



T.C.
KONYA TEKNİK ÜNİVERSİTESİ
LİSANSÜSTÜ EĞİTİM ENSTİTÜSÜ



GÖZENEKLİ İNDİRGENMİŞ
GRAFEN/AKTİF KARBON (RGO/AC)
KOMPOZİT AEROJEL ELDESİVE SULU
ÇÖZELTİLERDEN BOYAR MADDE
ADSORPSİYON ÇALIŞMASI

Rabia ÖZER

YÜKSEK LİSANS TEZİ
Kimya Mühendisliği Anabilim Dalı

Şubat-2024
KONYA
Her Hakkı Saklıdır

TEZ KABUL VE ONAYI

Rabia Özer tarafından hazırlanan “Gözenekli İndirgenmiş Grafen / Aktif Karbon (RGO/AC) Kompozit Aerojel Eldesi ve Sulu Çözeltilerden Boyar Madde Adsorpsiyonu” adlı tez çalışması 16/02/2024 tarihinde aşağıdaki jüri tarafından oy birliği ile Konya Teknik Üniversitesi Lisansüstü Eğitim Enstitüsü Kimya Mühendisliği Anabilim Dalı’nda YÜKSEK LİSANS TEZİ olarak kabul edilmiştir.

Jüri Üyeleri

Başkan

Prof. Dr. Ziya Erdem KOÇ

Danışman

Prof. Dr. İlkey ÖZAYTEKİN

2. Danışman

Doç.Dr. Gülnihal KARA

Üye

Doç. Dr. Farabi TEMEL

İmza

Yukarıdaki sonucu onaylarım.

Prof. Dr. Mevlüt UYAN
Enstitü Müdürü

TEZ BİLDİRİMİ

Bu tezdeki bütün bilgilerin etik davranış ve akademik kurallar çerçevesinde elde edildiğini ve tez yazım kurallarına uygun olarak hazırlanan bu çalışmada bana ait olmayan her türlü ifade ve bilginin kaynağına eksiksiz atıf yapıldığını bildiririm.

DECLARATION PAGE

I hereby declare that all information in this document has been obtained and presented in accordance with academic rules and ethical conduct. I also declare that, as required by these rules and conduct, I have fully cited and referenced all material and results that are not original to this work.

Rabia ÖZER

Tarih:

ÖZET

YÜKSEK LİSANS TEZİ

GÖZENEKLİ İNDİRGENMİŞ GRAFEN/AKTİF KARBON (RGO/AC) KOMPOZİT AEROJEL ELDESİ VE SULU ÇÖZELTİLERDEN BOYAR MADDE ADSORPSİYON ÇALIŞMASI

Rabia ÖZER

**Konya Teknik Üniversitesi
Lisansüstü Eğitim Enstitüsü
Kimya Mühendisliği Anabilim Dalı**

**Danışmanlar: Prof. Dr. İlkay ÖZAYTEKİN
Doç.Dr. Gülnihal KARA**

2024, 53 Sayfa

**Jüri
Prof. Dr. Ziya Erdem KOÇ
Prof. Dr. İlkay ÖZAYTEKİN
Doç. Dr. Farabi TEMEL**

Endüstriyel tekstil ve boya fabrikası atık suları büyük miktarlarda katyonik boya maddesi içeriğiyle çevre kirliliğine sebep olmaktadır. Bu nedenle bu tez çalışmasında indirgenmiş grafen/aktif karbon katkılı PVDF aerogel (rGO/AC/PVDF) hazırlandı. Bu çalışmada hafiflik ve gözenekli yapısından dolayı adsorbent malzeme aerogel olarak tercih edildi. Aerogel Fourier Dönüşümlü Kızılötesi Spektrometre (FTIR) ile karakterize edildi. Aerogelin gözenek boyutu ise BET (Brunauer-Emmett-Teller) analizi ile tespit edildi. Hazırlanan adsorban, metilen mavisini (MB) sulu çözeltilerden adsorpsiyon işlemiyle uzaklaştırmak için kullanıldı. Ayrıca aerogelin adsorbent dozu, temas süresi, pH, sıcaklık ve başlangıç boya konsantrasyonu gibi değişen parametrelerde metilen mavisi adsorpsiyonu üzerindeki etkileri incelendi. Atık sularda metilen mavisi adsorpsiyonunda pH ayarlaması olmaksızın adsorpsiyonun yapılması dikkate alınarak bu çalışmada da pH 7'de bütün adsorpsiyon çalışmaları yapıldı. pH 7'de optimum şartlarda adsorban miktarı ile birlikte metilen mavisi giderimi artmıştır. Başlangıç MB konsantrasyonun 33 mg/L için optimum şartlarda (10 g/L rGO/AC/PVDF aerogel, 200 rpm, 120 dakika, 25 °C) %84,135 adsorbsiyon verimi elde edilmiştir. Çalışma da aerogelin MB adsorpsiyonunu açıklamak amacıyla Langmuir, Freundlich ve Temkin modelleri seçilmiş, adsorbentin teorik kapasitesi, enerjisi ve adsorbsiyonun türü ile ilgili bilgi edinmek için denge verileri izoterm modellerine uygulanmıştır. Adsorbsiyon denge verilerinin Langmuir izotermine daha uygun olduğu belirlenmiştir. Langmuir izotermi ile maksimum adsorpsiyon kapasitesi, 2,73 mg.g⁻¹ deneysel maksimum adsorpsiyon kapasitesi 2,568 mg.g⁻¹ olarak belirlenmiştir. Adsorpsiyon kinetiği yalancı birinci derece (PFO) ve yalancı ikinci derece (PSO) hız denkleminde uyumluluğu ile araştırılmış, adsorpsiyon hızının yalancı ikinci derece modeline daha uygun olduğu belirlenmiştir.

Anahtar Kelimeler: Aerogel, metilen mavisi, adsorpsiyon

ABSTRACT

MS THESIS

PRODUCTION OF POROUS REDUCED GRAPHENE/ACTIVATED CARBON (RGO/AC) COMPOSITE AEROGEL AND DYE ADSORPTION STUDY FROM AQUEOUS SOLUTIONS

Rabia ÖZER

**Konya Technical University
Institute of Graduate Studies
Department of Chemical Engineering**

**Advisors: Prof. Dr. İlkey ÖZAYTEKİN
Doç.Dr. Gülnihal KARA**

2024, 53 Pages

**Jury
Prof. Dr. Ziya Erdem KOÇ
Prof. Dr. İlkey ÖZAYTEKİN
Doç. Dr. Farabi TEMEL**

Industrial textile and dye factory wastewater causes environmental pollution with its large amounts of cationic dye content. Therefore, in this thesis study, reduced graphene/activated carbon doped PVDF aerogel (rGO/AC/PVDF) was prepared. In this study, the adsorbent material was preferred as aerogel due to its lightness and porous structure. The aerogel was characterized by Fourier Transform Infrared Spectrometry (FTIR). The pore size of the aerogel was determined by BET (Brunauer-Emmett-Teller) analysis. The prepared adsorbents were used to remove methylene blue (MB) from aqueous solutions by the adsorption process. Additionally, the effects of varying parameters such as aerogel adsorbent dose, contact time, pH, temperature and initial dye concentration on methylene blue adsorption were examined. Considering the adsorption of methylene blue in wastewater without pH adjustment, all adsorption studies were carried out at pH 7 in this study. Under optimum conditions at pH 7, methylene blue removal increased with the amount of adsorbent. For an initial MB concentration of 33 mg/L, 84,135% adsorption efficiency was obtained under optimum conditions (10 g/L rGO/AC/PVDF aerogel, 200 rpm, 120 minutes, 25°C). In the study, Langmuir, Freundlich and Temkin models were chosen to explain MB adsorption of aerogel, and equilibrium data were applied to isotherm models to obtain information about the theoretical capacity, energy and type of adsorption of the adsorbent. It was determined that the adsorption equilibrium data were more suitable for the Langmuir isotherm. With the Langmuir isotherm, the maximum adsorption capacity was determined as 2.73 mg.g⁻¹ and the experimental maximum adsorption capacity was determined as 2.568 mg.g⁻¹. Adsorption kinetics was investigated in accordance with the pseudo-first-order (PFO) and pseudo-second-order (PSO) rate equations, and it was determined that the adsorption rate was more suitable for the pseudo-second-order model.

Keywords: Aerogel, methylene blue, adsorption

ÖNSÖZ

Yüksek lisans tez çalışmam boyunca her an yanımda olan yardımını ve desteğini bir an olsun esirgemeyen kıymetli eşime, bu süreçte ailemize katılan ve varlığı motivasyon kaynağım olan oğlum Ali Hüseyin'e, başaracağıma her daim inanan ve beni yüreklendiren aileme, alan dışı tez çalışmasının zorluklarını yaşadığım zamanlarda her daim sorularıyla ve sorunlarıyla yakından ilgilenen emeğini, zamanını esirgemeyen değerli danışmanım Prof. Dr. İlkey ÖZAYTEKİN'e, laboratuvar çalışmalarında yanımda olan ikinci danışman hocam Doç. Dr. Gülnihal KARA'ya, bu süreçte çalışmamda emeği olan Konya Teknik Üniversitesi ailesindeki tüm hocalarıma ve arkadaşlarıma teşekkür ederim.

Rabia ÖZER
KONYA-2024

İÇİNDEKİLER

ÖZET	iv
ABSTRACT.....	v
ÖNSÖZ	vi
İÇİNDEKİLER	vii
SİMGELER VE KISALTMALAR	ix
ŞEKİL LİSTESİ.....	xi
TABLolar LİSTESİ	xii
1. GİRİŞ	1
1.1. Boyar Maddelerin Sınıflandırılması.....	3
1.1.1. Bazık (Katyonik) boyar maddeler.....	4
1.1.2. Asidik (Anyonik) boyar maddeler	4
1.1.3. Direkt (Substantif) boyar maddeler	4
1.1.4. Reaktif boyar maddeler.....	5
1.2. Boya Gideriminde Kullanılan Yöntemler	5
1.2.1. Kimyasal yöntemler	6
1.2.2. Biyolojik yöntemler	6
1.2.3. Fiziksel Yöntemler.....	6
1.2.3.1. Adsorbsiyon	6
1.2.3.1.1. Adsorbsiyonu etkileyen faktörler	8
1.2.3.1.2. Aerojellerin adsorbsiyonda kullanımı	9
1.2.4. Aerojel türleri.....	10
1.2.4.1. Alümina arojeller.....	10
1.2.4.2. Karbon (Organik) arojeller.....	10
1.2.4.3. Silika (İnorganik) arojeller	11
1.2.4.4. Diğer arojeller.....	11
1.2.5. Aerojellerin kullanım alanları	11
1.2.6. Aerojeller ile adsorpsiyon çalışmaları	13
1.2.6.1. Aktif karbon	13
1.2.6.2. Grafen ve grafen oksit	14
1.2.6.3. Metilen Mavisi	17
2. KAYNAK ARAŞTIRMASI	18
3. MATERYAL VE YÖNTEM.....	24
3.1. Materyal	24
3.1.1. Kullanılan kimyasallar	24
3.1.2. Kullanılan cihazlar	24
3.2. Yöntem.....	25
3.2.1. Aerojel eldesi	25

3.2.2.	Karıştırma hızının adsorpsiyona etkisi	28
3.2.3.	pH'ın adsorpsiyona etkisi	28
3.2.4.	Boyar madde konsantrasyonunun adsorpsiyona etkisi	29
3.2.5.	Temas süresinin adsorpsiyon üzerindeki etkisi (Denge Deneyi).....	29
4.	ARAŞTIRMA SONUÇLARI VE TARTIŞMA.....	30
	KAYNAKLAR	46



SİMGELER VE KISALTMALAR

Simgeler

~	: Yaklaşık
°C	: Santigrat Derece
CaCl ₂	: Kalsiyum Klorür
Cd	: Kadminyum Elementi
cm ³	: Santimetreküp
Co	: Kobalt Elementi
CoFe ₂ O ₄	: Kobalt Ferrit
-COOH	: Karboksilik Asit
Cu	: Bakır
Fe	: Demir
Fe ₂ O ₃	: Demir(III) Oksit
FeCl ₂	: Demir (II) Klorür
FeCl ₃	: Demir (III) Klorür
g	: Gram
H ₂ O	: Su
H ₂ SO ₄	: Sülfirik Asit
HCl	: Hidroklorik Asit
Ir	: Iridyum
kg	: Kilogram
KMnO ₄	: Potasyum Permanganat
m ²	: Metrekare
mg	: Miligram
MPa	: Mega Paskal
N ₂	: Azot Gazı
NaOH	: Sodyum Hidroksit
-NH ₂	: Amino Radikal
Ni	: Nikel
nm	: Dalga Boyu
Nm	: Nanometre
-OH	: Hidroksil
pH	: Hidrojen Potansiyeli
Pt	: Platin
Ru	: Rutenyum Elementi
-SO ₃ H	: Sülfonik Asit

Kısaltmalar

AFM	: Atomik Kuvvet Mikroskobu
AR-GE	: Araştırma ve Geliştirme
BET	: Yüzey Alanı Ölçümü Analizi
dk	: Dakika
DMF	:Dimetilformamid
DTG	: Diferansiyel Termal Gravimetre Analizi
EDTA	: Etilendiamin Tetraasetik Asit
EDX	: Enerji Dağılım Xışını Spektrometresi
FTIR	: Fourier Dönüşümlü Kızılötesi Spektroskopisi
GO	: Grafen Oksit
KBÇY	: Kimyasal Buhar Çöktürme Yöntemi
MB	: Metilen Mavisi
NASA	: Ulusal Havacılık ve Uzay dairesi
PVDF	: Polivinilidin Florür
SEM	: Taramalı Elektron Mikroskobu
TEOS	: Tetra Etil Orto Silika
TGA:	: Termogravimetrik Analiz
XRD	: X- Işını Difraksiyonu
TMOS	: Tetra Metil Orto Silika
UV	: Ultra Viyole

ŞEKİL LİSTESİ

Şekil 1.1. Sol-jel tekniği ile aerogel üretim aşamaları.....	10
(Topçu, 2022).....	10
Şekil 1.2. Sol-Jel yöntemi ile sentezlenmiş farklı görünümdeki karbon aerogeller a) silindirik monolit b) öğütülmüş toz şeklinde c) resornisol formaldehit aerogel (solda) ve karbon aerogel (sağ kısım) görüntüleri.....	11
Şekil 1.3. Grafenden grafen oksit eldesi (Özal ve ark.,2021).....	17
Şekil 1.4. Metilen mavisinin üç boyutlu molekül görünümü (Yemiş ve Yenil, 2017) .	18
Şekil 3.1. a) Jsr marka yatay karıştırıcı, b) Memmert marka etüv, c) Sacaltec marka hassas terazi	25
Şekil 3.2. Aerogelin sentezi sırasında geri soğurucu sisteme bağlanması ve sisteme N ₂ gazı verilmesi.....	26
Şekil 3.3. Aerogellerin saf su ile vakum pompası yardımıyla yıkanması	26
Şekil 3.4. Aerogel yıkama süresince kullanılan süzgeç kağıtları	27
Şekil 3.5. Yıkama işleminden sonra aerogellerin desikatörde kurutulması	27
Şekil 3.6. Hazırlanan numunelerin yatay karıştırıcıda karıştırılması	28
Şekil 3.7. %33, %16,5, % 8,25 ve % 4,25 lik metilen mavisi çözeltileri	29
Şekil 3.8. Zamanla %33, %16,5, % 8,25 ve % 4,25 lik metilen mavisi çözeltilerinde görülen renk değişimi	30
Şekil 4.1. Aerogellerin FT-IR grafiği	31
Şekil 4.2. Aerogelin nitrojen adsorpsiyon-desorpsiyon izotermi ve gözenek boyutu dağılım eğrileri.....	33
Şekil 4.3. Aerogelin farklı karıştırma hızlarındaki % adsorpsiyon verimi.....	33
Şekil 4.4. Aerogelin farklı pH'larda % adsorpsiyon verimi.....	34
Şekil 4.5. Farklı adsorban dozlarında % adsorpsiyon verimi	35
Şekil 4.6. Farklı temas sürelerinde % adsorpsiyon verimi	36
Şekil 4.7. a) Langmuir izoterm grafiği	39
Şekil 4.7. b) Freundlich izoterm grafiği	40
Şekil 4.8 Yalancı birinci derece kinetik model.....	41
Şekil 4.9 Yalancı ikinci derece kinetik model.....	42
Şekil 4.10 Adsorpsiyon kapasitesinin zamana bağlı değişimi.....	42

TABLÖLAR LİSTESİ

Tablo 4.1. Aerogelin BET analizine göre yüzey alanı, gözenek hacmi ve ortalama gözenek boyutu	31
Tablo 4.2. Denge izoterm eğrilerine ait parametreler	37
Tablo 4.3. Temkin izoterm verileri	37
Tablo 4.4. Freundlich izoterm verileri	38
Tablo 4.5. Langmuir izoterm verileri	39
Tablo 4.6. Aerogelin MB adsorpsiyonuna ait kinetik parametreler	43
Tablo 4.7. Adsorpsiyon için kullanılan bazı malzemelere ait parametreler	44



1. GİRİŞ

Her geçen gün katlanarak artan çevre kirliliği, temiz su kaynaklarının hızla tükenmesine ve bu sebeple temiz suya olan ihtiyacın giderek artmasına yol açmıştır. Bu nedenle mevcut su kaynaklarının korunması, mümkün olduğunca az su kullanan üretim süreçlerinin geliştirilmesi ve uygulanması zorunlu hale gelmiştir. Sanayi ve endüstriyel tesislerin üretimlerinden kaynaklanan su kirliliği miktarı fazla olduğu için çevresel etkileri de bir o kadar fazladır. Bu durum sadece çevreyi etkilemekle kalmamakta, aynı zamanda önemli ekonomik zararlara da neden olmaktadır (You ve ark., 2009).

Dünyada su tüketimi en çok sanayi, nüfus ve tarım sektörlerinde olmaktadır. Özellikle üretimde su kullanan endüstriyel kuruluşlar, yeraltı suyu bakımından zengin tarıma elverişli araziler için ciddi tehlike oluşturmaktadır. Aynı zamanda üretim sonucunda açığa çıkan atıklarıyla da suyu kirletmektedir. Ülkemizin de mevcut su kaynaklarını koruması, aynı zamanda da tasarruflu kullanılması gerekmektedir. Genel olarak mevcut su, endüstriyel içme suyu ve tarımsal sulama için kullanılmaktadır (Dorak ve ark., 2019).

Dünyadaki su kütlelerinin kirlenmesine konutlar, endüstriyel tesisler, termik santraller, gübreler, kimyasal ilaçlar, tarımsal endüstrilerden kaynaklanan atık sular, nükleer santrallerden kaynaklanan sıcak su ve toprak neden olmaktadır. Meydana gelen bu kirlilik tüm canlıları etkilemekte, zarar vermektedir. Günümüzde çevre kirliliğine neden olan sektörlerin başında tekstil ve boya sanayisi gelmektedir (Serin, 2010; Yağız, 2016). Renk verme işleminin gerekli olduğu hemen her sektörde kullanılan su ve çevreye zarar veren bu boyar maddelerin sudan arıtılması işlemi oldukça maliyetlidir. Üretim sistemlerinde kalan bu boyalar gerekli yıkama ve temizlik işlemleri ile birlikte suya karışarak, doğrudan dışarı verilmesi neticesinde; kontrolsüz şartlarda kanserojen aromatik aminlerin oluşması büyük tehlike arz etmektedir. Bunun yanında aynı zamanda görüntü kirliliği oluşturmaktadır (Kapdan ve Kargı, 2000). Çevreye arıtılmadan atık sularla verilen bu boyalar tüm canlılar üzerinde toksik etki de meydana getirmektedir (Löschau ve Krätke, 2005). Sürdürülebilir ve çevreci bir yaşam için doğal kaynakların tekrar tekrar yüksek verimle kullanıldığı, kirliliğin minimum düzeye indirildiği yeni üretim sistemlerinin planlanması ve hayata geçirilmesi gerekmektedir. Boyalar söz konusu olduğunda, bu proseslerde üretim en az miktarda doğal madde kullanılarak, en az miktarda enerji kullanılarak ve çevreye hiçbir zararlı atık bırakılmadan tasarlanırsa, ideal "çevre dostu üretim" elde edilir (Kul, 2018).

Günümüzde yaşanan gelişmeler göz önünde bulundurulduğunda küreselleşme ve sanayileşmeyle birlikte hali hazırda mevcut yöntemlerle elde edilen malzemeler, cihazlar vs. beklentileri karşılayamamaktadır. Bu sebeple ilerleyen teknoloji ile birlikte bu malzemelerin yüksek performanslı, fonksiyonel ve sürdürülebilir olanlara evrilmesini sağlayacak AR-GE faaliyetleri önem ve hız kazanmaktadır. Bu bağlamda nanoteknolojinin de hayatımıza girmesiyle endüstriyel anlamda yeni nesil malzemeler üretilmeye başlanmıştır. Bu malzemelerden biri de aerojellerdir.

Aerojel adı her ne kadar daha yeni yeni duyuluyor olsada, bulunuşu 1930'lu yıllara dayanmaktadır. Bu yıllarda Kaliforniya'da bulunan Steven S. Kistler, ıslak jel maddeler üzerine çalışmalarını sürdürürken bu jellerle aynı boyutta ve biçimde benzeyen katı bir jel oluşturmayı amaçlamaktaydı. Ancak bu maddenin içerisindeki suyun, jelin içerisindeki mikro gözenek yapısını bozmadan uzaklaştırması gerekmektedir. Bunun da zor bir işlem olması sebebiyle Kistler, yapıdaki suyun yerini hava ile doldurduğu takdirde sorunun ortadan kalkacağını düşünmüştür. Bu işlemi de sıvıyı buhar basıncından daha yüksek bir basınç altında tutarak sıcaklığı arttırıp, kritik sıcaklıkta bu sıvıyı gaz faza geçirerek gerçekleştirmiştir (Buğdaycı, 2008).

