



**SİLİKA AEROJEL SENTEZİNDE FARKLI KATALİZÖR KULLANIMININ
ETKİSİ VE ADSORPSİYON KAPASİTESİNİN BELİRLENMESİ**

Ayşe ENES

**YÜKSEK LİSANS TEZİ
KİMYA MÜHENDİSLİĞİ ANA BİLİM DALI**

**GAZİ ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ**

EYLÜL 2019

Ayşe ENES tarafından hazırlanan “SİLİKA AEROJEL SENTEZİNDE FARKLI KATALİZÖR KULLANIMININ ETKİSİ VE ADSORBSİYON KAPASİTESİNİN BELİRLENMESİ” adlı tez çalışması aşağıdaki jüri tarafından OY BİRLİĞİ ile Gazi Üniversitesi Kimya Mühendisliği Ana Bilim Dalında YÜKSEK LİSANS TEZİ olarak kabul edilmiştir.

Danışman: Prof. Dr. Habibe Canan CABBAR

Kimya Mühendisliği Ana Bilim Dalı, Gazi Üniversitesi

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

.....

Başkan: Prof. Dr. Süleyman KARACAN

Kimya Mühendisliği Ana Bilim Dalı, Ankara Üniversitesi

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

.....

Üye: Prof. Dr. Nursel DİLSİZ

Kimya Mühendisliği Ana Bilim Dalı, Gazi Üniversitesi

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

.....

Tez Savunma Tarihi: 12/09/2019

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

.....

Prof. Dr. Sena YAŞYERLİ

Fen Bilimleri Enstitüsü Müdürü

ETİK BEYAN

Gazi Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Tez Yazım Kurallarına uygun olarak hazırladığım bu tez çalışmada;

- Tez içinde sunduğum verileri, bilgileri ve dokümanları akademik ve etik kurallar çerçevesinde elde ettiğimi,
- Tüm bilgi, belge, değerlendirme ve sonuçları bilimsel etik ve ahlak kurallarına uygun olarak sunduğumu,
- Tez çalışmada yararlandığım eserlerin tümüne uygun atıfta bulunarak kaynak gösterdiğimi,
- Kullanılan verilerde herhangi bir değişiklik yapmadığımı,
- Bu tezde sunduğum çalışmanın özgün olduğunu,

bildirir, aksi bir durumda aleyhime doğabilecek tüm hak kayıplarını kabullendiğimi beyan ederim.

Ayşe ENES

12/09/2019

SİLİKA AEROJEL SENTEZİNDE FARKLI KATALİZÖR KULLANIMININ ETKİSİ VE ADSORPSİYON KAPASİTESİNİN BELİRLENMESİ

(Yüksek Lisans Tezi)

Ayşe ENES

GAZİ ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

Eylül 2019

ÖZET

Gözenekli malzemeler günümüzde birçok alanda kullanılmaktadır. Gözenekli maddelerin bir türü olan aerogeller; gözenekler içerisinde bulunan sıvının hava ile yer değiştirilmiş olduğu genellikle şeffaf olan katı maddelerdir. Aerogellerin, organik aerogel ve inorganik aerogel gibi türleri bulunmakla birlikte, inorganik gruba dahil olan silika aerogel sağladığı birçok nitelikli özellikten dolayı en yaygın kullanılan aerogel türüdür. Bu çalışmada, farklı katalizör kullanımının hidroforik silika aerogel sentezine etkisi incelenmiştir. Yapılan deneysel çalışmada, sol-jel yöntemiyle hidroforik silika aerogel sentezinin ilk aşamasında silika kaynağı öncül maddesi olarak tetraetilortosilikat (TEOS) kullanılarak, HCl katalizörü sabit tutulup, farklı baz katalizörler; NH_4OH , KOH , NaOH kullanılmıştır. Deneysel basamağın bu kısmında en yüksek yüzey alanı HCl-KOH asit baz çifti olarak elde edilmiştir. Yapılan diğer çalışmada ise sentezlenen hidroforik silika aerogellere farklı oranlarda genişletilmiş grafit ilave edilerek kompozit silika aerogel elde edilmiştir. Elde edilen silika aerogellere metilen mavisi adsorpsiyonunda; pH, başlangıç metilen mavisi derişimi, sıcaklık etkileri incelenmiştir. Deneysel sonuçlar; Langmuir, Freundlich ve Temkin adsorpsiyon izotermlerine uygulanmıştır. İzotermelerin Langmuire uyduğu görülmüştür. Farklı sıcaklıklarda elde edilen izoterm verileri termodinamik denklemlere uygulanmıştır ve (ΔH , ΔS ve ΔG) gibi termodinamik parametreler sırasıyla; 25,4 kJ/mol, 78,3 J/mol K, ΔG (30,40,50 °C) için sırasıyla -1,89; -0,37 ve -0,36 kJ/mol olarak belirlenmiştir.

Bilim Kodu : 91213

Anahtar Kelimeler : Silika aerogel, katalizör, adsorpsiyon, grafit

Sayfa Adedi : 91

Danışman : Prof. Dr. H. Canan CABBAR

THE EFFECT OF DIFFERENT CATALYST USAGE IN SILICA AEROLOGICAL SYNTHESIS AND DETERMINATION OF ADSORPTION CAPACITY

(M. Sc. Thesis)

Ayşe ENES

GAZİ UNIVERSITY

GRADUATE SCHOOL OF NATURAL AND APPLIED SCIENCES

September 2019

ABSTRACT

Porous materials are used in many fields today. Aerogels, a type of porous material, are generally transparent solids in which the liquid in the pores is replaced with air. Aerogels, although there are species such as organic aerogel and inorganic aerogel, silica aerogel, which is included in the inorganic group, is the most widely used aerogel type due to its many qualified properties. In this study, the effect of different catalyst usage on hydrophobic silica aerogel synthesis was investigated. In the experimental study, in the first stage of hydrophobic silica aerogel synthesis by sol-gel method, tetraethylorthosilicate (TEOS) was used as the precursor of silica source. NH_4OH , KOH , NaOH were used. In this part of the experimental step, the highest surface area was obtained as HCl-KOH acid base pair. In the other study, composite silica aerogel was obtained by adding expanded graphite in different ratios to the synthesized hydrophobic silica aerogels. The obtained silica was adsorbed to aerogels in methylene blue; pH, initial methylene blue concentration, temperature effects were investigated. Experimental results; Langmuir, Freundlich and Temkin adsorption isotherms. The isotherms were found to confirm to Langmuire. Isotherm data obtained at different temperatures were applied to thermodynamic equations and thermodynamic parameters such as (ΔH , ΔS and ΔG); 25.4 kJ / mol, 78.3 J / mol K, -1.89, -0.37 and -0.36 kJ / mol for ΔG (30,40,50 °C) respectively.

Science Code : 91213

Key Words : Silica aerogel, catalyst, adsorption, graphite

Page Number : 91

Supervisor : Prof. Dr. H. Canan CABBAR

TEŞEKKÜR

Tez çalışmalarım boyunca bilgi ve tecrübeleriyle beni yönlendiren, her konuda desteğini esirgemeyen değerli hocam Prof. Dr. H. Canan CABBAR başta olmak üzere,

Deneyisel ve analiz çalışmalarında bilgi ve deneyimlerinden yararlandığım ve benden yardımlarını esirgemeyen değerli hocam Dr. Müjgan Telli Okur'a,

Bilgi ve deneyimlerinden yararlandığım değerli hocam Dr. Alpay ŞAHİN'e,

Lisans ve yüksek lisans hayatımda bilgilerinden faydalandığım değerli hocam Dr. H. Mehmet TAŞDEMİR'e,

Maddi manevi benden desteğini esirgemeyen ve her kararında yanımda olan değerli eşim Sinan ENES'e,

Motivasyon kaynağım, hayat ışığım ve biricik kızım Neris Zeynep ENES'e,

Her zaman yanımda olduklarını hissettiren değerli AİLELERİME,

Sonsuz teşekkürlerimi sunarım.

İÇİNDEKİLER

	Sayfa
ÖZET	iv
ABSTRACT.....	v
TEŞEKKÜR.....	vi
İÇİNDEKİLER	vii
ÇİZELGELERİN LİSTESİ.....	x
ŞEKİLLERİN LİSTESİ.....	xi
RESİMLERİN LİSTESİ	xiii
SİMGELER VE KISALTMALAR.....	xiv
1. GİRİŞ.....	1
2. GÖZENEKLİ MALZEMELER	3
3. AEROJELLER.....	5
3.1. Silika Aerojellerin Fiziksel ve Kimyasal Özellikleri	6
4. SOL-JEL YÖNTEMİ	9
4.1. Sol-Jel Yönteminde Ortaya Çıkan Kimyasal Reaksiyonlar ve Yöntem Basamakları.....	10
4.2. Sol-Jel Prosesi Avantajları	12
4.3. Sol-Jel Prosesi Dezavantajları.....	12
5. BOYA VE BOYARMADDE.....	15
6. ADSORPSİYON	17
6.1. Adsorpsiyon Türleri	17
6.2. Adsorpsiyon İzotermi.....	18
6.3. Adsorpsiyon Termodinamiği	20
7. KARAKTERİZASYONDA KULLANILAN CİHAZLARIN ÇALIŞMA PRENSİBİ.....	21
7.1. N ₂ Adsorpsiyon Analizi	21

	Sayfa
7.2. FTIR Analizi	22
7.3. Adsorpsiyon Deneylerinde Kullanılan UV-VIS Spektrometresi	24
7.4. Temas Açısı Analizi	24
8. LİTERATÜR ARAŞTIRMASI	25
9. DENEYSEL YÖNTEM.....	33
9.1.Kullanılan Başlangıç Malzemeleri	33
9.2. Silika Aerojel Sentezi.....	34
9.3. Adsorpsiyon Deneyleri.....	40
9.3.1. Dalga Boyu Taraması	40
9.3.2. Kalibrasyon Eğrisi Çizilmesi	40
9.3.3. Denge Süresinin Belirlenmesi	40
9.3.4. Adsorpsiyonu Etkileyen Değişkenlerin Belirlenmesi.....	41
10. DENEYSEL BULGULAR.....	43
10.1. Silika Aerojel Sentezine Farklı Katalizör Kullanımının Etkisi.....	43
10.2. Değiştirilen Baz Katalizörün Silika Aerojellere Etkisi	43
10.3. GenişletilmişGrafite Katkılı Hidrofobik Silika Aerojel Eldesi.....	47
10.4. Adsorpsiyon Kapasite Ölçümü İçin Uygulanan Deneysel Yöntem.....	48
10.5. Metilen Mavisi Boyar Maddesinin Dalga Boyu Taraması	48
10.6. Stok Çözelti Hazırlanması ve Kalibrasyon Grafiği.....	49
10.7. Metilen Mavisi Çözeltisinin Adsorpsiyonu İçin Denge Sürelerinin Belirlenmesi	50
10.8. Metilen Mavisinin Saf Silika Aerojel ve Genişletilmiş Grafite Katkılı Silika Aerojel İle Adsorpsiyonunda pH Etkisinin İncelenmesi	52
10.9. Metilen Mavisinin Silika Aerojel ile Gideriminde Başlangıç Metilen Mavisi Derişiminin Etkisinin İncelenmesi.....	54
10.10. Metilen Mavisinin Silika Aerojel ile Gideriminde Sıcaklık Etkisinin İncelenmesi	55
10.11. Metilen Mavisi Denge Verilerinin Adsorpsiyon İzotermine Uygulanması	56

	Sayfa
10.12. Metilen Mavisi Adsorpsiyonun Termodinamik İncelenmesi.....	63
11. SONUÇLAR VE ÖNERİLER.....	65
KAYNAKLAR	67
EKLER.....	73
EK-1. FTIR spektrumları ve BET grafikleri.....	74
EK-2. Metilen mavisinin silika ile adsorpsiyonun denge süresi değerleri.....	76
EK-3. Çeşitli pH değerlerinde metilen mavisi çözeltisinin saf silika aerjel ve grafit katkı silika aerjel ile adsorpsiyonun % giderim ve kapasite değerleri	80
EK-4. Çeşitli başlangıç metilen mavisi derişimlerinde silika aerjel adsorpsiyonunun % giderim ve kapasite verileri.....	81
EK-5. Metilen mavisinin silika aerjel ile adsorpsiyonuna sıcaklık etkisi	82
EK-6. Metilen mavisi adsorpsiyonu için langmuir izotermi verileri	85
EK-7. Metilen mavisi adsorpsiyonu için langmuir izotermi model parametreleri	86
EK-8. Langmuir izoterminden hesaplanan $q_{e,hes}$ ve $q_{e,den}$ değerleri	87
EK-9. Metilen mavisi adsorpsiyonun freundlich izotermi verileri	88
EK-10. Metilen mavisi adsorpsiyonun temkin izotermi verileri	89
EK-11. Metilen mavisi adsorpsiyonun termodinamik verilerin hesaplandığı veriler.....	90
ÖZGEÇMİŞ	91

ÇİZELGELERİN LİSTESİ

Çizelge	Sayfa
Çizelge 6.1. Fiziksel ve kimyasal adsorpsiyonun karşılaştırılması.....	17
Çizelge 9.1. Katalizör çeşitleri ve jelleşme.....	36
Çizelge 9.2. Grafit katkılı silika aerogeller ve jelleşme.....	38
Çizelge 10.1. Katalizör değiştirilerek elde edilen silika aerogellerin FTIR spektrum değerleri.....	44
Çizelge 10.2. Katalizör değiştirilerek elde edilen silika aerogellerin BET yüzey alanları ve ortalama gözenek çapı değerleri.....	46
Çizelge 10.3. Genişletilmiş grafit katkılı silika aerogellerin ve genişletilmiş grafitin BET yüzey alanları ve ortalama gözenek çapı değerleri.....	48
Çizelge 10.4. Molaritelere karşı ölçülen absorpsiyon değerleri	49
Çizelge 10.5. Farklı sıcaklıklarda denge modellerinin korelasyon katsayısı.....	61
Çizelge 10.6. Bulunan termodinamik parametreler	64

ŞEKİLLERİN LİSTESİ

Şekil	Sayfa
Şekil 4.1. Sol-jel basamaklarının reaksiyonlarının gösterimi	11
Şekil 10.1. N1 Numunesinin FTIR Spektrumu.....	43
Şekil 10.2. N1 numunesinin BET adsorpsiyon grafiği	44
Şekil 10.3. N2 numunesinin BET adsorpsiyon grafiği	45
Şekil 10.4. N3 numunesinin BET adsorpsiyon grafiği	45
Şekil 10.5. Katalizör cinsinin yüzey alanına etkisi	46
Şekil 10.6. Katalizör cinsinin ortalama gözenek çapına etkisi	46
Şekil 10.7. N4 numunesi FTIR spektrumu	47
Şekil 10.8. Metilen mavisinin 300-700 nm arasındaki dalga boyu taraması	49
Şekil 10.9. Metilen mavisi için kalibrasyon eğrisi.....	50
Şekil 10.10. Metilen mavi çözeltisinin N1 numunesi ile adsorpsiyonunun zamana bağlı olarak derişim değışimi ($T= 25^{\circ}\text{C}$, $\text{Co}= 5 \text{ ppm}$; $m_{\text{adsorbent}}= 0,1 \text{ gr}$; Karıştırma hızı $97= 97 \text{ rpm}$)	51
Şekil 10.11. Metilen mavi çözeltisinin N4 numunesi ile adsorpsiyonunun zamana bağlı olarak derişim değışimi ($T= 25^{\circ}\text{C}$, $\text{Co}= 5 \text{ ppm}$; $m_{\text{adsorbent}}= 0,1 \text{ gr}$; Karıştırma hızı $= 97 \text{ rpm}$)	51
Şekil 10.12. Metilen mavi çözeltisinin N5 numunesi ile adsorpsiyonunun zamana bağlı olarak derişim değışimi ($T= 30^{\circ}\text{C}$, $\text{Co}= 5 \text{ ppm}$; $m_{\text{adsorbent}}= 0,1 \text{ gr}$; Karıştırma hızı $= 97 \text{ rpm}$)	52
Şekil 10.13. Farklı pH değerlerinde silika arojel ile adsorblanan metilen mavisinin % giderim ve kapasite değerleri ($T= 30^{\circ}\text{C}$, $\text{Co}= 5 \text{ ppm}$; $m_{\text{adsorbent}}= 0,1 \text{ gr}$; Karıştırma hızı $= 97 \text{ rpm}$)	53
Şekil 10.14. Farklı pH değerlerinde grafit katkılı silika arojel ile adsorblanan metilen mavisinin % giderim ve kapasite değerleri ($T= 30^{\circ}\text{C}$, $\text{Co}= 5 \text{ ppm}$; $m_{\text{adsorbent}}= 0,1 \text{ gr}$; Karıştırma hızı $= 97 \text{ rpm}$)	54
Şekil 10.15. Farklı başlangıç metilen mavisi derişimlerinde N1 numunesi ile adsorpsiyonunun % giderim ve kapasite değerleri ($T= 30^{\circ}\text{C}$, $m_{\text{adsorbent}}= 0,1 \text{ gr}$; $\text{pH}=9$, karıştırma hızı $= 97 \text{ rpm}$).....	54
Şekil 10.16. Farklı sıcaklıklarda metilen mavisi ile silika arojelin % giderim ve kapasite değerleri ($\text{Co}= 12 \text{ ppm}$, $\text{pH}=9$, karıştırma hızı $= 97 \text{ rpm}$)	55

Şekil	Sayfa
Şekil 10.17. Metilen mavisi adsorpsiyonun 30 °C sıcaklıktaki Langmuir izoterminin 57	57
Şekil 10.18. Metilen mavisi adsorpsiyonun 40 °C sıcaklıktaki Langmuir izoterminin 57	57
Şekil 10.19. Metilen mavisi adsorpsiyonun 50 °C sıcaklıktaki Langmuir izoterminin 58	58
Şekil 10.20. Metilen mavisi adsorpsiyonun 30 °C sıcaklıktaki Freundlich izoterminin 58	58
Şekil 10.21. Metilen mavisi adsorpsiyonun 40 °C sıcaklıktaki Freundlich izoterminin 59	59
Şekil 10.22. Metilen mavisi adsorpsiyonun 50 °C sıcaklıktaki Freundlich izoterminin 59	59
Şekil 10.23. Metilen mavisi adsorpsiyonun 30 °C sıcaklıktaki Temkin izoterminin 60	60
Şekil 10.24. Metilen mavisi adsorpsiyonun 40 °C sıcaklıktaki Temkin izoterminin 60	60
Şekil 10.25. Metilen mavisi adsorpsiyonun 50 °C sıcaklıktaki Temkin izoterminin 61	61
Şekil 10.26. Korelasyon katsayıları ve izotermi 62	62
Şekil 10.27. Metilen mavisi çözeltisi için (1/T) değerlerine karşı Langmuir modelinden elde edilen sabitleri kullanarak çizilen grafik 64	64

RESİMLERİN LİSTESİ

Resim	Sayfa
Resim 5.1. Metilen mavisi	16
Resim 7.1. N ₂ adsorpsiyon analiz cihazı.....	22
Resim 7.2. Graseby Specac marka pres cihazı	23
Resim 7.3. JASCO marka FTIR cihazı.....	23
Resim 7.4. UV-VIS Spektrometresi.....	24
Resim 9.1. Silika aerogel sentezi deneysel prosedür	35
Resim 9.2. Manyetik karıştırıcı üzerindeki numune.....	35
Resim 9.3. Jelleşmesi tamamlanan numune	36
Resim 9.4. Silika aerogelin yaşlandırılması aşaması.....	37
Resim 9.5. Kurutmadan sonra silika aerogel numunesi.....	37
Resim 9.6. Silika- grafit kompozit madde şematik gösterimi.....	38
Resim 9.7. Jelleşmesi tamamlanan genişletilmiş grafit katkılı numune	39
Resim 9.8. Kurutması tamamlanan genişletilmiş grafit katkılı numune.....	39
Resim 9.8. Karıştırılmalı su banyosu ve numuneler	41
Resim 9.9. Farklı derişimlerde hazırlanan metilen mavisi çözeltisi	42

SİMGELER VE KISALTMALAR

Bu çalışmada kullanılmış simgeler ve kısaltmalar, açıklamaları ile birlikte aşağıda sunulmuştur.

Simgeler	Açıklamalar
A_t	Denge bağlanma sabiti (L/mg^{-1})
b	Adsorpsiyon enerjisine ilişkin sabit
B	Adsorpsiyon ısısı
C	BET sabiti
C_e	Dengede adsorplanmadan çözeltide kalan çözünen derişimi (mg/L)
q_e	Denge anında adsorblanan miktar (mg/g)
q_s	Adsorblayıcının tek tabaka adsorblanması kapasitesi
K_f	Adsorpsiyon kapasitesi
n	Adsorpsiyon şiddeti
R	Evrensel gaz sabiti ($J/mol K$)
T	Mutlak sıcaklık (K),

Kısaltmalar	Açıklamalar
BET	Brunauer, Emmett ve Teller teorisi
FTIR	Fourier kızılötesi spektroskopi
HMDSO	Heksametildisiloksan
HMDZ	Heksametildisilan
IUPAC	International Union of Pure and Applied Chemistry
TEOS	Tetraetilortosilikat
TMCS	Trimetilklorosilan

1. GİRİŞ

Aerogeller bugüne kadar tanımlanmış en hafif ve en düşük yoğunluklu katı malzemelerdir [1]. Gözeneklerin içinde bulunan sıvının hava ile yer değiştirilmesiyle türetilmiştir [2]. Aerogeller, oldukça gözenekli bir yapı oluşturmak üzere bir araya getirilmiş, nanoparçacık yapı taşlarından oluşan, düşük yoğunluklu, şeffaf, hidrofobik veya hidrofilik ısı yalıtım malzemesidir. Katalizör ve ısı yalıtımı uygulamaları açısından çok verimlidir [3].

Silika aerogeller; yüksek yüzey alanı ($500\text{--}1200\text{ m}^2/\text{g}$), düşük özkütle ($0.003\text{--}0.1\text{ g/cm}^3$), düşük dielektrik sabiti ($0.013\text{--}0.04\text{ W/m k}$)'ne sahip nano gözenekli materyallerdir. Termal, akustik, elektronik ve katalitik olmak üzere birçok alanda uygulamaya sahiptirler [4].

Silika aerogel üretimi için sol-jel yöntemi kullanılmaktadır. Bu yöntem ile dört aşamada sentez işlemi gerçekleşmektedir. İlk olarak sol çözeltisi hazırlanmakta, daha sonra katalizör eklenerek jelleşme oluşmaktadır. Sonraki aşamada aerogelin sağlamlığını artırmak için yaşlandırma işlemi uygulanmaktadır. Son aşamada ise jelin yığın haline gelmesini engellemek için kurutma işlemi gerçekleştirilmektedir. Silika aerogellerin farklı özellik göstermesi birçok parametreye bağlıdır. Bunlar; farklı silika kaynakları, pH dereceleri, kurutma sıcaklıkları ve sentez sırasında kullanılan farklı katalizörlerdir.

Bu çalışmada, ilk olarak farklı katalizör kullanımının hidrofobik silika aerogel sentezine etkisi incelenmiştir. Yapılan işlemin ilk aşamasında silika kaynağı öncül maddesi olarak tetraetilortosilikat (TEOS) kullanılarak HCl katalizörü sabit tutulup, farklı baz katalizörler; NH_4OH , KOH , NaOH kullanılmıştır. En yüksek yüzey alan değeri ölçülen asit-baz çifti ile deneyin ikinci kısmına geçilmiştir.

Deneyin bu kısmında HCl-KOH katalizör çifti ile sentezlenen hidrofobik silika aerogellere genişletilmiş grafit katkısı ilave edilerek kompozit madde oluşturulmuştur. Sentezlenen saf silika ve genişletilmiş grafit katkılı silikanın yüzey alanı ve adsorpsiyon özellikleri incelenmiştir.

Mevcut tez çalışması kapsamında adsorpsiyonu etkileyen; pH, başlangıç metilen mavisi derişimi ve sıcaklık parametreleri incelenmiştir.

Metilen mavisi adsorpsiyonunun denge verileri Langmuir, Freundlich ve Temkin modellerine uygulanarak, elde edilen grafiklerle modellere olan uyumluluđu incelenmiş ve gerçekleştirilen adsorpsiyon işlemini en uygun şekilde tanımlayan model tespit edilmiştir. Tez çalışmasının son kısmında ise adsorpsiyon işlemine ait termodinamik çalışma yapılmıştır. Bu kapsamda; entalpi değışimi, entropi değışimi, serbest enerji değışimi hesaplanmıştır.



2. GÖZENEKLİ MALZEMELER

İçerisinde atomik, moleküler ve nanometre boyutunda boşlukların bulunması ve bunların kontrol edilebilir olması, moleküler ve kümeleşmiş boyutta ayırım yaparak reaksiyona girmelerini sağlamaları gözenekli maddeleri bilimsel ve teknolojik açıdan çok önemli bir yere taşımıştır. Gözenekli malzemeleri farklı ve özgün kılan en önemli nokta gözenek içindeki boşluktur. Gözenekli malzemeler; gözenek boyutlarında; uluslararası standart IUPAC (Uluslararası Temel ve Uygulamalı Kimya Birliği); tanımına göre üç farklı kategoride sınıflandırılmıştır. Çapları 2 nm'den küçük olan mikro, 2 ile 50 nm arasındaki değerler mezo ve 50 nm' den büyük olanlar ise makro gözenek olarak adlandırılmıştır [5].

Gözenekli malzemeler geniş kullanım alanına sahiptir. Bunlardan bazıları; süper kapasitörler; katalizör yapımı, ayırma teknolojileri; ilaç üretimi, çevresel iyileştirme; suyun tuzdan arınması, saflaştırılması ve ayrılması; optik sensörler, elektronik ve manyetik cihazlardır.

Sentetik ve doğal olarak bilinen gözenekli malzemeler; aktif karbon, zeolitler, silikatlar, polimerler ve inorganik gözenekli hibrit malzemelerdir.

Doğada başta magnezit, profilit, trono ve tuz olmak üzere yaklaşık 30 tane doğal gözenekli malzeme görülmektedir. Doğal gözenekli maddelerin safsızlık oranlarının yüksek olması ve gözenek boyutlarının genellikle istenilen ölçülerde olmaması gibi dezavantajlarının bulunmaktadır. Bununla birlikte doğada kolayca bulunabilmesi ve kullanımının çok ekonomik olması yönüyle tercih edilmektedir. Gözenek çapı oldukça küçük olduğundan teknolojik uygulamalarla istenilen boyutta gözeneklere sahip yeni malzemeler sentezlenebilmektedir.

Yapay gözenekli malzemelerin kullanım maliyeti yüksektir. Bu şekilde olmasına rağmen farklı karakteristik özelliklerde sentezlenebildiklerinden tercih edilebilmektedirler. Yapay gözenekli malzemeler Al ve Si yapıdadırlar. Başlıca kullanıma sahip yapay gözenekli malzemeler arasında zeolitler, aktif karbonlar, karbon aerogeller ve silika aerogeller de yer almaktadır. Bunlardan zeolitlerin gözenek boyutları eş çapa sahiptir. Aktif karbonlar ise büyük molekülü karbon yapıların havasız ortamda yanması sonucu oluşmaktadır. Karbon

içindeki uçucu organik bileşikler yüksek sıcaklıklarda ayrılır ve malzemede boşluklar bırakır. İstenilen gözenekler bu şekilde elde edilmektedir.



3. AEROJELLER

Aerojel, üç boyutlu bir sürekli ağa sahip amorf malzemeler oluşturan çok sayıda nanoparçacık içeren son derece hafif bir gözenekli malzemedir [6-7]. Düşük yoğunluk, yüksek yüzey alanı, düşük ısı iletkenliği gibi benzersiz özelliklere sahip özel yapılardır. Bu özelliklerinden ötürü havacılık endüstrisi , yalıtım ve kirlilik temizleme alanlarında yoğun kullanıma sahiptir.

Aerogeller ilk olarak 1932 yılında silika, alümina, tungstik oksit, ferrik oksit ve stannik oksit gibi çeşitli inorganik aerogeller sentezleyen Samuel Kistler tarafından sentezlenmiştir [8]. Çok çeşitli aerogel bulunmakla birlikte; silika aerogel, karbon aerogel, hibrit aerogel, grafen ve grafit katkılı silika aerogel gibi maddelerle üretilmiş silika aerogeller yaygın olarak kullanılmaktadır.

Silika aerogel, geniş uygulama alanına sahip eşsiz bir malzemedir. Kırılma endeksleri ve düşük dielektrik sabitleri nedeniyle elektronik ve optik uygulamalar için uygundur. Silika aerogelde, çok çeşitli bileşikler için sorbent olarak kullanılmasına izin veren benzersiz özellikler bulunmaktadır [9-11].

