



T.C.
KONYA TEKNİK ÜNİVERSİTESİ
LİSANSÜSTÜ EĞİTİM ENSTİTÜSÜ



SİLİKA ESASLI KSEROJEL VE AEROJEL
KOMPOZİTLERİN HAZIRLANMASI VE
KARAKTERİZASYONU

Gülcihan GÜZEL KAYA

DOKTORA TEZİ

Kimya Mühendisliği Anabilim Dalı

Aralık-2020
KONYA
Her Hakkı Saklıdır

TEZ KABUL VE ONAYI

Gülcihan Güzel Kaya tarafından hazırlanan “Silika Esaslı Kserojel ve Aerojel Kompozitlerin Hazırlanması ve Karakterizasyonu” adlı tez çalışması 17/12/2020 tarihinde aşağıdaki jüri tarafından oy birliği / ~~oy çokluğu~~ ile Konya Teknik Üniversitesi Lisansüstü Eğitim Enstitüsü Kimya Mühendisliği Anabilim Dalı’nda DOKTORA TEZİ olarak kabul edilmiştir.

Jüri Üyeleri

İmza

Başkan

Prof. Dr. Metin GÜRÜ

.....

Danışman

Prof. Dr. Hüseyin DEVECİ

.....

Üye

Prof. Dr. Mustafa TABAKCI

.....

Üye

Prof. Dr. Yakup KAR

.....

Üye

Prof. Dr. Gülnare AHMETLİ

.....

Yukarıdaki sonucu onaylarım.

Prof. Dr. Saadettin Erhan KESEN
FBE Müdürü

Bu tez çalışması ÖYP tarafından 2016-ÖYP-071 nolu proje, TÜBİTAK tarafından 2211-E Doğrudan Yurt İçi Doktora Burs Programı ve 2214-A Yurt Dışı Doktora Sırası Araştırma Burs Programı ile desteklenmiştir.

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.

İmza 

Gülcihan GÜZEL KAYA

Tarih: 17/12/2020

ÖZET

DOKTORA TEZİ

SİLİKA ESASLI KSEROJEL VE AEROJEL KOMPOZİTLERİN HAZIRLANMASI VE KARAKTERİZASYONU

Gülcihan GÜZEL KAYA

Konya Teknik Üniversitesi
Lisansüstü Eğitim Enstitüsü
Kimya Mühendisliği Anabilim Dalı

Danışman: Prof. Dr. Hüseyin DEVECİ

2020, 117 Sayfa

Jüri

Prof. Dr. Hüseyin DEVECİ
Prof. Dr. Metin GÜRÜ
Prof. Dr. Mustafa TABAKCI
Prof. Dr. Yakup KAR
Prof. Dr. Gülnare AHMETLİ

Bu tez çalışmasında TEOS, volkanik tüf ve yerfıstığı kabuğu külünden sol-jel yöntemi ile silika kserojel ve aerogeller sentezlenmiştir. Malzemelerin çeşitli özellikleri XRD, FTIR, FESEM, N₂ adsorpsiyon-desorpsiyon izotermi, TGA, termal iletkenlik, yoğunluk ve temas açısı ölçümleri ile incelenmiştir. Silika aerogellerin silika kserojeller ile karşılaştırıldığında daha yüksek yüzey alanı, gözenek hacmi, termal dayanım ve daha düşük yoğunluk ve termal iletkenlik gösterdiği belirlenmiştir. PEG ve karbon siyahının malzemelerin özellikleri üzerindeki etkisini araştırmak amacıyla silika kserojel ve aerogel kompozitleri hazırlanmıştır. PEG ve karbon siyahı ilavesinin malzemelerin özellikle gözenek yapısına olumlu etkileri olmuştur. Ardından TMCS ile yapılan yüzey modifikasyonu sonucu malzemelerin hidrofilik yapısının hidrofobik hale dönüştüğü gözlemlenmiştir.

Elde edilen malzemeler arasında oldukça ucuz bir malzeme olan volkanik tüften atmosfer basıncında kurutma sonucu düşük bir maliyetle sentezlenen silika kserojeller (yüzey alanı: 195 m²/g ve yoğunluk: 0,037 g/cm³) MB adsorpsiyonunda adsorbent olarak değerlendirilmiştir. Taguchi optimizasyon yönteminin kullanıldığı bu proseste optimum deney koşullarında (zaman: 60 dakika, derişim: 20 mg/L, adsorbent miktarı: 0,0016 g/mL, sıcaklık: 40°C ve pH: 5) maksimum MB giderimi ve adsorpsiyon kapasitesi sırasıyla %96,18 ve 51,967 mg/g olarak belirlenmiştir. 5 kez yapılan adsorpsiyon-desorpsiyon döngüsü sonucunda silika kserojelin MB adsorpsiyonu için hâlâ %70 verimle kullanılabilirdiği görülmüştür.

Volkanik tüften sentezlenen silika kserojellerin antibakteriyel aktivite uygulamalarında taşıyıcı malzeme olarak kullanılabilirliği de araştırılmıştır. Farklı derişimlerdeki ε-poli-l-lizin kaplı linezolid yüklü silika kserojellerin *E. coli* bakterisine (Gram-negatif) karşı gösterdiği aktivite yayma plak metodu ile incelenmiştir. Silika kserojel ve linezolidin (Gram-pozitif bakteriler için etkili) tek başına antibakteriyel aktivite göstermediği, ancak ε-poli-l-lizin kaplı linezolid yüklü silika kserojellerin 0,220 µg/mL gibi düşük derişimlerde *E. coli* oluşumunu tamamen engellediği görülmüştür. Ucuz bir malzeme olan silika kserojellerin yeni tasarlanan bu sistemlerde taşıyıcı malzeme olarak kullanımının antibakteriyel hastalıkların azaltılması için yeni antibiyotiklerin üretimi yerine hazırda var olan antibiyotiklerin spektrumunun genişletilmesinde avantaj sağlayacağı düşünülmektedir.

Anahtar Kelimeler: Aerogel, Kserojel, Kompozitler, Silika temelli gözenekli malzemeler, Adsorpsiyon, Antibakteriyel uygulamalar

ABSTRACT

PhD THESIS

PREPARATION AND CHARACTERIZATION OF SILICA BASED XEROGEL AND AEROGEL COMPOSITES

Gülcihan GÜZEL KAYA

Konya Technical University
Institute of Graduate Studies
Department of Chemical Engineering

Advisor: Prof. Dr. Hüseyin DEVECİ

2020, 117 Pages

Jury

Prof. Dr. Hüseyin DEVECİ
Prof. Dr. Metin GÜRÜ
Prof. Dr. Mustafa TABAKCI
Prof. Dr. Yakup KAR
Prof. Dr. Gülnare AHMETLİ

Silica xerogels and aerogels were synthesized from TEOS, volcanic tuff and groundnut hull ash by sol-gel method in this study. Various properties of the materials were investigated with XRD, FTIR, FESEM, N₂ adsorption-desorption isotherms, TGA, thermal conductivity, density and contact angle measurements. When compared to silica xerogels, it was specified that silica aerogels had higher surface area, pore volume, thermal stability, and lower density and thermal conductivity. To examine effects of PEG and carbon black addition on the properties of the materials, silica xerogel and aerogel composites were prepared. The addition of PEG and carbon black has synergistic effects on the properties of the materials especially their porous structure. Additionally, hydrophilic structure of the materials was converted to hydrophobic structure through surface modification of the materials using TMCS.

Among the materials, silica xerogels obtained from low-cost volcanic tuff under ambient pressure drying (surface area: 195 m²/g and density: 0.037 g/cm³) were evaluated as an adsorbent for MB adsorption. In this process in which Taguchi optimization method was used, maximum MB removal and adsorption capacity was determined as 96.18% and 51.967 mg/g, respectively at optimum experimental conditions (time: 60 min, concentration: 20 mg/L, adsorbent dose: 0.0016 g/mL, temperature: 40°C ve pH: 5). After 5 adsorption-desorption cycle, it was observed that silica xerogel could be used with efficiency of 70% for MB adsorption.

And also, utilization of silica xerogels synthesized from volcanic tuff as carrier materials for antibacterial applications was examined. Antibacterial activity of ϵ -poly-L-lysine capped linezolid loaded silica xerogels against *E. coli* (Gram-negative) was investigated by spread plate method at different concentrations. It was seen that silica xerogel and linezolid had no antibacterial activity separately; however, ϵ -poly-L-lysine capped linezolid loaded silica xerogels with the concentration of as low as 0.220 μ g/mL inhibited *E. coli* growth. It is thought that usage of low-cost silica xerogels as carrier material in this new designed systems will provide advantage to extend the spectrum of existing antibiotics instead production of new antibiotics for decreasing bacterial diseases.

Keywords: Aerogel, Xerogels, Composites, Porous silica based materials, Adsorption, Antibacterial Applications

ÖNSÖZ

Bilgi ve tecrübesiyle doktora öğrenimim boyunca beni yönlendiren, destek ve yardımlarıyla akademik hayatımın temellerini oluşturmamda önemli yeri olan değerli danışmanım Prof. Dr. Hüseyin DEVECİ'ye teşekkürlerimi sunarım.

Tez izleme komitesinde yer alarak tez çalışmalarım boyunca laboratuvar imkânlarını, bilgi ve tecrübelerini paylaşan değerli hocalarım Prof. Dr. Metin GÜRÜ ve Prof. Dr. Mustafa TABAKCI'ya teşekkürlerimi borç bilirim.

Tez çalışmalarımda yardımlarını esirgemeyen ve ortak birçok çalışma yürüttüğümüz değerli arkadaşım Elif YILMAZ'a teşekkür ederim.

Tez çalışmalarımın bir kısmını yürütmem için laboratuvar imkânlarını sunan Prof. Dr. Ramón MARTÍNEZ-MÁNEZ, Dr. Elena AZNAR ve The Interuniversity Research Institute for Molecular Recognition and Technological Development (Valencia, İspanya) ekibine teşekkür ederim.

2211-E Doğrudan Yurt İçi Doktora Burs Programı ve 2214-A Yurt Dışı Doktora Sırası Araştırma Burs Programı kapsamında doktora öğrenimimi destekleyen TÜBİTAK'a ve 2016-ÖYP-071 numaralı proje ile desteklerinden dolayı Konya Teknik Üniversitesi ÖYP Koordinatörlüğüne teşekkür ederim.

En özel teşekkürlerimi sevgili ailem Gülsüm GÜZEL, Ramazan GÜZEL, Neslihan GÜZEL, Kardelen GÜZEL ve İsmail Cihan KAYA'ya sunarım.

Gülcihan GÜZEL KAYA
KONYA-2020

İÇİNDEKİLER

ÖZET	iv
ABSTRACT.....	v
ÖNSÖZ	vi
İÇİNDEKİLER	vii
SİMGELER VE KISALTMALAR	ix
ŞEKİL LİSTESİ.....	x
ÇİZELGE LİSTESİ.....	xiii
1. GİRİŞ	1
2. SİLİKA JELLER.....	4
2.1. Silika Aerojellerin Sentezi	4
2.1.1. Silika jelinin oluşumu	5
2.1.2. Yaşlandırma	6
2.1.3. Kurutma	6
2.2. Silika Jellerin Yüzey Modifikasyonu	8
2.3. Silika Jel Kompozitler	9
2.4. Silika Aerojellerin Kullanım Alanları.....	10
2.4.1. Adsorpsiyon	12
2.4.2. Antibakteriyel uygulamalar	16
3. KAYNAK ARAŞTIRMASI	21
4. MATERYAL VE YÖNTEM.....	28
4.1. Kullanılan Başlangıç Malzemeleri ve Kimyasallar	28
4.2. TEOS Kullanımı ile Silika Aerojel/Kserojel ve Kompozitlerinin Sentezi	30
4.3. Volkanik Tüften Silika Aerojel/Kserojel ve Kompozitlerinin Sentezi	31
4.4. YFK Külünden Silika Aerojel/Kserojel ve Kompozitlerinin Sentezi.....	32
4.5. Silika Aerojel/Kserojel ve Kompozitlerinin Karakterizasyonu	33
4.5.1. XRD analizi	33
4.5.2. FTIR analizi	33
4.5.3. FESEM analizi	33
4.5.4. N ₂ adsorpsiyon-desorpsiyon ölçümü	33
4.5.5. TGA analizi.....	34
4.5.6. Termal iletkenlik ölçümü.....	34
4.5.7. Yoğunluk ölçümü	34
4.5.8. Temas açısı ölçümü	34
4.6. Adsorpsiyon/Desorpsiyon Deneyleri	34
4.7. Optimizasyon Çalışmaları.....	36
4.8. Antibiyotik Yüklü Silika Kserojel Sentezi ve Antibakteriyel Aktivite Testleri .	38

5. SONUÇLAR VE TARTIŞMA	41
5.1. TEOS Kullanımı ile Sentezlenen Silika Aerojel/Kserojel ve Kompozitlerinin Özellikleri	41
5.1.1. XRD analizi	41
5.1.2. FTIR analizi	43
5.1.3. FESEM analizi	45
5.1.4. N ₂ adsorpsiyon-desorpsiyon ölçümleri	48
5.1.5. TGA analizleri	52
5.1.6. Termal iletkenlik ve yoğunluk ölçümleri.....	54
5.1.7. Temas açısı ölçümleri	55
5.2. Volkanik Tüf Kullanımı ile Sentezlenen Silika Aerojel/Kserojel ve Kompozitlerinin Özellikleri	57
5.2.1. XRD analizi	57
5.2.2. FTIR analizi	58
5.2.3. FESEM analizi	60
5.2.4. N ₂ adsorpsiyon-desorpsiyon ölçümleri	62
5.2.5. TGA analizleri	64
5.2.6. Termal iletkenlik ve yoğunluk ölçümleri.....	66
5.2.7. Temas açısı ölçümleri	67
5.3. YFK Külü Kullanımı ile Sentezlenen Silika Aerojel/Kserojel ve Kompozitlerinin Özellikleri	68
5.3.1. XRD analizi	68
5.3.2. FTIR analizi	70
5.3.3. FESEM analizi	72
5.3.4. N ₂ adsorpsiyon-desorpsiyon ölçümleri	74
5.3.5. TGA analizleri	76
5.3.6. Termal iletkenlik ve yoğunluk ölçümleri.....	78
5.3.7. Temas açısı ölçümleri	79
5.4. Volkanik Tüf Kullanımı ile Sentezlenen Silika Kserojellerin MB Adsorpsiyonunda Adsorbent Olarak Kullanımı.....	82
5.4.1. Deneysel faktörlerin optimizasyonu	83
5.4.2. Adsorpsiyon izotermi	87
5.4.3. Desorpsiyon prosesi ve tekrarlanabilirliği	88
5.5. Antibakteriyel Uygulamalar	90
5.5.1. Antibiyotik yüklü silika kserojellerin özellikleri	90
5.5.2. Antibiyotik yüklü silika kserojellerin antibakteriyel aktivite testleri	93
6. SONUÇLARIN DEĞERLENDİRİLMESİ	96
KAYNAKLAR	99
ÖZGEÇMİŞ	114

SİMGELER VE KISALTMALAR

Simgeler

θ :	Temas açısı (°)
λ :	Termal iletkenlik (W/mK)
ρ :	Yoğunluk (g/cm ³)

Kısaltmalar

BET:	Brunauer-Emmett-Teller
BJH:	Barrett-Joyner-Halende
CNT:	Karbon nanotüp
CTAB:	Setil trimetil amonyum bromür
DMDMS:	Dimetildimetoksisilan
FESEM:	Alan emisyonlu taramalı elektron mikroskobu
FTIR:	Fourier dönüşümlü kızıl ötesi
HMDZ:	Heksametildisilan
ITO:	İndiyum-kalay oksit
IUPAC:	Uluslararası Temel ve Uygulamalı Kimya Birliği
KOB:	Koloni oluşturan birim
KS:	Karbon siyahı
MB:	Metilen mavisi
MİD:	Minimal inhibisyon derişimi
MTES:	Metiltrietoksisilan
MTMS:	Metiltrimetoksisilan
PBS:	Fosfat tamponlu salin çözeltisi
PEDS:	Polietoksidisiloksan
PEG:	Polietilen glikol
pH _{pzc} :	Yüzey yükünün sıfır olduğu pH değeri
PTMS:	Feniltrimetoksisilan
PVA:	Polivinil alkol
RF:	Resorsinol formaldehit
S _{BET} :	Spesifik yüzey alanı (m ² /g)
SDS:	Sodyum dodesil sülfat
S/N:	Sinyal/Gürültü
TEOS:	Tetraetilortosilikat
TGA:	Termogravimetrik analiz
TMCS:	Trimetilklorosilan
TMOS:	Tetrametilortosilikat
XRD:	X-ışını kırınımı
VTMS:	Viniltrimetoksisilan
YFK:	Yerfıstığı kabuğu

ŞEKİL LİSTESİ

Şekil 1. 1. Aerojellerin sınıflandırması.....	2
Şekil 2. 1. Silika aerojellerin sentez basamakları	4
Şekil 2. 2. Silika jelinin TMCS ile yüzey modifikasyonu	8
Şekil 2. 3. Silika aerojellerin kullanım alanları	11
Şekil 2. 4. Adsorpsiyon çeşitleri.....	13
Şekil 2. 5. Gram-pozitif ve Gram-negatif bakterilerin hücre duvarı yapısı.....	17
Şekil 4. 1. Sırasıyla volkanik tüf ve yerfıstığı kabuğu.....	28
Şekil 4. 2. TEOS kullanımı ile silika aerojel/kserojel ve kompozitlerinin sentez şeması	30
Şekil 4. 3. Volkanik tüften silika aerojel/kserojel ve kompozitlerinin sentez şeması	32
Şekil 4. 4. YFK külünden silika aerojel/kserojel ve kompozitlerinin sentez şeması.....	33
Şekil 4. 5. ε-poli-l-lizin kaplı linezolid yüklü silika kserojel sentezi	39
Şekil 4. 6. Antibakteriyel aktivite testi şematik gösterimi.....	40
Şekil 5. 1. TEOS kullanımı ile HNO ₃ katalizörü varlığında sentezlenen a) silika kserojel ve kompozitlerinin ve b) modifiye silika kserojel ve kompozitlerinin XRD desenleri..	42
Şekil 5. 2. TEOS kullanımı ile H ₂ SO ₄ katalizörü varlığında sentezlenen a) silika kserojel ve kompozitlerinin ve b) modifiye silika kserojel ve kompozitlerinin XRD desenleri..	42
Şekil 5. 3. TEOS kullanımı ile sentezlenen silika aerojel ve kompozitlerinin XRD desenleri	42
Şekil 5. 4. TEOS kullanımı ile HNO ₃ katalizörü varlığında sentezlenen a) silika kserojel ve kompozitlerinin ve b) modifiye silika kserojel ve kompozitlerinin FTIR spektrumları	43
Şekil 5. 5. TEOS kullanımı ile H ₂ SO ₄ katalizörü varlığında sentezlenen a) silika kserojel ve kompozitlerinin ve b) modifiye silika kserojel ve kompozitlerinin FTIR spektrumları	44
Şekil 5. 6. TEOS kullanımı ile sentezlenen silika aerojel ve kompozitlerinin FTIR spektrumları	45
Şekil 5. 7. TEOS kullanımı ile HNO ₃ katalizörü varlığında sentezlenen a) silika kserojel, b) PEG/silika kserojel, c) KS/silika kserojel kompozitlerinin, d) mod. silika kserojel, e) mod. PEG/silika kserojel ve f) mod. KS/silika kserojel kompozitlerinin FESEM görüntüleri.....	46
Şekil 5. 8. TEOS kullanımı ile H ₂ SO ₄ katalizörü varlığında sentezlenen a) silika kserojel, b) PEG/silika kserojel, c) KS/silika kserojel kompozitlerinin, d) mod. silika kserojel, e) mod. PEG/silika kserojel ve f) mod. KS/silika kserojel kompozitlerinin FESEM görüntüleri.....	47
Şekil 5. 9. TEOS kullanımı sentezlenen a) silika aerojel, b) PEG/silika aerojel, c) KS/silika aerojel kompozitlerinin ve d) mod. silika aerojelin FESEM görüntüleri	47
Şekil 5. 10. TEOS kullanımı ile HNO ₃ katalizörü varlığında sentezlenen a) silika kserojel, b) PEG/silika kserojel ve c) KS/silika kserojel kompozitlerinin N ₂ adsorpsiyon-desorpsiyon izotermi.....	49
Şekil 5. 11. TEOS kullanımı ile H ₂ SO ₄ katalizörü varlığında sentezlenen a) silika kserojel, b) PEG/silika kserojel ve c) KS/silika kserojel kompozitlerinin N ₂ adsorpsiyon-desorpsiyon izotermi.....	50
Şekil 5. 12. TEOS kullanımı ile sentezlenen a) silika aerojel, b) PEG/silika aerojel ve c) KS/silika aerojel kompozitlerinin N ₂ adsorpsiyon-desorpsiyon izotermi	51
Şekil 5. 13. TEOS kullanımı ile HNO ₃ katalizörü varlığında sentezlenen a) silika kserojel ve kompozitlerinin ve b) modifiye kserojel ve kompozitlerinin TGA eğrileri.....	52
Şekil 5. 14. TEOS kullanımı ile sentezlenen silika aerojel ve kompozitlerinin TGA eğrileri.....	53

Şekil 5. 15. TEOS kullanımı ile HNO_3 katalizörü varlığında sentezlenen a) silika kserojel, b) PEG/silika kserojel, c) KS/silika kserojel kompozitlerinin ve d) modifiye silika kserojelin temas açısı görüntüleri	56
Şekil 5. 16. TEOS kullanımı ile sentezlenen a) silika aerogel ve b) modifiye silika aerogelin temas açısı görüntüleri	57
Şekil 5. 17. Volkanik tüf kullanımı ile sentezlenen a) silika kserojel ve kompozitlerinin ve b) modifiye silika kserojelin XRD desenleri	57
Şekil 5. 18. Volkanik tüf kullanımı ile sentezlenen silika aerogel ve kompozitlerinin XRD desenleri	58
Şekil 5. 19. Volkanik tüf kullanımı ile sentezlenen silika kserojel ve kompozitlerinin FTIR spektrumları.....	59
Şekil 5. 20. Volkanik tüf kullanımı ile sentezlenen silika aerogel ve kompozitlerinin FTIR spektrumları	60
Şekil 5. 21. Volkanik tüf kullanımı ile sentezlenen a) silika kserojel, b) PEG/silika kserojel ve c) KS/silika kserojel kompozitlerinin FESEM görüntüleri	61
Şekil 5. 22. Volkanik tüf kullanımı ile sentezlenen a) silika aerogel, b) PEG/silika aerogel, c) KS/silika aerogel kompozitlerinin ve d) modifiye silika aerogelin FESEM görüntüleri	61
Şekil 5. 23. Volkanik tüf kullanımı ile sentezlenen a) silika kserojel, b) PEG/silika kserojel ve c) KS/silika kserojel kompozitlerinin N_2 adsorpsiyon-desorpsiyon izotermi	62
Şekil 5. 24. Volkanik tüf kullanımı ile sentezlenen a) silika aerogel, b) PEG/silika aerogel ve c) KS/silika aerogel kompozitlerinin N_2 adsorpsiyon-desorpsiyon izotermi.....	64
Şekil 5. 25. Volkanik tüf kullanımı ile sentezlenen silika kserojel ve kompozitlerinin TGA eğrileri.....	65
Şekil 5. 26. Volkanik tüf kullanımı ile sentezlenen silika aerogel ve kompozitlerinin TGA eğrileri.....	66
Şekil 5. 27. Volkanik tüf kullanımı ile sentezlenen silika kserojelin temas açısı görüntüsü	68
Şekil 5. 28. Volkanik tüf kullanımı ile sentezlenen a) silika aerogel ve b) modifiye silika aerogelin temas açısı görüntüleri	68
Şekil 5. 29. YFK külü kullanımı ile sentezlenen a) silika kserojel ve kompozitlerinin ve b) modifiye silika kserojelin XRD desenleri	69
Şekil 5. 30. YFK külü kullanımı ile sentezlenen silika aerogel ve kompozitlerinin XRD desenleri	70
Şekil 5. 31. YFK külü kullanımı ile sentezlenen silika kserojel ve kompozitlerinin FTIR spektrumları	71
Şekil 5. 32. YFK külü kullanımı ile sentezlenen silika aerogel ve kompozitlerinin FTIR spektrumları	72
Şekil 5. 33. YFK külü kullanımı ile sentezlenen a) silika kserojel, b) PEG/silika kserojel ve c) KS/silika kserojel kompozitlerinin FESEM görüntüleri.....	73
Şekil 5. 34. YFK külü kullanımı ile sentezlenen a) silika aerogel, b) PEG/silika aerogel, c) KS/silika aerogel kompozitlerinin ve d) modifiye silika aerogelin FESEM görüntüleri	73
Şekil 5. 35. YFK külü kullanımı ile sentezlenen a) silika kserojel, b) PEG/silika kserojel ve c) KS/silika kserojel kompozitlerinin N_2 adsorpsiyon-desorpsiyon izotermi.....	74
Şekil 5. 36. YFK külü kullanımı ile sentezlenen a) silika aerogel, b) PEG/silika aerogel ve c) KS/silika aerogel kompozitlerinin N_2 adsorpsiyon-desorpsiyon izotermi	76
Şekil 5. 37. YFK külü kullanımı ile sentezlenen silika kserojel ve kompozitlerinin TGA eğrileri.....	77

Şekil 5. 38. YFK külü kullanımı ile sentezlenen silika aerjel ve kompozitlerinin TGA eğrileri.....	77
Şekil 5. 39. YFK külü kullanımı ile sentezlenen silika kserojelin temas açısı görüntüsü	79
Şekil 5. 40. YFK külü kullanımı ile sentezlenen a) silika aerjel ve b) modifiye silika aerjelin temas açısı görüntüleri	80
Şekil 5. 41. Deneysel faktörlerin S/N oranı üzerindeki etkisi a) zaman, b) derişim, c) adsorbent miktarı, d) sıcaklık ve e) pH.....	85
Şekil 5. 42. Optimum şartlardaki MB adsorpsiyonu izotermi.....	87
Şekil 5. 43. HCl çözeltisi derişimine ve zamana bağı desorpsiyon verimi	89
Şekil 5. 44. 5 kez aynı adsorbentin kullanımı sonucu MB giderim verimi	89
Şekil 5. 45. S1 ve S2 malzemelerinin XRD desenleri ve b) S0, S1 ve S2 malzemelerinin FTIR spektrumları.....	90
Şekil 5. 46. S0, S1 ve S2 malzemelerinin zeta potansiyeli.....	91
Şekil 5. 47. S0, S1 ve S2 malzemelerinin partikül boyutu dağılımı	92
Şekil 5. 48. S1 ve S2 malzemelerinin antibakteriyel aktivitesi	93
Şekil 5. 49. S2 malzemesinin a) ϵ -poli-l-lizinin ve b) linezolid derişimine bağı antibakteriyel aktivitesi.....	94
Şekil 5. 50. Yayma plak metodu sonuçları a) kontrol, b) ϵ -poli-l-lizin ve c) S2	95

ÇİZELGE LİSTESİ

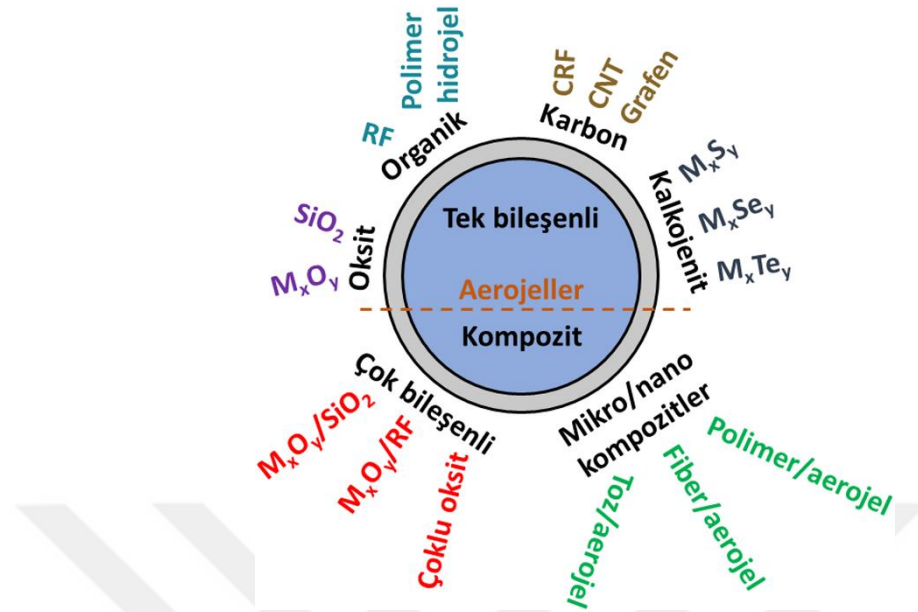
Çizelge 4. 1. MB adsorpsiyonu için seçilen deney faktörleri ve seviyeleri.....	36
Çizelge 4. 2. L ₁₆ dizilimine göre belirlenen deney koşulları	36
Çizelge 5. 1. HNO ₃ katalizörü varlığında sentezlenen silika kserojel ve kompozitlerinin yüzey alanları ve gözenek yapısı özellikleri	49
Çizelge 5. 2. H ₂ SO ₄ katalizörü varlığında sentezlenen silika kserojel ve kompozitlerinin yüzey alanları ve gözenek yapısı özellikleri	50
Çizelge 5. 3. TEOS kullanımı ile sentezlenen silika arojel ve kompozitlerinin yüzey alanları ve gözenek yapısı özellikleri.....	51
Çizelge 5. 4. HNO ₃ katalizörü varlığında sentezlenen silika kserojel ve kompozitlerinin yoğunluk ve termal iletkenlik değerleri	54
Çizelge 5. 5. TEOS kullanımı ile sentezlenen silika arojel ve kompozitlerinin yoğunluk ve termal iletkenlik değerleri	55
Çizelge 5. 6. Volkanik tüf kullanımı ile sentezlenen silika kserojel ve kompozitlerinin yüzey alanları ve gözenek yapısı özellikleri	63
Çizelge 5. 7. Volkanik tüf kullanımı ile sentezlenen silika arojel ve kompozitlerinin yüzey alanları ve gözenek yapısı özellikleri	64
Çizelge 5. 8. Volkanik tüf kullanımı ile sentezlenen silika kserojel ve kompozitlerinin yoğunluk ve termal iletkenlik değerleri	66
Çizelge 5. 9. Volkanik tüf kullanımı ile sentezlenen silika arojel ve kompozitlerinin yoğunluk ve termal iletkenlik değerleri	67
Çizelge 5. 10. YFK külü kullanımı ile sentezlenen silika kserojel ve kompozitlerinin yüzey alanları ve gözenek yapısı özellikleri	75
Çizelge 5. 11. YFK külü kullanımı ile sentezlenen silika arojel ve kompozitlerinin yüzey alanları ve gözenek yapısı özellikleri.....	75
Çizelge 5. 12. YFK külü kullanımı ile sentezlenen silika kserojel ve kompozitlerinin yoğunluk ve termal iletkenlik değerleri	78
Çizelge 5. 13. YFK külü kullanımı ile sentezlenen silika arojel ve kompozitlerinin yoğunluk ve termal iletkenlik değerleri	79
Çizelge 5. 14. TEOS, volkanik tüf ve YFK külü kullanımı ile sentezlenen silika kserojel/aerojellerin ve kompozitlerinin özelliklerinin literatür çalışmalarıyla karşılaştırılması.....	81
Çizelge 5. 15. L ₁₆ dizilimine göre belirlenen koşullarda elde edilen R ve S/N değerleri	83
Çizelge 5. 16. L ₁₆ dizilimine göre belirlenen koşullarda elde edilen (M) Faktör ^{Seviye} değerleri	84
Çizelge 5. 17. Her bir faktörün kth seviyesindeki ortalama değerleri (REkA, REkB, REkC, REkD, REkE) ve ortalama R değeri (RET)	86
Çizelge 5. 18. Her bir faktörün katkı yüzdesi.....	86
Çizelge 5. 19. Langmuir ve Freundlich izoterm sabitleri	87
Çizelge 5. 20. Literatür çalışmaları	88
Çizelge 5. 21. S0, S1 ve S2 malzemelerindeki organik madde miktarı	92
Çizelge 5. 22. S2, serbest linezolid ve ε-poli-l-lizinin MİD değerleri.....	94

1. GİRİŞ

Günümüzde teknolojinin ilerlemesiyle birlikte gözenekli malzemelerin birçok alanda farklı amaçlarla kullanımı önem kazanmaktadır. Gözenekli malzemelerin çeşitli yöntemlerle kolay sentezlenebilmesi, gözenek boyutu ve morfolojik özelliklerinin kontrol edilebilmesi ve yüksek gözenekliliğe sahip olması bu malzemelerin kataliz, ayırma ve adsorpsiyon, enerji dönüşümü/depolama ve sağlık uygulamalarında kullanımını her geçen gün yaygınlaştırmaktadır (Li ve ark., 2012; Sun ve ark., 2016; Yuan ve ark., 2019). Gözenekli malzemeler genellikle yüzey aktif maddelerin, polimerlerin, kolloidal kristallerin vb. kullanımı ile şablon oluşturularak, emülsiyon şablonlama, zeolitleştirme, seçimli özütleme ve sol-jel yöntemleri ile sentezlenmektedir (Yang ve ark., 2017). Gözenekli malzemeler, gözenek boyutuna göre mikrogözenekli (<2 nm), mezogözenekli (2-50 nm) ve makrogözenekli malzemeler olarak sınıflandırılmaktadır. Gözenek tipi dikkate alındığında ise açık ve kapalı gözenekli malzemeler olarak iki sınıfa ayrılmaktadır (Feinle ve ark., 2016).

Aerojeller, jel içerisindeki sıvının hava ile yer değiştirmesi sonucu elde edilen üç boyutlu yapısıyla farklı özelliklerde gözeneklere sahip olan malzemelerden birisidir. Kontrol edilebilen gözenek yapısı, düşük yoğunluk, yüksek termal kararlılık, düşük elektriksel iletkenlik, oldukça yüksek ısı ve ses yalıtımı gibi özellikleriyle aerojeller son yıllarda önem kazanmıştır. Aerojeller görünüşüne, kurutma metoduna ya da gözenek boyutuna göre sınıflandırılabilmesine rağmen çoğu zaman bileşenlerine göre sınıflandırılmaktadır (Aravind ve ark., 2010). Şekil 1.1’de de gösterildiği gibi aerojeller tek bileşenli ve kompozit olmak üzere iki sınıfa ayrılmaktadır. Metal-oksijen bağları içeren oksit temelli malzemeler, aerojellerin en geniş kısmını oluşturmaktadır. Çeşitli metal oksitlerin kullanımı ile Al_2O_3 , TiO_2 , ZrO_2 ve Nb_2O_5 gibi birçok oksit temelli aerojel sol-jel yöntemi ile sentezlenmektedir. Reçine ve selüloz temelli aerojeller, organik aerojeller sınıfında yer almaktadır. İlk reçine temelli aerojel, resorsinol formaldehitin Na_2CO_3 katalizörü varlığında polikondenzasyonu sonucu (RF aerojel) elde edilmiştir. Selülozdan sentezlenen aerojeller ise elde edilen ilk organik aerojel olarak kabul edilmektedir. RF aerojelin karbonizasyonu (CRF) ile ilk karbon aerojeller elde edilmiştir. Karbon nanotüp (CNT) ve grafen aerojeller de yaygın kullanılan karbon aerojeller arasında yer almaktadır (Aliev ve ark., 2009; Worsley ve ark., 2010). Tek bileşenli aerojellerin kalan kısmını da kalkojenit aerojeller oluşturmaktadır. $CuO-NiO$, indiyum-kalay oksit (ITO), metal oksit/karbon ve metal/karbon gibi kompozit aerojeller ise son

yıllarda birçok alanda farklı amaçlarla kullanılmaktadır (Ai ve ark., 2011).



Şekil 1. 1. Aerojellerin sınıflandırması

Oksit temelli tek bileşenli aerojeller sınıfında bulunan silika aerojeller, yüksek yüzey alanı ve gözeneklilik, düşük yoğunluk, düşük termal iletkenlik katsayısı ve dielektrik sabiti, düşük kırınım indisi gibi özellikleriyle dikkat çekmektedir (Aravind ve ark., 2010). Bu özellikleri sayesinde silika aerojellerin binalarda ses ve yalıtım malzemesi, katalizör desteği, kapasitör ve sensör bileşeni, adsorpsiyon uygulamalarında adsorbent, ilaç salınım sistemlerinde taşıyıcı olarak kullanımı hızla artmaktadır (Hrubesh, 1998; Teruel ve ark., 2018). Silika aerojeller sol-jel yöntemi kullanılarak sentezlenmektedir. İlk aşamada, genellikle tetraetilortosilikat (TEOS), tetrametilortosilikat (TMOS), polietoksidisiloksan (PEDS) vb. metal alkoksitlerden sol hazırlanmakta ve katalizör ilavesiyle jelleşme sağlanmaktadır (Soleimani Dorcheh ve Abbasi, 2008). Ardından düşük buhar basıncına sahip çözücüler kullanılarak yaşlandırma işlemiyle jelin mukavemeti artırılmaktadır. Son olarak farklı kurutma yöntemleriyle, elde edilen alkojeller kurutulmaktadır. Jeller süperkritik kurutma sonucu aerojel, atmosfer basıncında kurutma sonucu kserojel ve dondurarak kurutma sonucu kriyojel olarak adlandırılmaktadır (Quintanar-Guerrero, 2009).

Son zamanlarda silika aerojellerin sentezinde pahalı başlangıç malzemeleri yerine yüksek oranda SiO_2 içeren inorganik malzemeler ya da organik atıklar tercih edilmektedir. Literatüre bakıldığında uçucu kül, kaolin, pirinç kabuğu, selüloz, buğday

niřastası, řeker kamıřı kűspesi ve mısır koçanı gibi malzemelerden dűřűk maliyetli aerojeller ve kserojeller elde edilmiřtir (Li ve Wang, 2008; Shi ve ark., 2010; Nazriati ve ark., 2014; Fu ve ark., 2016; Hu ve ark., 2016; Ubeyitogullari ve Ciftci, 2016; Guzel Kaya ve ark., 2018). Ayrıca silika aerojellerin kurutulmasında kullanılan sűperkritik řartlar avantajlarının yanı sıra hem yűksek maliyet hem de risk teřkil etmektedir. Çoęu çűzűcűnűn sűperkritik akıřkan hale gelmesi için yűksek basınç ve sıcaklık gerekmektedir. Bu durum da silika aerojellerin kullanım alanını kısıtlamaktadır (Shi ve ark., 2006). Bu nedenle daha ucuz ve herhangi bir tehlike oluřturmayan atmosfer basıncında kurutma yapılarak sentezlenen silika kserojeller daha popűler hale gelmiřtir.



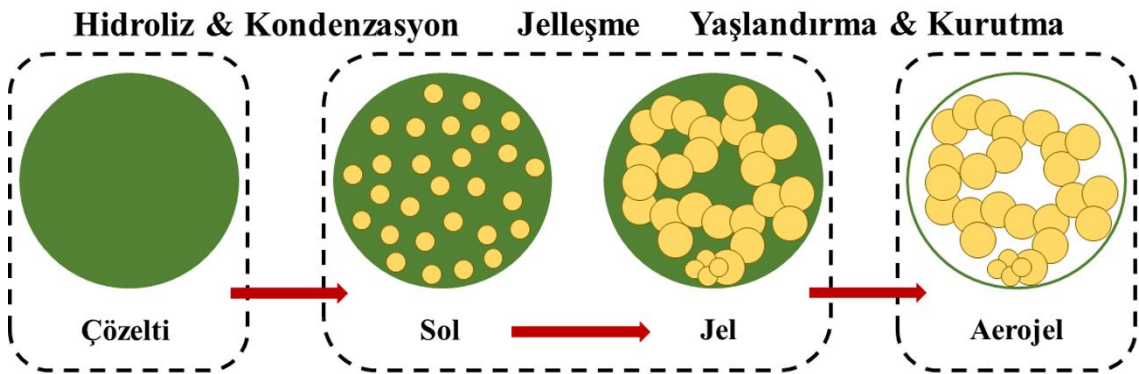
2. SİLİKA JELLER

Silika aerogeller, yaklaşık %90-99 oranında gözenekliliğe sahip nano boyutta malzemeler olarak bilinmektedir (Hu ve ark., 2016). Silika aerogellerin gözenek boyutunun ayarlanabilmesi, yüksek yüzey alanı ($500-1200 \text{ m}^2/\text{g}$), düşük yoğunluk ($\sim 0,003-0,1 \text{ g/cm}^3$), düşük termal iletkenlik ($0,013-0,04 \text{ W/mK}$) ve dielektrik sabiti (1,1-2), görünür ışıktaki oldukça yüksek optik geçirgenlik ($\sim 99\%$) ve ses yalıtımı gibi özellikleri bu malzemeleri birçok bilimsel ve teknolojik uygulamada eşsiz kılmaktadır (Ge ve ark., 2009; Du ve ark., 2013). Avantajlarının yanı sıra silika aerogellerin kırılgenlikleri, nem tutma özelliği ve uzun süreli uygulamalarda kararsız olmaları bu malzemelerin kullanımını kısıtlayabilmektedir (Al-Oweini ve El-Rassy, 2009). Silika aerogellerin bu dezavantajları, yüzey modifikasyonu, ısıtma işlemi ya da çeşitli dolgu maddelerinin ilavesiyle kompozit yapıların hazırlanması gibi çeşitli yöntemlerle giderilebilmektedir (Shi ve ark., 2007; Kartal ve Erkey, 2010; Kim ve ark., 2015).

Monolit, toz, fiber veya film gibi farklı formlarda bulunan silika aerogeller, üstün özellikleri sayesinde oldukça geniş bir uygulama alanına sahiptir. İnşaat, otomotiv ve havacılık sektörü, enerji dönüşümü ve depolama, kataliz, sıvı/gaz adsorpsiyonu, zararlı mikroorganizmaların tespiti ve ilaç salınımı gibi birçok uygulamada silika aerogellerin farklı amaçlarla kullanıldığı görülmektedir (Akimov, 2003; Baetens ve ark., 2011).

2.1. Silika Aerogellerin Sentezi

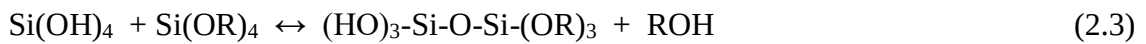
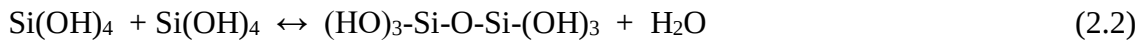
Silika aerogeller genellikle sol-jel metodu kullanılarak sentezlenmektedir. Sentez işlemi Şekil 2.1’de de görüldüğü gibi hidroliz ve kondenzasyon reaksiyonları sonucu silika jelinin oluşumunu, yaşlandırma ve kurutma işlemlerinin takip ettiği üç basamaktan oluşmaktadır (Ubeyitogullari ve Ciftci, 2016).



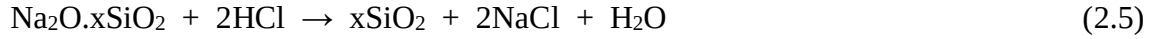
Şekil 2. 1. Silika aerogellerin sentez basamakları

2.1.1. Silika jelinin oluşumu

Sentez işlemi uygun bir çözücü (alkol, aseton, dioksan, tetrahidrofuran vb.) içerisinde TEOS, TMOS, PEDS, metiltrimetoksisilan (MTMS) ve metiltrietoksisilan (MTES) gibi silikon alkoksitlerin hidroliziyle başlamaktadır (Soleimani Dorcheh ve Abbasi, 2008). Asit, baz veya asit-baz ikili katalizörü varlığında meydana gelen reaksiyon sonucu Eşitlik 2.1’de gösterildiği gibi silanol grupları (Si-OH) oluşmaktadır. Hidroliz işlemi, asidik ortamda alkoksit grubundaki oksijen atomu üzerinden gerçekleşen elektrofilik yer değiştirme reaksiyonlarıyla, bazik ortamda ise Si^{4+} iyonunda oluşan nükleofilik ataklarla yürütülmektedir (Gurav ve ark., 2010). Ardından Eşitlik 2.2 ve 2.3’te gösterilen su ve alkol kondenzasyonu reaksiyonlarıyla jelleşme meydana gelmektedir. Hidroliz reaksiyonu devam ederken kondenzasyon reaksiyonlarının başlaması, Si-OH molekülleri arasında ya da Si-OH ve Si-OR grupları arasındaki etkileşimle birlikte Si-O-Si yapısının oluşumunu sağlamaktadır (Buckley ve Greenblatt, 1994). Asit katalizörü varlığında genellikle rastgele dallanmış silika jelinin oluştuğu gözlenirken, baz katalizörü varlığında homojen dağılımlı ve daha büyük gözeneklerden oluşan bir yapının oluşumu gözlenmektedir (Baetens ve ark., 2011). Kullanılan katalizörlerin yapısının yanı sıra katalizörün konsantrasyonu, başlangıç maddesinin aktivitesi, su/alkoksit mol oranı, çözeltinin pH değeri ve sıcaklık gibi faktörler de silika jelinin yapısını önemli ölçüde etkilemektedir (Aegerter ve ark., 2011).



Silikon alkoksitlerin pahalı ve zararlı olması, silika aerojellerin sentezi için SiO_2 içeriği yüksek endüstriyel yan ürünlerin, killerin, tarımsal ve organik atıkların başlangıç maddesi olarak kullanımına ilgiyi arttırmıştır (Nazriati ve ark., 2014). Bu tip başlangıç maddelerinden genellikle NaOH gibi bazik çözeltilerle gerçekleştirilen ekstraksiyon işlemi sonucunda Eşitlik 2.4’te de gösterildiği gibi sodyum silikat ($\text{Na}_2\text{O} \cdot x\text{SiO}_2$) çözeltisi elde edilmektedir. HCl gibi asidik bir çözeltinin ilavesiyle Eşitlik 2.5’te belirtilen reaksiyonla jelleşme başlamaktadır (Shi ve ark., 2010). Reaksiyon sonucu oluşan Na^+ iyonları yüzey gerilimini arttırdığı için elde edilen silika jelinin gözenek yapısını olumsuz yönde etkilemektedir. Bu nedenle su ile yıkama ya da iyon değiştirici reçinelerin kullanımı ile Na^+ iyonlarının uzaklaştırılması silika jelinin sentezinde önemli rol oynamaktadır (Hu ve ark., 2016).



2.1.2. Yaşlandırma

Jelleşmenin başlamasıyla birlikte silika ağ yapısının oluşumu devam ettiği için yaşlandırma basamağında jeldeki bağların kuvvetlendirilmesi amaçlanmaktadır. Bu aşamada jelin yapısını etkileyen iki farklı büyüme mekanizması ((1) partiküllerin birleşerek çökmesi ve (2) partiküllerin daha büyük çökelti üzerine eklenmesi) gerçekleşmektedir (Smitha ve ark., 2006). Başlangıç maddesi olarak kullanılan silikon alkoksit çözeltilerinde, çeşitli alkollerde ya da su/alkol karışımlarında silika jellerinin bekletilmesiyle silika alkojeller elde edilmektedir. Kullanılan çözücünün yapısına, yaşlandırma süresine ve sıcaklığa bağlı olarak silika alkojellerde meydana gelen büzüşme, silika arojellerin sentezindeki en önemli problemlerden biridir. Bu nedenle yaşlandırma basamağında büzüşmeyi azaltmak için genellikle düşük buhar basıncına sahip çözücüler tercih edilmektedir (Iswar ve ark., 2017). Literatürde takip edilen çözücü sıralamasına göre silika arojelde yoğunluk ve büzüşmenin azaldığı, gözenekliliğin ise arttığı belirtilmektedir; hexanol, bütanol, izobütanol, propanol, etanol, metanol ve izopropanol. Çözücünün molekül yapısı (özellikle uç zincirlerin uzunluğu ve dallanması) çözücü-jel ara yüzeyindeki yüzey gerilimini önemli ölçüde etkilemektedir. Artan zincir uzunluğu, hidrofobik davranışı baskın hale getirerek su-çözücü değişim verimini azaltmaktadır. Bu nedenle izopropanol, metanol ve etanol yaşlandırma basamağında en çok kullanılan çözücülerdir (Aegerter ve ark., 2011).

Kurutma basamağından önce jelin yapısında kalan yan ürünlerin ve reaksiyona girmeyen maddelerin uzaklaştırılması amacıyla hekzan gibi çözücülerle yıkama işlemi yapılmaktadır (Vareda ve ark., 2018).

2.1.3. Kurutma

Sol-jel metodunun son basamağı olan kurutma işlemi ile silika jelinin yapısında bulunan çözücüler uzaklaştırılmaktadır. Kurutma proseslerinde kapiler etkilerden dolayı meydana gelen büzüşmeler elde edilen son ürünün birçok özelliğini önemli ölçüde etkilemektedir. Süperkritik şartlarda kurutma, atmosfer basıncında kurutma ve dondurarak kurutma gibi yöntemlerle kapiler etkilerin azaltılarak silika jelinin orijinal yapısının korunması amaçlanmaktadır (Pierre ve Pajonk, 2002).

Silika jelin süperkritik koşullar altında kurutulması sonucu elde edilen

malzemelere silika aerogel adı verilmektedir. Süperkritik kurutma sistemi, çözücünün kritik sıcaklık ve basınç üzerinde süperkritik akışkan haline getirilerek uzaklaştırılması esasına dayanmaktadır. Bu noktada sıvı-buhar sınır çizgisinin oluşumu engellenerek kapiler etkiler minimize edilmektedir. Böylece gözenekler zarar görmeden kırılabilirliği azaltılmış silika aerogeller elde edilebilmektedir. Süperkritik kurutma sistemlerinde karbon dioksit (CO₂), aseton, metanol ve etanol gibi çözücüler kullanılmaktadır. Çözücü olarak alkollerin kullanıldığı proseslerde alkollerin kritik sıcaklığının yüksek olması çözücünün uzaklaştırılmasını zorlaştırabilmektedir. Bu nedenle süperkritik kurutma sistemlerinde çözücü olarak genellikle CO₂ tercih edilmektedir (Aravind ve ark., 2010). Süperkritik kurutma sisteminin avantajlarının yanı sıra bazı dezavantajları bulunmaktadır. Yüksek basınç gerektirdiğinden dolayı riskli ve oldukça maliyetli olan süperkritik kurutma işlemi, büyük ölçekli uygulamalarda silika aerogellerin kullanımını kısıtlamaktadır (Zhou ve ark., 2008).

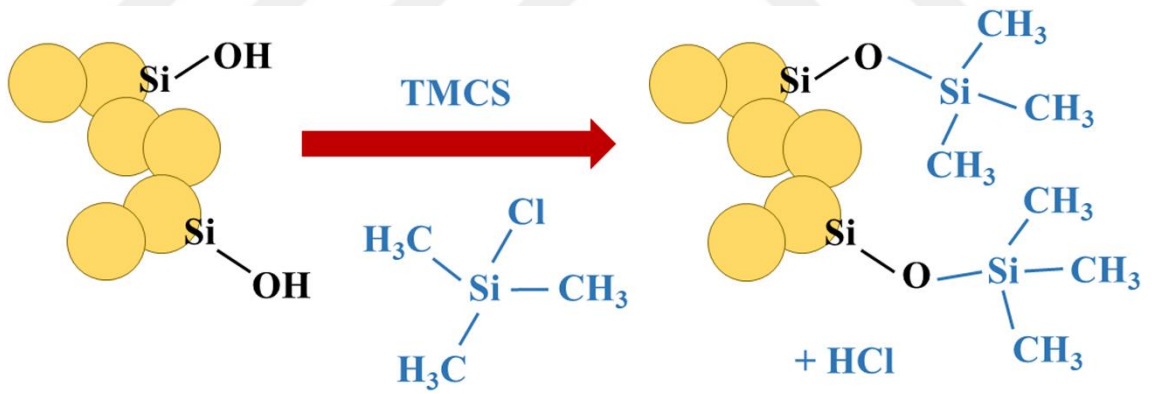
Silika jelinin atmosfer basıncında kurutulmasıyla silika kserojeller elde edilmektedir. Maliyetinin düşük olması, herhangi bir risk teşkil etmemesi ve uygulamasının kolay olmasından dolayı atmosfer basıncında kurutma son zamanlarda daha çok tercih edilmektedir. Atmosfer basıncında yapılan kurutma prosesinde jeldeki su ya da çözücü, ısı ile etkisiyle buharlaştırılmaktadır. Buharlaştıran su ya da çözücü, jelin yüzeyinden havaya difüze olarak uzaklaştırılmaktadır (Fidalgo ve Ilharco, 2005). Ancak bu yöntemde kapiler etkilerin baskın olması, daha kırılabilir silika kserojellerin sentezine neden olmaktadır. Kapiler etkiler, gözenek boyutu 20 nm'den daha küçük olan jellerde daha etkiliyken gözenek boyutu daha büyük olan jellerde etkisini kaybetmektedir. Diğer bir ifadeyle, gözenek boyutu büyük olan jeller orijinal yapısını kaybetmeden atmosfer basıncında kurutma ile kurutulabilmektedir. Bu yöntemde kapiler etkileri azaltabilmek amacıyla genellikle yüzey modifikasyonu gibi işlemler uygulanmaktadır (Soleimani Dorcheh ve Abbasi, 2008).