Kistler çalışmasında ilk olarak silika jelleri kullanmıştır. Silika jeller yeterince başarılı olamayınca alüminyum, yumurta akı ve kauçuk gibi malzemelerden aerojel elde etmiştir. Bu gelişmeden birkaç yıl sonra Monsanto adında bir şirket Kistler ile birlikte ilk ticari aerojeli piyasaya sürmüştür. Kozmetik sanayi ve diğ. macunlarında katkı maddesi olarak kullanılmıştır. 1970'li yıllara kadar aerojellerle ilgili çalışmalar sektöre uğramıştır. Sonrasında Fransız hükümeti üniversite ile iş birliği yaparak gözenekli malzemelerde oksijen veya roket yakıtı depolayabilmek için harekete geçti. Çalışmada mevcut yöntemlerle aerojel üretiminin minimum iki hafta kadar sürdüğü anlaşıncaya, bu süreci hızlandırmak için çeşitli yollar denenmiştir. Ortaya çıkan yeni süreç Sol-gel olarak adlandırılmıştır. Bu yöntemde Kistler'in kullandığı sodyum silikat yerine alternatif olarak TMOS (tetramethyorthosilicate) kullanılmıştır. Yani metanol çözeltisi içerisinde TMOS'u hidrolize ederek ilk adımda alkojel oluşturup, sonra bu jelleri süper kritik koşullarda nemini gidererek yüksek kalitede aerojeller elde edilmiştir. Yöntemi ise Teichner ve ekibi geliştirmiştir (Buğdaycı, 2008).

Bu çalışmada gözenekli indirgenmiş grafen/aktif karbon (rGO/AC) kompozit aerojel elde edilerek sulu çözeltilerden boyar madde adsorpsiyon çalışması yapılmıştır. Boyar madde olarak metilen mavisi kullanılmıştır. Bu aerojellerin boyar madde

adsorpsiyonları değişen karıştırma hızı, pH, adsorban dozu, sıcaklık ve zaman parametrelerine göre incelenmiştir.

1.1. Boyar Maddelerin Sınıflandırılması

Cisimlerin yüzeyinin olumsuz etkenlerden korunması veya görüntüsünün daha kusursuz olması için renklendirilmesi işleminde kullanılan maddelere boya adı verilir. Kumaş, elyaf gibi özellikle tekstil sanayiinde kullanılan malzemeleri renkli hale getirmede uygulanan maddelere ise boyar madde denir (Ekinci, 2007; Yağız, 2016). Maddeleri renklendirmek amacıyla kullanılırlar. Boyar maddeler boyalar ve pigmentler olmak üzere başlıca iki gruba ayrılırlar. Boyalar, bir çözücü içerisinde çözüldükten sonra kullanıma hazır hale gelen boyar maddelerdir. Boyaların çoğu aromatik gruplardan oluşan organik bileşiklerdir. İnorganik boyaların kullanım alanı organik boyalara göre daha sınırlıdır.

Organik boyalar kromojenik ve oksokromik gruplardan oluşur. Bu renkli bileşikler, kromofor adı verilen grupları içeren aromatik halkalardan veya konjuge çift bağlı alifatik zincirlerden oluşur. Bunlara kromojen denir. Oksokromik gruplar, boyaya rengini veren ve boyanın liflere tutunmasını sağlayan gruplardır. Oksokromik gruplar, renk yoğunluğunu artıran kromojenik gruplara bağlanır. Bu oksosom gruplar; $-NH_2$, $-OH$ gibi tuz meydana getiren gruplar veya bunların benzeri çözünebilir $-COOH$ veya $-SO_3H$ radikalleridir. Boyaların sınıflandırılmasında oksokromozomlar, kromoforlar, kromojenler kullanılırlar. Kimyasal olarak sınıflandırmak için ise $-OH$, $-NH_2$, $-SO_3H$, $-COOH$ gibi radikaller belirleyici rol oynamaktadır (Shreve ve Brink, 1977; Yağız, 2016). Boyar maddeler boyama özelliklerine göre aşağıdaki gibi sınıflandırmaktadır (Seventekin, 1988). Bu boyar maddelerin bir kısmına kısaca değinilmiştir.

- ✓ Bazik Boyar maddeler
- ✓ Asit Boyar maddeleri
- ✓ Direkt Boyar maddeler
- ✓ Küp Boyar maddeleri
- ✓ Suda Çözünen Küp Boyar maddeleri (İndigosoller)
- ✓ Reaktif Boyar maddeler
- ✓ Diazolama Boyar maddeleri
- ✓ Kükürt Boyar maddeleri
- ✓ Naftol Boyar maddeleri
- ✓ Oksidasyon Boyar maddeleri

- ✓ Ftalogen Boyar maddeleri
- ✓ Dispersiyon Boyar maddeleri
- ✓ Pigment Boyar maddeleri
- ✓ Mordan Boyar maddeler

1.1.1. Bazik (Katyonik) boyar maddeler

Diğer adıyla katyonik boyar maddeler renkli bir katyon ile renksiz bir anyonun bir araya gelmesi ile oluşur (Seventekin, 1988). Katyon boyar maddenin renkli kısmı olup genel gösterimi $[B.M.NH_3]^+ Cl^-$ şeklindedir. Bu sebeple bazik boyar maddelere “katyonik boyar maddeler” de denilmektedir. Zamanında yün ve pamuk malzemeleri renklendirmek için kullanılmışlardır, günümüzde ise poliakrilonitril elyafların boyanmasında kullanımı söz konusudur (Kurbanova ve ark., 1998). Bazik boyar maddeler istenilen parlaklık ve canlılıkta renk verebilirler ancak solmaya ve UV etkisine karşı dirençleri düşüktür. Bu boyaların poliakrilonitril liflere karşı direnci yüksektir (Seventekin, 1988).

1.1.2. Asidik (Anyonik) boyar maddeler

Sülfonik asitlerin sodyum tuzları veya çok nadiren karboksilik asitler formundadır. $Bm"SO_3"Na^+$ genel formülüyle gösterilmektedir. Yapılarında bir veya birden fazla sülfonik asit grubuna veya karboksilik asit grubuna sahip olabilirler. Asidik boyar maddelerin birçoğunun selülozik elyafa karşı ilgisi olmamakla birlikte, özellikle besin maddelerinin renklendirilmesi; yün, ipek, kağıt, deri vb. malzemelerin boyanması için de kullanılmaktadır (Başer ve İnanıcı, 1990; Yağız, 2016; Kurbanova ve ark., 1998).

1.1.3. Direkt (Substantif) boyar maddeler

Direkt boyar maddeler genel olarak sülfonik asitlerinden, nadir olarak da karboksillik asitlerin sodyum tuzları olup, direk boyar maddelerde renkli kısmı oluşturan yapılar anyonlardır. Yani renkli kısmı oluşturan iyon anyon halindedir. Genellikle $[B.M.SO_3]^- Na^+$ formülündedir. Direkt boyar maddelerin büyük bir kısmı kimyasal yapılarından dolayı azo boyar maddeler grubuna dahil edilmişlerdir. Selülozik lifleri ve protein liflerin bir kısmını boyayabilirler (Kirişken ve Kalkan, 2002). Sudaki çözünürlükleri yüksek olduğundan solmaya karşı gösterdiği direnç azdır (Seventekin, 1988).

1.1.4. Reaktif boyar maddeler

Reaktif boyalar, selüloz ile kovalent bağlar oluşturur. Genellikle düşük ısıda bile boyayabilme özellikleri enerji tasarrufu sağlamaktadır ve boyar maddeler içerisinde sürekli boyama metotları için en uygun olanıdır (Kurbanova ve ark., 1998). Bitkisel lifleri boyamak için kullanılırlar. Bu boyalar atık sularda istenmeyen bileşikler olup problem olarak karşımıza çıkmaktadır. Bunun sebebi ise yapılarından kaynaklı biyolojik indirgemeye karşı gösterdikleri dayanımdır (Al-Degs, ve ark., 2000; Yağız, 2016). Selüloz elyaf boyama ve baskı işlemlerinde çok önemli bir boya olmasına rağmen yün, naylon, deri gibi malzemelerin boyanmasında yaygın olarak kullanılmamaktadır. Reaktif boyar maddelerde tüm renkler bulunmaktadır ve renkler çok canlıdır (Özcan, 1978; Yağız, 2016).

1.2. Boya Gideriminde Kullanılan Yöntemler

Boyar madde eldesi, plastiklerin renklendirilmesinde, tekstil sanayiinde, tarım kimyasallarının üretiminde ve daha birçok sektörde yüzey aktif maddelerin yaygın olarak kullanılması, tüm canlıların sağlığını tehdit etmektedir. Çözücü ekstraksiyonu, biyosorpsiyon ve ultrafiltrasyon gibi bu maddeleri atık sulardan uzaklaştırmak için kullanılan yöntemler, hem maliyetli hem de kirlilik etmeni maddenin sudaki yoğunluğunun fazla olduğu durumlarda yetersiz kalmaktadır. Aynı zamanda tüm bu belirtilen yöntemlerin iyonları uzaklaştırmada yeterince etkili olmaması, sistemlerin işlem sonrasında tekrar filtrelenmesi gereken atık maddeler oluşturmaları ve en önemlisi yüksek enerji gereksinimi bu karmaşık yöntemler için dezavantajlardır. Özellikle suda çözünen boyar maddelerin mevcut işlemlerle uzaklaştırılmaları oldukça güçtür. Bilinen fizikokimyasal yöntemler de çoğu zaman yetersiz kalmaktadır (Sülkü, 2012). Tekstil suyunu arıtmak için kullanılan yöntemler; biyolojik, fiziksel ve kimyasal yöntemlerin çeşitli birleşik kullanımlarından oluşur (Doğar, 2000; Lin ve ark., 1994). Fiziksel metotlar; çökelme / çöktürme metotları (koagülasyon, flokülasyon, sedimentasyon), adsorpsiyon (aktif karbon, biyolojik çamur, silikajel üzerine), filtrasyon ve ters ozmoz gibi tekniklerden oluşur. Tekstil suyunu temizlemek için biyolojik yöntemler de kullanılmaktadır. Atık suyun rengini gidermek için kullanan kimyasal işlemler; İndirgeme, oksidasyon, kompleksometrik yöntemler, iyon değişimi ve nötralizasyondan oluşur (Doğar, 2000).

1.2.1. Kimyasal yöntemler

Uzun süredir en çok tercih edilen tekstil atık sularındaki arıtım yöntemleri kimyasal yöntemlerdir. Bunun temel sebebi kullanılan kimyasalların ve miktarlarının atık sudaki kirlilik etmenlerinin miktarına göre değiştirilebilir ve ayarlanabilir olmasıdır (Socha, 1991). En çok bilinen kimyasal yöntemlerin başında yükseltgenme, kimyasal flokülasyon ve çöktürme, cucurbitüril makrosiklik moleküller ile arıtım gelmektedir.

1.2.2. Biyolojik yöntemler

Biyolojik yöntemler, endüstriyel üretim sistemlerinde kullanılan en önemli giderim yöntemidir (Şengül ve ark., 2003). Bu biyolojik arıtma, biyokimyasal bozunmanın daha hızlı ve daha kontrollü gerçekleştiği, yüzey suyu kirleticilerinin gelen ortama yayılmadan belirli bir yerde tutulduğu yaygın olarak kullanılan bir yöntemdir. Biyodegradasyon, organik atıkları ekosistemlere aktarmadan önce mikroorganizmalar tarafından salgılanan enzimlerle çamur haline getirmek için kullanılan bir bertaraf yöntemidir (Tutuş ve Eroğlu, 1998).

1.2.3. Fiziksel Yöntemler

Biyolojik bozunmayı tespit edebilmek için kullanılacak yöntemlerin sınırlı olması ve zamanın en önemli değişken olması suda bulunan ekosistemlerdeki bozunmayı tespit etmek için metotların kullanımını yetersiz kılmaktadır. Bu durum ise başka farklı yöntemlere yönelmeye sebep olmaktadır. Alternatif olarak kullanılabilecek en önemli yöntemlerin başında ise adsorpsiyon gelmektedir. Adsorpsiyon yöntemi tekstil atık sularının arıtılması ve proselerdeki boyamadan kaynaklı oluşan rengin uzaklaştırması amacıyla uygulanan en etkili fiziksel ayırma yöntemidir.

1.2.3.1. Adsorbsiyon

Adsorpsiyon, bir ara yüzeyde (katı yüzey) bir malzemenin konsantrasyonunda yığın konsantrasyonuyla orantılı olarak bir artış olarak tanımlanabilir. Basit olarak, moleküllerin temas ettikleri yüzeydeki çekim kuvveti sayesinde yüzeye bir arada kalması şeklinde açıklanabilir. Konsantrasyonun arttığı durumdaki adsorpsiyon işlemi pozitif, konsantrasyonun azaldığı durumdaki adsorpsiyon işlemine negatif adsorpsiyon denir. Ara yüzeyde biriken malzemeye “adsorblanan madde veya adsorbat” ve işlemin gerçekleştiği katıya ise “adsorbent veya adsorban” adı verilmektedir. Adsorpsiyon işleminin tersi olaya “desorbsiyon” denir. Desorpsiyonda, katı yüzeyine tutunmuş halde

olan madde ortama tekrar verilir. Adsorpsiyon ve absorpsiyon birbiri le karıştırılan ancak birbirinden tamamen farklı iki kavramdır. Adsorpsiyon, çözelti içerisinde bulunan molekülün katı yüzeyinde birikmesiyle suretiyle ayrılmasıdır. Absorpsiyonda ise, maddenin diğer bir faz içerisinde dağılması söz konusudur. Adsorpsiyon, yüzeyde adsorbe edilen maddenin kuvvetine göre "fiziksel adsorpsiyon" ve "kimyasal adsorpsiyon" olarak ikiye ayrılır. Fiziksel adsorbsiyon, düşük konsantrasyonlarda gerçekleştirilecek endüstriyel ayırma işlemlerinde kullanılan temel yöntemdir. Fiziksel adsorpsiyonun temel prensibi seçilen katıların ayrılması istenilen malzemeleri çözeltiden adsorplamasına dayanmaktadır. Endüstriyel gaz karışımlarındaki safsızlık unsurlarının giderimi, sıvı ve gazlardaki istenmeyen kokuların uzaklaştırılması kullanım alanlarına örnektir. Fiziksel adsorpsiyonun özellikle katı katalizör uygulamalarında önemi büyüktür (Gregg ve Sing, 1982).

Kimyasal adsorpsiyon, adsorbat ile adsorbent arasındaki fonksiyonel grupların kimyasal tepkimesi ile oluşur. Genellikle adsorplanan madde yüzeyde bir katman oluşturur ve hareketsizdir. Adsorplanan maddenin yüzey alanının tamamı bu katman ile kaplandığında adsorplama sonlanmış olur ve bu durum şartlar (kimyasal türü, miktarı gibi) değişmediği takdirde genel olarak tersinmezdir. Sıcaklık çok yükselirse, fiziksel adsorpsiyon kimyasal adsorpsiyona dönüşebilir (Gregg ve Sing, 1982).

Adsorpsiyon teknikleri atıkların yüksek verimle giderimini sağlaması sebebi ile son zamanlarda oldukça gündemdedir. Adsorpsiyon düşük maliyetli bir yöntemdir ve işlem sonucunda elde edilen ürünlerin kalitesi de yüksek olmaktadır. Adsorpsiyon işlemi, boya/sorbent etkileşimi, katı yüzey alanı, partikül boyutu, pH, sıcaklık ve temas süresi gibi birçok parametreye bağlıdır. Aktif karbon ile renk giderimi ise en çok kullanılan adsorpsiyon yöntemlerinden biridir. Bu metot asit, katyonik ve mordant boyalar için oldukça etkiliyken, dispers, direkt, vat, pigment ve reaktif boyalar için aynı etki söz konusu değildir. Yöntemin verimini giderimi sağlanacak atık suyun ve kullanılan karbonun özellikleri belirlemektedir. Sistem performansındaki düşüşün önüne geçmek için geri kullanımdan ve rejenerasyondan kaçınmak ve kullanılan aktif karbon miktarını arttırmak gerekmektedir. Aktif karbonun da oldukça maliyetli bir malzeme olması sebebiyle dezavantaj oluşturmaktadır. Bataklık kömürü de aktif karbon gibi adsorban olarak adsorpsiyonda kullanılmaktadır. Boya ile kirlenmiş atık sudaki polar organik bileşikler ve geçiş metallerini adsorbe edebilir. İrlanda ve İngiltere’de yaygın olarak kullanılmaktadır. Bataklık kömürü ucuz bir malzemedir ancak tanecik boyutunun büyük olması aktif karbona göre adsorpsiyon kapasitesinin düşük olmasına

neden olmaktadır. Boya gideriminde mısır koçanı, doğal killeri, ağaç parçacıkları gibi doğal malzemeler de adsorban olarak hem ucuz hem de kolay ulaşılabilir olması sebebiyle boya gideriminde kullanılabilir (Robinson ve ark., 2001).

Adsorbsiyon; birçok kimyasal, biyolojik ve fiziksel sistemlerde; endüstride ise özellikle atık suların arıtılmasında kullanılmaktadır. Atık sulardaki kirlilik unsurlarının giderilmesinde adsorban olarak yaygın kullanılan aktif karbona alternatif ise karbon aerogeller olmuştur. Petrol ürünlerinde ve şeker çözeltilerindeki istenmeyen rengin giderilmesi, havadan ve diğer gazlardan nemi ayrıştırılması, sudan istenmeyen koku ve renklerin giderilmesi de adsorpsiyon teknikleriyle gerçekleştirilen işlemlerden bazılarıdır.

1.2.3.1.1. Adsorbsiyonu etkileyen faktörler

Adsorpsiyon karıştırma hızı, pH, sıcaklık, adsorbent ve adsorbatın özellikleri, tanecik boyutu, temas süresi, ortam gibi birçok farklı parametreden etkilenmektedir. Adsorpsiyonun gerçekleşmesi bu değişkenlerin optimum koşulları sağlaması gerekmektedir.

Karıştırma hızı: Adsorpsiyon hızı, sistemin karıştırma hızına bağlıdır; iki tür geçiş tarafından yönetilir. Membran difüzyonu (yüzeye yapışık malzemeyi çevreleyen çözücü sıvı filminden geçerek) ve gözenek difüzyonu (yüzeydeki malzemelerin gözeneklere girmeden önce geçmesi gereken geçiş). Karıştırma gereğinden az yapılacak olursa film difüzyonu hızı sınırlandıracak, karıştırma yeterli olduğu takdirde ise film difüzyon hızı por difüzyon hızına doğru artış gösterecektir (Sawyer ve Mccarty, 1978).

pH: Adsorpsiyonu etkileyen önemli bir parametredir ve iyon adsorpsiyonunu doğrudan etkilemektedir. Asitler düşük pH değerlerinde, bazlar ise yüksek pH değerlerinde daha çok adsorblanmaktadır (Bıyık,2013).

Sıcaklık: Adsorbsiyonu etkileyen bir diğer faktör ise sıcaklıktır ve adsorpsiyon hızını doğrudan etkilemektedir. Adsorpsiyonun sıcaklığa bağlılığı ekzotermik veya endotermik olmasıyla ilişkilidir. Adsorpsiyon endotermik ise, artan sıcaklıkla reaksiyon hızı doğrudan artarken, ekzotermik adsorpsiyon artan sıcaklıkla azalır (Sawyer ve Mccarty, 1978).

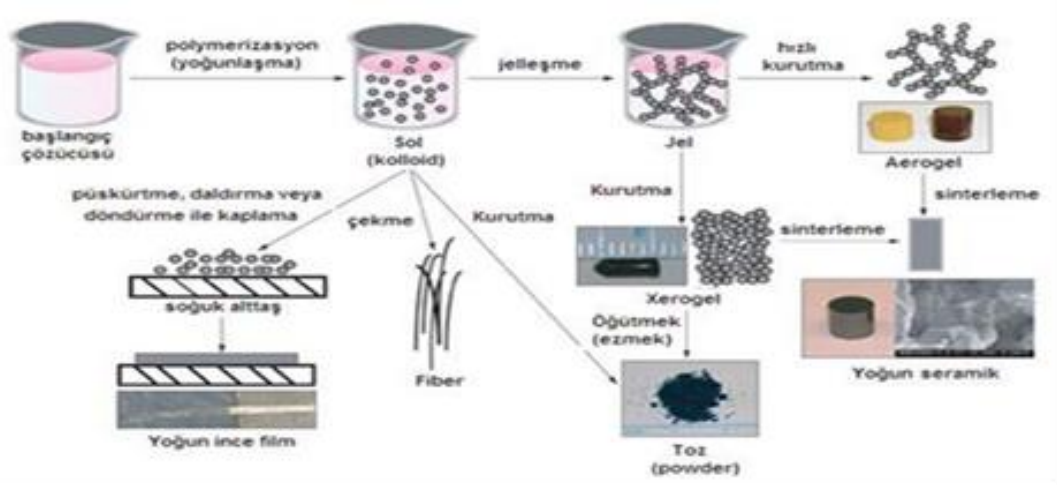
Adsorbent özellikleri: Adsorpsiyon yüzeyde gerçekleştiğinden dolayı yüzey alanı ile doğru orantılıdır. Adsorplayan maddenin geniş yüzeyli, küçük parçalı ve gözenekli bir yapıya sahip olması adsorpsiyonu arttırmaktadır (Bıyık,2013).

Adsorbat özellikleri: Adsorpsiyonun gerçekleşmesi için molekülün çözücünden ayrılması ve adsorbat üzerine bağlanması gerekir. İnorganik maddeler suda çözüldükleri için adsorpsiyonları düşüktür. Adsorbat suda ne kadar az çözünürse, adsorbe edilen miktar o kadar fazladır. (Anonim, 2021)

Temas süresi etkisi: Adsorpsiyonun başlangıcında giderimde bir artış söz konusudur. Bu durum yüzey alanının geniş olmasından kaynaklanmaktadır. Zamanın ilerlemesi ve temasın artmasıyla birlikte yüzey alanı gittikçe küçülür dolayısıyla adsorblama hızı da düşer. Yüzey alanının küçülmesi ve adsorbatın doyumluğa ulaşması sonucunda adsorpsiyon verimi düşer (Çevik ve ark., 2008).

