

T.C.
İNÖNÜ ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

SÜRDÜRÜLEBİLİR, POTANSİYEL UYGULAMALARA SAHİP,
ÇEVRE DOSTU MALZEME ÜRETİMİ

DOKTORA TEZİ

Muhammed ONAY

Kimya Mühendisliği Anabilim Dalı

Tez Danışmanı: Prof. Dr. Çiğdem SARICI ÖZDEMİR

OCAK 2023

**T.C.
İNÖNÜ ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ**

**SÜRDÜRÜLEBİLİR, POTANSİYEL UYGULAMALARA SAHİP,
ÇEVRE DOSTU MALZEME ÜRETİMİ**

DOKTORA TEZİ

**Muhammed ONAY
(36173617019)**

Kimya Mühendisliği Anabilim Dalı

Tez Danışmanı: Prof. Dr. Çiğdem SARICI ÖZDEMİR

OCAK 2023

TEŐEKKÜR VE ÖNSÖZ

Bu alıőmanın planlanmasında ve yürütülmesinde yardım, öneri ve desteęini esirgemeyen tez danıőmanım Sayın Prof. Dr. ıędem SARICI ÖZDEMİR'e,

Kimya Mühendislięi laboratuvarlarında alıőmama imkân saęlayan İnönü Üniversitesi Kimya Mühendislięi Bölüm Başkanlıęına,

Ayrıca bütün hayatım boyunca maddi ve manevi destekleri ile yanımda olan deęerli aileme,

FDK-2021-2764 kod numaralı proje kapsamında tezime maddi destek saęlayan İnönü Üniversitesi BAP birimine,

teőekkür ederim.



ONUR SÖZÜ

Doktora Tezi olarak sunduđum ‘‘Sürdürülebilir, Potansiyel Uygulamalara Sahip, Çevre Dostu Malzeme Üretimi’’ başlıklı bu çalışmanın bilimsel ahlak ve geleneklere aykırı düşecek bir yardıma başvurmaksızın tarafımdan yazıldığını ve yararlandığım bütün kaynakların hem metin içinde hem de kaynakçada yöntemine uygun biçimde gösterilenlerden oluştuđunu belirtir, bunu onurumla doğrularım.

Muhammed ONAY



İÇİNDEKİLER

TEŞEKKÜR VE ÖNSÖZ	i
ONUR SÖZÜ.....	ii
İÇİNDEKİLER.....	iii
ÇİZELGELER DİZİNİ	v
ŞEKİLLER DİZİNİ	vi
SEMBOLLER VE KISALTMALAR.....	viii
ÖZET.....	ix
ABSTRACT	x
1. GİRİŞ.....	1
2. KAVRAMSAL ÇERÇEVE	6
2.1 Geopolimer	6
2.1.1 Geopolimerlerin kompozisyonu ve sentezi.....	7
2.1.1.1 Kompozisyon.....	7
2.1.1.2 Sentez	10
2.1.2 Geopolimer üretiminde kullanılan ham maddeler	14
2.1.2.1 Doğal malzemeler	14
2.1.2.2 Atık (Yan) ürünler	15
2.1.3 Geopolimer üretiminde kullanılan aktivatörler	19
2.1.3.1 Alkali aktivatörler	19
2.1.3.2 Asidik aktivatörler	20
2.1.4 Geopolimer hazırlama yöntemleri	20
2.1.5 Geopolimer malzemelerin özellikleri	22
2.1.5.1 Geopolimer harcın özellikleri ve etkileyen faktörler	22
2.1.5.2 Geopolimer malzemelerin özelliklerini etkileyen faktörler	23
2.1.5.3 Geopolimer malzemelerin dayanıklılık özellikleri	26
2.1.6 Geopolimer malzemelerin uygulamaları	26
2.1.6.1 Geopolimer malzemelerin genel (yapı malzemesi) uygulamaları	26
2.1.6.2 Geopolimer malzemelerin fonksiyonel uygulamaları.....	27
2.2 Adsorpsiyon	31
2.2.1 Adsorpsiyon türleri	32
2.2.1.1 Fiziksel adsorpsiyon.....	33
2.2.1.2 Kimyasal adsorpsiyon	33
2.2.2 Adsorpsiyonu etkileyen faktörler	34
2.2.2.1 Adsorbanın yapısının etkisi	34
2.2.2.2 Sıcaklığın etkisi	35
2.2.2.3 Adsorbatın yapısının etkisi.....	35
2.2.2.4 Adsorbat çözeltisinin pH değerinin etkisi	36
2.2.2.5 Karıştırma hızının etkisi.....	36
2.2.3 Adsorbanlar ve özellikleri.....	36
2.2.4 Adsorpsiyon kinetiği.....	37
2.2.4.1 Yalancı birinci mertebeden kinetik veya Lagergren modeli	38
2.2.4.2 Yalancı ikinci mertebeden kinetik veya Ho ve McKay modeli	39
2.2.4.3 Elovich kinetik eşitliği	39
2.2.4.4 Avrami kinetik eşitliği	40
2.3 Yapılan Çalışmalar	41
3. MALZEME VE YÖNTEM.....	49
3.1 Kullanılan Ham Maddeler ve Katkı Maddeleri	49
3.1.1 Uçucu kül	49

3.1.2 Yüksek fırın cürufu.....	50
3.1.3 Kanyaş otu (<i>Sorghum halepense</i>) külü	51
3.1.3 Mısır kabuğu külü.....	52
3.1.4 Yer fıstığı kabuğu külü	52
3.2 Kullanılan Kimyasal Maddeler	52
3.3 Kullanılan Cihazlar	53
3.4 Geopolimer Malzeme Üretimi	54
3.5 Üretilen Malzemelerin Bazı Özelliklerinin Belirlenmesi.....	61
3.5.1 Malzemelerin mikro yapısal analizi	62
3.5.2 Kütleme etkisi ve kurutma kinetiği	62
3.5.3 Asit ve su direnci tayini	63
3.5.4 Su emme miktarı, yoğunluk tayini ve basınç dayanımı.....	64
3.5.5 Geopolimer malzemenin adsorban olarak kullanımı.....	65
3.5.6 Radyoaktif atıklar için geopolimer malzemenin kullanımı	65
4. BULGULAR VE TARTIŞMA.....	67
4.1 Ham Madde ve Katkı Maddelerinin Mikro Yapısal Analizi	67
4.2 Elde Edilen Geopolimer Malzemelerin Karakterizasyonu	72
4.2.1 XRD analizi sonuçları.....	73
4.2.2 SEM analizi sonuçları.....	79
4.2.3 FT-IR analizi sonuçları	83
4.3 Kütleme Etkisi ve Kurutma Kinetiği.....	89
4.4 Malzemenin Asit ve Su Ortamına Direncinin Gözlemlenmesi	92
4.5 Su Emme Miktarı, Yoğunluk Tayini ve Basınç Dayanımı.....	95
4.6 Adsorpsiyon Çalışmaları	104
4.7 Radyoaktif Atıklar İçin Geopolimer Malzemenin Kullanımı.....	110
5. SONUÇLAR VE ÖNERİLER	128
KAYNAKLAR	131
EKLER.....	142
ÖZGEÇMİŞ	143

ÇİZELGELER DİZİNİ

Çizelge 3.1 : Kullanılan kimyasal maddeler ve bazı özellikleri.....	53
Çizelge 3.2 : Kullanılan cihazlar ve bazı özellikleri.....	54
Çizelge 3.3 : Birinci kısımda üretilen geopolimer malzemeler.	57
Çizelge 3.4 : İkinci kısımda üretilen geopolimer malzemeler.	60
Çizelge 3.5 : Üçüncü kısımda üretilen geopolimer malzemeler.	61
Çizelge 4.1 : Kullanılan ham maddelerin ve katkı maddelerin elementel analiz sonuçları.	67
Çizelge 4.2 : Kullanılan ham maddelerin XRF analiz sonuçları.	68
Çizelge 4.3 : XRD analizlerinde tespit edilen yapılar.	78
Çizelge 4.4 : FT-IR analizlerinde tespit edilen yapılar ve dalga sayıları.....	88
Çizelge 4.5 : Elde edilen bazı numunelerin yoğunluk değerleri.	99
Çizelge 4.6 : Deneysel verilere uygulanan kinetik modeller.	105
Çizelge 4.7 : Deneysel verilerin kinetik modellere uygulanması ile elde edilen sabitler.	108
Çizelge 4.8 : Deneysel verilere uygulanan kinetik modeller için hata analizleri.....	110
Çizelge 4.9 : Radyoaktif elementlerin malzeme matrisinde tutunma yüzdeleri.	126

ŞEKİLLER DİZİNİ

Şekil 2.1 : Davidovits modeline göre geopolimerlerin yapısı.....	7
Şekil 2.2 : Si/Al oranlarına göre değişen poli-sialatların moleküler yapısı.....	10
Şekil 2.3 : Geopolimerizasyon süreci.....	13
Şekil 2.4 : Geopolimer üretiminde yaygın kullanılan ham maddelerin ve portland çimentosunun yaklaşık Al-Si-Ca içerikleri.....	17
Şekil 2.5 : İki kademeli (sulu karışım) yöntemiyle geopolimer üretimi.....	21
Şekil 2.6 : Adsorpsiyon işleminin şematik gösterimi.....	31
Şekil 3.1 : A-Zonguldak uçucu külü ve B-Karabük uçucu külü.....	50
Şekil 3.2 : Granüle yüksek fırın cürufu.....	51
Şekil 3.3 : Kanyaş otunun hazırlanması.....	51
Şekil 3.4 : A- Mısır kabuğu külü B- Yer fıstığı kabuğu külü.....	52
Şekil 3.5 : Deneysel akım şeması.....	55
Şekil 3.6 : Geopolimer malzemelerin üretim aşamalarına ait görseller.....	56
Şekil 3.7 : Zonguldak uçucu külü (a), Karabük uçucu külü (b) ve yüksek fırın cürufu (c) ile üretilen malzemelerin görselleri.....	59
Şekil 3.8 : Geopolimer malzemelerin kütleme işlemleri.....	63
Şekil 3.9 : Geopolimer malzemelerin asit ve su direnci tayini.....	64
Şekil 3.10 : Adsorpsiyon çalışmalarına ait görseller.....	65
Şekil 4.1 : Alüminosilikat kaynaklarının XRD analizi.....	69
Şekil 4.2 : Z-UK (a), K-UK (b) ve GYFC (c) SEM görüntüleri.....	69
Şekil 4.3 : Alüminosilikat kaynaklarının FT-IR analizleri.....	70
Şekil 4.4 : Katkı maddelerinin XRD analizi.....	71
Şekil 4.5 : KO (a), MK (b) ve YFK (c) için SEM görüntüleri.....	71
Şekil 4.6 : Katkı maddelerinin FT-IR analizleri.....	72
Şekil 4.7 : GP-32, GP-57, GP-67 ve GP-77 numunelerinin XRD sonuçları.....	74
Şekil 4.8 : GP-182, GP-183 ve GP-184 numunelerinin XRD sonuçları.....	75
Şekil 4.9 : GP-190, GP-191 ve GP-192 numunelerinin XRD sonuçları.....	75
Şekil 4.10 : GP-185, GP-181 ve GP-186 numunelerinin XRD sonuçları.....	76
Şekil 4.11 : GP-185, GP-188 ve GP-193 numunelerinin XRD sonuçları.....	76
Şekil 4.12 : GPK-107, GPK-117, GPK-127 ve GPK-157 numunelerinin XRD sonuçları.....	77
Şekil 4.13 : GPY-137, GPY-147, GPY-167 ve GPY-177 numunelerinin XRD sonuçları.....	78
Şekil 4.14 : GP-32 (a), GP-57 (b), GP-67 (c) ve GP-77 (d) numunelerinin SEM görüntüleri.....	79
Şekil 4.15 : GP-182 (a), GP-183 (b) ve GP-184 (c) numunelerinin SEM görüntüleri.....	80
Şekil 4.16 : GP-190 (a), GP-191 (b) ve GP-192 (c) numunelerinin SEM görüntüleri.....	80
Şekil 4.17 : GP-185 (a), GP-181 (b) ve GP-186 (c) numunelerinin SEM görüntüleri.....	80
Şekil 4.18 : GP-185 (a), GP-188 (b) ve GP-193 (c) numunelerinin SEM görüntüleri.....	81
Şekil 4.19 : GPK-107 (a), GPK-117 (b), GPK-127 (c) ve GPK-157 (d) numunelerinin SEM görüntüleri.....	82
Şekil 4.20 : GPY-137 (a), GPY-147 (b), GPY-167 (c) ve GPY-177 (d) numunelerinin SEM görüntüleri.....	82
Şekil 4.21 : GP-32, GP-57, GP-67 ve GP-77 numunelerinin FT-IR sonuçları.....	83
Şekil 4.22 : GP-182, GP-183 ve GP-184 numunelerinin FT-IR sonuçları.....	84
Şekil 4.23 : GP-190, GP-191 ve GP-192 numunelerinin FT-IR sonuçları.....	85
Şekil 4.24 : GP-185, GP-181 ve GP-186 numunelerinin FT-IR sonuçları.....	85
Şekil 4.25 : GP-185, GP-188 ve GP-193 numunelerinin FT-IR sonuçları.....	86
Şekil 4.26 : GPK-107, GPK-117, GPK-127 ve GPK-157 numunelerinin FT-IR sonuçları.....	87

Şekil 4.27 : GPY-137, GPY-147, GPY-167 ve GPY-177 numunelerinin FT-IR sonuçları	87
Şekil 4.28 : GP-32 numaralı numunenin kütleme kinetiği	89
Şekil 4.29 : GP-57 numaralı numunenin kütleme kinetiği	90
Şekil 4.30 : GP-67 numaralı numunenin kütleme kinetiği	91
Şekil 4.31 : GP-77 numaralı numunenin kütleme kinetiği	91
Şekil 4.32 : Asit ortamında bekletilen numunelerin görsel olarak değişimleri	92
Şekil 4.33 : Asit ortamında bekletilen numunelerin ağırlık değişimleri	93
Şekil 4.34 : Saf su ortamında bekletilen numunelerin görsel olarak değişimleri	94
Şekil 4.35 : Saf su ortamında bekletilen numunelerin ağırlık değişimleri	95
Şekil 4.36 : GP-32 numaralı numunenin su emme miktarının zamana göre değişimi	96
Şekil 4.37 : GP-57 numaralı numunenin su emme miktarının zamana göre değişimi	96
Şekil 4.38 : GP-67 numaralı numunenin su emme miktarının zamana göre değişimi	97
Şekil 4.39 : GP-77 numaralı numunenin su emme miktarının zamana göre değişimi	98
Şekil 4.40 : Aktivatör konsantrasyonunun basınç dayanımına etkisi	101
Şekil 4.41 : Mısır kabuğu külü miktarının basınç dayanımına etkisi	102
Şekil 4.42 : TiO ₂ miktarının basınç dayanımına etkisi	102
Şekil 4.43 : Farklı tarımsal atık küllerinin basınç dayanımına etkisi	103
Şekil 4.44 : Geopolimer malzemelerin yüzde boya giderimleri	104
Şekil 4.45 : GP-181 numaralı numunenin deneysel verilerinin Yalancı birinci mertbe kinetik modele uygulanması	106
Şekil 4.46 : GP-181 numaralı numunenin deneysel verilerinin Yalancı ikinci mertbe kinetik modele uygulanması	106
Şekil 4.47 : GP-181 numaralı numunenin deneysel verilerinin Elovich kinetik modele uygulanması	107
Şekil 4.48 : GP-181 numaralı numunenin deneysel verilerinin Avrami kinetik modele uygulanması	107
Şekil 4.49 : GP-201, GP-202 ve GP-203 numunelerinin XRD sonuçları	112
Şekil 4.50 : GP-204, GP-205 ve GP-206 numunelerinin XRD sonuçları	112
Şekil 4.51 : GP-207, GP-208 , GP-2077 ve GP-2088 numunelerinin XRD sonuçları	113
Şekil 4.52 : GP-201, GP-202 ve GP-203 numunelerinin FT-IR sonuçları	114
Şekil 4.53 : GP-204, GP-205 ve GP-206 numunelerinin FT-IR sonuçları	114
Şekil 4.54 : GP-207, GP-208, GP-2077 ve GP-2088 numunelerinin FT-IR sonuçları	115
Şekil 4.55 : GP-201 numaralı numunenin SEM-EDX analizi sonuçları	116
Şekil 4.56 : GP-202 numaralı numunenin SEM-EDX analizi sonuçları	117
Şekil 4.57 : GP-203 numaralı numunenin SEM-EDX analizi sonuçları	118
Şekil 4.58 : GP-204 numaralı numunenin SEM-EDX analizi sonuçları	119
Şekil 4.59 : GP-205 numaralı numunenin SEM-EDX analizi sonuçları	120
Şekil 4.60 : GP-206 numaralı numunenin SEM-EDX analizi sonuçları	121
Şekil 4.61 : GP-207 numaralı numunenin SEM-EDX analizi sonuçları	122
Şekil 4.62 : GP-2077 numaralı numunenin SEM-EDX analizi sonuçları	123
Şekil 4.63 : GP-208 numaralı numunenin SEM-EDX analizi sonuçları	124
Şekil 4.64 : GP-2088 numaralı numunenin SEM-EDX analizi sonuçları	125