Basit, ekonomik ve çevre dostu bir yöntem olan dondurarak kurutma işlemiyle silika kriyojellerin sentezi gerçekleştirilmektedir. Dondurarak kurutma işlemi, (1) jeldeki sıvının dondurulması ve (2) vakum altında süblimleştirme olmak üzere iki basamaktan oluşmaktadır (Gurav ve ark., 2010). Dondurarak kurutma sisteminin en önemli avantajı, sıvı-buhar sınır çizgisinin oluşumundan kaynaklı kapiler etkilerin gözlenmemesidir. Bu yöntemde dondurma hızı önemli rol oynamaktadır. Hızlı yapılan dondurma işlemi sonucu küçük gözenek boyutu ve yüksek yüzey alanına sahip silika kriyojeller elde edilirken, yavaş dondurma hızı gözenek boyutu daha büyük malzemelerin sentezini sağlamaktadır.

Ancak bu yöntemin de düşük basınç gerektirmesi ve süblimleştirme sırasında malzemenin gözeneklerinde deformasyon oluşumu gibi bazı dezavantajları bulunmaktadır (Maleki, 2016).

2.2. Silika Jellerin Yüzey Modifikasyonu

Silika aerojellerin kırılgenliğini azaltmak, hidrofilik yapısını hidrofobik hale getirmek, nem ve korozyona karşı dayanımı arttırmak, aglomerasyonunu engellemek ve optik geçirgenlik özelliklerini geliştirmek gibi amaçlar doğrultusunda silika aerojellere yüzey modifikasyonu uygulanabilmektedir (Kartal ve Erkey, 2010; Çok ve ark., 2019). Silika aerojeller yüzeylerinde bulunan -OH gruplarından dolayı hidrofilik özellik göstermektedir. Bu nedenle yüzey modifikasyonu işlemlerinde hidrofobik fonksiyonel gruplara sahip MTMS, MTES, trimetilklorosilan (TMCS), heksametildisilan (HMDZ), viniltrimetoksisilan (VTMS), feniltrimetoksisilan (PTMS), dimetildimetoksisilan (DMDMS) vb. kullanılmaktadır (Malfait ve ark., 2015). Şekil 2.2’de de gösterildiği gibi yüzeydeki -OH gruplarında bulunan hidrojen ile modifikasyon ajanındaki fonksiyonel grupların (Si-CH₃) yer değıştirmesiyle modifikasyon tamamlanmaktadır (Cui ve ark., 2011).



Şekil 2. 2. Silika jelinin TMCS ile yüzey modifikasyonu

Modifikasyon işlemi (1) jelleşmeden önce, (2) kurutmadan önce ve (3) kurutmadan sonra olmak üzere üç farklı aşamada yapılabilmektedir (Ma ve ark., 2010). Jelleşmeden önce silika solüne modifikasyon ajanının eklenmesiyle verimli bir modifikasyon işlemi gerçekleştirilmektedir (Soleimani Dorcheh ve Abbasi, 2008). Özellikle atmosfer basıncında kurutma yapılmadan önce kapiler etkileri azaltmak amacıyla silika alkojellere modifikasyon işlemi uygulanmaktadır. Silika alkojellerin modifikasyon çözeltisinde bekletilmesiyle çözeltinin jele difüzlenmesi sağlanmaktadır.

Ancak difüzyon hızına bağlı olarak gerçekleşen kurutmadan önce yapılan modifikasyon işlemi, jelleşmeden önce yapılan modifikasyon işlemine göre daha uzun sürebilmektedir (Ren ve ark., 2016). Kurutmadan sonra elde edilen silika aerojellere de ıslak emdirme yöntemiyle yüzey modifikasyonu yapılabilmektedir. Kuru haldeki silika aerojellerin modifikasyon çözeltisine daldırılmasıyla modifikasyon yapılabilmektedir. Fakat silika aerojellerin yüzeyinde homojen bir modifikasyonun zor olması ve bu işlemin uzun sürebilmesi, ıslak emdirme yönteminin bazı dezavantajları arasında bulunmaktadır (Wang ve ark., 2013).

2.3. Silika Jel Kompozitler

Silika aerojellerin mevcut özelliklerini geliştirmek ya da yeni özellikler kazandırmak amacıyla silika aerojellerin çeşitli malzemelerle (metaller, metal oksitler, polimerler, karbon bazlı malzemeler, porojen malzemeler vb.) kombinasyonu sonucu daha iyi özelliklere sahip silika aerjel kompozitler elde edilmektedir. Silika aerjel kompozitlerin hazırlanması, kompozit bileşeninin (1) jelleşme aşamasından önce silika solüne ve (2) kurutma basamağından önce silika jeline eklenmesi olarak iki şekilde gerçekleştirilmektedir (Sachithanadam ve Chandrakant Joshi, 2016).

Fe ve La gibi metallerin silika aerojellere ilavesiyle daha yüksek yüzey alanına sahip kompozit malzemelerin elde edilmesi, adsorpsiyon ve fotokataliz proseslerinde verimliliği arttırmaktadır (Acosta-Rangel ve ark., 2018; Hernandez-Campos ve ark., 2018). Ag, Au ve Pd metallerinin kullanımı ile kimyasal kararlılığı daha yüksek silika aerjel kompozitlerin hazırlanması, özellikle optik uygulamalarında ve tıbbi cihazlarda avantaj sağlamaktadır (Krylova ve ark., 2009).

Silika aerojellerin elektriksel, optik, manyetik ve katalitik özelliklerini değiştirmek amacıyla genellikle metal oksitler kullanılmaktadır. Metal oksitlerin silika ağ yapısında homojen dağılımı zor olmasına rağmen metal oksit/silika aerjel kompozitlere olan ilgi her geçen gün artmaktadır (Aegerter ve ark., 2011). TiO_2/SiO_2 , Fe_2O_3/SiO_2 , NiO/SiO_2 ve ZnO/SiO_2 aerjel kompozitler en yaygın kullanılan kompozit aerojeller arasında yer almaktadır (Mo ve ark., 1998; Popovici ve ark., 2004; Zhu ve ark., 2009; Casula ve ark., 2011).

Termoplastik/termoset polimerlerin silika aerojellerle kombinasyonu sonucu elde edilen kompozit aerojeller özellikle termal ve mekanik dayanım gerektiren alanlarda önemli bir uygulama potansiyeline sahiptir. Polimer/silika aerjel kompozitlerin elde edilmesiyle hem silika aerojellerin mekanik özellikleri artırılırken hem de polimerlerin

termal dayanımı arttırılmaktadır (Salimian ve ark., 2018). Son zamanlarda epoksi/SiO₂, polistiren/SiO₂, poliester/SiO₂, naylon-6/SiO₂ ve izosiyanat/SiO₂ aerogel kompozitler konusundaki çalışmaların yoğunlaştığı görülmektedir (Ilhan ve ark., 2006; Katti ve ark., 2006; Ge ve ark., 2009; Abdul Halim ve ark., 2017; Krishnaswamy ve ark., 2017).

Karbon fiber, karbon siyahı, karbon nanotüp ve grafen oksit gibi karbon bazlı malzemeler içeren silika aerogel kompozitlerin çeşitli amaçlarla hazırlandığı bilinmektedir. Silika aerogellerin mekanik dayanımını arttırmak için genellikle karbon fiber, karbon nanotüp ve grafen oksit kullanılmaktadır (Ślosarczyk ve ark., 2015; Liu ve ark., 2016; Dervin ve ark., 2017). Karbon siyahı ve karbon nanotüp içeren silika aerogel kompozitler de ısı yalıtımı uygulamalarında etkin rol oynamaktadır. Ayrıca karbon bazlı malzemeler silika aerogellerin optik özelliklerini önemli ölçüde etkilemektedir (Zhao ve ark., 2013).

Silika aerogellerin yüzey alanı ve gözenek yapısı gibi özellikleri, porojen malzemelerin silika ağ yapısına dahil olmasıyla kolay bir şekilde değiştirilebilmektedir. Polietilen glikol (PEG), polivinil alkol (PVA) ve gliserol gibi porojen malzemelerin kullanımı ile gözenek boyutu kontrol edilebilen, yüksek yüzey alanına sahip silika aerogel kompozitler elde edilmektedir. Ayrıca porojen malzemeler, düşük yoğunluklu kompozit malzemelerin hazırlanmasını sağlamaktadır. Kurutma sırasında meydana gelen kapiler etkilerin azaltılmasında da porojen malzemelerin olumlu etkisi görülmektedir (Rao ve Kulkarni, 2002; Suchithra ve ark., 2012; Durães ve ark., 2015; Kim ve ark., 2015).

2.4. Silika Aerogellerin Kullanım Alanları

Silika aerogeller üstün özellikleri sayesinde Şekil 2.3'te de gösterildiği gibi ısı ve ses yalıtımı, havacılık sektörü, elektrik-elektronik sanayi, atık arıtma işlemleri vb. birçok alanda yaygın bir şekilde kullanılmaktadır. Özellikle düşük yoğunluk, yüksek yüzey alanı ve gözeneklilik ve termal kararlılık gibi özellikleri bir arada bulunduran silika aerogellerin daha çok uygulama potansiyeline sahip olduğu bilinmektedir (Maleki, 2016).

Termal iletkenlik değerleri oldukça düşük olan silika aerogeller (opak ya da saydam), geleneksel ısı yalıtım malzemelerine (genleştirilmiş polistiren, poliüretan, cam fiber, perlit vb.) alternatif olarak binalarda, çatılarda, borularda ve çeşitli kıyafetlerde kullanılmaktadır. Silika aerogellerin düşük yoğunluklu olması da bu malzemelerin ısı yalıtım malzemesi olarak kullanılmasında önemli rol oynamaktadır (Hrubesh, 1998; Aditya ve ark., 2017). Ayrıca silika aerogellerin ses absorplama özelliği, silika aerogellerin binalarda ses yalıtım malzemesi olarak değerlendirilmesini sağlamaktadır (Pierre ve

Pajonk, 2002).



Şekil 2. 3. Silika aerogellerin kullanım alanları

Silika aerogeller, düşük dielektrik sabiti ve yüksek termal dayanım özelliklerinin sağladığı avantajlarla entegre devrelerde ve elektrokimyasal kapasitörlerde kullanılabilir. Genellikle film şeklinde silikon veya cam yüzeylerde sentezlenen silika aerogeller elektriksel alan altında uzun süre kararlılık gösterebilmektedir (Yang ve ark., 1997; Kim ve ark., 2001).

Silika aerogellerin geniş bir sıcaklık aralığında kullanılabilirliği, elektriksel ve manyetik alan altındaki kararlılıkları ve oldukça hafif olmaları, bu malzemelerin uzay teknolojileri ve havacılık sektöründe kullanımına imkân sağlamaktadır. Silika aerogeller bu uygulamalarda ısı yalıtımı, kozmik tozların toplanması veya ortamdaki kirliliklerin uzaklaştırılması gibi farklı amaçlarla kullanılmaktadır (Jones, 2006; Maleki ve ark., 2014).

Yüksek yüzey alanına sahip olan silika aerogeller nem, O₂, hidrokarbon, HCl, NO₂ ve NH₃ gibi gaz fazındaki bileşenlerin tespiti için gaz sensörlerinde uygulama potansiyeline sahiptirler. Silika aerogellerin yüzeyinde adsorplanan bu bileşenler, absorban, floresans, fotoluminesans ve Raman gibi optiksel yöntemlerle tespit edilmektedir (Amonette ve Matyáš, 2017).

Silika aerogeller, katalitik uygulamalarda ideal bir katalizör ya da destek malzemesi olarak yer almaktadır. Özellikle yüksek gözenek hacmi, kontrol edilebilir yüzey aktivitesi ve kimyasal kararlılığı, silika aerogellerin metal katalizörler için destek

malzemesi olarak kullanılmasında önemli bir avantaj sağlamaktadır (Sanz-Moral ve ark., 2016; Liu ve ark., 2019).

Hidrofilik/hidrofobik yapıdaki silika aerojeller, adsorbent olarak sıvı/gaz adsorpsiyonu proseslerinde yaygın bir şekilde kullanılmaktadır. Silika aerojeller CO₂, uçucu organik bileşiklerin, yağ ve zararlı organik bileşiklerin, ağır metallerin vb. arıtımında yüksek performans göstermektedir (Faghihian ve ark., 2013; Wörmeyer ve Smirnova, 2013; Yun ve ark., 2014; Liu ve ark., 2016).

Son zamanlarda silika aerojellerin kompozit malzemelerde dolgu maddesi olarak kullanımı dikkat çekmektedir. Özellikle polimer matrisli kompozit malzemelerde termal dayanımı arttırmak ve daha hafif malzemeler elde etmek amacıyla silika aerojeller tercih edilmektedir (Salimian ve ark., 2018).

Silika aerojellerin gözenek boyutunun kolay bir şekilde değiştirilebilmesi, hidrofobik/hidrofilik yapısının kontrol edilebilmesi, yüksek yüzey alanına ve gözenekliliğe sahip olması ve biyoyumluluk göstermesi, bu malzemelerin salınım sistemlerinde taşıyıcı madde olarak kullanılmalarında önemli rol oynamaktadır (Munusamy ve ark., 2009; Hernández Montoto ve ark., 2018). Ayrıca doku mühendisliğinde, antibakteriyel malzemelerde, implantlarda ve çeşitli biyomedikal uygulamalarda da silika aerojellerin kullanıldığı bilinmektedir (Maleki ve ark., 2016).

2.4.1. Adsorpsiyon

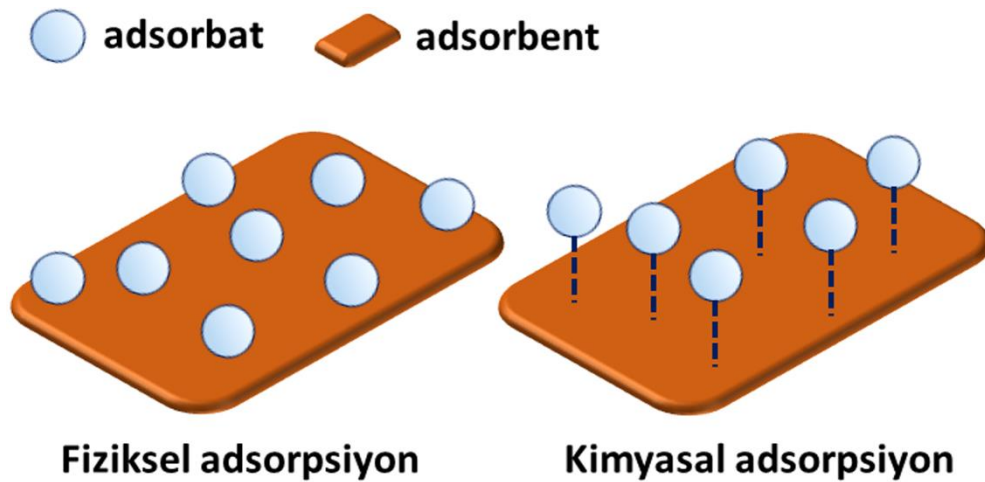
Artan dünya nüfusu ile birlikte insan aktivitesi sonucu oluşan inorganik ve organik atıkların suya karışması hem insan sağlığını hem de canlı organizmaları tehdit eden önemli bir çevre sorunu haline gelmiştir. Tekstil, kâğıt, deri, plastik, kozmetik ve gıda vb. endüstrilerin boya atıklarının suya boşaltılması su kirliliğinin en önemli sebepleri arasında bulunmaktadır (Vakili ve ark., 2014).

Günümüzde 100,000'den fazla ticari boya bulunmakla beraber yıllık 700,000 tonun üzerinde boya üretimi yapılmaktadır (Crini, 2006). Ticari boyalar kimyasal yapısına, rengine ya da uygulama yöntemlerine göre sınıflandırılabilir. Bunun dışında ticari boyalar çoğu zaman sulu ortamdaki partikül yüküne göre katyonik (bazik boyalar), anyonik (asidik boyalar) ve iyonik olmayan boyalar (dispers boyalar) olmak üzere üç sınıfa ayrılmaktadır (Yagub ve ark., 2014). Katyonik boyalar sınıfında yer alan metilen mavisi, en yaygın kullanılan boyar maddeler arasında bulunmaktadır. Metilen mavisi tam olarak toksik madde kabul edilmese de insan sağlığı ve çevreye birçok zararlı etkisi bulunmaktadır. Metilen mavisinin çok düşük derişimleri bile su kirliliğine sebep

olduğu için atık sulardan metilen mavisi giderimi büyük bir önem arz etmektedir (Bhattacharyya ve Sharma, 2005).

Boyar maddelerin atık sulardan giderimi için filtreleme, adsorpsiyon, iyon değiştirme, ters ozmos, koagülasyon, flokülasyon, oksidasyon, fotokataliz, aerobik ve anaerobik arıtım gibi çeşitli yöntemler kullanılmaktadır (Katheresan ve ark., 2018). Adsorpsiyon ucuz, yüksek verimli ve kolay uygulanabilen bir proses olduğu için en çok kullanılan yöntemler arasında yer almaktadır (Bulut ve Aydın, 2006).

Adsorpsiyon, bir maddenin farklı çekim kuvvetlerinin etkisi altında iki faz (sıvı-katı, sıvı-sıvı, sıvı-gaz ve gaz-katı) arasındaki yüzeyde birikerek derişiminin değişmesi işlemidir. Adsorplanan madde adsorbat, adsorpsiyonun gerçekleştiği yüzey ise adsorbent olarak adlandırılmaktadır (Yagub ve ark., 2014). Şekil 2.4'te görüldüğü gibi adsorpsiyon, adsorbat ve adsorbent arasındaki etkileşimlere bağlı olarak fiziksel ve kimyasal adsorpsiyon olmak üzere ikiye ayrılmaktadır. Genellikle Van der Waals, dipol-dipol etkileşimlerinin ve London kuvvetlerinin etkili olduğu fiziksel adsorpsiyonda herhangi bir kimyasal reaksiyon gerçekleşmemektedir (Qu, 2008). Adsorbat ve adsorbent arasındaki zayıf etkileşimlerin oluşumundan dolayı fiziksel adsorpsiyon tersinirdir. Diğer bir ifadeyle adsorbatın adsorbent yüzeyinden ayrılmasıyla desorpsiyon meydana gelmektedir. İyonik ya da kovalent bağların olduğu kimyasal adsorpsiyon işlemi ise tersinmezdir. Kimyasal adsorpsiyonda adsorbatın adsorbent yüzeyindeki aktif merkezlere tutunmasıyla tek tabakalı bir adsorpsiyon işlemi görülmektedir (Teka ve Enyew, 2014).



Şekil 2. 4. Adsorpsiyon çeşitleri

Adsorpsiyon prosesi, farklı kütle transfer mekanizmalarının yer aldığı bağımsız basamaklardan oluşmaktadır (Fulazzaky, 2011). İlk olarak adsorbatın adsorbent yüzeyini

kaplayan film tabakasına difüzyonu gerçekleşmektedir. Karıştırma işleminin uygulandığı adsorpsiyon proseslerinde genellikle bu basamak ihmal edilmektedir. İkinci basamakta adsorbat, film tabakasından adsorbent yüzeyine doğru taşınmaktadır. Ardından adsorbatın adsorbent gözeneklerine difüzyonu meydana gelmektedir. Son basamakta ise adsorbat, farklı çekim kuvvetleri ile adsorbent gözeneklerine tutunmaktadır (Choy ve ark., 2004).

Adsorbent ve adsorbat molekülleri arasındaki etkileşim genellikle Langmuir, Freundlich ve Temkin gibi adsorpsiyon izotermi ile incelenmektedir. Langmuir adsorpsiyon izoterm modeline göre adsorpsiyonun eşit enerjili aktif merkezlere sahip bir adsorbent yüzeyinde gerçekleştiği ve adsorbat moleküllerinin adsorbent yüzeyinde tek bir tabaka oluşturacak şekilde tutunduğu kabul edilir. Ayrıca adsorbent yüzeyine tutunan adsorbat molekülleri arasında herhangi bir etkileşimin olmadığı varsayılır (Dursun ve ark., 2020). Freundlich adsorpsiyon izotermi eşit enerjiye sahip olmayan aktif merkezlerin bulunduğu adsorbent yüzeyinde meydana gelen heterojen adsorpsiyon türlerini açıklamakta kullanılmaktadır. Bu tip adsorpsiyon işlemlerinde adsorbat molekülleri adsorbent yüzeyinde çoklu tabaka oluşturarak tutunabilmektedir (Yagub ve ark., 2014). Temkin adsorpsiyon izotermi ise adsorbat moleküllerinin adsorbent yüzeyine tutunmasıyla birlikte bu moleküllerin adsorpsiyon ısısının lineer olarak azaldığını ve bağlanma enerjisinin adsorbent yüzeyinde homojen olduğunu ifade etmektedir (Foo ve Hameed, 2010).

Adsorpsiyon prosesini etkileyen pH, adsorbat derişimi, sıcaklık, adsorbent miktarı, temas süresi, adsorbat ve adsorbent yapısı gibi birçok faktör bulunmaktadır.

pH: pH değeri, adsorbat moleküllerinin iyonlaşma derecesini ve adsorbentin yüzey özelliklerini önemli ölçüde etkileyen bir faktördür. Adsorbentin yüzey yükünün sıfır olduğu pH değerine (pH_{pzc}) ve adsorbatın anyonik/kasyonik yapısına bağlı olarak adsorpsiyon prosesinin maksimum kapasite ile gerçekleşebileceği pH değeri belirlenebilmektedir. Örneğin kasyonik boyaların adsorpsiyonu $pH > pH_{pzc}$ iken, anyonik boyaların adsorpsiyonu ise $pH < pH_{pzc}$ şartlarında daha kolay gerçekleşmektedir (Mouni ve ark., 2018). Diğer bir ifadeyle yüksek pH değerlerinde kasyonik boyaların adsorpsiyon kapasitesi; düşük pH değerlerinde ise anyonik boyaların adsorpsiyon kapasitesi daha yüksektir.

Adsorbat derişimi: Adsorbat derişimi, adsorbent yüzeyindeki aktif merkezlerle doğrudan bağlantılıdır. Adsorbat derişiminin artışıyla adsorbent yüzeyindeki aktif merkezlerin doygunluk noktasına ulaşması adsorpsiyon verimini genellikle azaltmaktadır

(Banerjee ve Chattopadhyaya, 2017).

Sıcaklık: Sıcaklık faktörü de adsorpsiyon kapasitesini etkileyen önemli bir faktördür. Sıcaklık artışı ile adsorpsiyon kapasitesi artıyorsa adsorpsiyon işlemi, endotermik proses olarak adlandırılmaktadır (Monte Blanco ve ark., 2017). Yüksek sıcaklıkta adsorbat moleküllerinin hareketliliğinin artışı endotermik proseslerde adsorpsiyon kapasitesini arttırmaktadır. Aksine sıcaklık artışı adsorpsiyon kapasitesini azaltıyorsa bu tip adsorpsiyon, ekzotermik proses olarak adlandırılmaktadır (Maneerung ve ark., 2016). Ekzotermik proseslerde ise sıcaklık artışı adsorbat moleküllerinin adsorbent yüzeyine tutunması azalttığı için adsorpsiyon verimi azalmaktadır.

Adsorbent miktarı: Adsorbent miktarı, adsorpsiyon kapasitesinin belirlenmesinde kullanılan en önemli faktörler arasında yer almaktadır. Adsorbent miktarının artışı, adsorpsiyon kapasitesini genellikle arttırmaktadır. Adsorbent miktarının belirli oranda artışı, adsorbent yüzeyindeki aktif merkezlerin artışını sağladığı için adsorpsiyon prosesini olumlu yönde etkilemektedir (Seow, 2016). Adsorbent miktarının optimizasyonu ile minimum miktarda adsorbent kullanımı adsorpsiyon proseslerinde maliyet açısından dikkat edilen konular arasında yer almaktadır.

Zaman: Ekonomik koşullar dikkate alındığında adsorpsiyonun kısa sürede tamamlanması hem daha düşük maliyetli hem de zaman tasarrufu sağlayan bir adsorpsiyon prosesinin sürdürülmesinde önemli rol oynamaktadır. İlk aşamada adsorbent yüzeyindeki aktif merkezlerin oldukça fazla olması adsorpsiyon hızını hızla arttırmaktadır. Zamanla aktif merkezler doygunluk sınırına ulaştığı için adsorpsiyon hızında bir azalma meydana gelmektedir (Panda ve ark., 2017). Adsorbent yüzeyindeki aktif merkezlerin tamamen tükenmesiyle temas süresinin artışına rağmen adsorpsiyon veriminde herhangi bir artış gözlenmemektedir.

Adsorbat (çözünürlüğü, molekül ağırlığı, molekül boyutu vb.) ve adsorbent yapısı (yüzey alanı, partikül boyutu, gözenek hacmi vb.) da adsorpsiyon prosesini önemli ölçüde etkileyen faktörler arasında yer almaktadır (Derylo-Marczewska ve Marczewski, 2002; Yu ve ark., 2007; Aljeboree ve ark., 2017).

Adsorpsiyon gibi birçok parametrenin etkili olduğu proseslerde kaliteli ve güvenilir sonuçların elde edilebilmesi için öncelikle optimum deney koşulları belirlenmektedir. Her bir deneysel parametrenin sonuçlara olan etkisini tek tek incelemek hem zaman alıcı hem de maliyetli olduğu için deney tasarımı yöntemlerinin kullanımı oldukça önemli hale gelmiştir. En yaygın kullanılan deney tasarımı yöntemleri aşağıda belirtilmiştir (Lizotte ve ark., 2011; Candiotti ve ark., 2014; Googerdchian ve ark., 2018);

- Faktöriyel tasarım analizi
- Sinir ağları
- Çok değişkenli optimizasyon
- Yanıt yüzey yöntemi
- Taguchi yöntemi

Taguchi yöntemi, düşük hata payı içeren güvenilir sonuçların elde edildiği verimli bir proses için kullanılan en etkili deney tasarımı yöntemlerinden biridir. Birçok deneysel faktörün bulunduğu proseslerde her bir faktörün etkisini ve birbiriyle olan etkileşimini incelemek oldukça zordur. Bu problemleri minimize edebilmek amacıyla Taguchi yönteminin kullanımı en az sayıda deneyle tüm faktörlerin kombinasyonunu sağlayarak kaliteli sonuçların elde edilmesinde önemli rol oynamaktadır (Engin ve ark., 2008).

Taguchi yönteminde ilk olarak incelenen faktörler ortogonal dizilişler içerisinde yerleştirilmektedir. Ardından istatistiksel hesaplamalar sonucunda elde edilen sonuçların değerlendirilmesinde Sinyal/Gürültü (S/N) oranı kullanılmaktadır. Sinyal ve gürültü değerleri sırasıyla ölçülmek istenen gerçek değeri ve ölçülen değerdeki istenmeyen faktörlerin etkisini göstermektedir (Genc ve ark., 2017). Beklenen sonucun değerine bağlı olarak S/N oranı önem kazanmaktadır. Bu üç farklı sınıflandırma aşağıda belirtilmiştir (Barman ve ark., 2011);

- Daha küçük daha iyi (beklenen sonuç en düşük değer)
- Daha büyük daha iyi (beklenen sonuç en yüksek değer)
- Nominal değer daha iyi (beklenen sonuç nominal değer)

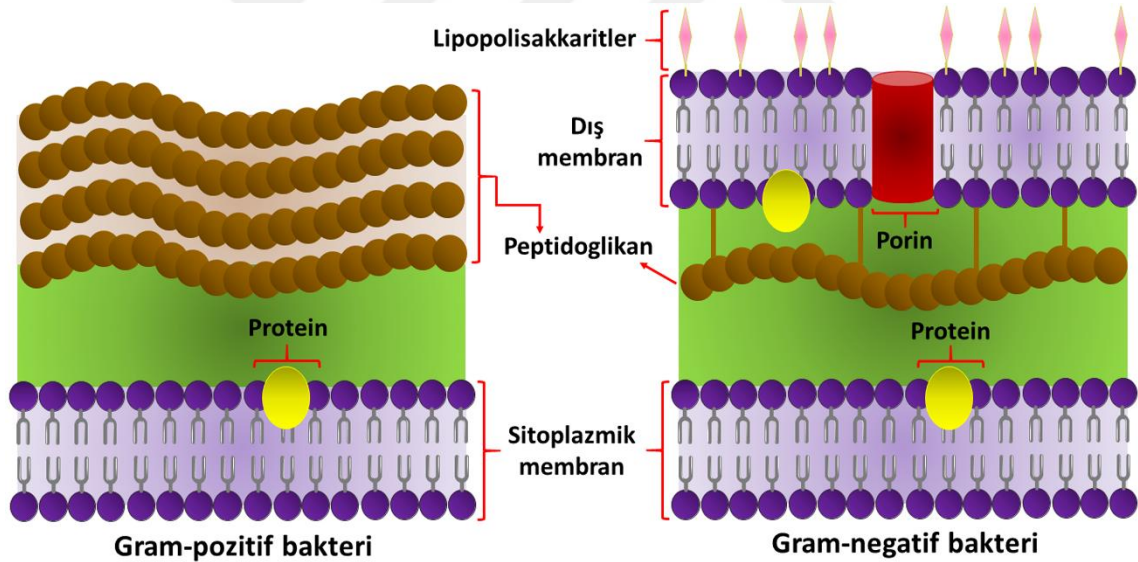
Optimum şartlar belirlendikten sonra varyans analizi (ANOVA) ile proses üzerinde hangi faktörün ne kadar etkisinin olduğu istatistiksel olarak belirlenebilmektedir (Zolgharnein ve Rastgordani, 2018).

2.4.2. Antibakteriyel uygulamalar

Bakterilerin antibiyotiklere karşı direnç kazanması, bakteriyel enfeksiyonların her geçen gün hızla artmasına neden olmaktadır. Dünya Sağlık Örgütü tarafından 2019 yılında yayınlanan rapora göre Amerika Birleşik Devletleri'nde her yıl 2,8 milyondan fazla insan bakteriyel hastalıklara yakalanırken bu hastalıklar en az 35,000 insanın ölümüne yol açmaktadır. Avrupa'da ise bakteriyel hastalıkların etkisiyle yaklaşık 33,000 insan ölmektedir (Organization, 2019). Bu nedenle antibiyotik direncine sahip olan bakteriler cerrahi ekipmanların, medikal implantların, biyosensörlerin kullanıldığı birçok

uygulamada ve gıda depolarında ciddi bir tehdit oluşturmaktadır (Yadav ve ark., 2016; Hammad ve ark., 2019).

Bakteriler hücre duvarı yapısına göre Şekil 2.5'te gösterildiği gibi Gram-pozitif (*Actinobaculum suis*, *Bacillus anthracis*, *Clostridium difficile*, *Mycoplasma hyosynoviae*, *Staphylococcus aureus*) ve Gram-negatif (*Actinobacillus pleuropneumoniae*, *Brachyspira hyodysenteriae*, *Brucella suis*, *Escherichia coli*, *Haemophilus parasuis*, *Salmonella enterica*) bakteriler olmak üzere iki sınıfa ayrılmaktadır (Post, 2019). Gram-pozitif bakterilerin hücre duvarında kalın bir peptidoglikan tabakası (~ 20-50 nm) bulunurken Gram-negatif bakteriler ince bir peptidoglikan tabakası içermektedir (Hajipour ve ark., 2012). Ayrıca moleküllerin hücre içerisine girişini kısıtlayarak antibiyotik direncini arttıran dış membran, Gram-negatif bakterilerin karakteristik özelliği olarak bilinmektedir (Farrag ve ark., 2019). Hem Gram-negatif hem de Gram-pozitif bakterilerin yüzey yükü negatiftir. Ancak Gram-negatif bakterilerde dış membrana bağlı olan polisakkaritler Gram-negatif bakterilerin negatif olan yüzey yükünü arttırmaktadır (Slavin ve ark., 2017).



Şekil 2. 5. Gram-pozitif ve Gram-negatif bakterilerin hücre duvarı yapısı

Antibiyotikler, bakterilerin öldürülmesinde ya da bakteri oluşumunun engellenmesinde kullanılan malzemeler olarak tanımlanmaktadır (Bernardos ve ark., 2019). Antibiyotiklerin bakteriler üzerindeki etkisi dört farklı mekanizma ile açıklanmaktadır: (1) hücre duvarının parçalanması, (2) DNA sentezinin engellenmesi, (3) protein sentezinin engellenmesi ve (4) hücre membranının bloke edilmesi (Wyszogrodzka ve ark., 2016). β -laktam (penisilin, karpapenem, monobaktam ve

sefalosporin) gibi antibiyotikler, peptidoglikan tabakasının sentezi için gerekli olan bakterilerde bulunan transpeptidaz ve DD-peptidaz bileşenlerine bağlanarak hücre duvarının parçalanmasını sağlamaktadır (Bush ve Macielag, 2010; Dodd ve ark., 2010). Ayrıca glikopeptid (vankomisin ve teikoplanin) gibi antibiyotikler de peptidoglikan zincirlerinin uç kısımlarında yer alan D-alanin kısa peptid zincirlerine bağlanarak bakterilerde hücre duvarı sentezini bloke etmektedir (Langer ve ark., 2007). Kinolon, nitroimidazol ve ansamisin grubu antibiyotiklerin kullanımı ile bakterilerde DNA sentezi engellenmektedir. Kinolon grubu antibiyotikler sırasıyla Gram-pozitif ve Gram-negatif bakterilerde DNA eşlenmesi için gerekli olan topoizomeraz IV ve DNA giraz enzimlerinin işlevini kısıtlamaktadır (Anderson ve ark., 2012). Nitroimidazol grubu antibiyotikler nükleik asit sentezini bloke ederek bakteri oluşumunu kısıtlamakta ya da mevcut bakterinin yok edilmesini sağlamaktadır. RNA sentezinin ilk basamağında ansamisin grubu antibiyotiklerin DNA'ya bağlı RNA polimeraz ile etkileşimi sonucu DNA sentezi önlenmektedir (Jampilek, 2018). Bakterilerde protein sentezinin engellenmesi, antibiyotikler yardımıyla RNA'da bulunan fonksiyonel kısımların işlevini kaybetmesi sonucu gerçekleşmektedir. Aminoglikozid grubu antibiyotiklerin ribozomun 30S alt biriminin bileşenlerinden olan 16S ribozomal RNA ile etkileşimi ve makrolit grubu antibiyotiklerin ribozomun 50S alt birimine bağlanarak polipeptid zincirlerinin uzamasını kısıtlaması, bakterilerde protein sentezini önlemektedir (Savjani ve ark., 2009). Yeni bir antibiyotik grubu olan oksazolidinonların etki mekanizması da aminoasil-tRNA bağlarının parçalanmasıyla bakterilerin protein sentezinin inhibe edilmesi üzerinden yürütülmektedir (Barbachyn ve Ford, 2003). Son olarak polipeptid (polimiksin) ve siklik lipopeptid (daptomisin) grubu antibiyotikler bakterilerin hücre duvarının parçalanması için kullanılmaktadır. Pozitif yüklü polimiksinin negatif yüzey yüklü bakterilerin hücre membranına tutunmasıyla hücre membranı işlevini kaybetmektedir. Daptomisinin de hücre membranı ile etkileşimi sonucu K⁺ iyonlarının hücre dışına çıkışı depolarizasyona neden olduğu için bakteri ölümü gerçekleşmektedir (Tenover, 2006).

Bakterilerin antibiyotiklere olan direnci; doğal ve kazanılmış direnç olarak iki gruba ayrılmaktadır (Sefton, 2002). Doğal direnç, bakterilerin doğal yapısında kendiliğinden oluşan bir direnç türüdür. Antibiyotiklerin bakteri içerisine nüfuz edememesi, bakterilerde antibiyotiklerin etki ettiği hedef bölgenin bulunmaması ya da bakteri yapısındaki enzimlerin antibiyotiklerin aktivitesini kısıtlaması bakterilerin doğal direnç mekanizmasını oluşturmaktadır (Cloete, 2003; Toma ve Deyno, 2015). Kazanılmış direnç ise aynı veya farklı grup bakteri türleri arasındaki yatay gen transferlerinden

kaynaklanmaktadır. Bakteriler arasındaki gen transferleri, üç farklı mekanizma ile gerçekleşmektedir: (1) transformasyon, (2) konjugasyon ve (3) transdüksiyon (Thorsteinsson ve ark., 2003; Peterson ve Kaur, 2018). Transformasyon işleminde, bakteriler diğer bakterilerden salınan antibiyotik direnci sağlayan genlerin bulunduğu DNA sayesinde direnç kazanmaktadır (Levy ve Marshall, 2004). Konjugasyon mekanizması, bakteri türlerinin birbiriyle teması sonucu ilgili genlerin aktarımı üzerinden yürütülmektedir (Aleksun ve Levy, 2007). Transdüksiyonda ise genler, fajlar (bakterileri parçalayan virüsler) aracılığıyla bakterilere aktarılmaktadır (Huddleston, 2014).

Bakterilerin antibiyotik direnci kazanmasıyla birlikte antibakteriyel hastalıkların hızla artması çeşitli çözümleri de beraberinde getirmiştir. Birçok ilaç firması yeni antibiyotiklerin geliştirilmesi ve üretimi üzerinde çalışmaktadır; fakat ilaç üretimi hem zaman alıcı (~ 10 yıl) hem de maliyetli (~ 2,6 milyar \$) bir süreçtir. Ayrıca bakteriler yeni üretilen antibiyotiklere de kısa bir süre sonra direnç kazanmaktadır (Serri ve ark., 2019). Bu nedenle farklı antibiyotiklerin kombinasyonu, antibiyotik spektrumlarının genişletilmesi, antibiyotiklerin enkapsülasyonu ve yeni ilaç salınım sistemlerinin geliştirilmesi gibi çeşitli yaklaşımlar üzerinde yürütülen çalışmalar her geçen gün artmaktadır (Nicolosi ve ark., 2010; Mas ve ark., 2013). Bunun yanı sıra silika temelli malzemeler, karbon temelli malzemeler (fullerenler, karbon nanotüpler ve grafen nanopartiküller), metal/metal oksitler (Ag, Au, Pt, Pd, Cu, ZnO, TiO₂ ve CuO), kuaterner amonyum bileşikler ve kitosan partikülleri ilaç salınım sistemlerinde taşıyıcı veya katkı malzemesi olarak kullanılmaktadır (Giri ve ark., 2007; Wiarachai ve ark., 2012; Maleki Dizaj ve ark., 2015; Hemeg, 2017; Jiao ve ark., 2017). Son zamanlarda silika aerojel/kserojeller kontrol edilebilen gözenek ve partikül boyutu, yüksek yüzey alanı ve düşük yoğunluk gibi avantajları ile salınım sistemleri için umut vaat eden taşıyıcı malzemeler arasında dikkat çekmektedir (Lovskaya ve ark., 2015; Smirnova ve Gurikov, 2017).

Silika aerojel/kserojellere ilaç yüklemesi jel prosesi sırasında ya da kurutma işleminin ardından yapılabilmektedir. İlacın, jelleşme aşamasından önce eklendiği ilk yöntem basitliği ile literatürde en çok tercih edilen yöntemlerden biridir. Fakat ilacın başlangıç malzemeleri ile reaksiyona girme olasılığı bulunmaktadır (Czarnobaj ve Lukasiak, 2007). İkinci yöntemde ilaç, yaşlandırma çözeltisine eklenmekte ve alkojelin gözeneklerine difüzenmektedir. Difüzyon hızına bağlı olarak bu yöntem uzun zaman gerektirebilmektedir (Mehling ve ark., 2009). Son yöntemde ise ilaç çözeltisinin, malzeme kurutulduktan sonra malzemeye eklenmesi ile ilaç yükleme işlemi

gerçekleştirilmektedir. Bu proseste ilaç çözeltisi hem malzemenin gözeneklerine difüzlennmekte hem de yüzeyine adsorplanmaktadır. Ancak bazı durumlarda bu malzemelerin yüzeylerinde bulunan hidroksil grupları malzemelerin ilaç çözeltisine daldırıldığında hızlı bir şekilde büzüşmesine neden olmaktadır. Bu problemi önlemek için süperkritik çözeltilerde çözünebilen ilaçlar süperkritik fazda malzemelere yüklenebilmektedir (Smirnova ve ark., 2004).



3. KAYNAK ARAŞTIRMASI

Silika aerogeller ilk olarak 1930’larda Samuel Stephens Kistler tarafından sentezlenmiştir. Kistler, jel oluşumunu ve jelin içerisindeki sıvının atmosfer basıncında uzaklaştırılmasını kapsayan bir metot kullanarak silika kserojelleri elde etmiştir. Ardından bir çözücü içerisinde sol-gel geçişinin yürütüldüğü ve süperkritik kurutmanın yapıldığı bir sentez yöntemiyle silika aerogellerin elde edilmesini sağlayarak bu konudaki çalışmaların hızlanmasında önemli bir rol oynamıştır (Soleimani Dorcheh ve Abbasi, 2008). 1974’lerde de silika aerogellerin ilk defa Cerenkov dedektörlerinde kullanılmasıyla çeşitli uygulamalarda kullanımının önü açılmıştır.

Literatür çalışmalarına bakıldığında sentez parametrelerine ve modifikasyon işlemlerine bağlı olarak farklı özelliklerde silika aerogellerin sentezlendiği görülmektedir. Venkateswara Rao ve Bhagat (2004) yaptıkları çalışmada asit ve baz katalizörü olarak sırasıyla farklı derişimlerde oksalik asit ($C_2H_2O_4$) (0 - 0,1 M) ve amonyum hidroksit (NH_4OH) (0,4 – 3 M) kullanarak TEOS başlangıç maddesinden, iki basamaklı sol-jel yöntemiyle silika aerogeller sentezlemişlerdir. 0,001 M $C_2H_2O_4$ ve 1 M NH_4OH kullanılarak elde edilen silika aerogellerin daha düşük yoğunluklu ve saydam malzemeler olduğu belirlenmiştir. Ayrıca katalizör derişimlerinin, optimum değerlerin üzerine çıkmasıyla malzemelerde büzüşmelerin meydana geldiği ve yoğunluklarının arttığı tespit edilmiştir. Nadargi ve Rao (2009) MTES:metanol mol oranının silika aerogellerin fiziksel özellikleri üzerindeki etkisini incelemişlerdir. MTES:metanol mol oranı azaldıkça silika aerogellerin gözenek hacminde artış gözlenmiştir. Silika aerogellerin yoğunluk ve termal iletkenlik değerleri de azalmıştır. Iswar ve ark. (2017) yaşlandırma süresinin (2, 4, 6, 8, 16 ve 24 saat) ve sıcaklığının (55, 65 ve 75°C), atmosfer basıncında ve süperkritik şartlarda kurutulan silika aerogellerin özelliklerine etkisini araştırmışlardır. Yapılan çalışmada yaşlandırma süresinin ve sıcaklığının artışıyla silika aerogellerin yüzey alanı azalmıştır. Maksimum yüzey alanının (972 m²/g) süperkritik şartlarda kurutulan silika aerogellere ait olduğu belirlenmiştir. Mahadik ve ark. (2016) farklı sayıda fonksiyonel gruplar içeren TMCS (tek fonksiyel grup), DMDCS (çift fonksiyel grup) ve MTMS (üç fonksiyel grup) modifikasyon ajanlarıyla silika aerogellerin yüzey modifikasyonu işlemini gerçekleştirmişlerdir. TMCS kullanılarak yüzeyi modifiye edilen silika aerogellerin daha hidrofobik (temas açısı: 161°) ve optik geçirgenliğinin daha yüksek olduğu (%83) tespit edilmiştir. Ayrıca modifikasyon ajanındaki fonksiyonel grup sayısının artışı silika aerogellerin termal iletkenlik değerlerini arttırmıştır. Bangi ve ark.

(2008) yaptıkları çalışmada Na_2SiO_3 kullanarak sentezledikleri silika aerogellerin TMCS ile yüzey modifikasyonunu yapmışlardır. Elde edilen sonuçlar TMCS derişiminin artışıyla silika aerogellerin yoğunluk ve optik geçirgenlik değerlerinin azaldığını göstermiştir. Ayrıca modifikasyon süresinin artışıyla silika aerogellerin temas açısının arttığı gözlemlenmiştir.

Son yıllarda yapılan çalışmaların süperkritik şartlarda kurutma yapmak yerine atmosfer basıncında yapılan kurutma ile silika kserojellerin sentezi üzerinde yoğunlaştığı görülmektedir. Ayrıca silika aerogellerin sentezi için pahalı başlangıç maddelerine alternatif olarak SiO_2 içeriği zengin inorganik yan ürünlerin ya da organik atıkların değerlendirilmesi konusunda çalışmaların yürütüldüğü bilinmektedir (Guzel Kaya ve ark., 2018). Shi ve ark. (2010) alkali ekstraksiyon yöntemiyle uçucu külden atmosfer basıncında kurutma yaparak silika kserojel sentezlemişlerdir. NaOH derişimi ve miktarını değiştirerek belirlenen optimum şartlarda, yüzey alanı $907 \text{ m}^2/\text{g}$ 'a ulaşan silika kserojeller elde edilmiştir. Hu ve ark. (2016) ağırlıkça yaklaşık %50 oranında SiO_2 içeren kaolinden silika kserojel elde etmişlerdir. Farklı derişimlerde HCl katalizörü (2, 3, 4, 5 ve 6 M) kullanılarak sentezlenen silika kserojellerden en düşük yoğunluklu silika kserojelin ($0,06 \text{ g/cm}^3$), 4 M HCl kullanılarak elde edilen silika kserojel olduğu belirlenmiştir. Jeldeki Na^+ iyonlarının tam olarak uzaklaştırılamaması silika kserojellerin yoğunluğunun artmasına ($1,68 \text{ g/cm}^3$) neden olmuştur. Affandi ve ark. (2009) şeker kamışı küspesi külünden üç farklı yöntemle ((1) ekstraksiyon işleminden önce asitle ön işlem uygulama, (2) ekstraksiyondan sonra elde edilen Na_2SiO_3 çözeltisine katyon deriştirici reçine ile muamele ve (3) kurutma işleminden önce jelin saf su ile yıkanması) silika kserojel sentezlemişlerdir. İkinci metodla yüksek saflıkta silika kserojellerin (ağırlıkça %99,37 SiO_2) elde edildiği görülmüştür. Li ve Wang (2008) pirinç kabuğu külünü kullanarak atmosfer basıncında yüzey alanı $648 \text{ m}^2/\text{g}$ civarında olan silika kserojeller sentezlemişlerdir. Na_2SiO_3 çözeltisine %10 oranında TEOS ilave edildiğinde silika kserojelin yüzey alanının azaldığı, gözenek boyutunun ise yaklaşık 8 nm'den 26 nm'ye artış gösterdiği belirlenmiştir. Guzel Kaya ve ark. (2018) silika kserojelleri mısır sapı külünden sentezlemişlerdir. Yapılan çalışmada elde edilen silika kserojellerin 800°C 'de %89 oranında bozunmadan kaldığı ve oda koşullarında termal iletkenliğinin $0,040 \text{ W/mK}$ olarak ölçüldüğü belirtilmiştir. Liu ve ark. (2015) buğday kabuğu kullanarak sentezledikleri silika kserojellerin, %91 civarında gözenekliliğe ve $587 \text{ m}^2/\text{g}$ yüzey alanına sahip olduğunu kanıtlamışlardır. Ayrıca TMCS ile yapılan yüzey modifikasyonu sonucu silika aerogellerin temas açısı 147° olarak ölçülmüştür.

Kullanım alanına ve amacına bağılı olarak silika aerojellerin polimerlerle, metallere, metal oksitlerle ve karbon bazlı malzemelerle kombinasyonu sonucu kompozit/hibrit malzemeler elde edilmektedir (Du ve ark., 2013). Durães ve ark. (2015) MTMS kullanılarak elde edilen silika aerojellere PEG ilavesinin etkisini incelemişlerdir. PEG ilavesiyle silika aerojellerin gözenekliliğinin arttığı ve daha düşük yoğunluklu malzemelerin elde edildiği belirlenmiştir. Farklı sıcaklıklarda yapılan termal iletkenlik ölçümleri ise PEG ilavesinin silika aerojelin termal iletkenliğini azalttığını göstermiştir. Suchithra ve ark. (2012) silika aerjel/PEG/bentonit hibrit malzemelerini çeşitli boyaların ve uçucu organik bileşiklerin adsorpsiyonunda adsorbent olarak kullanmışlardır. Metilen mavisi adsorpsiyonunda sadece bentonit kullanılırken elde edilen maksimum adsorpsiyon kapasitesi 10,73 mg/g iken silika aerjel/PEG/bentonit kullanıldığında 98,42 mg/g olarak tespit edilmiştir. Toluen adsorpsiyonunda ise bentonit ve silika aerjel/PEG/bentonitin kullanımı sonucu maksimum adsorpsiyon kapasitesi sırasıyla 16,79 mg/g ve 114,1 mg/g olarak hesaplanmıştır. Salimian ve ark. (2018) epoksi reçinesine farklı oranlarda (ağırlıkça %1, %2, %4 ve %6) silika aerjel ekleyerek silika aerjel/epoksi kompozitlerini hazırlamışlardır. Malzemelerin mekanik karakterizasyon sonuçları, %6 oranında silika aerjel ilavesinin, epoksi reçinesinin çekme dayanımını %62, esneklik katsayısını %35 ve tokluğunu %126 arttırdığını göstermiştir. Ge ve ark. (2009) hidrofobik silika aerjelleri epoksi kompozitlerde dolgu maddesi olarak kullanmışlardır. Temas açısı 45° olan epoksi reçinesine, ağırlıkça %80 oranında silika aerjel eklenmesiyle malzemenin temas açısı 140° olarak ölçülmüştür. Maghsoudi ve Motahari (2018) silika aerjel/epoksi kompozitlerinin su sorpsiyonu ve termal özelliklerini incelemişlerdir. Artan silika aerjel miktarı (%1, %1,5, %2, %2,5 ve %3) ile malzemelerin su sorpsiyonunun azaldığı, termal dayanımının da arttığı tespit edilmiştir. %3 silika aerjel ilavesiyle epoksi reçinesinin su sorpsiyonu %50 azalmıştır. Ayrıca epoksi reçinesinin 348°C olan bozunma sıcaklığı, %3 silika aerjel varlığında 354°C'e kadar artmıştır. Chang ve ark. (2014) poliüretanın termal yalıtım özelliklerini (~0,25 W/mK) geliştirmek amacıyla dolgu maddesi olarak silika aerjelleri kullanmışlardır. Hacimce 35:65 oranında silika aerjel:epoksi içeren kompozit malzemelerin termal iletkenlik değerinin 0,13 W/mK kadar düşük olduğu belirlenmiştir.

Hernandez-Campos ve ark. (2018) yaptıkları çalışmada La/silika kserojel kompozitlerinin florür iyonu adsorpsiyonundaki performansını araştırmışlardır. Elde edilen kompozit malzemelerin silika kserojel ile karşılaştırıldığında daha yüksek yüzey alanına sahip olduğu görülmüştür. Buna bağılı olarak silika kserojelin 2,71 mmol/g olan

adsorpsiyon kapasitesi La metalinin ilavesiyle 43,54 mmol/g olarak tespit edilmiştir. Ma ve ark. (2018) elektriksel uygulamalarda kullanılmak üzere termal kararlılığı yüksek Ag/silika kserojel kompozitlerini hazırlamışlardır. 220°C civarında Ag/silika kserojel kompozitinin elektriksel iletkenliği yaklaşık 2300 S/cm olarak ölçülmüştür. Ayrıca 30 saat boyunca malzemenin kararlılığını koruyarak aynı performansı gösterdiği görülmüştür. Acosta-Rangel ve ark. (2018) Fe/silika kserojel kompozitinin kullanılmasıyla tinidazolün fotokatalitik parçalanma prosesini incelemişlerdir. Sonuçlar, Fe ilavesiyle tinidazolün parçalanma oranının %41'den %68'e çıktığını göstermiştir. Zhu ve ark. (2009) TiO₂/silika aerogel kompozitlerini Rodamin B boyasının fotokatalitik bozunma prosesinde kullanmışlardır. Elde edilen kompozit malzemenin fotokatalitik aktivitesinin TiO₂'nin aktivitesinin yaklaşık dört katı olduğu görülmüştür. Casula ve ark. (2011) yaptıkları çalışmada katalitik uygulamalarda kullanılabilirliğini araştırmak amacıyla NiO/silika aerogel ve kserojel kompozitlerini hazırlayarak malzemelerin fiziksel özelliklerini karşılaştırmışlardır. Kserojel kompozitlerle karşılaştırıldığında aerogel kompozitlerin daha yüksek yüzey alanına ve gözenekliliğe sahip olduğu belirlenmiştir. Popovici ve ark. (2004) ıslak emdirme metodu ile Fe₂O₃/silika aerogel kompozitlerini hazırlamışlardır. Oldukça yüksek yüzey alanına (900 m²/g) sahip olan kompozit malzemelerin oda sıcaklığında süper paramanyetik davranış sergilediği tespit edilmiştir.

