

T.C.
GEBZE TEKNİK ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

SOĞURMA UYGULAMALARI İÇİN
YENİ MALZEME GELİŞTİRİLMESİ;
GRAFEN OKSİT KATKILI SİLİKA JEL

ALİ GÜN
YÜKSEK LİSANS TEZİ
MAKİNE MÜHENDİSLİĞİ ANABİLİM DALI

GEBZE
2023

T.C.
GEBZE TEKNİK ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

SOĞURMA UYGULAMALARI İÇİN
YENİ MALZEME GELİŞTİRİLMESİ;
GRAFEN OKSİT KATKILI SİLİKA
JEL

ALİ GÜN
YÜKSEK LİSANS TEZİ
MAKİNE MÜHENDİSLİĞİ ANABİLİM DALI

DANIŞMANI
DOÇ. DR. GAMZE GEDİZ İLİŞ
II. DANIŞMANI
DOÇ. DR. DOĞUŞ ÖZKAN

GEBZE
2023

T.R.
GEBZE TECHNICAL UNIVERSITY
GRADUATE SCHOOL OF NATURAL AND APPLIED SCIENCES

**NEW METERIAL DEVELOPMENT FOR
SORPTION; GRAFEN OXIDE ADDED
SILICA GEL**

ALİ GÜN

**A THESIS SUBMITTED FOR THE DEGREE OF
MASTER OF SCIENCE
DEPARTMENT OF MECHANICAL ENGINEERING**

THESIS SUPERVISOR
ASSOC. PROF. DR. GAMZE GEDİZ İLİŞ
II. THESIS SUPERVISOR
ASSOC. PROF. DR. DOĞUŞ ÖZKAN

GEBZE
2023

GTÜ Fen Bilimleri Enstitüsü Yönetim Kurulu'nun 30/01/2023 tarih ve 23/07 sayılı kararıyla oluşturulan jüri tarafından 20/02/2023 tarihinde tez savunma sınavı yapılan Ali GÜN'ün tez çalışması Makine Mühendisliği Anabilim Dalında YÜKSEK LİSANS tezi olarak kabul edilmiştir.

JÜRİ

ÜYE

(TEZ DANIŞMANI)

: Doç.Dr. Gamze GEDİZ İLİŞ

ÜYE

(TEZ II. DANIŞMANI)

: Doç.Dr. Doğuş ÖZKAN

ÜYE

: Doç.Dr. Zeynep TAŞLIÇUKUR ÖZTÜRK

ÜYE

: Doç.Dr. Egemen SULUKAN

ÜYE

: Prof.Dr. Alp Er KONUKMAN

ONAY

Gebze Teknik Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Yönetim Kurulu'nun

...../...../..... tarih ve/..... sayılı kararı.

İMZA/MÜHÜR

ÖZET

Bu çalışmada adsorpsiyonlu ısı pompalarında, adsorbent olarak sıkça kullanılmakta olan silika jelin üretimi ve içerisine farklı oranlarda grafen oksit eklenerek termal iletkenliğinin artırılması amaçlanmıştır. İlk aşama olarak silika jel üretimi için 1.5M H₂SO₄ çözeltisi, de-iyonize su ve sodyum silikat çözeltisi (%28 Na ve %14 SiO₂) kullanılmıştır. Sodyum silikat 1:1 oranında deiyonize su ile karıştırılarak sodyum silikat çözeltisi hazırlandı. Sodyum silikat çözeltisi asit çözeltisine büret yardımıyla damlalar şeklinde eklendi. Damlatma işlemi devam ederken pH metre yardımıyla sol jelin devamlı olarak pH değeri ölçüldü. Oluşan soljeller pH değeri 1, 2, 3, 4 ve 5 olduğunda ekleme işlemi kesilip farklı pH değerleri için beherden numuneler alındı. Soljeller kalıplara dökülerek 1 gün boyunca oda sıcaklığında bekletilerek hidrojelleşmeleri sağlandı ve daha sonra 5 kez yıkandı. Son aşamada hidrojeller 100 °C etüvde 24 saat bekletildi ve silika jel elde edildi. İkinci aşamada Hummer's Metot'u kullanılarak grafen oksit sentezlenmiştir. Üretilen grafen oksit ve silika jellerin karakterizasyonu FT-IR (Fourier-transform infrared spectroscopy), Raman Spektroskopisi ve Bet analizleri kullanarak yapılmıştır. Üçüncü aşamada yüzde 0,5-1-2 oranlarında grafen oksit, silika jel üretiminin hidrojel aşamasında eklenerek farklı oranlarda grafen oksit katkılı silika jeller üretilmiştir. Yapılan termal iletkenlik analizlerinde termal iletkenliğin artırıldığı tespit edilmiştir.

Anahtar Kelimeler: Hidrojel, Silika jel, Grafen Oksit

SUMMARY

In this study, it is aimed to produce silica gel, which is widely used as an adsorbent in adsorption heat pumps, and to increase its thermal conductivity by adding graphene oxide at different rates. As the first step, sodium silicate solution (28%Na and 14% SiO₂), de-ionized water, 1.5M H₂SO₄ solution were used for the production of silica gel. The sodium silicate solution was prepared by mixing the sodium silicate with deionized water at a ratio of 1:1. Sodium silicate solution was added to the acid solution with the help of a burette, and the pH of the left gel was measured continuously with a pH meter while this process was going on. When the pH values of 1, 2, 3, 4 and 5 of the formed sol gels were read, the addition process was stopped and samples were taken from the beaker for 5 different pH values. Sol gels were poured into molds and kept at room temperature for 1 day to hydrogel them and then washed 5 times. Finally, the hydrogels were kept in an oven at 100 °C for 24 hours and silica gel was obtained. In the second step, graphene oxide was synthesized using Hummer's Method. The characterization of the produced graphene oxide and silica gels was performed using FT-IR (Fourier-transform infrared spectroscopy), RAMAN Spectroscopy and Bet analysis. In the third stage, 0.5-1-2 percent graphene oxide was added at the hydrogel stage of silica gel production, and silica gels with graphene oxide doped at different rates were produced. In the thermal conductivity analysis, it was determined that the thermal conductivity was increased.

Key Words: Hydrogel, Silica gel, Graphene Oxide

TEŞEKKÜR

Başta, yüksek lisans eğitimimde ve akademik hayatımda desteğini ve yardımlarını hiçbir zaman esirgemeyip bilgisi ile bu çalışmanın oluşmasının yolunu açan kıymetli hocalarım Doç. Dr. Dz. Alb. Egemen SULUKAN’a Doç. Dr. Gamze GEDİZ İLİŞ’e, Doç. Dr. Hasan DEMİR’e, Doç. Dr. Dz. Yb. Doğuş ÖZKAN’a,

Bütün çalışmam boyunca yanımda olan, bilgi ve tecrübelerini benimle paylaşan değerli arkadaşım Tuğçe ÖĞE’ye,

Göstermiş olduğu desteklerinden dolayı Milli Savunma Üniversitesi Deniz Harp Okulu Dekanlığı Makine Mühendisliği kıymetli personeline,

Tez kapsamında yapılan testlerde verdikleri desteklerden dolayı PAVEZYUM Kimya firmasına,

ve her zaman yanımda olan aileme en içten teşekkürlerimi sunarım.

İÇİNDEKİLER

	<u>Sayfa</u>
ÖZET	v
SUMMARY	vi
TEŞEKKÜR	vii
İÇİNDEKİLER	viii
SİMGELER ve KISALTMALAR DİZİNİ	x
ŞEKİLLER DİZİNİ	xii
TABLolar DİZİNİ	xiii
1. GİRİŞ	1
2. GENEL TANIMLAR	4
2.1. Adsorpsiyonlu Isı Pompası	4
2.2. Adsorpsiyon	5
2.3. Adsorbent	5
2.3.1. Aktif Karbon	6
2.3.2. Zeolit	6
2.3.3. Silika Jel	7
2.3.3.1 Silika Jelin Kullanım Alanları	8
2.3.3.2 Silika Jelin Teknik Özellikleri	9
2.4. Grafen ve Grafen Oksit	9
3. SİLİKA JEL ve GRAFEN OKSİT SENTEZLERİ	11
3.1. Silika Jel Sentezi Üzerine Yapılmış Çalışmalar	11
3.2. Grafen Oksit Sentezi Üzerine Yapılmış Çalışmalar	13
3.3. Grafen Oksit - Silika Jel Birleşimiyle İlgili Yapılmış Çalışmalar	14
4. MATERYAL ve YÖNTEM	15
4.1. Kullanılan Materyaller	15
4.2. Yöntem	17
4.2.1. Silika Jel Üretimi	17
4.2.2. Grafen Oksit Üretimi	19
4.2.3. Grafen Oksit Katkılı Silika Jel Üretimi	21

4.2.4. FT-IR Karakterizasyonu	22
4.2.5. Raman Karakterizasyonu	24
4.2.6. BET Karakterizasyonu	25
4.2.7. SEM Karakterizasyonu	27
4.2.8. Termal İletkenlik Karakterizasyonu	28
5. BULGULAR	32
5.1. Raman Analizi	32
5.2. FT-IR Analizi	33
5.3. SEM Analizi	36
5.4. BET Analizi	39
5.5. Termal İletkenlik Analizi	41
6. SONUÇLAR	43
KAYNAKLAR	44
ÖZGEÇMİŞ	48
EKLER	49

SİMGELER VE KISALTMALAR DİZİNİ

<u>Simgeler ve</u>	<u>Açıklamalar</u>
<u>Kısaltmalar</u>	
Na	: Sodyum
Si	: Silisyum
O ₂	: Oksijen
N ₂	: Azot
CO ₂	: Karbon dioksit
NH ₄ O	: Amonyum hidroksit
H	
H ₂ SO ₄	: Sülfürik asit
NaO ₂	: Sodyum süperoksit
SiO ₂	: Silikon dioksit
KMnO ₄	: Potasyum Permanganat
HCl	: Hidroklorik asit
NaOH	: Sodyum hidroksit
H ₂ O ₂	: Hidrojen peroksit
Al ₂ O ₃	: Alüminyum Oksit
Gpa	: Gigapascal
Mpa	: Mega pascal
m ²	: Metre kare
g	: Gram
µm	: Mikrometre
cm	: Santimetre
cm ²	: Santimetre kare
cm ³	: Santimetre küp
rpm	: Dakikadaki devir sayısı
Q	: Isı
t	: Plaka kalınlığı
W	: Elektrik rezistans gücü

A	:	Plaka yanal kesiti
$^{\circ}\text{C}$	:	Selsiyus derece
ΔT	:	Sıcaklık farkı
SG	:	Silika jel
GO	:	Grafen Oksit
RGO	:	İndirgenmiş grafen oksit
FT-IR	:	Fourier-transform infrared spectroscopy
BET	:	Brunauer Emmett ve Teller
SEM	:	Taramalı elektron mikroskobu
D	:	Raman analizinde grafen oksitin ilk piki.
G	:	Raman analizinde grafen oksitin ikinci piki.
I_D	:	Raman analizinde grafen oksitin ilk pikininin dalga boyu
I_G	:	Raman analizinde grafen oksitin ikinci pikininin dalga boyu
GTÜ	:	Gebze Teknik Üniversitesi

ŞEKİLLER DİZİNİ

<u>Sekil No:</u>	<u>Sayfa</u>
1.1: Grafen ile grafen oksitin yapısı.	2
2.1: Adsorpsiyonlu ısı pompasının çevrimi.	4
2.2: Adsorbentin gözenekli yapısı.	6
2.3: Örnek bir aktif karbonun SEM görüntüsü.	6
2.4: Doğal zeolitin SEM görüntüsü.	7
2.5: Silanol grupları.	8
4.1: a) Hassas Terazî, b) pH metre	16
4.2: a) Manyetik karıştırıcı, b) etüv	16
4.3: Sodyum silikat eklenirken yapılan pH ölçme işlemi.	17
4.4: a) Hidrojelin kalıplanma aşaması. b) Kalıplanma aşamasından sonra 1 gün bekletip kalıptan çıkartılan hidrojel.	18
4.5: a) yıkanan hidrojeller, b) etüvde kurutulmuş silika jel	18
4.6: Silika jel üretim şeması.	19
4.7: Grafen oksitin 46 ml su eklendikten sonraki koyu kahverengi hali.	19
4.8: GO'nun üretim aşamasında tepkime durdurulup bekletilmiş hali	20
4.9: a) elyaf filtre ile GO'nun süzülmesi, b) süzme işlemi sonrası filtre üzerinde kalan GO..	20
4.10: Kurutulmuş GO.	21
4.11: Silika jel üretim şeması.	22
4.12: Temsili olarak bir FT-IR sisteminin çalışma şeması.	24
4.13: Kullanılan FT-IR cihazı.	23
4.14: Temsili kullanılan Raman cihazı	25
4.15: Kullanılan raman cihazı	26
4.16: Kullanılan bet cihazı	26
4.17: Kullanılan SEM-EDS cihazı temsili görüntüsü	27
4.18: a) numunelerin toz hale getirildiği havan, b) numunelerin koyulduğu kalıp, c) numunelerin kalıp halini alması için kullanılan basınç makinası	28

4.19:	a) ticari silika jel, b) sentezlenen saf silika jel, c) %0,5 GO katkılı silika jel, d) %1 GO katkılı silika jel, e) %2 GO katkılı silika jel	29
4.20:	Doğrusal ısı aktarım deney düzeneği, a) elektronik konsol, b) doğrusal ısı aktarım ünitesi, c) termokuplların yerlerinin gösterimi	30
5.1:	Grafen oksite ait Raman Spekturumu	33
5.2:	Silika jelin FT-IR spektrumları	34
5.3:	GO'nun FT-IR spektrumları	35
5.4:	GO katkılı silika jellerin FT-IR spektrumları	36
5.5:	a) Saf silika jelin SEM görüntüsü. b) % 0,5 GO katkılı silika jelin SEM görüntüsü.	37
5.6:	a) % 1 GO katkılı silika jelin SEM görüntüsü. b) % 2 GO katkılı silika jelin SEM görüntüsü.	37
5.7:	Silika jellerin pH değerlerine göre yüzey alanları.	39
5.8:	Silika jel ve GO katkılı silika jellerin yüzey alanları.	40
5.9:	Ticari silica jel, saf ve grafen oksit katkılı silika jellerin ortalama ısı iletkenlik grafiği	42

TABLÖLAR DİZİNİ

<u>Tablo No:</u>	<u>Sayfa</u>
3.1: Farklı üretim şartlarında silika jellerin yüzey parametreleri.	12
5.1: Karbon atomlarının gerilme titreşimleri ve dalga sayıları	34
5.2: GO katkılı silika jellerin SEM-EDS sonuçları.	38
5.3: Ticari silica jel, saf ve grafen oksit katkılı silika jellerin deneysel verileri	41

1. GİRİŞ

Günümüzde enerji fiyatlarının giderek artması, yaşanan küresel ısınma ve çevre kirliliğindeki artış, yenilenebilir enerji kaynaklarına olan ilgiyi arttırmıştır. Özellikle Avrupa Birliği'nin 2050 yılına kadar CO₂ emisyonlarını (1990 seviyesine göre) %80-95 oranında azaltma kararı almış olması gelecekte bir enerji sorununun oluşacağını işaret etmektedir. Bu kapsamda çevre dostu alternatif enerji kaynaklarının kullanılması ve geliştirilmesi gerekmektedir.

Soğutma ihtiyaçlarının karşılanması için klasik mekanik soğutma çevrimlerinin maliyetleri oldukça yükselmektedir. Bu sistemlere alternatif olarak atık ısı ile çalışan ve elektrik enerjisine ihtiyaç duymayan ısı pompaları giderek daha çok tercih edilir hale gelmektedir. Bu ısı pompalarından “Adsorpsiyonlu Isı Pompaları” da yaygınlaşmasını sürdürmektedir.

Adsorpsiyonlu ısı pompaları kondenser, genleşme valfi, evaporatör, adsorbent yatağı, adsorbent yatağında bulunan adsorbent (silika jel, aktif karbon, zeolit vb. gibi) ve adsorbattan oluşmaktadır. Adsorpsiyonlu ısı pompalarının çevrimi ise sırası ile;

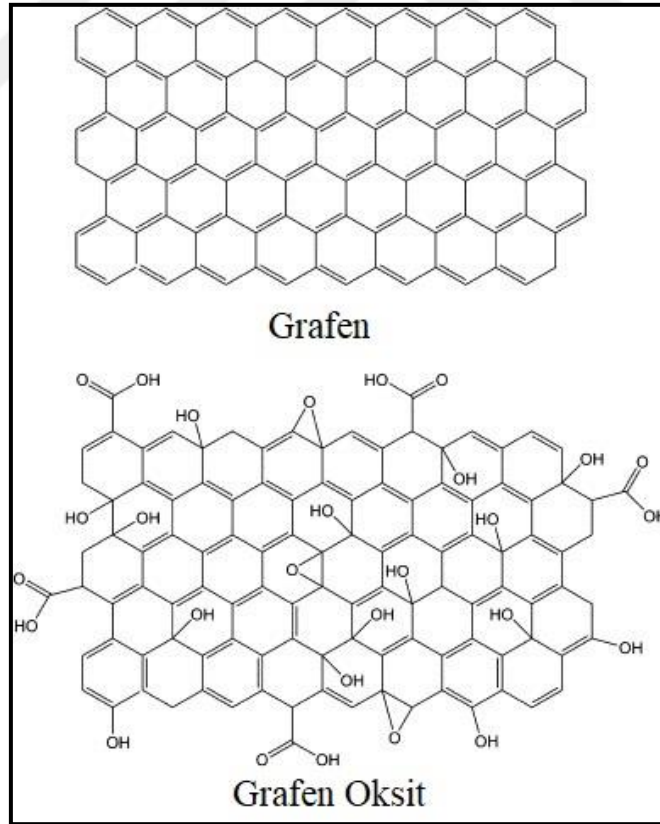
- Evaporatörde düşük basınçta bulunan adsorbat çevredeki ısı etkisiyle buharlaşır.
- Buharlaşan adsorbat ise adsorbent yatağında adsorbentler tarafından adsorplanır.
- Adsorbent yatağına transfer edilen ısıyla birlikte adsorbat, desorbe olup adsorbent yatağını terk eder ve kondenserde çevreye ısı vererek yoğunlaşır.
- Kondenserde yoğunlaşan adsorbat genleşme valfi vasıtasıyla evaporatöre aktarılır [5].

