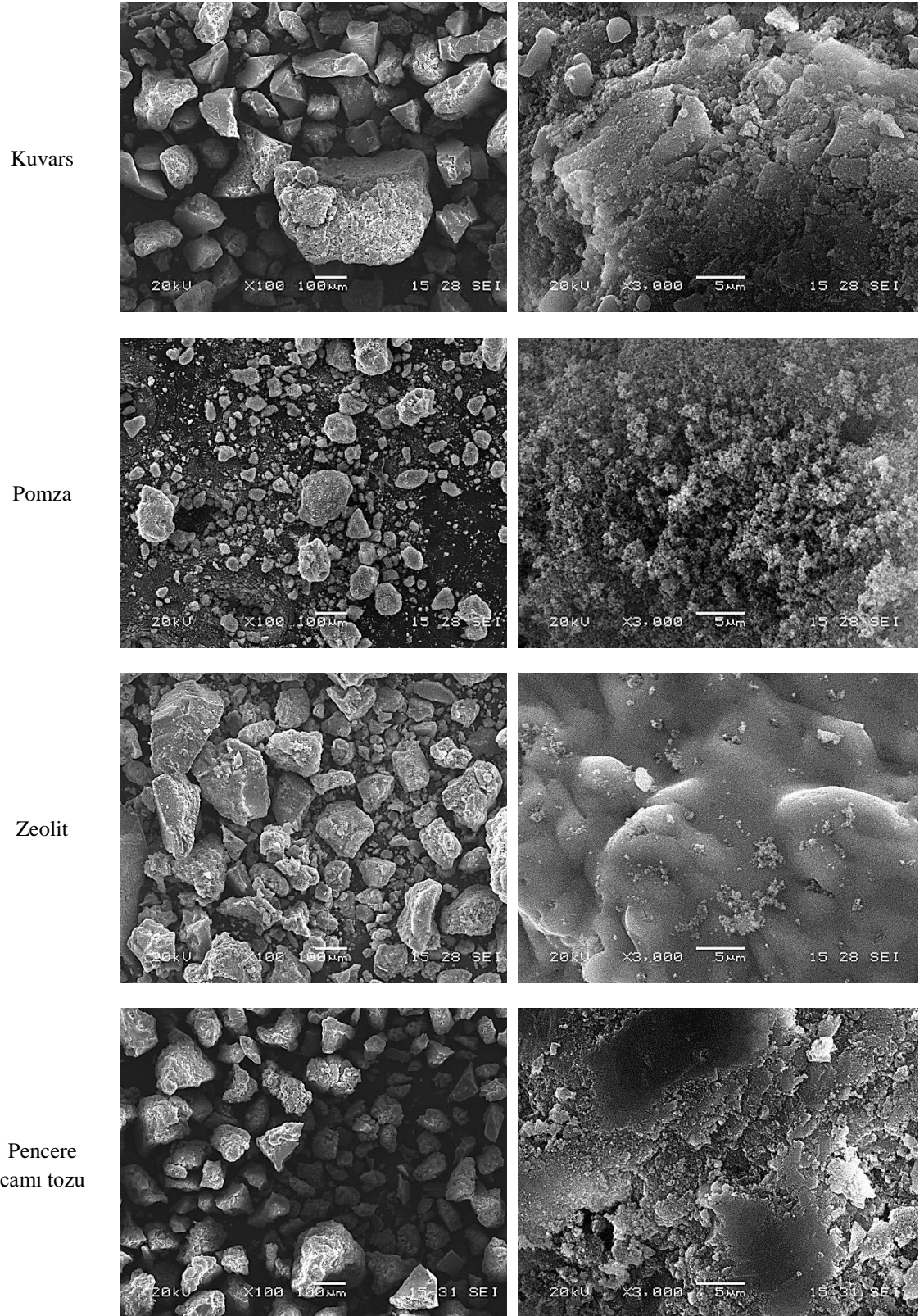
100 X

3000 X

Perlit

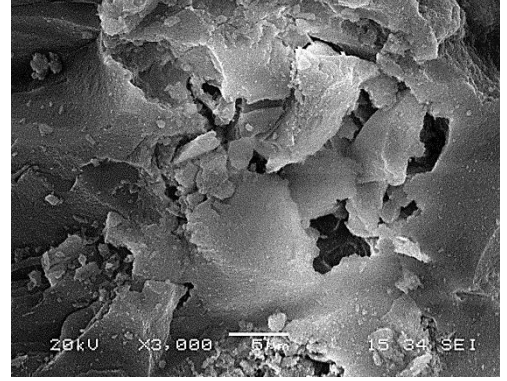
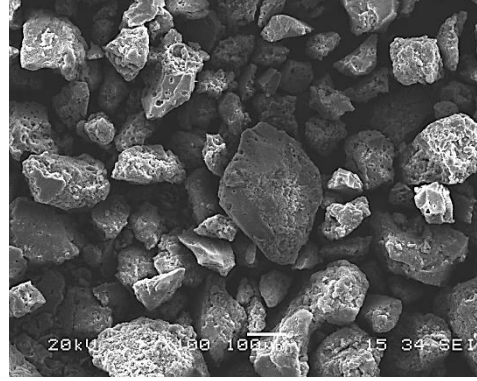


Şekil 5.2. Farklı doğal hammadde ve atık tozlarından üretilen silika aerojel tozlarına ait SEM görüntüleri

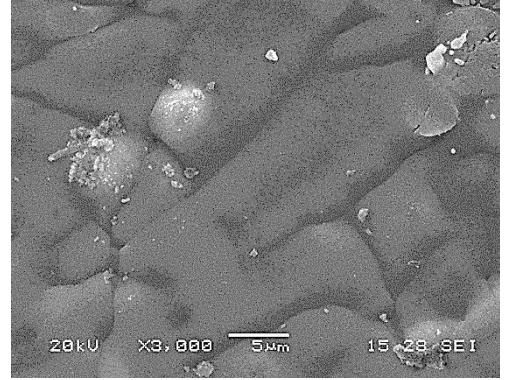
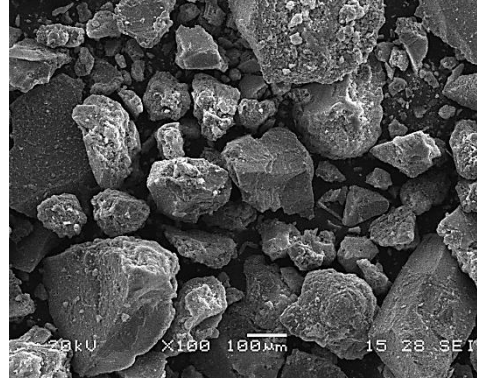


Şekil 5.2. (Devamı)

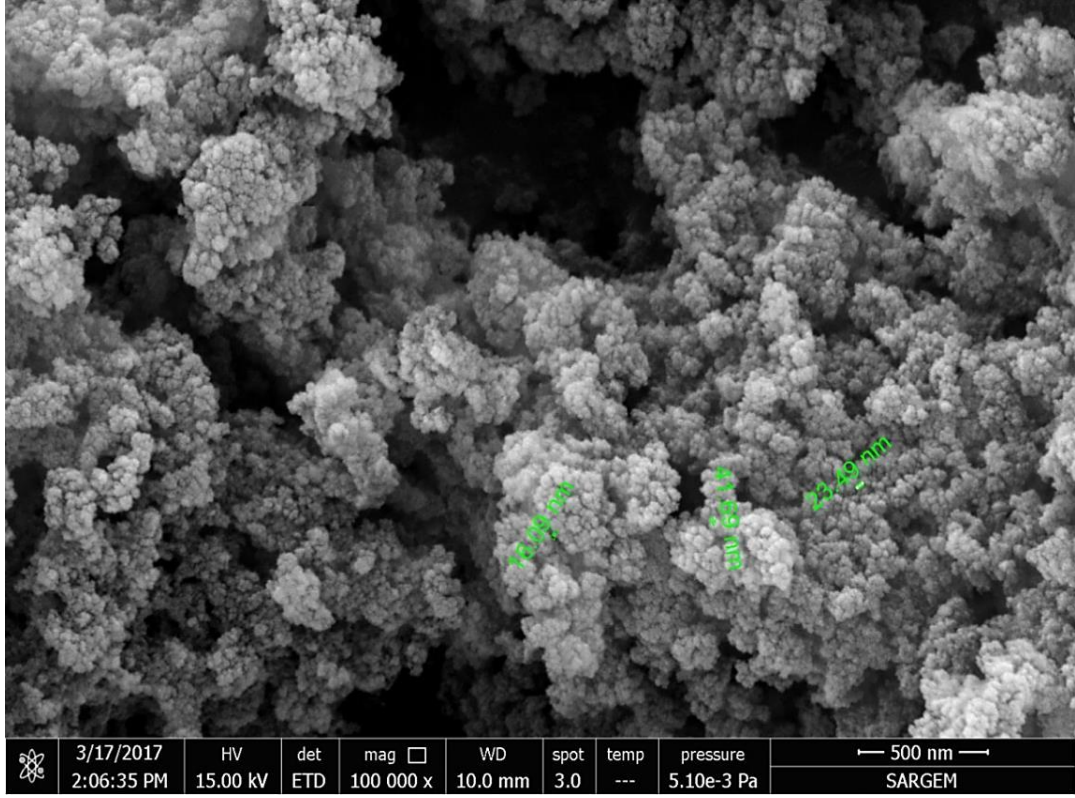
Soda şişesi  
camı tozu



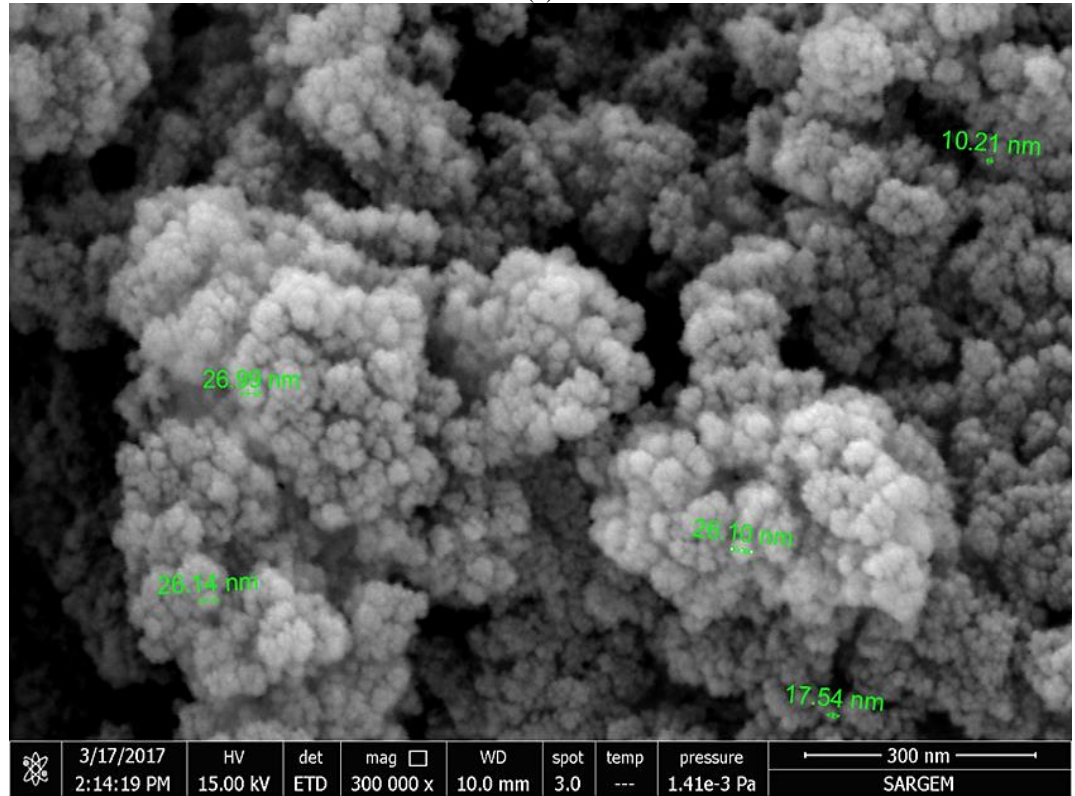
Borcam



Şekil 5.2. (Devamı)



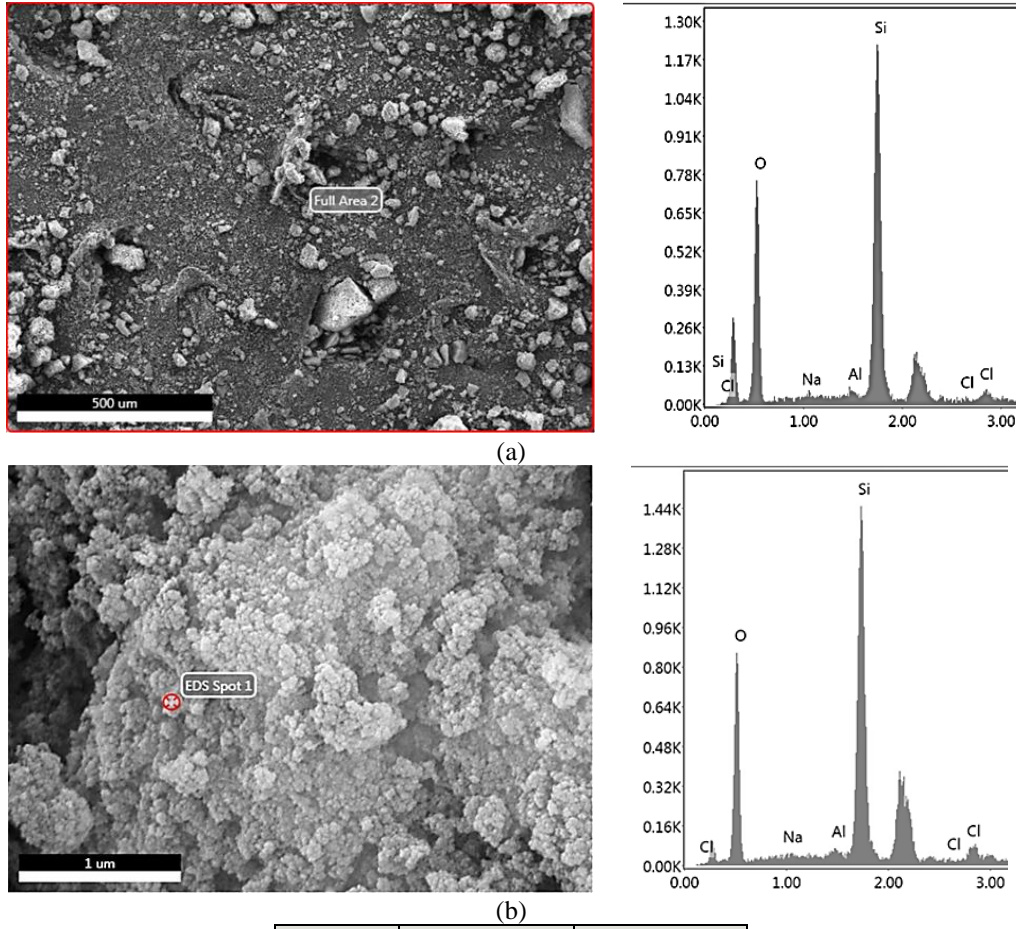
(a)



(b)

Şekil 5.3 Perlit tozundan üretilen silika aerojel tozunun (a) 100.000X, (b) 300.000X büyütmedeki FESEM görüntüleri



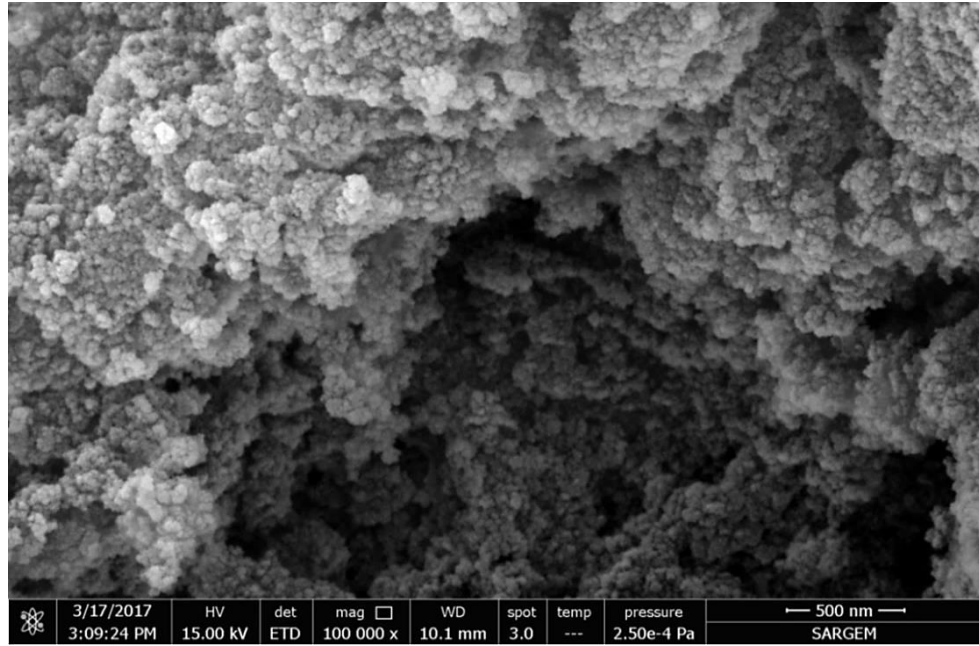


Element	(a) Ağırlıkça %	(b) Ağırlıkça %
O	51,72	49,96
Na	0,39	0,51
Al	0,71	0,88
Si	46,55	48,14
Cl	0,64	0,50

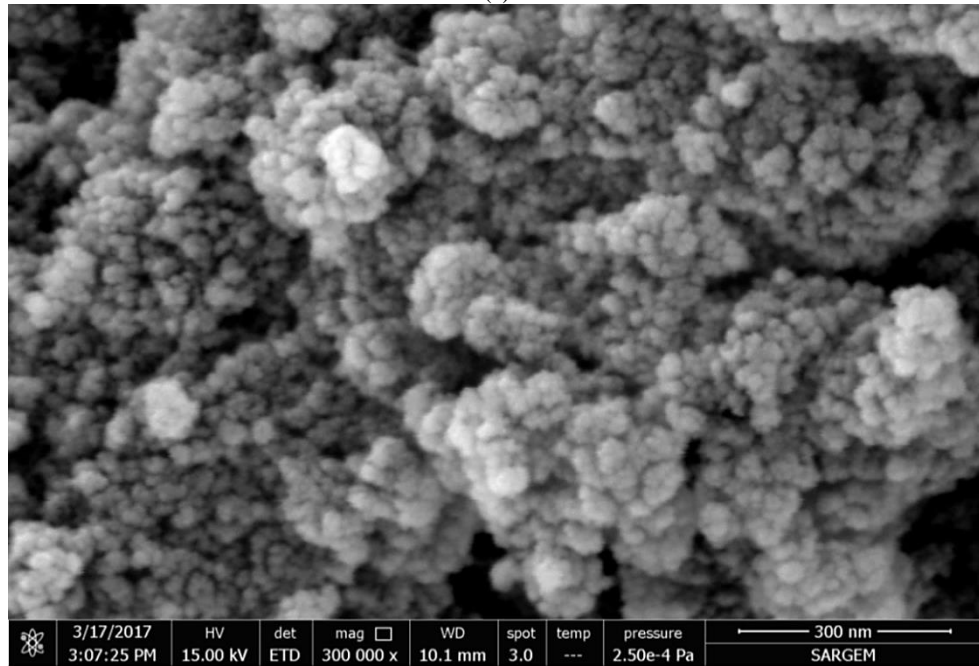
Şekil 5.4. Perlitten üretilen silika aerojel tozunun farklı büyütme ölçeklerinde görüntüsü ve FESEM-EDS analiz sonuçları

Şekil 5.3.'deki perlit doğal hammaddesi kullanılarak üretilen silika aerojel tozunun FESEM mikroyapı görüntüsünde toz tane boyutunun nano boyutlarda olduğu farklı büyütme ölçeklerinde incelen görüntülerde ölçümler alınarak belirlenmiş olup; mikroyapılarda da toz tane boyut ölçümleri işaretlenmiştir. Toz boyutlarının genel olarak 10 ile 50 nm arasında olduğu tespit edilmiştir. a ve b.'den görüldüğü üzere silika aerojel toz boyutlarının 10,21 nm, 16,09 nm gibi nano boyutta olduğu analiz edilmiştir. Elde edilen EDS analizi ile silika aerojel toz yapısında O ve Si elementlerinin hakim olduğu görülmektedir. Distile su ile yapılan yıkama işlemleri ile aerojel üretiminde kullanılan NaOH ve HCl ilavelerinin yapıdan mümkün

olduğunca uzaklaştırıldığı EDS analizlerinde görülmektedir. Şekil 5.4.a'da Na ve Cl elementleri sırasıyla %0,39 ile %0,64 iken; Şekil 5.4.b'de %0,51 ile %0,50 olarak tespit edilmiştir. S2 kodlu kuvars numunesinden elde edilen silika aerojel tozu için 100.000X ve 300.000X büyütmelerdeki toz tane yapısının FESEM görüntüsü Şekil 5.5.'de ve EDS sonuçları da Şekil 5.6.'da görülmektedir.

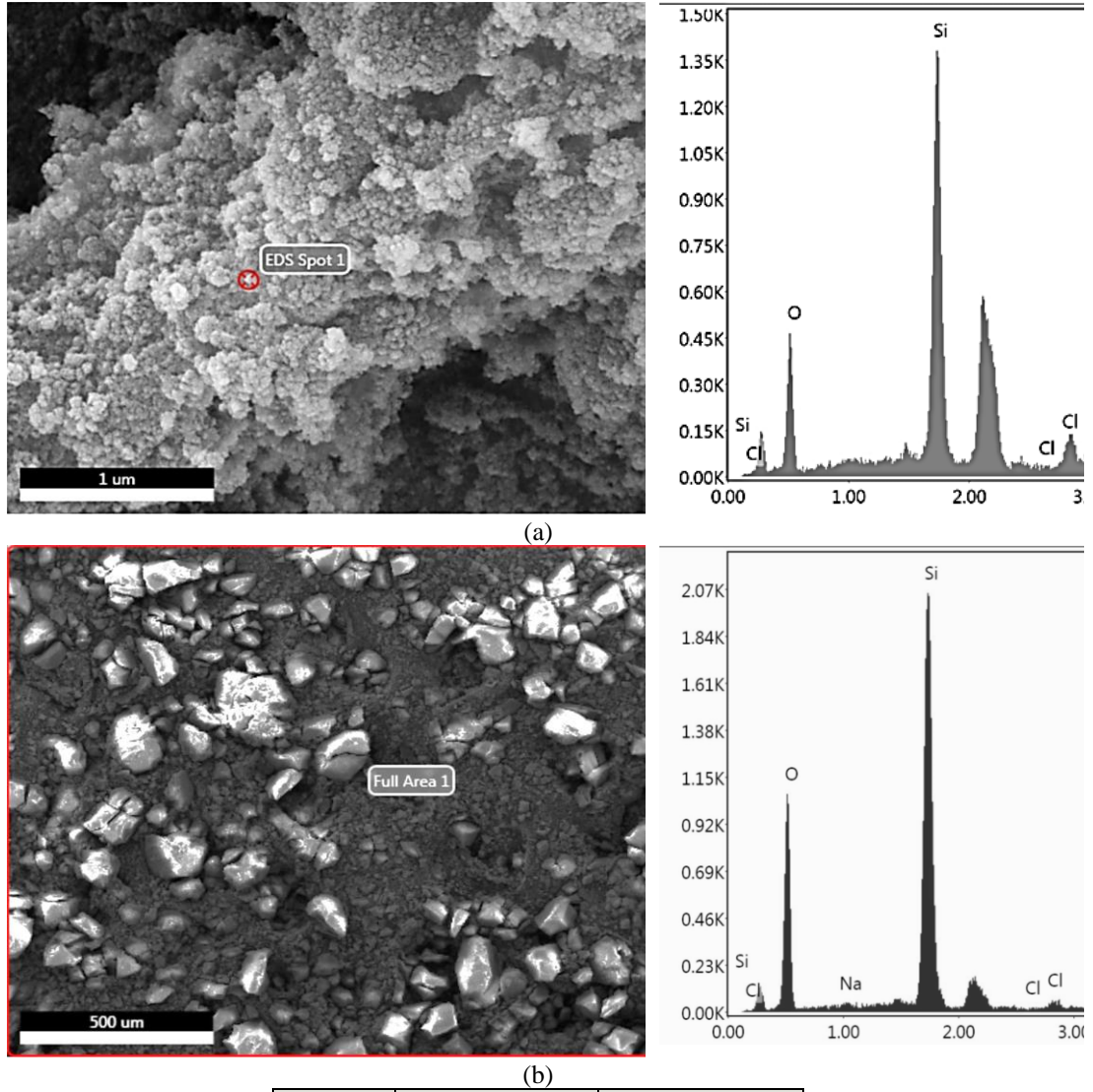


(a)



(b)

Şekil 5.5. Kuvars tozundan elde edilen silika aerojel tozunun (a) 100.000X, (b) 300.000X büyütmelerdeki FESEM görüntüleri



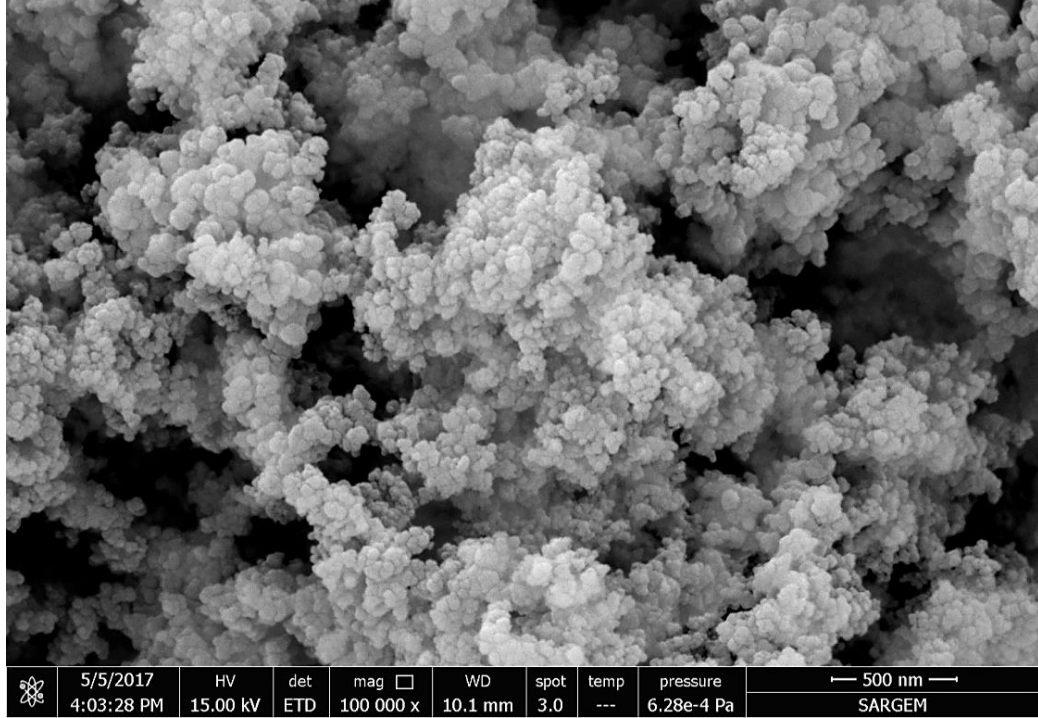
Element	(a) Ağırlıkça %	(b) Ağırlıkça %
O	38.70	47.70
Na	-	0.21
Si	59.91	51.82
Cl	1.40	0.27

Şekil 5.6. 100.000X büyütmede kuvars tozundan elde edilen silika aerojel tozunun FESEM-EDS sonuçları

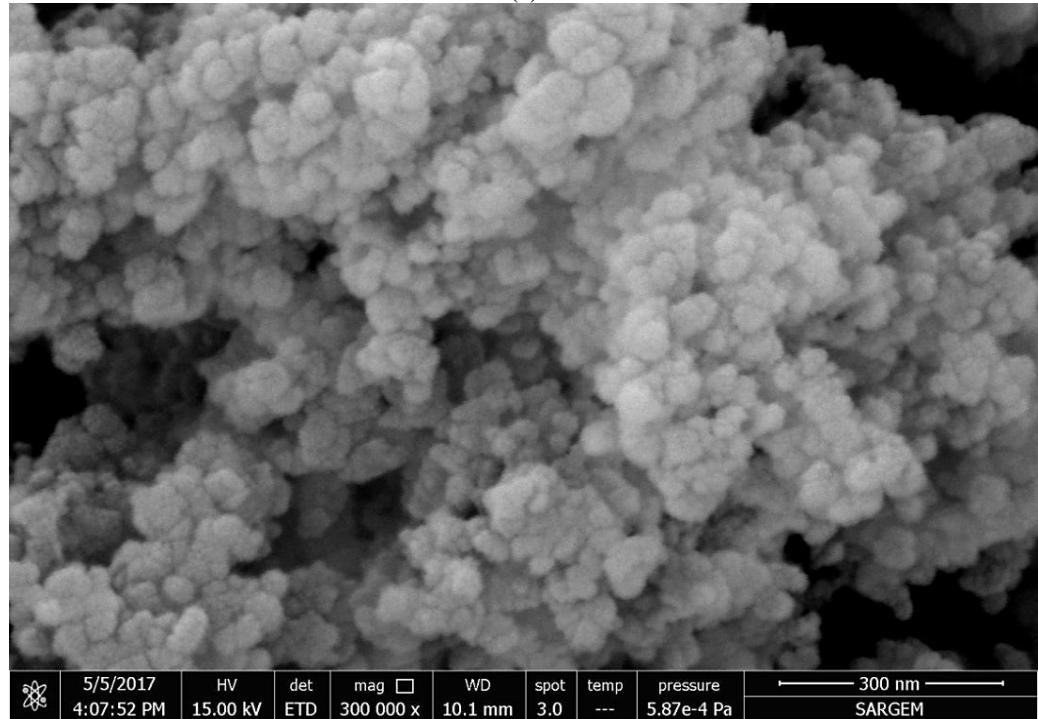
S3 kodlu pomza tozu numunesinden elde edilen silika aerojel tozu için 100.000X ve 300.000X büyütmedeki gözenek yapısının SEM görüntüsü Şekil 5.7.'de verilmiştir. Aynı numuneye ait EDS sonuçları da Şekil 5.8.'de görülmektedir.

Kuvars tozundan elde edilen silika aerojel tozlarının da gözenekli bir mikroyapıya sahip olduğu Şekil 5.5.'de görülmektedir. Elde edilen bu tozlar dikkat çekici gözenekli ve üç boyutlu ağ yapısı sayesinde çok düşük yoğunluğa ve çok fazla delikten meydana gelen gözenekli süngerimsi yapıları ile yüksek porluluk

değerlerine sahiptirler. EDS analizi ile de Si ve O piklerinin %59,91 ve %47,70 değerlerine kadar ulaştığı Şekil 5.6.'dan görülmektedir.