Karbon fiber, aktif karbon, karbon nanotüp, grafen ve karbon siyahı gibi karbon bazlı malzemelerin silika aerogellerle kombinasyonu sonucu elde edilen kompozit malzemeler konusunda yapılan çalışmalar da her geçen gün artmaktadır. Ślosarczyk ve ark. (2015) jelleşme aşamasından önce silika solüne karbon fiberleri ilave ederek karbon fiber/silika aerogel kompozitlerini hazırlamışlardır. Silika aerogellerde kurutma sırasında meydana gelen %62 civarındaki büzüşme oranı, karbon fiber varlığında %30'lara kadar azalmıştır. Moner-Girona ve ark. (2014) silika aerogellerin kırılma dayanımını azaltmak amacıyla çeşitli oranlarda aktif karbon (ağırlıkça %2, %15 ve %50) kullanmışlardır. Silika aerogelin sertliğinin (5,1 MPa), artan aktif karbon miktarıyla yaklaşık %70 oranında azaldığı belirlenmiştir. Ayrıca silika aerogellerin yoğunluk değerlerinde de bir azalma gözlemlenmiştir. Chan ve ark. (2007) çeşitli oranlarda karbon nanotüp (ağırlıkça karbon nanotüp:silika kserojel oranı 2,5x10⁻⁴, 6,5x10⁻⁴, 13,2x10⁻⁴ ve 26,4x10⁻⁴) içeren silika kserojel kompozitlerin gözenek yapısını incelemişlerdir. Maksimum yüzey alanının (~500 m²/g) ve gözenek hacminin (~1,05 cm³/g), karbon nanotüp:silika kserojel oranının sırasıyla 6,5x10⁻⁴ ve 13,2x10⁻⁴ olan kompozit malzemede olduğu görülmüştür. Bu oranların üzerinde malzemelerin yüzey alanı ve gözenek hacminin azaldığı tespit

edilmiştir. Loche ve ark. (2016) mineral yağ adsorpsiyonu için grafen/silika aerogel kompozitlerini adsorbent olarak kullanmışlardır. Ağırlıkça %0,1 oranında grafen içeren silika aerogel kompozitlerin silika aerojellere göre %20 daha fazla adsorpsiyon kapasitesine sahip olduğu görülmüştür. Zhao ve ark. (2013) ısı yalıtımı uygulamaları için silika aerojellere karbon siyahı eklemiştir. Elde edilen sonuçlar 600°C'nin altında karbon siyahının, silika aerojeller için eşsiz bir opaklaştırıcı olabileceğini ortaya koymuştur. Karbon siyahı/silika aerogel kompozitlerinin termal iletkenlik katsayısının oldukça düşük olması, ısı transferinin azaltılmasında önemli rol oynayarak bu malzemelerin ısı yalıtım malzemesi olarak kullanılabileceğini göstermiştir.

Silika aerogel/kserojellerin adsorpsiyon çalışmalarında kullanımı her geçen gün artmaktadır. Wa ve ark. (2015) setil trimetil amonyum bromür (CTAB) ve sodyum dodesil sülfat (SDS) varlığında TEOS kullanarak silika aerojelleri sentezleyerek Rodamin B adsorpsiyonunda değerlendirmişlerdir. Yüzey alanı (856 m²/g) ve gözenekliliği (%97,9) oldukça yüksek olan silika aerojellerin adsorpsiyon kapasitesi 38,99 mg/g olarak belirlenmiştir (deney koşulları; V: 25 mL, adsorbent miktarı: 10 mg, sıcaklık: 30°C). Han ve ark. (2016) TEOS başlangıç malzemesinden hidrofilik ve hidrofobik silika aerojelleri elde etmişlerdir. Bu malzemeleri metilen mavisi adsorpsiyonunda kullanarak malzeme yüzeyinin adsorpsiyona etkisini incelemişlerdir. Hidrofilik ve hidrofobik silika aerojelin maksimum adsorpsiyon kapasitesi sırasıyla 47,21 mg/g ve 65,74 mg/g olarak tespit edilmiştir (deney koşulları; boya çözeltisinin başlangıç derişimi: 10 mg/L, adsorbent miktarı: 0.02 g, pH: 7). Kalmár ve ark. (2015) yaptıkları çalışmada TMOS kullanımı ile sentezlenen silika aerojellerin metilen mavisi adsorpsiyon kapasitesini 15,35 mg/g olarak belirlemişlerdir (deney koşulları; sıcaklık: 25°C, pH: 7). Maknun ve ark. (2018) şeker kamışı küspesi külünden elde ettikleri silika kserojelleri metilen mavisi adsorpsiyonunda adsorbent olarak kullanmışlardır. 5 mg/L boya çözeltisi için 35°C'de yapılan adsorpsiyon işlemi sonucunda adsorpsiyon kapasitesi 10,53 mg/g olarak bulunmuştur. Sıcaklığın 55°C'ye artırılmasıyla adsorpsiyon kapasitesinin 15,62 mg/g değerlerine ulaştığı görülmüştür.

Son zamanlarda silika aerogel/kserojeller potansiyel özellikleriyle antibakteriyel uygulamalarda kullanımı dikkat çekmektedir. Normalde antibakteriyel özellik göstermeyen silika aerogel/kserojeller salınım sistemlerinde yüzey modifikasyonu, polimer kaplama, metal/metal oksit katkısı ve ilaç yüklemesi gibi işlemler için taşıyıcı malzeme olarak kullanılmaktadır. Oh ve ark. (2015) TEOS kullanarak elde ettikleri silika aerojelleri TMCS ile modifiye ederek hidrofobik silika aerojelleri sentezlemişler ve

antibakteriyel özelliklerini incelemişlerdir. Hidrofilik silika aerogel yüzeyinde *S. Typhimurium* ve *L. innocua* bakterilerinin çoğaldığı belirlenmiştir. Hidrofobik silika aerogel yüzeyinde (temas açısı: 132°) ise bakteri tutunumunun oldukça düşük olduğu görülmüştür. Yayma plak metodu ile yapılan bakteri sayımı sonuçları hidrofobik silika aerogel varlığında *S. Typhimurium* ve *L. innocua* bakterilerinde sırasıyla 3,1±0,1 koloni oluşturan birim (KOB)/mL ve 3,0 KOB/mL azalma olduğunu göstermiştir. Aynı grubun *E. coli* ve *S. aureus* bakterileri üzerinde yaptığı diğer bir çalışmada da bakterilerin hidrofobik silika aerogel yüzeyine tutunumu sırasıyla %99,91 ve %99,93 azaltılmıştır (Oh ve ark., 2016). Silika aerogel/kserojeller yapısına polimerlerin ilavesi, malzemenin yüzey özelliklerinin değiştirilmesinde ve kontrollü antibiyotik salınımında uygulanan yaklaşımlar arasında yer almaktadır. Seleem ve ark. (2009) TEOS kullanarak sentezledikleri silika kserojelleri PEG (ağırlıkça %2) ile modifiye ederek gentamisin salınımında kullanmışlardır. Elde edilen sonuçlar 33 saatte silika kserojel ve PEG-silika kserojelden sırasıyla %57 ve %90 oranında gentamisin salınımı gerçekleştiğini göstermiştir. PEG ilavesi ile malzemenin gözenek yapısının kontrol edilebilmesi gentamisin salınımını arttırmıştır. *S. enterica* bakterileri üzerinde yapılan antibakteriyel testlerde serbest gentamisin aktivite göstermezken PEG-silika kserojeli 1,15 KOB/mL azalma sağlamıştır. Doğrudan antibakteriyel aktivite gösterebilen Ag⁺ ve Cu²⁺ gibi metal iyonlarının silika aerogel/kserojellere katkılanması da aerogel/kserojellere antibakteriyel aktivite kazandırmaktadır. Wu ve ark. (2009) silika kserojellere katkılanan Cu²⁺ miktarının silika kserojellerin antibakteriyel performansı üzerindeki etkisini araştırmışlardır. Oldukça düşük oranlarda (ağırlıkça %1) katkılanan Cu²⁺ iyonları 1 saat içerisinde *E. coli* ve *S. aureus* bakterilerinin %99 azalmasına katkıda bulunmuştur. Silika kserojelden salınan Cu²⁺ iyonları, negatif yüklü bakteri yüzeyine tutunarak bakterinin hücresel fonksiyonlarını engellemiş ve hücre ölümünü gerçekleştirmiştir.

Literatür çalışmalarından da görüldüğü üzere silika aerojellerin sentezinde başlangıç malzemesi olarak inorganik yan ürünlerin ya da organik atıkların kullanımı son zamanlarda ilgi odağı haline gelmiştir. Yapılan çalışmalar arasında volkanik tüf ve yerfıstığı kabuğu külü kullanılarak sentezlenen silika aerogel/kserojeller konusunda henüz bir çalışma bulunmamaktadır. Ayrıca bu tip başlangıç malzemelerinden elde edilen silika aerogel/kserojellere PEG ve karbon siyahı ilavesiyle hazırlanan kompozit malzemelerin yapısal, morfolojik, gözenek yapısı, termal, hidrofilik/hidrofobik vb. özelliklerinin incelendiği detaylı bir çalışma literatürde yer almamaktadır. Silika aerogel/kserojellerin uygulama alanlarına bakıldığında da adsorpsiyon ve antibakteriyel çalışmalar üzerinde

ilginin zamanla arttığı görülmektedir.

Bu tez çalışmasının amacı TEOS gibi pahalı ve sağlık açısından zararlı olan başlangıç malzemelerine alternatif olarak oldukça ucuz ve ülkemizin birçok yöresinde bol miktarda bulunan volkanik tüf ve organik bir atık olan yerfıstığı kabuğundan silika kserojel ve aerogeller sentezlenerek bu malzemelerin özelliklerinin karşılaştırılmasıdır. Ayrıca yüzey modifikasyonu, polietilen glikol (PEG) ve karbon siyahı (KS) ilavesinin malzemelerin özellikleri üzerindeki etkisinin incelenmesi amaçlanmıştır. Ardından elde edilen malzemelerin adsorpsiyon ve antibakteriyel uygulamalarda farklı amaçlarla kullanılabilirliği araştırılmıştır.



4. MATERYAL VE YÖNTEM

4.1. Kullanılan Başlangıç Malzemeleri ve Kimyasallar

Silika aerojel/kserojellerin sentezinde TEOS (Sigma-Aldrich, CAS: 78-10-4), volkanik tuf ve yerfıstığı kabuğu külü olmak üzere üç farklı başlangıç malzemesi kullanılmıştır.

Volkanik tüfler, volkanik patlamalar sonucu açığa çıkan tozların çökmesiyle oluşmaktadır. Ülkemizin birçok bölgesinde yaygın bir şekilde bulunan volkanik tüfler oldukça hafif, gözenekli ve termal dayanımı yüksek olan malzemelerdir. Avantajlarının yanı sıra oldukça ucuz olan bu malzemeler (~1,65 TL/kg), beton ve çimento sektöründe katkı maddesi olarak, aşındırıcı ve yapı taşı olarak, briket üretiminde, adsorpsiyon ve ısı yalıtımı uygulamalarında çeşitli amaçlarla kullanılmaktadır (Karatas, 2012; Al-Zboon ve Al-Zou'by, 2015; Al-Zboon ve ark., 2016; Toprak ve Arslanbaba, 2016). Volkanik tüflerin kimyasal bileşimi bulunduğu bölgeye göre değişmektedir. Bu çalışmada Kayseri Bölgesi'nden temin edilen ve kimyasal bileşimi %71,5 SiO₂, %14,0 Al₂O₃, %4,8 Na₂O, %4,2 K₂O, %2,8 Fe₂O₃, %1,3 CaO, %0,5 TiO₂, %0,5 MgO, %0,3 P₂O₅ ve %0,1 MnO olan volkanik tuf kullanılmıştır (Şener ve ark., 2013). Volkanik tufün görseli Şekil 4.1'de gösterilmiştir.



Şekil 4. 1. Sırasıyla volkanik tuf ve yerfıstığı kabuğu

Günümüzde yerfıstığı üretimi ve tüketimi her geçen gün hızla artmaktadır. 2016 yılında Dünya'da yaklaşık 44 milyon ton yerfıstığı üretimi yapılırken Türkiye'de aynı yıl 164 bin ton civarında yerfıstığı üretilmiştir (Kadiroğlu, 2018). Tüketicinin ardından açığa çıkan yerfıstığı kabuğu (tarımsal atık) değerlendirilmediği sürece çevre kirliliğine neden

olmaktadır. Yerfıstığı kabuğu, adsorpsiyon işlemlerinde adsorbent, hayvan yemi ve gübrede katkı maddesi ve çimentoda dolgu maddesi olarak kullanılma potansiyeline sahiptir (Qaiser ve ark., 2009; Idris ve ark., 2012; Sujatha ve ark., 2015). Şekil 4.1’de gösterilen yerfıstığı kabuğu selüloz, hemi-selüloz, lignin ve kül bileşenlerinden oluşmaktadır (Raju ve ark., 2012). Bu çalışmada kullanılan yerfıstığı kabuğu külü (YFK külü) ise %33,9 SiO₂, %13,3 Al₂O₃, %15,2 K₂O, %14,5 CaO, %13,4 Fe₂O₃, %2,2 MgO, %2,0 P₂O₃, %0,5 MnO ve %5,0 LOI içermektedir.

TEOS kullanılan sol-jel prosesinde çözücü olarak etanol (Sigma-Aldrich, CAS: 64-17-5) kullanılmıştır. Asit katalizörü olarak HNO₃ (Merck, CAS: 7697-37-2) ve H₂SO₄ (Merck, CAS: 7664-93-9), baz katalizörü olarak NH₄OH çözeltisi (Merck, CAS: 1336-21-6) kullanılmıştır. Yaşlandırma ve yıkama işleminde sırasıyla izopropanol (Merck, CAS: 67-63-0) ve n-hekzan (Merck, CAS: 110-54-3) kullanılmıştır.

Volkanik tüf ve yerfıstığı kabuğundan silika aerojel/kserojel sentezinde, silika ekstraksiyonu için NaOH (Sigma-Aldrich, CAS: 1310-73-2), jelleşmeyi sağlamak amacıyla da HCl (Sigma-Aldrich, CAS: 7647-01-0) kullanılmıştır.

Silika aerojel/kserojel kompozitlerin hazırlanmasında PEG-400 (Merck, CAS: 25322-68-3) ve karbon siyahı (partikül boyutu < 45 µm) dolgu maddesi olarak kullanılmıştır.

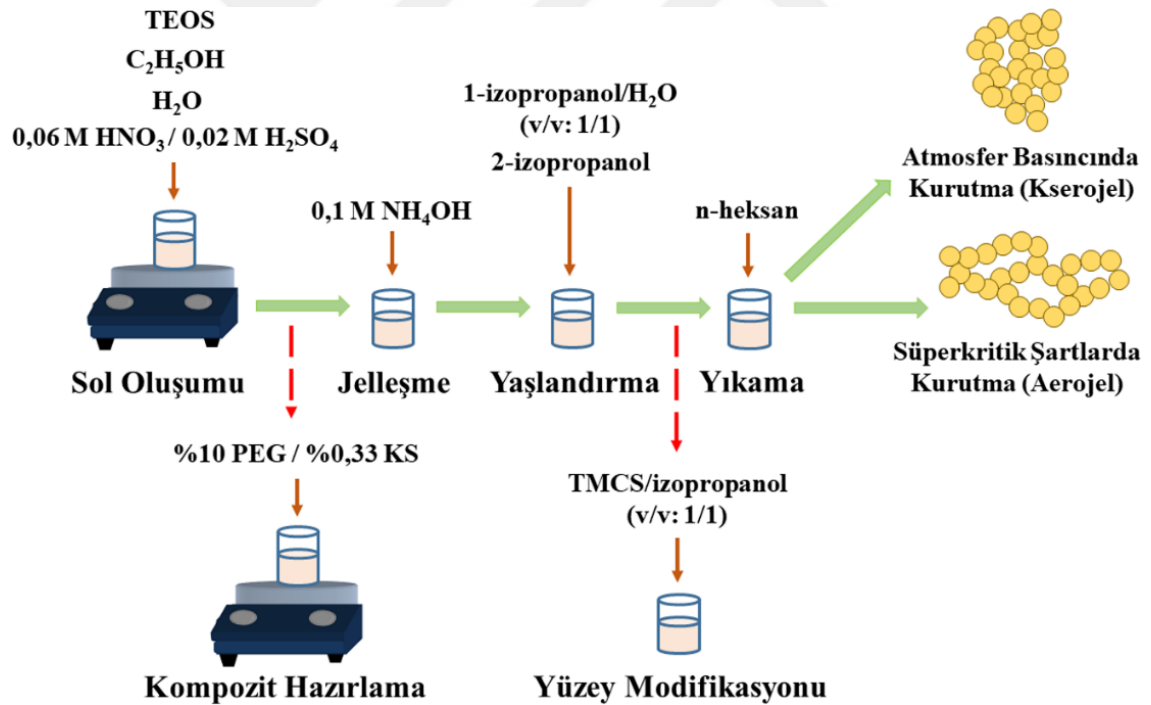
Elde edilen malzemelerin yüzey modifikasyonu için TMCS (Sigma-Aldrich, CAS: 75-77-4) kullanılmıştır.

Adsorpsiyon uygulamalarında katyonik bir boya olan metilen mavisi (MB, C₁₆H₁₈ClN₃S, Sigma-Aldrich, CAS: 122965-43-9) kullanılmıştır.

Antibakteriyel aktivite testlerinde linezolid (C₁₆H₂₀FN₃O₄, MedChemExpress, CAS: 165800-03-3) model ilaç olarak kullanılmıştır. ε-poli-l-lizin katyonik polimeri ((C₆H₁₂N₂O)_n, CAS: 28211-04-3) Chengdu Jinkai Biology Engineering) malzemelerin yüzey kaplamasında kullanılmıştır. Bakteri türü olarak Gram-negatif bakteri sınıfında yer alan *Escherichia coli* ATCC 25922 (*E. coli*, Leibniz Institute DSMZ - German Collections of Microorganisms and Cell Cultures GmbH, Germany) kullanılmıştır. Bakterilerin aktifleştirilmesi ve antibakteriyel aktivite testleri için Mueller-Hinton besiyeri ve Mueller-Hinton agar besiyeri (VWR International) kullanılmıştır. Linezolid salınımı deneyleri ve antibakteriyel aktivite testleri için fosfat tamponlu salin çözeltisi (PBS, GenoChem World) (pH: 7,4) kullanılmıştır.

4.2. TEOS Kullanımı ile Silika Aerojel/Kserojel ve Kompozitlerinin Sentezi

Silika aerojel/kserojeller, TEOS : H₂O : HNO₃ : NH₄OH mol oranının 1,00 : 4,04 : 2,5 x 10⁻³ : 2,5 x 10⁻² olduğu ve hidroliz işlemini kondenzasyon tepkimelerinin takip ettiği sol-jel yöntemiyle sentezlenmiştir. İlk olarak Şekil 4.2’de gösterildiği gibi TEOS, etanol içerisinde çözüldükten sonra çözeltiye H₂O ve 0,06 M HNO₃ eklenerek manyetik karıştırıcıda 30 dakika karıştırılmıştır. Elde edilen silika solüne 0,1 M NH₄OH çözeltisinin ilave edilmesiyle oda sıcaklığında jelleşme sağlanmıştır. Silika jelindeki bağların kuvvetlendirilmesi amacıyla yaşlandırma basamağında jeller, 50°C’de sırasıyla izopropanol/H₂O (hacimce 1/1) çözeltisinde ve izopropanolde 1 gün boyunca bekletilmiştir. Ardından alkojellerdeki safsızlıkları ve çözücülerini uzaklaştırmak için n-hekzanla yıkama işlemi yapılmıştır. Son olarak atmosfer basıncında (50°C) ve süperkritik CO₂ kurutma sisteminde (100 bar, 50°C, akış hızı: 1,5 L/dk 30 dakika, 3,0 L/dk 2 saat) gerçekleştirilen kurutma işlemiyle silika kserojeller ve aerojeller elde edilmiştir. Aynı işlemler 0,02 M H₂SO₄ katalizörü kullanılarak tekrarlanmıştır.



Şekil 4. 2. TEOS kullanımı ile silika aerojel/kserojel ve kompozitlerinin sentez şeması

Jelleşme aşamasından önce silika solüne ağırlıkça %10 PEG ve %0,33 KS ilavesiyle PEG/silika ve KS/silika kserojel/aerojel kompozitleri hazırlanmıştır. Dolgu maddelerinin homojen dağılımını sağlamak amacıyla karışımlar, 30 dakika boyunca

manyetik karıştırıcıda karıştırılmıştır. Karışımlara 0,1 M NH_4OH çözeltisinin eklenmesiyle birlikte jel oluşumu gözlenmiştir. Yaşlandırma ve kurutma basamakları Şekil 4.2’de gösterildiği gibi yürütülmüştür.

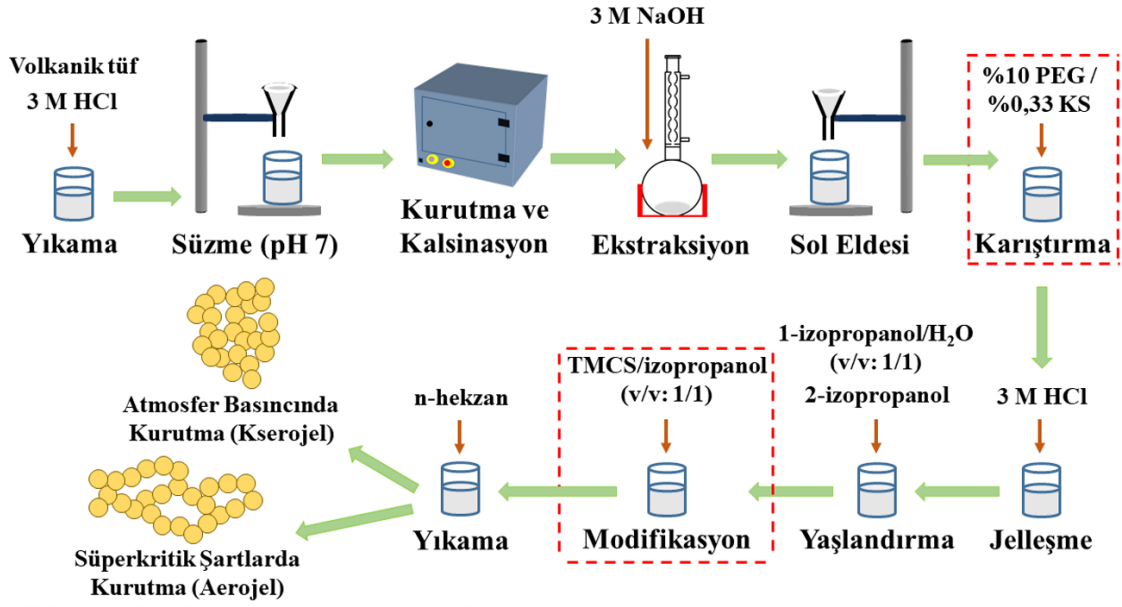
Yüzey modifikasyonu işlemi, yaşlandırma basamağından sonra silika alkojellerin 50°C ’de TMCS/izopropanol (hacimce 1/1) çözeltisi içerisinde 1 gün bekletilmesiyle gerçekleştirilmiştir.

4.3. Volkanik Tüften Silika Aerojel/Kserojel ve Kompozitlerinin Sentezi

Volkanik tüften silika aerojel/kserojel sentezi, Şekil 4.3’te gösterildiği gibi volkanik tüfün asitle yıkanması işlemiyle başlamıştır. Volkanik tüf içerisinde bulunan safsızlıkları gidermek amacıyla, volkanik tüf 3 M HCl çözeltisiyle 60°C ’de 1,5 saat karıştırılmıştır. Asit ile muamele edilen volkanik tüf süzülerek pH 7’ye kadar saf su ile yıkanmıştır. 70°C ’de kurutulan malzeme, 900°C ’de 3 saat kalsinasyon işlemine (ısıtma/soğutma hızı: $10^\circ\text{C}/\text{dakika}$) tabii tutulmuştur. Silika ekstraksiyonu, volkanik tüf ve 3 M NaOH çözeltisinin (ağırlık/hacim: 1/6) kaynama sıcaklığında 5 saat karıştırılmasıyla gerçekleştirilmiştir. Elde edilen Na_2SiO_3 çözeltisine, 3 M HCl çözeltisinin ilavesiyle pH 10 civarında jelleşme başlamıştır. Silika alkojellerin, TEOS sentezinde olduğu gibi aynı şartlarda yapılan yaşlandırma işleminin ardından atmosfer basıncında ve süperkritik kurutma şartlarında kurutulmasıyla silika kserojeller ve aerojeller elde edilmiştir.

Volkanik tüften silika aerojel/kserojel kompozitlerinin hazırlanması için Na_2SiO_3 çözeltisine PEG ve KS ilavesiyle elde edilen karışımlar 30 dakika karıştırılmıştır. Bu karışımlara 3 M HCl çözeltisinin eklenmesiyle jelleşmelerin başladığı görülmüştür. Şekil 4.3’te gösterilen yaşlandırma ve kurutma işlemlerinin ardından PEG/silika ve KS/silika kseojel/aerojel kompozitleri elde edilmiştir.

Volkanik tüften elde edilen silika alkojellerin yüzey modifikasyonu, ıslak emdirme yöntemi ile yapılmıştır. Silika alkojeller, 50°C ’de TMCS/izopropanol (hacimce 1/1) çözeltisinde 1 gün bekletilmiştir. Sentez sırasında oluşan Na^+ iyonlarının uzaklaştırılması amacıyla yapılan yıkama işleminin ardından silika alkojellerin atmosfer basıncında ve süperkritik CO_2 kurutma sisteminde kurutulmasıyla modifiye silika kserojeller ve aerojeller sentezlenmiştir.



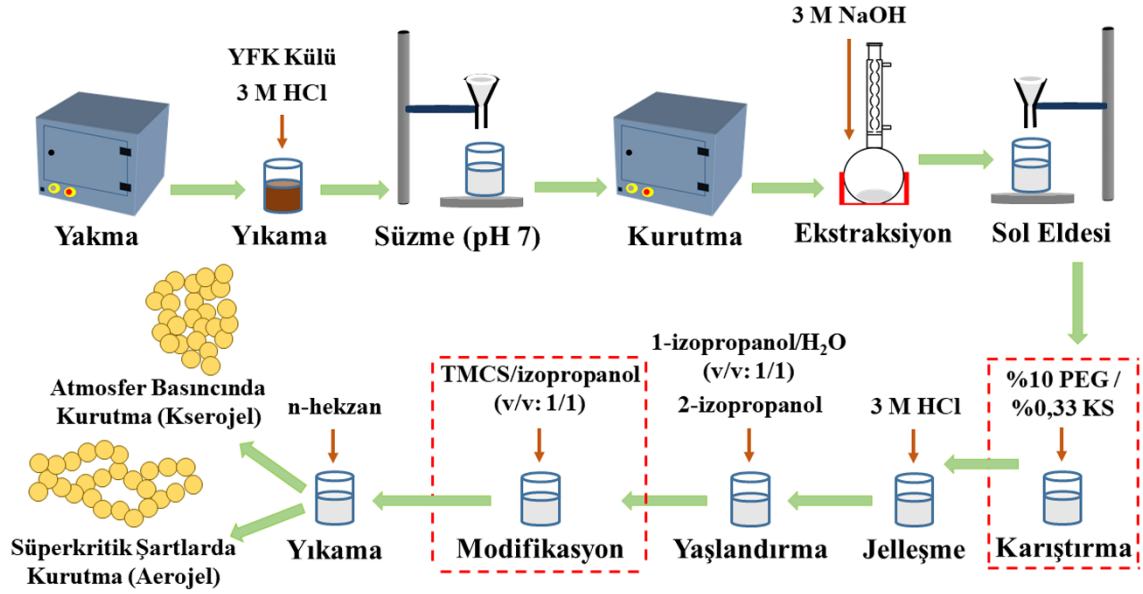
Şekil 4. 3. Volkanik tüften silika aerojel/kserojel ve kompozitlerinin sentez şeması

4.4. YFK Külünden Silika Aerojel/Kserojel ve Kompozitlerinin Sentezi

YFK külünden silika aerojel/kserojel ve kompozitlerinin sentez şeması Şekil 4.4'te gösterilmiştir. Öncelikle yerfıstığı kabuğu 650°C'de 3 saat yakılarak (ısıtma/soğutma hızı: 5°C/dakika) YFK külü elde edilmiştir. YFK külünün yapısında kalan hidrokarbonları ve safsızlıkları uzaklaştırmak amacıyla asitle muamele işlemi gerçekleştirilmiştir. YFK külü 3 M HCl çözeltisiyle 60°C'de 3 saat karıştırıldıktan sonra süzülerek pH 7'ye kadar yıkanmıştır. 70 °C'de kurutulan YFK külünün, 3 M NaOH çözeltisiyle (ağırlık/hacim: 1/6) kaynama sıcaklığında 5 saat karıştırılmasıyla Na₂SiO₃ çözeltisi elde edilmiştir. 3 M HCl çözeltinin ilavesiyle pH 10 civarında elde edilen jeller, yaşlandırma işlemi için 50°C'de sırasıyla izopropanol/H₂O (hacimce 1/1) çözeltisinde ve izopropanolde 1 gün boyunca bekletilmiştir. n-hekzan ile 50°C'de yıkama yapıldıktan sonra silika alkojellerin, atmosfer basıncında ve süperkritik CO₂ kurutma sisteminde kurutulmasıyla silika kserojeller ve aerojeller sentezlenmiştir.

Volkanik tüften silika aerojel/kserojel kompozitlerinin sentezinde olduğu gibi YFK külünden kompozit malzemelerin sentezinde de jelleşme basamağından önce PEG ve KS, Na₂SiO₃ çözeltisine ilave edilmiştir. Jelleşme işlemi, yaşlandırma ve kurutma basamaklarının takip ettiği proses ile PEG/silika ve KS/silika aerojel/kserojel kompozitleri hazırlanmıştır.

Diğer başlangıç malzemelerinde olduğu gibi YFK külünden elde edilen malzemelerin yüzey modifikasyonu için de ıslak emdirme yöntemi kullanılmıştır.



Şekil 4. 4. YFK külünden silika aerojel/kserojel ve kompozitlerinin sentez şeması

4.5. Silika Aerojel/Kserojel ve Kompozitlerinin Karakterizasyonu

4.5.1. XRD analizi

Silika aerojel/kserojeller ve kompozitlerinin kristalografik yapısını incelemek amacıyla X-ışını kırınım (XRD) analizleri yapılmıştır. 40 kV ve 40 mA gerilim altında Cu K α ışın kullanılarak (λ : 1,54 Å) 10°-80° arasında 2°/dakika tarama hızıyla ölçümler alınmıştır (Bruker D8 Advanced).

4.5.2. FTIR analizi

Silika aerojel/kserojeller ve kompozitlerinin kimyasal bağ yapısı, Fourier dönüşümü kızılötesi spektroskopisi (FTIR) analizleriyle incelenmiştir. 4000 - 400 cm⁻¹ aralığında malzemelerin FTIR spektrumları elde edilmiştir (Bruker Vertex 70).

4.5.3. FESEM analizi

Silika aerojel/kserojeller ve kompozitlerinin morfolojik yapısı alan emisyonlu taramalı elektron mikroskobu (FESEM) analizleriyle belirlenmiştir. Altın kaplama ile malzemelere elektriksel iletkenlik özelliği kazandırıldıktan sonra FESEM görüntüleri alınmıştır (TESCAN MAIA3 XMU).

4.5.4. N₂ adsorpsiyon-desorpsiyon ölçümü

Silika aerojel/kserojeller ve kompozitlerinin yüzey alanı ve gözenek yapısı özelliklerini incelemek amacıyla N₂ adsorpsiyon-desorpsiyon ölçümleri yapılmıştır. 423 K'de 8 saat yapılan degas işleminin ardından, 77 K'de N₂ adsorpsiyon-desorpsiyon

izotermeleri elde edilmiştir. Elde edilen verilerden yola çıkarak malzemelerin yüzey alanı Brunauer-Emmett-Teller (BET) metoduyla, gözenek hacmi ve boyutu Barrett-Joyner-Halende (BJH) metodu ile tespit edilmiştir (Micromeritics Tristar II 3020).

4.5.5. TGA analizi

Silika aerojel/kserojeller ve kompozitlerinin termal özellikleri termogravimetrik analizlerle (TGA) belirlenmiştir. TGA analizleri, N₂ atmosferi altında 25 - 800°C arasında 10°C/dakika ısıtma hızıyla yapılmıştır (METTLER STAR SW).

4.5.6. Termal iletkenlik ölçümü

Silika aerojel/kserojeller ve kompozitlerinin termal iletkenlik değerleri oda sıcaklığında yapılan termal iletkenlik ölçümleriyle tespit edilmiştir (C-THERM). 5 kez tekrarlanan ölçümlerden elde edilen değerlerin aritmetik ortalaması alınarak termal iletkenlik değerleri belirlenmiştir.

4.5.7. Yoğunluk ölçümü

Silika aerojel/kserojeller ve kompozitlerinin yığın yoğunluğu değerleri, malzemelerin kütlesinin hacmine oranlanmasıyla hesaplanmıştır.

4.5.8. Temas açısı ölçümü

Silika aerojel/kserojeller ve kompozitlerinin hidrofilik/hidrofobik yapısı temas açısı ölçümleriyle incelenmiştir (Dataphysics Oca50Mikro).

4.6. Adsorpsiyon/Desorpsiyon Deneyleri

Adsorpsiyon deneyleri için öncelikle 1000 mg/L derişime sahip stok çözelti hazırlanarak istenen derişimlerde MB çözeltileri hazırlanmıştır. Adsorpsiyon deneyleri, çeşitli derişimlerdeki 50 mL MB çözeltisinin farklı miktarlardaki adsorbentle etkileşiminin sağlanmasıyla 150 rpm karıştırma hızında sıcaklık kontrollü bir sistemde yürütülmüştür. Her bir deney güvenilir sonuçların elde edilebilmesi için en az iki kez tekrarlanmıştır. MB çözeltilerinin derişimleri UV-vis. spektroskopisi (UV-1800 Shimadzu) ile 664 nm dalga boyunda ölçülmüştür. MB giderim verimi (R, %) ve adsorpsiyon kapasitesi (q_e, mg/g) sırasıyla Eşitlik 4.1 ve 4.2 ile hesaplanmıştır (Shahabuddin ve ark., 2018).

$$R = \frac{C_0 - C_e}{C_0} \times 100 \quad (4.1)$$

$$q_{e, \text{ adsorpsiyon}} = \frac{C_0 - C_e}{m} \times V \quad (4.2)$$

C_0 : MB çözeltisinin başlangıçtaki derişimi (mg/L)

C_e : MB çözeltisinin denge anındaki derişimi (mg/L)

m : adsorbent miktarı (g)

V : MB çözeltisinin hacmi (L)

Optimum deney koşullarının belirlenmesinin ardından sırasıyla Eşitlik 4.3 ve 4.4'te gösterilen Langmuir ve Freundlich modelleri kullanılarak MB adsorpsiyon izotermi elde edilmiştir (Liu ve ark., 2010).

$$q_e = \frac{q_m \times b \times C_e}{1 + b \times C_e} \quad (4.3)$$

$$q_e = k_f \times C_e^{1/n} \quad (4.4)$$

q_m : maksimum adsorpsiyon kapasitesi (mg/g)

b : Langmuir adsorpsiyon sabiti (L/mg)

k_f : adsorpsiyon kapasitesi (mg/g)

n : Freundlich adsorpsiyon sabiti

MB desorpsiyon deneyleri, 0,01 g MB adsorplanmış adsorbentin 50 mL HCl çözeltisi içerisinde 150 rpm hızında karıştırılmasıyla yapılmıştır. HCl çözeltisinin farklı derişimlerinin (0,25 M, 0,50 M, 1,00 M ve 2,00 M) ve farklı desorpsiyon sürelerinin (1, 2, 3 ve 4 saat) MB desorpsiyonu üzerindeki etkisi incelenmiştir. MB desorpsiyon kapasitesi ($q_{e, \text{ desorpsiyon}}$, mg/g) Eşitlik 4.5 kullanılarak hesaplanmıştır (Daneshvar ve ark., 2017).

$$q_{e, \text{ desorption}} = \frac{V \times C_f}{M} \quad (4.5)$$

C_f : HCl çözeltisindeki MB derişimi (mg/L)

V : HCl çözeltisinin hacmi (L)

M : MB adsorplanmış adsorbent miktarı (g)

MB desorpsiyon verimi (D , %) Eşitlik 4.6 kullanılarak hesaplanmıştır.

$$D = \frac{q_{e, \text{desorpsiyon}}}{q_{e, \text{adsorpsiyon}}} \times 100 \quad (4.6)$$

MB desorpsiyon deneyleri güvenilir sonuçların elde edilebilmesi için iki kez tekrarlanmıştır ve aritmetik ortalamaları alınmıştır.

4.7. Optimizasyon Çalışmaları

Adsorpsiyon çalışmalarında optimum çalışma şartlarını belirlemek için Taguchi yönteminde L_{16} dizilimi kullanılmıştır. Çalışmada adsorpsiyona farklı parametrelerin etkisi incelenmiştir. Adsorpsiyon çalışmalarında incelenen faktörler ve seviyeleri Çizelge 4.1’de gösterilmiştir.

Çizelge 4. 1. MB adsorpsiyonu için seçilen deney faktörleri ve seviyeleri

Faktör	Tanım	Seviye 1	Seviye 2	Seviye 3	Seviye 4
A	Zaman (dakika)	60	90	120	150
B	Derişim (mg/L)	10	20	40	80
C	Adsorbent miktarı (g/mL)	0,0002	0,0004	0,0008	0,0016
D	Sıcaklık (°C)	25	30	35	40
E	pH	5	7	9	11

MB adsorpsiyonu için oluşturulan deney koşulları Çizelge 4.2’de gösterilmiştir.

Çizelge 4. 2. L_{16} dizilimine göre belirlenen deney koşulları

Test	Faktör				
	A	B	C	D	E
1	60	10	0,0002	25	5
2	60	20	0,0004	30	7
3	60	40	0,0008	35	9
4	60	80	0,0016	40	11
5	90	10	0,0004	35	11
6	90	20	0,0002	40	9
7	90	40	0,0016	25	7
8	90	80	0,0008	30	5
9	120	10	0,0008	40	7
10	120	20	0,0016	35	5
11	120	40	0,0002	30	11
12	120	80	0,0004	25	9
13	150	10	0,0016	30	9
14	150	20	0,0008	25	11
15	150	40	0,0004	40	5
16	150	80	0,0002	35	7

Deney sonuçlarının değerlendirilebilmesi için Taguchi yönteminde yer alan “daha büyük daha iyi” sınıflandırması seçilmiştir. Her bir deney için S/N oranları Eşitlik 4.7 kullanılarak hesaplanmıştır.

$$S/N = -10 \log \left[\frac{1}{n} \sum \left(\frac{1}{R_i} \right)^2 \right] \quad (4.7)$$

n : aynı deneyin tekrarlanma sayısı

Seviye i 'deki her bir faktörün ortalama S/N oranı ($(M) Faktör^{Seviye=i} = I$) Eşitlik 4.8 kullanılarak hesaplanmıştır.

$$(M)Faktör^{Seviye=i} = I = \frac{1}{n_{Ii}} \sum_{j=1}^{n_{Ii}} \left[\left(\frac{S}{N} \right) Faktör^{Seviye=i} = I \right]_j \quad (4.8)$$

n_{Ii} : I faktörünün i seviyesindeki sayısı

$[(S/N) Faktör^{Seviye=i} = I]_j$: I faktörünün i seviyesindeki S/N oranı

ANOVA tekniği ile MB adsorpsiyonu üzerinde hangi faktörün ne kadar katkısının olduğu belirlenmiştir. Her bir faktörün katkı yüzdesi (R_F , %) Eşitlik 4.9 kullanılarak hesaplanmıştır.

$$R_F = \frac{SS_R - (DoF_R V_{ER})}{SS_T} \times 100 \quad (4.9)$$

DoF_R : her bir faktörün serbestlik derecesi (her bir faktörün seviye sayısı (L) - 1)

Kareler toplamı (SS_T) Eşitlik 4.10 kullanılarak hesaplanmıştır.

$$SS_T = \sum_{j=1}^m \left(\sum_{i=1}^n R_i^2 \right) - mn(\bar{R}_T)^2 \quad (4.10)$$

m : deney sayısı

n : deneyin tekrarlanma sayısı

Ortalama R değeri ($\bar{R}_T$) Eşitlik 4.11 kullanılarak hesaplanmıştır.

$$\bar{R}_T = \sum_{j=1}^m \left(\sum_{i=1}^n R_i \right) / mn \quad (4.11)$$

Kareler faktöriyel toplamı (SS_F) Eşitlik 4.12 kullanılarak hesaplanmıştır.

$$SS_F = \frac{mn}{L} \sum_{k=1}^L (\bar{R}_k^F - \bar{R}_T)^2 \quad (4.12)$$

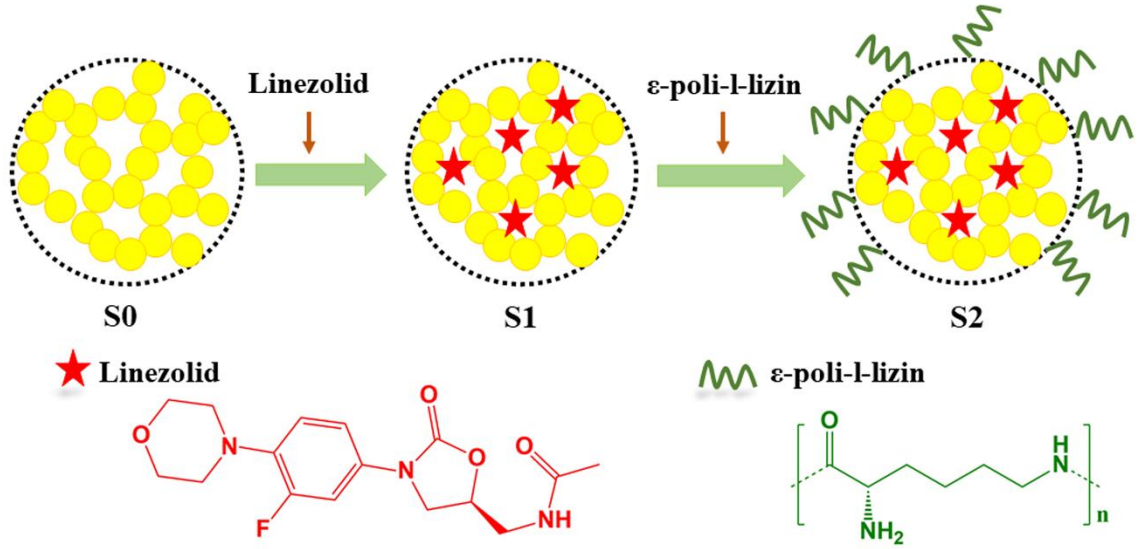
$\bar{R}_k^F$: kth seviyesindeki belirli bir faktöre ait sonuçların ortalama değeri

Hata varyansı Eşitlik 4.13 kullanılarak hesaplanmıştır (Zolgharnein ve Rastgordani, 2018).

$$V_{ER} = \frac{SS_T - \sum_{F=A}^E SS_F}{m(n-1)} \quad (4.13)$$

4.8. Antibiyotik Yüklü Silika Kserojel Sentezi ve Antibakteriyel Aktivite Testleri

Volkanik tüf kullanımı ile sentezlenen silika kserojellerin antibakteriyel uygulamalarda taşıyıcı olarak kullanıldığı yeni bir ilaç salınım sistemi Şekil 4.5'te gösterildiği gibi tasarlanmıştır. 40 mg silika kserojel (S0), 20 mL H₂O içerisinde ultrasonik banyoda dağıtılmıştır. 20 mg linezolid eklendikten sonra süspansiyon oda sıcaklığında 1 gün boyunca karıştırılmıştır. Elde edilen linezolid yüklü silika kserojel (S1) vakum filtrasyon işleminin ardından oda sıcaklığında vakum altında kurutulmuştur. 25 mg S1 malzemesi 5 mL H₂O içerisinde homojen bir şekilde dağıtıldıktan sonra süspansiyona 50 mg ε-poli-l-lizin eklenmiştir. Süspansiyon 1 gün oda sıcaklığında karıştırıldıktan sonra vakum filtrasyon işlemi uygulanmıştır. Malzeme yüzeyine tutunmayan ε-poli-l-lizin polimerinin uzaklaştırılması için malzeme üç defa 5 mL H₂O ile yıkanmıştır. ε-poli-l-lizin kaplı linezolid yüklü silika kserojel (S2) oda sıcaklığında vakum altında 1 gün boyunca kurumaya bırakılmıştır.



Şekil 4. 5. ε-poli-l-lizin kaplı linezolid yüklü silika kserojel sentezi

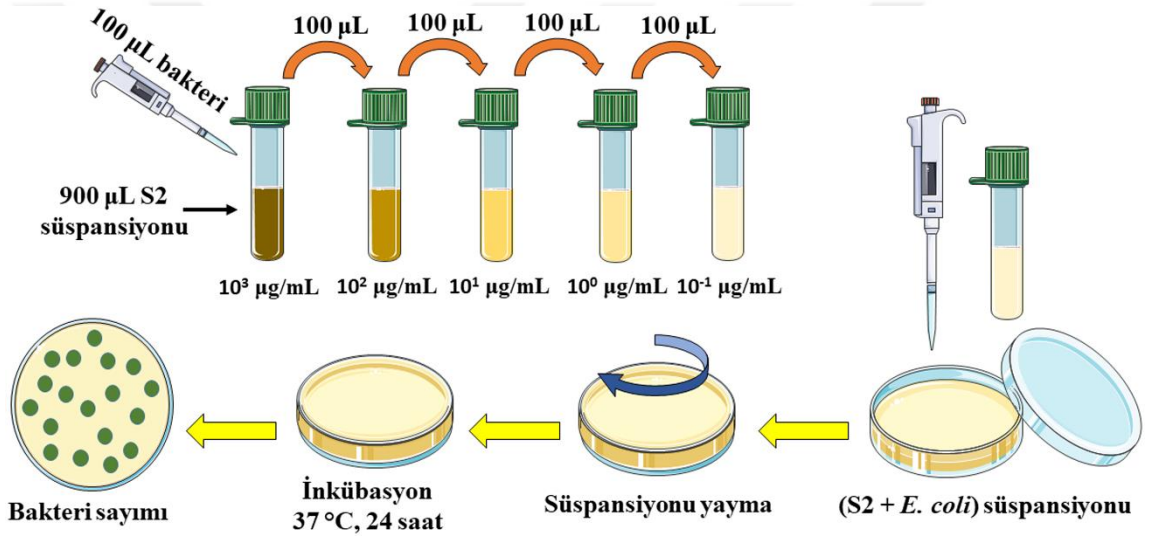
S1 ve S2 malzemelerinin kristalografik yapısını incelemek amacıyla XRD analizleri yapılmıştır. 40 kV ve 40 mA gerilim altında Cu K α ışın kullanılarak (λ : 1,54 Å) 10°-80° arasında 2°/dakika tarama hızıyla ölçümler alınmıştır (Bruker D8 Advanced). S1 ve S2 malzemelerinin kimyasal bağ yapısı, FTIR analizleriyle incelenmiştir. 4000 - 400 cm⁻¹ aralığında malzemelerin FTIR spektrumları elde edilmiştir (Bruker Tensor 27). 1 mg S0, S1 ve S2 malzemelerinin sırasıyla 1 mL H₂O içerisinde dağıtılmasının ardından malzemelerin zeta potansiyeli ve partikül boyutu belirlenmiştir (Zetasizer Nano). S1 ve S2 malzemelerinde bulunan linezolid ve ε-poli-l-lizin miktarı UV-vis. spektroskopisi (Perkin-Elmer Lambda 35) ve TGA analizleri (851e Mettler Toledo balance) ile hesaplanmıştır.

Bakterilerin aktifleştirilmesi için 21 g Mueller-Hinton besiyerinin 1 L H₂O içerisinde çözülmesiyle besiyer çözeltisi elde edilmiştir. Besiyer çözeltisi otoklavda 121°C'de 15 dakika sterilize edilmiştir. 100 µL bakteri kültürü 5 mL Mueller-Hinton besiyerine ekildikten sonra 37°C'de yapılan inkübasyon sonucu *E. coli* kolonileri oluşturulmuştur. Antibakteriyel aktivite testlerinde kullanılacak olan bakteri büyüme ortamları 38 g Mueller-Hinton agar besiyerinin 1 L H₂O içerisinde çözülmesiyle hazırlanmıştır. Agar besiyer çözeltisi otoklavda 121°C'de 15 dakika sterilize edilmiştir.

Antibakteriyel aktivite testleri için yayma plak metodu kullanılmıştır. İnkübasyon sonucu elde edilen bakteri kolonisi (10⁷ KOB) seyreltilerek *E. coli* kültürü hazırlanmıştır. Şekil 4.6'da gösterildiği gibi 900 µL S0, S1 veya S2 süspansiyonuna (1 mg malzeme/1 mL PBS) 100 µL bakteri eklenerek süspansiyonlar elde edilmiştir. Seyreltme işlemi ile

farklı derişimlerde hazırlanan süspansiyonlar 37°C’de 30 dakika inkübe edilmiştir. Her bir süspansiyondan 100 µL alınarak içerisinde Mueller-Hinton agar besiyeri bulunan petri kaplarına aktarılmıştır. Cam boncuklar yardımıyla süspansiyonlar petri kabı içerisinde homojen bir şekilde yayılmıştır. Petri kapları 1 gün boyunca 37°C’de inkübe edildikten sonra KOB yöntemi ile bakteri sayımı yapılmıştır. Ayrıca malzeme eklenmeden sadece bakterinin bulunduğu kontrol örneği hazırlanarak aynı prosedür uygulanmıştır. Yüzde bakteri sayısı (KOB, %) Eşitlik 4.14 kullanılarak hesaplanmıştır.

$$KOB = \frac{KOB_{örnek}}{KOB_{kontrol}} \times 100 \quad (4.14)$$



Şekil 4. 6. Antibakteriyel aktivite testi şematik gösterimi

5. SONUÇLAR VE TARTIŞMA

Yapılan tez kapsamında, sol-jel yöntemi ile TEOS, volkanik tüf ve YFK külünden sentezlenen silika kserojel ve aerojellerin özellikleri karşılaştırılmıştır. PEG ve KS ilavesiyle elde edilen silika aerojel/kserojel kompozitlerinin silika aerojel/kserojellere göre avantajları ve dezavantajları belirlenmiştir. Ayrıca ıslak emdirme yöntemi ile yapılan yüzey modifikasyonun, malzemelerin hidrofilik/hidrofobik yapısına etkisi tespit edilmiştir.

İlerleyen kısımlarda da bahsedileceği üzere HNO_3 (72,8 EUR/L) ya da H_2SO_4 (91,6 EUR/L) katalizörleri kullanılarak sentezlenen silika kserojel ve kompozitlerinin oldukça benzer özelliklere sahip olduğu görülmüştür. Bu nedenle maliyet dikkate alınarak TEOS kullanımı ile silika aerojel ve kompozitlerinin sentezi yalnızca HNO_3 katalizörü varlığında gerçekleştirilmiştir.