Temel de dört ana bölümden oluşan ısı pompalarının birçok avantajının yanında hala geliştirilmesi gerekmekte olan yönleri de bulunmaktadır. Yüksek verimli ısı pompası için iyi tasarlanmış bir adsorbent yatağı ve adsorbent kullanımı gerekmektedir. Kullanılacak olan adsorbentlerde aranan özellikler ise yüksek ısıl iletkenlik, ısıl kararlılık/dayanım, düşük maliyet, yüksek yüzey alanı ve yüksek adsorpsiyon kapasitesidir.

Adsorbent olarak kullanılan silika jellerin yüksek soğurma kapasitesi gibi avantajlarına karşın yüksek termal direncinin olması arzu edilen verimliliği sağlamasında engel teşkil etmektedir. Bu tez kapsamında da ısı pompalarının verimini

arttırmak için adsorbent yatağında kullanılan adsorbentlerden silika jelin kütle ve ısı transferinin artırılması amaçlanmıştır. Bu amaç doğrultusunda öncelikli olarak silika jelin absorplama kapasitesini doğrudan etkileyen yüzey alanı faktörünü optimize etmek için silika jel üretiminde sürekli olarak pH metreyle ölçüm yapılmıştır. Farklı pH değerlerinde tepkime durdurulup pH 3,4,5 değerlerinde silika jeller üretilip yüzey alanlarını kıyaslamak için BET analizi yapılmıştır. İkinci aşamada ise silika jelin termal iletkenliğini arttırmak için son dönemlerde üzerine çokça çalışma yapılan ve birçok alanda kullanılan grafen oksit tercih edilmiştir.

İki boyutlu, tek katmanlı yapısı sayesinde diğer karbon allotroplarından farklı olmasıyla araştırmacıların ilgisini çeken grafen, teknolojiye yeni bir dönemi başlatmış; üstün mekanik, elektronik, termal özellikleri ile nanoelektronik, enerji depolama ve dönüşümü, sensörler ve katalizörler gibi birçok uygulamada performans parametrelerini arttırabilir bir malzeme haline gelmiştir. Grafen oksit ise yapı olarak grafen gibi 2 boyutlu ve grafenin güçlü oksitlerle oksitlenmiş formu olarak bilinmektedir [1]. Şekil 1.1 de grafen ve grafen oksitin yapısı gösterilmiştir [2].



Şekil 1.1: Grafen ile grafen oksitin yapısı.

Grafen oksit, grafene göre termal iletkenliđi daha düşük olmasına karřın yapısında bulunan oksijen atomları sayesinde hidrofilik özellik gösterip sulu çözeltilerde çok iyi dağılmasını sağlamaktadır [3] [4]. Grafen oksitin hidrofilik yapısı sayesinde silika jel üretiminde sodyum silikatın 1:1 orandaki çözeltisinin 1.5 mol sülfürik asit çözeltisine damlatılarak elde edilen hidrojel aşamasına kolayca eklenerek homojen bir kompozit yapı elde edildi. Yapılan termal iletkenlik testlerinde yüzdece 0.5-1-2 grafen oksit katkısının, ticari silika jelin termal iletkenliğine göre termal iletkenliđi sırasıyla yaklaşık olarak %17, %22 ve %25.4 arttığı görülmüştür.

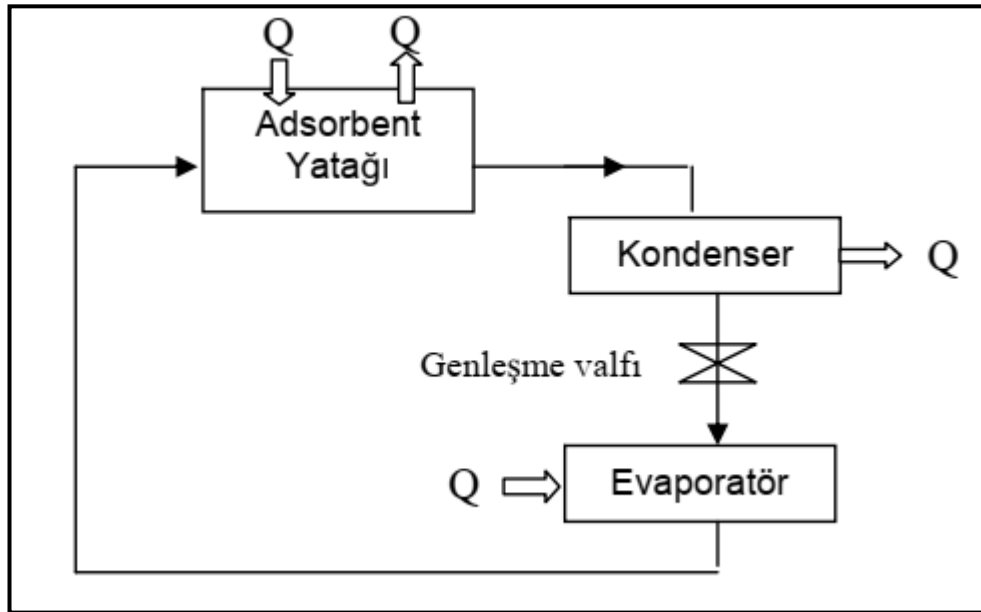


2. GENEL TANIMLAR

2.1. Adsorpsiyonlu Isı Pompası

Adsorpsiyonlu ısı pompalarının elektrik ihtiyaçları çok azdır. Atık ısı kaynakları, jeotermal enerji, güneş enerjisi veya diğer ısı kaynakları kullanarak soğutma işlemini gerçekleştirebilir olması sebebiyle oldukça caziptir. Adsorpsiyonlu ısı pompaları kondenser, genleşme valfi, evaporatör, adsorbent yatağı, adsorbent yatağında bulunan adsorbentten oluşmaktadır. Adsorpsiyonlu ısı pompalarının en önemli dezavantajı performans parametrelerinin düşük olmasıdır [5], [10].

Adsorpsiyonlu ısı pompalarının soğutma çevrimi evaporatörde bulunan adsorbatın ortamdan aldığı ısı ile buharlaşmasıyla başlar ve adsorbent yatağında, adsorbentler vasıtasıyla absorplanması ile soğutma işi gerçekleşmiş olur. Adsorbatın, adsorbentlerden uzaklaştırmak için yatağa ısı verilir; desorbe olan adsorbat, adsorbent yatağından ayrılıp çevreye ısı vermesiyle birlikte yoğuşur. Kondenserde yoğuşan adsorbat genleşme vanasından evaporatöre geçer ve dolaşım tamamlanır [10]. Şekil 2.1’de adsorpsiyonlu ısı pompasının çalışma şekli gösterilmiştir [5]. Bu tez kapsamında da adsorbent yatağında sıkça kullanılan adsorbentlerden silika jelin termal iletkenlik özelliği artırılarak pompaların daha verimli çalışması amaçlanmıştır.



Şekil 2.1: Adsorpsiyonlu ısı pompasının çevrimi.

2.2. Adsorpsiyon

Adsorpsiyon, gaz ya da sıvı fazda bulunan maddelerin katı bir yüzeyde tutulması işlemidir [6]. Adsorpsiyon, absorpsiyondan farklı olup absorpsiyonda bir madde çözelti oluşturarak bir katı ya da sıvıya yayılımı şeklinde gerçekleşir [7]. Adsorpsiyon kimyasal veya fiziksel olarak ikiye ayrılmaktadır. Kimyasal adsorpsiyon da adsorbat kovalent bağ ile adsorbent yüzeyine tutunur. Kimyasal adsorpsiyon genellikle tersinmezdir yani kimyasal adsorpsiyonda desorpsiyon olayı gerçekleşmemektedir. Desorpsiyon, adsorbent yüzeyindeki adsorbatın adsorbentten uzaklaşma işlemidir. Fiziksel adsorpsiyon ise desorpsiyon yeteneğine sahiptir. Bu durumun sebebi adsorbat, adsorbent yüzeyine Van der Waals bağı ve/veya elektro-statik etkileşmeler ile tutunur ve bu işlemin sıcaklık artışıyla ters orantılı olarak azalmasıdır. Bu tez kapsamında performansı artırılması amaçlanan ısı pompalarında kullanılan adsorplama işlemi fiziksel adsorpsiyondur [5].

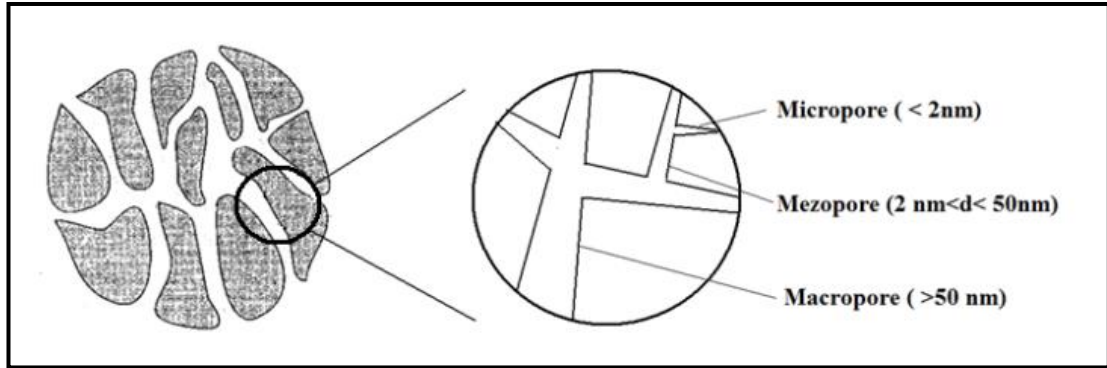
2.3. Adsorbent

Adsorbentler, genellikle yapısı gözenekli ve yüzey alanı yüksek maddelerdir. Adsorbanları, yüzeylerine moleküller arası kuvvetler ile adsorbe edebilirler [8]. Isı pompasında kullanılacak adsorbentlerde aranacak bazı özellikler:

- Yüksek yüzey alanı, bu sayede adsorpsiyon yapılacak yüzeyde arttırıldığı için daha yüksek adsorplama alanı elde edilir.
- Yüksek termal iletkenlik, ısı pompalarında yatak boyunca aktarılabilecek ısı adsorbentin termal iletkenliğine bağlıdır.
- Yüksek kütle yayılımı, adsorbentin gözeneklerinden difüzyonun yüksek olması gerekmektedir.
- Termal kararlılık, pompa sisteminin uzun ömürlü kullanımı için malzemenin ısıl dayanıklılığı önemlidir.

Bu maddelere ek olarak adsorbentlerin gözenek boyutları gibi yapısal özellikleri de son derece önemlidir. Ayrıca adsorbentler sahip oldukları farklı şekil ve büyüklükteki

yapıları sayesinde gaz formunda bulunan buharların hızlı taşınmasını sağlar. Şekil 2.2’de farklı gözenekleri olan örnek bir adsorbentin yapısı gösterilmiştir [8].



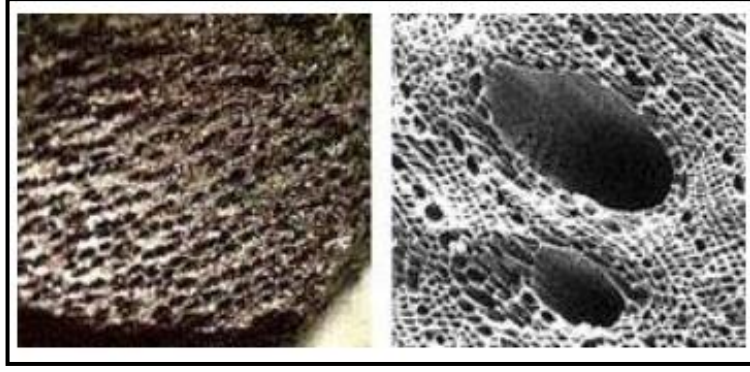
Şekil 2.2: Adsorbentin gözenekli yapısı.

Adsorpsiyonlu ısı pompalarında aktif karbon, zeolit, silika jel en çok kullanılan adsorbentlerdir.

2.3.1. Aktif Karbon

Aktif karbon, odun, kömür, fosil yağı, kemik, hindistancevizi kabuğu ve yüksek polimerler gibi karbon içerikli malzemelerin aktivasyonu ile üretilir. Aktivasyon metodu ve kullanılan teknoloji adsorbanın üç dağılımlı gözenekli yapısını (makro, mikro, mezo) belirler. Fakat aktif karbonlar genellikle mikro gözenekli yapıdadırlar. Aktif karbonlar, toz, karbon lifleri, moleküler elekler ve granüler gibi çeşitli formlar sahiptir. Aynı zamanda aktif karbonun yapısı grafitin yapısına benzemektedir [7].

Aktif karbonlar, yüzey yapısı belirli karbon içerikli katılardır. Aktif karbonların yüzeyi genellikle polar olmamasına karşın yüzey yapısında bulunan oksitler kısmen yüzeyi polar yapar. Bu nedenle yüzeyi hidrofobik olan aktif karbonlar, oksijen içeriğinden dolayı su adsorbe edebilirler [9]. Şekil 2.3’de zeolitin SEM görüntüsüne yer verilmiştir [7].



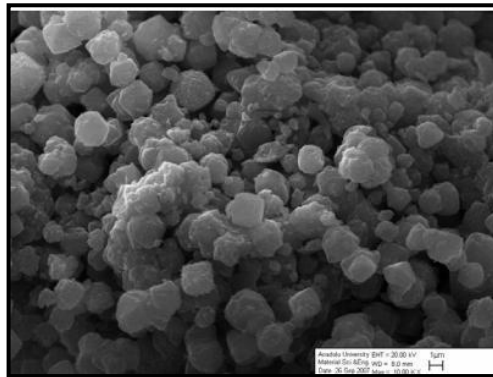
Şekil 2.3: Örnek bir aktif karbonun SEM görüntüsü.

2.3.2. Zeolit

Zeolitler parçacık boyunca çok düzenli eşit gözenek boyutlarına sahiptirler. Bu sayede moleküler elek olarak bilinip, molekülleri boyutlarına göre ayırma işleminde kullanılmaktadırlar. Zeolitler ortalama 800-1000 m²/g yüzey alanına sahip oluşları adsorpsiyon uygulamaları için iyi bir alternatif olmuşlardır. Uygun koşullar altında çok düşük konsantrasyonlarda su buharlarını adsorbe edebilirler.

Zeolitler doğal ve sentetik olarak iki gruba ayrılır. Doğal zeolitler rezerv olarak dünyada bolca bulunmakla birlikte oldukça iyi karakteristik özelliklere sahiptirler. Yüksek iyon değişimi, yüksek yüzey alanı ve kataliz özellikleri sahiptir. Yüksek su tutma yeteneği sayesinde endüstride geniş bir kullanım alanı bulunmaktadır [10], [11].

Sentetik zeolitler, doğal zeolitler ile karşılaştırıldığında üstün özelliklerinin olmasına rağmen doğal zeolitlerin ucuz, modifiye edilebilir ve doğada çokça bulunmaları sebebiyle doğal zeolitlere göre daha az tercih edilmektedirler [12]. Şekil 2.4'te doğal zeolitin sem görüntüsüne yer verilmiştir [11].

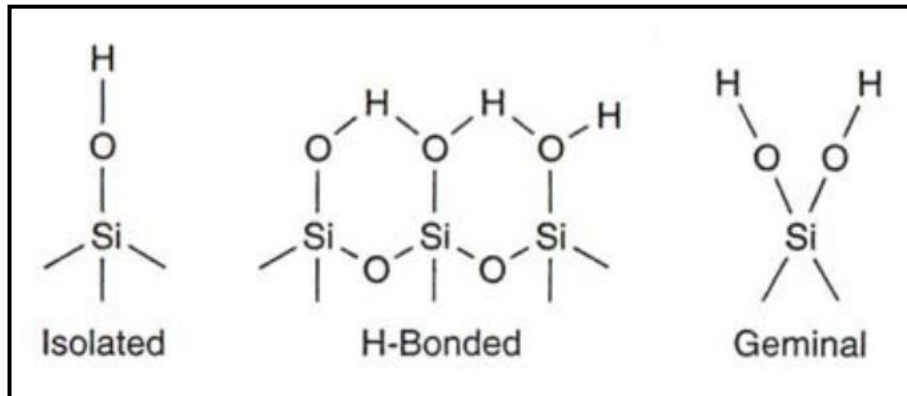


Şekil 2.4: Doğal zeolitin SEM görüntüsü.

