

İSTANBUL TEKNİK ÜNİVERSİTESİ ★ FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

**GENİŞ METAL DESTEKLER ÜZERİNDE ZEOLİT KAPLAMALARININ
HAZIRLANMASI VE KARAKTERİZASYONU**

YÜKSEK LİSANS TEZİ

Taylan MARAŞ

**Kimya Mühendisliği Anabilim Dalı
Kimya Mühendisliği Programı**

MAYIS 2015

İSTANBUL TEKNİK ÜNİVERSİTESİ ★ FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

**GENİŞ METAL DESTEKLER ÜZERİNDE ZEOLİT KAPLAMALARININ
HAZIRLANMASI VE KARAKTERİZASYONU**

YÜKSEK LİSANS TEZİ

**Taylan MARAŞ
(506131030)**

**Kimya Mühendisliği Anabilim Dalı
Kimya Mühendisliği Programı**

Tez Danışmanı: Prof. Dr. Ayşe ERDEM

MAYIS 2015

ISTANBUL TECHNICAL UNIVERSITY ★ GRADUATE SCHOOL OF
SCIENCE ENGINEERING AND TECHNOLOGY

**PREPARATION OF ZEOLITE COATINGS ON LARGE METAL SUPPORTS
AND THEIR CHARACTERIZATION**

M.Sc. THESIS

Taylan MARAŞ
(506131030)

Department of Chemical Engineering

Chemical Engineering Programme

Thesis Advisor: Prof. Dr. Ayşe ERDEM

MAY 2015

İTÜ, Fen Bilimleri Enstitüsü'nün 506131030 numaralı Yüksek Lisans / Doktora Öğrencisi **Taylan Maraş**, ilgili yönetmeliklerin belirlediği gerekli tüm şartları yerine getirdikten sonra hazırladığı “**GENİŞ METAL DESTEKLER ÜZERİNDE ZEOLİT KAPLAMALARININ HAZIRLANMASI VE KARAKTERİZASYONU** ” başlıklı tezini aşağıda imzaları olan jüri önünde başarı ile sunmuştur.

Tez Danışmanı : **Prof. Dr. Ayşe ERDEM**
İstanbul Teknik Üniversitesi

Jüri Üyeleri : **Prof. Dr. Melkon TATLIER**
İstanbul Teknik Üniversitesi

Doç. Dr. Alp Tekin ERGENÇ
Yıldız Teknik Üniversitesi

Teslim Tarihi : 4 Mayıs 2015
Savunma Tarihi : 4 Haziran 2015

ÖNSÖZ

Öncelikle tez danışmanım Prof. Dr. Ayşe ERDEM’e ve hocam Prof. Dr. Melkon TATLIER’e çalışma boyunca desteklerini esirgemedikleri için en içten teşekkürlerimi sunarım.

Her zaman yanımda olan aileme ve arkadaşlarıma da teşekkürü bir borç bilirim.

Mayıs 2015

Taylan MARAŞ
(Kimya Mühendisi)

İÇİNDEKİLER TABLOSU

Sayfa

ÖNSÖZ.....	ix
İÇİNDEKİLER TABLOSU	xi
KISALTMALAR	xiii
ÇİZELGE LİSTESİ.....	xv
ŞEKİL LİSTESİ.....	xix
ÖZET.....	xxi
SUMMARY	xxi
1. GİRİŞ VE AMAÇ	1
2. ZEOLİTLER	3
2.1 Zeolitlerin Yapısı	4
2.1.1 Zeolit X ve Y.....	5
2.1.2 Zeolit A	6
3. ZEOLİT KAPLAMALAR	9
3.1 Altlığın Isıtılması Yöntemi ile Zeolit Kaplama Hazırlanması	10
3.2 Zeolit Kaplamaların Kullanım Alanları	11
3.2.1 Mikroreaktör uygulamaları	11
3.2.2 Membran uygulamaları	11
3.2.3 Membran reaktör uygulamaları.....	12
3.2.4 Adsorpsiyonlu ısı pompası.....	13
4. DENEYSEL ÇALIŞMA	15
5. DENEYSEL SONUÇLAR VE TARTIŞMA.....	17
5.1 Pompanın Kalibre Edilmesi	17
5.2 Deney Parametrelerinin Giriş ve Çıkış Sıcaklıklarına Etkileri	18
5.3 Zeolit Kaplama Deneyleri	25
5.3.1 Sentez bileşiminin kaplama özellikleri üzerindeki etkileri	28
5.3.2 Debinin kaplama özellikleri üzerindeki etkileri	32
5.3.3 İndüksiyon gücünün kaplama özellikleri üzerindeki etkileri	36
5.3.4 Farklı metal elek türlerinin kaplama özellikleri üzerindeki etkileri	39
6. VARGILAR VE ÖNERİLER	43
KAYNAKLAR	45
ÖZGEÇMİŞ.....	49

KISALTMALAR

LTA	: Linde Type A
FAU	: Faujasite
MFI	: Mordenite Framework Inverted
ZSM-5	: Zeolite Socony Mobil-5
MOR	: Mordenite
ERI-OFF	: Erionite-offretite
SOD	: Sodalite
BEA	: Zeolite Beta
TGA	: Thermogravimetric Analysis
XRD	: X-ray Diffraction

ÇİZELGE LİSTESİ

Sayfa

Çizelge 3.1: Farklı altlıkların yüzey alanı, yüksek pH'a dayanıklılığı, yüzeyde bulunan OH ⁻ gruplarının miktarına göre karşılaştırılmaları [17].	10
Çizelge 3.2: Bazı zeolit membran uygulamaları [24].	12
Çizelge 3.3: Bazı zeolit membran reaktör uygulamaları [24].	13
Çizelge 5.1: Pompa göstergesindeki debi ve gerçek debi değerleri.	17
Çizelge 5.2: İndüksiyon cihazının gücü 10 kW'a ayarlandığı durumda farklı debi ve kreostat sıcaklığının etkileri.	20
Çizelge 5.3: İndüksiyon cihazının gücü 12 kW'a ayarlandığı durumda farklı debi ve kreostat sıcaklığının etkileri.	21
Çizelge 5.4: İndüksiyon cihazının gücü 15 kW'a ayarlandığı durumda farklı debi ve kreostat sıcaklığının etkileri.	21
Çizelge 5.5: Farklı altlık türlerinin indüksiyon gücü ve sistem sıcaklıkları üzerindeki etkileri (Debi: 357.78 ml/dak, kreostat sıcaklığı: 35 °C).	24
Çizelge 5.6: Farklı altlık türlerinin indüksiyon gücü ve sistem sıcaklıkları üzerindeki etkileri (Debi: 357.78 ml/dak, kreostat sıcaklığı: 65 °C).	25
Çizelge 5.7: Yüksek kristalinitede Zeolit X elde edebilmek için yapılan sıcaklık deneyleri.	26
Çizelge 5.8: Farklı bileşimlerle yapılan zeolit kaplama deneyleri.	28
Çizelge 5.9: Zeolit A sentez karışımı ile yapılmış debi deneyleri (Molar Bileşim: 50Na ₂ O : 1Al ₂ O ₃ : 5SiO ₂ : 1000H ₂ O).	32
Çizelge 5.10: Zeolit X sentez karışımı ile yapılmış debi deneyleri (Molar Bileşim: 56Na ₂ O : 1Al ₂ O ₃ : 12SiO ₂ : 1680H ₂ O).	33
Çizelge 5.11: Zeolit X sentez karışımı ile yapılmış debi deneyleri (Molar Bileşim: 50Na ₂ O : 1Al ₂ O ₃ : 15SiO ₂ : 1500H ₂ O).	34
Çizelge 5.12: Zeolit X sentez karışımı ile yapılmış indüksiyon gücü deneyleri (Molar Bileşim: 70 Na ₂ O : 1Al ₂ O ₃ : 15SiO ₂ : 2100H ₂ O).	37
Çizelge 5.13: Farklı mesh sayısına sahip metal eleklerle hazırlanmış altlıklar üzerinde Zeolit X sentez karışımı ile yapılmış deneyler (Molar Bileşim: 70 Na ₂ O : 1Al ₂ O ₃ : 15SiO ₂ : 2100H ₂ O).	39

ŞEKİL LİSTESİ

Sayfa

Şekil 2.1: Fojasit tipi zeolitlerin iskelet yapısı [14].	6
Şekil 2.2: Zeolit A'nın iskelet yapısı [14].	7
Şekil 5.1: Göstergedeki debiye karşılık gerçek debi grafiği.	17
Şekil 5.2: Sıcaklık-zaman grafiği (indüksiyon gücü: 10 kW, kreostat sıcaklığı: 45°C, debi: 357.78 ml/dak).	18
Şekil 5.3: Sıcaklık-zaman grafiği (indüksiyon gücü: 12 kW, kreostat sıcaklığı: 30°C, debi: 519.19 ml/dak).	19
Şekil 5.4: Sıcaklık-zaman grafiği (indüksiyon gücü: 15 kW, kreostat sıcaklığı: 15°C, debi: 719.58 ml/dak).	19
Şekil 5.5: İndüksiyon gücünün sistem sıcaklıklarına etkisi (kreostat sıcaklığı: 30°C, debi: 357.78 ml/dak).	22
Şekil 5.6: Debinin sistem sıcaklıklarına etkisi (indüksiyon gücü: 15 kW, kreostat sıcaklığı: 40 °C).	23
Şekil 5.7: Debinin sistem sıcaklıklarına etkisi (indüksiyon gücü: 12 kW, kreostat sıcaklığı: 25 °C).	23
Şekil 5.8: Kreostat sıcaklığının sistem sıcaklıklarına etkisi (indüksiyon gücü: 15 kW, debi: 719.58 ml/dak).	24
Şekil 5.9: 5 numaralı deneyde elde edilen kaplamanın XRD sonuçları.	26
Şekil 5.10: 6 numaralı deneyde elde edilen kaplamanın XRD sonuçları.	27
Şekil 5.11: 5 numaralı deneyde reaktör giriş ve çıkış sıcaklıklarının zamanla değişimi.	27
Şekil 5.12: 10 numaralı deneyde altlığın alt tarafından alınan örneğin XRD sonucu.	29
Şekil 5.13: 10 numaralı deneyde altlığın üst tarafından alınan örneğin XRD sonucu.	30
Şekil 5.14: 9 numaralı deneyde reaktör giriş ve çıkış sıcaklıklarının zamanla değişimi.	30
Şekil 5.15: Farklı sentez karışımı bileşimleriyle hazırlanan kaplamalar (Soldan deney numara sırası: 7, 8, 9, 10).	32
Şekil 5.16: 11 numaralı deneyde reaktör giriş ve çıkış sıcaklıklarının zamanla değişimi.	33
Şekil 5.17: 10 numaralı deneyde reaktör giriş ve çıkış sıcaklıklarının zamanla değişimi.	34
Şekil 5.18: 15 numaralı deneyde reaktör giriş ve çıkış sıcaklıklarının zamanla değişimi.	35
Şekil 5.19: Farklı debilerle hazırlanan kaplamalar (Soldan deney numara sırası: 10, 13, 14).	36
Şekil 5.20: 17 numaralı deneyin XRD sonuçları.	37
Şekil 5.21: 6 numaralı deneyde reaktör giriş ve çıkış sıcaklıklarının zamanla değişimi.	38
Şekil 5.22: 19 numaralı deneyde elde edilen kaplamanın XRD sonuçları.	40

Şekil 5.23: 20 numaralı deneyde elde edilen kaplamanın XRD sonuçları.	40
Şekil 5.24: 20 numaralı deneyde reaktör giriş ve çıkış sıcaklıklarının zamanla değişimi.	41

GENİŞ METAL DESTEKLER ÜZERİNDE ZEOLİT KAPLAMALARIN HAZIRLANMASI VE KARAKTERİZASYONU

ÖZET

Zeolitler, moleküler boyutta kanallar ve/veya kafesler içeren sulu, kristal yapılı alüminosilikat mineralleridir. Adsorban, iyon değıştirici ve katalizör olarak çok çeşitli uygulamalarda kullanılmaktadırlar.

Zeolit kaplamaların hazırlanması zeolitlerin kullanıldığı uygulamaları arttırmıştır. Zeolit kaplamalar, membran olarak ayırma işlemlerinde, katalizör olarak mikroreaktörlerde ve adsorban olarak soğutma/ısıtma uygulamalarında ve adsorpsiyonlu ısı pompalarında kullanılmaktadırlar.

Farklı altlık türleri üzerinde hazırlanan zeolit kaplamalar, ısı ve kütle iletimini olumlu yönde etkilemektedir. Bu amaçla bölümümüz laboratuvarlarında geniş metal yüzeyler üzerinde kalın zeolit kaplamaların hazırlanması çalışılmaktadır. Kaplanması istenen altlığın doğrudan ısıtılıp, sentez karışımının soğutulması ile kalın zeolit kaplamalar hazırlanabilmektedir. Bu yöntemde, zeolit büyümesinin altlık üzerinde olması sağlanmaktadır. Bu çalışmada metal altlığın indüksiyon ile ısıtılması yöntemiyle zeolit kaplamalar hazırlanmıştır. Bu amaçla, indüksiyon cihazı, reaktör, kreostat ve pompadan oluşan bir deney sistemi kurulmuştur.

Kurulan deney sisteminde, öncelikle sistem parametrelerinden indüksiyon gücü, debi, kreostat sıcaklığı ve metal elek türünün reaktör giriş ve çıkış sıcaklıklarına etkileri incelenmiştir. Daha sonra kaplama deneyleri gerçekleştirilmiş ve debi, indüksiyon gücü, sentez karışımı bileşimi ve metal elek türünün kaplama ağırlığı, dayanıklılık ve kristalinite üzerindeki etkileri incelenmiştir. Kaplamalardan alınan zeolit örneklerine termogravimetrik analiz (TGA) uygulanmış ve kristalinite tahmini yapılmıştır. Gerekli görüldüğünde X-ışını kırınımı (XRD) uygulanmış ve bu yolla elde edilen zeolit fazının saflığı ve kristalinitesi kontrol edilmiştir.

Kullanılan sentez karışımı bileşiminin H_2O ve Na_2O içeriği ile SiO_2/Al_2O_3 oranının azaltılması yoluyla kaplama ağırlığının (ve dolayısıyla da kalınlığının) ciddi miktarda artırılması sağlanmıştır. Ancak, karışım bileşimi jel bileşimlerine fazla yaklaştığında kaplama dayanıklılığının azaldığı görülmüştür. Debinin etkisinin incelenmesi için, denenenler arasından seçilen bileşimler kullanılarak yapılan deneylerde, debi artışının, hem kaplama ağırlığını, hem de kaplama dayanıklılığını artırdığı belirlenmiştir. Ancak, debinin artışıyla kaplamanın su tutma kapasitinde az da olsa bir miktar düşüş görülmüştür. Bu düşüş kaplamada, Zeolit X'in yanısıra az miktarda Zeolit A ve Zeolit P gibi fazların da bulunmasıyla ilgili olabilir. Indüksiyon gücünün artması ise kaplama ağırlığını olumlu, kaplamanın kristalinitesini olumsuz etkilemiştir. Çift katlı metal elek altlıklarda, dış tabakadaki tel kalınlığı incelidikçe, gerekli sentez sıcaklıklarına ulaşabilmek için indüksiyon gücünün artırılması gerekmiştir. Dış tabakadaki tel kalınlığındaki artışa paralel olarak, aynı reaktör giriş ve çıkış sıcaklıklarında elde edilen kaplama ağırlığı da bir miktar artmıştır.

PREPARATION OF ZEOLITE COATINGS ON LARGE SUPPORTS AND THEIR CHARACTERIZATION

SUMMARY

Zeolites are microporous hydrated aluminosilicate crystals with unique properties which enable them to be used in a variety of industrial applications. About forty different types of zeolite minerals are found to occur in nature and more than 150 types of zeolites have been prepared synthetically. Synthetic zeolites have been found to be more suitable for many industrial applications when compared to natural zeolites, since the latter generally contain impurities varying in their amounts and types with respect to the location in the reserve.

Alkali and/or alkaline earth metal cations reside in the micropores of the zeolite crystal structures, which can be exchanged with other cations in aqueous solutions of a number of salts, giving zeolites the property of selective ion-exchange. The ion-exchange property of zeolites was recognized very early in their development, and basically this was the only property that found industrial applications until the 1950s. The major industrial use of zeolites during these years was as ion-exchangers in water-softening processes. Today, zeolites are employed for a variety of ion-exchange applications, such as the removal of radioactive ions, heavy metal ions and NH_4^+ ion from different wastewaters.

The microporous crystal structures of zeolites contain high void volumes and large internal surface areas, making them suitable for adsorptive applications. The pore diameters are on the same order of magnitude with commercially important molecules, giving zeolites their shape and size selective properties. This is the reason why zeolites are also called as zeolite molecular sieves. The size and shape selective properties of zeolites have been made use of in many adsorptive separation and purification applications. O_2/N_2 separation, linear/branched alkane separations, separation of xylene isomers, and removal of water, impurities and pollutants from various gas mixtures are some examples to the processes in which zeolites are used as adsorbents.

The surfaces of zeolites may also contain strong catalytic sites depending on the Si/Al ratio of the zeolite, which allow them to be used as shape/size selective catalysts for various reactions in the industry, especially the petrochemical industry. Cracking, alkylation and isomerization reactions are some examples of the different groups of reactions, for which zeolites are used as catalysts. Most of the gasoline is produced today in the fluidized catalytic cracking (FCC) units utilizing zeolite cracking catalysts.

In addition to the conventional applications of these materials, which employ pellets or granules of zeolites synthesized in powder form, new applications of zeolites prepared in coating configurations have been emerging recently. Preparation of zeolite coatings on various substrates to be used in novel membrane separations, catalytic microreactors, adsorption heat pumps and other adsorptive heating-cooling applications as well as in sensing applications have become new research areas of widespread interest. Improved heat and mass transfer is one of the main advantages of utilizing zeolite coatings in these applications.

While some of these, such as the membrane separation and sensing applications require the preparation of thin zeolite coatings, others, such as the adsorptive heating-cooling applications require the preparation of relatively thick zeolite coatings. Preparation of relatively thick zeolite coatings have not been easy, especially for the hydrophilic aluminous zeolites, which are especially required for these applications.

A method has recently been developed for the preparation of relatively thick zeolite coatings on metal substrates, where the substrate is heated selectively by conduction or induction, while the synthesis mixture is kept at a lower temperature. Since only the crystallization activity on the substrate is promoted in this method, while that in the synthesis solution is suppressed, the rate of change of the composition of the synthesis solution with time is decreased and the metastable phase transformations of the zeolites to more stable closed phases are postponed, allowing the preparation of thicker zeolite coatings.

Zeolite coatings were prepared in this study on the surfaces of relatively large metal substrates, which were heated by induction. An experimental setup, consisting of an induction device, a reactor, a pump and a cryostat was assembled for this purpose. The pump was used to circulate the synthesis solution between the reactor and the cryostat, in order to keep its temperature at a value lower than that of the substrate. The temperatures of the synthesis solution entering and exiting the reactor were measured by resistance thermometers. Cylinders made of one or two layers of stainless steel (316L) wire mesh sheets of different mesh sizes were used as substrates.

Initially the effects of the system parameters, namely the power of the induction device, the flow rate of the solution, and the temperature of the cryostat, on the inlet and exit temperatures were investigated using water instead of the synthesis solution. Later, with the information obtained from these experiments, coatings of Zeolite A and Zeolite X were prepared at temperatures required to crystallize these zeolites. Effects of the synthesis mixture composition, induction power, flow rate of the synthesis solution and the substrate type on the mass (thickness), crystallinity and mechanical stability of the coatings prepared were investigated. Coatings were weighed after being brought to constant weight under controlled humidity and samples taken from the coatings were analyzed by thermogravimetric analysis (TGA) and X-ray diffraction (XRD) techniques.