SEMBOLLER VE KISALTMALAR

FA	: Uçucu Kül
GPC	: Geopolimer Bağlayıcı
OPC	: Portland Çimentosu
GGBFS	: Yüksek Fırın Cürufu
RM	: Kırmızı Çamur
XRF	: X-Işın Floresans
XRD	: X-Işın Kristalografisi
SEM	: Taramalı Elektron Mikroskobu
FT-IR	: Frouier Transform Infrared Spektroskopisi
EDX	: Enerji Dağıtıcı X-Işın Spektroskopisi
OH⁻	: Hidroksil Radikali
M	: Tek Değerlikli Katyon (K ⁺ , Na ⁺)
n	: Polikondenzasyon Derecesi
z	: Malzeme İçerisindeki Si/Al Oranı
x	: İçerdiği Su Miktarı
m	: Kütle
g	: Gram
V	: Hacim
L	: Litre
K	: Kelvin
C	: Selsiyus
C₀	: Başlangıç Konsantrasyonu
C_e	: Denge Halindeki Konsantrasyon
C_t	: Herhangi Bir Süredeki Konsantrasyon
MSE	: Hata Kareler Ortalaması
RMSE	: Hata Kareler Ortalamasının Karekökü
MAPE	: Ortalama Mutlak Yüzde Hata

ÖZET

Doktora Tezi

SÜRDÜRÜLEBİLİR, POTANSİYEL UYGULAMALARA SAHİP, ÇEVRE DOSTU MALZEME ÜRETİMİ

Muhammed ONAY

İnönü Üniversitesi
Fen Bilimleri Enstitüsü
Kimya Mühendisliği Ana Bilim Dalı

144 + x sayfa

2023

Danışman : Prof.Dr.Çiğdem SARICI ÖZDEMİR

Bu çalışmada farklı endüstriyel ve tarımsal atıkların geopolimer malzeme üretiminde kullanılabilirliği ve bu malzemelerin bazı uygulamaları incelenmiştir. Bu kapsamda iki farklı tip uçucu kül ve yüksek fırın cürufu olmak üzere üç farklı alüminosilikat kaynağı ham madde olarak kullanılmıştır. Bu ham maddeler kullanılarak gerçekleştirilen deneylerde, ham madde tipinin ve miktarının etkisi, NaOH ve KOH olmak üzere alkali aktivatör tipinin ve konsantrasyonunun etkisi, Na_2SiO_3 ve K_2SiO_3 olmak üzere silikatların tipi ve miktarının etkisi incelenerek optimum değerlere sahip ideal geopolimer malzemeler elde edilmiştir. İdeal olarak belirlenen numuneler üzerinden sürdürülebilir ve çevre dostu malzeme üretimi için kanyaş otu, mısır kabuğu ve yer fıstığı kabuğu olmak üzere üç farklı tarımsal atığın külleri yapıya eklenerek üretimde kimyasal kullanımının azaltılması amaçlanmıştır. Elde edilen malzemelerin fiziksel özelliklerini belirleyebilmek için 25, 50 ve 75 °C olmak üzere kürleme sıcaklığı ve kinetiği, yoğunluk değerleri, asit ve su ortamına dirençleri ve basınç dayanımları incelenmiştir. Çalışma kapsamında kullanılan atıkların ve elde edilen malzemelerin karakterizasyonu için XRF, XRD, SEM-EDX ve FT-IR analizleri gerçekleştirilmiştir. Bu analizler ile numunelerin elementel analizi, kristalin/amorf yapıları, yüzey morfolojik yapıları ve içerdiği fonksiyonel gruplar belirlenmiştir. Ayrıca elde edilen numunelerin bazılarının toksik boyar maddelerin adsorpsiyon metoduyla gideriminde adsorban olarak kullanılabilirliği incelenmiştir. Deneyler sonucunda %85 in üzerinde boyar madde giderimi sağladığı ve kinetik olarak yalancı ikinci mertebe ve avrami modellerine uyduğu tespit edilmiştir. Geopolimer malzemelerin radyoaktif atıkların immobilizasyonunda kullanılabilirliğini incelemek için kapsülleme matrisi metoduyla sezyum (Cs) ve stronsiyum (Sr) elementlerini içeren numuneler 28 gün süresince su ortamında tutulmuştur. SEM-EDX ve XRF analiz sonuçlarına göre radyoaktif elementlerin yaklaşık %90 seviyelerinde matris içerisinde tutulabildiği saptanmıştır. Elde edilen sürdürülebilir ve çevre dostu geopolimer malzemenin yapı malzemesi, kaplama malzemesi ve toksik madde gideriminde, radyoaktif atıkların depolama alanlarında kullanılabileceği belirlenmiştir.

Anahtar Kelimeler: Geopolimer, Tarımsal atık, Kürleme, Toksik madde.

ABSTRACT

PhD. Thesis

SUSTAINABLE, ENVIRONMENTALLY FRIENDLY MATERIAL PRODUCTION WITH POTENTIAL APPLICATIONS

Muhammed ONAY

Inonu University
Graduate School of Nature and Applied Sciences
Department of Chemical Engineering

144 + x pages

2023

Supervisor: Prof.Dr. Çiğdem SARICI-ÖZDEMİR

In this study, the usability of different industrial and agricultural wastes in the production of geopolymer materials and some applications of these materials were examined. In this context, three different aluminosilicate sources, two different types of fly ash and blast furnace slag, were used as raw materials. In the experiments carried out using these raw materials, the effect of the type and amount of raw material, the effect of the alkali activator type and concentration, NaOH and KOH, the effect of the type and amount of silicates, Na₂SiO₃ and K₂SiO₃, were examined and ideal geopolymer materials with optimum values were obtained. It is aimed to reduce the use of chemicals in production by adding the ashes of three different agricultural wastes, johnsongrass, corn husk and peanut husk, to the structure for the production of sustainable and environmentally friendly materials based on ideally determined samples. In order to determine the physical properties of the obtained materials, curing temperature and kinetics at 25, 50 and 75 °C, density values, resistance to acid and water environment and compressive strength were investigated. XRF, XRD, SEM-EDX and FT-IR analyzes were performed for the characterization of the wastes used and the materials obtained within the scope of the study. With these analyzes, elemental analysis of the samples, crystalline/amorphous structures, surface morphological structures and functional groups were determined. In addition, the usability of some of the samples obtained as an adsorbent in the removal of toxic dyestuffs by adsorption method was investigated. As a result of the experiments, it was determined that it provides over 85% dyestuff removal and kinetically complies with the pseudo-second-order and Avrami models. In order to examine the usability of geopolymer materials in the immobilization of radioactive wastes, samples containing cesium (Cs) and strontium (Sr) elements were kept in water environment for 28 days by encapsulation matrix method. According to the results of SEM-EDX and XRF analysis, it was determined that radioactive elements could be retained in the matrix at approximately 90% levels. It has been determined that the obtained sustainable and environmentally friendly geopolymer material can be used in building material, coating material and toxic substance removal, and in storage areas of radioactive wastes.

Keywords: Geopolymer, Agricultural waste, Curing, Toxic substance.

1. GİRİŞ

Dünya nüfusunun hızla artması ve teknolojik ilerlemeler, enerji talebinde ciddi anlamda bir artışa neden olmaktadır. Fosil yakıtlar sürdürülebilir olmamalarına ve ciddi çevre ve sağlık sorunlarına neden olmalarına rağmen hala enerji sektörüne en büyük katkıyı sağlayan kaynaklardır. Fosil yakıtların yanma sürecinde metan, karbondioksit ve azot oksit gibi sera gazları büyük miktarlarda atmosfere salınmaktadır. Ayrıca, endüstriyel büyüme nedeniyle bu gazların emisyonlarının zamanla artması beklenmektedir. Kullanılan enerji kaynaklarında bir değişiklik olmazsa sera gazlarının atmosfere salınımı ciddi sağlık sorunları, deniz seviyesinin yükselmesi, ekosistemde değişiklikler vb. olumsuz birçok durum ile sonuçlanması öngörüler arasındadır [1]. Bu gerçeklere dayanarak, tüm ulusların bu senaryolardan kaçınmak için çeşitli stratejiler uygulamaya başladığı bilinmektedir. Sera gazlarını ve buna bağlı çevresel sorunları kısmen veya tamamen azaltmak için çeşitli yöntemler önerilmiştir. Mevcut teknolojilerin etkinliğinin artırılması, verimli ve daha düşük seviyelerde kirliliğe sebebiyet veren yeni cihazların geliştirilmesi ve kısmen ya da tamamen yenilenebilir enerji kaynaklarına geçiş önerilen farklı yöntemler arasındadır [2].

Tarımsal ve endüstriyel üretim, hızla büyüyen küresel nüfusun taleplerini karşılamak için gün geçtikçe artmaktadır. Bu üretim artışıyla birlikte meydana gelen atıkların miktarı da artmaktadır. Artan bu katı atıkların enerji üretimi veya bir ürün elde etmek için yeniden kullanılabilir olması sürdürülebilir kalkınmaya fayda sağlayacaktır. Katı atık yönetimi alanında mevcut eğilim, atık miktarını kaynağında azaltmak veya alternatif olarak, kaçınılmaz olarak üretilen atık malzemeyi yeniden kullanmaktır. Çevre üzerindeki etkilerini azaltmak için, hem tarım hem de endüstrideki nihai hedef, atık malzemelerin bir kaynak akışı olarak yeniden kullanıldığı kapalı bir döngü sistemi oluşturmaktır. Böylece taşıma/depolama maliyetleri ve çevre kirliliği sonucunda sera gazı emisyonlarının minimum seviyelere inmesi sağlanacaktır.

Temel ihtiyaçlardan birisi olan barınma için günümüzde betonarme yapılar kullanılmaktadır. Portland çimentosundan elde edilen beton; kolay bulunabilirliği, çok yönlülüğü, düşük maliyeti ve yüksek yapısal performansı nedeniyle dünyada en çok tüketilen yapı ürünüdür. Çimento endüstrisindeki sıradan Portland Çimento (OPC) üretimi,

dünya çapında %7 oranında CO₂ salınımı ile endüstriyel üretimler arasında en yüksek seviyede kirleticilerden biridir [3]. Ayrıca, OPC üretiminin yılda yaklaşık %3 oranında arttığı ve 1 ton OPC üretiminin yaklaşık olarak atmosfere 1 ton CO₂ saldığı tespit edilmiştir [4]. Sera gazı emisyonlarının yüksek olması nedeniyle çimento üretimi sürdürülemez olarak kabul edilmektedir. Bu nedenle, sürdürülebilir yapı malzemelerinin üretimi, inşaat endüstrisinde ve malzeme üretiminde birincil odak noktasıdır ve bu da araştırmacıları çimentonun kısmen veya tamamen yerini alabilecek alternatif tamamlayıcı çimento esaslı malzemeler geliştirmeye teşvik etmektedir.

Geopolimer malzemeler; 1980'lerin başından beri, esas olarak düşük karbondioksit emisyonları ve performans avantajları nedeniyle Sıradan Portland Çimentosu'nun (OPC) yerine kullanılabilir olarak kabul edilmektedir [5]. Geopolimer malzeme üretimi, küresel CO₂ emisyonunu azaltarak sürdürülebilir kalkınmaya pozitif anlamda katkı sağlar ve uzun vadede daha temiz bir çevre sağlamaktadır. Alüminosilikat kullanarak OPC'ye kıyasla CO₂ emisyonu %80'e kadar azaltılabileceği bildirilmiştir [6]. Geopolimer malzeme kullanımı, sürdürülebilir inşaat, daha uzun hizmet ömrü, neredeyse sıfır su tüketimi, düşük karbon emisyonu, geri dönüştürülmüş endüstriyel atık, yangına dayanıklılık, kimyasal korozyon direnci, basınç dayanımı ve yüksek mukavemet gibi sayısız faydaları nedeniyle kabul görmektedir. Ancak standart tasarım yöntemlerinin ve güvenilir verilerin eksikliği, yüksek inşaat maliyeti, yüksek büzülme ve hızlı sertleşme nedenleriyle sınırlı yapısal uygulamaya sahiptir [7].

Geopolimerler, inorganik polimer malzemeler olarak ve alkali ile aktive edilmiş malzemeler olarak da bilinirler. Geopolimerizasyon prosesi üç aşamadan meydana gelmektedir. İlk olarak yüksek oranlarda silika (SiO₂) ve alümina (Al₂O₃) içeren kaynak malzemelerin (uçucu kül, yüksek fırın cürufu, metakaolin vb.) alkali veya asidik aktivatör ortamında ekzotermik olarak çözünmesi gerçekleşmektedir. Daha sonra polikondenzasyon ortamının oluşması için reaksiyonlar gerçekleşmekte ve sonucunda kısa oligomer zincirleri meydana gelmektedir. Son olarak oligomerlerin polikondenzasyonu ile daha uzun 3 boyutlu Si-O-Al bağ yapısına sahip polimerik jel zincirlerinin meydana gelmesiyle nihai geopolimer malzeme oluşmaktadır [8].

Geopolimer malzemelerin fiziksel, kimyasal ve mekanik özellikleri, çok çeşitli endüstriyel uygulamalara yönelik cazip seçenekler sunduklarını göstermektedir. Malzemenin içerdiği Si/Al oranına göre kullanım alanlarının değiştiği, ve bu oranın 3'ün üzerinde olduğu

durumda spesifik çalışmalarda kullanılmaktadır. Geopolimer malzemeler genel olarak tüm yapı malzemesi uygulamalarında rahatlıkla kullanılmaktadır. Çimento yerine beton üretiminde, kolonlarda, kirişlerde, kaldırımlarda ve istinat duvarlarında kullanılmaktadır. Yapı malzemesinin yanı sıra atış ve yüksek sıcaklıklara dayanıklı fonksiyonel malzemelerde, katalizör üretiminde, yalıtım malzemelerinde ve kompozit yapı malzeme üretiminde kullanılmaktadır. Ayrıca tehlikeli atık yönetimi, su saflaştırma gibi çevresel uygulamalarda da rahatlıkla kullanılmaktadır [9].

Günümüzde özellikle çevre kirliliği nedeniyle fosil yakıtların kullanımının azaltılması düşüncesi ve küresel çapta savaşlar ve siyasi meselelerden dolayı doğal gaz gibi kaynaklara ulaşımın elverişsiz olması gibi durumlar gelecekte nükleer enerji kullanımının artmasına neden olması düşünülmektedir. Bu yüzden radyoaktif atıkların güvenli ve verimli bir şekilde hareketsizleştirilmesi (immobilizasyonu), gelecek yıllarda üzerinde durulması gereken bir konu olarak karşımıza çıkacaktır. Ayrıca ülkemizde Mersin il sınırları içerisinde yapım aşaması devam eden nükleer santral göz önünde alındığında, radyoaktif atıkların immobilizasyonu artık ülkemiz için daha fazla önem arz ettiği düşünülebilir.

Radyoaktif atıkların immobilizasyonu için sudaki çözünürlüğü düşük ve sağlam bir matris yapısına sahip malzemeler kullanmak gerekmektedir. Günümüzde, düşük ve orta seviyeli radyoaktif atıkların hareketsizleştirilmesinde çimentolar, polimerler, cam, vb. dahil olmak üzere birkaç çeşit malzeme kullanılmaktadır [10]. Ancak yüksek maliyet ve karmaşık hazırlama süreçleri gibi olumsuzluklar nedeniyle kullanımları sınırlıdır. Ayrıca, kullanılan çoğu malzeme gözeneklidir ve radyoaktif ortamla etkileşime girmektedir, bu nedenle atıkların çimento matrisinde tutulması tam anlamıyla ideal olarak görülmemektedir [11]. Sürdürülebilir ve çevre dostu üretim prosesine sahip geopolimer malzemelerin radyoaktif atıkların immobilizasyonunda kullanılabilirliği üzerine çalışmalar devam etmektedir.

Bu çalışmada iki tip uçucu kül (Zonguldak ve Karabük) ve yüksek fırın cürufu olmak üzere üç farklı endüstriyel atık ham madde olarak kullanılarak geopolimer malzeme üretimi amaçlanmıştır. Alkali aktivatör olarak NaOH ve KOH, bağlayıcılığı artırmak için silikat olarak Na_2SiO_3 ve K_2SiO_3 kullanılmıştır. Üretimde kimyasal kullanımını azaltarak sürdürülebilir, çevre dostu malzeme üretmek amacıyla yapı içerisine kanyaş otu (*Sorghum halepense*), mısır kabuğu ve yer fıstığı kabuğu külleri eklenmiştir. Fotokatalitik etkinin incelenmesi ve malzemenin fiziksel görünümüne etkisini belirlemek için katkı maddesi

olarak TiO_2 kullanılmıştır. Radyoaktif atıkların immobilizasyonunda kullanılabilirliğini incelemek için sezyum nitrat ($CsNO_3$) ve stronsiyum nitrat $Sr(NO_3)_2$ içeren geopolimer malzemeler elde edilmiştir.