2.3.3. Silika Jel

Gözenekli yapısıyla birlikte geniş yüzey alanına sahip silika jeller, siloksan (Si-O-Si) ve silanol (Si-OH) gruplarından oluşur. Silika jelin yapısında bulunan hidroksil polar oksitlerle hidrojen bağı oluşturabildiği için silika jelin adsorpsiyon merkezi olarak tanımlanmaktadır. Silika atomlarının yüzeyinde uzaklaştırılamayan ve tek hidroksil grubuna bağlanan yaklaşık %5 kütleli su vardır. Silika jel 150°C'ye kadar ısıtılırsa bu suyu kaybeder ve adsorpsiyon kapasitesi düşer. Bu nedenle adsorpsiyon ısı pompaları için desorpsiyon sıcaklığı 130°C'den yüksek olmamalı ve atık ısı, güneş enerjisi ve jeotermal enerji gibi mevcut düşük sıcaklıklı enerji kaynaklarına uygulanmalıdır [13] .

Silika jelin reaktivitesini ve adsorpsiyon işlemini yüzeyinde bulunan silanol (Si-OH) grupları belirler. Bu silanol gruplarının farklı organik gruplarla reaksiyona girmesi ile silika jel yapısı zenginleştirilip saf silika jele oranla daha yüksek adsorplama kapasitesine sahip adsorbentler elde edilmektedir [14]. Şekil 2.5'te silanol gruplarının 3 basit tipi gösterilmiştir [15].



Şekil 2.5: Silanol grupları.

2.3.3.1. Silika Jelin Kullanım Alanları

Malzemelerin ortamdaki rutubetten korunması gereken yerlerde çokça tercih edilen ve nem çekici özelliği sayesinde birçok alanda tercih edilen silika jellerin çeşitli kullanım alanları

- Endüstriyel hava kurutma sistemlerinde
- İstenmeyen gazların uzaklaştırılmasında
- Ağır metallerin ve gazların adsorpsiyonun incelenmesinde
- İlaçların nemden korunmasında
- Gıda ürünlerinin korunmasında
- Elektronik malzemelerin korunmasında
- Hassas malzemelerin kuru ve güvenli saklanması
- Laboratuvarlarda kullanılan kimyasalların ve cihazların korunmasında

Şeklinde sıralanabilir [10].

2.3.3.2. Silika Jelin Teknik Özellikleri

Ticari olarak kullanılan silika jellerin teknik özellikleri aşağıda sıralanmıştır [10].

- Silika jelin kimyasal içeriği %98.2 SiO₂, %0.7 Al₂O₃, %0.3 NaO₂ dir.
- Yoğunluğu 0.8 g/cm³ dür.
- Yüzey alanı ortalama 300-800 m²/kg dır.
- Gözenek çapı 21 Å dır.
- Termal iletkenliği 5,9 W/mk.

2.4. Grafen ve Grafen Oksit

Grafen, karbon atomlarının güçlü kovalent bağlar ve sp² hibritleşmesi yaparak oluşturduğu hekzagonal yapıda tek katmanlı malzeme olarak tanımlanmaktadır. Günümüzde üstün teknik özellikleri sebebiyle araştırma konuları arasında en önemli materyallerden biridir. Yapılan çalışmalarda 1100 Gpa Young Modülüne ve 130 Gpa çekme mukavemetine sahip olduğu tespit edilmiştir. Grafen, oda sıcaklığında 15.000 cm² V⁻¹ s⁻¹ iletkenliğine ve yaklaşık 2675 m² g⁻¹ 'lik bir yüzey alanına sahiptir. Grafen 5000 W m⁻¹ K⁻¹ termal iletkenliği sahip olup bu özelliği ile altın, bakır ve gümüş gibi metallerden daha iyi iletkenliğe sahiptir [16]. Tek katmanlı grafenin optik geçirgenliği ise %97,7'dir. Geniş bir kullanım alanına sahip olan grafen, termal ve elektrik iletkenliğinde, saydam iletken filmlerde, sensörlerde, ultra ince karbon filmlerde,

nanokompozitleri güçlendirmede, ağır metalleri ayrıştırma, elektronik devrelerde, nano-elektronikte, ekranlar için saydam ve esnek elektrotlarda, enerji depolama cihazları gibi karbon temelli malzemelerde kullanılmaktadır [17]-[19]. Bu nedenle grafene olan ihtiyaç giderek artmasıyla birlikte düşük maliyetli ve büyük miktarda grafen üretimi önem artmaktadır. Grafen farklı yöntemlerle daha yüksek kalitede üretilmesine karşın grafen oksit indirgenmesi yöntemi maliyet ve yüksek üretkenlik gibi faktörlerden kaynaklı daha uygundur yöntem olarak tercih edilebilir.

Grafen Oksit, saf grafene göre yapısında farklı oranlarda karbon, hidrojen ve oksijen bulunduran, literatürde grafen üretiminin ara basamağı veya grafenin oksitlenmiş versiyonu olarak tanımlanmaktadır [16], [20]. Grafen oksit günümüzde Offeman ve Hummer's yöntemleriyle sentezlenmektedir. Literatürde Hummer's veya modifiye edilmiş Hummer's yöntemi olarak belirtilen grafen oksit sentezleme yöntemi temelde çeşitli oksidantlar ve asitler ile grafitin oksitlenmesi işlemleri şeklindedir. Oksidasyonun oranı kullanılan yöntemle birlikte grafitin özelliklerine ve reaksiyon koşullarına bağlıdır [16].

Hummers yöntemi uygulama esnasında çeşitli zehirli gazların çıkması sebebiyle oldukça tehlikelidir. Modifiye işlemler sayesinde bu zehirli gazların çıkışı azaltılarak daha güvenli sentez yöntemleri elde edilebilmektedir. Farklı kimyasallar kullanılması, kullanılan kimyasalların miktarını ve reaksiyon sürelerini değiştirmek sıklıkla başvurulmuş modifiye işlemleridir.

Grafen oksit hidrofilik özelliğinden kaynaklı olarak indirgeme işlemi yapılmadan, çoğunlukla sulu çözeltileri hazırlanıp farklı uygulamalarda kullanılmaktadır. Grafen oksit'in çözücülerde kolay dağılması şeffaflığı, dielektrik özelliği, elektronik özelliklerinin ayarlanabilirliği ve mekanik özellikleri nedeniyle kullanıldığı alanlar sürekli olarak artmaktadır [21].

3. SİLİKA JEL ve GRAFEN OKSİT SENTEZLERİ

Bu tez kapsamın 3 farklı sentez yapılmıştır. Yapılan sentezler sırasıyla silika jel, grafen oksit ve grafen oksit katkılı silika jeldir. Sentez çalışmalarında her bir sentez ayrı ayrı literatür çalışmaları yapıp nihai ürün olacak grafen oksit katkılı silika jel için en ideal yöntemler belirlenmiştir.

3.1. Silika Jel Sentezi Üzerine Yapılmış Çalışmalar

Uygulamada çokça adsorplama yeteneğinden dolayı tercih edilen silika jel araştırmacılarında adsorplama yeteneğini arttırmak adına çalışmalar yapmasına sebep olmuştur. Farklı yöntemlerle elde edilebilen silika jel performans parametrelerini artırılması amacıyla yapılan çalışmalarda daha çok sodyum silikat kullanılarak hidrojellerin elde edilmesiyle yapılmıştır. Literatürde %14 NaOH, %27 SiO₂ içeren sodyum silikat çözeltisinin 3 M sülfürik aside damlatılması yoluyla farklı pH değerlerinde silika jel üretilip gözenek yapısı incelenmiştir. 1-3 pH aralığında üretilen mikro gözenekli silika jeller sırası 504-571 m²g⁻¹ BET yüzey alanına, 0.26–0.31 cm³g⁻¹ toplam gözenek hacmine sahiptir. 3.26-0.65 pH aralığında üretilen mezo gözenekli silika jellerde 374-530 m²g⁻¹ BET yüzey alanına, 0.61-0.79 cm³g⁻¹ toplam gözenek hacmine sahiptir [22].

Silika jel üretimde tepkime sıcaklığı ve kurutma sıcaklığının yüzey alanına etkisinin araştırıldığı çalışmada ise kullanılan kimyasallar tetraetoksisilan (TEOS), hidroklorik asit (HCl), amonyum hidroksit (NH₄OH) ve damıtılmış sudur. Çalışma esnasında karışımın pH 1.6, 2.5, 3.0, 3.7 ve 7.4 değerlerinde farklı tepkime sıcaklığı ve farklı kurutma sıcaklıklarında işleme tabi tutulup BET yüzey alanı değerleri ve hacimleri hesaplanıp tablo 3.1’de gösterilmiştir. Optimum değerler pH 3 olduğunda tepkime sıcaklığı ve kurutma sıcaklıklarının her ikisinin de 80 °C olduğunda elde edilmiştir [23].

Tablo 3.1. Farklı üretim şartlarında silika jellerin yüzey parametreleri .

pH	Tepkime Sıcaklığı (°C)	Kurutma Sıcaklığı (°C)	BET Yüzey alanı (m ² /g)	Toplam Hacim (cm ³ /g)
1.6	25	60	3	0,005
2.5			6	0,002
3.0			18	0,009
3.7			844	0,768
7.4			715	0,625
1.6	50	60	353	0,167
2.5			640	0,328
3.0			667	0,34
3.7			689	0,758
7.4			651	0,842
1.6	80	60	602	0,287
2.5			748	0,39
3.0			817	0,439
3.7			736	0,383
7.4			404	0,953
1.6	100	60	486	0,23
2.5			714	0,359
3.0			720	0,38
3.7			670	0,522
7.4			397	0,972
1.6	80	25	587	0,281
2.5			597	0,293
3.0			743	0,391
3.7			568	0,273
7.4			450	0,985
1.6	80	40	497	0,235
2.5			520	0,253
3.0			532	0,274
3.7			458	0,216

Tablo 3.1 Devam.

7.4			422	0,976
1.6	80	60	602	0,287
2.5			748	0,39
3.0			817	0,439
3.7			736	0,383
7.4			404	0,953
1.6	80	80	620	0,299
2.5			697	0,341
3.0			918	0,56
3.7			819	0,44
7.4			389	0,923

3.2. Grafen Oksit Sentezi Üzerine Yapılmış Çalışmalar

Grafen oksitin solüsyon olarak eldesi için yoğun olarak kullanılan yöntemlerden bir tanesi Hummers metodudur. Grafen oksit ilk keşif zamanlarından itibaren Hummers, Staundenmaie, Brodie, Hoffeman yöntemleri ile elde edilmektedir. Grafen oksit sentezinde kullanılan bu yöntemler güçlü asitler ve oksidanlar tarafından grafitin oksitlenmesi esasına dayanır. Kullanılan metot, tepkime şartları ile tercih edilen grafitin özellikleri oksidasyonun derecesini tayin etmektedir [24], [25]. Fakat grafen oksitin (GO) bazı üretim yöntemlerinde kuvvetli asitler ile zararlı kimyasallar gerekmekte ve üretim esnasında çokça zararlı gaz çıkışları meydana gelmektedir. Hummers yöntemi grafit, potasyum permanganat gibi kuvvetli oksidasyon kimyasalları ve sülfürik asit ile tepkimeye sokulmasıyla grafen oksit elde edilmektedir [16], [26], [27]. Grafen oksit yapısında bulunan -OH ve oksijen grupları sebebiyle yüksek hidrofilik özelliğe sahip olmakla birlikte kararlı sulu kolloidler de oluşturur. Ayrıca, solventlerde de kolayca dağılabilmektedir [16], [27], [28]. Grafen oksidin özelliklerinden biri de yapısında bulunan oksijenli grupları çıkarılıp, grafen benzeri yapıya indirgenebilmesidir. Bu oluşan yapı indirgenmiş grafen oksit (RGO), bir tür grafen olarak adlandırılır [28].

Uygulamada en çok tercih edilen yöntem olan Hummers metodu, KMnO_4 , NaNO_3 , H_2SO_4 karışımı tercih edilir, yüksek verime sahip olmasının yanında önceki

yöntemlere göre daha az vakitte elde edilir. Çalışmalar, NaNO_3 kullanım miktarının oranının H_2SO_4 kullanım miktarıyla bir bağı olduğu ve NaNO_3 'ün fazla veya eksik kullanımı GO oksidasyonunu iyileştirmeye elverişli olmadığı görülmüştür [29]. Aynı zamanda GO'nun oksijen oranı arttıkça termal iletkenliğinin azaldığı bilinmektedir [30]. GO'nun Hummers metodu ile üretiminde tepkime sonlandırmak amacıyla kullanılan H_2O_2 'nin kullanım miktarı arttıkça GO yapısı üzerinde değişimlere sebep olduğu bildirilmiştir [31]. Ayrıca, NaNO_3 kullanım miktarı arttıkça daha fazla zehirli gaz salınımı olduğu buna karşılık NaNO_3 kullanılmadan da kaliteli GO üretilbileceği yapılan çalışmalarda görülmüştür [31].

3.3. Grafen Oksit-Silika Jel Birleşimiyle İlgili Yapılmış Çalışmalar

Literatürde grafen oksit silika jel birleşimleri çeşitli amaçlar için çalışılmıştır. Hibrit ve elektrikli araçlarda kullanılan pillerin termal yönetim teknolojisi, soğutma boruları ile silindirik hücrelerin kavisli yüzeyi arasındaki ısı transfer kapasitesini artırmada yaşanan zorluklara çözüm olması açısından grafen oksit silika jel (GO-SG) kompoziti yapıp silindirik hücreler ile su soğutma tüpleri arasındaki boşluğa basitçe doldurulmuştur. Yapılan testlerde şarj işlemi sırasında çıkan ısı 4-5 derece kadar azaltıldığı bildirilmiştir [32].

Grafen oksit silika jel kompozitinin literatürde çokça, ağır metallerin ayrıştırılmasında kullanıldığı da görülmüştür. Bu çalışmalardan biri de Paladyumun kullanılmış endüstriyel katalizörlerden ayrıştırılması çalışmasıdır. Çalışmada silika jel yüzeyi çeşitli kimyasallar ile aktif edilerek yüzeye grafen oksit ilavesi ile yeni bir adsorban malzemesi üretilmiştir [33].

Grafen oksit başka bir çalışmada ise silika hidrojellerden elde edilen aerojellerin bazı mekanik özelliklerini geliştirmek amacıyla kullanılmıştır. Yapılan çalışmada sol-jel yöntemi ile grafen oksit %0,5 oranında silika aerojellere eklenmiştir. Yüzey alanını ve gözenek hacmini sırasıyla 390'dan 700 m^2/g 'ye ve 0,59'dan 0,99 cm^3 'e yükselttiği ve aerjel yoğunluğunu 0,19'dan 0,14 g/cm^3 'e düşürdüğü bildirilmiştir [34].

4. MATERİYAL VE YÖNTEM

Grafen oksit katkılı silika jel hazırlanması 3 aşamada tamamlanmıştır. Öncelikli olarak silika jel üretimi gerçekleştirilip daha sonra grafen oksit sentezlenmiştir. Daha sonraki aşamada silika jelin üretimindeki hidrojel aşamasına farklı oranlarda grafen oksit eklenerek grafen oksit katkılı silika jel üretilmiştir.

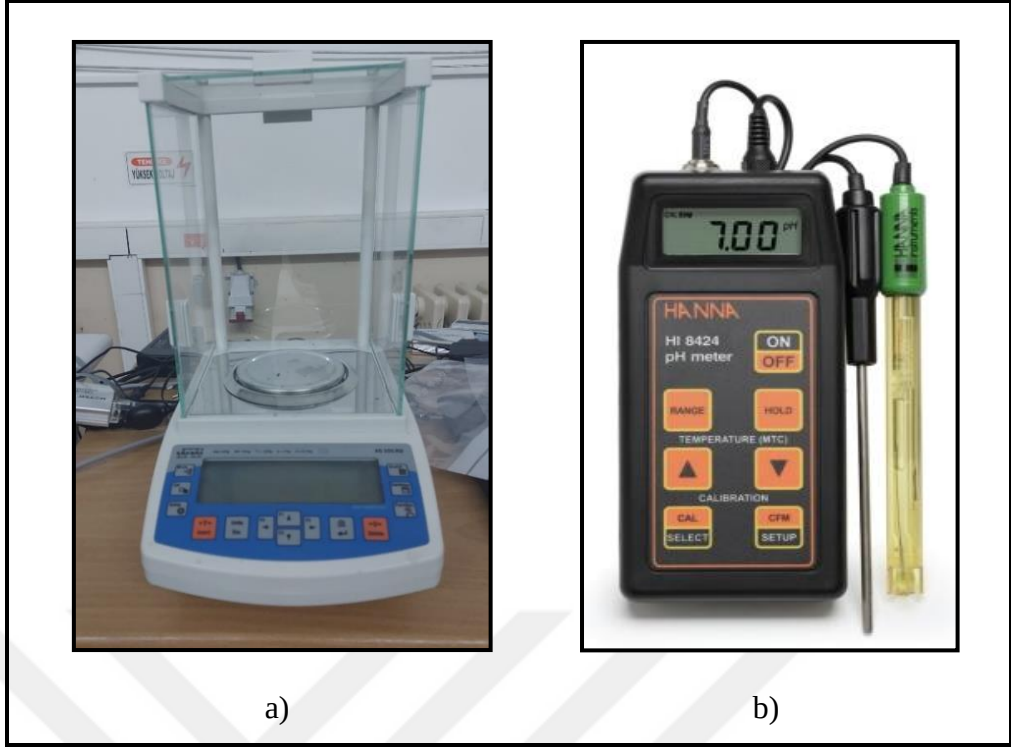
Silika Jel sentezi iki aşamada gerçekleştirilmiştir. İlk aşamada silika jelin uygun değer, yüzey alanının ve ilerideki aşamalarda grafen oksitle karışımında ideal kıvamının tespiti için 3 farklı pH değerinde üretim yapıp yoğunlukları gözlemlenip yüzey alanları karakterize edilmiştir.