The amount deposited on the substrate and thus the thickness of the coating prepared was observed to increase parallel to the decrease in the H_2O and Na_2O contents and the $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ ratio of the synthesis mixture, while mechanical stability was observed to decrease with the decrease in the $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ ratio, for the Zeolite X coatings. Both the mass and the stability of the coating prepared increased with increasing flow rate for similar inlet and exit temperatures, while the adsorption capacity of the coating was observed to decrease with increasing flow rate due to the formation of small amounts of Zeolite A and Zeolite P. Increase in the induction power also increased the mass and thus the thickness of the coating prepared, while it decreased its crystallinity. When a higher mesh size was used on the outer side of the two-layered substrates, a higher induction power was found to be necessary to heat the substrate to the required synthesis temperature. As the wire thickness on the outer layer increased, the mass of the coating obtained at similar inlet and exit temperatures also increased.

1. GİRİŞ VE AMAÇ

Zeolitler, moleküler boyutta (0.3-1.5 nm çapında) kanallar ve/veya kafesler içeren sulu, kristal yapılı, mikro gözenekli alüminosilikatlardır. Adsorban, iyon değiştirici ve katalizör olarak çok çeşitli uygulamalarda kullanılmaktadırlar. Gözenek boyutları, kanal sistemlerinin geometrisi ve bileşimleri farklı olan çok sayıda zeolit yapısı tanımlanmıştır [1].

Zeolit kaplamaların hazırlanması zeolitlerin kullanıldığı alanları genişletmiştir. Zeolit kaplamalar, membran olarak ayırma işlemlerinde, katalizör olarak mikroreaktörlerde ve adsorban olarak soğutma/ısıtma uygulamalarında ve adsorpsiyonlu ısı pompalarında kullanılmaktadırlar.

Metal altlıklar üzerinde hazırlanan zeolit kaplamalar, ısı ve kütle iletiminde kayda değer gelişmeler sağlamaktadırlar [2]. Bu amaçla bölümümüz laboratuvarlarında geniş metal yüzeyler üzerinde kalın zeolit kaplamaların hazırlanması çalışılmaktadır. Kaplanması istenen altlığın doğrudan ısıtılıp, sentez karışımının soğutulması ile kalın zeolit kaplamalar hazırlanabilmektedir [3]. Metal altlık kondüksiyon veya indüksiyon ile ısıtılabilir.

Bu çalışmada metal altlığın indüksiyon ile ısıtılması yöntemiyle zeolit kaplamalar hazırlanmıştır. Bu amaçla bir sistem kurulmuş, sistem parametrelerinden debinin, indüksiyon gücünün, metal elek türünün ve bileşimin etkileri incelenmiştir.

2. ZEOLİTLER

Zeolitler, her bir silisyum ya da alüminyum katyonun 4 oksijen atomu ile çevrelenmesiyle oluşan dörtyüzlülerin (tetrahedra) birbirlerine bağlanmasıyla meydana gelen yapı birimlerinin oluşturduğu sulu alüminosilikat mineralleridir. 3 boyutlu iskelet yapılarında, kanal ve kafes şeklinde gözenekler bulunmaktadır. Bu gözenekler, H₂O molekülleri ve iskelet yapısına katılmamış (non-framework ya da extra-framework) katyonlar ile doludur. Bu kanalların ve kafeslerin boyutları 0.3-1.5 nm arasındadır. Kanalların boyutu ticari uygulamalarda önemli olan çeşitli molekül ve iyonların geçişine izin verecek kadar büyüktür. Bu yapı zeolitlerin moleküler elek olarak davranmalarını sağlar [4].

Zeolitler, petrol rafinasyonunda ve petrokimya endüstrisinde katalizör olarak kullanılmaktadırlar. Amorf eşlenikleriyle karşılaştırıldığında üstün aktiviteye, dayanıklılığa ve seçiciliğe sahip olmaları sebebiyle, çoğu reaksiyon için tercih edilirler [5]. Katalitik kraking, hidrokraking, izomerizasyon, alkilasyon, oligomerizasyon bu reaksiyonlar arasında yer almaktadır [6].

Zeolitlerin yüzey özellikleri Si/Al oranlarına bağlı olarak değişir. Si/Al oranı düşük olan zeolitler hidrofilik yüzeylere sahiptir. Si/Al oranı arttıkça zeolit hidrofobikliği artar. Hidrofilik zeolitlerin polar bileşenleri adsorplama özelliğinden yararlanan birçok gaz ayırma ve saflaştırma uygulaması bulunmaktadır. Hidrofobik zeolitler ise sulu karışımlardan organiklerin adsorpsiyon yoluyla ayrılmasında kullanılmaya uygun malzemelerdir. Adsorpsiyon, özellikle az veya orta derecede ürün çıktısı için, distilasyon, absorpsiyon gibi pahalı ve fazla enerji ihtiyacına sahip ayırma proseslerine üstünlük sağlayabilmektedir. Zeolitlerin kullanıldığı önemli endüstriyel gaz ayırma proseslerine örnek olarak, havadan oksijen eldesi, doğal gaz saflaştırma, hidrokarbonların ayrıştırılması, kriyojenik hava ayırma için ön saflaştırma ve oksijen/argon ayırma, baca/egzoz gazlarının temizlenmesi, hidrojen ve nadir bulunan gazların saflaştırılması gösterilebilir [7]. Fiziksel adsorpsiyonun ekzotermik ve tersinir olması [8], zeolitlerin adsorpsiyonlu ısı pompalarında kullanılmasını da sağlamaktadır.

Zeolitler, gözeneklerindeki yük dengeliyici alkali ve toprak alkali katyonları ile çözeltilerin içerdiği katyonları kolaylıkla değiştirebildiği için iyon değiştirici olarak da kullanılabilmektedirler [9,10]. Bazı zeolitler suda yer alan Ca^{+2} ve Mg^{+2} iyonlarını, Na^+ iyonu ile değiştirebilmeleri sebebiyle yıkama sularının yumuşatılması için deterjanlara katkı maddesi olarak eklenmektedirler. Bu uygulama için, zeolitin mümkün olan en yüksek katyon değiştirme kapasitesine sahip olması istenmektedir ve bu durumda alüminyum içeriği en fazla olan yapıya sahip Zeolit A ($\text{Si}/\text{Al}=1$) tercih edilmektedir [10, 11]. Ayrıca iyon değiştirebilme özellikleri sayesinde zeolitler, Cr^{+3} , Fe^{+3} , Co^{+2} , Zn^{+2} , Fe^{+2} gibi ağır metal iyonlarının giderilmesinde de kullanılmaktadırlar [9].

2.1 Zeolitlerin Yapısı

Zeolitler, TO_4 dörtyüzlü yapılarından oluşmuş inorganik mikro gözenekli kristallerdir. Burada T atomu dörtyüzlü merkezindeki atomu temsil etmektedir ve bu T atomu Si, Al, P, Ge, Ti, Ga, B, Zn gibi atomlar olabilmektedir. Zeolit iskeleti, alimüna dörtyüzlü $[\text{AlO}_4]^-$ ve silika dörtyüzlü $[\text{SiO}_4]$ yapılarının köşe paylaşmasıyla oluşmaktadır. Bitişik dörtyüzlüler, birbirlerine paylaştıkları oksijenlerle bağlanmıştır. Oksijenlerin ortak kullanılması sonucunda oksijen/T atomu oranı 2 olmaktadır. Zeolitler için basitleştirilmiş ampirik formül şu şekildedir:

$$M_{x/n}^{n+} \text{Al}_x \text{Si}_{1-x} \text{O}_2 \cdot \gamma X \quad (2.1)$$

x, 0 ile 0.5 arasında olabilir. $M_{x/n}^{n+}$ organik veya inorganik yük dengeliyici katyonu temsil etmektedir. X ise, H_2O gibi nötr konuk molekülleri göstermektedir [1].

Saf silika dörtyüzlüleri (SiO_2) nötrdür, ancak Si^{+4} 'ün Al^{+3} ile yer değiştirmesiyle birlikte dörtyüzlü bir eksi yük alır. Bu durum, gözeneklerde bulunan yük dengeleyici katyonlar tarafından dengelenir [1]. Bu dengeliyici katyonlar genellikle alkali veya toprak alkali metallerdir ve gözeneklerde eksi yüke sahip $[\text{Si}_{1-x}\text{Al}_x\text{O}_2]^-$ yapılarının yakınlarında bulunur. Zeolitlerin yapılarındaki, kanallar ve/veya kafeslerden oluşan gözenekler, zeolitin tipine göre bir, iki, ya da üç boyutlu farklı geometrilere sahip olabilmektedirler. Bu durum, sadece etkin gözenek çapından küçük moleküllerin geçebilmesine olanak sağlayan birbirinden farklı mikro gözenekli yapıların oluşmasına olanak tanımaktadır. Bu kanallardan sadece yeterince küçük moleküllerin

geçebilmesi zeolitlere moleküler elek özelliğini kazandırmaktadır. Moleküler elek özelliği, adsorpsiyon ve kataliz uygulamalarında büyük önem taşımaktadır [12].

Zeolitler farklı ölçütlere göre sınıflandırılmaktadır. Bu ölçütlerden biri gözenek boyutudur. Gözenek boyutunu belirleyen en önemli parametre, zeolitin iskelet yapısında gözenegi çevreleyen oksijen atomlarının sayısıdır. Gözenek boyutuna göre zeolitler şu sınıflara ayrılmaktadır [13]:

1. Küçük gözenekli zeolitler (8 üyeli halka): gözenek çapı 3-4.5 Å
2. Orta gözenekli zeolitler (10 üyeli halka): gözenek çapı 4.5-6 Å
3. Büyük gözenek zeolitler (12 üyeli halka): gözenek çapı 6-8 Å
4. Çok büyük gözenek zeolitler (14 üyeli halka): gözenek çapı 0.8-1 Å

Bir diğer sınıflandırma ölçütü ise kristal yapıdaki gözeneklerin geometrisidir. Kanalların düzenlenişine göre zeolitler; tek boyutlu, iki boyutlu veya üç boyutlu olarak ayrılmaktadır [12].

Zeolitlerin sınıflandırılmasında bir başka ölçüt ise Si/Al oranıdır. Si/Al oranına göre zeolitler şu şekilde sınıflandırılmaktadır [13];

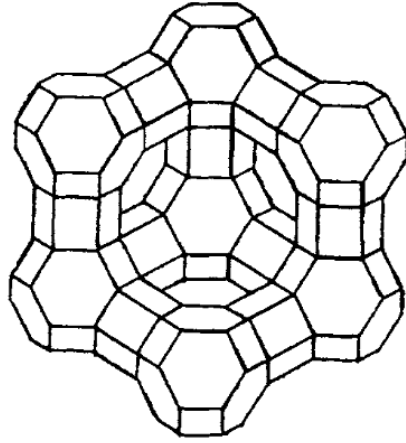
1. Düşük Si/Al oranlı zeolitler (1.0-1.5)
2. Orta Si/Al oranlı zeolitler (2-5)
3. Yüksek Si/Al oranlı zeolitler (10 ve üzeri)

Düşük Si/Al oranlı zeolitler, yüksek miktarlarda Al ve dolayısıyla da eksi yük ve bu yükü dengeleyen katyon bulundurmalarından dolayı hidrofilik özellik gösterirler. Yüksek silikalı zeolitler ise, iç yüzeylerindeki kovalent Si-O-Si köprülerinin baskınlığından dolayı hidrofobik özellik gösterirler [12].

2.1.1 Zeolit X ve Y

Zeolit X ve Y, faujasit (faujasite) tipi zeolitlerdir ve aynı kristal yapısına sahiplerdir (Şekil 2.1). Zeolit X ve Y arasındaki fark Si/Al oranından kaynaklanmaktadır. Zeolit X'te Si/Al oranı 1 ile 1.5 arasındayken, Zeolit Y'de ise bu oran 1.5 ile 3 arasındadır.

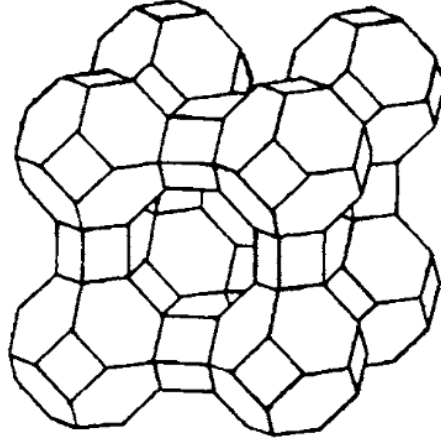
Fojasitin birim hücresinin genel bileşimi $(\text{Na}_2, \text{Ca}, \text{Mg})_{29}[\text{Al}_{58}\text{Si}_{134}\text{O}_{384}].240\text{H}_2\text{O}$ 'dur. İkincil yapı birimi çift-altılı halkadır (D6R). Birim hücre sekiz sodalit kafesi içermektedir ve her birinin çapı yaklaşık olarak 1.3 nm'dir. 3 boyutlu kanal yapısı $[1\ 1\ 0]$ 'a paraleldir ve 12 üyeli halkalar tarafından çevrelenen gözeneklerin etkin çapı 0.74 nm'dir [14]. İskelet yapı yoğunluğu ise $1000\ \text{\AA}^3$ başına 12.7 T-atomu'dur. Yüksek boşluk hacmi (yaklaşık %50), geniş gözenek açıklığı ve 3 boyutlu gözenek sistemi, fojasit yapıları zeolitleri birçok katalitik uygulama için ideal yapmaktadır [15].



Şekil 2.1: Fojasit tipi zeolitlerin iskelet yapısı [14].

2.1.2 Zeolit A

Zeolit A, 1'e yakın Si/Al oranına ve $[\text{Na}_{12}\{\text{Al}_{12}\text{Si}_{12}\text{O}_{48}\}.27\text{H}_2\text{O}]_8$ birim hücre bileşimine sahip bir zeolit türüdür (Şekil 2.1). Zeolit A, kübik simetriye sahip olacak şekilde kristallenmektedir. İkincil yapı birimleri ise çift-dörtlü ve sekizli halkalardır [14]. Sodalit kafesleri birbirlerine çift-dörtlü halkalarla (D4R) bağlanmıştır. Bu durum, sekizli-halkalarla çevrilmiş 3 boyutlu bir kanal sisteminin oluşmasına neden olmaktadır. İskelet yoğunluğu $1000\ \text{\AA}^3$ başına 12.9 T-atomu'dur. Gözeneklerin etkin çapı yaklaşık olarak 0.42 nm'dir [15].



Şekil 2.2: Zeolit A'nın iskelet yapısı [14].

3. ZEOLİT KAPLAMALAR

Zeolit kaplamalar, adsorpsiyon, ayırma, kataliz ve algılama (sensing) gibi alanlarda çeşitli uygulamalarda kullanım potansiyeline sahiptir [16]. Zeolit kaplamalar, zeolit peletlerin sahip olduğu kısıtlamaların ötesinde bir performans göstermektedir. Gelişmiş ısı iletim özellikleri, bağlayıcı içermemeleri ve kısalan difüzyon yolu en önemli avantajları arasındadır [17]. Kullanılan altlıklar plaka, boru, petek gibi farklı şekillerde, gözenekli veya gözeneksiz yapıda, paslanmaz çelik, gümüş, altın, bakır, alaşım, seramik, alumina, cam, kuartz, silikon ya da silikon nitrit gibi çeşitli malzemelerden yapılmış olabilmektedir [18]. Çizelge 3.1.'de farklı altlıkların yüzey alanı, yüksek pH'a dayanıklılığı, yüzeyde bulunan OH⁻ gruplarının miktarına göre karşılaştırılmaları verilmiştir [17].

Altlık üzerinde zeolit büyümesi, sentez karışımı ile altlık arasındaki karmaşık etkileşim ile olmaktadır. Bu etkileşim; sentez karışımının bileşimine, sentez koşullarına, altlığın pürüzlülüğüne ve altlık yüzeyinin hidrofilikliğine dayanmaktadır. Kristal boyutu; çekirdeklenme hızı ile kristal büyümesi hızının arasındaki oranın bir fonksiyonudur. Çekirdeklenme hızı ile büyüme hızı aşırı doymunluk ile artmaktadır, ancak çekirdeklenme hızı üstel olarak artarken, büyüme hızı daha düşük mertebede bir üs ile artmaktadır. Bu durum, çekirdeklenmenin büyümeye göre daha ani gerçekleşmesine neden olmaktadır. Yüksek aşırı doymunlukta, daha küçük kristal boyutu ve daha hızlı sentez gözlenirken, daha düşük aşırı doymunlukta ise büyüme çekirdeklenmeye göre daha baskındır [19].

Çizelge 3.1: Farklı altlıkların yüzey alanı, yüksek pH'a dayanıklılığı, yüzeyde bulunan OH⁻ gruplarının miktarına göre karşılaştırılmaları [17].

Altlık Malzemesi	Malzemenin Doğası	Yüzey Alanı*	Yüksek pH'a Dayanıklılığı	Yüzeyde bulunan OH ⁻ gruplarının miktarı**
α -Al ₂ O ₃	Hidrofobik	Yüksek	+	Düşük
γ - Al ₂ O ₃	Hidrofilik	Yüksek	-	Yüksek
Si	Hidrofilik	Düşük	-	Yüksek
TiO ₂	Hidrofilik	Düşük	+	Orta
Paslanmaz çelik	Hidrofilik	Düşük	+	Yüksek
Kuartz	Hidrofilik	Düşük	-	Yüksek
Vitröz cam	Hidrofilik	Düşük	-	Yüksek
Preslenmiş karbon	Hidrofobik	Yüksek	+	Düşük
Karbon	Hidrofobik	Orta	+	Düşük
Inorganik	Hidrofilik	Orta	+	Yüksek
Altın	Hidrofobik	Düşük	+	Düşük
Teflon	Hidrofobik	Düşük	+	Düşük

*: Düşük: <1 m²/g, orta: 1-10 m²/g, yüksek: > 10 m²/g

**: Düşük: <1 OH nm⁻², orta: 1-2.5 OH nm⁻², yüksek: >2.5 OH nm⁻²

3.1 Altlığın Isıtılması Yöntemi ile Zeolit Kaplama Hazırlanması

Altlık ısıtma yöntemi, özellikle metal yüzeyler üzerinde kalın kaplamaların hazırlanabilmesini sağlayan bir kaplama yöntemidir. Altlığın ısıtılması yöntemi, metal altlık sıcaklığının ve reaksiyon çözeltisi sıcaklığının ayrı ayrı kontrol edilebilmesini sağlamaktadır. Bu yöntemde, altlık doğrudan ısıtılırken, reaksiyon çözeltisi daha düşük sıcaklıklarda tutulmaktadır. Böylece, altlık yüzeyinde kristalizasyon artırılırken, reaksiyon çözeltisinde kristalizasyon engellenmektedir. Altlığın ısıtma yöntemi olarak kondüksiyon ya da indüksiyon kullanılabilir. Bu yöntem ile, reaksiyon çözeltisinin hacmine bağlı olarak, metastabil zeolitlerin faz değişimleri uzun süreler boyunca geciktirilmektedir. Bu yöntem, geleneksel yöntemlerle karşılaştırılınca, altlık yüzeyi üzerinde zeolit kaplamanın daha fazla

büyümesine izin vermektedir. Bu durumda daha kalın kaplamaların hazırlanması mümkün olmaktadır [20].

3.2 Zeolit Kaplamaların Kullanım Alanları

3.2.1 Mikroreaktör uygulamaları

Mikroreaktörler, kanal çapı 50-500 μm ve kanal uzunluğu 5-50 mm arasında değişen ve içinde kimyasal reaksiyonların gerçekleştiği reaktörlerdir. Boyutların küçük olması, yüzey alanı/hacim oranını arttırmakta ve bu da daha büyük boyuttaki reaktörlere göre dikkate değer farklar yaratmaktadır. Mikro akış sistemlerindeki gelişmiş ısı ve kütle iletimi, geleneksel boyutlardaki reaktörlerden elde edilen verimden daha fazlasının elde edilebileceği daha etkin reaksiyon koşullarının uygulanmasını mümkün kılmaktadır. Reaktörde kalma süresi ve ısı uygulanması yan reaksiyonlardan kaçınmak adına büyük bir doğrulukla denetlenebilmektedir. Mikro yapıli katalitik reaktörlerin etkin kullanımı için reaktör kanallarının ince bir katalizör filmi ile kaplanması gerekmektedir. Zeolit kristalleri mikro kanal yapısı içine mikrometre mertebesinde, yüksek konumsal hassasiyet ile yerleştirilebilmektedir [18]. Mikroreaktörlerin kullanımı, özellikle yüksek ısı gereksinimli kimyasal prosesler, nadir kimyasalların sentezi, zehirli ve tehlikeli kimyasalların üretiminde avantajlıdır [21].