Deneysel çalışmaların birinci kısmında ikisi uçucu kül, biri yüksek fırın cürufu olmak üzere üç farklı kaynak malzemenin her biri için $NaOH/Na_2SiO_3$, $NaOH/K_2SiO_3$, KOH/Na_2SiO_3 ve KOH/K_2SiO_3 olmak üzere dört farklı bazik aktivatör varyasyonunun etkisi incelenmiştir. Her bir aktivatör varyasyonu ile; 6-8-10 Molar olmak üzere $NaOH$ ve KOH konsantrasyonunun, 50-100-150 g olmak üzere ham madde (uçucu kül, cüruf) miktarının, 5-15-25 g olmak üzere silikat (K_2SiO_3 ve Na_2SiO_3) miktarının etkisi incelenmiştir. Deneysel sonrasında fiziksel gözlemler ve XRD, SEM ve FT-IR analizleri sonrasında Zonguldak uçucu külü kullanılan numunelerin daha iyi sonuçlar verdiği belirlenmiştir. Geopolimer malzeme üretiminde optimum karışım oranının; 150 g Zonguldak uçucu külü, 8 M KOH ve 15 g K_2SiO_3 olduğu belirlenmiştir.

Çalışmanın ikinci kısmında, ilk kısımda belirlenen en uygun karışım oranları üzerinden sürdürülebilir, çevre dostu malzeme üretmek amacıyla silikat miktarını azaltarak yerine tarımsal atıklar (mısır kabuğu, kanyaş otu ve yer fıstığı kabuğu külleri) eklenmiştir. Ayrıca ideal karışım oranları üzerinden TiO_2 kullanılarak numuneler elde edilmiştir. Elde edilen numunelerin mikro yapısal incelemeleri XRD, SEM ve FT-IR analizleri ile gerçekleştirilmiştir. Ayrıca numunelerin standartlara göre bazı özelliklerini incelemek için kütleme sıcaklığının etkisi ve kurutma kinetiği, asit ve su ortamına direncinin belirlenmesi, su emme miktarı, yoğunluk tayini ve basınç dayanımlarının belirlenmesi gibi fiziksel testler gerçekleştirilmiştir.

Üçüncü ve son kısımda, elde edilen geopolimer malzemenin radyoaktif atıkların immobilizasyonunda kullanılabilirliğini incelemek için Sezyum nitrat ($CsNO_3$) ve Stronsiyum nitrat ($Sr(NO_3)_2$) içeren numuneler sentezlenmiştir. Kapsülleme matrisi yöntemine göre bu numuneler belirli sürelerde saf su ortamında tutularak yapı içerisindeki Cs ve Sr nin su ortamına geçme durumları SEM-EDX ve XRF analizleri ile incelenmiştir. Sonuçlara göre elde edilen geopolimer malzemeler radyonüklitleri yapı içerisinde %90 'a varan seviyelerde tutma başarısı göstermiştir. Bir başka toksik madde olan ve tekstil atık sularında bulunabilen metilen mavisi boyar maddesinin adsorpsiyon yöntemiyle gideriminde elde edilen malzemelerden bazıları kullanılmıştır. Yaklaşık %85 seviyelerinde boyar madde giderimi sağladığı belirlenmiştir. Ayrıca adsorpsiyon kinetiğinin belirlenmesi

için deneysel sonuçlar dört farklı kinetik modele uygulanmış ve yalancı ikinci mertebe ve Avrami modellerine uyduğu belirlenmiştir.

Çalışmada elde edilen sonuçlar doğrultusunda; üretiminde mümkün olduğunca az kimyasal kullanılan, ham madde olarak endüstriyel ve tarımsal olmak üzere atıklar kullanılarak hem çevre dostu hem de düşük maliyetli, toksik maddelerin giderimi ve radyoaktif atıkların immobilizasyonu gibi potansiyel uygulamalara sahip, sürdürülebilir fonksiyonel bir malzemenin varlığından söz edebilmek mümkün olmaktadır.



2. KAVRAMSAL ÇERÇEVE

2.1 Geopolimer

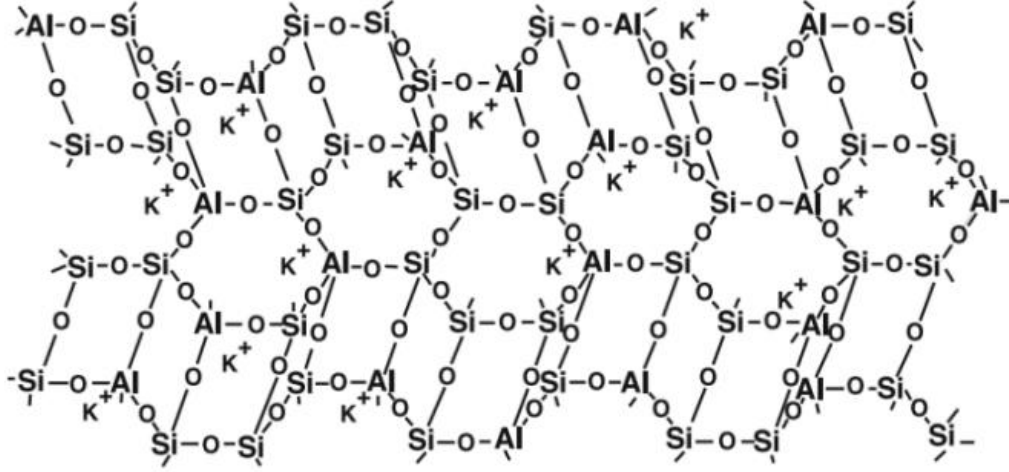
Geopolimer terimi, her ikisi de yer kabuğunda yüksek oranda bulunan alüminyum (Al) ve silisyum (Si) içeriğine atıfta bulunarak Yunanca "yeryüzü" anlamına gelen "geo" ön ekini almıştır. "Polimer" ifadesi, basit molekülü Al ve Si gibi monomerlerin kimyasal bağlar ile bir araya gelmesi ile oluşan yüksek molekül ağırlıklı maddeler olarak ifade edilebilir [12].

Geopolimerler, bir alkali veya asidik reaktifin bir alüminosilikat kaynağıyla reaksiyona girmesiyle oluşturulur. Bu işlem, oda sıcaklığında veya çok yüksek olmayan sıcaklıklarda (örneğin, 70 °C) gerçekleşebilir. Alüminosilikat içeren ham maddeler (uçucu kül, metakaolin, kalsine kil vb.) alkali hidroksitler, silikatlar, alüminatlar, karbonatlar ve/veya sülfatları içeren bir aktivatör ile reaksiyona girerek geopolimer malzemeler üretilmektedir [13].

Geopolimerler, alüminatlar ve silikatlardan oluşan üç boyutlu (3D) bir tetrahedral yapıya sahip oldukları için, zeolitik yapı malzeme olarak adlandırılırlar. Ancak, zeolitlerin düzenli bir kristal yapıya sahip olmaları ve geopolimerlerin amorf bir yapıya sahip olmaları bakımından bu iki madde farklılık göstermektedir. Ek olarak, kristal yapının oluşumunu sağlamak ve zeolitleri oluşturmak için (sırasıyla 100°C'nin üzerinde ve yaklaşık 200 kPa) daha yüksek basınçlar ve sıcaklıklar gereklidir. Geopolimerizasyonda böyle yüksek basınç ve sıcaklık söz konusu değildir. Geopolimerlerin reaksiyon süreci, kristalleşme aşamasının sağlanamadığı bir zeolitleşme olarak değerlendirilebilir [14].

Joseph Davidovits çalışmalarında organik polimerlerin kimyasına odaklanmıştır. Fransa'da 1970 ve 1972 yılları arasında içlerinde organik plastik malzemelerin bulunduğu birkaç yangın felaketinden sonra, yanıcı plastik malzemelerin incelenmesi çok önemli hale gelmişti. Davidovits 1972'de, daha sonra "Cordi-Géopolymère" olarak yeniden adlandırılan özel bir araştırma şirketi "Cordi S.A." kurmuştur [15]. Davidovits, zeolitler gibi alkali ortamlardaki bazı organik plastiklerin sentezini basit hidrotermal koşullar altında incelenmesi üzerine çalışmalar yapmıştır. Zeolitlerin ve moleküler eleklerin (esas

olarak toz formunda) sentezini kapsayan çalışmalara bakılacak olursa jeokimya bilimi sadece mineral bağlayıcılar ve mineral polimerler üretmek için araştırılmadığı düşünülebilir. Davidovits, 1988'de geopolimer olarak ilan ettiği amorf ve yarı kristal yapılar arasında bir üç boyutlu alüminosilikat malzeme geliştirmeye başladığı bilinmektedir [15]. Davidovits'in geopolimer modeli Şekil 2.1 ile gösterilmektedir.



Şekil 2.1 : Davidovits modeline göre geopolimerlerin yapısı [15].

2.1.1 Geopolimerlerin kompozisyonu ve sentezi

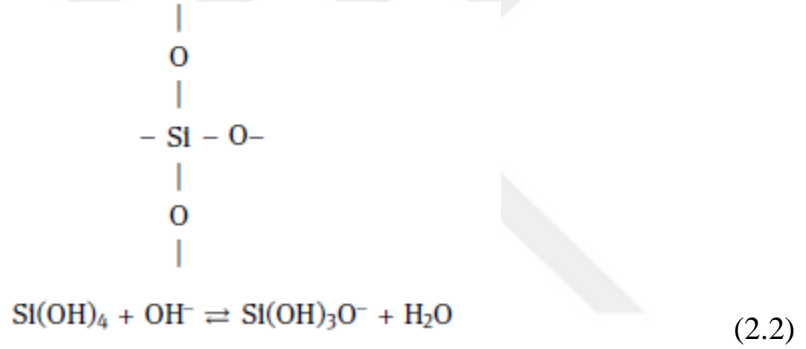
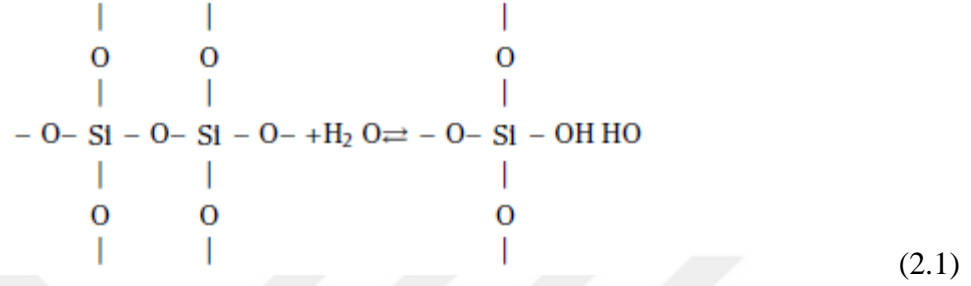
2.1.1.1 Kompozisyon

Bir geopolimer, her biri dört (veya daha az) köşesinden oksijen atomlarının bağlanmasıyla başka bir tetrahedrale bağlanan ve bir üç boyutlu yapı oluşturan AlO_4 ve SiO_4 tetrahedrallerden oluşturulur. Geopolimerin yapısı çoğunlukla amorfudur, ancak bir miktar zeolitik yapıdan dolayı kristal faza da sahip olabilirler. Geopolimerin amorf bileşenine, geopolimerizasyon ürünününün ($Na_2O-Al_2O_3-SiO_2-H_2O$) nihai bileşimi nedeniyle N-A-S-H jeli adı verilmektedir [16].

Geopolimerler, kuru bir katı maddenin (alüminosilikat) alkali veya asidik bir çözelti ve diğer reaktiflerle karıştırılmasıyla elde edilen inorganik polimerik malzemelerdir. Geopolimer malzemelerde en önemli bileşen, Si ve Al bakımından zengin olması gereken (ham madde) kaynak malzemelerdir.

Geopolimerin katılaşmasının gerçekleşmesi için kaynak malzemenin yüksek oranda alüminyum (Al) içermesi gerekmektedir. Yüksek konsantrasyonlarda alkali silikat içeren

karışımlar genellikle metastabildir. Bunun nedeni, silika tetrahedranın, bir dengeye ulaşana ve Si(OH)_4 oluşturana kadar komşu bir silanol çifti (Si-OH) üreten su ile tepkimeye girmesidir [17]. Ancak alkali bir ortamda olduğu için, eşitlik (2.1) ve (2.2) deki reaksiyonlar meydana gelir, bu da kalan oksijen bağlarının zayıflamasına ve ortamda silikat tamamen bitene kadar su ile tepkimeye devam etmesine neden olur. Bu nedenle, tek başına çözünebilir silisyum, kimyasal olarak sert bir malzeme üretmek için yeterli değildir.



Alüminat ve silikat tetrahedranın bağlanması nedeniyle silisyum–oksijen–silisyum bağları ve silisyum–oksijen–alüminyum bağları oluşur. Öte yandan, enerjisel olarak kararlı olmadıkları için, alüminyum–oksijen–alüminyum bağları oluşmaz, bu da Si/Al oranının minimum 1 değerine ulaşabileceği anlamına gelir. Öte yandan, silisyum çözünmesinin gerçekleşmemesi için ortamda alüminyum miktarı yeterli düzeyde olmalıdır [18].

Aktive edici çözeltinin neden olduğu, pH değerlerini yükselten alkalinite nedeniyle, hammaddede bulunan alüminosilikatların çözünmesi meydana gelir. Daha sonra, moleküler organizasyon sırasında, Si tetrahedra Al tetrahedra ile değiştirilebilir, bu da Al tetrahedranın negatif yükle yüklenmesine neden olur. Bu negatif yük, alkali katyonların pozitif yüküyle karşı karşıya kalır, böylece aktive edici çözeltiden gelen bu katyonlar toplam yapının bir parçası haline gelir [19].

Geçmiş çalışmalar baz alınarak N-A-S-H jelinde bulunan elementlerle ilgili olarak aşağıdaki bilgileri verilebilir;

- Si esas olarak zeolitik çekirdeklere dayanan jellere katılır. Bu jelin erken evrelerde oluşumunun kontrolünde ve kinetiğinde, özellikle kullanılacak alkali aktivatör sodyum silikat ise, polimerizasyonun ilk aşamalarında çözülmeye uğradığı için temel bir role sahiptir. Bu silikatın bileşiminde çok sayıda dimer varsa, jel oluşumu daha hızlı olacaktır, ancak aynı zamanda daha yarı kararlı olduğu anlamına da gelecektir, bu nedenle Si/Al oranı sonsuza kadar artırılamaz [20].
- Al, kimyasal reaksiyonların başlangıcında aktif bir role sahiptir, eğer kaynak çok miktarda alümina içeriyorsa, çözeltiye büyük miktarlarda Al salınır, bu da kaynağın reaktivitesini artırır, aksi takdirde salınan Al içeriği çabuk tüketilir ve kaynağın reaktivitesini azaltır. Kaynaktaki Al içeriğinin bunun en az %20'sine karşılık gelmesi gerektiği tahmin edilmektedir. Fazla Al, kristal ürünlerin reaksiyonuna yol açabilir. Çözünmüş Al, daha iyi stabilite sağlayan Si bakımından zengin jelin yapısına girer.
- Sodyum, jel içinde bulunan Al monomerlerini dengelemek için bir yük dengeleyici olarak rol oynar, bu da jele daha fazla stabilite verir ya da çözeltide düşük Si/Al oranlarında mevcut olan Al'ın gözeneklerini zeolitik ürün karışımlarıyla doldurur. Na⁺ iyonu tüm sistemlerde aynı olma eğilimindedir ve oksijen ile su moleküllerini bağlar [20].

Alüminosilikat kaynaklarını aktive ederken, Al türleri dönüşümlere uğrar, çoğunluğu Al_(IV) veya Al(OH)₄'e dönüşür; bu nedenle, eğer hala Al_(VI) (veya Al(OH)₆) varsa, reaksiyona girmeyen alüminosilikat miktarı hakkında bir fikir sahibi olunabilir.

Yüksek su içeriği, karışımdaki türlerin iyon çiftleri arasında küçük etkileşimlerle tamamen hidrate olmasını sağlar. Silikat ve alüminat türleri, karışımın konsantrasyonuna ve Si/Al oranına bağlı olmasına rağmen, ortamın yüksek seviyede su ihtiva etmesi, bu türlerin taşınmasını ve jel içinde yeniden yapı oluşturmasını pozitif olarak etkilemektedir. Bu koşullar altında jel parçacıklarının büyümesi hızlı bir şekilde gerçekleşmektedir [21].