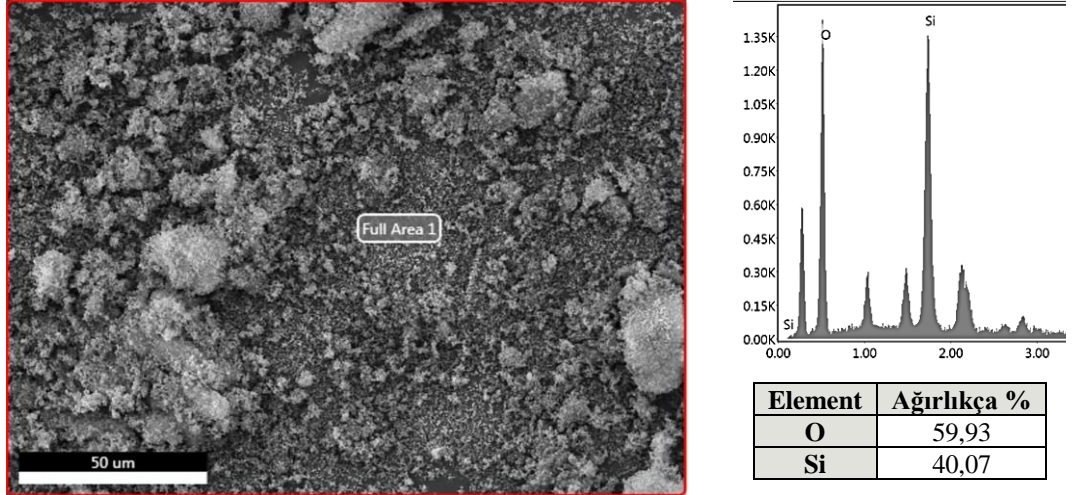
(a)



(b)

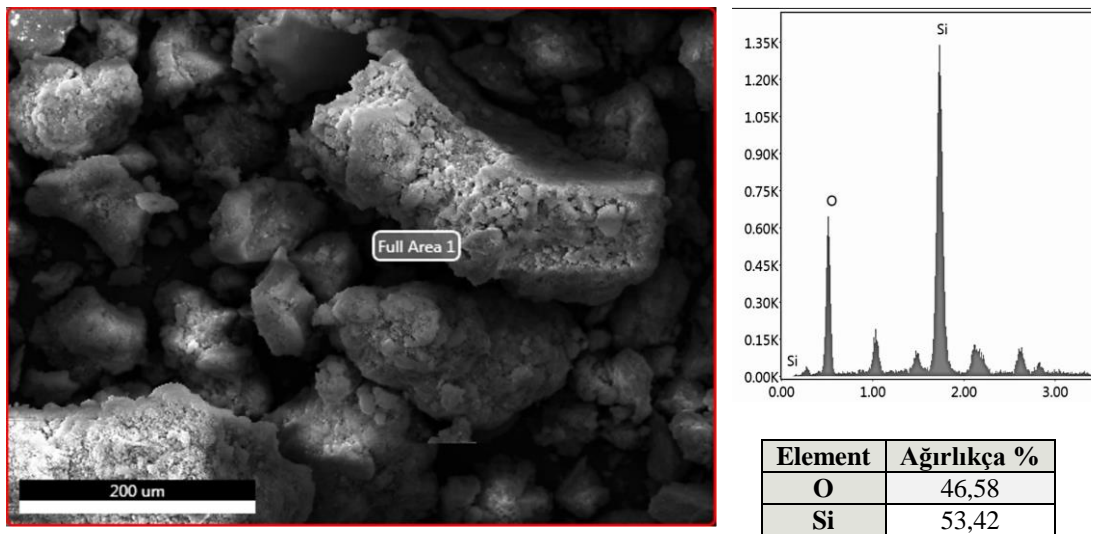
Şekil 5.7. Pomza tozundan elde edilen silika aerogel tozunun (a) 100.000X, (b) 300.000X büyütmedeki FESEM görüntüleri





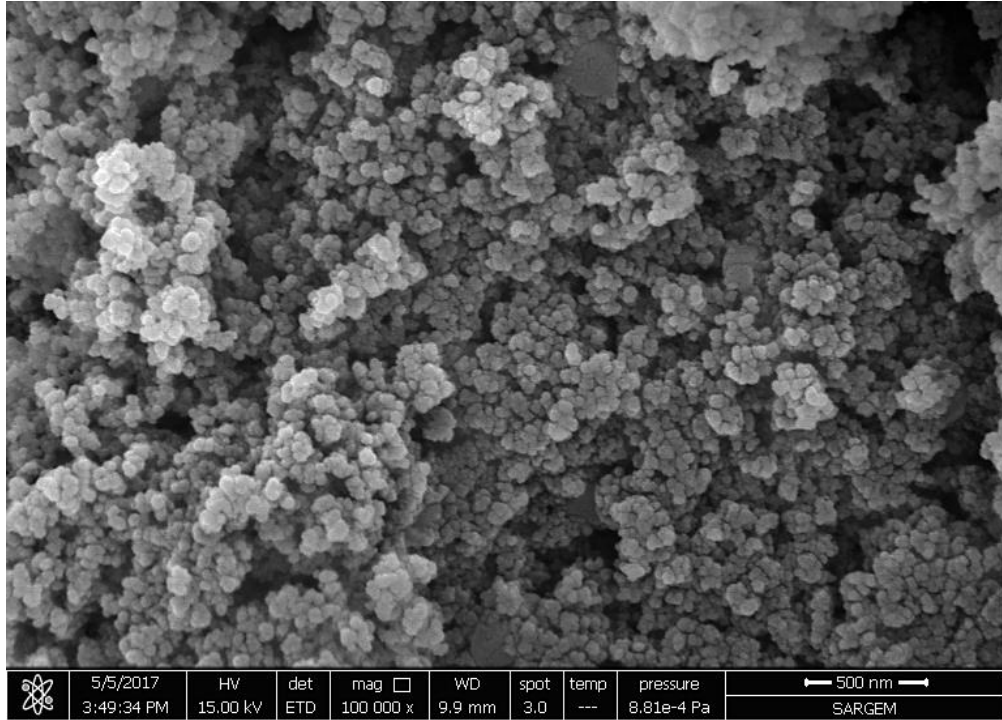
Şekil 5.8. 100.000X büyütmede pomza tozundan elde edilen silika arojel tozunun FESEM-EDS sonuçları

Pomza tozundan elde edilen silika arojel tozlarının ortalama 10-50 mm gözenek çapı ile nano boyutta yüzeyinin süngerli bir yapıya sahip olduğu ve delikli porlardan oluştuğu Şekil 5.7.'de görülmektedir. Genel EDS sonuçları ile %59,93 O ve %40,07 Si elementlerinin yapıda mevcut olduğu analiz edilmiştir. Toz üretimi proses aşamalarında yapılan distile su ile yıkama işlemleri ile yapıdaki istenmeyen ilavelerin uzaklaştırıldığı EDS analiz sonuçlarıyla tespit edilmiştir. S4 kodlu zeolit hammaddesinden elde edilen silika arojel tozunun EDS sonuçları Şekil 5.9.'da, 100.000X ve 300.000X büyütmelerdeki FESEM mikroyapısı görüntüleri Şekil 5.10.'da görülmektedir.

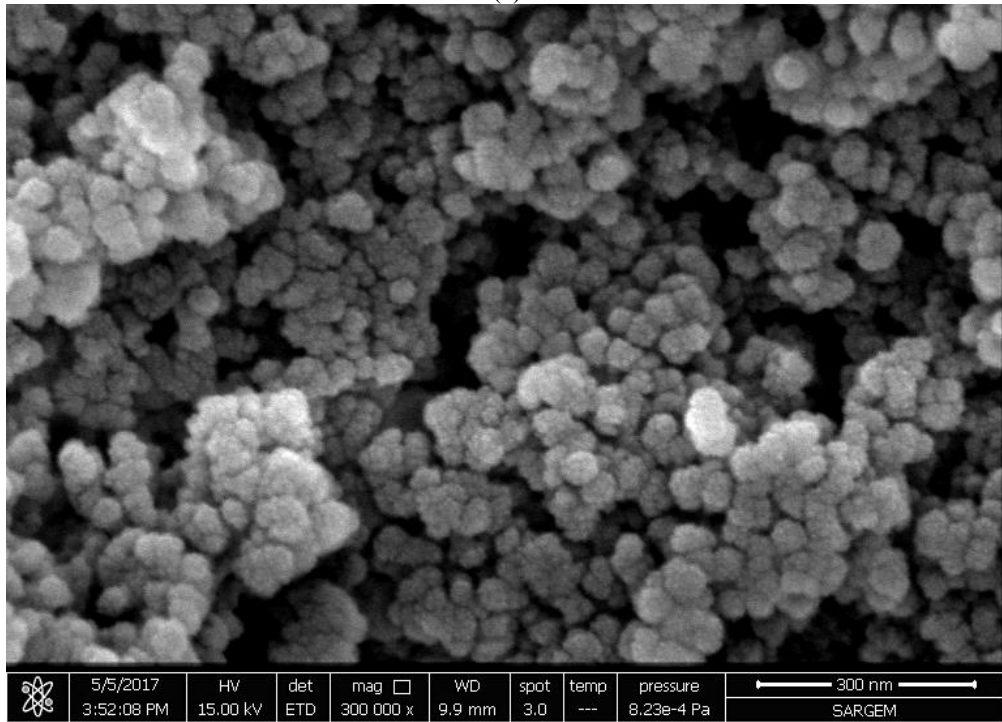


Şekil 5.9. 100.000X büyütmede zeolit tozundan elde edilen silika arojel tozunun FESEM-EDS sonuçları

S5 kodlu atık pencere camı tozlarından üretilen silika aerojel tozu için 100.000X ve 300.000X büyütmelerdeki FESEM mikroyapısı görüntüsü Şekil 5.11.'de, EDS sonuçları da Şekil 5.12.'de görülmektedir.

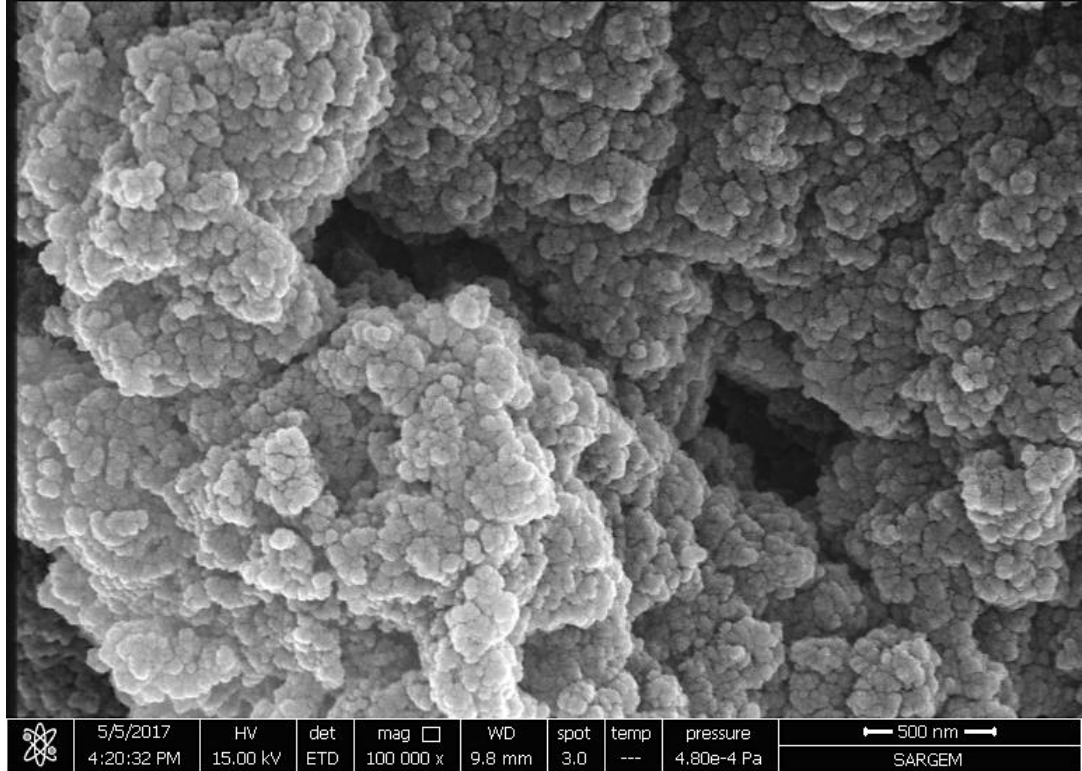


(a)

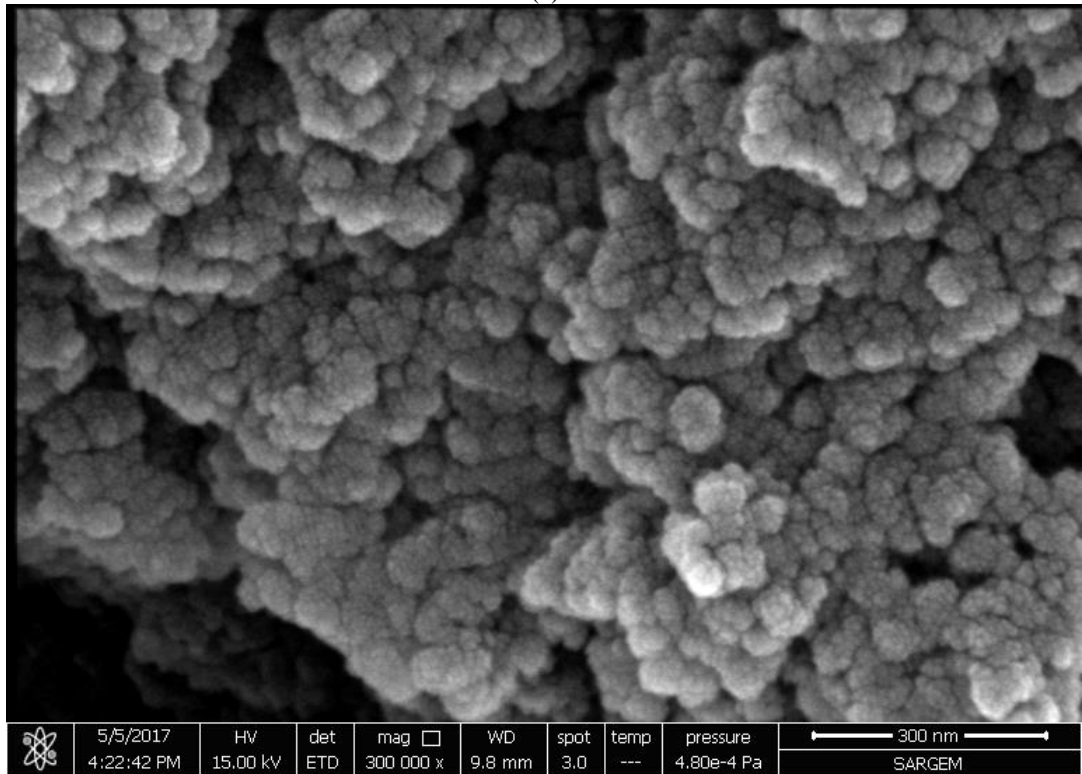


(b)

Şekil 5.10. Zeolit tozundan elde edilen silika aerojel tozunun (a) 100.000X, (b) 300.000X büyütmedeki FESEM görüntüleri

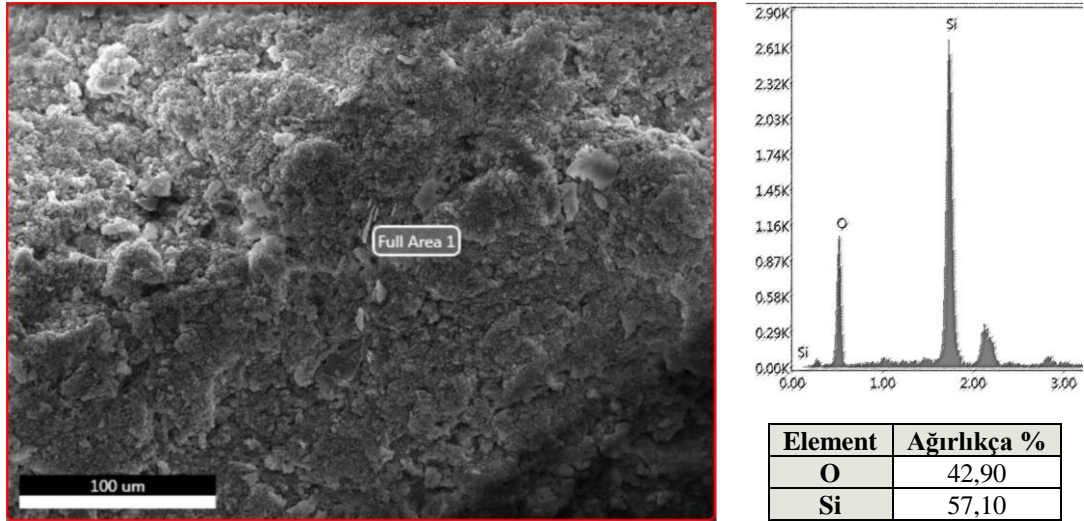


(a)



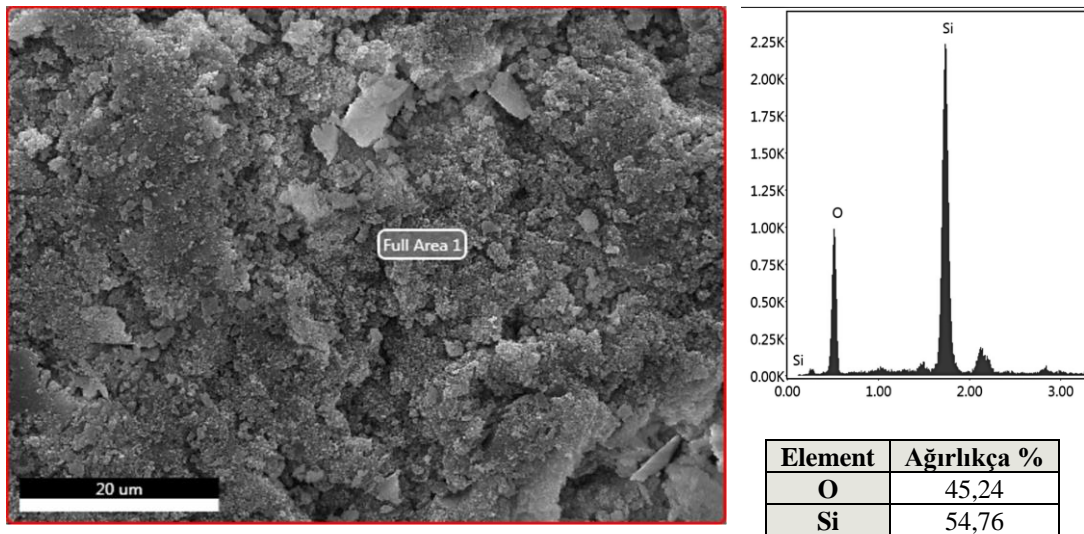
(b)

Şekil 5.11. Pencere camı tozundan üretilen silika aerojel tozunun (a) 100.000X, (b) 300.000X büyütmedeki FESEM görüntüleri



Şekil 5.12. 100.000X büyütmede pencere camı tozundan üretilen silika aerojel tozunun FESEM-EDS analizi

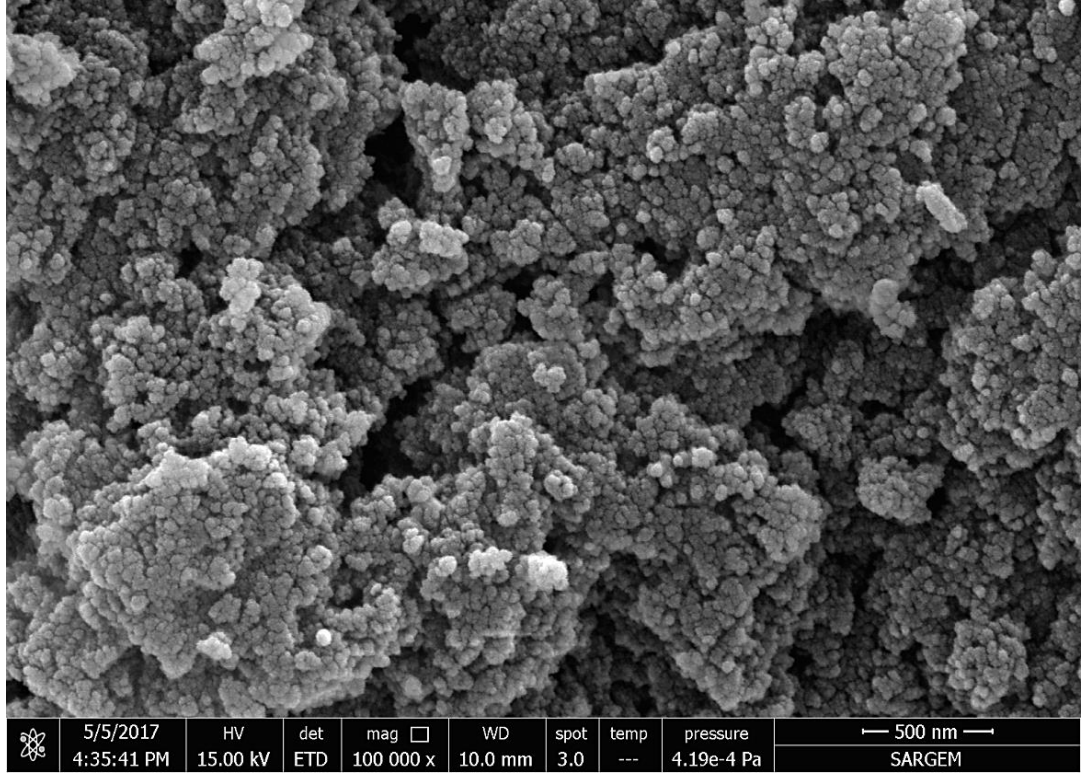
S6 kodlu soda şişesi cam tozlarından üretilen silika aerojel tozunun EDS analizi sonuçları ve 100.000X ve 300.000X büyütmedeki FESEM mikroyapı görüntüsü sırası ile Şekil 5.13. ve Şekil 5.14.’de görülmektedir.



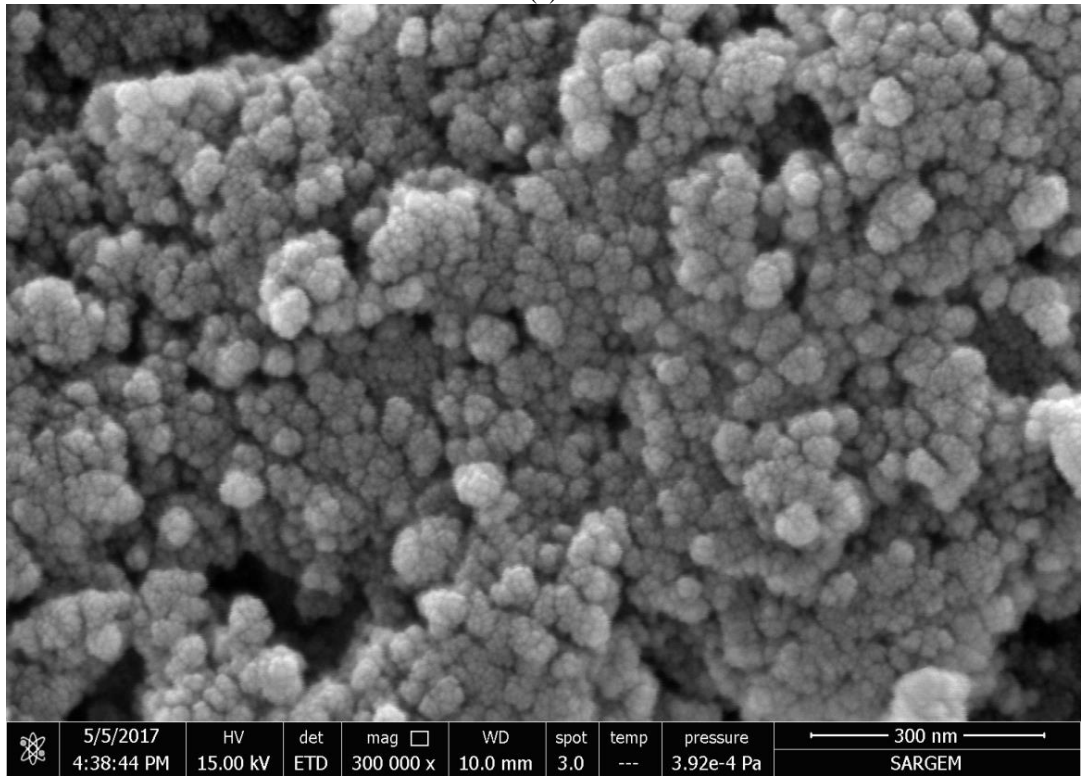
Şekil 5.13. 100.000X büyütmede soda şişesi cam tozundan üretilen silika aerojel tozunun FESEM-EDS analizleri

S7 kodlu atık borcam tozlarından üretilen silika aerojel tozunun 100.000X ve 300.000X büyütmedeki FESEM mikroyapı görüntüsü Şekil 5.15.’de, genel EDS analiz sonuçları da Şekil 5.16.’da görülmektedir.



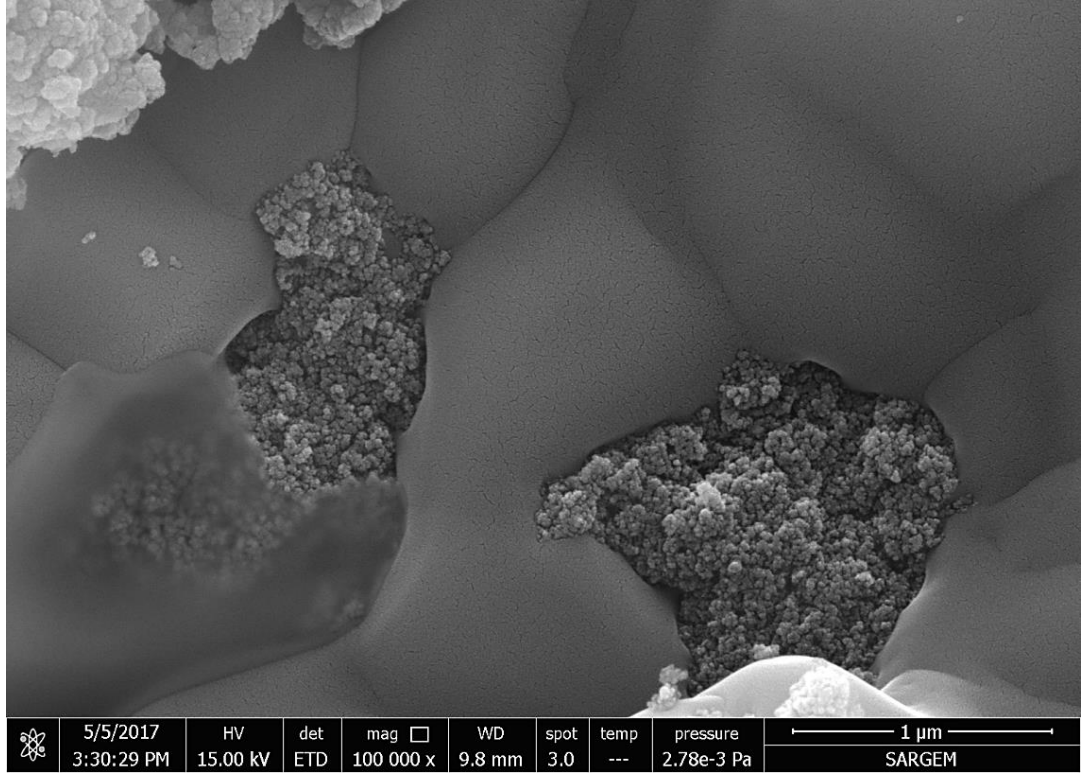


(a)

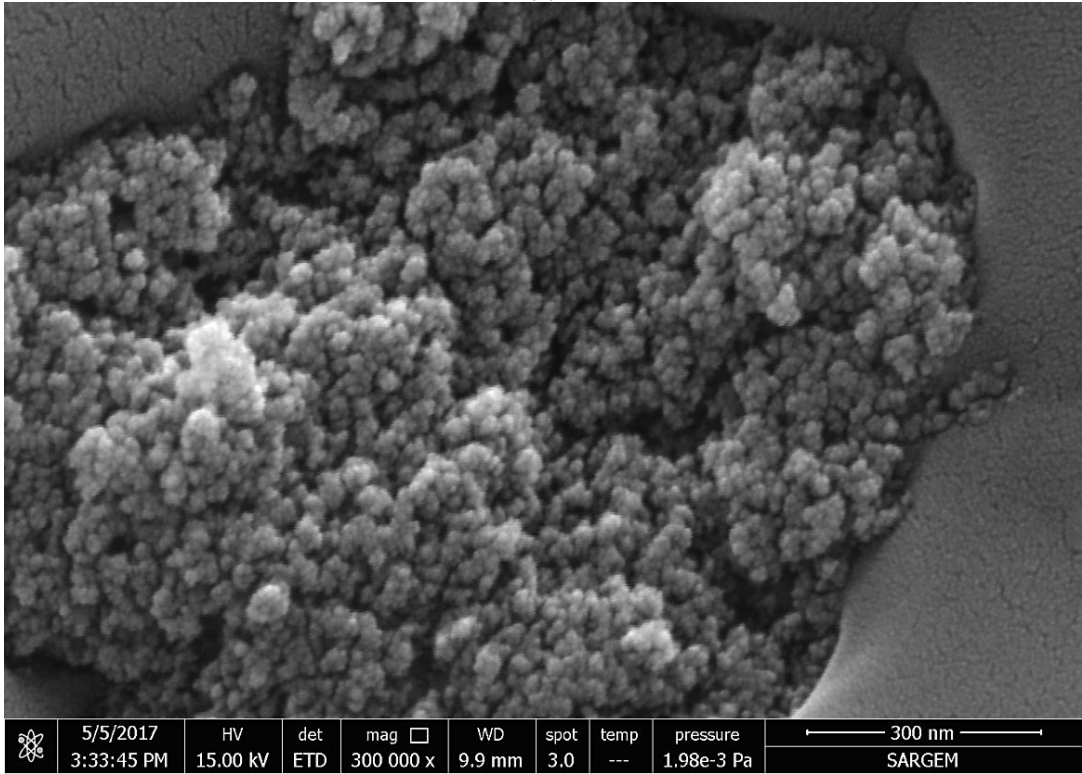


(b)

Şekil 5.14. Soda şişesi tozlarından üretilen silika aerojel tozunun (a) 100.000X ve (b) 300.000X büyütmedeki FESEM görüntüleri

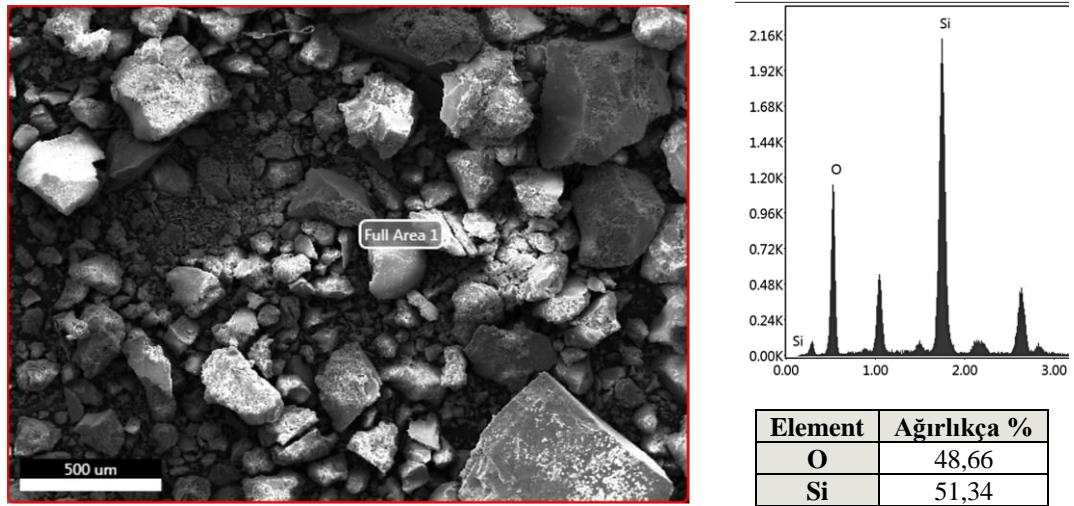


(a)