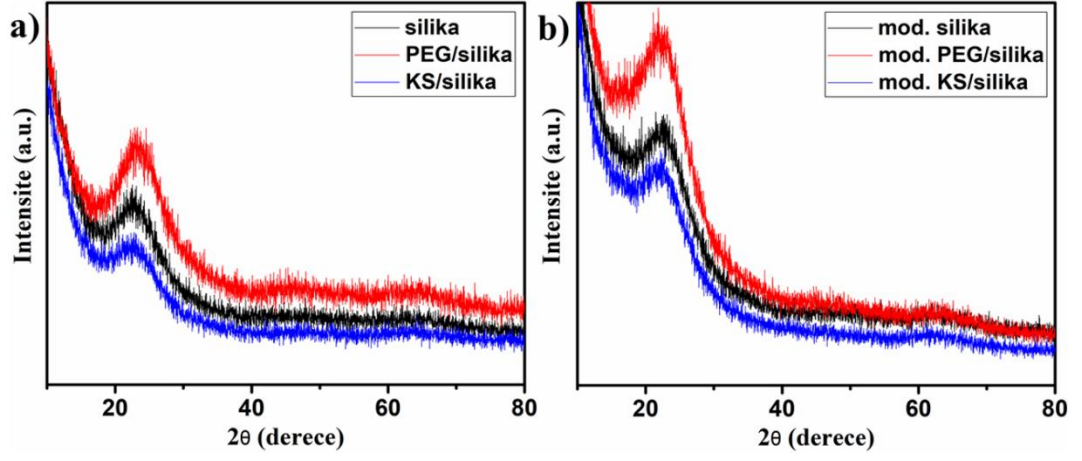
5.1. TEOS Kullanımı ile Sentezlenen Silika Aerojel/Kserojel ve Kompozitlerinin Özellikleri

5.1.1. XRD analizi

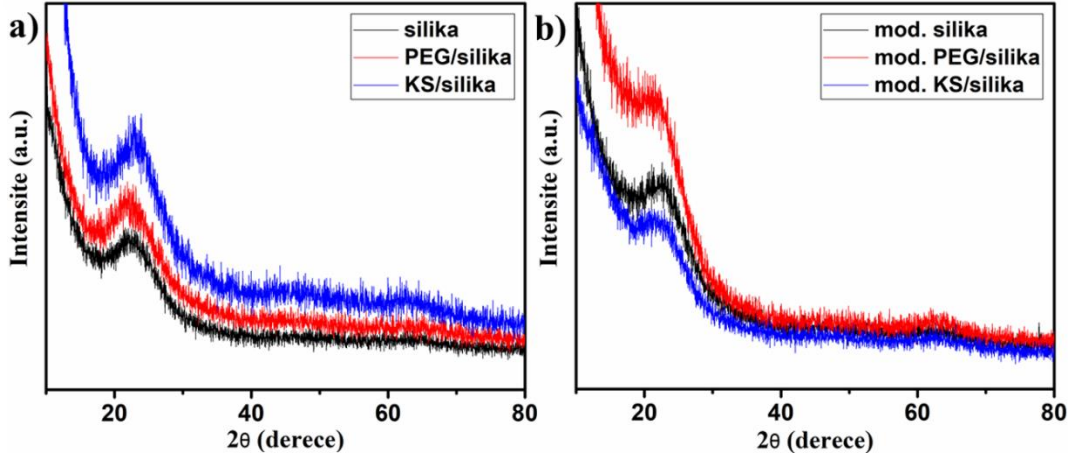
Katı malzemeler, kendisini oluşturan atom ya da iyonların kendi arasındaki düzenine göre sınıflandırılmaktadır. Atom veya iyonların belirli bir düzen içerisinde olduğu malzemeler kristal, düzenli bir atom dizilişi bulunmayan malzemeler ise amorf malzemeler olarak adlandırılmaktadır (Sharma ve ark., 2012). Malzemelerin kristal/amorf yapısı genellikle XRD analiziyle incelenmektedir (Bunaciu ve ark., 2015).

Şekil 5.1 ve 5.2’de TEOS kullanımı ile sırasıyla HNO_3 ve H_2SO_4 katalizörü varlığında sentezlenen silika kserojel ve kompozitlerinin XRD desenleri gösterilmiştir. Her iki katalizör varlığında $2\theta = 22^\circ$ civarında görülen geniş bantlar, amorf yapıda silika kserojel ve kompozitlerinin elde edildiğini kanıtlamıştır (Jaiboon ve ark., 2014).

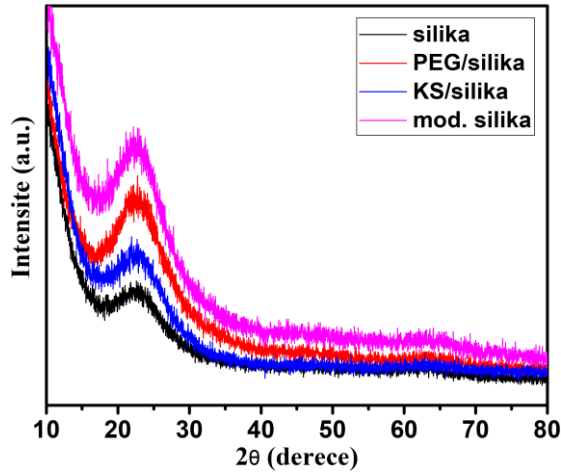
Şekil 5.3’te TEOS kullanımı ile sentezlenen silika aerojel ve kompozitlerinin XRD desenleri gösterilmiştir. Silika aerojel ve kompozitlerinin de amorf yapıda olduğu belirlenmiştir. Modifikasyon işleminin ardından silika aerojellerin amorf yapısının korunduğu tespit edilmiştir.



Şekil 5. 1. TEOS kullanımı ile HNO_3 katalizörü varlığında sentezlenen a) silika kserojel ve kompozitlerinin ve b) modifiye silika kserojel ve kompozitlerinin XRD desenleri



Şekil 5. 2. TEOS kullanımı ile H_2SO_4 katalizörü varlığında sentezlenen a) silika kserojel ve kompozitlerinin ve b) modifiye silika kserojel ve kompozitlerinin XRD desenleri

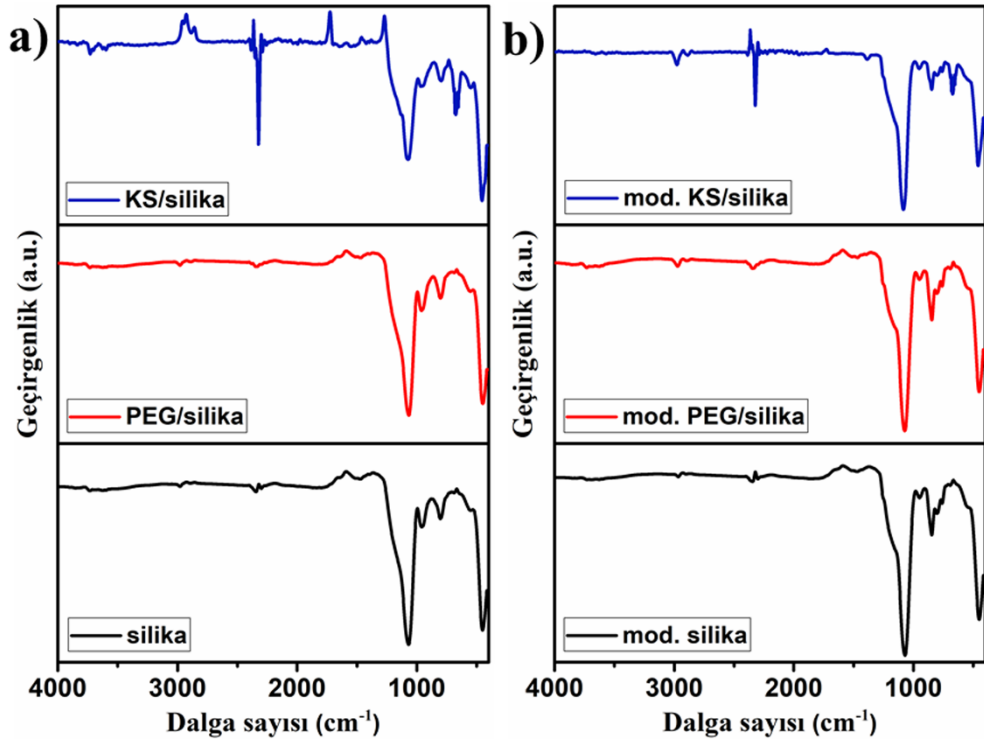


Şekil 5. 3. TEOS kullanımı ile sentezlenen silika aerojel ve kompozitlerinin XRD desenleri

5.1.2. FTIR analizi

Kızılötesi ışın altında malzemeyi oluşturan atomlar arasındaki bağların titreşimiyle oluşan frekanslara karşılık gelen absorpsiyon piklerini/bantlarını içeren spektrumlar elde edilmektedir. Elde edilen spektrumlar da malzemedeki kimyasal bağların belirlenmesini sağlamaktadır (Smith, 2011).

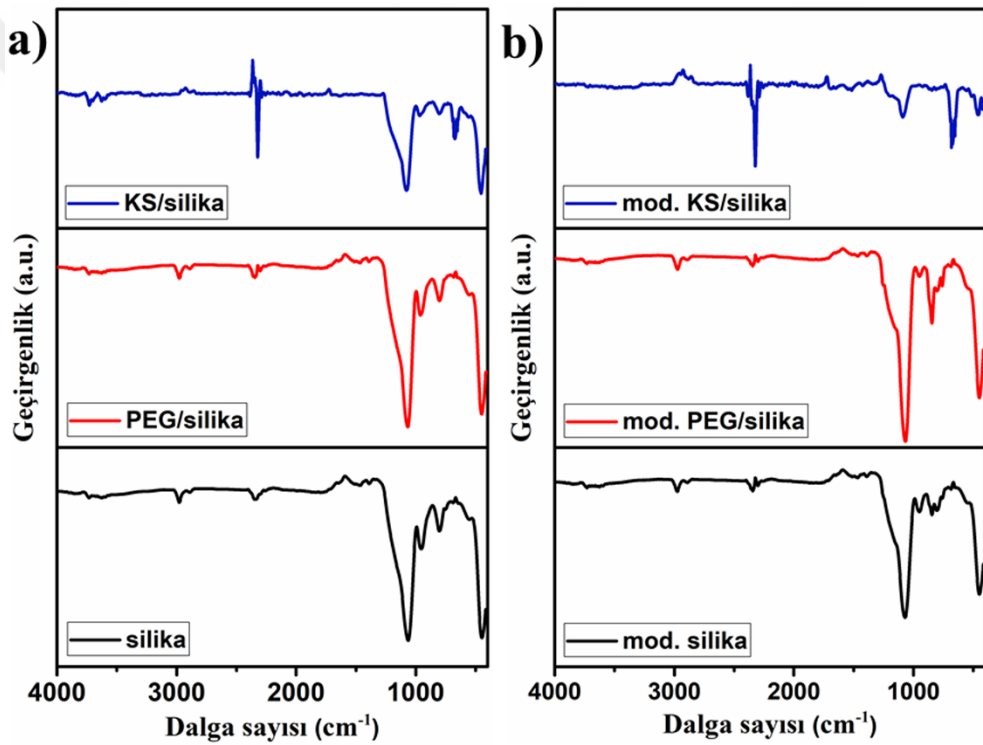
Şekil 5.4 ve 5.5'te TEOS kullanımı ile sırasıyla HNO_3 ve H_2SO_4 katalizörü varlığında sentezlenen silika kserojel ve kompozitlerinin FTIR spektrumları gösterilmiştir. Silika kserojel ve kompozitlerinin Si-O-Si asimetrik gerilme titreşimlerinden kaynaklanan karakteristik pikleri, 1066 cm^{-1} civarında gözlemlenmiştir. 796 cm^{-1} ve 451 cm^{-1} de görülen piklerin sırasıyla Si-O-Si simetrik gerilme ve eğilme titreşimlerine ait olduğu belirlenmiştir (Al-Oweini ve El-Rassy, 2009). 667 cm^{-1} ve 946 cm^{-1} civarında Si-OH gerilme titreşimleri sonucu piklerin oluştuğu görülmüştür. Si-OH gruplarından ve adsorplanan su moleküllerinden kaynaklanan -OH gerilme titreşimleri sonucunda 3390 cm^{-1} civarında geniş bir bant oluşmuştur. Ayrıca 1634 cm^{-1} de adsorplanmış su moleküllerine ait -OH gruplarından kaynaklanan pikler tespit edilmiştir (Li ve ark., 2016).



Şekil 5. 4. TEOS kullanımı ile HNO_3 katalizörü varlığında sentezlenen **a)** silika kserojel ve kompozitlerinin ve **b)** modifiye silika kserojel ve kompozitlerinin FTIR spektrumları

Silika kserojellere PEG ilavesi, FTIR spektrumunda önemli bir değişikliğe neden olmamıştır. 1100 cm^{-1} civarında görülen PEG moleküllerine ait C-O-C bağlarından dolayı oluşan bant, Si-O-Si asimetrik gerilme titreşimlerinden kaynaklanan piklerin yanında düşük şiddete sahip olduğu için görülememiştir (Durães ve ark., 2015). Benzer şekilde, PEG yapısında bulunan -OH grupları, 3390 cm^{-1} de görülen -OH gerilme bandına gözle görülür bir etki yapmamıştır (Tanthana ve Chuang, 2010).

KS/silika kserojel kompozitinin FTIR spektrumunun da silika kserojellerin FTIR spektrumuna benzer olduğu gözlemlenmiştir. 679 cm^{-1} ve 2323 cm^{-1} de görülen keskin piklerin sırasıyla Si-C gerilme titreşimlerinden ve CO_2 moleküllerinden kaynaklandığı belirlenmiştir (Durães ve ark., 2012).

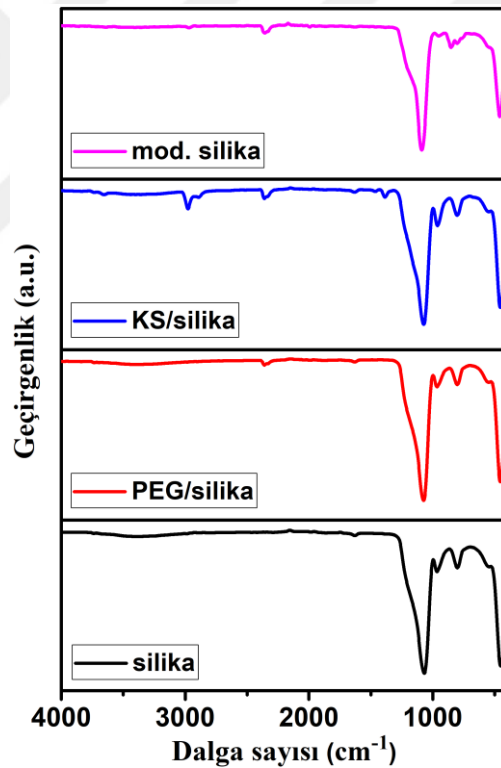


Şekil 5. 5. TEOS kullanımı ile H_2SO_4 katalizörü varlığında sentezlenen **a)** silika kserojel ve kompozitlerinin ve **b)** modifiye silika kserojel ve kompozitlerinin FTIR spektrumları

TMCS ile yapılan modifikasyon işleminin ardından malzemelere hidrofilik özellik kazandıran 3390 cm^{-1} deki -OH gruplarına ait bandın şiddetinin azaldığı görülmüştür. -OH gruplarında bulunan hidrojen ile TMCS yapısında bulunan Si- CH_3 fonksiyonel gruplarının yer değiştirmesiyle modifikasyon gerçekleşmiştir (Zhou ve ark., 2008). 850 cm^{-1} de görülen keskin pikin, modifikasyon işleminden sonra oluşan Si-C bağlarına ait olduğu belirlenmiştir. 1260 cm^{-1} civarında kısmen görülen pik de Si-C

bağlarının varlığını kanıtlamıştır (Mahadik ve ark., 2016).

Şekil 5.6'da TEOS kullanımı ile sentezlenen silika aerogel ve kompozitlerinin FTIR spektrumları gösterilmiştir. Silika kserojel ve kompozitlerinin FTIR spektrumlarına benzer spektrumlar elde edilmiştir. Ancak silika kserojel ve kompozitleri ile karşılaştırıldığında 3390 cm^{-1} civarındaki -OH bandının şiddetinin oldukça azaldığı görülmüştür. Başka bir ifadeyle silika kserojel ve kompozitlerinin temas açısı ölçümü sonuçlarında da bahsedileceği gibi daha hidrofilik yapıya sahip olduğu tespit edilmiştir (Rodriguez ve ark., 2014). Süperkritik CO_2 ortamında gerçekleştirilen kurutma sayesinde atmosfer basıncında sentezlenen silika kserojellere göre safsızlıkların azaldığı da net bir şekilde gözlemlenmiştir. 3390 cm^{-1} de, modifiye edilen silika aerogel yapısında -OH bandının görülmemesi ve 845 cm^{-1} de oluşan Si-C bağlarına ait pik verimli bir modifikasyon işleminin gerçekleştirildiği göstermiştir.



Şekil 5. 6. TEOS kullanımı ile sentezlenen silika aerogel ve kompozitlerinin FTIR spektrumları

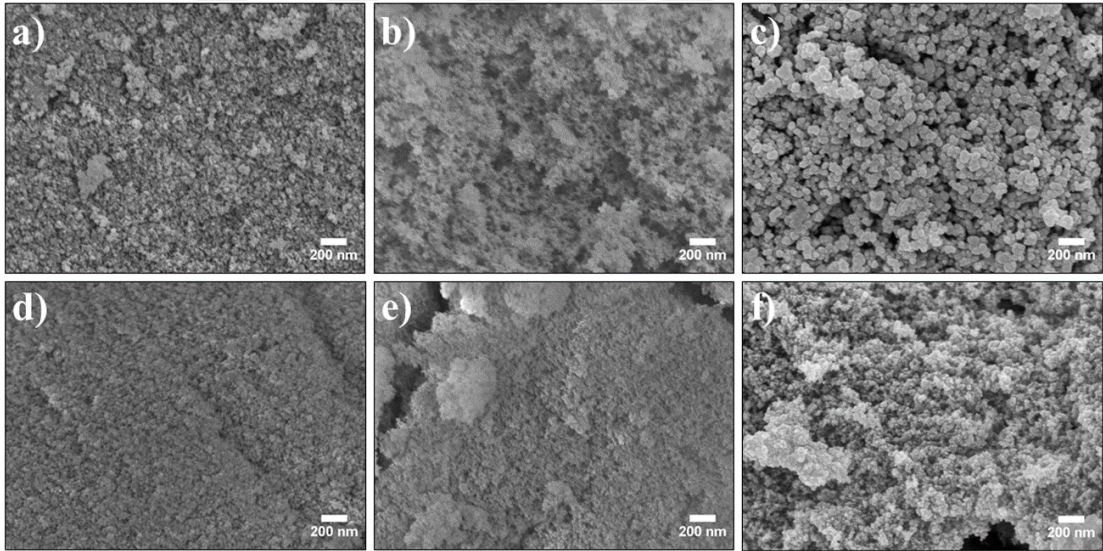
5.1.3. FESEM analizi

Malzemelerin yüzeyine bir elektron demetinin gönderilmesi ve yansıyan elektron ışınlarının toplanmasıyla elde edilen görüntülerden faydalanarak malzemelerin yüzey morfolojisi ayrıntılı bir şekilde incelenebilmektedir. FESEM analizi ile yüksek

çözünürlükte görüntüler elde edilebildiği için nano/mikro boyuttaki malzemelerin gözenek boyutu ve dağılımı da belirlenebilmektedir (Callister ve Rethwisch, 2011).

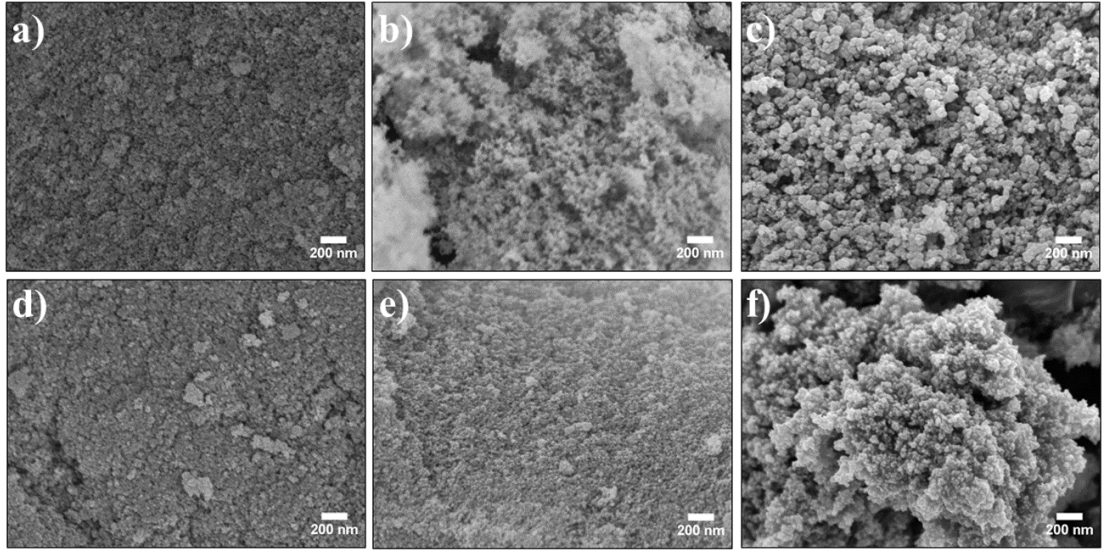
Şekil 5.7 ve 5.8’de TEOS kullanımı ile sırasıyla HNO_3 ve H_2SO_4 katalizörü varlığında sentezlenen silika kserojel ve kompozitlerinin FESEM görüntüleri gösterilmiştir. Farklı katalizörlerin kullanımı ile sentezlenen silika kserojel ve kompozitlerinin benzer yüzey morfolojisine sahip olduğu gözlemlenmiştir. Elde edilen malzemelerin gözenekli yapıya sahip olduğu görülmesine rağmen gözenekler oldukça küçük olduğu için malzemelerin gözenek boyutları tam olarak tespit edilememiştir.

Lineer molekül yapısına sahip PEG ilavesiyle hazırlanan silika kserojel kompozitin silika kserojele göre daha ağırsı yapıda olduğu görülmüştür (Durães ve ark., 2015). KS/silika kserojel kompozitinin de KS’nin küresel yapısının etkisiyle boncuk morfolojisine sahip olduğu gözlemlenmiştir (Meng ve ark., 2014). Diğer bir ifadeyle silika yapısının küresel KS tanecikleri üzerinde büyüyerek oluştuğu bir yüzey morfolojisi elde edilmiştir. Genel olarak PEG ve KS varlığında daha homojen dağılımlı yapıların oluştuğu belirlenmiştir.



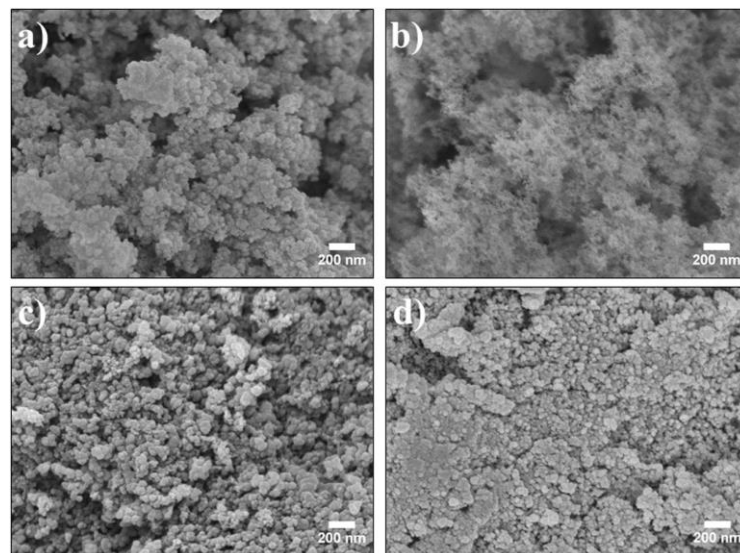
Şekil 5. 7. TEOS kullanımı ile HNO_3 katalizörü varlığında sentezlenen **a)** silika kserojel, **b)** PEG/silika kserojel, **c)** KS/silika kserojel kompozitlerinin, **d)** mod. silika kserojel, **e)** mod. PEG/silika kserojel ve **f)** mod. KS/silika kserojel kompozitlerinin FESEM görüntüleri

Literatür çalışmalarına benzer şekilde modifikasyon işleminden sonra elde edilen silika kserojel ve kompozitlerinin daha istiflenmiş yapıda olduğu tespit edilmiştir. Bu morfolojinin, silika kserojel ve kompozitlerinin özellikle gözenek yapısı ve yoğunluk değerlerini önemli ölçüde etkilediği bilinmektedir (Mahadik ve ark., 2016).



Şekil 5. 8. TEOS kullanımı ile H_2SO_4 katalizörü varlığında sentezlenen **a)** silika kserojel, **b)** PEG/silika kserojel, **c)** KS/silika kserojel kompozitlerinin, **d)** mod. silika kserojel, **e)** mod. PEG/silika kserojel ve **f)** mod. KS/silika kserojel kompozitlerinin FESEM görüntüleri

Şekil 5.9’da TEOS kullanımı ile sentezlenen silika aerogel ve kompozitlerinin FESEM görüntüleri gösterilmiştir. Silika aerogel ve kompozitleri, silika kserojel ve kompozitleri ile karşılaştırıldığında aerogellerin daha gözenekli yapıya sahip olduğu gözlenmiştir. Süperkritik kurutma yönteminin kullanılmasıyla kapiler etkilerin azaltılması sonucu daha gözenekli yapıların oluşumu sağlanmıştır. Diğer bir ifadeyle kurutma sırasında meydana gelen büzülmesinin minimize edilmesi malzemelerin gözenek yapısının korunmasında önemli rol oynamıştır.



Şekil 5. 9. TEOS kullanımı sentezlenen **a)** silika aerogel, **b)** PEG/silika aerogel, **c)** KS/silika aerogel kompozitlerinin ve **d)** mod. silika aerogelin FESEM görüntüleri

Silika aerogelin modifikasyon işleminden sonraki istiflenmiş yüzey morfolojisinin modifiye edilmiş silika kserojellerin morfolojisi ile benzer olduğu belirlenmiştir.

5.1.4. N₂ adsorpsiyon-desorpsiyon ölçümleri

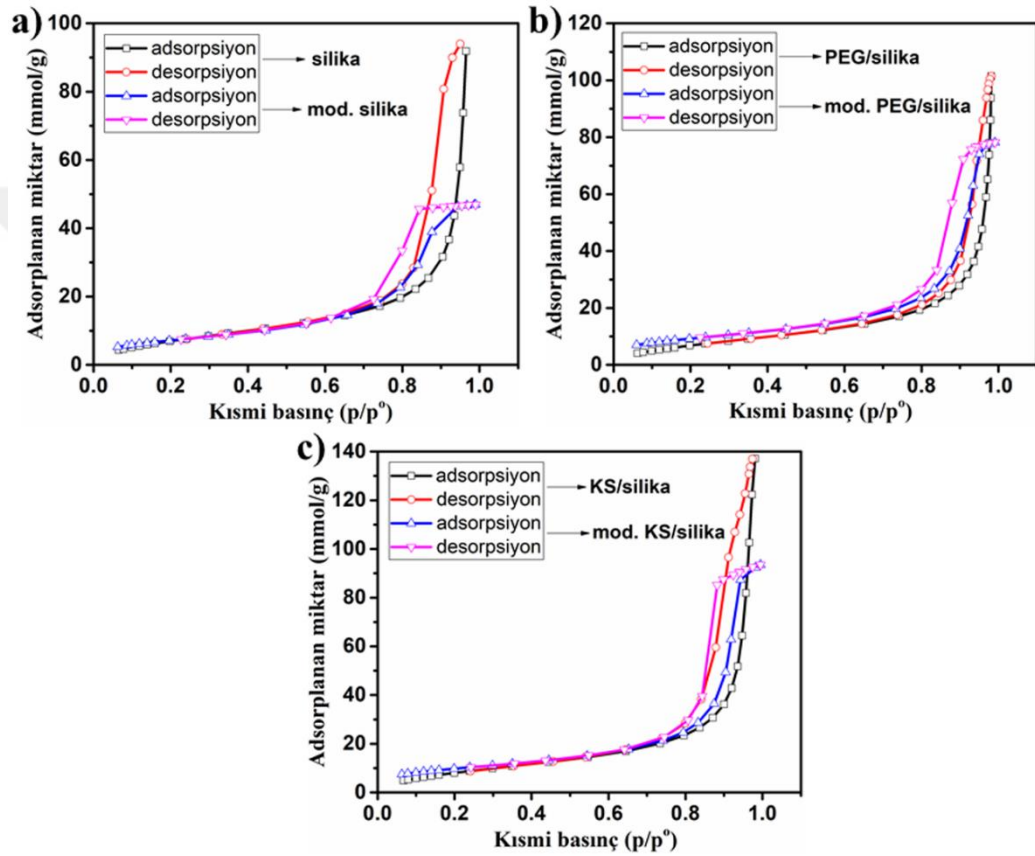
Malzemelerin yüzeyinin moleküler bir tabaka ile kaplanması için gerekli olan gaz miktarından yola çıkarak elde edilen izoterm malzemelerin gözenek yapısı hakkında bilgi vermektedir. Elde edilen izoterm şekillerinden gözenek tipi konusunda (tip I - mikrogözenek, tip II, III, VI - makrogözenek/ gözeneksiz ve tip IV, V - mezogözenek) yorum yapılabilmektedir (Alothman, 2012). İzotermelerden elde edilen verilerden malzemelerin yüzey alanı, gözenek boyutu, hacmi ve dağılımı elde edilebilmektedir. Ayrıca IUPAC tarafından malzemelerin, gözenek boyutuna göre yapılan sınıflandırmada mikrogözenekli (<2 nm), mezogözenekli (2-50 nm) ve makrogözenekli (>50 nm) malzemeler olarak adlandırıldığı bilinmektedir.

Şekil 5.10 ve 5.11’de TEOS kullanımı ile sırasıyla HNO₃ ve H₂SO₄ katalizörü varlığında sentezlenen silika kserojel ve kompozitlerinin N₂ adsorpsiyon-desorpsiyon izotermi gösterilmiştir. Ayrıca Çizelge 5.1 ve 5.2’de TEOS kullanımı ile sırasıyla HNO₃ ve H₂SO₄ katalizörü varlığında sentezlenen silika kserojel ve kompozitlerinin yüzey alanları ve gözenek yapısı özellikleri verilmiştir. Elde edilen malzemelerin N₂ adsorpsiyon-desorpsiyon izotermi literatürde sentezlenen silika kserojel izotermi ile benzer olduğu belirlenmiştir (Alie ve ark., 1999; Mosquera ve ark., 2008). HNO₃ ve H₂SO₄ katalizörü varlığında sentezlenen silika kserojel ve kompozitlerinin yüzey alanı, gözenek hacmi ve boyutu değerlerinin birbirine oldukça yakın olduğu gözlemlenmiştir. Silika kserojel ve kompozitlerinin gözenek boyutunun 2-50 nm arasında olması bu malzemelerin mezogözenekli olduğunu kanıtlamıştır.

HNO₃ katalizörü varlığında sentezlenen silika kserojelin yüzey alanı (594 m²/g) PEG ve KS ilavesinin ardından sırasıyla 756 m²/g ve 798 m²/g değerlerine ulaşmıştır. Porojen yapıya sahip olan PEG ve KS, silika kserojelin gözenek hacmi ve boyutu değerlerinde de artış sağlamıştır. Ancak bu malzemelerin belirli orandan fazlasının, malzemelerin yüzey alanını azaltarak gözenek yapısını değiştirdiği bilinmektedir (Kow ve ark., 2016).

Modifikasyon işleminin ardından malzemelerin yüzey alanı değerlerinde kısmi bir azalma gözlemlenmiştir. Silika kserojelin yüzey alanı (594 m²/g) modifikasyondan sonra 500 m²/g olarak belirlenmiştir. FESEM görüntülerinden de görüldüğü üzere meydana gelen istiflenme malzemelerin yüzey alanının azalmasına neden olmuştur. Ayrıca

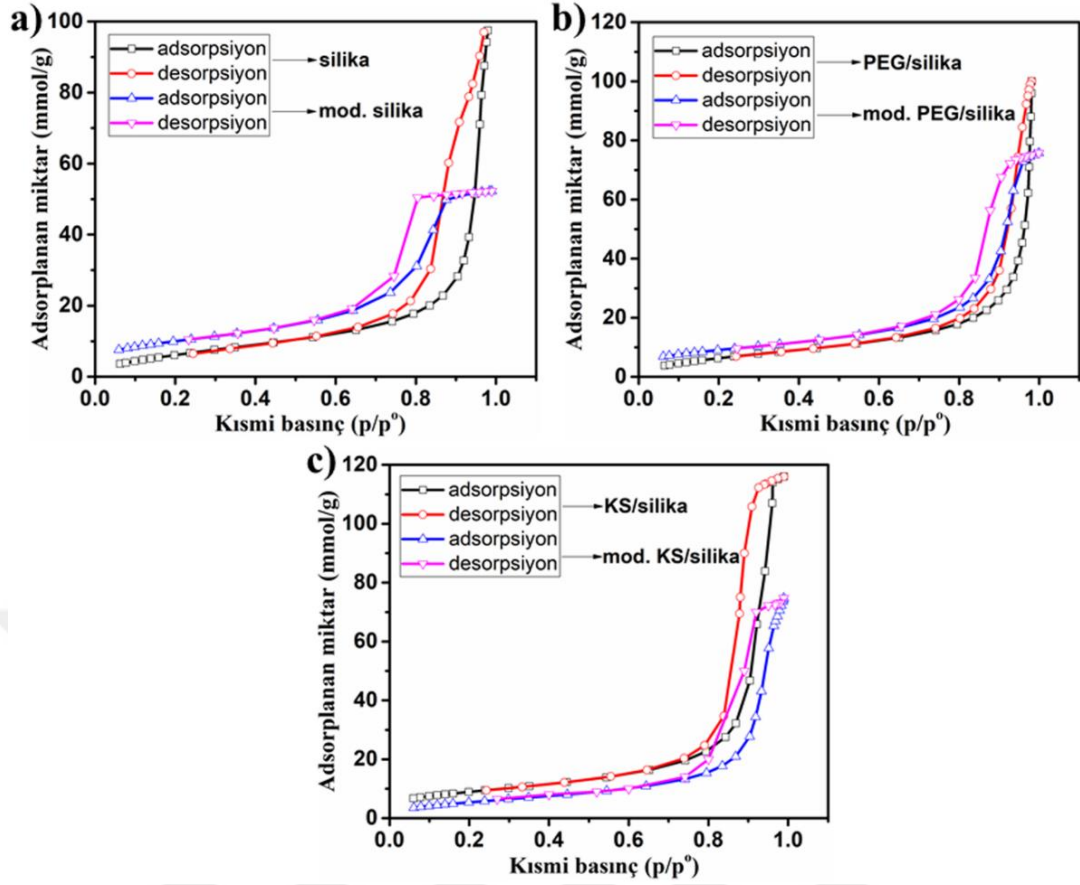
modifiye edilen malzemelerin gözenek hacmi ve boyutu da azalmıştır. Gözenek hacmi 1,64 cm³/g olan silika kserojelin yüzey modifikasyonun ardından gözenek hacmi 1,40 cm³/g'a düştüğü tespit edilmiştir. Literatürde de modifikasyon işlemi uygulanan silika kserojellerin gözenek yapısının benzer şekilde değiştiği görülmüştür. Bu durum genellikle malzeme gözeneklerine modifikasyon ajanının difüzyonlanması ve malzeme yüzeyinin modifikasyon ajanı ile kaplanmasından kaynaklanmaktadır (Jaiboon ve ark., 2014; Linneen ve ark., 2014; Maleki ve ark., 2015).



Şekil 5. 10. TEOS kullanımı ile HNO₃ katalizörü varlığında sentezlenen a) silika kserojel, b) PEG/silika kserojel ve c) KS/silika kserojel kompozitlerinin N₂ adsorpsiyon-desorpsiyon izotermi

Çizelge 5. 1. HNO₃ katalizörü varlığında sentezlenen silika kserojel ve kompozitlerinin yüzey alanları ve gözenek yapısı özellikleri

Örnek	Yüzey alanı (m ² /g)	Gözenek hacmi (cm ³ /g)	Gözenek boyutu (nm)
silika	594	1,64	10
PEG/silika	756	2,66	16
KS/silika	798	3,21	17
mod. silika	500	1,40	9
mod. PEG/silika	628	2,53	14
mod. KS/silika	748	3,00	16



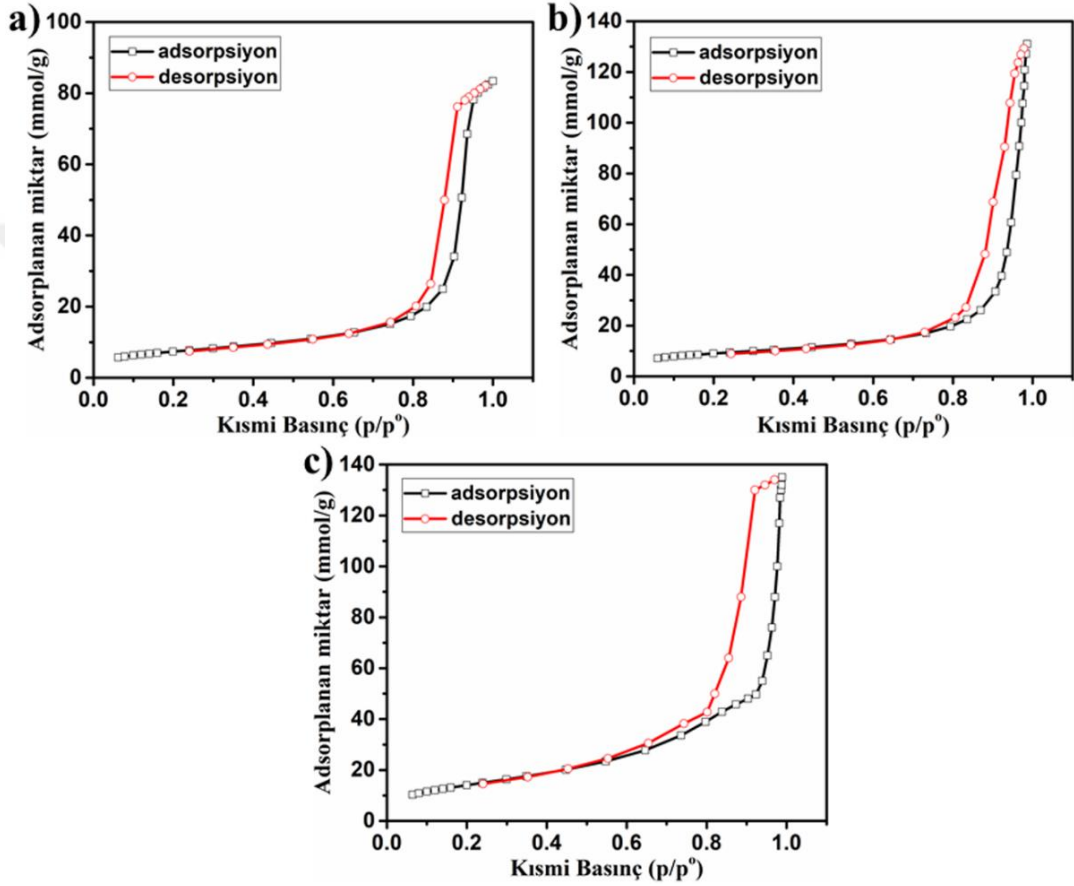
Şekil 5. 11. TEOS kullanımı ile H_2SO_4 katalizörü varlığında sentezlenen **a)** silika kserojel, **b)** PEG/silika kserojel ve **c)** KS/silika kserojel kompozitlerinin N_2 adsorpsiyon-desorpsiyon izotermi

Çizelge 5. 2. H_2SO_4 katalizörü varlığında sentezlenen silika kserojel ve kompozitlerinin yüzey alanları ve gözenek yapısı özellikleri

Örnek	Yüzey alanı (m^2/g)	Gözenek hacmi (cm^3/g)	Gözenek boyutu (nm)
silika	816	3,78	20
PEG/silika	743	2,58	15
KS/silika	732	3,06	17
mod. silika	570	1,74	14
mod. PEG/silika	590	2,00	13
mod. KS/silika	465	1,60	10

Şekil 5.12’de TEOS kullanımı ile sentezlenen silika arojel ve kompozitlerinin N_2 adsorpsiyon-desorpsiyon izotermi gösterilmiştir. Ayrıca Çizelge 5.3’te TEOS kullanımı ile sentezlenen silika arojel ve kompozitlerinin yüzey alanları ve gözenek yapısı özellikleri verilmiştir. Silika kserojel ve kompozitleri ile karşılaştırıldığında silika arojel ve kompozitlerinin kısmen daha yüksek yüzey alanına sahip oldukları tespit edilmiştir. Süperkritik kurutma yönteminin malzemelerin gözenek yapısı üzerindeki

etkisi net bir şekilde görülmüştür. Silika alkojelinin atmosfer basıncında ve süperkritik CO₂ altında kurutulmasıyla elde edilen malzemelerin gözenek hacmi sırasıyla 1,64 cm³/g ve 2,86 cm³/g olarak belirlenmiştir. Silika yapısındaki sıvı-buhar ara yüzeyinde meydana gelen yüzey gerilimlerinin minimize edilmesi gözeneklerin büzülmesini engelleyerek silika aerojel ve kompozitlerinin daha yüksek gözenek hacmine sahip olmasını sağlamıştır.



Şekil 5. 12. TEOS kullanımı ile sentezlenen **a)** silika aerojel, **b)** PEG/silika aerojel ve **c)** KS/silika aerojel kompozitlerinin N₂ adsorpsiyon-desorpsiyon izotermi

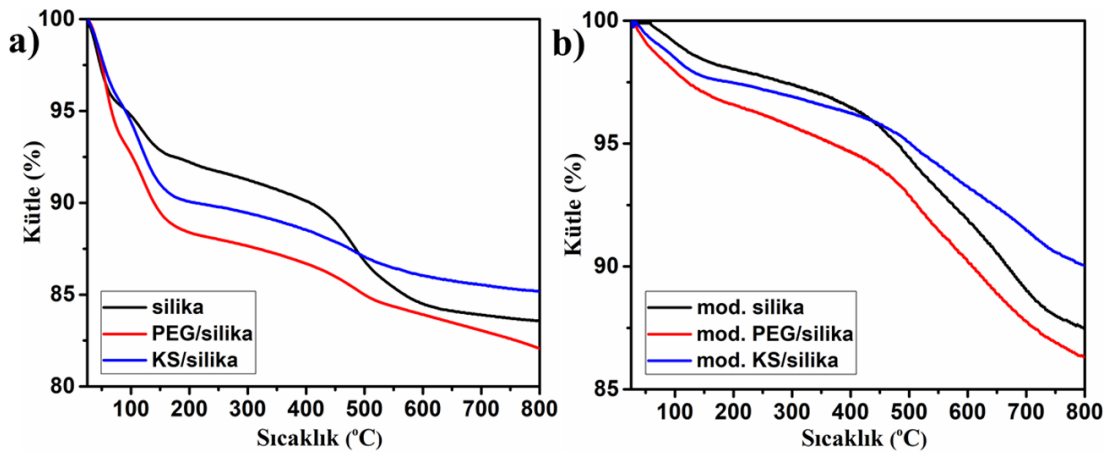
Çizelge 5. 3. TEOS kullanımı ile sentezlenen silika aerojel ve kompozitlerinin yüzey alanları ve gözenek yapısı özellikleri

Örnek	Yüzey alanı (m ² /g)	Gözenek hacmi (cm ³ /g)	Gözenek boyutu (nm)
silika	597	2,86	22
PEG/silika	762	4,26	32
KS/silika	800	4,46	30

5.1.5. TGA analizleri

Malzemelerin termal özellikleri kullanım yerlerinin belirlenmesinde önemli rol oynamaktadır. Belirli bir gaz altında, vakum ya da atmosfer koşullarında sıcaklığın etkisiyle malzemelerde fiziksel ve kimyasal değişiklikler (suyun uzaklaştırılması, parçalanma, oksidasyon, hidrasyon, gaz çıkışı vb.) görülebilmektedir. Malzemedeki fiziksel ve kimyasal bağların kopması veya oluşumu sonucu malzeme kütlelerinde değişiklikler görülmektedir. TGA analizinde artan sıcaklığa karşı malzemelerin kütlelerinde meydana gelen değişim kantitatif olarak belirlenmektedir (Speyer, 1994).

Şekil 5.13'te TEOS kullanımı ile HNO_3 katalizörü varlığında sentezlenen silika kserojel ve kompozitlerinin TGA eğrileri gösterilmiştir. Silika kserojel ve kompozitlerinin termal bozunma proseslerinin üç basamaktan oluştuğu görülmüştür. Malzeme yüzeyinde bulunan su moleküllerinin ve çözücü kalıntılarının uzaklaşması, 200°C 'ye kadar keskin bir kütle kaybına neden olmuştur. $200 - 500^\circ\text{C}$ arasında görülen kütle kaybı ise silika yapısındaki organik grupların bozunmaya başlamasından kaynaklanmıştır. 500°C 'nin üzerinde de organik yapılar tamamen bozunmuştur. 800°C 'de silika kserojelin kütlece %83,5'nin bozunmadan kalması elde edilen malzemenin oldukça yüksek termal kararlılığa sahip olduğunu göstermiştir (Hilonga ve ark., 2009).



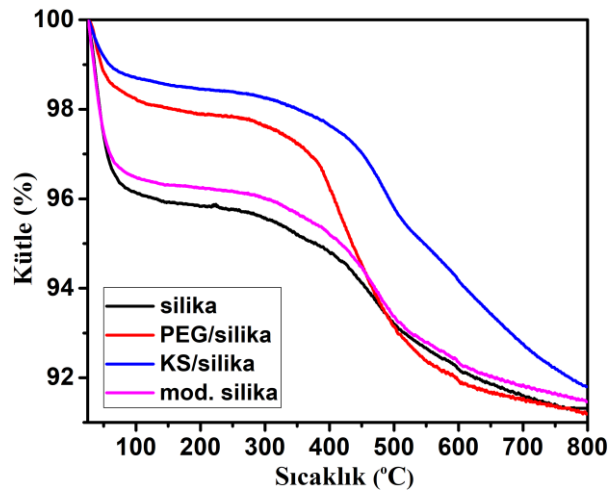
Şekil 5. 13. TEOS kullanımı ile HNO_3 katalizörü varlığında sentezlenen **a)** silika kserojel ve kompozitlerinin ve **b)** modifiye kserojel ve kompozitlerinin TGA eğrileri

PEG ilavesi ile silika kserojelin termal dayanımının kısmen azaldığı belirlenmiştir. PEG/silika kserojel kompozitinin 800°C 'de yaklaşık kütlece %81'nin bozunmadan kaldığı tespit edilmiştir. Yapısında $-\text{OH}$ grupları bulunduran PEG moleküllerinin $200 - 400^\circ\text{C}$ arasında bozunması, malzemenin termal kararlılığında kısmi

bir azalmaya neden olmuştur (Suchithra ve ark., 2012). KS'nin yüksek sıcaklıklardaki kararlı yapısı, silika kserojelin termal dayanımını olumlu yönde etkilemiştir. KS varlığında silika kserojelin 800°C'de bozunmadan kalan kısmının %86 civarında olduğu belirlenmiştir.

Modifikasyon işleminin ardından silika kserojel yapısındaki -OH gruplarındaki hidrojenlerin Si-CH₃ gruplarıyla yer değiştirmesi malzemelerin termal kararlılığını da etkilemiştir. Özellikle 200°C'ye kadar su moleküllerinin ve çözücü kalıntılarının uzaklaşmasıyla meydana gelen kütle kaybının oldukça ihmal edilebilir olduğu görülmüştür. Silika kserojelin modifikasyon işleminden sonra 800°C'de bozunmadan kalan kısmının %87,5 civarına ulaştığı belirlenmiştir.

Şekil 5.14'te TEOS kullanımı ile sentezlenen silika aerogel ve kompozitlerinin TGA eğrileri gösterilmiştir. Silika aerogel ve kompozitlerinde de silika kserojellerin termal bozunma davranışına benzer bir eğilim görülmüştür. Ancak, silika kserojel ve kompozitleriyle karşılaştırıldığında silika aerogel ve kompozitlerinin termal dayanımının kısmen daha yüksek olduğu tespit edilmiştir. Süperkritik CO₂ şartlarında yapılan kurutma, malzeme gözeneklerinde ve yüzeyinde su moleküllerinin ve çözücülerin birikimini önleyerek silika aerogel ve kompozitlerinin termal kararlılığı üzerinde olumlu etki yapmıştır (Li ve ark., 2017). Silika aerogelin 800°C'de %91,5'nin bozunmadan kaldığı belirlenmiştir.



Şekil 5. 14. TEOS kullanımı ile sentezlenen silika aerogel ve kompozitlerinin TGA eğrileri

PEG ilavesi, silika aerogelin termal kararlılığını ihmal edilebilir ölçüde azaltırken KS'nin termal dayanımı kısmen arttırdığı görülmüştür.

Modifikasyon işlemi silika aerogelin termal kararlılığını silika kserojellerde

olduğu kadar etkilememiştir. Modifiye edilen silika arojel 800°C’de kütlece %91,8’ni koruduğu tespit edilmiştir.

5.1.6. Termal iletkenlik ve yoğunluk ölçümleri

Malzemelerin sıcaklıkları farklı iki bölgesi arasında oluşan ısı enerjisi aktarımı termal iletkenlik olarak adlandırılmaktadır. Katı malzemelerde ısı, serbest elektronlar ve fononlar (atomların/moleküllerin titreşim dalgaları) aracılığıyla iletilmektedir. Metalik olmayan malzemelerde serbest elektronlar bulunmadığı için ısı iletimi sadece fononlar tarafından sağlanmaktadır (Li ve ark., 2017). Özellikle amorf yapıdaki malzemelerde atom yapısındaki düzensizliklerden kaynaklanan fonon saçılmalarından dolayı bu malzemelerin termal iletkenliklerinin daha düşük olduğu bilinmektedir. Ayrıca malzemelerin gözenek yapısı ısı iletim kabiliyetini önemli ölçüde etkilemektedir. Genellikle artan gözenek hacmiyle malzemelerin termal iletkenliğinin azaldığı görülmektedir (Lei ve ark., 2017).

Çizelge 5.4’te TEOS kullanımı ile HNO₃ katalizörü varlığında sentezlenen silika kserojel ve kompozitlerinin termal iletkenlik ve yoğunluk değerleri verilmiştir. Silika kserojelin termal iletkenlik değerinin 0,047 W/mK kadar düşük olduğu görülmüştür. Ayrıca silika kserojelin gözenekli yapısı oldukça düşük yoğunluklu (0,144 g/cm³) bir malzeme elde edilmesini sağlamıştır.

PEG ve KS ilavesinin malzemelerin gözenek yapısı üzerinde olumlu etkisi olmasına rağmen termal iletkenlik değerleri üzerinde önemli bir etkisi olmamıştır. Ancak malzemelerin yoğunluk değerlerinde kısmi bir artış gözlemlenmiştir. Malzemelerin yoğunluklarının termal iletkenlik kabiliyeti ile doğrudan ilişkili olduğu bilinmektedir. Daha yoğun ağ yapıya sahip malzemelerde ısı daha kolay iletilmektedir (Bisson ve ark., 2004). PEG/silika ve KS/silika kserojel kompozitlerinin yoğunluk değerleri silika kserojele göre daha yüksek olduğu için termal iletkenlik değerlerinde ihmal edilebilir bir artış tespit edilmiştir.

Çizelge 5. 4. HNO₃ katalizörü varlığında sentezlenen silika kserojel ve kompozitlerinin yoğunluk ve termal iletkenlik değerleri

Örnek	Termal iletkenlik (W/mK)	Yığın yoğunluk (g/cm ³)
silika	0,047	0,144
PEG/silika	0,048	0,184
KS/silika	0,048	0,194
mod. silika	0,048	0,187

Modifikasyon işleminin ardından da termal iletkenlik ve yoğunluk değerleri artmıştır. Daha sinterlenmiş bir yapının oluşumu malzemenin yoğunluğunu arttırarak ısı iletimini kolaylaştırmıştır. Literatürde de modifiye edilen malzemelerin yoğunluk ve termal iletkenlik değerlerinin arttığı görülmüştür (Bangi ve ark., 2008; Mahadik ve ark., 2016).

Çizelge 5.5'te TEOS kullanımı ile sentezlenen silika aerogel ve kompozitlerinin termal iletkenlik ve yoğunluk değerleri verilmiştir. Silika aerogel ve kompozitlerinin termal iletkenlik ve yoğunluk değerleri değerlendirildiğinde silika kserojel ve kompozitlerinkine benzer bir eğilim görülmüştür. Ancak silika aerogel ve kompozitlerinin daha düşük termal iletkenlik ve yoğunluk değerlerine sahip olduğu tespit edilmiştir. Silika aerogelin termal iletkenlik ve yoğunluk değeri sırasıyla 0,041 W/mK ve 0,082 g/cm³ olarak belirlenmiştir. Silika aerogel ve kompozitlerinin daha yüksek gözenek hacmine sahip olması oldukça düşük yoğunluklu malzemelerin elde edilmesini sağlamıştır. Gözenekler sayesinde malzeme içerisinde ısının aldığı serbest yolun kısıtlanması malzemelerin termal iletkenliklerinin düşük olmasında önemli rol oynamıştır (Jain ve ark., 2002).