Grafen oksit üretimi, çevre dostu zehirli gaz salınımı azaltmış bir modifiye edilmiş Hummers metodu kullanılarak sentezlenmiştir. Yapılan sentezler BET, SEM, Raman, FT-IR ve termal iletkenlik analizleri ile karakterize edilmiştir.

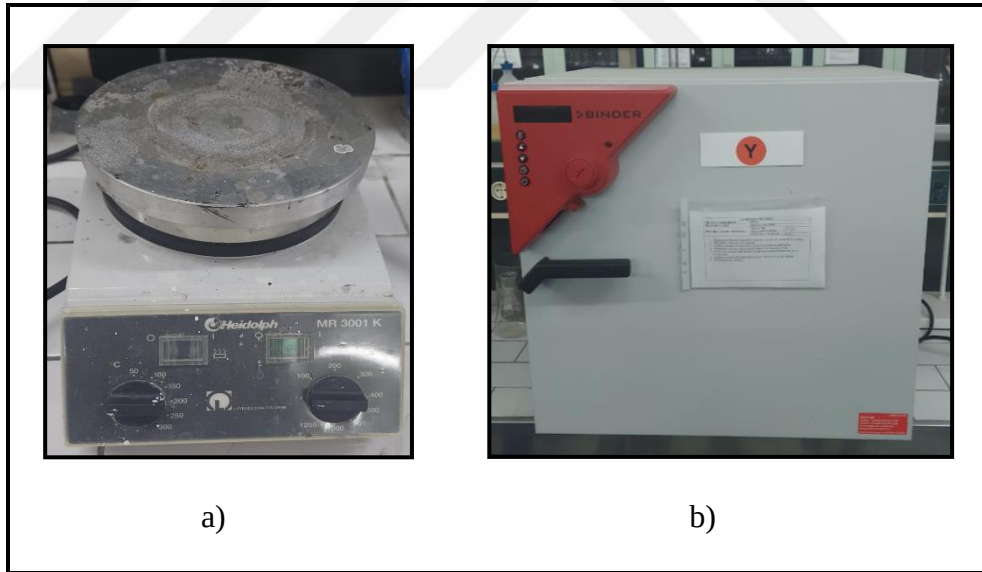
4.1. Kullanılan Materyaller

Silika jel üretiminde kimyasal olarak Refasan firmasından temin edilen Na ve SiO_2 , Merck KGaA firmasından temin edilen %95-97 saflıkta H_2SO_4 ve saf su kullanılmıştır. Grafen oksit üretiminde ise saf su, Merck KGaA firmasından temin edilen %95-97 saflıkta H_2SO_4 , İsolab firmasından temin edilen KMnO_4 , HCl, H_2O_2 ve Nanografi firmasından temin edilen %99,9 saflıkta 4-4.5 μm Grafit kullanılmıştır.

Kullanılan cihazlar Milli Savunma Üniversitesi Deniz Harp Okulu Dekanlığında bulunan Binder ED115 etüv, Hanna Hi 8424 pH metre, Radwag AS 220.R2 hassas terazi ve Heidolph MR 3001 K manyetik karıştırıcıdır.



Şekil 4.1: a) Hassas Terazı, b) pH metre.



Şekil 4.2: a) Manyetik karıştırıcı, b) etüv.

4.2. Yöntem

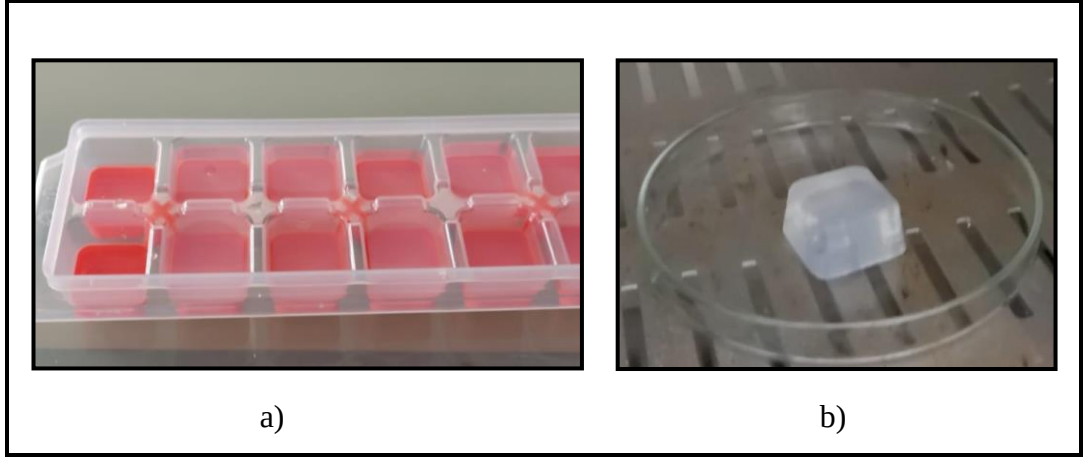
4.2.1 Silika Jel Üretimi

Silika jel sol-jel yöntemi kullanılıp ilk olarak farklı pH değerinde silika jel numuneleri sentezlenip üretim aşamasında dolgu malzemesiyle birleştirileceği uygun adım ve kıvamın belirlenmesi için yüzey alanları ölçülmüştür. İlk olarak sodyum silikat çözeltisi hazırlandı (%28Na ve %14 SiO₂), de-iyonize su, 1.5M H₂SO₄ çözeltisi kullanılmıştır. Sodyum silikat çözeltisi 1:1 oranında saf su ile karıştırıldı. 1.5M sülfürik asit çözeltisi beher içinde manyetik karıştırıcıya konuldu ve 300 rpm de karışması sağlandı. Sodyum silikat çözeltisi asit çözeltisine büret yardımıyla eklendi ve bu işlem devam ederken sürekli bir şekilde pH metre ile sol jelin pH'ı ölçülmektedir.



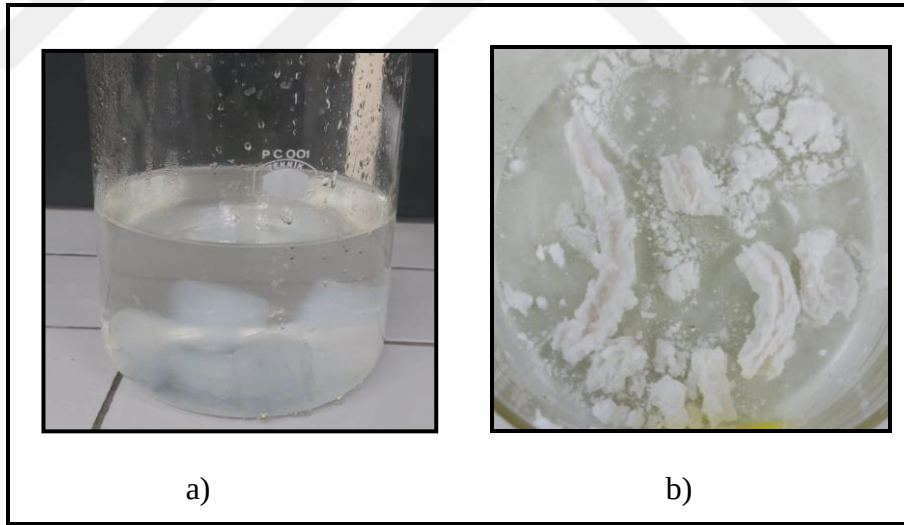
Şekil 4.3: Sodyum silikat eklenirken yapılan pH ölçme işlemi.

Hidrojeller pH değeri 1, 2, 3, 4 ve 5 değerleri okunduğunda ekleme işlemi durdurulup 5 farklı pH değeri için beherden numuneler alındı. Ekleme işlemleri bittikten sonra elde edilen hidrojeller kalıplara döküldü. Şekil 4.4.a) da Hidrojelin kalıplanma aşaması gösterilmiştir. Şekil 4.1.b) de Kalıplanma aşamasından sonra 1 gün bekletip kalıptan çıkartılan hidrojel yıkanmaya hazır hali gösterilmiştir.

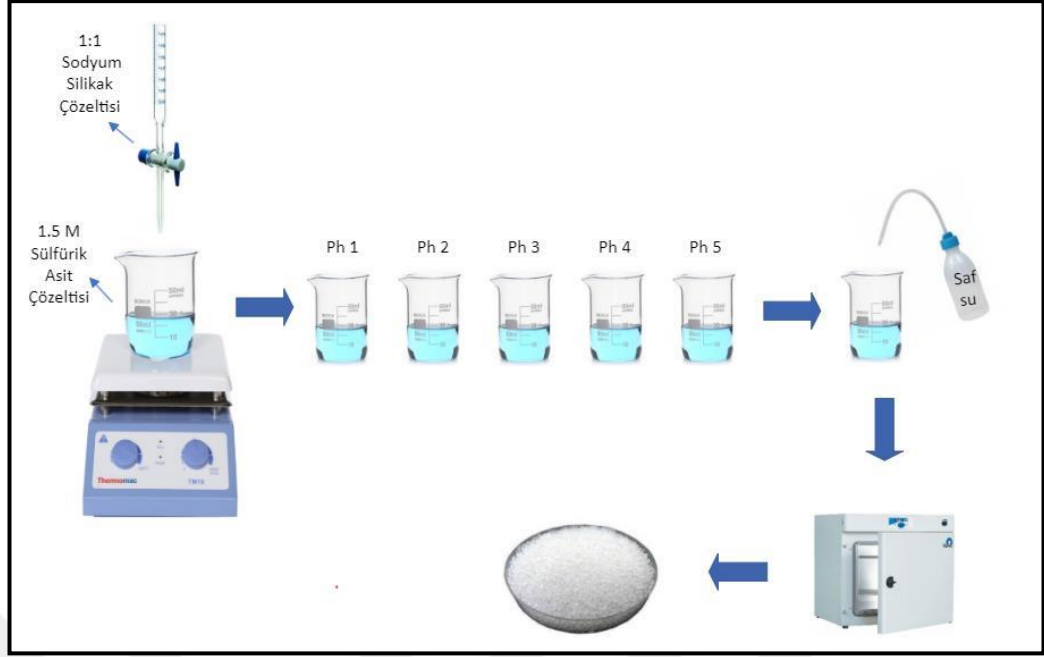


Şekil 4.4: a) Hidrojelin kalıplanma aşaması. b) Kalıplanma aşamasından sonra 1 gün bekletip kalıptan çıkartılan hidrojel.

Hidrojeller 1 gün boyunca oda sıcaklığında bekletilip kalıp şeklini aldıktan sonra şekil 4.5.a)’da gösterildiği gibi 3 kez yıkandı. Son olarak hidrojeller 100 °C etüvde 24 saat bekletildi ve şekil 4.5.b)’de görülen silika jel elde edildi. Şekil 4.6’da silika jel üretim şeması gösterilmiştir.



Şekil 4.5: a) yıkanan hidrojeller, b) etüvde kurutulmuş silika jel



Şekil 4.6: Silika jel üretim şeması.

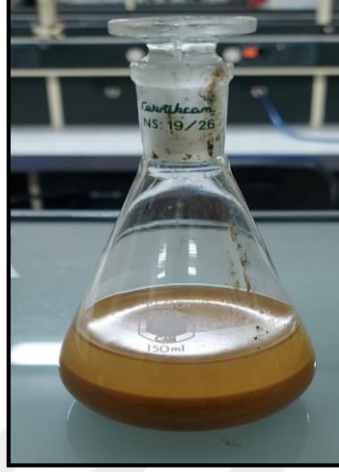
4.2.2. Grafen Oksit Üretimi

Buz banyosu içindeki 23 ml H_2SO_4 içine 1 g Grafite eklenip manyetik karıştırıcıda karıştırılmaya başlandı. Daha sonra 2 g $KMnO_4$ kademeli olarak eklendi. 1 saat bu şekilde devam edildikten sonra buz banyosundan çıkartılıp 40 °C'de sıcaklıkta 3 saat karıştırıldı. 46 ml saf su damlatılarak eklendi bu esnada ekleme işlemi bittiğinde karışımın Şekil 4.7'de görüldüğü gibi koyu kahve tonu renkte olduğu gözlemlendi.



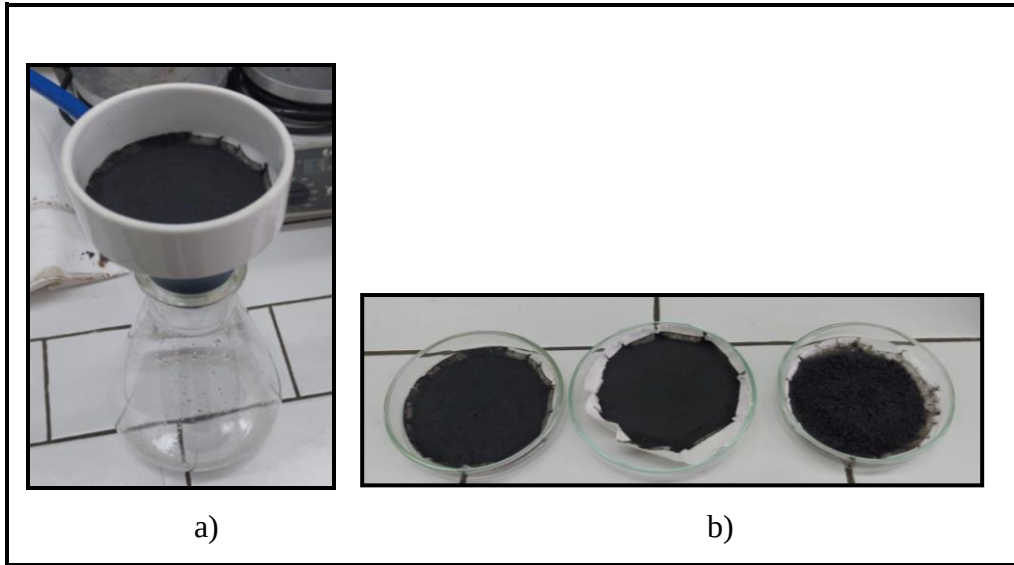
Şekil 4.7: Grafen oksit in 46 ml su eklendikten sonraki koyu kahverengi hali.

Sonrasında sıcaklık kademeli olarak 90 °C ye çıkartılıp daha sonra kademeli olarak 23 ml su eklendi. Tepkime sonlandırılmak üzere H₂O₂ 40 ml eklenerek tepkime durduruldu ve karışımın renginin açık kahverengiye döndüğü gözlemlendi (Şekil 4.8).

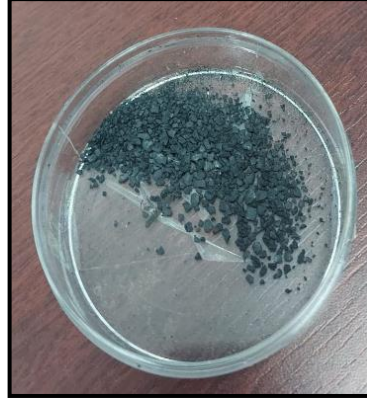


Şekil 4.8: GO'nun üretim aşamasında tepkime durdurulup bekletilmiş hali.

Ürün cam elyaf filtre ile süzülüp ağırlıkça %10 HCl içeren 3 litre saf su içerisinde yeniden dağıtılıp tekrar süzülerek bu işlem 5 kez tekrarlandı. Daha sonra Şekil 4.9'da gözüktüğü gibi tekrar süzülen numuneler etüvde kurtulup toz haline getirildi. Şekil 4.10 kurutulup toz haline gelen GO.