Silika aerogelin en önemli özelliği, hidrofobik ve hidrofilik özellikte olmasına göre yüzey kutuplarının kontrol edilebilirliğidir [12]. Yüzey alanının yüksek oluşu, gözenekli ve hidrofobik olması sebepleriyle de ideal bir sorbent olarak kullanılmaktadır [13].

Karbon bazlı aerogeller, üç boyutlu yapılara sahip birincil parçacık ağına sahiptir. Karbon bazlı aerogeller yoğunluk, yüksek elektrik iletkenliği, yüksek gözeneklilik ve yüksek yüzey alanına sahiptir [14]. Karbon aerogelleri ilk olarak 1980'de organik aerogellerin üretimini değiştirerek ek bir adım ekleyerek üretildi. Karbonizasyon yada piroliz adı verilen bu yeni aşamayla, organik aerojele azot veya argon gibi inert bir gaz içerisinde 1000 °C' nin üzerindeki bir sıcaklıkta işlem görerek üretilmiştir [15].

Hibrit aerogeller; organik ve inorganik aerogellerin sol-jel tekniği kullanılarak , bir silika matrisi ile silikon makromoleküllerin birleştirilmesi için kullanılmasıyla elde edilmiştir [16].

Grafen aerogel; 2004 yılında bilim insanı Novoselov tarafından keşfedilmiş olan grafen,

özellikleri nedeniyle ilgi çekmiştir [17]. Grafen; nano elektronik, sensörler, enerji depolama, kataliz ve biyotıp gibi bir çok alanda kullanılmaktadır [18].

Grafit katkılı silika aerogel ise, doğal termal iletkenliğe sahip olması nedeniyle, özellikle ısı yalıtım sistemlerinde, grafit katkılı silika aerogel kullanılması yönünde araştırmalar yapılmaya başlanmıştır [19].

3.1. Silika Aerogellerin Fiziksel ve Kimyasal Özellikleri

Silika aerogellerin fiziksel ve kimyasal özellikleri aşağıda verilmektedir.

Yoğunluk

Silika aerogellerin yoğunluğu hesaplanırken; aerogellerin hacmi ve aerogellerdeki hacim büzülmesi kullanılmaktadır. Helyum piknometresi ile ölçüm yapılabilmektedir [20]. Silika aerogellerin yoğunluğu oldukça düşük, hatta havanın yoğunluğuna yakın olacak değerlerdedir.

Gözenek yapısı

Silika aerogeller üç (mikro, mezo, makro) gözenek boyutuna da sahip olmakla birlikte yaygın olarak mezo gözenekli yapı sergilerler. Gözenek boyutu 5-100 nm civarında, gözenek çapı 20-40 nm ve BET yüzey alanı 600-1000 m² olacak şekilde gözeneklilik %99 'a kadar çıkabilmektedir [20].

Hidrofobik - hidrofilik yapısı

Hidrofobiklik su tutmayan, emmeyen anlamında kullanılmaktadır. Hidrofilik malzeme su tutan, su emen (ağırlıkça suyu % 50 üzerinde emebilen) malzemeler olarak tanımlanmaktadır.

Aerogellerin hidrofobik veya hidrofilik karakterleri sentezlenme koşullarına bağlı olarak değişmektedir. Kurutma prosesi esnasında farklı yüzey gruplarının oluşması sentezlenen aerogellerin farklı karakterler sergilemesine neden olur. Genel olarak aerogellere CO₂ ile düşük sıcaklıkta kurutma yapıldığında hidrofilik, yüksek sıcaklıklarda süper kritik kurutma

yapıldığında hidrofobik özellik kazandırılmaktadır. Aerojel yapısındaki polar silanol (Si-OH) grubu suyu adsorplanmaya teşvik ettiğinden hidrofilik kaynağı olarak bilinmektedir.

Aerojellerin hidrofobik veya hidrofilik karakterleri temas açısı analizi ile belirlenebilir. Temas açısı, yatay ve düz bir düzlem üzerinde duran katı üzerine bir sıvı damlası damlatarak ölçülür.

Aerojellerin hidrofobikliği jelleşme esnasında veya ortam basıncında yapılan kurutma aşamasında ajan ekleyerek, kurutma işleminden sonra malzemeye yüzey modifikasyonu işlemi uygulayarak artırılabilir [20].

Silika aerojel sentezinde başlangıç maddesi olarak TEOS, yüzey modifikasyon maddesi olarak trimetilklorosilan (TMCS) kullanılarak hidrofobik silika aerojel ortam basıncında elde edilmesi verilebilir [21].

Termal iletkenlik

Silika aerojeller, çoğunlukla havadan daha düşük termal iletkenlik katsayısına sahiptirler. Çevre basıncında üretilen aerojelin ısı iletkenliği yaklaşık olarak 0,02 W/m.K olarak bulunmuştur [20].

Optik özellikler

Çeşitli başlangıç maddeleri kullanarak üretilen silika aerojeller farklı şeffaf özellik gösterebilmektedir. Silika aerojelin şeffaf olma özelliği, yüksek enerji fiziği alanında çalışan bilim insanları tarafından Cherenkov radyasyon dedektörlerinde geniş bir kullanım alanı bulmaktadır [20].



4. SOL-JEL YÖNTEMİ

Sol- jel prosesinde ilk aşama solün oluşumudur. Sol-jel reaksiyonu genellikle dört aşamada gerçekleşmektedir. Bunlar; bir koloidal toz çözeltisinin jelleşmesi, alkoksit veya nitrat öncüllerinin hidrolizi ve polikondensasyonu sonrası jellerin superkritik kurutulması, alkoksit öncüllerinin hidrolizi ve polikondensasyonunu takiben ortam atmosferleri altında yaşlanma ve kurutmadır.

Sol, bir sıvıda kolloidal parçacıkların dispersiyonlarıdır. Kolloidler 1-100 nm çapında katı partiküllerdir. Bir jel, alt mikrometre boyutlarına ve polimerik gözeneklere sahip, birbirine bağlı, sert bir ağıdır. Ortalama uzunluğu bir mikrometreden büyük olan zincirlerdir. "Jel" terimi, Flory tarafından tartışıldığı gibi dört kategoride sınıflandırılabilen çeşitli madde kombinasyonlarını da kapsar:

- (1) iyi sıralanmış tabaka halinde yapılar,
- (2) tamamen kovalent polimerik ağlar,
- (3) baskın olarak düzensiz bir şekilde oluşan fiziksel ağlanma yoluyla oluşturulmuş polimer ağları;
- (4) belirli düzensiz yapılar [22].

Sol-jel prosesinde , çözücü maddenin cinsine göre farklı isim almaktadır. Bunlar; çözücü madde olarak su kullanıldığında aquajel, alkol kullanıldığında ise alkojel olarak bilinmektedir. Sıvı içerikli olan jelden, çevresel şartlarda gerçekleştirilen kurutma ile ya da süperkritik kurutma sayesinde çıkarılabilir. Sonuç olarak ürünler, sırayla xaerojel ve arojel olarak adlandırılır [23].

4.1. Sol-Jel Yönteminde Ortaya Çıkan Kimyasal Reaksiyonlar ve Yöntem Basamakları

Sol-jel yöntemi basamakları

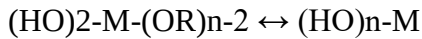
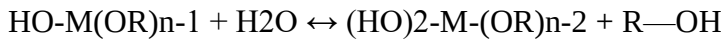
Sol-jel yöntemi genel olarak 4 temel basamaktan oluşmaktadır. Bunlar sol çözeltisinin hazırlanması, jel kısmının hazırlanması, oluşan jelin yaşlandırması (kuvvetlendirilmesi) ve son olarak çözücünün uzaklaştırılması (kurutma) basamağıdır.

Karıştırma

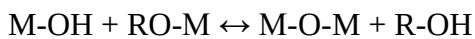
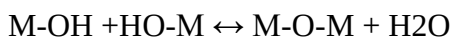
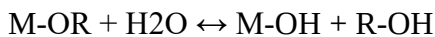
Sol-jel yönteminde kimyasal reaksiyonların başlangıcında; gerekli pH özellikleri oluşturularak sol çözeltisinin su içerisinde karıştırılması sağlanmaktadır [24].

Hidroliz ve kondenzasyon

Sol-jel yönteminde ilk olarak başlangıç maddelerinin homojen çözeltileri hazırlanır. Alkoksit su eklenip, karıştırılmasıyla hidroliz işlemi oluşur. Alkoksitler (Si(OR)_4) sıvı içerisinde karıştırılarak hidroliz basamağı gerçekleştirilmektedir. R alkil grubunu ifade etmektedir. Bunlar; CH_3 , C_2H_5 , ve C_3H_7 gibi moleküllerdir. Hidroliz reaksiyonunun basamakları aşağıdaki gibidir.



Kondenzasyon reaksiyonu ise aşağıdaki gibidir.

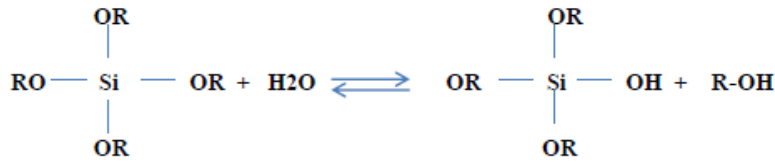


Sol-jel yöntemi gözeneklilik, yüzey alanı, polarite gibi özellikler hidroliz ve kondenzasyon

reaksiyonlarının ilerlemesine bağlıdır ayrıca ön başlatıcı seçimi, ön başlatıcı mol oranı, çözücü ve eş çözücü, basınç, sıcaklık, yaşlanma, kurutma ve kalsinasyon koşullarından da etkilenir [25].

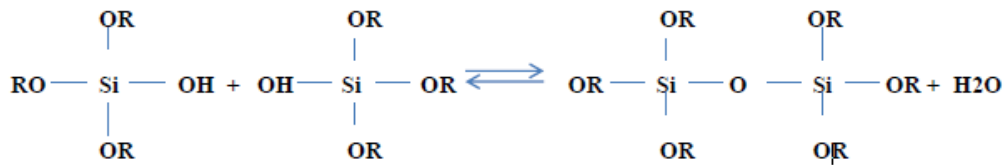
Reaksiyonların gösterimi aşağıda Şekil 4.1 'de gösterilmektedir.

Basamak 1: Hidroliz

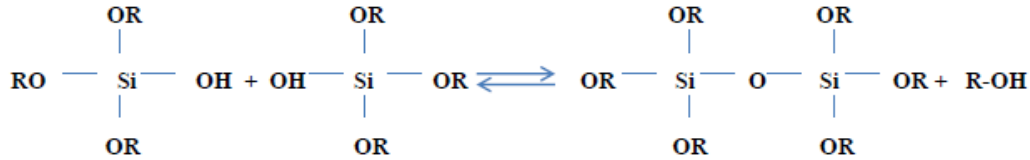


Basamak 2: Kondenzasyon

a) Su kondenzasyonu



b) Alkol kondenzasyonu



R: alkil grubu, TEOS için R: -CH₂CH₃

Şekil 4.1. Sol-jel basamaklarının reaksiyonlarının gösterimi

Yaşlandırma

Yaşlandırma işlemi, ağa yeni monomerlerin eklenmesi ve çapraz bağ derecesinin artmasıdır. Yaşlanma sırasında oluşan aerogelin katılık ve mukavemet değeri artmakta ve jel bağları kuvvetlenmektedir. Yaşlandırma süresi kuruma sırasında büzölmeler olmasın diye minimumda tutulmaya çalışılır [26].

Kurutma

Kurutma işleminin yapılmasındaki amaç ise jel yapısının yığılmasına engel olmak, jelin iskelet yapısını korumak ve büzülmeyi en aza indirmektir. Bu amaçla çözücüğü jelden uzaklaştırmak gerekir. Kurutma, atmosfer basıncında yapılan kurutma ve süper kritik kurutma, dondurularak veya mikrodalga yöntemiyle yapılmaktadır.

4.2. Sol-Jel Prosesi Avantajları

- Sol-jel yöntemi, yeni malzemelerin hazırlanmasında yeni bir yaklaşım sağlar.
- Bu proses katıların sentezi sırasında yer alan tüm reaksiyonların daha iyi kontrol edilmesini sağlar.
- Homojen çok bileşenli, özellikle homojen karışık moleküller kolayca elde edilebilir [27].
- Düşük sıcaklıklar kullanılır.
- Çok ince tozlar oluşturulabilmektedir.
- Katı hal füzyonu ile mümkün olmayan kompozisyonlar üretir [28].
- Sentezde kullanılan ön başlangıç maddeleri çoğu zaman uçucudur ve uçucu olması nedeniyle kolayca saflaştırılarak yüksek saflıkta ürün elde edilebilmektedir.
- Yaşlandırma ve kurutma basamakları kontrol edilerek mekanik mukavemet değiştirilebilmektedir.
- Silika arojel çevre ile dost bir malzemedir.

4.3. Sol-Jel Prosesi Dezavantajları

- Kurutma sırasında genellikle büyük miktarda büzülme ve çatlama olur.
- Sentez sırasında, kullanılan malzemelerinde nem tutmaları, büyük ölçekte ticari üretimi

kısıtlamaktadır.

-Prosesin aşamaları uzun sürdüğünden, her aşamada dikkatli bir gözlem gerektirmektedir.

-Aşamalardaki küçük farklar dahi sonuç ürünü etkileyebilmektedir [29].

-Kurutma maliyeti yüksek olabilmektedir.

-Yüksek sıcaklıklarda çalışıldığında ani olarak patlama görülebilmektedir.





5. BOYA VE BOYARMADDE

Boya; bir bağlayıcı ile karışmış ama çözünmemiş karışımlardır. Boyalar, tekstil, kağıt, kağıt hamuru gibi sektörlerde yaygın olarak kullanılmaktadır.

Boyaların çoğu ekolojik sistem için ciddi problemler doğurmaktadır. Boyaların uzaklaştırılması için etkin verimli yöntem sulu atık maddeleri adsorpsiyon işlemidir [30].

Boyar madde; cisimlere renkli özellik kazandırmak için uygulanan maddelerdir.

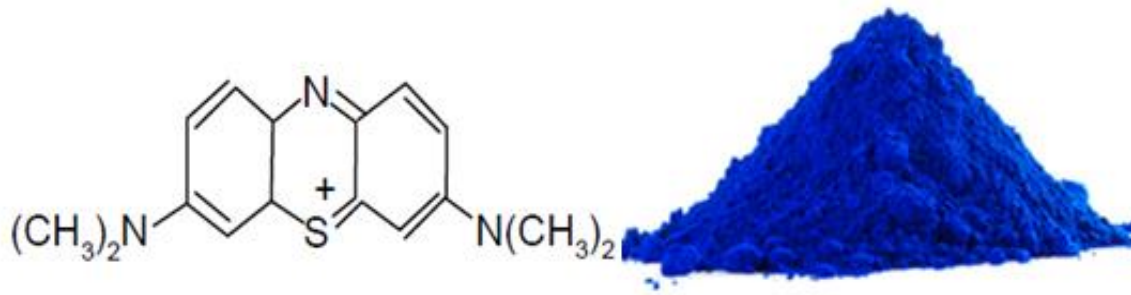
Boyar maddelerden renklendirme için en yaygın olarak kullanılan maddelerden biri de metilen mavisidir.

Metilen mavisi bazik (katyonik) özelliktedir. Katyonik boyarmaddeler; organik bazların hidroklorürleri şeklinde olup, katyonik grubu renkli kısımda taşır. N ve S atomunu taşır. Katyonik özelliğinden dolayı anyonik grup içeren liflerle bağlanmaktadır. Yıkama ve ışık haslıkları düşüktür [31].

Metilen mavisi, boyama kağıdı, geçici saç boyası, boyama pamukları, yünler ve kağıt stoğu için kaplama gibi geniş uygulama alanlarına sahiptir. Ayrıca, bir oksidasyon-indirgeme göstergesi olarak kullanılan bir tiyazin katyonik boyadır[32].

Metilen mavisinin insan sağlığını olumsuz yönde etkileyen özellikleri de bulunmaktadır [33]. Bu şekilde insan sağlığına olumsuz etkilerine rağmen, katı maddelerle kuvvetli adsorpsiyonu nedeniyle yaygın kullanımına devam edilmektedir. Organik kirleticilerin ve renkli gövdelerin sulu çözeltilerden uzaklaştırılması için genellikle bir model bileşik görevi görmektedir [34].

Metilen mavisi açık formülü ve toz halinde görünüşü Resim 5.1'de verilmektedir.



Resim 5.1. Metilen mavisi

6. ADSORPSİYON

Adsorpsiyon, gaz veya sıvı halde bir bileşiğin moleküllerinin bir adsorban yüzeyinde biriktiği ara yüzeyde gerçekleşen bir işlemdir. Adsorbe edilen bileşik adsorbat olarak adlandırılır. Öte yandan, desorpsiyon, adsorbe edilmiş moleküllerin adsorpsiyonun zıttı olan adsorbent yüzeyinden salıverilmesidir [35].

6.1. Adsorpsiyon Türleri

Fiziksel adsorpsiyon (Fizisorpsiyon): Fiziksel adsorpsiyonda, elektrostatik etkileşimler ve Van der Waals kuvvetleri gibi zayıf kuvvetler rol oynar [36].

Kimyasal adsorpsiyon (Kemisorpsiyon): Adsorplanan madde ile katı yüzeyin fonksiyonel grupların etkileşimi ile oluşan adsorpsiyondur. Kovalent bağlar gibi güçlü kimyasal bağlar, kimyasal adsorpsiyonda yüzey ile adsorbe edilmiş moleküller arasında oluşturulur [36].

Kimyasal ve fiziksel adsorpsiyonun karşılaştırılması

Çizelge 6.1 'de adsorpsiyonun kimyasal ve fiziksel çeşitlerinin karşılaştırılması verilmiştir.

Çizelge 6.1 Fiziksel ve kimyasal adsorpsiyonun karşılaştırılması [37]

Fiziksel adsorpsiyon (Fizisorpsiyon)	Kimyasal Adsorpsiyon (Kemisorpsiyon)
Elektrostatik etkileşimler ve Van der Waals kuvvetleri katılıyor	Yüzey ve adsorbe edilmiş moleküller arasında kovalent bağlar oluşur
Hızlı	Yavaş
Tersinir	Tersinmez
Çok spesifik değil	Tek tabakalar oluşur
Çok katmanlar oluşturulmuştur	Aktivasyon enerjisi gerekli
Aktivasyon enerjisi gerekli değildir	Yüksek sıcaklık gerekli
Genellikle düşük sıcaklık değerlerinde ortaya çıkar ve sıcaklık arttıkça düşer	

6.2. Adsorpsiyon İzotermi

Adsorpsiyon prosesinde adsorbentın sıvı ve katı haldeki derişimleri arasındaki denge ilişkisini gösteren bağıntılara adsorpsiyon izotermi denilmektedir. Bu tez çalışması içinde denge verilerini değerlendirmek amacıyla Langmuir adsorpsiyon izotermi, Freundlich adsorpsiyon izotermi ve Temkin adsorpsiyon izotermi model eşitlikleri ile incelenmiştir.

Langmuir adsorpsiyon izotermi

Langmuir adsorpsiyon izotermi, adsorbent dış yüzeyinde oluşan tek tabakalı adsorbantı ifade etmektedir. Tek tabakalı adsorpsiyon, adsorblama alanında en fazla bir molekül adsorbladığını ifade etmektedir. Adsorpsiyonun daha fazla gerçekleşmeyeceğini anlatmaktadır. Bu modele göre, yüzeyde oluşan adsorpsiyon alanlarında aynı mekanizma ile adsorpsiyon gerçekleşir ve aynı aktivasyon enerjisine sahiptir. Bu kabullere dayanarak Langmuir modeli Eş. 6.1 ile ifade edilmektedir [38].

$$q_e = \frac{q_m b C_e}{1 + K_L C_e} \quad (6.1)$$

Eş. 6.1. lineerleştirildiğinde Eş. 6.2 elde edilmektedir.

$$\frac{C_e}{q_e} = \frac{1}{K_L q_m} + \frac{C_e}{q_s} \quad (6.2)$$

olup q_e denge anında adsorplanan miktar (mg/g), C_e adsorplananın denge derisimi (mg/L) ve q_m ile K_L ise Langmuir sabitleridir. q_m , adsorplayıcının tek tabakalı olarak adsorplama kapasitesine ilişkin bir sabit ve K_L ise adsorpsiyon enerjisine ilişkin bir sabittir [38].

C_e değerlerine karşılık C_e/q_e değerleri grafiğe geçirildiğinde, eğimi $1/q_m$ ve y eksenini kestiği nokta ise $1/q_m K_L$ olan bir doğru elde edilir. Eğim ve kayma (başlangıç değeri) değerlerinden q_m ve K_L sabitleri hesaplanmaktadır. C_e ve C_e/q_e değerleri EK-6 'da verilmiştir.

Freundlich adsorpsiyon izotermi

Freundlich adsorpsiyon izotermi, tek tabaka kaplanması ile sınırlandırılmamaktadır. Heterojen yüzeylerin adsorpsiyon özelliklerini tanımlamak için yaygın kullanıma sahiptir. Adsorpsiyonu ampirik olarak ifade eden Freundlich izoterminde; adsorplanan miktar ile denge derisimi arasında üstel bir bağıntı vardır. Eş. 6.3'de gösterilmektedir [39].

$$q_e = K_f C_e^{1/n} \quad (6.3)$$

Freundlich izoterm denkleminin doğrusallaştırılması; logaritması alınarak elde edilmiştir. Eş. 6.4'de gösterilmektedir.

$$\log q_e = \log K_f + \frac{1}{n} \log C_e \quad (6.4)$$

olup $\log C_e$ değerlerine karşılık $\log q_e$ değerleri grafiğe geçilirse eğimi $1/n$ ve kayma değeri $\log K_f$ olan bir doğru elde edilmiştir. Eğim ve kayma değerlerinden sırasıyla n ve k değerleri bulunmaktadır.

Temkin adsorpsiyon izotermi

Temkin adsorpsiyon izotermi, adsorpsiyon ısı ve adsorplayıcı - adsorplanan arasındaki etkileşimleri dikkate almıştır. Tabakada oluşan moleküllerin adsorpsiyon ısının lineer olarak düşeceğini varsaymaktadır.

Temkin İzotermi Eş.6.5 ile ifade edilmektedir [40].

$$q_e = \frac{RT}{b} \ln(K_t C_e) \quad (6.5)$$

Temkin izoterminin doğrusallaştırılmış hali;

$$q_e = B \ln K_t + B \ln C_e \quad (6.6)$$

olup $B = RT/K_T$, T mutlak sıcaklık (K), R evrensel gaz sabiti (J/mol K), K_T denge bağlanma sabiti (L/mg-1) ve B adsorpsiyon ısısına ilişkin bir sabittir.

qe değerlerine karşılık $\ln C_e$ değerleri grafiğe geçirildiğinde eğim B değerini, doğrunun y eksenini kestiği nokta ($B \cdot \ln K_T$) değerini vermektedir.

6.3. Adsorpsiyon Termodinamiği

Adsorpsiyon işleminin termodinamik olarak incelenmesi, serbest enerji değişimi, entalpi değişimi, entropi değişimi gibi termodinamik parametreler; bir olayın yapılabilirliğini, kendiliğinden olma eğilimini göstermektedir. Bu parametreler aşağıdaki bağıntılar ile hesaplanmaktadır [41].

ΔG , ΔH ve ΔS gibi termodinamik parametreler aşağıdaki denklemlerden hesaplanabilmektedir.

$$\Delta G = -RT \ln K_L \quad (6.7)$$

denklemdaki K_L değeri, Langmuir denkleminin bulunabilen K_L değerleri kullanılarak belirlenebilmektedir.

$$\Delta G = -RT \ln K_L \quad (6.8)$$

$$\Delta G = \Delta H - T\Delta S \quad (6.9)$$

Eşitlikler birlikte çözülrse eşitlik 6.10 bulunur.

$$\ln K_L = -\frac{\Delta H}{RT} + \frac{\Delta S}{R} \quad (6.10)$$

$\ln K_L$ 'ye karşı $(1/T)$ değerleri grafiğe geçirildiğinde, eğimden $(-\Delta H/R)$ ifadesini ve kaymadan (başlangıç noktası) ise $(\Delta S/R)$ değerleri bulunabilir.

7. KARAKTERİZASYONDA KULLANILAN CİHAZLARIN ÇALIŞMA PRENSİBİ

Sentezlenen silika aerogellerin yapısal özelliklerini belirleyebilmek için farklı karakterizasyon çalışmaları yapılmıştır. Silika aerogeldeki yüzey alanı değerleri, ortalama gözenek çapı ve gözenek dağılımının belirlenmesi için N₂ adsorpsiyon analizi, içerdiği organik ve inorganik bileşikleri tanımlamak için FTIR analizi, hidrofobikliğini belirlemek için temas açısı incelemesi yapılmıştır. Silika aerogellerin adsorpsiyon öncesi ve sonrası derişim tayini UV-VIS Spektrometresi ile yapılmıştır.

7.1. N₂ Adsorpsiyon Analizi

Sentezlenen silika aerogellerin yüzey alanını ve gözenek çapı belirlemek için yapılan N₂ adsorpsiyon analizi, Nova 2200 cihazı ile yapılmıştır. N₂ adsorpsiyon analizinde en yaygın kullanılan yöntem BET metodudur.

BET metodu: Bu metot genellikle kuru katı toz numunelerin yüzey alanının ölçümünde kullanılmaktadır. Stephen Brunauer, Paul Emmett ve Edward Teller (BET), 1938'de bu teoriyi yayınlamışlardır [42].

Bu hesaplamada kullanılan denklem ise aşağıda verilmiştir.

$$\frac{1}{V_a \left(\frac{P_0}{P} - 1 \right)} = \frac{C-1}{V_m C} * \frac{P}{P_0} + \frac{1}{V_m C} \quad (7.1)$$

Denklemde, P₀/P; nispi basıncı, V_a; katı kütlesini, V_m; tek tabaka kaplanan adsorbant kütlesini ve C; BET sabitini ifade etmektedir.

Analiz: Deneysel çalışma sonucu elde edilen silika aerogellerin analizini yapabilmek için, yaklaşık 0,01 gram madde alınarak tartılmıştır. Ardından 5 saat boyunca numuneden gaz uzaklaştırma (degaz) işlemi gerçekleştirilmiştir. Gaz uzaklaştırıldıktan sonra tekrar tartılan numuneler analiz bölümüne yerleştirilmiştir. Cihazda gerekli ayarlamalar (numune ağırlığı, yoğunluğu, hücre tipi, analiz noktaları) yapılmıştır. Analiz sonrası; yüzey alanları, gözenek çap ve dağılım değerleri ve grafikleri elde edilmiştir.

Bu ölçümde kullanılan cihaz Resim 7.1. 'de gösterilmiştir.



Resim 7.1. N₂ adsorpsiyon analiz cihazı

7.2. FTIR Analizi

Deneyisel çalışmada sentezlenen silika aerogellerin yapısında bulunan bağların belirlenmesi amacıyla FTIR analizi yapılmıştır. Sentezlenen katı numunelerden belli bir miktar alınıp toz haline getirilmiştir. Daha sonra KBr referans maddesi ile karıştırılarak 60 °C 'de bir gün etüvde bekletilmiştir. Press makinesinde 7 ton basınç altında pellet haline getirilmiştir. Resim 7.2 'de pres cihazı gösterilmiştir. Pelletlerin FTIR cihazında ölçümleri yapılmıştır. Resim 7.3 'de ise JASCO marka FTIR cihazı gösterilmiştir.



Resim 7.2. Graseby Specac marka pres cihazı



Resim 7.3. JASCO marka FTIR cihazı

7.3. Adsorpsiyon deneylerinde kullanılan UV-VIS Spektrometresi

Cihaz yardımıyla adsorpsiyon öncesi ve sonrası derişim tayini yapılmıştır. Ölçümde kullanılan cihaz Resim 7.4 'de gösterilmiştir.



Resim 7.4. UV-VIS Spektrometresi

7.4. Temas açısı analizi

Temas açısı analizi katı yüzeylerin ıslanabilirlik, sıvı emilimi, sıvıyı yüzeyde tutma, sıvı yayılması gibi malzeme özellikleri hakkında bilgi sağlar. Sentezlenen silika aerogellerin hidrofobiklik ve hidrofiliklik derecesini tespit etmek için bu yöntem kullanılmıştır. Temas açısı 90° ve üzeri olan hidrofobik, 90° den küçük olan ise hidrofilik olarak değerlendirilmektedir.