1.2.3.1.2. Aerojellerin adsorbsiyonda kullanımı

Aerojeller sahip oldukları mükemmel fizikokimyasal özellikleri sebebiyle (termal iletkenlik, ses hızı geniş yüzey alanına sahip nano gözenekli üç boyutlu ağ yapılar vs.) son zamanlarda oldukça dikkat çekmektedir (Yılmaz ve ark., 2022). Aerojeller büyük oranda havadan oluşan hibrit malzemelerdir. Aerojeller, bir jelin yapısında bulundurduğu sıvının hava ile değiştirilmesiyle elde edilmektedir. Ekolojik olan bu malzemeler ayrıca, üretiminde jelin sıvı fazının bir gaz fazı ile değiştirildiği düşük yoğunluklu aerojellerdir (Saraç ve Topan, 2016). Duman gibi görünmeleri sebebiyle donmuş duman veya mavi duman şeklinde isimlendirilmişlerdir. Aerojeller, oldukça düşük yoğunluklu, geniş özel yüzey alanları ve yüksek gözenekli yapıları olan gelişmiş yeni nesil malzemelerdir (Yılmaz ve ark., 2022). Çok iyi ses, elektrik, ısı ve su yalıtkanlarına sahiptir. Aerojellerin öne çıkan özelliklerinden belki de en önemlisi ısıyı çok iyi yalıtımlarıdır. Bu durumun nedeni ise, ısı iletim türlerinin (taşıma, iletim, ışıma) etkilerini büyük oranda etkisiz hale getirmeleridir. Diğer katılardan farklı birçok özelliğe sahip olmaları kullanım alanlarının çeşitlenmesine yol açmıştır. Aerojeller, gelecekte trafik kazalarında araçlarda çarpma ile oluşacak kinetik enerjiyi adsorplayarak etkisini azaltmak, oksijen kaynağı ile direkt verilen ateş arasında yalıtım sağlaması ile olası yangınları engellemesi sebebiyle yakın gelecekte başta yalıtım ve güvenlik olmak üzere birçok alanda yaygın olarak kullanılacağı düşünülmektedir. Yakın gelecekte, aerojeller notebook ve elektronik uçakların kontrol mekanizmaları gibi kıymetli ürünlerin yapımında da kullanılacaktır. Aerojeller, büyük ölçüde sol-jel tekniği ile hazırlama, yaşlandırma ve kurutma olmak üzere üç temel aşama ile elde edilmektedir (Buğdaycı, 2008).



Şekil 1.1. Sol-jel tekniği ile aerogel üretim aşamaları
(Topçu, 2022)

Aerogellerin en bilinen türü silika aerogellerdir. Karbon aerogeller, nanotüp aerogeller, alüminyum aerogeller, metal aerogeller başta olmak üzere birçok çeşidi bulunmaktadır. Aerogel türlerine kısaca değinilecektir.

1.2.4. Aerogel türleri

1.2.4.1. Alümina aerogeller

Çeşitli kimyasal reaksiyonlarda katalizör olarak ya da diğer malzemeler için öncü olarak metal oksit aerogeller kullanılırlar ve sol jel yönteminde kullanılan proses sürecinin uzatılması ile oluşturulan bu metal oksit aerogellerin en büyük sorunu yüksek viskoziteye sahip olmaları ve atmosferdeki su buharı ile hidroliz reaksiyonu gerçekleştirmeleridir. Bu olumsuz durumu ortadan kaldırmak için havayı uzaklaştırmak ve alkositleri yapıdan ayırmak çözüm olabilmektedir. Alüminyum oksitten elde edilen aerogeller çoğunlukla katalizör olarak değerlendirilmektedir. NASA alümina aerogelleri çok hızlı olan parçacıkları yakalamada kullanmayı hedeflemekte, üzerinde çalışmaktadır. Öte yandan birçok farklı malzemeden aerogel elde edilmekte ve bunların kullanım alanları üzerine çeşitli araştırmalar yapılmaktadır (Buğdaycı, 2008).

1.2.4.2. Karbon (Organik) aerogeller

Organik aerogeller, yüzey alanını genişletmek amacıyla son zamanlarda piroliz işlemi kullanılarak da üretilen yüksek gözenekli yapıya, oldukça geniş yüzey alanına, düşük yoğunluğa ve farklı yüzey kimyası olan tipik gözenekli karbon esaslı aerogellerdir. Yüksek elektrik iletkenliğine sahiplerdir. Zehirli olmayan yapıları sayesinde çevre dostu bir malzemedir. Ayrıca aerogel reaktif boya işleme

uygulamalarında adsorban bir malzeme olarak da değerlendirilmektedir. Karbon aerogelin mikro ve gözenekli yapıları adsorpsiyon kapasitesini önemli ölçüde etkiler (Saquing ve ark., 2005).



Şekil 1.2. Sol-Jel yöntemi ile sentezlenmiş farklı görünümdeki karbon aerojeller a) silindirik monolit b) öğütülmüş toz şeklinde c) resornisol formaldehit aerogel (solda) ve karbon aerogel (sağ kısım) görüntüleri (Balkabak, 2009)

1.2.4.3.Silika (İnorganik) aerojeller

Aerogellerin en çok çalışılan türü olan silika aerogeller, yüksek yüzey alanı ve gözeneklilik, çok düşük yoğunluk, düşük termal iletkenlik, çok düşük kırılma indeksi ve dielektrik sabiti gibi istisnai ve üstün özelliklere sahiptir (Güler, 2012; Gurav ve ark., 2010). Doğal hammaddelerden üretilmesi ve çevre dostu olması sebebiyle yaygın olarak kullanılmaktadır. Silika aerogeller kızılötesi ışımayı soğurma yeteneklerinin olması sebebiyle, günışığını geçirir ancak ısıyı hapsedir. Dolayısıyla iyi bir yapı malzemesi olmaya adaydır (Yu ve ark., 2015).

1.2.4.4.Diğer aerojeller

Aerogel türlerinin örnekleri, yarı iletken bakır metal aerogelleri ve nanotüp aerogelleri içerir. İlk olarak 2002 yılında üretilen bakır içeren metal aerogeller, geçirgenlik, optik şeffaflık ve fotoluminesans özellikleri açısından benzersiz bir yapıya sahiptir. Farklı yöntemlerle nanotüp ve aerogelin kombinasyonu sağlanmış. Bu malzeme yeterli büyüklükte gözenekli yapıya sahip olmamasından ve parçalı yapıda olması sebebiyle aerogel tanımına uymamış ve elastik duman olarak isimlendirilmiştir (Du ve ark., 2013).

1.2.5. Aerogelerin kullanım alanları

Günümüzde aerogel altından çok daha pahalıdır. Bir kg aerogel yaklaşık olarak 46.000\$ değerindedir. Her ne kadar pahalı olsa da aerogel başka maddelerle karıştırılarak günlük hayatımızdan kullandığımız birçok eşyada bulunmaktadır. Kıvam

arttırıcı maddeler, makyaj malzemeleri, sigara filtreleri, makyaj malzemeleri, silikon üretimi, itfaiye kıyafetleri, dalgıç kıyafetleri, pencereler, boyalar, roketler, ev yapı malzemeleri üretimi gibi birçok alanda üretimde aerojeller kullanılmaktadır. Kirli suları filtre etmek, aşırı sıcaklıklara karşı yalıtıcı malzeme olarak kullanılmaları ve mücevhercilik bunlardan sadece birkaçıdır (Anonim, 2021) Aerojel, termik izolasyon, sızıntıları temizlemek amacıyla kimyasal adsorbant olarak, akustik yalıtım, uzay ve havacılık sanayisinin uygulamalarında, ilaç yayma sistemleri, pencere-kapı uygulamaları gibi birçok alanda kullanılmaktadır. Çin'deki araştırmalar sonucunda olası petrol kaçağlarının temizlenmesinde kullanılabileceği ortaya çıkmıştır. Aerojellerin izolasyon kabiliyetleri sayesinde gemi ve teknelerin kazan kısımlarında minimum yalıtım kalınlığı ile maksimum enerji elde edilmesine olanak sağlamaktadır. Bu malzemeler mimarlık alanında bir çeşit saydam yalıtım malzemesi olarak kullanılmaktadır. Genellikle fiber takviyeli aerjel kullanıldığında pencere gibi yapı bileşenlerinde kullanılan yapı malzemeleri yerine, bina dış cephelerinde ve dış cephe kaplamalarında ışık yayan dolgu maddesi olarak kullanılırlar. Aerojeller ayrıca vakum yalıtımı için kullanılan panellerin içine yerleştirilerek kullanılır.

NASA bu malzemelerden hem yararlanmak hem de pratik kullanım alanlarını tespit etmek için aerojellere yoğun bir ilgi göstermektedir. 1999 Stardust görevinde kuyrukluyıldızdan alınması gereken örnekleri toplamak için aerjelden yapılmış bir sistem kullanılmış ve başarılı olunmuştur. 2002 yılında NASA'nın kurduğu bir şirket sağlam ve esnek bir aerjel keşfetmiştir ve bu aerjel bu anlamda bir adım öndeydi. Astronotların kıyafetlerinde de aerjel kullanılması üzerine çalışılmaktadır. Çünkü bu kıyafetlerde kullanılacak oldukça ince bir katman halindeki aerjelin astronotları -130°C ye kadar koruyabileceği düşünülmektedir. Bir diğer kullanım amacının ise bombalara karşı zırh olabileceği değerlendirilmekte ve üzerine testler yapılmaktadır.

Diğer yandan çevreci projelerde, sudaki kirlilik unsurlarını emmeye yarayacak bir sünger gibi kullanılabilecektir. Aerojeller bilimsel ve endüstriyel kullanımı dışında günlük hayatımızda da yer alabilmektedir. Dağcılık, kampçılık malzemeleri, özel ayakkabılar, çeşitli uyku tulumları örnek olarak gösterilebilir. Teknolojide ise otomobil ve cep telefonlarında kullanılabilir. Demir oksit aerjeller ise alüminyum nano-parçacıklarla zenginleştirilmiş ve oksitlenen jellerle tepkimeye girer ve büyük bir ısı enerjisi ortaya çıkarır (Buğdaycı, 2008).

Dolayısıyla bu durum roket iticilerinde ateşleyici olarak kullanılabileceğini göstermektedir. Yapılan araştırmalarda da bazı maddelerden üretilen aerjelerin

hidrojen üretimini hızlandıracağını kanıtlar niteliktedir. Dünya'dan Uzay'a şüphesiz aerojellerin geleceğimizde çok daha önemli bir yeri olacaktır.

1.2.6. Aerojeller ile adsorpsiyon çalışmaları

1.2.6.1. Aktif karbon

Ayırma proseslerinde en çok tercih edilen yöntemlerden biri de adsorpsiyondur. Absorban madde olarak ise en yaygın kullanılanı aktif karbondur. Aktif karbon genel olarak organik temelli her maddeden sentezlenebilir ve yüksek gözenekli yapıya ve geniş yüzey alanına sahiptir. Aktif karbonun en önemli özelliklerinden biri, farklı aktivasyon yöntemleri ile yüzeyinde oluşan farklı fonksiyonel gruplar sayesinde hem inorganik hem de organik maddeleri seçici olarak tutmasıdır. Aktif karbon, tamamen sağlığa zararsızdır ve oldukça kullanışlıdır. Çözeltideki molekül ve iyonları gözenekli yapısı sayesinde iç yüzeylerine doğru çekebilir bu sebeple de absorban olarak isimlendirilirler. Turba, kemik, fındık ve hindistan cevizi kabuğu, linyit, odun, mangal kömürü gibi maddelerden elde edilen karbon, çeşitli işlemlere tabii tutularak aktif karbona dönüştürülmektedir.

Aktif karbon, toz ve granüller gibi gaz veya sıvı ortamlarda adsorpsiyon sistemleri için çok uygun olan kararsız bir malzemedir. Aktif karbon, 300-1800 m²/gr arasında değişen geniş bir iç yüzeye ve yüksek gözenekliliğe sahiptir. Aktif karbon üretimi, karbon içeren malzemelerin 800°C 'nin altındaki sıcaklıkta havasız bir ortamda gerçekleştirilen iki temel aşamadan oluşmaktadır. İlk aşamada malzeme kuvvetli bir asit çözeltisinden geçirilerek ısı kullanılarak yakılır (kömürleşmesi sağlanır, ikinci aşamada ise karbonize ürünün aktivasyonu gerçekleştirilir. Böylece karbon bileşimindeki malzemeler, kullanılan hammaddenin kalitesine, aktivatörün kalitesine ve aktivasyon işleminin koşullarına bağlı olarak farklı özelliklerde istenilen ürünlere dönüştürülür. Karbonizasyon fazında, oksijen ve hidrojen gibi karbon dışındaki çoğu element, gaz fazındaki başlangıç malzemesinin pirolitik ayrışmasıyla giderilir.

Aktif karbon, 19. Yüzyılın başlarında İngiltere'de eser miktarda karbon içeren kemik külü ve şeker çözeltisinin rengini gidermek için kullanıldı. Kemik külünün içeriği kalsiyum fosfat ve çok az miktarda karbondan oluşur. Bu nedenle gerçek karbon olmadığı söylenebilir. Bir adsorban olarak bitkisel maddelerden odun kömürü üretimi, 1856 ve 1863 yılları arasında bir İngiliz patenti olarak yayınlandı (Gündüzoğlu, 2008).

Aktif karbon ve grafit birbirine benzeyen maddelerdir. Grafitin yapısı, karbon atomlarının altıgen yapı oluşturmak üzere düzenli yerleşmiş düz tabakalardan meydana

gelmesi sonucu oluşmuştur. Aktif karbonda ise, paralel tabakaların birbirleri üzerine belirli bir düzen içerisinde yerleşmemiş olduğu görülmektedir ve açılal konumları gelişigüzel, düzensizdir (Dertli, 2004).

1.2.6.2.Grafen ve grafen oksit

Yüksek esneklik, mekanik dayanım, termal iletkenlik, yüksek elektrik iletkenliğı ve şeffaflık gibi benzersiz özellikleri grafeni ilgi çekici bir malzeme yapmaktadır. Karbon atomlarından oluşur, karbon atomlarının allotropudur. Karbon atomu bilindiğı üzere dört bağ yapar ve bağların her biri farklı bir karbon atomu ile kurulması elmas yapıda olmasının temel sebebidir. Grafen, yapısını oluşturan altıgen prizma simetrisinde düzenli bir dizilim içerisinde olan karbon atomlarının sp^2 melezleşmesini sağlayan tek katmanlı, bir atom kalınlığında ve metrenin milyarda biri boyutunda bir hammadedir. Dört bağ yapan bir karbon atomunun sadece üç farklı karbon atomu ile bağ yaptığında dördüncü bağı daha önce bağ kurduğı bir karbon atomuyla yapmak durumunda kalmasıyla grafit adı verilen yapı meydana gelir. Grafit; hegzogonal şekildeki karbon katmanlarının yığın şeklinde bir araya gelmesi sonucu oluşur. Bu karbon katmanlarını bir arada tutan kimyasal bağ kuvveti Van der Waals kuvvetleridir. Grafen ise grafitten ayrılan küçük kalınlıktaki hali olarak tanımlanır. (Pietronero ve ark., 1980)

Grafenin sahip olduğı iyi iletim özelliğı yapısını oluşturan atomların içerdiği çift bağların yer değıştirme kolaylığıdır. Grafenin bu özelliğı onu özel kılmaktadır. 2000’li yılların başında Rus kökenli İngiliz bilim adamı Kostya S. Novoselov ve Hollandalı bilim adamı Andre Geim tahmin edilenden çok daha farklı özelliklerde ve tek katman halinde bir grafen üreterek 2010 Nobel Fizik Ödülü’nü almışlardır (Katsnelson ve ark., 2007). Yapılan araştırmalarda yeni özelliklerinin keşfedilmesiyle birlikte farklı kullanım alanları oluşmuştur (Hsiao ve ark., 2011).

Grafenin eşsiz yapısı maddenin olağandışı özellikleri ile yakından ilgilidir. Grafen çelikten yaklaşık yüz kat daha güçlüdür ve neredeyse tamamen şeffaf haldedir. Gösterdiği yüksek termal ve elektrik iletkenliğı elektronikteki uygulamalar için kullanılacak iyi bir malzeme olduğunu düşündürmektedir. Grafenin kullanım alanı sadece elektronikler sınırlı olmamakla birlikte enerji endüstrisi, tıbbi alanlar, gıda sanayii, askeri koruyucu aletler, balistik gibi birçok uygulama alanı mevcuttur. Gelecek için büyük umut vadeden grafen, hala pahalı ve üretilmesi zor bir maddedir.

Grafen sentezlemek için hali hazırda kullanılan metodlar; maliyeti yüksek, özel donanım gerektiren ve prosesleri karmaşık süreçler içermektedir.

1.2.6.2.1. Grafen sentez yöntemleri

Grafen üretimi için bu zamana kadar eksfoliasyon, kimyasal buhar çöktürme, epitaksiyel büyütme gibi literatürde çok farklı yöntemler kullanılmıştır. Grafen sentez metodları iki ana başlık altında toplanabilir.. Bu yöntemler fiziksel ve kimyasal yöntemler olup kısaca değinilecektir.

1.2.6.2.1.1. Grafen sentezinde fiziksel yöntemler

Andre Geim ve Konstantin Novoselov; 2004 yılında, HOPG'yi yapışkan bantla mekanik olarak tek tabakalara ayırdılar ve ilk kez grafeni izole etmeyi başardılar. Bu yöntemle; İzole grafen örneklerinin büyük katman kalınlıkları ve küçük yüzey alanları nedeniyle kullanıma uygun olmadığı belirlendi (Gao ve ark., 2010).

Kimyasal Buhar Çöktürme Yöntemi (KBÇY) katı malzemelerin üretiminde kullanılır ve bu yöntem genellikle; bu, yüksek düzeyde saflığın istendiği durumlarda kullanışlıdır. İlk olarak çok eski çağlardan gelen KBÇY'de; yüzeylerde ince bir katı film oluşur. Endüstriyel olarak kullanılan birçok element veya bileşik bu yöntemle kolayca sentezlenebilir. Bu yöntemde; reaksiyon sırasında kaynak gazlar kullanılır ve ısınan taş yüzeyinde ince bir film tabakası oluşur. KBÇY; kullanılan sentetik proseslerde, reaksiyonun meydana gelmesi için çevre koşulları çok önemlidir. Bunlar; ortam sıcaklığı, basınç, kullanılan kaynak gaz yapıları, zaman ve kullanılan reaktördür.

Bu yöntemi üç ana başlık altında incelenebilir:

- Reaksiyon basıncına göre
- Ultra yüksek vakumlu
- Gazın fiziksel durumuna göre
- Sıvı/gaz aerosol destekli
- Doğrudan sıvı enjeksiyonu
- Plazma yöntemleri
- Mikrodalga plazma destekli
- Geliştirilmiş plazma destekli
- Geliştirilmiş uzaktan kontrollü

Kimyasal buhar biriktirme/ çöktürme (CVD), bakır, nikel, altın, kobalt gibi geçiş metallerinin yüzeyini yüksek vakumda maruz bırakarak ve hidrokarbon gazları ile ısıtarak yüksek kaliteli grafen üretme yöntemidir (Bhuyan ve ark., 2016). Genel olarak, CVD yönteminde yüksek sıcaklığa kadar ısıtılan bir metal yüzey üzerinde, kimyasal

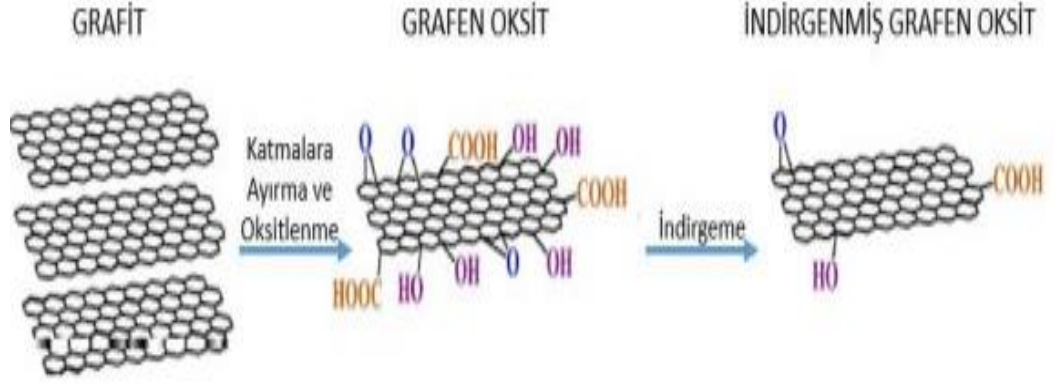
olarak emilmiş hidrokarbonlar, metal katalizli dehidrojenasyon ile karbon atomlarına ayrışır ve metal yüzeye yayılır. Daha sonra soğuma işlemine başlayarak karbonun metaldeki çözünürlüğü azalır ve bu nedenle karbon atomları kırılarak metalin yüzeyinde bir grafen tabakası oluşturur. Bu ayrışma işlemi, sisteme hiç hidrokarbon verilmesine bile metalin karbon içeriği dengeye ulaşana kadar devam eder. Dolayısıyla çözünmüş karbon miktarı ve soğuma hızı bu yöntemde grafen katmanlarının sayısını belirleyen parametrelerdir (Seah ve ark., 2014)

Grafen sentezinin başka bir fiziksel yöntemi, bir SiC (silisyum karbür) bileşiğinin yüksek sıcaklıkta ayrışmasıdır. Bununla birlikte, elde edilen grafen, sentez sırasında kullanılan yüksek sıcaklıklar nedeniyle yapısal kusurlara sahiptir. Sentez sonrası yapıda gözlenen kusurlar, yüksek kalitede grafen sentezi elde edilemediği için yöntemin dezavantajı olarak yorumlanmaktadır (Zhuo ve ark., 2013).