2.1.1.2 Sentez

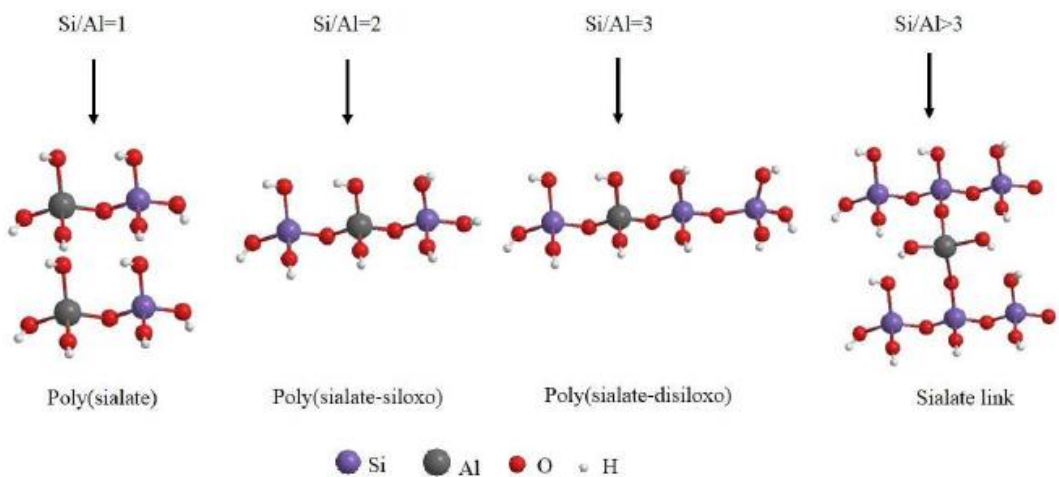
Bileşenlerin karıştırılmasından sertleştirilmiş geopolimer malzeme elde edinceye kadar meydana gelen sentez mekanizmaları aslında çok karmaşıktır. Geçmiş çalışmalara bakıldığında; zeolit sentezine benzer şekilde reaktan alüminosilikattan bir Si ve Al monomerleri çözeltisi ile başlayan zeolitleşme olayını daha sonra alüminosilikat jelin çıktığı ve zeolitin kristalleşmesiyle sona eren silikat ve alüminat iyonlarının yoğunlaşması olayı takip etmektedir [22]. Geopolimerizasyon malzeme üretimi ise, zeolitin kristalleşme aşaması dışında, zeolitleşme olayına büyük oranda benzerlik gösterdiği görülmektedir. Geopolimer malzeme üretiminde ise kristalizasyon sürecini esas olarak sistemlerin düşük su içeriğine ve yüksek alkaliniteye sahip olması büyük oranda etkilediği düşünülmektedir [23].

Davidovits [24], aşağıdaki ampirik formüle dayanarak yapının polisialatlar yoluyla bağlantılarını tanımlamak için bir formülasyon önermiştir;



Burada p, polikondenzasyon derecesidir; z, 1, 2 ve 3 değerleri arasındadır; x, içerdiği su miktarını ifade etmektedir ve M, alkali iyonuna karşılık gelmektedir.

Geopolimer yapısı Si/Al oranlarına bağlı olarak üç temel forma ayrılabilir. Bu üç temel yapı poli (sialat), poli (sialat-silokso) and poli (sialat-disilokso) şeklinde tanımlanabilir ve Şekil 2.2 ile gösterilmektedir.



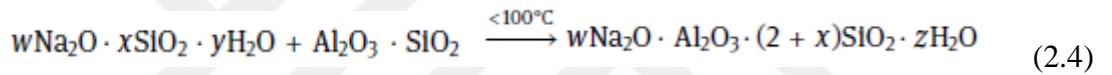
Şekil 2.2 : Si/Al oranlarına göre değişen poli-sialatların moleküler yapısı [25].

Farklı Si/Al molar oranına bağlı olarak, alüminosilikat oligomerlerinde farklı alüminosilikat zincirleri oluşur ve bunlar daha sonra geopolimerleri oluşturur. Geopolimer genel olarak sentetik bir inorganik polimerdir ve alkali koşullar altında kimyasal reaksiyon sırasında üç boyutlu bir polimerik zincir yapısı geliştirilir. Hammaddelerin bileşimi ve alkali çözeltilerin doğası ve konsantrasyonları, geopolimerlerin mikro yapılarını ve mekanik özelliklerini kontrol eder [26].

Alüminosilikat kaynağından gelen monomere dayalı olarak geopolimer yapılarının nasıl oluştuğuna açıklık getirmesine rağmen, genel yapının iki boyutlu olduğu ve geopolimer yapısının üç boyutlu olduğu varsayılır [26].

Daha sonra, camlar, jeller, zeolitler ve mineraller dahil olmak üzere alüminosilikat sistemlerinin üç boyutlu yapısını karakterize etmek için daha uygun bir açıklama ortaya çıkarılmıştır [27].

Polimerizasyon şematik olarak aşağıdaki gibi gösterilebilir;



Glukhovsky [27] üç aşamadan oluşan bir polimerizasyon modeli önermiştir;

- 1) çözünme-koagülasyon,
- 2) koagülasyon-yoğunlaşma
- 3) yoğunlaşma-kristalleşme

Bu model günümüzde kabul gören modeller arasında yer almaktadır.

Birinci kısım: çözünme-koagülasyon

Bir alkali hidroksitin (NaOH ve KOH gibi) su ortamında çözünme tepkimesi ekzotermiktir. Reaksiyon sonucunda su ortamında metal katyonları (Na ve K gibi) ve hidroksil anyonları (OH⁻) bulunmaktadır. Bu çözelti üzerine alüminosilikat kaynağı eklendiği zaman hammaddedeki alüminosilikatların bağlarını kopararak çözünmesine neden olmaktadır. Çözünme esnasında ≡Si-O—Na⁺ bağlarının meydana gelir. Bu durum Si-O-Si bağlarının yeniden oluşmasını engellemektedir. Bahsedilen bu alkali silikat bağları, iyonların ve ≡Si-O—Ca—OH gibi kompleks türlerin değişimine katkıda bulunabilir. Al-O-Si bağları ile aynı tip reaksiyon meydana gelir ve ağırlıklı olarak Al(OH)₄ tipinde kompleksler oluşmaktadır. Yapıda meydana gelen —Si-O—Na⁺ kompleksleri alkali ortamda kararlıdır, bu nedenle bir

taşıma rolü oynarlar ve yukarıda belirtilen birimlere dayalı olarak koagülatif bir yapının meydana gelmesine olanak sağlarlar [27].

Geopolimerizasyon olayının gerçekleşme ihtimalinde çözünme reaksiyonlarının gerçekleşme süresi çok önemlidir. Çünkü bu olay arkasından gelen reaksiyonların meydana gelme süresini etkilemektedir. Bunun sonucunda ise eğer reaksiyon hızlı ise, bunun sonucunda hızlı çözünme, kısa priz süresi ve bazı durumlarda daha yüksek basınç dayanımı sağladığı belirlenmiştir [28]. Reaksiyon derecesinin yüksek olması, ürünlerin meydana gelmesi için daha fazla Si ve Al kullanılması anlamına gelir. Bu durum daha sık (rigit) hücre yapısına sahip malzeme üretimine olanak sağlayacaktır.

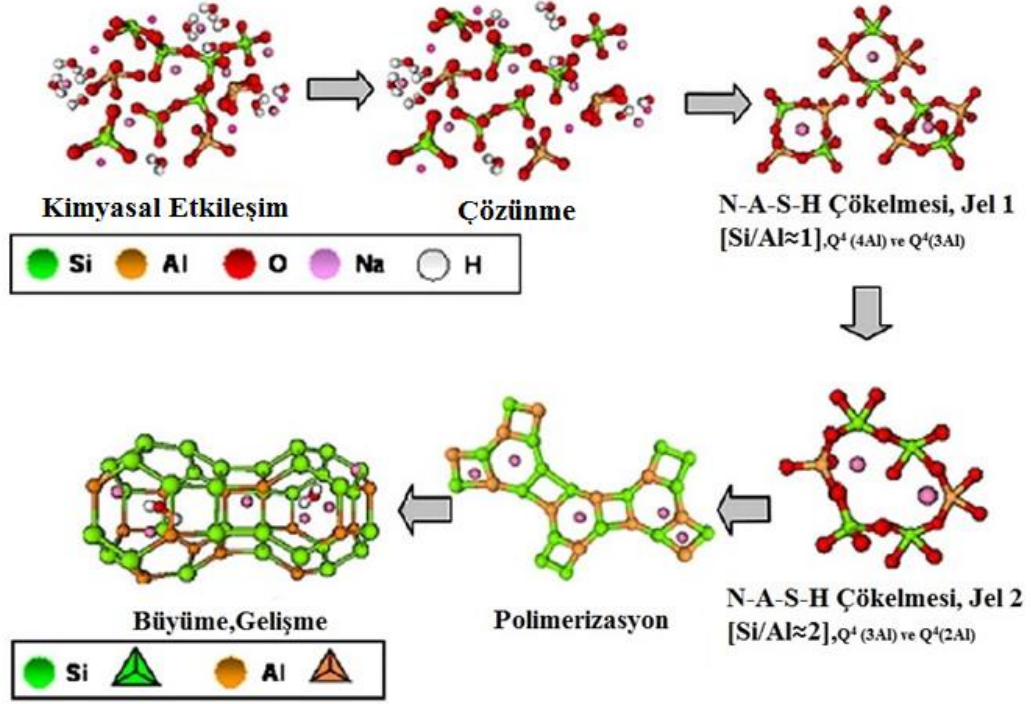
Alüminosilikat kaynaklarının partikül boyutu ve yüzey alanı, kristal yada amorf olma durumu çözünmeyi etkilemektedir. Ayrıca varsa uygulanan ön işlemin sonunda numunenin nem ihtiva etmesi durumu, sıcaklık, basınç, çözelti pH'sı ve karıştırma süresi çözünme reaksiyonlarını önemli derecede etkilemektedir [29].

İkinci kısım: koagülasyon-yoğunlaşma

Bu kısım koagülasyon ve yoğunlaşmaya bağlı olarak literatürde jelleşme olarak da ifade edilmektedir. Geopolimerizasyon süreci Şekil 2.3 ile gösterilmektedir.

Çözünürlük, belirli bir maddenin bir çözücü içinde çözünme yeteneğidir. Çözünen, verilen çözücü içinde artık çözünemediğinde bir çözelti doymuş olarak kabul edilir. Çok yüksek pH ve/veya daha yüksek sıcaklık gibi belirli koşullar altında, çözücü içinde daha fazla madde çözünebilir. Buna aşırı doymuluk denir ve geopolimerizasyon, yoğunlaşma meydana gelmeden önce aşırı doymuş bir Si ve Al monomer çözeltisine ihtiyaç duymaktadır [27].

İki veya daha fazla OH⁻ iyonu bir oksijen bağı oluşturmak üzere bir araya geldiğinde yoğunlaşma meydana gelir ve böylece bir molekül su açığa çıkmaktadır. Bu işlem sırasında açığa çıkan su, polimerizasyon işlemi için reaksiyon ortamı görevi görür. Polimerizasyonu tanımlayacak olursak, 'iki veya daha fazla monomerin tekrar eden yapısal birimler veya polimerler içeren daha büyük bir molekül oluşturmak üzere birleştiği kimyasal reaksiyonlardır' şeklinde ifade edilebilir. Bununla birlikte, geopolimerizasyon işleminde iki monomer birleştiğinde, yoğunlaşma da meydana gelmektedir bu nedenle bu işleme teknik olarak polikondenzasyon denir. İki monomerin polikondenzasyonu bir dimer oluşturur. Polikondenzasyon yüksek pH ortamında daha hızlı gerçekleşmektedir [30].



Şekil 2.3 : Geopolimerizasyon süreci [31].

Üçüncü kısım: yoğunlaşma-kristalizasyon

Çökeltme, bir maddenin sulu bir çözeltiden katı bir forma dönüşme sürecidir. Daha küçük monomerler daha büyük moleküller oluşturmak üzere birleşmeye başladığında, bir jel formunda çöktükleri belirlenmiştir. Bu jellerin oluşumunda meydana gelen moleküler yapı belirlenebilir. Al-O bağları Si-O bağlarından daha zayıf olduğu için, çözeltide başlangıçta jeli oluşturmaya yardımcı olan daha fazla Al monomeri olmaktadır. Tetrahedral $[Al(OH)_4]^-$ monomer negatif yüklü olduğu için, alkali katyonlar molekülü dengelemeye yardımcı olmak için zayıf bir şekilde bağlanma eğilimindedir. Bu, matris içinde tetrahedral olarak bağlanan her Al monomeri için teorik olarak eşleşen bir alkali metal katyonu olması gerektiği anlamına gelir. Dolayısıyla bu durumda M^+/Al 'nin molar oranının bir olması gerektiği sonucuna ulaşılabacaktır, burada M^+ olarak ifade edilen kısaltma, genellikle kullanılan NaOH ve KOH alkali aktivatörlerden gelen Na^+ veya K^+ iyonlarıdır. Si-O-Si bağları, Si-O-Al bağlarından termodinamik olarak daha karardır, bu nedenle Si-O bağları kırıldıkça ve çözeltiliye daha fazla silisyum girdikçe jel daha kararlı bir yapıya dönüşmektedir [27]. Ayrıca silisyum bakımından daha zengin jele dönüşmektedir. Geçmiş çalışmalarda, Si/Al arttıkça jellerin mekanik özelliklerini iyileştirdiği belirlenmiştir [32].

Çökme olayında meydana gelen jel formundaki yapının özel adı N-A-S-H jeli olarak adlandırılmaktadır. Literatürde yeniden düzenleme (reorganizasyon) işlemi olarak bilinen olayla N-A-S-H jelin nihai bileşimi ve bağlayıcı mikro yapısını belirlenmiş olmaktadır. Reorganizasyonda sistemin zamanla değişimine bağlı olarak, bağlarda yeniden sıralama ve yeniden düzenleme gerçekleşmektedir. Ayrıca moleküler yapıda dallanma ve ağ oranı her aşamada artmaktadır. Jelin moleküler yapısı yoğunlaşma devam ettikçe jeldeki sıvı dağılmaya başlar ve çözünme sırasında başlangıçta tüketilen su açığa çıkarak ortama salınmaktadır. Suyun bu şekilde dışarı atılması sonucunda alüminosilikat matrisinin sertleşmesi gözlemlenmektedir [32].

2.1.2 Geopolimer üretiminde kullanılan ham maddeler

Geopolimer malzeme üretiminde doğal maddeler ve atık ürünler olmak üzere iki ana kategoride ham maddeler kullanılmaktadır. Bir maddenin geopolimer üretiminde kullanılabilmesi için özellikle silika ve alümina açısından zengin olması gerekmektedir. Ayrıca amorf yapıda olmalı ve içerdiği alüminayı kolayca serbest bırakma yeteneğine sahip olması gerekmektedir.

2.1.2.1 Doğal malzemeler

Kil ve kil mineralleri

Kil doğada yaygın olarak bulunabilen doğal mineral kaynağıdır. Çok küçük partiküllere (<2 mm) sahip bir alüminosilikat tuzudur. Yumuşak yapıda kolayca dövülerek daha küçük parçalara ayrılabilen toprağımsı bir kayadır [33]. Bileşim özellikleri nedeniyle, geopolimerlerin hazırlanmasında ham madde olarak kullanılmıştır ve yaygın olarak kullanılan kil mineralleri arasında kaolin ve zeolit bulunmaktadır.

Dolomit olarak da bilinen kaolin iyi derecede plastisite ve yangın direncine sahip olup, beyaz renkli ince ve yumuşak bir kildir. Metakaolin (MK), kaolinin uygun bir sıcaklıkta (600-900 °C) dehidrasyonu ile oluşturulan susuz bir alüminyum silikattir. Geopolimerlerin hazırlanmasında büyük oranda kullanılan metakaolin, kimyasal bağları kuvvetlendirerek yüksek basınç dayanımı sağladığı ve termal direnci arttırdığı belirlenmiştir [34].

Zeolit; adsorban olarak kullanım, iyon değişimi, katalizör olarak kullanım, asit direnci ve termal direnç vb. özelliklere sahip, alkali metal veya alkali toprak metal içeren bir tür alüminosilikat mineralidir. Yüksek oranda silisyum ve alüminyum içermektedir. Doğal

zeolitlerin alkali ortamda reaksiyonları sonucu oluşan geopolimerlerin genellikle yüksek mekanik mukavemete sahip olduğu belirlenmiştir [35].

Laterit toprak

Laterit, alüminosilikatlar, demir ve alüminyum açısından zengin bir mineraldir. Laterit toprak kırmızımsı kahverengidir ve korozyona karşı güçlü direnci nedeniyle uzun süredir geleneksel tuğla, yol ve bina üretiminde kullanılmaktadır [36]. Son zamanlarda, yüksek mekanik mukavemete sahip lateritik bazlı geopolimer üretimine bir eğilim söz konusudur.