8. LİTERATÜR ARAŞTIRMASI

Yapılan literatür çalışmasında; incelenen makalelerde hidrofofik silika aerogel sentezinde farklı başlangıç maddeleri (TEOS, TMOS vb.) kullanılarak çalışmalar yapılmıştır. Modifikasyon ile hidrofofik silika aerogel olma özelliği kazandırılmıştır. Silika aerogel sentezinde farklı katalizör çeşitleri (asit veya baz) kullanılmıştır. Bazı araştırmalarda ise silika aerogele yapılan katkı maddeleriyle (grafit, genişletilmiş grafit, grafen gibi) kompozit yapı oluşturulmuştur. Her bir çalışmadan elde edilen aerogellerin yüzey alanları, gözenek dağılımları ve adsorpsiyon kapasiteleri farklılık göstermiştir. Bu bölümde incelenen her bir çalışmanın bulguları özetlenmiştir.

"Effect of mixed catalysts system on TEOS-based silica aerogels dried at ambient pressure" adlı çalışmada silika aerogel sentezinde karışık katalizör sisteminin silika aerogelin fiziksel özelliklerine etkisini incelemiştir. Silika kaynağı olarak TEOS kullanılmıştır. Aerogeller tek aşamalı ve iki aşamalı sol-jel yöntemi ile atmosferik ortam basıncında kurutularak elde edilmiştir. Tek aşamalı işlemde, katalizör olarak sadece NH_4F , iki aşamalı işlemde ise NH_4F ve karışık katalizörler kullanılmıştır. Bunlar; NH_4F ve NH_4OH 'dir. İki aşamalı katalizörler, 12 saatlik asit (oksalik asit) ilavesinden sonra kullanılmıştır. Ayrıca çözücü değişiminde kullanılan çözücülerin; ksilen, tolüen, heptan, heksan ve silile edici ajanların metiltrimetoksisilan (MTMS), trimetiletoksisilan (TMES), TMCS, heksametildisiloksan (HMDSO) veya heksametildisilan (HMDZ)' nin hazırlanan aerogellerin fiziksel özellikleri üzerindeki etkisi incelenmiştir. Solvent değişimi yapılan çözücüler içinde heksanın en iyisi olduğu görülmüştür. Ayrıca, yüzey kimyasallarında modifikasyon için kullanılan, HMDZ 'nin farklı sililleme maddeleri arasında en iyi yüzey değiştirici madde olduğu bulunmuştur.

Sonuç olarak; yüksek oranda tortulu, kendiliğinden polimerik, düşük yoğunluklu (0.065 g / cm^3), optik olarak saydam (% 95), hidrofofik ($153 \text{ }^\circ\text{C}$) silika aerogeller elde edilmiştir [43].

"Interference coating by hydrophobic aerogel-like SiO_2 thin films" başlıklı çalışmada, ortam basıncında kurutularak hidrofofik ince filmli silika aerogel üretimi gerçekleştirilmiştir. İki aşamalı asit baz reaksiyonlu sol-jel yöntemi kullanılmıştır. Başlangıç çözeltisi için TEOS kullanılmıştır. Asidik ortamda suyla hidroliz reaksiyonunun molar oranları $\text{TEOS:etanol:su:HCl}$; 1:3,8:1:0.001. Karıştırma işleminden sonra; suda çözünmüş amonyum hidroksit etanol çözeltisine ilave edilmiştir. Oda sıcaklığında sonuç molar oranları $\text{TEOS:etanol:su:HCl:NH}_3.\text{H}_2\text{O}$; 1:38,8:3,6:0,001:0,004. Jelleşme ve yaşlandırma işlemi 55

$^{\circ}\text{C}$ 'de gerçekleştirilmiştir. Etanol ile yıkama işlemi yapılmıştır. Ardından ağırlıkça yüzde on TMCS içeren heksan çözeltisi ile uygun bir sol elde edilmek üzere 25 dakika muamele edilmiştir.

Hidroliz ve kondenzasyon basamağıyla birlikte silika aerogel benzeri ince filmleri, düşük kırılma endeksli bileşen olarak kullanarak, yüksek kırılma endeksli titanyumoksit filmler sol-jel yöntemiyle türetilmiştir. Özellik olarak yüksek kalitede hidrofobik (AR) yansımaya önleyici kaplama ve (NIR) yakın kızılötesi yansıtıcı optik özelliklerinin olduğu anlaşılmıştır [44].

"Flammability and oxidation kinetics of hydrophobic silica aerogels" başlıklı çalışmada, hidrofobik silika aerogellerin alev geciktiriciliğini arttırmaya yönelik çalışmalar yapılmıştır. Silis kaynağı olarak üç farklı madde kullanılmıştır. Bunlar TEOS, sodyum silikat ve fosforik asittir. Üretilen silika aerogeller ayrı ayrı incelenmiştir. TEOS, etanol 0,1 M hidroklorik asit ve 0,5 M etanol kullanılmıştır. İki aşamalı asit -baz reaksiyonlu katalizör kullanarak sol-jel prosesi ile silika aerogel sentezlenmiştir. Elde edilen sonuçlara göre; Mikroyapılar, TEOS hidroklorik asit bileşiminin daha yoğun nanoparçacıklara sahip olduğunu göstermiştir. Yangın tehlikeleri, duman toksisitesi ve kritik ısı akışları karşılaştırıldığında TEOS hidroklorik asit bileşimine göre, sodyumsilikat tabanlı silika aerogellerin düşük yanıcılığa sahip olduğunu göstermiştir. Fosforik asidin silika aerogellere eklenmesiyle, sodyum silikat fosforik asit yanıcılığı daha da azalmıştır. Sodyum silikat ve fosforik asitteki fosfor bileşeni, azalan brüt kalorifik değer ile sertifikalandırılan alev geciktiriciliğe katkıda bulunmuştur. Termal stabilite analizi ile yanıcılık araştırmalarla birleştirilirse; sodyum silikat öncül madde olarak kullanıldığında ve fosforik asit gibi fosforlu bileşiklerin sokulması, alev geciktiriciliği artırabilir ve hidrofobik silika aerogelin yanıcılığını azalttığı görülmüştür [45].

"Fabrication of hydrophobic and antireflective coatings based on hybrid silica films by sol-gel process" başlıklı çalışmada; oda sıcaklığında sol-jel yöntemiyle hidrofobik ve yansımaya önleyici kaplamalar sentezlenmiştir. Öncül madde olarak TEOS kullanılmıştır. Yüzey değiştirici ajanlar olarak; metiltrietoksisilan (MTES), propiltrietoksisilan (PTES), viniltrietoksisilan (VTES), oktortrietoksisilan (OTES) kullanılmıştır. Hibrit filmler iki aşamada sol-jel yöntemi ile hazırlanmıştır. İlk olarak TEOS asidik ortamda 0,1 ml etanol ve 0,1 M 0,112 ml HCl ile önceden hidroliz edilerek, 1 saat boyunca oda sıcaklığında (25°C)'de karıştırılmıştır. TEOS ile birlikte ilk olarak organik-inorganik sistemli trietoksisilan (RTES) seçilmiştir. Silika sol, TEOS: RTES'in molar oranı asidik şartlarda 1: 1'de tutularak

hazırlanmıştır. Tüm hibrit sistemler çapraz bağlama maddesi olarak titanyum (IV) izopropoksit ile zenginleştirildi. Elde edilen silika filmlerin, hidrofobik organik grubun katılmasıyla hidrofobik hale geldiği görülmüştür. İkinci bir adım olarak, çözeltiye maleik anhidrit (MA) (0.03 g) ilave edildi ve MA'nın tamamen çözünmesinden sonra, iyi tanımlanmış bir miktarda TIP (0.16 ml) ilave edildi. Çapraz bağlama maddesi (TIP), alkoksisilanlardan çok daha yüksek bir oranda hidrolize olur ve bu nedenle, tarifi ikinci bölümüne eklenir. Sol-gel işlemine devam etmek için, 0.1 M HCl'nin (0.24 ml) ikinci kısmı eklenmiş ve karışım bir saat daha karıştırılmıştır. Nihai kompozitler şeffaf ve homojen olarak elde edilmiştir. Silika filmler, karışımın plastik şişelere yerleştirilmesi veya manuel bir aplikatör ile örnek kaplama aşağı çekilerek bir cam sürgünün üzerine bırakılmasıyla elde edilmiştir. Düzgün ıslanmayı sağlamak için cam slayt ön işlemi deterjanla temizleyerek, ardından alkol ve deiyonize su ile durulanarak yapıldı. Tüm son numuneler kurutuldu ve (gece boyunca) oda sıcaklığında (25 ° C) tutulmuştur. Bu çalışmada en çok yansıma önleyici film (550 nm 'de % 7.7), dağınık yansıma nedeniyle, TEOS + VTES'ten hazırlanmıştır [46].

"Enhanced flame retardancy of hydrophobic silica aerogels by using sodium silicate as precursor and phosphoric acid as catalyst" başlıklı çalışmada hidrofobik silika aerogellerin yanıcılığı ve oksidasyon kinetiği, koni kalorimetresi ve termal analiz ile incelenmiştir. Yanma işleminin üç aşaması belirlenmiştir; bunlar, daha küçük evre, şiddetli yanma evresi ve yanma evresi şeklindedir. Silika aerogel sentezi, iki aşamalı asit baz katalizörlü sol-jel yöntemi ile gerçekleştirilmiştir. Silika kaynağı olarak TEOS bazı kullanılmıştır. Katalizör olarak HCl ve NH₃ bazı kullanılmıştır. Elde edilen ıslak jeller ortam basıncında 80 °C 'de ve süper kritik olarak kurutulmuştur. Üretilen aerogellerin özellikleri karşılaştırılarak incelenmiştir. Süperkritik kurutma yapılan silika aerogelin gözenek boyutu, ortam basıncında kurutma yapılan silika aerojelden büyüktür. Bunun nedeni ortam basıncında kurutma yapıldığında kılcal kuvvetin neden olduğu hacim büzülmesidir. Buna rağmen, hem süper kritik kurutma yapılan silika aerogel hem de ortam basıncında kurutulan silika aerogel 80-90 kg m⁻³ düşük yoğunluklu, % ~96 yüksek poroziteli ve 800-1000 m²g⁻¹, yüksek spesifik yüzey alanı vb. İle mükemmel özellikler sunar.

Araştırmalar sonucunda; süperkritik kurutma yapılan silika aerogelin daha az yangın tehlikesi içerdiği ve daha düşük bir duman toksisitesine sahip olduğu görülmüştür. Fakat genel olarak hidrofobik silika aerogelin yangın tehlikesi açısından riskli olduğu görülmüştür [47].

"Modified aging process for silica aerogel" başlıklı çalışmada, silika aerogelin gözenekliliğini ve monolitik performansını artırmak için farklı yaşlandırma şartlarında sentez işlemi yapmışlardır. Başlangıç maddesi TEOS ile birlikte; su, etanol ve hidroklorik asit hidroliz edilmiştir. Mol oranları sırasıyla 1:1.2: 8: 8.4 x 10⁻⁴ olarak çözeltiye eklenmiştir. 60 °C'de 2 saat boyunca karıştırılmıştır. Elde edilen sol çözeltisi teflon kalıba (20 mm çapında ve 25 mm yüksekliğinde) dökülmüş ve burada oda sıcaklığında jelleşmeye bırakılmıştır. Kalıpta 6 saat yaşlandırılma sonrası ıslak jel kısımları çıkarılmış ve geri kalan kısım %15 hacminde TEOS, %84 etanol, %1 deiyonize su ve birkaç damla amonyak suyu içeren bir otoklava konulmuştur. Silika jelin yaşlanma sürecini yüksek sıcaklık ve basınçta gerçekleştirmek için otoklavlar 5 gün boyunca 100 °C'de tutulmuştur. Karşılaştırma için, teflon kalıbında 6 saat yaşlandırıldıktan sonra diğer numuneler oda sıcaklığında 5 gün etanolde yaşlandırılmıştır, bu sırada ıslak silika jeli gözeneklerindeki sıvı saf etanol ile üç kez değiştirilmiştir. Farklı yaşlandırıldıktan sonra iki numune de süper kritik olarak kurutulmuştur. Sonuç olarak ilk numune oda sıcaklığında, diğer numune otoklavda yaşlandırılmıştır. Otoklavda yaşlanan silika aerogel hidrofobik özellikler gösterirken, oda sıcaklığında yaşlananlar daha hidrofilik özellik göstermiştir. Yaşlanan solüsyondan gelen TEOS, silika-ıslak jelin omurgasını çok daha güçlü yapmıştır [48].

"Effect of heat treatment on hydrophobic silica aerogel" başlıklı çalışmada hidrofobik silika aerogel sentezine ısı işlem etkilerini incelemiştir. Ortam basıncında gerçekleşen reaksiyonda sol-jel yöntemi ile hidrofobik silika aerogel sentezlenmiştir. Hazırlanan silika aerogel kutu tipi elektrik direnç fırınında ısı işlem görmüştür. Sıcaklık belirtilen değerlere ulaştığında (200 °C, 300 °C, 350 °C, 400 °C, 450 °C, 500 °C ve 600 °C), fırın 2 saat bu sıcaklıklarda tutulmuştur. Hidrofobik silika aerogellerindeki O / Si ve C / Si değerleri, ısıtma sıcaklığındaki artışla birlikte sırasıyla artmış ve azalmıştır. Piroliz sırasında C-O, -OH ve CO tespit edilmiştir. Silika aerogellerin havadaki pirolizi 3 aşamaya ayrılabilir: metil gruplarının hidroksilasyonu, alkolik hidroksilin ayrılması ve CO'nun oksitlenmesi. Isıl işlem sıcaklığı 350 °C'nin altına düştüğünde, silika aerogellerin özellikleri çok az göstermiştir. Isıl işlem sıcaklığındaki artışla birlikte, ilgili parametrelerdeki değişkenlik daha belirgin hale gelmiştir. İkincil parçacıklar birbirleriyle birleşmişlerdir ve mezoporlar imha edilmiştir. Sonuç olarak, termal iletkenlik ve kütle yoğunluğu büyük ölçüde yükselmiştir. 200 °C'de kütle yoğunluğu 0.0861 g/cm³ ve termal iletkenlik 0.02162 W/m·K değerlerinden, 600 °C'de kütle yoğunluğu 0.1294 g/cm³ ve termal iletkenlik 0.02579 W/m·K değerlerine ulaşılmıştır [49].

"Synthesis and characterization of silica aerogel as a promising drug carrier system" başlıklı çalışmada, silika aerogeli iki fazlı sol-jel prosedürü ile sentezlenmiştir. İlk olarak, TMOS, su, metanol ve hidroklorik asit karışımı; 1 mol tetrametilortosilikat (TMOS); 1.3 mol H₂O; 10 mol HCl ve 2,4 mol metanol. olarak ilave edilmiştir. Karışım daha sonra bir karıştırıcıda 30 dakika boyunca karıştırıldı. Yeterli karıştırmanın ve tam karıştırmanın sağlanmasının ardından, karışıma fazladan amonyak ve su çözeltisi ilave edildi. Dolayısıyla, nihai karışım 1 mol TMOS; 4 mol H₂O; 10 mol HCl; 10 mol NH₄; ve 2.4 mol MeOH içermektedir. Sonra, uygun ve istenen yoğunlukta olan silika aerojellerini elde etmek için, farklı konsantrasyon oranlarında asetonitril ile seyreltildi. Bu amaçla, beş farklı örnek T1, T2, T3, T4 ve T5 hazırlandı ve sınıflandırıldı. Örnekler, T1, T2, T3, T4 ve T5, asetonitril hacminin karışım hacmine oranıyla seyreltildi. Hazırlanan numuneler özel silindirik kalıplara dökülmüş ve çevre sıcaklığında en az 3 gün yaşlandırılmıştır. Nihayetinde, yaşlı silika jelleri süperkritik kurutma tekniği ile 40 ° C'de 100 bar basınçta kurutulmuştur.

Silika aerojellere ilaç yükleme miktarı ile yoğunluk değişimine etkileri belirlenmiştir. Suda çözünür bir ilaç olan ketoprofen (model ilaç) araştırıldı. İlaç yükleme miktarının artmasıyla, aerogel yoğunluğunun 0.12 gr/cm³ değerine yükselmesi görülmüştür [50].

"Hydrophobic and thermal insulation properties of silica aerogel/epoxy composite" başlıklı çalışmada hidrofobik silika epoksi kompozit silika aerogel sentezlemişlerdir. Hidrofobik silika aerojeller; yüzey alanı 1044 m²/g, 0.04 g/cm³ yoğunluk ve % 95-% 97 aralığında gözenekliliğe sahip olacak şekilde TMCS ile geliştirilmiştir. Hidrofobik silika aerogel/epoksi tozu kompozitleri sıcak presleme yöntemiyle hazırlanmıştır. Kompozitlerin özellik olarak düşük yoğunluk (0.72–0.25 g/cm³) ve su temasıyla iyi bir hidrofobik özellik kazandığı görülmüştür. Ayrıca temas açısı ölçümlerine göre, kompozitlerin atmosferde uygulanabileceği görülmüştür. Yapılan bu çalışma ile mevcut ısı yalıtım özelliğın düştüğü gözlenmiştir [51].

"Enhancements of thermal insulation and mechanical property of silica aerogel monoliths by mixing graphene oxide" başlıklı çalışmada aerojellerin ısı yalıtımını ve mekanik özelliğini geliştirmek ve silika grafen oksit kompozit aerogeli hazırlamak amacıyla grafen oksit katkısı kullanmışlardır. Sol-jel yöntemi kullanarak monolitik silika aerogel sentezinde süper kritik kurutma yapılmıştır. Öncül madde olarak TEOS kullanılmıştır. GO (grafen oksit) ile silika aerogel monolitleri karıştırılarak sol ve jel oluşumları sonrası süperkritik kurutma yapılmıştır. Sentez sırasında TEOS ile birlikte etanol ve oksalik asit çözelti içinde

karıştırılmıştır. Bulanık çözelti berraklaştığında, GO süspansiyonu ilave edilmiştir. Homojen dağılım sağlandıktan sonra 24 saat boyunca hidroliz edilerek sol elde edilmiştir. Ek olarak amonyak solu jelle dönüştürdü. Yaşlanma sırasında etanol ile jeller değiştirildi ve süperkritik kurutma yapılmıştır. Kompozit aerojellerin ısı yalıtım özelliği, saf aerojel ile karşılaştırıldığında geliştirilmiştir. Deneysel sonuçlar, termal iletkenliğin 0,0089 W / mK'den 0,0072 W / mK'ye düşürüldüğünü göstermiştir. Aerojellerin mekanik mukavemeti arttırılmıştır ve aerojel kompozit tokluk kazanmıştır [52].

"Graphene oxide reinforced high surface area silica aerogels" başlıklı çalışmada grafen oksit (GO) katkılı silika aerojel sentezlemiştir. Silika aerojel kaynağı olarak sodyum silikat (ağırlıkça% ≥ 27) kullanılmıştır. Sol-jel yöntemi ile sentezlenmiştir. Sol hazırlanması için sodyum silikat deiyonize su ile seyreltilmiştir. Na⁺ iyonları uzaklaştırıldıktan sonra, farklı miktarlarda grafen oksit ilave edilmiştir. Amonyum hidroksit ilave edildikten sonra jelleşme için 50 °C'de tutulmuştur. Elde edilen hidrojel, kompozitin silika ağınlı güçlendirmek için 50 °C'de 3 saat yaşlandırılmıştır. Güçlendirilmiş monolitler daha sonra MeOH' de 24 saatlik bir çözücü değişimine ve ardından yüzey modifikasyonuna tabi tutulmuştur. Heksan ile yıkama işlemi yapılmıştır. 200 °C'de kurutulmuştur. Aerojel numuneleri ince bir toz haline getirilmeden önce oda sıcaklığına soğumaya bırakılmıştır. Ağırlık olarak % 0.5 GO ilavesi, aerojelin yüzey alanını ve gözenek hacmini sırasıyla 390 ila 700 m²/g ve 0.59 ila 0.99 cm³ arasında arttırmıştır ve aerojel yoğunluğunu 0.19 ila 0.14 g/cm³ arasında azaltmıştır. Bu nedenle araştırma, silis aerojel matrisinin küçük miktarlarda GO ile birleştirilmesinin silika aerojellerinin fiziksel özelliklerini engellemeden kurutma sırasında hacim büzülmesini önleyebildiğini ortaya koymuştur [53].

"Adsorption of Congo Red Dye from Aqueous Solutions Using Roots of *Eichhornia crassipes*: Kinetic and Equilibrium Studies" başlıklı çalışmada, *Eichhornia crassipes* kurutulmuş kökleri kullanılarak, Congo kırmızısının (CR) sulu çözeltiden adsorpsiyonu incelenmiştir. Elde edilen deneysel sonuçlara göre adsorpsiyon işleminin oldukça yüksek olduğu görülmüştür. Adsorpsiyon değeri; temas süresine, adsorban dozuna, başlangıç boya konsantrasyonuna ve partikül boyutuna bağlı olarak değişmektedir. *E. crassipes* (kökleri) tarafından Kongo kırmızısı boya için adsorpsiyon dengesine 90 dakika içinde ulaşılmıştır ve % 96'ya kadar adsorpsiyon etkinliği elde edilmiştir.

Freundlich izoterm modeli en iyi denge parametrelerini elde etmek için uygulanabilir olduğu görülmüştür. Bu sonuçlar, *E. crassipes*'in köklerinin sulu boya çözeltilerinden ve endüstriyel atıklardan uzaklaştırılması için etkili, çevre dostu ve düşük maliyetli bir biyo materyal olduğunu göstermektedir [54].

"Removal of Heavy Metals Using Nanostructured Graphite Oxide, Silica Nanoparticles and Silica/ Graphite Oxide Composite" başlıklı çalışmada, nanoyapılı grafit oksit, silika/grafit oksit kompozitleri ve silika nanoparçacıkları, ağır metal iyonlarının bir parti adsorpsiyon yöntemi ile sulu çözeltilerden çıkarılması için kullanılmıştır ve klasik Langmuir ve Freundlich adsorpsiyon izotermi kullanılarak modellenmiştir. Sonuçlar, ağır metallerin nanoyapılı grafit oksit ile adsorpsiyonunun aşağıdaki sıra ile gözlemlendiğini ortaya çıkarmıştır: nikel> çinko> kurşun> kadmiyum> krom. Langmuir adsorpsiyon izoterm sonuçları, grafit oksidin, nikel iyonlarının sulu çözeltilerden çıkarılması için etkili bir adsorban olduğunu gösterirken, Freundlich'in Kadmiyum, Krom, Kurşun, Nikel ve Çinko iyonları için elde edilen verileri grafit oksit ile tek tabaka adsorpsiyon tipinde bulunduğunu göstermektedir. Sonuçlar silika/ grafit oksit kompozitinin (2:3) ağır metal iyonları için oldukça etkili bir adsorban madde olduğunu ve su arıtma teknolojilerinde kullanılması şiddetle önerildiğini göstermiştir [55].

"Removal of cationic dyes from aqueous solution by adsorption onto hydrophobic/hydrophilic silica aerogel" başlıklı çalışmada, hidrofobik (yüzey modifiyeli) silika aerojel (MSA) ve hidrofilik (hidroksil grubu) silika aerojel (HSA), ortam basınçlı kurutma yöntemiyle hazırlanmıştır. Daha geniş spesifik yüzey alanı olsun, ortak silika aerojel ile karşılaştırıldığında MSA ($880.47 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1}$) ve HSA'da ($628.52 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1}$) elde edilmiştir. Rhodamine B (RhB) ve Metilen mavisi (MB) 'nin sulu çözeltiden uzaklaştırılma kabiliyeti incelenmiştir. Sonuçlar, MB'nin maksimum adsorpsiyonunun MSA ve HSA için sırasıyla 65.74 mg/g , 47.21 mg/g olduğunu göstermiştir. RhB'nin maksimum adsorpsiyonu MSA ve HSA için sırasıyla 134.25 mg/g ve 185.61 mg/g olarak bulunmuştur. Burada, Langmuir, Freundlich izoterm modelleri, adsorpsiyon davranışını tartışmak için kullanılmıştır. Sonuçlar denge verilerinin Langmuir izotermi ile mükemmel şekilde temsil edildiğini göstermiştir. Alternatif adsorban olarak silika aerojel, gelecekteki çevre yönetiminde atık su arıtma işlemlerinde boya temizleme için kullanılabilir [56].

"Regeneration of mesoporous silica aerogel for hydrocarbon adsorption and recovery" başlıklı çalışmada, ekonomik ve çevre dostu olması için hidrokarbon desorpsiyonunu ve silis aerogel rejenerasyonunu incelenmiştir. 80 °C'de hidrokarbon desorpsiyonundan sonra, silika aerogelin hidrofobikliğini koruduğu görülmüştür. Toluen, benzin ve dizel desorpsiyonundan sonra, mezoporların büzülmesi (19.9-16.8, 13.5 ve 13.4 nm) silis aerojellerinin meydana gelmesiyle adsorpsiyon kapasitelerinin azalmasına neden olmuştur. Petrolün düşük yüzey gerilimi, desorpsiyonu sırasında mezoporlar üzerinde yüksek strese neden olarak önemli gözenek büzülmesine neden olmuştur. Dizel için eksik desorpsiyon ve oksidasyon rejenerasyonunu daha da engelledi. Bu nedenle, 200 ° C'de dizel desorpsiyonu da yapıldı. Aerobik koşullar altında ciddi dizel oksidasyonu meydana geldi ve mezoporları tahrip etti. Anaerobik koşullar altında, hiçbir dizel oksidasyonu meydana gelmedi ve rejenere silika aerojellerin gözenek büyüklüğünde (13.2 nm) ve adsorpsiyon verimi (10.0 g /g' ye kadar) düşüşleri, aerobik koşullara göre çok daha az olduğu görülmüştür. Bu çalışma, petrol sızıntısı temizliği için silika aerogel rejenerasyonu hakkında yeni bilgiler sağlamıştır [57].

"Adsorption of antibiotics from aqueous solution by different aerogels" başlıklı çalışmada, sırasıyla ortam basınçlı kurutma ve dondurarak kurutma yoluyla silika aerojelleri ve karbon aerojelleri hazırlanmıştır. İki tür aerogelin sudaki antibiyotik için mikroyapı ve adsorpsiyon kabiliyeti araştırılmıştır. Sonuçlar silika aerojelleri ve karbon aerojellerinin, benzer spesifik yüzey alanı (665-765m²/g) ve gözenek hacmine (1.6-3.0 cm³/g) sahip olmalarına rağmen, antibiyotikler için tamamen farklı adsorpsiyon kabiliyetleri sergilediklerini göstermiştir. Silika aerogel, hidrofobik ya da hidrofilik olmalarına bakılmaksızın, her ikisi de antibiyotik için adsorpsiyon oranını karbon aerojellerden çok daha düşük göstermiştir. Buna karşılık, karbon aerogel ve manyetik karbon aerojellerin her ikisi de, antibiyotikler için mükemmel adsorpsiyon performansı sergilemiş, 180 dakika içinde terramisin için adsorpsiyon oranı %99.9'a ulaşmıştır. İki çeşit aerogel üzerinde terramisin adsorpsiyon mekanizması, kinetik adsorpsiyon modelleri kullanılarak incelenmiştir. İki aerogelin adsorpsiyon işleminin esas olarak fiziksel adsorpsiyon yardımı ile kimyasal adsorpsiyona dayandığı açıklığa kavuşturulmuştur [58].

9. DENEYSEL YÖNTEM

Bu çalışmada, ilk aşamada silika öncül kaynağı olarak TEOS kullanılarak HCl katalizörü sabit tutulup, farklı baz katalizörler; NH_4OH , KOH , NaOH katalizörleri kullanılmıştır. Benzer çalışmalar literatürden incelenerek başlangıç deney koşulları belirlenmiştir. Farklı katalizörler deneyerek sentezlenen silika aerojellere çeşitli karakterizasyon çalışmaları yapılmıştır. En yüksek yüzey alan değeri ölçülen asit- baz çifti ile deneyin ikinci kısmına geçilmiştir.

Deneyin ikinci kısmında HCl-KOH katalizör çifti ile sentezlenen hidrofobik silika aerojellere genişletilmiş grafit katkısı yapılarak kompozit madde oluşturulmuştur. Sentezlenen saf silika ve genişletilmiş grafit katkılı silikanın metilen mavisini adsorpsiyon kapasitesi incelenmiştir. Elde edilen verilere göre genişletilmiş grafit katkılı silika aerojellerin metilen mavisini adsorblama yeteneğinin saf silika aerojelden çok farklı olmadığı görülmüştür.

Yapılan diğer deneysel araştırmalar saf (genişletilmiş grafit katkısız) silika aerjel üzerinden incelenmiştir. Deney kapsamında adsorpsiyonu etkileyen; pH, başlangıç metilen mavisini derişimi ve sıcaklık parametreleri incelenmiştir.