Grafen, karbon içeren gazların belirli bir yönde tek bir kristal yapıya sahip olan Ru, Ir, Pt(111), Cu ve Ni gibi yapısında karbon bulunan gazların yüzeyde karbon çekirdekleri oluşturması ile de üretilebilir. Bu yöntem, yüksek vakumda tek bir kristal üzerinde epitaksiyel büyüme olarak adlandırılır. Bu tek kristal yapılardan elde edilen Cu ve Ni gibi metaller yüzeylerin kafes yapısında uyumsuzluk çok az olduğu için sentez orantılı ve düzgün grafen ile sonuçlanırken; Pt, Ru, Ir gibi metaller kullanılarak; kafes yapılarının büyük çelişkilerinden dolayı dalgalı yapıda grafen elde edilir. Bu üretim yöntemi ile üretilen grafenin özelliklerini kullanılan metaller belirlemektedir. Kullanılan metallerin yüzey kafes yapılarının grafenin altıgen karbon yapısına uygun olması çok önemlidir (Dai ve ark., 2011).

1.2.6.2.1.2. Grafen Sentezinde Kimyasal Yöntemler

Sungjin ve ark., (2010) grafenin organik sentezinin, polimer bileşiklerinin bir kombinasyonu yoluyla mümkün olduğunu gösterdi. Bunun için 1,4-diiodo-2,3,5,6 tetrafenilbenzen bileşiğini dikkate alarak polimerik grafeni sentezlemişlerdir. Literatürde yüksek verimli grafen elde etmek için en popüler yöntem, grafitin güçlü oksidanlarla oksidasyon yoluyla hafifçe pul pul dökülmesini ve ardından grafen elde etmek için kimyasal veya termal yöntemlerle grafen oksidin indirgenmesini içeren kimyasal yöntemdir. Bu yöntemde, oksijen grupları grafitin grafen katmanlarına bağlanarak grafiti oksitler.



Şekil 1.3. Grafenden grafen oksit eldesi (Özal ve ark.,2021)

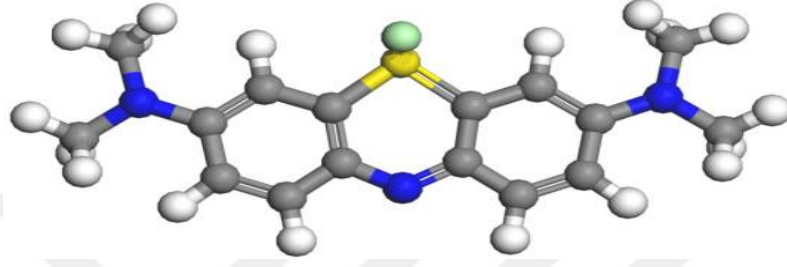
Grafenin redoks reaksiyonları kullanılarak kimyasal sentezinde, kimyasal sentez yöntemi ile elde edilen grafenin tüm reaksiyonlarına ve kimyasal yapılarına bakıldığında; oksitleyici kimyasallar grafit oksit üretiminde ilk adımdır. Grafit oksit sentezinden sonra, grafen oksit, güçlü indirgeyici ajanlarla ultrasonik etki ile üretilir. Grafit oksit eldesi 1859 yılında Brodie B.C. nitrik asit ve potasyum nitrat ile oksidasyon çalışmaları neticesinde toz grafit hazırlamıştır. Ancak bu yöntem, tekrarlanan oksidasyon ve 4 günlük uzun oksidasyon süresi, yıkama ve kurutma aşamalarının varlığı ve reaksiyon sırasında patlayıcı klor dioksit gazı salınımı gibi dezavantajları nedeniyle günümüzde pek tercih edilmemektedir. Akademik araştırmalarda, grafen oksidi sentezlemek için "Hummers yöntemini" kullanılmıştır. Uygulanan bu yöntemde karbona bağlı alkol, epoksi ve karboksilik asit grupları içeren grafen oksit tabakalarından oluşmaktadır. Grafitin oksidasyon işleminden sonra oksijene göre zenginleşmesi, geometrik yapısında farklılıklara ve tabakaların açılmasına neden olur. Katmanlar arasındaki mesafe artışı; grafen oksit tabakaları, sonraki indirgeme işlemleri sonucunda kolayca ayrılabilir yapılar haline gelir. Kimyasal indirgeme ile elde edilen grafenin sentezinde, indirgeyici reaktifler olarak genellikle hidrazin ve NaBH_4 kullanılır. Sentez sonucunda farklı boyutlarda grafen elde etmek mümkündür. Yöntemin en önemli dezavantajı sentez sonrası elde edilen grafenin kalınlığının kontrol edilememesidir (Georgakilas, 2014).

1.2.6.3. Metilen Mavisi

Boyar maddeler başta kimya endüstrisi olmak üzere tekstil, tıp, biyoloji ve daha birçok alanında geniş kullanımı mevcuttur. İlk sentetik boya 1856 yılında W.H Perkin

tarafından sentezlenmiş olan koyu mavi renk olarak bilinen Mauvenie'dir. Bu yapay boya ile boya endüstrisinin varoluş süreci başlamış olsa da Indigo, Alizarin benzeri doğal kaynaklı boyar maddelerin kullanımı çok daha eski tarihlere dayanmaktadır (Sipos ve ark., 2016).

Koyu yeşil renkli kristal ve toz halinde bulunan bir kimyasaldır ve hafif kokuludur. Metilen mavisinin molekül ağırlığı 319.86 g/mol ve genel gösterimi $C_{16}H_{18}ClN_3S \cdot H_2O$ şeklindedir (Bayar, 2018).



Şekil 1.4. Metilen mavisinin üç boyutlu molekül görünümü (Yemiş ve Yenil, 2017)

Metilen mavisi bilim dünyasında sık kullanıma sahip olup, tekstil sanayii başta olmak üzere, kâğıt renklendirmede, yün, saç ve kumaş boyamak amacıyla kullanılan sentetik bir boyar maddedir. Ayrıca laboratuvarlarda incelemesi yapılacak bakterileri ve kültürleri boyamada, tıbbi tanı koyulmasında da metilen mavisinden yararlanılmaktadır. Afrika'da sıtma tedavisinde, methemoglobinemi ve siyanür, amonyak ve nitrit zehirlenmelerinin tedavisinde panzehir olarak kullanılabilir. Alzheimer hastalığının tedavisi için de iyileştirici özelliği olduğu düşünülmektedir. Akvaryumlarda oluşan beyaz benek hastalığını tedavi edici özelliği bulunmaktadır (Sipos ve ark., 2016). Az da olsa zehir içermesi sebebiyle, solunmasıyla nefes almada güçlük, kalp ritiminde artış, ani şok, mide bulantısı, diyare ve kusmaya neden olabilen, nemli ortamlarda düşük yoğunluklarda bile fotosentetik aktivitelerin gerçekleşmesini engelleyebilir. İnsanlar için de toksik etkili olabilmektedir. Metilen mavisi özellikle yüzey sularına karıştığında (az konsantrasyonda olsa bile) sularda ışık geçişini engeller ve oksijenin su içerisinde çözünme hızını düşürür. Dolayısıyla su altı yaşamında canlı çeşitliliğini azaltır (Sipos ve ark., 2016).

2. KAYNAK ARAŞTIRMASI

Aerogeller; düşük yoğunlukları, kontrol edilebilen yüksek gözenekli yapıları, termal ve mekanik özellikleri, elektriksel iletimlerinin yüksek olması sebebiyle özel ve hafif katılardır. Tüm bu özellikleri onları eşsiz kılar ve çeşitli formlarda endüstriyel uygulamaları için olanak sağlar. Bu bölümde aerogeller ve çalışmada aerogel eldesinde kullanılan maddelerle ilgili yapılan bazı çalışmalara yer verilmiştir.

1859 yılında İngiliz bilim insanı Brodie'nin grafit tozuna yoğun nitrik asit ve potasyum klorat eklemiş, grafitin ağırlığını arttırmıştır. Ağırlıktaki artışın grafitin kimyasal yapısının değişmesi sonucunda olduğuna karar verip, deney başlangıcında % 96 karbon içeren grafitin deney sonunda bileşiminin %38'inin oksijen, yaklaşık %2 hidrojen ve %60'ının karbon olduğunu tespit etmiş ve netice olarak grafitin oksitlenebilir olduğunu sonucuna ulaşmıştır (Brisebois, 2020).

Brodie'nin yaptığı bu deneyden yaklaşık 40 sene sonra Staudenmaier bu deneyi Brodie'den farklı olarak nitrik asit ve potasyum kloratı reaksiyon adımları süresince aşama aşama eklemiştir (Staudenmaier, 1898). Brodie'den farklı olarak karışımı daha asidik hale getirmek için bir miktar sülfürik asit ilave etmiştir. Deney tamamlandığında Staudenmaier Brodie'ye yakın sonuçlar elde etmiş ve reaksiyonun eldesini kolaylaştıracak yeni bir yol keşfetmiştir (Dreyer ve ark., 2010; Staudenmaier, 1898).

Staudenmaier'in deneyinden yaklaşık 60 yıl sonra Hummers ve Offeman grafitin oksitlenmesi için farklı bir yöntem bulmuşlardır. Bu metotta daha önce yapılan deneylerden farklı olarak ile oksitlenme işlemi Potasyum permanganat ($KMnO_4$) ve yoğun konsantrasyondaki sülfürik asit (H_2SO_4) ile yapılmıştır. Elde edilen grafitin Brodie ve Staudenmaier'in deneyleri ile aynı oranda oksitlendiği sonucuna ulaşılmıştır. 2013 yılına gelindiğinde Chen ve arkadaşları yöntemde kullanılan derişik sülfürik asit yerine sülfürik asit/fosforik asit bileşiminin çevreye daha az zararlı olacağı fikrini savunmuş ve Hummers metodunu ortaya çıkarmışlardır (Fang ve ark., 2013; Dreyer ve ark., 2010).

Grafen oksit eldesinde zamanla gelişen küçük değişiklikler yapılan üç metod grafen oksit sentezinin temelidir (Dreyer ve ark., 2010). Bu üç deney aynı zamanda oksidasyon seviyesinin yalnızca kullanılan oksidanta bağlı olmayıp reaksiyonun gerçekleştiği şartlar ve kullanılan grafit kaynaklı da değişim gösterdiğini ortaya çıkarmıştır (Dreyer ve ark., 2010).

Literatürde grafen oksit ile ilgili çalışmalar incelendiğinde özellikle atık sulardaki organik inorganik kirliliklerin giderimi için kullanımı hakkında çok sayıda çalışma yapıldığı görülmüştür. Boyarmadde, ağır metal ve tıbbi atık giderimi için

yapılan çalışmalar adsorpsiyon verimini arttırmak amacıyla gerçekleştirilmiştir. Boya adsorpsiyon grafinin etkisi ile ilgili Ramesha ve arkadaşları yaptıkları çalışmada çeşitli boyalar kullanarak metilen mavisi, metil menekşesi, rodamin B gibi) grafen ve grafen oksidin bu boyalar üzerindeki adsorplama kapasitelerini incelemişlerdir. Deney sonucunda ulaştıkları verilere göre grafen oksidin üzerindeki hidroksilik ve karboksilik gruplarından dolayı negatif yük kazanmış ve katyonik boyalarla etkileşerek oldukça yüksek adsorbsiyon verimi elde edilmiştir (Ramesha ve ark., 2011). Grafene manyetik özellik kazandırmak ve adsorpsiyon süreçlerinde kullanmak adsorpsiyon sonrası ayırma işlemlerini daha ekonomik hale getirecektir.

Sudan boya arıtılmasıyla ilgili olarak Ai ve arkadaşları, bir grafen/manyetit kompoziti geliştirmişler ve bunu sulu çözeltide metilen mavisi boyasının çıkarılması ve adsorpsiyon kapasitesi açısından aktif karbon/manyetit, çok duvarlı karbon nanotüpler/manyetit ile karşılaştırdılar. Sonuç olarak, aktif karbon-manyetit-grafen-manyetitin çok duvarlı karbon nanotüpler/manyetit olarak adsorpsiyon kapasitesini gözlemlemişlerdir. Ayrıca grafen/manyetit adsorbe edilmiş malzemenin manyetik özelliklerini beşinci kullanımdan sonra da koruduğu gözlenmiştir (Ai ve ark., 2011).

Wang ve ark., manyetik CoFe_2O_4 -grafen nanokompozit levhalar (CoFe_2O_4 -FGS), hidrotermal bir yöntem kullanılarak üretmişlerdir. Sentezlenen maddenin metil oranj boya adsorpsiyon testi (pH: ~ 8) yapılmış ve maksimum adsorpsiyon kapasitesi 71,54 mg/g olarak bulunmuştur. Reaksiyon kinetiği çalışmaları sonucunda, adsorpsiyonun sözde ikinci dereceden bir hareket denkleminde karşılık geldiği gözlemlenmiştir. Sentez adımları sırasında grafen oksit yüzeyinde birçok fonksiyonel oksijen merkezinin bulunması nedeniyle, Fe^{+3} ve Co^{+2} iyonları, reaksiyonu başlatmak ve ilerletmek için yüzeydeki bu merkezlerle güçlü bir şekilde etkileşime girmiştir. CoFe_2O_4 nanoparçacıkları yüzeyde hidrotermal işlemle oluşturulmuştur. FGS ve CoFe_2O_4 'ün farklı kütle oranlarında sentezlendiği ve adsorpsiyon kapasitesinin artan FGS miktarı ile doğru orantılı olduğu sonucuna varılmıştır. (Li ve ark., 2011).

Benzer şekilde, Vakili ve ark., grafen/manyetitin aynı anda ağır metal iyonlarını ve iyonik boya atıklarını adsorbe etmesinde yararlanmışlardır. Maksimum adsorpsiyon kapasitesi metilen mavisi için % 64,23 , oranj G için % 20,84 ve Cd (kadmiyum) iyonu için % 91,29 dur. Manyetik grafen oksit, yüksek pH değerlerinde (3.5) negatif yüklüdür, ancak pozitif yüklü Cd iyonları, metilen mavisinin elektrostatik çekimle çekildiği ve anyonik oranj G boyasını çekmediği gözlemlenmiştir. Sorbentin ilk rejenerasyondan sonra tekrar kullanılması durumunda sırasıyla Cd iyonu için % 67,55, metilen mavisi

için %55,76 ve oranj için %83,01, dördüncü kullanım için bu değerlerde düşüş olduğu anlaşılmıştır (Deng ve ark., 2013).

Katti ve ark., (2006) geleneksel aerojelleri aminlerle modifiye edip ve üç noktalı eğme testleri ve dinamik mekanik analiz kullanarak yük taşıma kapasitelerini ölçmüşlerdir. Ortalama yoğunluğu $0,478 \text{ g/cm}^3$ olan bir numunenin özgül basınç dayanımı 8900 Nm/kg , nihai basınç çekme dayanımı 186 MPa , akma dayanımı değeri $3,89 \times 10^5 \text{ Nm/kg}$ ve young modülü klasik silika aerojeller için $\sim 92 \text{ MPa}$ iken, çapraz bağlı aerojellerin modülü $\sim 92 \text{ MPa}$ olduğu ortaya çıkmıştır.

Madadrang ve ark., (2012) yaptıkları çalışmada (EDTA-GO) grafen oksidi etilendiamintetraasetik asit (EDTA) ile modifiye etmişlerdir. Bu çalışmada elde edilen sorbenti atık sudan Pb^{+2} (kurşun) iyonlarını uzaklaştırmak için kullanmışlardır. Elde edilen deneysel sonuçlara bakıldığında, sentezlenen adsorbanın yüksek adsorpsiyon kapasitesine (pH: 6.8, adsorpsiyon kapasitesi 479 mg/g) sahip olduğu bulunmuştur. Bunun ana nedeni EDTA'nın yüksek şelatlama kapasitesi ile açıklanmaktadır. Deneysel veriler, adsorpsiyonun Langmuir modelini takip ettiğini göstermektedir. Testler, sorbentin onuncu denemeden sonra tam kapasiteye ulaştığını ortaya çıkarmıştır.

Capadona ve ark., (2006) dört farklı silan konsantrasyonu, dört farklı diizosiyanat konsantrasyonu ve iki farklı sıcaklık koşulu ile üç sistem hazırladı ve çalışmada 28 farklı monolitik aerojelin sentezi gerçekleştirildi. Çalışma sonucunda en yüksek yoğunluğa sahip çapraz bağlı aerojelin en yüksek çekme dayanımına ve modülüne sahip olduğunu gözlemlenmiştir. Üretilen çapraz bağlı aerojellerin, 120 kat gerilme mukavemetine sahipken, geleneksel silika aerojellerin yoğunluğunun üç kata kadar daha yüksek olduğu gözlemlendi.

Du ve ark., (2014) tarafından yapılan çalışmada; ilk olarak GO/kitosan/silika lifleri, yaş eğirme yöntemiyle hazırlanmış ve liflerinden gözenekli yapıya sahip GO/kitosan lifleri ayrıştırılmıştır. Bir boyarmadde olan Kongo Kırmızısının gözenekli GO/kitosan lifleri üzerine adsorpsiyonu; derişim, pH, adsorban miktarı ve temas süresi gibi çeşitli parametrelerde gerçekleştirilmiştir. Adsorpsiyonun Langmuir izotermiyle mükemmel bir uyum gösterdiği ve maksimum adsorpsiyon kapasitesinin $294,12 \text{ mg/g}$ olduğu belirtilmiştir. Ayrıca gerçekleştirilen kinetik çalışmalar sonucunda adsorpsiyonun yalancı-birinci dereceden kinetik modele uygun olduğu tespit edilmiştir.

Bu alanda bir diğer önemli çalışmayı Leventis ve arkadaşları yapmış, süperkritik bir kurutma işlemi kullanmadan aerojellerin nasıl sentezleneceğini araştırmışlardır. Oda sıcaklığında pentan ile dört yıkama, süperkritik kurutma ile hazırlanan aerojellere

benzer sonuçlar vermiştir. TMOS (Tetra Methyl Ortho Silica) ve TEOS (Tetra Ethyl Ortho Silica) literatürde yaygın olarak kullanılan başlangıç kimyasallarıdır.

Sheshmani ve arkadaşları tarafından yapılan bir çalışmada (2014); bu, manyetik grafen/kitosan nanokompozitlerin kimyasal sentezi ve bu nanokompozitler tarafından Asit Turuncusu 7'nin uzaklaştırılması ile ilgilidir. Bu çalışmada; grafen oksit içeren adsorbanlar durumunda, kitosanın fonksiyonel grupları ve Fe_3O_4 'ün manyetizması Asit Turuncusu 7 için çok yüksek bir afinite ve yüksek bir adsorpsiyon kapasitesi göstermiştir. Ayrıca, manyetik özelliklerinden dolayı, bir manyetik kuvvet uygulayarak adsorbanı ortamdaki basit ve hızlı bir şekilde ayırmanın avantajlı olduğu bulunmuştur. Maksimum adsorpsiyonun asidik pH'ta en yüksek olduğu ve temas süresi 120 dakika içinde dengeye ulaşıldığı bulundu. Adsorpsiyon; bulunduğu ortamın pH'ına, adsorbent miktarına ve temas süresine bağlı olduğu bulunmuş ve adsorpsiyonun yalancı birinci dereceden bir model izlediği söylenmiştir. Maksimum adsorpsiyon kapasitesinin 42,7 mg/g olduğu rapor edilmiştir ve adsorpsiyon, Langmuir izotermal modeline uymuştur. Ayrıca, bu çalışmada kullanılan nanosorbentler, sulu çözeltilerden anyonik azo boyaların giderilmesinde umut vaat etmiştir.

Tajiri ve ark., (1995), kritik üstü kurutma işleminin silis aerogelinin yapısını ve özelliklerini nasıl etkilediğini araştırmışlardır. Bu çalışmada metanol, etanol ve 2-propanol kullanılarak süperkritik kurutma gerçekleştirilmiştir. Çalışmalar, en yüksek büzülmenin 2-propanol ile yapılan işlemde gözlemlendiğini göstermiştir. Etanol ve metanol en düşük büzülmeyi göstermiştir. Eğilme mukavemeti ile ilgili olarak, farklı malzemeler için kurutma işleminde spesifik bir değişiklik gözlemlenmemiştir.

Cheng ve ark., (2017), zeolit adsorpsiyon kapasitesini artırmak için zeolit beta üzerine aşılayarak farklı GO içeriklerine (GB) sahip hidrotermal zeolit/grafen oksit kompozitleri hazırlamışlardır. GB kompozitlerinin yapısal ve fiziksel özellikleri XRD, SEM, FTIR, Raman, BET ve XPS yöntemleri ile karakterize edilmiştir. Elde edilen sonuçlar, GB'lerin aktif yüzeyine bağlı GO 38 nano-tabakaları ile kompozitlerin gözenekli olduğunu göstermişlerdir. GB kompozitlerinin adsorpsiyon davranışı üzerine Rhodamine B (RB) boyasının adsorpsiyon izoterm çalışması yapılmış ve maksimum RB adsorpsiyon miktarı 64,47 mg/g olarak bulunmuştur.

Literatürde aerogel uygulamaları ile ilgili birçok çalışma bulunmaktadır. Bunlardan biri Hrubesh tarafından yapılmıştır. Bu çalışmada, Hrubesh, aerogellerin ısı yalıtımı, elektronik cihazlar, kapasitörler ve kriyojenikten aşırı sıcaklıklara kadar enerji depolama, lazer deneyleri, ultrasonik ve gaz sensörleri, nükleer parçacık detektörleri

olarak kullanımına ilişkin kapsamlı bir literatür taraması gerçekleştirmiştir. Bu araştırmanın yapıldığı yıllar boyunca, aerojellerin kullanım kapsamı yukarıdaki örneklerle sınırlandırılmış ancak zamanla enerji emilimi ve çeşitli mekanik uygulamalar için de kullanılmıştır.

Turhan Kara (2020) yaptığı çalışmada, ucuz bir silika kaynağı olan sodyum silikat çözeltisi ile proses koşulları optimize edilmiş ve fonksiyonelleştirilmiş magnezyum silika aerogel sentezlenmiş, elde edilen aerojeller ile berrak üzüm suyu üretiminin uygun durultma prosesi koşullarının belirleyerek endüstriyel durultma ajanları ile kıyaslamıştır. Sonuç olarak, işlevselleştirilmiş Mg-silika aerojelleri, üzüm suyu durultmasında bulanıklık elementlerinin çok iyi adsorpsiyon performansı göstermiştir.