Lateritin kimyasal bileşimi, Na-poli (sialat-silokso) tipi geopolimer için hammadde olarak kullanılan mükemmel molar oksidasyon oranına $SiO_2/(Al_2O_3+Fe_2O_3)$ sahiptir. Silikanın alüminaya molar oranı, laterit geopolimerin mikro yapısını ve mekanik özelliklerini önemli ölçüde etkilemektedir [36].

Diğer doğal mineraller

Geopolimer ham madde olarak bentonit, mullit, halloysit, diatomit, boksit vb. mineraller kullanılmaktadır. Bu minerallerde alüminosilikat mineral sınıfındadır. Ancak bazı doğal minerallerin düşük amorf içeriği nedeniyle kimyasal aktiflikleri yetersiz kalmaktadır. Bu yüzden bu minerallerin yüksek sıcaklıkta ön işlem ve mekanik aktivasyon gibi işlemlerden geçmesi gerekmektedir.

2.1.2.2 Atık (Yan) ürünler

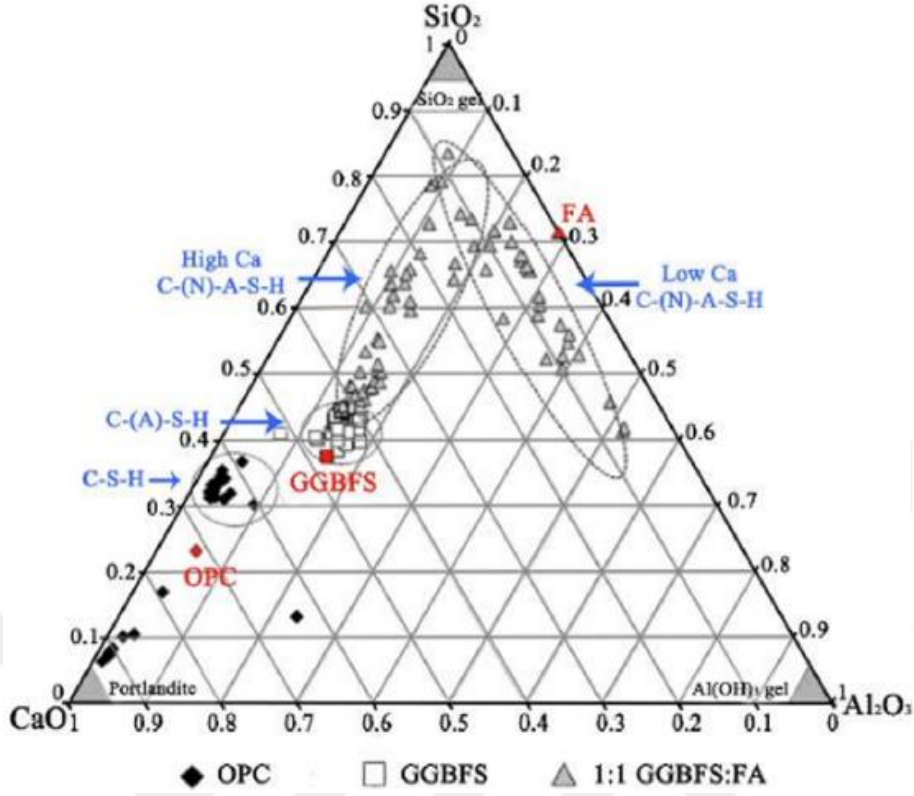
Uçucu kül

Uçucu kül, elektrik santrallerinde kömür yanmasından elde edilen bir atıktır. Yakılan kömürün bileşimi atık olarak elde edilen uçucu külün bileşimini tamamen etkilemektedir. ASTM C 618 standardında [37] belirtildiği gibi, bünyesinde ihtiva eden kalsiyum miktarına göre uçucu kül için iki tip sınıflandırma vardır. Bunlar düşük kalsiyum içeriğine sahip F tipi uçucu kül ve yüksek kalsiyumlu C tipi uçucu küldür. Özellikle geopolimer üretiminde F tipi uçucu kül kullanılmaktadır.

Kömür yakma işlemi ve yanma gazının soğuma hızı, uçucu külden faz oluşumunu doğrudan etkilemektedir. Küller esas olarak reaktif faz olarak kabul edilen alüminosilikat camların amorf fazından oluşmaktadır. Bununla birlikte, erimiş kirletici minerallerin bazıları soğutma sırasında kristalleşir veya ayrılır, bu durum demir ve kalsiyum açısından zengin fazlara ek olarak az miktarda kuvars ve mullit yapıların oluşmasına neden olmaktadır [38].

Uçucu kül, bileşimine ve yapısına göre tam homojen bir malzeme değildir. Çünkü her bir uçucu kül parçacığı farklı bir kimyasal bileşime sahiptir. Bu durum toplam uçucu küle bakıldığında farklı fazların oluşumuna sebep olmaktadır. Son olarak, her elektrik santralinde farklı bileşimlerde uçucu kül üretilmektedir. Ayrıca aynı santralde bile doğal karbonun düşük homojenliği nedeniyle farklı bileşimlerde uçucu kül üretilebilir. Bileşimindeki bu karmaşıklık nedeniyle, uçucu kül geopolimer tasarımı için kullanıldığında her zaman aynı sonuçları vermeyebilir. Bu yüzden her F sınıfı uçucu kül geopolimer üretiminde iyi bir ham madde olamayabilir [39]. Şekil 2.4 ile kullanılan ham maddelerin özellikleri gösterilmektedir. İçeriğindeki alüminosilikat oranı yüksek olan uçucu küllerin daha iyi sonuçlar verdiği geçmiş çalışmalardan belirlenmiştir. Ayrıca bu atıkların yeniden kullanılmasının getirdiği olumlu çevresel ve ekonomik etki nedeniyle geopolimer üretiminde değerlendirilmesi büyük faydalar sağlamaktadır.

Uçucu kül kullanımı 20. yüzyılın başlarına kadar uzanmaktadır ve günümüzde genellikle çimento veya betonun birincil bileşeni olarak eklenmektedir. Geopolimer üretimi vasıtasıyla çimento yerine uçucu kül kullanmak, sera gazı emisyonlarını düşürdüğü ve inşaat maliyetlerini azalttığı için oldukça faydalıdır. Uçucu kül düşük fiyat, kolay bulunabilirlik, uygun moleküler yapı, yüksek aktiviteli alüminat ve amorf silikat vb. özellikleriyle birçok avantajlara sahiptir [39]. Yüksek mukavemetli geopolimerler, bir alkali aktivatör çözeltisiyle kolaylıkla üretilebilir.



Şekil 2.4 : Geopolimer üretiminde yaygın kullanılan ham maddelerin ve Portland çimentosunun yaklaşık Al-Si-Ca içerikleri [39].

Yüksek fırın cürufu

Yüksek fırın cürufu (GGBFS), demir cevheri (Fe_2O_3 , Fe_3O_4 , vb), kalsiyum karbonat ($CaCO_3$) ve kok kömürünün yaklaşık $1500\text{ }^\circ C$ belirli bir sıcaklıkta ısıtıldığı yüksek fırında demir ve çeliğin üretimi sırasında elde edilen bir yan üründür. Bu malzemeler yüksek fırında yumuşarken sonuçta erimiş demir ve erimiş cüruf oluşmaktadır. Daha hafif olan erimiş cüruf, erimiş demirin üzerinde yüzer, granüler parçacıklar elde etmek için yüksek gerilimli su jeti ile hızla soğutulmaktadır. Bu parçacıklar daha sonra kurutulur ve literatürde GGBFS olarak bilinen yüksek fırın cürufu elde etmek için ince toz halinde öğütülmektedir [40].

GGBFS harmanlanmış harç, çimento ve beton üretiminde etkin bir şekilde kullanılan ünlü bir yapı malzemesidir. GGBFS, Portland çimentosu (OPC) içeriğini %35-70 oranları arasında karşılayabilmektedir, yani tamamen çimento yerine kullanılamamaktadır. Ayrıca geopolimer (GPC) bağlayıcı üretiminde kullanılmaktadır. Uçucu külün aksine tek başına kullanımı tam anlamıyla istenilen sonuçları verememektedir. Yüksek fırın cürufunda

bulunan cam partikülleri, OPC klinkerinde kullanılanlarla aynı yapıda olan mono-silikatlar içermektedir. GGBFS, yapıdaki boşlukları gidermek ve hidrasyon işlemi sırasında geçirgenlik, mukavemet ve ısı oluşumuna karşı direnci arttırmak için kullanılabilir. Ayrıca su ihtiyacını azaltarak sülfat ve alkali-silika reaksiyonunun beton üzerindeki direncini artırma eğilimindedir [41]. Tüm bu faydaları göz önüne alındığında, GPC üretimi için önemli bir ham madde olarak kullanılmaktadır.

Kırmızı çamur

Kırmızı çamur (RM), endüstriyel alüminyum inceltmesinde kullanılan Bayer prosesinin bir yan ürünüdür. RM, yüksek miktarda alümina (Al_2O_3) içermektedir ve toksik endüstriyel atık olarak sınıflandırılır. Bayer prosesi, yüksek sıcaklık ve yüksek basınç koşulları altında boksitin çözünebilen kısmını sodyum hidroksit kullanılarak çözülmesidir. Bu işlemde kullanılan az miktarda sodyum hidroksit RM'de kalır ve pH'nın artmasına neden olur. Bu yüzden RM'yi çamur şeklinde kullanmak, çamurun kurutulması için gereken zamandan ve enerjiden tasarruf sağlar. Ayrıca RM'nin yüksek alkalinitesinden yararlanarak toplam alkali aktivatör miktarını azaltır, böylece geopolimer üretim maliyetini daha da düşürür [42].

RM, toksik doğası nedeniyle çevre sorunlarına neden olacak potansiyele sahiptir. Uygun şekilde atılmazsa doğaya zararlı etkiler yaratabilir. 50 yılı aşkın süredir ekonomik bir alternatif olarak çevre dostu bir RM uygulaması gerçekleştirilmektedir. Çimento sanayindeki uygulaması arttırılmış olup, çimentoda kullanımını %5 ile %20 arasında kullanıldığında basınç dayanımını ve priz süresini arttırmaktadır. Aksine, numune %20'den fazla RM içeriyorsa, GPC'nin özellikleri üzerinde olumsuz etkiler yaratmaktadır. Kısmi çimento ikamesi olarak GPC'ye küçük RM ilavesi, RM içeren GPC'lerin Young modülü, basınç dayanımı ve kırılma gerilimi üzerinde olumlu bir etki sağlamaktadır. RM'nin eklenmesi, GPC'ye daha reaktif Si molekülleri sayısının artmasını sağlamaktadır, bu da geopolimerizasyon reaksiyonunu kolaylaştırmak için pozitif bir etkiye neden olur [43].

Diğer ham maddeler

Yukarda bahsi geçen maddeler geopolimer üretiminde sıklıkla kullanılmaktadır. Bunların dışında GPC üretimi için kullanımı daha az yaygın olan biyokütle külleri özellikle pirinç kabağı külü ve şeker pancarı küspesiyle yapılan bazı çalışmalar mevcuttur [44]. Ayrıca yaygın kullanılan diğer malzemeler çelik cürufu, silis dumanı, volkanik kül, atık cam, kömür gangi, magnezyum ve nikel cürufu gibi alüminosilikat türevleri kullanılmıştır [45].

Özetle, geopolimer bağlayıcı elde etmek için kullanılacak ham maddeler silisyum, alüminyum, oksijen ve diğer potansiyel elementleri içeren alüminosilikat kategorisinin doğal bir minerali olabilir. Uygun ham maddeler, amorf özelliklere ve alüminyumu kolayca serbest bırakma yeteneğine sahip olmalıdır. Bu tarımsal ve endüstriyel atıklar yada ürünler, sürdürülebilir inşaat için geopolimerlerde alüminosilikat kaynağı olarak tek tek veya kombinasyonlar halinde kullanılabilir.

2.1.3 Geopolimer üretiminde kullanılan aktivatörler

Geopolimer bağlayıcı üretiminde aktivatörler büyük önem taşımaktadır. Aktivatör tercihi zaman zaman seçilen ham maddeye göre belirlenmektedir. Aktivatörler asit ve alkali olmak üzere iki ana kategoride sınıflandırılabilir.

2.1.3.1 Alkali aktivatörler

Günümüze kadar olan süreçte çok sayıda çalışmaya bakılacak olursa, geopolimer malzemelerin genellikle alkali aktivatörler tarafından aktive edildiği görülmektedir. Alkali aktivatörler hem sıvı hem de katı fazda maddeler içerebilir. Bununla birlikte, yüksek derecede aşındırıcı alkaliler, aktivatör olarak nadiren kullanılır ve onların yerine kademeli olarak farklı katı aktivatörler kullanılmaktadır.

Örneğin sodyum hidroksit (NaOH) ve potasyum hidroksit (KOH) akıllara gelen ilk alkali aktivatörlerdir. Bunlara yardımcı olarak sodyum silikat ve potasyum silikatlar yaygın olarak kullanılmaktadır. Önceki çalışmalar, uçucu kül kullanılarak üretilen geopolimer malzemeler için sodyum bazlı alkali aktivatörlerin aktivasyon verimliliğinin potasyum bazlı aktivatörlerden daha yüksek olduğunu göstermiştir [46]. Ancak başka bir çalışma, geopolimer sistemlerde potasyum bileşiklerinin kullanımının [47] NaOH'den daha yüksek alkalinite gösterdiğini belirlemiştir. Bu durumda aktivatör cinsinin hangisinin daha etkili olduğunu diğer hammaddelerin içerdiği bileşenler doğrudan etkilemektedir. Bu ve bunun gibi durumlar geopolimer üretimini için kesin cümleler kurmamıza engel olmaktadır.

Araştırmacılar, alkali aktivatör olarak lityum hidroksit çözeltisinin de kullanılabilceğini ifade etmişlerdir. Lityum, aktif silikanın çözünmesini ve çözünmüş aktif silikanın şişme yapma olasılığını azaltmak için geopolimer parçacıkları ile kaplanabilir. Lityum hidroksite ek olarak kalsiyum oksit, sodyum alüminat, kalsiyum alüminat ve lityum karbonat gibi çeşitli aktivatörlerin karıştırılarak uygulanması geçmiş çalışmalarda mevcuttur [48].

Aktivatörlerin ham maddelerin özelliklerine göre seçilmesi çok önemlidir. Örneğin sodyum alüminat (NaAlO_2) ortama ilave aktif alüminyum sağladığı için sıra dışı bir aktivatördür. Alümina içeriği zayıf olan ham maddelerle birlikte kullanılabilir.

Katı atıklar ve organik insinerasyon külleri aktivatör olarak kullanılabilir. N-A-S ve N-A-S-H jeli esas olarak alkali-aktifleştirilmiş düşük kalsiyum içeren maddelerden oluşurken, C-S-H ve C-A-S-H jeli esas olarak alkali-aktifleştirilmiş yüksek kalsiyum içeren maddelerden oluşmaktadır. Organik atıkların külleri hem aktivatör hem de ham madde olarak farklı çalışmalarda değerlendirilmiştir [49].

2.1.3.2 Asidik aktivatörler

Geopolimerler genellikle alkali aktivatörler tarafından aktive edilir, ancak asidik aktivatörlerin kullanıldığı çalışmalar da mevcuttur. Asit aktivatörler denilince akıllara büyük oranda fosforik asit gelmektedir. Örneğin geçmiş çalışmalar düşünüldüğünde fosforik asit aktivatörlüğünde metakaolin kullanılarak yüksek mukavemete sahip geopolimer malzemeler üretilmiştir [50]. Ayrıca başka bir çalışmada asit aktivatörlü geopolimerlerin alkali aktivatörlü geopolimerlerden daha yüksek sıcaklık direncine (1450°C 'ye kadar) ve daha iyi mekanik özelliklere sahip olduğu belirtilmiştir [51].