9.1. Kullanılan Başlangıç Malzemeleri

Silika aerjel üretiminde kullanılan malzemeler deiyonize su, hidroklorik asit, amonyum hidroksit, potasyum hidroksit, sodyum hidroksit, etanol, TEOS'dur. Ayrıca yüzey modifikasyonu için TMCS ve kompozit madde oluşturmak amacıyla genişletilmiş grafit kullanılmıştır. Adsorpsiyon deneyleri için ise metilen mavisini kullanılmıştır.

Kullanılan malzemelerin özellikleri aşağıda verilmiştir:

Hidroklorik Asit (HCl): Silika aerjel üretiminde asit katalizörü olarak Merck marka %37'lik HCl kullanılmıştır.

Amonyum Hidroksit (NH_4OH): Silika aerjel üretiminde baz katalizörü olarak Sigma-Aldrich marka NH_4OH kullanılmıştır.

Potasyum Hidroksit (KOH): Silika aerojel üretiminde baz katalizörü olarak Riedel-de Haen marka KOH kullanılmıştır.

Sodyum Hidroksit (NaOH): Silika aerojel üretiminde baz katalizörü olarak Merck marka NaOH kullanılmıştır.

Etanol (C₂H₅OH): Silika aerojel sentezinde yaşlandırma basamağında kullanılmaktadır. Aerojelin yapısındaki suyu uzaklaştırma amacıyla Riedel-de Haen marka etanol kullanılmıştır.

TEOS (Si(OC₂H₅)₄): Silika aerojel sentezinde öncül madde olarak Aldrich marka TEOS kullanılmıştır.

TMCS: Yüzey modifikasyon işlemleri sırasında Merck marka TMCS kullanılmıştır.

Metilen Mavi(C₁₆H₁₈N₃S.Cl): Sulu çözeltide adsorpsiyon belirlenmesinde kullanılmıştır.

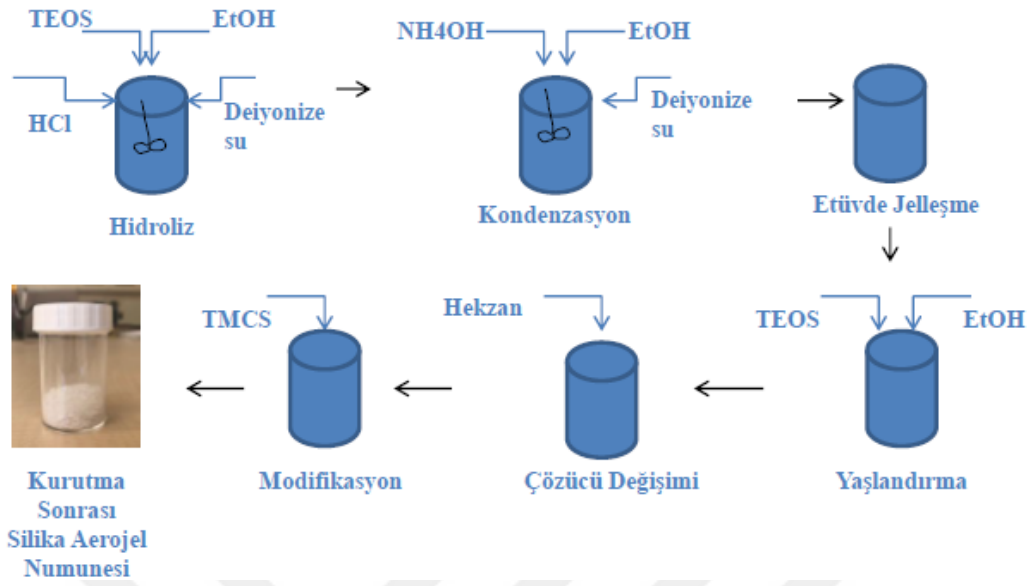
Genişletilmiş Grafit: Silika aerojel sentezinde kompozit madde oluşturmak amacıyla Aldrich marka genişletilmiş grafit kullanılmıştır.

9.2. Silika Aerojel Sentezi

Bu çalışmada silika aerojel sentezi yapılırken hidrofobik özellik de kazandırmak amaçlanmaktadır. Silika aerojel sentezinde TEOS başlangıç maddesi ile birlikte katalizör olarak HCl ile birlikte farklı baz katalizörler de kullanılmıştır. Katalizör ekleme basamaklarında katalizörlerin değiştirilmesi dışında diğer basamaklar aynıdır. Silika aerojel üretimindeki deneysel prosedür şu şekildedir:

Deney beş aşamadan oluşmaktadır. İlk numunenin sol çözeltisi için;

Hidroliz aşamasında; 3,02 ml TEOS, 3,16 ml EtOH, 0,14 ml HCl ve 0,24 ml saf su eklenerek 60 °C'de 1 saat karıştırılmıştır. Kondenzasyon aşamasında; 1,58 ml EtOH 1,71 ml saf su ve 0,15 ml NH₄OH (baz katalizör) 25 °C'de 40 dakika karıştırılmıştır. Silika aerojel sentezi deneysel prosedür Resim 9.1 'de verilmiştir.



Resim 9.1. Silika aerojel sentezi deneysel prosedür

Resim 9.2' de gösterildiği gibi balıklı manyetik karıştırıcı yardımıyla karıştırma işlemi gerçekleştirilmiştir.



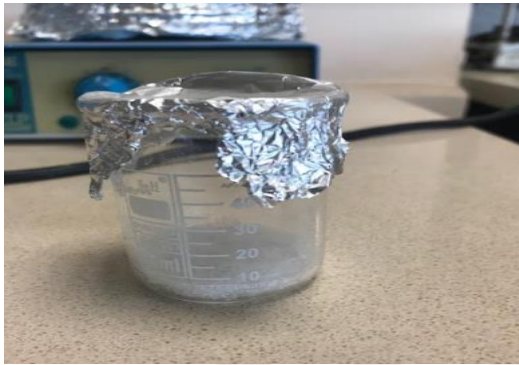
Resim 9.2. Manyetik karıştırıcı üzerindeki numune

Jelleşme aşamasında; etüvde 25°C' de numune jelleşme olana kadar (2 veya 3 gün) bekletilmiştir. Jelleşme süresi farklı katalizör kullanıldığında farklılık göstermiştir. Çizelge Çizelge 9.1 'de katalizör çeşitleri ve jelleşme süreleri verilmiştir.

Çizelge 9.1. Katalizör çeşitleri ve jelleşme

Asit	Katalizör	Numune Adı	Baz Katalizör	Jelleşme Süresi (Gün)
HCl		N1	KOH	4
		N2	NaOH	5
		N3	NH ₄ OH	2

Jelleşmesi tamamlanan numune Resim 9.3' de gösterilmektedir.



Resim 9.3. Jelleşmesi tamamlanan numune

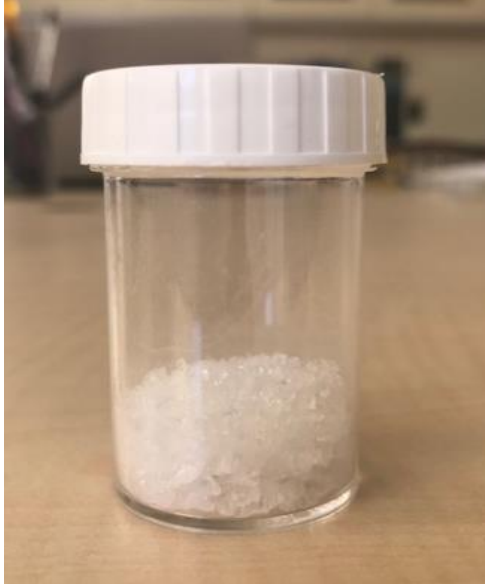
Yaşlandırma aşamasında ise 18 ml EtOH, 13 ml TEOS eklenerek 70°C' de 16 saat bekletilmiştir. Yaşlandırma süresine literatürden aldığımız değerlere göre karar verilmiştir [9]. Yaşlandırma işlemi, silika ağına yeni monomerlerin eklenmesi ve siloksanın çapraz bağ derecesinin artmasıdır. Yaşlanma sırasında oluşan aerogelin, katılık ve mukavemet değeri artmakta ve jel bağları kuvvetlenmektedir.

Yaşlandırma aşaması Resim 9.4 'de verilmiştir.



Resim 9.4. Silika aerogelin yaşılandırılması aşaması

Çözücü değişimi için hekzan ilave edilerek 45°C 'de 24 saat bekletilmiştir. Çözücü değişiminin ardından hidrofobik olarak modifikasyon yapılması amacıyla 2 ml TMCS, 20 ml hekzan ilave edilerek 55°C 'de 24 saat bekletilmiştir. Numune hekzan ile yıkanarak 40°C 'de 2 saat bekletilmiştir. Son olarak numune 55°C 'de 24 saat bekletilerek kurutulmuştur. Kurutma işleminin yapılmasındaki amaç jel yapısının yığılmasına engel olmak, jelin iskelet yapısını korumak ve büzülmeyi en aza indirmektedir. Kurutma işleminden sonra oluşan silika aerogel numunesi Resim 9.5 'de gösterilmiştir.



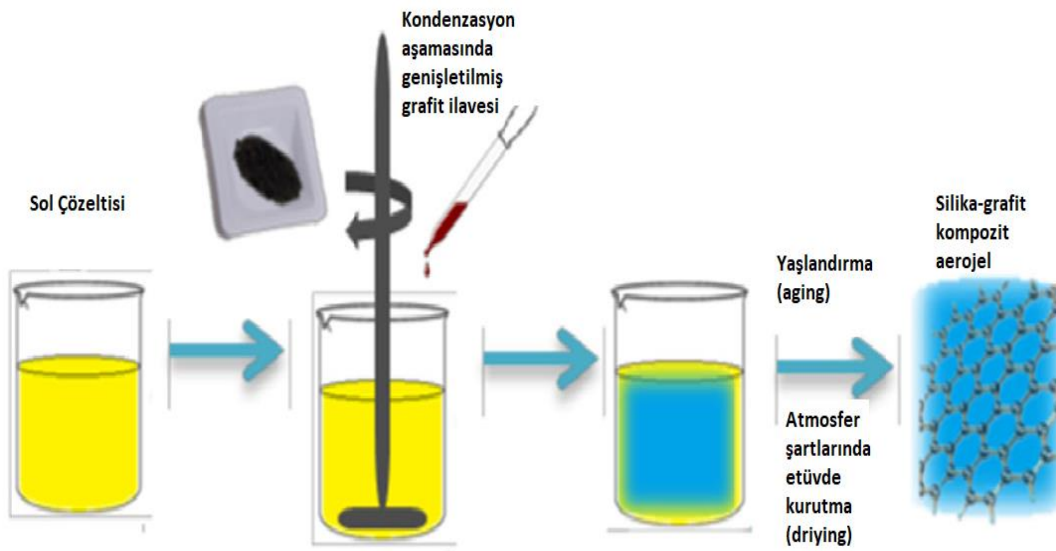
Resim 9.5. Kurutmadan sonra silika aerogel numunesi

Sentezlenen aerogelerin hidrofobiklik derecelerinin belirlenebilmesi için temas açısı analizleri de yapılmıştır. Temas açısı 90° ve üzeri olan hidrofobik, 90° den küçük olan ise

hidrofilik olarak değerlendirilmektedir. TMCS ile yüzey modifikasyonu yapılmış olan silika aerjel (N1 numunesi) hidrofobik (Temas açısı $142,25^\circ \pm 0,09$) özellik kazanmaktadır.

Aynı işlemler asit katalizör HCl sabit tutularak, baz katalizör KOH kullanılarak tekrar edilmiştir.

Çalışmanın diğer kısmında grafit katkılı hidrofobik silika aerjel üretimi için sol-jel yöntemi kullanılmıştır. Deney prosedürü önceki gibidir. Farklı olarak kondenzasyon basamağında genişletilmiş grafit ilavesi yaparak karıştırma işlemine geçilmiştir. Resim 9.6.'da silika-grafit kompozit madde şematik gösterimi verilmiştir. Çizelge 9.2'de genişletilmiş grafit katkılı silika aerjeller ve jelleşme süreleri verilmiştir.

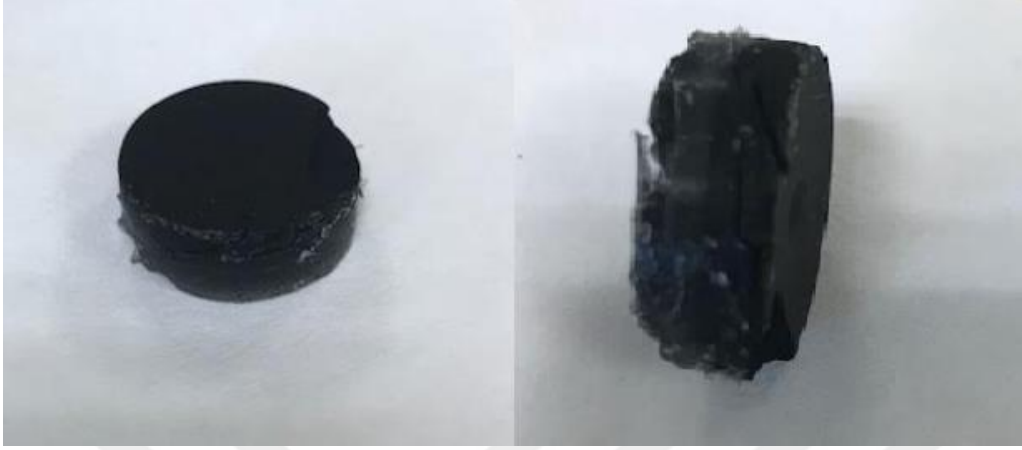


Resim 9.6. Silika- grafit kompozit madde şematik gösterimi

Çizelge 9.2. Grafit katkılı silika aerjeller ve jelleşme

Asit katalizör; HCl-Baz katalizör; KOH Genişletilmiş grafit katkı (gr)	Jelleşme süresi (Gün)
0,0125	3,75
0,125	2

Katkı miktarı arttıkça numunenin jel formuna geçmesi daha çabuk olmuştur. Jelleşmesi tamamlanan grafit katkılı numune Resim 9.7 'de gösterilmektedir.



Resim 9.7. Jelleşmesi tamamlanan genişletilmiş grafit katkılı numune

Resim 9.8 'de kurutmadan sonra genişletilmiş grafit katkılı numune gösterilmiştir.



Resim 9.8. Kurutması tamamlanan genişletilmiş grafit katkılı numune

9.3. Adsorpsiyon Deneyleri

Absorbsiyon deneyleri yapılırken, öncelikle boyarmaddenin 300-800 nm dalgaboyu aralığında spektrum taraması yapılmış ve kalibrasyon eğrisi oluşturulmuştur. Belirlenen başlangıç derişimlerinde metilen mavisinin çözeltisi hazırlanmıştır. Çözeltiye pH ayarlaması yapılmıştır. Hazırlanan çözeltiye adsorbent eklendikten sonra, belli sıcaklığa ve karıştırma hızına ayarlanmış çalkalamalı su banyosuna koyulmuştur. Belli zaman aralıklarında mikropipet yardımıyla çözeltiden alınan numuneler mikro filtreden geçirildikten sonra PG Instruments Ltd. T 80+ UV-VIS Spektrometresi cihazıyla analiz edilmiştir. Ölçüm doğruluğu test edilmesi için, her numune için en az üç ölçüm alınarak analiz gerçekleştirilmiştir. Ölçülen absorbans değerlerinden kalibrasyon eğrisi yardımıyla derişim değerleri belirlenmiştir. Yapılan çalışma daha detaylı bir şekilde aşağıda anlatılmıştır.

9.3.1. Dalga boyu taraması

Bu deney kapsamında kullanılan metilen mavisinin dalga boyunu belirlemek için UV-VIS Spektrometresi kullanılmıştır. Dalga boyu taraması 300-800 nm dalgaboyu aralığında yapılarak, farklı dalga boylarına karşılık gelen absorbans değerleri okunmuştur. Yapılan bu dalga boyu taramasına göre ölçülen dalga boyu, deney süresince kullanılmıştır.

9.3.2. Kalibrasyon eğrisi çizilmesi

Adsorpsiyon deneylerinde kullanılacak derişimlerin belirlenebilmesi için, metilen mavisinden 1,2,3,4,5 ppm değerlerinde çözeltiler hazırlanmıştır. Bu çözeltilerin absorbans değerleri UV-VIS Spektrometresi ile ölçülmüştür. Bu değerler grafiğe geçirilerek kalibrasyon eğrisi çizilmiştir.

9.3.3. Denge süresinin belirlenmesi

Bu çalışmada yatışkın duruma geldikten sonraki derişimleri kullanılmak istenildiğinden adsorpsiyon işleminin dengeye gelme süresi (adsorbladığı madde miktarının zamanla artmama durumuna geldiğindeki geçen süre) belirlenmiştir. Dengeye gelme deneyi 30 °C sıcaklık, 5 ppm metilen mavisi çözeltisi, 0,1 gram adsorbent ve 97 rpm karıştırma hızında yapılmıştır. Karıştırmak için kullanılan su banyosu ve numuneler Resim 9.8 'de gösterilmiştir.



Resim 9.8. Karıştırılmalı Su Banyosu ve Numuneler

Deneysel çalışma süresince (0-200 dakika) aralığında 20 dakikada bir numune alınmış UV-VIS Spektrometresi cihazıyla absobans ölçümleri kaydedilmiştir. Zaman karşı derişime verileriyle grafiğe geçirilmiştir. Bu deneysel sonuçlardan denge süresi belirlenmiştir.

9.3.4. Adsorpsiyonu etkileyen değişkenlerin belirlenmesi

Silika aerogelin metilen mavisi ile adsorpsiyonuna pH, başlangıç metilen mavisi derişimi ve sıcaklık parametrelerinin etkisi incelenmiştir. Ayrıntılı anlatım aşağıda verilmiştir.

pH değişiminin metilen mavisi adsorpsiyonuna etkisi

Metilen mavisinin silika aerogel ile adsorpsiyonuna pH etkisini incelemek için 30 °C sıcaklık, 5 ppm boya derişimi, 0,1 g adsorbent ile 2,3,5,7,9,11 pH değerlerinde deneyler yapılmıştır.

Başlangıç metilen mavisi derişiminin metilen mavisi ile adsorpsiyonuna etkisi

Metilen mavisinin silika aerogel ile adsorpsiyonuna, adsorbent derişiminin etkisini incelemek üzere; 0,1 gram adsorbent miktarı, pH 9 koşullarında 30, 40, 50 °C sıcaklıkta 5, 7, 9, 12, 15, 30, 40, 50 ppm metilen mavisi derişimlerinde deneyler yapılmıştır.

Farklı derişimde hazırlanan çözeltiler Resim 9.9 'da gösterilmiştir.



Resim 9.9. Farklı derişimlerde hazırlanan metilen mavisi çözeltisi

Sıcaklığın metilen mavisi adsorpsiyonuna etkisi

Metilen mavisinin silika aerojel ile adsorpsiyonuna sıcaklık etkisini incelemek üzere; 30, 40, 50 °C sıcaklıkta 5, 7, 9, 12, 15, 30, 40, 50 ppm derişimlerinde deneyler yapılmıştır. Deney sonuçlarıyla izoterm eğrileri çizilmiştir.

10. DENEYSEL BULGULAR

10.1. Silika Aerojel Sentezine Farklı Katalizör Kullanımının Etkisi

Bu çalışmada başlangıç maddesi olarak TEOS kullanılarak sol-jel metoduyla hidrofobik silika aerojel sentezlenmiştir. Parametre olarak katalizör değişimleri incelenmiştir. Sentezlenen silika aerojelin yüzey alanına, ortalama gözenek çapına ve hidrofobiklik dereceleri etkisi incelenmiştir.

10.2. Değiştirilen Baz Katalizörün Silika Aerojellere Etkisi

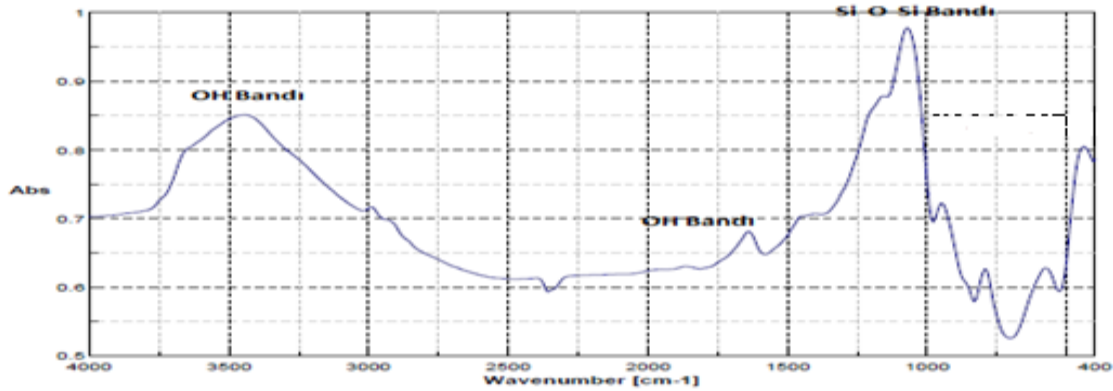
Sol-jel yöntemi ile TEOS başlangıç maddesi yardımıyla silika aerojel sentezlenmiştir. Kondenzasyon aşamasında farklı baz katalizörleri denenmiştir. Grafikleri verilen numuneler aşağıda verilmiştir.

Asit Katalizör HCl, Baz Katalizör KOH ile sentezlenen Silika Aerojel (N1)

Asit Katalizör HCl, Baz Katalizör NaOH ile sentezlenen Silika Aerojel (N2)

Asit Katalizör HCl, Baz Katalizör NH_4OH ile sentezlenen Silika Aerojel (N3)

Aerojeldeki kimyasal grupların varlığını göstermek için Şekil 10.1 'de gösterildiği gibi FTIR analizi yapılmıştır. Diğer numunelerin FTIR ve BET grafikleri EK-1 'de verilmiştir.



Şekil 10.1. N1 numunesinin FTIR spektrumu

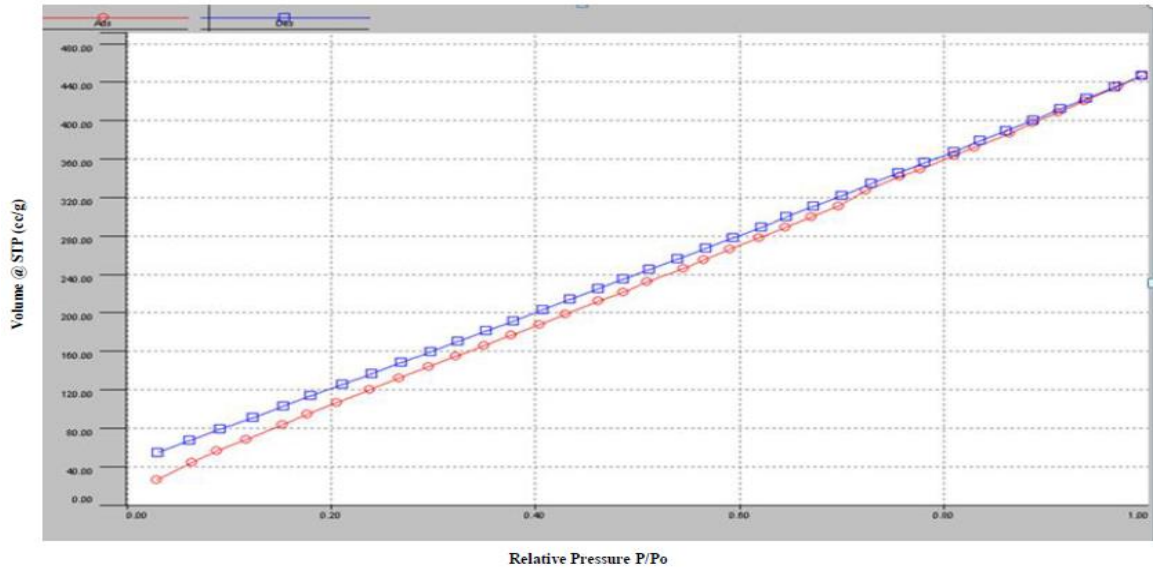
Ölçülen band değerleri Çizelge 10.1 'de gösterilmiştir.

Çizelge 10.1. Katalizör değiştirilerek elde edilen silika aërojellerin FTIR spektrum değerleri

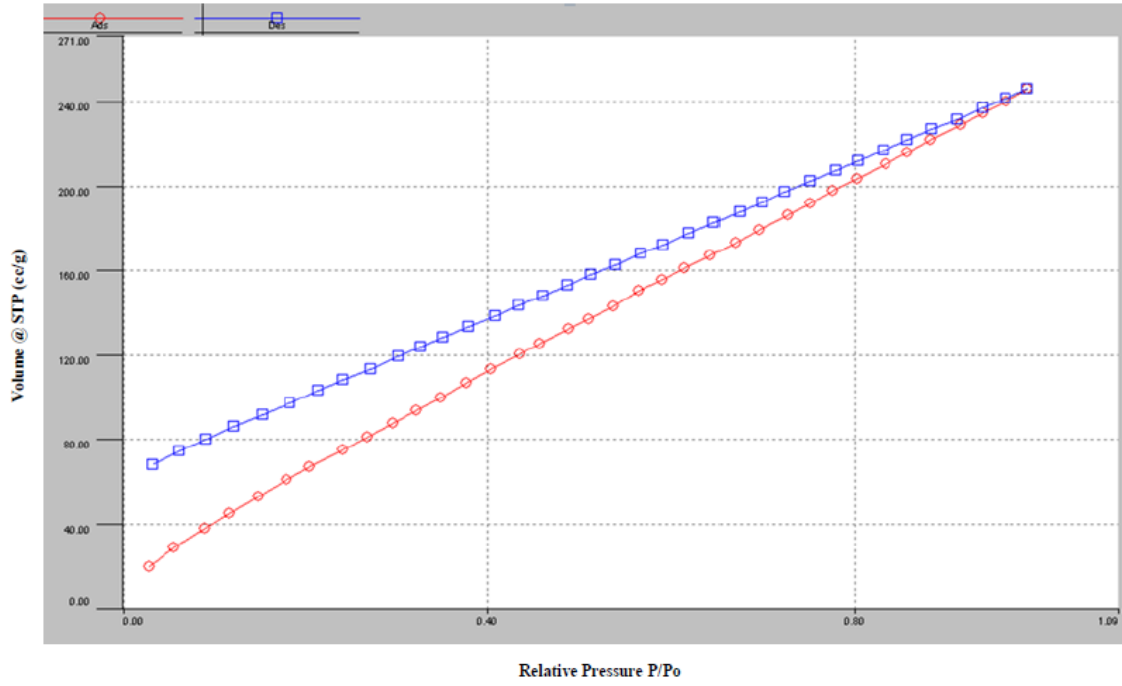
Bandlar	N1	N2	N3
Si-O-Si Asimetrik Bandı	1072,2	1072,2	1072,2
Si-O-Si Simetrik Bandı	794,5	794,5	794,5
Si-O-Si Ağ Bandı	439,7	447,4	447,4
-OH Absorpsiyon Bandı	3448/1643	3494,4/1643	3448,1/1643

Literatür araştırmalarında, benzer koşullarda çalışılan silika aërojelinde FTIR spektrumlarında Si-O-Si asimetrik bandı 1098, simetrik bandı 804, Si-O-Si ağ bandı 471 'dir [59]. Ayrıca -OH band değerlerinin 3440/1630 olarak bulunduęu görölmüştür. Bu verilere yakın değerler elde edilmiş olduğundan; silika aërojelinde sentezlenmiş olduğun görölmüştür.