Zeolit kaplamaların, mikroreaktörlerde kullanılabilirliği açısından, mekanik dayanıklılık ve katalizör ile altlık arasındaki tutunma kuvveti en önemli parametrelerdir. Zeolit kaplama, kayma gerilmesi, bükülme ve darbe yükü karşısında bozunmadan dayanmalıdır. Bazı reaksiyonların istenen verim ve seçiciliğe ulaşabilmesi için kaplama kalınlığının 100 μm 'den fazla olması gerekmektedir. Ayrıca kaplama, akışı kötü yönde etkilememesi adına homojen olmalıdır [22].

3.2.2 Membran uygulamaları

Zeolitler, moleküler elek özelliklerinden yararlanılarak membran uygulamalarında kullanılmaktadırlar. Bu malzemelerle, boyut ve şekillerine bağlı olarak, moleküllerin seçici ayrılmasının sağlanması olanaklıdır. Ayrıca zeolitlerin, hidrofilik veya organofilik olmalarına, asit ve baz özelliklerine, gözeneklerin içerisindeki elektrostatik alana bağlı olarak gösterdikleri polar moleküllerin seçici adsorpsiyonu gibi özellikleri de ayırma için bir üstünlük sağlamaktadır. Bu fiziksel ve kimyasal

özellikleri birleştirilince zeolit membranlar, organik, gaz veya buhar karışımların ayrılmasında önem taşımaktadır [23]. Çizelge 3.2’de ayırma proseslerinde kullanılan zeolit membran uygulamalarına örnekler verilmiştir [24].

Çizelge 3.2: Bazı zeolit membran uygulamaları [24].

Uygulama	Bileşim Örnekleri	Gereken Membran Özelliği	Kullanılan Zeolit Membran Örnekleri
Alkol dehidrasyonu	Etanol, isopropil alkol, metanol, bütanol	Hidrofiliklik	LTA, FAU, MFI (ZSM-5), MOR, ERI-OFF (T), SOD, ETS-4, ETS-10
Organik dehidrasyonu	Esterler (etil asetat, metil asetat), ketonlar (aseton, MEK, MIBK), eterler (MTBE, ETBE), hidrokarbonlar (hekzan, siklohekzan, benzen)	Hidrofiliklik ve organik çözücülere dayanıklılık	LTA, FAU, MOR, MFI
Asit çözeltisinden su giderimi	Esterifikasyon reaktörleri, su/asetik asit karışımı, su/nitrik asit karışımı	Aside dayanıklılık	ERI-OFF (T), MOR, MFI (ZSM-5), SSZ-13
Sudan organik bileşiklerin giderimi	Alkoller, aldehytler, karboksilik asit, esterler, ketonlar	Hidrofobiklik	MFI(Ge-ZSM-5), BEA (β -type)
Organik bileşiklerin ayrılması	MTBE/metil alkol, n-hekzan/2,2 dimetilbütan, n-pentan/isopren, p-ksilen/o-m-ksilen	Organik çözücülere dayanıklılık	FAU (X, Y), MFI (Silikalit-1, β -ZSM-5)

3.2.3 Membran reaktör uygulamaları

Yan veya istenen ürünün reaksiyon bölgesinden seçici olarak ayrıldığı katalitik prosesler her zaman ilgi çekmiştir. Yüksek ısı ve kimyasal dayanıklılığa sahip seçici inorganik membranların gelişmesi, bu yaklaşımın önemli ticari prosesler üzerinde uygulanmasını sağlamıştır [25]. Zeolit kaplamalar, aynı anda hem membran hem de reaktör cidarı olarak kullanılabilirler. Farklı konfigürasyonlara sahip sistemlerdeki uygulamalar, zeolit membranın davranışına göre üç grup altında toplanabilmektedir.

1. Ekstraktör olarak: Zeolit membran ürünlerin ayrılmasını sağlamaktadır ve reaksiyon dengesini sağa kaydırarak dönüşümü artırır.
2. Dağıtıcı olarak: Zeolit membran reaktanların kontrollü olarak eklenmesiyle yan reaksiyonları sınırlandırmaktadır.

3. Etkin temas sağlayıcı olarak: Reaktanların katalizöre kontrollü difüzyonu katalitik reaksiyon bölgesinin denetlenebilmesine yardımcı olmaktadır.

Geleneksel zeolit membran reaktör uygulamaları, dönüşümün arttırılmasını, ürünün ayrılması ile dengenin yönünü değiştirerek, katalizör inhibitörlerinin ayrılmasını sağlayarak ve reaktanların katalitik merkezlere difüzyonunu hızlandırarak sağlamaktadırlar. Ayrıca reaktörde kalma süresinin (ve boşluk hızının) kontrol edilmesi yoluyla seçiciliğin arttırılmasına olanak tanımaktadırlar [24]. Çizelge 3.3'te zeolit membran reaktör uygulamalarından bazı örnekler verilmiştir.

Çizelge 3.3: Bazı zeolit membran reaktör uygulamaları [24].

Reaksiyon türü	Zeolit membran reaktör türü	Öncelikli geçici madde türü
i-bütan ve etilbenzen dehidrojenasyonu	MFI, Fe-MFI	H ₂
Sentez gazı üretimi	Zeolit A, Silikalit-1	H ₂
Esterifikasyon	Zeolit A, Zeolit T, H-ZSM-5	H ₂ O
Fischer-Tropsch	MOR/ZSM-5, Zeolit A (4A), Na-ZSM-5	H ₂ O
Amonyak Sentezi	ZSM-5	H ₂ O ve/veya CH ₃ OH
Ksilen izomerizasyonu	MFI	NH ₃
Propenin metatezi	Silikalit-1	p-ksilen
Fermentasyon	Silikalit-1	Trans-2-bütan
i-bütanın oligomerizasyonu	Zeolit β	Etanol
Metanolün olefinlere dönüşümü	ZSM-5	i-Bütan
1-penten epoksidasyonu	Ti-silikalit-1	Metanol
Trikloroetilenin fotokatalitik oksidasyonu	Ti-silikalit-1	1,2-epoksipentan
Parafinlerin izomerizasyonu	Silikalit-1	Kirletici maddeler
		Dönüşmemiş reaktanlar

3.2.4 Adsorpsiyonlu ısı pompası

Adsorpsiyonlu ısı pompaları, güneş enerjisi ve atık ısı kaynaklarını kullanarak ısıtma ve soğutma etkisi sağlayabilen cihazlardır. Geleneksel sistemlerde, adsorban toz veya granül şeklinde kullanılmaktadır. Bu durumda, adsorban ile ısı değiştirici arasındaki zayıf temastan ve adsorban yatağının düşük ısıl iletkenliğinden dolayı bir ısı iletimi direnci olmaktadır. Bu cihazları geleneksel buhar sıkıştırmalı ısı pompaları karşısında daha etkin hale getirmek adına, araştırmalar adsorberdeki ısı ve kütle

iletimini iyileştirmeye yoğunlaşmıştır. Metal altlıklar üzerinde hazırlanan zeolit kaplamalar ısı ve kütle iletimi üzerinde kayda değer gelişmeler sağlamıştır [2].

4. DENEYSEL ÇALIŞMA

Metal altlığın indüksiyon ile ısıtıldığı zeolit kaplama sistemi için; bir adet reaktör, bir adet indüksiyon cihazı, bir adet kreostat, bir adet peristaltik pompa, iki adet ısıl çift, bir adet basınç tankı, yeteri kadar hortum ve hortum kısıkaçları kullanılmıştır. İletken olmaması, yüksek sıcaklığa ve aşındırıcı ortama dayanıklılığı sebebiyle reaktör teflondan yapılmıştır. Metal altlığın ısıtılmasını sağlayan indüksiyon cihazının çalışma aralığı 10 kW ile 40 kW arasında olup, indüksiyon cihazına bağlı sarmal reaktörü saracak şekilde tasarlanmıştır. Başlangıç olarak sentez karışımının sisteme beslenmesi ve daha sonrasında sirkülasyonu sağlayan peristaltik pompa 24 ml/dak ile 1994 ml/dak debi aralığına sahiptir. Peristaltik pompanın gücü 125 W'tır. Reaktörde ısınan sentez karışımını soğutmak amacıyla kullanılan kreostatın iç hacmi 14 litredir. Sistemde yüksek sıcaklığa ve yüksek bazikliğe sahip sentez karışımına dayanabilen silikon hortumlar kullanılmıştır. Silikon hortumların iç çapı 10 mm, cidar kalınlığı ise 1 mm'dir.

İlk olarak sisteme peristaltik pompa ile sentez karışımı beslenmektedir. Hortumlar ve reaktör tamamen sentez karışımı ile doldurulduktan sonra sentez karışımını besleyen hat hortum kısıkaçlarıyla kapatılarak sentez çözeltisinin sistemde sirkülasyonu sağlanmaktadır. İndüksiyon cihazı, sistem yatışkın hale geldikten sonra açılmaktadır. Metal altlığın sürekli olarak indüksiyon cihazı ile ısıtılması sağlanırken, reaktörden ısınarak çıkan sentez karışımı kreostat yardımıyla soğutulmaktadır. Böylelikle sistemin yatışkın halde kalması sağlanmaktadır. Reaktöre giren ve çıkan sentez karışımının sıcaklığı ısıl çiftler yardımıyla takip edilmektedir.

Sistemde kullanılan metal altlıklar; paslanmaz çelik 316L'den üretilmiş tek ya da çift katlı metal elek silindirlerdir. Deneylerde cm^2 'de sahip oldukları delik (mesh) sayısına göre farklı tip (60, 100, 300 ve 500 mesh) metal elekler kullanılmıştır. Çift katlı altlıklar iki metal eleğin birbirine kaynaklanmasıyla yapılmışlardır. Deneylerin çoğunda iç silindirin 60 mesh, dış silindirin ise 300 mesh olduğu çift katlı altlıklar kullanılmıştır.

Sistemin farklı indüksiyon gücü, debi, kreostat sıcaklığı ve metal elek tipi koşullarındaki davranışlarını anlayabilmek adına sistemde su kullanılarak kalibrasyon deneyleri yapılmıştır. Bu kalibrasyon deneyleri sonucunda istenen giriş ve çıkış sıcaklıkları ile giriş ve çıkış sıcaklığı farkları bulunmuştur.

Metal altlıklar kullanılmadan önce üç aşamalı bir yıkama işlemine tabi tutulmuştur. Birinci aşamada, altlıklar 40°C'deki toluen içinde 30 dakika bekletilmiştir. Ardından, hacimce 1 ölçü H₂O₂ (%30), 1 ölçü NH₄OH (%25) ve 5 ölçü deiyonize sudan oluşan çözeltinin içinde 30 dakika süreyle yıkama yapılmıştır. Bu çözeltinin sıcaklığı da 40°C'de tutulmuştur. Bu işlemlerden sonra altlıklar, musluk suyuyla yıkandıktan sonra deiyonize su ile yıkanmış, 105°C'deki etüve konarak kurutulmuştur.

Sentez bileşimlerinin hazırlanmasında aluminyum kaynağı olarak 1.249Na₂O.Al₂O₃.0.524H₂O bileşimine sahip sodyum aluminat ve silisyum kaynağı olarak 0.2871Na₂O.SiO₂.8.0282H₂O bileşimine sahip sodyum silikat ile sodyum hidroksit (NaOH) ve deiyonize su kullanılmıştır.

Deney boyunca reaktöre giriş ve reaktörden çıkış sıcaklıkları takip edilerek kaydedilmiştir. Laboratuvar sıcaklığı ve kreostat sıcaklığı da belirli aralıklarda not edilmiştir. Deneyin bitiminden sonra reaktörden çıkarılan zeolit kaplı metal altlık distile suda yıkanmış ve 50°C'deki etüvde tutularak kurutulmuştur. Kurutma işleminden sonra, 50°C'de kurutulmuş kaplama öncelikle desikatöre alınarak burada ortam sıcaklığına soğuması beklenmiş ve daha sonrasında tartım alınmıştır. Kurutulmuş kaplamanın tartımı alındıktan sonra, kontrollü rutubet ortamına alınan kaplama burada bekletilerek su ile doyması sağlanmıştır. Hazırlanan kaplamaların kristalinitesini anlamak amacıyla üzerlerinden alınan örnekler termogravimetrik analiz (TGA) uygulanmıştır. Bu amaçla, kontrollü rutubet ortamında bekletilmiş örnekler, 20°C/dak ile 350°C'ye ısıtılmıştır. Buradan elde edilen değerler ile kaplamanın kaybettiği nem oranı bulunmuş ve buradan da kristalinite tahmini yapılmıştır. Gerek görüldüğünde örnekler X-ışını kırınımı (XRD) analizi de uygulanmıştır.

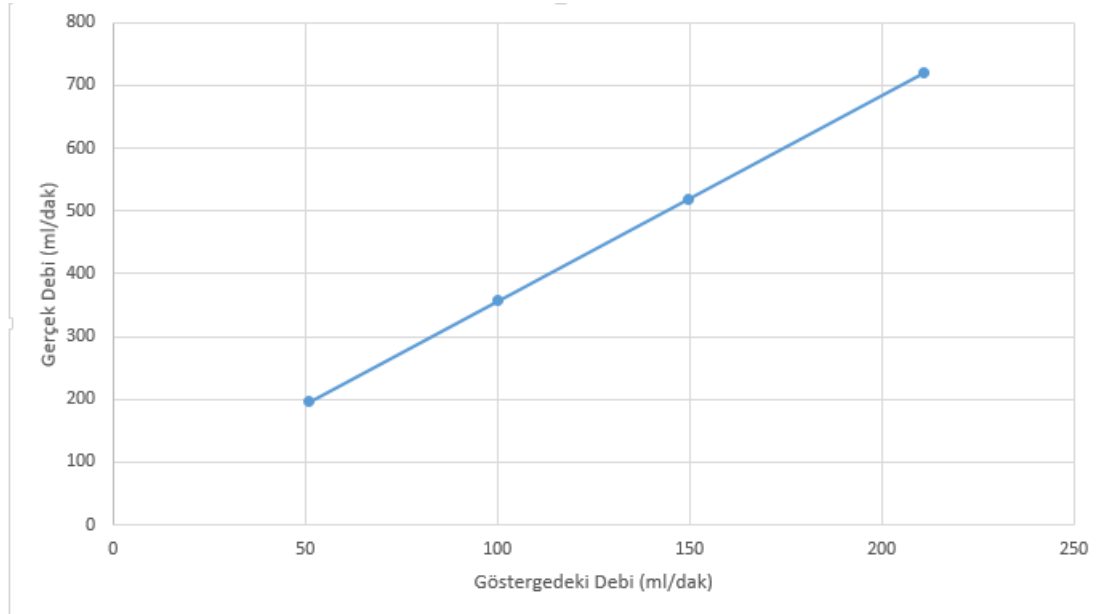
5. DENEYSEL SONUÇLAR VE TARTIŞMA

5.1 Pompanın Kalibre Edilmesi

Deney düzeneğinde kullanılan pompanın türü peristaltiktir. Sistemde kullanılan pompanın göstergesinde, farklı hortum çapları için aynı dönüş sayısına karşılık farklı debi değerleri gözükmemektedir. Deneylerde kullanılan hortum çapı pompanın göstergesinde yer almamaktadır. Bu nedenle, göstergedeki debi ile gerçek debi birbirinden farklıdır. Bu amaçla kalibrasyon deneyleri yapılmıştır. Çizelge 5.1’de göstergedeki farklı debilere karşılık olarak gerçek debiler gösterilmiştir. Gerçek debi değerleri ve göstergedeki debi değerleri ile oluşturulan grafik de Şekil 5.1’de verilmiştir.

Çizelge 5.1: Pompa göstergesindeki debi ve gerçek debi değerleri.

Göstergedeki Debi (ml/dak)	Gerçek Debi (ml/dak)
51	196.35
100.3	357.78
149.6	519.19
210.8	719.58



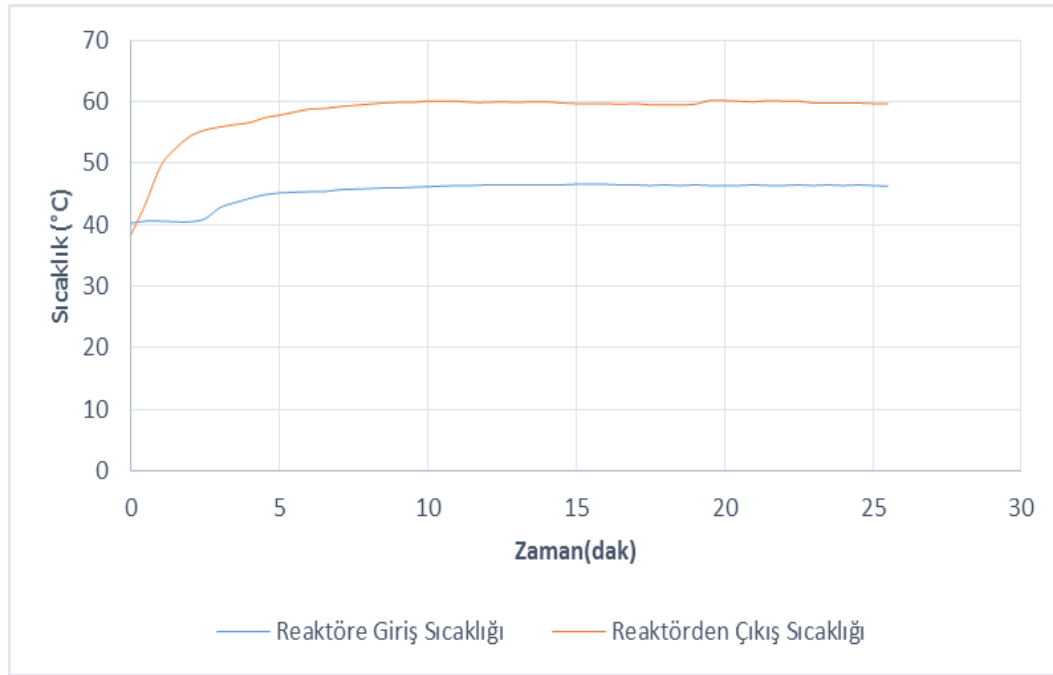
Şekil 5.1: Göstergedeki debiye karşılık gerçek debi grafiği.

Şekil 5.1’de gerçek debi ile göstergedeki debi arasında lineer bir ilişki olduğu görülmektedir. Eşitlik (5.1)’de bu lineer ilişki gösterilmiştir. Eşitlikte F deneysel olarak bulunan gerçek debiyi, G ise göstergedeki debiyi göstermektedir.