Mermer ve Pişkin (2019), ucuz ve kolayca bulunabilen bir malzeme olan kumdan hidrofobik aerojeller hazırlamak için ultrason destekli bir sol-jel yöntemi kullanmıştır. Elde edilen aerojellerin yoğunluğu üzerinde farklı parametrelerin etkisini araştırmıştır. Yalıtkan özellikli sıva üretiminde malzemeleri karakterize etmek için en düşük yoğunluklu numuneler üzerinde XRD, TG/DTG, N₂ adsorpsiyon/desorpsiyon ve SEM analizleri yapılmıştır. Araştırma sonuçları, pahalı saf silisyum kaynağı yerine ucuz ham kum kullanılarak yalıtım sıvası üretiminde aerogel sentezinin gerçekleştirilebileceğini ve değerlendirilebileceğini göstermektedir.

Çimen (2021) çalışmasında silika esaslı aerogel sentezi için ticari silika esaslı kimyasallara alternatif, dökümhanelerde kullanılan kum kalıplardaki döküm kumu (DK) ve döküm sonrasında oluşan atık döküm kumundan (ADK) sol-jel yöntemi ile atmosferik kurutma şartlarında silika esaslı aerogel tozu sentezlemeyi başarmıştır.

Yetgin (2013), doktora çalışmasında DNA katı yüzey ile saflaştırma verimini arttırmak için DNA'nın silika, alümina ve hidroksi apatit (HAP) tozlarına adsorpsiyon sürecini takip etmiş ve DNA adsorpsiyonunun atomik kuvvet mikroskobu (AFM) ile detaylı incelemiştir. AFM ile en iyi görüntüyü dondurularak alümina yüzeyde kurutulmuş DNA için elde etmiştir. Su içinde çözünen DNA'nın birçok molekülden oluşan süperkoiller halinde adsorplandığı sonucuna ulaşmıştır.

Madenli ve ark., (2021) çalışmalarında son yıllarda fiziksel ve kimyasal özellikleri sebebiyle farklılık yaratan dikkatleri üzerine çeken malzeme grafinin, adsorpsiyon sistemlerindeki kullanımlarını ve nanokompozit adsorbanların adsorpsiyon kapasiteleri üzerine yapılan literatürdeki çalışmalar hakkında değerlendirmeler yapmışlardır. İncelemenin sonucunda ise, çevresel atıkların ve mikroorganizmaların

yardımıyla ile nanokompozit malzemeler sentezlenerek adsorban kapasitesinin artırılmasının çevre teknolojileri alanına büyük yarar sağlayacağı aşıkardır. Araştırmalar sonucunda üretilen bu nanokompozit malzemeler sanayi kuruluşlarında; endüstriyel prosesler geliştirilip tasarlanarak veya bütünleşmiş sistemlere uygulanarak gelecek için temiz üretim yapılarak sıfır atık su çıkışının mümkün olduğu anlaşılmıştır.

Kaya (2020), yaptığı tez çalışmasında TEOS (Tetraetilortosilikat), volkanik tüf ve yerfıstığı kabuğu külü kullanarak sol-jel metodu ile doğal kaynaklı silika kserojel ve aerojeller elde etmiştir. Silika aerojellerin kserojellere göre yüksek yüzey alanı, gözenek boyutu, termal dayanım ve daha düşük yoğunluk ve termal iletkenlik gösterdiği tespit edilmiştir. Sentezlenen malzemeler arasında oldukça az maliyetli bir malzeme olan volkanik tüften atmosfer basıncında kurutma sonucu sentezlenen silika kserojeller metilen mavisi adsorpsiyonunda adsorbent olarak kullanılmıştır. 5 kez yapılan adsorpsiyon-desorpsiyon döngüsü sonucunda silika kserojelin metilen mavisi adsorpsiyon veriminin % 70 olduğu görülmüştür.

3. MATERYAL VE YÖNTEM

3.1. Materyal

3.1.1. Kullanılan kimyasallar

Bu çalışma kapsamında grafen, aktif karbon, amonyak, DMF, PVDF, aseton, saf su, metilen mavisi , HCl, NaOH, CaCl₂ ve N₂ gazı kullanılmıştır.

3.1.2. Kullanılan cihazlar

Adsorpsiyon çalışmaları için;

- ✓ Ultraviyole–Görünür Bölge Spektrometresi
- ✓ pH metre
- ✓ Vakum pompası
- ✓ Chiltern Hotplate Magnetic Stirrer Hs31 marka model manyetik karıştırıcı
- ✓ Scaltec marka hassas terazi
- ✓ Mermert marka etüv

- ✓ Jsr marka yatay karıştırıcı kullanılmıştır. Bu cihazların tamamı Konya Teknik Üniversitesi Kimya Mühendisliği ve Çevre Mühendisliği Araştırma Laboratuvarlarında mevcuttur.



Şekil 3.1. a) Jsr marka yatay karıştırıcı, b) Memmert marka etüv, c) Sacaltec marka hassas terazi

3.2. Yöntem

3.2.1. Aerojel eldesi

Grafen oksit ve aktif karbon aerojel eldesi için öncelikle 20 mL grafen oksit sulu çözeltisi düzgün bir süspansiyon oluşturmak için sonikasyona tabi tutuldu ve 1 mL amonyum hidroksit ile karıştırıldı. Şekil 3.2 'de verildiği üzere indirgenmiş grafen oksit içerisine aktif karbon eklenerek çözelti bir üç boyunlu balona aktarıldı ve 180 °C'de 12 saat ısıtıldı. PVDF DMF deki çözeltisine grafen oksit/aktif karbon solüsyonu damla damla ilave edildi. Hazırlanan kompozit hidrojelinden safsızlıkları ve DMF çözücüsünü uzaklaştırmak için aerojel önce 24 saat asetonda sonra 24 saat boyunca deiyonize suda bekletildi. Son olarak, hidrojel kompozit aerojeli oluşturmak için Şekil 3.3'de verildiği üzere vakum yardımıyla süzgeç kağıdı Şekil 3.4'deki gibi beyaz renk alana kadar yıkama yapıldı. Desikatöre koyulup, havası alınarak 24 saat -18°C de kurutuldu (Şekil 3.5). Sentezlenen kompozit aerojel yoğunluğu 73 mg/cm³ olarak hesaplandı.



Şekil 3.2. Aerojelin sentezi sırasında geri soğurucu sisteme bağlanması ve sisteme N_2 gazı verilmesi



Şekil 3.3. Aerojellerin saf su ile vakum pompası yardımıyla yıkanması



Şekil 3.4. Aerojel yıkama süresince kullanılan süzgeç kağıtları



Şekil 3.5. Yıkama işleminden sonra aerojellerin desikatörde kurutulması

3.2.2. Karıştırma hızının adsorpsiyona etkisi

Adsorpsiyona karıştırma hızının etkisi için yapılan deneyler (120 dakika), sıcaklık (25 °C), pH (7), adsorban miktarı (5 g L⁻¹) ve boya konsantrasyonu (15,428 mg L⁻¹) koşulları altında gerçekleştirilerek incelendi. 100,150,200,300 rpm olmak üzere 4 farklı karıştırma hızı seviye olarak alındı. Adsorpsiyon ortamı 150 ve 200 rpm'de karıştırıldığında karıştırma hızı giderim veriminin %73,42'den %81,33'e yükseldiği gözlemlendi. Daha sonraki deneyler, 200 rpm'lik bir karıştırma hızında gerçekleştirildi (Şekil 3.6).



Şekil 3.6. Hazırlanan numunelerin yatay karıştırıcıda karıştırılması

3.2.3. pH'ın adsorpsiyona etkisi

Çözeltinin pH'ı, özellikle adsorbat ile adsorbent arasındaki kimyasal ve elektrostatik etkileşimler üzerinde önemlidir ve adsorpsiyonu etkileyen en önemli faktörlerden biridir. Bu nedenle aerogel için farklı pH değerlerinin adsorpsiyon verimine etkisi, 2 ila 12 pH aralığında, 33 mg L⁻¹ başlangıç MB konsantrasyonunda, 25°C sıcaklıkta, 200 rpm karıştırma hızında ve 120 dakika temas süresi koşulları kullanılarak yapıldı. Boya çözeltilerinin başlangıç pH değerleri HCl ve NaOH çözeltileri ile ayarlandı. Adsorpsiyon değerleri 652 nm deki değerler dikkate alınarak UV spektrometresinde okundu. pH değişimlerinin adsorpsiyon ile giderimi önemli ölçüde etkilediği gözlemlendi. Aerogel için pH 2'den 12'ye çıktıkça giderim verimlerinin %30,28'den %53,14'e çıktığı görüldü ve optimum pH 4 olarak belirlendi. Ancak atık sularda veya işletmelerde pH'ı 4 e ayarlamaya gerek olmaksızın nötr ortamlarda adsorpsiyon çalışmaları tercih edildiği için bu aerogelin diğer adsorpsiyon çalışmalarında da pH 7'de olarak belirlendi.

3.2.4. Boyar madde konsantrasyonunun adsorpsiyona etkisi

0,25 ila 10 g L⁻¹ aralığında 6 farklı konsantrasyonda adsorbent dozajının MB adsorpsiyonuna etkisi (32 mg L⁻¹ MB, 200 rpm, 25 °C ve pH 7, 120 dakika temas süresi) incelendi. Aerojel miktarı 10 g/L olduğunda giderim veriminin % 89,46'ye çıktığı görüldü.

3.2.5. Temas süresinin adsorpsiyon üzerindeki etkisi (Denge Deneyi)

Optimum doz yapılan deneyde aerojel için 10 g/L belirlenmiştir. Bu aerojel için öncelikle Şekil 3.7' de verildiği gibi %33, %16,5, %8,25 ve %4.25 lik metilen mavisi çözeltisi hazırlandı. Hazırlanan çözeltiler 100 ml lik erlenlere alınıp, her bir erlene 0.25 g aerojel tartılıp, eklendi. 200 rpm hızda karıştırıldı. 40. dk, 120. Dk, 360. Dk, 1080.dk ve 1440.dk sonucunda (Şekil 3.8) 652 nm de UV spektrometresinde okuma yapıldı ve değerler kaydedildi.



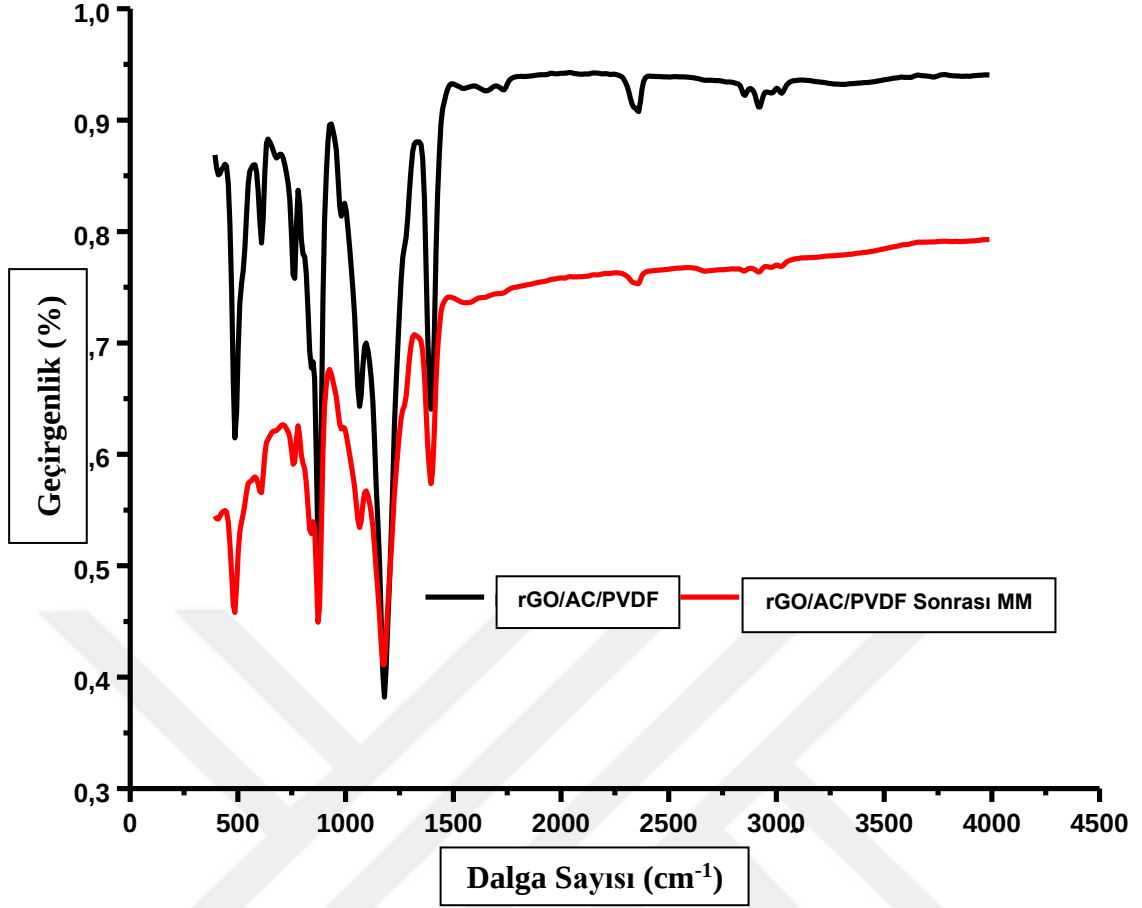
Şekil 3.7. %33, %16,5, % 8,25 ve % 4.25 lik metilen mavisi çözeltileri



Şekil 3.8. Zamanla %33, %16,5, % 8,25 ve % 4,25 lik metilen mavisi çözeltilerinde görülen renk değişimi

4. ARAŞTIRMA SONUÇLARI VE TARTIŞMA

Aerojel için adsorpsiyon öncesi ve adsorpsiyon sonrası FT-IR analizi grafiği Şekil 4.1’de verildi. FT-İr spektrumu incelendiğinde 601 cm^{-1} pik PVDF α fazına, 510 cm^{-1} ve 879 cm^{-1} PVDF β fazına ve 806 cm^{-1} ve 1238 cm^{-1} ’deki pikler ise PVDF γ fazına karşılık gelen piklerdir. PVDF’deki $-\text{CF}_2$ grupları, RGO yüzeyindeki $-\text{C}=\text{O}$ grupları tarafından çekilir, TGTG zincirinin TTTT konformasyonuna α ’dan β fazına geçişine yol açar. RGO ile birleştirilmiş PVDF filmlerin $1100\text{--}1350\text{ cm}^{-1}$ ’deki C-F titreşimine karşılık gelen IR soğurma bantlarının pik şiddetinin arttığı Lee ve arkadaşlarının yaptığı çalışmada belirtilmiştir. Literatürde özellikle 1203 cm^{-1} de PVDF α fazının pik şiddetinin RGO miktarının kütlece artışına ek olarak azaldığı ama 1278 cm^{-1} ‘deki PVDF β faz pik şiddetinin rGO kütlece miktarının artışıyla arttığını belirtmiştir. Bu çalışmada Şekil 4.1 incelendiğinde PVDF $510, 601, 806, 879$ ve 1238 cm^{-1} ’deki pik şiddetinin metilen mavisi adsorpsiyonundan sonra belirgin bir şekilde azaldığı gözlemlendi.

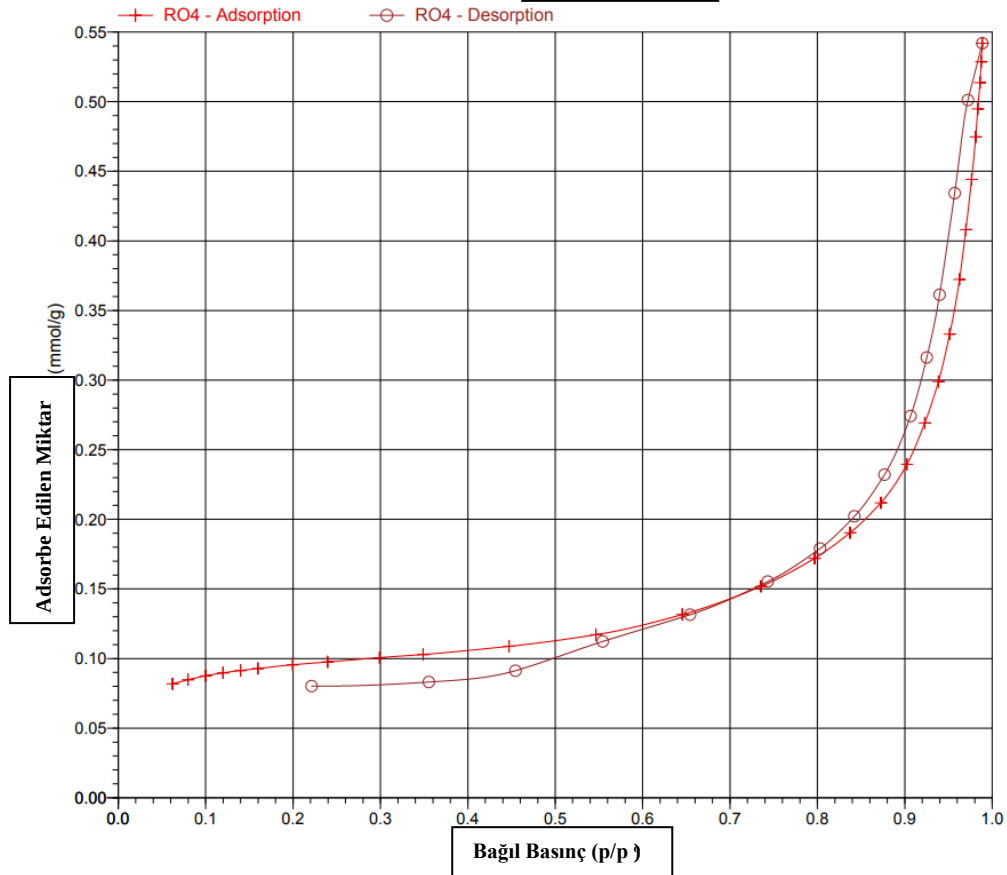
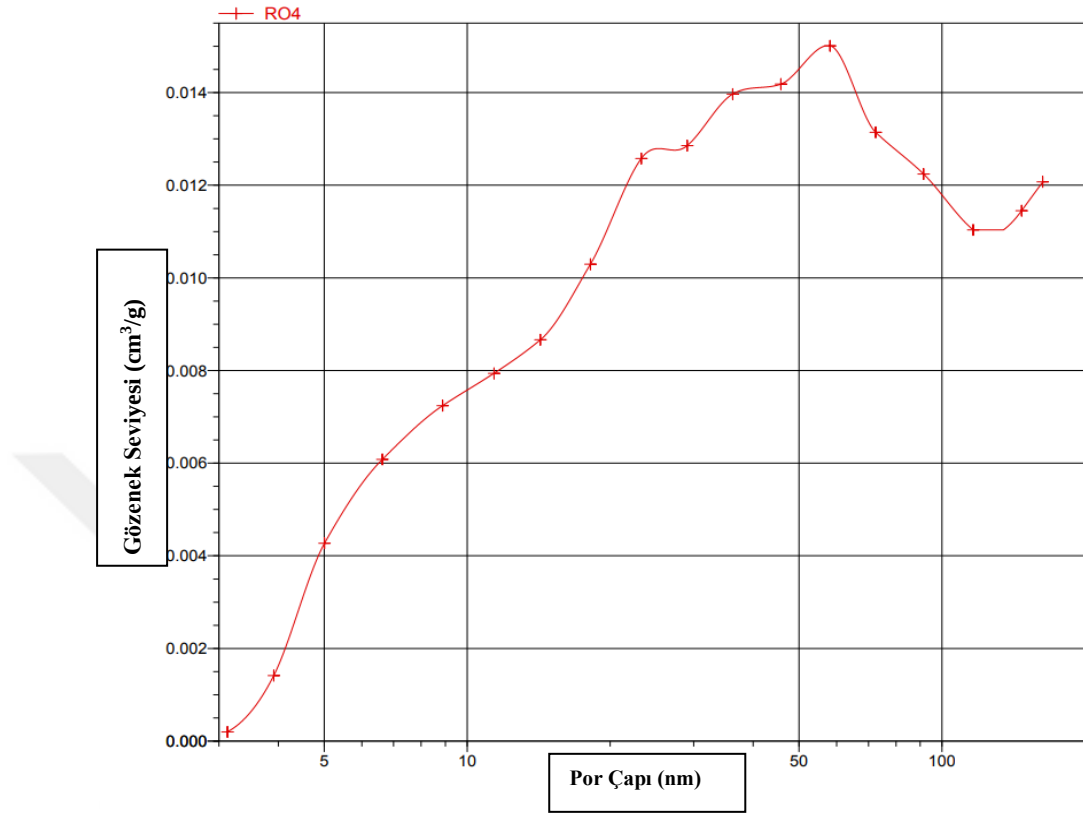


Şekil 4.1. Aerojellerin FT-IR grafiği

Aerojelin Şekil 4.2 BET sonuçlarını göstermektedir. Yüzey alanını ve gözenek yapısı incelemek amacıyla aerogel için nitrojen adsorpsiyon-desorpsiyon analizleri yapıldı. 298 K'de gaz giderme işleminden sonra 10 saat boyunca N₂ adsorpsiyon-desorpsiyon izotermi 77,3 K'de elde edildi. Malzemelerin yüzey alanı BET Barrett-Joyner-Halende (BJH) yöntemiyle belirlenen gözenek hacmi ve boyutu kullanılarak belirlendi. Azot adsorpsiyon porozimetri ölçümleri hazırlanan aerogelin spesifik yüzey alanı ve gözenek özellikleri hakkında bilgi elde etmek için kullanıldı. Tablo 4.1. aerogelin yüzey alanı, gözenek hacmi ve ortalama gözenek boyutu gibi spesifik durumu verildi. Aerojelin ortalama 9,17 nm gözenek çapına sahip olduğu ve Barrette-Joyner-Halenda yöntemine göre 21,3 nm'lik makrogözenekli bölgeye ait bir yapıda olduğu belirlendi. IUPAC sınıflandırmasına göre bu histerezis döngüsü adsorbsiyon izoterm modeli, tipik Langmuir tip IV'e atfedilebilir.