Çizelge 5. 5. TEOS kullanımı ile sentezlenen silika aerogel ve kompozitlerinin yoğunluk ve termal iletkenlik değerleri

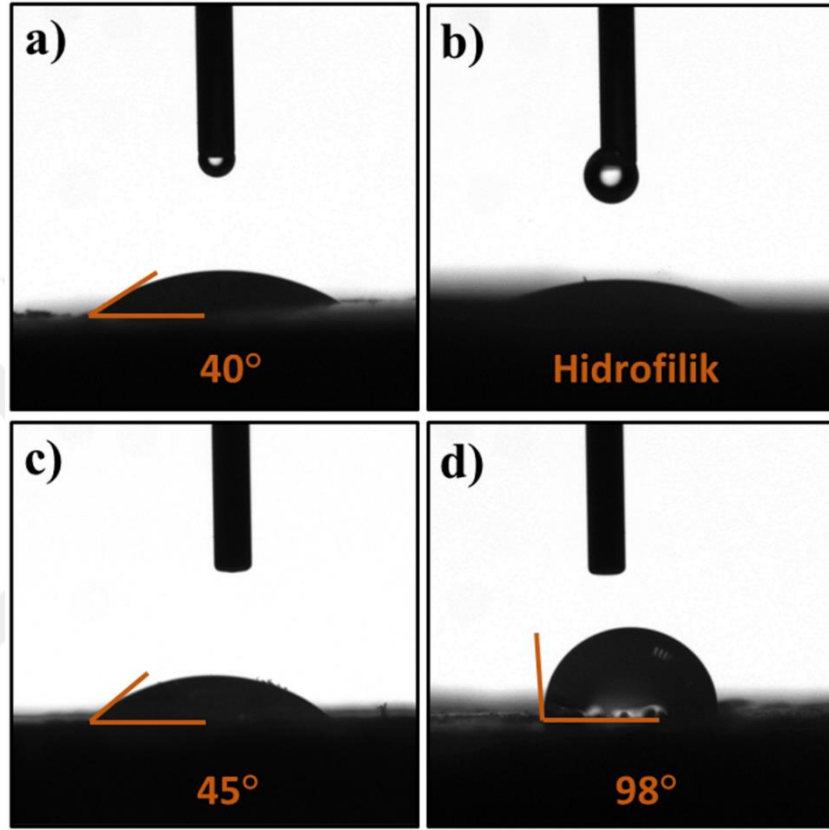
Örnek	Termal iletkenlik (W/mK)	Yığın yoğunluk (g/cm ³)
silika	0,041	0,082
PEG/silika	0,041	0,111
KS/silika	0,043	0,139
mod. silika	0,042	0,145

5.1.7. Temas açısı ölçümleri

Birçok uygulamada malzemelerin suyla olan etkileşimi kullanım koşullarını etkilemektedir. Malzemeler suyla yaptıkları temas açısına (θ) göre süper hidrofilik ($\theta < 5^\circ$), hidrofilik ($5^\circ < \theta < 90^\circ$), hidrofobik ($90^\circ < \theta < 150^\circ$) ve süper hidrofobik ($150^\circ < \theta$) olarak sınıflandırılmaktadır (Cao ve ark., 2007). Silika kserojel/aerogeller genellikle hidrofilik yapıya sahipken modifikasyon işlemlerinin ardından hidrofobik yapıya dönüşmektedirler.

Şekil 5.15'te TEOS kullanımı ile HNO₃ katalizörü varlığında sentezlenen silika kserojel ve kompozitlerinin temas açısı görüntüleri gösterilmiştir. Silika kserojelin temas açısının 40° kadar düşük olması hidrofilik yapıda olduğunu kanıtlamıştır.

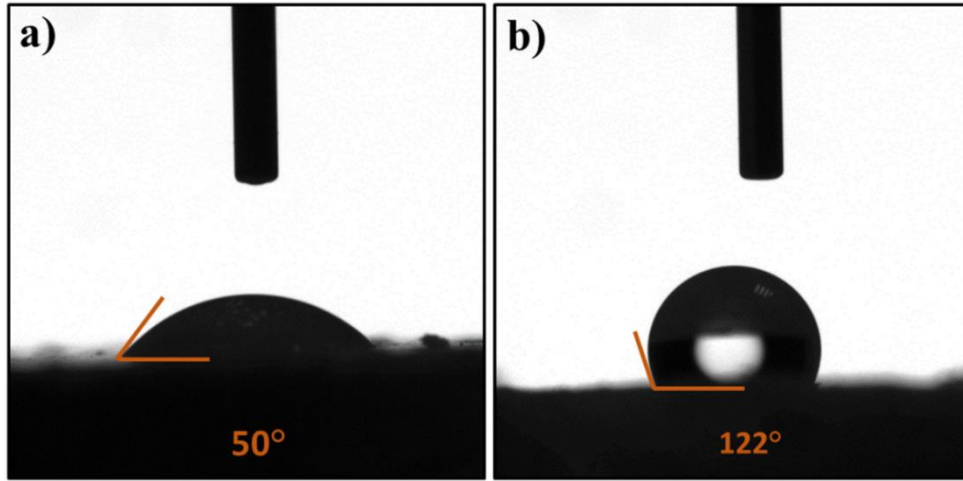
PEG/silika kserojel kompozitinin temas açısının ölçülememesi oldukça hidrofilik yapıda olduğunu göstermiştir. PEG moleküllerinin yapısında bulunan -OH gruplarının sudaki hidrojenlerle etkileşimi sonucu silika kserojele göre daha hidrofilik yapılar elde edilmiştir. KS ilavesiyle FTIR spektrumlarının da desteklediği şekilde silika kserojelin temas açısının kısmen arttığı belirlenmiştir.



Şekil 5. 15. TEOS kullanımı ile HNO_3 katalizörü varlığında sentezlenen **a)** silika kserojel, **b)** PEG/silika kserojel, **c)** KS/silika kserojel kompozitlerinin ve **d)** modifiye silika kserojelin temas açısı görüntüleri

Modifiye edilen silika kserojelin temas açısı 98° olarak belirlenmiştir. Silika kserojelin yüzeyindeki -OH gruplarında bulunan hidrojen ile TMCS'deki fonksiyonel grupların yer değiştirmesiyle hidrofobik malzemeler elde edilmiştir.

Şekil 5.16'da TEOS kullanımı ile sentezlenen silika aerogel ve modifiye silika aerogelin temas açısı görüntüleri gösterilmiştir. Silika aerogelin ve modifiye silika aerogelin temas açısı değerleri sırasıyla 50° ve 122° olarak tespit edilmiştir. Silika kserojellere kıyasla silika aerojellerin temas açısının kısmen daha yüksek olduğu görülmüştür. Süperkritik CO_2 kurutma yöntemi ile su moleküllerinin ve çözücü kalıntılarının büyük ölçüde uzaklaştırılması, silika aerojellerin daha hidrofobik yapıya sahip olmalarını sağlamıştır.

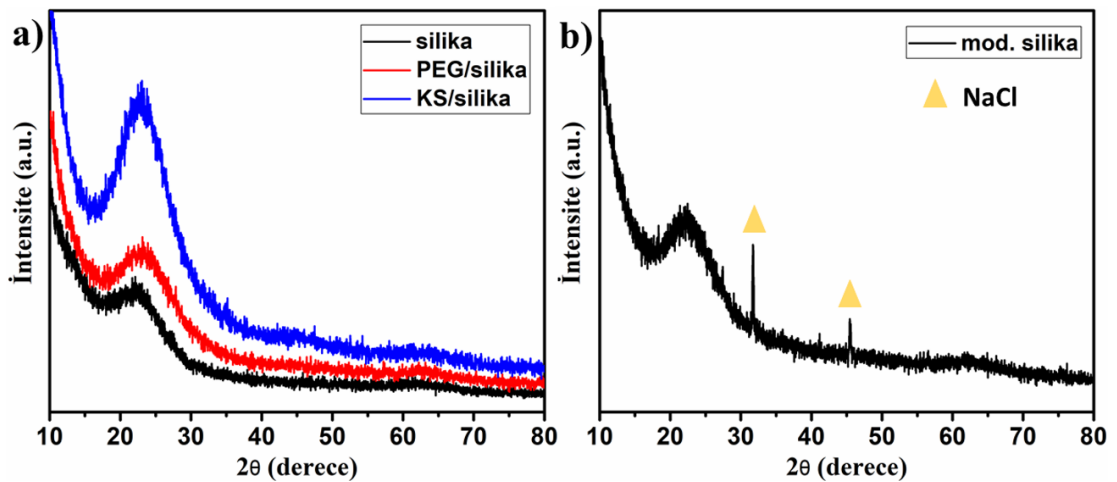


Şekil 5. 16. TEOS kullanımı ile sentezlenen a) silika aerogel ve b) modifiye silika aerogelin temas açısı görüntüleri

5.2. Volkanik Tüf Kullanımı ile Sentezlenen Silika Aerogel/Kserojel ve Kompozitlerinin Özellikleri

5.2.1. XRD analizi

Şekil 5.17’de volkanik tüf kullanımı ile sentezlenen silika kserojel ve kompozitlerinin XRD desenleri gösterilmiştir. Şekil 5.17a’da $2\theta = 22^\circ$ civarında görülen geniş bantlar, silika kserojel ve kompozitlerinin amorf yapıda sentezlendiğini kanıtlamıştır. Ayrıca malzemelerin XRD desenlerinde Na^+ iyonlarına ait piklere rastlanmamıştır.

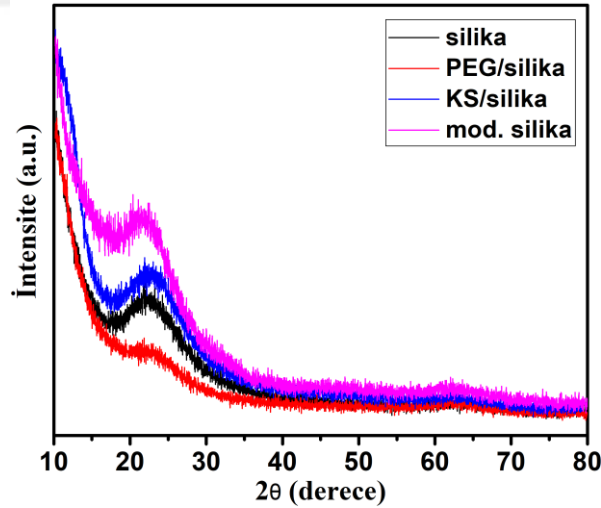


Şekil 5. 17. Volkanik tüf kullanımı ile sentezlenen a) silika kserojel ve kompozitlerinin ve b) modifiye silika kserojelin XRD desenleri

Şekil 5.17b’de modifiye silika kserojelin XRD deseninde Na^+ iyonlarına ait piklerin görülmesi malzemenin başarılı bir şekilde sentezlenemediğini göstermiştir. Yeterli oranda yıkama işlemi yapılmasına rağmen yaşlandırma ve kurutma basamağında Na^+ iyonlarının uzaklaştırılmadığı belirlenmiştir. Özellikle kurutma basamağında Na^+ iyonlarından kaynaklanan yüzey geriliminden dolayı gözeneklerin büzülmesi Na^+ iyonlarının uzaklaştırılmadan gözeneklerin içerisinde kalmasına neden olmuştur (Hu ve ark., 2016). Modifikasyon işlemi genellikle malzemenin orijinal boyutunun korunmasında önemli etki yaparken bu malzemelerin gözenek boyutu oldukça düşük olduğu için etkisini gösterememiştir (Soleimani Dorcheh ve Abbasi, 2008).

Şekil 5.18’de volkanik tüf kullanımı ile sentezlenen silika arojel ve kompozitlerinin XRD desenleri gösterilmiştir. Silika arojel ve kompozitlerinin de silika kserojeller gibi amorf yapıda olduğu belirlenmiştir.

Modifikasyon işleminin ardından volkanik tüften elde edilen silika kserojelin XRD deseninde Na^+ iyonlarına ait pikler gözlemlenirken silika arojelde Na^+ iyonlarına ait piklere rastlanmamıştır. Atmosfer basıncında yapılan kurutmanın yerine süperkritik CO_2 şartlarında yapılan kurutma, kapiler etkileri minimize ederek Na^+ iyonlarının gözeneklerde birikimini önlemiştir.



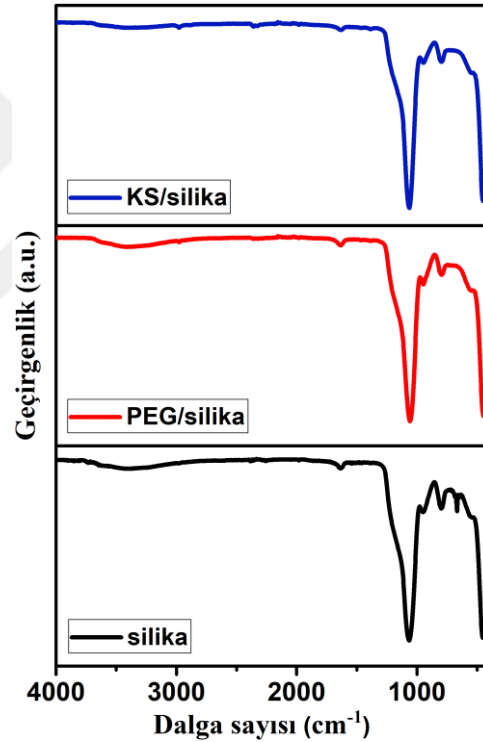
Şekil 5. 18. Volkanik tüf kullanımı ile sentezlenen silika arojel ve kompozitlerinin XRD desenleri

5.2.2. FTIR analizi

Şekil 5.19’da volkanik tüf kullanımı ile sentezlenen silika kserojel ve kompozitlerinin FTIR spektrumları gösterilmiştir. FTIR spektrumlarına bakıldığında volkanik tüften silika kserojel ve kompozitlerinin başarılı bir şekilde sentezlendiği

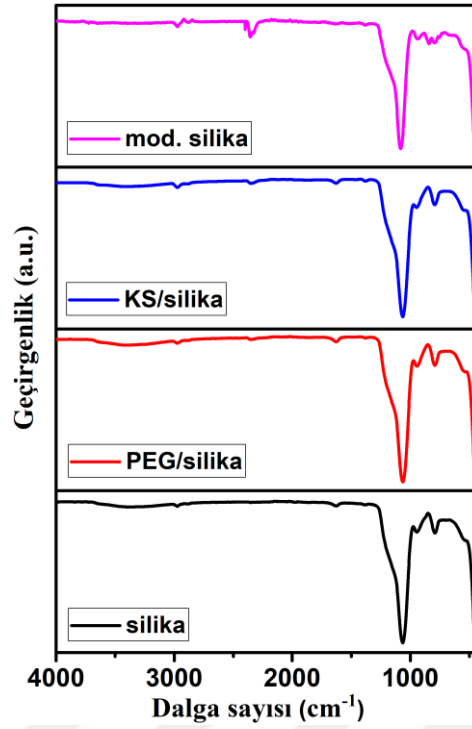
gözlemlenmiştir. 1070 cm^{-1} , 790 cm^{-1} ve 450 cm^{-1} de görülen piklerin sırasıyla Si-O-Si asimetrik, simetrik gerilme ve eğilme titreşimlerine ait olduğu tespit edilmiştir. Si-OH bağlarına ait gerilme titreşimlerinden kaynaklanan düşük şiddetli pikler 670 cm^{-1} ve 940 cm^{-1} civarında görülmüştür. 3400 cm^{-1} civarında silika kserojel ve kompozitlerine hidrofilik özellik kazandıran -OH gruplarına ait geniş bir bant belirlenmiştir. Ayrıca 1632 cm^{-1} de malzemelerin yüzeyine adsorplanan su moleküllerine ait -OH gruplarından kaynaklanan bir pike rastlanmıştır.

PEG/silika kserojel ve KS/silika kserojel kompozitleri için de silika kserojelin FTIR spektrumuna benzer spektrumlar elde edilmiştir. Silika kserojele PEG ilavesiyle 3400 cm^{-1} de görülen bandın şiddetinin kısmen arttığı, KS varlığında ise kısmen azaldığı tespit edilmiştir.



Şekil 5. 19. Volkanik tüf kullanımı ile sentezlenen silika kserojel ve kompozitlerinin FTIR spektrumları

Şekil 5.20’de volkanik tüf kullanımı ile sentezlenen silika arojel ve kompozitlerinin FTIR spektrumları gösterilmiştir. Volkanik tüften sentezlenen silika kserojel ve kompozitlerine benzer FTIR spektrumları elde edilmiştir. Karşılaştırma yapıldığından süperkritik kurutma yönteminin olumlu etkisiyle silika arojel ve kompozitlerine ait spektrumlarda 3400 cm^{-1} deki bandın ve 1632 cm^{-1} de görülen piklerin şiddetinin kısmen azaldığı belirlenmiştir.



Şekil 5. 20. Volkanik tüf kullanımı ile sentezlenen silika aerojel ve kompozitlerinin FTIR spektrumları

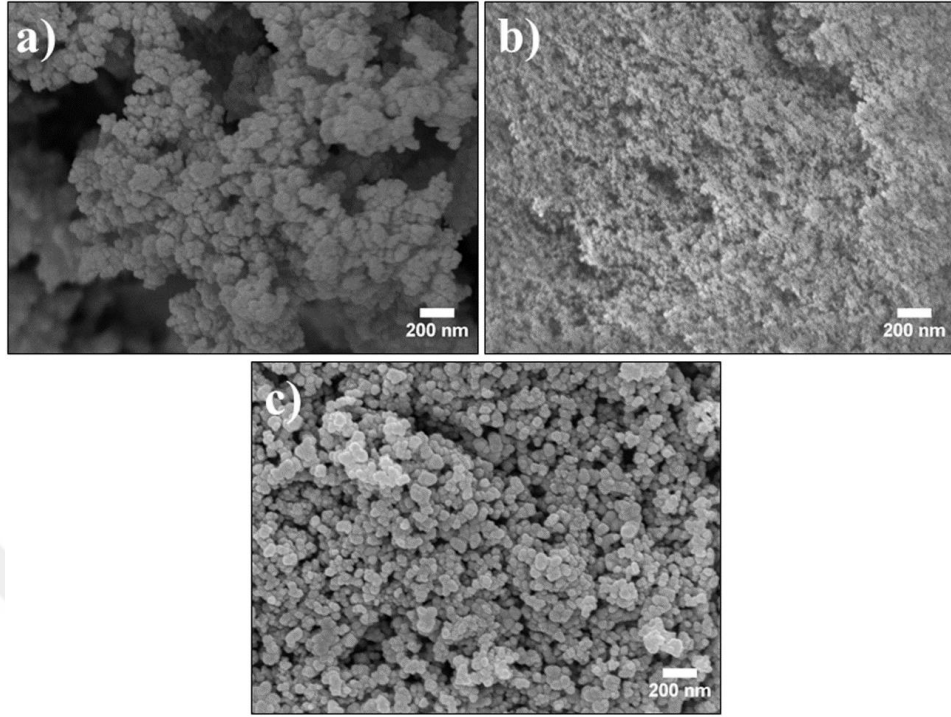
Modifiye edilen silika aerojelin FTIR spektrumunda 3400 cm^{-1} ve 1632 cm^{-1} civarında -OH gruplarından kaynaklanan bant ve piklerin görülmemesi etkili bir modifikasyon işleminin gerçekleştirildiğini kanıtlamıştır. Ayrıca 850 cm^{-1} de modifikasyon işleminin ardından Si-C bağlarına ait pikler oluşmuştur.

5.2.3. FESEM analizi

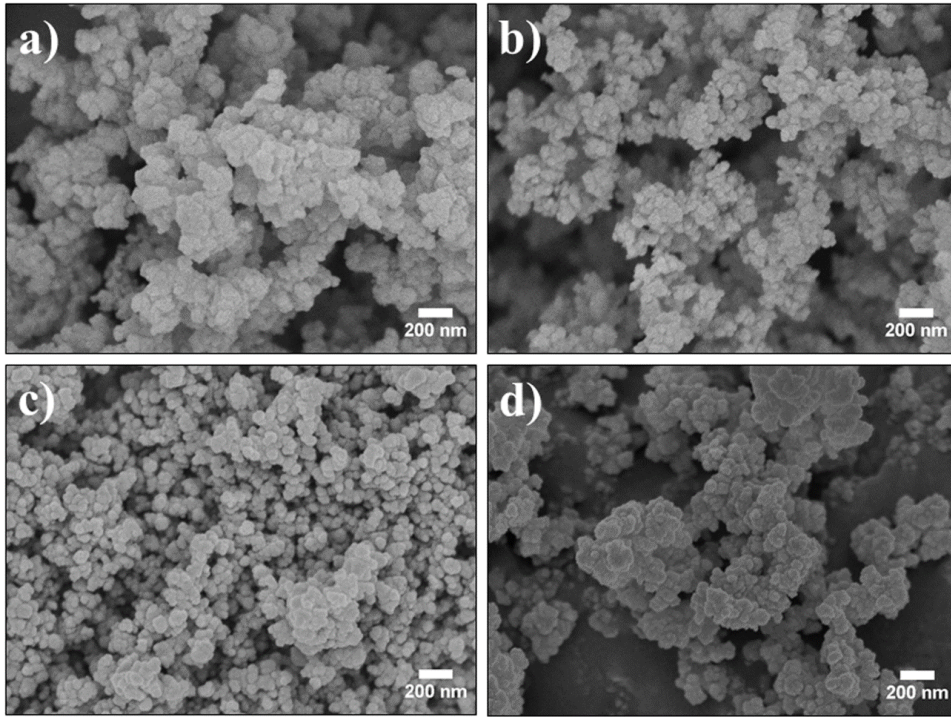
Şekil 5.21’de volkanik tüf kullanımı ile sentezlenen silika kserojel ve kompozitlerinin FESEM görüntüleri gösterilmiştir. Atmosfer basıncında yapılan kurutma nedeniyle kapiler etkilerin baskın olması silika kserojelin ağ yapısında büzüşmelere neden olmuştur. Bu durum da silika kserojel için gözenekli yapının oluşumunu kısıtlamıştır. PEG/silika ve KS/silika kserojel kompozitlerinin FESEM görüntülerine bakıldığında daha homojen dağılımlı bir yapıya sahip olduğu belirlenmiştir.

Şekil 5.22’de volkanik tüf kullanımı ile sentezlenen silika aerojel ve kompozitlerinin FESEM görüntüleri gösterilmiştir. Silika aerojel ve kompozitlerinin de silika kserojel ve kompozitlerinde görülen yüzey morfolojisine benzer bir morfolojiye sahip oldukları tespit edilmiştir. Ancak silika aerojel ve kompozitlerinin daha gözenekli yapıda olduğu net bir şekilde görülmüştür. Diğer bir ifadeyle süperkritik kurutma şartlarında elde edilen malzemelerin yapısındaki sıvı-buhar ara yüzeyinde görülen yüzey gerilimlerinin minimize edilmesi daha gözenekli yapıların oluşumunu sağlamıştır

(Perdigoto ve ark., 2012).



Şekil 5. 21. Volkanik tüf kullanımı ile sentezlenen **a)** silika kserojel, **b)** PEG/silika kserojel ve **c)** KS/silika kserojel kompozitlerinin FESEM görüntüleri

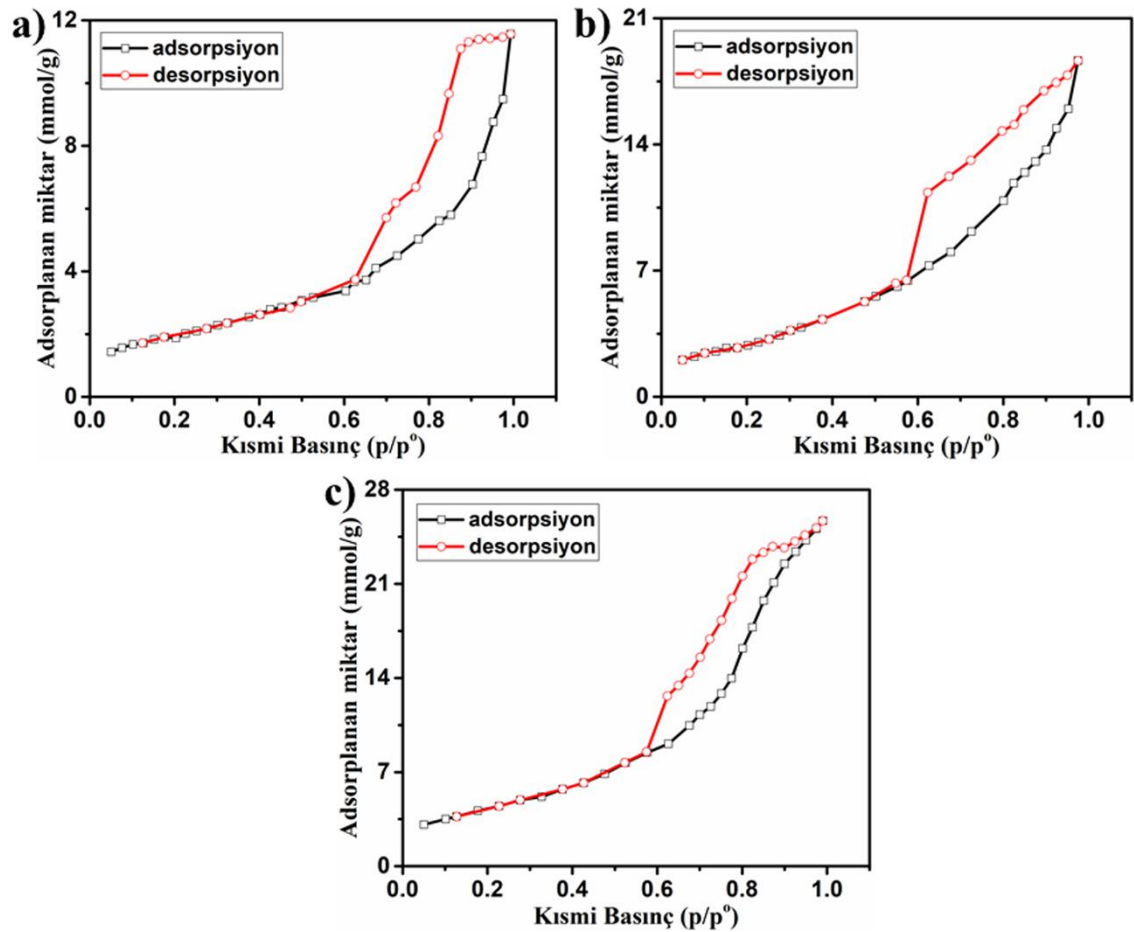


Şekil 5. 22. Volkanik tüf kullanımı ile sentezlenen **a)** silika aerojel, **b)** PEG/silika aerojel, **c)** KS/silika aerojel kompozitlerinin ve **d)** modifiye silika aerojelin FESEM görüntüleri

Modifiye edilen silika aeroxelin de benzer yüzey morfolojisine sahip olduğu fakat birbirine bağlı ağ yapıların bir araya gelerek istiflendiği tespit edilmiştir (Rodriguez ve ark., 2014).

5.2.4. N₂ adsorpsiyon-desorpsiyon ölçümleri

Şekil 5.23'te volkanik tüf kullanımı ile sentezlenen silika kserojel ve kompozitlerinin N₂ adsorpsiyon-desorpsiyon izotermi gösterilmiştir. Ayrıca Çizelge 5.6'da volkanik tüf kullanımı ile sentezlenen silika kserojel ve kompozitlerinin yüzey alanları ve gözenek yapısı özellikleri verilmiştir. N₂ adsorpsiyon-desorpsiyon izoterminden elde edilen silika kserojel ve kompozitlerinin mezogözenekli yapıda olduğu belirlenmiştir.



Şekil 5. 23. Volkanik tüf kullanımı ile sentezlenen a) silika kserojel, b) PEG/silika kserojel ve c) KS/silika kserojel kompozitlerinin N₂ adsorpsiyon-desorpsiyon izotermi

Atmosfer basıncında yapılan kurutma işlemine rağmen silika kserojelin yüzey alanının (195 m²/g) oldukça yüksek olduğu görülmüştür. Ayrıca volkanik tüf gibi ucuz

ve bol bulunan bir malzemeden yüksek yüzey alanına sahip bir malzemenin elde edilmesi umut vaat eden bir sonuç olmuştur. Ancak gözenek hacmi ($0,50 \text{ cm}^3/\text{g}$) ve boyutunun ($2,7 \text{ nm}$) oldukça düşük olduğu tespit edilmiştir. Kapiler etkilerin oldukça baskın olması silika kserojelin gözenek yapısı özelliklerini önemli ölçüde etkilemiştir.

PEG/silika ve KS/silika kserojel kompozitlerinin yüzey alanı değerleri sırasıyla $306 \text{ m}^2/\text{g}$ ve $447 \text{ m}^2/\text{g}$ olarak belirlenmiştir. PEG ve KS ilavesi silika kserojelin yüzey alanını arttırırken gözenek hacmi ve boyutunda da kısmi bir artışa neden olmuştur.

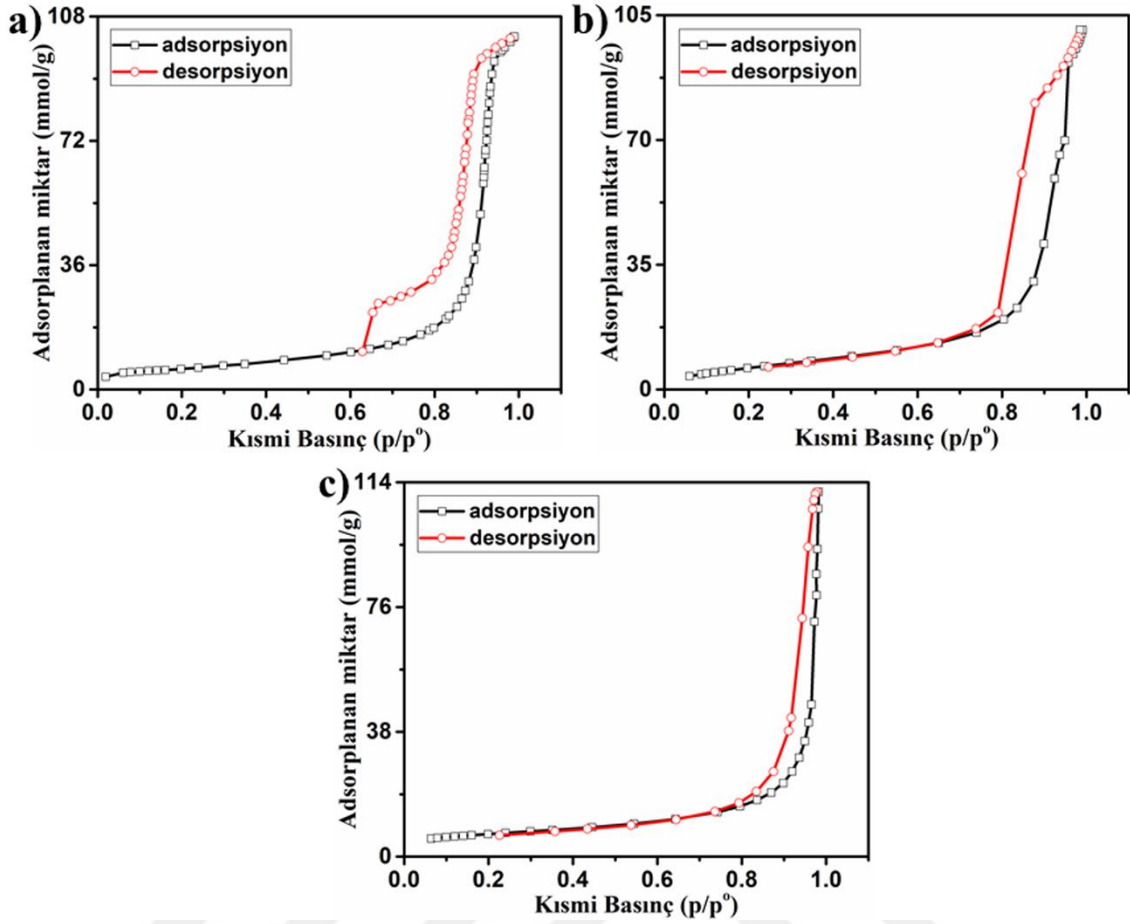
Çizelge 5. 6. Volkanik tüf kullanımı ile sentezlenen silika kserojel ve kompozitlerinin yüzey alanları ve gözenek yapısı özellikleri

Örnek	Yüzey alanı (m^2/g)	Gözenek hacmi (cm^3/g)	Gözenek boyutu (nm)
silika	195	0,50	2,7
PEG/silika	306	0,84	2,8
KS/silika	447	1,11	3,3

Şekil 5.24'te volkanik tüf kullanımı ile sentezlenen silika arojel ve kompozitlerinin N_2 adsorpsiyon-desorpsiyon izotermeleri gösterilmiştir. Ayrıca Çizelge 5.7'de volkanik tüf kullanımı ile sentezlenen silika arojel ve kompozitlerinin yüzey alanları ve gözenek yapısı özellikleri verilmiştir.

Volkanik tüf kullanımı ile elde edilen mezogözenekli silika arojelin yüzey alanının $477 \text{ m}^2/\text{g}$ kadar yüksek olduğu belirlenmiştir. Silika kserojelin gözenek yapısıyla karşılaştırıldığında silika arojelin gözenek hacmi ve boyutunda dikkat çeken bir artış gözlenmiştir. Literatüre bakıldığında uçucu kül kullanılarak elde edilen silika arojelin yüzey alanının sentez parametrelerine (ağırlıkça NaOH:uçucu kül oranı, NaOH konsantrasyonu ve reaksiyon süresi) bağlı olarak $362\text{-}578 \text{ m}^2/\text{g}$ arasında değiştiği görülmüştür (Shi ve ark., 2010). Kaolinden silika arojel sentezinde farklı konsantrasyonlarda HCl çözeltisinin kullanıldığı bir çalışmada 3 M HCl çözeltisi varlığında elde edilen silika arojelin yüzey alanı ve gözenek hacmi sırasıyla $370 \text{ m}^2/\text{g}$ ve $1,86 \text{ cm}^3/\text{g}$ olarak tespit edilmiştir (Hu ve ark., 2016).

PEG/silika ve KS/silika arojel kompozitlerinin gözenek boyutunun $2\text{-}50 \text{ nm}$ arasında olması bu malzemelerin mezogözeneklere sahip olduğunu göstermiştir. PEG ve KS ilavesi daha gözenekli yapıların oluşumunda etkin bir rol oynamıştır. Özellikle silika kserojel kompozitlerle kıyaslandığında silika arojel kompozitlerin gözenek hacminde ciddi bir fark gözlenmiştir. Diğer bir ifadeyle bu tip başlangıç malzemelerinde kurutma basamağının etkisi daha net görülmüştür.



Şekil 5. 24. Volkanik tüf kullanımı ile sentezlenen **a)** silika aerogel, **b)** PEG/silika aerogel ve **c)** KS/silika aerogel kompozitlerinin N₂ adsorpsiyon-desorpsiyon izotermi

Çizelge 5. 7. Volkanik tüf kullanımı ile sentezlenen silika aerogel ve kompozitlerinin yüzey alanları ve gözenek yapısı özellikleri

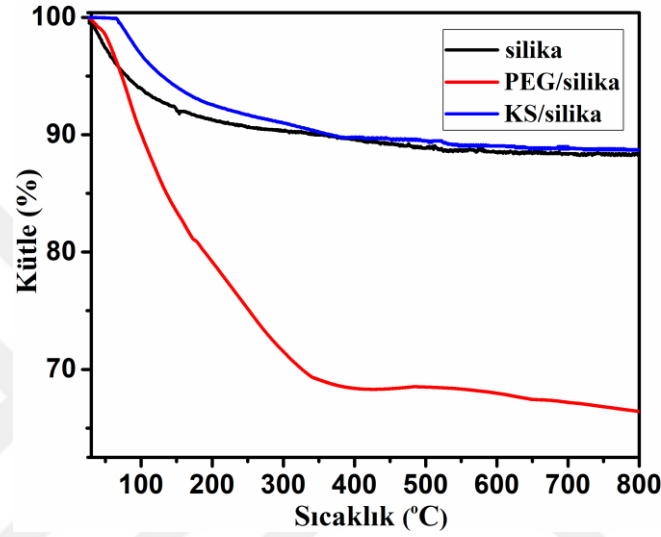
Örnek	Yüzey alanı (m ² /g)	Gözenek hacmi (cm ³ /g)	Gözenek boyutu (nm)
silika	477	2,76	19
PEG/silika	541	2,81	21
KS/silika	553	3,33	24

5.2.5. TGA analizleri

Şekil 5.25'te volkanik tüf kullanımı ile sentezlenen silika kserojel ve kompozitlerinin TGA eğrileri gösterilmiştir. Silika kserojelin TGA eğrisinde 600°C'ye kadar sürekli bir kütle kaybı görülmüştür. Artan sıcaklıklarda ise silika kserojelin kütlesi sabit bir değer almıştır. 200°C'ye kadar malzemedeki fiziksel olarak adsorplanmış su moleküllerinin ve çözücülerin uzaklaştırılmasından kaynaklanan keskin bir kütle kaybı (%8,8) gözlemlenmiştir. 200-600°C arasındaki kütle kaybı ise organik grupların

bozunmasından kaynaklanmıştır. 800°C’de silika kserojelin %88,3’nün bozunmadan kaldığı belirlenmiştir.

PEG moleküllerinin silika kserojele eklenmesiyle 400°C’ye kadar keskin bir kütle kaybının görüldüğü TGA eğrisi elde edilmiştir. PEG moleküllerinin 200-400°C arasında bozunması PEG/silika kserojel kompozitinin termal dayanımını önemli ölçüde azaltmıştır. KS varlığında ise silika kserojelin termal dayanımının kısmen arttığı gözlemlenmiştir.



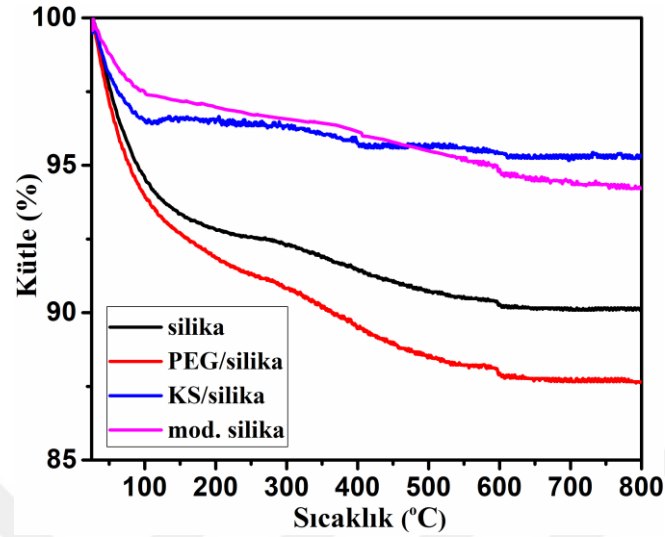
Şekil 5. 25. Volkanik tüf kullanımı ile sentezlenen silika kserojel ve kompozitlerinin TGA eğrileri

Şekil 5.26’da volkanik tüf kullanımı ile sentezlenen silika arojel ve kompozitlerinin TGA eğrileri gösterilmiştir. Silika arojel ve kompozitlerinin termal kararlılıklarının silika kserojel ve kompozitlerine göre daha yüksek olduğu tespit edilmiştir. Silika arojelin 200°C’ye kadar sadece %7,1’nin bozunması silika kserojele göre yüzeyinde ve gözeneklerinde daha az su ve çözücü moleküllerinin biriktiğini göstermiştir. 600°C’de silika arojelin yaklaşık %90,2’sinin bozunmadığı ve artan sıcaklıkla birlikte hemen hemen hiçbir kütle kaybının olmadığı belirlenmiştir.

Silika kserojellere benzer şekilde silika arojelin termal dayanımında PEG ilavesiyle bir azalma gözlenirken KS ilavesiyle bir artma meydana gelmiştir.

Modifikasyon işleminin silika arojelin termal dayanımı üzerindeki olumlu etkisi net bir şekilde görülmüştür. Diğer bir ifadeyle silika arojelin yüzeyine fonksiyonel Si-CH₃ gruplarının bağlanması kütle kaybını azaltmıştır. Su moleküllerinin ve çözücü kalıntılarının uzaklaştırılmasından kaynaklanan kütle kaybının %3,0 civarında olduğu belirlenmiştir. 200-600°C arasında organik yapıların bozunmasının ardından modifiye

edilmiş silika arojelın %94,2'sinin bozunmadan kaldığı tespit edilmiştir. 600°C'nin üzerinde ise malzemenin kütlesinin hemen hemen sabit kaldığı gözlemlenmiştir.



Şekil 5. 26. Volkanik tüf kullanımı ile sentezlenen silika arojel ve kompozitlerinin TGA eğrileri

5.2.6. Termal iletkenlik ve yoğunluk ölçümleri

Çizelge 5.8'de volkanik tüf kullanımı ile sentezlenen silika kserojel ve kompozitlerinin termal iletkenlik ve yoğunluk değerleri verilmiştir. Silika kserojelin termal iletkenlik değeri 0,041 W/mK olarak belirlenmiştir. PEG ilavesi silika kserojelin termal iletkenlik değerini değiştirmezken KS ilavesi termal iletkenlik değerinde kısmi bir artışa neden olmuştur. PEG/silika ve KS/silika kserojel kompozitlerinin gözenek hacmi düşük olduğu için gözenek yapısının termal iletkenlik değerleri üzerinde önemli bir etkisi olmamıştır. Malzemelerin yoğunluklarının artması genel olarak ısı iletimini kolaylaştırarak termal iletkenlik değerlerini arttırmıştır.

Çizelge 5. 8. Volkanik tüf kullanımı ile sentezlenen silika kserojel ve kompozitlerinin yoğunluk ve termal iletkenlik değerleri

Örnek	Termal iletkenlik (W/mK)	Yığın yoğunluk (g/cm ³)
silika	0,041	0,037
PEG/silika	0,041	0,050
KS/silika	0,048	0,081

Çizelge 5.9'da volkanik tüf kullanımı ile sentezlenen silika arojel ve kompozitlerinin termal iletkenlik ve yoğunluk değerleri verilmiştir. Volkanik tüften oldukça düşük termal iletkenlik (0,035 W/mK) ve yoğunluk değerine (0,036 g/cm³) sahip

silika aerogelin elde edilmesi umut vaat eden bir sonuç olmuştur. Silika kserojel ve kompozitleri ile karşılaştırıldığında süperkritik CO₂ kurutma şartlarında daha gözenekli yapının oluşumu yoğunluk değerini azaltarak daha düşük termal iletkenlik değerine sahip silika aerogel ve kompozitlerinin sentezlenmesini sağlamıştır.

Çizelge 5. 9. Volkanik tüf kullanımı ile sentezlenen silika aerogel ve kompozitlerinin yoğunluk ve termal iletkenlik değerleri

Örnek	Termal iletkenlik (W/mK)	Yığın yoğunluk (g/cm ³)
silika	0,035	0,036
PEG/silika	0,041	0,048
KS/silika	0,043	0,067
mod. silika	0,037	0,043

Modifikasyon işlemi ile silika aerogelin termal iletkenlik ve yoğunluk değerlerinde görülen kısmi artış, sinterlenmiş bir yapının oluşumundan kaynaklanmıştır. Diğer bir ifadeyle seyrek bir silika ağ yapısı yerine birbirine bağlı ağ yapıların bir araya gelerek yoğunlaşması daha kolay bir ısı iletimi sağlayarak silika aerogelin termal iletkenlik değerini arttırmıştır.

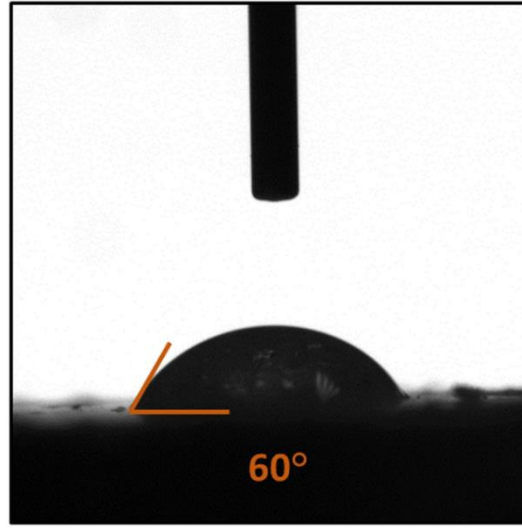
5.2.7. Temas açısı ölçümleri

Şekil 5.27’de volkanik tüf kullanımı ile sentezlenen silika kserojelin temas açısı görüntüsü gösterilmiştir. Silika kserojelin temas açısının 60° olarak belirlenmesi elde edilen malzemenin hidrofilik yapıda olduğunu kanıtlamıştır. Silika kserojelin yüzeyindeki silanol gruplarında bulunan -OH gruplarının etkisiyle malzeme hidrofilik özellik kazanmıştır. Ayrıca gözeneklerdeki su ya da çözücü moleküllerinin atmosfer basıncında yapılan kurutma tam olarak uzaklaştırılamaması hidrofilik yapının oluşumunda etkili olmuştur.

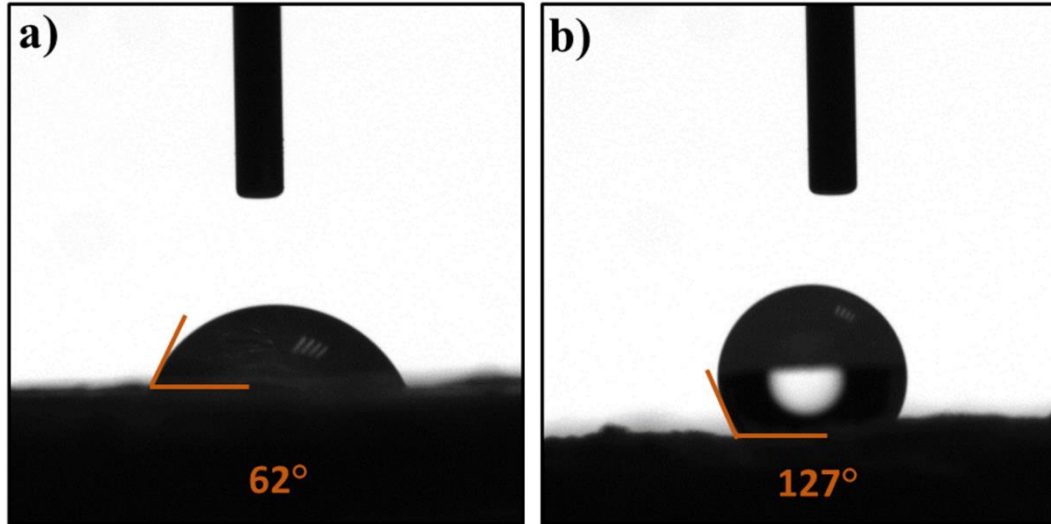
Şekil 5.28’de volkanik tüf kullanımı ile sentezlenen silika aerogel ve modifiye silika aerogelin temas açısı görüntüleri gösterilmiştir. Silika aerogelin temas açısı 62° olarak belirlenmiştir. Süperkritik CO₂ yöntemi kullanılarak kurutulan silika aerogelin gözeneklerinde sıvı moleküllerinin birikiminin azaltılması silika kserojel ile karşılaştırıldığında silika aerogelin temas açısını kısmen arttırmıştır.

Modifiye silika aerogelin temas açısının (127°) oldukça yüksek olduğu tespit edilmiştir. Malzemenin temas açısının 90-150° arasında olması hidrofobik bir silika aerogelin sentezlendiğini göstermiştir. TMCS ile yapılan modifikasyon işleminin

ardından özellikle silika aerojelin yüzeyine bağlanan Si-CH₃ grupları hidrofobik yapının oluşumunu sağlamıştır.



Şekil 5. 27. Volkanik tüf kullanımı ile sentezlenen silika kserojelin temas açısı görüntüsü



Şekil 5. 28. Volkanik tüf kullanımı ile sentezlenen a) silika aerojel ve b) modifiye silika aerojelin temas açısı görüntüleri

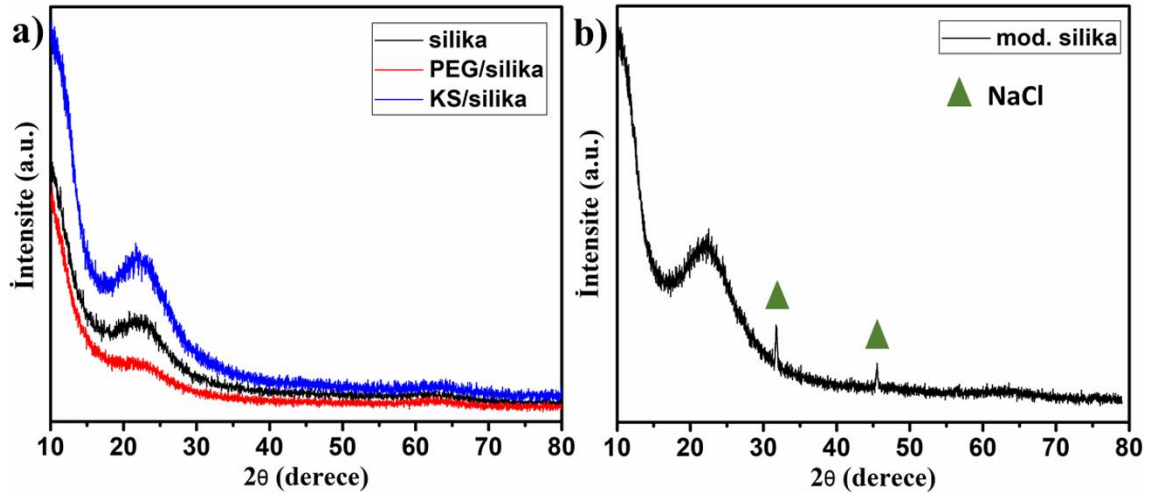
5.3. YFK Külü Kullanımı ile Sentezlenen Silika Aerojel/Kserojel ve Kompozitlerinin Özellikleri

5.3.1. XRD analizi

Şekil 5.29’da YFK külü kullanımı ile sentezlenen silika kserojel ve kompozitlerinin XRD desenleri gösterilmiştir. Şekil 5.29’da görülen XRD desenlerinde

YFK külünden amorf yapıda silika kserojel ve kompozitlerinin sentezlendiği net bir şekilde gözlemlenmiştir. Herhangi bir safsızlık ya da kristal yapıya ait piklere rastlanmamıştır.

Şekil 5.29b’de modifiye silika kserojelin XRD desenine bakıldığında $2\theta = 22^\circ$ ’de geniş bir bant görülmesine rağmen 32° ve 45° civarında NaCl bileşiğine ait pikler tespit edilmiştir. Atmosfer basıncında yapılan kurutma ile sıvı-buhar ara yüzey gerilimi önlenemediği için gözeneklerin kapanması Na^+ iyonlarının gözeneklerde birikmesine neden olmuştur.



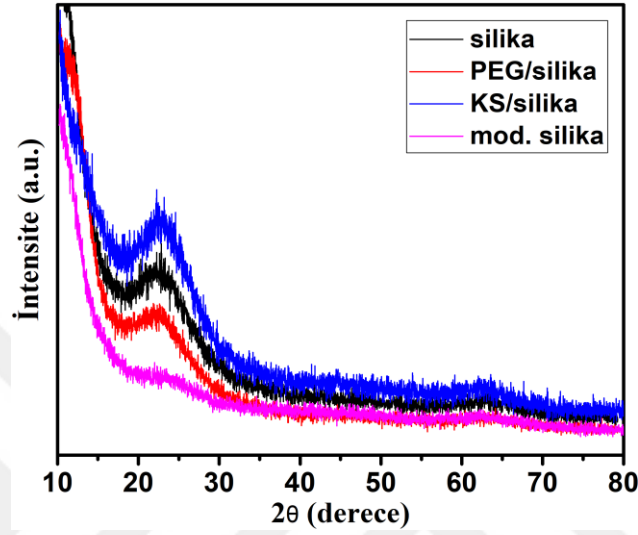
Şekil 5. 29. YFK külü kullanımı ile sentezlenen a) silika kserojel ve kompozitlerinin ve b) modifiye silika kserojelin XRD desenleri

Şekil 5.30’da YFK külü kullanımı ile sentezlenen silika aerogel ve kompozitlerinin XRD desenleri gösterilmiştir. XRD deseninde kristal yapıya ait herhangi bir pike rastlanmaması amorf yapıda silika kserojelin sentezlendiğini göstermiştir. Ayrıca PEG/silika ve KS/silika aerogel kompozitlerinin de amorf yapıya sahip olduğu belirlenmiştir.

Modifiye silika aerogelin XRD deseninde NaCl bileşiğine ait piklerin görülmemesi modifikasyon işleminin ardından safsızlık içermeyen amorf yapıda silika aerogelin sentezlendiğini kanıtlamıştır. Atmosfer basıncında kurutma yerine süperkritik CO_2 şartlarında kurutmanın yapılması kapiler etkileri mümkün olduğu kadar azaltarak gözeneklerin kapanmasını minimize edip Na^+ iyonlarının gözeneklerden daha kolay uzaklaştırılmasında önemli rol oynamıştır.