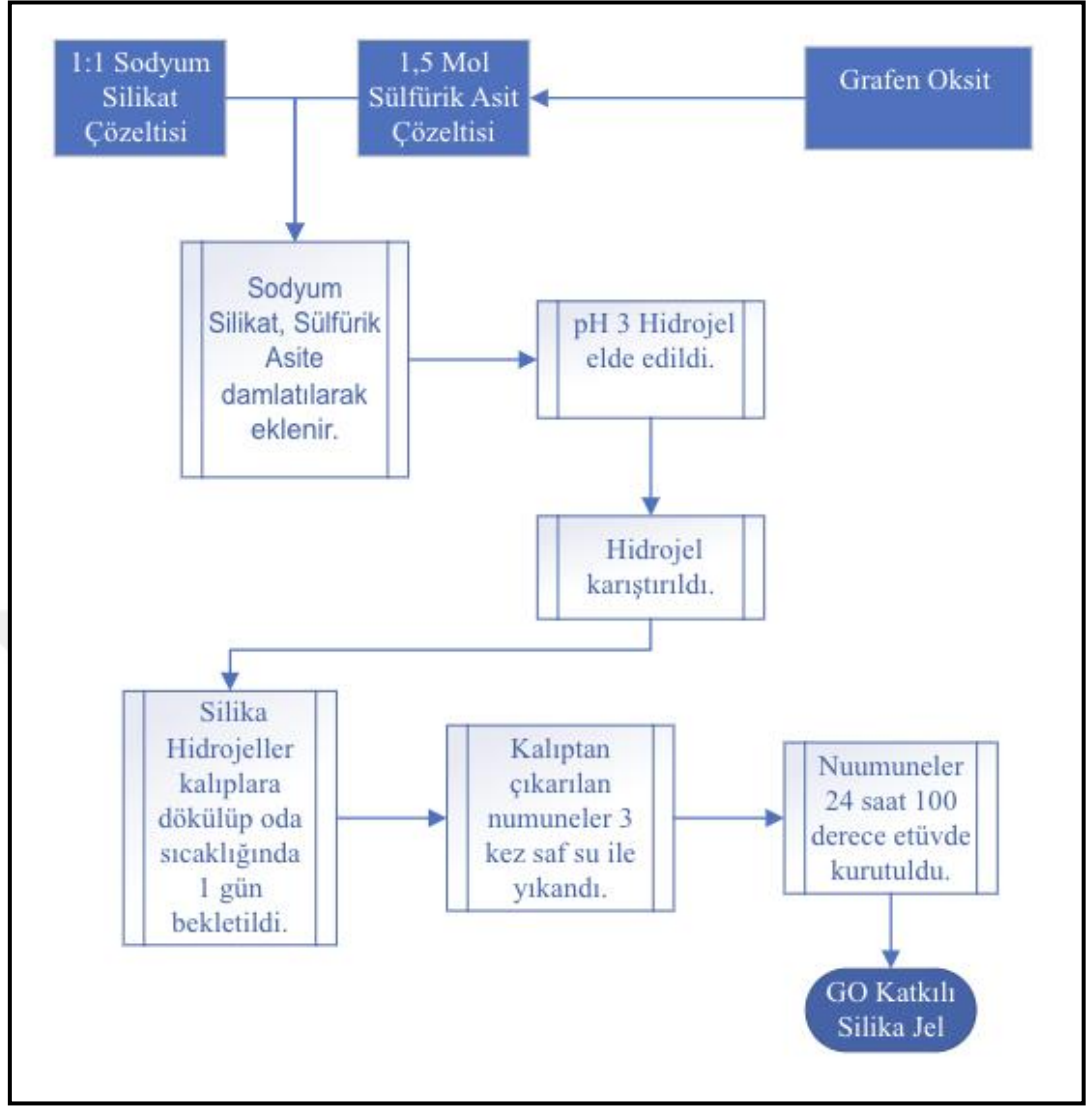
Şekil 4.9 : a) elyaf filtre ile GO'nun süzülmesi, b) süzme işlemi sonrası filtre üzerinde kalan GO.



Şekil 4.10: kurutulmuş GO.

4.2.3. Grafen Oksit Katkılı Silika Jel Üretimi

İdeal karışımı yapılabilmek için farklı denemeler yapılmıştır. En üretilebilir yöntem olarak silika jelin hidrojel aşamasında Grafen Oksit solüsyonunun eklenerek elde edilmiştir. Silika jel üretiminin hidrojel aşamasında pH 3 olmasıyla sodyum silikat ilavesi durduruldu. Grafen Oksit, Sodyum Silikatın ağırlığınca sırasıyla %0.5, %1, %2 olarak eklendikten sonra homojen karışım elde edilene kadar karıştırma işlemine devam edildi. Elde edilen homojen karışım oda sıcaklığında kalıplara döküldü. Daha sonra oda sıcaklığında 1 gün bekletilen numuneler kalıplardan çıkarılıp saf su ile 3 kez yıkandı. Yıkanan numuneler 1 gün boyunca 100 °C derecede etüvde kurutuldu. Nihai ürün Grafen Oksit katkılı Silika Jel üretildi. Şekil 4.11’da GO katkılı silika jel üretim şeması gösterilmiştir.

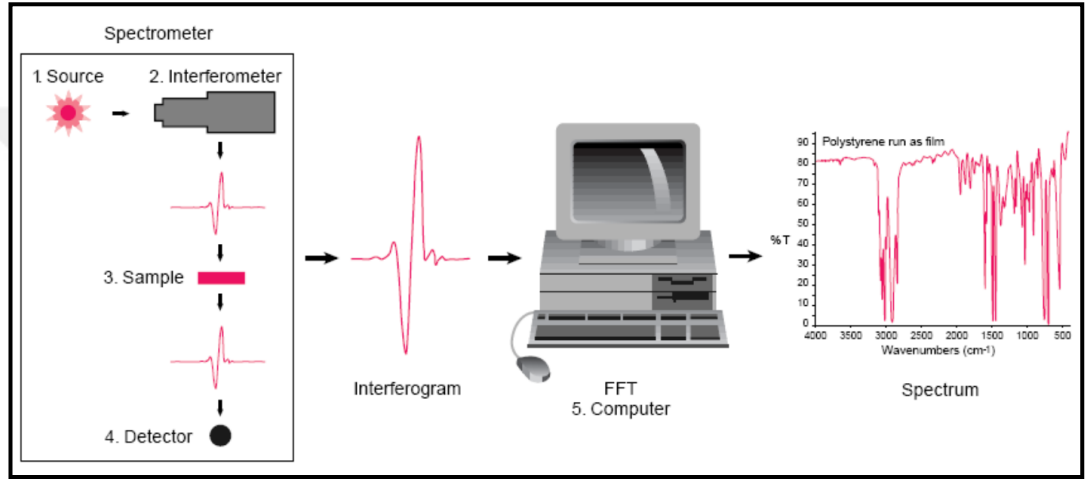


Şekil 4.11: Silika jel üretim şeması

4.2.4. FT-IR Karakterizasyonu

Fourier Dönüşümlü Infrared Spektroskopisi (FT-IR) sıkça tercih edilen spektroskopi tekniklerinden biridir. FT-IR analizi ile incelenen numunenin fonksiyonel ve kimyasal gruplarıyla birlikte spektrumları bilinen bir malzemeyle ne olduğu bilinmeyen malzemenin spektrumlarını karşılaştırılmasıyla bilinmeyen malzemenin tespiti yapılabilir [34]. IR spektroskopi, IR ışınının moleküller üstünde sağladığı titreşimlerin karakteristik frekans değerlerinin bulunması ile moleküler seviyede madde analizi yapılmasını sağlar. Titreşimler bağ açısına ve uzunluğuna bağlı olarak farklılık gösterebilir ve bu farklar frekans değerlerini etkiler. Fourier dönüşüm (FT) matematiksel bir hesaplama işlemidir. Bir sinyal fonksiyonunun zaman

serileri şeklindeki hesaplamalarının algoritmalarla matematiksel şekilde ifade edilebilir frekans spektrumuna çevrilmesidir. Kızıl ötesi spektroskopi cihazı temelde üç kısımdan oluşur: ışık kaynağı, algılayıcı (detektör) ve interferometre. Şekil 4.12’de çalışma şeması verilmiştir [36]. IR spektrumu görmek için numuneye IR ışığı gönderilir. Molekölün IR ışığını soğurabilmesi için, molekülün titreşimiyle birlikte molekülün dipol momentinde bir farklılık olması gerekir. Numuneye iletilen ışığın ne kadarının belirli bir enerjide soğurulduğu sonucuna bakılır. Soğurma spektrumunda sinyalin görüldüğü enerji, numuneye ait molekülün titreşim frekansını verir [35].



Şekil 4.12: Temsili olarak bir FT-IR sisteminin çalışma şeması.

Tez çalışması kapsamında üretilen grafen oksit ve silika jel ürünlerindeki fonksiyonel grupların belirlenmesi için FT-IR analizi yapılmıştır. Grafen oksit ve silika jel ürünlerinin FT-IR analizi Pavezyum Kimya firmasının arge laboratuvarında Bruker 1 194 6811Platinum Atr markalı cihaz kullanılarak gerçekleştirilmiştir. Şekil 4.13’de Kullanılan FT-IR cihazı gösterilmiştir.



Şekil 4.13: Kullanılan FT-IR cihazı.

4.2.5. Raman Karakterizasyonu

Raman spektroskopisi, grafen ve grafen türevi malzemelerin niteleyici analizi için en çok tercih edilen tekniklerden biridir. Raman spektroskopisi analizi ile grafen ve grafen türevi malzemelerin katman sayısı, kusurların varlığı ile birlikte grafen ve grafen türevi malzemelerin yapısıyla ilgili bilgi vermektedir. Raman spektroskopisi ile elde edilen D bandının pik değeri yapıda sp^3 hibritleşmesi yapan karbon atomlarının miktarı ile doğru orantılıdır. Bununla birlikte D bandı grafen oksit yapısı için tabakadaki kusur ve bozukluklar ile ilgili bilgi verir. Raman spektroskopisinde oluşan G bandı ise yapıdaki sp^2 hibritleşmesi yapan karbon atomlarının yığın halindeki düzenlenmesini göstermektedir. D ve G bantlarının yoğunlukları oranı ise yapıdaki düzensizliğin ölçüsüdür [16].

Tez kapsamında üretilen GO yapısı hakkında bilgi sahibi olmak amacıyla Raman spektroskopisi yapılmıştır. GO ürününün Raman spektroskopisi Sabancı Üniversitesi Nanoteknoloji Araştırma Ve Uygulama Merkezi Malzeme Karakterizasyon Laboratuvarında, Renishaw inVia Reflex Raman Microscope kullanılarak gerçekleştirilmiştir. Şekil 4.14'te kullanılan Raman cihazı gösterilmiştir [37].

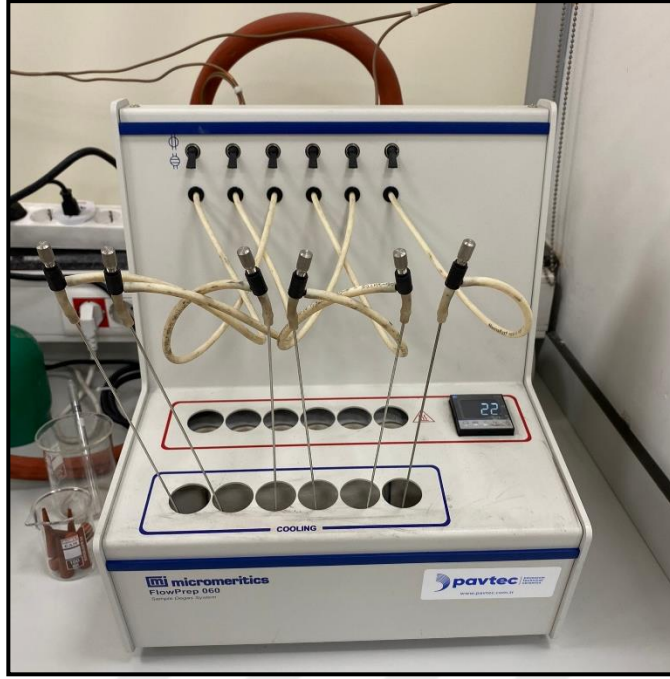


Şekil 4.14: Temsili kullanılan Raman cihazı.

4.2.6. BET Karakterizasyonu

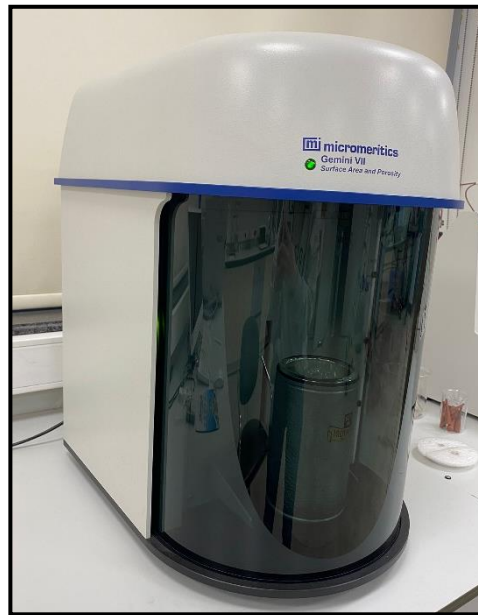
Bir adsorbentin en önemli özelliklerinden biri yüzey alanıdır. Geniş yüzey alanı, büyük adsorpsiyon kapasiteleri için tercih edilebilir. Fiziksel adsorpsiyon metoduyla, gözenekli toz veya katı numunelerin yüzey özelliklerinin belirlenmesinde en fazla kullanılan metotlardan biridir. Hesaplama işlemleri esnasında Brunauer Emmett ve Teller teorisi kullanılması sebebiyle bu teorinin sahiplerinin ilk harfleri olan BET ismi analiz sağlayan cihazların diğer ismi olmuştur [38].

Yüzey alanına bakılacak numunelerin gözenekleri nem ve diğer kontaminantlar ile kapalı olabilir. Bu sebeple numune ölçme işleminden önce gözeneklerin temizlenmesi gerekmektedir. Gözeneklerin bu kontaminantlardan temizlenmesine “degaz” işlemi denilmektedir. Kontaminantlardan arındırılan yüzeye ve açılan gözeneklere gaz moleküllerini tutunması hedeflenmektedir. Bu nedenle degaz işlemi temiz numune miktarı hesaplamada kritik öneme sahiptir. Şekil 4.15’te degaz işlemi gösterilmiştir [39].



Şekil 4.15: Kullanılan degaz cihazı.

Tez kapsamında üretilen silika jeller ve grafen oksit katkılı silika jellerin yüzey alanı hesaplanması amacıyla Pavezyum Kimya firmasında sıvı azot ortamında azot (N_2) gazı adsorpsiyonu tekniğine dayalı olarak katıların m^2/g olarak yüzey alanları Micromeritics Gemini VII cihazıyla ölçülmüştür. Degaz işlemi Micromeritics FlowPrep 060 cihazıyla yapılmıştır. Şekil 4.16’te kullanılan bet cihazı gösterilmiştir.



Şekil 4.16: Kullanılan bet cihazı.

4.2.7. SEM-EDS Karakterizasyonu

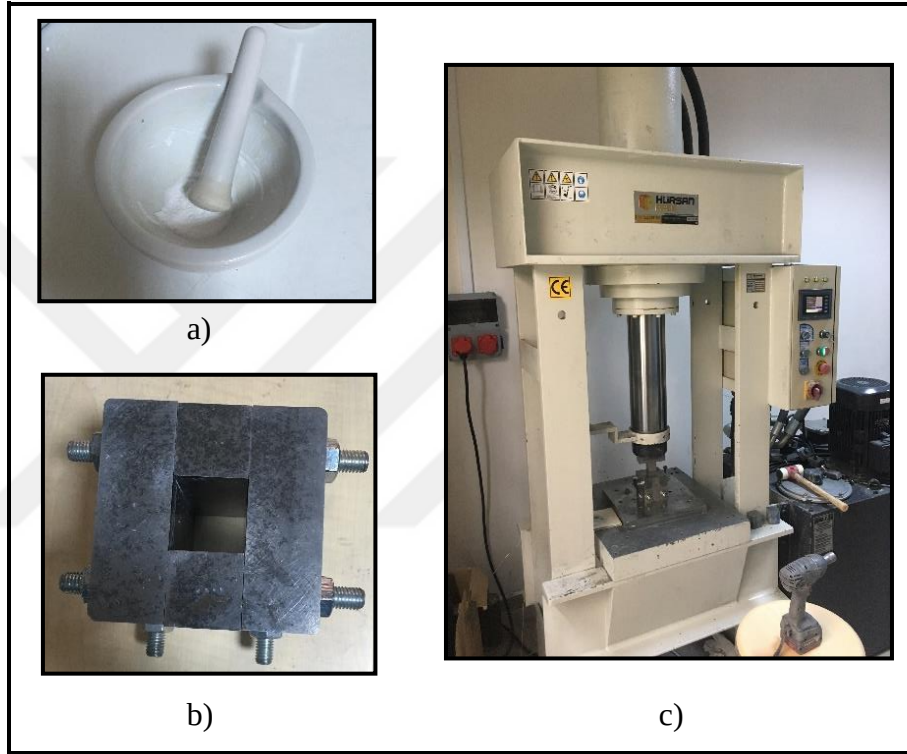
Tez çalışması kapsamında farklı oranlarda grafen oksit eklenmiş silika jel ürünlerinin morfolojisi hakkında bilgi sahibi olmak amacıyla SEM analizi gerçekleştirilmiştir. Şekil 4.17’de kullanılan SEM cihazının temsili görüntüsü gösterilmiştir. İncelenecek olan grafen oksit katkılı silika jel ürünlerinin görüntülerinin TÜBİTAK Marmara Araştırma Merkezi’nde JEOL 6510-LV JSM taramalı elektron mikroskobu cihazı kullanılarak gerçekleştirilmiştir.