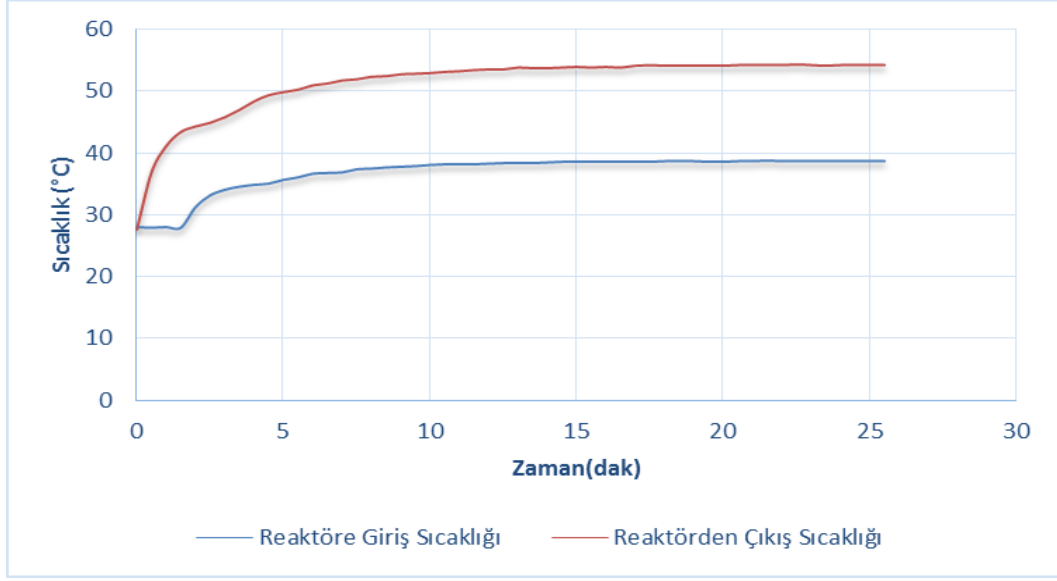
$$F = 3.274 \times G + 29.365 \quad (5.1)$$

5.2 Deney Parametrelerinin Giriş ve Çıkış Sıcaklıklarına Etkileri

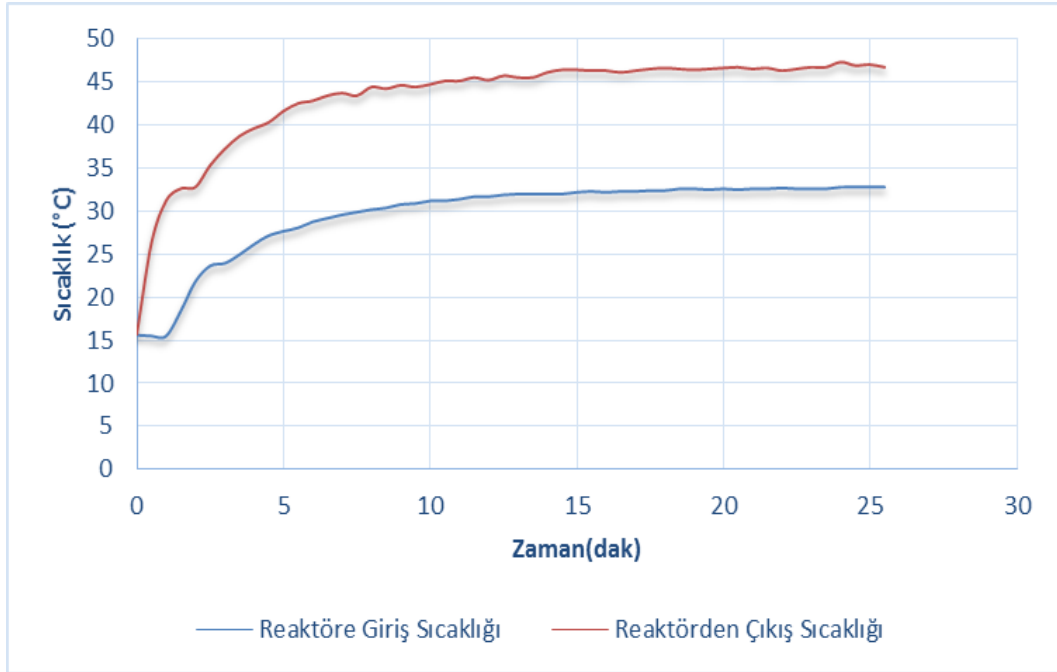
Sentez karışımının reaktöre giriş ve reaktörden çıkış sıcaklıkları, indüksiyon gücü, debi, kreostat sıcaklığı ve metal altlığın cinsine göre değişmektedir. Bu değişkenlerin sıcaklıklara etkilerini incelemek amacıyla su ile deneyler yapılmıştır. Önce sistem su ile doldurularak yatışkan hale gelmesi beklenmiş daha sonra indüksiyon cihazı çalıştırılmıştır. Reaktöre giriş ve reaktörden çıkış sıcaklıkları yatışkın hale gelinceye kadar beklenmiştir ve bir süre yatışkın hal izlendikten sonra deney sonlandırılmıştır. Farklı indüksiyon gücü, debi ve kreostat sıcaklığında yapılan deneylerin zaman-sıcaklık grafiklerine örnekler Şekil 5.2, Şekil 5.3 ve Şekil 5.4’te verilmiştir.



Şekil 5.2: Sıcaklık-zaman grafiği (indüksiyon gücü: 10 kW, kreostat sıcaklığı: 45°C, debi: 357.78 ml/dak).



Şekil 5.3: Sıcaklık-zaman grafiği (indüksiyon gücü: 12 kW, kreostat sıcaklığı: 30°C, debi: 519.19 ml/dak).



Şekil 5.4: Sıcaklık-zaman grafiği (indüksiyon gücü: 15 kW, kreostat sıcaklığı: 15°C, debi: 719.58 ml/dak).

Metal altlık ile sistemdeki akışkan arasındaki sıcaklık farkını hesaplamak için reaktör giriş ve çıkış sıcaklıkları kullanılmıştır. Öncelikle Eşitlik (5.2) ile metal altlığa indüksiyon tarafından verilen güç hesaplanmıştır.

$$P = F \times \rho \times C_p \times \Delta T_{g-\text{ç}} \times \frac{1}{60} \quad (5.2)$$

Burada P metal altlığa verilen gücü (W), F debiyi (ml/dak) ρ yoğunluğu (g/ml), C_p özgül ısı kapasitesini (J/g.°C) ve $\Delta T_{g-ç}$ reaktör giriş ve çıkış sıcaklıkları arasındaki farkı (°C) göstermektedir. Metal altlığa aktarılan ısı hesaplandıktan sonra, metal altlık ile akışkan arasındaki sıcaklık farkını hesaplamak için Eşitlik (5.3) kullanılmıştır.

$$\Delta T_{m-s} = \frac{P}{A \times U} \quad (5.3)$$

Eşitlik (5.3)'de ΔT_{m-s} metal altlık ile akışkan arasındaki sıcaklık farkını (°C), A metal altlığın yüzey alanını (m^2), U ise toplam ısı aktarım katsayısını (W/ $m^2 \cdot ^\circ C$) belirtmektedir.

Sistemin yatışkın haldeki reaktör giriş ve çıkış sıcaklıklarını, metal altlık ile akışkan arasındaki sıcaklık farkını, reaktördeki ortalama sıcaklıkları anlamak için; farklı indüksiyon gücü, debi ve kreostat sıcaklıklarında deneyler yapılmıştır. Bu deneylerde metal altlık olarak 60 mesh üzerine kaynaklanmış 300 mesh metal elek kullanılmıştır. Bu deneylerin sonuçları Çizelge 5.2, Çizelge 5.3 ve Çizelge 5.4'te gösterilmiştir.

Çizelge 5.2: İndüksiyon cihazının gücü 10 kW'a ayarlandığı durumda farklı debi ve kreostat sıcaklığının etkileri.

Debi (ml/dak)	Kreostat Sıcaklığı (°C)	Giriş Sıcaklığı (°C)	Çıkış Sıcaklığı (°C)	$\Delta T_{g-ç}$ (°C)	Reaktördeki ortalama sıcaklık (°C)	P (W)	ΔT_{m-s} (°C)
357.78	30	34.5	52.6	18.1	43.55	453.30	32.08
357.78	35	38.5	56.5	18	47.5	450.79	31.90
357.78	40	42.4	56.8	14.4	49.6	360.63	25.52
357.78	45	46.4	57.6	13.1	52.95	328.08	23.22
519.19	30	36.6	48.8	12.2	42.7	443.39	31.38
519.19	35	40.5	52.4	11.9	46.45	432.49	30.60
519.19	40	44.3	54.8	10.5	49.55	381.60	27.01
519.19	45	49.2	59.6	10.4	54.4	377.97	26.75
719.58	30	36.8	44.9	8.1	40.85	408.00	28.87
719.58	35	42	50	8	46	402.97	28.52
719.58	40	45.9	53.4	7.5	49.65	377.78	26.74
719.58	45	50.4	57.6	7.2	54	362.67	25.67

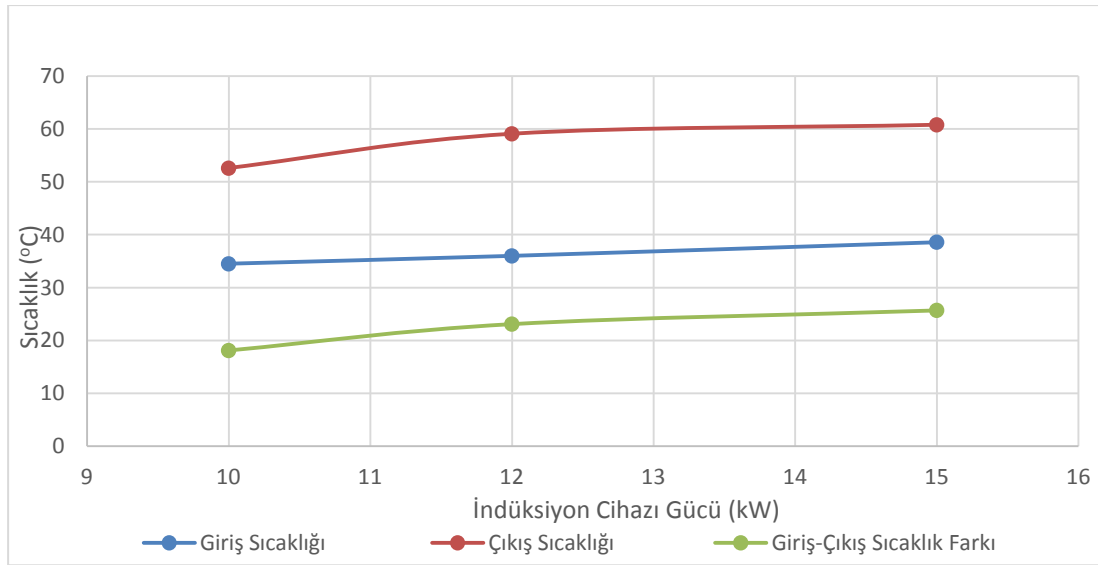
Çizelge 5.3: İndüksiyon cihazının gücü 12 kW'a ayarlandığı durumda farklı debi ve kreostat sıcaklığının etkileri.

Debi (ml/dak)	Kreostat Sıcaklığı (°C)	Giriş Sıcaklığı (°C)	Çıkış Sıcaklığı (°C)	$\Delta T_{g-ç}$ (°C)	Reaktördeki ortalama sıcaklık (°C)	P (W)	ΔT_{m-s} (°C)
357.78	20	27.9	50.5	22.6	39.2	566	40.06
357.78	25	32.1	54.2	22.1	43.15	553.47	39.17
357.78	30	36	59.1	23.1	47.55	578.52	40.94
357.78	35	39.5	60.3	20.8	249.9	520.92	36.87
519.19	20	31.1	46.7	15.6	38.9	566.96	40.12
519.19	25	34.5	49.8	15.3	42.15	556.06	39.35
519.19	30	38.6	54.3	15.7	46.45	570.60	40.38
519.19	35	42.2	56.1	13.9	49.15	505.18	35.75
719.58	20	32.9	44.4	11.5	38.65	579.26	41
719.58	25	36.2	47.5	11.3	41.85	569.19	40.28
719.58	30	40.9	51.9	11	46.4	554.08	39.21
719.58	35	44.2	53.8	9.6	49	483.56	34.22

Çizelge 5.4: İndüksiyon cihazının gücü 15 kW'a ayarlandığı durumda farklı debi ve kreostat sıcaklığının etkileri.

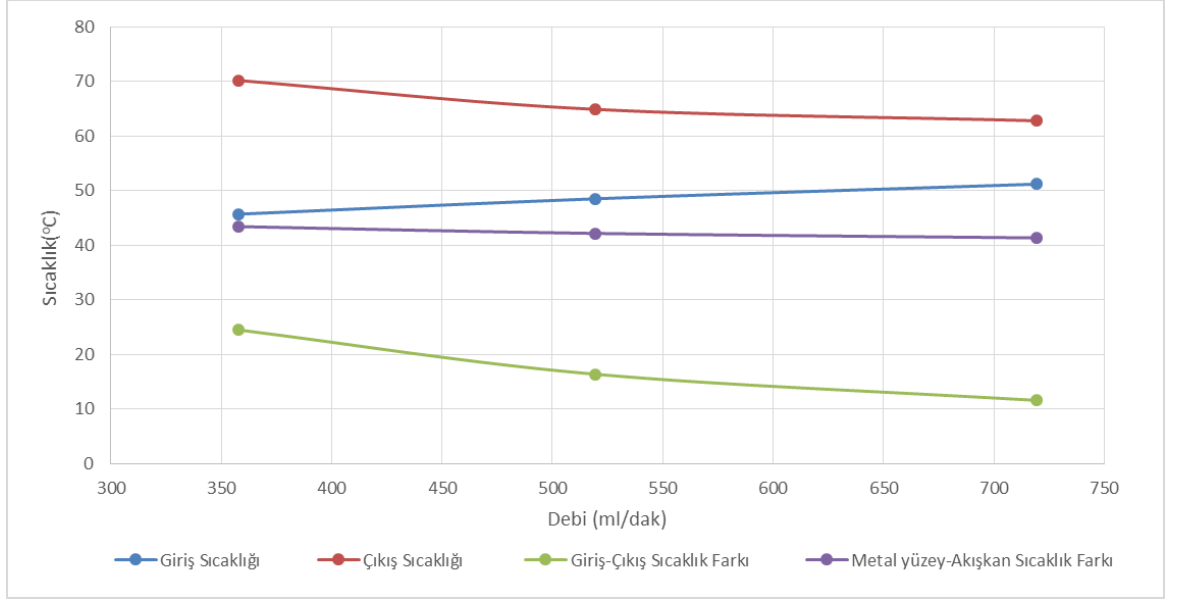
Debi (ml/dak)	Kreostat Sıcaklığı (°C)	Giriş Sıcaklığı (°C)	Çıkış Sıcaklığı (°C)	$\Delta T_{g-ç}$ (°C)	Reaktördeki ortalama sıcaklık (°C)	P (W)	ΔT_{m-s} (°C)
357.78	15	27.6	55.1	27.5	41.35	688.71	48.74
357.78	20	30.3	60.4	30.1	45.35	753.83	53.35
357.78	25	36	60.8	24.8	48.4	621.09	43.96
357.78	30	38.6	64.3	25.7	51.45	643.63	45.55
357.78	40	45.7	70.2	24.5	57.95	584.30	43.42
357.78	45	52.2	78.4	26.2	65.3	656.15	46.44
357.78	50	55.7	82.1	26.4	68.9	661.16	46.79
357.78	55	59.4	84.8	25.4	72.1	636.12	45.01
519.19	15	31.4	49.6	18.2	40.5	661.45	46.81
519.19	20	33.2	53.4	20.2	43.3	734.14	51.96
519.19	25	39.6	58	18.4	48.8	668.72	47.33
519.19	30	42.3	60.1	17.8	51.2	646.92	45.78
519.19	35	45.4	62.1	16.7	53.75	606.94	42.95
519.19	40	48.5	64.9	16.4	56.7	596.04	42.18
519.19	45	54.7	71.7	17	63.2	617.84	43.73
519.19	50	58.7	75.8	17.1	67.25	621.15	43.98
519.19	55	62.2	78.8	16.4	70.5	603.30	42.70
719.58	15	31.7	45.5	13.9	38.6	695.05	49.19
719.58	20	36.3	50.8	14.5	43.55	730.37	51.69
719.58	25	43.4	56.5	13.1	49.95	659.86	46.70
719.58	30	44.1	56.4	12.3	50.25	619.56	43.85
719.58	35	47.6	59.9	12.3	53.75	619.56	43.85
719.58	40	51.2	62.8	11.6	57	584.30	41.35
719.58	45	56.3	67.5	11.2	61.9	564.15	39.93
719.58	50	61.8	74.1	12.3	67.95	619.56	43.85
719.58	55	65.1	77.9	12.8	71.5	644.76	45.63

Yapılan deneyler sonucunda indüksiyon gücündeki artışın reaktör giriş ve çıkış sıcaklıkları arasındaki farkı arttırdığı görülmüştür. Buna bağlı olarak; kreostat sıcaklığı ve debinin aynı, sadece indüksiyon gücünün değişken olduğu durumlarda verilen gücün, metal altlık yüzey sıcaklığı ile akışkan arasındaki sıcaklık farkını ve reaktördeki ortalama sıcaklığı artırdığı belirlenmiştir. Şekil 5.5'te kreostat sıcaklığının 30°C ve debinin 357.78 ml/dak olduğu durumda farklı indüksiyon gücü değerlerinin reaktör giriş ve çıkış sıcaklığına etkisini gösteren grafik verilmiştir. Grafik incelendiğinde indüksiyon gücü arttıkça reaktör giriş ve çıkış sıcaklıkları arasındaki farkın da arttığı görülmektedir.

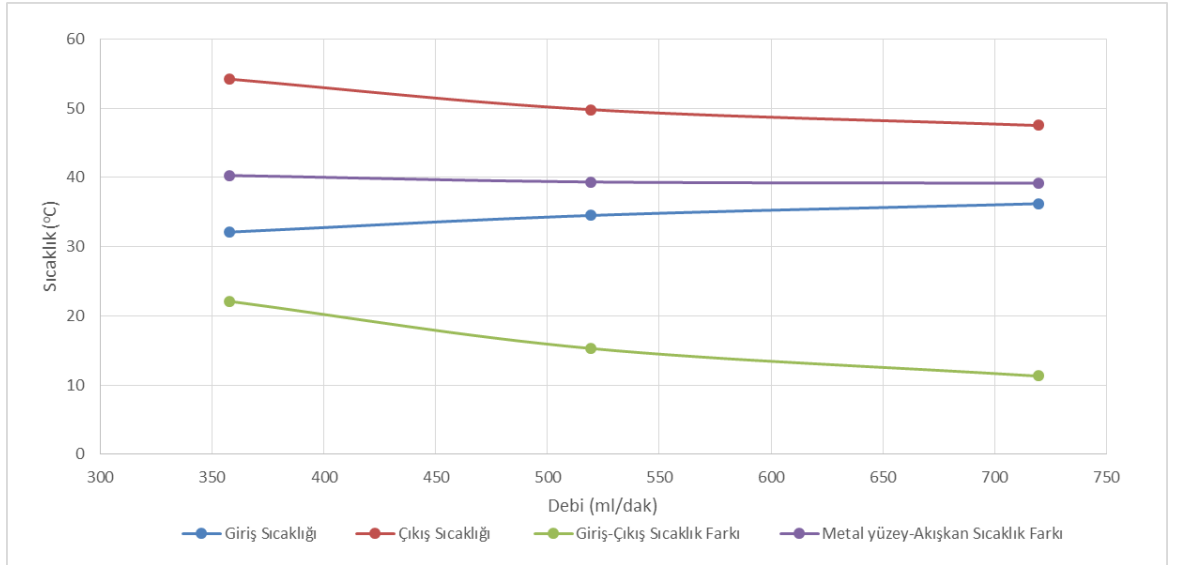


Şekil 5.5: İndüksiyon gücünün sistem sıcaklıklarına etkisi (kreostat sıcaklığı: 30°C, debi: 357.78 ml/dak).

Debinin reaktör giriş ve çıkış sıcaklıkları üzerindeki etkileri incelendiğinde; indüksiyon gücünün ve kreostat sıcaklığının aynı kaldığı durumlarda debinin artmasıyla giriş sıcaklığının yükseldiği ancak çıkış sıcaklığının düştüğü, bir başka deyişle reaktör giriş ve çıkış sıcaklıkları arasındaki farkın azaldığı görülmüştür (Şekil 5.6). İndüksiyon gücünün ve kreostat sıcaklığının aynı olduğu, debinin değiştiği durumlarda metal altlık yüzeyi ile akışkan arasındaki ortalama sıcaklık farkının yaklaşık olarak aynı kaldığı belirlenmiştir. Şekil 5.6 ve Şekil 5.7'de, indüksiyon gücünün ve kreostat sıcaklığının aynı tutulduğu durumda, debinin sıcaklıklara etkileri gösterilmiştir.