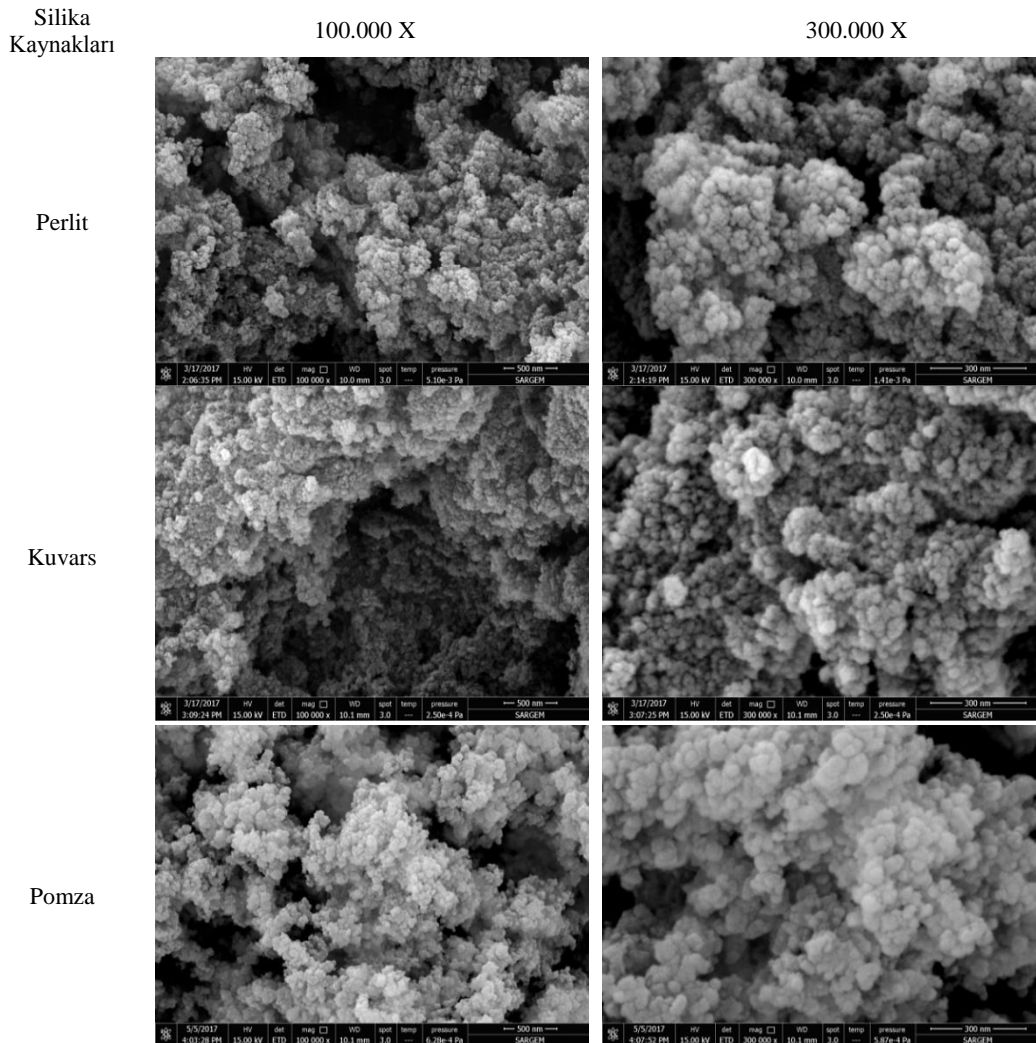
(b)

Şekil 5.15. Borcam tozundan elde edilen silika aerojel tozunun (a) 100.000X, (b) 300.000X büyütmedeki FESEM görüntüleri

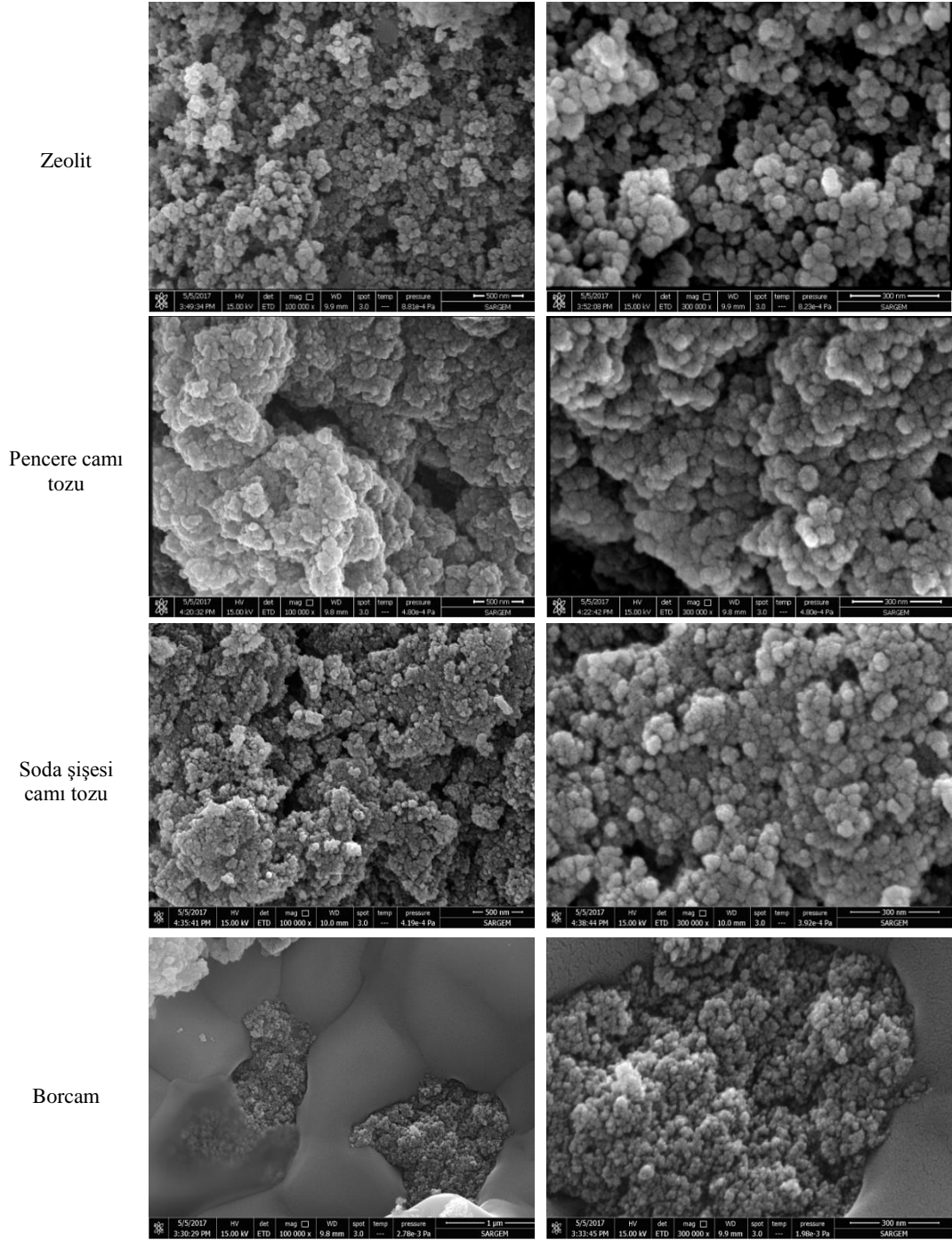


Şekil 5.16. 100.000X büyütmede borcam tozundan üretilen silika aerojel tozunun FESEM-EDS analizleri

### Silika Aerojeller



Şekil 5.17. 100.000X ve 300.000X büyütmede silika aerojel tozlarının FESEM görüntüleri



Şekil 5.17. (Devamı)

Elde edilen silika aerojel tozlarının 100.000X ve 300.000X büyütmedeki FESEM görüntüleri kullanılan silika esaslı başlangıç kaynakları ile birlikte toplu olarak Şekil 5.17.'de özetlenmiştir.



Sol jel yöntemi ile sentezlemiş olduğumuz silika aerogel tozları nano boyutta olduğu için FESEM cihazı ile çok yüksek büyütmelemlerde bile mikroyapı görüntüleri alınmış ve yaptığımız literatür araştırmaları ile karşılaştığımızda verimli ve kabul edilebilir sonuçlar elde edilmiştir.

Kumar ve arkadaşlarının pirinç külü kullanarak sol-jel yöntemi ile sentezlemiş oldukları silika aerogelde yüksek gözenekli mikroyapı gözlemlenmiştir. Nanoboyutta mezogözeneklerin olduğu ve mikropartiküllerin süngerimsi bir yapıya sahip oldukları da anlaşılmaktadır [32]. Ayrıca Shewale ve arkadaşları TMCS ve HMDZ, Gao ve arkadaşları ise DMDC, TMCS ve HMDZ modifikasyon ajanları kullanarak silika aerogel üretmişlerdir. Bu çalışmalarda da silika aerogellerin mikroyapılarının yüksek gözenekliliğe sahip olduğu ve gözenek boyutlarının nano boyutta olduğu saptanmıştır [58,31].

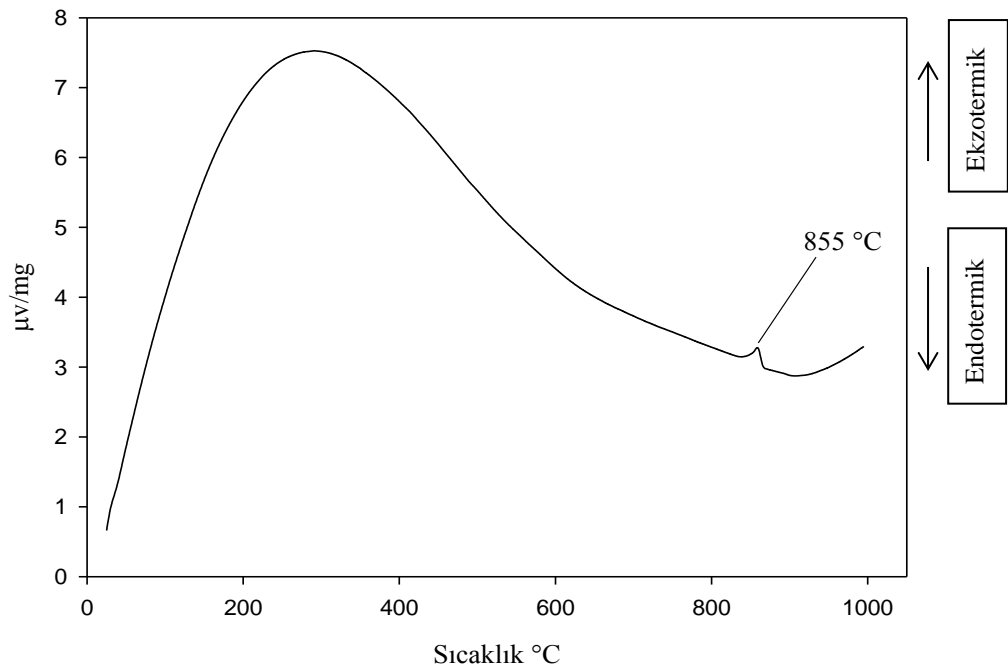
Huang ve arkadaşları silika kaynağı olarak su camı kullanarak sol-jel yöntemi ile silika aerogel üretmişlerdir. Sentezlemiş oldukları aerogellerin SEM mikroyapı görüntülerinden nano boyutta oldukları ve gözenekli bağ yapısına sahip oldukları anlaşılmaktadır [59]. Uçucu asit çamuru külü kullanarak atmosferik basınçta kurutma ile silika aerogel üreten Cheng ve arkadaşları ise yüzey modifiye edici kimyasal olarak TMCS ajanı ile yaşlandırma işlemini gerçekleştirmişlerdir. Modifiye edilmiş silika aerogeller önemli gözenekli ağ yapısı sergilemişlerdir. Bu durum, modifiye edilmiş silika hidrojelin yüzeyinin  $\text{Si-O-Si}(\text{CH}_3)_3$  ile kaplanmasından kaynaklanmaktadır. Yüzey modifikasyonu gözenekli bir aerogel sağlamak için önemli bir parametredir [60].

### 5.1.2. Termal analiz

Termal analiz; analiz edilecek numunenin sıcaklıkla fiziksel özelliklerinde meydana gelen değişimi kapsayan bir tekniktir. Termogravimetri (TG) incelenecek numunenin ağırlık kaybına uğrayıp uğramadığını ve bu kaybın miktarını gösterir. Diferansiyel Termal Analiz (DTA) ve Diferansiyel Taramalı Analiz (DSC) reaksiyonun endotermik mi yoksa ekzotermik mi olduğunu ve

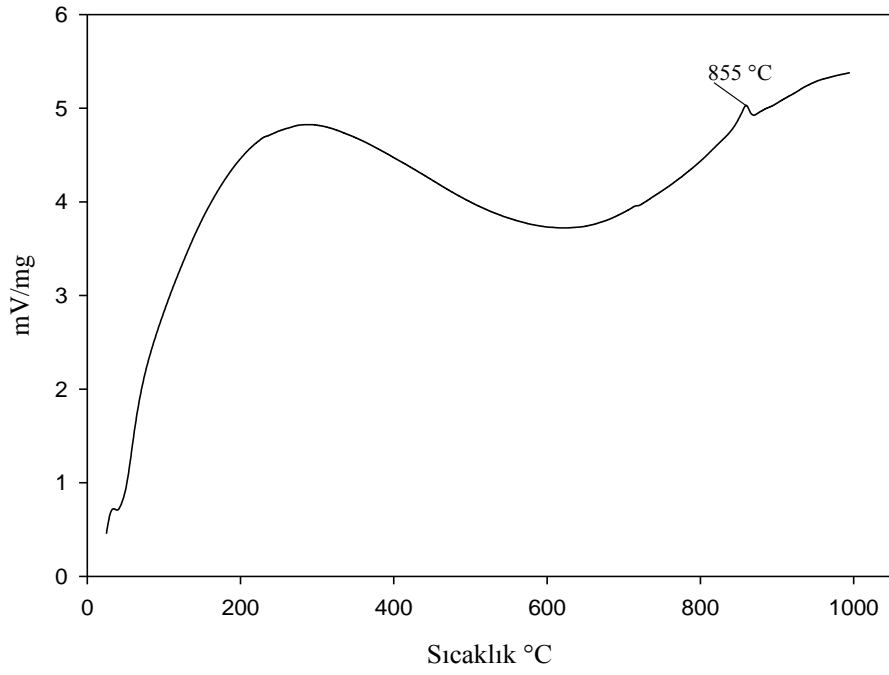
aktarılan ısı miktarının ölçülmesini gösterir. Kullanılan başlangıç silika aerojel hammaddelerinden ve atık malzemelerinden elde edilen silika aerojel tozlarına termogravimetrik cihaz fırını ile 5°C/dak hızla 1000°C'ye kadar doğrusal olarak yükseltilecek şekilde termal analiz yapılmış ve değerler kaydedilmiştir. Sıcaklıkla kütle arasındaki değişim ve DTA analizleri sonucu elde edilen eğriler silika aerojel tozları için yorumlanmıştır.

Perlit ve kuvars tozundan elde edilen silika aerojel tozlarının DTA analiz grafikleri sırası ile Şekil 5.18. ve Şekil 5.19.'da verilmiştir. DTA eğrisinde 855°C'de meydana gelen ekzotermik pikin oksidasyondan kaynaklı olduğu gözlemlenmiştir. Yapıdaki metil (-CH<sub>3</sub>) grubunun oksidasyonu ile ekzotermik pik oluşmuştur.

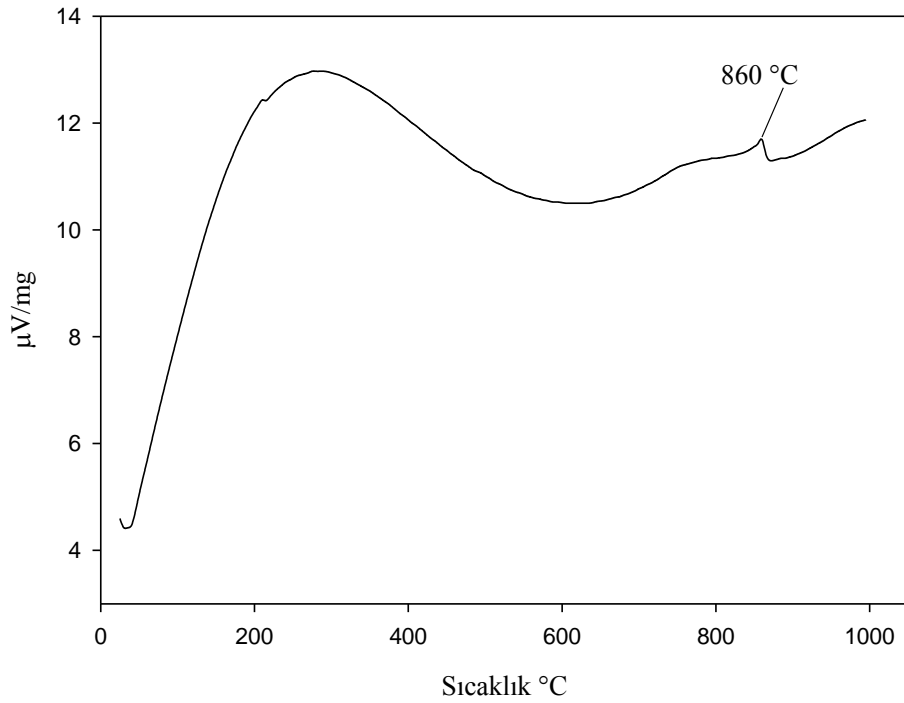


Şekil 5.18. Perlit tozundan elde edilen silika aerojel tozunun DTA grafiği

Pomza tozundan elde edilen silika aerojel tozlarının DTA analiz grafiği Şekil 5.20.'de verilmiştir. Kuvars tozuna benzer olarak, metil gruplarından kaynaklı meydana gelen oksidasyon ile 860°C'de ekzotermik pik oluştuğu belirlenmiştir.



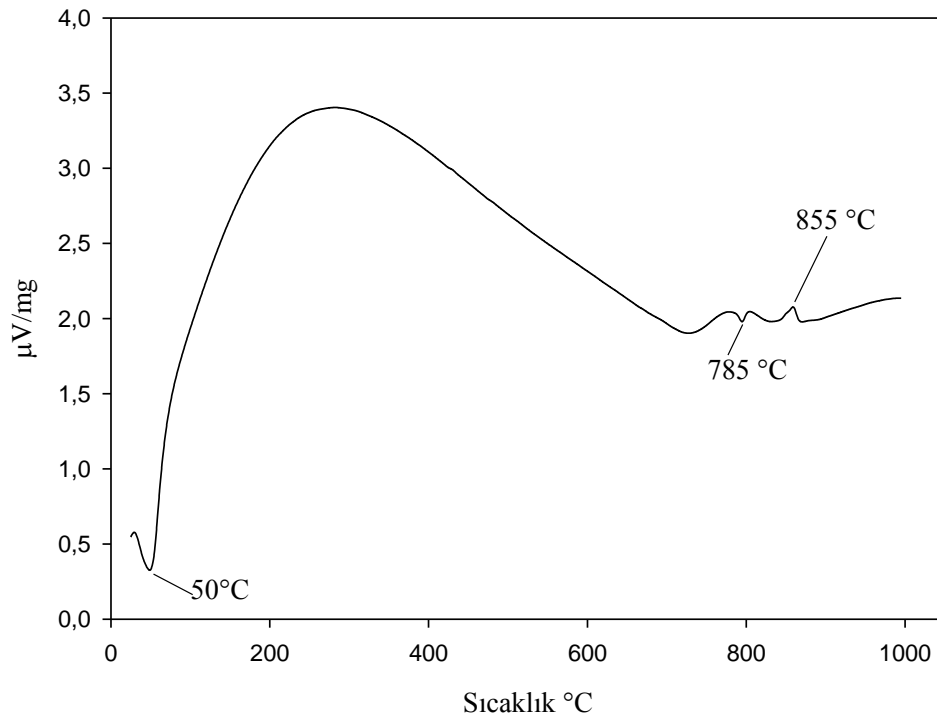
Şekil 5.19. Kuvars tozundan elde edilen silika arojel tozunun DTA grafiği



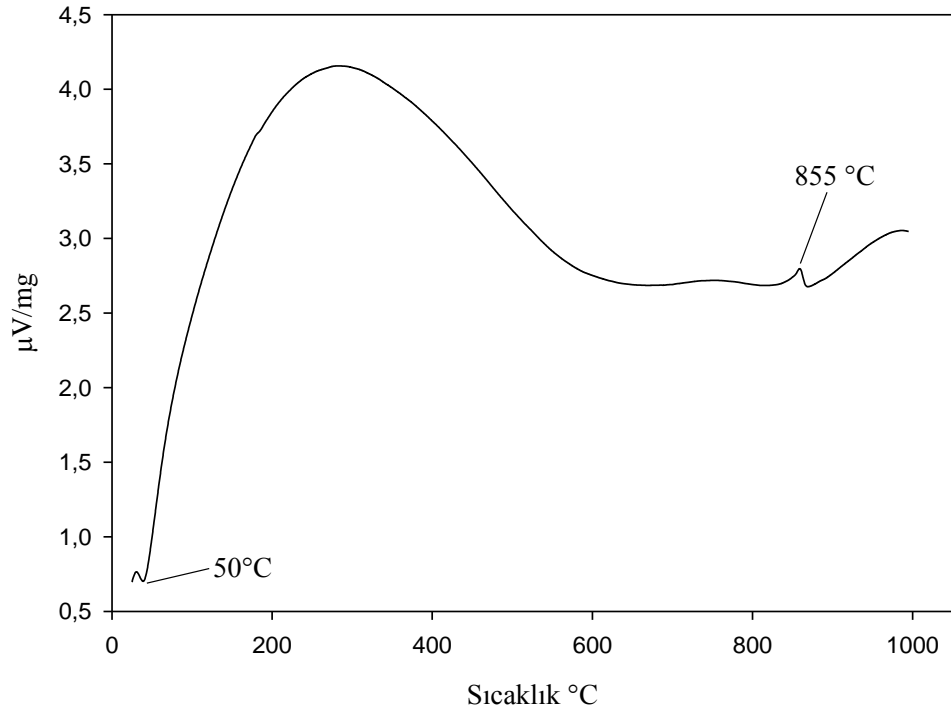
Şekil 5.20. Pomza tozundan elde edilen silika arojel tozunun DTA grafiği

Şekil 5.21.'de verilen zeolit tozuna ait DTA grafiğinde kuvars ve pomza tozundan farklı olarak 50°C ve 785°C'de endotermik piklerin oluştuğu gözlemlenmiştir. Bu piklere arojel üretimi esnasında meydana gelen dehidratasyon ve dekompozisyon tepkimelerinin sebebiyet verdiği görülmektedir. 855°C'de yine oksidasyondan kaynaklı ekzotermik pik belirlenmiştir. Şekil 5.22. ve 5.23.'de sırası ile atık pencere camı tozu ve soda şişesi tozu DTA eğrileri görülmektedir. Her ikisinde de 50°C'de endotermik, 855°C'de ekzotermik pikler meydana gelmiştir.

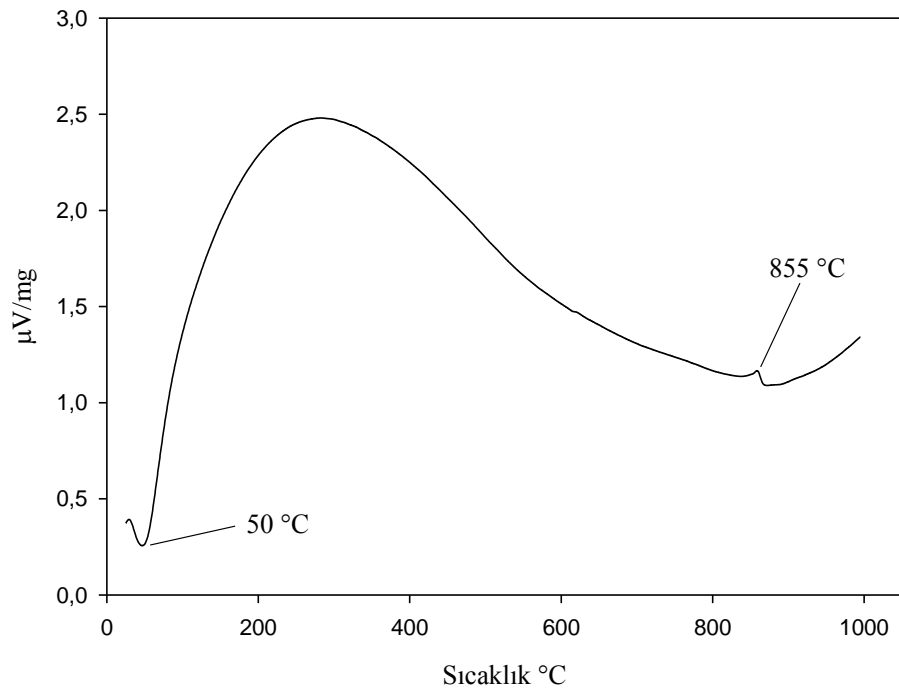
Şekil 5.24.'de borcam tozundan elde edilen arojel tozuna ait DTA grafiği verilmiştir. Borcam tozuna ait grafikten de anlaşılacağı gibi 45°C ve 800°C'de dekompozisyon kaynaklı endotermik pikler meydana gelirken, 850°C'de ekzotermik pik meydana gelmiştir.



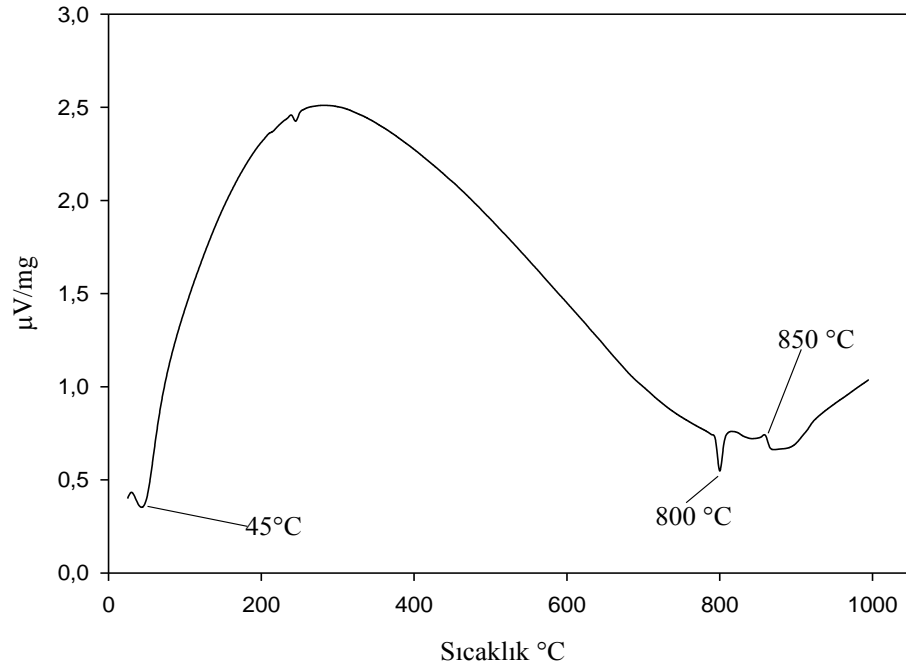
Şekil 5.21. Zeolit tozundan elde edilen silika arojel tozunun DTA grafiği



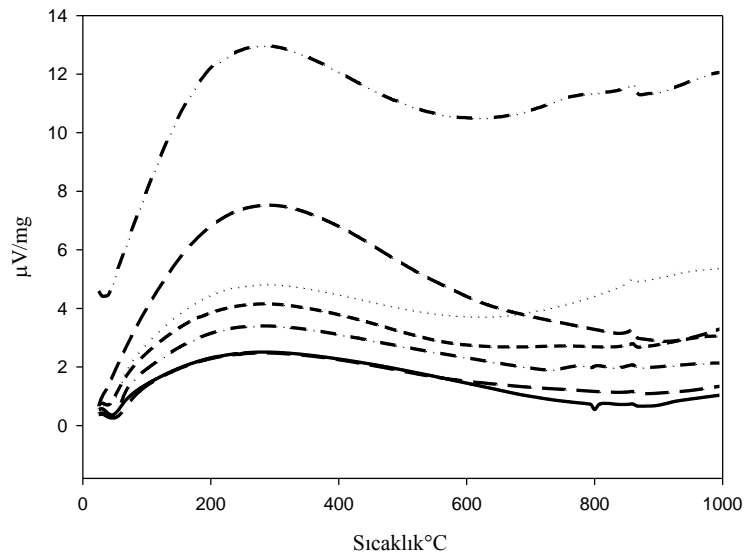
Şekil 5.22. Pencere camı tozundan elde edilen silika arojel tozunun DTA grafiği