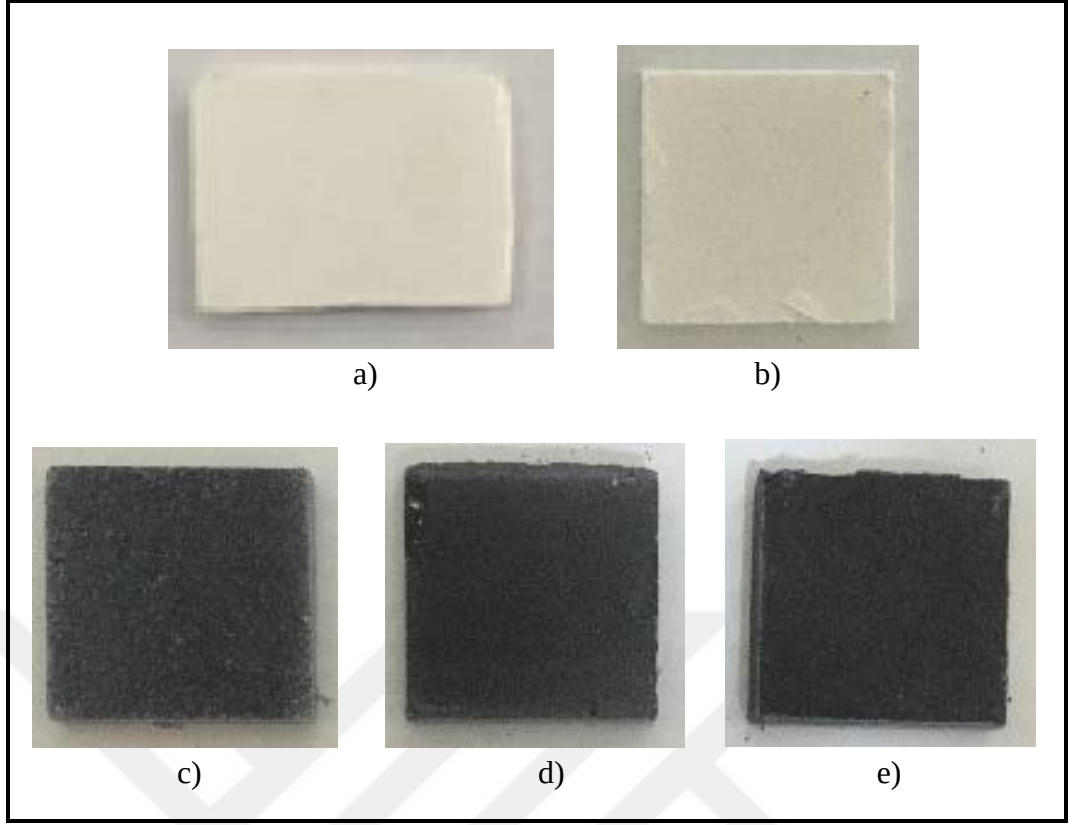
Şekil 4.17: Kullanılan SEM-EDS cihazı temsili görüntüsü.

4.2.8. Termal İletkenlik Karakterizasyonu

Ticari silika jel, bu çalışmada hazırlanmış saf silika jel, %0.5, %1, ve %2 grafen oksit katkılı silika jeller havanda toz haline getirilir ve RADWAG AS232 hassas terazide 5g tartılmıştır. Şekil 4.17’da kullanılan cihazlar gösterilmiştir. 5g’lık toz numuneler 3x3 kare çelik kalıba konur ve 400MPa basınç ile 4dk basılmıştır. Sıkıştırılmış silika jel ve kompozit plakalar şekil 4.19 ’da gösterilmiştir.

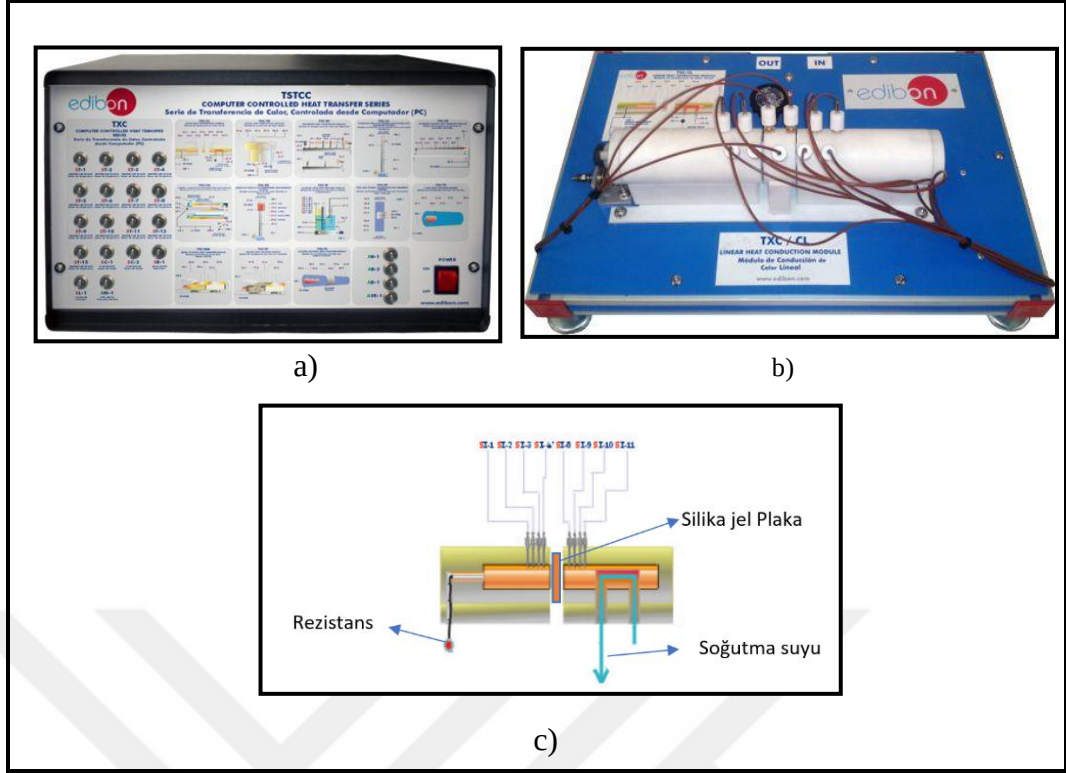


Şekil 4.18: a) numunelerin toz hale getirildiği havan, b) numunelerin koyulduğu kalıp, c) numunelerin kalıp halini alması için kullanılan basınç makinası.



Şekil 4.19: a) ticari silika jel, b) sentezlenen saf silika jel, c) %0,5 GO katkılı silika jel, d) %1 GO katkılı silika jel, e) %2 GO katkılı silika jel.

Hazırlanan plakaların efektif ısı iletkenlik ölçümü için Şekil 4.19'deki deney düzeneği kullanılmıştır. Isı iletim birimi TXC-CL elektriksel bir destek çerçeve üzerinde ısıtılan ve lineer modül içeren Edibon tarafından geliştirildi. Şekil 4.20'de gösterilen modül, ısı iletiminin doğrusal bir dizi deney gerçekleştirilmesi için tasarlanmıştır. Sabit sıcaklık bileşenlerini sürdürmek için modülün yan yüzlerinde su sirkülasyonu yapan bir soğutma sistemi mevcuttur.



Şekil 4.20: Doğrusal ısı aktarım deney düzeneği, a) elektronik konsol, b) doğrusal ısı aktarım ünitesi, c) termokulpların yerlerinin gösterimi.

Şekil 4.20.c)'de gösterildiği gibi doğrusal ısı aktarım setinde toplam 8 adet sıcaklık sensörü bulunmaktadır. Bunlardan dördü rezistans tarafında diğer dördü soğutma suyu tarafındadır. Hazırlanan plakalar iki modülün ortasına konur ve sıcaklıklar dengeye geldiğin denklem 1 yardımıyla efektif ısıl iletkenlik hesaplanır.

$$k = \frac{Q}{A} * \frac{t}{\Delta T} \quad (4.1)$$

Q : elektronik konsolda ayarlanan ısı gücü (W), ΔT : plakaların sıcak ve soğuk yüzey sıcaklık farkı, t : plaka kalınlığı ve A : plakaların yanal kesit alanıdır.

Doğrusal ısı aktarımı deney düzeneği ile silika jel plakaların efektif ısıl iletkenlik deney verileri aşağıdaki adımlar ile alınmıştır :

- Tüm sıcaklık sensörlerini, elektronik konsol üzerinde uygun yerlerine takın ve bağlantılarını kontrol edin

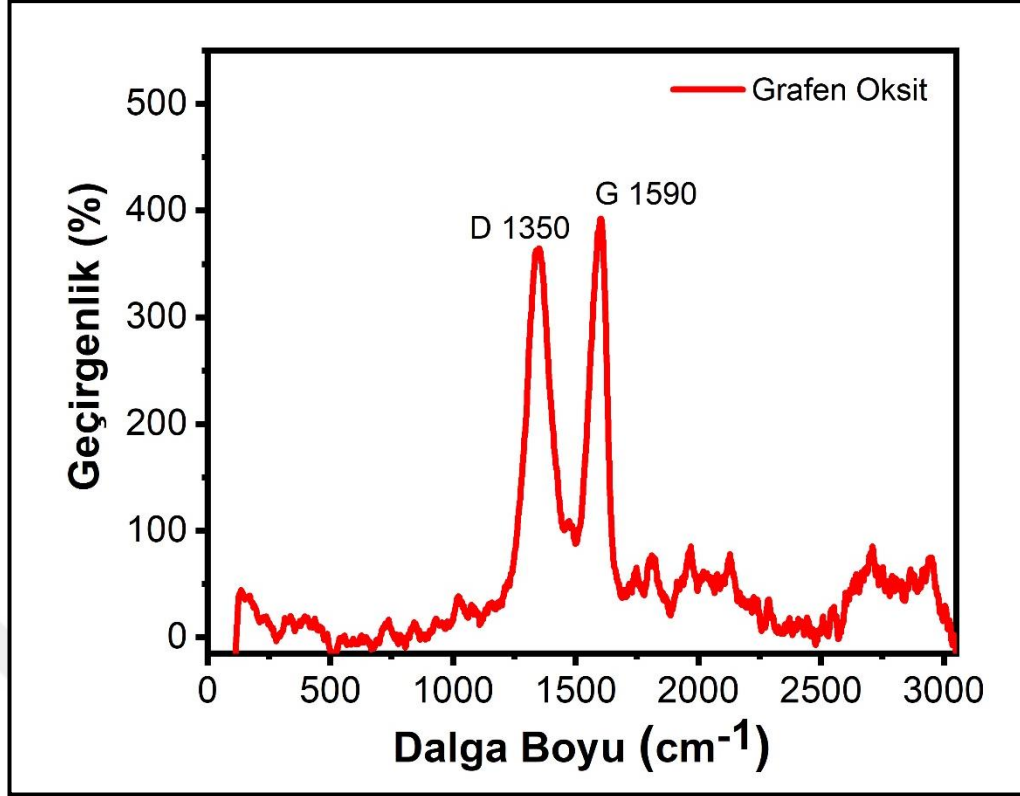
- Ünitadaki soğutma suyunun bağlantılarını kontrol edin ve sirkülasyonun olduğunu kontrol edin
- Elektrik rezistansın gücünü (W) hangi ölçüde çalışılacaksa ayarlayın
- Veriler, ısı transferi sağlandığı zaman T1-T8 sıcaklıkları kaydedilir ve efektif ısıl iletkenlik standart sapmasını hesaplanması için deney 3 kere tekrarlanır.



5. BULGULAR

5.1. Raman Analizi

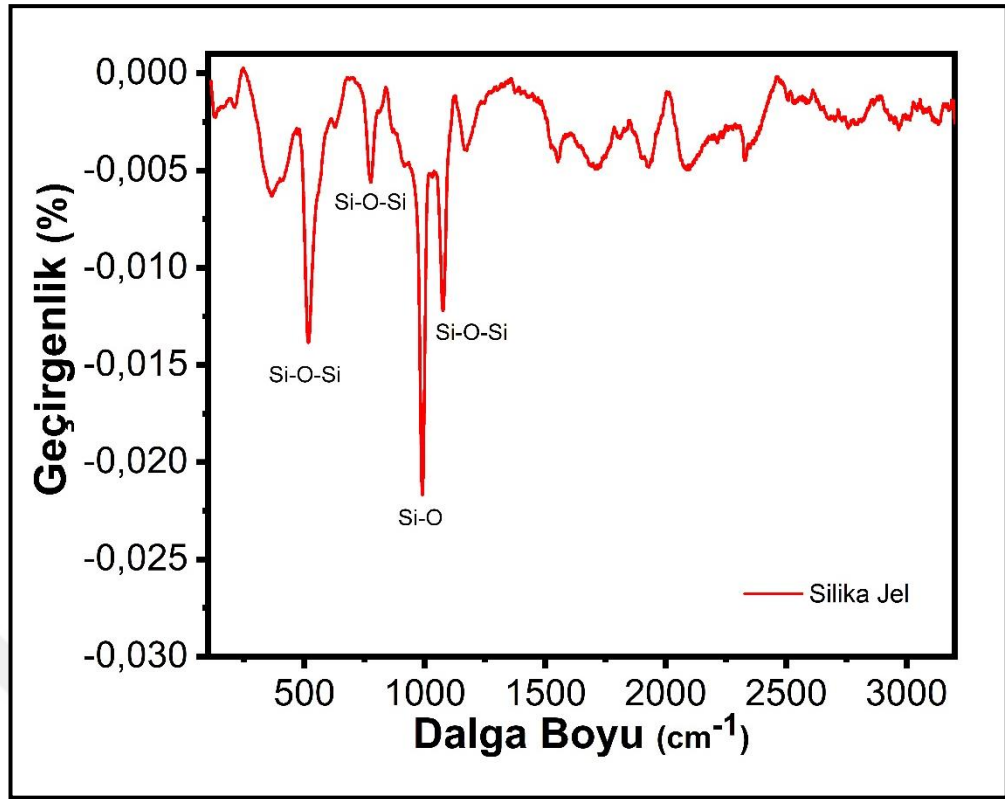
Grafen ve türevlerini niteleyici analizi için fazlaca tercih edilen tekniklerden olan Raman Spektroskopisi analizi grafenin katman sayısı, kusurların varlığı ile birlikte grafen ve türevlerinin yapısıyla ilgili bilgi vermektedir. GO, Raman spektrumunda sırasıyla D ve G zirveleri olarak bilinen 1350 cm^{-1} ve 1590 cm^{-1} 'de iki zirveye sahiptir. D zirvesi, genellikle oksidasyon işlemi tarafından, üretilen GO'nun yapısındaki düzensizlikleri ve oksidasyonu hakkında bilgi verir. G zirvesi ise düzlemdeki simetri titreşimlerinden üretilir ve tüm sp^2 hibritleştirilmiş nanokarbonlarda gözlemlenir [41]. G pikinin şiddeti (I_G) düzenli yapıların şiddet değerini, D pikinin şiddeti (I_D) düzensiz yapıların derecesini göstermektedir. Literatürde karbon esaslı sentezlerin I_D/I_G oranı genellikle 0,65-1 arasında olduğu gözükmemektedir. I_D/I_G oranının artış azalış nedenleri hala tartışılmaktadır, ancak I_D/I_G oranının her zaman kusurların derecesi ile orantılı olmadığı deneylerle kanıtlanmıştır [41]. Araştırmalar genel olarak I_D/I_G oranında artışın 2 sebebi olduğu üzerinde durmuştur. Bunlardan ilki düzensizlikteki artışın iki kusur noktasındaki mesafe 4 nm den az olduğunda D zirvesinin azaldığına, ikincisi ise azalan oksijen oranına işaret eder [41]-[43]. Yapılan Raman analizinde sırasıyla D ve G zirveleri 1350 cm^{-1} ve 1590 cm^{-1} 'de bulunmuştur. I_D/I_G oranı 0,90 olarak bulunmuştur. Şekil 5.1'de grafen oksite ait Raman Spekturumu verilmiştir.



Şekil 5.1: Grafen oksite ait Raman Spekturumu.

5.2. FT-IR Analizi

Grafen oksit, silika jel ve grafen oksit katkılı silika jel için ayrı ayrı FT-IR spektrumlarına bakılmıştır. Silika jelin FT-IR spektrumları 470-810 cm⁻¹ civarında gözüken dalga pikleri Si-O-Si bağlarını 980 cm⁻¹ deki pik değerinin Si-O bağlarını 1080 cm⁻¹ deki pik değeri Si-O-Si bağları tüm bu pik değerleri ile silika jelin oluşturulduğunu ortaya koyulmaktadır [44]. Şekil 5.2’de silika jelin FT-IR spektrumları gösterilmiştir.

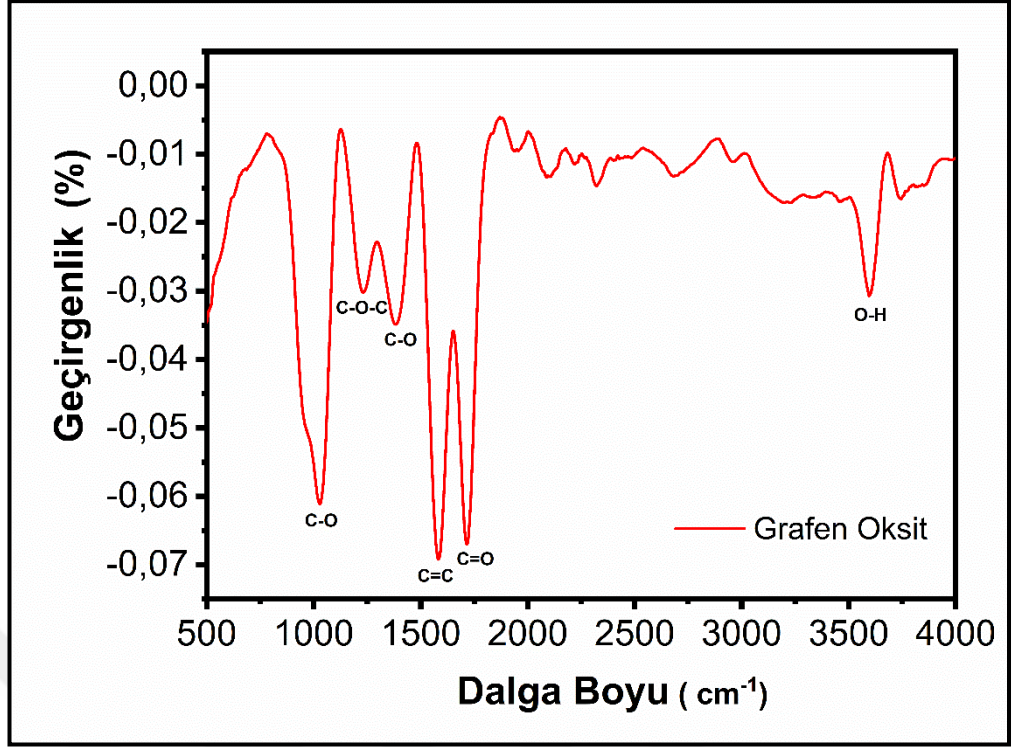


Şekil 5.2 Silika jelin FT-IR spektrumları.