İnorganik/organik atıklardan silika kserojel/aerogel sentezinde (özellikle HCl

katalizörü ya da TMCS gibi Cl^- iyonları içeren modifikasyon ajanları varlığında ve atmosfer basıncında yapılan kurutma yönteminde) Na^+ iyonları problem teşkil etmektedir. Etkili bir yıkama işlemi veya iyon değiştirici reçineler yardımıyla Na^+ iyonlarının giderimi sağlanabilse de bu çalışmada süperkritik kurutma yöntemi ile Na^+ iyonları kolayca uzaklaştırılmıştır.



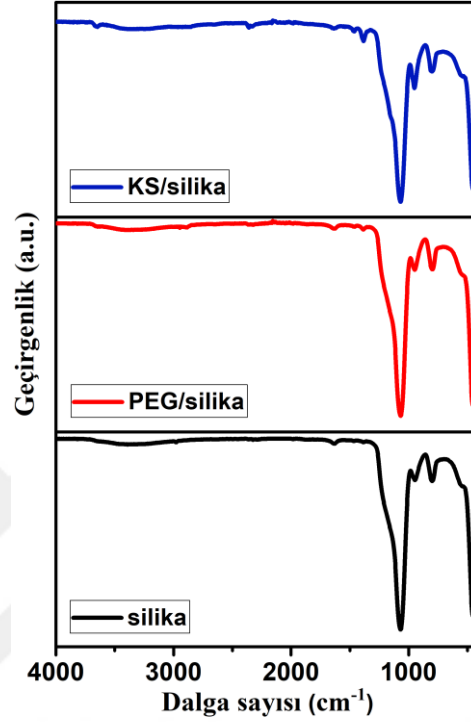
Şekil 5. 30. YFK külü kullanımı ile sentezlenen silika aerojel ve kompozitlerinin XRD desenleri

5.3.2. FTIR analizi

Şekil 5.31’de YFK külü kullanımı ile sentezlenen silika kserojel ve kompozitlerinin FTIR spektrumları gösterilmiştir. FTIR spektrumunda silika kserojele ait karakteristik bağların oluşumu YFK külünden silika kserojelin başarılı bir şekilde sentezlendiğini göstermiştir. Silika ağ yapısının oluşumunu sağlayan Si-O-Si bağlarına ait asimetrik ve simetrik gerilme titreşimlerinden kaynaklanan pikler sırasıyla 1070 cm^{-1} ve 790 cm^{-1} de gözlemlenmiştir. 450 cm^{-1} civarında da Si-O-Si eğilme titreşimlerine ait bir pik açığa çıkmıştır. 667 cm^{-1} ve 946 cm^{-1} de görülen düşük şiddetli piklerin Si-OH bağlarından kaynaklandığı tespit edilmiştir. 3400 cm^{-1} civarında malzeme yüzeyine adsorplanan su moleküllerinde ve Si-OH gruplarında bulunan -OH gruplarından kaynaklanan gerilme titreşimlerine ait geniş bir pik görülmüştür. 1634 cm^{-1} de de adsorplanmış su moleküllerindeki -OH titreşimleri sonucu oluşan bir pike rastlanmıştır.

PEG/silika ve KS/silika kserojel kompozitlerinin FTIR spektrumlarının silika kserojelin FTIR spektrumu ile benzer olduğu görülmüştür. PEG moleküllerinin C-O-C bağlarına ait karakteristik piki 1100 cm^{-1} civarında olmasına rağmen silika ağ yapısının 1070 cm^{-1} de bulunan keskin pikinden dolayı tespit edilememiştir. Ancak PEG varlığında

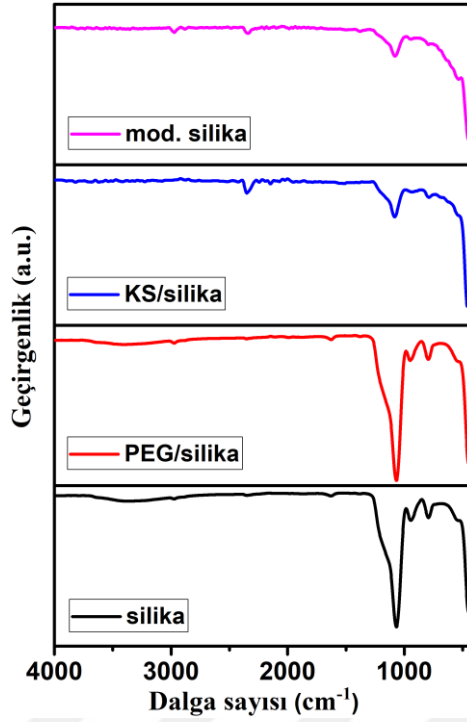
PEG moleküllerinin zincir uçlarında yer alan -OH gruplarından dolayı 3400 cm^{-1} de görülen geniş bandın şiddetinin kısmen arttığı belirlenmiştir. KS ilavesi ile silika aerogelin FTIR spektrumunda önemli bir değişiklik gözlenmezken 2300 cm^{-1} civarında CO_2 moleküllerinden kaynaklanan düşük şiddetli bir pik görülmüştür.



Şekil 5. 31. YFK külü kullanımı ile sentezlenen silika ksrojel ve kompozitlerinin FTIR spektrumları

Şekil 5.32’de YFK külü kullanımı ile sentezlenen silika aerogel ve kompozitlerinin FTIR spektrumları gösterilmiştir. Silika ksrojel ve kompozitlerinin FTIR spektrumlarına benzer spektrumlar elde edilmesine rağmen 3400 cm^{-1} de bulunan geniş bant şiddetlerinin azaldığı belirlenmiştir. Özellikle KS/silika aerogel kompozitinde adsorplanan su moleküllerinden kaynaklanan bu bandın kaybolması süperkritik kurutmanın önemini ortaya koymuştur. Ancak CO_2 moleküllerine ait pike KS/silika aerogel kompozitinin FTIR spektrumunda da rastlanmıştır.

Silika aerojele modifikasyon işleminin uygulanmasının ardından adsorplanan su moleküllerinde ve Si-OH bağlarında yer alan -OH gruplarından kaynaklanan titreşimlere ait geniş bant görülmemiştir. 1634 cm^{-1} de görülen fiziksel olarak adsorplanmış su moleküllerine ait pik de yüzey modifikasyonundan sonra oluşmamıştır. 2960 cm^{-1} de oluşan pikin ise C-H bağlarına ait olduğu tespit edilmiştir (Bangi ve ark., 2008).



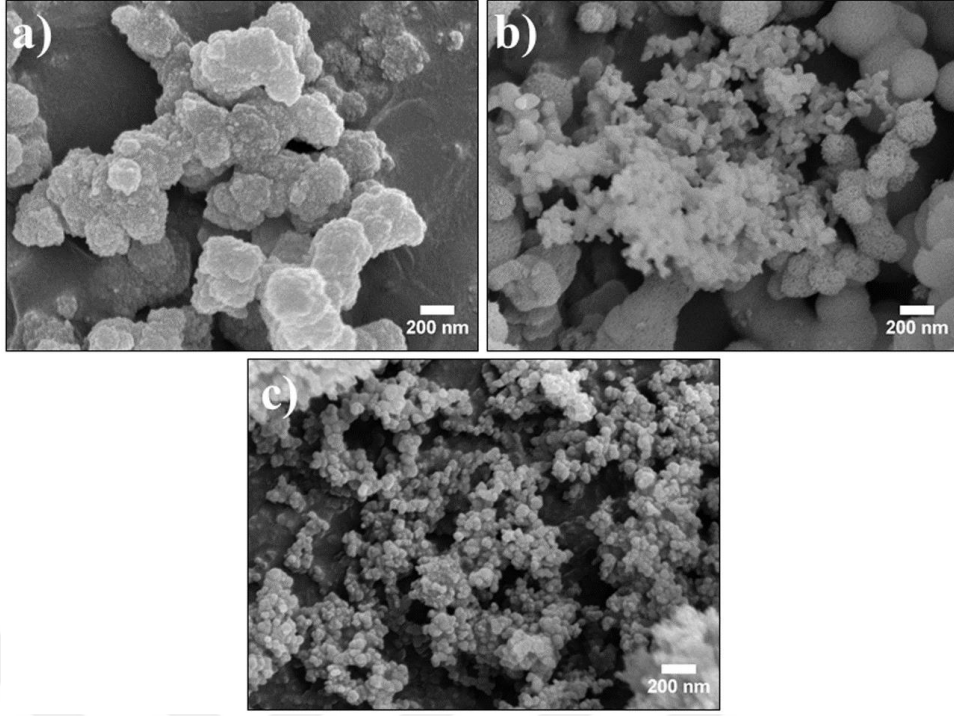
Şekil 5. 32. YFK külü kullanımı ile sentezlenen silika aerjel ve kompozitlerinin FTIR spektrumları

5.3.3. FESEM analizi

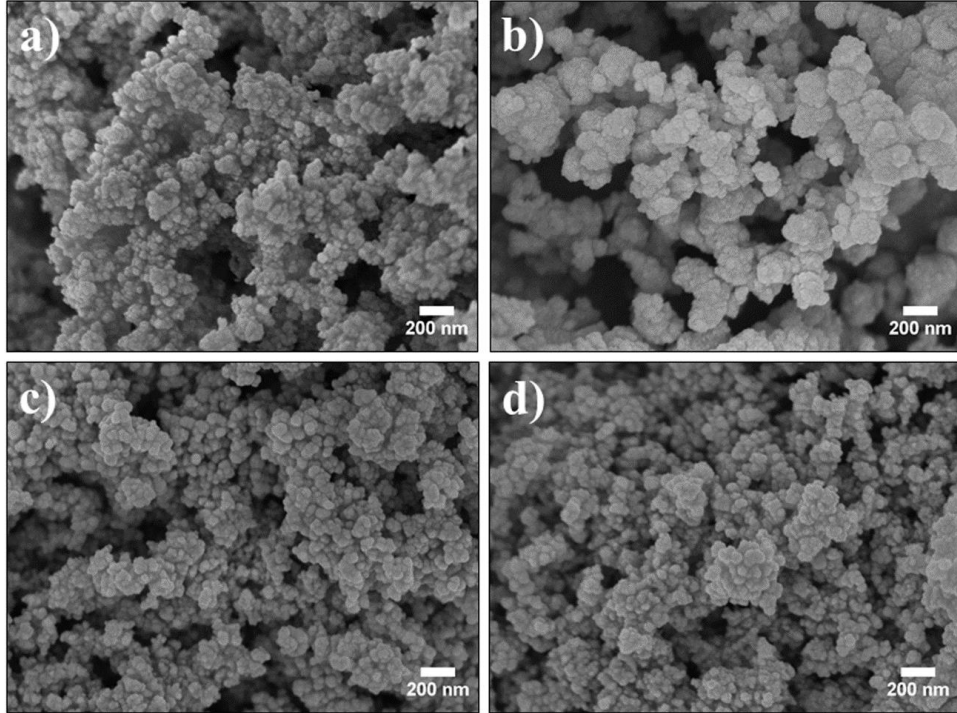
Şekil 5.33'te YFK külü kullanımı ile sentezlenen silika kserojel ve kompozitlerinin FESEM görüntüleri gösterilmiştir. Silika kserojele ait FESEM görüntüsünde silika ağ yapılarının bir araya gelerek kümeleştiği görülmüştür. Diğer bir ifadeyle kapiler etkiler altında YFK külünden gözenekli yapıya sahip silika kserojelin elde edilemediği gözlemlenmiştir.

PEG/silika kserojelinin FESEM görüntüsünde yer yer kümeleşmeler görülmesine rağmen silika kserojele göre daha gözenekli yapıda olduğu belirlenmiştir. KS/silika kserojelinde ise daha homojen dağılımlı ve gözenekli bir yüzey morfolojisi elde edilmiştir.

Şekil 5.34'te YFK külü kullanımı ile sentezlenen silika aerjel ve kompozitlerinin FESEM görüntüleri gösterilmiştir. Silika kserojel ve kompozitleri ile karşılaştırıldığında daha homojen dağılımlı yüzey morfolojisine sahip silika aerjel ve kompozitlerinin sentezlendiği belirlenmiştir. Süperkritik CO₂ kurutma şartları sayesinde yüzey gerilimlerinin minimize edilmesi daha gözenekli yapıların oluşumunu sağlamıştır.



Şekil 5. 33. YFK külü kullanımı ile sentezlenen **a)** silika kserojel, **b)** PEG/silika kserojel ve **c)** KS/silika kserojel kompozitlerinin FESEM görüntüleri



Şekil 5. 34. YFK külü kullanımı ile sentezlenen **a)** silika aerojel, **b)** PEG/silika aerojel, **c)** KS/silika aerojel kompozitlerinin ve **d)** modifiye silika aerojelin FESEM görüntüleri

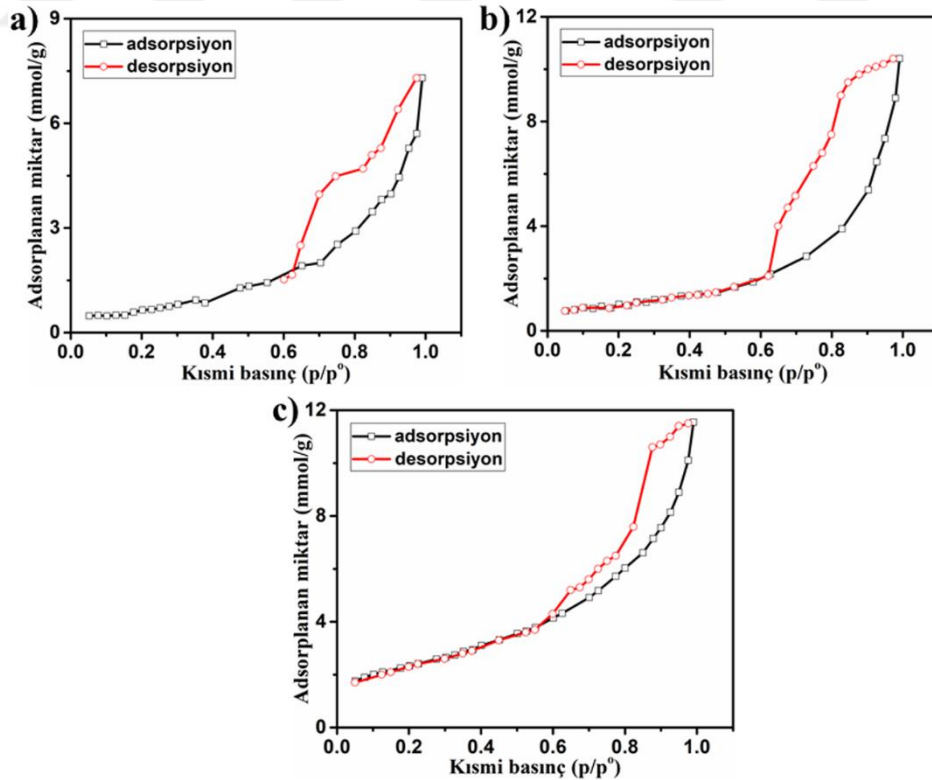
PEG ve KS ilavesiyle elde edilen silika aerogel kompozitlerinin yüzey

morfolojisinin silika aerogelin yüzey morfolojisi ile benzer olduğu görülmüştür.

Modifiye silika aerogelin FESEM görüntüsünden malzemenin istiflenmiş yapıda olduğu belirlenmiştir. N₂ adsorpsiyon-desorpsiyon ölçümlerinde de görüleceği üzere silika aerogelin gözenek boyutu çok düşük olduğu için modifikasyon işleminin gözenek yapısı üzerinde önemli bir etkisi olmamıştır.

5.3.4. N₂ adsorpsiyon-desorpsiyon ölçümleri

Şekil 5.35'te YFK külü kullanımı ile sentezlenen silika kserojel ve kompozitlerinin N₂ adsorpsiyon-desorpsiyon izotermi gösterilmiştir. Ayrıca Çizelge 5.10'da YFK külü kullanımı ile sentezlenen silika kserojel ve kompozitlerinin yüzey alanları ve gözenek yapısı özellikleri verilmiştir. Silika kserojelin yüzey alanının 70 m²/g olduğu tespit edilmiştir. Silika ağını oluşturan birbiriyle bağlantılı yapıların bir araya gelme eğilimi silika kserojelin yüzey alanının düşük olmasına neden olmuştur. Silika kserojele PEG ilavesiyle yüzey alanının 98 m²/g'a ulaştığı belirlenmiştir. PEG/silika kserojel kompozitinde de kümeleşmelerin oluşumu malzemenin yüzey alanının artışı kısmen kısıtlamıştır. KS varlığında ise malzemenin yüzey alanında (231 m²/g) önemli bir artış görülmüştür.



Şekil 5. 35. YFK külü kullanımı ile sentezlenen a) silika kserojel, b) PEG/silika kserojel ve c) KS/silika kserojel kompozitlerinin N₂ adsorpsiyon-desorpsiyon izotermi

Silika kserojel ve kompozitlerinin gözenek boyutunun 2,7-3,0 nm civarında olması malzemelerin mezogözenekli yapıda olduğunu göstermiştir. Ancak malzemelerin gözenek hacminin oldukça düşük olduğu tespit edilmiştir. Maksimum gözenek hacmi (0,50 cm³/g) KS/silika kserojel kompozitinde gözlenmiştir.

Çizelge 5. 10. YFK külü kullanımı ile sentezlenen silika kserojel ve kompozitlerinin yüzey alanları ve gözenek yapısı özellikleri

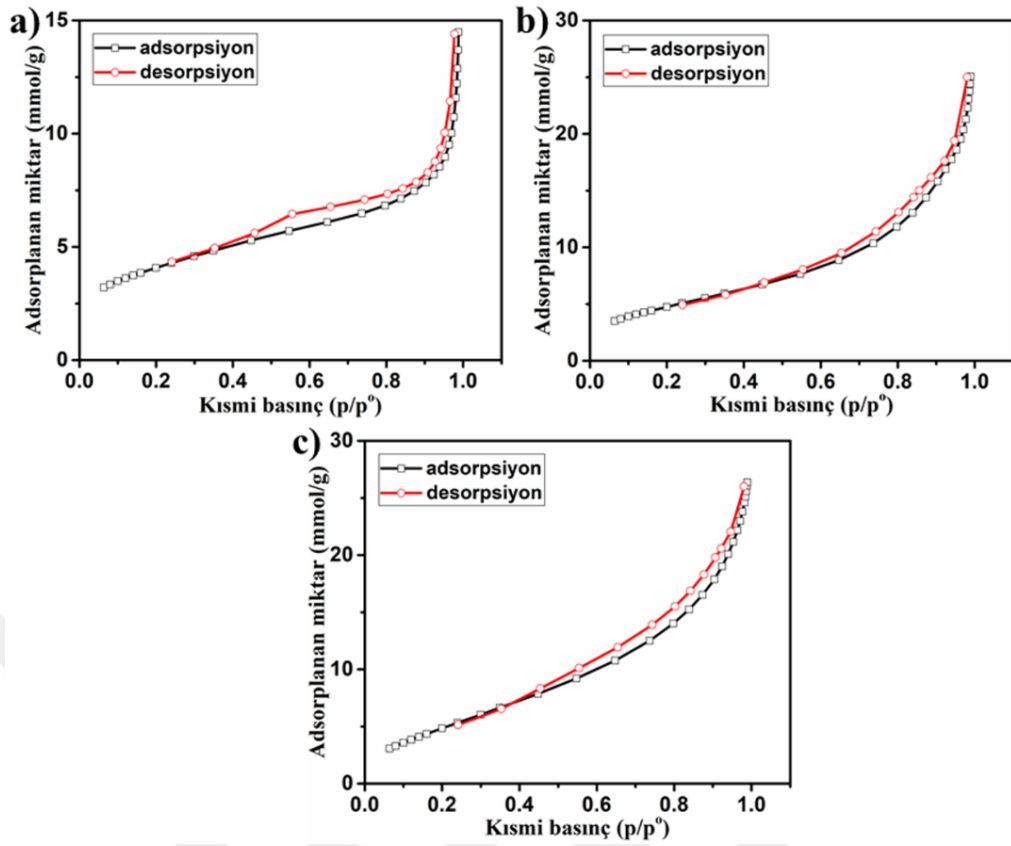
Örnek	Yüzey alanı (m ² /g)	Gözenek hacmi (cm ³ /g)	Gözenek boyutu (nm)
silika	70	0,28	2,7
PEG/silika	98	0,45	2,8
KS/silika	231	0,50	3,0

Şekil 5.36’da YFK külü kullanımı ile sentezlenen silika aerojel ve kompozitlerinin N₂ adsorpsiyon-desorpsiyon izotermi gösterilmiştir. Ayrıca Çizelge 5.11’de YFK külü kullanımı ile sentezlenen silika aerojel ve kompozitlerinin yüzey alanları ve gözenek yapısı özellikleri verilmiştir. Silika aerojel ve kompozitlerinin yüzey alanı değerlerinin silika kserojel ve kompozitlerinden oldukça yüksek olduğu görülmüştür. Silika aerogelin yüzey alanı 326 m²/g olarak belirlenmiştir. Literatüre bakıldığında organik malzemelerden ya da tarımsal atıklardan elde edilen silika aerogellerin yüzey alanlarının (buğday nişastası, 60 m²/g; fibril nano selüloz, 11 m²/g; şeker kamışı küspesi külü, 440 m²/g; pirinç kabuğu külü, 500 m²/g vb.) çeşitli parametrelere bağlı olarak değiştiği gözlemlenmiştir (Li ve Wang, 2008; Nazriati ve ark., 2014; Fu ve ark., 2016; Ubeyitogullari ve Ciftci, 2016).

Silika aerojel ve kompozitlerinin de mezogözenekli yapıda olduğu tespit edilmiştir. Silika kserojel ve kompozitleri ile kıyaslandığında süperkritik CO₂ kurutma koşullarının etkisiyle silika aerojel ve kompozitlerinin gözenek boyutu ve hacminin kısmen yüksek olduğu belirlenmiştir.

Çizelge 5. 11. YFK külü kullanımı ile sentezlenen silika aerojel ve kompozitlerinin yüzey alanları ve gözenek yapısı özellikleri

Örnek	Yüzey alanı (m ² /g)	Gözenek hacmi (cm ³ /g)	Gözenek boyutu (nm)
silika	326	0,45	6,0
PEG/silika	394	0,82	8,0
KS/silika	436	0,94	8,1



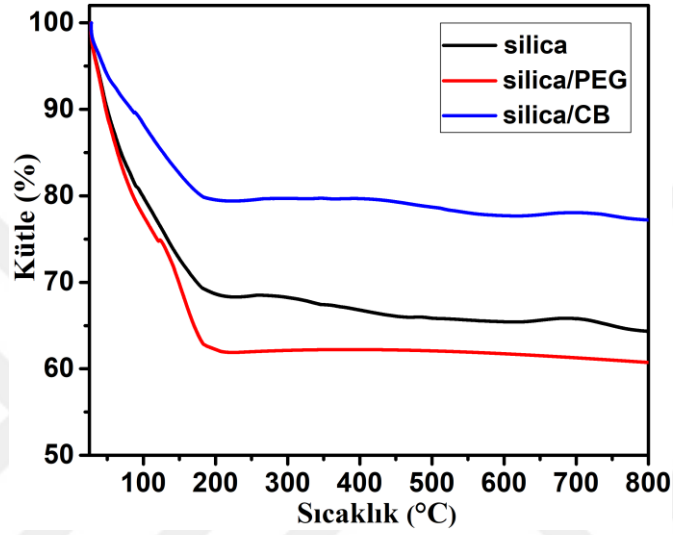
Şekil 5. 36. YFK külü kullanımı ile sentezlenen **a)** silika aerogel, **b)** PEG/silika aerogel ve **c)** KS/silika aerogel kompozitlerinin N₂ adsorpsiyon-desorpsiyon izotermeleri

5.3.5. TGA analizleri

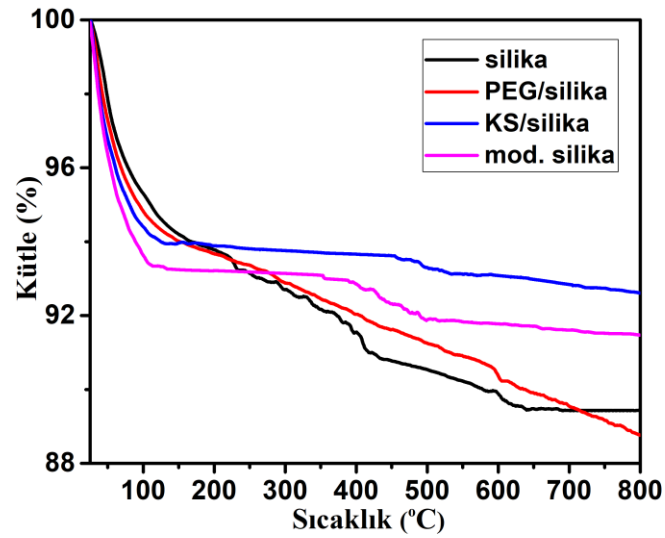
Şekil 5.37’de YFK külü kullanımı ile sentezlenen silika kserojel ve kompozitlerinin TGA eğrileri gösterilmiştir. Silika kserojel ve kompozitlerinin TGA eğrilerine bakıldığında 200°C’ye kadar önemli bir kütle kaybının olduğu görülmüştür. Su moleküllerinin ve çözücülerin tam olarak uzaklaştırılamaması zayıf bir silika ağ yapısının oluşmasına neden olmuştur. Dolayısıyla 200°C’de silika kserojelin %30’nun bozunduğu belirlenmiştir. 200-600°C arasında organik yapıların bozunmasından kaynaklanan ihmal edilebilir bir kütle kaybı oluşurken 800°C’de malzemenin yaklaşık %65’nin bozunmadan kaldığı tespit edilmiştir. PEG molekülleri varlığında silika kserojelin termal dayanımının azaldığı gözlemlenmiştir. Termal kararlılığı yüksek olan KS’nın ilavesiyle silika kserojelin termal dayanımı artmıştır. KS/silika kserojel kompozitinin 800°C’de %77,2’sinin bozunmadan kaldığı görülmüştür.

Şekil 5.38’de YFK külü kullanımı ile sentezlenen silika aerogel ve kompozitlerinin TGA eğrileri gösterilmiştir. Silika aerogelin yapısındaki su ve çözücü moleküllerinin uzaklaştırılmasının ardından yaklaşık %95’nin bozunmadan kaldığı gözlemlenmiştir.

600°C'ye kadar organik grupların bozunmasından kaynaklanan kütle kaybının ardından silika arojelın kütlesi sabit kalmıştır. Silika arojelın 800°C'de bozunmadan kalan kısmı %89,4 olarak belirlenmiştir. PEG/silika arojel kompozitinin TGA eğrisine bakıldığında sürekli bir kütle kaybının olduğu görülmüştür. KS/silika arojel kompozitinde ise su ve çözücü moleküllerinin uzaklaştırılmasının ardından önemli bir kütle kaybı tespit edilmemiştir. 800°C'de KS/silika arojel kompozitinin %92,6'sının bozunmadan kaldığı gözlemlenmiştir.



Şekil 5. 37. YFK külü kullanımı ile sentezlenen silika kserojel ve kompozitlerinin TGA eğrileri



Şekil 5. 38. YFK külü kullanımı ile sentezlenen silika arojel ve kompozitlerinin TGA eğrileri

Modifikasyon işlemi ile malzeme yüzeyine Si-CH₃ gruplarının bağlanması silika arojelın termal dayanımını arttırmıştır. Modifiye silika arojelın 800°C'de kütlesinin

%91,4'nü koruyarak yüksek termal kararlılık gösterdiği tespit edilmiştir.

5.3.6. Termal iletkenlik ve yoğunluk ölçümleri

Çizelge 5.12'de YFK külü kullanımı ile sentezlenen silika kserojel ve kompozitlerinin termal iletkenlik ve yoğunluk değerleri verilmiştir. Silika kserojel ve kompozitlerinin termal iletkenlik ve yoğunluk değerlerinin oldukça düşük olduğu gözlemlenmiştir. Silika kserojelin gözenek hacmi düşük olmasına rağmen yoğunluğunun 0,027 g/cm³ kadar düşük olması ısı iletiminin azaltılarak malzemenin termal iletkenlik değerinin (0,038 W/mK) oldukça düşük olmasını sağlamıştır. PEG ve KS ilavesiyle silika kserojelin hem termal iletkenlik hem de yoğunluğunda kısmi bir artış görülmüştür.

Literatürde tarımsal atıklardan elde edilen silika kserojellerin yoğunluk değerlerine (mısır sapı külü, 0,048 g/cm³; pirinç kabuğu külü, 1,25 g/cm³; şeker kamışı atığı külü, 1,41 g/cm³) bakıldığında bu çalışmada YFK külünden elde edilen silika kserojelin yoğunluk değerinin oldukça düşük olduğu tespit edilmiştir (Kalapathy ve ark., 2000; Alves ve ark., 2017; Guzel Kaya ve ark., 2018).

Çizelge 5. 12. YFK külü kullanımı ile sentezlenen silika kserojel ve kompozitlerinin yoğunluk ve termal iletkenlik değerleri

Örnek	Termal iletkenlik (W/mK)	Yığın yoğunluk (g/cm ³)
silika	0,038	0,027
PEG/silika	0,040	0,044
KS/silika	0,041	0,057

Çizelge 5.13'te YFK külü kullanımı ile sentezlenen silika arojel ve kompozitlerinin termal iletkenlik ve yoğunluk değerleri verilmiştir. Silika arojel ve kompozitlerinin termal iletkenlik ve yoğunluk değerlerinin silika kserojel ve kompozitlerinden daha düşük olduğu belirlenmiştir. Süperkritik CO₂ kurutma yöntemi ile malzemelerin gözenek hacminde görülen kısmi artış daha düşük yoğunluklu ve bununla bağlantılı olarak daha düşük termal iletkenlik değerlerine sahip malzemelerin sentezlenmesini sağlamıştır. Literatür çalışmaları incelendiğinde pirinç kabuğu külünden elde edilen silika arojelin yoğunluk değerinin 0,038 g/cm³ kadar düşük olduğu bilinmektedir (Tang ve Wang, 2005). YFK külünden elde edilen silika arojelin yoğunluk değerinin (0,026 g/cm³) literatür verilerinden daha düşük olduğu tespit edilmiştir.

Modifikasyon işleminin ardından silika arojelin yoğunluğunun önemli ölçüde arttığı gözlemlenmiştir. Daha yoğun bir silika ağ yapısının oluşumu malzemenin termal

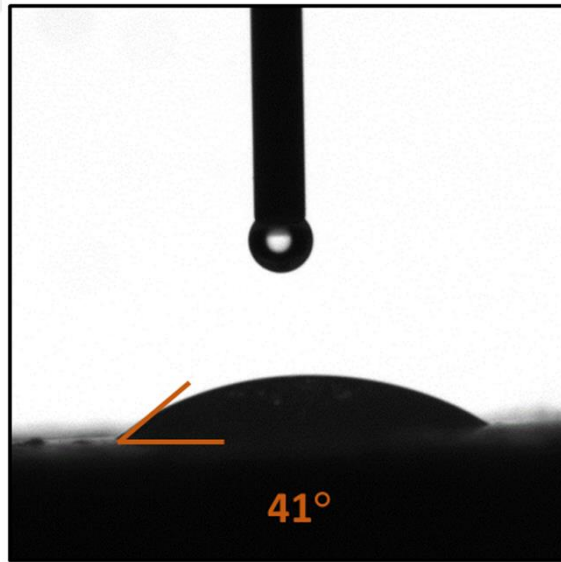
iletkenlik deęerini de arttırmıřtır.

Çizelge 5. 13. YFK külü kullanımı ile sentezlenen silika aerojel ve kompozitlerinin yoğunluk ve termal iletkenlik deęerleri

Örnek	Termal iletkenlik (W/mK)	Yığın yoğunluk (g/cm ³)
silika	0,034	0,026
PEG/silika	0,038	0,028
KS/silika	0,039	0,035
mod. silika	0,041	0,101

5.3.7. Temas açısı ölçümleri

Şekil 5.39’da YFK külü kullanımı ile sentezlenen silika kserojelin temas açısı görüntüsü gösterilmiştir. Silika kserojelin temas açısı 41° olarak belirlenmiştir. Silika kserojelin yüzeyindeki -OH fonksiyonel gruplarının sudaki hidrojen iyonlarıyla birleşme eğilimi hidrofilik yapının oluşumunda etkili olmuştur. Literatürde de herhangi bir modifikasyon işlemi uygulanmadığı sürece silika kserojellerin hidrofilik yapıya sahip olduğu görülmüştür.

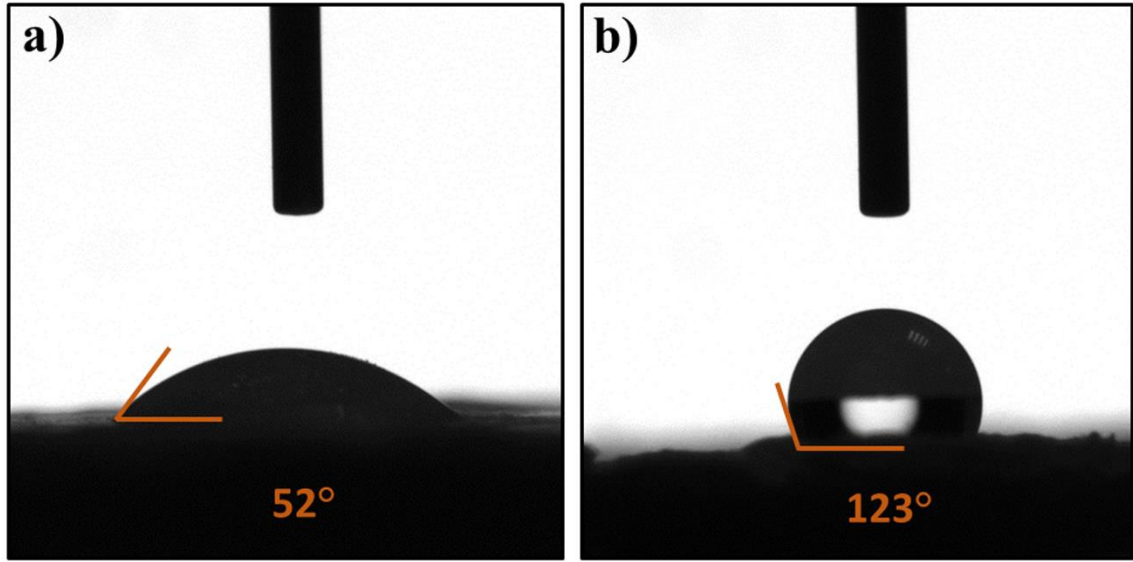


Şekil 5. 39. YFK külü kullanımı ile sentezlenen silika kserojelin temas açısı görüntüsü

Şekil 5.40’ta YFK külü kullanımı ile sentezlenen silika aerojel ve modifiye silika aerojelin temas açısı görüntüleri gösterilmiştir. Süperkritik kurutma şartlarına baęlı olarak silika aerojelin temas açısı 52° olarak tespit edilmiştir. Silika kserojel ile

karşılaştırıldığında gözeneklerde ve yüzeyde su/çözücü birikiminin minimize edilmesiyle silika aerogelin temas açısının daha yüksek olduğu görülmüştür.

Modifikasyon işleminin ardından silika aerogelin temas açısının önemli ölçüde arttığı tespit edilmiştir. Yüzeydeki -OH gruplarının Si-CH₃ grupları ile yer değiştirmesi ile silika aerogelin temas açısı 123°'ye ulaşmıştır.



Şekil 5. 40. YFK külü kullanımı ile sentezlenen **a)** silika aerogel ve **b)** modifiye silika aerogelin temas açısı görüntüleri

Son olarak TEOS, volkanik tüf ve YFK külü kullanımı ile sentezlenen silika kserojel/aerogellerin ve kompozitlerinin özellikleri Çizelge 5.14'te literatür çalışmalarıyla karşılaştırılmıştır. TEOS gibi ticari silika başlangıç malzemelerinden elde edilen silika kserojel/aerogellerin yüzey alanlarının inorganik yan ürünlerden ya da organik atıklardan elde edilen malzemelerinkinden kısmen yüksek olduğu görülmüştür. Ancak ucuz başlangıç malzemelerinin kullanımı ile sentezlenen bu malzemelerin yoğunluk ve termal iletkenlik değerlerinin oldukça düşük olduğu tespit edilmiştir. Ayrıca literatür çalışmalarıyla kıyaslandığında bu çalışmada elde edilen malzemelerin termal dayanımının yüksek olması bu malzemelerin en önemli avantajları arasında yer almaktadır.

Çizelge 5. 14. TEOS, volkanik tüf ve YFK külü kullanımı ile sentezlenen silika kserojel/aerojellerin ve kompozitlerinin özelliklerinin literatür çalışmalarıyla karşılaştırılması

Örnek	S _{BET} (m ² /g)	a (cm ³ /g)	b (nm)	Termal dayanım (%)	λ (W/mK)	ρ (g/cm ³)	θ (°)
silika kserojel (TEOS)	594	1,64	10	83,5 (800°C)	0,047	0,144	40
PEG/silika kserojel (TEOS)	756	2,66	16	81,0 (800°C)	0,048	0,184	< 5
KS/silika kserojel (TEOS)	798	3,21	17	86,0 (800°C)	0,048	0,194	45
silika aerogel (TEOS)	597	2,86	22	91,5 (800°C)	0,041	0,082	50
PEG/silika aerogel (TEOS)	762	4,26	32	91,0 (800°C)	0,041	0,111	-
KS/silika aerogel (TEOS)	800	4,46	30	92,0 (800°C)	0,043	0,139	-
silika kserojel (volkanik tüf)	195	0,50	2,7	88,3 (800°C)	0,041	0,037	60
PEG/silika kserojel (volkanik tüf)	306	0,84	2,8	66,2 (800°C)	0,041	0,050	-
KS/silika kserojel (volkanik tüf)	447	1,11	3,3	89,0 (800°C)	0,048	0,081	-
silika aerogel (volkanik tüf)	477	2,76	19	90,2 (800°C)	0,035	0,036	62
PEG/silika aerogel (volkanik tüf)	541	2,81	21	87,5 (800°C)	0,041	0,048	-
KS/silika aerogel (volkanik tüf)	553	3,33	24	96,0 (800°C)	0,043	0,067	-
silika kserojel (YFK külü)	70	0,28	2,7	65,0 (800°C)	0,038	0,027	41
PEG/silika kserojel (YFK külü)	98	0,45	2,8	60,4 (800°C)	0,048	0,044	-
KS/silika kserojel (YFK külü)	231	0,50	3,0	77,2 (800°C)	0,041	0,057	-
silika aerogel (YFK külü)	326	0,45	6	89,4 (800°C)	0,034	0,026	52
PEG/silika aerogel (YFK külü)	394	0,82	8	88,7 (800°C)	0,038	0,028	-
KS/silika aerogel (YFK külü)	436	0,94	8,1	92,6 (800°C)	0,039	0,035	-
silika kserojel (TEOS) (Scherdel ve Reichenauer, 2015)	376	-	16	-	-	0,500	-
modifiye silika kserojel (MTES) (Niu ve ark., 2019)	569	1,35	15	-	0,070	0,603	123
modifiye silika aerogel (TEOS) (Hilonga ve ark., 2009)	1150	5,20	14	67,0 (800°C)		0,041	168
silika aerogel	232	-	37	88,0 (700°C)	-	0,097	-

(MTMS)							
(Durães ve ark., 2012)							
modifiye silika arojel	-	11,4	-	88,0 (600°C)	0,090	0,084	146
(sodyum silikat)							
(Bangi ve ark., 2008)							
silika kserojel	152	0,14	3,4	-	-	-	-
(şeker kamışı külü)							
(Affandi ve ark., 2009)							
silika kserojel	252	0,90	4	89,0 (800°C)	0,040	0,048	-
(mısır sapı külü)							
(Guzel Kaya ve ark., 2018)							
silika kserojel	231	0,45	9	83,0 (800°C)	0,038	0,034	21
(fasulye kabuğu külü)							
(Guzel Kaya ve ark., 2019)							
silika kserojel	63	0,11	14,6	83,3 (800°C)	0,042	0,055	84
(çelikhane cürufu)							
(Guzel Kaya ve Deveci, 2020)							
silika arojel	499	3,31	26,5	-	-	0,330	-
(pirinç kabuğu külü)							
(Li ve Wang, 2008)							
silika arojel	789	2,77	14,1	75,0 (700°C)	-	0,077	-
(bitümlü şist külü)							
(Gao ve ark., 2010)							
silika arojel	465	2,70	20	-	-	0,060	< 5
(kaolin)							
(Hu ve ark., 2016)							
silika arojel	362	0,95	10,4	-	-	-	-
(uçucu kül)							
(Shi ve ark., 2010)							
silika arojel	59	0,24	22	17,0 (600°C)	-	0,290	-
(buğday nişastası)							
(Ubeyitogullari ve Ciftci, 2016)							

S_{BET}: spesifik yüzey alanı, **a**: gözenek hacmi, **b**: gözenek boyutu, **λ**: termal iletkenlik, **p**: yoğunluk ve **θ**: temas açısı

5.4. Volkanik Tüf Kullanımı ile Sentezlenen Silika Kserojellerin MB Adsorpsiyonunda Adsorbent Olarak Kullanımı

TEOS kullanımı ile sentezlenen silika arojel/kserojellerin yüzey alanı ve gözenekliliği volkanik tüf ve YFK külü kullanımı ile elde edilen malzemelerden daha yüksek olmasına rağmen MB adsorpsiyonunda volkanik tüf kullanımı ile sentezlenen silika kserojeller adsorbent olarak kullanılmıştır. Adsorpsiyon işlemlerinde maliyet oldukça önemli olduğu için pahalı ticari başlangıç malzemeleri yerine ucuz SiO₂ başlangıç malzemelerinden atmosfer basıncında kurutularak elde edilen silika kserojeller tercih edilmiştir. Volkanik tüf kullanımı ile sentezlenen silika kserojellerin yüzey alanı

(195 m²/g) YFK külünden sentezlenen kserojellerin yüzey alanından (70 m²/g) yüksek olduğu için volkanik tüften sentezlenen silika kserojeller MB adsorpsiyonu için en uygun adsorbent olarak seçilmiştir.

5.4.1. Deneysel faktörlerin optimizasyonu

L₁₆ dizilimine göre belirlenen koşullarda yapılan MB adsorpsiyon deneyleri sonucu elde edilen R ve S/N değerleri Çizelge 5.15'te verilmiştir. Test 7 koşullarında maksimum R (ortalama %95,86) ve S/N (39,63) değerlerinin elde edildiği görülmüştür.

Çizelge 5. 15. L₁₆ dizilimine göre belirlenen koşullarda elde edilen R ve S/N değerleri

Test	Faktör					R (%)		S/N
	A	B	C	D	E	R ₁	R ₂	
1	60	10	0,0002	25	5	83,56	82,59	38,39
2	60	20	0,0004	30	7	81,06	81,14	38,18
3	60	40	0,0008	35	9	90,28	88,59	39,03
4	60	80	0,0016	40	11	95,39	93,42	39,50
5	90	10	0,0004	35	11	81,52	82,98	38,30
6	90	20	0,0002	40	9	84,72	83,06	38,47
7	90	40	0,0016	25	7	96,27	95,45	39,63
8	90	80	0,0008	30	5	80,34	79,89	38,07
9	120	10	0,0008	40	7	89,43	89,77	39,05
10	120	20	0,0016	35	5	95,69	95,56	39,62
11	120	40	0,0002	30	11	73,98	74,50	37,41
12	120	80	0,0004	25	9	73,34	75,05	37,41
13	150	10	0,0016	30	9	91,67	91,90	39,26
14	150	20	0,0008	25	11	85,92	87,54	38,76
15	150	40	0,0004	40	5	85,70	84,17	38,58
16	150	80	0,0002	35	7	57,71	57,02	35,17

Çizelge 5.16'da verilen (M) Faktör^{Seviye} değerleri, MB adsorpsiyonu için optimum deney koşullarının değerlendirilmesinde kullanılmıştır. Elde edilen sonuçlara göre optimum deney koşulları; zaman 60 dakika, derişim 20 mg/L, adsorbent miktarı 0,0016 g/mL, sıcaklık 40°C ve pH 5 olarak tespit edilmiştir. Test 7 koşulları ile karşılaştırıldığında zamanın 90 dakikadan optimum koşullarda 60 dakikaya düşmesi MB adsorpsiyonunda zaman tasarrufu açısından önemli bir avantaj sağlamıştır. Optimum koşullarda ortalama R ve S/N değerleri ise sırasıyla %96,18 ve 39,66 olarak belirlenmiştir.

Çizelge 5. 16. L₁₆ dizilimine göre belirlenen koşullarda elde edilen (M) Faktör^{Seviye} değerleri

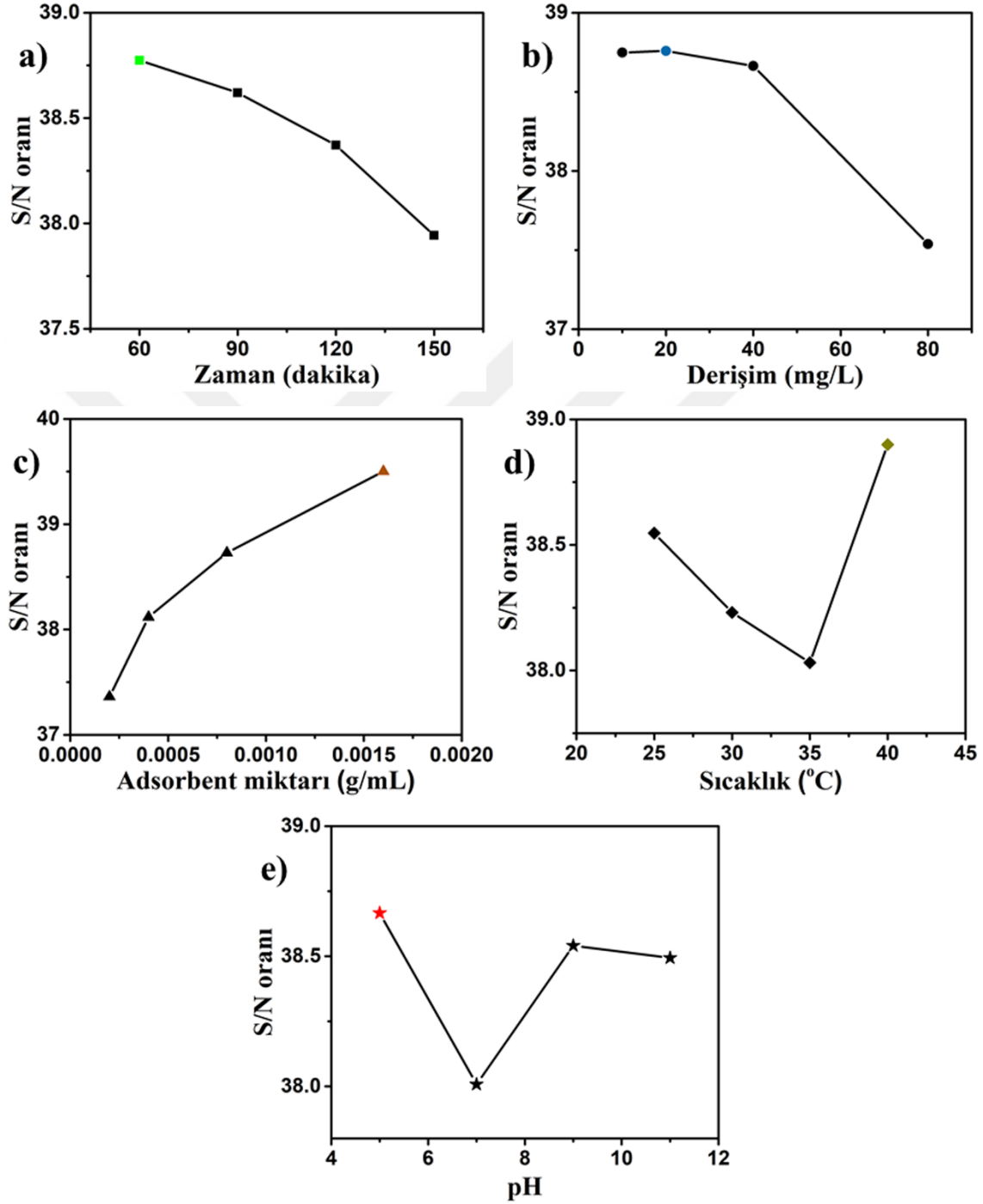
Faktör/Seviye	[(S/N) ^{Seviye} _{Faktör-j}]				(M) ^{Seviye} _{Faktör}
	j = 1	j = 2	j = 3	j = 4	
A/1	38,39	38,18	39,03	39,50	38,77
A/2	38,30	38,47	39,63	38,07	38,62
A/3	39,05	39,62	37,41	37,41	38,37
A/4	39,26	38,76	38,58	35,17	37,94
B/1	38,39	38,30	39,05	39,26	38,75
B/2	38,18	38,47	39,62	38,76	38,76
B/3	39,03	39,63	37,41	38,58	38,66
B/4	39,50	38,07	37,41	35,17	37,54
C/1	38,39	38,47	37,41	35,17	37,36
C/2	38,18	38,30	37,41	38,58	38,12
C/3	39,03	38,07	39,05	38,76	38,73
C/4	39,50	39,63	39,62	39,26	39,50
D/1	38,39	39,63	37,41	38,76	38,55
D/2	38,18	38,07	37,41	39,26	38,23
D/3	39,03	38,30	39,62	35,17	38,03
D/4	39,50	38,47	39,05	38,58	38,90
E/1	38,39	38,07	39,62	38,58	38,67
E/2	38,18	39,63	39,05	35,17	38,01
E/3	39,03	38,47	37,41	39,26	38,54
E/4	39,50	38,30	37,41	38,76	38,49

Şekil 5.41’de her bir faktörün S/N oranı üzerindeki etkisi gösterilmiştir. S/N oranının zamanla azaldığı Şekil 5.41a’da net bir şekilde görülmüştür. 60 dakika gibi kısa bir sürede MB adsorpsiyonunun dengeye ulaştığı belirlenmiştir. Adsorpsiyon prosesinin ilk aşamasında adsorbent yüzeyindeki aktif merkezler, MB giderim kapasitesinin artışı sağlamaktadır. Ancak optimum süresinin üzerinde MB giderim kapasitesinde çözeltideki ve adsorbent yüzeyindeki MB molekülleri arasındaki itme kuvvetlerinden kaynaklanan bir azalma meydana gelmektedir (Zolfaghari ve ark., 2011; Pathania ve ark., 2017).

Şekil 5.41b’de MB çözeltisinin derişiminin S/N oranı üzerindeki etkisi gösterilmiştir. Maksimum S/N oranı, 20 mg/L derişim değerinde belirlenmiştir. Derişimin artışı, adsorbent yüzeyindeki aktif merkezlerin daha hızlı doygunluk sınırına ulaşmasına neden olduğu için MB gideriminde azalma görülmektedir (Yagub ve ark., 2014).

Şekil 5.41c’de görüldüğü gibi adsorbent miktarının artışı literatürdeki birçok

çalışmada olduğu gibi MB giderim kapasitesini arttırmıştır. Adsorbent miktarının artışı adsorbent yüzeyindeki aktif merkezlerin sayısında artış sağladığı için genellikle giderim kapasitesini arttırmaktadır (Azizi ve ark., 2017).



Şekil 5. 41. Deneysel faktörlerin S/N oranı üzerindeki etkisi a) zaman, b) derişim, c) adsorbent miktarı, d) sıcaklık ve e) pH

Sıcaklığın S/N oranı üzerindeki etkisi Şekil 5.41d'de gösterilmiştir. Maksimum S/N oranı, sıcaklık 40°C iken elde edilmiştir. Yüksek sıcaklıklarda MB moleküllerinin

hareketliliği arttığı için moleküllerin adsorbent yüzeyindeki aktif merkezlere ulaşımı kolaylaşmaktadır. Ayrıca sıcaklık artışının MB adsorpsiyonu üzerinde olumlu etkileri olduğu da bilinmektedir (endotermik proses) (Auta ve Hameed, 2012).

Şekil 5.41e’de görüldüğü gibi pH değerinin S/N oranı üzerinde önemli bir etkisinin olmadığı tespit edilmiştir. Bir malzemenin adsorpsiyon performansı genellikle pH_{pzc} değerine göre belirlenmektedir. Silikanın pH_{pzc} değerinin 2,5 civarında olduğu bilinmektedir. Bu nedenle $pH > 2,5$ koşullarında MB adsorpsiyonun (katyonik boya) yüksek verimle gerçekleşmesi beklenmektedir. Bu koşullarda $Si-O^-$ ve $-OH$ fonksiyonel grupları arasındaki etkileşim, etkili bir adsorpsiyon giderimine katkı sağlamaktadır (Saad ve ark., 2015).