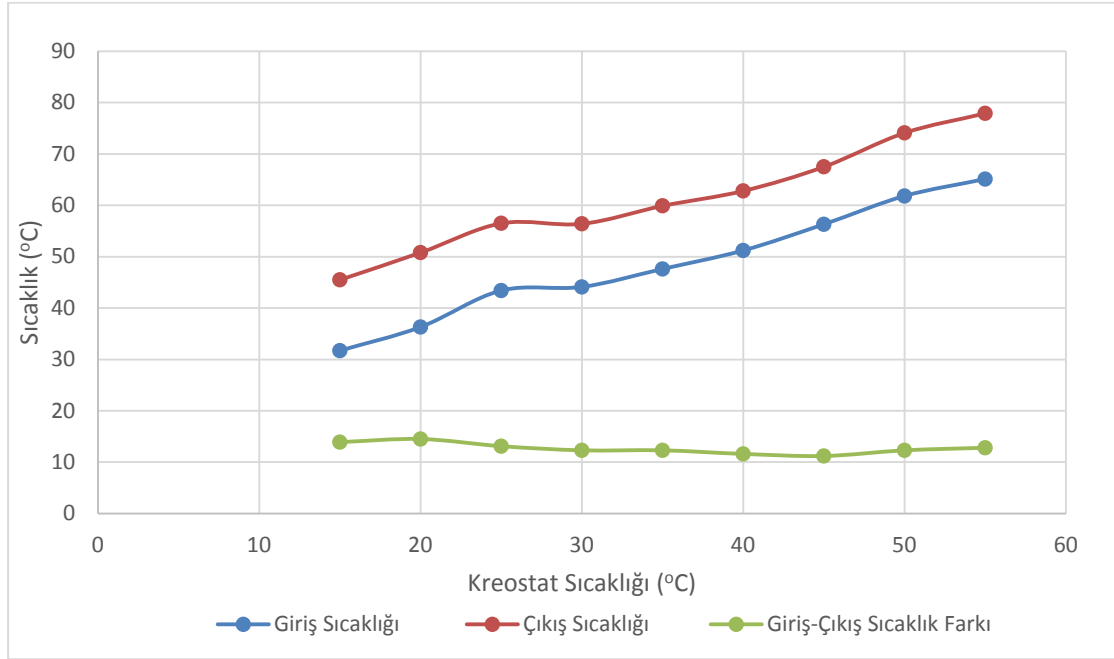
Şekil 5.6: Debinin sistem sıcaklıklarına etkisi (indüksiyon gücü: 15 kW, kreostat sıcaklığı: 40°C).



Şekil 5.7: Debinin sistem sıcaklıklarına etkisi (indüksiyon gücü: 12 kW, kreostat sıcaklığı: 25°C).

Sistem değişkenlerden bir diğeri de kreostat sıcaklığıdır. Kreostat sıcaklığının sistem üzerindeki etkilerini incelemek için indüksiyon gücü ve debi sabit tutulmuştur. Kreostat sıcaklığı yükseldiğinde, hem reaktör giriş sıcaklığı hem de çıkış sıcaklığının yükseldiği gözlenmiştir. Buna bağlı olarak reaktördeki ortalama sıcaklık da yükselmiştir. Reaktör giriş ve çıkış sıcaklıkları arasındaki fark ise yaklaşık olarak

sabit kalmıştır. Şekil 5.8’de debinin 719.58 ml/dak ve indüksiyon gücünün 15 kW olduğu durumda kreostat sıcaklığının sistem üzerindeki etkileri gösterilmiştir.



Şekil 5.8: Kreostat sıcaklığının sistem sıcaklıklarına etkisi (indüksiyon gücü: 15 kW, debi: 719.58 ml/dak).

Sistemde farklı tip metal altlıklar kullanıldığında; aynı reaktör giriş ve çıkış sıcaklıklarını bulmak için farklı deney değişkenleri uygulanması gerekmiştir. Deneylerde 60 mesh metal eleğin üzerine kaynaklanmış 300 mesh metal elekten oluşan altlıklara (60/300) ek olarak, 60 mesh elek üzerine kaynaklanmış 500 mesh elek (60/500) ve 60 mesh elek üzerine kaynaklanmış 100 mesh elekten (60/100) oluşan çift katlı altlıklar ile tek katlı 100 mesh metal elekten oluşan altlıklar da kullanılmıştır. Çizelge 5.5 ve Çizelge 5.6’da, debi ve kreostat sıcaklığı aynı tutulduğunda, kullanılan farklı altlık türlerinin, benzer reaktör giriş ve çıkış sıcaklıkları elde etmek için gereken indüksiyon gücü üzerindeki etkileri verilmiştir.

Çizelge 5.5: Farklı altlık türlerinin indüksiyon gücü ve sistem sıcaklıkları üzerindeki etkileri (debi: 357.78 ml/dak, kreostat sıcaklığı: 35°C).

Mesh Türü	İndüksiyon gücü (kW)	Giriş Sıcaklığı (°C)	Çıkış Sıcaklığı (°C)	$\Delta T_{g-ç}$ (°C)	Reaktördeki ortalama sıcaklık (°C)	P (W)	ΔT_{m-s} (°C)
100	23.5	39.5	60.6	21.1	50.05	528.43	37.4
60/100	11	40.1	60.4	20.3	50.25	508.39	35.98
60/300	12	39.5	60.3	20.8	49.9	520.92	36.87
60/500	13.5	39.9	60.3	20.4	50.1	510.9	36.16

Çizelge 5.6: Farklı altlık türlerinin indüksiyon gücü ve sistem sıcaklıkları üzerindeki etkileri (debi: 357.78 ml/dak, kreostat sıcaklığı: 65°C).

Mesh Türü	İndüksiyon gücü (kW)	Giriş Sıcaklığı (°C)	Çıkış Sıcaklığı (°C)	$\Delta T_{g-ç}$ (°C)	Reaktördeki ortalama sıcaklık (°C)	P (W)	ΔT_{m-s} (°C)
100	24	64.4	82.6	18.2	73.5	455.80	32.26
60/100	11	63.3	82.9	19.6	73.1	490.86	34.74
60/300	12	64.8	83.9	19.1	74.35	478.34	33.85
60/500	13.5	63.2	82.3	19.1	72.75	478.34	33.85

Farklı metal altlık türlerinin sistem sıcaklıkları üzerindeki etkilerini incelemek için, reaktör giriş ve çıkış sıcaklıklarının aynı değerlere sahip olması sağlanmıştır. Farklı mesh sayısına sahip iki metal eleğin kaynaklanması ile üretilen altlıkların, aynı reaktör giriş ve çıkış sıcaklıklarına sahip olabilmesi için gereken indüksiyon güçleri karşılaştırılmıştır. 60 mesh metal elek üzerine kaynaklanan metal eleğin mesh sayısı arttıkça gereken indüksiyon gücünün de arttığı gözlenmiştir. Ayrıca tek katlı 100 mesh metal elek ile 60 mesh metal elek üzerine kaynaklanmış 100 mesh metal elek karşılaştırıldığında tek katlı metal eleğin ısıtılması için gereken indüksiyon gücünün daha fazla olduğu da görülmüştür.

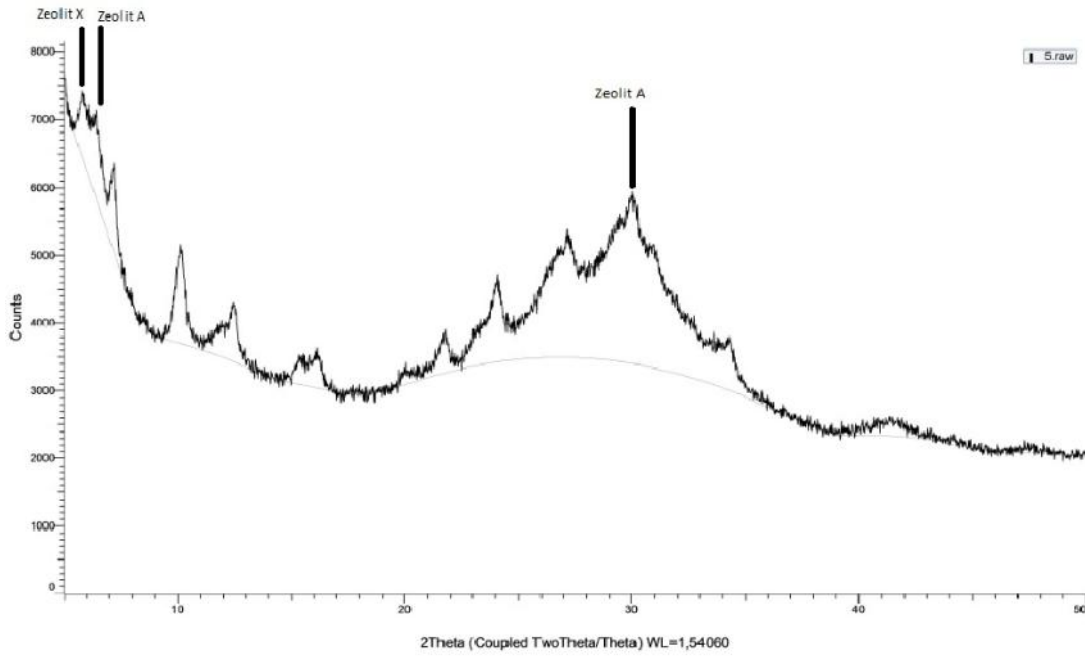
5.3 Zeolit Kaplama Deneyleri

Kalın zeolit kaplamaları hazırlayabilmek için, farklı zeolit sentez karışımları ile farklı debi ve indüksiyon gücü değerleri ve farklı metal altlık türleri denenmiştir. Deneylerde, öncelikle yüksek kristalinitenin sağlanabildiği reaktör giriş ve çıkış sıcaklıklarının bulunması amaçlanmıştır. Bu doğrultuda $70\text{Na}_2\text{O} : 1\text{Al}_2\text{O}_3 : 15\text{SiO}_2 : 2100\text{H}_2\text{O}$ molar bileşimine sahip Zeolit X sentez karışımı ile deneyler yapılmıştır. Bu deneylerin koşulları ve sonuçları Çizelge 5.7’de verilmiştir. TGA analizleri, hazırlanan kaplamaların üst, orta ve alt taraflarından alınan örneklerin karıştırılmasıyla elde edilen temsili örneklerle uygulanmıştır. Şekil 5.9 ve Şekil 5.10’da 5 numaralı ve 6 numaralı deneylerden alınan örneklerin XRD sonuçları verilmiştir. 5 numaralı deneye ait giriş ve çıkış sıcaklıklarının zamanla değişimi Şekil 5.11’de verilmiştir.

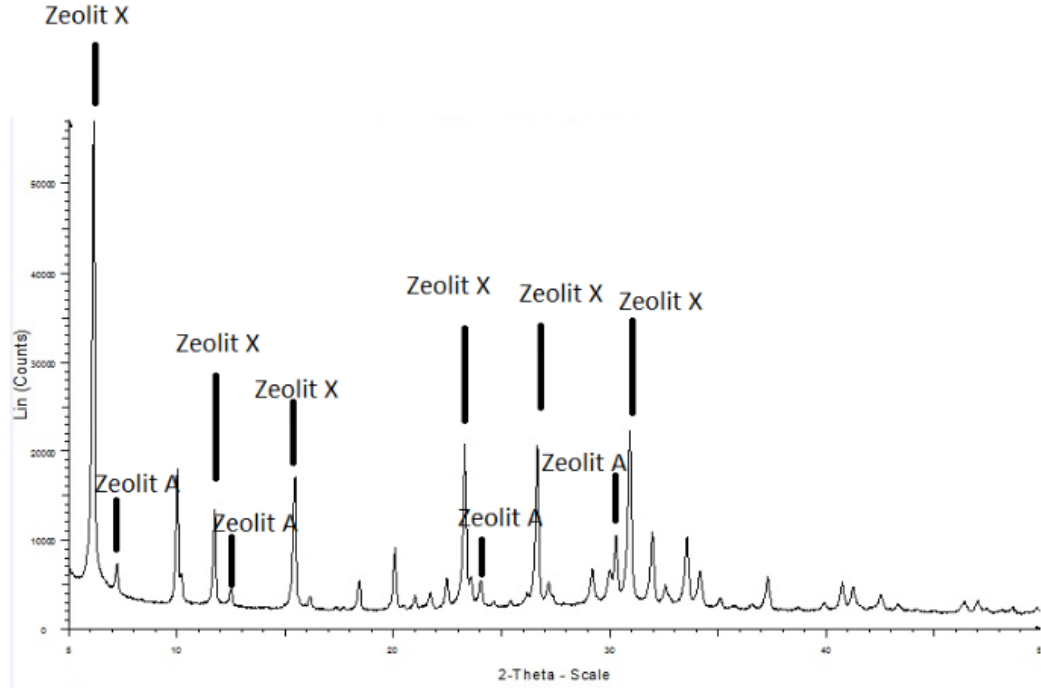
Çizelge 5.7: Yüksek kristalinitede Zeolit X elde edebilmek için yapılan sıcaklık deneyleri.

Deney Numarası	1	2	3	4	5	6
İndüksiyon Gücü (kW)	10	12	12	12	12	12
Debi (ml/dak)	719.19	719.19	719.19	719.19	357.78	357.78
Kreostat Sıcaklığı (°C)	15	15	15	35	35	65
Süre (saat)	4	4	8	8	8	8
Giriş Sıcaklığı (°C)	28.9	33.3	32.2	44.5	41.3	64.6
Çıkış Sıcaklığı (°C)	39.1	43.2	42.5	53.5	58.9	82
Giriş-Çıkış Sıcaklık Farkı (°C)	10.2	9.9	10.3	12.2	19.4	17.4
Ortalama Sıcaklık (°C)	34.0	38.3	37.4	47.4	49.2	74.4
Kurutulmuş Kaplama Ağırlığı (g)	0.094	0.222	0.4803	0.3203	0.673	5.732
Nemli Kaplama Ağırlığı (g)	0.098	0.230	0.5031	0.3328	0.687	5.806
1. TGA (%)	- *	14.64	17.44	21.58	14.81	22.98
2. TGA (%)	- *	0.04	2.76	5.63	6.8	22.93

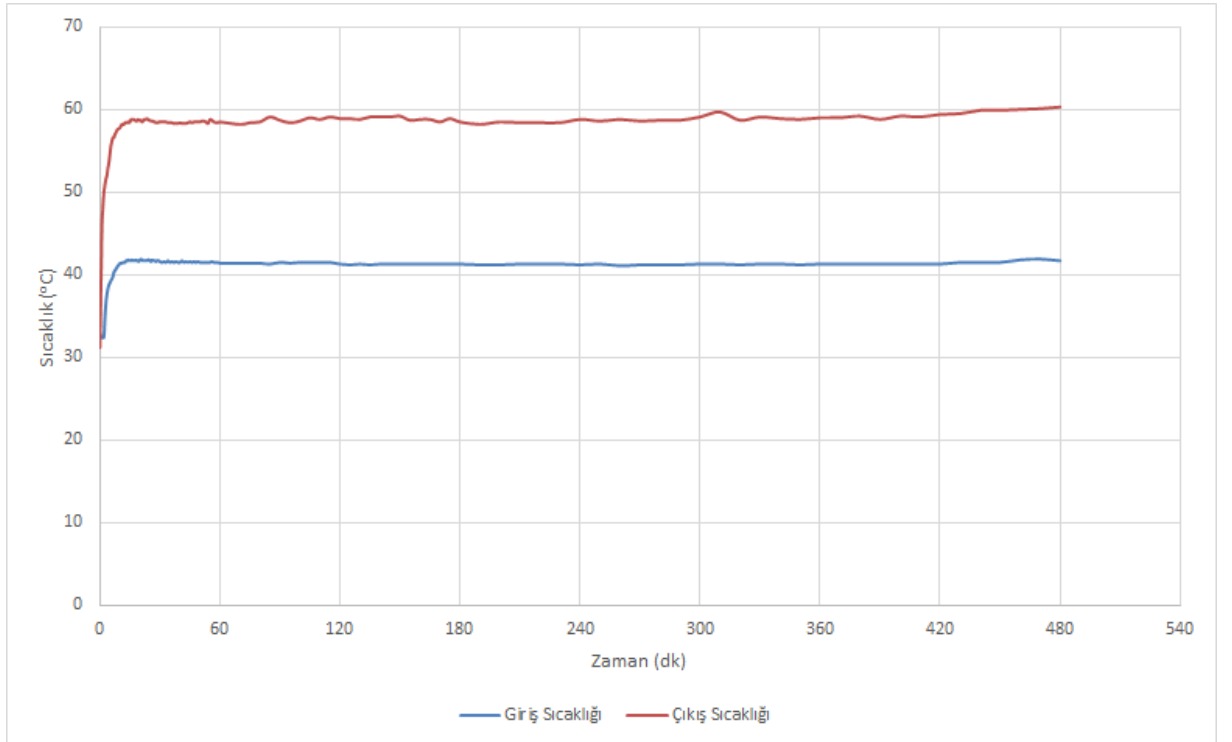
*Kaplama az olduğu için TGA için örnek alınamamıştır.



Şekil 5.9: 5 numaralı deneyde elde edilen kaplamanın XRD sonuçları.



Şekil 5.10: 6 numaralı deneyde elde edilen kaplamanın XRD sonuçları.



Şekil 5.11: 5 numaralı deneyde reaktör giriş ve çıkış sıcaklıklarının zamanla değişimi.

Yapılan deneylerde giriş ve çıkış sıcaklıklarının yükselmesiyle birlikte, her numune için gerçekleştirilen ikinci TGA deneylerinde elde edilen su desorpsiyon kapasitelerinin de yükseldiği görülmüştür. Bu da sıcaklık yükseldikçe istenilen

yüksek kristaliniteye ulaşıldığını göstermektedir. 5 numaralı deneyde kaplamadan alınan örneklerle uygulanan XRD sonucu (Şekil 5.9) incelendiğinde piklerin taban çizgisinin oldukça yüksek bir konumda bulunduğu ancak Zeolit A ve Zeolit X piklerinin de mevcut olduğu görülmüştür. Bu durum, kaplamada Zeolit X ve Zeolit A'nın oluşmaya başladığını ancak kaplamanın yüksek oranda amorf yapıda olduğunu göstermektedir. Şekil 5.10'da verilmiş olan 6 numaralı deneyde kaplama üzerinden alınan örneklerle uygulanan XRD sonuçları incelendiğinde, Zeolit X'e ait piklerin baskın olduğu ve ayrıca Zeolit A'ya ait piklerin de olduğu görülmüştür. Saf halde Zeolit X'in nem kaybının %24 ve Zeolit A'nın %18 olduğu [26] düşünüldüğünde, XRD ile TGA sonuçları birlikte tartışıldığında, kaplamada Zeolit A'nın varlığının nem tutma kapasitesini az da olsa düşürdüğü görülmüştür. 2 ve 3 numaralı deneyler karşılaştırıldığında ise düşük sıcaklıklarda zamanla birlikte kristalinitenin bir miktar arttığı gözlenmiştir.

5.3.1 Sentez bileşiminin kaplama özellikleri üzerindeki etkileri

Kaplama ağırlığı ve yapısının sentez karışımının molar bileşimi ile değişimini görmek için farklı zeolit sentez karışımları denenmiştir. Farklı H_2O/Na_2O , SiO_2/Al_2O_3 , H_2O/SiO_2 oranına sahip bileşimlerle yapılan deneylerin koşulları ve sonuçları Çizelge 5.8'de verilmiştir. 10 numaralı deneyde altlığın alt tarafından alınan örneğin XRD sonucu Şekil 5.12'de, üst tarafından alınan örneğin XRD sonucu ise Şekil 5.13'te verilmiştir. Şekil 5.14'te 9 numaralı deneyin, deney süresince giriş ve çıkış sıcaklıklarının değişimi gösterilmiştir.

Çizelge 5.8: Farklı bileşimlerle yapılan zeolit kaplama deneyleri.

Deney Numarası	6	7	8*	9	10
İndüksiyon Gücü (kW)	12	13.5	13.5	13.5	13.5
Debi (ml/dak)	357.78	357.78	357.78	357.78	357.78
Kreostat Sıcaklığı (°C)	65	65	65	65	65
Süre (saat)	8	8	5.5	8	8
H_2O/Na_2O	30	30	30	30	30
SiO_2/Al_2O_3	15	15	12.1	12.5	12
H_2O/SiO_2	140	100	130	130	140
Molar Bileşim					
($Na_2O: Al_2O_3:$	70:1:	50:1:	52:1:	54:1:	56:1:
$SiO_2: H_2O$)	15:2100	15:1500	12.1:1560	12.5:1625	12:1680
Giriş Sıcaklığı (°C)	64.6	64.3	64.9	64.7	64.4
Çıkış Sıcaklığı (°C)	82	83.7	84.8	84.7	85
Giriş-Çıkış Sıcaklık Farkı (°C)	17.4	19.4	19.9	20	20.6

Çizelge 5.9: Farklı bileşimlerle yapılan zeolit kaplama deneyleri (Devamı).