Şekil 5.23. Soda şişesi tozundan elde edilen silika arojel tozunun DTA grafiği

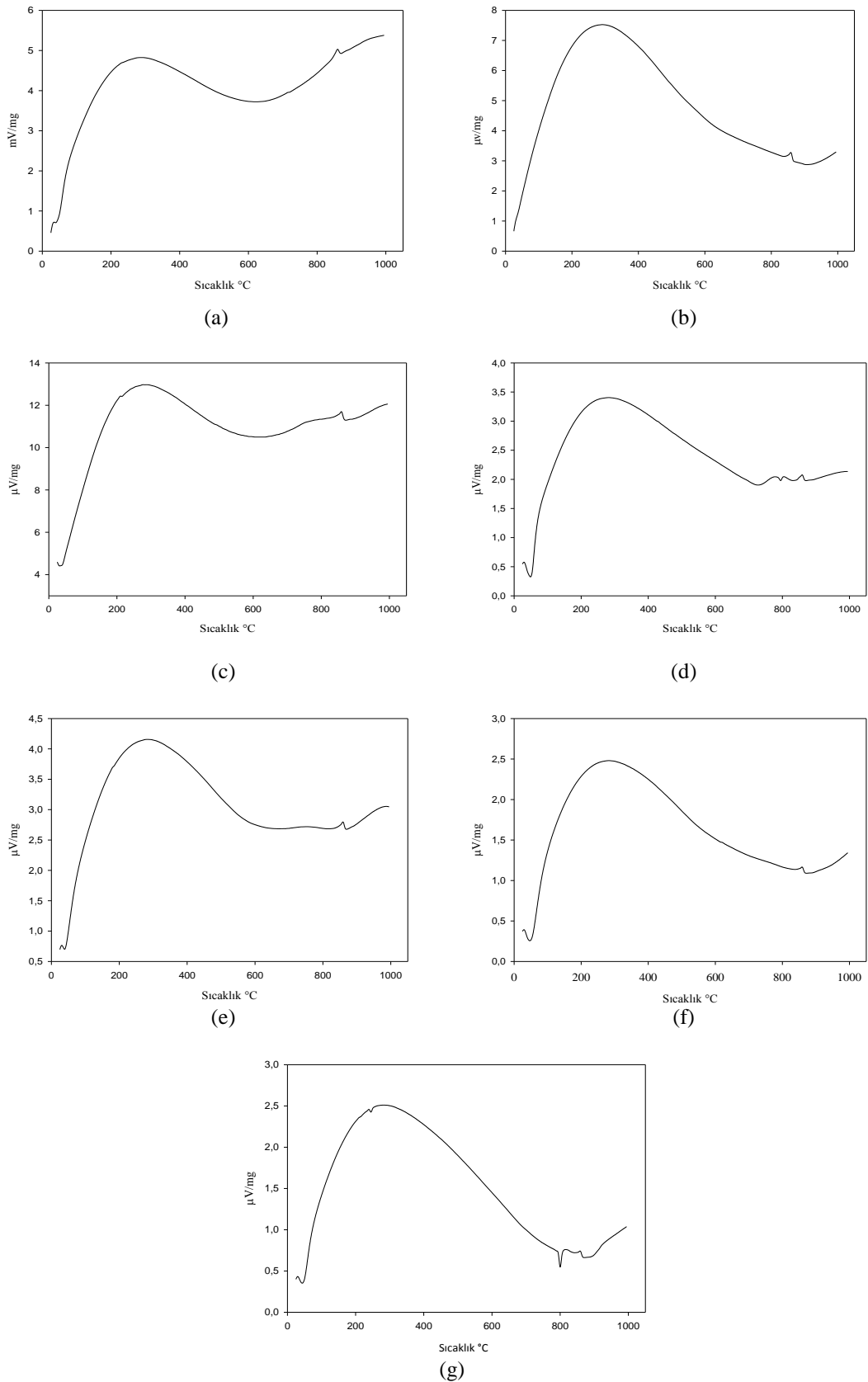


Şekil 5.24. Borcam tozundan elde edilen silika arojel tozunun DTA grafiği



—	Borcam
.....	Kuvars
- - - -	Pencere camı
- · - ·	Pomza
- - - -	Soda şişesi
- · - ·	Zeolit
- · - ·	Perlit

Şekil 5.25. Silika arojel tozlarının DTA grafikleri

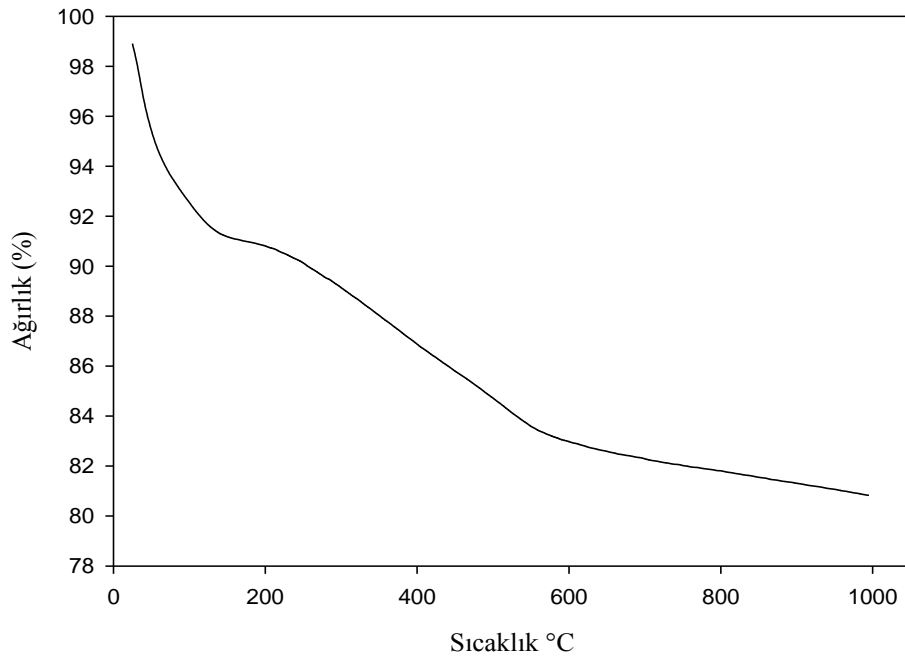


Şekil 5.26. (a) Kuvars, (b) Perlit, (c) Pomza, (d) Zeolit, (e) Pencere camı, (f) Soda şişesi, (g) Borcam tozlarından elde edilen silika aerojel tozlarının DTA grafikleri

Başlangıç silika arojel hammaddelerinden ve atık malzemelerinden elde edilen silika arojel tozlarına 5°C/dak hızla doğrusal olarak yükseltilecek şekilde 1000°C'ye kadar çıkılarak termal analiz yapılmış ve sıcaklıkla kütle arasındaki değişim gözlemlenmiştir.

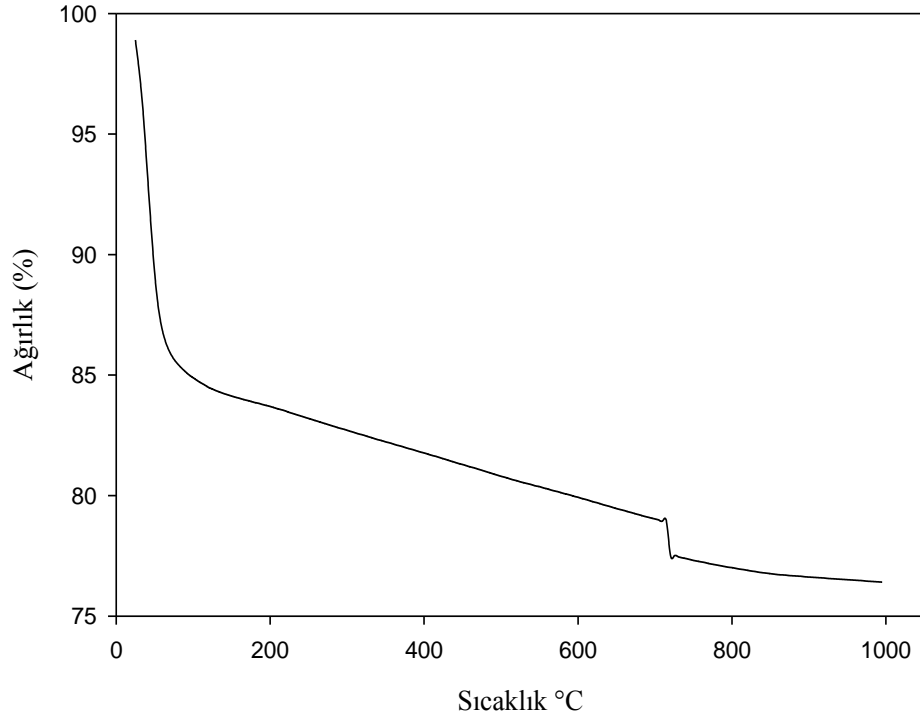
Perlit tozundan elde edilen silika arojel tozlarının TG analiz grafiği Şekil 5.27.'de verilmiştir. 50-100°C sıcaklık aralığında, yüzeye adsorbe edilen su moleküllerinin açığa çıkmasından kaynaklı ağırlık kaybı olduğu görülmektedir. Büyük ölçüde meydana gelen ağırlık kaybı ise 250-850°C aralığında metil gruplarının termal dekompozisyonundan dolayı oluşmaktadır.

Şekil 5.28.'de ise kuvars tozundan elde edilen silika arojel tozlarının TG analiz grafiği verilmiştir. 40-100°C sıcaklık aralığında su moleküllerinin evaporasyonu ile arojelde ağırlık kaybı gözlemlenmiştir. Perlit tozundan elde edilen arojele göre daha fazla ağırlık kaybı olduğu grafiklerden görülmektedir. 600-800°C aralığında ise metil gruplarının dekompozisyonundan ve arojelin dehidrasyonu ve polikondenzasyonundan kaynaklı ağırlık kaybı meydana gelmiştir.

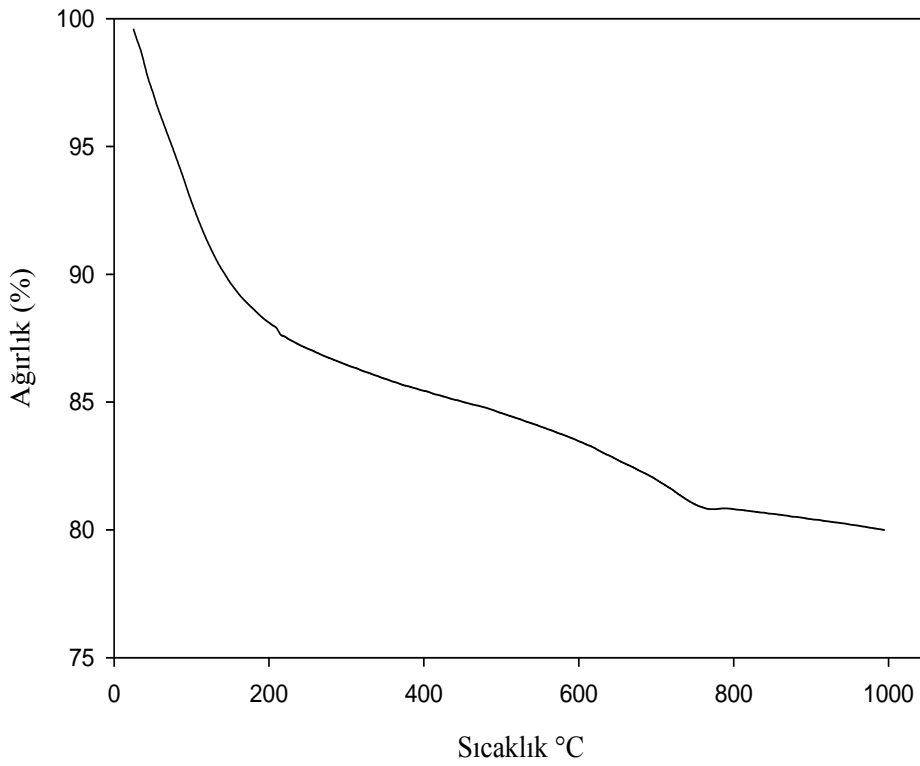


Şekil 5.27. Perlit tozundan elde edilen silika arojel tozunun TG grafiği





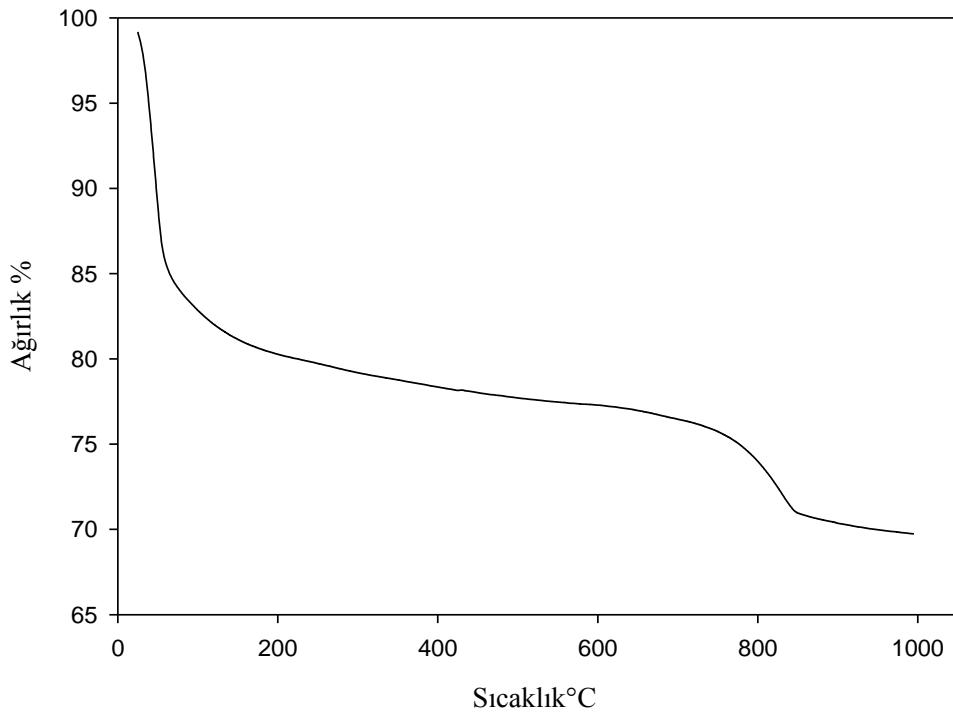
Şekil 5.28. Kuvars tozundan elde edilen silika arojel tozunun TG grafiği



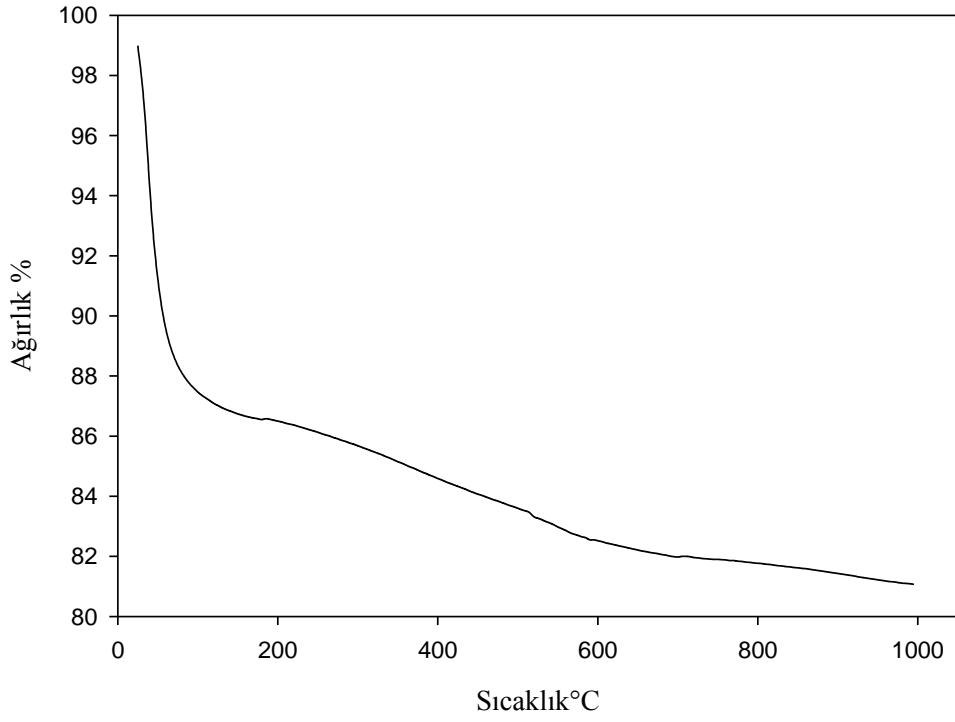
Şekil 5.29. Pomza tozundan elde edilen silika arojel tozunun TG grafiği

Şekil 5.29. ve Şekil 5.30.'da sırası ile pomza ve zeolit tozlarından elde edilen silika aerojel tozlarının TG analiz grafikleri verilmiştir. 40-150°C sıcaklık aralığında yüzeyde bulunan su kalıntılarının uzaklaştırılması ile arojelde ağırlık kaybı gözlemlenmiştir. Bu sıcaklık aralığında zeolitteki ağırlık kaybı pomzaya göre daha fazladır. 650-850°C aralığında meydana gelen ağırlık kaybında ise yine zeolit tozundan elde edilen arojelde daha fazla kaybın yaşandığı grafikten görülmektedir.

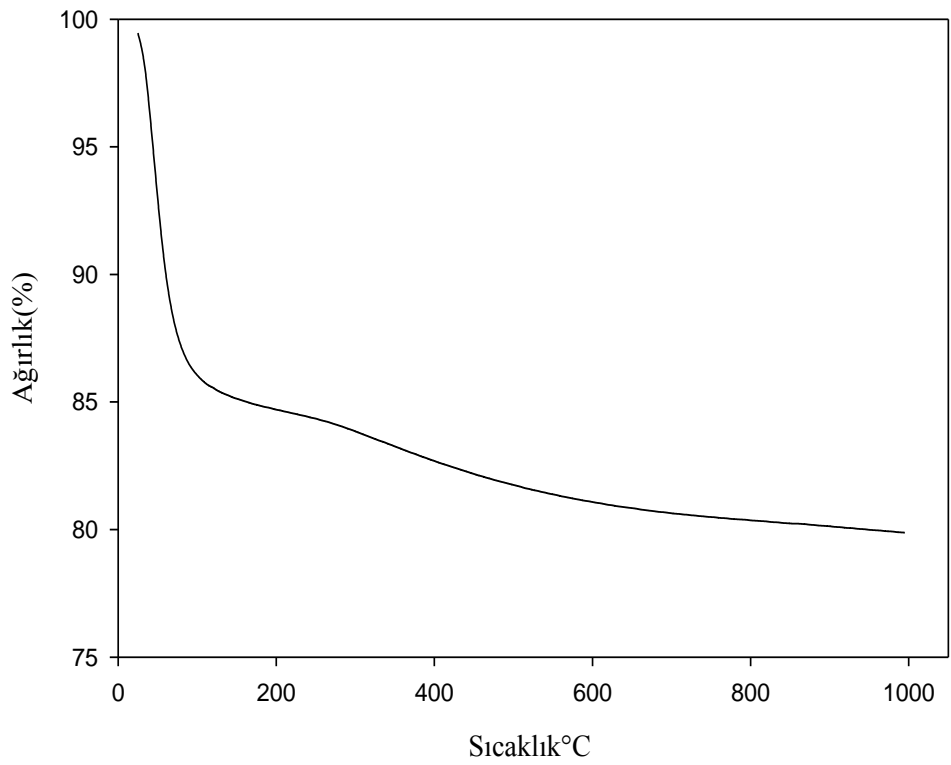
Pencere camı tozu ve soda şişesi camı tozu için ise sırası ile Şekil 5.3. ve Şekil 5.32.'de TG analiz grafikleri görülmektedir. Her iki grafikten de anlaşılacağı üzere benzer termal analiz değerleri mevcuttur. 50°C ve 850°C sıcaklık dolaylarında her iki numunede de ağırlık kaybı yaşanmaktadır.



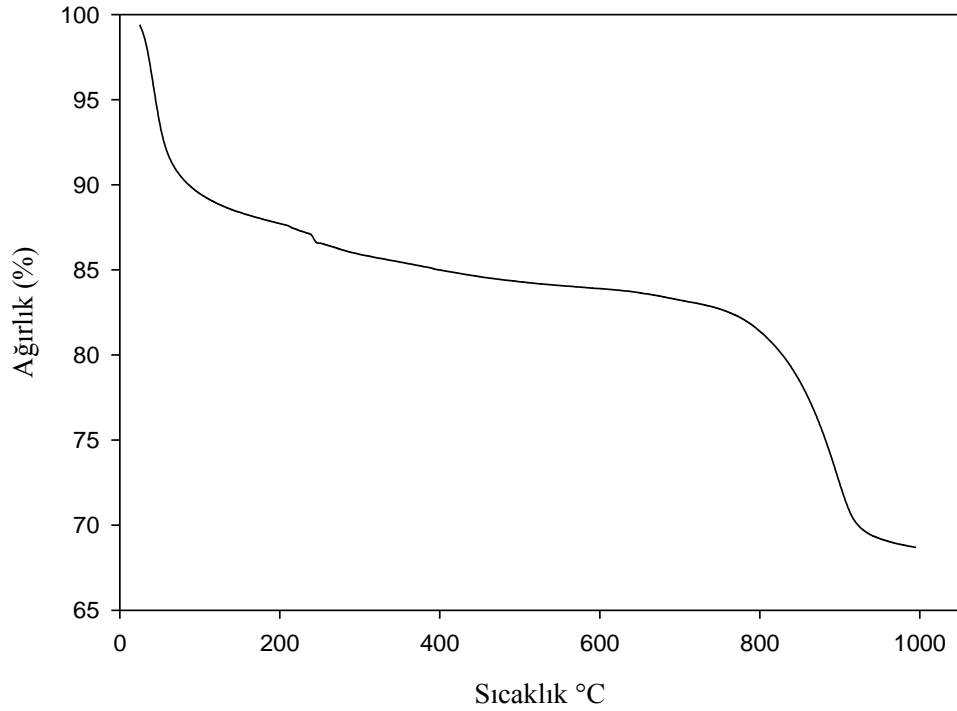
Şekil 5.30. Zeolit tozundan elde edilen silika aerojel tozunun TG grafiği



Şekil 5.31. Pencere camı tozundan elde edilen silika arojel tozunun TG grafiği

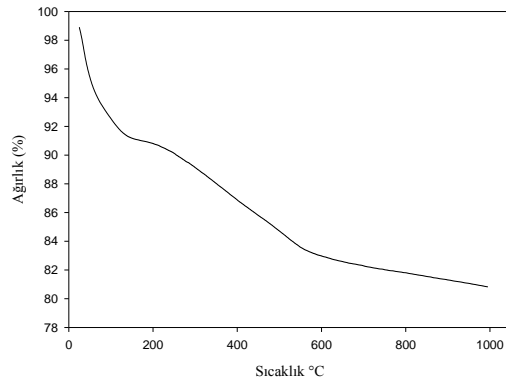


Şekil 5.32. Soda şişesi camı tozundan elde edilen silika arojel tozunun TG grafiği

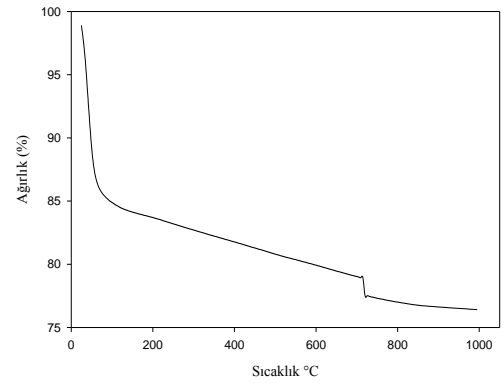


Şekil 5.33..Borcam tozundan elde edilen silika arojel tozunun TG grafiği

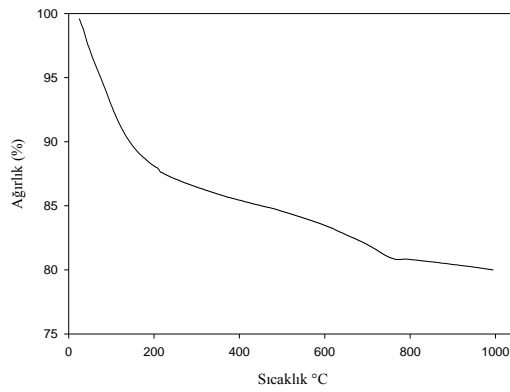
Şekil 5.33.'de borcam tozundan elde edilen silika arojel tozunun TG grafiği verilmektedir. Diğer silika tozlarından elde edilen arojel tozlarının termal analiz sonuçlarına benzer şekilde, borcam tozundan elde edilen arojelde de 50-200°C aralığında su moleküllerinin uzaklaştırılmasından kaynaklanan ağırlık kaybı meydana gelmektedir. 750-950°C sıcaklık aralığında ise %12 değerinde ağırlık kaybı yaşanmıştır. Şekil 5.34.'de sırası ile perlit, kuvars, pomza, zeolit, pencere camı, soda şişesi, borcam tozlarından elde edilen silika arojel tozlarının TG grafikleri bir arada verilmiştir. Analiz sonuçlarından da anlaşılacağı gibi zeolit ve borcam tozlarından elde edilen silika arojellerde, su moleküllerinin uzaklaştırılması ve metil gruplarının termal dekompozisyonundan kaynaklı gerçekleşen ağırlık kaybı diğerlerine göre daha fazladır.



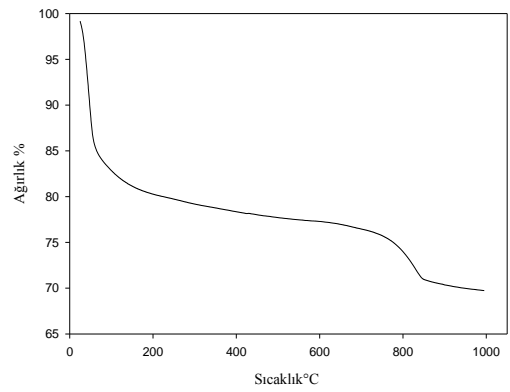
(a)



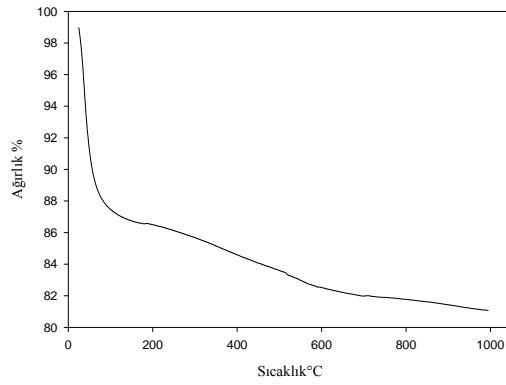
(b)



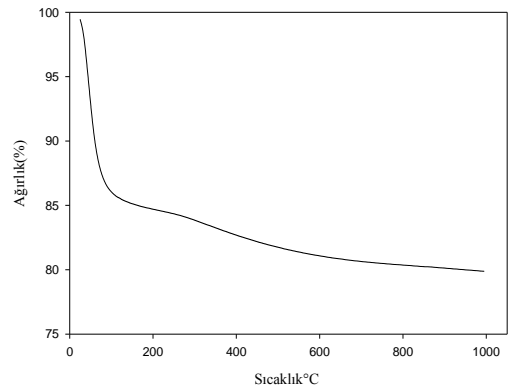
(c)



(d)

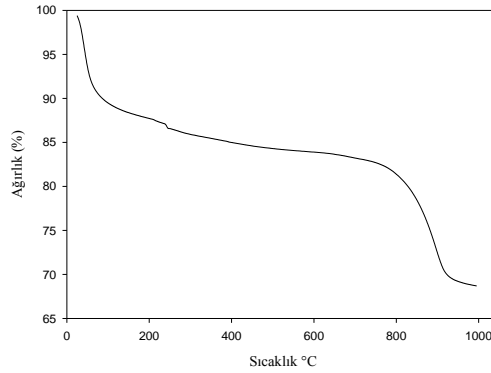


(e)



(f)

Şekil 5.34. (a) Perlit, (b) Kuvars, (c) Pomza, (d) Zeolit, (e) Pencere camı, (f) Soda şişesi, (g) Borcam tozlarından elde edilen silika aerojel tozlarının TG grafikleri



(g)  
Şekil 5.34. (Devamı)

Gao ve arkadaşlarının üretmiş olduğu silika aerojellere yapılan TG-DTA analizlerinde, su moleküllerinin ve kalıntı çözücünün evaporasyonundan kaynaklı 200°C' ye kadar ağırlık kaybı gerçekleşmiştir. DTA eğrisindeki 280°C' deki ekzotermik pik, aerjel tozundaki kalıntı organiklerin oksidasyonuna dayanmaktadır. Belli aralıklarla  $-(CH_3)_3$  gruplarının oksidasyonundan kaynaklı ekzotermik pikler gözlemlenmiştir. Ayrıca 390°C' de meydana gelen ağırlık kaybı  $-CH_3$  gruplarının dekompozisyonundan ileri gelmektedir [10].

DMDC, TMCS ve HMDZ ajanlarını kullanılarak Zou ve arkadaşlarının sentezlemiş olduğu silika aerojellerin TG-DTA eğrilerinde su moleküllerinden kaynaklı 200°C' ye kadar ağırlık kaybı oluşurken, bir diğer yandan 340 ile 400°C aralığında termal dekompozisyon sebebiyle ağırlık kaybı meydana gelmiştir. Sırası ile 270, 400 ve 500°C' de oksidasyondan kaynaklı ekzotermik pikler gözlemlenmiştir [31]. Shewale ve arkadaşlarının üretmiş olduğu silika aerojellerde ise yüzeye adsorbe edilen suyun açığa çıkmasıyla 400°C' ye kadar ağırlık kaybı gerçekleşmiştir. Ayrıca 450°C civarında metil gruplarının termal dekompozisyonu sebebi ile ekzotermik pikler meydana gelmiştir [58].

Silika kaynağı olarak pirinç kabuğu külü kullanarak sol jel yöntemi ile silika aerjel üretilen Nayak ve arkadaşlarının çalışmasında, yapmış oldukları TG-DTA analizleri ile 150°C' de aerjelden kalıntı suyun evaporasyonu ile ağırlık kaybı gözlemlenmiştir. Büyük ölçüdeki ağırlık kaybı 300-700 °C aralığındadır [61].

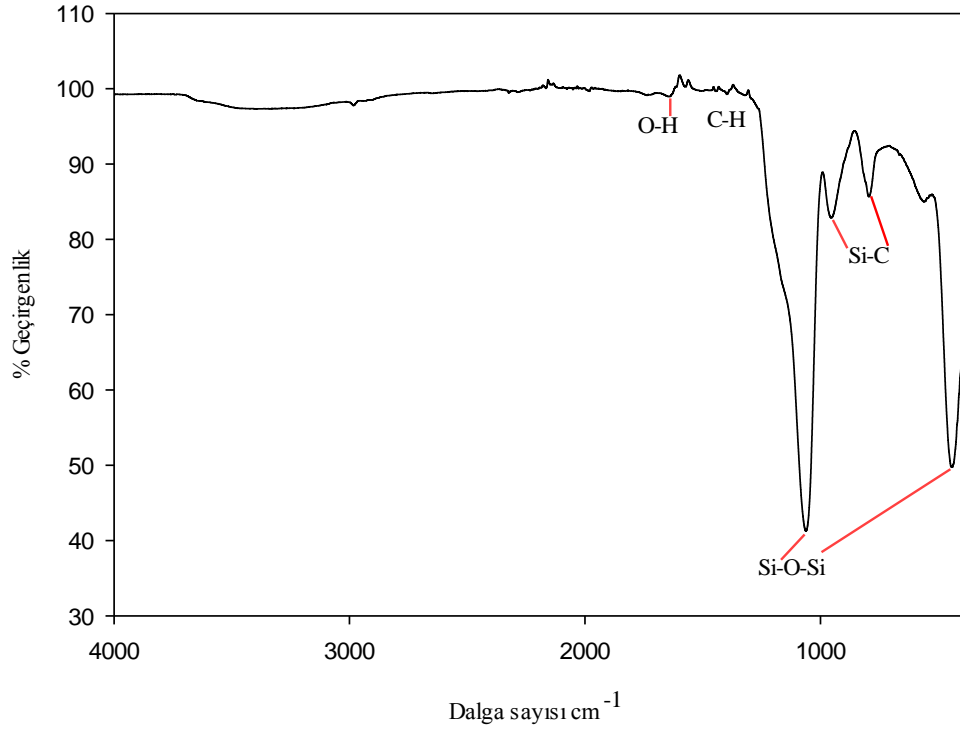
### 5.1.3. FTIR analizi

Elde edilen silika aerojel tozlarına, yapıdaki farklı bağların titreşim frekanslarını ölçerek fonksiyonel gruplar ile ilgili bilgi sahibi olabilmek için FTIR analizi yapılmıştır. IR bölgesi  $4000-400\text{ cm}^{-1}$  dalga boyu aralığında değişmektedir. Spektroskopik potasyum bromür (KBr) yardımı ile belli tonlarda belirlenen basınç baskısında ince şeffaf bir tabaka oluşturularak spektrum alınmış ve analiz edilmiştir. Her bir numunede oluşan pikler için elde edilen dalga boyu sonuçları Tablo 5.2.'de verilmiştir.