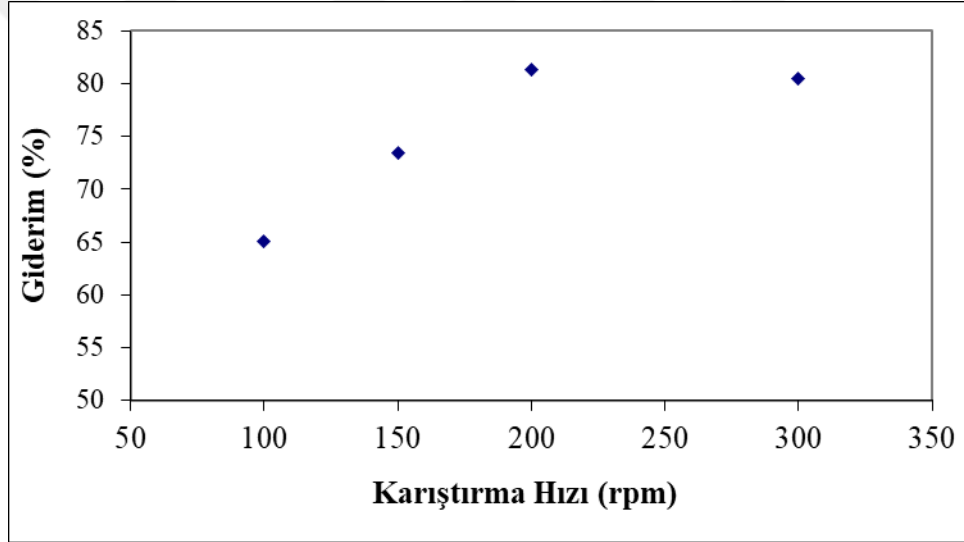
Tablo 4.1. Aerojelin BET analizine göre yüzey alanı, gözenek hacmi ve ortalama gözenek boyutu

Aerojel	Yüzey alanı (m ² /g)	Gözenek Hacmi (cm ³ /g)	Gözenek büyüklüğü (nm)
	7,48	0017	21,3



Şekil 4.2. Aerojelin nitrojen adsorpsiyon-desorpsiyon izotermi ve gözenek boyutu dağılım eğrileri

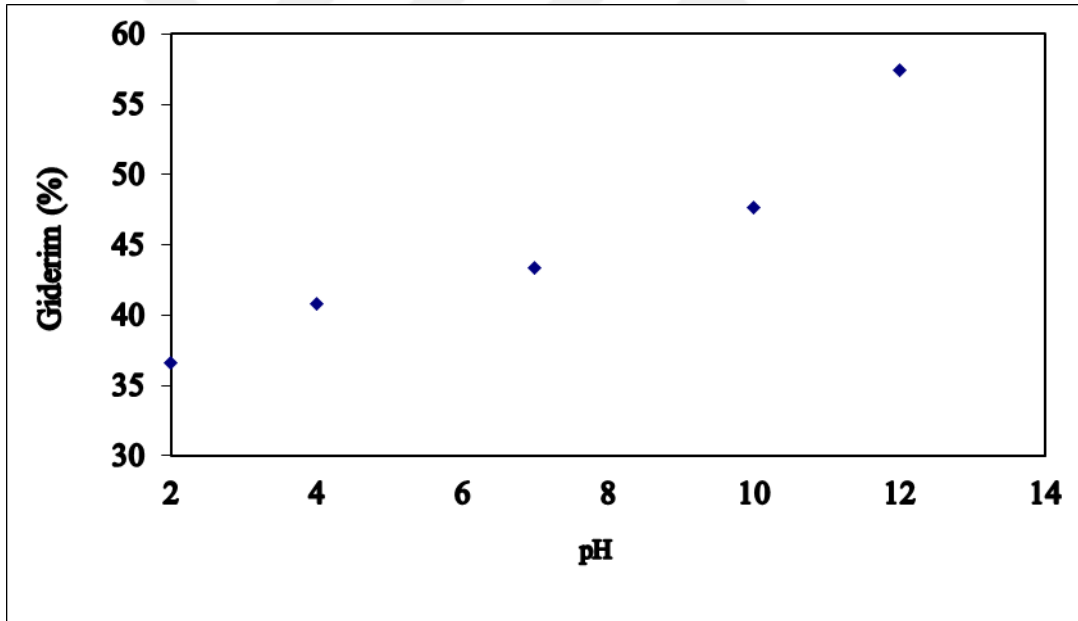
Deneyler, temas süresi (120 dakika), sıcaklık (25 °C), pH (7), adsorban miktarı (5 g L⁻¹) ve boya konsantrasyonu (15,428 mg L⁻¹) koşulları altında gerçekleştirildi. Elde edilen sonuçlar Şekil 4.3.'de sunulmuştur. Karıştırma hızının etkisini belirleme de 100, 150, 200 ve 300 rpm olmak üzere 4 deneysel değişken için deney setleri gerçekleştirildi. En düşük karıştırma hızında (100 rpm) giderim verimi %65,13 iken karıştırma hızının yaklaşık 2 kat arttırılmasıyla giderim veriminin %81,33'e yükseldiği gözlemlendi. Bu tez çalışmasında öncelikle optimum karıştırma hızının belirlenmesi için yapılan deneyde Şekil 4.3'e bakıldığında en yüksek metilen mavisi adsorpsiyonu 200 rpm hızında elde edildiği için sonraki deneylerde karıştırma hızı 200 rpm olarak optimum karıştırma hızında gerçekleştirildi.



Şekil 4.3. Aerojelin farklı karıştırma hızlarındaki % adsorpsiyon verimi

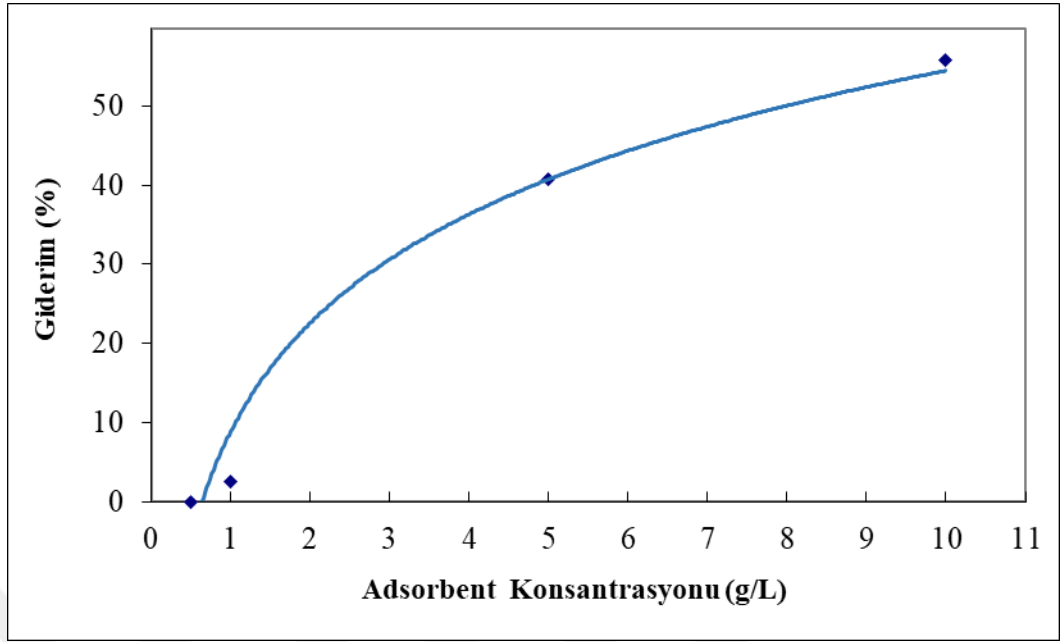
Deneyler, temas süresi (120 dakika), sıcaklık (25 °C), 200 rpm, adsorban miktarı (2,5 g L⁻¹) ve boya konsantrasyonu (15,428 mg L⁻¹) koşulları altında gerçekleştirildi. Adsorban sentez ile elde edildiği için sınırlı miktarından dolayı pH deneme setlerinde karıştırma hızındaki miktarın yarısı kullanıldı. Adsorbant ile adsorbent etkileşiminde pH büyük önem sahiptir. Farklı pH değerlerinin adsorpsiyon verimine etkisi 2, 4, 7, 10 ve 12 olmak üzere 5 farklı pH seviyelerinden oluşan deneme setleri ile araştırıldı. Şekil 4.4 de sunuldu. Çözeltinin pH seviyesinin artması ile birlikte adsorpsiyon miktarının artarak adsorpsiyon veriminin yükseldiği, asidik ortamda ise verimin düştüğü gözlemlendi. Aerojelin metilen mavisi adsorpsiyon verimi pH 2'de % 36 iken pH 12'de %57'ye yükseldi. Şekil 4.4'de verilen grafik incelendiğinde çözeltinin pH'ı arttıkça metilen

mavisinin adsorpsiyon yüzdesinin de arttığı sonucuna varılarak bazik ortamda boyarmadde adsorpsiyonun daha yüksek olduğuna karar verildi. Optimum pH Şekil 4.4 'de görüldüğü üzere pH 12 'de %57 olarak tespit edildi. Ancak atık sularda boyar maddelerin ortamdaki adsorplanması uygulamalarında uygun pH 'yı ayarlamak büyük su kütleleri için fazla miktarda kimyasal kullanımı gerektireceği, hem de zaman kaybı yaratacağından dolayı tercih edilmemektedir. Bu sebeple çalışmada optimum pH 7 olarak kabul edilmiştir. Ortam pH'ı, iyonlaşmayı doğrudan etkilediği için boya adsorpsiyonunda da boya ve adsorbanın reaktif bölgeleri üzerinde önemli bir rol oynar. Düşük pH'larda adsorban yüzeyinin hidrojen ile sarılı olmasından dolayı MM iyonları adsorbandaki aktif bölgelere tutunamamaktadır. Çözeltinin pH'ının artması, çözeltideki OH⁻ iyonu miktarını arttırmaktadır. Bu nedenle aktif PVDF yüzeyi de daha negatif hale gelmekte ve katyonik MM molekülleri ile aktif karbonun yüzeyi arasındaki elektrostatik çekim kuvvetlenmektedir.



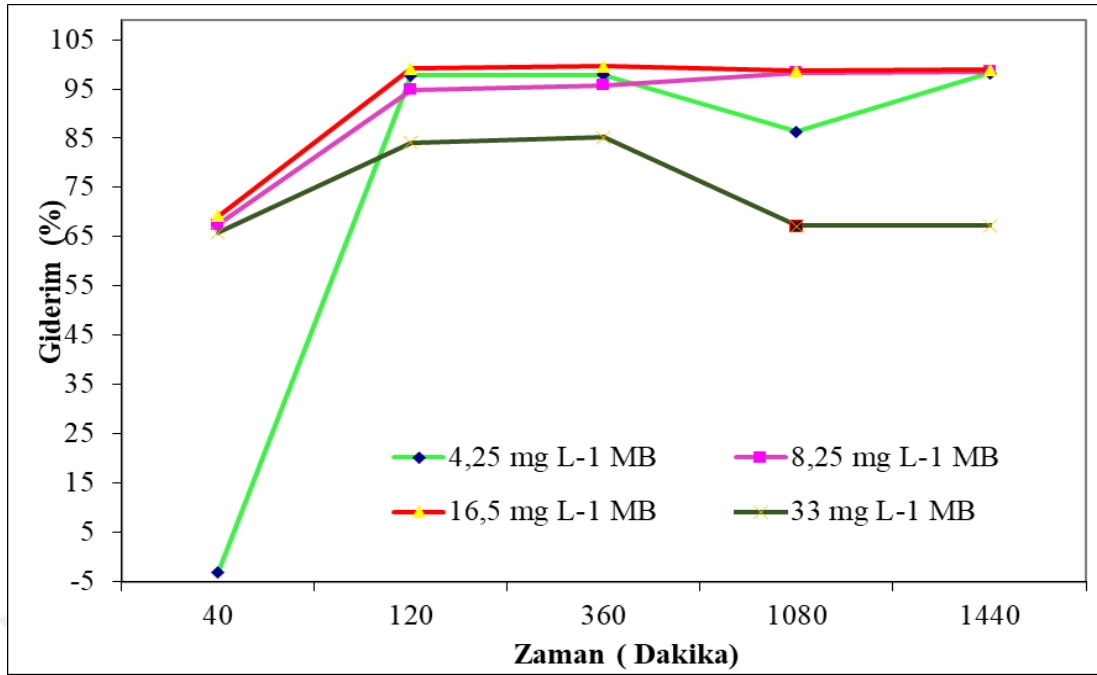
Şekil 4.4. Aerojelin farklı pH'larda % adsorpsiyon verimi

15,428 mg L⁻¹ mg/L başlangıç MB nin adsorbsiyonuna (200 rpm karıştırma hızı, 25 °C sıcaklık ve pH:7, 120 dakika temas süresi) adsorban konsantrasyonunun etkisi 0.5 g/L ile 10 g/L aralığında 4 farklı adsorban konsantrasyon seviyelerinden oluşan deneme setleri ile araştırıldı. Şekil 4.5'te farklı kütlelerde adsorban malzemelerdeki % boyarmadde adsorpsiyon verimleri gösterilmektedir. Şekil 4.5' e bakıldığında adsorbans maddenin artması ile adsorpsiyon veriminin arttığı ve adsorban miktarının aerojel için optimum konsantrasyon 10 g/L en verimli sonuç olduğu gözlemlenmiştir.



Şekil 4.5. Farklı adsorban dozlarında % adsorpsiyon verimi

50 mg/L başlangıç MB nin adsorbsiyonuna (200 rpm karıştırma hızı, 25 °C sıcaklık ve pH:7, 2 saat temas süresi) adsorban konsantrasyonunun etkisi 0,1 ile 10 g/L aralığında 5 farklı adsorban konsantrasyon seviyelerinden oluşan deneme setleri ile araştırıldı. Şekil 4.6'da değişen temas sürelerinde % boyarmadde adsorpsiyon verimleri gösterilmektedir.



Şekil 4.6. Farklı temas sürelerinde % adsorpsiyon verimi

Adsorbanın giderim etkinliği 10 g L^{-1} konsantrasyonunda 4 farklı başlangıç MB konsantrasyonu için araştırıldı. Sırasıyla $4,25 \text{ mg/L}$, $8,25 \text{ mg/L}$, $16,5 \text{ mg/L}$ ve 33 mg/L MB konsantrasyonları için maksimum adsorpsiyon veriminin % 97,72, 94,80, 99,12 ve 84,14 olduğu Şekil 4.6'da görüldü.

Literatürde son yapılan çalışmalarda MB adsorpsiyonunda yüksek deneysel kapasite değerleri başlangıç MB konsantrasyonu 10 mg/L için kayısı çekirdeğinden elde edilen aktif karbonda $19,79 \text{ mg/g}$ (Djilani ve ark., 2015); başlangıç MB konsantrasyonu 50 mg/L için aktif karbonda $186,4 \text{ mg/g}$ (Jawad ve Surip, 2022); aktif karbonda başlangıç MB konsantrasyonu $200\text{-}500 \text{ mg/L}$ aralığı için 1193 mg/g (Nasrullah ve ark., 2018); başlangıç MB konsantrasyonu $200\text{-}900 \text{ mg/L}$ için üzüm atıklarından elde edilen aktif karbonda 417 mg/g (Saygılı ve ark., 2015) elde edilmiştir. Bu durumun adsorbanın makro gözenekli yapıya sahip olmasından kaynaklandığı düşünülmüştür.

Çalışma da aerogelin MB adsorpsiyonunu açıklamak amacıyla Langmuir, Freundlich ve Temkin modelleri seçildi, adsorbentin teorik kapasitesi, enerjisi ve adsorbsiyonun türü ile ilgili bilgi edinmek için denge verileri 5 farklı konsantrasyonlarda izoterm modellerine uygulandı. Denge izoterm eğrileri sırasıyla Şekil 4.7 a,b ve c'de, modellere ait parametreler Tablo 4.2'de sunuldu.

Tablo 4.2. Denge izoterm eğrilerine ait parametreler

Langmuir			
	q _e	C _e	C _e /q _e
4,25 mg L ⁻¹	0,417	0,080	0,191
8,25 mg L ⁻¹	0,795	0,291	0,366
16,5 mg L ⁻¹	1,631	0,188	0,115
33 mg L ⁻¹	2,568	7,314	2,847

Freundlich		
	Log q _e	Log C _e
4,25 mg L ⁻¹	-0,379	-1,096
8,25 mg L ⁻¹	-0,099	-0,535
16,5 mg L ⁻¹	0,212	-0,724
33 mg L ⁻¹	0,409	0,864

Temkin		
	ln C _e	q _e
4,25 mg L ⁻¹	-2,525	0,417
8,25 mg L ⁻¹	-1,232	0,795
16,5 mg L ⁻¹	-1,668	1,631
33 mg L ⁻¹	1,989	2,568

Temkin izoterm modelinin lineer formu denklem 4.1 ile ifade edilmektedir.

$$q_e = BT \ln K_T + BT \ln C_e \quad (4.1)$$

Burada, $BT = RT/b$, b ve KT Temkin izoterm sabitidir (Lg^{-1}).

q_e ile $\ln C_e$ 'nin doğrusal grafiğinden (Şekil 4.7.c), BT , KT ve R^2 değerleri, Temkin denklemi kullanılarak hesaplandı ve Tablo 4.3'de sunuldu. Temkin izoterm verileri ile düşük bir korelasyon katsayısı elde edildi ($R^2 < 0,8$) ve bu durum adsorbsiyon denge verilerinin Temkin izotermine uygun olmadığını gösterdi.

Tablo 4.3. Temkin izoterm verileri

R^2	0,782
RT/BT	0,4283
BT	57,053
RT/Bt*lnKt	1,721
lnKt	4,018
Kt	55,623

Freundlich izoterm modelinin lineer formu denklem 4.2 ile ifade edilmektedir.

$$\log q_e = \log K_f + \frac{1}{n} \log C_e \quad (4.2)$$

Burada, q_e (mg/g) dengedeki adsorpsiyon kapasitesi, C_e (mg/L) dengedeki MB konsantrasyonu, K_f (mg.g⁻¹) ve $1/n$ Freundlich adsorpsiyon sabitidir. $1/n$ aktif merkezlerin heterojenliğini gösterir ve adsorpsiyon yoğunluğunun bir ölçüsüdür.

Log q_e ile log C_e 'nin lineer grafiğinden (Şekil 4.7.b), K_f ve R^2 değerleri, Freundlich denklemi kullanılarak hesaplandı ve değerler Tablo 4.4'de sunuldu. Freundlich izoterm verileri ile Langmuire göre daha düşük bir korelasyon katsayısı elde edildi ($R^2 < 0,98$), bu da adsorbsiyon denge verilerinin Freundlich izotermine Langmuir'e göre daha az uygun olduğunu gösterdi.

Tablo 4.4. Freundlich izoterm verileri

R²	0,655
1/n	0,328
n	3,047
logKf	0,1582
Kf	1,439

Langmuir izoterm modelinin lineer formu denklem 4.3 ile ifade edilmektedir.

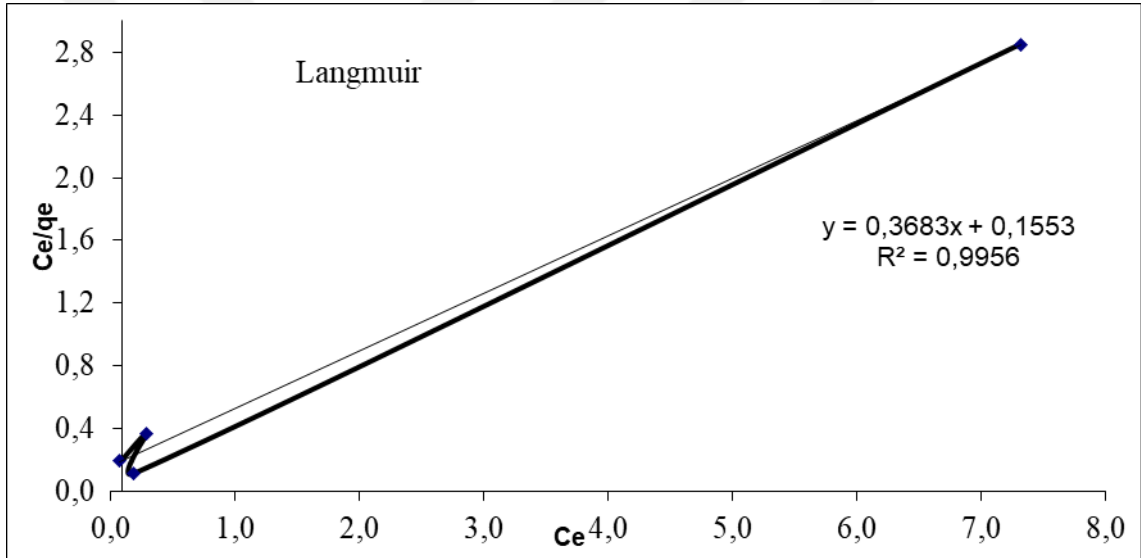
$$\frac{C_e}{q_e} = \frac{C_e}{Q_m} + \frac{1}{Q_m K_L} \quad (4.3)$$

Burada, q_{max} (mg.g⁻¹) adsorbentin tek katmanlı adsorpsiyon kapasitesidir, K_L (L.mg⁻¹) Langmuir adsorpsiyon sabitidir. En yüksek korelasyon katsayısı ($R^2 < 0,89$) ve deneysel değerlere en uyumlu teorik değerlerin ($q_{ecal}=2,73$ mg/g) ($q_{e,exp.}=2,56$ mg/g) elde edildiği modelin Langmuir olduğunu ve adsorpsiyon mekanizmasının Langmuir İzotermi ile uyumlu olduğunu gösterdi. Langmuir izoterminden hesaplanan maksimum adsorpsiyon kapasitesi, 2,73 mg.g⁻¹ olarak bulundu. Ayrıca, Langmuir izotermi, denklem 4.4 kullanılarak hesaplanan ayırma faktörü (RL) parametresi ile kontrol edildi ve değerler Tablo 4.5'de sunuldu. rGO/AC/PVDF aerogelinin MB adsorpsiyonu için elde edilen RL değerleri ($0 < RL < 1$) aralığındadır ve kullanılan adsorbanın metilen mavisi adsorpsiyonu için uygun olduğunu gösterdi.