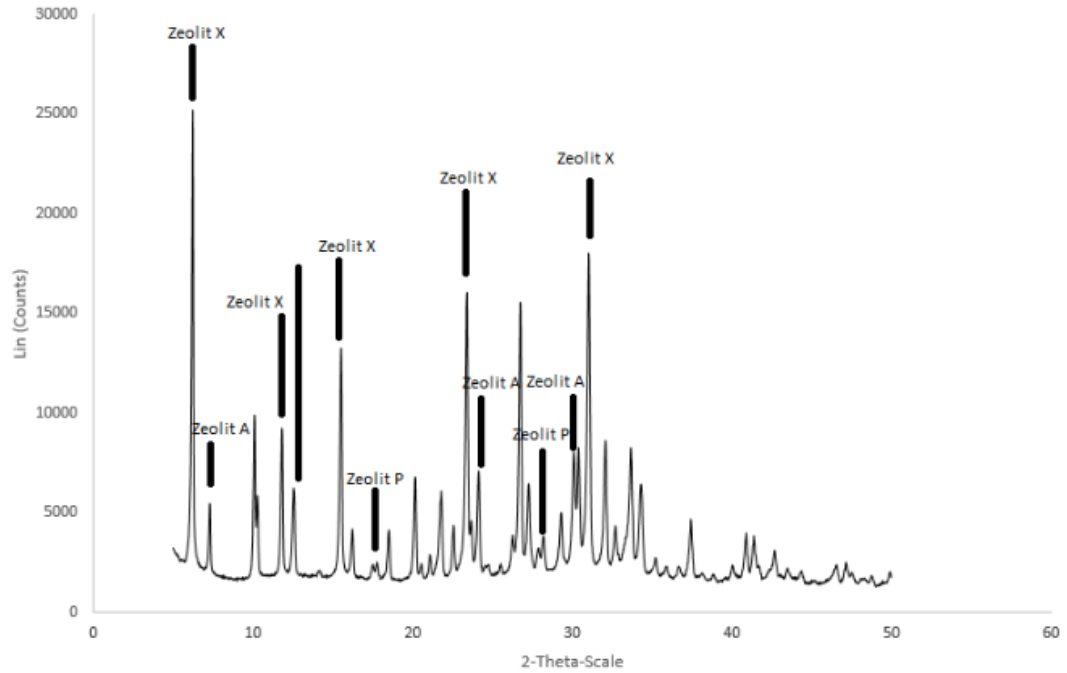
Ortalama Sıcaklık (°C)	74.4	74	74.9	74.7	74.7
Kurutulmuş Kaplama Ağırlığı (g)	5.73	16.22	12.72	13.52	13.28
Nemli Kaplama Ağırlığı (g)	5.81	- **	- **	- **	13.55
1. TGA (%)	22.98	21.96	21.39/ 21.10 ***	21.23	22.17/20.88 ***
2. TGA (%)	22.93	21.58	21.14/ 21.01 ***	20.16	21.51/20.41 ***

Karşılaştırma kolaylığı açısından 6 numaralı deneyin sonuçları bu çizelgede tekrar verilmiştir.

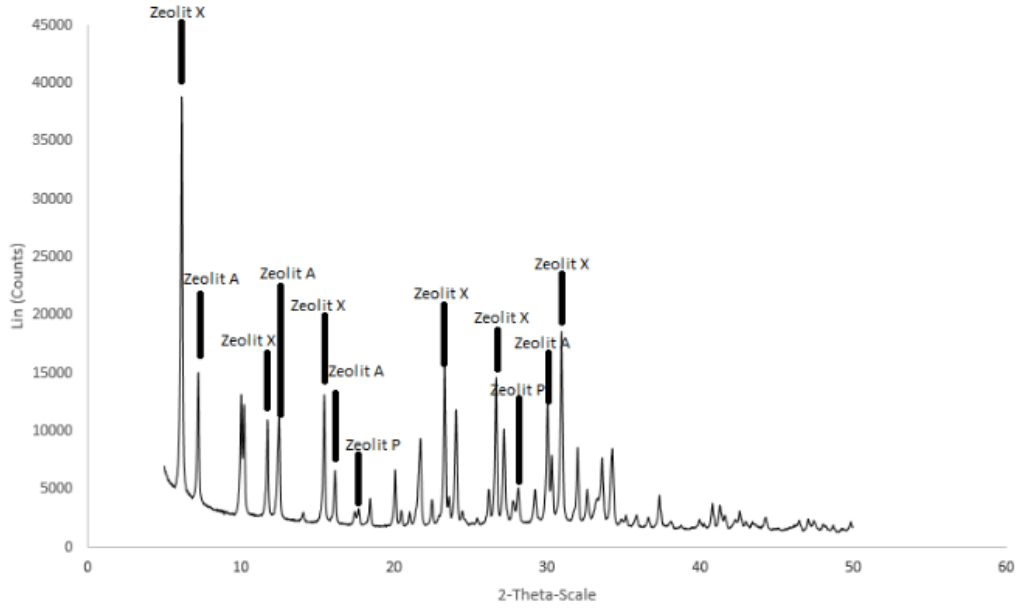
* 8 numaralı deney sistemdeki hortum bağlantıları çıktığı için 8 saat planlandığı halde tamamlanamayıp 5.5 saatte bitirilmiştir.

** Kaplamalar dayanıksız olduğu için nemli tartım alınamamıştır.

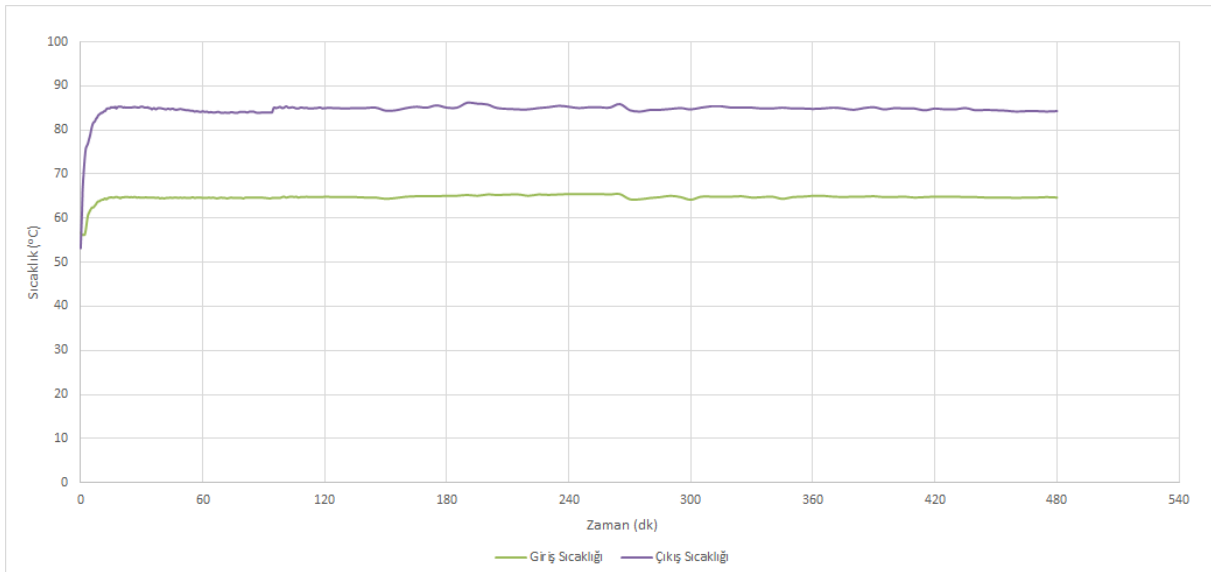
*** Sonuçlar, TGA için alınan örneğin yerine göre alt taraf/üst taraf olarak verilmiştir.



Şekil 5.12: 10 numaralı deneyde altlığın alt tarafından alınan örneğin XRD sonucu.



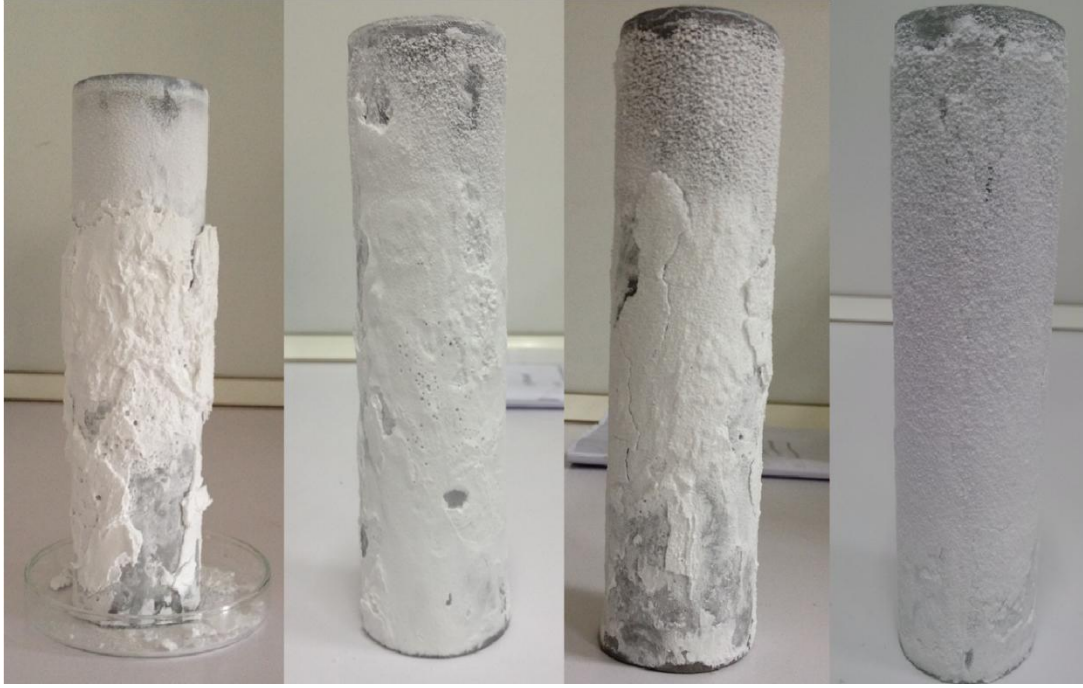
Şekil 5.13: 10 numaralı deneyde altlığın üst tarafından alınan örneğin XRD sonucu.



Şekil 5.14: 9 numaralı deneyde reaktör giriş ve çıkış sıcaklıklarının zamanla değişimi.

Sentez bileşimine bağlı olarak kaplamanın fiziksel özelliklerinde değişimler olmuştur. 7 numaralı deneyde zeolit kaplamanın, metal altlığın orta kısmında alt ve üst kısımlara göre daha fazla büyüdüğü görülmüştür. Ayrıca bu kısımdaki kaplama dayanıksızdır ve yoğun olarak dökülmüştür. Altlığın iç tarafında, sadece üst kısımlarında bir büyüme gözlemlenmiştir. 8 numaralı deneyde zeolit kaplama alt ve orta kısımlarda üst kısımlara göre daha kalındır. 7 numaralı deneye göre kaplama

dayanıklılığında artış gözlense de kaplamada dökülmeler meydana gelmiştir. Bu kaplamada altlığın iç kısımlarının üst ve orta bölümlerinde de kaplama olduğu görülmüştür. 9 numaralı deneyde hazırlanan kaplama 7 ve 8 numaralı deneylerde hazırlanan kaplamalara göre daha homojen olmasına rağmen bu kaplamada da dökülmeler olmuştur. Altlığın iç tarafında üst ve orta kısımlarda bir zeolit kaplama oluşumu görülmüştür. 10 numaralı deneyde, altlığın hem iç hem de dış tarafında homojen bir kaplama elde edilmiştir. Ayrıca kaplamada eleğin alt tarafında küçük bir bölge dışında dökülme gözlenmemiştir. 10 numaralı deneyden alınan kaplama örneğinin XRD sonuçları (Şekil 5.12 ve Şekil 5.13) incelendiğinde, alt kısımda Zeolit X'in yanında Zeolit A'nın da olduğu, üst kısımda ise Zeolit X'in yanında hem Zeolit A'nın olduğu hem de Zeolit P'nin daha fazla oluşmaya başladığı görülmüştür. TGA ve XRD sonuçları birlikte incelendiğinde, Zeolit X'ten daha düşük nem tutma kapasitesine sahip Zeolit A ve Zeolit P'nin mevcudiyetlerinin kaplamanın daha düşük nem tutma kapasitesine sahip olmasına sebep olduğu görülmektedir. Bu dört deney kendi içerisinde kaplamanın fiziksel dayanıklılığına göre yüksekten düşüğe doğru sıralandığında, sıralamanın 10, 8, 9, 7 şeklinde olduğu görülmüştür. Bir sentez karışımının jel veya berrak çözelti olarak elde edilmesi karışımın molar bileşimine bağlıdır. Örneğin, karışımdaki su ve soda miktarlarının azalması veya alüminyum miktarının artması karışımın jelleşme eğilimini artırmaktadır. Jel karışımları reaksiyondaki sınırlayıcı reaktan olan alüminyum daha çok içerdiklerinden, bu tip karışımlardan daha fazla zeolit elde edilmesi de mümkün olmaktadır. Bu çalışmada gerçekleştirilen deneylerde, sentez karışımının jelleşme eğilimi arttıkça kaplama ağırlığının arttığı görülmüştür. Ancak jelleşme eğiliminin artması kaplamanın fiziksel özelliklerini olumsuz yönde etkilemiştir. Daha yüksek jelleşme eğilimine sahip sentez bileşimi ile yapılan kaplamalarda dökülme daha fazla gözlenmiş, ayrıca kaplamanın homojenliği de azalmıştır. Şekil 5.15'te farklı sentez karışımlarından hazırlanan kaplamalar görülebilir.



Şekil 5.15: Farklı sentez karışımı bileşimleriyle hazırlanan kaplamalar (Soldan deney numara sırası: 7, 8, 9, 10).

5.3.2 Debinin kaplama özellikleri üzerindeki etkileri

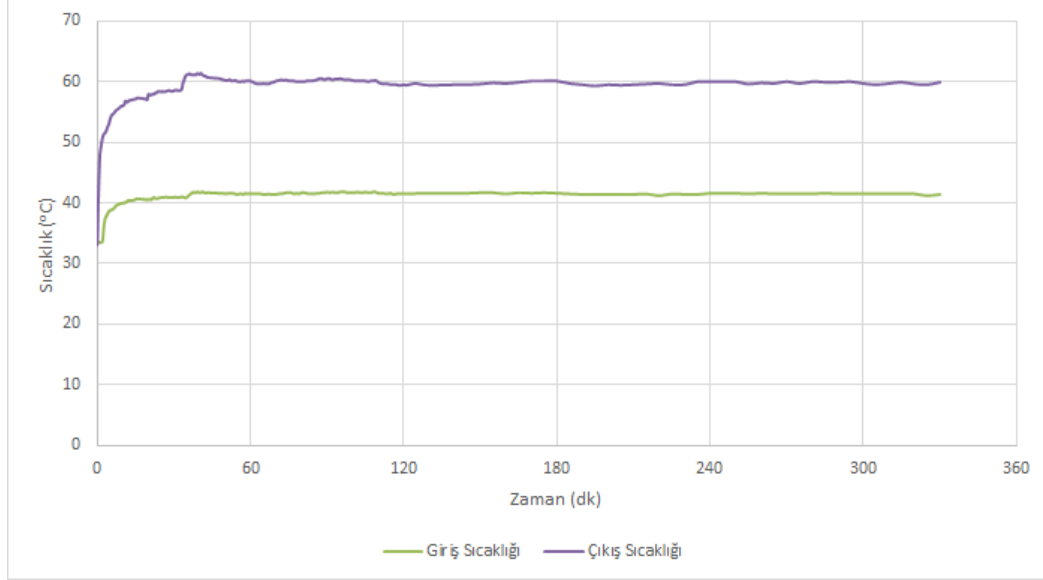
Debinin hazırlanan zeolit kaplamaların özellikleri üzerindeki etkilerini araştırmak için farklı zeolit türlerinin sentez karışımlarıyla deneyler yapılmıştır. Zeolit A sentezi için kullanılan karışım $50 \text{ Na}_2\text{O} : 1\text{Al}_2\text{O}_3 : 5\text{SiO}_2 : 1000\text{H}_2\text{O}$ molar bileşimine sahiptir. Zeolit X için ise $56 \text{ Na}_2\text{O} : 1\text{Al}_2\text{O}_3 : 12\text{SiO}_2 : 1680\text{H}_2\text{O}$ molar bileşimli ve $50 \text{ Na}_2\text{O} : 1\text{Al}_2\text{O}_3 : 15\text{SiO}_2 : 1500\text{H}_2\text{O}$ molar bileşimli iki farklı sentez karışımı kullanılmıştır. Debinin etkisini gösteren deneylerin koşulları ve sonuçları Çizelge 5.9, Çizelge 5.10 ve Çizelge 5.11’de verilmiştir. Şekil 5.16’da 11 numaralı deneye, Şekil 5.17’de 10 numaralı deneye, Şekil 5.18’de 15 numaralı deneye ait giriş ve çıkış sıcaklıklarının zamanla değişim grafikleri verilmiştir.

Çizelge 5.10: Zeolit A sentez karışımı ile yapılmış debi deneyleri (Molar Bileşim: $50\text{Na}_2\text{O} : 1\text{Al}_2\text{O}_3 : 5\text{SiO}_2 : 1000\text{H}_2\text{O}$).

Deney Numarası	11	12
İndüksiyon Gücü (kW)	13.5	19.5
Debi (ml/dak)	357.79	719.59
Kreostat Sıcaklığı (°C)	35	20
Süre (saat)	5.5	5.5
Giriş Sıcaklığı (°C)	41.3	41.5
Çıkış Sıcaklığı (°C)	59.4	59.5
Giriş-Çıkış Sıcaklık Farkı (°C)	18.1	18
Ortalama Sıcaklık (°C)	50.4	50.5
Kurutulmuş Kaplama Ağırlığı (g)	3.24	5.18

Çizelge 5.11: Zeolit A sentez karışımı ile yapılmış debi deneyleri (Molar Bileşim: 50Na₂O : 1Al₂O₃ : 5SiO₂ : 1000H₂O) (Devamı).

Nemli Kaplama Ağırlığı (g)	3.40	5.47
1. TGA (%)	19.11	17.94
2. TGA (%)	19.54	16.44



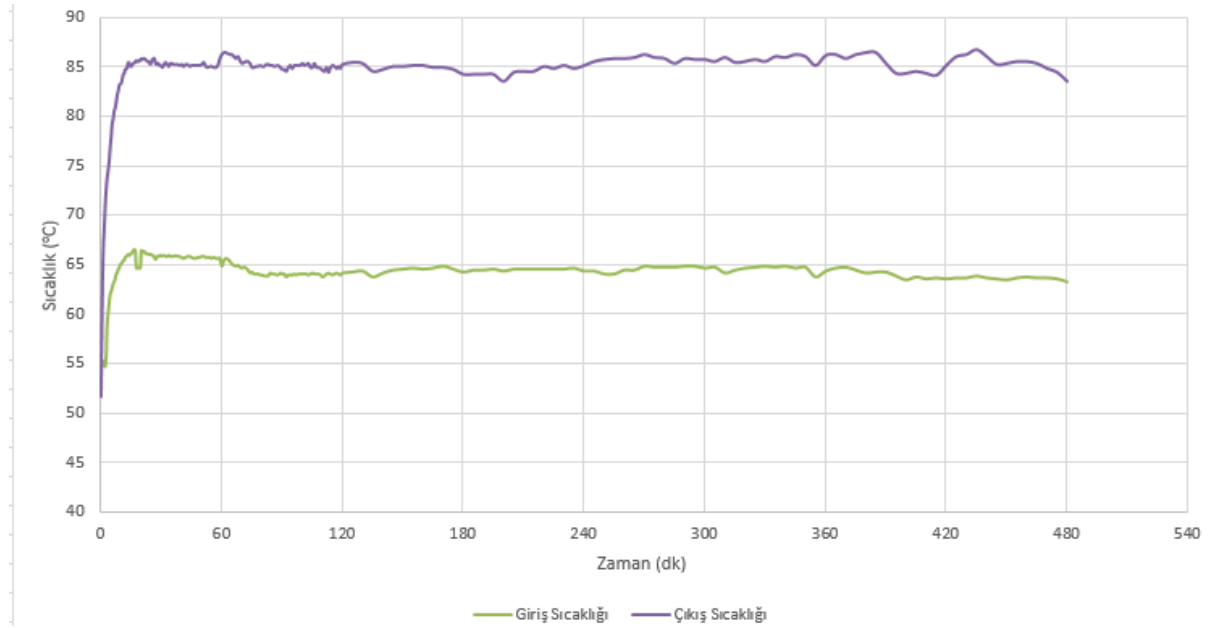
Şekil 5.16: 11 numaralı deneyde reaktör giriş ve çıkış sıcaklıklarının zamanla değişimi.