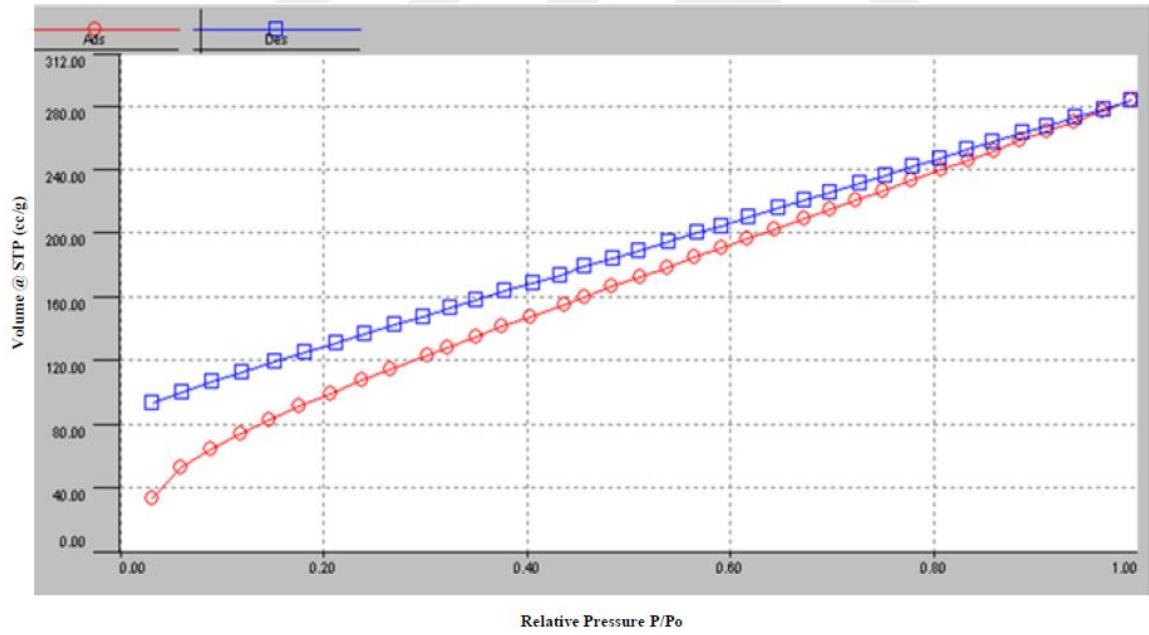
BET metodu ile yüzey alanı ve ortalama gözenek çap değerleri belirlenmiştir. Şekil 10.2 'de N1 numunesinin, Şekil 10.3. 'de N2 numunesinin, Şekil 10.4. 'de N3 numunesinin BET grafikleri verilmiştir.



Şekil 10.2. N1 numunesinin BET adsorpsiyon grafięi



Şekil 10.3. N₂ numunesinin BET adsorpsiyon grafiği

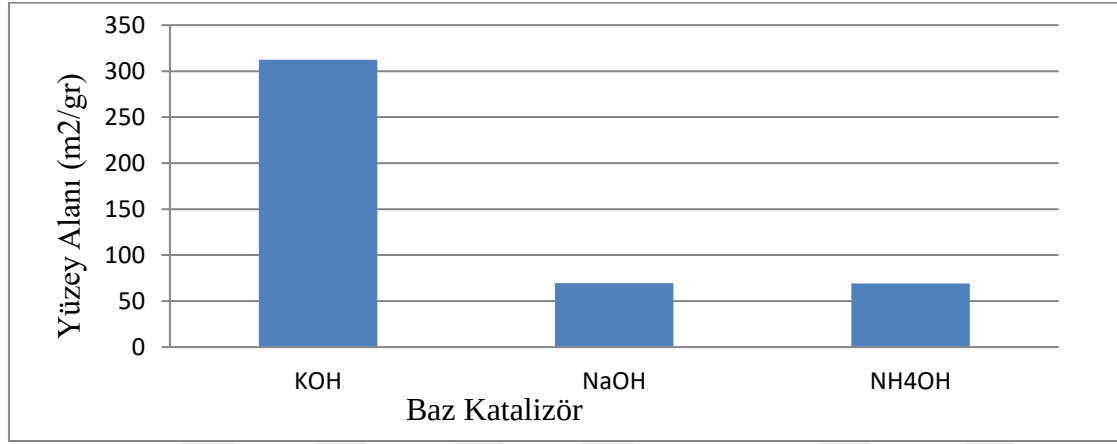


Şekil 10.4. N₃ numunesinin BET adsorpsiyon grafiği

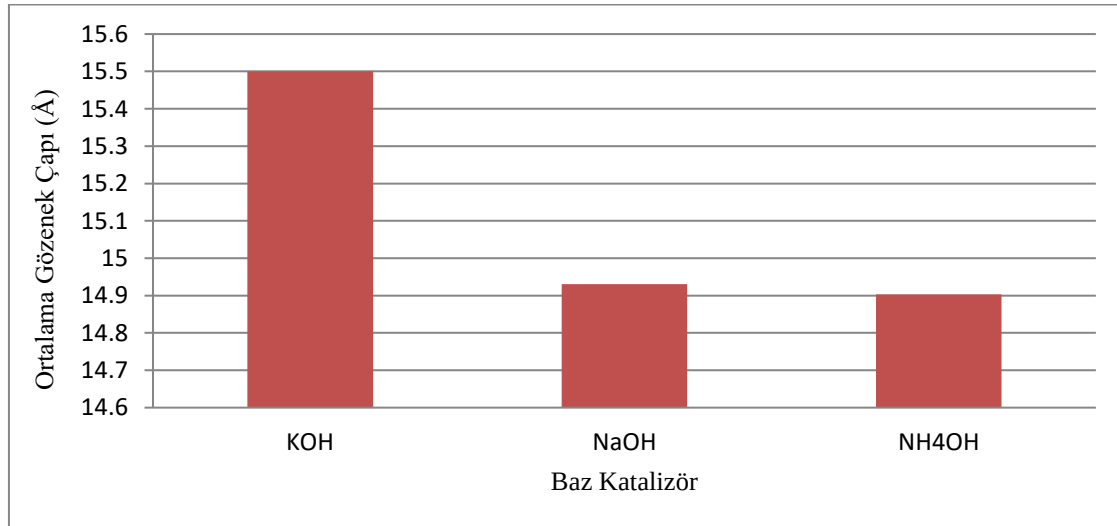
Yüzey alanı ve ortalama gözenek çap değerleri Çizelge 10.2 'de ve katalizör cinsinin yüzey alanına etkisi Şekil 10.5'de belirtilmiştir. Şekil 10.6' da ise katalizör cinsinin ortalama gözenek çapına etkisi gösterilmiştir.

Çizelge 10.2. Katalizör değiştirilerek elde edilen silika aerogellerin BET yüzey alanları ve ortalama gözenek çapı değerleri

Numuneler	BET Yüzey Alanı (m ² /g)	Ortalama Gözenek Çapı (Å)
N1	312,7	15,5
N2	69,5	14,9
N3	69	14,9



Şekil 10.5. Katalizör cinsinin yüzey alanına etkisi



Şekil 10.6. Katalizör cinsinin ortalama gözenek çapına etkisi

N1, N2 ve N3 numunelerinin yüzey alanı ve ortalama gözenek çapı değerlerine göre, KOH ile sentezlenen N1 numunesinin yüzey alanı değeri ve ortalama gözenek çap değerinin

diğerlerine göre yüksek değerde olduğu görülmüştür. Bu sonuçlara göre yüzey alanı arttıkça ortalama gözenek çapının da arttığı yorumu yapılabilmektedir.

Ayrıca; " Effect of catalyst used in the sol-gel process on the microstructure and adsorbtion performance of silica aerogels" isimli çalışmaya göre de baz katalizör olarak KOH kullanıldığında yüzey alan değerinin ve gözenek çapının daha yüksek olduğu görülmüştür [60].

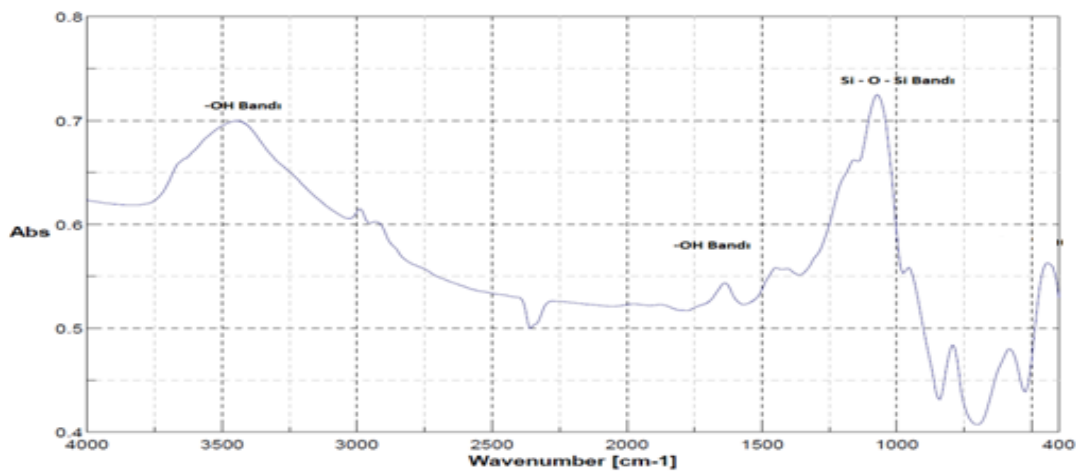
10.3. Genişletilmiş Grafit Katkılı Hidrofobik Silika Aerojel Eldesi

TEOS başlangıç maddesi ile genişletilmiş grafit katkı silika aerojel elde edilmiştir. HCl katalizörü kullanılarak seçilen baz katalizörüne kondenzasyon basamağında farklı miktarlarda genişletilmiş grafit ilavesi yapılarak kompozit malzeme elde edilmiştir. Elde edilen silika aerojellere FTIR analizi yapılarak aerojellerin yapılarındaki kimyasal grupların varlığı tespit edilmiştir. Şekil 10.7'de N4 numunesinin FTIR spektrumu verilmiştir. Diğer numunelerin FTIR spektrumları ve BET grafikleri EK-1 'de verilmiştir.

0,0125 g Genişletilmiş grafit katkı silika aerojel (N4)

0, 125 g Genişletilmiş grafit katkı silika aerojel (N5)

Saf halde genişletilmiş grafit numunesi (N6)



Şekil 10.7. N4 numunesi FTIR Spektrumu

Çizelge 10.3 'de genişletilmiş grafit katkılı silika aerojellerin BET yüzey alanları ve ortalama gözenek çapı değerleri verilmiştir.

Çizelge 10.3. Genişletilmiş grafit katkılı silika aerojellerin ve genişletilmiş grafitin BET yüzey alanları ve ortalama gözenek çapı değerleri

Numuneler	BET Yüzey Alanı (m ² /g)	Ortalama Gözenek Çapı (Å)
N4	848,9	14,9
N5	715,8	15
N6	803,5	15,8

10.4. Adsorpsiyon Kapasite Ölçümü İçin Uygulanan Deneysel Yöntem

Adsorpsiyon kapasitesinin karşılaştırılması için aşağıda belirtilen numuneler kullanılmıştır.

Saf hidrofobik silika aerjel (N1)

0,0125 g Genişletilmiş grafit katkılı silika aerjel (N4)

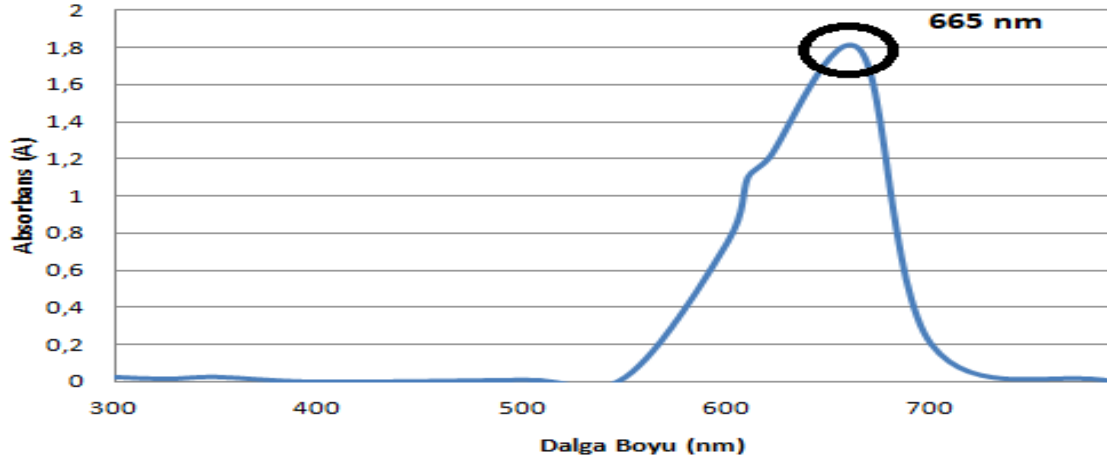
0, 125 g Genişletilmiş grafit katkılı silika aerjel (N5)

Saf halde genişletilmiş grafit numunesi (N6)

Bu deneysel çalışmadan önce dalga boyunun belirlenmesi ve kalibrasyon grafiğinin belirlenme deneyleri gerçekleştirilmiştir.

10.5. Metilen Mavisi Boyar Maddesinin Dalga Boyu Taraması

Bu deney kapsamında kullanılan metilen mavisinin dalga boyunu belirlemek için UV-VIS Spektrometresi kullanılmıştır. 300-790 nm aralığında dalga boyu taraması yapılarak, farklı dalga boylarına karşılık gelen absorbans değerleri okunmuştur. Yapılan bu dalga boyu taramasına göre max absorbansı veren dalga boyu 665 nm bulunmuştur. Buna göre bu deneyde UV cihazıyla yapılan tüm ölçümlerde 665 nm dalga boyu kullanılmıştır. Dalga boyu grafiği Şekil 10.8 'de verilmiştir.



Şekil 10.8. Metilen mavisinin 300-700 nm arasındaki dalga boyu taraması

10.6. Stok Çözelti Hazırlanması ve Kalibrasyon Grafiği

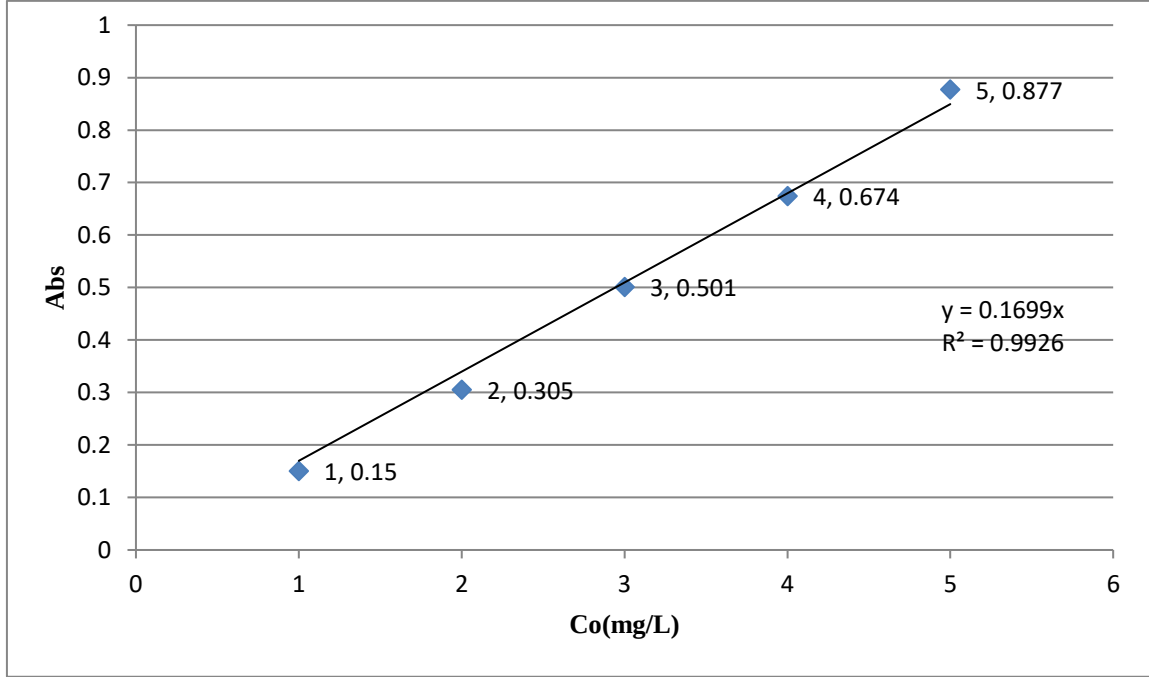
Stok Çözelti Hazırlanması

100 mg metilen mavisi, 1 litre suda çözülerek stok çözelti hazırlanmıştır. Bu çözeltiden seyreltme yaparak farklı derişimlerde metilen mavisi çözeltileri hazırlanmış ve absorbsiyon değerleri ölçülmüştür.

Molarite değerlerine karşılık ölçülen absorbsiyon değerleri Çizelge 10.4'de verilmiştir. Ayrıca elde edilen değerler ile çizilen metilen mavisi kalibrasyon eğrisi Şekil 10.9' da verilmiştir.

Çizelge 10.4. Molaritelere karşı ölçülen absorbsiyon değerleri

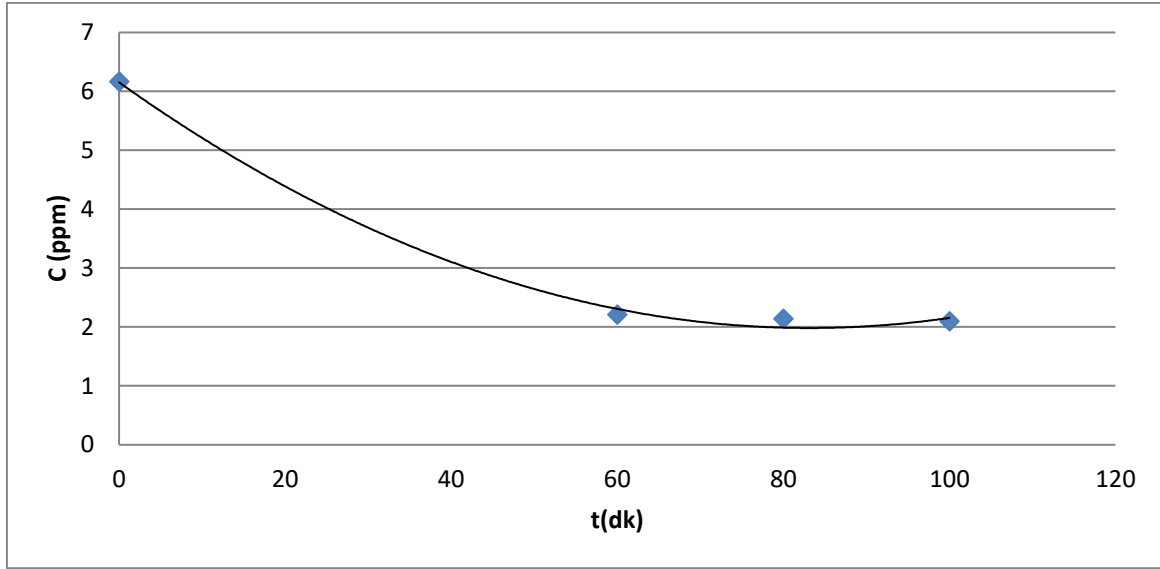
Numune	Konsantrasyon (Co(mg/L))	Molarite*10 ⁻³	Abs
1	1	0,003	0,15
2	2	0,006	0,3
3	3	0,009	0,5
4	4	0,012	0,6
5	5	0,015	0,8



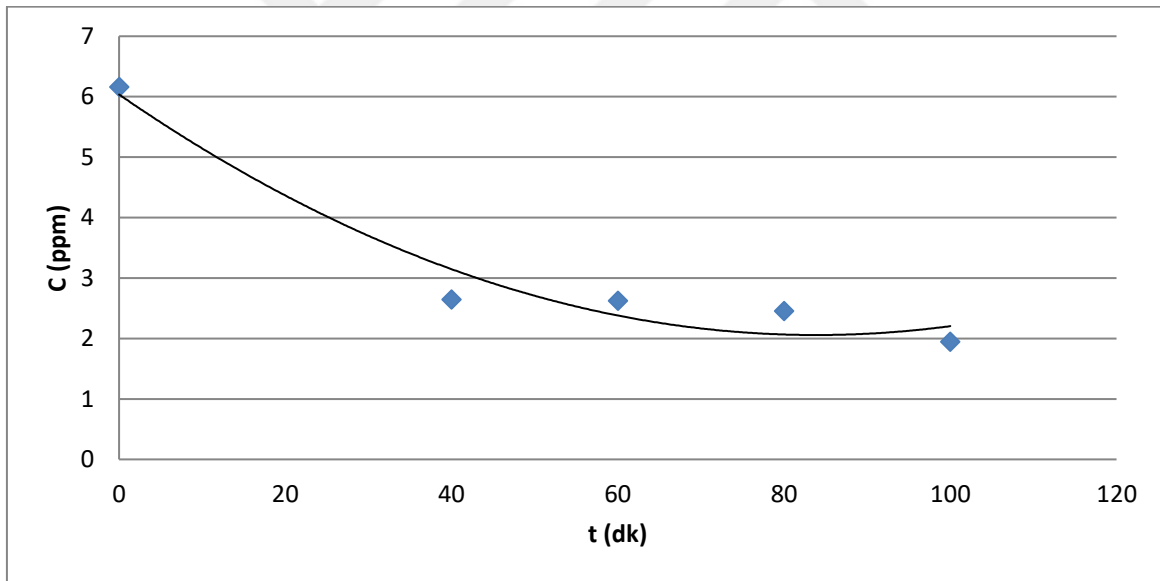
Şekil 10.9. Metilen mavisi için kalibrasyon eğrisi

10.7. Metilen Mavisi Çözeltisinin Adsorpsiyonu İçin Denge Sürelerinin Belirlenmesi

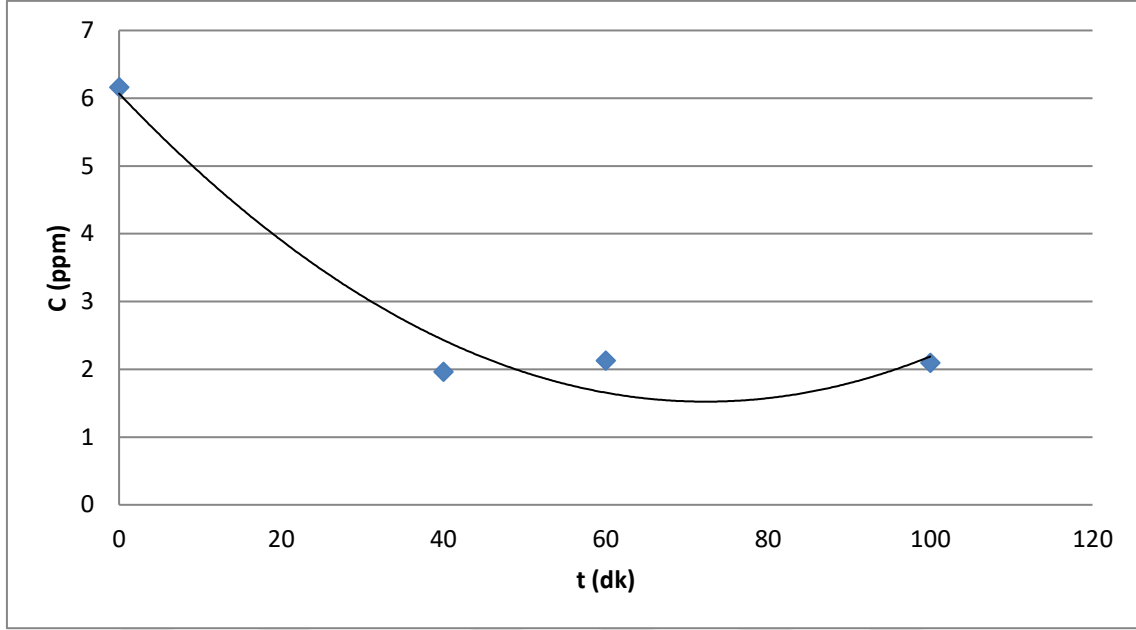
Yapılan deneysel çalışmada, öncelikle adsorpsiyon işleminin dengeye gelme süresi belirlenmiştir. Adsorpsiyon deneyinde süreyi belirleyebilmek için 30 °C sıcaklık, 100 ppm başlangıç metilen mavisi derişimi (seyreltme yapılmıştır ve 5 ppm alınmıştır), 1 gram adsorbant ve 96 rpm karıştırma hızı uygulanmıştır. N1, N4 ve N5 numuneleri ile yapılan deney süresince belli aralıklarla numune alınmıştır. UV cihazıyla absorbans değerleri ölçülmüştür ve değerler EK-2 'de verilmiştir. Ayrıca genişletilmiş grafit ile yapılan denge grafiği de EK-2'de verilmiştir. Alınan verilerle çizilen çözeltideki metilen mavisi konsantrasyonuna karşı zaman grafikleri sırasıyla Şekil 10.10'da, Şekil 10.11'de, Şekil 10.12'de verilmiştir.



Şekil 10.10. Metilen mavi çözeltisinin N1 numunesi ile adsorpsiyonunun zamana bağlı olarak derişim değışimi ($T=25^{\circ}\text{C}$, $C_0=5\text{ ppm}$; $m_{\text{adsorbent}}=0,1\text{ gr}$; karıştırma hızı $97=97\text{ rpm}$)



Şekil 10.11. Metilen mavi çözeltisinin N4 numunesi ile adsorpsiyonunun zamana bağlı olarak derişim değışimi ($T=25^{\circ}\text{C}$, $C_0=5\text{ ppm}$; $m_{\text{adsorbent}}=0,1\text{ gr}$; karıştırma hızı $=97\text{ rpm}$)

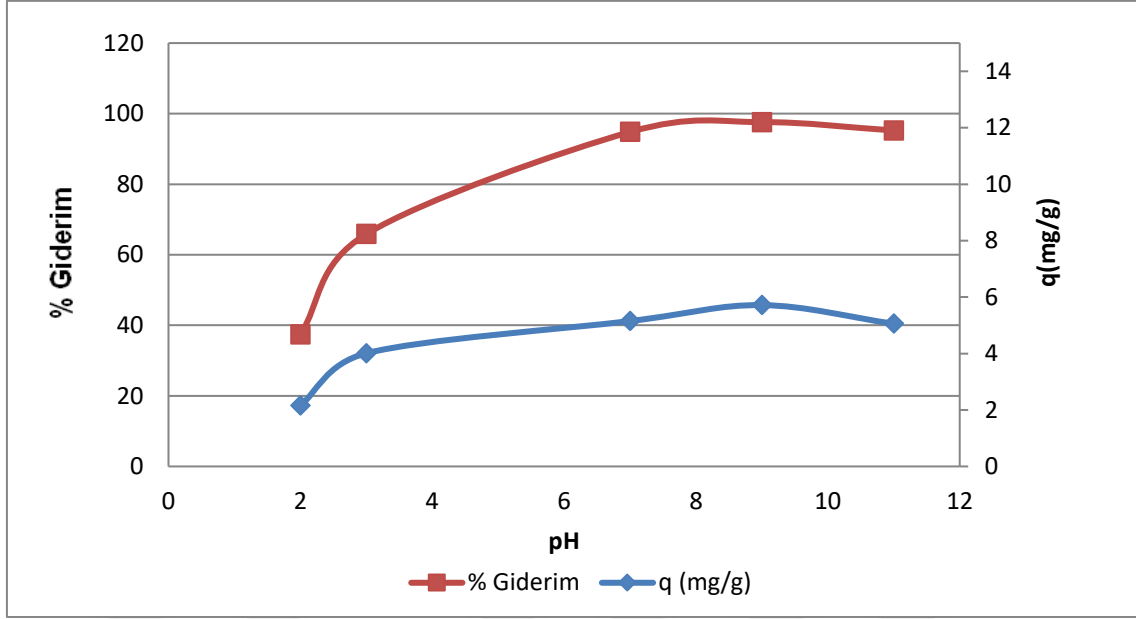


Şekil 10.12. Metilen mavi çözeltisinin N5 numunesi ile adsorpsiyonunun zamana bağlı olarak derişim değışimi (T= 30  C, Co= 5 ppm; madsorbent= 0,1 gr; karıştırma hızı = 97 rpm)

N1, N4 ve N5 numunelerinin zamana bağlı derişim değışimi grafiklerine göre; 100 dk sonunda metilen mavisi derişimin sabit kaldığı gör lm şt r. Dengeye gelme s resi kořullara g re değışebilmektedir. Bu analiz sonu larına g re her    numune i inde dengeye gelme s resi 100 dk olarak se ilmiřtir.

10.8. Metilen Mavisinin Saf Silika Aerojel ve Geniřletilmiř Grafit Katkılı Silika Aerojel İle Adsorpsiyonunda pH Etkisinin İncelenmesi

Metilen mavisinin saf silika arojel ile adsorpsiyonuna pH etkisini incelemek i in 30  C sıcaklık, 5 ppm boya derişimi, 0,1 g adsorbent, 97 rpm karıştırma hızı ile 2,3,5,7,9,11 pH değ rlerinde deneyler yapılmıřtır.   z ltlerin pH ayarlamaları 0,1 M seyreltik HCl asiti, 0,1 M seyreltik NaOH bazı ile yapılmıřtır. Farklı pH değ rlerine karřı elde edilen veriler EK-3 'de verilmiřtir. Farklı pH değ rleri ile  izilen grafik Şekil 10.13 'de verilmektedir.