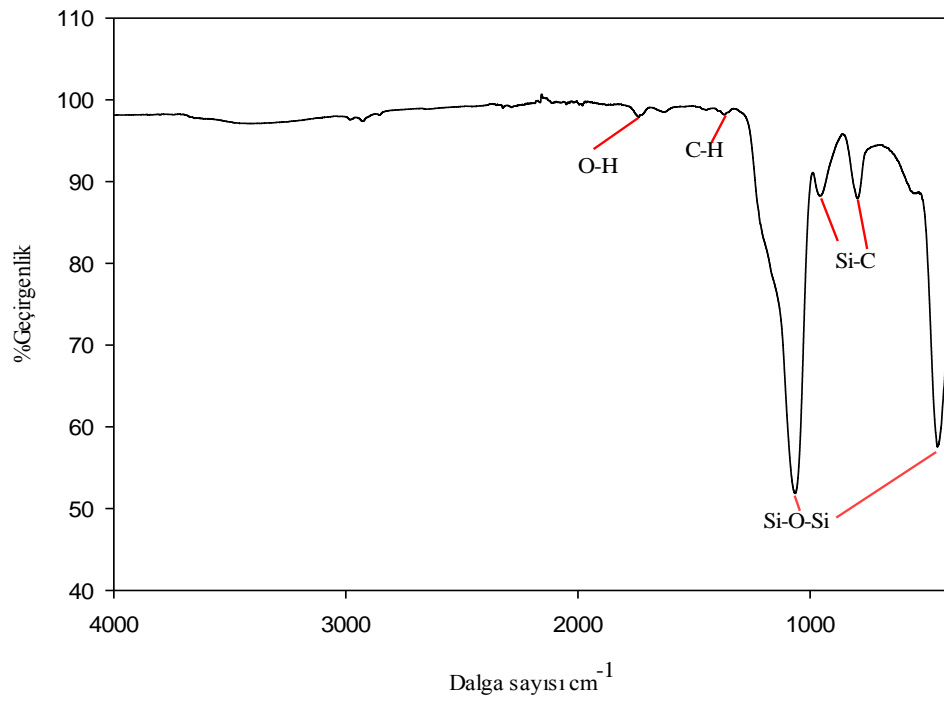
Şekil 5.35.'de perlit tozundan elde edilen silika aerojel tozunun FTIR analizi verilmiştir.  $795$  ve  $955\text{ cm}^{-1}$  değerlerinde titreşimden kaynaklı Si-C pikleri meydana gelmiştir.  $443$  ve  $1061\text{ cm}^{-1}$  dalga boyunda Si-O-Si bağlarının asimetrik ve simetrik bağlanmalarından kaynaklı güçlü ve belirgin bir pik oluşmaktadır. Bu bağlanmalar bağ germe ve bağ bükme titreşiminden kaynaklı gözlemlenmektedir. FTIR analizinde moleküllerin hareketinden kaynaklı Si-O-Si piklerinin meydana gelmesi, TEOS modifiye ajanından silika aerojel yüzeyine  $-\text{Si-CH}_3$  gruplarının geçtiğini kanıtlamakta ve yüzey modifikasyonunun verimli bir şekilde yapıldığını göstermektedir.  $1322$  ve  $1395\text{ cm}^{-1}$  değerlerinde ise adsorpsiyondan kaynaklı C-H pikleri oluşurken,  $1641\text{ cm}^{-1}$  de fiziksel olarak adsorbe edilmiş sudan kaynaklanan O-H adsorpsiyon bağları meydana gelmiştir. -OH bağları suyun yüzeye tutunması ve gözeneklerin suyu çekmesinden kaynaklanmaktadır. FTIR analiz grafiklerinde piklerin şiddetinin artması yapılan bağın ne kadar kuvvetli olduğunu göstermektedir.

Tablo 5.2. Silika aerojel tozlarına ait FTIR dalga boyu değerleri

Pikler	S1	S2	S3	S4	S5	S6	S7
<b>Si-O-Si Asimetrik Pik</b>	1061	1070	1024	1078	1068	1067	1075
<b>Si-O-Si Simetrik Pik</b>	443	454	435	457	451	451	455
<b>Si-C Pik</b>	795-955	799-960	785	796	800-965	800-958	800
<b>C-H Pik</b>	1322-1395	1375-1455	1340	1340	-	1365	-
<b>-OH Adsorpsiyon Piki</b>	1641	1740	1740	1745	1635	1635-1740	1635

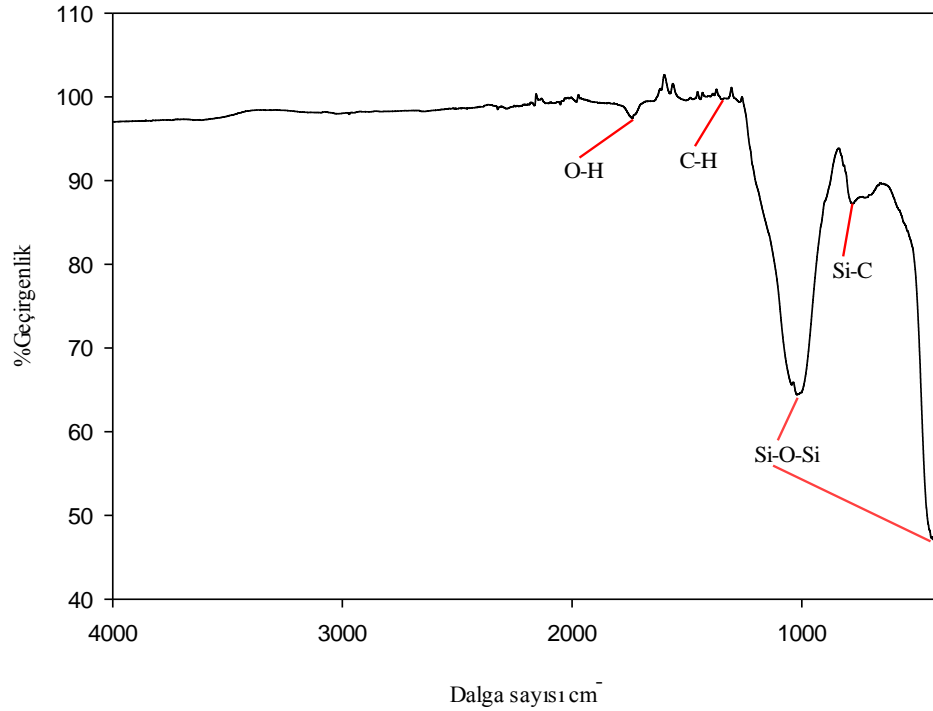


Şekil 5.35. Perlit tozundan elde edilen silika aerogelin FTIR analizi



Şekil 5.36. Kuvars tozundan elde edilen silika aerogelin FTIR analizi





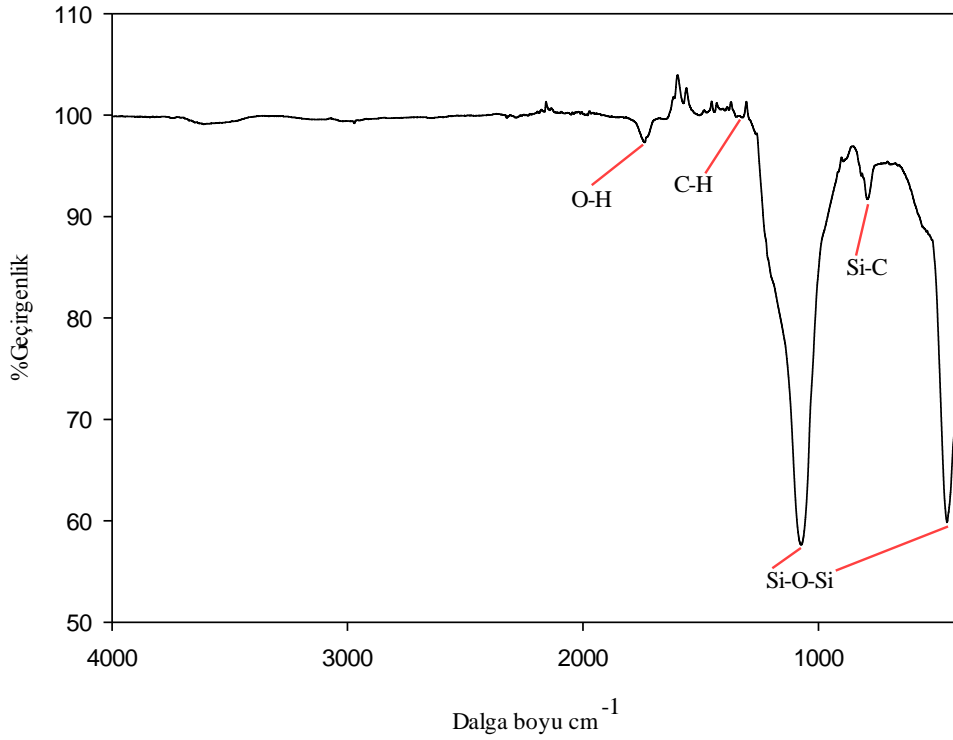
Şekil 5.37. Pomza tozundan elde edilen silika aerogelin FTIR analizi

Şekil 5.36. ve Şekil 5.37.'de sırası ile kuvars ve pomza tozundan elde edilen silika aerogellerin FTIR analizi verilmektedir. Kuvars tozundan elde edilen aerogelde 799 ve 960  $\text{cm}^{-1}$  dalga boyu değerlerinde Si-C bağ pikleri, 454 ve 1070  $\text{cm}^{-1}$ 'de Si-O-Si güçlü ve belirgin bağ piki, 1375 ve 1455  $\text{cm}^{-1}$  dalga boyunda C-H bağı ve son olarak 1740  $\text{cm}^{-1}$  değerinde O-H bağ piki meydana gelmiştir. Pomza tozundan elde edilen silika aerogelde ise 785  $\text{cm}^{-1}$  dalga boyunda Si-C bağı oluşurken 435 ve 1024  $\text{cm}^{-1}$  dalga boyunda Si-O-Si bağı meydana gelmiştir. 1340  $\text{cm}^{-1}$  dalga boyu değerinde C-H bağı ile 1740  $\text{cm}^{-1}$  değerinde O-H bağı görülmektedir.

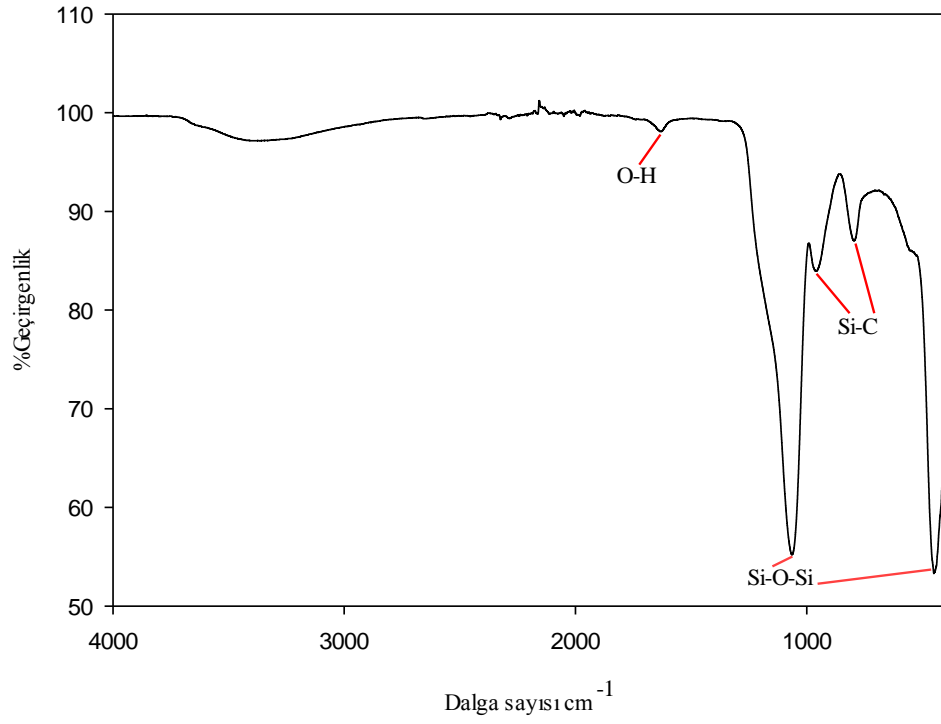
Zeolit tozundan elde edilen silika aerogelin FTIR analiz grafiği ise Şekil 5.38.'de görülmektedir. Si-C bağı 796  $\text{cm}^{-1}$ ; Si-O-Si bağı 457 ve 1078  $\text{cm}^{-1}$ ; C-H bağı 1340  $\text{cm}^{-1}$  ve O-H bağı 1745  $\text{cm}^{-1}$  dalga boyu değerlerinde pik vermektedir.

Pencere camı tozundan elde edilen silika aerogel FTIR analizi Şekil 5.39.'da verilirken soda şişesi tozundan üretilen silika aerogel FTIR analizi Şekil 5.40.'da verilmektedir. Pencere camı tozundan elde edilen aerogelde 800  $\text{cm}^{-1}$  ve 965  $\text{cm}^{-1}$

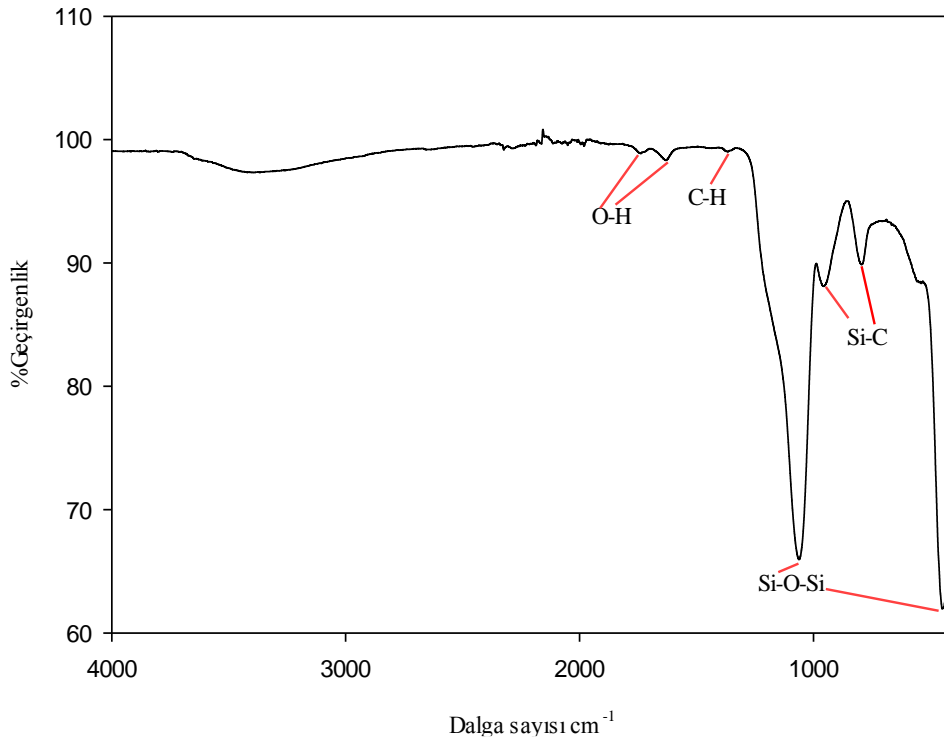
dalga boyunda Si-C bağı, 451 ve 1068  $\text{cm}^{-1}$  değerinde Si-O-Si bağı, 1635  $\text{cm}^{-1}$  dalga boyunda ise O-H bağı pikleri görülmektedir. Soda şişesi tozundan üretilen silika aerjelde ise 800  $\text{cm}^{-1}$  ve 958  $\text{cm}^{-1}$  dalga boyunda Si-C bağı, 451 ve 1067  $\text{cm}^{-1}$  değerinde Si-O-Si bağı, 1365  $\text{cm}^{-1}$  dalga boyu değerinde C-H bağı, 1635  $\text{cm}^{-1}$  ve 1740  $\text{cm}^{-1}$  dalga boyunda ise O-H bağı pikleri meydana gelmiştir. Şekil 5.41.'de ise borcam tozundan elde edilen silika aerjelin FTIR analiz grafiği verilmiştir. 800  $\text{cm}^{-1}$  değerinde titreşimden kaynaklı Si-C piki meydana gelirken, 455 ve 1075  $\text{cm}^{-1}$  dalga boyunda Si-O-Si bağlarının asimetrik ve simetrik bağlanması sebebi ile şiddetli bir pik oluşmaktadır. Ve son olarak 1635  $\text{cm}^{-1}$ 'de O-H adsorpsiyon bağları meydana gelmiştir.



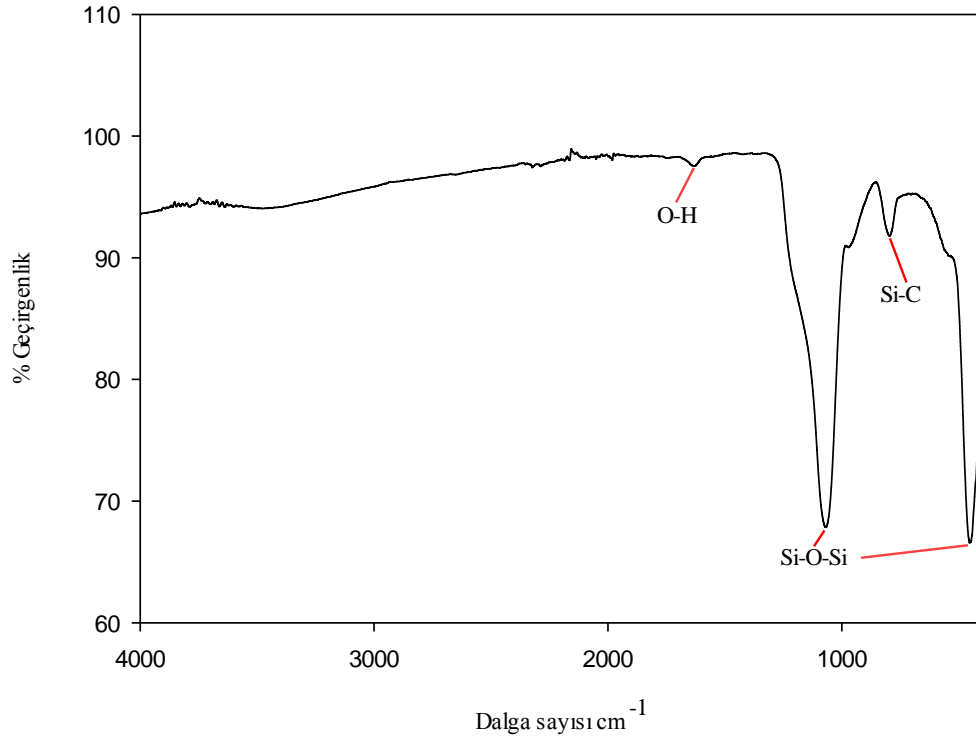
Şekil 5.38. Zeolit tozundan elde edilen silika aerjelin FTIR analizi



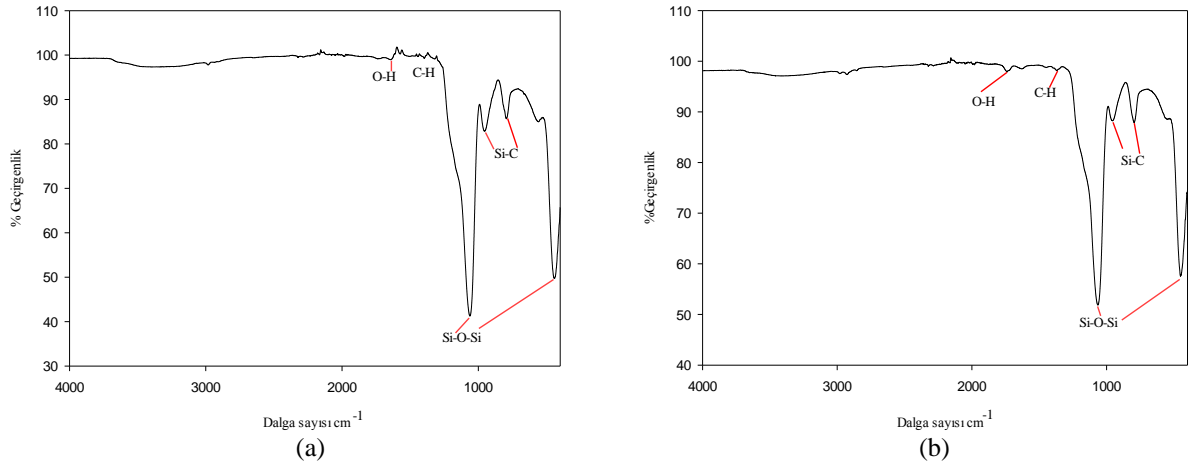
Şekil 5.39. Pencere camı tozundan elde edilen silika aerojelin FTIR analizi



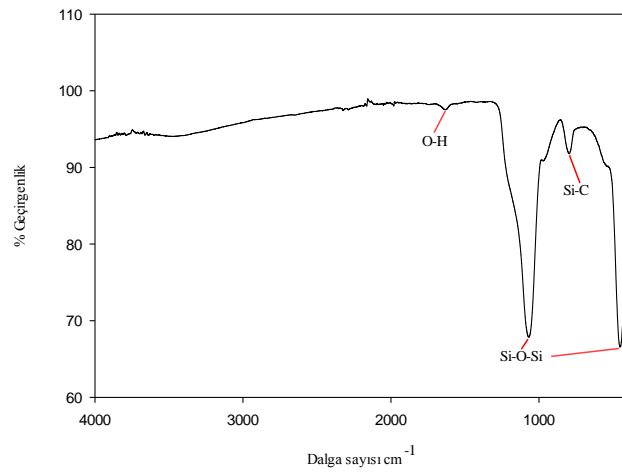
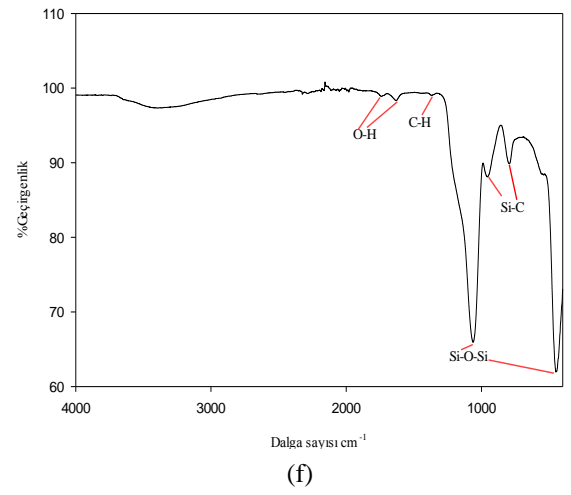
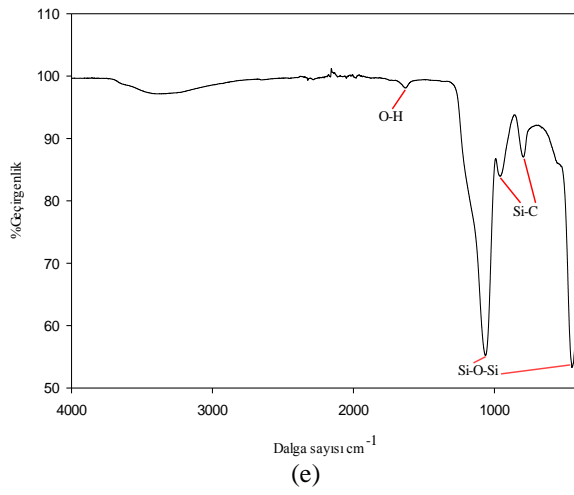
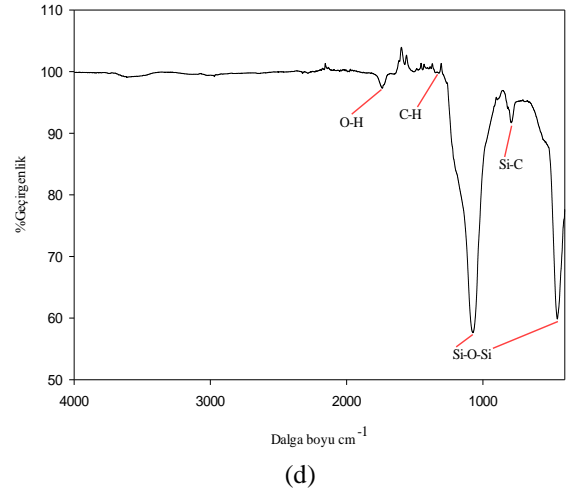
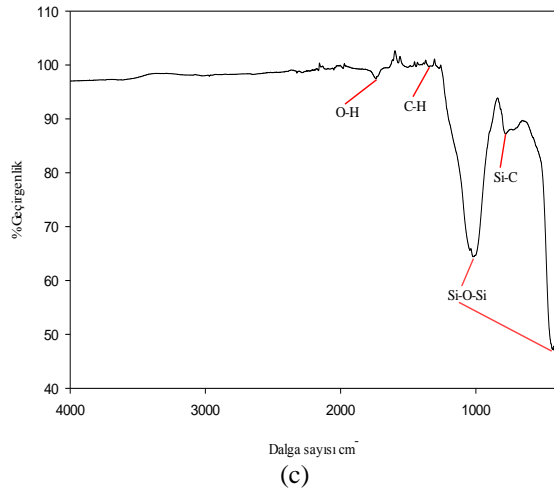
Şekil 5.40. Soda şişesi tozundan elde edilen silika aerojelin FTIR analizi



Şekil 5.41. Borcam tozundan elde edilen silika arojelın FTIR analizi



Şekil 5.42. (a) Perlit, (b) Kuvars, (c) Pomza, (d) Zeolit, (e) Pencere camı, (f) Soda şişesi, (g) Borcam tozlarından elde edilen silika arojel tozlarının FTIR analiz grafikleri



(g)  
Şekil 5.42. (Devamı)

Gao ve arkadaşları petrol külü kullanarak silika esaslı aerojel üretiminde yaşlandırma ajanı olarak HMDZ, TMCS ve DMDC kimyasallarını kullanmışlardır. FTIR analizinde yüzey modifiye edici ajanlardaki alkali grupların sayısı arttıkça –OH gruplarının pik şiddeti 3500 ve 1600  $\text{cm}^{-1}$  dalga boyu sayısına azalmıştır. Bu çalışmada, ~1100  $\text{cm}^{-1}$ 'de Si-O-Si bağı görülürken, ~1600  $\text{cm}^{-1}$ 'de –OH bağı, ~840  $\text{cm}^{-1}$ 'de Si-C ve ~1450  $\text{cm}^{-1}$ 'de C-H bağları saptanmıştır. Gao ve arkadaşlarının FTIR analiz sonuçları ile mevcut çalışmada tespit edilen verilerin birbirine çok yakın olduğu görülmüştür [31].

Shewale ve arkadaşları ise TMCS ve HMDZ sililasyon ajanlarını kullanarak sodyum silikattan atmosferik basınçta silika aerojel sentezlemişlerdir. FTIR analiz sonuçlarına göre, ~1400 ve ~2950  $\text{cm}^{-1}$ 'de C-H bağlarından kaynaklı adsorpsiyon pikleri oluşmuştur. ~850  $\text{cm}^{-1}$ 'de Si-C bağ piki, ~1600  $\text{cm}^{-1}$ 'de keskin -OH piki meydana gelmiştir. ~800 ve ~1100  $\text{cm}^{-1}$ 'de güçlü asimetrik ve simetrik eğme bağları gözlemlenmiştir [58].

Silika aerojel üreten Setyawan ve arkadaşları, başlangıç silika kaynağı olarak küspe külü, modifikasyon ajanı olarak ise TMCS ve HMDS kimyasallarını kullanmışlardır. Elde etmiş oldukları silika aeroje uygulanan FTIR analizi sonuçlarında ~466 ve ~1091  $\text{cm}^{-1}$ 'de Si-O-Si bağları, ~848  $\text{cm}^{-1}$ 'de Si-C bağı, ~1257 ve ~2962  $\text{cm}^{-1}$ 'de C-H bağlarını ve son olarak ~1650  $\text{cm}^{-1}$ 'de –OH bağı gözlemlenmiştir [33].

Wang ve arkadaşları PEDS başlangıç maddesini kullanarak atmosferik basınçta kurutma ile silika aerojel sentezlemişlerdir. FTIR spektrumları ile silika aerogelin kimyasal bağ yapısını analiz etmişlerdir. ~840 ve 1360  $\text{cm}^{-1}$ 'de Si-C bağları, ~1100  $\text{cm}^{-1}$ 'de Si-O-Si bağı ve ~3450  $\text{cm}^{-1}$ 'de adsorpsiyondan kaynaklı –OH bağı meydana gelmiştir [37].

Rao ve arkadaşları silika kaynağı olarak sodyum silikat ve modifikasyon ajanı olarak HMDSO + HMDZ, TMCS + HMDSO, TMCS + HMDZ kimyasallarını kullanarak hidrofobik silika aerojel üretmişlerdir. FTIR analizi sonucunda, ~1100

$\text{cm}^{-1}$ 'de Si-O-Si bağı,  $\sim 1600$  ve  $\sim 3500$   $\text{cm}^{-1}$ 'de –OH bağları meydana gelirken,  $\sim 840$  ve  $\sim 1260$   $\text{cm}^{-1}$ 'de Si-C bağları ve  $\sim 1450$  ve  $\sim 2980$   $\text{cm}^{-1}$ 'de C-H bağları oluşmuştur [19].

Huang ve arkadaşları, başlangıç silika malzemesi olarak su camı ve modifikasyon ajanı olarak TMCS kimyasalı kullanarak atmosferik basınçta silika aerojel üretmişlerdir. Si-O-Si adsorpsiyon pikleri  $\sim 470$  ve  $1060$   $\text{cm}^{-1}$ 'de oluşurken,  $\sim 850$  ve  $\sim 1260$   $\text{cm}^{-1}$ 'de modifiye edilmiş silika arojelin güçlü adsorpsiyon pikleri Si-C bağlarından meydana gelmektedir. FTIR spektrumunda ki bu iki adsorpsiyon piklerinin varlıkları, TMCS modifiye ajanından silika aerojel yüzeyine –Si-CH<sub>3</sub> gruplarının geçtiğini kanıtlamaktadır. Bu sonuç da gösteriyor ki, silika arojelin yüzey modifikasyonu başarı ile gerçekleştirilmiştir. Ve son olarak  $\sim 1650$  ve  $\sim 3450$   $\text{cm}^{-1}$ 'de –OH pikleri saptanmıştır. TMCS ile modifiye edildikten sonra –OH piklerinin yoğunluğu ve şiddetinin azaldığı fakat tamamen kaybolmadığı gözlemlenmiştir. Huang ve arkadaşlarının elde etmiş oldukları FTIR analiz sonuçlarının mevcut çalışmamız da saptadığımız sonuçlar ile yakınlık gösterdiği anlaşılmakta olup, sentezlemiş olduğumuz silika aerojel tozlarının yüzey modifikasyonunun verimli bir şekilde gerçekleştiği görülmektedir [59].