Sentezlenen GO'nun FT-IR spekturumları şekil 5.3'te gösterilmiştir. GO sentezi sonrasında oluşması gereken FT-IR pik değerleri Tablo 5.1'de gösterilmiştir. Şekil 5.3'e bakıldığında C=O gerilmesi 1652 cm^{-1} de, O-H gerilmeleri 3650 cm^{-1} de C-O gerilmesi 1152 cm^{-1} de ve C-O-C gerilmesi 1242 cm^{-1} de gözlemlenmiştir. Tüm bu gerilmeler grafen oksit oluştuğunu ortaya koymaktadır [16], [45].

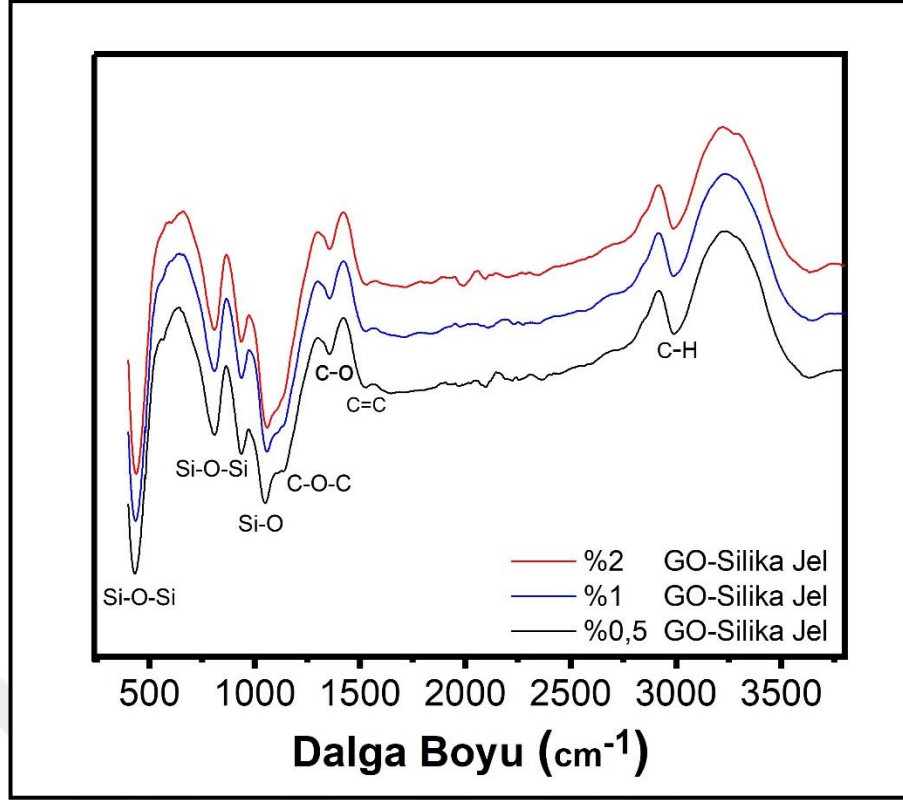
Tablo 5.1 Karbon atomlarının gerilme titreşimleri ve dalga sayıları.

Gerilme Titreşimleri	Dalga Sayıları (cm^{-1})
C-N	3300-3500
C-OH	~3300 (yayvan bant)
C-H (aromatik)	3000-3100
C-H (alifatik)	2850-2990
C=O	1700-1740
C=C	1640-1670
C-O-C	~1250
C-O	~1100



Şekil 5.3: GO'nun FT-IR spektrumları.

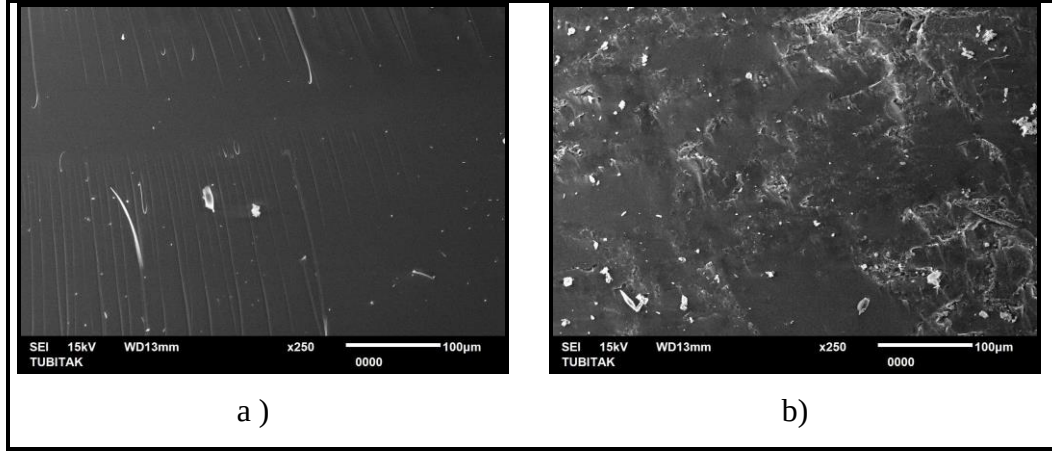
Yüzdece 0.5, 1, 2 oranlarında grafen oksit katkılı silika jellerin FT-IR spektrumları incelendiğinde karbon ve silanol bağlarının her 3 numunede de tutarlı bir şekilde olduğu gözlemlenmiştir. Şekil 5.4'te GO katkılı silika jellerin FT-IR spektrumları verilmiştir.



Şekil 5.4: GO katkılı silika jellerin FT-IR spektrumları

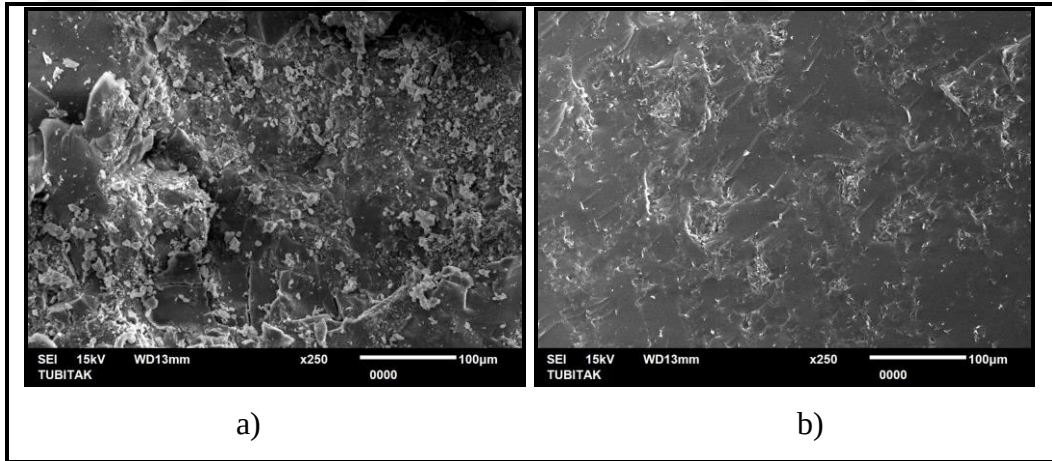
5.3. SEM – EDS Analizi

Şekil 5.5 ve 5.6 saf silika jel ve GO katkılı silika jellerin SEM elektron mikroskobu ile 250 büyütme ile çekilmiş mikro fotoğrafları gösterilmektedir. Saf silika jelin mikro fotoğrafında (Şekil 5.5.a) homojen bir yapıya sahip olduğu görülmektedir. %0.5GO katkılı silika jelin Sem görüntüsünde GO oksit partikülleri gözlemlenebilmektedir. Şekil 5.5b de görüldüğü üzere GO silika jel içinde homojen dağıldığını söylemek mümkündür.



Şekil. 5.5: a) Saf silika jelin SEM görüntüsü. b) % 0,5 GO katkılı silika jelin SEM görüntüsü.

Şekil 5.6’da %1 ve %2 GO katkılı silika jellerin 250 büyütmeli SEM görüntüleri gösterilmektedir. Şekil 5.5.b)’de olduğu gibi GO, silika jel üzerinde ayrı yapılar olarak görünmektedir. Her iki şekilde görüldüğü üzere GO yüzdesinin artmasına rağmen homojen bir dağılım görülmektedir ve topaklanma görüntülerine genel olarak rastlanmamaktadır.



Şekil 5.6: a) % 1 GO katkılı silika jelin SEM görüntüsü.. b) % 2 GO katkılı silika jelin SEM görüntüsü.

GO katkılı silika jellerin SEM-EDS verilerine bakıldığında GO oranı arttıkça yapıda bulunan karbon miktarının da aynı oranda arttığı görülmektedir. Tablo 5.2’de GO katkılı silika jellerin SEM-EDS sonuçları verilmiştir. GO katkılı silika jellerde C elementi görülmektedir. Silika jelin yapısında bulunan Si ve Na elementleri de EDS taramasında belirlenmiştir. Düşük miktarlarda olsa da EDS taramalarından S elementine rastlanması numunelerden NaSO₄’ün yıkamalar sonucunda tam olarak arındırılmadığı göstermektedir.

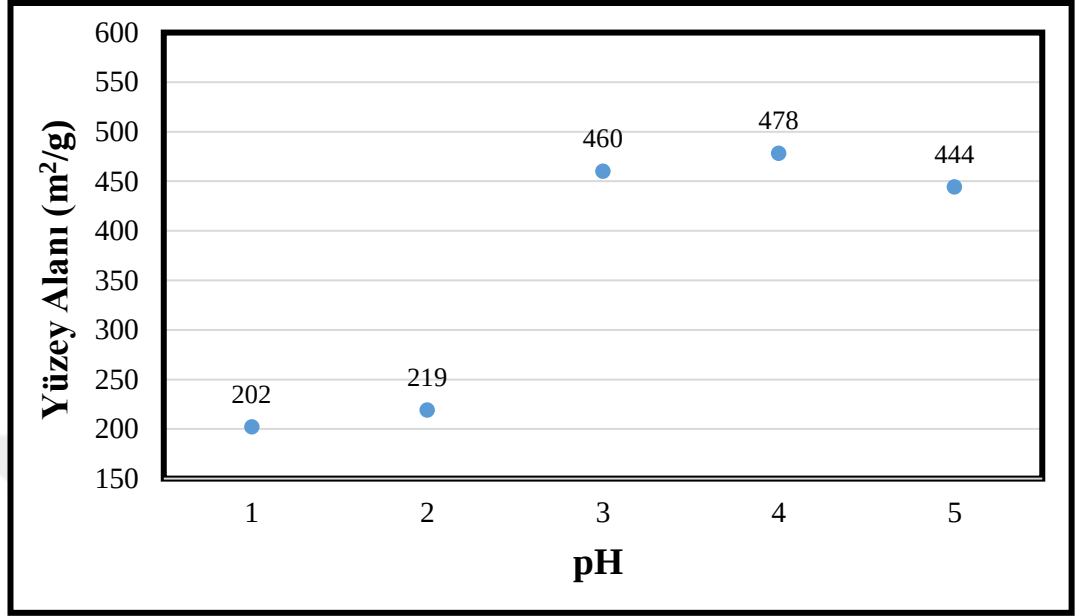
Tablo 5.2: GO katkılı silika jellerin SEM-EDS sonuçları.

	Element	Ağırlık%	Atomik%
%0.5 GO-SG	C K	9.46	15.13
	O K	43.76	52.55
	Na K	3.82	3.19
	Si K	39.91	27.30
	S K	3.05	1.83
	Toplam	100	
%1 GO-SG	Element	Weight%	Atomic%
	C K	9.93	15.92
	O K	42.42	51.05
	Na K	3.54	2.96
	Si K	42.22	28.94
	S K	1.88	1.13
	Toplam	100	
%2 GO-SG	Element	Weight%	Atomic%
	C K	12.16	18.89
	O K	44.96	52.43
	Na K	2.86	2.32
	Si K	37.39	24.84
	S K	2.62	1.52
	Toplam	100	

5.4. BET Analizi

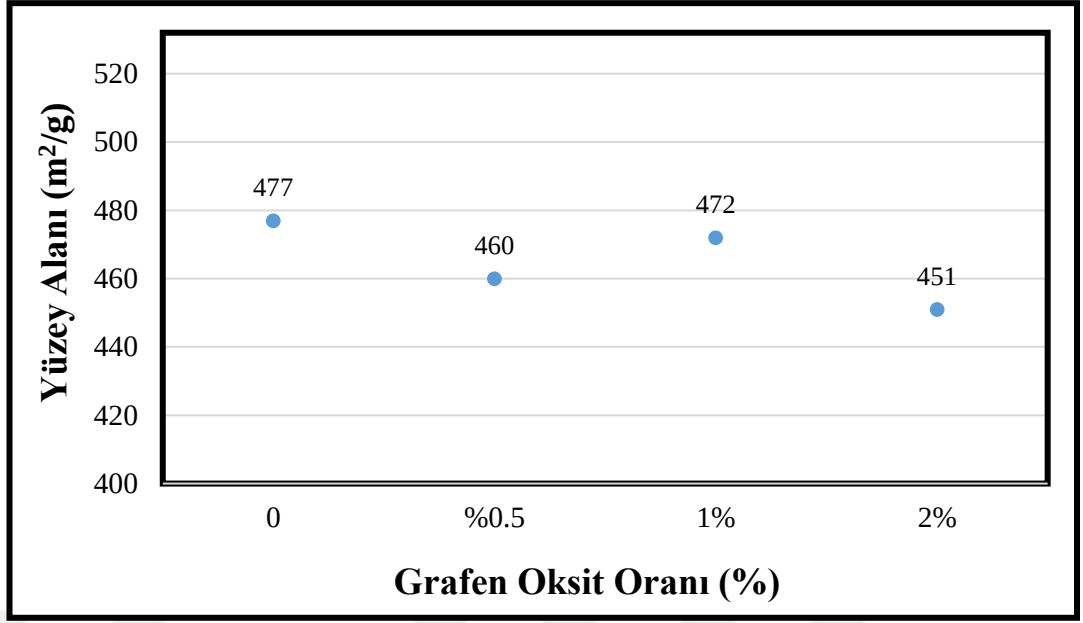
Bet analizleri iki aşamada gerçekleştirilmiştir. Öncelikli olarak farklı pH değerine sahip 100 °C kurutulmuş silika jellerin yüzey alanları ölçüldü. Yüzey alanı pH 1-2-3-4-5 değerlerinde sırasıyla 202-219-460-478-444 m²/g olarak bulundu. Literatürde pH’ın silika jele olan etkisinin incelendiği benzer çalışmalarda optimum değer pH

3-4 aralığında elde edildiği görülmektedir [22], [23]. Yüzey alanlarının pH değerine göre verileri Şekil 5.7’de sunulmuştur.



Şekil 5.7: Silika jellerin pH değerlerine göre yüzey alanları.

Grafen oksitin, dolgu malzemesi olarak silika jellere eklenmesiyle yüzey alanlarındaki değişimin tespiti için pH 3 olarak üretilmiş silika hidrojele içerisindeki sodyum silikatın % 0.5, 1, 2 oranlarında grafen oksit eklenmiş numunelere analiz yapılmıştır. Sırasıyla pH 3 silika jel ve yüzde 0,5-1-2 oranlarındaki grafen oksit katkı silika jellerin yüzey alanları 477-460-472-451 m²/g olarak bulundu. Yüzey alanlarının grafen oksit katkısına göre değişimi şekil 5.8’de sunulmuştur.