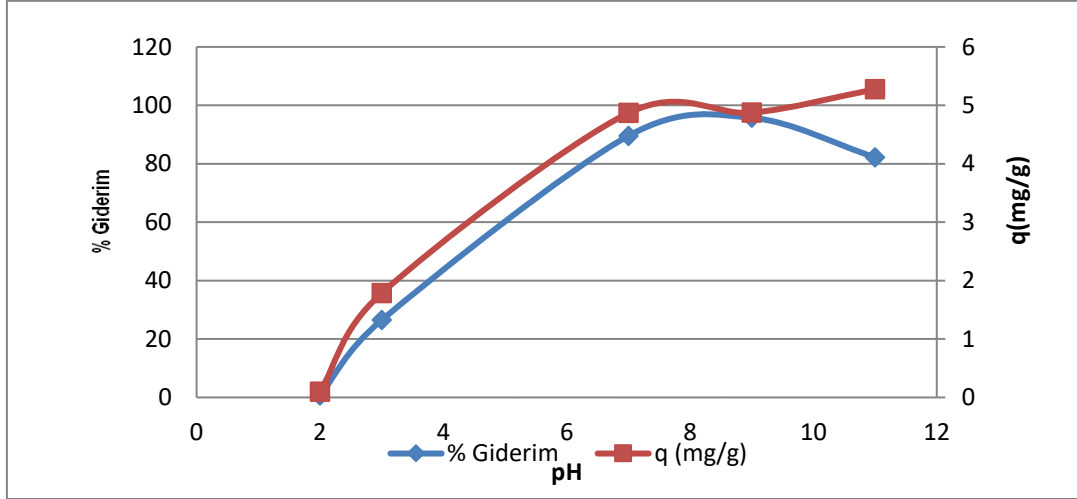
Şekil 10.13. Farklı pH değerlerinde saf silika aerjel ile adsorplanan metilen mavisinin % giderim ve kapasite değerleri ($T = 30^{\circ}\text{C}$, $C_0 = 5 \text{ ppm}$; $m_{\text{adsorbent}} = 0,1 \text{ gr}$; karıştırma hızı = 97 rpm)

Şekil 10.13 'de 100 dakikalık denge süresi sonunda % giderim ve adsorpsiyon kapasitesinin farklı pH değerlerindeki değişimi gösterilmektedir. Grafikten görüldüğü üzere denge süresi sonunda pH 9 'da Metilen mavisini derişimi 5,72 ppm iken, pH 2'de metilen mavisini derişimi 2,15 ppm olduğu görülmektedir. En yüksek giderime (%97,5) pH 9'da ulaşılırken; en düşük % giderim (%37) pH 2'de olduğu görülmüştür. Bu verilerden hareketle, çalışma şartlarına en uygun pH değeri 9 olarak seçilmiştir. Metilen mavisini bazik(katyonik) özellikte bir boya olduğu literatürden ve deneysel çalışmadan görülmüştür. Düşük pH değerlerinde bu nedenle %giderim değeri düşüktür. pH değeri arttıkça %giderim değerinin de arttığı deneysel çalışmada görülmüştür.

Metilen mavisinin grafit katkılı silika aerjel ile adsorpsiyonuna pH etkisi

Şekil 10.14 'de, 100 dakikalık denge süresi sonunda % giderim ve adsorpsiyon kapasitesinin farklı pH değerlerindeki değişimi gösterilmektedir. Genişletilmiş grafit katkılı silika ile elde edilen giderimin, saf silika ile elde edilen gideriminin biraz altında kaldığı görülmüştür.

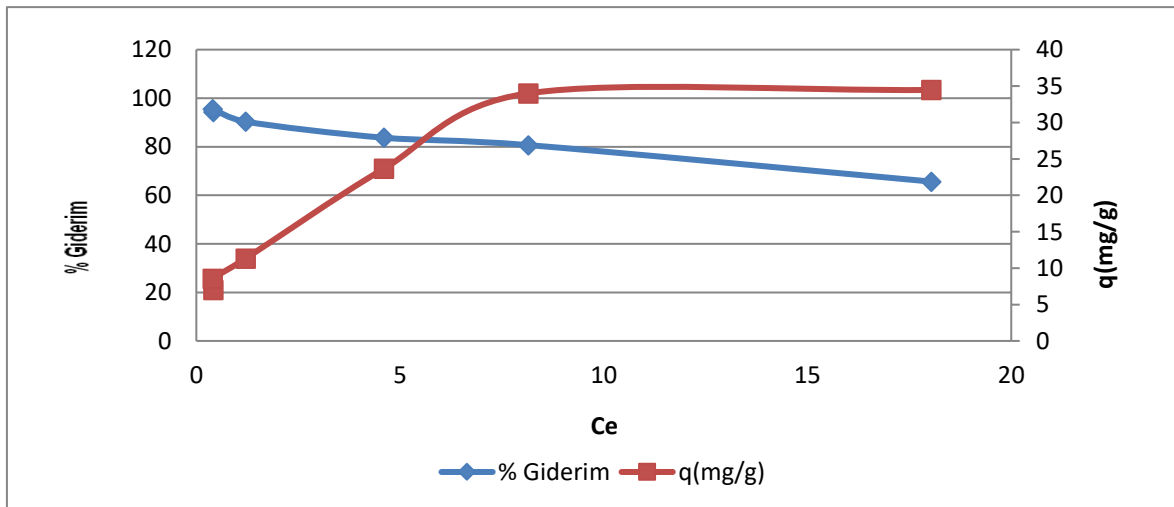
Tez çalışmasının diğer bölümlerine saf silika ile devam edilmiştir.



Şekil 10.14. Farklı pH değerlerinde genişletilmiş grafit katkılı silika aerojel ile adsorblanan metilen mavisinin % giderim ve kapasite değerleri ($T= 30^{\circ}\text{C}$, $\text{Co}= 5 \text{ ppm}$; $m_{\text{adsorbent}}= 0,1 \text{ gr}$; karıştırma hızı = 97 rpm)

10.9. Metilen Mavisinin Silika Aerojel ile Gideriminde Başlangıç Metilen Mavisi Derişiminin Etkisinin İncelenmesi

Metilen mavisinin silika aerojel ile adsorpsiyonuna, adsorbent derişiminin etkisini incelemek üzere; 0,1 gram adsorbent miktarı, pH 9 da ve 5, 7, 9, 12, 15, 30, 40, 50 ppm metilen mavisini derişimlerinde deneyler yapılmıştır. Bu deney sonucunda elde edilen veriler EK-4' de verilmiştir. Bu veriler çizilen grafik Şekil 10.15 'de verilmiştir.



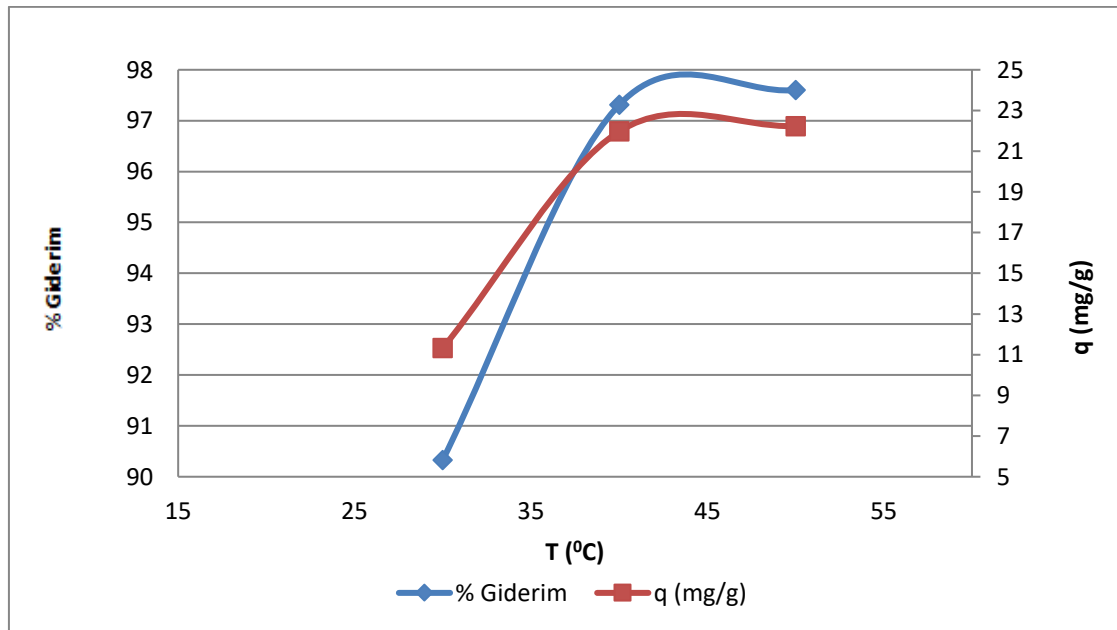
Şekil 10.15. Farklı başlangıç metilen mavisini derişimlerinde N1 numunesi ile adsorpsiyonunun % giderim ve kapasite değerleri ($T= 30^{\circ}\text{C}$, $m_{\text{adsorbent}}= 0,1 \text{ gr}$; pH=9, karıştırma hızı = 97 rpm)

Şekil 10.15 'de 100 dakikalık denge süresi sonunda %giderim ve adsorpsiyon kapasitesinin farklı metilen mavisi değerlerindeki değişimi görülmektedir. Metilen mavisi derişimi 5 ppm' den 50 ppm' e artırıldığında % giderim değerleri 95,4 den 65'e düşerken, adsorpsiyon kapasitesi 2,73mg/g'dan 34,4 mg/g'a yükseldiği görülmektedir.

Başlangıç boya derişimi arttıkça % giderim değerinin azalması, adsorbent üzerindeki adsorpsiyon bölgelerinin doygun hale gelmesiyle açıklanabilmektedir. Başlangıç metilen mavisi çözeltisi derişimi arttıkça adsorpsiyon kapasitesinin artması ise yüksek konsantrasyonlarda mevcut tüm fonksiyonel gruplarının kullanıma uygun hale gelerek, yürütücü kuvvet olarak derişim farkının artmasıyla açıklanabilmektedir [61].

10.10. Metilen Mavisinin Silika Aerojel ile Gideriminde Sıcaklık Etkisinin İncelenmesi

Metilen mavisinin silika aerojel ile adsorpsiyonuna sıcaklık etkisini incelemek üzere; 30, 40, 50 °C sıcaklıklarda 5, 7, 9, 12, 15, 30, 40, 50 ppm boyarmadde derişimlerinde deneyler yapılmıştır. Deney sonuçlarıyla adsorpsiyon izoterm eğrileri çizilmiştir. 0,1 gram adsorbent miktarı, pH 9 ve karıştırma hızı 97 rpm koşullarında çalışılmıştır. Deney sonuçlarında elde edilen veriler EK-5 'de verilmiştir. Bu verilerle çizilen grafikler Şekil 10.16 'da gösterilmiştir.



Şekil 10.16. Farklı sıcaklıklarda metilen mavisi ile silika aerojelin % giderim ve kapasite değerleri ($C_0 = 12$ ppm , pH=9 , karıştırma hızı = 97 rpm)

Şekil 10.16 'da 100 dakikalık denge süresi sonunda % giderim ve adsorpsiyon kapasitesinin farklı sıcaklıklardaki değişimi gösterilmiştir. Sıcaklık değerleri arasında % giderimin %90,3' den %97,6' ya arttığı görülmüştür.

Literatürle benzerlik göstererek, artan sıcaklıkla birlikte adsorpsiyon veriminin artması, yapılan işlemin endotermik olması ile açıklanmaktadır [62].

10.11. Metilen Mavisi Denge Verilerinin Adsorpsiyon İzotermlerine Uygulanması

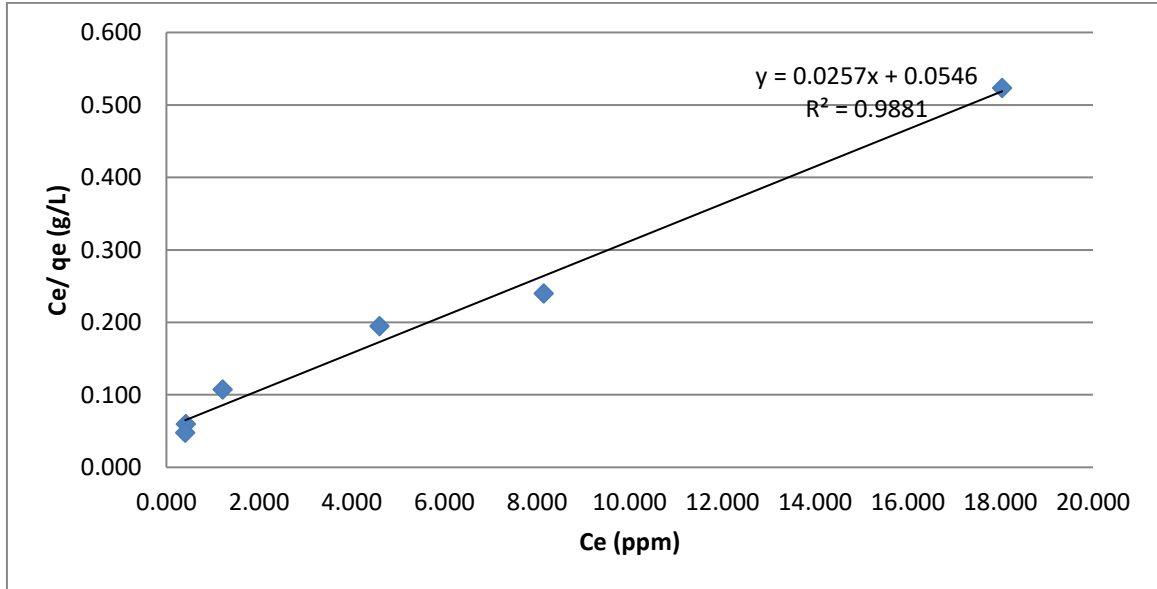
Metilen mavisi boyasının silika arojel ile adsorpsiyonunun uygun olduğu adsorpsiyon izotermelerini belirlemek amacıyla pH 9 ve 0,1 gram adsorbent miktarı ile; 5, 7, 9, 12, 15, 30, 40, 50 ppm derişimlerinde; 30, 40, 50 °C sıcaklıklarda deneyler yapılmıştır. Deneysel veriler Langmuir, Freundlich ve Temkin izotermine uygulanmıştır.

Metilen mavisinin en uygun olduğu denge izotermi belirlenirken önce her üç izoterm (Langmuir, Freundlich ve Temkin) için veriler belirlenmiştir.

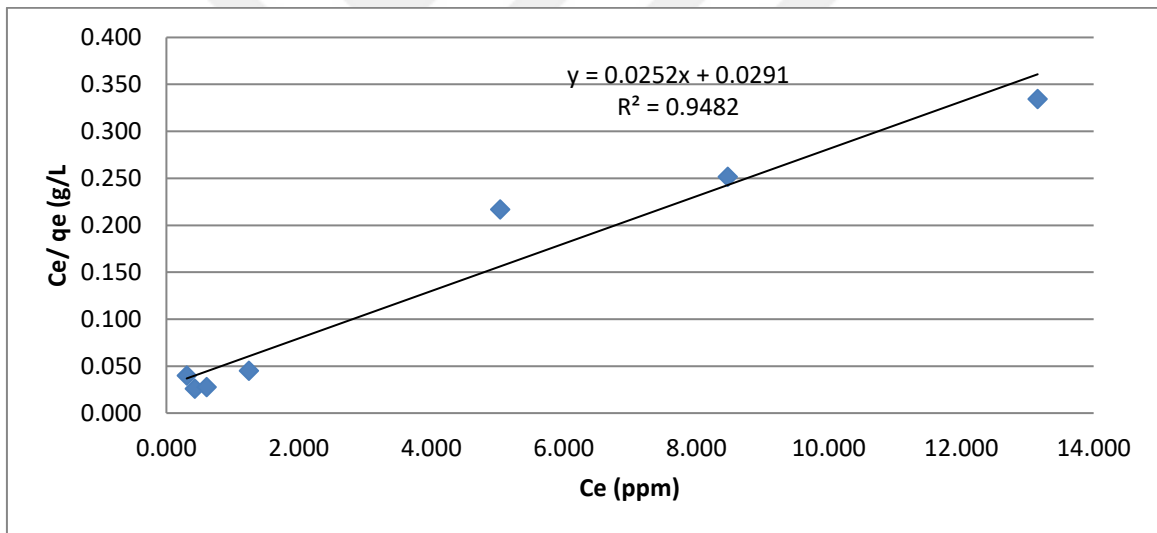
Metilen mavisi boyasının silika arojel ile adsorpsiyonunun Langmuir izotermine uygulanması

Langmuir izotermi oluşturmak için kullanılan veriler EK-6 'da , bu verilerle çizilen grafik Şekil 10.17 ' de, Şekil 10.18 'de, Şekil 10.19. 'da verilmiştir.

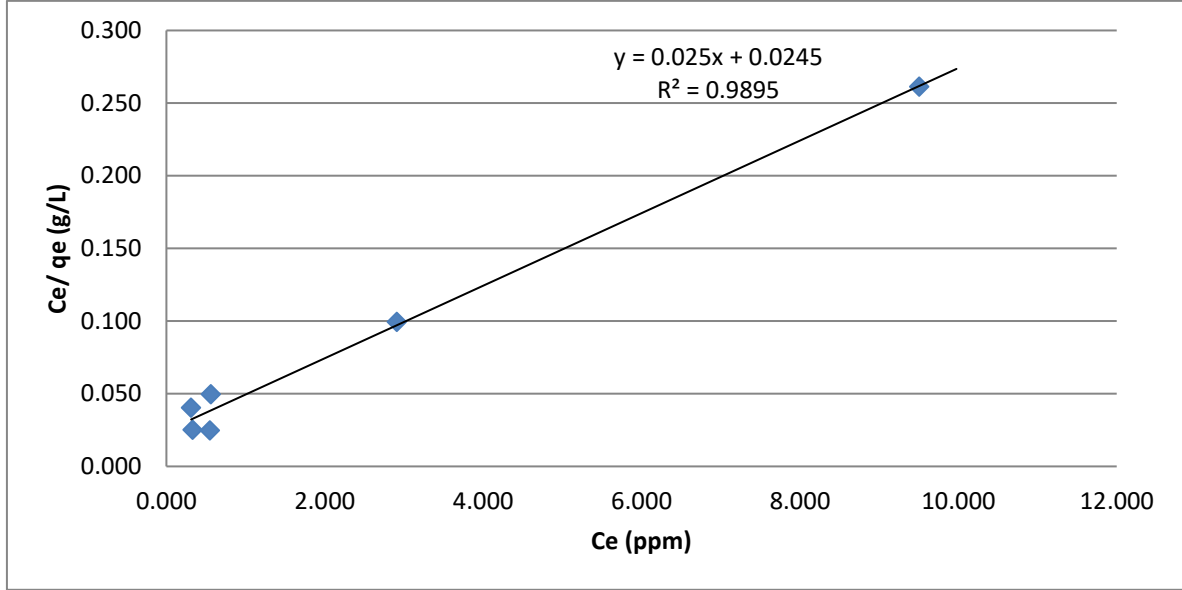
Langmuir izoterminden elde edilen model parametreleri EK-7' de verilmiştir. Ayrıca Langmuir izoterminden hesaplanan $q_{e,hes}$ ve $q_{e,den}$ değerleri EK-8' de verilmiştir.



Şekil 10.17. Metilen mavisi adsorpsiyonun 30 °C sıcaklıktaki Langmuir izotermi



Şekil 10.18. Metilen mavisi adsorpsiyonun 40 °C sıcaklıktaki Langmuir izotermi

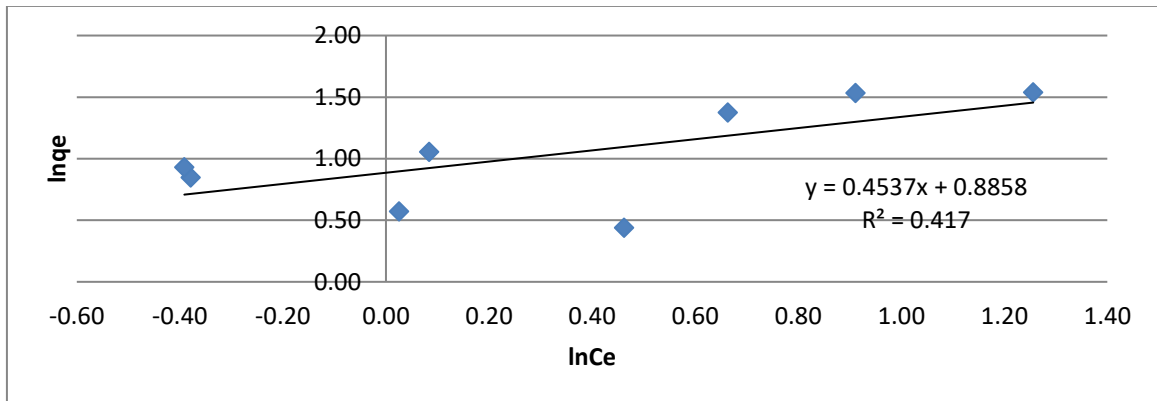


Şekil 10.19. Metilen mavisinin adsorpsiyonunun 50 °C sıcaklıktaki Langmuir izotermi

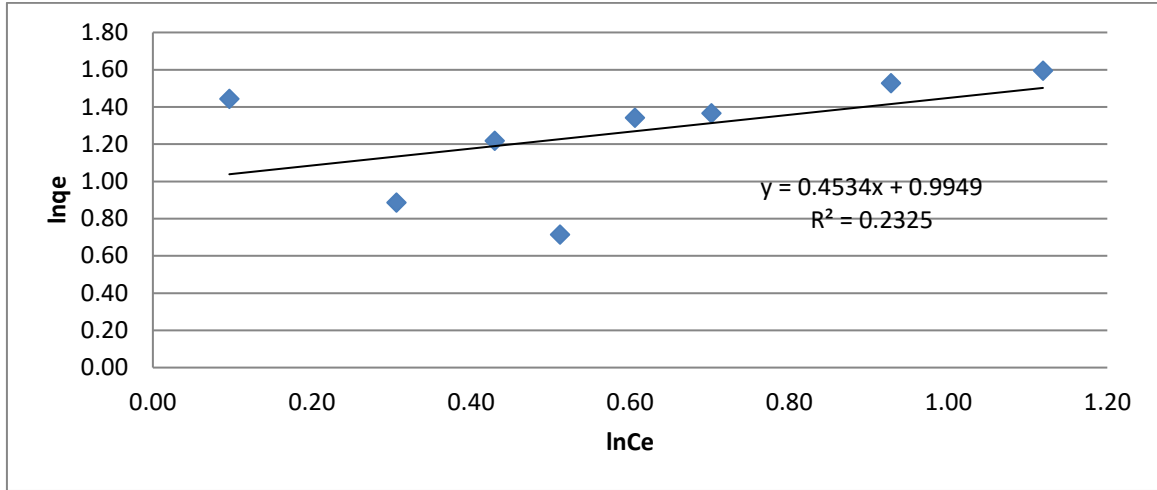
Metilen mavisinin silika aerojel ile adsorpsiyonu için yapılan denge çalışmalarında her üç sıcaklık için de Langmuir modeline yüksek bir uygunluk gözlenmiştir.

Metilen mavisinin silika aerojel ile adsorpsiyonunun Freundlich izotermine uygulanması

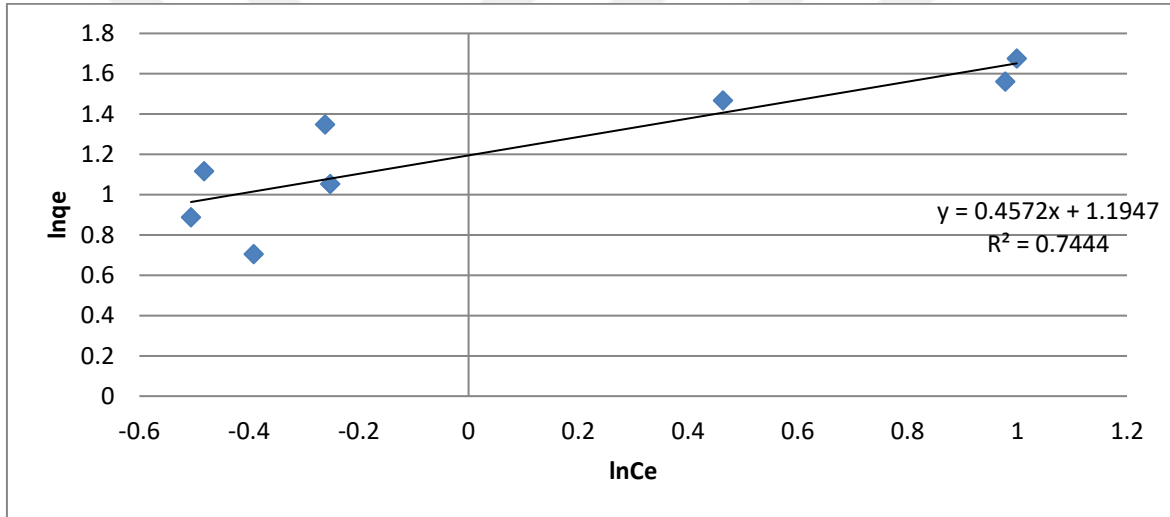
Freundlich izotermi oluşturmak için kullanılan veriler EK-9 'da, bu verilerle çizilen grafik Şekil 10.20 'de, Şekil 10.21 'de, Şekil 10.22 'de verilmiştir.