Cheng ve arkadaşları, uçucu asit çamuru külü kullanarak atmosferik basınçta kurutma ile silika aerojel üretmişler ve yüzey modifiye edici kimyasal olarak TMCS ajanı ile yaşlandırma işlemini gerçekleştirmişlerdir. FTIR analiz sonuçlarına göre,  $\sim 467$ ,  $\sim 760$  ve  $\sim 1092$   $\text{cm}^{-1}$ 'de Si-O-Si titreşimleri ile adsorpsiyon pikleri oluşurken  $\sim 1628$  ve  $\sim 3450$   $\text{cm}^{-1}$ 'de meydana gelen pikler –OH bağından kaynaklanmaktadır. TMCS ile modifiye edilmiş silika arojelde –OH gruplarının şiddetinin, fiziksel olarak emilen suyun zayıflamasıyla azaldığı saptanmıştır. Ayrıca  $\sim 854$  ve  $\sim 1258$   $\text{cm}^{-1}$ 'de Si-C bağlarının sebep olduğu adsorpsiyon pikleri meydana gelmiştir [60].

Liu ve arkadaşları petrol külünü yakarak sodyum hidroksit çözeltisinde ekstrakte edip silika kaynağı elde etmiş ve soj jel yöntemini ile atmosfer basıncında kurutma yaparak silika aerojel sentezlemişlerdir. Si-O-Si bağlarının asimetrik ve simetrik

titreşimlerinden kaynaklanan  $\sim 463$ ,  $\sim 788$  ve  $\sim 1093$   $\text{cm}^{-1}$  pikleri FTIR analizinde gözlemlenmiştir.  $\sim 1642$  ve  $\sim 3400$   $\text{cm}^{-1}$  geniş pikleri ise  $-\text{OH}$  gruplarından dolayı meydana gelmiştir. Si-C ve C-H bağlarından kaynaklı sırası ile  $\sim 851$ ,  $\sim 1450$   $\text{cm}^{-1}$  pikleri saptanmıştır [10].

Tablo 5.3. Literatür ve üretilen silika aerjel tozlarına ait FTIR analiz sonuçları

Pikler	Si-O-Si Asimetrik Piki	Si-O-Si Simetrik Piki	Si-C Piki	C-H Piki	-OH Adsorpsiyon Piki
Literatür [31]	$\sim 1100$ $\text{cm}^{-1}$	-	$\sim 840$ $\text{cm}^{-1}$	$\sim 1450$ $\text{cm}^{-1}$	$\sim 1600$ $\text{cm}^{-1}$
Literatür [58]	$\sim 1100$ $\text{cm}^{-1}$	$\sim 800$ $\text{cm}^{-1}$	$\sim 850$ $\text{cm}^{-1}$	$\sim 1400$ $\text{cm}^{-1}$ $\sim 2950$ $\text{cm}^{-1}$	$\sim 1600$ $\text{cm}^{-1}$
Literatür [33]	$\sim 1098$ $\text{cm}^{-1}$	$\sim 471$ $\text{cm}^{-1}$	-	-	$1630$ $\text{cm}^{-1}$ $3440$ $\text{cm}^{-1}$
Literatür [37]	$\sim 1091$ $\text{cm}^{-1}$	$\sim 466$ $\text{cm}^{-1}$	$\sim 848$ $\text{cm}^{-1}$	$\sim 1257$ $\text{cm}^{-1}$ $\sim 2962$ $\text{cm}^{-1}$	$\sim 1650$ $\text{cm}^{-1}$
Literatür [19]	$\sim 1100$ $\text{cm}^{-1}$	-	$\sim 840$ $\text{cm}^{-1}$ $\sim 1260$ $\text{cm}^{-1}$	-	$\sim 3450$ $\text{cm}^{-1}$
Literatür [59]	$\sim 1100$ $\text{cm}^{-1}$	-	$\sim 840$ $\text{cm}^{-1}$ $\sim 1260$ $\text{cm}^{-1}$	$\sim 1450$ $\text{cm}^{-1}$ $\sim 2980$ $\text{cm}^{-1}$	$\sim 1600$ $\text{cm}^{-1}$ $\sim 3500$ $\text{cm}^{-1}$
Literatür [60]	$\sim 1060$ $\text{cm}^{-1}$	$\sim 470$ $\text{cm}^{-1}$	$\sim 850$ $\text{cm}^{-1}$	-	$\sim 1650$ $\text{cm}^{-1}$
Literatür [10]	$\sim 1092$ $\text{cm}^{-1}$	$\sim 760$ $\text{cm}^{-1}$	$\sim 854$ $\text{cm}^{-1}$ $\sim 1258$ $\text{cm}^{-1}$	-	$\sim 1628$ $\text{cm}^{-1}$ $\sim 3450$ $\text{cm}^{-1}$
Literatür [61]	$\sim 1093$ $\text{cm}^{-1}$	$\sim 788$ $\text{cm}^{-1}$	$\sim 851$ $\text{cm}^{-1}$	$\sim 1450$ $\text{cm}^{-1}$	$\sim 1642$ $\text{cm}^{-1}$ $\sim 3400$ $\text{cm}^{-1}$
S1	$\sim 1061$ $\text{cm}^{-1}$	$\sim 443$ $\text{cm}^{-1}$	$\sim 795$ $\text{cm}^{-1}$ $\sim 955$ $\text{cm}^{-1}$	$\sim 1322$ $\text{cm}^{-1}$ $\sim 1395$ $\text{cm}^{-1}$	$\sim 1641$ $\text{cm}^{-1}$
S2	$\sim 1070$ $\text{cm}^{-1}$	$\sim 454$ $\text{cm}^{-1}$	$\sim 799$ $\text{cm}^{-1}$ $\sim 960$ $\text{cm}^{-1}$	$\sim 1375$ $\text{cm}^{-1}$ $\sim 1455$ $\text{cm}^{-1}$	$\sim 1740$ $\text{cm}^{-1}$
S3	$\sim 1024$ $\text{cm}^{-1}$	$\sim 435$ $\text{cm}^{-1}$	$\sim 785$ $\text{cm}^{-1}$	$\sim 1340$ $\text{cm}^{-1}$	$\sim 1740$ $\text{cm}^{-1}$
S4	$\sim 1078$ $\text{cm}^{-1}$	$\sim 457$ $\text{cm}^{-1}$	$\sim 796$ $\text{cm}^{-1}$	$\sim 1340$ $\text{cm}^{-1}$	$\sim 1745$ $\text{cm}^{-1}$
S5	$\sim 1068$ $\text{cm}^{-1}$	$\sim 451$ $\text{cm}^{-1}$	$\sim 800$ $\text{cm}^{-1}$ $\sim 965$ $\text{cm}^{-1}$	-	$\sim 1635$ $\text{cm}^{-1}$
S6	$\sim 1067$ $\text{cm}^{-1}$	$\sim 451$ $\text{cm}^{-1}$	$\sim 800$ $\text{cm}^{-1}$ $\sim 958$ $\text{cm}^{-1}$	$\sim 1365$ $\text{cm}^{-1}$	$\sim 1635$ $\text{cm}^{-1}$ $\sim 1740$ $\text{cm}^{-1}$
S7	$\sim 1075$ $\text{cm}^{-1}$	$\sim 455$ $\text{cm}^{-1}$	$\sim 800$ $\text{cm}^{-1}$	-	$\sim 1635$ $\text{cm}^{-1}$

Nayak ve arkadaşları pirinç kabuğu külü kullanarak atmosferik basınçta kurutma ile silika aerjel üreterek, numunelere FTIR analizi uygulamışlardır. Araştırmacılar karakteristik silika aerjel bantlarını  $\sim 471$ ,  $\sim 804$  ve  $\sim 1098$   $\text{cm}^{-1}$ 'de tespit etmişlerdir.  $\sim 1098$   $\text{cm}^{-1}$ 'de ki bant Si-O-Si asimetrik bağ gerilme titreşimlerini temsil ederken;  $\sim 804$   $\text{cm}^{-1}$ 'deki bant Si-O-Si simetrik bağ gerilme titreşim ağını göstermektedir.  $\sim 471$   $\text{cm}^{-1}$ 'deki bant ise Si-O-Si bağ eğme titreşimlerini temsil



etmektedir.  $\sim 1630$  ve  $\sim 3440 \text{ cm}^{-1}$ 'de ise fiziksel suyun adsorpsiyonu sebebi ile  $-\text{OH}$  bağları oluşmuştur. Nayak ve arkadaşlarının bu çalışmasında elde etmiş olduğu Si-O-Si ve  $-\text{OH}$  bağ pik analizleri, mevcut çalışma değerleri ile uyumaktadır [61].

İncelenen literatür çalışmalarındaki FTIR sonuçları ile mevcut çalışmamızdaki FTIR spektrumlarının birbirine yakın olduğu görülmektedir. Literatürden ve üretilen silika aerojel tozlarının FTIR analiz sonuçları Tablo 5.3.'de verilmiştir. Bu sonuç ile üretmiş olduğumuz silika aerojel tozlarının kabul edilebilir verimlilikte olduğu anlaşılmaktadır.

#### 5.1.4. BET analizi

BET cihazı katı veya toz numunelerde fiziksel adsorpsiyon yöntemiyle yüzey alanı ölçümleri, mikro, mezo ve makro gözenek boyutunu ve gözenek boyut dağılımını düşük basınçlarda ve yüksek çözünürlükte tespit edebilmektedir. Cihaz numune yüzeyini tek bir moleküler tabaka ile kaplamak için gerekli gaz miktarını tayin etmekte ve Brunauer Emmett ve Teller teorisini kullanarak yüzey alanını hesaplamaktadır.

Mevcut çalışmada farklı silika kaynağı olarak kullanılan doğal hammadde ve atıklardan üretilen silika aerojel tozlarına BET analizleri yapılmıştır. Analiz sonucunda tozlara ait yüzey alanı, gözenek hacmi, gözenek çapı, nanopartikül boyutu sonuçları ve adsorpsiyon-desorpsiyon izoterm eğrileri elde edilmiştir. Sentezlenmiş olan silika aerojel tozlarına ait BET yüzey alanı sonuçları Tablo 5.4.'de, BET gözenek hacmi değerleri Tablo 5.5.'de, gözenek boyutu sonuçları Tablo 5.6.'da, doğal silika kaynaklarından elde edilen aerojel tozlarına ait BET nanopartikül boyutu değerleri Tablo 5.7.'de verilmiştir.

Sırası ile BET yüzey alanı ve Langmuir yüzey alanına ait değerler,  $59-394 \text{ m}^2/\text{g}$  ile  $80-539 \text{ m}^2/\text{g}$  arasında değişmektedir. Tablo 5.4.'de sunulan BET analiz sonuçlarından anlaşılacağı üzere, en yüksek BET yüzey alanı  $393,72 \text{ m}^2/\text{g}$  değeri ile S5 kodlu pencere camı tozundan elde edilen silika aerojel tozuna ait iken, en düşük değer  $58,46 \text{ m}^2/\text{g}$  ile S3 kodlu pomza tozundan elde edilen silika aerojel

tozuna aittir. Langmuir yüzey alanında ise yine S5 kodlu numune 538,80 m<sup>2</sup>/g değeri ile en yüksek, S3 kodlu numune 80,4 m<sup>2</sup>/g değeri ile en düşük sonuca sahiptir. BJH adsorpsiyon-desorpsiyon yüzey alanı sonuçlarında ise en yüksek değer S6 kodlu soda şişesi camından elde edilen silika aerojel tozuna ait iken, en düşük değer S3 kodlu numuneye aittir.

Tablo 5.4. Silika aerojel tozlarının BET yüzey alanı sonuçları

	Numuneler						
	S1	S2	S3	S4	S5	S6	S7
<b>BET Yüzey Alanı (m<sup>2</sup>/g)</b>	177,8	278,37	58,46	93,632	393,72	364,6	187,53
<b>Langmuir Yüzey Alanı (m<sup>2</sup>/g)</b>	244,1	384,16	80,4	129,44	538,80	500,20	257,81
<b>BJH Adsorpsiyon kümülatif yüzey alanı (m<sup>2</sup>/g)</b>	146,1	275,95	45,819	79,086	368,39	373,88	168,16
<b>BJH Desorpsiyon kümülatif yüzey alanı (m<sup>2</sup>/g)</b>	167,6	353,75	48,324	95,342	426,06	490,29	238,94

Tablo 5.5. Silika aerojel tozlarının BET gözenek hacmi sonuçları

	Numuneler						
	S1	S2	S3	S4	S5	S6	S7
<b>Adsorpsiyon toplam gözenek hacmi (cm<sup>3</sup>/g)</b>	0,73063	0,8794	0,1885	0,4597	0,8962	0,6830	0,7800
<b>Desorpsiyon toplam gözenek hacmi (cm<sup>3</sup>/g)</b>	0,77020	0,8899	0,1940	0,4903	0,8960	0,6809	0,7832
<b>BJH Adsorpsiyon kümülatif gözenek hacmi (cm<sup>3</sup>/g)</b>	0,75880	0,8917	0,1903	0,4854	0,8806	0,6759	0,7757
<b>BJH Desorpsiyon kümülatif gözenek hacmi (cm<sup>3</sup>/g)</b>	0,76824	0,9009	0,1916	0,4936	0,9119	0,6986	0,7868

Tablo 5.6. Silika aerojel tozlarının BET gözenek boyutu sonuçları

	Numuneler						
	S1	S2	S3	S4	S5	S6	S7
<b>Adsorpsiyon ortalama gözenek boyutu (Å)</b>	164,29	126,36	129,01	196,39	91,048	74,924	166,37
<b>Desorpsiyon ortalama gözenek boyutu (Å)</b>	173,19	127,88	132,80	209,49	91,033	74,692	167,05
<b>BJH Adsorpsiyon ortalama gözenek boyutu (Å)</b>	207,85	129,25	166,18	245,52	95,615	72,322	184,53
<b>BJH Desorpsiyon ortalama gözenek boyutu (Å)</b>	183,27	101,87	158,65	207,10	85,620	56,995	131,72

Tablo 5.7. Silika aerojel tozlarının BET nanopartikül boyutu sonuçları

	Numuneler						
	S1	S2	S3	S4	S5	S6	S7
<b>Ortalama partikül boyutu (Å)</b>	337,30	215,54	1026,3	640,80	152,39	164,53	319,93

Tablo 5.5.'de verilmiş olan gözenek hacmi sonuçlarına göre ise değerler 0,19-0,91 cm<sup>3</sup>/g arasında değişmektedir. En yüksek gözenek hacmi değeri S5 kodlu numune de gözlemlenirken, en düşük değer S3 kodlu numunede gözlemlenmiştir.

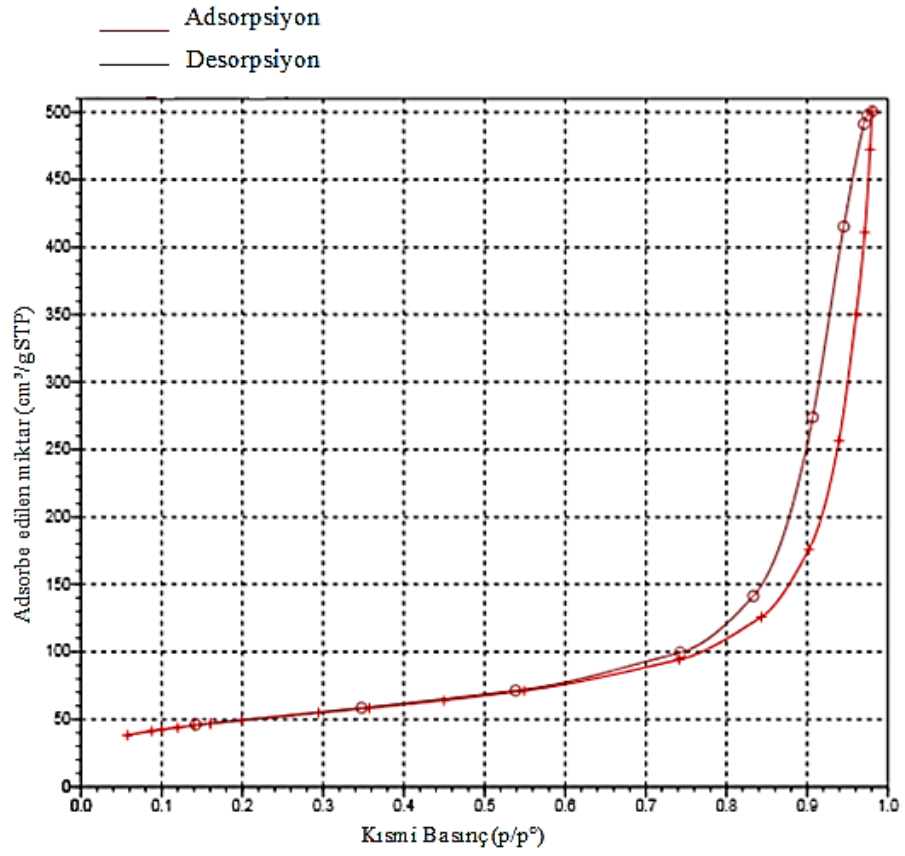
Gözenek boyutu sonuçlarının 72,322-245,52 Å değerleri arasında değiştiği Tablo 5.6.'da görülmektedir. En yüksek gözenek boyutu S4 kodlu zeolit tozundan elde edilen numunede görülürken, en düşük gözenek boyutu S6 kodlu soda şişesi camından elde edilen silika aerojel tozunda olduğu görülmektedir. Nanopartikül boyutu sonuçları ise en yüksek S3 kodlu numuneye ait iken, en düşük S5 kodlu numuneye aittir.

Tablo 5.8.'de sentezlenen silika aerojel tozlarının gözenek boyutlarına bağlı olarak gözeneklilik sonuçları verilmiştir.

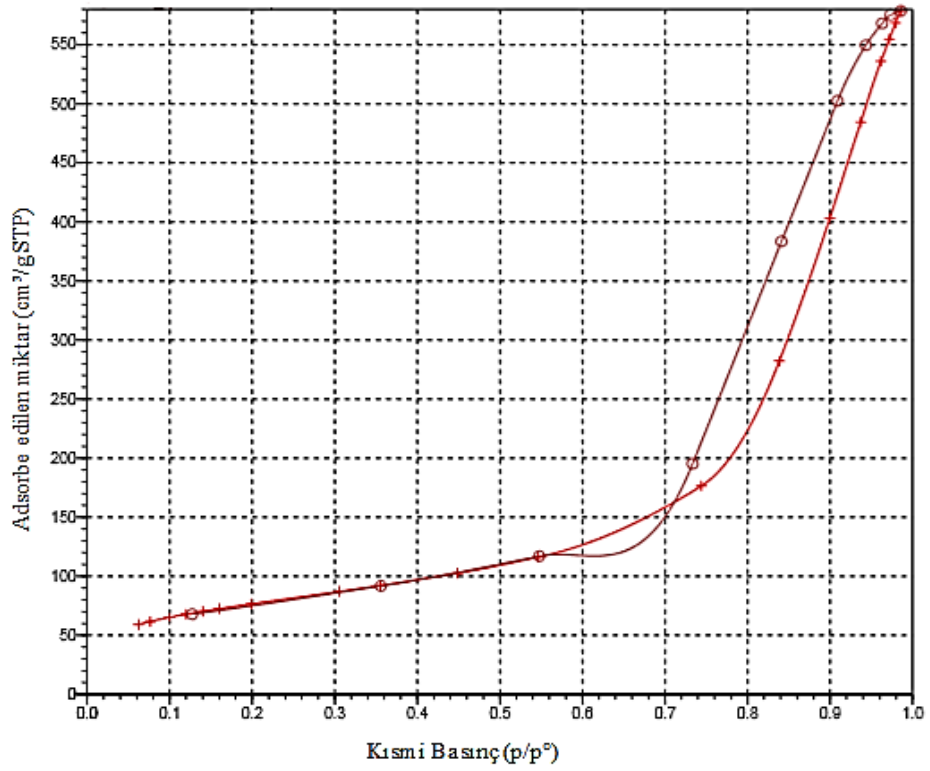
Tablo 5.8. Silika aerojel tozlarının gözeneklilik verileri

	Numuneler						
	S1	S2	S3	S4	S5	S6	S7
<b>Ortalama gözenek boyutu (Å)</b>	164.29 (16,4 nm)	126.36 (12,6 nm)	129.01 (12,9 nm)	196.39 (19,6 nm)	91.048 (9,1 nm)	74.924 (7,4 nm)	166.37 (16,6 nm)
<b>Gözeneklilik</b>	Mezo	Mezo	Mezo	Mezo	Mezo	Mezo	Mezo

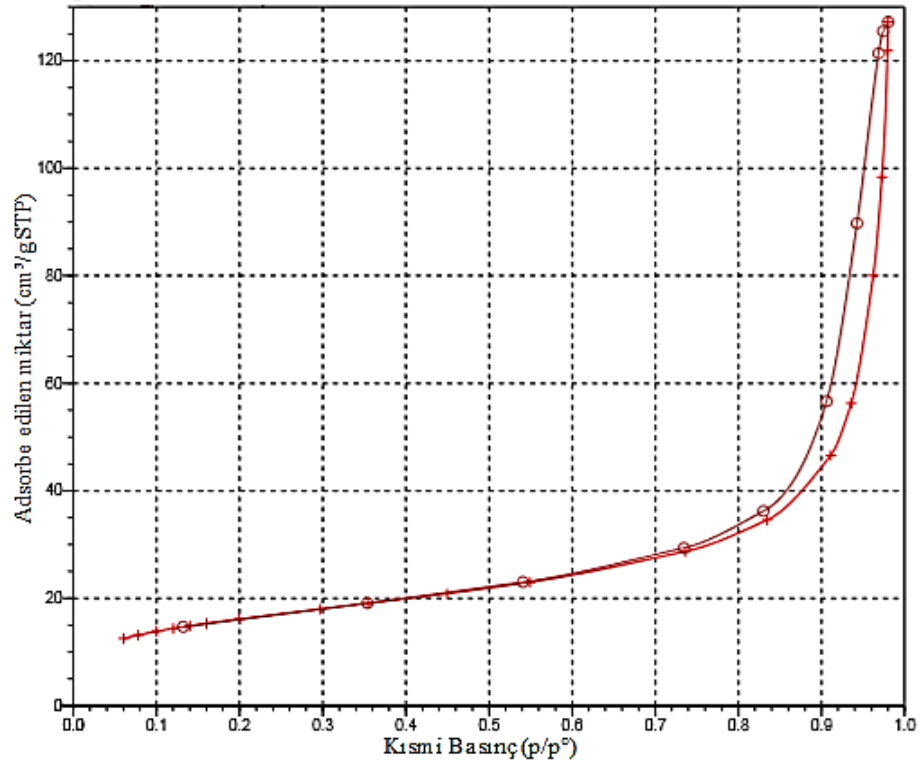
Silika kaynağı doğal başlangıç hammadde ve atık malzemelerinden elde etmiş olduğumuz silika aerojel tozlarına ait adsorpsiyon-desorpsiyon izoterm grafikleri BET analizi ile elde edilmiştir. Şekil 5.43. - 5.49.'da grafikler verilmiştir.



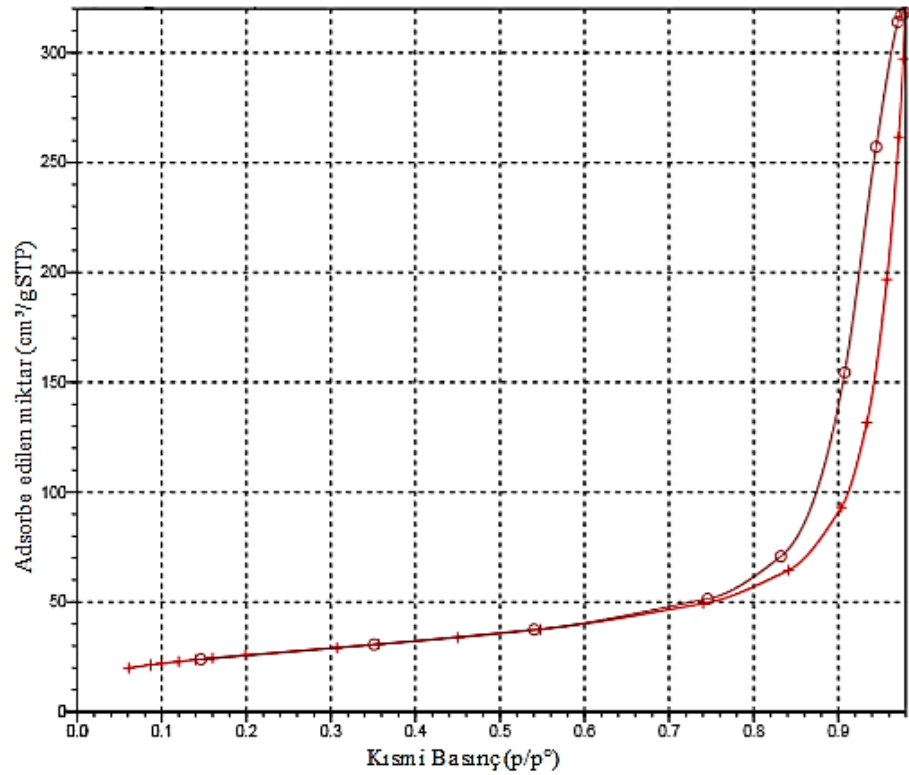
Şekil 5.43. Perlit tozundan elde edilen silika aerojel tozuna ait izoterm eğrileri



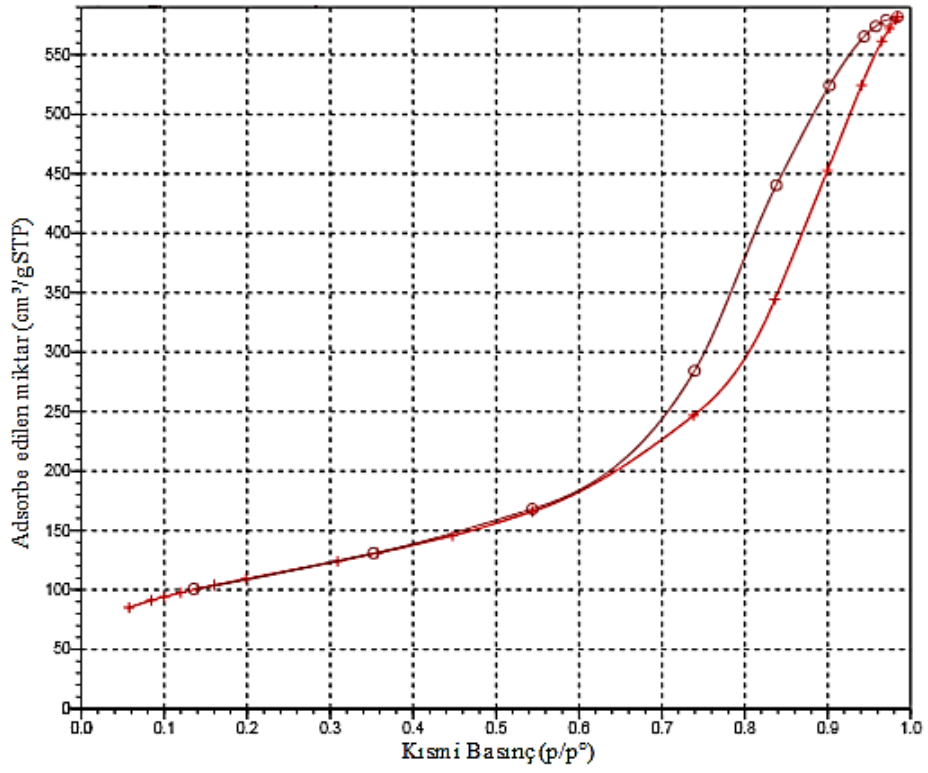
Şekil 5.44. Kuvars tozundan elde edilen silika aerojel tozuna ait izoterm eğrileri



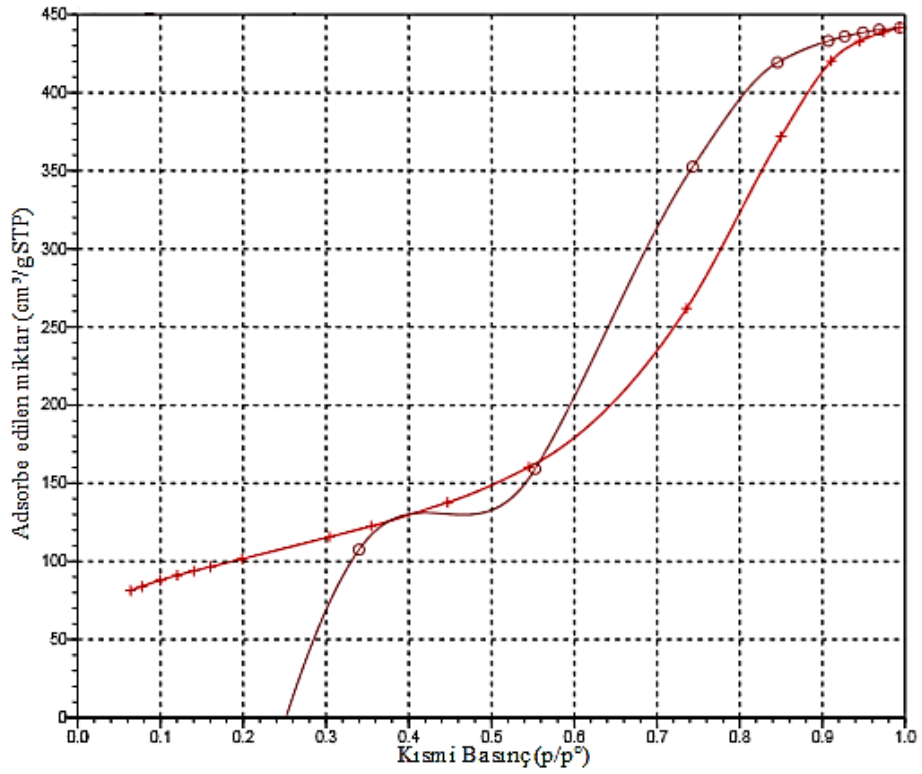
Şekil 5.45. Pomza tozundan elde edilen silika aerojel tozuna ait izoterm eğrileri



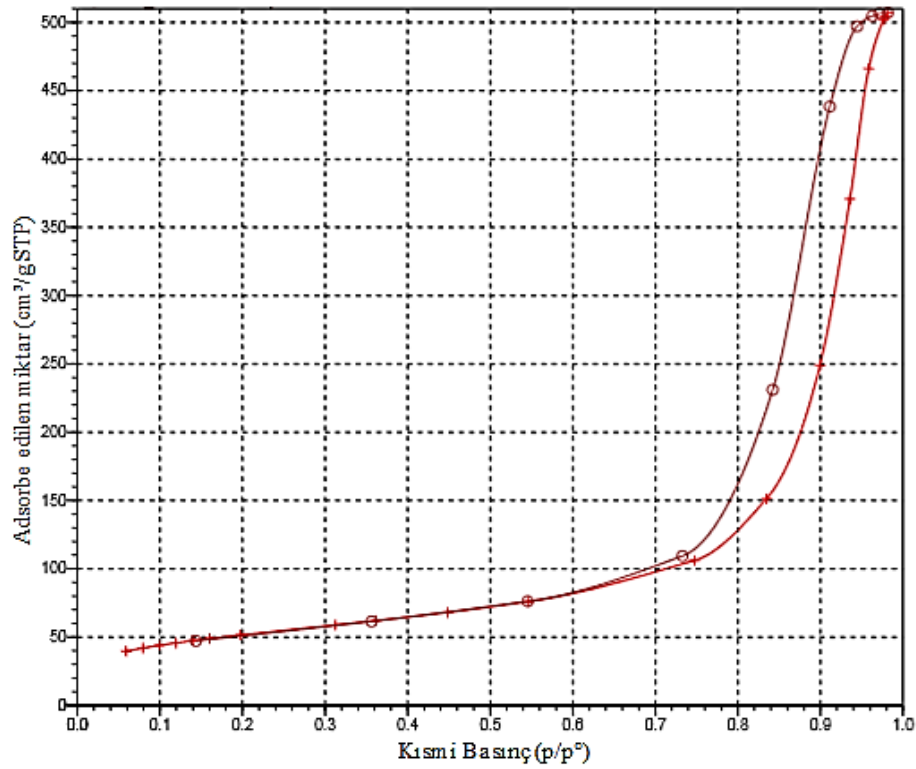
Şekil 5.46. Zeolit tozundan elde edilen silika aerojel tozuna ait izoterm eğrileri