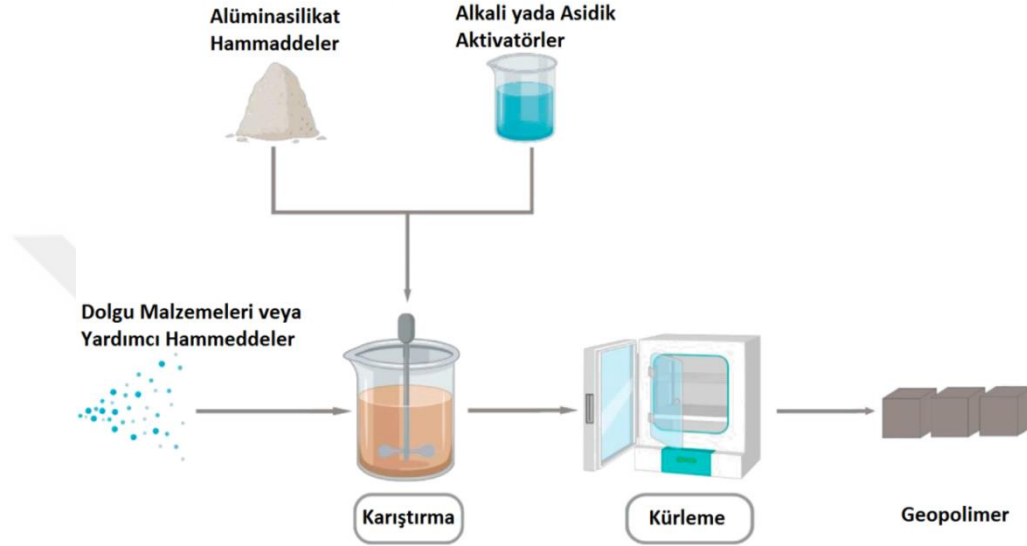
Farklı Si/Al ve Al/P oranlarına sahip fosforik asit aktivatörlü geopolimer numunelerinin sağlamlaştırma çalışmalarında, Al ve Si bakımından zengin, P bakımından fakir bileşenlerin daha sağlam olduğu ifade edilmiştir [52]. Önceki çalışmalardan birinde yüksek sıcaklıklarda termal iletkenliği düşük, fosforik asit ile aktifleştirilen ve kaplama malzemesi olarak kullanılan geopolimer bağlayıcı elde edilmiştir [53].

2.1.4 Geopolimer hazırlama yöntemleri

Geopolimerler hazırlama yöntemlerine göre iki türe ayrılmaktadır. Aktivatörlerin durumu nedeniyle bunlardan birisi tek kademeli yöntem, diğeri ise iki kademeli yöntemdir.

Tek kademeli yöntem için aktivatörler katı fazda kullanılır. Bu yöntemde bu yüzden kuru karışım yöntemi de denmektedir. İlk olarak, ham maddeler ve katı aktivatör dâhil olmak üzere tüm kuru bileşenler yavaş bir hızda ve homojen bir şekilde karıştırılır. Daha sonra su karışıma yavaş yavaş ilave edilir. Karıştırma süresi sonunda elde edilen harç uygun kalıplara dökülerek kütleme işlemi gerçekleştirilir [54].

Çift kademeli yöntemde alkali ya da asidik aktivatörler ayrı bir yerde sıvı fazda istenilen konsantrasyonlarda hazırlanır. Daha sonra bu çözelti, ham madde karışımı ve varsa agrega ihtiva eden kuru maddelerle karıştırılır. Homojen bir harç elde edilinceye kadar bu karıştırma işlemi devam eder. Uygun polietilen kalıplara dökülür ve kürlenme işlemine tabi tutulur. Bu yöntemin diğer bir adı sulu karışım yöntemi olarak bilinmektedir [55] ve Şekil 2.5 ile şematik olarak gösterilmektedir.



Şekil 2.5 : İki kademeli (sulu karışım) yöntemiyle geopolimer üretimi [55].

Son yıllarda gözenekli (köpük) geopolimerler üzerine daha fazla araştırma yapılmaktadır. Gözenekli geopolimerler, hafiflik, yangına dayanıklılık, emicilik vb. avantajlara sahiptir. Geopolimer köpükleri hazırlamak için en yaygın yollar, bir köpürtücü ajanın (hidrojen peroksit, ince metal tozu, vb.) geopolimer macununa eklenmesi veya önceden hazırlanmış köpüklerin kullanılması yoluyla kabarcıkların doğrudan eklenmesidir (örneğin, seyreltilmiş yüzey aktif maddelerle havanın hazırlanmasını sağlamak). Gözenekli geopolimerlerin üretimine yönelik yeni ve daha az çalışılan bir başka yaklaşım da eklemeli üretimdir [56].

Mikrodalga enerjisi, hızlı ve nüfuz edici ısıtma özellikleri nedeniyle geopolimerlerin sentezlenmesinde etkili bir yöntem olduğunu kanıtlamıştır. Ayrıca fazla serbest suyu buharlaştırarak geopolimerlerin daha kısa sürede daha yüksek mukavemete ulaşmasını sağladığı düşünülmektedir [57].

2.1.5 Geopolimer malzemelerin özellikleri

Çimento endüstrisinin atmosferi yoğun bir şekilde kirletmesinin aksine geopolimer üretim proseslerinin çevreci, yenilenebilir ve ekonomik olması nedeniyle araştırmacılar tarafından tercih edilmektedir. Geopolimer harcı uygulamasının en çok çalışılan uygulamalar arasında olduğu söylenebilir. Geopolimer bağlayıcılar, OPC ile karşılaştırıldığında mühendislik malzemelerinin yenilikçi ve sürdürülebilir bir gelişimidir ve birçok avantajı vardır. Geopolimerlerin özelliklerinin hem üretim esnasında hem de sonrasında birçok faktöre bağlı olduğu açıktır. Bu kısımda, geopolimer harcı ve geopolimer malzemelerin karıştırma performansını, sertleştirme performansını ve mikro yapı analizini etkileyen durumlar özetlenecektir. Geopolimerlerin fiziksel ve mekanik özelliklerini etkileyen faktörler ve geçmiş çalışmalardan elde edilen optimum değerler aşağıda tartışılmaktadır.

2.1.5.1 Geopolimer harcın özellikleri ve etkileyen faktörler

Hammaddelerin parçacık boyutu ve şekli geopolimerlerin işlenebilirliği üzerinde önemli bir etkiye sahiptir. FA'nın parçacık boyutunun küçültülmesi, FA'nın inceliğini ve geopolimerlerin işlenebilirliğini artırmaktadır. Ancak parçacık şekli nedeniyle cürufları içeren geopolimer malzemeler düzensizdir ve zayıf işlenebilirlik sağlamaktadır. Aktivatör çözeltisinin GGBS ile FA çok daha hızlı reaksiyona girdiğinden, ham maddede GGBS yüzdesi nispeten yüksek olduğunda geopolimer harcın akışkanlığının azalacağı belirlenmiştir. GGBS-FA içeren geopolimerlerin işlenebilirliği, belirli bir miktarda süper akışkanlaştırıcı ilave edilerek de geliştirilebilir. Alkali aktivatör konsantrasyonu yüksek olduğunda, geopolimer harcın işlenebilirliğini ve sertleşme performansını iyileştirmede belirgin bir etkisi olmamaktadır [58].

Alkali aktivatörlerin türü ve miktarı, geopolimerlerin sertleşmesini etkileyen önemli parametrelerdir. Aktivatörler açısından, susuz sodyum metasilikat diğer aktivatörlerden daha iyi akışkanlığa sahiptir. Kullanılan farklı aktivatörler, farklı viskoziteye sahip olduğu için geopolimerlerin viskozitesini etkilemektedir. Ayrıca aktivatör çözeltisinin viskozitesinin artması ile harcın işlenebilirliği de aynı oranda zorlaşmaktadır.

Kullanılan ham maddelerin geopolimer harcın kuruması için geçen süre olan priz süresi üzerine etki etmektedir. Örneğin yüksek fırın cüruflu ve silika füme kullanımı geopolimerlerin priz süresini azaltabilirken, kırmızı çamur, metakaolin, pirinç kabuğu külü de benzer şekilde etki ettiği belirtilmiştir [59]. Morfolojik özellikler dışında,

hammadelerin kimyasal bileşimi de geopolimerlerin priz süresini etkilemektedir. Mesela karışımdaki kalsiyum oksit oranının artması geopolimer harcın priz süresini kısaltmaktadır. Farklı aktivatörler, farklı özelliklere sahip geopolimer elde edilmesini sağlamaktadır. Alkali aktivatör olarak Na_2SiO_3 olmadan tek başına NaOH ile aktive edilen geopolimer betonun sertleşme süresi, silikatla beraber kullanıldığı duruma göre belirgin bir şekilde artmaktadır. Benzer şekilde, sodyum oksit kullanımı geopolimerlerin çok yavaş prizlenmesine neden olmaktadır [60].

2.1.5.2 Geopolimer malzemelerin özelliklerini etkileyen faktörler

Bir önceki bölümde geopolimerlerin kurumadan önceki yani harç halindeyken özelliklerinden ve etkileyen faktörlerden bahsedilmişti. Bu bölümde ise kurumuş nihai malzemenin özellikleri ve etkileyen faktörleri ele alınacaktır.

Son çalışmalarda, geopolimerler esas olarak FA, cüruf ve metakaolinden oluşmaktadır. Sodyum silikatın üretim eksikliği ve dolayısıyla pahalılığı nedeniyle, bazı bilim adamları aktivatör olarak potasyum silikat ve potasyum hidroksit kullanımına yönelmişlerdir. Yüksek sıcaklıkta (60-100 °C) belirli bir süre kürlenmiş geopolimer malzemelerin mukavemeti oda sıcaklığında bekletilen malzemelere göre yüksektir. Sodyum silikat (Na_2SiO_3) ile oda sıcaklığında hazırlanan geopolimer malzemelerin mukavemetlerinin iyileştirilmesine yönelik çalışmalar gerçekleştirilmiştir [61].

Aşağıda geopolimer malzemelerin hazırlanması için farklı hammadde türlerinin etkisine değinilecektir. Ayrıca farklı molar konsantrasyonlara sahip alkali ve asidik aktivatörlerin etkisi, katı-sıvı oranlarının etkisi, kür sıcaklığının ve süresinin etkisi ve bazı lifli maddelerin eklenmesinin etkisi gibi durumların geopolimer malzeme üzerindeki etkisinden bahsedilecektir.

Ham maddelerin etkisi

En yaygın ham maddelerden biri olarak, FA'nın parçacık boyutunun geopolimerler üzerinde önemli bir etkisi vardır; parçacıklar ne kadar ince olursa, spesifik yüzey alanı o kadar büyük ve reaktivite o kadar yüksek olur. Kullanılan ham maddenin amorf yapıda olması istenmektedir. Düşük amorf bileşen içeriğine sahip FA için, yüksek basınç dayanımına sahip geopolimer elde etmek için daha yüksek bir silikat/hidroksit oranı ve daha fazla sodyum hidroksit konsantrasyonu gerekmektedir [62].

Uçucu küle belli oranlarda yüksek fırın cürufu eklenmesi malzemenin basınç dayanımını artırmaktadır. Ortalama yarı yarıya cüruf-kül karışımı bir bağlayıcı, gözenekliliği azaltmaya yardımcı olur, böylece yüksek $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ mol oranı ile N-A-S-H fazını oluşturarak erken mukavemeti artırır. Ayrıca yüksek Si/Al oranı ve yüksek Ca/Si oranı, oda sıcaklığında kürlenmiş geopolymerin erken basınç dayanımını artırmaktadır. Sönmüş kireç, pirinç kabuğu külü ve çeşitli biyokütle külleri basınç dayanımını önemli ölçüde artırmaktadır [62].

Aktivatörlerin etkisi

Alkali ortama göre fosfat bazlı aktivatörlerin kullanımı geopolymer malzemelerin fiziksel özelliklerini geliştirmektedir. Yüksek fosforik asit konsantrasyonu mükemmel mekanik özelliklere sahip asitle aktive olan geopolymerlerin oluşumuna yardımcı olur. Bununla birlikte, alkali aktivatör kullanımında NaOH çözeltisinin molaritesinin artması, geopolymerlerin basınç dayanımını da iyileştirmiştir. Sodyum silikat (Na_2SiO_3) kullanılan aktivatörlerde, çözelti ortamında $\text{SiO}_2/\text{Na}_2\text{O}$ oranının artması ile geopolymer malzemenin bağ yapısının geliştiği ve basınç dayanımının arttığı belirlenmiştir [63].

Metakaolin kullanılarak hazırlanan geopolymerde NaOH aktivatör kullanılmasına ek olarak Na_2SiO_3 kullanıldığında daha yüksek mukavemet ve basınç dayanımı elde edilmiştir. Aksine kırmızı çamur kullanıldığında ise sadece NaOH kullanımı daha olumlu sonuçlar ortaya koymuştur [64].

Sodyum silikat ile üretilen geopolymer harcı düzensiz mikro yapıya ve daha fazla gözeneklere sahipken, potasyum silikat içeren geopolymer harcı daha yüksek yoğunluğa ve daha düşük gözenekliliğe sahiptir. Bu nedenle potasyum silikat ve potasyum hidroksit tarafından aktiflenen geopolymer harcı daha iyi mekanik özelliklere sahip olmaktadır [65].

Aktivatör seçiminde bazı durumların diğer durumlardan üstün olduğuna dair bilgiler yer almaktadır. Unutulmamalıdır ki aktivatör seçimi ham maddeye göre yapıldığı için belirtilen üstünlük durumları sadece o ham madde için geçerlidir.

Kürleme koşullarının etkisi

Geopolymer malzemelerin üretimini kürleme sıcaklığı, süresi ve hangi ortamda (etüv, mikrodalga fırın) kürlendiği büyük oranda etkilemektedir. Genellikle 60-70 °C sıcaklıklarında gerçekleştirilen kürlemeler daha olumlu sonuçlar verdiği bilinmektedir.

Ancak bazı ham madde ve aktivatörler kullanıldığı zaman oda sıcaklığında gerçekleştirilen kürleme işlemleri daha iyi sonuçlar vermektedir. Örneğin kürleme sıcaklığı daha yüksek olduğunda, uçucu kül bakımından zengin numunelerin mukavemeti artarken, cüruf bakımından zengin numunelerde mikro çatlaklar ortaya çıkmaktadır, bu nedenle basınç mukavemeti belli bir değerden sonra azalmaktadır [66]. Bunun nedeni, artan kürleme sıcaklığının C-S-H jelini etkilemesi, bunun da daha pürüzlü ve daha gözenekli geopolimer mikroyapısına ve birçok çatlağa yol açması olabilir.

Kürleme süresinde de benzer durumlar söz konusudur. Kürleme süresinin artmasıyla malzemenin fiziksel özelliklerinin her daim artacağı düşünülebilir. Ancak bazı durumlarda 7 günlük kürlemenin 28 günlük kürlemeden daha iyi sonuçlar verdiği geçmiş çalışmalardan belirlenmiştir [66].

Agrega (kum), katkı maddeleri, nano malzemeler ve liflerin etkisi

Agrega (kum) ile geopolimer bağlayıcı malzemenin belli oranlarda karışması fiziksel özelliklere pozitif anlamda katkı sağlayabilir. Ancak eklenen kumun fiziksel özellikleri (ince kum) uygun olmak kaydıyla pozitif etki görülebilir. Kaba kumlar eklendiği durumlarda yapı arasında boşluklar oluşturacağı için geopolimer yapı olumsuz yönde etkilenebilir.

Geopolimerlere silika eklemek mekanik mukavemeti artırabilir, ancak aşırı miktarlarda eklemek geopolimer oluşumuna zarar vermektedir. Ayrıca mikro silika tozu ilavesinin GGBS aktivitesini arttırdığı, ancak FA aktivitesini azalttığı belirlenmiştir [67]. OPC, geopolimerlerin basınç dayanımını ve dayanıklılığını artıran geopolimerizasyonu hızlandırmak için bir katkı maddesi veya kısmi olarak yerine kullanılabilir.

Geopolimer malzemelerin bağ yapılarını kuvvetlendirmek için bazı nano teknolojik malzemeler eklenmektedir. Nano-ZnO, grafen ve çelik lif vb. maddeler eklenerek malzemenin mukavemetini artırmaya yönelik çalışmalar yapılmıştır. Nano-silika, geopolimerlerin basınç dayanımı üzerinde önemli bir etkiye sahiptir ve çelik fiber, eğilme özelliğini ve bağlanma gücünü artırmaya yardımcı olmaktadır. Sadece %1 oranında grafen eklendiğinde bile basınç dayanımına büyük oranlarda etki etmektedir [68].

Mikrofiber malzemelerin eklenmesiyle de benzer artışlar gözlemlenmiştir. Örneğin doğal elyaf demetleri ve kumaşların eklenmesiyle geopolimerlerin basınç, eğilme ve darbe dayanımların iyileştiği belirtilmiştir [69].

2.1.5.3 Geopolimer malzemelerin dayanıklılık özellikleri

Geopolimerlerin dayanıklılığını etkileyen sadece mukavemetleri değil, aynı zamanda aşınma performansı, gözeneklilik, kimyasal erozyon direnci, kuru büzülme, karbonizasyon direnci ve diğer parametreler gibi zorlu ortamlara karşı dirençleridir. Yapılan araştırmalar, geopolimer betonun genellikle çoğu parametrede OPC betondan daha iyi dayanıklılığa sahip olduğunu açıklamaktadır [70].