Şekil 10.20. Metilen mavisinin adsorpsiyonunun 30 °C sıcaklıktaki Freundlich izotermi



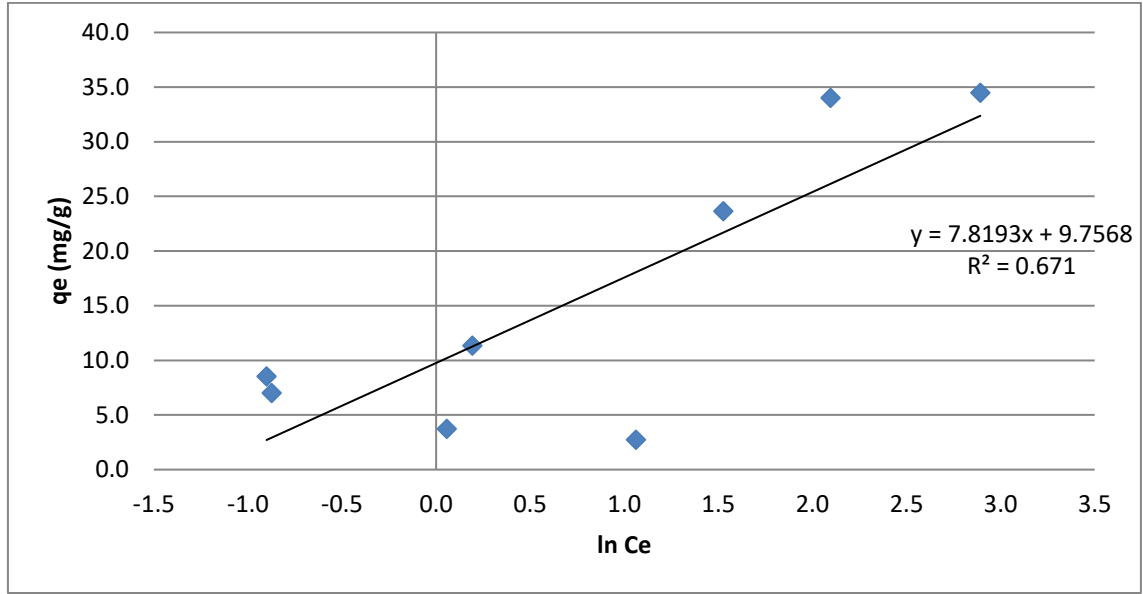
Şekil 10.21. Metilen mavisi adsorpsiyonun 40 °C sıcaklıktaki Freundlich izotermini



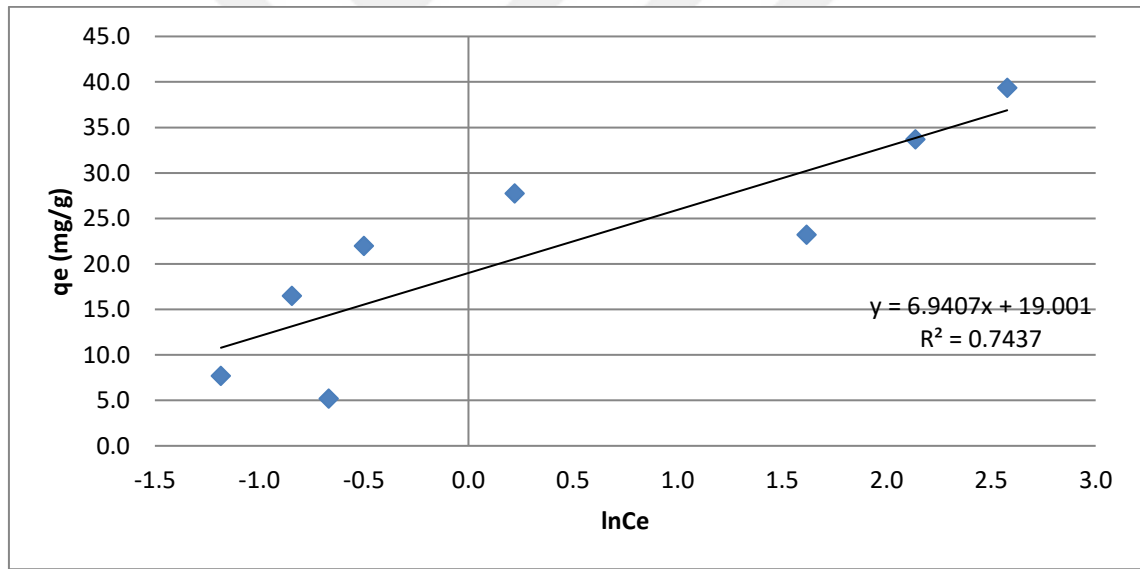
Şekil 10.22. Metilen mavisi adsorpsiyonun 50 °C sıcaklıktaki Freundlich izotermini

Metilen mavisi boyasının silika arojel ile adsorpsiyonunun Temkin izotermine uygulanması

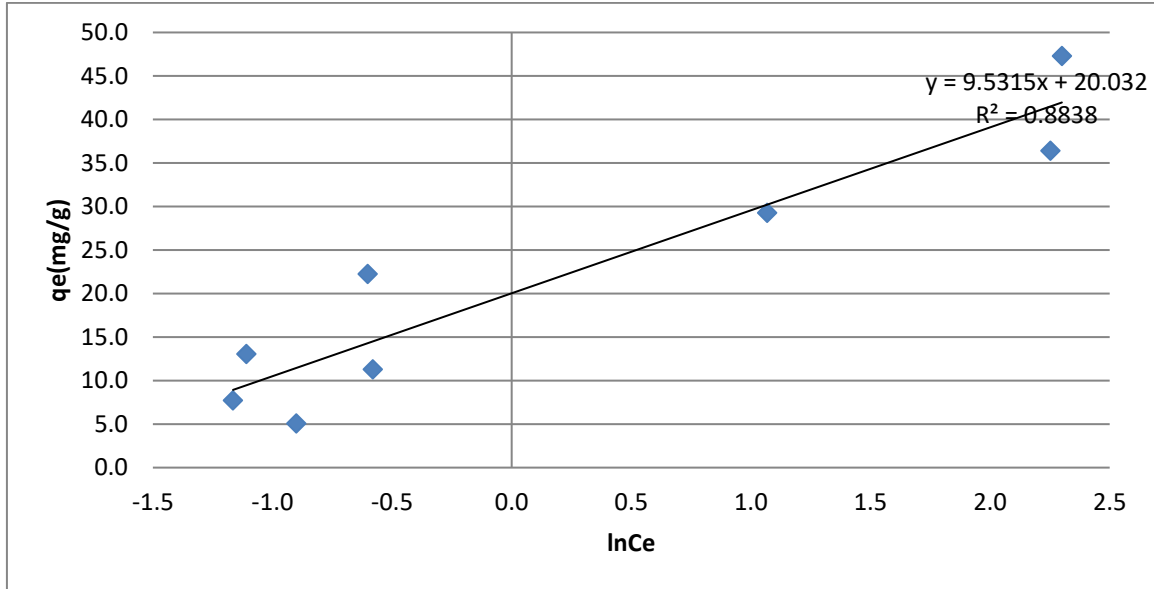
Temkin izotermelerini oluşturmak için kullanılan veriler EK-10 'da ve bu verilerle çizilen grafik Şekil 10.23 'de, Şekil 10.24 'de ve Şekil 10.25 'de verilmiştir.



Şekil 10.23. Metilen mavisi adsorpsiyonun 30 °C sıcaklıktaki Temkin izotermi



Şekil 10.24. Metilen mavisi adsorpsiyonun 40 °C sıcaklıktaki Temkin izotermi



Şekil 10.25. Metilen mavisi adsorpsiyonun 50 °C sıcaklıktaki Temkin izotermi

Metilen mavisi için adsorpsiyon çalışmalarında Temkin izotermine uygunluğun az olduğu görülmüştür.

Metilen mavisinin silika aerojel ile adsorpsiyonuna en uygun izotermin belirlenmesi:

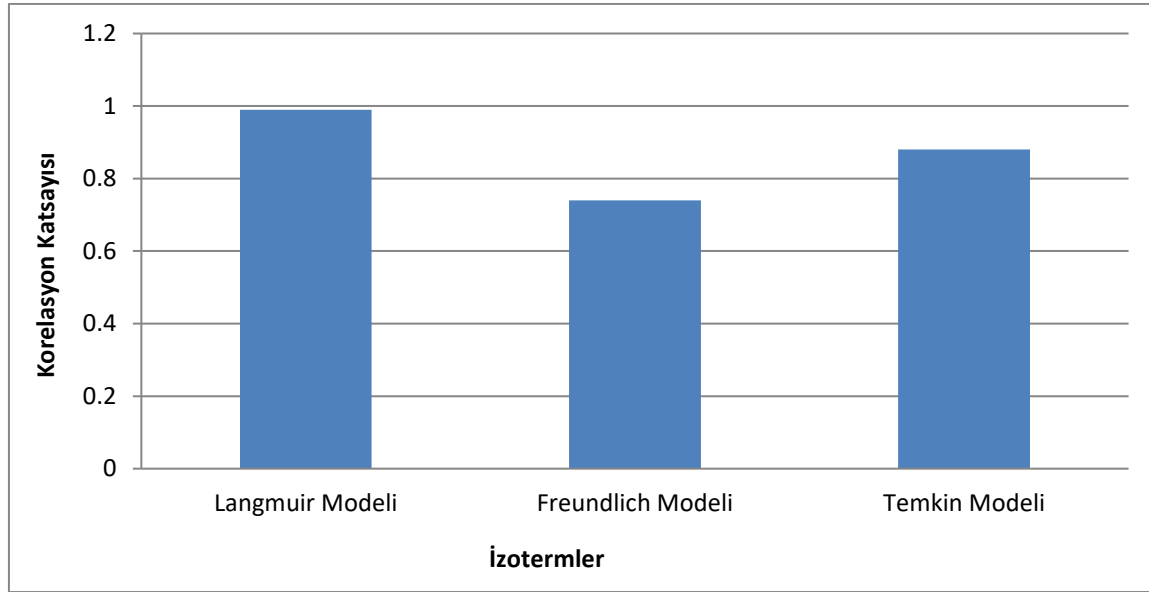
Metilen mavisinin silika aerojel ile adsorpsiyonuna en uygun izotermin belirlenmesi için izotermelerde belirlenen R^2 (korelasyon) katsayıları verilmiştir. Çizelge 10.5 'de değerler verilmiştir.

Çizelge 10.5. Farklı sıcaklıklarda denge modellerinin korelasyon katsayısı

Sıcaklık	30 °C	40 °C	50 °C
İzoterm	Korelasyon katsayısı (R^2)		
Langmuir Modeli	0,98	0,94	0,99
Freundlich Modeli	0,41	0,23	0,74
Temkin Modeli	0,67	0,74	0,88

Langmuir modelinde 50 °C'de korelasyon katsayısı en yüksek değerde ($R^2=0,99$) 'dir. Langmuir modeliyle iyi bir uyum sağladığı söylenebilir. Bu uyum Şekil 10.26 'da görülmektedir.

Literatüre göre Langmuir modelinde, adsorpsiyon enerjisi sabit değerlerdedir. Bunun anlamı, adsorbent üzerinde alıcı noktaların enerji açısından benzer olduğuna, bu sayede adsorbent molekülleri arasında hiçbir etkileşim olmadığı anlamına gelmektedir. Tek tabakalıdır, doygunluğa ulaşıldığında maksimum adsorpsiyon gerçekleşeceği görülmektedir [63].



Şekil 10.26. Korelasyon katsayıları ve izotermeler

Çizelge 10.6 Çeşitli sıcaklıklarda silika aerjel adsorpsiyonu için Langmuir modeli ile hesaplanan (q_e, hes) ve deneysel (q_e, den) adsorpsiyon kapasitesi değerleri

	7 ppm		9 ppm		15 ppm		30 ppm		40 ppm		50 ppm	
	q_e, d	q_e, he	q_e, d	q_e, he	q_e, d	q_e, he	q_e, d	q_e, he	q_e, d	q_e, he	q_e, d	q_e, he
30°C	7	6,39	8,52	6,24	3,71	14,13	23,64	26,62	33,99	30,86	34,46	34,81
40°C	7,68	8,31	16,4	10,76	27,73	19,07	23,21	28,67	33,66	34,92	39,34	36,48
50°C	7,71	10	13	10,11	11,27	15,33	29,25	33,52	36,39	41,70	47,28	41,91

Çizelge 10.6 da q_e değerleri verilmiştir. Langmuir modeli için yapılan denge çalışmalarında özellikle 50 °C'de Langmuir modeline yüksek uygunluk gözlenmiştir.

10.12. Metilen Mavisinin Silika Aerojel ile Adsorpsiyonun Termodinamik İncelenmesi

Metilen mavisinin silika aerojel ile adsorpsiyon işlemine ait termodinamik inceleme yapmak amacıyla, 30, 40, 50 °C sıcaklıklarda yapılan deneylerin verileri kullanılarak; entalpi değişimi, entropi değişimi, serbest enerji değişimi gibi termodinamik parametreler hesaplanmıştır.

Metilen mavisinin silika aerojel ile adsorpsiyonu için ΔG , ΔH ve ΔS değerlerinin bulunması

Serbest enerji değişimi aşağıdaki eşitliklerle ifade edilir;

$$\Delta G = -RT \ln K_L \quad (10.1)$$

$$\Delta G = \Delta H - T\Delta S \quad (10.2)$$

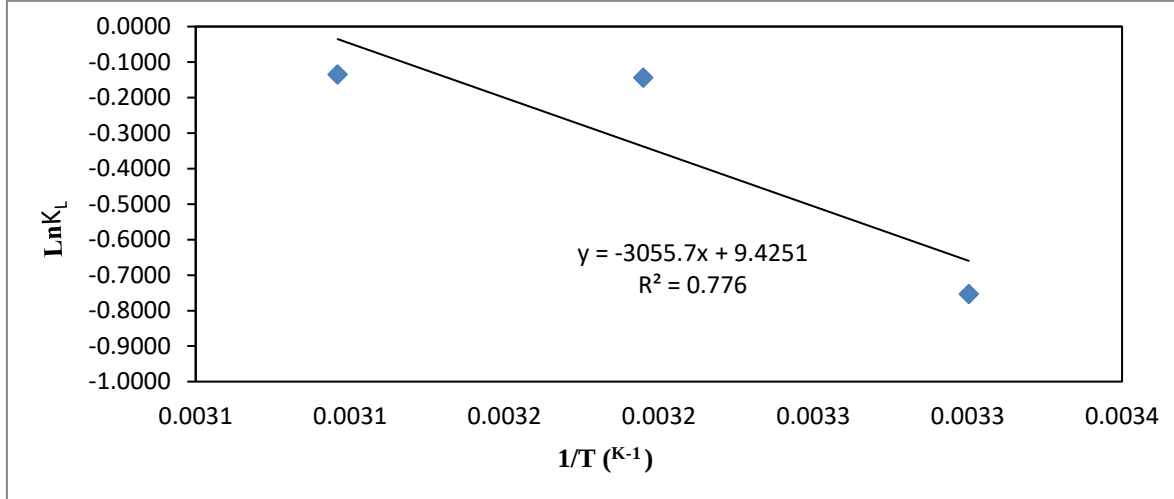
Eşitlikler birlikte çözülürse

$$\ln K_L = -\frac{\Delta H}{RT} + \frac{\Delta S}{R} \quad (10.3)$$

Denklemdaki K_L değeri, Langmuir denkleminin bulunabilen K_L değeri kullanılarak belirlenebilmektedir.

1/T değerlerine karşılık $\ln K_L$ değerleri grafiğe geçirildiğinde, elde edilen doğrunun eğiminden adsorpsiyon entalpisi ve kayma değerinden adsorpsiyon entropisi bulunur [64].

($\ln K_L$) değerlerine karşı (1/T) değerleri ile çizilen grafik Şekil 10.27 'de verilmiştir. Bu grafiği çizmek için gerekli değerler ve örnek bir hesaplama EK-11 'de verilmiştir.



Şekil 10.27. Metilen mavisinin çözeltisi için (1/T) değerlerine karşı Langmuir modelinden elde edilen sabitleri kullanarak çizilen grafik

Çizelge 10.6. Bulunan termodinamik parametreler

Sıcaklık(°C)	ΔG (kJ/mol)	ΔH (kJ/mol)	ΔS (Jmol ⁻¹ K ⁻¹)
30	-1,89	25,4	78,3
40	-0,37		
50	-0,36		

Çizelge 10.6 'da görüldüğü üzere metilen mavisinin silika arojel adsorpsiyonu için ΔH ve ΔS değerleri sırasıyla; 25,4 kJ/mol ve 78,3 J/mol K olarak bulunurken; 30,40 ve 50 °C için ΔG değerleri sırasıyla -1,89; -0,37 ve -0,36 kJ/mol olarak bulunmuştur.

Çalışılan sıcaklıklarda ΔG değerinin negatif bulunması metilen mavisinin silika arojel ile adsorpsiyonunun termodinamik uygunluğunu ve kendiliğinden gelişen bir proses olduğunu göstermektedir. Metilen mavisinin silika arojel adsorpsiyonu için sıcaklık 30 °C'den 50 °C'ye çıkarıldığında ΔG değerinin artması adsorpsiyon prosesinin kendiliğinden gerçekleşebilme olasılığının azaldığını göstermektedir.

Metilen mavisinin silika arojel adsorpsiyonunun ısıısının ΔH_{rxn} değerinin pozitif olması , söz konusu adsorpsiyon işleminin endotemik olduğuna işaret etmektedir. Literatüre göre 4-40 kJ/mol ΔH değerleri fiziksel adsorpsiyona işaret etmektedir. Bu tez çalışması kapsamında mevcut çalışmadaki prosesin fiziksel adsorpsiyonla açıklanabileceği düşünülmektedir.

11. SONUÇLAR VE ÖNERİLER

Yapılan ilk deneysel çalışmada, silika öncül kaynağı olarak TEOS kullanılarak HCl katalizörü sabit tutulup, farklı baz katalizörler; NH_4OH , KOH , NaOH katalizörleri kullanılmıştır. Sentezleme işlemi sol-jel yöntemi ile gerçekleştirilmiştir. Bu aşamada en yüksek yüzey alanı ($312 \text{ m}^2/\text{g}$) olan HCl-KOH asit baz çiftiyle deneyin ikinci kısmına geçilmiştir.

Tez çalışmasının diğer kısmında HCl-KOH katalizör çifti ile sentezlenen hidrofobik silika aerogellere genişletilmiş grafit katkısı ilave edilerek kompozit madde oluşturulmuştur.

Katkı ilavesiz ve genişletilmiş grafit katkılı silika aerogel kompozitler için kalibrasyon eğrisi çizilmiştir. Metilen mavisinin çözeltisi adsorpsiyonu için denge süresi belirlenmiştir.

Yapılan bu çalışmalar sonucunda deneysel veriler yardımıyla metilen mavisinin silika aerogel ile adsorpsiyonuna uyumlu olan adsorpsiyon izotermi belirlenmiştir. Ayrıca yapılan adsorpsiyon izotermi için termodinamik değerler hesaplanmıştır. Tez kapsamı içerisinde yapılan çalışma sonuçları aşağıda özetlenmiştir.

- ✓ Metilen mavisinin saf silika aerogel ile adsorpsiyonunun dengeye gelme süresi 30°C sıcaklıkta yaklaşık 100 dakika olarak belirlenmiştir. Yapılan deneylerin süresine 100 dk olarak devam edilmiştir.
- ✓ Metilen mavisinin adsorpsiyonu için en uygun ortam koşulları; pH 9, sıcaklık 50°C , olarak belirlenmiştir. Bu koşullarda adsorbentin giderim değeri % 97,60 ve adsorpsiyon kapasitesi 22,23 mg/g olarak bulunmuştur.
- ✓ Metilen mavisinin adsorbent üzerine adsorpsiyonu için dengenin tamamlanmasında Langmuir modelinin yüksek uygunluk gösterdiği belirlenmiştir.
- ✓ Metilen mavisinin silika aerogel ile adsorpsiyonunda termodinamik olarak, ısı $25,4 \text{ kJ/mol}$, entropi değişimi ($30, 40, 50^\circ\text{C}$) $78,3 \text{ J/mol K}$, serbest enerji değişimi $-1,89; -0,37$ ve $-0,36 \text{ kJ/mol}$ olarak belirlenmiştir. Değerlere bakılarak prosesin endotermik olduğu sonucu çıkarılmıştır.

Bu çalışmaya ek olarak, silika aerogel sentezinde katalizör ekleme sürelerinin değişimine de bakılabilir. Elde edilen silika aerogellerin yüzey alanlarına ve gözenek çapına nasıl etki edeceği incelenebilir. Ayrıca farklı asit katalizörler de denenebilir ve asit katalizörün de silika aerogel sentezine etkileri incelenebilir.



KAYNAKLAR

1. Ambekar A., Bagade P. (2006). A Review on: Aerogel-World's lightest solid. *Popular Plastics And Packaging*, 51-96.
2. Aegerter M.A., Leventis N., Koebel M.M. (2011). *Aerogels Handbook*, Springer, NewYork, 21,45.
3. Prakash S.S., Brinkar C.J., Hurd A.J., Rao S.M. (1995). *Nature* 374, 439.
4. Yılmaz, Y. *Farklı başlangıç maddeleri kullanılarak sol-jel yöntemiyle monolitik silika aerogel ve silika aerogel sentezi ve karakterizasyonu*, Yüksek Lisans Tezi, Gazi Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Ankara, (2013).
5. Lu, G., Zhao X.S., (2004). *Nanoporous Materials: Science and Engineering*, 4, Imperial College Press, 912.
6. Maleki, H., Durães, L., Portugal, A. (2014). An overview on silica aerogels synthesis and different mechanical reinforcing strategies. *Journal of Non-Crystalline Solids*, 385, 55-74.
7. Štandeker, S., Novak, Z., Knez, Ž. (2009). Removal of BTEX vapours from waste gas streams using silica aerogels of different hydrophobicity. *Journal of Hazardous Materials*, 165 (1), 1114-1118.
8. Ülker Z., Sanli D., Erkey C. (2014). Applications of aerogels and their composites in energy-related technologies, *Supercritical Fluid Technology for Energy and Environmental Applications*, Elsevier, 157-180.
9. Novak Z., Cernic S., Knez Z. (2005). Hydrophobic silica aerogel-solvent removal from water, *Proceedings of 10th European Meeting on Supercritical Fluids*.
10. Mitra S. (2004). *Sample preparation techniques in analytical chemistry*, John Wiley & Sons, 237.
11. Fei , H. Chen, J. L., (2014). Transparent superhydrophobic films possessing high thermal stability and improved moisture resistance from the deposition of MTMS-based aerogels, *Colloids and Surfaces A*, 443, 255-264.
12. Yokogawa H., Yokoyama M., (1995). Hydrophobic silica aerogels, *Journal of Non-Crystalline Solids*, 23-29.
13. Kim G.-S., Hyun S.H., (2003). Synthesis of window glazing coated with silica aerogel films via ambient drying, *Journal of Non-Crystalline Solids*, 320, 125-132.
14. Aliev A.E., Oh J., Kozlov M.E., Kuznetsov A.A., Fang S., Fonseca A.F., Ovalle R., Lima M.D., Haque M.H., Gartstein Y.N., (2009). Giant-stroke, superelastic carbon nanotube aerogel muscles, *Science* 323, 1575-1578.
15. Al-Muhtaseb S.A., Ritter J.A., (2003). Preparation and properties of resorcinol-formaldehyde organic and carbon gels, *Advanced Materials*, 15, 101-114.

16. Mackenzie J.D., Chung Y., Hu Y., (1992). Rubbery ormosils and their applications, *Journal of Non-Crystalline Solids*, 147, 271-279.
17. Balandin A.A., Ghosh S., Bao W., Calizo I., Teweldebrhan D., Miao F., Lau C.N. (2008). Superior thermal conductivity of single-layer graphene, *Nano Letters*, 8, 902-907.
18. Gu Y., Xu Y., Wang Y. (2013). Graphene-wrapped CoS nanoparticles for high-capacity lithium-ion storage, *ACS Applied Materials & Interfaces*, 5,801-806.
19. Xu Q., Ren H., Zhu J., Bi Y., Xu Y., Zhang L. (2017). Facile fabrication of graphite-doped silica aerogels with ultralow thermal, *Journal of Non-Crystalline Solids*, 14-18.
20. Dorcheh, A., S. and Abbasi, M., H., (2008), Silica Aerogel; Synthesis, Properties and Characterization. *Journal of Materials Processing Technology*, 199, 10-26.
21. Li, J.and Cao, J., (2012), One-Step Synthesis of Hydrophobic Silica Aerogel Via in Situ Surface Modification. *Materials Letters*, 87, 146-149.
22. Hench, L.L., West, J.K., (1990), The sol-gel process, *Chemical Reviews*, 90(1), 33–72.
23. Abilov, A., (1994), Petrokimya Teknolojisinde Proses Modelleri Optimizasyon ve Kontrol Sistemleri, 1. basım, *A.Ü. Fen Fakültesi Döner Sermaye İşletmesi Yayınları No:20, Ankara*, 58-95.
24. Iler, R.K., (1955), *The Chemistry of Silica*; Wiley: New York, 730-801.
25. Gupta R, Chaudhury N.K., (2007), Entrapment of biomolecules in sol–gel matrix for applications in biosensors: Problems and future prospects. *Biosensors and Bioelectronics*, 22, 2387–2399.
26. Güler D., (2009), “Silis Kumu, Feldspat ve Tetraetil ortosilikattan Sol-jel Yöntemi ile Silika Aerogel Sentezi ve Karakterizasyonu”, Yüksek Lisans Tezi, Gazi Üniversitesi Fen Bilimleri Fakültesi .
27. Gurkivich S.R., Blum J.B., (1985). Crystallization of amorphous lead-titanate prepared by a sol-gel process. *Ferroelectrics* 62.1, 189-194.
28. Carter C.B., Norton M.G. (2007). Ceramic materials: Science and Engineering, *Springer* 716, 712.
29. Pierre, A.C. (1998). Introduction to Sol-Gel Processing. *USA:Kluwer Academic Publishers*, 2-8.
30. Al-Ghouti M.A., Khraisheh M.A.M., Ahmad M.N.M., Allen S. (2009). Adsorption behavior of methylene blue onto Jordanian diatomite: a kinetic study, *Journal of Hazardous Materials*, 165, 589–598.
31. Başer, İ., İnanıcı, Y. (1990). *Boyarmadde Kimyası*, Marmara Üniversitesi Teknik Eğitim Fakültesi, 7,8, 47-52.

32. Zaghbani, N., Hafiane, A., Dhahbi, M. (2007). Separation of methylene blue from aqueous solution by micellar enhanced ultrafiltration. *Separation and Purification Technology*, 55(1), 117–124.
33. Senthilkumaar S., Varadarajan P.R., Porkodi K., Subbhuraam C.V. (2005). Adsorption of methylene blue onto jute fiber carbon: kinetics and equilibrium studies, *Journal of Colloid and Interface Science*, 284 78–82.
34. Hameed B.H., Din A.T.M, Ahmad A.L., (2007). Adsorption of methylene blue onto bamboo-based activated carbon: kinetics and equilibrium studies, *Journal of Hazardous Materials*, 141, 819–825.
35. Sing K.S.W., Rouquerol J., Rouquerol F., (1998). Adsorption by Powders and Porous Solids. *San Diego, USA: Academic Press*.
36. Dabrowski A., (2001). Adsorption—from theory to practice. *Advances in Colloid and Interface Science*, 93:135–224.
37. Kecili R., Hussain M. C., (2018). *Mechanism Of Adsorption On Nanometaterials*, Elsevier, 90-92,
38. Langmuir, I., (1918), The adsorption of gases on plane surfaces of glass, mica and platinum. *Journal Of American Chemical Society*, 40: 1361-8.
39. Freundlich, H. (1926). *Colloid and Capillary Chemistry*, Metheun, London.
40. Temkin, M.J., Pyzhev, V. (1940). Recent modifications to Langmiur isotherms, *Acta Physiol Chemica*, 12, 217-222.
41. Aksu Z., Kabasakal E. (2007)., Adsorption Characteristics of 2,4-Dichlorophenoxyacetic Acid (2,4-D) from Aqueous Solution on Powdered Activated Carbon, *Journal of Enviromental Science and Health*, 545-570.
42. Brunauer S., Emmett P.H., Teller E., (1938). Gases in multimolecular layers, *Journal of the American Chemical Society*, 60, 309–319.
43. Gurav, J., L., Nadargi, D., Y., Rao, V., (2008). Effect of Mixed Catalysts System on TEOS-Based Silica Aerogels Dried at Ambient Pressure, *Applied Surface Science*, 3019-3027.
44. Qinyuan Z., Wang J., Wu G., Shen J., Buddhudu S., (2001). Interference coating by hydrophobic aerogel-like SiO₂ thin films, *Materials Chemistry and Physics*, 72 56–59.
45. Li Z., Cheng X., Shi L., He S., Gong L., Li C., (2016). Flammability and oxidation kinetics of hydrophobic silica aerogels, *Journal of Hazardous Materials* 320, 350–358.
46. Purcar V., Stamatina I., Cinteza O., Petcu C., Raditoiu V., Ghiurea M., Miclaus T., Andronie A., (2012). Fabrication of hydrophobic and antireflective coatings based on hybrid silica films by sol-gel process. *Surface & Coatings Technology* 206, 4449–4454.

47. Li Z., Cheng X., Gong L., Liu Q., Li S., (2018). Enhanced flame retardancy of hydrophobic silica aerogels by using sodium silicate as precursor and phosphoric acid as catalyst, *Journal of Non-Crystalline Solids*, 267-275.
48. He F., Zhao H., Qu X., Zhang C., Qiu W., (2009). Modified aging process for silica aerogel, *Journal of Materials Processing technology* 209, 1621-1626.
49. He S., Haung Y., Chen G., Feng M., Dai H., Yuan B., Chen X., (2018). Effect of heat treatment on hydrophobic silica aerogel, *Journal of Hazardous Materials*, 294-302.
50. Mohammadian M., Kashi T. S. J., Erfan M., Soorbaghi F.P. (2018). Synthesis and characterization of silica aerogel as a promising drug carrier system, *Journal of Drug Delivery Science and Technology*, 205-212.
51. Ge D., Yang L., Li Y., Zhao J., (2009). Hydrophobic and thermal insulation properties of silica aerogel/epoxy composite, *Journal of Non-Crystalline Solids*, 2610-2615.
52. Lei Y., Hu Z., Cao B., Chen X., Song H., (2016). Enhancements of thermal insulation and mechanical property of silica aerogel monoliths by mixing graphene oxide, *Materials Chemistry and Physics*, 1-8.
53. Dervin S., Lang Y., Perova T., Hinder H. S., Pillai C. S., (2007). Graphene oxide reinforced high surface area silica aerogels, *Journal of Non-Crystalline Solids*, 31-38.
54. Wanyonyi, W. C., Onyari, J. M., Shiundu, P.M., (2014). Adsorption of Congo Red Dye from Aqueous Solutions Using Roots of Eichhornia Crassipes: Kinetic and Equilibrium Studies. *Energy Procedia*, 50, 862–869.
55. Sheet, I., Kabbani, A., Holail, H. (2014). Removal of Heavy Metals Using Nanostructured Graphite Oxide, Silica Nanoparticles and Silica/ Graphite Oxide Composite. *Energy Procedia*, 50, 130–138.
56. Han, H., Wei, W., Jiang, Z., Lu, J., Zhu, J., Xie, J. (2016)., Removal of cationic dyes from aqueous solution by adsorption onto hydrophobic/hydrophilic silica aerogel. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 509, 539–549.
57. Zhang, C., Dai, C., Zhang, H., Peng, S., Wei, X., Hu, Y. (2017)., Regeneration of mesoporous silica aerogel for hydrocarbon adsorption and recovery, *Marine Pollution Bulletin*, 122(1-2), 129–138.
58. Tian, X., Liu, J., Wang, Y., Shi, F., Shan, Z., Zhou, J., Liu, J., (2019). Adsorption of antibiotics from aqueous solution by different aerogels, *Journal of Non-Crystalline Solids*, 505, 72–78.
59. Ülker, Z. (2011). *Preparation and characterization of silica aerogel polymer composites*, Yüksek Lisans Tezi, Koç Üniversitesi Fen Bilimleri ve Mühendislik Enstitüsü, İstanbul.
60. Nawaz, K., Schmidt, S. J., Jacobi, A. M., (2014). Effect of catalyst used in the sol–gel process on the microstructure and adsorption/desorption performance of silica aerogels, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 74, 25–34.