Şekil 5.47. Pencere camı tozundan elde edilen silika aerojel tozuna ait izoterm eğrileri

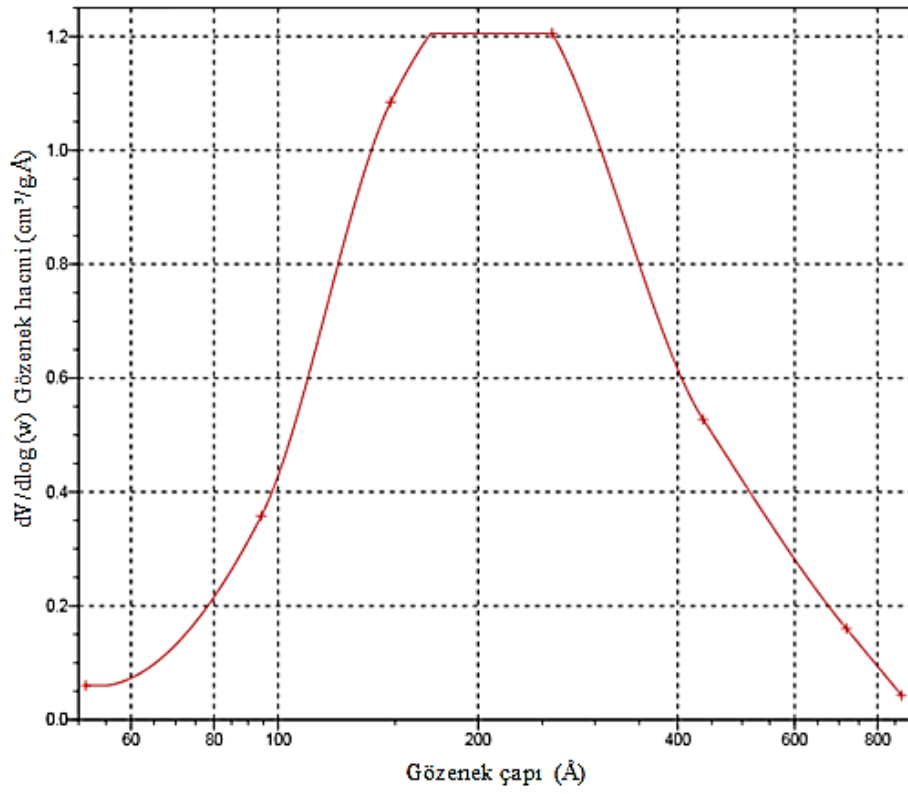


Şekil 5.48. Soda şişesi camı tozundan elde edilen silika aerojel tozuna ait izoterm eğrileri

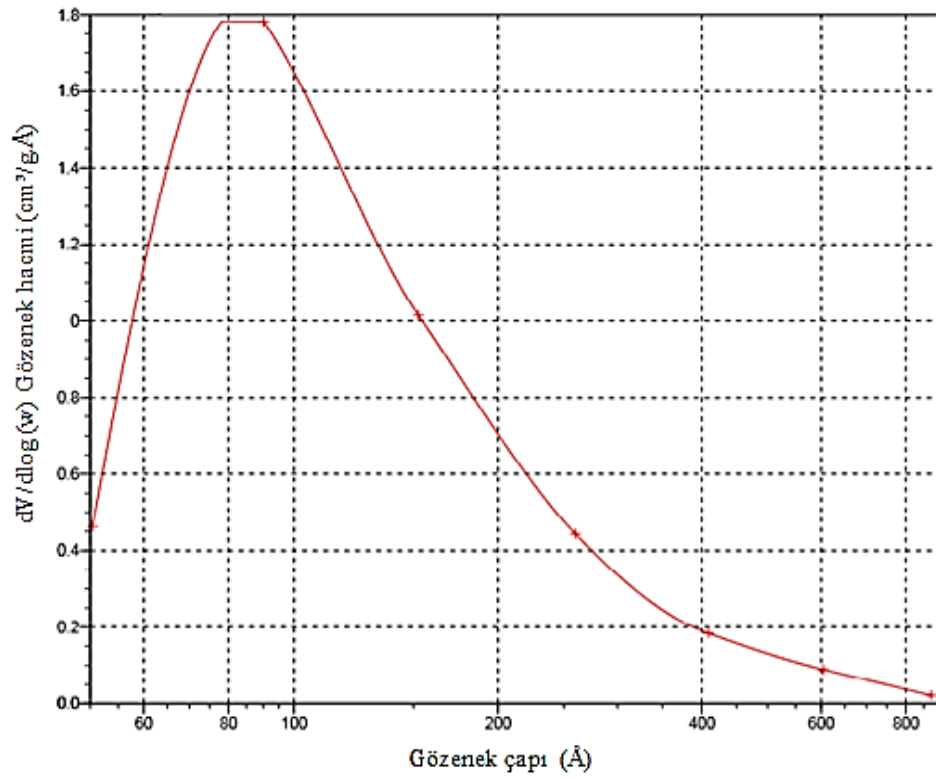


Şekil 5.49. Borcam tozundan elde edilen silika aerojel tozuna ait izoterm eğrileri

Üretilen tozların gözenek boyutu dağılımı grafikleri ise Şekil 5.50.-5.56.'da gösterilmektedir. Soda şişesi camından elde edilen silika aerojelde gözenek boyutunun 20-160 Å (2-16 nm) aralığında olduğu ve istenilen nanoboyutta üretildiği grafikten anlaşılmaktadır. Ortalama gözenek çapına göre gözeneklilik verileri Tablo 5.7.'de değerlendirilmiş ve mezo gözenekli olduğu anlaşılmıştır. Soda şişesi camından elde edilen silika aerojel için gözenek boyutu dağılımı grafiğinde ise gözenek çapının 2 nm'ye kadar düştüğü görülmekte olup mikro boyutta da aerojel tozu üretimi sağlanmıştır. Üretilen diğer numunelerde de değerler 2-80 nm aralığında olup, tüm sentezlenen aerojellerde gözenek boyutu dağılımlarının kabul edilebilir olduğu görülmektedir.

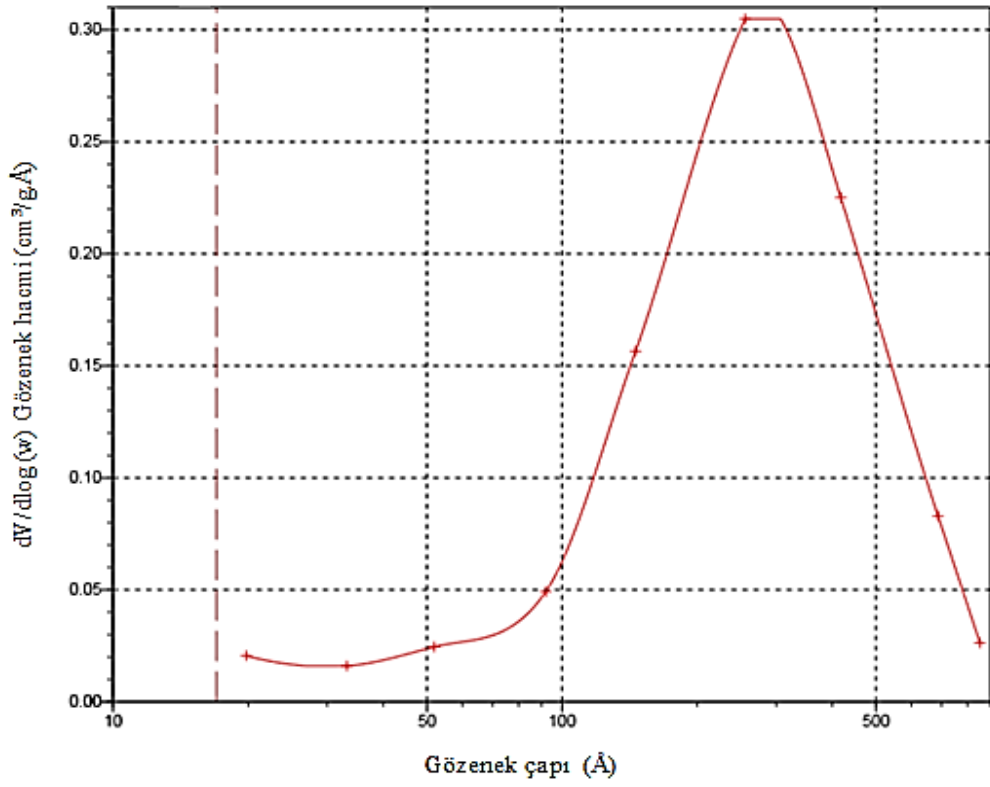


Şekil 5.50. Perlit tozundan elde edilen silika aerojel tozuna ait gözenek boyutu dağılımı

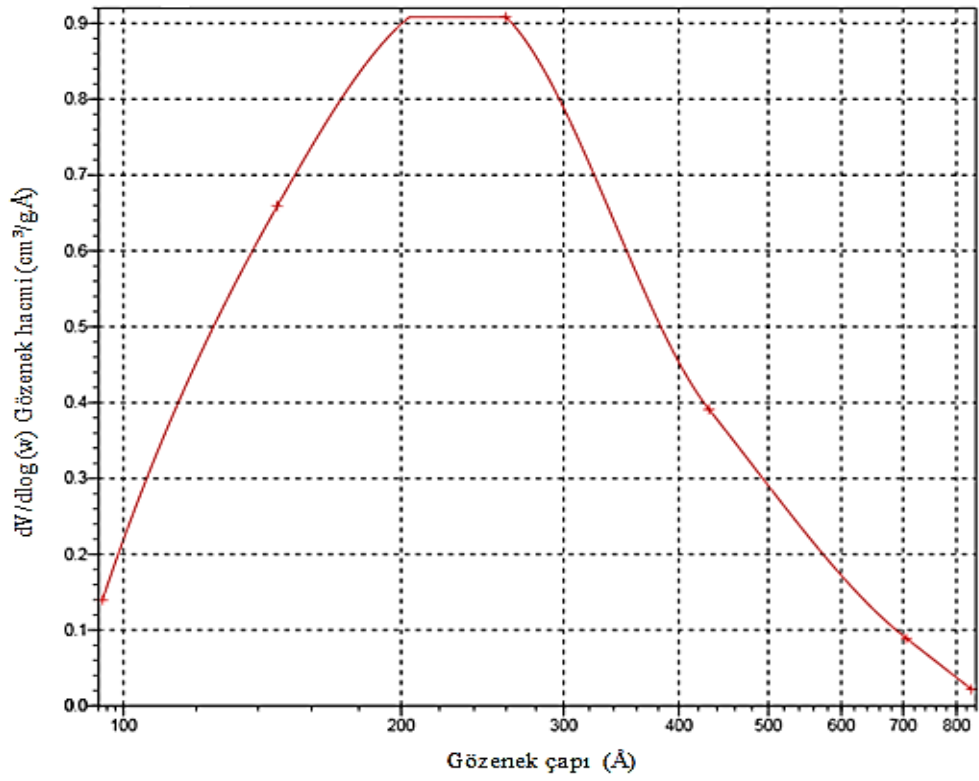


Şekil 5.51. Kuvars tozundan elde edilen silika aerojel tozuna ait gözenek boyutu dağılımı

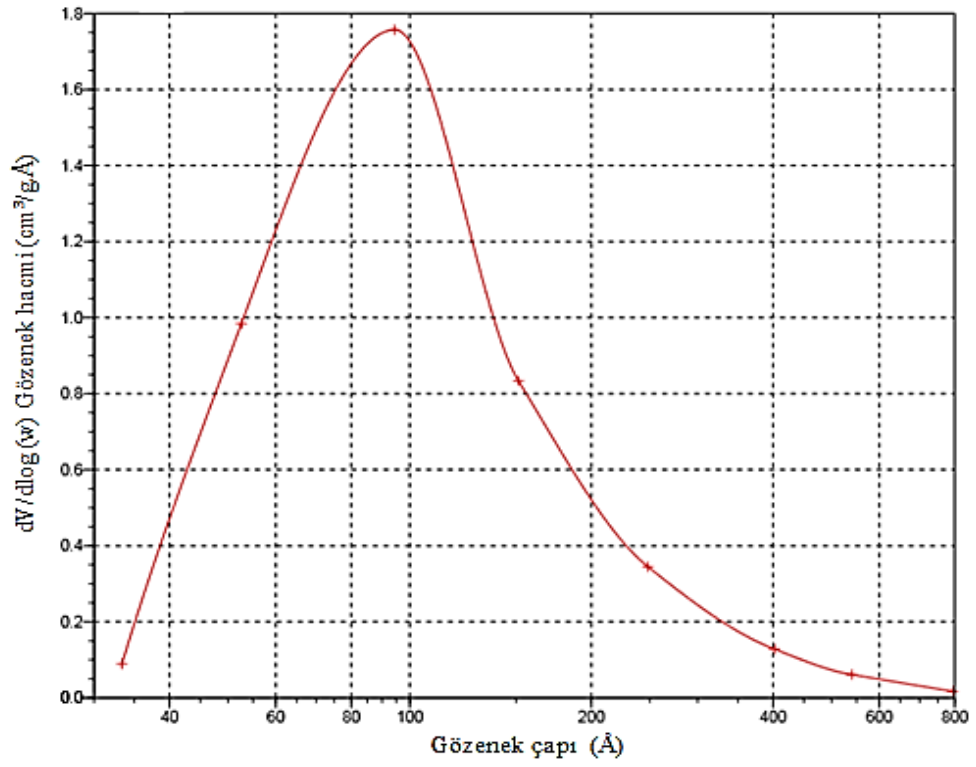




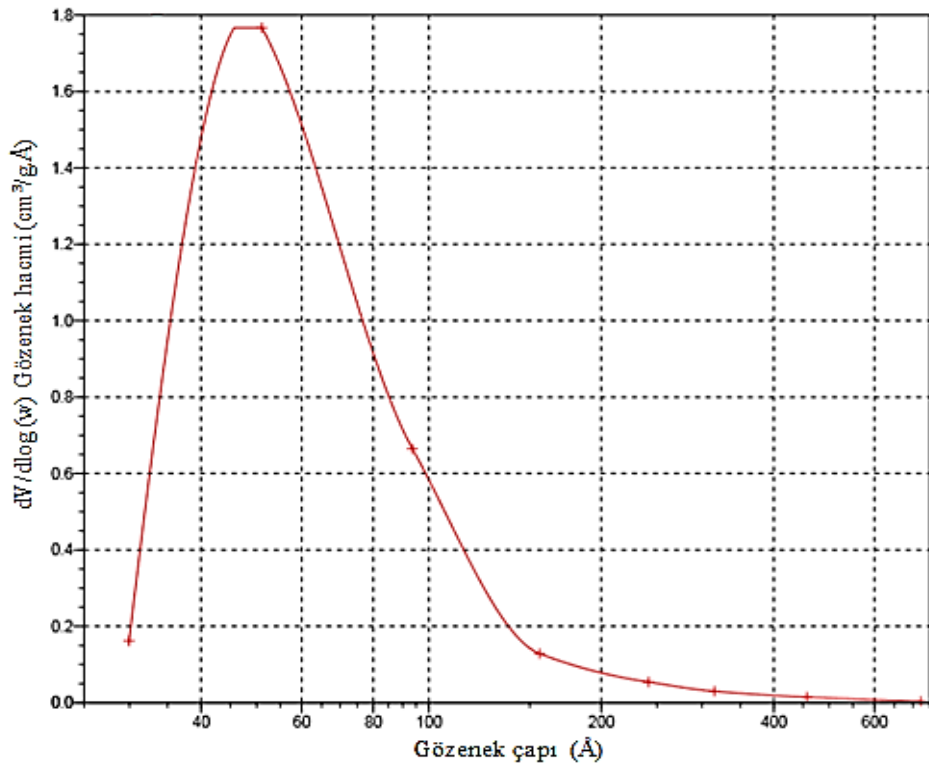
Şekil 5.52. Pomza tozundan elde edilen silika aerojel tozuna ait gözenek boyutu dağılımı



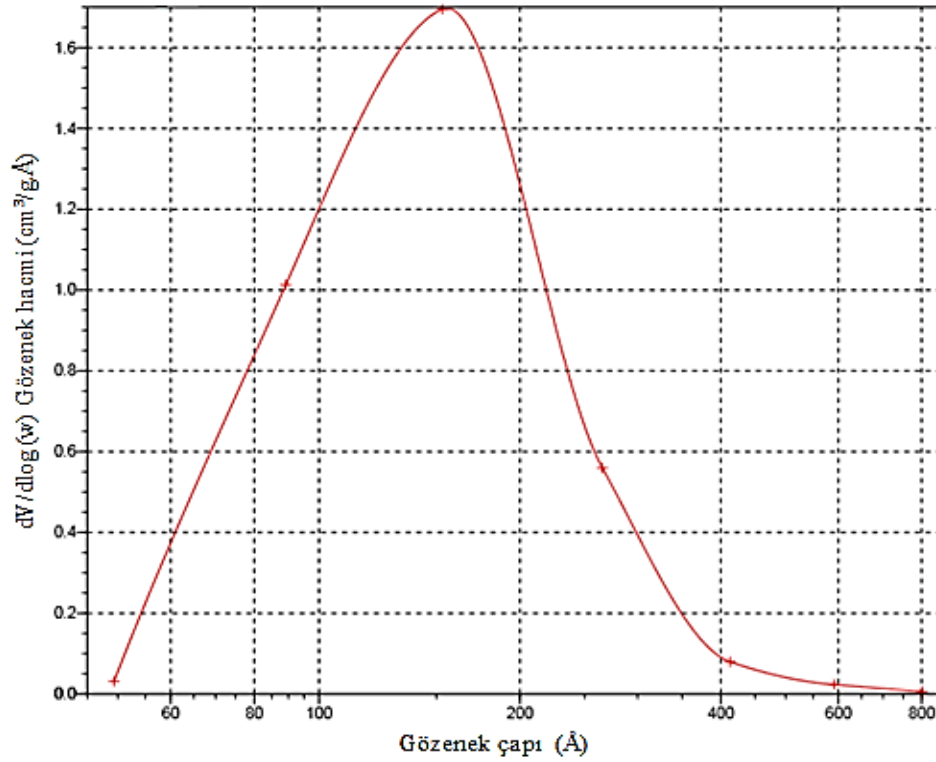
Şekil 5.53. Zeolit tozundan elde edilen silika aerojel tozuna ait gözenek boyutu dağılımı



Şekil 5.54. Pencere camı tozundan elde edilen silika aerojel tozuna ait gözenek boyutu dağılımı



Şekil 5.55. Soda camı tozundan elde edilen silika aerojel tozuna ait gözenek boyutu dağılımı



Şekil 5.56. Borcam tozundan elde edilen silika aerojel tozuna ait gözenek boyutu dağılımı

Wang ve arkadaşlarının atmosfer basıncında kurutma ile üretmiş oldukları silika esaslı aerojellere yapılan BET analizinde, BET yüzey alanı değerleri 500 ile 1000  $m^2/g$  arasında değişirken, ortalama gözenek boyutu 8-20 nm aralığında değişmektedir. Silika aerojellerin adsorpsiyon-desorpsiyon izoterm eğrilerinde, kısmi basınçla adsorbe edilen miktarın arttığı görülmektedir [37].

Nayak ve arkadaşlarının pirinç külü kullanarak sentezlemiş oldukları silika aerojellerin ortalama BET yüzey alanı 273  $m^2/g$  iken, gözenek çapı değerleri 10-40 nm arasında değişmektedir ve gözenek boyutu dağılımı grafiklerinden de mezo gözenekli silika aerojel sentezledikleri anlaşılmaktadır [61]. TMCS sililasyon ajanı kullanarak silika aerojel üreten Cheng ve arkadaşlarının BET analizi sonucu spesifik yüzey alanı değeri 700  $m^2/g$  iken ortalama gözenek çapı 18 nm olarak belirlenmiştir [60].

Gao ve arkadaşlarının üretmiş oldukları silika aerojellere yapmış oldukları BET analizi ile 700-780  $m^2/g$  aralığında BET yüzey alanı değerleri tespit edilirken,

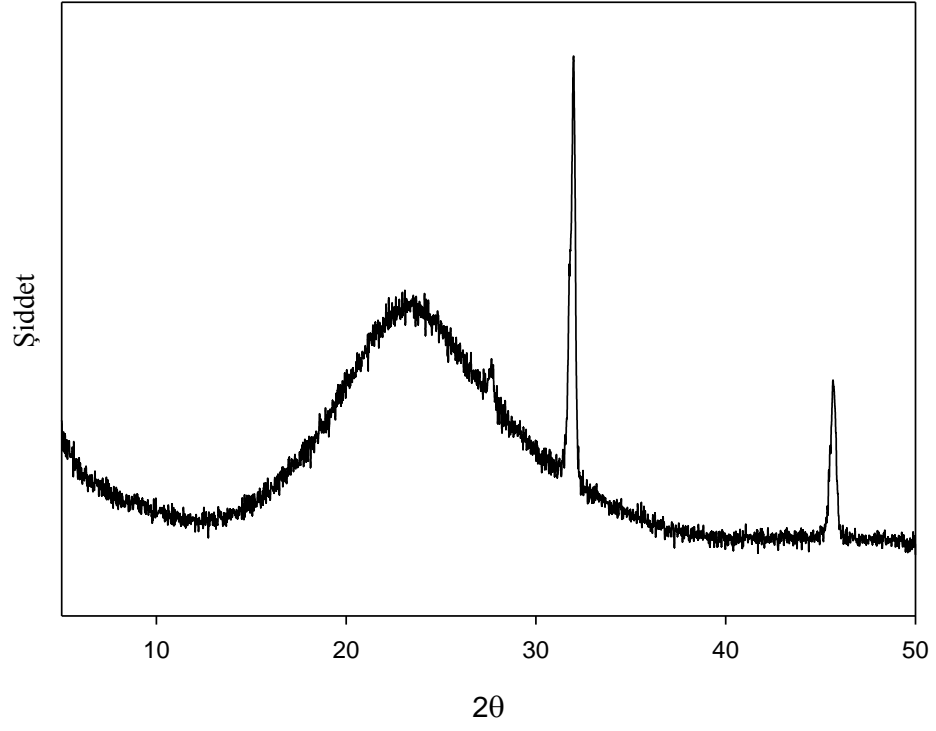
gözenek çapları ortalama 14 nm'dir. Ve yapılan analiz sonucunda mezo gözenekli, yüksek poroziteli arojeller elde edilmiştir [10].

Huang ve arkadaşlarının silika kaynağı olan su camı kullanarak sentezlemiş oldukları silika arojellere yapılan BET analizi ile, spesifik BET yüzey alanı değerleri 400 ile 600 m<sup>2</sup>/g arasında değişirken, ortalama gözenek çapı 15 nm olarak belirlenmiştir [59].

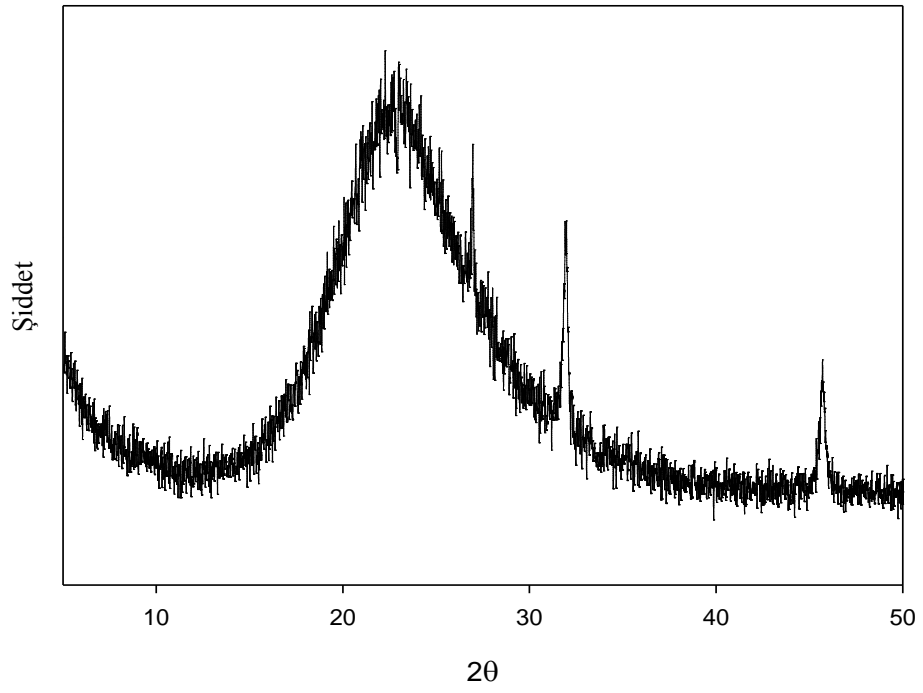
### 5.1.5 Faz analizi

X-Işını Kırınım yöntemi (XRD), her bir kristalin fazın kendine özgü atomik dizilimlerine bağlı olarak X-ışınları karakteristik bir düzen içerisinde kırması esasına dayanır. Üretilen silika arojel tozlarına bu analiz uygulanarak kristal yapısı belirlenmiştir. Yapılan XRD analizleri CuK $\alpha$  ışın demeti kullanılarak dalga boyu  $\lambda=1,54056$  nm olan, tarama açısı ise  $2\theta$ , 5 ile 50° aralığında olup, tarama hızı ise 1°/dk olacak şekilde XRD cihazı kullanılarak yapılmıştır.

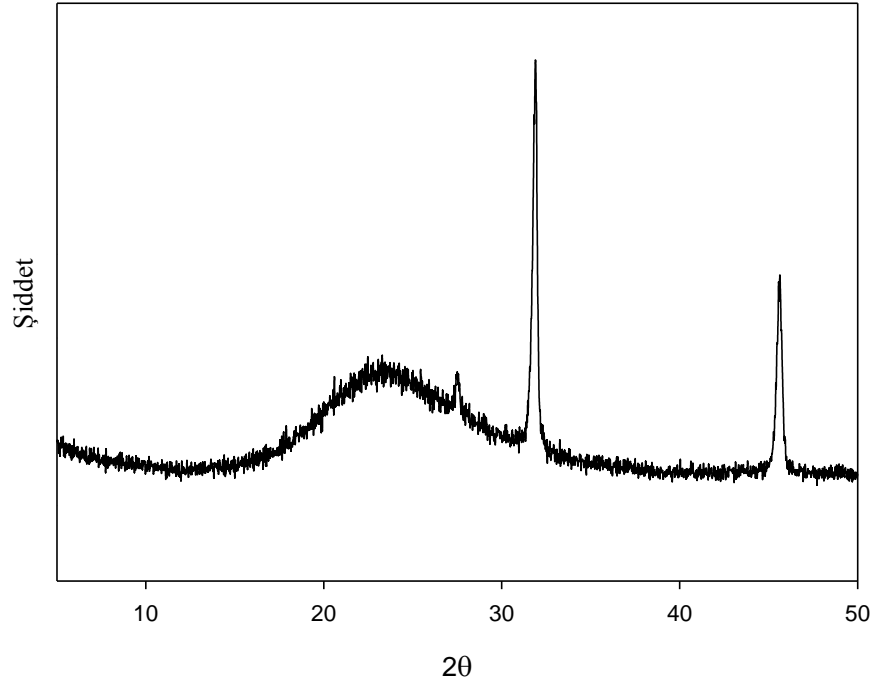
Sentezlenen silika arojel tozlarının XRD grafikleri Şekil 5.57.-5.63.'de verilmektedir. Yapılan XRD analizinde  $2\theta = 20$  ila 30° aralığında geniş bir pik ile amorf silika arojel tozlarının karakterizasyonu görülmektedir. Ayrıca perlit, kuvars, zeolit, pomza ve borcam tozlarından üretilen silika arojel tozlarının yapısında ilave NaCl pikleri gözlemlenmiştir. Bu piklerin görülme sebebi ise yeteri kadar yıkama işleminin yapılmamasından kaynaklanmaktadır. Yaşlandırma işlemleri ve yüzey modifikasyonu sonrasında daha fazla distile su ile yıkama işlemi yapılarak mevcut NaCl pikleri yapıdan uzaklaştırılabilir. Pencere camı tozu ve soda şişesi camı tozundan elde edilen silika arojel tozlarının yapısında ise NaCl pikleri gözlemlenmemektedir. Distile su ile yıkama işleminin yeterli düzeyde yapıldığını göstermektedir. Tablo 5.9.'da XRD analizi sonuçları verilmektedir.