Geopolimerler hazırlamak için çeşitli nano-malzemelerin eklenmesi kullanılan yaygın yöntemlerden birisidir. Nano malzemeler eklenerek elde edilen geopolimerlerin dayanıklılığı üzerine yapılan araştırmalar, geopolimer jel matrisinin yoğun olduğunu ve nano-TiO₂'nin dahil edilmesiyle geopolimer matrisindeki nano gözeneklerin etkili bir şekilde kapanabileceği ve ayrıca mikro gözeneklerin birbirine bağlanmasını önleyebileceğini göstermektedir [71].

2.1.6 Geopolimer malzemelerin uygulamaları

Geopolimerlerin uygulamaları işlevlerine göre iki kategoriye ayrılabilir; bunlar geleneksel fiziksel ve mekanik özelliklere sahip olan malzemelerin uygulanması ve mekanik özelliklerin yanı sıra diğer fiziksel ve kimyasal özelliklere sahip olan malzemelerin fonksiyonel uygulamaları. Yangın önleme, izolasyon, ısı koruma, zararlı iyonların ve boyar maddelerin adsorpsiyonu gibi fonksiyonel uygulamalarda kullanıldığı gibi ayrıca yangın önleme binaları, yalıtım duvarları, nükleer santraller gibi özel alanlardaki binalar için kullanılabilir. Geleneksel özelliklere sahip geopolimer bağlayıcılar ise çimentonun yerine yapı malzemesi olarak kullanılabilir.

2.1.6.1 Geopolimer malzemelerin genel (yapı malzemesi) uygulamaları

Çimento benzeri yapı bağlayıcıları ile karşılaştırıldığında, geopolimer harçlar yeterli seviyede mukavemete sahiptir. Betonarme yapıların inşasında veya yamalama olarak tabir edilen yöntemle yapıların onarımında kullanılabilir ve su geçirmez, hidrofobik, hızlı kürlenen ve yüksek mukavemetli olmaları gibi özellikleri sayesinde tercih edilebilir [72]. Kayıtlara göre geopolimer beton kullanılarak inşa edilen ilk yapı Avustralya'da bulunan Queensland Üniversitesi'ndeki Küresel Değişim Enstitüsü (GCI) binasıdır.

Betonarmenin uzun süre yağmur suyuna, deniz suyuna veya tuzlu toprağa maruz kalması yapının sağlamlığını ve güvenliğini olumsuz etkileyecektir. Bununla birlikte, geopolimer

betonun kimyasal direnç, özellikle sülfat direnci potansiyeli, malzemeyi deniz (su altı) inşaatı için de uygun hale getirir. OPC betonu ile karşılaştırıldığında, geopolimer beton daha fazla amorf yapıdadır ve daha fazla gözenek içerir. Ayrıca geopolimer betonun yoğun mikro yapısı deniz suyunun iç kısımlara nüfuz etmesini zorlaştırmaktadır.

Özellikle Avrupa'da FA ve cüruf gibi ham maddelerden elde edilen geopolimerlerin üstyapı temel malzemesine uygulanması konusunda bazı araştırmalar yapılmıştır. Bu uygulama yalnızca atık ve yan ürünlerin sürdürülebilir kullanımına katkıda bulunmakla kalmayıp, aynı zamanda çimento kullanımını bir dereceye kadar azaltarak karbon salınımını büyük oranda azaltmaktadır. Ayrıca geopolimer malzemeler belli oranlarda asfalt karışımlarına katkı olarak otoyollarda kullanılmaktadır.

Rusya'da OPC ve alkaliyle etkinleştirilen yüksek fırın cürufu (GGBS) kullanarak yüksek kaliteli bir yolun 6 km'lik bir bölümü pilot uygulama alanı olarak inşa edilmiştir. 15 yıllık kullanımdan sonra test bölümlerinin çok güvenilir olduğu ortaya çıkarken sadece OPC beton kullanılarak yapılan kısımlar önemli ölçüde bozulduğu belirlenmiştir [73]. Bunun gibi uygulamaların sayısı oldukça fazladır. Görüldüğü üzere geopolimer malzemeler üst yapı malzemesi olarak kaldırımlarda, yollarda ve duvar kaplamalarında kullanılmaktadır.

Geopolimer malzeme üretimi son yıllarda popüler olan 3D baskı yöntemiyle de uygulanmıştır. Uygulama esnasında hem baskılama parametreleri üzerinde hem geopolimer malzemeyi etkileyecek parametreler üzerinde değişiklik yapılarak çok sayıda malzeme üretimi gerçekleştirilmiştir [74].

2.1.6.2 Geopolimer malzemelerin fonksiyonel uygulamaları

Ateşe ve yüksek sıcaklığa dayanıklı malzeme olarak kullanımı

Günümüzde yaygın kullanımlarından dolayı refrakter malzemeler özellikle önemlidir. Yangına ve yüksek sıcaklığa dayanıklı malzemelerin hazırlanmasında odak noktası sürdürülebilirliği ve ekosistemi geliştirmeye devam etmektir. Geopolimerizasyon, endüstriyel ve tarımsal katı atıkları, mükemmel termal kararlılık ve yanmazlık özellikleri ile kimyasal anlamda kararlı bir bağlayıcıya dönüştürmektedir.

Örnek olarak fosforik asit aktivatörlüğünde geopolimer köpük üretilerek refrakter malzeme elde edilmiştir. Bu malzeme üretiminde ham madde olarak metakaolin ve köpürtücü ajan olarak hidrojen peroksit kullanılmıştır [75]. Geopolimer malzemedan yapılacak bir

kaplama işlemi, ısı ve kütle transferini engelleyen bir tabakaya olarak düşünülebilir. Burada ısı iletim hızının ve yangın büyüme indeksinin azalması ile malzemenin yangın esnasında gösterdiği performansta artış sağlanmaktadır [75].

Ayrıca geopolimerin mukavemeti ne kadar yüksekse yangına dayanıklılığının da o kadar iyi olduğuna işaret edilmiştir. Düşük yoğunluklu geopolimerlerin kurutulması kolay değildir ve yüksek derecelerdeki sıcaklık aralığındaki hacim değişikliklerine daha iyi uyum sağlayabilir, ısıya maruz kaldıktan sonra bile yoğunluğu artmaktadır. Alkali katyon seçiminin yüksek sıcaklığa maruz kalma mukavemeti ve uçucu kül kaynaklı geopolimerin dayanıklılığı üzerindeki etkisi bazı çalışmalarda incelenmiştir [76].

Yalıtım malzemesi olarak kullanımı

Özellikle yapı malzemeleri düşünüldüğünde ısı yalıtımı çok önemlidir ve iyi ısı yalıtımı enerji tüketimini etkili bir şekilde azaltabilir ve böylece sera etkisinin azaltılmasına katkıda bulunabilir. Ses yalıtımı da özellikle önemlidir, çünkü ses emici malzemeler bina sakinleri için iç mekan akustik konforunu artırır ve gürültü kirliliğine maruz kalma ile ilişkili sağlık risklerini azaltır. Geopolimer malzemeler bu ihtiyaçları karşılayabilmektedir.

Düşük sıcaklıkta hammadde olarak endüstriyel atıklardan yapılan gözenekli bir geopolimer malzeme, konut bölümünün ısı yalıtım malzemeleri gereksinimlerini tam olarak karşılayan düşük ısı iletkenliği, düşük su emme, geri dönüştürülebilir ve düşük maliyet avantajlarına sahip olmaktadır.

Adsorban olarak kullanımı

Daha temiz ve çevreci üretim malzemeleri olarak, geopolimerler genellikle metal iyonlarını atık sudan uzaklaştırmak için adsorban olarak kullanılmaktadır. Son yıllarda geopolimerler ile ağır metal kirliliğinin immobilizasyonuna yönelik uygulamaların sayısı artmaktadır. Ayrıca atıksu arıtma sistemlerinde, kimyasal üretim prosesiyle elde edilen bir adsorban kullanmak yerine, adsorban olarak doğrudan atık kullanmak ya da atık kullanılarak elde edilen geopolimer malzemeler kullanmak; düşük maliyetli, çevre dostu, daha güvenli ve daha uygun olarak görülmektedir [77].

Yaygın kullanılan boyar maddelerden bazılarının FA kaynaklı geopolimerler ile sulu çözeltilerden giderimi gerçekleştirilebilir. Bazı çalışmalarda endüstriyel atıkların direkt olarak adsorban olarak kullanılması ile bu atıklardan elde edilen geopolimerlerin adsorban olarak kullanılması durumları karşılaştırılmıştır. Sonuçlarda geopolimer kullanılarak

adsorplama veriminin daha yüksek olduğu görülmüştür [78]. Adsorban olarak kullanımında başka bir yöntem ise FA kaynaklı bir geopolimerin amorf yapıdaki jelinin zeolite dönüştürülerek kullanılmasıdır. Bu şekilde kullanımda adsorpsiyon performansını iyileştirebilir ve atık su arıtımı için potansiyel bir uygulama sağlayabilir.

Geopolimer malzemeler sulu ortamdaki ağır metal iyonlarını adsorplamak için kullanılmaktadır. Çinko cürufunun düşük reaktivitesi, standart koşullar altında FA eklenerek artırılabilir. Hazırlanan çinko cürufu-FA kaynaklı geopolimer, çinko cürufunda bulunan Pb, Zn, Cr, Cd ve As gibi ağır metalleri ve toksik metalleri güvenli bir aralıkta kararlı hale getirebilir. Alkali aktivatör ile aktifleştirilmiş metakaolin ile (N, K)-A-S-H jelinin oluşumu, ⁹⁰Sr içeren radyoaktif atıkların immobilizasyonu için ideal bir malzeme olan alüminosilikat iskelet yapısına sahiptir. Simüle edilmiş radyoaktif elementlerin immobilizasyonu için geopolimerler kullanılır. Kapsülleme matrisi yöntemi, ⁹⁰Sr ve ¹³⁷Cs elementlerinin radyoaktif doğasını azaltamasa da, bir immobilizasyon stratejisi veya radyoaktif elementleri depolamak ve bunların sızmasını önlemek için günümüzde kullanılan etkili yöntemlerden biridir [79].

Katalizör olarak kullanımı

Geopolimerlerin katalizör olarak uygulanması çok dikkat çekmiştir. Geopolimerler, zararlı gazları adsorbe etmek için katalizör olarak kullanılarak endüstrinin kirliliğini azaltmaya yardımcı olmaktadır. Bu bulgular, yeni ve verimli heterojen katalizörlerin sentezi için yeni bir yöntem sağlar. Örneğin biyodizel üretiminde heterojen bir katalizör olarak başarıyla kullanılan gözenekli bir geopolimerin metanol ile rejenerasyon işleminde çok yüksek seviyelerde verim elde edilmiştir [80].

TiO₂ molekülleri esas olarak bağlayıcıyı yoğunlaştırmak için dolgu maddesi görevi görmektedir. Ortaya çıkan TiO₂ metakaolin geopolimeri, yüksek bir basınç dayanımına ve toplam güneş yansıma özelliğine sahiptir. TiO₂ eklenmesi geopolimere fotokatalitik özellik kazandırır, yüzeyin süper hidrofiliğini aktive eder ve doğrudan güneş ışığına maruz kaldıktan sonra boyanın tamamen ayrışmasına yardımcı olur.

Gözenekli seramik geopolimerler, atık sudaki dirençli antibiyotiklerin derin oksidatif bozunmasını gerçekleştirmek için heterojen bir katalizör olarak kullanılmaktadır. Ayrıca kırmızı çamur ile elde edilen geopolimer malzemeler atık su arıtma ve anaerobik çürütme sisteminde pH tampon malzemesi olarak kullanılabilir.

Geçmiş dönemlerde otomobil egzoz sistemlerindeki katalizörler geopolimer malzemelerden yapılmış ve başarılı sonuçlar alınmıştır. Bu ve bunun gibi birçok uygulamada kompozit malzeme olarak geopolimerler kullanılmıştır. [81].

Diğer fonksiyonel kompozit malzemeler olarak kullanımı

Fonksiyonel kompozitler, mekanik özelliklere ek olarak başka fiziksel özellikler de sağlayan kompozitleri ifade etmektedir. Yangına dayanıklılık, ısı yalıtımı, adsorpsiyon özelliklerine ek olarak, geopolimer malzemelerin başka uygulamaları vardır. Ancak, özel fonksiyonel kompozitlerin uygulanmasına yönelik araştırmalar yeterli değildir, özellikle yapısal olmayan uygulamalar henüz başlangıç aşamasındadır. Genel olarak aşağıda bazılarından bahsedilmiştir.

Farklı bir oluşum olarak asidik veya alkali aktivatör kullanmadan arkanit minerali kullanılarak FA ile aktive edildiği çalışma yapılmıştır. Burada uçucu kül, yarı yarıya oranla yüksek kalsiyum içeren odun külü ile harmanlanmıştır. Ayrıca SiO₂ tabakası ile kaplanmış karbon nanotüpler kullanılarak geopolimer malzemeler elde edilmiştir. Kendi kendini temizleme özelliklerine sahip olabilmesi için TiO₂ katkı maddesi olarak kullanılabilir olduğu ifade edilmiştir [82].

Bakteri üremesini engelleyebilen metakaolin-nano ZnO ihtiva eden geopolimer kompozit bir malzeme hazırlanabilir. Bu sistem geleneksel yöntemlerden bağımsız olarak kapsülleme veya hareketsizleştirme olmadan doğrudan geopolimer karışımına bakteri eklenerek gerçekleştirilebileceği belirtilmiştir [83].

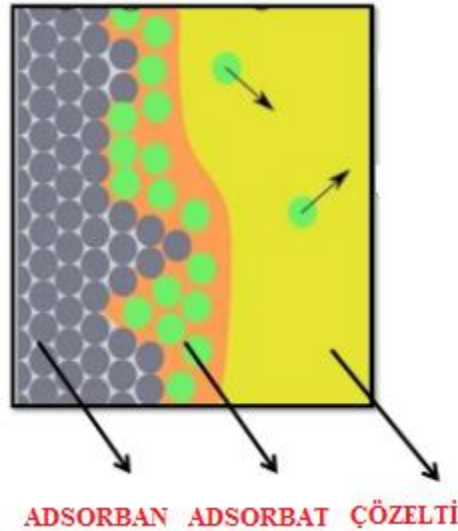
Geçmiş çalışmalarda elektromanyetik etki ve özellikleri olan geopolimer malzemelerde kullanılmıştır. Burada malzeme geopolimer yapıda ancak jel iletken malzeme olarak kullanım söz konusu olmaktadır. Farklı durumlarda kullanılmak üzere termal depolama malzemesi yapımında da geopolimer malzemelere başvurulmuştur [84].

Etanol saflaştırmasında kullanılmak üzere geopolimerin hidrofilik özelliklerini azaltmak için zeolit-geopolimer membranların hidrofobik malzemelerle kaplanması gerektiğini ve bu nedenle pervaporasyon sistemi yoluyla saflaştırabilmesi için daha uygun hale getirilebileceği önerilmiştir [85].

2.2 Adsorpsiyon

Adsorpsiyon, gaz veya sıvı bir yığılda bulunan adsorbat adı verilen bir molekülün veya iyonun, adsorban adı verilen katı, nadiren sıvı bir yüzeye tutunması işlemidir. Bu bir yüzey işlemidir, yani sadece adsorbanın yüzeyi söz konusudur ve adsorbat, adsorbanın yapısına yayılmaz. Sıklıkla karıştırıldığı absorpsiyon, bir maddenin kristallerinin, amorf katı blokların veya içlerine nüfuz ettiği süreçleri ifade eder. Bazen sorpsiyon kelimesi, sürecin adsorpsiyon mu yoksa absorpsiyon mu olduğunu belirtmeden bir gazın veya sıvının bir katı tarafından alınması sürecini belirtmek için kullanılmaktadır. Temel olarak Şekil 2.6 ile adsorpsiyon süreci gösterilmektedir. Bir molekülün katı bir yüzeyden ayrılması yani adsorpsiyonun tersi olan işleme ise desorpsiyon denir.

Adsorpsiyon süreci atmosferde normal koşullarda kendiliğinden meydana gelir ve birçok endüstriyel alanda uygulanmaktadır (örneğin, boyar maddelerin atık sulardan giderimi ve gaz veya sıvı emisyonlarını temizlemek için). Enzimatik reaksiyonlar veya iyon değişimi gibi diğer önemli süreçlerle de adsorpsiyon işlemi söz konusu olabilir.



Şekil 2.6 : Adsorpsiyon işleminin şematik gösterimi [86].