Çizelge 5.12: Zeolit X sentez karışımı ile yapılmış debi deneyleri (Molar Bileşim: 56Na₂O : 1Al₂O₃ : 12SiO₂ : 1680H₂O).

Deney Numarası	10	13	14
İndüksiyon Gücü (kW)	13.5	19.5	24
Debi (ml/dak)	357.78	719.58	1012.55
Kreostat Sıcaklığı (°C)	65	53	37
Süre (saat)	8	8	8
Giriş Sıcaklığı (°C)	64.4	64.9	64.8
Çıkış Sıcaklığı (°C)	85	85.1	84.9
Giriş-Çıkış Sıcaklık Farkı (°C)	20.6	20.2	20.1
Ortalama Sıcaklık (°C)	74.7	75	74.9
Kurutulmuş Kaplama Ağırlığı (g)	13.28	14.75	16.41
Nemli Kaplama Ağırlığı (g)	13.55	15.15	16.87
1. TGA (%)	22.17/20.88*	21.72/20.10*	20.68/19.27*
2. TGA (%)	21.51/20.41*	21.10/19.56*	19.32/17.96*

Karşılaştırma kolaylığı açısından 10 numaralı deneyin sonuçları bu çizelgede tekrar verilmiştir.

* Sonuçlar, TGA için alınan örneğin yerine göre alt taraf/üst taraf olarak verilmiştir.



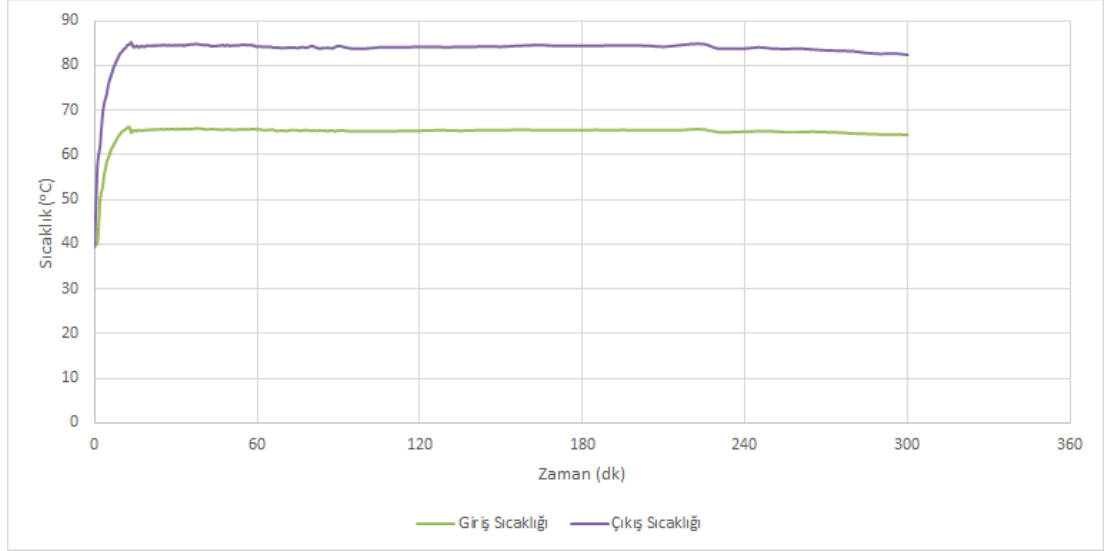
Şekil 5.17: 10 numaralı deneyde reaktör giriş ve çıkış sıcaklıklarının zamanla değişimi.

Çizelge 5.13: Zeolit X sentez karışımı ile yapılmış debi deneyleri (Molar Bileşim: $50\text{Na}_2\text{O} : 1\text{Al}_2\text{O}_3 : 15\text{SiO}_2 : 1500\text{H}_2\text{O}$).

Deney Numarası	7	15
İndüksiyon Gücü (kW)	13.5	19.5
Debi (ml/dak)	357.78	719.58
Kreostat Sıcaklığı (°C)	65	53
Süre (saat)	8	5
Giriş Sıcaklığı (°C)	64.3	65.1
Çıkış Sıcaklığı (°C)	83.7	83.6
Giriş-Çıkış Sıcaklık Farkı (°C)	19.4	18.5
Ortalama Sıcaklık (°C)	74	74.4
Kurutulmuş Kaplama Ağırlığı (g)	16.22	14.37
Nemli Kaplama Ağırlığı (g)	-	14.82
1. TGA (%)	21.96	21.80
2. TGA (%)	21.58	21.10

Karşılaştırma kolaylığı açısından 7 numaralı deneyin sonuçları bu çizelgede tekrar verilmiştir

* Sonuçlar, TGA için alınan örneğin yerine göre alt taraf/üst taraf olarak verilmiştir.



Şekil 5.18: 15 numaralı deneyde reaktör giriş ve çıkış sıcaklıklarının zamanla değişimi.

Zeolit A sentez karışımı ile yapılmış 11 ve 12 numaralı deneylerde debi artışının gerek kaplama ağırlığını, gerekse kaplamanın fiziksel olarak dayanıklılığını arttırdığı görülmüştür. Ancak yapılan TGA'lar sonucunda kaplamanın desorpsiyon kapasitesinin bir miktar düştüğü gözlenmiştir. Kristalinite de az da olsa bir düşüş görülmüştür. Molar bileşimi $56 \text{ Na}_2\text{O} : 1\text{Al}_2\text{O}_3 : 12\text{SiO}_2 : 1680\text{H}_2\text{O}$ olan Zeolit X sentez karışımı ile debinin kaplama özellikleri üzerindeki etkilerini araştırmak için yapılan deneylerde de kaplama ağırlığının debi ile arttığı gözlenmiştir. 10 numaralı deneyde metal eleğin alt kısımlarında görülen dökülmelerin 13 numaralı deneyde olmadığı görülmüştür. 14 numaralı deneyde kaplamanın dayanıklılığı 10 ve 13 numaralı deneylere kıyasla artmıştır. TGA sonuçları, önceki deneylerin TGA ve XRD sonuçları ile birlikte değerlendirildiğinde, 10, 13 ve 14 numaralı deneylerde debinin artmasıyla birlikte kaplamada Zeolit X'in yanısıra bulunan Zeolit A ve Zeolit P miktarlarının arttığı ve buna bağlı olarak da desorpsiyon kapasitesinde azalma olduğu söylenebilir. Molar bileşimi $50 \text{ Na}_2\text{O} : 1\text{Al}_2\text{O}_3 : 15\text{SiO}_2 : 1500\text{H}_2\text{O}$ olan Zeolit X sentez karışımıyla 357.78 ml/dak debide yapılan 7 numaralı deneyde kaplamanın metal altlığın orta kısmında yoğunlaştığı, homojenliğinin ve dayanıklılığının çok az olduğu, 719.58 ml/dak debide yapılan 15 numaralı deneyde ise kaplamanın dayanıklılığının ve homojenliğinin arttığı görülmüştür. Ancak 15 numaralı deneyde elde edilen kaplamanın homojenliği ve dayanıklılığı 13 numaralı deneyde elde edilen kaplamaya kıyasla daha düşüktür. TGA sonuçları, debinin artışına paralel olarak Zeolit A ve Zeolit P fazlarının bu deneylerde de bir miktar

arttığını göstermektedir. Şekil 5.19’da farklı debilerde gerçekleştirilen sentez deneylerinde elde edilen kaplamalar görülebilir.



Şekil 5.19: Farklı debilerle hazırlanan kaplamalar (Soldan deney numara sırası: 10, 13, 14).

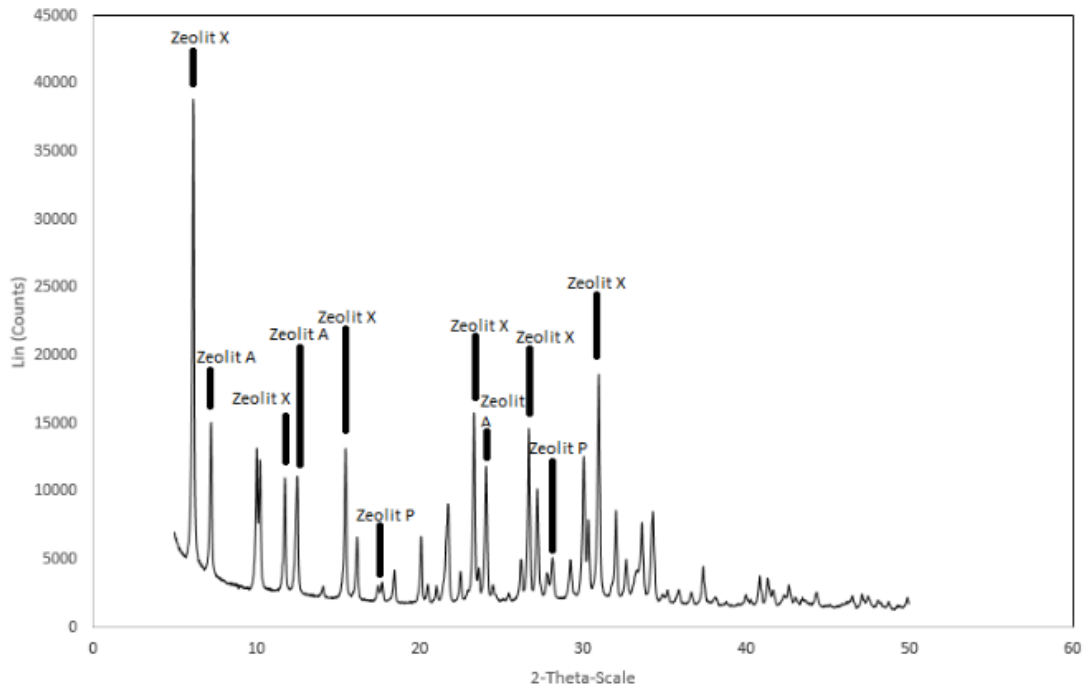
5.3.3 İndüksiyon gücünün kaplama özellikleri üzerindeki etkileri

İndüksiyon gücünün etkisini anlamak için kreostat sıcaklığı sabit tutularak ve reaktör çıkış sıcaklığı göz önüne alınarak kreostat sıcaklığı değiştirilerek deneyler yapılmıştır. Bu deneylerde $70 \text{ Na}_2\text{O} : 1\text{Al}_2\text{O}_3 : 15\text{SiO}_2 : 2100\text{H}_2\text{O}$ molar bileşimli Zeolit X sentez karışımı kullanılmıştır. Çizelge 5.12’de indüksiyon gücünün kaplama üzerindeki etkilerini incelemek için yapılan deneylerin bilgileri verilmiştir. Şekil 5.20’de 17 numaralı deneyde kaplamadan alınan örneğin XRD sonuçları verilmiştir. 6 numaralı deneyin giriş ve çıkış sıcaklıklarının zamanla değişimi ise Şekil 5.21’de verilmiştir.

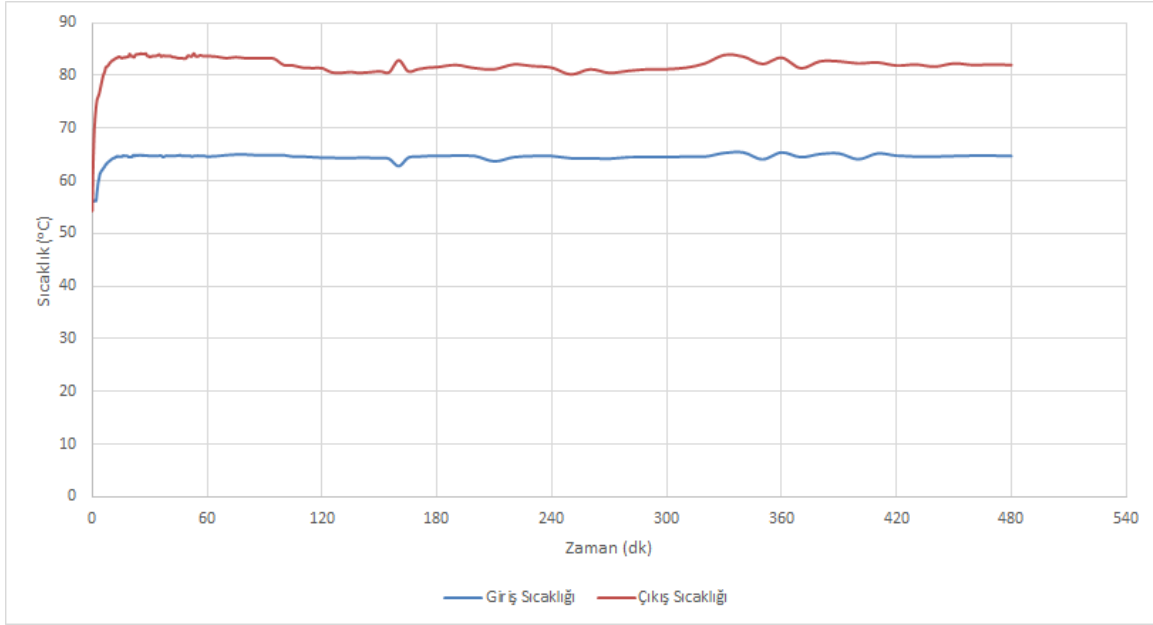
Çizelge 5.14: Zeolit X sentez karışımı ile yapılmış indüksiyon gücü deneyleri (Molar Bileşim: 70 Na₂O : 1Al₂O₃ : 15SiO₂ : 2100H₂O).

Deney Numarası	6	16	17
İndüksiyon Gücü (kW)	12	13.5	15
Debi (ml/dak)	357.78	357.78	357.78
Kreostat Sıcaklığı (°C)	65	65	55
Süre (saat)	8	8	8
Giriş Sıcaklığı (°C)	64.6	64.5	59.5
Çıkış Sıcaklığı (°C)	82	84	81.9
Giriş-Çıkış Sıcaklık Farkı (°C)	17.4	19.5	22.4
Ortalama Sıcaklık (°C)	73.4	73.3	70.7
Kurutulmuş Kaplama Ağırlığı (g)	5.73	6.72	6.59
Nemli Kaplama Ağırlığı (g)	5.81	6.82	6.68
1. TGA (%)	22.98	18.75	22.76
2. TGA (%)	22.93	12.65	21.39

Karşılaştırma kolaylığı açısından 6 numaralı deneyin sonuçları bu çizelgede tekrar verilmiştir.



Şekil 5.20: 17 numaralı deneyin XRD sonuçları.



Şekil 5.21: 6 numaralı deneyde reaktör giriş ve çıkış sıcaklıklarının zamanla değişimi.

İndüksiyon gücünün kaplama özellikleri üzerindeki etkisi incelendiğinde, 16 numaralı deneyde kreostat sıcaklığı sabit tutulup, indüksiyon gücü arttırıldığında kaplama ağırlığının deney 6'da elde edilen ağırlığa göre arttığı gözlenmiştir. Ancak, bu durumda hem desorpsiyon kapasitesi azalmış hem de birinci ve ikinci TGA sonuçlarında elde edilen kapasiteler arasındaki fark artmıştır. Bu ikinci durum kristalinitenin düştüğünü göstermektedir. Gücün arttırılıp, kreostat sıcaklığının düşürüldüğü ve reaktör çıkış sıcaklığının sabit tutulduğu 17 numaralı deneyde ise kaplama ağırlığının yine 6 numaralı deneyin sonucuna oranla arttığı gözlenmiştir. Kristalinite ve desorpsiyon kapasitesinde ise, 16 numaralı deneydeki gibi büyük bir azalma görülmemiştir. Şekil 5.20'de görülen 17 numaralı deneyden alınan kaplama örneğinin XRD sonuçları ve Şekil 5.10'da görülen 6 numaralı deneyden alınan kaplama örneğinin XRD sonuçları birlikte incelendiğinde her iki kaplamanın da Zeolit A içerdiği gözükmemektedir (5.20'de 11.5'daki pik X, 12.5'daki küçük pik ise A). Ek olarak 17 numaralı deneyde kaplamanın az miktarda Zeolit P de içerdiği görülmektedir. TGA ve XRD sonuçları birlikte incelendiğinde 17 numaralı deneyde kaplamanın sahip olduğu nem tutma kapasitesinin 6 numaralı deneyde kaplamanın sahip olduğu nem tutma kapasitesinden biraz düşük olmasının sebebi bir miktar Zeolit P oluşumu olarak gösterilebilir.

5.3.4 Farklı metal elek türlerinin kaplama özellikleri üzerindeki etkileri

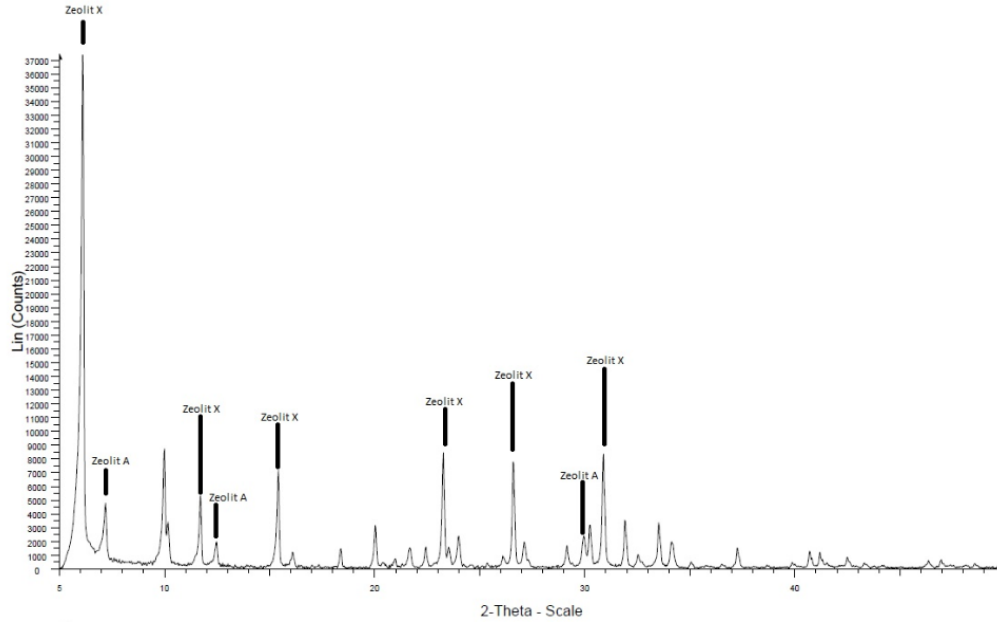
Farklı mesh sayısına sahip metal elekler kullanılarak hazırlanan altlıklar üzerindeki kaplama ağırlığı ve kristalinite değişimleri farklı 4 altlık üzerinde incelenmiştir. Farklı mesh sayısına sahip metal altlıklar kullanıldığında, istenen reaktör giriş ve çıkış sıcaklıklarını elde etmek için gereken indüksiyon güçlerinin farklı olduğu yukarıda belirtilmişti (Çizelge 5.5). Farklı altlıkların kaplama özellikleri üzerindeki etkilerini incelemek için reaktör giriş ve çıkış sıcaklıkları aynı tutulmaya çalışılmıştır. Deneyler 70 Na₂O : 1Al₂O₃ : 15SiO₂ : 2100H₂O molar bileşimli Zeolit X sentez karışımı ile yapılmıştır. Bu deneylerin bilgileri Çizelge 5.13'te verilmiştir. Şekil 5.22'de 19 numaralı, Şekil 5.23'te de 20 numaralı deneyde kaplama üzerinden alınan örneğin XRD sonuçları gösterilmiştir. Şekil 5.24'de ise 20 numaralı deneyde giriş ve çıkış sıcaklıklarının zamanla değişimi grafiği verilmiştir.