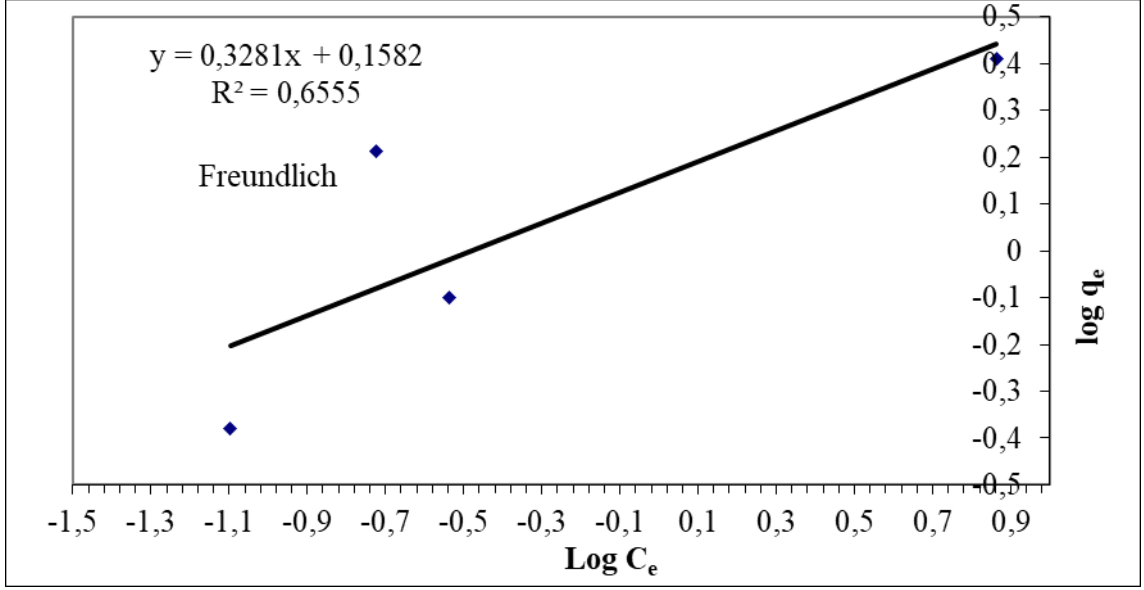
$$RL = \frac{1}{1 + K_L C_e} \quad (4.4)$$

Tablo 4.5. Langmuir izoterm verileri

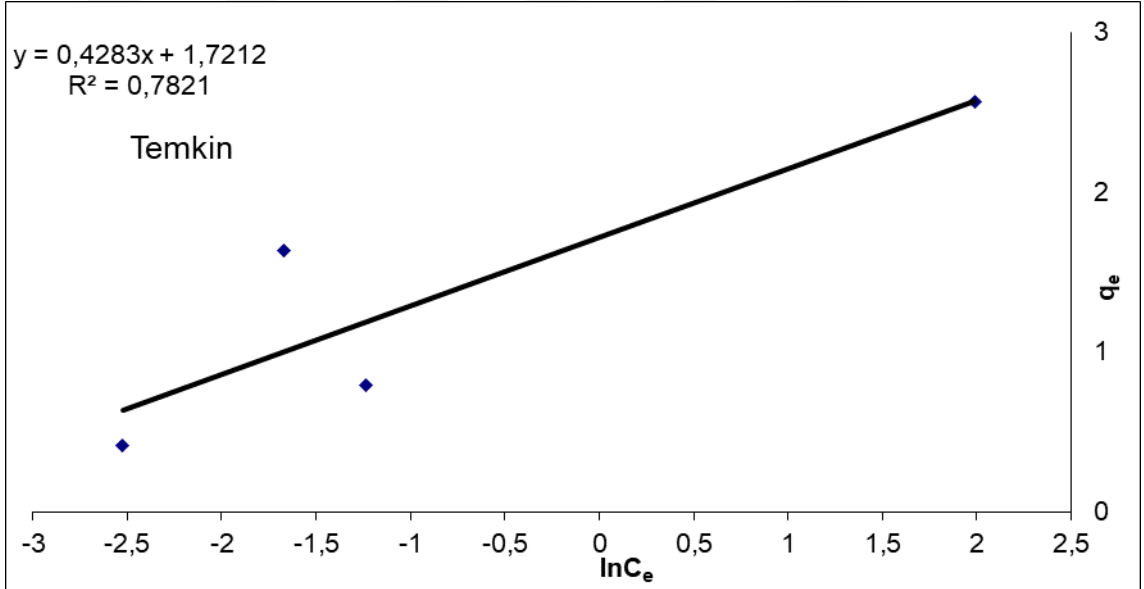
$R^2 = 0,995$				
1/qm	0,366			
qm	2,730			
1/(qmxKL)	0,155			
KL	2,358			
RL	0,090	0,048	0,025	0,012
Boyar madde konsantrasyonu	4,25 mg L ⁻¹	8,25 mg L ⁻¹	16,5 mg L ⁻¹	33 mg L ⁻¹



Şekil 4.7. a) Langmuir izoterm grafiği



Şekil 4.7. b) Freundlich izoterm grafiği



Şekil 4.7. c) Temkin izoterm grafiği

Aerogelin MB'ni adsorpsiyon hızı yalancı birinci derece (PFO) ve yalancı ikinci derece (PSO) kinetik modelleri kullanılarak araştırıldı. Sırasıyla PFO ve PSO modeli için Denklem 1 ve 2 kullanılmıştır.

$$\ln(q_e - q_t) = \ln q_e - k_1 t \quad (1)$$

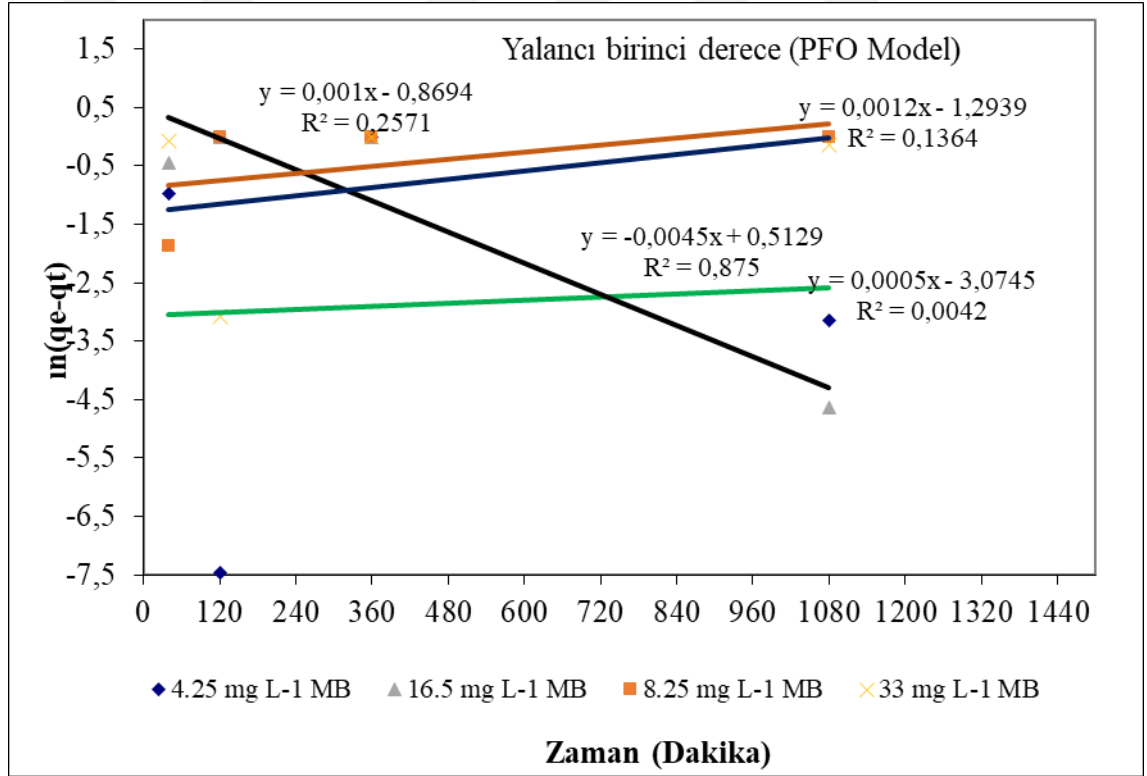
Burada q_e ve q_t (mg/g), dengede ve t zamanında (dak) aerogel üzerinde adsorbe edilen MB miktarlarıdır ve k_1 (1/dak), PFO modelinin hız sabitidir.

$$\frac{1}{q_t} = \frac{1}{k_2 q_e^2} + \frac{1}{q_e} \quad (2)$$

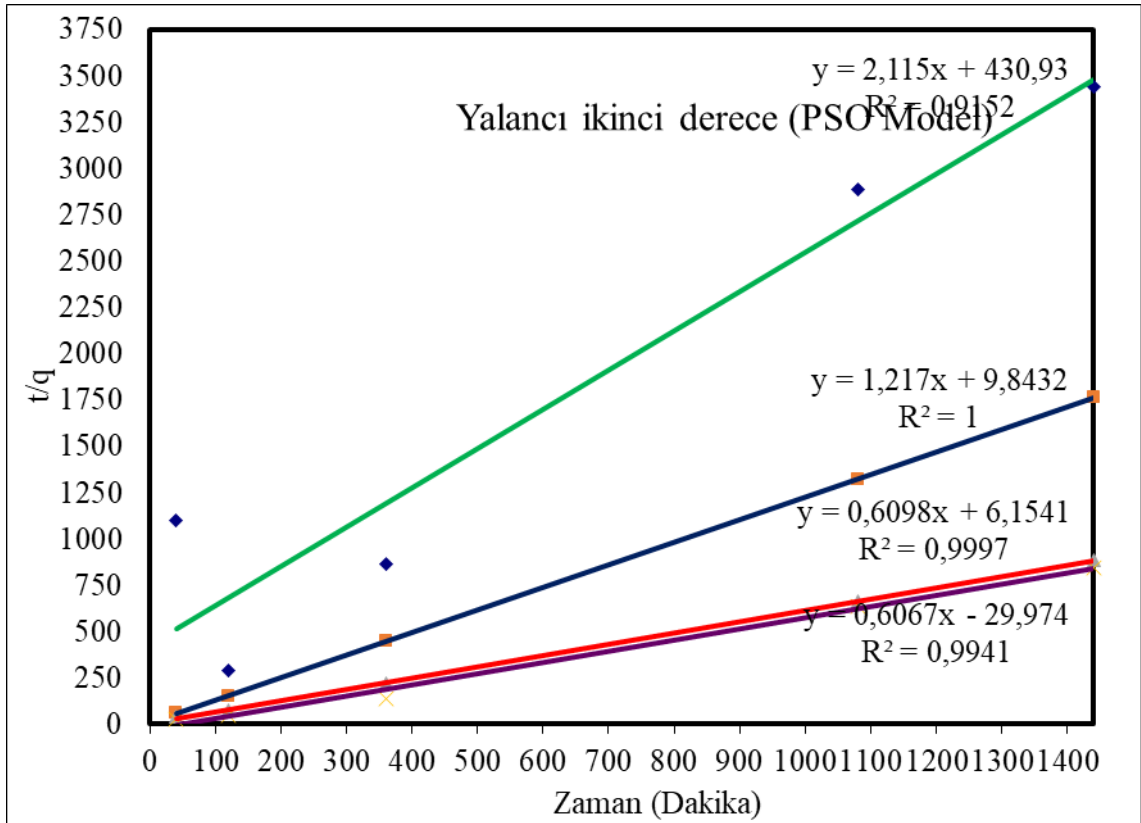
Burada k_2 (g/mg/dak) dengedeki hız sabitidir. Başlangıçtaki hız sabiti h (mg/g/dak) belirleme de denklem 3 kullanılmıştır.

$$h = k_2 q_e^2 \quad (3)$$

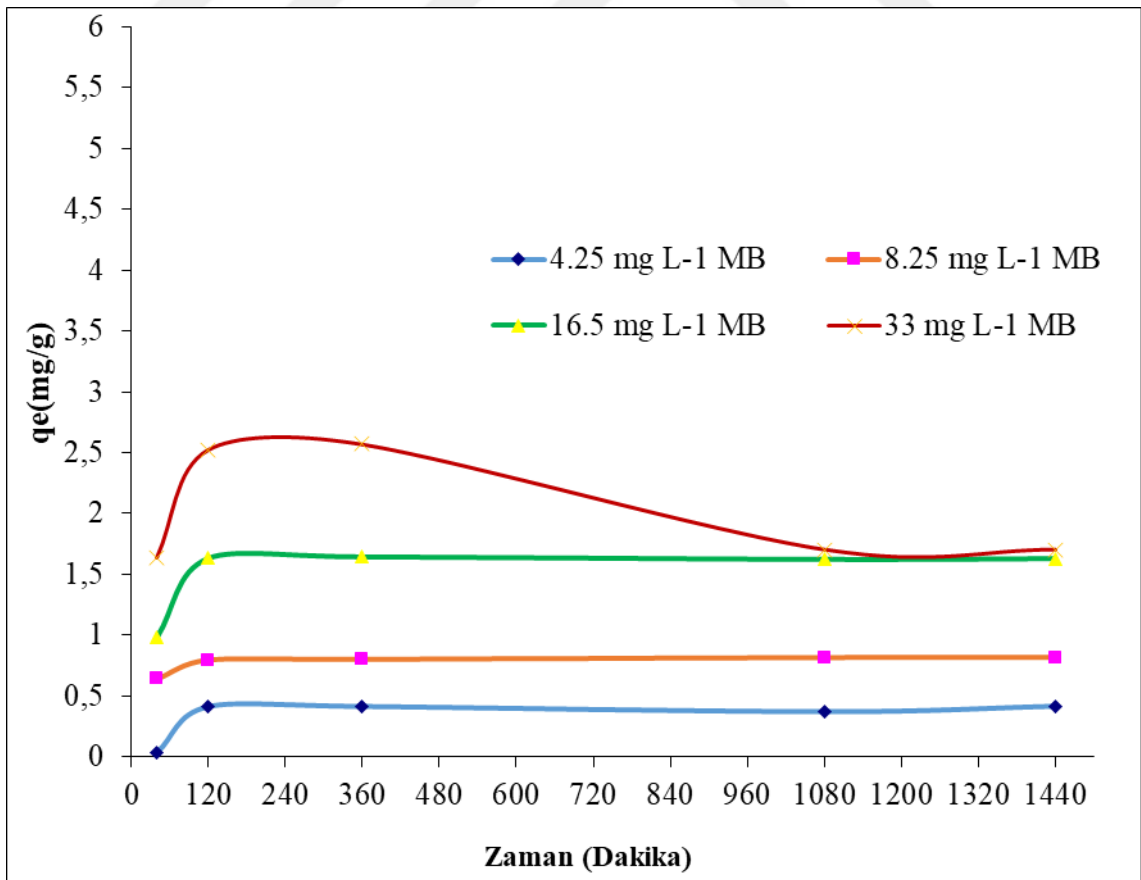
Şekil 4.8, 4.9 ve Tablo 4.6’da aerogelin MB adsorpsiyonuna ait kinetik eğriler ve PFO ve PSO modellerinin parametreleri görülmektedir. PFO kinetik modeli için teorik (q_e, cal) ve deneysel olarak (q_e, exp) hesaplanan adsorpsiyon kapasitesinin karşılaştırılması Tablo 4.6 da görülmektedir.



Şekil 4.8 Yalancı birinci derece kinetik model



Şekil 4.9 Yalancı ikinci derece kinetik model



Şekil 4.10 Adsorpsiyon kapasitesinin zamana bağlı değişimi

Şekil 4.10’da düşük başlangıç MB konsantrasyonlarında uzaklaştırılan boya yüzdesi yüksek dengeye ulaşma süresinin kısa olduğu (uzaklaştırılan maksimum boya yüzdesinin 4,25mg L⁻¹ MB konsantrasyonu için %97,878), ancak başlangıç boya konsantrasyonunun artması ile adsorpsiyonun dengeye ulaşma süresinin daha uzun zaman aralığında olduğu giderilen boya yüzdesinin de düşük (%67,29) olduğu görüldü. Ancak Şekil 4.10’da görüldüğü gibi başlangıç boya konsantrasyonu arttıkça adsorban kapasitesinin de arttığı görüldü.

Tablo 4.6’da aerogelin MB adsorpsiyonuna ait PFO ve PSO modellerinin kinetik parametreleri görülmektedir.

Tablo 4.6. Aerogelin MB adsorpsiyonuna ait kinetik parametreler

	4,25 mg L ⁻¹ MB	8,25 mg L ⁻¹ MB	16,5 mg L ⁻¹ MB	33 mg L ⁻¹ MB
q _{e,exp}	0,42	0,80	1,63	2,568
PFO				
q _{e1} (mg g ⁻¹)	0,046	0,419	1,67	0,274
k ₁	0,0005	0,001	0,004	0,001
R ²	0,004	0,257	0,875	0,136
Δq _{e2}	0,37	0,38	-0,04	2,29
PSO				
q _{e2}	0,47	0,82	1,64	1,650
k ₂	0,010	0,150	0,060	-0,012
R ²	0,915	1	0,999	0,994
h(mg/g/min)	0,002	0,102	0,162	-0,033
Δq _{e2}	0,056	0,026	0,011	-0,918

Tüm konsantrasyon seviyelerinde PSO model için ise korelasyon $R^2 > 0.91$ ve teorik değerler ile (q_{e,cal}) deneysel değerler (q_{e,exp}) birbirleriyle uyumludur (Tablo 4.6). Sonuç olarak aerogelin MB adsorpsiyonu PSO kinetik modeliyle uyumludur.

Tablo 4.7. Adsorpsiyon için kullanılan bazı malzemelere ait parametreler

	Malzeme	Gözenek Çapı (nm)	Yüzey Alanı (m ² /g)	Adsorpsiyon kapasitesi (mg/g)
Kushwaha ve ark., (2022)	Amla (<i>Phyllanthus emblica</i>) meyvesi çekirdeğinden elde edilen aktif karbon		569	59,25
Georgin ve ark.,(2022)	Ejderha meyvesi (<i>Hylocereus undatus</i>) kabukları	1,23	667,3	144,07
Ramadhani ve ark.,(2020)	Karides kabuğu (<i>Metapenaeus monoceros</i>) atığı		45,119	69,307
Isiuku ve Onyema ,(2017)	Manyok (<i>Manihot esculenta</i>) kabukları		350,41	2,35
Saygılı ve ark.,(2015)	Üzüm işleme endüstriyel atıkları		1455	386
Jawad ve Surip (2022)	Merit Kapıt	2,22	848,7	186,4
Ahmad ve ark.,(2021)	Yer Fıstığı Kabuğu	3,76	868,750	555,600

Yapılan çalışmada aerogelin adsorpsiyon kapasitesi 2,73 mg/g, yüzey alanı 7,48 m²/g; gözenek hacmi 0017 cm³/g ve gözenek büyüklüğü 213 nm olarak tespit edilmiştir. Literatürde adsorpsiyon için kullanılan bazı malzemeler (Tablo 4.7) ile aerogel kıyaslandığında, aerogelin özellikle adsorpsiyon kapasite değerinin düşük olduğu sonucuna ulaşılmıştır. Kaynak çalışmalarda boyar maddelerin başlangıç konsantrasyonlarının oldukça yüksek olması adsorpsiyon kapasite değerlerinin de yüksek olarak gözlemlenmesine neden olmakla birlikte hesaplamalardaki hata payını da arttırmaktadır. Aerogelin boyar madde giderim etkinliğinin değişen adsorban konsantrasyonları için ortalama % 90 üzerinde olması adsorpsiyon için uygun bir madde olduğunu kanıtlamaktadır. Tez çalışması boyunca yapılan tüm deneylerin sonucunda aerogelin formunda herhangi bir değişme gözlemlenmemiştir. Bu nedenle tekrar geri

kazanılıp kullanılabileceđi yönündeki düşünceleri kuvvetlendirmektedir. Böyle bir durumda ise atık su arıtma maliyetlerinde azalmaya neden olacaktır. Genel bağlamda adsorpsiyon işlemi ile özdeşleşen arojellerin gerek fiziksel gerek kimyasal özellikleri sebebiyle yakın gelecekte günlük hayatta kullanılan birçok eşya ve malzeme içeriğinde yer tutacağı düşünülmektedir.



KAYNAKLAR

- Ahmad, M. A., Yusop, M. F. M., Zakaria, R., Karim, J., Yahaya, N. K. E., Yusoff, M. A. M., ... & Abdullah, N. S. (2021). Adsorption of methylene blue from aqueous solution by peanut shell based activated carbon. *Materials Today: Proceedings*, 47, 1246-1251.
- Ai, L., Zhang, C., & Chen, Z. (2011). Removal of methylene blue from aqueous solution by a solvothermal-synthesized graphene/magnetite composite. *Journal of hazardous materials*, 192(3), 1515-1524.
- Al-Degs, Y., Khraisheh, M. A. M., Allen, S. J., & Ahmad, M. N. (2000). Effect of carbon surface chemistry on the removal of reactive dyes from textile effluent. *Water Research*, 34(3), 927-935.
- An, J. E., Jeon, G. W., & Jeong, Y. G. (2012). Preparation and properties of polypropylene nanocomposites reinforced with exfoliated graphene. *Fibers and Polymers*, 13(4), 507-514.
- Anonim, 2021, Aerojeller Nedir? [online], Web adresi: <https://ogrencibloglari.net/aerojeller-nedir/> [24.09.2023].
- Başer, İ., İnanıcı, Y. 1990. Boyar madde kimyası, No:482, *Marmara Üniversitesi Teknik Eğitim Yayınları*, İstanbul, 214s.
- Bayar, S. (2018). Metilen Mavisinin Doğal Kil Üzerine Adsorpsiyonu. *Gümüşhane Üniversitesi Fen Bilimleri Dergisi*, 8(2), 264-272.
- Bhuyan S. A., Uddin N., Islam M., Bipasha F. A., Hossain S. S., (2016), “Synthesis of graphene”, *International Nano Letters*, 6 (2), 65–83.
- Bıyık, N., 2013, Sübstitüe Edilmiş Kitosanların Metal Adsorpsiyon Özelliklerinin İncelenmesi, Yüksek Lisans Tezi, *Selçuk Üniversitesi*, Konya.
- Brisebois, PP ve Siaj, M. (2020). Grafen oksitin hasadı - 1859'dan 2019'a kadar: yapısının, sentezinin, özelliklerinin ve pul pul dökülmesinin gözden geçirilmesi. *Malzeme Kimyası Dergisi C*, 8 (5), 1517-1547.
- Buğdaycı, İ. 2008, Dünyanın En Hafif Katısı Aerojeller. [online], Web adresi: <https://e-dergi.tubitak.gov.tr/edergi/yazi.pdf?dergiKodu=4&cilt=41&sayi=618&sayfa=60&yaziid=26385> [20.09.2023].
- Capadona, LA, Meador, MAB, Alunni, A., Fabrizio, EF, Vassilaras, P. ve Leventis, N. (2006). Esnek, düşük yoğunluklu polimer çapraz bağlı silika aerojeller. *Polimer*, 47 (16), 5754-5761.