61. Farah, J. Y., El-Gendy, N.S. and Laila, A.F., (2007). Biosorption of Astrazone Blue basic dye from aqueous solution using dried biomass of Baker's yeast. *Journal of Hazardous Materials*, 148(1-2), 135-143.
62. Halipçi, HN., Korhan, H., Dığrak, M ve Kertmen, M. (2012). Saccharomyces cerevisiae biyokütlesi İle Remazol Turkuaz Blue boyar maddesinin biyosorpsiyonu. *Kahramanmaraş Sutcu Imam University Journal Of Natural Sciences*, 15 (3), 30-35.
63. Ahmad, M.A., Rahman N.K., (2011). Equilibrium, Kinetics And Thermodynamic Of Remazol Brilliant Orange 3R Dye Adsorbtion On Coffee Husk-Based Activated Carbon, *Chemical Engineering Journal*, 170 (1), 154-161.
64. Yavuz, Ö., Altunkaynak, Y., Güzel, F. (2003). Removal of copper, nickel, cobalt and manganese from aqueous solution by kaolinite, *Water Research*, 37(4): 948-952.

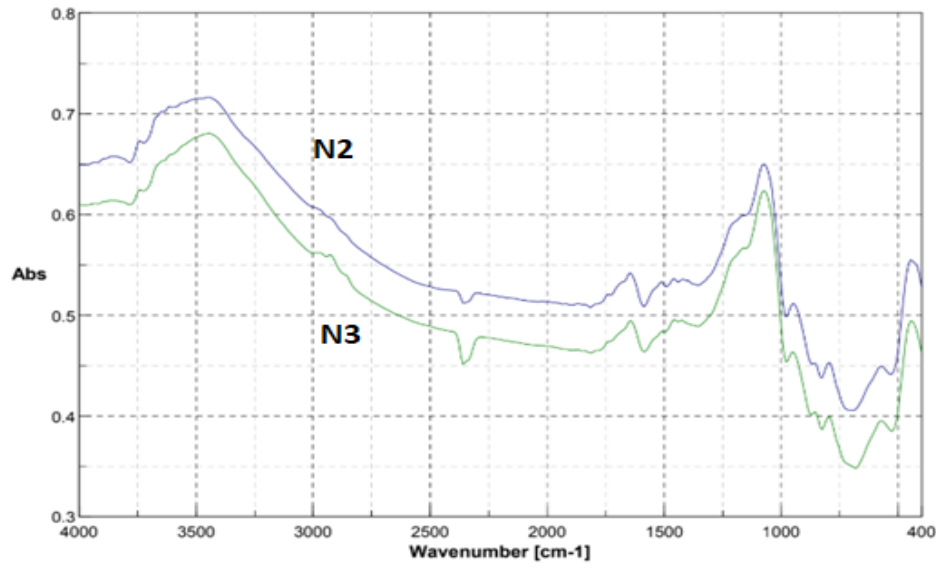




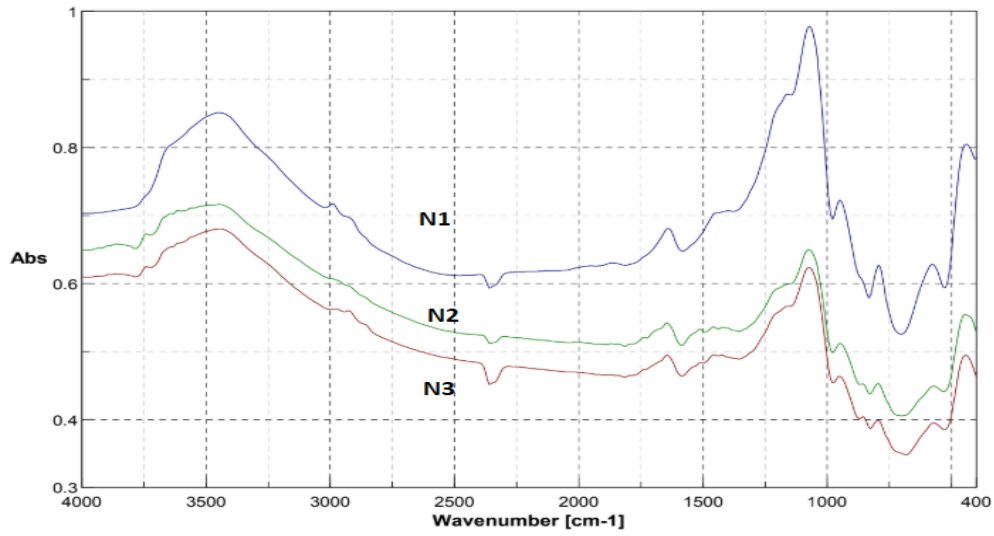


EKLER

EK-1. FTIR Spektrumları ve BET Grafikleri

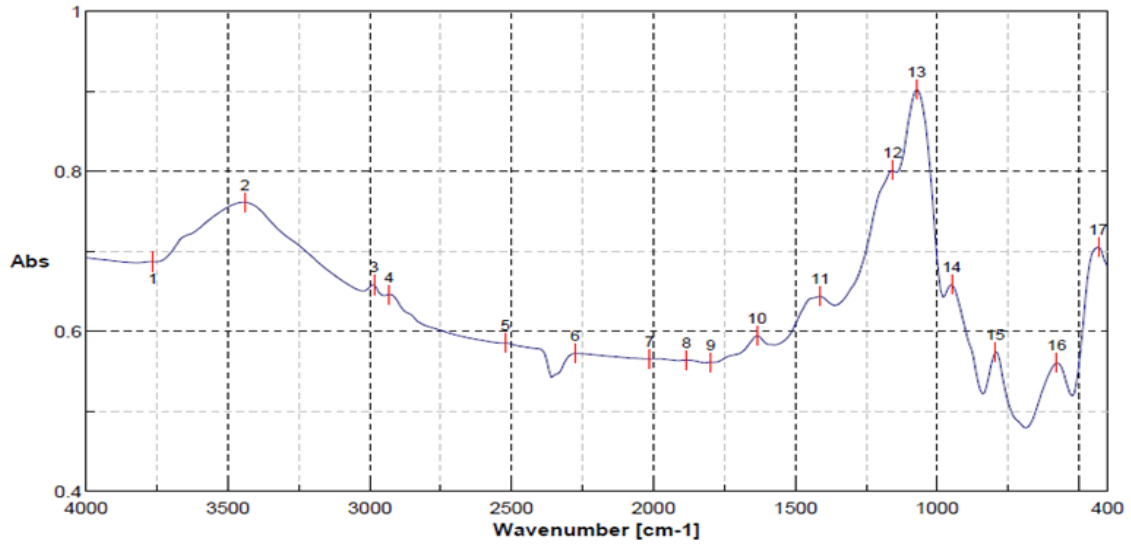


Şekil 1.1. N2 ve N3 numunelerinin FTIR Spektrumları

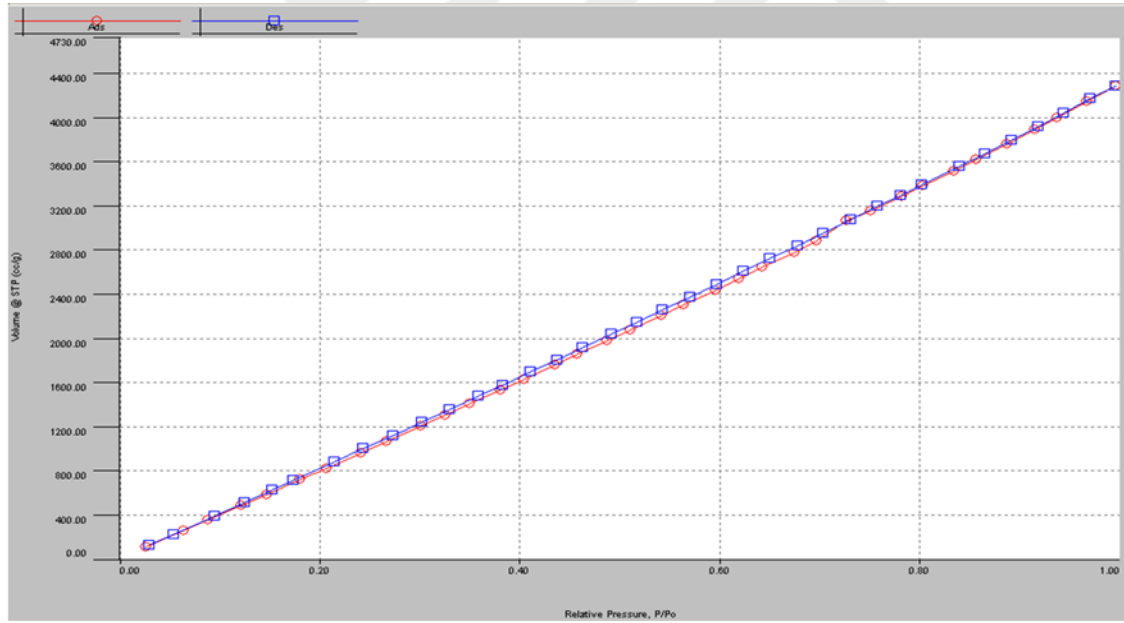


Şekil 1.2. N1, N2 ve N3 numunelerinin FTIR Spektrumları

EK-1 (devam) FTIR spektrumları ve BET Grafikleri



Şekil 1.3. N5 numunesinin FTIR Spektrumu



Şekil 1.4. N6 numunesinin BET grafiği

EK-2. Metilen mavisinin silika ile adsorpsiyonun denge süresi değerleri

Çizelge 2.1. Metilen mavisinin saf silika ile adsorpsiyonun denge süresi değerleri

Süre (dk)	Absorbans	Derişim (ppm)
0	1,047	6,162
20	0,32	1,883
40	0,302	1,777
60	0,375	2,207
80	0,363	2,136
100	0,356	2,095
120	0,235	1,383
140	0,381	2,242
160	0,476	2,801
180	0,392	2,307
200	0,506	2,978
240	0,215	1,265

EK-2. (devamı) Metilen mavisinin silika ile adsorpsiyonun denge süresi değerleri

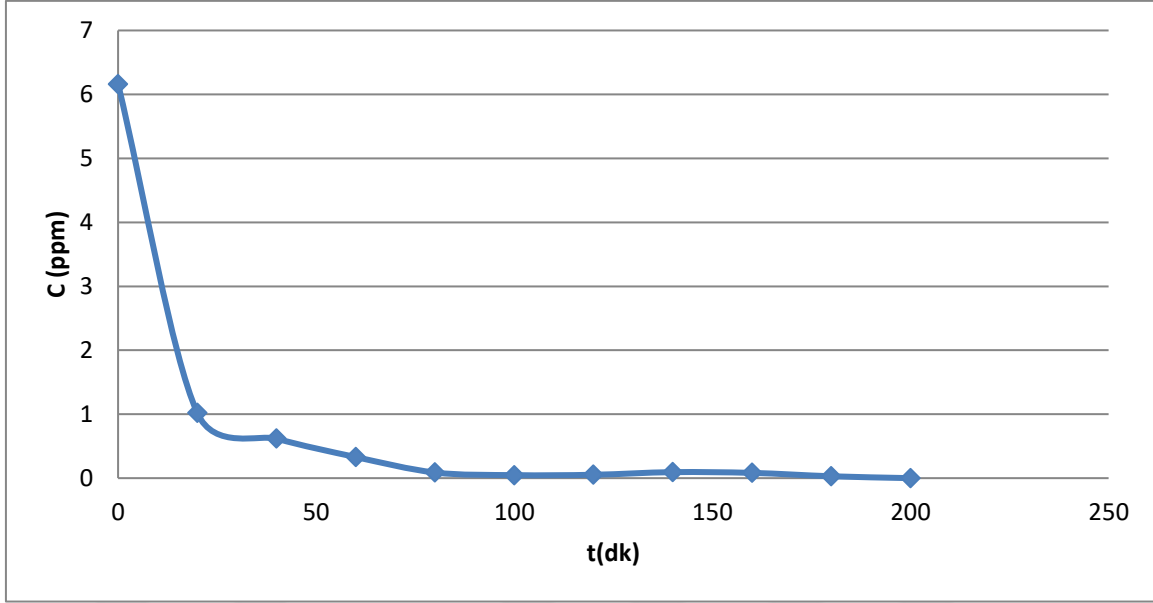
Çizelge 2.2. Metilen mavisinin 0,0125 grafit katkılı silika ile adsorpsiyonun denge süresi değerleri

Süre (dk)	Absorbans	Derişim (ppm)
0	1,047	6,162
20	0,383	2,254
40	0,449	2,642
60	0,446	2,625
80	0,417	2,454
100	0,331	1,948
120	0,271	1,595
140	0,387	2,277
160	0,44	2,589
180	0,309	1,818
200	0,437	2,572
240	0,335	1,971

EK-2. (devam) Metilen mavisinin silika ile adsorpsiyonun denge süresi değerleri

Çizelge 2.3. Metilen mavisinin 0,125 grafit katkılı silika ile adsorpsiyonun denge süresi değerleri

Süre (dk)	Absorbans	Derişim (ppm)
0	1,047	6,162
20	0,303	1,783
40	0,333	1,959
60	0,361	2,124
80	0,46	2,707
100	0,356	2,095
120	0,482	2,836
140	0,348	2,0482
160	0,508	2,989
180	0,519	3,054
200	0,435	2,560
240	0,347	2,042



Şekil 2.1. Genişletilmiş grafit (N6 numunesi) konsantrasyonuna karşı zaman grafiği

EK-3. Çeşitli pH değerlerinde metilen mavisi çözeltisinin saf silika aerojel ve grafit katkılı silika aerojel ile adsorpsiyonun % giderim ve kapasite değerleri

Çizelge 3.1. Çeşitli pH değerlerinde metilen mavisi çözeltisinin silika aerojel ile adsorpsiyonun % giderim ve kapasite değerleri

pH	t=0 için Derişim (ppm)	t=100 için Derişim (ppm)	% Giderim	Adsorpsiyon Kapasitesi (mg/g)
2	5,76	3,61	37,39	2,15
3	6,09	2,08	65,86	4,01
5	5,13	0,77	85,09	4,37
7	5,43	0,28	94,80	5,15
9	5,86	0,14	97,59	5,72
11	5,31	0,25	95,23	5,06

Çizelge 3.2. Çeşitli pH değerlerinde metilen mavisi çözeltisinin genişletilmiş grafit katkılı silika aerojel ile adsorpsiyonun % giderim ve kapasite değerleri

pH	t=0 için Derişim (ppm)	t=100 için Derişim (ppm)	% Giderim	Adsorpsiyon Kapasitesi (mg/g)
2	6,221	6,121	0,67	0,100
3	6,362	4,579	26,47	1,783
5	6,185	1,318	78,38	4,867
7	5,456	0,582	89,53	4,873
9	5,509	0,235	95,71	5,273
11	5,556	0,977	82,21	4,579

EK-4. Çeşitli başlangıç metilen mavisi derişimlerinde silika aerjel adsorpsiyonunun % giderim ve kapasite verileri

Çizelge 4.1. Çeşitli başlangıç metilen mavisi derişimlerinde silika aerjel adsorpsiyonunun % giderim ve kapasite verileri

Başlangıç Metilen Mavi Derişimi (ppm)	t=0 için Derişim (ppm)	t=100 için Derişim (ppm)	% Giderim	Adsorpsiyon Kapasitesi (mg/g)
5	5,63	2,90	48,59	2,74
7	7,42	0,42	94,37	7,00
9	8,93	0,41	95,45	8,53
12	12,54	1,21	90,33	11,32
15	23,87	1,06	95,56	22,81
30	28,25	4,60	83,71	23,65
40	42,14	8,15	80,67	34,00
50	52,50	18,04	65,64	34,46

EK-5. Metilen mavisinin silika aerojel ile adsorpsiyonuna sıcaklık etkisi

Çizelge 5.1. 30 °C'de Metilen mavisinin silika aerojel adsorpsiyonunun % giderim ve kapasite verileri

Başlangıç Metilen Mavi Derişimi (ppm)	t=0 için Derişim (ppm)	t=100 için Derişim (ppm)	% Giderim	Adsorpsiyon Kapasitesi (mg/g)
5	5,63	2,90	48,59	2,74
7	7,42	0,42	94,37	7,00
9	8,93	0,41	95,45	8,53
12	12,54	1,21	90,33	11,32
15	23,87	1,06	95,56	22,81
30	28,25	4,60	83,71	23,65
40	42,14	8,15	80,67	34,00
50	52,50	18,04	65,64	34,46

EK-5. (devamı) Metilen mavisinin silika aerojel ile adsorpsiyonuna sıcaklık etkisi

Çizelge 5.2. 40 °C'de Metilen mavisinin silika aerojel adsorpsiyonunun % giderim ve kapasite verileri

Başlangıç Metilen Mavi Derişimi (ppm)	t=0 için Derişim (ppm)	t=100 için Derişim (ppm)	% Giderim	Adsorpsiyon Kapasitesi (mg/g)
5	5,69	0,51	91,00	5,18
7	7,99	0,31	96,17	7,68
9	16,92	0,43	97,46	16,49
12	22,57	0,61	97,31	21,97
15	28,99	1,25	95,70	27,74
30	28,25	5,04	82,17	23,21
40	42,14	8,48	79,89	33,67
50	52,50	13,15	74,94	39,35

EK-5. (devamı) Metilen mavisinin silika aerjel ile adsorpsiyonuna sıcaklık etkisi

Çizelge 5.3. 50 °C'de metilen mavisinin silika aerjel adsorpsiyonunun % giderim ve kapasite verileri

Başlangıç Metilen Mavi Derişimi (ppm)	t=0 için Derişim (ppm)	t=100 için Derişim (ppm)	% Giderim	Adsorpsiyon Kapasitesi (mg/g)
5	5,46	0,41	92,56	5,06
7	8,02	0,31	96,11	7,71
9	13,39	0,33	97,54	13,06
12	22,78	0,55	97,60	22,23
15	11,83	0,56	95,27	11,27
30	32,17	2,91	90,96	29,26
40	45,90	9,51	79,29	36,39
50	57,26	9,98	82,58	47,28

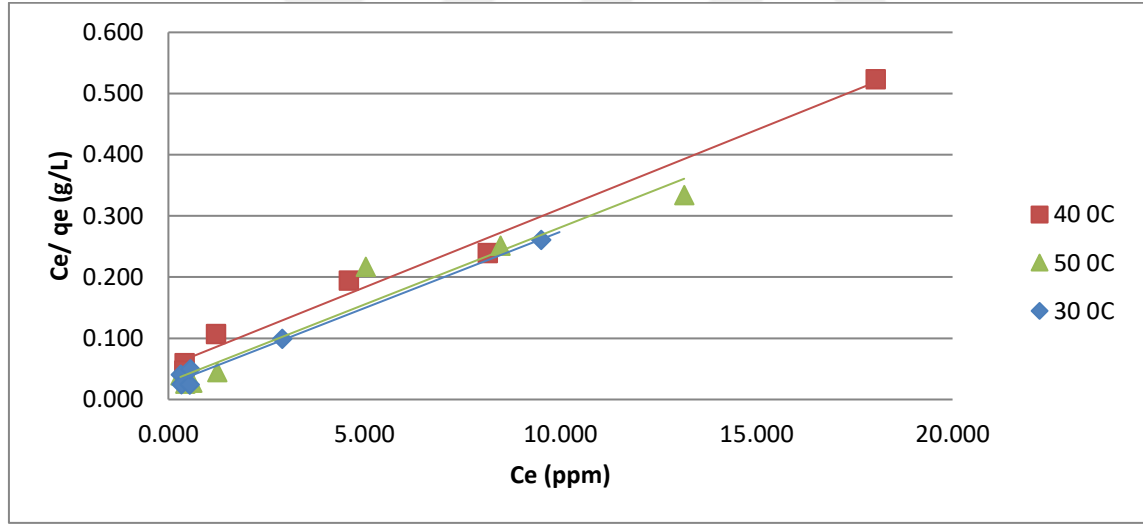
Çizelge 5.4. Metilen mavisi ile silika aerjelin adsorpsiyonuna ortam sıcaklık değerlerinin etkisinin karşılaştırılması

T (°C)	% Metilen mavisi giderimi	Adsorpsiyon Kapasitesi
30	90,33	11,32
40	97,31	21,97
50	97,60	22,23

EK-6. Metilen mavisi adsorpsiyonu için langmuir izotermi verileri

Çizelge 6.1. Metilen mavisi adsorpsiyonu için langmuir izotermi verileri

	30 °C		40 °C		50 °C	
Co(ppm)	Ce (ppm)	Ce/qe(g/L)	Ce (ppm)	Ce/qe(g/L)	Ce (ppm)	Ce/qe(g/L)
5	2,895	1,058	0,512	0,098	0,406	0,080
7	0,418	0,06	0,306	0,04	0,312	0,04
9	0,406	0,048	0,43	0,026	0,33	0,025
12	1,212	0,107	0,606	0,028	0,547	0,025
15	1,212	12,371	1,248	0,045	0,559	0,05
30	4,603	0,195	5,038	0,039	2,908	0,099
40	8,146	0,24	8,476	0,252	9,506	0,261
50	18,04	0,523	13,155	0,334	9,976	0,211



Şekil 6.1. Metilen mavisi adsorpsiyonu için çeşitli sıcaklıklarda (30, 40, 50 °C) langmuir izotermi verileri

EK-7. Metilen mavisi adsorpsiyonu için langmuir izotermi model parametreleri

Çizelge 7.1. Metilen mavisi adsorpsiyonu için langmuir izotermi model parametreleri

Sıcaklık $^{\circ}\text{C}$	K_L	$q_s(\text{mg/g})$	R_2
30	0,47	38,91	0,98
40	0,87	39,68	0,991
50	0,87	46,73	0,99

EK-8. Langmuir izoterminden hesaplanan $q_{e,hes}$ ve $q_{e,den}$ değerleri

Çizelge 8.1. Langmuir izoterminden hesaplanan 5, 7, 9, 12 ppm için $q_{e,hes}$ ve $q_{e,den}$ değerleri

	5 ppm		7 ppm		9 ppm		12 ppm	
	$q_{e,den}$	$q_{e,hes}$	$q_{e,den}$	$q_{e,hes}$	$q_{e,den}$	$q_{e,hes}$	$q_{e,den}$	$q_{e,hes}$
30 °C	2,74	22,44	7,00	6,40	8,53	6,24	11,32	38,91
40 °C	5,18	12,19	7,68	8,31	16,49	10,76	21,97	13,66
50 °C	5,06	11,45	7,71	10,01	13,06	10,12	22,23	14,44

Çizelge 8.2. Langmuir izoterminden hesaplanan 15, 30, 40, 50 ppm için $q_{e,hes}$ ve $q_{e,den}$ değerleri

	15 ppm		30 ppm		40 ppm		50 ppm	
	$q_{e,den}$	$q_{e,hes}$	$q_{e,den}$	$q_{e,hes}$	$q_{e,den}$	$q_{e,hes}$	$q_{e,den}$	$q_{e,hes}$
30 °C	3,71	14,14	23,65	26,62	34,00	30,86	34,46	34,81
40 °C	27,74	19,08	23,21	28,67	33,67	34,92	39,35	36,48
50 °C	11,27	15,33	29,26	33,53	36,39	41,71	47,28	41,92

EK-9. Metilen mavisi adsorpsiyonun freundlich izotermi verileri

Çizelge 9.1. Metilen mavisi adsorpsiyonun freundlich izotermi verileri

30 °C	Co(ppm)	Ce (ppm)	qe (mg/g)	log qe	logCe	Q _e hes (mg/g)
	5	2,896	2,737	0,44	0,46	12,454
	7	0,418	7,004	0,85	-0,38	5,175
	9	0,406	8,529	0,93	-0,39	5,108
	12	1,212	11,324	1,05	0,08	8,390
	15	1,059	3,714	0,57	0,03	7,892
	30	4,603	23,649	1,37	0,66	15,368
	40	8,146	33,996	1,53	0,91	19,911
	50	18,040	34,461	1,54	1,26	28,560
40 °C	Co(ppm)	Ce (ppm)	qe	log qe	logCe	
	5	0,512	5,180	0,71	0,51	7,723
	7	0,306	7,681	0,89	0,31	6,389
	9	0,430	16,492	1,22	0,43	7,239
	12	0,606	21,966	1,34	0,61	8,219
	15	1,248	27,740	1,44	0,10	10,723
	30	5,038	23,214	1,37	0,70	17,935
	40	8,476	33,667	1,53	0,93	21,724
	50	13,155	39,347	1,59	1,12	25,544
50 °C	Co(ppm)	Ce (ppm)	qe	log qe	logCe	
	5	0,406	5,056	0,7038	-0,3913	10,370
	7	0,312	7,710	0,88708	-0,5059	9,192
	9	0,330	13,061	1,11596	-0,482	9,426
	12	0,547	22,231	1,34695	-0,2617	11,886
	15	0,559	11,271	1,05198	-0,2525	12,002
	30	2,908	29,258	1,46625	0,4635	25,505
	40	9,506	36,392	1,56101	0,978	43,836
	50	9,976	47,281	1,67468	0,999	44,816

EK-10. Metilen mavisi adsorpsiyonun temkin izotermi verileri

Çizelge 10. 1. Metilen mavisi adsorpsiyonun temkin izotermi verileri

30 °C	Co(ppm)	Ce (ppm)	qe (mg/g)	ln Ce	q _{e hes} (mg/g)
	5	2,896	2,737	1,063	18,1
	7	0,418	7,004	-0,873	2,9
	9	0,406	8,529	-0,901	2,7
	12	1,212	11,324	0,193	11,3
	15	1,059	3,714	0,058	10,2
	30	4,603	23,649	1,527	21,7
	40	8,146	33,996	2,098	26,2
	50	18,040	34,461	2,893	32,4
40 °C	Co(ppm)	Ce (ppm)	qe	ln Ce	
	5	0,512	5,180	-0,669	14,4
	7	0,306	7,681	-1,184	10,8
	9	0,430	16,492	-0,845	13,1
	12	0,606	21,966	-0,500	15,5
	15	1,248	27,740	0,221	20,5
	30	5,038	23,214	1,617	30,2
	40	8,476	33,667	2,137	33,8
	50	13,155	39,347	2,577	36,9
50 °C	Co(ppm)	Ce (ppm)	qe	ln Ce	
	5	0,406	5,056	-0,9011	11,443
	7	0,312	7,710	-1,16492	8,929
	9	0,330	13,061	-1,10986	9,453
	12	0,547	22,231	-0,60261	14,288
	15	0,559	11,271	-0,58133	14,491
	30	2,908	29,258	1,067325	30,205
	40	9,506	36,392	2,25188	41,496
	50	9,976	47,281	2,3	41,957

EK-11. Metilen mavisi adsorpsiyonun termodinamik verilerin hesaplandığı veriler

Çizelge 11.1. Metilen mavisi adsorpsiyonun termodinamik verilerin hesaplandığı veriler

Sıcaklık (K)	K_L	$\ln K_L$	$1/T$
303	0,4707	-0,7535	0,0033
313	0,8660	-0,1439	0,0032
323	0,8735	-0,1353	0,0031

ÖZGEÇMİŞ

Kişisel Bilgiler

Soyadı, adı : ENES Ayşe
 Uyuğu : T.C.
 Doğum tarihi ve yeri : 05.05.1990, Kayseri
 Medeni hali : Evli
 Telefon : 0 (505) 247 86 11
 e-mail : aysekol.km@gmail.com



Eğitim

Derece	Eğitim Birimi	Mezuniyet Tarihi
Yüksek lisans	Gazi Üniversitesi / KİMYA Mühendisliği	Devam ediyor
Lisans	Gazi Üniversitesi / KİMYA Mühendisliği	2014
Lise	Nuh Mehmet Baldöktü Anadolu Lisesi	2008

İş Deneyimi

Yıl	Yer	Görev
2011-2015	Kampüs Dersaneleri	Kimya Öğretmeni
2015	Gazi Üniversitesi	Öğrenci Asistanlığı
2016-2017	Armada Danışmanlık A.Ş.	Kimya Mühendisi

Yabancı Dil

İngilizce

Yayınlar

Poster Sunumu: Enes, A. ve Cabbar, H., C. (28-29 Haziran 2019). *Silika Aerojel Sentezinde Farklı Katalizör Kullanımının Etkisi*, Uluslar Arası Biyoloji ve Kimya Sempozyumu, Ankara, Türkiye

Hobiler

Kitaplar, etnik dans |



GAZİ GELECEKTİR..