Çizelge 5.15: Farklı mesh sayısına sahip metal eleklerle hazırlanmış altlıklar üzerinde Zeolit X sentez karışımı ile yapılmış deneyler (Molar Bileşim: 70 Na₂O : 1Al₂O₃ : 15SiO₂ : 2100H₂O).

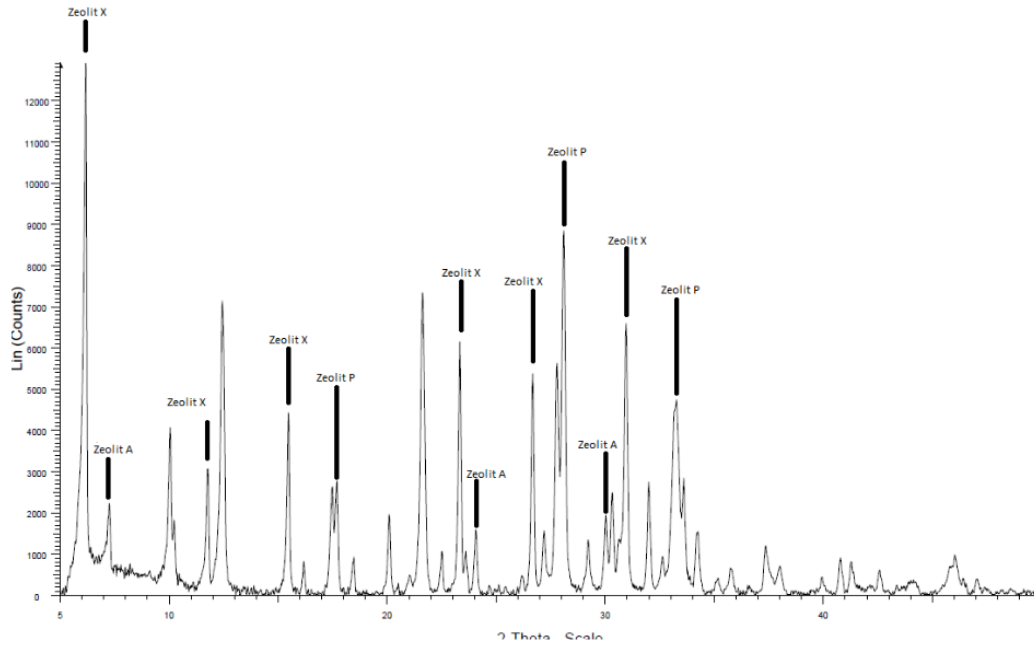
Deney Numarası	18	19*	6	20
Mesh Sayısı	100	60/100	60/300	60/500
İndüksiyon Gücü (kW)	24	11	12	13.5
Debi (ml/dak)	357.78	357.78	357.78	357.78
Kreostat Sıcaklığı (°C)	65	65	65	65
Süre (saat)	8	7.5	8	8
Giriş Sıcaklığı (°C)	64.4	64.5	64.6	64.4
Çıkış Sıcaklığı (°C)	83	82.2	82	82.5
Giriş-Çıkış Sıcaklık Farkı (°C)	18.6	18.2	17.4	18.1
Ortalama Sıcaklık (°C)	73.7	73.4	73.3	73.5
Kurutulmuş Kaplama Ağırlığı (g)	5.30	6.27	5.73	5.00
Nemli Kaplama Ağırlığı (g)	5.34	6.36	5.81	5.12
1. TGA (%)	17.92	21.58	22.98	18.87
2. TGA (%)	14.65	20.69	22.93	17.10

Karşılaştırma kolaylığı açısından 6 numaralı deneyin sonuçları bu çizelgede tekrar verilmiştir.

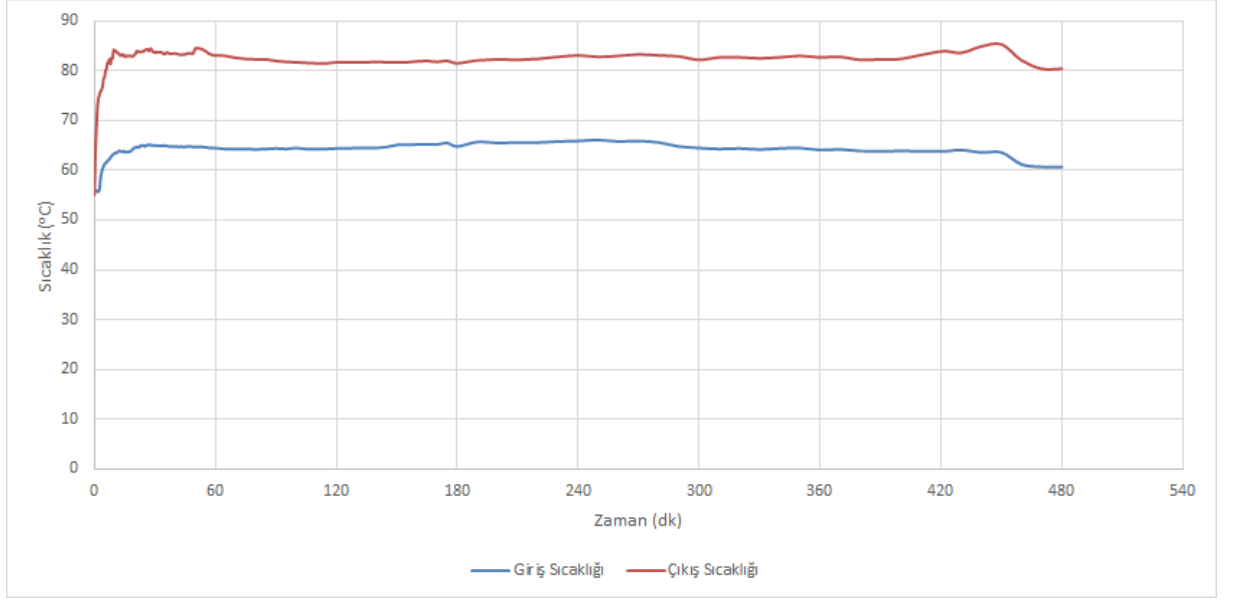
*19 numaralı deney, sistemdeki hortum bağlantıları çıktığı için 8 saat yerine 7.5 saatte bitirilmiştir.



Şekil 5.22: 19 numaralı deneyde elde edilen kaplamanın XRD sonuçları.



Şekil 5.23: 20 numaralı deneyde elde edilen kaplamanın XRD sonuçları.



Şekil 5.24: 20 numaralı deneyde reaktör giriş ve çıkış sıcaklıklarının zamanla değişimi.

Farklı mesh sayısına sahip metal eleklerin 60 mesh metal elek üzerine kaynaklanmasıyla hazırlanan altlıklar incelendiğinde, üstteki metal eleğin mesh sayısı azaldıkça kaplama ağırlığının arttığı gözlenmiştir. 60 mesh metal eleğin üzerine kaynaklanmış 100 mesh metal elekten oluşan altlığın (60/100) üzerinde hazırlanan kaplamanın desorpsiyon kapasitesinde 60 mesh metal eleğin üzerine kaynaklanmış 300 mesh metal elekten oluşan altlık (60/300) üzerinde hazırlanan kaplamaya göre düşüş gözlenirken, bu düşüş 60 mesh metal eleğin üzerine kaynaklanmış 500 mesh metal elekten oluşan altlık (60/500) üzerinde yapılan kaplamada daha fazla olmuştur. Çift katlı 60/100'lük altlık üzerinde hazırlanan kaplamaya kıyasla, tek katlı 100 mesh metal elekten oluşan altlık üzerindeki kaplamanın ağırlığının, desorpsiyon kapasitesinin ve kristalinitesinin daha düşük, olduğu gözlenmiştir.

19 numaralı deneyde hazırlanan kaplamadan alınan örneğin XRD sonuçları (Şekil 5.22) incelendiğinde, bu kaplamada Zeolit X'in yanısıra bir miktar Zeolit A'nın da olduğu görülmektedir. Ayrıca, 19 numaralı deneyde (60/100 mesh) hazırlanan kaplama üzerinden alınan örnek ile 6 numaralı deneyde (60/300 mesh) hazırlanan kaplamadan alınan örneğin TGA ve XRD sonuçları karşılaştırıldığında, 19 numaralı deneyde hazırlanan kaplamanın 6 numaralı deneyde hazırlanan kaplamadan daha az nem tutma kapasitesine sahip olması ve Zeolit A piklerinin daha baskın olması sebebiyle, 19 numaralı deneyde hazırlanan kaplamanın daha fazla Zeolit A içerdiği

söylenabilir. Şekil 5.23'te görülen 20 numaralı (60/500 mesh) deneyde hazırlanan kaplamadan alınan XRD sonuçları incelendiğinde, Zeolit X yanında, Zeolit A ve Zeolit P'nin oluştuğu görülmektedir. 6 ve 20 numaralı deneylerin XRD ve TGA sonuçları birlikte incelendiğinde 20 numaralı deneyde hazırlanan kaplamada 6 numaralı deneyde hazırlanan kaplamaya kıyasla daha fazla Zeolit A'nın olmasının ve Zeolit P'nin de oluşmaya başlamasının kaplamanın nem tutma kapasitesini düşürdüğü söylenabilir. Genel olarak, değişik özellikteki metal elek altlıkların manyetik alan içinde ısınmalarının farklı derecelerde olmasının elde edilen kaplamaların ağırlıkları, fazları ve kristaliniteleri arasında farklar olmasına yol açtığı söylenabilir. Her bir durum için en saf, kristalin ve kalın zeolit kaplamalarının elde edilebileceği sentez şartları ayrıca incelenebilir.

6. VARGILAR VE ÖNERİLER

Yapılan deneyler sonucunda, yüksek kristalinite ve homojenliğe sahip dayanıklı zeolit kaplamaların hazırlanması başarılmıştır. Hazırlanan kaplamaların kristalinitesinin, ağırlığının/kalınlığının, homojenliğinin ve dayanıklılığının; debi, indüksiyon gücü, metal altlık türü, sentez karışımı bileşimi gibi parametrelerle değiştiği görülmektedir. Farklı bileşime sahip sentez karışımları kullanıldığında kaplama ağırlığının ve dayanıklılığının değiştiği görülmüştür. Sentez bileşiminin jelleşme eğilimi arttıkça kaplama ağırlığının arttığı gözlenmiştir. Ancak göreceli olarak daha fazla jelleşme eğilimi gösteren sentez bileşimleri ile hazırlanan kaplamaların dayanıklılığı ve homojenliğinde azalma görülmüştür. Debi arttıkça kaplama ağırlığının ve dayanıklılığının yükseldiği, ancak nem tutma kapasitesinin bir miktar düştüğü görülmüştür. İndüksiyon gücünün artması kaplama ağırlığını artırmış, ancak kristaliniteyi düşürmüştür. Çift katlı metal elek altlıklarda, dış tabakadaki tel kalınlığı inceldikçe, gerekli sentez sıcaklıklarına ulaşabilmek için indüksiyon gücünün artırılması gerekmiştir. Dış tabakadaki tel kalınlığındaki artışa paralel olarak, aynı reaktör giriş ve çıkış sıcaklıklarında elde edilen kaplama ağırlığı da bir miktar artmıştır. .

Isıtma-soğutma uygulamaları gibi bazı uygulamalar için oldukça kalın zeolit kaplamalarının hazırlanması istenmektedir. Ancak, kaplamanın kristalinitesinin ve dayanıklılığının da yüksek olması gerekir. Bu amaçla, bir başka deyişle, en yüksek kaplama ağırlığının, nem tutma kapasitesinin, kristalinitenin ve dayanıklılığının elde edilebilmesi için deney parametrelerinin optimize edilmesi gerektiği açıktır. Kaplama ağırlığının arttığı ancak kristalinitenin düştüğü durumlarda reaktör giriş ve çıkış sıcaklıkları değiştirilerek daha yüksek kristalinite elde etmek için çalışmalar yapılmalıdır. Altlık olarak kullanılan metal eleğin mesh sayısı azaldığında kaplama ağırlığının arttığı görüldüğü için farklı metal elek türleri veya başka metal elek konfigürasyonları denenebilir. Ancak bu durumda nem tutma kapasitesinin ve kristalinitenin arttırılması için; nem tutma kapasitesine ve kristaliniteye olumlu yönde etki eden reaktör giriş ve çıkış sıcaklıklarının tekrar bulunması gerekmektedir.

Debinin kaplama dayanklılıđı üzerinde olumlu etkisi olduđundan, ađırlıđı arttıran ancak kaplama dayanıklılıđını olumsuz etkileyen bileřimlerde daha yůksek debide deneyler yapılabilir. Ancak bu durumlarda da yine nem tutma kapasitesinin ve kristalinitenin arttırılması iin alıřmalar yapılmalıdır.

KAYNAKLAR

- [1] **Martinez, C., ve Corna, A.,** (2013). Zeolites, in *Comprehensive Inorganic Chemistry II*, (2. Sürüm), (5. Cilt, Sf. 103-131), Amsterdam: Elsevier.
- [2] **Atakan, A., Fuedner, G., Munz, G., Henninger, S., Tather, M.,** (2013). Adsorption kinetics and isotherms of zeolite coatings directly crystallized on fibrous plates for heat pump applications, *Applied Thermal Engineering*, 58, 273-280.
- [3] **Erdem-Şenatalar, A., Tather, M., Ürgen, M.,** (1999). Preparation of zeolite coatings by direct heating of the substrates, *Microporous and Mesoporous Materials*, 32, 331-343.
- [4] **Wise, W.S.,** (2013). MINERALS | Zeolites, in Reference Module in Earth Systems and Environmental Science, 1-11.
- [5] **Naber, J. E., De Jong, K. P., Stork, W. H. J., Kuipers, H. P. C. E., Post, M. F. M.,** (1994). Industrial applications of zeolite catalysis, *Studies in Surface Science and Catalysis*, 84, 2197-2219.
- [6] **Martens, J. A., Jacobs, P. A.,** (2001). Chapter 14 Introduction to acid catalysis with zeolites in hydrocarbon reactions, in *Studies in Surface Science and Catalysis*, (Cilt 137, Bölüm 14, Sf. 633-671), Amsterdam: Elsevier.
- [7] **Ackley, M. W., Rege, S. U., Saxena, H.,** (2003). Application of natural zeolites in the purification and separation of gases, *Microporous and Mesoporous Materials*, 61, 25-42.
- [8] **H. Demir, M. Mobedi, S. Ülkü,** (2005). Adsorpsiyonlu ısı pompaları, VII. *Ulusal Tesisat Mühendisliği Kongresi*, 535-545.
- [9] **Ostroski, I. C., Silva, E. A., Arroyo, P. A., Barros, M. A. S. D.,** (2014). Experimental and modelling studies of ion exchange equilibria between zeolite NaY and an electrolytic solution of iron, *Fluid Phase Equilibria*, 372, 76-84.
- [10] **Silva, B., Figueiredo, H., Soares, O. S. G. P., Pereira, M. F. R., Figueiredo, J. L., Lewandowska, A. E., Bañares, M. A., Neves, I. C., Tavares, T.,** (2012). Evaluation of ion exchange-modified Y and ZSM5 zeolites in Cr(VI) biosorption and catalytic oxidation of ethyl acetate, *Applied Catalysis B: Environmental*, 117-118, 406-413.
- [11] **Weitkamp, J.,** (2000). Zeolites and catalysis, *Solid State Ionics*, 131, 175-188.
- [12] **Busca, G.,** (2014). Zeolites and Other Structurally Microporous Solids as Acid–Base Materials, in *Heterogeneous Catalytic Materials*, (Cilt 137, Bölüm 7, Sf. 197-249), Amsterdam: Elsevier.

- [13] **Ramesh, K., Reddy, D. D.,** (2011). Zeolites and their potential uses in agriculture, in *Advances in agronomy*, (Cilt 137, Bölüm 4, Sf. 219-241), Amsterdam: Elsevier.
- [14] **Rouquerol, J., Llewellyn, P., Sing, K.,** (2014). Adsorption by clays, pillared layer structures and zeolites, *Adsorption by Powders and Porous Solids*, (Bölüm 11, Sf. 355-399), Amsterdam: Elsevier.
- [15] **McCusker, L. B., Baerlocher, C.,** (2007). Zeolite Structures, in *Studies in Surface Science and Catalysis*, (Cilt 168, Sf. 13-37), Amsterdam: Elsevier.
- [16] **Tatler, M., Erdem-Şenatalar, A.,** (2004). Estimation of the effective diffusion coefficients in open zeolite coatings, *Chemical Engineering Journal*, 102, 209-216.
- [17] **Jansen, J.C., Koegler, J. H., van Bekkum, H., Calis, H. P. A., Calis, van den Bleek, C. M., Kapteijn, F., Moulijn, Geus, E. R., van der Puil, N.,** (1998). Zeolitic coatings and their potential use in catalysis, *Microporous and Mesoporous Materials*, 21, 213-236.
- [18] **Mizukami, F.,** (1999). Application of zeolite membranes, films and coating, *Studies in Surface Science and Catalysis*, 125, 1-12.
- [19] **Rebrov, E. V., Mies, M. J. M., de Croon, M. H. J. M., Schouten, J. C.,** (2009). Hydrothermal synthesis of zeolitic coatings for applications in micro-structured reactors, in *Ordered Porous Solids*, (Bölüm 12, Sf. 311-334), Amsterdam: Elsevier.
- [20] **Tatler, M., Demir, M., Tokay, B., Erdem-Şenatalar, A., Kiwi-Minsker, L.,** (2007). Substrate heating method for coating metal surfaces with high-silica zeolites: ZSM-5 coatings on stainless steel plates, *Microporous and Mesoporous Materials*, 101, 374-380.
- [21] **Rebrov, E. V., Seijger, G. B. F., Calis, H. P. A., de Croon, M. H. J. M., van den Bleek, C. M., Schouten, J. C.,** (2006). The preparation of highly ordered single layer ZSM-5 coating prefabricated stainless steel microchannels, *Applied Catalysis A: General*, 206, 125-143.
- [22] **Seelam, P.K., Huuhtanen, M., Keiski, R. L.,** 2013. Microreactors and membrane microreactors: fabrication and applications, in *Handbook of Membrane Reactors: Reactor Types and Industrial Applications*, (Bölüm 5, Sf. 188-235), Philadelphia, PA: Woodhead Publishing Limited.
- [23] **Matsuda, M.,** (2008). Zeolite Membrane, in *Nanoparticle Technology Handbook*, (2. Sürüm), (Bölüm 12, Sf. 467-470), Amsterdam: Elsevier.
- [24] **Julbe, A.,** (2007). Zeolite membranes - synthesis, characterization and application, in *Studies in Surface Science and Catalysis*, (Cilt 168, Bölüm 6, Sf.181-219), Amsterdam: Elsevier.
- [25] **Fedosov, D. A., Smirnov, A. V., Shkirskiy, V. V., Voskoboinikov, T., Ivanova, I. I.,** (2015). Methanol dehydration in NaA zeolite membrane reactor, *Journal of Membrane Science*, 486, 189-194.

- [26] **Jacobus, M., Mies, M.,** (2006). Applications of zeolitic coatings in microstructured reactors, *Yüksek Lisans Tezi*, Eindhoven University of Technology.

ÖZGEÇMİŞ



Ad Soyad : Taylan MARAŞ
Doğum Yeri ve Tarihi : Beyoğlu – 28.06.1990
E-Posta : taylanmaras4@hotmail.com

ÖĞRENİM DURUMU:

- **Lisans** : 2009-2013, İstanbul Teknik Üniversitesi, Kimya-Metalurji Fakültesi , Kimya Mühendisliği
- **Yüksek Lisans** : 2013-sürmekte, İstanbul Teknik Üniversitesi, Kimya Mühendisliği Anabilim Dalı, Kimya Mühendisliği Programı