R_F değerlerini belirlemek için kullanılan parametreler Çizelge 5.17’de verilmiştir. Çizelge 5.18’de ise R_F değerlerine ek olarak SS_F , SS_T ve V_{ER} değerleri verilmiştir. Her bir faktörün katkı yüzdesinin oldukça düşük bir V_{ER} (0,70) değeri ile verildiği gösterilmiştir. %54,50 katkı yüzdesi ile MB adsorpsiyonu üzerindeki en önemli faktörün sıcaklık olduğu belirlenmiştir. Derişim ve adsorbent miktarının MB adsorpsiyonuna yüzde katkısı sırasıyla %20,86 ve %15,26 olarak tespit edilmiştir. Adsorpsiyon prosesine en az etkisi olan faktörlerin zaman (%7,17) ve pH (%1,64) olduğu görülmüştür.

Çizelge 5. 17. Her bir faktörün kth seviyesindeki ortalama değerleri ($\overline{RE}_k^A, \overline{RE}_k^B, \overline{RE}_k^C, \overline{RE}_k^D, \overline{RE}_k^E$) ve ortalama R değeri ($\overline{RE}_T$)

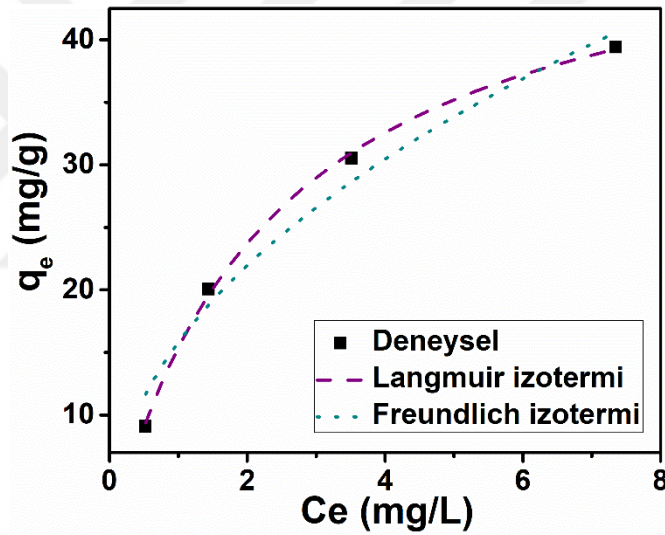
Seviye	$\overline{R}_k^A$	$\overline{R}_k^B$	$\overline{R}_k^C$	$\overline{R}_k^D$	$\overline{R}_k^E$	$\overline{R}_T$
1	87,00	86,68	81,04	81,52	82,98	84,04
2	85,53	86,84	85,73	73,74	83,94	
3	83,41	86,12	80,07	89,24	83,15	
4	80,21	76,52	89,31	91,65	86,08	

Çizelge 5. 18. Her bir faktörün katkı yüzdesi

F	DOF_F	SS_F	R_F (%)	SS_T	V_{ER}
Zaman (A)	3	208,74	7,17	2895,46	0,70
Derişim (B)	3	605,08	20,86		
Adsorbent miktarı (C)	3	442,80	15,26		
Sıcaklık (D)	3	1579,11	54,50		
pH (E)	3	48,60	1,64		
Hata			0,57		

5.4.2. Adsorpsiyon izotermi

Optimum koşullarda elde edilen MB adsorpsiyon izotermi Şekil 5.42’de gösterilmiştir. Ayrıca Çizelge 5.19’da Langmuir ve Freundlich adsorpsiyon izotermine ait parametreler verilmiştir. MB adsorpsiyon izotermi R^2 değeri karşılaştırıldığında Langmuir izotermi (R^2 : 0,998) deneysel verilere daha uygun olduğu görülmüştür. Bu durum, adsorbent yüzeyinde eşit enerjiye sahip aktif merkezlerin bulunduğu tek tabakalı bir adsorpsiyon prosesinin gerçekleştiğini açıklamaktadır (Shahabuddin ve ark., 2018). Çizelge 5.19’dan da görüldüğü gibi q_m ve b değerleri sırasıyla 51,967 mg/g ve 0,420 L/mg olarak belirlenmiştir. R_L değerinin ($R_L = 1 / (1 + b C_0)$) 0,663 olarak hesaplanması da MB adsorpsiyonunun elverişli bir proses olduğunu ispatlamıştır. $0 < R_L < 1$ koşullarında uygun bir adsorpsiyon prosesinin yürütüldüğü bilinmektedir (Guzel Kaya ve ark., 2019).



Şekil 5. 42. Optimum şartlardaki MB adsorpsiyonu izotermi

Çizelge 5. 19. Langmuir ve Freundlich izoterm sabitleri

Langmuir			Freundlich		
q_m (mg/g)	b (L/mg)	R^2	K_F (mg/g)	n (L/mg)	R^2
51,967	0,420	0,998	15,816	2,116	0,961

Çizelge 5.20’de bu çalışmada elde edilen maksimum MB adsorpsiyon kapasitesi, literatürde yer alan bazı çalışmalar ile karşılaştırılmıştır. Bu çalışmada elde edilen sonucun ticari başlangıç malzemelerinden sentezlenen silika arojellerin kullanıldığı MB adsorpsiyonundan elde edilen adsorpsiyon kapasitesinden daha yüksek olduğu

görülmüştür. Ayrıca volkanik tüf gibi ucuz bir başlangıç malzemesinden düşük bir maliyetle elde edilen silika kserojellerin kullanılması MB adsorpsiyonu için avantaj sağlamıştır.

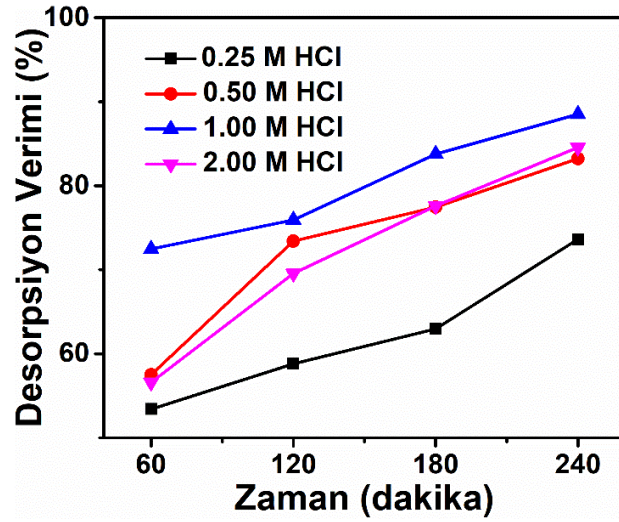
Çizelge 5. 20. Literatür çalışmaları

Başlangıç malzemesi	Adsorbent	q_m (mg/g)	Kaynak
TEOS	Silika aerojel	49,180	(Saad ve ark., 2015)
TMOS	Silika aerojel	15,350	(Kalmár ve ark., 2015)
TEOS	Silika aerojel	47,210	(Han ve ark., 2016)
TEOS	Silika aerojel	51,160	(Wei ve ark., 2018)
Şeker kamışı külü	Silika kserojel	15,620	(Maknun ve ark., 2018)
Volkanik tüf	Silika kserojel	51,967	Bu çalışmada

5.4.3. Desorpsiyon prosesi ve tekrarlanabilirliği

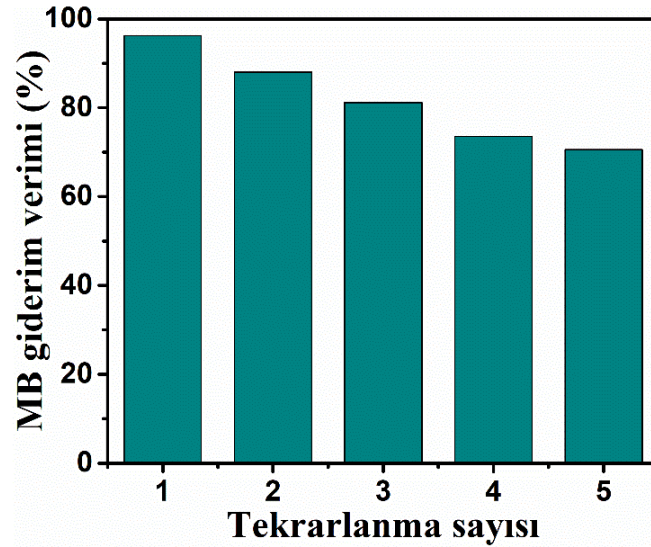
Ekonomik açıdan değerlendirildiğinde adsorpsiyon proseslerinde adsorbentin aynı verimle tekrar tekrar kullanılabilirliği oldukça önemlidir. Literatür çalışmalarına bakıldığında MB desorpsiyon proseslerinde farklı yapıda birçok çözeltinin kullanıldığı görülmüştür. Çeşitli çözeltilerdeki MB desorpsiyon verimleri şu şekilde belirtilmiştir; saf su (H_2O , %2,36), sodyum hidroksit ($NaOH$, %0,00), kloroform ($CHCl_3$, %16,62), sodyum klorür ($NaCl$, %21,28), metanol (CH_3OH , %24,05), aseton ($(CH_3)_2CO$, %27,11), fosforik asit (H_3PO_4 , %35,66) ve hidroklorik asit (HCl , %40,72) (Daneshvar ve ark., 2017). Asidik çözeltilerde MB desorpsiyon verimi daha yüksek olduğu için bu çalışmada da desorpsiyon çalışmaları farklı derişimlerdeki HCl çözeltilerinin kullanılmasıyla yürütülmüştür.

Şekil 5.43'te MB desorpsiyon veriminin HCl çözeltisi derişimine ve zamana bağlı değişimi gösterilmiştir. Maksimum MB desorpsiyon veriminin 1 M HCl çözeltisinde olduğu tespit edilmiştir. HCl çözeltisi derişiminin artışı adsorbent yüzeyindeki aktif merkezlere zarar vererek aktifliğini kaybetmesine neden olduğu için MB desorpsiyon veriminde bir azalma meydana gelmiştir (Malekbala ve ark., 2015). Ayrıca MB desorpsiyon veriminin zamanla arttığı belirlenmiştir. 4 saatin sonunda 1 M HCl çözeltisinde maksimum MB desorpsiyon verimine (%88) ulaşılmıştır.



Şekil 5. 43. HCl çözeltisi derişimine ve zamana bağı desorpsiyon verimi

Şekil 5.44’te aynı adsorbentin 5 kez kullanımı sonucu MB giderim veriminin nasıl değıştiğı gösterilmiştir. Adsorbentin her kullanımında MB giderim veriminin kısmen azaldığı net bir şekilde görülmüştür. Adsorbentin ilk kullanımında MB giderim verimi %96,19 iken beşinci kez kullanımında verimin %70’e kadar düştüğü belirlenmiştir. Bu sonuçlar da volkanik tüften elde edilen silika kserojellerin MB adsorpsiyonu için verimli bir adsorbent olduğunu göstermiştir.



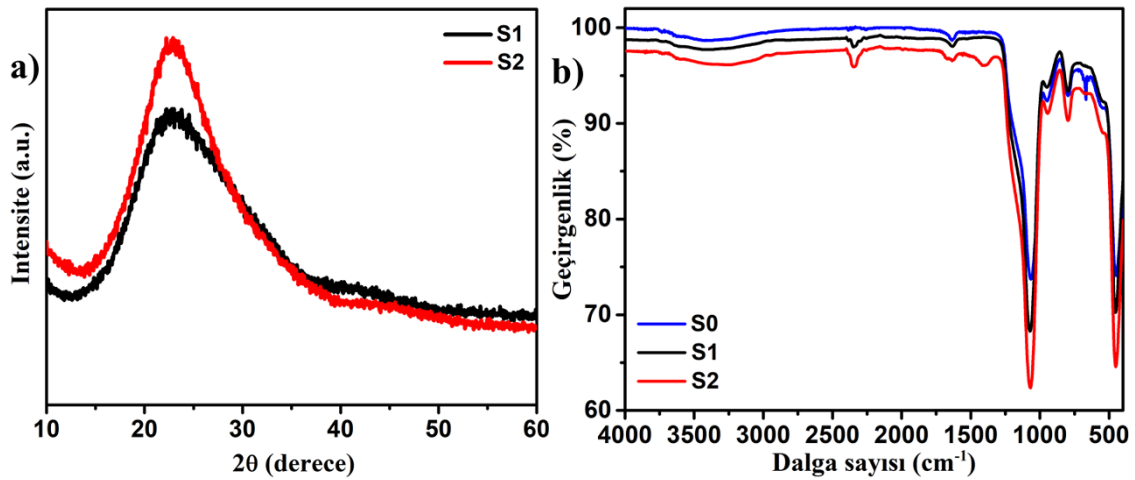
Şekil 5. 44. 5 kez aynı adsorbentin kullanımı sonucu MB giderim verimi

5.5. Antibakteriyel Uygulamalar

Antibakteriyel uygulamalarda volkanik tüf kullanımı ile elde edilen silika kserojellerin taşıyıcı olarak kullanılabilirliği incelenmiştir.

5.5.1. Antibiyotik yüklü silika kserojellerin özellikleri

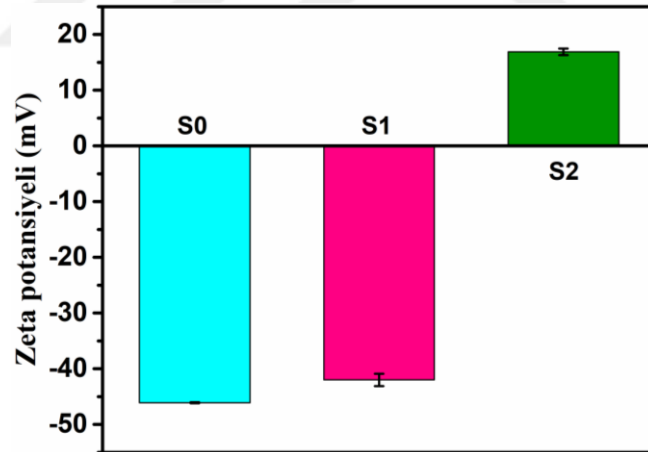
Şekil 5.45 a'da S1 ve S2 malzemelerinin XRD desenleri gösterilmiştir. $2\theta = 22^\circ$ 'de görülen geniş bantlar, S1 ve S2 malzemelerinin silika kserojel gibi amorf yapıda olduğunu göstermiştir. Şekil 5.45 b'de S0, S1 ve S2 malzemelerinin FTIR spektrumları gösterilmiştir. Linezolid ve ϵ -poli-l-lizin ilavesine bağlı olarak silika kserojelin bağ yapısında bazı değişiklikler gözlemlenmiştir. Silika kserojele linezolid yüklenmesiyle birlikte N-H gerilme titreşimleri, 3390 cm^{-1} deki geniş bandın 3362 cm^{-1} e kaymasına neden olmuştur. 2352 cm^{-1} de C=O gerilme titreşimlerinden kaynaklı bir pik tespit edilmiştir. N-H eğilme titreşimleri, 1645 cm^{-1} de bulunan pikin şiddetini kısmen arttırmıştır (Kashyap Khatri ve ark., 2016). Ayrıca 667 cm^{-1} de görülen Si-OH gerilme titreşimlerinden kaynaklı pikin linezolid varlığında kaybolduğu belirlenmiştir. S2 malzemesinin spektrumunda ise ϵ -poli-l-lizine ait iki birincil amit pikinin iç içe geçmesiyle geniş pikin 3290 cm^{-1} civarına kaydığı görülmüştür (Shi ve ark., 2015). 1400 cm^{-1} de amit II titreşimlerinden kaynaklı bir pikin oluştuğu tespit edilmiştir. ϵ -poli-l-lizin ilavesi 2337 cm^{-1} ve 1636 cm^{-1} de bulunan piklerin şiddetini arttırmıştır (Lin ve ark., 2018).



Şekil 5. 45. S1 ve S2 malzemelerinin XRD desenleri ve b) S0, S1 ve S2 malzemelerinin FTIR spektrumları

Salınım sistemlerinde taşıyıcı malzemelerin yüzey özellikleri önemli rol oynamaktadır. Zeta potansiyeli ölçümleri, malzemelerin yüzey özellikleri hakkında bilgi

vermektedir (Ma ve ark., 2010). Şekil 5.46'da S0, S1 ve S2 malzemelerinin zeta potansiyelleri gösterilmiştir. Yüzeyinde bulunan hidroksil gruplarından dolayı silika kserojelin zeta potansiyeli yaklaşık -46,1 mV olarak belirlenmiştir (Tan ve ark., 2018). Negatif yüzey yüküne sahip silika kserojele linezolid yüklenmesi malzemenin zeta potansiyelini hemen hemen değiştirmemiştir. Linezolidin yapısı göz önünde bulundurulduğunda silika kserojelin daha çok gözeneklerine nüfuz etmesi S1 malzemesinin yüzey özellikleri üzerine önemli bir etki etmemiştir. S1 malzemesinin zeta potansiyeli -42,0 mV olarak tespit edilmiştir. Negatif yüzey yükü, malzeme yüzeyinin pozitif yüklü malzemelerle fonksiyonelleştirilmesini ya da kaplanmasını kolaylaştırmaktadır. Malzeme yüzeyine ϵ -poli-l-lizin kaplanmasıyla malzemenin zeta potansiyelinin 16,9 mV değerlerine ulaştığı görülmüştür. Katyonik bir polimer olan ϵ -poli-l-lizinin S1 malzemesi yüzeyindeki fonksiyonel hidroksil gruplarla olan elektrostatik etkileşimi sonucu pozitif yüzey yüküne sahip S2 malzemesi elde edilmiştir. Pozitif yüklü malzemelerin elde edilmesi antibakteriyel uygulamalarda önemli bir avantaj sağlamaktadır. Bakterilerin yüzey yükü negatif olduğu için pozitif yüklü malzemeler kolayca bakteri yüzeyine tutunarak aktivite gösterebilmektedir (Wang ve ark., 2017).

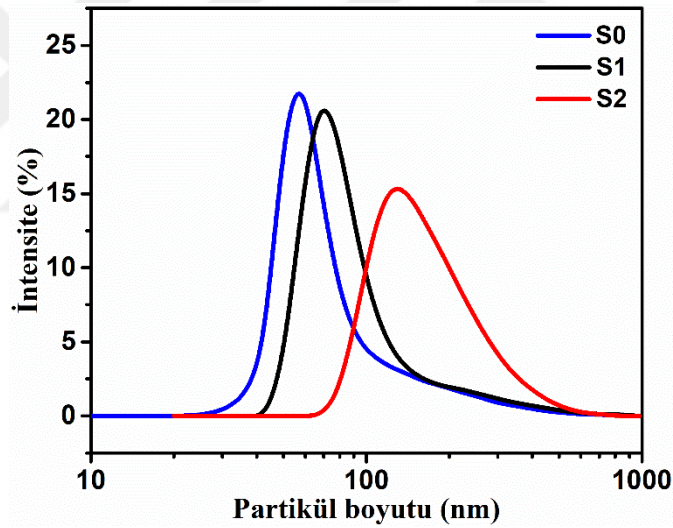


Şekil 5. 46. S0, S1 ve S2 malzemelerinin zeta potansiyeli

Salınım sistemlerinde kullanılan silika temelli malzemelerin partikül boyutu genellikle 50-500 nm aralığında değişmektedir (Ranghar ve ark., 2014). Şekil 5.47'de S0, S1 ve S2 malzemelerinin partikül boyutu dağılımı gösterilmiştir. Silika ağ yapısının yaklaşık 86 nm boyutundaki partiküllerden oluştuğu belirlenmiştir. S1 ve S2 malzemelerinin partikül boyutu sırasıyla 95 nm ve 175 nm olarak tespit edilmiştir. Linezolid malzeme gözeneklerine nüfuz ettiği için linezolid ilavesiyle malzemenin

partikül boyutunda önemli bir değişiklik gözlenmezken ϵ -poli-l-lizin malzeme yüzeyinde bir kaplama gibi davrandığı için malzemenin partikül boyutunu arttırmıştır. Pik şiddetlerindeki azalma ise malzemelerin yüzey alanının azaldığını göstermiştir. Ayrıca malzemelerin partikül boyutunun 50-500 nm arasında olması da elde edilen malzemelerin salınım sistemleri için uygun malzemeler olduğunu kanıtlamıştır.

Çizelge 5.21’de S1 ve S2 malzemelerinin içerdiği linezolid ve ϵ -poli-l-lizin miktarı verilmiştir. S1 ve S2 malzemelerinin linezolid miktarının oldukça yakın değerlerde olduğu tespit edilmiştir. Linezolid miktarlarının yakın olması ϵ -poli-l-lizin kaplaması sırasında istenmeyen bir linezolid salınımının olmadığını göstermiştir. S2 malzemesi yüzeyine kaplanan ϵ -poli-l-lizin miktarı ise 0,022 mmol/g olarak belirlenmiştir. Literatürde yer alan mezogözenekli silika temelli malzemelerle karşılaştırıldığında benzer sonuçların elde edildiği görülmüştür (Mas ve ark., 2013; Velikova ve ark., 2017).



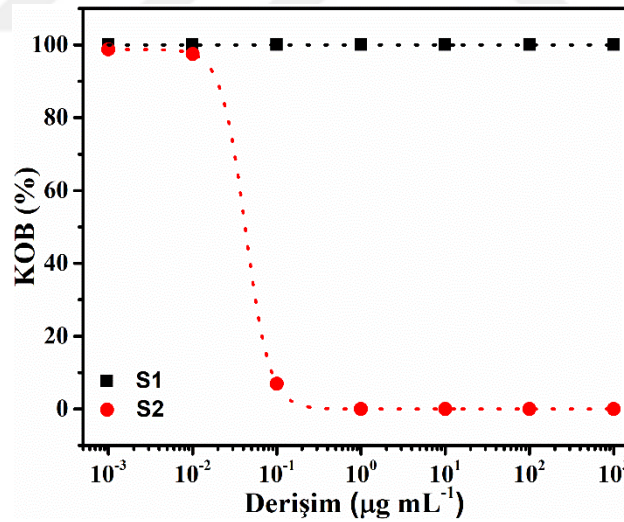
Şekil 5. 47. S0, S1 ve S2 malzemelerinin partikül boyutu dağılımı

Çizelge 5. 21. S0, S1 ve S2 malzemelerindeki organik madde miktarı

Malzeme	Linezolid (mmol/g)	ϵ -poli-l-lizin (mmol/g)
S0	---	---
S1	0,188	---
S2	0,187	0,022

5.5.2. Antibiyotik yüklü silika kserojellerin antibakteriyel aktivite testleri

Bilindiği üzere silika kserojel gibi silika temelli malzemeler tek başına antibakteriyel aktivite göstermemektedir. Bu malzemeler genellikle salınım sistemlerinde taşıyıcı olarak kullanılmaktadır (Ruiz-Rico ve ark., 2015). Linezolid ise Gram-pozitif bakterilere etki edebilen oksazolidinon grubu antibiyotikler sınıfında yer almaktadır (Zahedi Bialvaei ve ark., 2017). Dolayısıyla Şekil 5.48’de da gösterildiği gibi silika kserojel ve linezolid kombinasyonu ile elde edilen S1 malzemesi *E. coli* bakterisi üzerinde herhangi bir etki göstermemiştir. Ancak ϵ -poli-l-lizin varlığında S2 malzemesi antibakteriyel aktivite kazanarak *E. coli* oluşumunu engellemiştir. Pozitif yüklü S2 malzemesinin negatif yüklü *E. coli* yüzeyine tutunmasının ardından ϵ -poli-l-lizin bakteri dış membranının parçalanmasını sağlamıştır. Silika kserojel ve ϵ -poli-l-lizin arasındaki elektrostatik etkileşimlerin azalmasıyla salınan linezolid, dış membranının parçalanmasıyla Gram-pozitif bakteri gibi davranan *E. coli* bakterisine karşı aktivite göstermiştir (Chang ve ark., 2012). Linezolid, bakterideki aminoasil-tRNA bağlarının parçalanmasını sağlayarak protein sentezini bloke edip *E. coli* oluşumunu kısıtlamıştır (Barbachyn ve Ford, 2003).



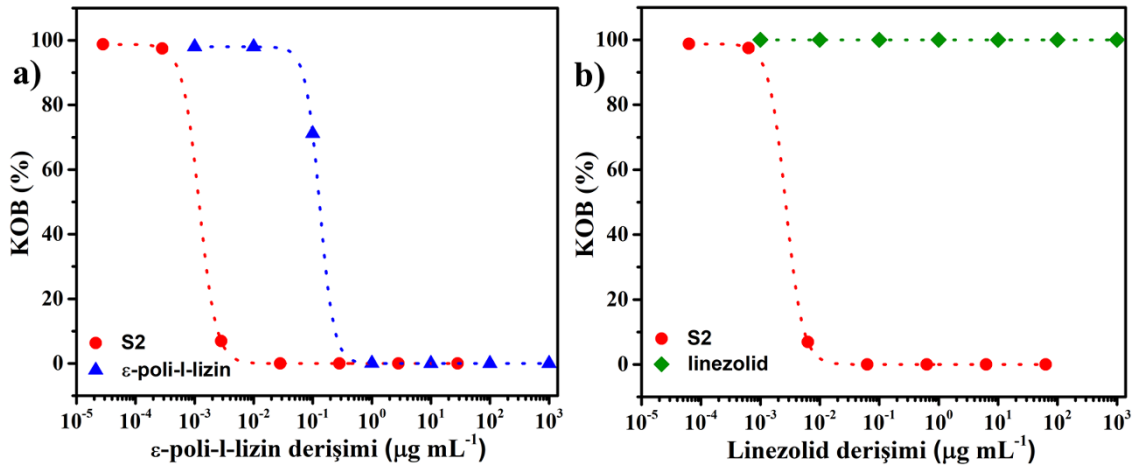
Şekil 5. 48. S1 ve S2 malzemelerinin antibakteriyel aktivitesi

Çizelge 5.22’de verilen minimal inhibisyon derişimi (MİD) sonuçları oldukça düşük derişimlerdeki (0,026 µg/mL) S2 malzemesinin antibakteriyel aktivite göstermeye başladığını açığa çıkarmıştır. 0,220 µg/mL S2 malzemesinin ise *E. coli* oluşumunu tamamen engellediği belirlenmiştir.

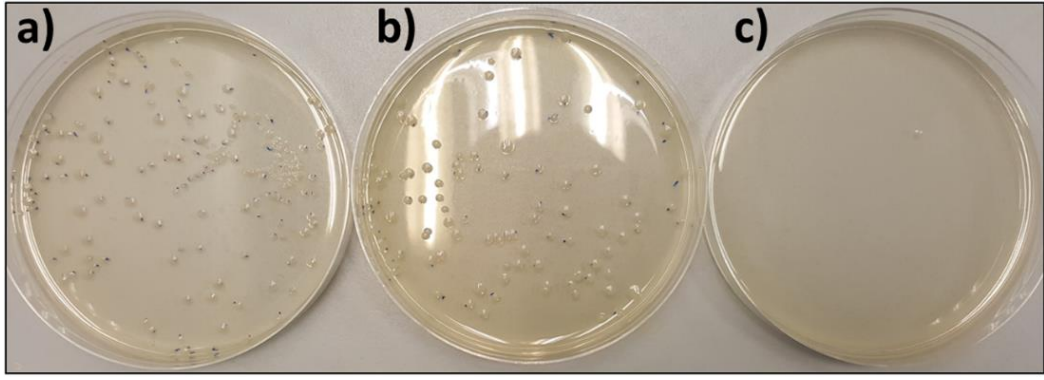
Çizelge 5. 22. S2, serbest linezolid ve ϵ -poli-l-lizinin MİD değerleri

Malzeme	MİD ₁₀ (µg/mL)	MİD ₅₀ (µg/mL)	MİD ₁₀₀ (µg/mL)
S2	0,026	0,040	0,220
linezolid	---	---	---
ϵ -poli-l-lizin	0,105	0,130	0,840

Şekil 5.49'da S2 malzemesinin ϵ -poli-l-lizin ve linezolid derişimine bağı antibakteriyel aktivite test sonuçları gösterilmiştir. Ayrıca Şekil 5.50'de aynı derişimlerdeki S2 ve ϵ -poli-l-lizinin yayma plak testi sonucu elde edilen plaka görüntüleri gösterilmiştir. ϵ -poli-l-lizin tek başına *E. coli* oluşumunun engellenmesinde önemli rol oynamaktadır. Ancak Çizelge 5.22'de de görüldüğü gibi *E. coli* oluşumunun %100 engellenmesi için en az 0,840 µg/mL derişiminde ϵ -poli-l-lizin kullanılması gerekmektedir. ϵ -poli-l-lizin ile karşılaştırıldığında S2 malzemesinin oldukça düşük derişimlerde antibakteriyel aktivite gösterdiği tespit edilmiştir. *E. coli* bakterisinin dış membranının parçalanmasıyla Gram-negatif bakterilerden herhangi bir farkının kalmaması, linezolid aktivitesini ön plana çıkarmıştır (Hyldgaard ve ark., 2014). Sonuç olarak silika kserojelin taşıyıcı olarak değerlendirildiği, ϵ -poli-l-lizin ve linezolidin kombinasyonu ile tasarlanan bu yeni salınım sistemi, ϵ -poli-l-lizin ve linezolidin tek başına kullanımı ile kıyaslandığında ümit vaat eden bir antibakteriyel performans sergilenmiştir.



Şekil 5. 49. S2 malzemesinin a) ϵ -poli-l-lizinin ve b) linezolid derişimine bağı antibakteriyel aktivitesi



Şekil 5. 50. Yayma plak metodu sonuçları **a)** kontrol, **b)** ϵ -poli-l-lizin ve **c)** S2

Elde edilen sonuçlar volkanik tüf kullanımı ile sentezlenen silika kserojellerin antibakteriyel uygulamalarda etkin bir taşıyıcı malzeme olarak kullanılabileceğini göstermiştir. Ayrıca yeni tasarlanan ilaç taşıma sistemiyle linezolidin spektrumu genişletilerek Gram-negatif bakterilere de antibakteriyel aktive göstermesi sağlanmıştır.

6. SONUÇLARIN DEĞERLENDİRİLMESİ

Bu çalışmada TEOS, volkanik tüf ve YFK külü başlangıç malzemeleri kullanılarak silika kserojel ve aerojeller sentezlenmiştir. Ardından PEG ve KS ilavesiyle silika kserojel ve aerojel kompozitleri elde edilmiştir. Ayrıca modifikasyon işleminin malzemelerin özellikleri üzerindeki etkisi araştırılmıştır. Elde edilen malzemelerin yapısal ve morfolojik özellikleri, gözenek yapısı, termal özellikleri ve hidrofilik/hidrofobik yapısı çeşitli analiz ve testlerle incelenmiştir. Maliyete ek olarak malzeme özellikleri de değerlendirildiğinde volkanik tüften sentezlenen silika kserojeller, MB adsorpsiyonu ve antibakteriyel aktivite uygulamalarında farklı amaçlarla kullanılmıştır.

XRD analizleri sonucu elde edilen malzemelerin amorf yapıda sentezlendiği tespit edilmiştir. FTIR analizleri ile silika temelli bu malzemelerin başarılı bir şekilde elde edildiği görülmüştür. Elde edilen malzemelerin mezogözenekli yapıda olduğu N₂ adsorpsiyon-desorpsiyon izotermelerinden anlaşılmıştır. TEOS kullanımı ile sentezlenen silika aerojel ve kserojellerin yüzey alanının volkanik tüf ve YFK külü kullanımı ile elde edilen aerojel ve kserojellerin yüzey alanından daha yüksek olduğu belirlenmiştir. Ayrıca süperkritik kurutma yönteminin etkisiyle silika aerojellerin gözenek hacminin silika kserojellere göre daha yüksek olduğu görülmüştür. Örneğin volkanik tüften sentezlenen silika aerojel ve kserojelin gözenek hacmi sırasıyla 477 m²/g ve 195 m²/g olarak tespit edilmiştir. Silika aerojellerin (800°C'de bozunmadan kalan kısım > %90) silika kserojellere (800°C'de bozunmadan kalan kısım %83) göre daha yüksek termal dayanıma sahip olduğu gözlenmiştir. Volkanik tüf ve YFK külü kullanımı ile elde edilen aerojel ve kserojellerin termal iletkenlik ve yoğunluk değerlerinin TEOS kullanımı ile sentezlenen silika aerojel ve kserojeller ile karşılaştırıldığında oldukça düşük olduğu belirlenmiştir. Literatür verileriyle karşılaştırıldığında özellikle YFK külünden sentezlenen aerojellerin termal iletkenlik (0,034 W/mK) ve yoğunluk (0,026 g/cm³) değerlerinin oldukça düşük olması bu malzemelerin önemli bir avantajı olarak düşünülmüştür. Son olarak temas açısı ölçümleri silika aerojel ve kserojellerin hidrofilik yapıda olduğu göstermiştir.

PEG ve KS varlığında malzemelerin gözenek yapısı özelliklerinde bazı değişiklikler gözlenmiştir. PEG ve KS silika kserojel ve aerojellerin yüzey alanı, gözenek boyutu ve hacminde artış sağlamıştır. PEG ilavesi malzemelerin termal dayanımını azaltırken KS termal dayanımı arttırmıştır. Silika aerojel ve kserojeller ile

kıyaslandığında elde edilen kompozitlerin termal iletkenlik ve yoğunluk değerlerinde kısmi bir artış belirlenmiştir.

TMCS ile yapılan modifikasyon işlemi sonucu elde edilen FESEM görüntülerinden daha sinterlenmiş yapıda malzemelerin elde edildiği görülmüştür. Dolayısıyla malzemelerin yüzey alanında azalma meydana gelmiştir. Ancak modifikasyon işlemi ile termal dayanımı daha yüksek ve hidrofobik yapıda malzemeler elde edilmiştir. Örneğin volkanik tüften sentezlenen silika kserojelin temas açısı 62° iken modifikasyon işleminin ardından temas açısı 127° değerlerine ulaşmıştır. Diğer bir ifadeyle malzemelerin yüzey modifikasyonu sonucu hidrofobik yapıya dönüştüğü tespit edilmiştir.

Oldukça ucuz bir malzeme olan volkanik tüf kullanımı ile sentezlenen silika kserojeller MB adsorpsiyonunda adsorbent olarak kullanılmıştır. Taguchi optimizasyon yöntemi ile daha az sayıda deney yapılarak deneysel faktörlerin adsorpsiyon prosesi üzerindeki etkileri incelenmiştir. Sıcaklık faktörünün MB adsorpsiyonu üzerinde %54.50 oranında etkili olduğu belirlenmiştir. Optimum koşullarda (zaman 60 dakika, derişim 20 mg/L, adsorbent miktarı 0,0016 g/mL, sıcaklık 40°C ve pH 5) maksimum adsorpsiyon yüzdesi ve kapasitesi sırasıyla %96,18 ve 51,967 mg/g olarak hesaplanmıştır. 1 M HCl çözeltisinin kullanımıyla yürütülen desorpsiyon çalışmaları, 4 saat sonunda maksimum desorpsiyon veriminin %88 civarında olduğunu göstermiştir. Adsorpsiyon çalışmaları için önemli bir parametre olan adsorbentin tekrar kullanılabilirliği incelendiğinde ise 5 kez yapılan adsorpsiyon-desorpsiyon döngüsünün ardından silika kserojelin yaklaşık %70 verimle çalışmaya devam ettiği gözlemlenmiştir. Elde edilen sonuçlar volkanik tüften sentezlenen silika kserojellerin atık su arıtımı gibi çevresel uygulamalarda verimli bir şekilde kullanılabileceğini göstermiştir. Ayrıca elde edilen sonuçlar ışığında bu malzemelerin gaz adsorpsiyonunda, toz zerreciklerinin tutumunda, katalitik uygulamalarda uygulama potansiyeline sahip olduğu düşünülmüştür.

Volkanik tüf kullanımı ile sentezlenen silika kserojellerin, hafifliklerinin yanı sıra uygun gözenek ve partikül boyutu da dikkate alınarak antibakteriyel uygulamalarda taşıyıcı malzeme olarak kullanılabilirliği araştırılmıştır. Normalde Gram-pozitif bakterilere karşı aktivite gösterebilen linezolidin silika kserojellere yüklemesinin ardından ϵ -poli-l-lizin kaplanmasıyla spektrumunun genişletilmesi amaçlanmıştır. Bu amaçla farklı derişimlerdeki ϵ -poli-l-lizin kaplı linezolid yüklü silika kserojellerin E. coli bakterisine karşı gösterdiği aktivite incelenmiştir. Silika kserojel ve linezolid tek başına antibakteriyel aktivite göstermezken yeni tasarlanan sistemin E. coli bakterisine karşı

aktivite gösterdiği tespit edilmiştir. 0,220 µg/mL kadar düşük derişimlerdeki ε-poli-l-lizin kaplı linezolid yüklü silika kserojel süspansiyonlarının E. coli oluşumunu engellediği gözlenmiştir. Yeni tasarlanan bu sistem ile hem daha ucuz taşıyıcıların kullanımıyla maliyetin azaltılması hem de antibiyotik direnci kazanmış bakterilerden kaynaklanan hastalıkların önlenmesi için yeni antibiyotik üretmek yerine hazırda var olan antibiyotiklerin spektrumunun genişletilerek daha fazla bakteri türüne etki edebilmeleri sağlanmıştır. Ayrıca bu uygulama bu malzemelerin ilaç salınım sistemlerinde, biyomedikal uygulamalarda, doku mühendisliğinde ve implantlarda da kullanılabilirliğinin önünü açmıştır.



KAYNAKLAR

- Abdul Halim, Z.A., Mat Yajid, M.A., Idris, M.H., Hamdan, H., 2017, Effects of silica aerogel particle sizes on the thermal–mechanical properties of silica aerogel – unsaturated polyester composites, *Plastics, Rubber and Composites*, 46 (4), 184-92.
- Acosta-Rangel, A., Sánchez-Polo, M., Polo, A.M.S., Rivera-Utrilla, J., Berber-Mendoza, M.S., 2018, Tinidazole degradation assisted by solar radiation and iron-doped silica xerogels, *Chemical Engineering Journal*, 344, 21-33.
- Aditya, L., Mahlia, T.M.I., Rismanchi, B., Ng, H.M., Hasan, M.H., Metselaar, H.S.C., Muraza, O., Aditya, H.B., 2017, A review on insulation materials for energy conservation in buildings, *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, 73, 1352-65.
- Aegerter, M.A., Leventis, N., Koebel, M.M., 2011, *Aerogels Handbook*, Springer, London 118-9.
- Affandi, S., Setyawan, H., Winardi, S., Purwanto, A., Balgis, R., 2009, A facile method for production of high-purity silica xerogels from bagasse ash, *Advanced Powder Technology*, 20 (5), 468-72.
- Ai, D., Fu, S.-Y., Mai, Y.-W., Du, S.-Y., Bin, Z., Yunong, L., Xiuyan, L., Junjian, Y., Longxiang, L., Zhihua, Z., Guohua, G., Jun, S., 2011, Aerogel: a potential three-dimensional nanoporous filler for resins, *Journal of Reinforced Plastics and Composites*, 30 (11), 912-21.
- Akimov, Y., 2003, Fields of Application of Aerogels, *Instruments and Experimental Techniques*, 46 (3), 287-99.
- Al-Oweini, R., El-Rassy, H., 2009, Synthesis and characterization by FTIR spectroscopy of silica aerogels prepared using several $\text{Si}(\text{OR})_4$ and $\text{R}''\text{Si}(\text{OR}')_3$ precursors, *Journal of Molecular Structure*, 919 (1-3), 140-5.
- Al-Zboon, K.K., Al-smadi, B.M., Al-Khawaldh, S., 2016, Natural volcanic tuff-based geopolymer for Zn removal: adsorption isotherm, kinetic, and thermodynamic study, *Water, Air, & Soil Pollution*, 227 (7).
- Al-Zboon, K.K., Al-Zou'by, J., 2015, Effect of volcanic tuff on the characteristics of cement mortar, *European Journal of Environmental and Civil Engineering*, 20 (5), 520-31.
- Alekshun, M.N., Levy, S.B., 2007, Molecular mechanisms of antibacterial multidrug resistance, *Cell*, 128 (6), 1037-50.
- Alie, C., Pirard, R., Lecloux, A.J., Pirard, J.-P., 1999, Preparation of low-density xerogels through additives to TEOS-based alcogels, *Journal of Non-Crystalline Solids*, 246 216-28.
- Aliev, A.E., Oh, J., Kozlov, M.E., Kuznetsov, A.A., Fang, S., Fonseca, A.F., Ovalle, R., Lima, M.D., Haque, M.H., Gartstein, Y.N., Zhang, M., Zakhidov, A.A., Baughman, R.H., 2009, Giant-Stroke, Superelastic carbon nanotube aerogel muscles, *Science*, 323, 1575-8.
- Aljeboree, A.M., Alshirifi, A.N., Alkaim, A.F., 2017, Kinetics and equilibrium study for the adsorption of textile dyes on coconut shell activated carbon, *Arabian Journal of Chemistry*, 10, 3381-93.
- Allothman, Z., 2012, A Review: Fundamental aspects of silicate mesoporous materials, *Materials*, 5 (12), 2874-902.
- Alves, R.H., Reis, T.V.d.S., Rovani, S., Fungaro, D.A., 2017, Green synthesis and characterization of biosilica produced from sugarcane waste ash, *Journal of Chemistry*, 2017, 1-9.

- Amonette, J.E., Matyáš, J., 2017, Functionalized silica aerogels for gas-phase purification, sensing, and catalysis: A review, *Microporous and Mesoporous Materials*, 250, 100-19.
- Anderson, R.J., Groundwater, P.W., Todd, A., Worsley, A.J., 2012, Antibacterial agents chemistry, mode of action, mechanisms of resistance and clinical applications, *John Wiley & Sons, Inc.*, West Sussex, United Kingdom, 44-5.
- Aravind, P.R., Shajesh, P., Soraru, G.D., Warriar, K.G.K., 2010, Ambient pressure drying: a successful approach for the preparation of silica and silica based mixed oxide aerogels, *Journal of Sol-Gel Science and Technology*, 54 (1), 105-17.
- Auta, M., Hameed, B.H., 2012, Modified mesoporous clay adsorbent for adsorption isotherm and kinetics of methylene blue, *Chemical Engineering Journal*, 198-199, 219-27.
- Azizi, H.R., Pakdehi, S.G., Babaei, S., 2017, Thermodynamic study and optimization a nano-zeolite for dehydration liquid fuel (DMAZ) using Taguchi L₁₆ orthogonal array, *Arabian Journal for Science and Engineering*, 43 (5), 2465-72.
- Baetens, R., Jelle, B.P., Gustavsen, A., 2011, Aerogel insulation for building applications: A state-of-the-art review, *Energy and Buildings*, 43 (4), 761-9.
- Banerjee, S., Chattopadhyaya, M.C., 2017, Adsorption characteristics for the removal of a toxic dye, tartrazine from aqueous solutions by a low cost agricultural by-product, *Arabian Journal of Chemistry*, 10, 1629-38.
- Bangi, U.K., Venkateswara Rao, A., Parvathy Rao, A., 2008, A new route for preparation of sodium-silicate-based hydrophobic silica aerogels via ambient-pressure drying, *Science and Technology of Advanced Materials*, 9 (3), 035006.
- Barbachyn, M.R., Ford, C.W., 2003, Oxazolidinone structure-activity relationships leading to linezolid, *Angewandte Chemie International Edition*, 42 (18), 2010-23.
- Barman, G., Kumar, A., Khare, P., 2011, Removal of congo red by carbonized low-cost adsorbents: Process parameter optimization using a Taguchi experimental design, *Journal of Chemical & Engineering Data*, 56 (11), 4102-8.
- Bernardos, A., Piacenza, E., Sancenon, F., Hamidi, M., Maleki, A., Turner, R.J., Martinez-Manez, R., 2019, Mesoporous silica-based materials with bactericidal properties, *Small*, 15 (24), e1900669.
- Bhattacharyya, K., Sharma, A., 2005, Kinetics and thermodynamics of Methylene Blue adsorption on Neem (*Azadirachta indica*) leaf powder, *Dyes and Pigments*, 65 (1), 51-9.
- Bisson, A., Rigacci, A., Lecomte, D., Achard, P., 2004, Effective thermal conductivity of divided silica xerogel beds, *Journal of Non-Crystalline Solids*, 350, 379-84.
- Buckley, A., Greenblatt, M., 1994, The sol-gel preparation of silica gels, *Journal of Chemical Education*, 71 (7), 599-602.
- Bulut, Y., Aydın, H., 2006, A kinetics and thermodynamics study of methylene blue adsorption on wheat shells, *Desalination*, 194 (1-3), 259-67.
- Bunaciu, A.A., Udristoiu, E.G., Aboul-Enein, H.Y., 2015, X-ray diffraction: instrumentation and applications, *Critical Reviews in Analytical Chemistry*, 45 (4), 289-99.
- Bush, K., Macielag, M.J., 2010, New b-lactam antibiotics and b-lactamase inhibitors, *Expert Opinion*, 20 (10), 1277-93.
- Callister, W.D., Rethwisch, D.G., 2011, Materials science and engineering an introduction, *Wiley, Hoboken*, 111.
- Candioti, L.V., De Zan, M.M., Camara, M.S., Goicoechea, H.C., 2014, Experimental design and multiple response optimization. Using the desirability function in analytical methods development, *Talanta*, 124, 123-38.

- Cao, L., Hu, H.-H., Gao, D., 2007, Design and fabrication of micro-textures for inducing a superhydrophobic behavior on hydrophilic materials, *Langmuir*, 23, 4310-4.
- Casula, M.F., Corrias, A., Paschina, G., 2011, Nickel oxide–silica and nickel–silica aerogel and xerogel nanocomposite materials, *Journal of Materials Research*, 15 (10), 2187-94.
- Chan, Z., Miao, F., Xiao, Z., Juan, H., Hongbing, Z., 2007, Effect of doping levels on the pore structure of carbon nanotube/silica xerogel composites, *Materials Letters*, 61 (3), 644-7.
- Chang, K.-J., Wang, Y.-Z., Peng, K.-C., Tsai, H.-S., Chen, J.-R., Huang, C.-T., Ho, K.-S., Lien, W.-F., 2014, Preparation of silica aerogel/polyurethane composites for the application of thermal insulation, *Journal of Polymer Research*, 21 (1).
- Chang, Y., McLandsborough, L., McClements, D.J., 2012, Cationic antimicrobial (ϵ -polylysine)–anionic polysaccharide (pectin) interactions: Influence of polymer charge on physical stability and antimicrobial efficacy, *Journal of Agricultural and Food Chemistry*, 60 (7), 1837-44.
- Choy, K.K., Ko, D.C., Cheung, C.W., Porter, J.F., McKay, G., 2004, Film and intraparticle mass transfer during the adsorption of metal ions onto bone char, *Journal of Colloid and Interface Science*, 271 (2), 284-95.
- Cloete, T.E., 2003, Resistance mechanisms of bacteria to antimicrobial compounds, *International Biodeterioration & Biodegradation*, 51 (4), 277-82.
- Crini, G., 2006, Non-conventional low-cost adsorbents for dye removal: a review, *Bioresource Technology*, 97 (9), 1061-85.
- Cui, S., Liu, Y., Fan, M.-h., Cooper, A.T., Lin, B.-l., Liu, X.-y., Han, G.-f., Shen, X.-d., 2011, Temperature dependent microstructure of MTES modified hydrophobic silica aerogels, *Materials Letters*, 65 (4), 606-9.
- Czarnobaj, K., Lukasiak, J., 2007, In vitro release of cisplatin from sol–gel processed organically modified silica xerogels, *Journal of Materials Science: Materials in Medicine*, 18, 2041-4.
- Çok, S.S., Koç, F., Balkan, F., Gizli, N., 2019, Exploring a new preparation pathway for the synthesis of silica based xerogels as crack-free monoliths, *Ceramics International*, 45 (2), 1616-26.
- Daneshvar, E., Vazirzadeh, A., Niazi, A., Kousha, M., Naushad, M., Bhatnagar, A., 2017, Desorption of Methylene blue dye from brown macroalga: Effects of operating parameters, isotherm study and kinetic modeling, *Journal of Cleaner Production*, 152, 443-53.
- Dervin, S., Lang, Y., Perova, T., Hinder, S.H., Pillai, S.C., 2017, Graphene oxide reinforced high surface area silica aerogels, *Journal of Non-Crystalline Solids*, 465, 31-8.
- Derylo-Marczewska, A., Marczewski, A.W., 2002, Effect of adsorbate structure on adsorption from solutions, *Applied Surface Science*, 196, 264-72.
- Dodd, M.C., Rentsch, D., Singer, H.P., Kohler, H.-P.E., Gunten, U.V., 2010, Transformation of b-Lactam antibacterial agents during aqueous ozonation: Reaction pathways and quantitative bioassay of biologically-active oxidation products, *Environmental Science & Technology*, 44 (15), 5940-8.
- 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 (Basel)*, 6 (3), 941-68.
- Durães, L., Maia, A., Portugal, A., 2015, Effect of additives on the properties of silica based aerogels synthesized from methyltrimethoxysilane (MTMS), *The Journal of Supercritical Fluids*, 106, 85-92.

- Durães, L., Ochoa, M., Rocha, N., Patrício, R., Duarte, N., Redondo, V., Portugal, A., 2012, Effect of the drying conditions on the microstructure of silica based xerogels and aerogels, *Journal of Nanoscience and Nanotechnology*, 12 (8), 6828-34.
- Dursun, S., Koyuncu, S.N., Kaya, İ.C., Kaya, G.G., Kalem, V., Akyildiz, H., 2020, Production of CuO–WO₃ hybrids and their dye removal capacity/performance from wastewater by adsorption/photocatalysis, *Journal of Water Process Engineering*, 36, 101390.
- Engin, A.B., Ozdemir, O., Turan, M., Turan, A.Z., 2008, Color removal from textile dyebath effluents in a zeolite fixed bed reactor: determination of optimum process conditions using Taguchi method, *Journal of Hazardous Materials*, 159 (2-3), 348-53.
- Faghihian, H., Nourmoradi, H., Shokouhi, M., 2013, Removal of copper (II) and nickel (II) from aqueous media using silica aerogel modified with amino propyl triethoxysilane as an adsorbent: equilibrium, kinetic, and isotherms study, *Desalination and Water Treatment*, 52 (1-3), 305-13.
- Farrag, H.A., Abdallah, N., Shehata, M.M.K., Awad, E.M., 2019, Natural outer membrane permeabilizers boost antibiotic action against irradiated resistant bacteria, *Journal of Biomedical Science*, 26 (1), 69.
- Feinle, A., Elsaesser, M.S., Husing, N., 2016, Sol-gel synthesis of monolithic materials with hierarchical porosity, *Chemical Society Reviews*, 45 (12), 3377-99.
- Fidalgo, A., Ilharco, L.M., 2005, The influence of the wet gels processing on the structure and properties of silica xerogels, *Microporous and Mesoporous Materials*, 84 (1-3), 229-35.
- Foo, K.Y., Hameed, B.H., 2010, Insights into the modeling of adsorption isotherm systems, *Chemical Engineering Journal*, 156 (1), 2-10.
- Fu, J., Wang, S., He, C., Lu, Z., Huang, J., Chen, Z., 2016, Facilitated fabrication of high strength silica aerogels using cellulose nanofibrils as scaffold, *Carbohydrate Polymers*, 147, 89-96.
- Fulazzaky, M.A., 2011, Determining the resistance of mass transfer for adsorption of the surfactants onto granular activated carbons from hydrodynamic column, *Chemical Engineering Journal*, 166 (3), 832-40.
- Gao, G.-M., Liu, D.-R., Zou, H.-F., Zou, L.-C., Gan, S.-C., 2010, Preparation of silica aerogel from oil shale ash by fluidized bed drying, *Powder Technology*, 197 (3), 283-7.
- Ge, D., Yang, L., Li, Y., Zhao, J., 2009, Hydrophobic and thermal insulation properties of silica aerogel/epoxy composite, *Journal of Non-Crystalline Solids*, 355 (52-54), 2610-5.
- Genc, N., Kilicoglu, O., Narci, A.O., 2017, Removal of Bisphenol A aqueous solution using surfactant-modified natural zeolite: Taguchi's experimental design, adsorption kinetic, equilibrium and thermodynamic study, *Environmental Technology*, 38 (4), 424-32.
- Giri, S., Trewyn, B.G., Lin, V.S., 2007, Mesoporous silica nanomaterial-based biotechnological and biomedical delivery systems, *Nanomedicine*, 2 (1), 99-111.
- Googerdchian, F., Moheb, A., Emadi, R., Asgari, M., 2018, Optimization of Pb(II) ions adsorption on nanohydroxyapatite adsorbents by applying Taguchi method, *Journal of Hazardous Materials*, 349, 186-94.
- 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.