- Cheng, Z. L., Li, Y. X., & Liu, Z. (2017). Novel adsorption materials based on graphene oxide/Beta zeolite composite materials and their adsorption performance for rhodamine B. *Journal of Alloys and Compounds*, 708, 255-263.
- Çevik, T., Top, S., Sekman, E., Yazıcı, R., Bilgili, M. S., Demir, A., Varan, K.G., Akkaya E., 2008, Nikelin bentonitle adsorpsiyonunun izoterm, kinetik ve termodinamik analizi, *III.Çevre Sorunları Kongresi*, Fatih Üniversitesi, İstanbul ÇESKO.
- Çimen, A. E. (2021). Döküm Kumu Ve Atık Döküm Kumundan Silika Esaslı Aerojel Üretimi Ve Karakterizasyonu ,Yüksek Lisans, *Sakarya Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü*), Sakarya, 1-80.
- Dai, C., Yang, X., and Xie, H. (2011). One-step synthesis of reduced graphite oxide–silver nanocomposite. *Materials Research Bulletin*, 46(11), 2004-2008.
- Dertli, H., (2004), “Farklı Aktivasyon Yöntemlerinin Aktif Karbon Özelliklerine Etkisi”, Yüksek Lisans , *Yıldız Teknik Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü*, İstanbul, 1-60.
- Dreyer, DR, Jia, HP ve Bielawski, CW (2010). Grafen oksit: oksidasyon ve hidrasyon reaksiyonlarını kolaylaştırmak için uygun bir karbokatalizör. *Angewandte Chemie Uluslararası Baskı* , 38 (49), 6813-6816.
- Djilani, C., Zaghdoudi, R., Djazi, F., Bouhekima, B., Lallam, A., Modarressi, A., & Rogalski, M. (2015). Adsorption of dyes on activated carbon prepared from apricot stones and commercial activated carbon. *Journal of the Taiwan Institute of Chemical Engineers*, 53, 112-121.
- Doğar, Ç. 2000, Bazı reaktif boyaların elektrokoagülasyonunun kavramsal ve istatistiksel olarak incelenmesi. Yüksek Lisans Tezi, *Atatürk Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü*, Erzurum,1-30.
- Dorak, S., Aşık, B. B., & Özsoy, G. (2019). Tarımda su kalitesi ve su kirliliğinin önemi: Bursa Nilüfer çayı örneği. *Bursa Uludağ Üniversitesi Ziraat Fakültesi Dergisi*, 33(1), 155-166.
- Du, A., Zhou, B., Zhang, Z., & Shen, J. (2013). A special material or a new state of matter: a review and reconsideration of the aerogel. *Materials*, 6(3), 941-968.
- E. Skrzetuska, M. Puchalski ve I. Krucińska,, “Chemically driven printed textile sensors based on graphene and carbon nanotubes”, *Sensors*, no. 14, pp. 16816-16828, 2014.
- Fang, P., Cen, CP, Wang, XM, Tang, ZJ, Tang, ZX ve Chen, DS (2013). Üre+ KMnO4 çözeltisi kullanılarak ıslak fırçalamayla SO₂, NO ve Hg⁰'nin eş zamanlı uzaklaştırılması. *Yakıt İşleme Teknolojisi* , 106 , 645-653.

- Gao, J., Liu, F., Liu, Y., Ma, N., Wang, Z., & Zhang, X. (2010). Environment-friendly method to produce graphene that employs vitamin C and amino acid. *Chemistry of Materials*, 22(7), 2213-2218.
- Geçgel, Ü., Kocabıyık, B., & Üner, O. (2015). Adsorptive removal of methylene blue from aqueous solution by the activated carbon obtained from the fruit of catalpa bignonioides. *Water, Air, & Soil Pollution*, 226(8).
- Georgakilas, V. (2014). Covalent attachment of organic functional groups on pristine graphene. *Functionalization of Graphene*, 21-58.
- Georgin, J., da Boit Martinello, K., Franco, D. S., Netto, M. S., Picilli, D. G., Yilmaz, M., ... & Dotto, G. L. (2022). Residual peel of pitaya fruit (*Hylocereus undatus*) as a precursor to obtaining an efficient carbon-based adsorbent for the removal of metanil yellow dye from water. *Journal of Environmental Chemical Engineering*, 10(1), 107006.
- Gregg, S. J., and Sing, K. S. W. (1982). Adsorption, surface area and porosity, Acad. Press, London, 3.
- Gurav, J. L., Jung, I. K., Park, H. H., Kang, E. S., & Nadargi, D. Y. (2010). Silica aerogel: synthesis and applications. *Journal of Nanomaterials*, 2010, 1-11.
- Güler, D. (2012), “Silis Kumu, Feldspat ve Tetraetil ortosilikattan Sol-jel Yöntemi ile Silika Aerojel Sentezi ve Karakterizasyonu”, Yüksek Lisans Tezi, *Gazi Üniversitesi Fen Bilimleri Fakültesi*, Ankara,1-112.
- Gündüzoğlu, G. (2008). Şeker pancarı küspesinden aktif karbon üretimi ve karakterizasyonu. Eskişehir Osmangazi Üniversitesi. *Fen Bilimleri Enstitüsü, Kimya Mühendisliği Anabilim Dalı, Temel İşlemler ve Termodinamik Bilim Dalı, Yüksek Lisans Tezi, Eskişehir*,1-18.
- Güneş, S. ve Polat, K. 2009, Elektrokardiyogram (EKG) aritmi teşhisinde en az kareli destek vektör makinaları kullanımına dayalı medikal teşhis destek sistemi, 13. *Biyomedikal Mühendisliği Ulusal Toplantısı, BİYOMUT-2009*, İstanbul, 170-173.
- Hsiao, M.C., Liao, S.H., Lin, Y.F., Wang, C.A., Pu, N.W., Tsai H.M., and Ma, C.C.M., (2011), Preparation and Characterization of Polypropylene-Grafted-Termally Reduced Graphite Oxide with an Improved Compatibility with Polypropylene-Based Nanocomposite, *Nanoscale*, 3, 1516-1522.
- Hummers Jr, W. S., and Offeman, R. E. (1958). Preparation of graphitic oxide. *Journal of the american chemical society*, 80(6), 1339.
- Isiuku, B. O., & Onyema, M. O. (2017). Batch Removal of Metanil Yellow (MY) from

Aqueous Solution by Adsorption on HNO₃-Treated-H₃PO₄-Activated Carbon (NATPAAC) from *Gmelina arborea* Roxb.: Kinetic and Mechanism Studies. *World News of Natural Sciences*, 13, 10-26.

J. E. An, G. W. Jeon ve Y. G. Jeong, "Preparation and properties of polypropylene nanocomposites reinforced with exfoliated graphene", *Fibers And Polymers*, cilt 13, no. 4, pp. 507-514, 2012.

Jawad, A. H., & Surip, S. N. (2022), Upgrading low rank coal into mesoporous activated carbon via microwave process for methylene blue dye adsorption: Box Behnken Design and mechanism study. *Diamond and Related Materials*, 127, 109199.

Kapdan, İ. K. ve Kargı, F. (2000). Atıksu tekstillerden boyarların adsorpsiyonlu biyolojik arıtım ile giderimi. *Türk Mühendislik ve Çevre Bilimleri Dergisi* , 24 , 161-169.

Katsnelson, M. I., & Novoselov, K. S. (2007). Graphene: New bridge between condensed matter physics and quantum electrodynamics. *Solid State Communications*, 143(1-2), 3-13.

Katti, A., Shimpi, N., Roy, S., Lu, H., Fabrizio, E. F., Dass, A., ... & Leventis, N. (2006). Chemical, physical, and mechanical characterization of isocyanate cross-linked amine-modified silica aerogels. *Chemistry of Materials*, 18(2), 285-296.

Kaya, GG ve Deveci, H. (2020). Silika aerojellerin/kserojellerin polimer kompozitlerin özellikleri üzerindeki sinerjistik etkileri: Bir inceleme. *Endüstri ve Mühendislik Kimyası Dergisi* , 89 , 13-27.

Kirişken, B., ve Kalkan, A. (2002). Tekstil boyarmaddeleri. *Bitirme Çalışması, Celal Bayar Üniversitesi Fen Edebiyat Fakültesi, Kimya Bölümü, Manisa*,1-25.

Kul, Y. (2018). Eko-verimlilik uygulamalarının sürdürülebilir kalkınmaya etkileri: Türkiye örneği/Effects on sustainable development of eco-efficiency practices: Turkey samples.

Kurbanova, R., Mirzaoglu, R., Ahmedova, G., Şeker, R., & Özcan, E. (1998). Boya ve tekstil kimyası ve teknolojisi. *Selçuk Üniversitesi Fen-Edebiyat Fakültesi Yayınları*, 34, 1-102.

Kushwaha, S., Tyagi, I., Ahmed, J., Chaudhary, S., Chaudhary, M., Stephen Inbaraj, B., ... & Sridhar, K. (2022). Adsorptive Analysis of Azo Dyes on Activated Carbon Prepared from *Phyllanthus emblica* Fruit Stone Sequentially via Hydrothermal Treatment. *Agronomy*, 12(9), 2134.

Lee, J., & Lim, S. (2018). Polarization behavior of polyvinylidene fluoride films with the addition of reduced graphene oxide. *Journal of Industrial and Engineering Chemistry*. doi:10.1016/j.jiec.2018.07.022.

- Leventis, N. (2007). Üç boyutlu çekirdek-kabuk üst yapıları: mekanik olarak güçlü aerogeller. *Kimyasal Araştırma Hesapları* , 40 (9), 874-884.
- Lin, S. H., and Peng, C. F. (1994). Treatment of textile wastewater by electrochemical method. *Water research*, 28(2), 277-282.
- Löschau, M., and Krätke, R. 2005, Efficacy and toxicity of self-polishing biocide-free antifouling paints. *Environmental Pollution*, 138(2), 260-267.
- Madadrang, C. J., Kim, H. Y., Gao, G., Wang, N., Zhu, J., Feng, H., ... & Hou, S. (2012). Adsorption behavior of EDTA-graphene oxide for Pb (II) removal. *ACS applied materials & interfaces*, 4(3), 1186-1193.
- Madenli, Ö., Deveci, E. U., & Gönen, Ç. 2021, Ağır Metal Gideriminde Grafen Uygulamaları Adsorpsiyon Teknolojisi. *Fırat Üniversitesi Mühendislik Bilimleri Dergisi*, 33(1), 151-159.
- Mermer, N. K., & Pişkin, S. (2019). Ultrason destekli sol-jel yöntemi ile kumdan aerogel sentezi, karakterizasyonu ve termal yalıtım sıvası üretiminde değerlendirilmesi. *Gazi Üniversitesi Mühendislik Mimarlık Fakültesi Dergisi*, 34(3), 1253-1264.
- Nasrullah, A., Saad, B., Bhat, AH, Khan, AS, Danish, M., Isa, MH ve Naeem, A. (2019). Yüksek yüzey alanlı gözenekli aktif karbon için sürdürülebilir bir öncü olarak mangosten kabuğu atığı: Metilen mavisinin giderilmesi için karakterizasyon ve uygulama. *Temiz Üretim Dergisi* , 211 , 1190-1200.
- Özal, T., Çavdar, Ş., & Koralay, H., (2021). *Farklı Yöntemlerle Sentezlenen İndirgenmiş Grafen Oksitlerin Karakterizasyonu Ve Eva Nanokompozit Film Üzerindeki Etkilerinin İncelenmesi* .TRAKYA ÜNİVERSİTELER BİRLİĞİ V. LİSANSÜSTÜ ÖĞRENCİ KONGRESİ, Turkey
- Özcan, Y., 1978. Tekstil Elyaf ve Boyama Tekniği, İstanbul Üniversitesi Yayınları No:2557, İstanbul, 460.
- Pietronero, L., Strässler, S., Zeller, H. R., & Rice, M. J. (1980). Electrical conductivity of a graphite layer. *Physical Review B*, 22(2), 904.
- Ramadhani, P., Chaidir, Z., Zilfa, Z., Tomi, Z. B., Rahmiarti, D., & Zein, R. (2020). Shrimp shell (*Metapenaeus monoceros*) waste as a low-cost adsorbent for metanil yellow dye removal in aqueous solution. *Desalin Water Treat*, 197, 413-423.
- Ramesha, G. K., Kumara, A. V., Muralidhara, H. B., & Sampath, S. (2011). Graphene and graphene oxide as effective adsorbents toward anionic and cationic dyes. *Journal of colloid and interface science*, 361(1), 270-277.
- Robinson, T., McMullan, G., Marchant, R., & Nigam, P. (2001). Remediation of dyes in textile effluent: a critical review on current treatment technologies with a proposed alternative. *Bioresource technology*, 77(3), 247-255.

- Ryu S.H., and Shanmugharaj, A.M., (2014), Influence of LongChain Alkylamine-Modified Graphene Oxide on The Crystallization, Mechanical and Electrical Properties of Isotactic Polypropylene Nanocomposites, *Chemical Engineering Journal*, 244, 553-560.
- Saquin, C. D., Kang, D., Aindow, M., & Erkey, C. (2005). Investigation of the supercritical deposition of platinum nanoparticles into carbon aerogels. *Microporous and Mesoporous Materials*, 80(1-3), 11-23.
- Sawyer, C. N., and McCarty, P. L. (1978). *Chemistry for environmental engineering*. McGraw-Hill.
- Saygılı, H., Güzel, F., & Önal, Y. (2015). Conversion of grape industrial processing waste to activated carbon sorbent and its performance in cationic and anionic dyes adsorption. *Journal of Cleaner Production*, 93, 84-93.
- Seah C.M., Chai S.-P, Mohamed A.R., (2014), “Mechanisms of graphene growth by chemical vapour deposition on transition metals”, *Carbon*, 70, 1-21.
- Serin, D. 2010. Supranol Yellow 4 GL Boyarmaddesi Ve Nikel (II) İyonlarının Portakal Kabuğuna Adsorpsiyonunun Kesikli Ve Sürekli Sistemlerde İncelenmesi, Yüksek Lisans Tezi. Mersin Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü, Kimya Mühendisliği Ana Bilim Dalı, Mersin, 1-50.
- Seventekin, N. 1988. Boyar Madde Kimyasına Giriş. E.Ü. Mühendislik Fakültesi Çoğaltma Yayın, Bornova, 129.
- Sheshmani, S., Ashori, A. ve Hasanzadeh, S. (2014). Asit Portakal 7'nin manyetik grafen/kitosan kullanılarak sulu çözeltiden çıkarılması: Umut verici bir nano-adsorban. *Uluslararası biyolojik makromoleküller dergisi* , 68 , 218-224.
- Shreve, R.N., Bring, J.A. 1977. The potential for baker's yeast (*Saccharomyces cerevisiae*) in the production of wine from banana, cooking banana and plantain. Chemical Process Industries, McGraw-Hill Book Company, 867s.
- Sipos, AJ ve Urakawa, H. (2016). Nitrifikasyon arkelerinin ve bakterilerin metilen mavisi toksisitesine farklı tepkileri. *Uygulamalı mikrobiyolojide mektuplar* , 62 (2), 199-206.
- Socha, K. (1991) Treatment of Textile Effluents, *Textile Month*, 12, 52-56.
- Sülkü, A.S (2012). ‘Atıksu boyalardan ayıran adsorpsiyon yöntemi ile giderimi’,Yüksek Lisans Tezi, *Yıldız Teknik Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü*, İstanbul 38-50.
- Şengül, F., Özer, A., Çatalkaya, E. Ç., Oktav, E., Evcil, H., Çolak, O., Sağer, Y. 2003, "Zeytin Karasuyu Arıtımı Projesi". Dokuz Eylül Üniversitesi, İzmir.

- Tajiri, K., Igarashi, K., & Nishio, T. (1995). Effects of supercritical drying media on structure and properties of silica aerogel. *Journal of non-crystalline solids*, 186, 83-87.
- Tiyek, İ., Dönmez, U., Yıldırım, B., Alma, M. H., Ersoy, M. S., Karataş, Ş., & Yazıcı, M. (2016). Kimyasal yöntem ile indirgenmiş grafen oksit sentezi ve karakterizasyonu. *Young*, 100000(13000), 0-56.
- Topçu, İ. (2022). Sol-Jel Yöntemi ile Üretilen Silika Tabanlı Hidrofobik Aerojellerin Karakterizasyon Özelliklerinin İncelenmesi. *Avrupa Bilim ve Teknoloji Dergisi*, (45), 1-7.
- Turhan, İ. K. (2020). Magnezyum silika aerogel üretimi, karakterizasyonu ve berrak üzüm suyu üretiminde durultma performansının incelenmesi.
- Tutuş, A. ve Eroğlu, H. "Kağıt atıksularının çevreye olan zararları ve arıtılması". Kayseri 1. Atık Su Sempozyumu, Kayseri, (1998), 87-92.
- Vakili, M., Deng, S., Cagnetta, G., Wang, W., Meng, P., Liu, D. ve Yu, G. (2019). Ağır metal adsorpsiyonunda kullanılan kitosan bazlı adsorbanların rejenerasyonu: Bir inceleme. *Ayrırma ve Arıtma Teknolojisi*, 224, 373-387.
- Vareda, J. P., Lamy-Mendes, A., & Durães, L. (2018). A reconsideration on the definition of the term aerogel based on current drying trends. *Microporous and Mesoporous Materials*, 258, 211-216.
- Wang, CF, Wang, J., Wang, XP, Zhang, X., Meng, Y., Chen, F., ... ve Meng, XM (2022). Yarı sert bir trikarboksilat ligandına dayanan üç Co (II) koordinasyon polimerinin rasyonel tasarımı: Sentezler, yapısal değişkenlik, elektrokimyasal davranış, manyetik ve fotokatalitik özellikler. *Moleküler Yapı Dergisi*, 1265, 133439.
- W.S. Hummers, R.E. Offeman, (1958). Preparation of Graphitic Oxide, *J. m. Chem. Soc.* 80, 1339.
- Wu, X., Wu, D., Fu, R., & Zeng, W. (2012). Preparation of carbon aerogels with different pore structures and their fixed bed adsorption properties for dye removal. *Dyes and pigments*, 95(3), 689-694.
- Xie, T., He, Y. L., and Hu, Z. J. (2013). Theoretical study on thermal conductivities of silica aerogel composite insulating material. *International journal of heat and mass transfer*, 58(1-2), 540-552.
- Y. J. Yun, W. G. Hong, W. J. Kim, Y. Yun ve B. H. Kim, "A novel method for applying reduced graphene oxide directly to electronic textiles from yarns to fabrics", *Advanced Materials*, no. 25, pp. 5701-5705, 2013.

- Yağız, A.,2016. Çörek Otu (*Nigella Sativa*) Kullanarak Sulu Çözeltilerden Tekstil Boyar Maddelerin Adsorpsiyonu, Yüksek Lisans Tezi, *Ordu Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü*, 1-10.
- Yemiş, F. & Yenil, N. 2018, Metilen Mavisi ve Alizarininin Lüminesans Spektrometresi İle Asitlik Sabitlerinin Tayini ve Bazı Metal Duyarlılıklarının İncelenmesi . *Selçuk Üniversitesi Mühendislik, Bilim Ve Teknoloji Dergisi* , 6 (2) , 317-330.
- Yeşildal, B. B. 2002 ,Enerji Korunumu Açısından Dış Duvarlarda Saydam Yalıtım Kullanımının İrdelenmesi, Yüksek Lisans, *İstanbul Teknik Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü*, İstanbul,1-109.
- Yetgin, S. (2013). *DNA adsorption on silica, alumina and hydroxyapatite and imaging of DNA by atomic force microscopy* (Doctoral dissertation, *Izmir Institute of Technology* (Turkey)).
- You, S., Cheng, S., and Yan, H. (2009). The impact of textile industry on China's environment. *International Journal of Fashion Design, Technology and Education*, 2(1), 33-43.
- Yu, H., Liang, X., Wang, J., Wang, M., & Yang, S. (2015). Preparation and characterization of hydrophobic silica aerogel sphere products by co-precursor method. *Solid State Sciences*, 48, 155-162.
- Yun, Y. J., Hong, W. G., Kim, W. J., Jun, Y., & Kim, B. H. (2013). A novel method for applying reduced graphene oxide directly to electronic textiles from yarns to fabrics. *Advanced Materials*, 25(40), 5701-5705.
- Yücel, M., ve Ekmekçiler, Ü. S. (2008). Çevre dostu ürün kavramına bütünsel yaklaşım; temiz üretim sistemi, eko-etiket, yeşil pazarlama. *Elektronik Sosyal Bilimler Dergisi*, 7(26), 320-333.
- Zaghdoudi, R., Bouhekima, B., Djilani, C., Djazi, F., Lallam, A., Modarressi, A., & Rogalski, M. (2015). Kayısı çekirdeği ve ticari aktif karbondan hazırlanan aktif karbon üzerine boyaların adsorpsiyonu. *Tayvan Dergisi*, 53, 112-121.
- Zhuo, Q., Gao, J., Peng, M., Bai, L., Deng, J., Xia, Y., ... & Sun, X. (2013). Large-scale synthesis of graphene by the reduction of graphene oxide at room temperature using metal nanoparticles as catalyst. *Carbon*, 52, 559-564.