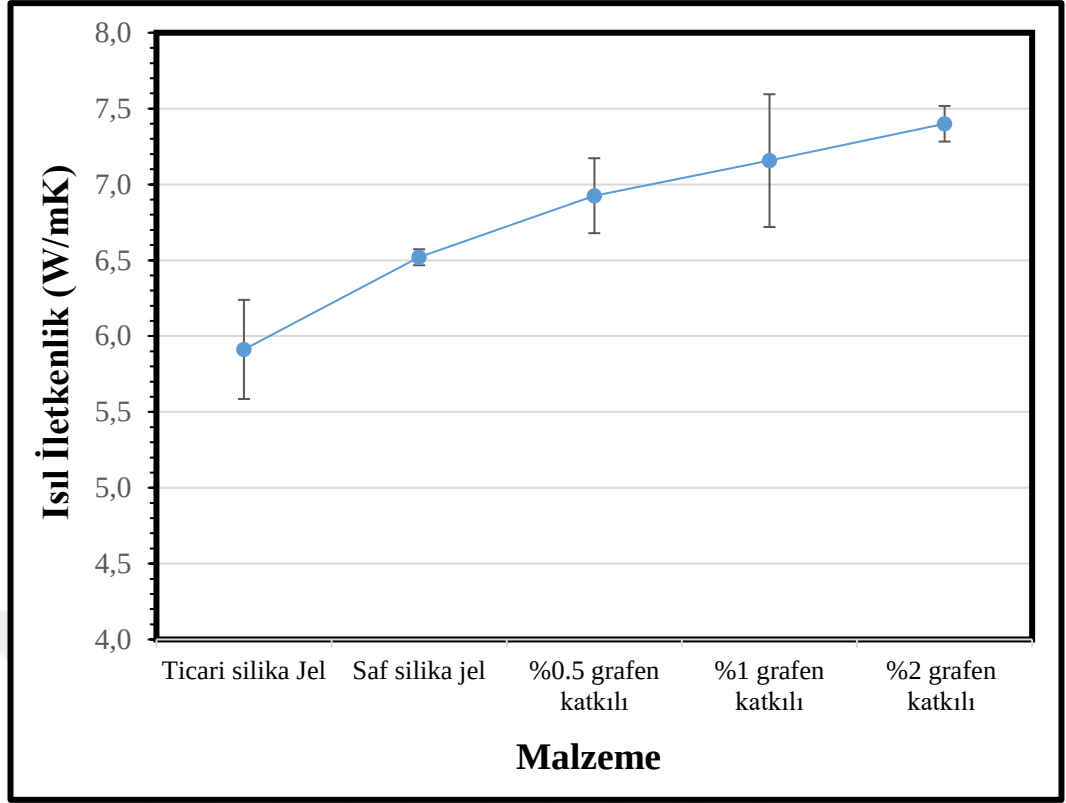
Şekil 5.8: Silika jel ve GO katkılı silika jellerin yüzey alanları.

5.5. Termal İletkenlik Analizi

Ticari silika Jel, üretilen saf silika jel ve yüzde 0.5, 1, 2 GO katkılı silika jellerin termal iletkenlikleri ölçüldü sırası ile 5.9-6.5-6.9-7.2-7.4 W/mk olarak bulunmuştur. X. Zheng ve arkadaşlarının silika jelin termal iletkenliğinin artırması amacıyla yaptıkları çalışmalarda silika jel grafit kompoziti yaptılar ve yaklaşık olarak silika jelin termal iletkenliğini 220 kat arttırdıklarını bildirdiler [46]. Tablo 5.3'te ticari silika jel, saf ve grafen oksit katkılı silika jellerin deneysel verileri sunulmuştur. Şekil 5.9'da ticari silika jel, saf ve grafen oksit katkılı silika jellerin ortalama ısı iletkenlik grafiği gösterilmiştir.

Tablo 5.3: ticari silika jel, saf ve grafen oksit katkılı silika jellerin deneysel verileri.

Malzeme	Plaka kalınlık (m)	Q (W)	T _{sıcak} yüzey	T _{soğuk} yüzey	k (W/mK)	Ortalama k	Standart Sapma
Ticari silika Jel	0.00355	30	76.0	38.0	5.7	5.9	0.33
		41	94.0	41.5	5.7		
		48	97.0	42.5	6.4		
Saf silika jel	0.0033	31	71.7	39.5	6.5	6.5	0.05
		40	86.0	44.5	6.5		
		50	96.0	45.0	6.6		
%0.5 grafen katkılı	0.0038	30	74.3	39.0	6.6	6.9	0.25
		40	82.7	39.0	7.1		
		50	96.0	41.5	7.1		
%1 grafen katkılı	0.0035	31	73.0	40.0	6.7	7.2	0.44
		40	82.7	42.5	7.1		
		49	88.0	43.0	7.7		
%2 grafen katkılı	0.0038	31	68.0	37.0	7.2	7.4	0.12
		42	83.0	42.5	7.5		
		50	93.0	44.5	7.5		



Şekil 5.9: Ticari silika jel, saf ve grafen oksit katkılı silika jellerin ortalama ısıl iletkenlik grafiğı.

6. SONUÇLAR

Bu tez çalışması kapsamında adsorpsiyonlu ısı pompalarında kullanılan silika jellerin termal iletkenliği arttırılması amacıyla yeni bir malzeme geliştirilmesi amaçlanmıştır. Yöntem olarak son yıllar oldukça ilgi çeken grafenin bir türevi olarak literatürde yer grafen oksitin farklı oranlarının, silika jelin yapısına eklenmesi belirlenmiştir. İlk olarak silika jel üretiminde hangi aşamada grafen oksit eklenmesi gerektiğinin tespiti için silika jel sentezi yapıp daha sonra grafen oksit sentezi ve son olarakta grafen oksit katkılı silika jel sentezi yapılmıştır.

Yapılan çalışmada sırasıyla pH 1-2-3-4 ve 5 değerlerinde silika jeller sentezlendi. Sentezler esnasında pH 1 ve 2 de hidrosollerin kalıplara dökülüp hidrojele dönüşmesinin çok uzun sürdüğü ve diğer pH 3-4-5 e göre yüzey alanlarının çok daha düşük olduğu BET analizi bulgularında görülmüştür. Yine pH 5 değerinde üretilen silika jellerde de hidrosol aşamasından hidrojel aşamasına geçişin çok hızlı olduğu ve grafen oksit eklemeye uygun olmadığı tespit edilmiştir. Optimum yüzey alanı verileri pH 3-4 değerlerinde elde edilmesinin yanında hidrosol aşamasından hidrojel aşamasına geçiş sürecinin grafen oksit eklemeye uygun olduğu tespit edildi. Yapılan silika jel sentezinin FT-IR sonuçlarına bakılarak başarılı olduğu görüldü.

GO değiştirilmiş Hummers yöntemi kullanılarak elde edildi. Sentez Raman ve FT-IR analizleri ile karakterize edilip başarılı olduğu görüldü. Yapılan çalışmalar esnasında GO'nun üretim maliyetinin çok düşük olduğu fakat sürecin büyük miktarlarda GO üretme uygun olmadığı düşünülmektedir.

GO silika jel içerisinde bulunan sodyum silikatın ağırlıkça %0.5, 1 ve 2 oranlarında katılarak 3 farklı oranda GO katkılı silika jel sentezlendi. Sentezin FT-IR ve SEM-EDS analizleri ileri başarılı olduğu görüldü. Yapılan BET analizlerinde ise GO'nun silika jellerin yüzey alanına kayda değer bir etkisinin olmadığı görülmüştür. Termal iletkenlik testlerinde ise GO katkılı silika jellerin ticari silika jele göre termal iletkenliği %0.5 için %17, %1 için %22 ve %2 için de %25.4 arttırdığı görülmüştür.

Bu çalışma da ısı pompalarında kullanılan silika jel için grafen ve türevlerinin uygun dolgu malzemesi olduğu görülmüştür. Üretim süreci daha zor ve daha pahalı olsa da ilerleyen süreçlerde daha uygun üretim yöntemleriyle oksijen oranı daha düşük olan indirgenmiş grafen oksitin veya grafenin silika jellerde dolgu malzemesi olarak kullanılıp ısı pompalarının performanslarını çok daha arttıracakları düşünülmektedir.

KAYNAKLAR

- [1] Özcan Ş. (2015), “Kimyasal yöntemlerle grafen ve grafen oksit üretimi ve Li-hava pil uygulamaları”, Yüksek Lisans Tezi, Sakarya Üniversitesi.
- [2] Kucinskis G. Bajars G. Kleperis J. (2013). Graphene in lithium ion battery cathode materials: A review. *Journal of Power Sources*, 240, 66-79.
- [3] Compton O. C. Nguyen S. T. (2010). Graphene oxide, highly reduced graphene oxide, and graphene: versatile building blocks for carbon-based materials. *small*, 6(6), 711-723.
- [4] Ahmad H. Fan M. Hui, D. (2018). Graphene oxide incorporated functional materials: A review. *Composites Part B: Engineering*, 145, 270-280.
- [5] Demir H. Mobedi M. Ülkü S. (2005). Adsorpsiyonlu Isı Pompaları. VII. Ulusal Tesisat Mühendisliği Kongresi, TESKON, 23-26.
- [6] Tekelioğlu Ö. (2010), “Cyanex 923 immobilize edilmiş sol jel silika ile sulardaki Cr(VI)'nın giderilmesi”, Yüksek Lisans Tezi, Selçuk Üniversitesi
- [7] Yıldırım Z. E. (2011), “A study on isotherm characteristics of adsorbent-adsorbate pairs used in adsorption heat pumps. *Izmir Institute of Technology*”
- [8] Gediz İliş G. (2012), “An experimental and numerical study on heat and mass transfer in adsorbent bed of an adsorption heat pump”, Doktora Tezi, İzmir Yüksek Teknoloji Enstitüsü
- [9] Akkaya G. (2012), “Sulu çözeltiden bazı boyarmadde ve ağır metallerin adsorpsiyonu için çeşitli bitkisel atıklardan yeni tür biyosorplayıcılar hazırlanması ve karakterize edilmesi”, Doktora Tezi, Dicle Üniversitesi.
- [10] Dinibütün Katip N. (2016), “Adsorpsiyonlu ısı pompa sistemlerinde alternatif malzemelerle gaz adsorpsiyonunun fizikokimyasal parametrelerinin belirlenmesi”, Yüksek Lisans Tezi, Uludağ Üniversitesi.
- [11] Dikmen Z. (2015), “Magnetik olarak modifiye edilen zeolitlerin hazırlanması ve bazı fiziksel özelliklerinin incelenmesi”, Doktora Tezi, Anadolu Üniversitesi
- [12] Ülkü S. (1991), Heat and mass transfer in adsorbent beds. *Convective Heat and Mass Transfer in Porous Media*, 695-724.
- [13] Srivastava N. C. Eames I. W. (1998), A review of adsorbents and adsorbates in solid–vapour adsorption heat pump systems. *Applied thermal engineering*, 18(9-10), 707-714.
- [14] Kara D. Fisher A. (2012), Modified silica gels and their use for the preconcentration of trace elements. *Separation & Purification Reviews*, 41(4), 267-317.

- [15] Demir H. (2008), “An experimental and theoretical study on the improvement of adsorption heat pump performance”, Doktora Tezi, İzmir Yüksek Teknoloji Enstitüsü.
- [16] Yazıcı M. Tiyek İ. Ersoy M. S. Alma M. H. Dönmez U. Yıldırım B. Yıldız K.(2016), Modifiye Hummers Yöntemiyle Grafen Oksit (GO) Sentezi ve Karakterizasyonu. Gazi University Journal of Science Part C: Design and Technology, 4(2), 41-48.
- [17] Ersoy M. S. Dönmez U. Yıldız K. Salan T. Yazıcı M. Tiyek İ. Alma M. H. (2015). Graphene applied textile materials for wearable e-textiles. In 5th International Istanbul Textile Congress (pp. 82-86).
- [18] Park S., Ruoff R. S. (2009), Chemical methods for the production of graphenes. Nature nanotechnology, 4(4), 217-224.
- [19] Ji X. Cui L. Xu Y. Liu J. (2015), Non-covalent interactions for synthesis of new graphene based composites. Composites Science And Technology, 106, 25-31.
- [20] Usha Kiran N. Dey S. Singh B. P. Besra L. (2017), Graphene coating on copper by electrophoretic deposition for corrosion prevention. Coatings, 7(12), 214.
- [21]. Web 1, (2022),), <https://shop.nanografi.com.tr/blogrifi/grafen-oksit-ve-indirgenmis-grafen-oksit-arasindaki-farklar-nelerdir/> (Erişim Tarihi: 10/12/2022).
- [22] Ülkü S. Balköse D. Baltacıoğlu H. (1993), Effect of preparation pH on pore structure of silica gels. Colloid and Polymer Science, 271(7), 709-713
- [23] Chung T. W. Yeh T. S. Yang T. C. K., (2001), Influence of manufacturing variables on surface properties and dynamic adsorption properties of silica gels. Journal of non-crystalline solids, 279(2-3), 145-153.
- [24] Park S. Ruoff R. S. (2009), Chemical methods for the production of graphenes. Nature nanotechnology, 4(4), 217-224.
- [25] Menchaca-Campos C. García-Pérez C. Castañeda I. García-Sánchez M. A. Guardián R. Uruchurtu J. (2013), Nylon/Graphene oxide electrospun composite coating. International Journal of Polymer Science, 2013.
- [26] Marcano D. C. Kosynkin D. V. Berlin J. M. Sinitskii A. Sun Z. Slesarev A. Tour J. M. (2010), Improved synthesis of graphene oxide. ACS nano, 4(8), 4806-4814.
- [27] Topçu A. A. (2012), “A green pathway for the production of chemically exfoliated graphene sheets with the assistance of microwave irradiation”, Doktora Tezi, Koç Üniversitesi.

- [28] CANBAY C. A., Nihan Ü. (2020), PVA/GO ve PVA/rGO Polimerik Nanokompozit Malzemelerin Üretimi ve Karakterizasyonu. Fırat Üniversitesi Fen Bilimleri Dergisi, 32(2), 53-60.
- [29] Hou Y. Lv S. Liu L. Liu X. (2020), High-quality preparation of graphene oxide via the Hummers' method: understanding the roles of the intercalator, oxidant, and graphite particle size. *Ceramics International*, 46(2), 2392-2402.
- [30] Chen J. Li L. (2020), Effect of oxidation degree on the thermal properties of graphene oxide. *Journal of Materials Research and Technology*, 9(6), 13740-13748.
- [31] Yoo M. J. Park H. B. (2019), Effect of hydrogen peroxide on properties of graphene oxide in Hummers method. *Carbon*, 141, 515-522.
- [32] Lv Y. Zhou D. Yang X. Liu X. Li X. Zhang G. (2019), Experimental investigation on a novel liquid-cooling strategy by coupling with graphene-modified silica gel for the thermal management of cylindrical battery. *Applied Thermal Engineering*, 159, 113885.
- [33] Li M. Tang S. Zhao Z. Meng X. Gao F. Jiang S. Feng C. (2020), A novel nanocomposite based silica gel/graphene oxide for the selective separation and recovery of palladium from a spent industrial catalyst. *Chemical Engineering Journal*, 386, 123947.
- [34] Dervin S. Lang Y. Perova T. Hinder S. H. Pillai S. C. (2017), Graphene oxide reinforced high surface area silica aerogels. *Journal of Non-Crystalline Solids*, 465, 31-38.
- [35] Web 2, (2022),), <https://acikders.ankara.edu.tr> (Erişim Tarihi: 25/12/2022).
- [36] Clemente Villalba J. (2017), “Estudio de quelados de glicina mediante espectroscopía” FTIR Yüksek Lisans Tezi, Universitat Politècnica de Catalunya.
- [37] Web 3, (2023),), <https://www.renishaw.com/en/invia-inspect-confocal-raman-microscope--45378> (Erişim Tarihi: 27/12/2022).
- [38] Web 4, (2022),), <https://depo.btu.edu.tr> (Erişim Tarihi: 18/12/2022).
- [39] Hwang N. Barron A. R. (2011), BET surface area analysis of nanoparticles. The Connexions project, 1-11.
- [40] Web 5, (2022),), <https://www.jeol.com/products/scientific/sem/JSM-6510series.php> (Erişim Tarihi: 18/12/2022).

- [41] Eckmann A. Felten A. Mishchenko A. Britnell L. Krupke R. Novoselov K. S. Casiraghi C (2012), Probing the nature of defects in graphene by Raman spectroscopy. Nano letters, 12(8), 3925-3930.
- [42] Wu J. B. Lin M. L. Cong X. Liu H. N. Tan P. H. (2018),. Raman spectroscopy of graphene-based materials and its applications in related devices. Chemical Society Reviews, 47(5), 1822-1873.
- [43] Ferreira E. M. Moutinho M. V. Stavale F. Lucchese M. M. Capaz R. B. Achete C. A., Jorio A. (2010), Evolution of the Raman spectra from single-, few-, and many-layer graphene with increasing disorder. Physical Review B, 82(12), 125429.
- [44] Top A. Akdeniz Y. Ulutan S. Balköse D. (2018). An Investigation of Kinetic and Equilibrium Behavior of Adsorption of Methylene Blue on a Silica Hydrogel. In Physical Chemistry for Engineering and Applied Sciences (pp. 25-46). Apple Academic Press.
- [45] Kaya G. (2019), “Mikroalga desteği ile indirgenmiş grafen oksit sentezinde üretim parametrelerinin etkisinin incelenmesi”, Yüksek Lisans Tezi, Mersin Üniversitesi.
- [46] Zheng X. Wang L. W. Wang R. Z. Ge T. S. Ishugah T. F. (2014), Thermal conductivity, pore structure and adsorption performance of compact composite silica gel. International Journal of Heat and Mass Transfer, 68, 435-443.

ÖZGEÇMİŞ

Ali GÜN, 2012 yılında başladığı Osmaniye Korkut Ata Üniversitesi Mühendislik Fakültesi İnşaat Mühendisliği Bölümünü 2016 yılında başarıyla tamamladı. 2020 Yılında Gebze Teknik Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Makine Mühendisliği Anabilim Dalında Yüksek Lisans eğitime başladı. 2019 Yılından itibaren Deniz Harp Okulu'nda Deniz Subayı olarak görevine devam etmektedir.



EKLER

Ek A: Tez Çalışması Kapsamında Yapılan Yayınlar

Gün A., İliş G.G., Demir H., Özkan D., “Silika Jel Üretiminde pH Değerinin Yüzey Alanına Etkisi”, GTÜ 6. Lisansüstü Araştırmalar Sempozyumu, Gebze, Haziran 2022.