- Guzel Kaya, G., Deveci, H., 2020, Effect of aging solvents on physicochemical and thermal properties of silica xerogels derived from steel slag, *ChemistrySelect*, 5 (4), 1586-91.
- Guzel Kaya, G., Yilmaz, E., Deveci, H., 2018, Sustainable nanocomposites of epoxy and silica xerogel synthesized from corn stalk ash: Enhanced thermal and acoustic insulation performance, *Composites Part B: Engineering*, 150, 1-6.
- Guzel Kaya, G., Yilmaz, E., Deveci, H., 2019, A novel silica xerogel synthesized from volcanic tuff as an adsorbent for high-efficient removal of methylene blue: parameter optimization using Taguchi experimental design, *Journal of Chemical Technology & Biotechnology*, 94 (8), 2729-2737.
- Guzel Kaya, G., Yilmaz, E., Deveci, H., 2020, Synthesis of sustainable silica xerogels/aerogels using inexpensive steel slag and bean pod ash: A comparison study, *Advanced Powder Technology*, 31, 926-36.
- Hajipour, M.J., Fromm, K.M., Ashkarran, A.A., Jimenez de Aberasturi, D., de Larramendi, I.R., Rojo, T., Serpooshan, V., Parak, W.J., Mahmoudi, M., 2012, Antibacterial properties of nanoparticles, *Trends in Biotechnology*, 30 (10), 499-511.
- Hammad, A., Abutaleb, N.S., Elsebaei, M.M., Norvil, A.B., Alswah, M., Ali, A.O., Abdel-Aleem, J.A., Alattar, A., Bayoumi, S.A., Gowher, H., Seleem, M.N., Mayhoub, A.S., 2019, From phenylthiazoles to phenylpyrazoles: Broadening the antibacterial spectrum toward carbapenem-resistant bacteria, *Journal of Medicinal Chemistry*, 62 (17), 7998-8010.
- Han, H., Wei, W., Jiang, Z., Lu, J., Zhu, J., Xie, J., 2016, Removal of cationic dyes from aqueous solution by adsorption onto hydrophobic/hydrophilic silica aerogel, *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 509, 539-49.
- Hemeg, H.A., 2017, Nanomaterials for alternative antibacterial therapy, *International Journal of Nanomedicine*, 12, 8211-25.
- Hernandez-Campos, M., Polo, A.M.S., Sanchez-Polo, M., Rivera-Utrilla, J., Berber-Mendoza, M.S., Andrade-Espinosa, G., Lopez-Ramon, M.V., 2018, Lanthanum-doped silica xerogels for the removal of fluorides from waters, *Journal of Environmental Management*, 213, 549-54.
- Hernández Montoto, A., Montes, R., Samadi, A., Gorbe, M., Terrés, J.M., Cao-Milán, R., Aznar, E., Ibañez, J., Masot, R., Marcos, M.D., Orzáez, M., Sancenón, F., Oddershede, L.B., Martínez-Máñez, R., 2018, Gold Nanostars coated with mesoporous silica are effective and nontoxic photothermal agents capable of gate keeping and laser-induced drug release, *ACS Applied Materials & Interfaces*, 10 (33), 27644-56.
- Hilonga, A., Kim, J.-K., Sarawade, P.B., Kim, H.T., 2009, Low-density TEOS-based silica aerogels prepared at ambient pressure using isopropanol as the preparative solvent, *Journal of Alloys and Compounds*, 487 (1-2), 744-50.
- Hrubesh, L., 1998, Aerogel applications, *Journal of Non-Crystalline Solids*, 225 335-42.
- Hu, W., Li, M., Chen, W., Zhang, N., Li, B., Wang, M., Zhao, Z., 2016, Preparation of hydrophobic silica aerogel with kaolin dried at ambient pressure, *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 501, 83-91.
- Huddleston, J.R., 2014, Horizontal gene transfer in the human gastrointestinal tract: potential spread of antibiotic resistance genes, *Infection and Drug Resistance*, 7, 167-76.

- Hyldgaard, M., Mygind, T., Vad, B.S., Stenvang, M., Otzen, D.E., Meyer, R.L., 2014, The antimicrobial mechanism of action of epsilon-poly-L-lysine, *Applied and Environmental Microbiology*, 80 (24), 7758-70.
- Idris, S., Iyaka, Y.A., Dauda, B.E.N., Ndamitso, M.M., Umar, M.T., 2012, Kinetic study of utilizing groundnut shell as an adsorbent in removing chromium and nickel from dye effluent, *American Chemical Science Journal*, 2 (1).
- Ilhan, F., Fabrizio, E.F., McCorkle, L., Scheiman, D.A., Dass, A., Palczer, A., Meador, M.B., Johnston, J.C., Leventis, N., 2006, Hydrophobic monolithic aerogels by nanocasting polystyrene on amine-modified silica, *Journal of Materials Chemistry*, 16 (29), 3046.
- Iswar, S., Malfait, W.J., Balog, S., Winnefeld, F., Lattuada, M., Koebel, M.M., 2017, Effect of aging on silica aerogel properties, *Microporous and Mesoporous Materials*, 241, 293-302.
- Jaiboon, V., Yoosuk, B., Prasassarakich, P., 2014, Amine modified silica xerogel for H₂S removal at low temperature, *Fuel Processing Technology*, 128, 276-82.
- Jain, A., Rogojevic, S., Ponoht, S., Gill, W.N., Plawsky, J.L., Simonyi, E., Chen, S.-T., Ho, P.S., 2002, Processing dependent thermal conductivity of nanoporous silica xerogel films, *Journal of Applied Physics*, 91 (5), 3275-81.
- Jampilek, J., 2018, Design and discovery of new antibacterial agents: Advances, perspectives, challenges, *Current Medicinal Chemistry*, 25 (38), 4972-5006.
- Jiao, Y., Niu, L.-n., Ma, S., Li, J., Tay, F.R., Chen, J.-h., 2017, Quaternary ammonium-based biomedical materials: State-of-the-art, toxicological aspects and antimicrobial resistance, *Progress in Polymer Science*, 71, 53-90.
- Jones, S.M., 2006, Aerogel: Space exploration applications, *Journal of Sol-Gel Science and Technology*, 40 (2-3), 351-7.
- Kadiroğlu, A., 2018, Yerfistiği Yetiştiriciliği, *Batı Akdeniz Tarımsal Araştırma Enstitüsü Müdürlüğü*, Antalya, Türkiye, 4-5.
- Kalapathy, U., Proctor, A., Shultz, J., 2000, Silica xerogels from rice hull ash: structure, density and mechanical strength as affected by gelation pH and silica concentration, *Journal of Chemical Technology and Biotechnology*, 75, 464-8.
- Kalmár, J., Kéri, M., Erdei, Z., Bányai, I., Lázár, I., Lente, G., Fábrián, I., 2015, The pore network and the adsorption characteristics of mesoporous silica aerogel: adsorption kinetics on a timescale of seconds, *RSC Advances*, 5 (130), 107237-46.
- Karatas, M., 2012, Removal of Pb(II) from water by natural zeolitic tuff: kinetics and thermodynamics, *Journal of Hazardous Materials*, 199-200, 383-9.
- Kartal, A.M., Erkey, C., 2010, Surface modification of silica aerogels by hexamethyldisilazane-carbon dioxide mixtures and their phase behavior, *The Journal of Supercritical Fluids*, 53 (1-3), 115-20.
- Kashyap Khatri, S., Bathnanand, M., Nikhila, R., 2016, Formulation and evaluation of wound healing activity of linezolid topical preparations on diabetic rats, *International Journal of Applied Pharmaceutics*, 8 (3), 30-6.
- Katheresan, V., Kansedo, J., Lau, S.Y., 2018, Efficiency of various recent wastewater dye removal methods: A review, *Journal of Environmental Chemical Engineering*, 6 (4), 4676-97.
- Katti, A., Shimpi, N., Roy, S., Lu, H., Fabrizio, E.F., Dass, A., Capadona, L.A., Leventis, N., 2006, Chemical, physical, and mechanical characterization of isocyanate cross-linked amine-modified silica aerogels, *Chemistry of Materials*, 18, 285-96.
- Kim, G.S., Hyun, S.H., Park, H.H., 2001, Synthesis of low-dielectric silica aerogel films by ambient drying, *Journal of American Ceramic Society*, 84 (2), 453-5.

- Kim, H.M., Kim, H.S., Kim, S.Y., Youn, J.R., 2015, Silica aerogel/epoxy composites with preserved aerogel pores and low thermal conductivity, *e-Polymers*, 15 (2).
- Kim, H.M., Noh, Y.J., Yu, J., Kim, S.Y., Youn, J.R., 2015, Silica aerogel/polyvinyl alcohol (PVA) insulation composites with preserved aerogel pores using interfaces between the superhydrophobic aerogel and hydrophilic PVA solution, *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, 75, 39-45.
- Kow, K.-W., Yusoff, R., Aziz, A.R.A., Abdullah, E.C., 2016, Bamboo leaf aerogel opacified with activated carbon, *Transactions of the Indian Ceramic Society*, 75 (3), 175-80.
- Krishnaswamy, S., Tinsley, L., Marchante, V., Addepalli, S., Huang, Z., Abhyankar, H., 2017, Effect of extrusion and compression moulding on the thermal properties of nylon-6/silica aerogel composites, *Journal of Thermoplastic Composite Materials*, 31 (7), 992-1009.
- Krylova, G.V., Gnatyuk, Y.I., Smirnova, N.P., Eremenko, A.M., Gun'ko, V.M., 2009, Ag nanoparticles deposited onto silica, titania, and zirconia mesoporous films synthesized by sol-gel template method, *Journal of Sol-Gel Science and Technology*, 50 (2), 216-28.
- Langer, R.P., Locher, H.H., Wyss, P.C., Then, R.L., 2007, The targets of currently used antibacterial agents: Lessons for drug discovery, *Current Pharmaceutical Design*, 13, 3140-54.
- Lei, Y., Chen, X., Hu, Z., Song, H., Cao, B., 2017, A general strategy for improving the thermal insulation performance of aerogels by multiple impregnation, *Scripta Materialia*, 139, 5-8.
- Levy, S.B., Marshall, B., 2004, Antibacterial resistance worldwide: causes, challenges and responses, *Nature Medicine*, 10, 122-9.
- Li, J., Lei, Y., Xu, D., Liu, F., Li, J., Sun, A., Guo, J., Xu, G., 2017, Improved mechanical and thermal insulation properties of monolithic attapulgite nanofiber/silica aerogel composites dried at ambient pressure, *Journal of Sol-Gel Science and Technology*, 82 (3), 702-11.
- Li, M., Jiang, H., Xu, D., Hai, O., Zheng, W., 2016, Low density and hydrophobic silica aerogels dried under ambient pressure using a new co-precursor method, *Journal of Non-Crystalline Solids*, 452, 187-93.
- Li, T., Wang, T., 2008, Preparation of silica aerogel from rice hull ash by drying at atmospheric pressure, *Materials Chemistry and Physics*, 112 (2), 398-401.
- Li, Y., Fu, Z.-Y., Su, B.-L., 2012, Hierarchically structured porous materials for energy conversion and storage, *Advanced Functional Materials*, 22 (22), 4634-67.
- Li, Z.-Y., Zhu, C.-Y., Zhao, X.-P., 2017, A theoretical and numerical study on the gas-contributed thermal conductivity in aerogel, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 108, 1982-90.
- Lin, L., Xue, L., Durairasan, S., Haiying, C., 2018, Preparation of ϵ -polylysine/chitosan nanofibers for food packaging against Salmonella on chicken, *Food Packaging and Shelf Life*, 17, 134-41.
- Linneen, N.N., Pfeffer, R., Lin, Y.S., 2014, CO₂ adsorption performance for amine grafted particulate silica aerogels, *Chemical Engineering Journal*, 254, 190-7.
- Liu, H., Chu, P., Li, H., Zhang, H., Li, J., 2016, Novel three-dimensional halloysite nanotubes/silica composite aerogels with enhanced mechanical strength and low thermal conductivity prepared at ambient pressure, *Journal of Sol-Gel Science and Technology*, 80 (3), 651-9.

- Liu, J., Liu, J., Shi, F., Hu, S., Jiang, S., Liu, S., Liu, D., Tian, X., 2019, F/W co-doped TiO₂-SiO₂ composite aerogels with improved visible light-driven photocatalytic activity, *Journal of Solid State Chemistry*, 275, 8-15.
- Liu, S.-W., Wei, Q., Cui, S.-P., Nie, Z.-R., Du, M.-H., Li, Q.-Y., 2015, Hydrophobic silica aerogel derived from wheat husk ash by ambient pressure drying, *Journal of Sol-Gel Science and Technology*, 78 (1), 60-7.
- Liu, S.-Y., Gao, J., Yang, Y.-J., Yang, Y.-C., Ye, Z.-X., 2010, Adsorption intrinsic kinetics and isotherms of lead ions on steel slag, *Journal of Hazardous Materials*, 173 (1-3), 558-62.
- Liu, Y., Fan, Q., Wang, S., Liu, Y., Zhou, A., Fan, L., 2016, Adsorptive removal of fluoride from aqueous solutions using Al-humic acid-La aerogel composites, *Chemical Engineering Journal*, 306, 174-85.
- Lizotte, D.J., Greiner, R., Schuurmans, D., 2011, An experimental methodology for response surface optimization methods, *Journal of Global Optimization*, 53 (4), 699-736.
- Loche, D., Malfatti, L., Carboni, D., Alzari, V., Mariani, A., Casula, M.F., 2016, Incorporation of graphene into silica-based aerogels and application for water remediation, *RSC Advances*, 6 (71), 66516-23.
- Lovskaya, D.D., Lebedev, A.E., Menshutina, N.V., 2015, Aerogels as drug delivery systems: In vitro and in vivo evaluations, *The Journal of Supercritical Fluids*, 106, 115-21.
- Ma, X.-k., Lee, N.-H., Oh, H.-J., Kim, J.-W., Rhee, C.-K., Park, K.-S., Kim, S.-J., 2010, Surface modification and characterization of highly dispersed silica nanoparticles by a cationic surfactant, *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 358 (1-3), 172-6.
- Ma, Z., Jiang, Y., Xiao, H., Jiang, B., Zhang, H., Peng, M., Dong, G., Yu, X., Yang, J., 2018, Sol-gel preparation of Ag-silica nanocomposite with high electrical conductivity, *Applied Surface Science*, 436, 732-8.
- Maghsoudi, K., Motahari, S., 2018, Mechanical, thermal, and hydrophobic properties of silica aerogel-epoxy composites, *Journal of Applied Polymer Science*, 135 (3), 45706.
- Mahadik, S.A., Pedraza, F., Parale, V.G., Park, H.-H., 2016, Organically modified silica aerogel with different functional silylating agents and effect on their physico-chemical properties, *Journal of Non-Crystalline Solids*, 453, 164-71.
- Maknun, L., Nazriati, Farida, I., Kholila, N., Muyas Syufa, R.B., 2018, Synthesis of silica xerogel based bagasse ash as a methylene blue adsorbent on textile waste, *Journal of Physics: Conference Series*, 1093, 012050.
- Malekbala, M.R., Khan, M.A., Hosseini, S., Abdullah, L.C., Choong, T.S.Y., 2015, Adsorption/desorption of cationic dye on surfactant modified mesoporous carbon coated monolith: Equilibrium, kinetic and thermodynamic studies, *Journal of Industrial and Engineering Chemistry*, 21, 369-77.
- Maleki Dizaj, S., Mennati, A., Jafari, S., Khezri, K., Adibkia, K., 2015, Antimicrobial activity of carbon-based nanoparticles, *Advanced Pharmacy Bulletin*, 5 (1), 19-23.
- Maleki, H., 2016, Recent advances in aerogels for environmental remediation applications: A review, *Chemical Engineering Journal*, 300, 98-118.
- Maleki, H., Duraes, L., Garcia-Gonzalez, C.A., Del Gaudio, P., Portugal, A., Mahmoudi, M., 2016, Synthesis and biomedical applications of aerogels: Possibilities and challenges, *Advances in Colloid and Interface Science*, 236, 1-27.

- Maleki, H., Durães, L., Portugal, A., 2014, Synthesis of lightweight polymer-reinforced silica aerogels with improved mechanical and thermal insulation properties for space applications, *Microporous and Mesoporous Materials*, 197, 116-29.
- Maleki, H., Durães, L., Portugal, A., 2015, Synthesis of mechanically reinforced silica aerogels via surface-initiated reversible addition-fragmentation chain transfer (RAFT) polymerization, *Journal of Materials Chemistry A*, 3 (4), 1594-600.
- Malfait, W.J., Zhao, S., Verel, R., Iswar, S., Rentsch, D., Fener, R., Zhang, Y., Milow, B., Koebel, M.M., 2015, Surface chemistry of hydrophobic silica aerogels, *Chemistry of Materials*, 27 (19), 6737-45.
- Maneerung, T., Liew, J., Dai, Y., Kawi, S., Chong, C., Wang, C.-H., 2016, Activated carbon derived from carbon residue from biomass gasification and its application for dye adsorption: Kinetics, isotherms and thermodynamic studies, *Bioresource Technology*, 200, 350-9.
- Mas, N., Galiana, I., Mondragon, L., Aznar, E., Climent, E., Cabedo, N., Sancenon, F., Murguia, J.R., Martinez-Manez, R., Marcos, M.D., Amoros, P., 2013, Enhanced efficacy and broadening of antibacterial action of drugs via the use of capped mesoporous nanoparticles, *Chemistry*, 19 (34), 11167-71.
- Mehling, T., Smirnova, I., Guenther, U., Neubert, R.H.H., 2009, Polysaccharide-based aerogels as drug carriers, *Journal of Non-Crystalline Solids*, 355 (50-51), 2472-9.
- Meng, X.-M., Zhang, X.-J., Lu, C., Pan, Y.-F., Wang, G.-S., 2014, Enhanced absorbing properties of three-phase composites based on a thermoplastic-ceramic matrix ($\text{BaTiO}_3 + \text{PVDF}$) and carbon black nanoparticles, *Journal of Materials Chemistry A*, 2 (44), 18725-30.
- Mo, C.M., Li, Y.H., Liu, Y.S., Zhang, Y., Zhang, L.D., 1998, Enhancement effect of photoluminescence in assemblies of nano-ZnO particles/silica aerogels, *Journal of Applied Physics*, 83 (8), 4389-91.
- Moner-Girona, M., Martínez, E., Esteve, J., Roig, A., Solanas, R., Molins, E., 2014, Micromechanical properties of carbon-silica aerogel composites, *Applied Physics A*, 74 (1), 119-22.
- Monte Blanco, S.P.D., Scheufele, F.B., Módenes, A.N., Espinoza-Quñones, F.R., Marin, P., Kroumov, A.D., Borba, C.E., 2017, Kinetic, equilibrium and thermodynamic phenomenological modeling of reactive dye adsorption onto polymeric adsorbent, *Chemical Engineering Journal*, 307, 466-75.
- Mosquera, M.J., Santos, D.M.d.l., Valdez-Castro, L., Esquivias, L., 2008, New route for producing crack-free xerogels: Obtaining uniform pore size, *Journal of Non-Crystalline Solids*, 354 (2-9), 645-50.
- Mouni, L., Belkhir, L., Bollinger, J.-C., Bouzaza, A., Assadi, A., Tirri, A., Dahmoune, F., Madani, K., Remini, H., 2018, Removal of methylene blue from aqueous solutions by adsorption on kaolin: Kinetic and equilibrium studies, *Applied Clay Science*, 153, 38-45.
- Munusamy, P., Seleem, M.N., Alqublan, H., Tyler, R., Sriranganathan, N., Pickrell, G., 2009, Targeted drug delivery using silica xerogel systems to treat diseases due to intracellular pathogens, *Materials Science and Engineering: C*, 29 (8), 2313-8.
- Nadargi, D.Y., Rao, A.V., 2009, Methyltriethoxysilane: New precursor for synthesizing silica aerogels, *Journal of Alloys and Compounds*, 467 (1-2), 397-404.
- Nazriati, N., Setyawan, H., Affandi, S., Yuwana, M., Winardi, S., 2014, Using bagasse ash as a silica source when preparing silica aerogels via ambient pressure drying, *Journal of Non-Crystalline Solids*, 400, 6-11.

- Nicolosi, D., Scalia, M., Nicolosi, V.M., Pignatello, R., 2010, Encapsulation in fusogenic liposomes broadens the spectrum of action of vancomycin against Gram-negative bacteria, *International Journal of Antimicrobial Agents*, 35 (6), 553-8.
- Niu, Z., He, X., Huang, T., Tang, B., Cheng, X., Zhang, Y., Shao, Z., 2019, A facile preparation of transparent methyltriethoxysilane based silica xerogel monoliths at ambient pressure drying, *Microporous and Mesoporous Materials*, 286, 98-104.
- Oh, J.K., Kohli, N., Zhang, Y., Min, Y., Jayaraman, A., Cisneros-Zevallos, L., Akbulut, M., 2016, Nanoporous aerogel as a bacteria repelling hygienic material for healthcare environment, *Nanotechnology*, 27 (8), 085705.
- Oh, J.K., Perez, K., Kohli, N., Kara, V., Li, J., Min, Y., Castillo, A., Taylor, M., Jayaraman, A., Cisneros-Zevallos, L., Akbulut, M., 2015, Hydrophobically-modified silica aerogels: Novel food-contact surfaces with bacterial anti-adhesion properties, *Food Control*, 52, 132-41.
- Organization, W.H., 2019, 2019 Antibacterial agents in clinical development: an analysis of the antibacterial clinical development pipeline Geneva Licence: CC BY-NC-SA 3.0 IGO.
- Panda, H., Tiadi, N., Mohanty, M., Mohanty, C.R., 2017, Studies on adsorption behavior of an industrial waste for removal of chromium from aqueous solution, *South African Journal of Chemical Engineering*, 23, 132-8.
- Pathania, D., Sharma, S., Singh, P., 2017, Removal of methylene blue by adsorption onto activated carbon developed from Ficus carica bast, *Arabian Journal of Chemistry*, 10, 1445-51.
- Perdigoto, M.L., Martins, R.C., Rocha, N., Quina, M.J., Gando-Ferreira, L., Patricio, R., Duraes, L., 2012, Application of hydrophobic silica based aerogels and xerogels for removal of toxic organic compounds from aqueous solutions, *Journal of Colloid and Interface Science*, 380 (1), 134-40.
- Peterson, E., Kaur, P., 2018, Antibiotic resistance mechanisms in bacteria: Relationships between resistance determinants of antibiotic producers, environmental bacteria, and clinical pathogens, *Front Microbiology*, 9, 2928.
- Pierre, A.C., Pajonk, G.M., 2002, Chemistry of aerogels and their applications, *Chemical Reviews*, 102, 4243-65.
- Popovici, M., Gich, M., Roig, A., Casas, L., Molins, E., Savii, C., Becherescu, D., Sort, J., Surinach, S., Munoz, J.S., Dolors Baro, M., Nogues, J., 2004, Ultraporous single phase iron oxide-silica nanostructured aerogels from ferrous precursors, *Langmuir*, 20, 1425-9.
- Post, K.W., 2019, Diseases of Swine, *John Wiley & Sons, Inc.*, Editors: Zimmerman, J.J., Karriker, L.A., Ramirez, A., Schwartz, K.J., Stevenson, G.W., Zhang, J. 747-8.
- Qaiser, S., Saleemi, A.R., Umar, M., 2009, Biosorption of lead(II) and chromium(VI) on groundnut hull: Equilibrium, kinetics and thermodynamics study, *Electronic Journal of Biotechnology*, 12 (4).
- Qu, D., 2008, Investigation of hydrogen physisorption active sites on the surface of porous carbonaceous materials, *Chemistry*, 14 (3), 1040-6.
- Quintanar-Guerrero, D., Ganem-Quintanar, A., Nava-Arzaluz, MG., Pinon-Seundo, E., 2009, Silica xerogels as pharmaceutical drug carriers, *Expert Opinion*, 6 (5), 485-98.
- Raju, G.U., Kumarappa, S., Gaitonde, V.N., 2012, Mechanical and physical characterization of agricultural waste reinforced polymer composites, *Journal of Materials and Environmental Sciences*, 3 (5), 907-16.

- Ranghar, S., Sirohi, P., Verma, P., Agarwal, V., 2014, Nanoparticle-based drug delivery systems: Promising approaches against infections, *Brazilian Archives of Biology and Technology*, 57 (2), 209-22.
- Rao, A.V., Kulkarni, M.M., 2002, Effect of glycerol additive on physical properties of hydrophobic silica aerogels, *Materials Chemistry and Physics*, 77, 819-25.
- Ren, H., Zhu, J., Bi, Y., Xu, Y., Zhang, L., 2016, One-step fabrication of transparent hydrophobic silica aerogels via in situ surface modification in drying process, *Journal of Sol-Gel Science and Technology*, 80 (3), 635-41.
- Rodriguez, J.E., Anderson, A.M., Carroll, M.K., 2014, Hydrophobicity and drag reduction properties of surfaces coated with silica aerogels and xerogels, *Journal of Sol-Gel Science and Technology*, 71 (3), 490-500.
- Ruiz-Rico, M., Fuentes, C., Pérez-Esteve, É., Jiménez-Belenguer, A.I., Quiles, A., Marcos, M.D., Martínez-Máñez, R., Barat, J.M., 2015, Bactericidal activity of caprylic acid entrapped in mesoporous silica nanoparticles, *Food Control*, 56, 77-85.
- Saad, N., Al-Mawla, M., Moubarak, E., Al-Ghoul, M., El-Rassy, H., 2015, Surface-functionalized silica aerogels and alcogels for methylene blue adsorption, *RSC Advances*, 5 (8), 6111-22.
- Sachithanadam, M., Chandrakant Joshi, S., 2016, Silica aerogel composites, *Springer*, Singapore, 15-7.
- Salimian, S., Malfait, W.J., Zadhoush, A., Talebi, Z., Naeimirad, M., 2018, Fabrication and evaluation of silica aerogel-epoxy nanocomposites: Fracture and toughening mechanisms, *Theoretical and Applied Fracture Mechanics*, 97, 156-64.
- Salimian, S., Zadhoush, A., Naeimirad, M., Kotek, R., Ramakrishna, S., 2018, A review on aerogel: 3D nanoporous structured fillers in polymer-based nanocomposites, *Polymer Composites*, 39 (10), 3383-408.
- Salimian, S., Zadhoush, A., Talebi, Z., Fischer, B., Winiger, P., Winnefeld, F., Zhao, S., Barbezat, M., Koebel, M.M., Malfait, W.J., 2018, Silica aerogel-epoxy nanocomposites: Understanding epoxy reinforcement in terms of aerogel surface chemistry and epoxy-silica interface compatibility, *ACS Applied Nano Materials*, 1 (8), 4179-89.
- Sanz-Moral, L.M., Romero, A., Holz, F., Rueda, M., Navarrete, A., Martín, A., 2016, Tuned Pd/SiO₂ aerogel catalyst prepared by different synthesis techniques, *Journal of the Taiwan Institute of Chemical Engineers*, 65, 515-21.
- Savjani, J.K., Gajjar, A.K., Savjani, K.T., 2009, Mechanisms of resistance: Useful tool to design antibacterial agents for drug-resistant bacteria, *Mini-Reviews in Medicinal Chemistry*, 9, 194-205.
- Scherdel, C., Reichenauer, G., 2015, Highly porous silica xerogels without surface modification, *The Journal of Supercritical Fluids*, 106, 160-6.
- Sefton, A.M., 2002, Mechanisms of antimicrobial resistance, *Current Opinion*, 62 (4), 557-66.
- Seleem, M.N., Munusamy, P., Ranjan, A., Alqublan, H., Pickrell, G., Sriranganathan, N., 2009, Silica-antibiotic hybrid nanoparticles for targeting intracellular pathogens, *Antimicrobial Agents and Chemotherapy*, 53 (10), 4270-4.
- Seow, T.W., 2016, Removal of dye by adsorption: A review, *International Journal of Applied Engineering Research*, 11 (4), 2675-9.
- Serri, A., Mahboubi, A., Zarghi, A., Moghimi, H.R., 2019, PAMAM-dendrimer enhanced antibacterial effect of vancomycin hydrochloride against gram-negative bacteria, *Journal of Pharmacy & Pharmaceutical Sciences*, 22, 10-21.

- Shahabuddin, S., Tashakori, C., Kamboh, M.A., Sotoudehnia Korrani, Z., Saidur, R., Rashidi Nodeh, H., Bidhendi, M.E., 2018, Kinetic and equilibrium adsorption of lead from water using magnetic metformin-substituted SBA-15, *Environmental Science: Water Research & Technology*, 4 (4), 549-58.
- Sharma, R., Bisen, D., Shukla, U., Sharma, B., 2012, X-ray diffraction: a powerful method of characterizing nanomaterials, *Recent Research in Science and Technology*, 4 (8), 77-9.
- Shi, F., Liu, J.-X., Song, K., Wang, Z.-Y., 2010, Cost-effective synthesis of silica aerogels from fly ash via ambient pressure drying, *Journal of Non-Crystalline Solids*, 356 (43), 2241-6.
- Shi, F., Wang, L., Liu, J., 2006, Synthesis and characterization of silica aerogels by a novel fast ambient pressure drying process, *Materials Letters*, 60 (29-30), 3718-22.
- Shi, F., Wang, L., Liu, J., Zeng, M., 2007, Effect of heat treatment on silica aerogels prepared via ambient drying, *Journal of Materials Science and Technology*, 23 (3), 402-6.
- Shi, K., Liu, Y., Ke, L., Fang, Y., Yang, R., Cui, F., 2015, Epsilon-poly-L-lysine guided improving pulmonary delivery of supramolecular self-assembled insulin nanospheres, *International Journal of Biological Macromolecules*, 72, 1441-50.
- Slavin, Y.N., Asnis, J., Hafeli, U.O., Bach, H., 2017, Metal nanoparticles: understanding the mechanisms behind antibacterial activity, *Journal of Nanobiotechnology*, 15 (1), 65.
- Ślosarczyk, A., Wojciech, S., Piotr, Z., Paulina, J., 2015, Synthesis and characterization of carbon fiber/silica aerogel nanocomposites, *Journal of Non-Crystalline Solids*, 416, 1-3.
- Smirnova, I., Gurikov, P., 2017, Aerogels in chemical engineering: Strategies toward tailor-made aerogels, *Annual Review of Chemical and Biomolecular Engineering*, 8, 307-34.
- Smirnova, I., Suttiruengwong, S., Arlt, W., 2004, Feasibility study of hydrophilic and hydrophobic silica aerogels as drug delivery systems, *Journal of Non-Crystalline Solids*, 350, 54-60.
- Smith, B.C., 2011, Fundamentals of fourier transform infrared spectroscopy, *Taylor & Francis*, Boca Raton, 8-12.
- Smitha, S., Shajesh, P., Aravind, P.R., Kumar, S.R., Pillai, P.K., Warriar, K.G.K., 2006, Effect of aging time and concentration of aging solution on the porosity characteristics of subcritically dried silica aerogels, *Microporous and Mesoporous Materials*, 91 (1-3), 286-92.
- Soleimani Dorcheh, A., Abbasi, M.H., 2008, Silica aerogel; synthesis, properties and characterization, *Journal of Materials Processing Technology*, 199 (1-3), 10-26.
- Speyer, R.F., 1994, Thermal Analysis of Materials, *Taylor & Francis*, Boca Raton, 111-20.
- Suchithra, P.S., Vazhayal, L., Peer Mohamed, A., Ananthakumar, S., 2012, Mesoporous organic-inorganic hybrid aerogels through ultrasonic assisted sol-gel intercalation of silica-PEG in bentonite for effective removal of dyes, volatile organic pollutants and petroleum products from aqueous solution, *Chemical Engineering Journal*, 200-202, 589-600.
- Sujatha, E.R., Dharini, K., Bharathi, V., 2015, Influence of groundnut shell ash on strength and durability properties of clay, *Geomechanics and Geoengineering*, 11 (1), 20-7.

- Sun, M.H., Huang, S.Z., Chen, L.H., Li, Y., Yang, X.Y., Yuan, Z.Y., Su, B.L., 2016, Applications of hierarchically structured porous materials from energy storage and conversion, catalysis, photocatalysis, adsorption, separation, and sensing to biomedicine, *Chemical Society Reviews*, 45 (12), 3479-563.
- Şener, F., Umut, M., Üzel, A., 2013, Türkiye'nin geleneksel yapı taşları, MTA.
- Tan, L., Tan, X., Fang, M., Yu, Z., Wang, X., 2018, Effects of humic acid and Mg^{2+} on morphology and aggregation behavior of silica aerogels, *Journal of Molecular Liquids*, 264, 261-8.
- Tang, Q., Wang, T., 2005, Preparation of silica aerogel from rice hull ash by supercritical carbon dioxide drying, *The Journal of Supercritical Fluids*, 35 (1), 91-4.
- Tanthana, J., Chuang, S.S., 2010, In situ infrared study of the role of PEG in stabilizing silica-supported amines for CO₂ capture, *ChemSusChem*, 3 (8), 957-64.
- Teka, T., Enyew, S., 2014, Study on effect of different parameters on adsorption efficiency of low cost activated orange peels for the removal of methylene blue dye, *International Journal of Innovation and Scientific Research*, 8 (1), 106-11.
- Tenover, F.C., 2006, Mechanisms of antimicrobial resistance in bacteria, *The American Journal of Medicine*, 119 (6), 3-10; discussion 62-70.
- Teruel, A.H., Perez-Esteve, E., Gonzalez-Alvarez, I., Gonzalez-Alvarez, M., Costero, A.M., Ferri, D., Parra, M., Gavina, P., Merino, V., Martinez-Manez, R., Sancenon, F., 2018, Smart gated magnetic silica mesoporous particles for targeted colon drug delivery: New approaches for inflammatory bowel diseases treatment, *Journal of Control Release*, 281 58-69.
- Thorsteinsson, T., Loftsson, T., Masson, M., 2003, Soft antibacterial agents, *Current Medicinal Chemistry*, 10, 1129-36.
- Toma, A., Deyno, S., 2015, Overview on mechanisms of antibacterial resistance, *International Journal of Research in Pharmacy and Biosciences*, 2 (1), 27-36.
- Toprak, M.U., Arslanbaba, M.A., 2016, Possibility of using Kütahya volcanic tuff as building stone: Microstructural evaluation and strength enhancement through heat treatment, *Construction and Building Materials*, 110, 128-34.
- Ubeyitogullari, A., Ciftci, O.N., 2016, Formation of nanoporous aerogels from wheat starch, *Carbohydrate Polymers*, 147, 125-32.
- Vakili, M., Rafatullah, M., Salamatinia, B., Abdullah, A.Z., Ibrahim, M.H., Tan, K.B., Gholami, Z., Amouzgar, P., 2014, Application of chitosan and its derivatives as adsorbents for dye removal from water and wastewater: a review, *Carbohydrate Polymers*, 113, 115-30.
- Vareda, J.P., Maximiano, P., Cunha, L.P., Ferreira, A.F., Simoes, P.N., Duraes, L., 2018, Effect of different types of surfactants on the microstructure of methyltrimethoxysilane-derived silica aerogels: A combined experimental and computational approach, *Journal of Colloid and Interface Science*, 512, 64-76.
- Velikova, N., Mas, N., Miguel-Romero, L., Polo, L., Stolte, E., Zaccaria, E., Cao, R., Taverne, N., Murguia, J.R., Martinez-Manez, R., Marina, A., Wells, J., 2017, Broadening the antibacterial spectrum of histidine kinase autophosphorylation inhibitors via the use of epsilon-poly-L-lysine capped mesoporous silica-based nanoparticles, *Nanomedicine*, 13 (2), 569-81.
- Venkateswara Rao, A., Bhagat, S.D., 2004, Synthesis and physical properties of TEOS-based silica aerogels prepared by two step (acid-base) sol-gel process, *Solid State Sciences*, 6 (9), 945-52.
- Wa, L., Fengyun, L., Fanlu, Z., Mengjing, C., Qiang, C., Jue, H., Weijun, Z., Mingwei, M., 2015, Preparation of silica aerogels using CTAB/SDS as template and their efficient adsorption, *Applied Surface Science*, 353, 1031-6.

- Wang, L., Hu, C., Shao, L., 2017, The antimicrobial activity of nanoparticles: present situation and prospects for the future, *International Journal of Nanomedicine*, 12, 1227-49.
- Wang, Z., Dai, Z., Wu, J., Zhao, N., Xu, J., 2013, Vacuum-dried robust bridged silsesquioxane aerogels, *Advance Materials*, 25 (32), 4494-7.
- Wei, W., Hu, H., Ji, X., Yan, Z., Sun, W., Xie, J., 2018, Selective adsorption of organic dyes by porous hydrophilic silica aerogels from aqueous system, *Water Science & Technology*, 78 (1-2), 402-14.
- Wiarachai, O., Thongchul, N., Kiatkamjornwong, S., Hoven, V.P., 2012, Surface-quaternized chitosan particles as an alternative and effective organic antibacterial material, *Colloids and Surfaces B: Biointerfaces*, 92, 121-9.
- Worsley, M.A., Pauzauskie, P.J., Olson, T.Y., Biener, J., Satcher, J.H., Baumann, T.F., 2010, Synthesis of graphene aerogel with high electrical conductivity, *Journal of American Chemical Society*, 132, 14067-9.
- Wörmeyer, K., Smirnova, I., 2013, Adsorption of CO₂, moisture and ethanol at low partial pressure using aminofunctionalised silica aerogels, *Chemical Engineering Journal*, 225, 350-7.
- Wu, X., Ye, L., Liu, K., Wang, W., Wei, J., Chen, F., Liu, C., 2009, Antibacterial properties of mesoporous copper-doped silica xerogels, *Biomedical Materials*, 4 (4), 045008.
- Wyszogrodzka, G., Marszalek, B., Gil, B., Dorozynski, P., 2016, Metal-organic frameworks: mechanisms of antibacterial action and potential applications, *Drug Discovery Today*, 21 (6), 1009-18.
- Yadav, H.M., Kim, J.-S., Pawar, S.H., 2016, Developments in photocatalytic antibacterial activity of nano TiO₂: A review, *Korean Journal of Chemical Engineering*, 33 (7), 1989-98.
- Yagub, M.T., Sen, T.K., Afroze, S., Ang, H.M., 2014, Dye and its removal from aqueous solution by adsorption: a review, *Advances in Colloid and Interface Science*, 209, 172-84.
- Yang, H., Choi, S., Hyun, S., Park, H., Hong, J., 1997, Ambient-dried low dielectric SiO₂ aerogel thin film, *Journal of Non-Crystalline Solids*, 221, 151-6.
- Yang, X.Y., Chen, L.H., Li, Y., Rooke, J.C., Sanchez, C., Su, B.L., 2017, Hierarchically porous materials: synthesis strategies and structure design, *Chemical Society Reviews*, 46 (2), 481-558.
- Yu, C., Qiu, J.S., Sun, Y.F., Li, X.H., Chen, G., Zhao, Z.B., 2007, Adsorption removal of thiophene and dibenzothiophene from oils with activated carbon as adsorbent: effect of surface chemistry, *Journal of Porous Materials*, 15 (2), 151-7.
- Yuan, G., Jiang, H., Zhang, L., Liu, Y., Cui, Y., 2019, Metallosalen-based crystalline porous materials: Synthesis and property, *Coordination Chemistry Reviews*, 378, 483-99.
- Yun, S., Luo, H., Gao, Y., 2014, Superhydrophobic silica aerogel microspheres from methyltrimethoxysilane: rapid synthesis via ambient pressure drying and excellent absorption properties, *RSC Advances*, 4 (9), 4535-42.
- Zahedi Bialvaei, A., Rahbar, M., Yousefi, M., Asgharzadeh, M., Samadi Kafil, H., 2017, Linezolid: a promising option in the treatment of gram-positives, *Journal of Antimicrobial Chemotherapy*, 72 (2), 354-64.
- Zhao, J.-J., Duan, Y.-Y., Wang, X.-D., Zhang, X.-R., Han, Y.-H., Gao, Y.-B., Lv, Z.-H., Yu, H.-T., Wang, B.-X., 2013, Optical and radiative properties of infrared opacifier particles loaded in silica aerogels for high temperature thermal insulation, *International Journal of Thermal Sciences*, 70, 54-64.

- Zhou, X., Zhong, L., Xu, Y., 2008, Surface modification of silica aerogels with trimethylchlorosilane in the ambient pressure drying, *Inorganic Materials*, 44 (9), 976-9.
- Zhu, J., Xie, J., Lü, X., Jiang, D., 2009, Synthesis and characterization of superhydrophobic silica and silica/titania aerogels by sol–gel method at ambient pressure, *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 342 (1-3), 97-101.
- Zolfaghari, G., Esmaili-Sari, A., Anbia, M., Younesi, H., Amirmahmoodi, S., Ghafari-Nazari, A., 2011, Taguchi optimization approach for Pb(II) and Hg(II) removal from aqueous solutions using modified mesoporous carbon, *Journal of Hazardous Materials*, 192 (3), 1046-55.
- Zolgharnein, J., Rastgordani, M., 2018, Optimization of simultaneous removal of binary mixture of indigo carmine and methyl orange dyes by cobalt hydroxide nanoparticles through Taguchi method, *Journal of Molecular Liquids*, 262, 405-14.



ÖZGEÇMİŞ

KİŞİSEL BİLGİLER

Adı Soyadı : Gülcihan Güzel Kaya
Uyruğu : T.C.
Doğum Yeri ve Tarihi : Serik 21.02.1989
Telefon : 0332 223 20 71
Faks : -
e-mail : ggkaya@ktun.edu.tr

EĞİTİM

Derece	Adı, İlçe, İl	Bitirme Yılı
Lise	: Karaman Anadolu Lisesi, KARAMAN	2007
Üniversite	: Hacettepe Üniversitesi, ANKARA	2013
Yüksek Lisans	: Selçuk Üniversitesi, KONYA	2016
Doktora	: Konya Teknik Üniversitesi, KONYA	2020

İŞ DENEYİMLERİ

Yıl	Kurum	Görevi
2013-2018	Selçuk Üniversitesi, Kimya Mühendisliği Bölümü	Araştırma Görevlisi
2018-	Konya Teknik Üniversitesi, Kimya Mühendisliği Bölümü	Araştırma Görevlisi

YABANCI DİLLER

İngilizce

YAYINLAR

Uluslararası hakemli dergilerde yayınlanan makaleler:

- Guzel Kaya, G., Medaglia, S., Candela-Noguera, V., Tormo-Mas, M.A., Dolores Marcos, M., Aznar, E., Deveci, H., Martinez-Manez, R. “Antibacterial Activity of Linezolid against Gram-Negative Bacteria: Utilization of ϵ -Poly-L-Lysine Capped Silica Xerogel as an Activating Carrier” *Pharmaceutics*, 12(11), 1126, 2020. **(Doktora tezinden yapılmıştır.)**
- Guzel Kaya, G., Deveci, H. “Synergistic effects of silica aerogels/xerogels on properties of polymer composites: A review” *Journal of Industrial and Engineering Chemistry*, 89, 13-27, 2020.
- Dursun, S., Koyuncu, S.N., Kaya, İ.C., Guzel Kaya, G., Kalem, V., Akyildiz, H. “Production of CuO-WO₃ hybrids and their dye removal capacity/performance from wastewater by adsorption/photocatalysis” *Journal of Water Process Engineering*, 36, 101390, 2020.

- Guzel Kaya, G., Deveci, H. "Modified silica xerogel derived from groundnut hull ash by alkyl-ammonium salt for epoxy nanocomposites: Synergistic effects on thermal stability and flame retardancy" *Advanced Powder Technology*, 689, 178637, 2020.
- Guzel Kaya, G., Yilmaz, E., Deveci, H. "Synthesis of sustainable silica xerogels/aerogels using steel slag and bean pod ash: A comparison study" *Advanced Powder Technology*, 31, 926-936, 2020.
- Guzel Kaya, G., Deveci, H. "Effect of Aging Solvents on Physicochemical and Thermal Properties of Silica Xerogels Derived from Steel Slag" *ChemistrySelect*, 5, 1586-1591, 2020.
- Guzel Kaya, G., Yilmaz, E., Deveci, H. "A novel silica xerogel synthesized from volcanic tuff as an adsorbent for high-efficient removal of methylene blue: parameter optimization using Taguchi experimental design" *Journal of Chemical Technology & Biotechnology*, 94, 2729-2737, 2019. **(Doktora tezinden yapılmıştır.)**
- Yilmaz, E., Guzel Kaya, G., Deveci, H. "Removal of Methylene Blue Dye from Aqueous Solution by Semi-Interpenetrating Polymer Network Hybrid Hydrogel: Optimization through Taguchi method" *Journal of Polymer Science, Part A: Polymer Chemistry*, 57, 1070-1078, 2019.
- Yilmaz, E., Guzel Kaya, G., Deveci, H. "Preparation and characterization of pH-sensitive semi-interpenetrating network hybrid hydrogels with sodium humate and kaolin" *Applied Clay Science*, 162, 311-316, 2018.
- Guzel Kaya, G., Yilmaz, E., Deveci, H. "Sustainable nanocomposites of epoxy and silica xerogel synthesized from corn stalk ash: Enhanced thermal and acoustic insulation performance" *Composite Part B: Engineering*, 150, 1-6, 2018.
- Guzel Kaya, G., Yilmaz, E., Deveci, H. "Sustainable bean pod/calcined kaolin reinforced epoxy hybrid composites with enhanced mechanical, water sorption and corrosion resistance properties" *Construction and Building Materials*, 162, 272-279, 2018.
- Guzel, G., Deveci, H. "Properties of polymer composites based on bisphenol A epoxy resins with original/modified steel slag" *Polymer Composites*, 39, 513-521, 2018. **(Yüksek lisans tezinden yapılmıştır.)**
- Guzel, G., Deveci, H. "Physico-mechanical, thermal, and coating properties of composite materials prepared with epoxy resin/steel slag" *Polymer Composites*, 38 (9), 1974-1981, 2017. **(Yüksek lisans tezinden yapılmıştır.)**
- Guzel, G., Sivrikaya, O., Deveci, H. "The use of colemanite and ulexite as novel fillers in epoxy composites: Influences on thermal and physico-mechanical properties" *Composite Part B: Engineering*, 100, 1-9, 2016.

Uluslararası kongrelerde sunulan bildiriler:

- Üstün, S., Güzel Kaya, G., Yilmaz, E., Deveci, H. "Polyacrylamide Based Hydrogel Composites Including Potassium Humate and Char" 12th International Conference of Strategic Research on Scientific Studies and Education (12th ICoSReSSE), 10-13 December, 2020.

- Üstün, S., Güzel Kaya, G., Yılmaz, E., Deveci, H. “pH-Sensitive Hydrogel Composites and Their Properties” 12th International Conference of Strategic Research on Scientific Studies and Education (12th ICoSReSSE), 10-13 December, 2020.
- Almezgagi, M., Guzel Kaya, G., Deveci, H. “Biochar produced from pyrolysis of olive pomace as an adsorbent for Cr (VI) removal from aqueous solutions” International Symposium for Environmental Science and Engineering Research (ISESER), Konya, Turkey, 25-27 May, 2019.
- Guzel Kaya, G., Yilmaz, E., Deveci, H. “Calcined colemanite as filler for epoxy composite materials” 3rd International Congress of Chemists and Chemical Engineers of B&H, Sarajevo, Bosnia and Herzegovina, 19-21 October, 2018.
- Yilmaz, E., Guzel Kaya, G., Kar, Y., Deveci, H. “Utilization of char obtained from olive pomace co-pyrolysis with crude oil as a filler in epoxy composite materials” NANO 2018, Kyiv, Ukraine, 27-30 August, 2018.
- Guzel Kaya, G., Yilmaz, E., Deveci, H. “ The effect of polyethylene glycol and carbon black addition on the properties of silica xerogels synthesized from groundnut hull ash” ANM 11th International conference on Advanced Nano Materials, Aveiro, Portugal, 18-20 July, 2018. **(Doktora tezinden yapılmıştır.)**
- Gültekin, M., Yılmaz, E., Güzel Kaya, G., Deveci, H. “The Usage of Acrylamide Based Hydrogels Reinforced with Potassium Humate for Removal of Methylene Blue from Aqueous Solutions” International Symposium For Environmental Science And Engineering Research (ISESER 2018), Konya, Turkey, 11-12 May, 2018.
- Gültekin, M., Yılmaz, E., Güzel Kaya, G., Deveci, H. “Metilen Mavisinin Sulu Çözeltilerden Adsorpsiyonunda Akrilamid Esaslı Yarı-Ipn Hidrojellerin Kullanımı” Uluslararası Su Ve Çevre Kongresi, Bursa, Turkey, 22-24 Mart, 2018.
- Guzel Kaya, G., Yilmaz, E., Deveci, H. “Sustainable epoxy biocomposites reinforced with bean pod” 4th International Turk-Pak Conference on Chemical Sciences, Konya, Turkey, 26-28 October, 2017.
- Yilmaz, E., Guzel Kaya, G., Deveci, H. “Poly(Acrylamide-Co-Crotonic Acid)/Kaolin Semi-IPN Hydrogels Synthesis and Characterization” 4th International Turk-Pak Conference on Chemical Sciences, Konya, Turkey, 26-28 October, 2017.
- Deveci, H., Guzel Kaya, G., Yilmaz, E., Methylene Blue Dye Adsorption From Aqueous Solution Onto Semi-IPN Hydrogel Composites, 3rd International Conference On Environmental Science And Technology, Budapest, Hungary, 19-23 October, 2017.
- Guzel Kaya, G., Yilmaz, E., Deveci, H. “Characterization of sustainable hybrid composites based on epoxy resin and bean pod/kaolin” E-MRS Fall Meeting, Warsaw, Poland, 18-21 September, 2017.
- Guzel Kaya, G., Yilmaz, E., Deveci, H. “Groundnut hull/steel slag reinforced hybrid composites of epoxy: mechanical, water sorption, chemical resistance and thermal properties” International Conference on Composite Structures, Paris, France, 4-7 September, 2017.
- Guzel Kaya, G., Yilmaz, E., Tutar Demir, H., Deveci, H. “Epoxy composites including fly ash: mechanical, water sorption, adhesion, corrosion and thermal properties” PhoBiA Annual Nanophotonics International Conference, Wroclaw, Poland, 24-26 April, 2017.
- Guzel, G., Parlak, M.F., Deveci, H. “Properties of Epoxy Composites Including Volcanic Tuff” 3rd International Conference On Advanced Technology & Sciences, Konya, Turkey, 1-3 September, 2016.

- Guzel, G., Baydar, E., Deveci, H. "Properties of PVC Composites Including Kaolin and Carbon Black" 6th International Conference of Ecosystems, Tirana, Albania, 3-6 June, 2016.
- Guzel, G., Parlak, M.F., Deveci, H. "Physico-mechanical and Thermal Properties Based Epoxy-Tuff" 6th International Conference of Ecosystems, Tirana, Albania, 3-6 June, 2016.
- Guzel, G., Sakir, V., Deveci, H. "Physico-mechanical and thermal properties of epoxy-tincal composites" 3rd International Conference Research and Education in Natural Sciences, Shkoder, Albania, 6-7 November, 2015.
- Guzel, G., Deveci, H. "Application Properties Of Groundnut Hull/Epoxy Composites" International Conference On Engineering and Natural Science, Skopje, Macedonia, 15-19 May, 2015. **(Yüksek lisans tezinden yapılmıştır.)**

Ulusal kongrelerde sunulan bildiriler:

- Güzel Kaya, G., Yılmaz, E., Deveci, H. "Volkanik Tüf Kullanımı ile Silika Kserojel ve Nanokompozitlerinin Hazırlanması" 13. Ulusal Kimya Mühendisliği Kongresi, Van, Türkiye, 3-6 Eylül, 2018. **(Doktora tezinden yapılmıştır.)**
- Tabakoğlu, B., Kara, H., Şan, F.A., Güzel Kaya, G., Yılmaz, E., Deveci, H. "Çelikhane Cürufunun Epoksi Kompozit Malzemelerde Dolgu Maddesi Olarak Değerlendirilmesi" 8. Ulusal Kimya Öğrenci Kongresi, İstanbul, Türkiye, 16-18 Mayıs, 2017.
- Güzel, G., Dinçer, İ., Karasu, H., Deveci, H. "Modifiye Yerfıstığı Kabuğu/Epoksi Kompozitlerinin Hazırlanması ve Özelliklerinin İncelenmesi" 12. Ulusal Kimya Mühendisliği Kongresi, İzmir, Türkiye, 23-26 Ağustos, 2016.
- Güzel, G., Deveci, H. "Yerfıstığı Kabuğu/Epoksi Kompozitleri ve Fizikomekanik Özellikleri" 27. Ulusal Kimya Kongresi, Çanakkale, Türkiye, 23-28 Ağustos, 2015. **(Yüksek lisans tezinden yapılmıştır.)**