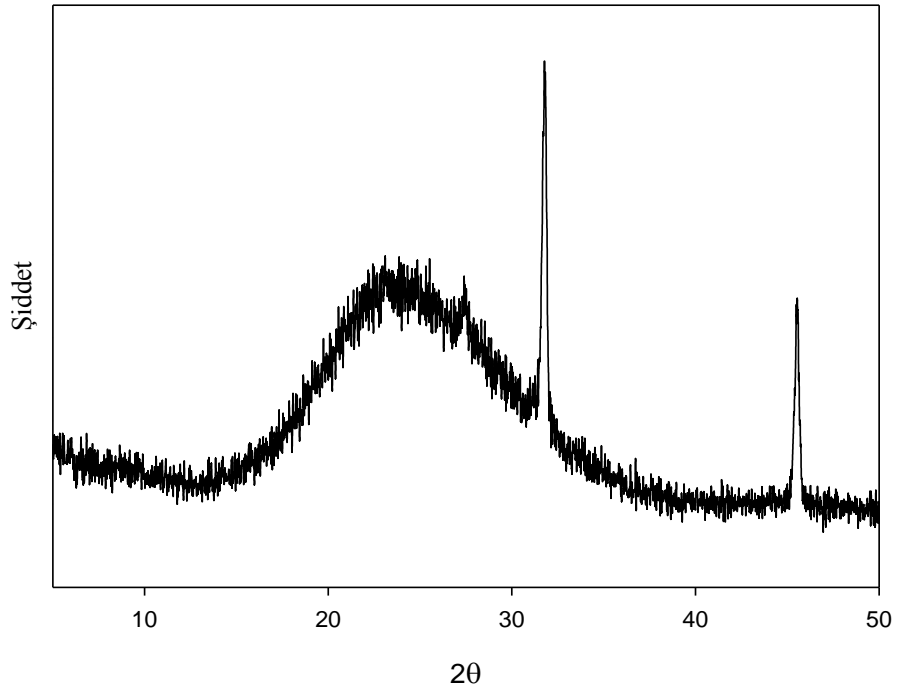
Şekil 5.57. Perlit tozundan elde edilen silika arojel tozuna ait XRD grafiği



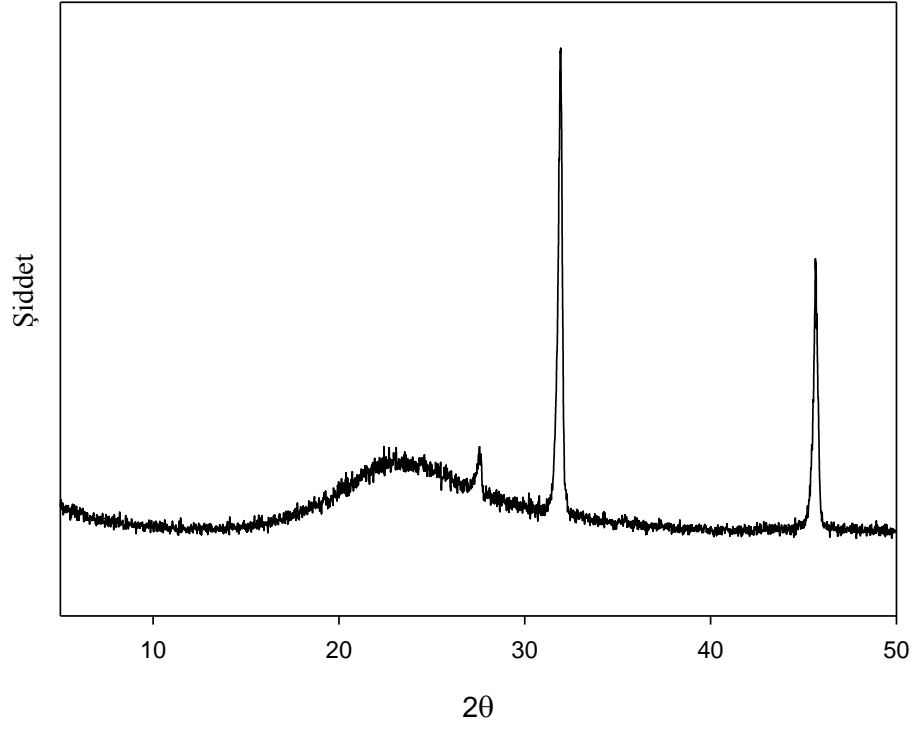
Şekil 5.58. Kuvars tozundan elde edilen silika arojel tozuna ait XRD grafiği



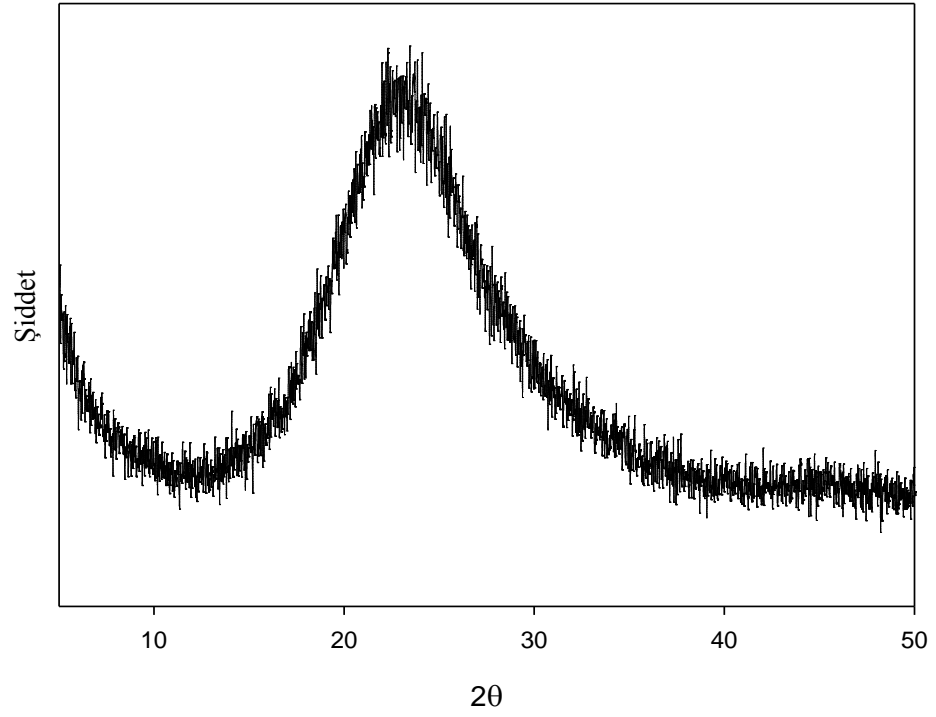
Şekil 5.59. Zeolit tozundan elde edilen silika arojel tozuna ait XRD grafiđi



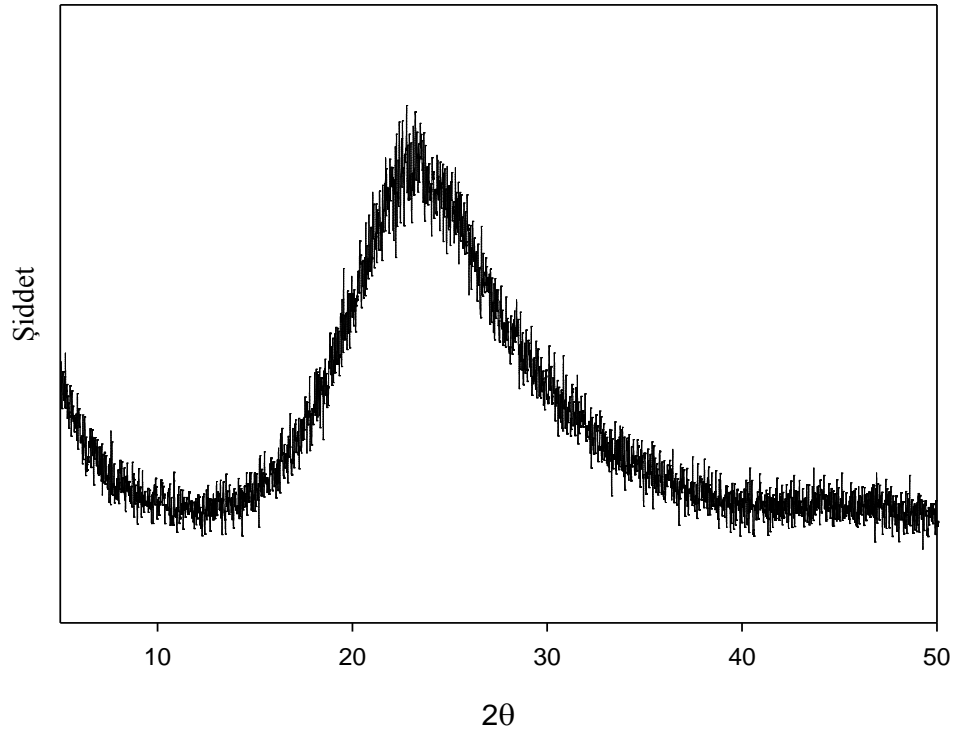
Şekil 5.60. Pomza tozundan elde edilen silika arojel tozuna ait XRD grafiđi



Şekil 5.61. Borcam tozundan elde edilen silika arojel tozuna ait XRD grafiği



Şekil 5.62. Pencere camı tozundan elde edilen silika arojel tozuna ait XRD grafiği



Şekil 5.63. Soda şişesi camı tozundan elde edilen silika arojel tozuna ait XRD grafiği

Tablo 5.9. Silika arojel tozlarının XRD analiz verileri

Tozlar	Amorf Piki	NaCl Piki
Perlit	23°	32°, 45°
Kuvars	22°	32°, 45°
Pomza	24°	31°, 45°
Zeolit	23°	31°, 45°
Borcam	23°	31°, 45°
Pencere camı	22°	-
Soda şişesi camı	23°	-

Shen ve arkadaşlarının atmosfer basıncında kurutma ile sentezledikleri silika arojellerin XRD analizinde, 22°'de amorf yapı gözlemlenirken; 32 ve 46°'de NaCl'den kaynaklı pikler tespit edilmiştir. Gözlemlenen NaCl piklerinin TMCS ile yüzey modifikasyonu esnasında yapıya geçtiği ve yeterli yıkama işlemi yapılmadığı için uzaklaştırılmadığı tespit edilmiştir [62]. Zhou ve arkadaşları SiCl<sub>4</sub> başlangıç maddesi kullanarak üretmiş oldukları silika arojel tozlarının XRD analizinde yaklaşık olarak 23,2°'de belirgin amorf silika yapısını analiz etmişlerdir [63].



## BÖLÜM 6. GENEL SONUÇLAR VE ÖNERİLER

### 6.1. Genel Sonuçlar

Mevcut tez çalışması, çevre dostu olan atmosfer basıncında kurutma tekniği ile sol-jel yöntemi kullanılarak silika esaslı doğal hammaddelerden ve atık malzemelerden silika aerojel tozu üretimini ve sentezlenen tozların çeşitli analiz yöntemleri ile karakterizasyonunu kapsamaktadır. Çalışmada gözlemlenmiş olduğumuz sonuçlar ve veriler şunlardır;

- Silika aerojel üretiminde silika kaynağı olarak doğal hammaddeler olan perlit, kuvars, pomza, zeolit kullanılırken; atık malzemelerden pencere camı tozu, soda şişesi camı tozu ve borcam tozu kullanılmıştır. Başlıca fiziksel ve kimyasal özellikleri olan; iyon değişikliği yapabilme adsorbsiyon ve buna bağlı moleküler elek yapısı, silis içeriği, hafiflik, küçük kristallerin gözenek yapısı verimli bir şekilde silika aerojel tozu üretimi gerçekleştirmemizi sağlamıştır.
- 7 farklı hammadde ile üretilen silika aerojel tozlarının yapılan karakterizasyon çalışmaları sonrasında birçok sektörde üstün özellikleri sayesinde kullanım alanı bulabilecekleri tespit edilmiştir.
- SEM ve FESEM analizleri ile silika aerojel tozlarının mikroyapı görüntüsünde toz tane boyutunun 2 ile 50 nm arasında nano boyutlarda olduğu tespit edilmiştir. Silika aerojel tozlarının gözenekli bir mikroyapıya, üç boyutlu ve gözenekli ağyapısı sayesinde çok düşük yoğunluğa ve milyonlarca delikten oluşan gözenekli süngerimsi yapıları ile yüksek porluluk değerlerine sahip olduğu belirlenmiştir. Elde edilen EDS analizi ile silika aerojel toz yapısında O ve Si elementlerinin hakim olduğu görülmektedir. Distile su ile yapılan yıkama işlemleri ile aerojel üretiminde kullanılan NaOH ve HCl ilavelerinin yapıdan mümkün olduğunca uzaklaştırıldığı EDS analizlerinde görülmektedir.

- Silika aerojel tozlarının DTA eğrisinde ekzotermik pikin yapıdaki metil (-CH<sub>3</sub>) grubunun oksidasyonu ile meydana geldiği, endotermik piklerine ise dehidratasyon ve dekompozisyon tepkimelerinin sebebiyet verdiği görülmektedir. Silika aerojel tozlarına yapılan TG analizi ile 40-200°C sıcaklık aralığında yüzeye adsorbe edilen su moleküllerinin açığa çıkmasından kaynaklı ağırlık kaybı görülürken, 600-950°C aralığında metil gruplarının termal dekompozisyonundan dolayı ağırlık kaybı oluşmaktadır. Zeolit ve borcam tozlarından elde edilen silika aerojellerde gerçekleşen ağırlık kaybının diğerlerine göre daha fazla olduğu gözlemlenmiştir.
- FTIR analizi ile silika aerojel tozlarında titreşimden kaynaklı Si-C pikleri, asimetrik ve simetrik bağlanmalarından kaynaklı güçlü ve belirgin Si-O-Si pikleri tespit edilmiştir. FTIR analizinde moleküllerin hareketinden kaynaklı Si-O-Si piklerinin meydana gelmesi, TEOS modifiye ajanından silika aerojel yüzeyine -Si-CH<sub>3</sub> gruplarının geçtiğini ve yüzey modifikasyonunun verimli bir şekilde yapıldığını kanıtlamaktadır. Ayrıca adsorpsiyondan kaynaklı C-H, fiziksel olarak adsorbe edilmiş sudan kaynaklanan O-H bağları tespit edilmiştir.
- BET analizi sonuçlarına göre BET yüzey alanına ait değerler, 59-394 m<sup>2</sup>/g aralığında değişirken, en yüksek BET yüzey alanı 393,72 m<sup>2</sup>/g değeri ile S5 kodlu pencere camı tozundan elde edilen silika aerojel tozuna ve en düşük değer olan 58,46 m<sup>2</sup>/g ise S3 kodlu pomza tozundan elde edilen silika aerojel tozuna ait olduğu belirlenmiştir. Langmuir yüzey alanında ise veriler 80-539 m<sup>2</sup>/g arasında değişirken, S5 kodlu numune 538,80 m<sup>2</sup>/g değeri ile en yüksek, S3 kodlu numune 80,4 m<sup>2</sup>/g değeri ile en düşük yüzey alanı sonucuna sahiptir. BJH adsorpsiyon-desorpsiyon yüzey alanı sonuçlarında ise en yüksek değer S6 kodlu soda şişesi camından elde edilen silika aerojel tozuna ait iken, en düşük değer S3 kodlu pomza tozundan elde edilen numuneye aittir.
- BET analizinde, gözenek hacmi sonuçlarına göre ise değerler 0,19-0,91 cm<sup>3</sup>/g arasında değişmektedir. En yüksek gözenek hacmi değeri S5 kodlu pencere camı tozundan elde edilen numunede gözlemlenirken, en

düşük değer S3 kodlu pomza tozundan elde edilen numunede gözlemlenmiştir. Gözenek boyutu sonuçları 72,322-245,52 Å değerleri arasında değişirken, en yüksek gözenek boyutu S4 kodlu zeolit tozundan elde edilen numunede ve en düşük gözenek boyutu S6 kodlu soda şişesi camından elde edilen silika aerojel tozunda olduğu tespit edilmiştir.

- Üretilen silika aerojel tozlarının gözenek boyutu dağılımı grafiklerinden soda şişesi camından elde edilen silika aerojelde gözenek boyutunun 20-160 Å (2-16 nm) aralığında olması nanoboyutta üretimin başarılı olduğunun göstergesidir. Diğer numunelerde de değerler 2-80 nm aralığında olup, tüm sentezlenen arojellerde gözenek boyutu dağılımlarının kabul edilebilir boyutlarda olduğu tespit edilmiştir.

## 6.2. Öneriler

Silika aerojel tozları yüksek yüzey alanı, iyi geliştirilmiş gözenek yapısı, düşük yoğunluğu, düşük dielektrik sabiti ve yüksek porozite gibi üstün özellikleri sayesinde birçok alanda kullanım yeri bulmaktadır. Türkiye’de silika aerojel toz üretiminin daha da artırılması ülke sanayisine önemli katkılar oluşturabilir. Mevcut tez çalışması ile paralel çalışma yapacak olan araştırmacılar için aşağıdaki önemli kriterler önerilmektedir;

- Mevcut tez çalışmasında silika aerojel tozları atmosfer basıncında kurutma yöntemi ile sentezlenmiştir. Atmosfer basıncında kurutma, nanoyapı üzerinde etki yapan kılcal kuvvetleri azaltmak ve nanoyapının bu kuvvetlere dayanma kabiliyetini arttırmak için avantaj sağlamaktadır. En büyük avantajlarından bir diğeri ise kuruma esnasında kullanılan sililasyon ajanları ile yüzey modifikasyonu sağlanarak silika aerojel tozlarına hidrofobik özellik kazandırılmıştır.
- Silika bazlı hammaddeler kullanılarak, süperkritik şartlarda kurutma ve dondurarak kurutma yöntemi ile silika aerojel tozları sentezlenerek karşılaştırılabilir. Fakat süperkritik şartlarda kurutma yönteminde yüksek basınçlarda ve yüksek sıcaklıklarda tepkimelerin gerçekleşmesi tehlikeleri de beraberinde getirebilmektedir.

- Bu çalışmada NaOH çözeltisinde silika bazlı tozlar ısıtıcı karıştırıcıda 1,5 saat boyunca 100°C'de kaynatılarak çözünmesi sağlanmıştır. Sıcaklık ve karıştırma süresi artırılarak tozların çözelti içerisinde daha çok çözünmesi ve sodyum silikat miktarının artırılması sağlanabilir.
- Jelin iskelet yapısını güçlendirmek ve bağları sağlamlaştırmak için sililasyon ajanı olarak TEOS kullanılarak jelin yaşlandırılması sağlandı. HMDZ (hexamethyldisilazane), DMDC (dimethyldichlorosilane), TMCS (trimethylchlorosilane) gibi farklı modifiye edici ajanlar kullanılarak da jelin yaşlandırılması sağlanabilir.
- Başlangıç malzemesi olarak kuvars, pomza, perlit, zeolit, pencere camı tozu, soda şişesi camı tozu ve borcam tozu kullanılarak silika aerojel üretiminin daha ekonomik olması ve çevre dostu malzemelerin sentezlenmesi sağlanmıştır. Silika kaynağı olarak mevcut çalışmadaki gibi silika oranı yüksek farklı doğal hammaddeler kullanılabilir.
- Yaşlandırma işlemi sırasında çözelti ağzı kapalı konumda oda sıcaklığında 3 gün boyunca bekletilmiş olup; yaşlanma süresi kritik noktalardan biridir. Bir diğer önemli nokta ise, jelin verimli bir şekilde distile su ile yıkanmış olmasıdır. Mevcut tez çalışmasında soda şişesi ve borcam tozundan üretilen aerojel tozlarında jellerin distile su ile yıkama işleminin yeterli olduğu ancak diğer tozlarda yıkama işleminin yetersiz olduğu ve artırılması gerektiği belirlenmiştir.
- Atmosferik şartlarda kurutma aşamasında; silika aerojel etüvde sırası ile 50, 75 ve 125°C'de 1 gün boyunca bekletilerek kurutulmuştur. Farklı sıcaklık ve etüvde bekleme sürelerinde tozların kurutulması sağlanabilir.
- Üretilen silika esaslı aerojel tozlarının termal iletkenlik katsayıları tespit edilmelidir.

## KAYNAKLAR

- [1] [www.wikipedia.org/wiki/Aerogel.](http://www.wikipedia.org/wiki/Aerogel.), Eriřim Tarihi: 24.02.2017.
- [2] [www.aerogel.org.](http://www.aerogel.org.), Eriřim Tarihi: 25.02.2017.
- [3] [www.kimyablog.com.](http://www.kimyablog.com.), Eriřim Tarihi: 02.03.2017.
- [4] Hong, C., Shuang-Xi, Y., Huai-He, S., Preparation and characterization of RF/SiO<sub>2</sub> hybrid aerogel by sol-gel method, *Advanced Materials Research*, 619-622, 2006.
- [5] [www.serious-science.org/aerogold-an-ultra-light-aerogel.](http://www.serious-science.org/aerogold-an-ultra-light-aerogel.), Eriřim Tarihi: 04.03.2017.
- [6] Balkabak, D., Karbon aerogel üretimi ve karakterizasyonu, Yüksek Lisans Tezi, Gazi Üniversitesi Fen Bilimleri Fakültesi, Kimya Mühendisliđi, 2009.
- [7] 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 Mühendisliđi, 2009.
- [8] Saquing, C.D., Kang, D., Aindow, M.C., Investigation of the supercritical deposition of platinum nanoparticles into carbon aerogels, *Microporous and Mesoporous Materials*, 11-23, 2005.
- [9] 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.
- [10] Gui-Mei, G., Da-Rui, L., Hai-Feng, Z., Lian-Chun, Z., Shu-Cai, G., Preparation of silica aerogel from oil shale ash by fluidized bed drying, *Powder Technology*, 283-287, 2010.
- [11] Huijun, Y., Xiaofeng L., Junxia W., Minmin W., Shiyuan Y., Preparation and characterization of hydrophobic silica aerogel sphere products by co-precursor method, *Solid State Sciences*, 155-162, 2015.

- [12] Yılmaz, Y., Farklı başlangıç maddeleri kullanılarak sol-jel yöntemiyle monolitik silika arojel ve silika arojel sentezi ve karakterizasyonu, Yüksek Lisans Tezi, Gazi Üniversitesi Fen Bilimleri Fakültesi, Kimya Mühendisliği, 2013.
- [13] Sam, Z., Dongliang, Z., Yen, H., Aerogel materials for aerospace, Chapter 14, 710-715, 2012.
- [14] Du, B.Z., Zhihua, Z., Jen, S., A review and reconsideration of the aerogels a special material or new state of matter, Tongji University, 941-968, 2013.
- [15] Ming, L., Hongyi, J., Dong, X., Ou, H., Wei, Z., Low density and hydrophobic silica aerogels dried under ambient pressure using a new co-precursor method, Journal of Non-Crystalline Solids, 187-193, 2016.
- [16] Michel, A., Aegerter, N.L., Matthias, M.K., Hydrophobic silica aerogels: Review of synthesis, properties and applications, Aerogel Handbook, Advances in sol-gel derived materials and technologies, 47-74, 2011.
- [17] Prapid, B.S., Jong-Kil, K., Askwar, H., Hee, T.K., Production of low density sodium silicate-based hydrophobic silica aerogels beads by a novel fast gelation process and ambient pressure drying process, Solid State Sciences, 911-918, 2010.
- [18] Dorcheh, A.S., Abbasi, M.H., Silica aerogels; synthesis, properties and characterization, Journal of Materials Processing Technology, 10-26, 2008.
- [19] Rao, A.P., Rao, A.V., Improvement in optical transmission of the ambient pressure dried hydrophobic nanostructured silica aerogels with mixed silylating agents, Journal of Non-Crystalline Solids, 2260-2271, 2009.
- [20] Radha, M., Atık sularda karbon arojel ile ağır metal tutunması, Yüksek Lisans Tezi, Gazi Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü, 53-58, 2008.
- [21] Wan, H.D., Zaitan, A.M., Mohd, N., Mohd, M., Mohd, B.B., Zainab, R., Sugeng, T., Preparation of cellulose nanocrystal aerogel from wastepaper through freeze-drying technique, 65-72, 2015.
- [22] Carolina, S.H., Silvia, C.H., Amaya, R., Jose, L.V., Sanchez-Silva, Luz., Effects of freeze-drying conditions on aerogel properties, Department of Chemical Engineering, University of Castilla La Mancha, Journal of Material Science, 8977-8985, 2016.

- [23] Kramer, T., Kremer, D.M., Pikal, M.J., Petre, W.J., Shalaev, E.Y., Gatlin, L.A., A procedure to optimize scale-up for the primary drying phase of lyophilization, 307-318, 2010.
- [24] Toygun, Ş., Köneçoğlu, G., Kalpaklı, Y., General principles of sol-gel, Yıldız Teknik Üniversitesi, Kimya-Metalurji Fakültesi, Kimya Mühendisliği Bölümü, Journal of Engineering and Natural Sciences, 2013.
- [25] Nagapriya, S., Ajith, M.R., Sreemoolanadhanb, H., Mathew, M., Sharma, S.C., Hydrophobic silica aerogels by ambient pressure drying, 476-479, 2015.
- [26] 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, 8-16, 2017.
- [27] Altın, M., Aşıkoğlu, A., Sürdürülebilir yapılarda aerojel kullanımı, DEÜ Mimarlık Fakültesi Mimarlık Bölümü, 2012.
- [28] Brunner, S., Wernery, J., Koebel, M.M., Simmler, H., High performance insulation, Laboratory for Building Energy Materials and Components, 9-11, 2015.
- [29] Brunner, S., Wakili, K.G., Koebel, M.M., Simmler, H., High performance insulation in buildings: Vacuum insulation panel and aerogel, 12-17, 2015.
- [30] [www.gelgez.net/dunyanin-en-hafif-maddesi-aerojel-nedir-aerojel-nerelerde-kullaniliyor/](http://www.gelgez.net/dunyanin-en-hafif-maddesi-aerojel-nedir-aerojel-nerelerde-kullaniliyor/), Erişim Tarihi: 08.03.2017.
- [31] Gui-Mei, G., Xue-Chun, X., Hai-Feng, Z., Gui-Juan, J., Shu-Cai, G., Microstructural and physical properties of silica aerogels based on oil shale ash, Powder Technology, 137-142, 2010.
- [32] Kumar, R.S., Vinjamur, M., Mukhopadhyay, M., A simple process to prepare silica aerogel microparticles from rice husk ash, Internatioanl Journal of Chemical Engineering and Applications, 23-28, 2013.
- [33] Nazriati, N., Heru, S., Samsudin, A., Minta, Y., Sugeng, W., Using bagasse ash as a silica source when preparing silica aerogels via ambient pressure drying, Journal of Non-Crystalline Solids, 6-11, 2014.
- [34] Iswar, S., Malfait, W.J., Balog, S., Winnefeld, F., Lattuada, M., Koebel, M.M., Effect of aging on silica aerogel properties, Microporous and mesoporous Materials, 293-302, 2016.

- [35] Jianjun, Z., Jimin, X., Xiaomeng, L., Deli, J., Synthesis and characterization of superhydrophobic silica and silica/titania aerogels by sol-gel method at ambient pressure, *Colloids and Surfaces: Physicochemical and Engineering Aspects*, 97-101, 2009.
- [36] Mahadik, D.B., Venkateswara, R.A., Parvathy, R.A., Wagh, P.B., Ingale, S.V., Satish, C.G., Effect of concentration of trimethylchlorosilane (TMCS) and hexamethyldisilazane (HMDZ) silylating agents on surface free energy of silica aerogels, *Journal of Colloid and Interface Science*, 298-302, 2011.
- [37] Jin, W., Yong, W., Weina, H., Xuotong, Z., A versatile ambient pressure drying approach to synthesize silica-based composite aerogels, *Royal Society of Chemistry*, 46-55, 2014.
- [38] [www.dogusanas.com.tr/perlit/](http://www.dogusanas.com.tr/perlit/), Erişim Tarihi: 06.06.2017.
- [39] [www.perlit.biz/insaatta-perlit/](http://www.perlit.biz/insaatta-perlit/), Erişim Tarihi: 10.07.2017.
- [40] [www.wikipedia.org/wiki/Kuvars.](http://www.wikipedia.org/wiki/Kuvars.), Erişim Tarihi: 12.07.2017.
- [41] [www.inovasilis.com/blog/kuvars-nedir.](http://www.inovasilis.com/blog/kuvars-nedir.), Erişim Tarihi: 13.07.2017.
- [42] [www.aydinlarmadencilik.com.tr/urunler/sanayi-kumlari/kuvars.](http://www.aydinlarmadencilik.com.tr/urunler/sanayi-kumlari/kuvars.), Erişim Tarihi: 04.08.2017.
- [43] [www.alsekimyamineral.com/b/zeolit.](http://www.alsekimyamineral.com/b/zeolit.), Erişim Tarihi: 13.08.2017.
- [44] [www.yoltas.net/index.php/pomza/nedr.](http://www.yoltas.net/index.php/pomza/nedr.), Erişim Tarihi: 24.08.2017.
- [45] [www.bimsblok.com/ponza-nerelerde-kullanilir.](http://www.bimsblok.com/ponza-nerelerde-kullanilir.), Erişim Tarihi: 01.09.2017.
- [46] [www.peryum.com.tr.](http://www.peryum.com.tr.), Erişim Tarihi: 10.09.2017.
- [47] [www.akvaryum.com/forum/kuvars\\_kum.](http://www.akvaryum.com/forum/kuvars_kum.), Erişim Tarihi: 01.09.2017.
- [48] [www.dergipark.gov.tr/download/article-file.](http://www.dergipark.gov.tr/download/article-file.), Erişim Tarihi: 05.09.2017.
- [49] Büyüksirt, T., Kuleşan, H., Fourier dönüşümlü kızılötesi spektroskopisi ve gıda analizlerinde kullanımı, Hitit Üniversitesi, Mühendislik Fakültesi, Gıda Mühendisliği Bölümü, 2014.
- [50] [www.biyoküre.org/fourier-transform-infrared-kizilotesi-spektroskopisi-ftir.](http://www.biyoküre.org/fourier-transform-infrared-kizilotesi-spektroskopisi-ftir.), Erişim Tarihi: 22.10.2017.
- [51] [www.selcuk.edu.tr/ileriarge.](http://www.selcuk.edu.tr/ileriarge.), Erişim Tarihi: 22.10.2017.



- [52] [www.rotalab.com.tr/urunler/elektron-mikroskoplari/alan-emisyon-taramali-elektron-mikroskobu-fesem.html](http://www.rotalab.com.tr/urunler/elektron-mikroskoplari/alan-emisyon-taramali-elektron-mikroskobu-fesem.html)., Erişim Tarihi: 24.10.2017.
- [53] [www.kimya.aku.edu.tr/wp-content/uploads/sites/termal-analiz.ppt](http://www.kimya.aku.edu.tr/wp-content/uploads/sites/termal-analiz.ppt)., Erişim Tarihi: 05.11.2017.
- [54] [www.merlab.metu.edu.tr/tr/x-isini-difraktometresi](http://www.merlab.metu.edu.tr/tr/x-isini-difraktometresi)., Erişim Tarihi: 05.11.2017.
- [55] [www.arge.erdogan.edu.tr/merlab](http://www.arge.erdogan.edu.tr/merlab)., Erişim Tarihi: 06.11.2017.
- [56] Tosun, N., Mezogözenekli katıların adsorplama özelliklerinin incelenmesi, Ankara Üniversitesi, Kimya Anabilim Dalı, 2005.
- [57] Evcin, A., Malzemelerin karakterizasyon metodları, Ders notları, Afyon Kocatepe Üniversitesi, 2016.
- [58] Parvathy, A.R., Effect of different trimethyl silylating agents on the hydrophobic and physical properties of silica aerogels, Applied Surface Science, 6902-6907, 2008.
- [59] Dongmei, H., Haijiang, B., Zhi, L., Hui, Y., Xudong, C., Synthesis and characterization of silica aerogels dried under ambient pressure bed on water glass, Journal of Non-Crystalline Solids, 58-64, 2014.
- [60] Yan, C., Maosheng, X., Feng, L., Nan, L., Chunbin, G., Cundi, W., Effect of surface modification on physical properties of silica aerogels derived from fly ash acid sludge, Colloids and Surfaces: Physicochemical and Engineering Aspects, 200-206, 2015.
- [61] Nayak, J.P., Bera, J., Preparation of silica aerogel by ambient pressure drying process using rice husk ash as raw material, The Indian Ceramic Society, 1-4, 2009.
- [62] Xiaodong, W., Maohong, F., Gang, T., Xiaodong, S., A novel low-cost method of silica aerogel fabrication using fly ash and trona ore with ambient pressure drying technique, Powder Technology, 310-322, 2018.
- [63] Ting, Z., Lunlun, G., Xudong, C., Yuelei, P., Congcong, L., Heping, Z., Preparation and characterization of silica aerogels from by-product silicon tetrachloride under ambient pressure drying, Journal of Non-Crystalline Solids, 387-393, 2018.

## ÖZGEÇMİŞ

Nazan Saraç, 31.08.1990'da Kocaeli'de doğdu. İlk ve orta öğretimini Kocaeli'de tamamladıktan sonra Yahyakaptan Atılım Anadolu Lisesi'nden 2008'de mezun oldu. 2008 yılında başladığı Atatürk Üniversitesi, Kimya Mühendisliği Bölümü'nü 2014 yılında bitirdi ve lisans eğitimi başlangıcında 1 yıl Atatürk Üniversitesi Yabancı Diller Yüksekokulunda İngilizce hazırlık eğitimi aldı. 2015 yılında Sakarya Üniversitesi, Mühendislik Fakültesi, Metalurji ve Malzeme Mühendisliği Anabilim Dalı'nda yüksek lisans eğitimine başladı. 2017 yılında Gebze'de otomotiv sektöründe, özel bir şirkette Satış Mühendisi olarak çalışmaya başladı ve yaklaşık 1 yıldır iş hayatına devam etmektedir.