Gerçekleştirilen adsorpsiyon işleminin başarılı olup olmadığı ve eğer başarılıysa ne derece başarılı olduğunu anlamanın en temel yöntemlerini matematiksel bir şekilde ifade edebiliriz. Yüzde boya giderim verimi ve kullanılan adsorbanın yüzeyine tutunan maddelerin miktarı esas alınabilir. Adsorbanın birim kütlesi başına adsorpladığı adsorbat molekülleri miktarı, adsorpsiyon prosesi sonunda denge halinde konsantrasyon, sıcaklık,

basıncın bir fonksiyonudur. Proses boyunca sıcaklığın değişmediği düşünülürse adsorban performansını açıklayacak eşitlik aşağıda ifade edilmektedir;

$$q_e = \frac{(C_0 - C_e) \cdot V}{m} \quad (2.5)$$

q_e = Dengede adsorban miktarı başına yüzeyine tutunan adsorbat miktarı ($\text{mg} \cdot \text{g}^{-1}$)

C_0 = Adsorbat moleküllerinin bulunduğu çözeltinin başlangıç derişimi ($\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$)

C_e = Adsorpsiyonun denge haline geldikten sonra kalan çözeltinin derişimi ($\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$)

V = Adsorbat moleküllerinin bulunduğu çözeltinin hacmi (L)

m = Adsorbanın başlangıç kütlesi (g)

Bu matematiksel ifadeden yola çıkarak q_e değeri ne kadar büyük olursa birim adsorban yüzeyine tutunan adsorbat molekülü sayısı daha fazla olacak yani adsorplama işlemi verimi daha yüksek olmuş olacaktır. Geçmiş çalışmalarda da kullanılan adsorbanın adsorplama verimi bu değerler üzerinden mukayese edilerek ifade edilmiştir [86].

Bir diğer adsorpsiyon başarı göstergesi ise boya giderim (veya metal iyonları) veriminin yüzde olarak ifade edilmesidir. Bu ifadede boyanın ilk ve son derişim değerleri kullanılarak geleneksel olarak verim hesabı yapılmaktadır ve aşağıdaki eşitlik ile ifade edilmektedir.

$$\text{Adsorplama Yüzdesi (\%)} = \frac{(C_0 - C_e) \cdot 100}{C_0} \quad (2.6)$$

C_0 = Adsorbat moleküllerinin bulunduğu çözeltinin başlangıç derişimi ($\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$)

C_e = Adsorpsiyonun denge haline geldikten sonra kalan çözeltinin derişimi ($\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$)

Başlangıç ve son haldeki derişim farkı etkileşim süresi boyunca çözülden uzaklaşan adsorbat moleküllerini ifade etmektedir. Dolayısıyla bu farkın başlangıç konsantrasyonuna oranının yüz ile çarpımı adsorplama yüzdesini ortaya koymaktadır.

2.2.1 Adsorpsiyon türleri

İki tür adsorpsiyon tanımlamak mümkündür; adsorbatın yüzeye fiziksel kuvvetler nedeniyle tutunması fiziksel adsorpsiyon (veya fizisorpsiyon) ve adsorbatın yüzeye kimyasal bağlarla bağlhyrsa kimyasal adsorpsiyon (veya kemisorpsiyon).

2.2.1.1 Fiziksel adsorpsiyon

Van der Waals etkileşimleri sayesinde fizisorpsiyon meydana gelir, bunlar moleküller arasında meydana gelen zayıf elektrostatik etkileşimlerden kaynaklanan çekici kuvvetlerdir. Adsorbat molekülleri yüzeye düşük enerjiyle çarparsa, bu adsorbanın katı kafesinin titreşimi ile ortama ısı olarak dağılabilir ve bu nedenle yüzeyde sıkışıp kalabilirler. Şayet moleküller yüzeye çok yüksek bir enerji ile çarparsa, bu enerji adsorban tarafından dağılamaz ve yüzeye tutunamayarak moleküller sıçarlar.

Fiziksel adsorpsiyonda genellikle entalpi değişimi yaklaşık olarak 20 kJ.mol^{-1} 'den azdır. Bu yüzden hem adsorbat hem de adsorbanın kimyasal durumlarında herhangi bir değişiklik olmaz. Adsorbanın ısınma durumu olmadığı için enerji durumunda bir değişiklik olmaz ve yeni kimyasal bağlar meydana gelmez. Gerçekte, fiziksel bağlar oldukça değişkendir ve süreç basit bir şekilde titreşim hareketinin bir sonucu olarak bile kolaylıkla geri ilk haline dönebilir, yani tersinirlik söz konusudur [87].

Fiziksel adsorpsiyona neden olan kuvvetlerin doğası göz önüne alındığında çok katmanlı olarak meydana gelebilecek bir süreç düşünülebilir. Adsorbe edilen moleküller aktif merkezleri tamamen kapatmadığı sürece yeni adsorbat molekülleri halihazırda başka maddelerle kaplanmış olsa bile adsorbanın yüzeyine tutunabilirler. Elbette böylesi bir durumda bu molekülleri desorbe etmek için gereken entalpi daha düşük olacaktır, daha sonra yüzeye yapışmış adsorbat katmanlarının sayısı arttıkça adsorpsiyonun hızı azalacaktır.

2.2.1.2 Kimyasal adsorpsiyon

Fiziksel sorpsiyonun aksine kimyasal adsorpsiyonda daha güçlü kuvvetler söz konusudur. Bu durumda adsorbat, adsorbanın yüzeyi ile kimyasal bir bağ (genellikle kovalent) oluşturur. Entalpideki değişim fiziksel adsorpsiyona göre çok daha büyüktür (yaklaşık $40-800 \text{ kJ.mol}^{-1}$) ve adsorpsiyon kendiliğinden gerçekleşen bir süreç olduğundan entalpi her zaman negatiftir. Kimyasal adsorpsiyonda adsorbat moleküllerinin aktif merkezlere sorplanabilmesi için belirli bir seviyede enerjiye sahip olması gerekmektedir [88].

Fiziksel ve kimyasal adsorpsiyon durumları arasında aktivasyon enerjisi (eşik enerjisi) durumu söz konusudur. Eğer bu bariyer (eşik) serbest moleküllerin enerjisinden daha yüksekse, o zaman adsorbat molekülleri kimyasal bir bağ ile bağlanamaz. Adsorbana kimyasal olarak ancak adsorbandan daha fazla enerjiye sahipse bağlanacaktır. Eşik

enerjisini geçemediği durumda fiziksel olarak tutunduğu aktif merkezlerden desorbe olacaktır. Eşik enerjisinin serbest moleküllerin enerjisinden daha düşük olması durumunda, fiziksel olarak adsorbe edilen tüm moleküller adsorban yüzeyi ile hızlı bir şekilde kimyasal bağ oluşturabilir ve kimyasal adsorpsiyon hızla gerçekleşir.

Kimyasal adsorplanmış halden yüzeyin tamamen desorplanması tersinmez bir süreçtir yani yüzeyden ayrılmak için moleküllere bağları kırmak için enerji verilmesi gerekmektedir. Adsorban yüzeyine yalnızca tek bir adsorbat tabakası kimyasal olarak soğurulabilir, tüm yüzey adsorbat molekülleri tarafından kaplanırsa, böylece bağ için daha fazla alan kalmazsa, o zaman adsorpsiyon sona erer yani desorpsiyon ile dinamik dengededir [88].

Diğer herhangi bir kimyasal reaksiyon gibi adsorpsiyon ortamı fiziksel ve kimyasal koşullardan etkilenir. Bir yüzey prosesi olarak, adsorpsiyon için kilit faktör adsorbanın yüzeyidir. Daha fazla yüzeye sahip olan bir adsorbanın maddeleri daha fazla adsorbe etme kapasitesine sahiptir. Bu nedenle, en iyi adsorbanlar gözenekli maddelerdir veya daha genel olarak birim hacim başına daha büyük yüzeye sahip olan maddelerdir (örneğin, aktif karbon ve kil).

2.2.2 Adsorpsiyonu etkileyen faktörler

Adsorpsiyon prosesini etkileyen çok sayıda parametre bulunmaktadır. Adsorpsiyon tipinin gaz-katı veya sıvı-katı olması durumları başlı başına bir etmendir. Ayrıca adsorban yapısı, adsorbat ortamının fazı, adsorban parçacık büyüklüğü ve yapısı, adsorban gözenekliliği ve yüzey alanı, adsorpsiyon esnasında sıcaklık ve basınç durumları, ortam pH'sı, adsorbat konsantrasyonu ve çözünme gücü, fiziksel veya kimyasal bağların mevcudiyeti ve kuvveti gibi sayısız faktör adsorpsiyon verimini doğrudan etkilemektedir. Bu yönüyle düşünüldüğünde adsorpsiyon prosesi sanılanın aksine daha kompleks bir yapıdadır.

2.2.2.1 Adsorbanın yapısının etkisi

Adsorban mümkün olduğunca çok küçük parçacıklar şeklinde kullanılırsa birim ağırlık başına yüzey alanı büyük olacağı için yüzeyde tutunan molekül sayısı artacaktır. Böylesi bir durum olduğu için adsorban boyutu adsorpsiyon verimini doğrudan etkilemektedir. En az boyutu kadar önemli diğer bir durum ise gözenekliliktir. Çünkü adsorbanın gözenekli yapıda olması aynı oranda yüzey alanının artması anlamına gelmektedir. Önemli bir parametre olduğu için IUPAC adsorban gözenek çapına göre bir sınıflandırma yapmıştır.

IUPAC standartları mikro, mezo ve makro şeklinde üç ana tipte gözenek çapı belirlemiştir. Adsorban olarak kullanılan malzeme 0,75 – 2,1 nm aralığında olursa mikro, 2,1-55 nm aralığında ise mezo gözenekli ve son olarak 55 nm değerinin üstünde bir değerde olduğunda makro gözenek sınıfında kabul edilmişlerdir [89].

Adsorbanın mikro gözeneklerinin sayısının fazla olması yüzey alanını artıracakını söylemiştik. Makro gözenek sayısı arttığında ise büyük çapta moleküllere sahip adsorbat fazın mevcudiyetinde adsorplama verimi artacaktır. Aslında gözenek boyutunun ne olması gerektiği adsorplanacak maddeye göre belirlenmesi avantaj sağlayacaktır. Bu yüzden endüstride kullanım alanına göre toz, pelet ve granül benzeri şekillerde adsorbanlar kullanılmaktadır.

2.2.2.2 Sıcaklığın etkisi

Adsorpsiyonda sıcaklığın etkisi eğer kimyasal bir adsorpsiyon varsa reaksiyonun endotermik veya ekzotermik olmasına göre değişecektir. Doğal olarak ısı alarak (endotermik) meydana gelen bir tepkimede sıcaklığın artmasıyla yüzeyde tutunma miktarı artacaktır. Isı vererek (ekzotermik) meydana gelen bir tepkimede ise sıcaklığın artması tutunma oranını düşürecektir.

Fiziksel adsorpsiyonlarda ise genellikle ekzotermik durum söz konusudur. Van der Waals etkileşimlerinde düşük sıcaklıklarda yapıları bozulmadan tutunma gerçekleşir. Aslında bu düşük sıcaklıkta yüksek oranda bağlanmaları sayesinde adsorpsiyon prosesleri günümüzde bu derece popüler olmaktadır [90].

2.2.2.3 Adsorbatın yapısının etkisi

Adsorbat gaz faz ya da sıvı fazda bulunabilirler bu yüzden iki ayrı tipte adsorbat yapısı ele alınmalıdır. Gazın katı yüzeye tutunduğu durumda akla hemen basınç faktörü gelmektedir. Yüksek basınç durumunda adsorbat molekülleri hızlı ve kuvvetli bir biçimde hareket edeceği için adsorban yüzeyine daha iyi tutunduğu söylenebilir. Ancak çok yüksek basınç durumlarında oluşan bu kuvvetle moleküller tutunduğu aktif merkezlerden yeniden çıkabilir. Bu yüzden ideal bir basınç değerinde adsorpsiyon işlemi gerçekleştirerek adsorplama verimini artırma adına daha iyi sonuçlar yaratacaktır.

Sıvı fazda bulunan adsorbat moleküllerinin bu çözültideki bağları bırakıp adsorban yüzeyine yeniden bağlanması gerekmektedir. Bu konuda ortaya atılan bir teoriye göre

adsorpsiyon öncesi sıvı fazdaki adsorbat ile çözücü (sıvı) madde arasında bağ yapısı kuvvetli olduğu zaman adsorpsiyon işleminin gerçekleşme oranı düşmektedir [91]. Çünkü adsorbatın bu ortamdaki ayrılıp katı yüzeyine tutunması zorlaşacaktır.

Bir başka etmen ise adsorbat moleküllerinin boyutuyla alakalı durumdur. Adsorbat molekülleri aktif merkezlere göre ne kadar küçük olursa adsorpsiyon işlemi o derece daha hızlı olması beklenir. Moleküllerin aktif merkezlere kıyasla daha büyük olması durumunda ise bu uyumsuzluktan dolayı bazı moleküller yüzeye tutunamayacak ve adsorplama verimi düşecektir.

2.2.2.4 Adsorbat çözeltisinin pH değerinin etkisi

Kimya biliminin genelinde pH değerinin etkisi büyük önem arz etmektedir. Bu durum sıvı-katı adsorpsiyon proseslerinde sıvı çözeltinin pH değerinin etkisini ele almaktadır. Moleküllerin optimum çözünebildiği pH değerleri değişkenlik göstermektedir. Bundan ötürü pH değeri adsorpsiyon işlemlerinde önemli bir parametredir. Ortamın alkali ya da asidik olması adsorban yüzeyindeki fonksiyonel grupların yapısında değişikliğe sebep olmaktadır [92]. Örneğin pH'nın yüksek olduğu durumda adsorban yüzeyinde negatif yükler sayıca fazla olacaktır. Bu durumda pozitif yüklere sahip adsorbat molekülleri bu yüzeylere rahat bir şekilde tutunabilir. Özellikle boyar maddelerin sulu çözeltilerden adsorpsiyon yoluyla gideriminde ve metal iyonlarının adsorpsiyonunda pH önemli bir parametredir.

2.2.2.5 Karıştırma hızının etkisi

Karıştırarak etkileşimi artırmak reaksiyon hız sınırlayıcı basamağı doğrudan etkilemektedir. Kütle aktarımından gelen bu durum adsorpsiyonu ve katalizörlü reaksiyonların hızlarının belirlenmesinde söz konusudur. Aynı durum adsorpsiyon işleminde de geçerlidir. Karıştırma işlemi yapıldığında adsorban etrafındaki sıvı film tabakası kalınlığı incelmektedir ve hız sınırlandırıcı basamak por difüzyon basamağına doğru geçecektir [93]. Reaksiyon hız sınırlandırıcı basamağı etkileyen başka farklı durumlarda vardır. Daha detaylı açıklamalar kütle aktarım teorilerinden ulaşılabilir. Karıştırma etkisi kolon akış sistemlerinde söz konusu değildir.

2.2.3 Adsorbanlar ve özellikleri

Adsorpsiyon işlemi katı yüzeyine moleküllerin tutunması olarak tanımlandığı için adsorbanlar katı malzemelerdir. Bu malzemelerin adsorban olarak endüstriyel

uygulamalarda kullanılabilmesi için bazı özelliklere sahip olmaları gerekmektedir. Bu özelliklerden bazılarını şu şekilde sıralanabilir; adsorplama kapasitesinin yüksek olması, yüzey alanının büyük olması, toksik etkiye sahip olmayan ve kimyasal reaksiyona girmemesi için inert yapıda olması bazı maddelerin adsorban olarak tercih edilmesini sağlamaktadır. Bunlara ilave olarak üretim maliyetinin mümkün olduğunca düşük olması ve doğal kullanılan adsorban ise doğada bol bulunan kolay ulaşılabilir bir madde olması gerekmektedir. Ayrıca tekrar tekrar rejenere edilerek kullanılmaya uygun olması adsorban maddelerin tercih edilmesinde büyük avantaj sağlamaktadır [94].

Adsorbanlar elde edilme yöntemleri ve yapılarına göre sınıflandırılabilir. Başlıca herhangi bir üretim yönteminden geçmeyen ve doğada hazır olarak bulunan maddeler doğal adsorban sınıfına girmektedir. Zeolitler, kırmızı çamur ve killer örnek olarak verilebilir.

Diğer bir grup olarak atıklar düşünülebilir. Son derece ekonomik olmalarının yanı sıra atık malzemelerin kullanılması dolayısıyla çevreye büyük katkı sunan bu adsorbanlara eğilim son dönemlerde yüksektir. Atık adsorbanları iki farklı biçimde sınıflanabilir. Bunlar; endüstriyel atıklar ve tarımsal atıklardır. Endüstriyel atık kaynaklı adsorbanlara örnek olarak uçucu kül ve yüksek fırın cürufu verilebilir. Tarımsal atık kaynaklı adsorbanlara ise meyve çekirdekleri, yaprakları, atıl durumdaysa kök ve gövdeleri örnek olarak verilebilir. Son yıllarda tarımsal atıkların sürdürülebilir bir şekilde üretime kazandırılması ayrıca çevre kirliliği, iklim değişikliği gibi olumsuz durumları indirgemesi açısından adsorban ve farklı malzemelere dönüştürülmesi büyük önem arz etmektedir.

Belirli bir üretim prosesinden sonra adsorban olarak kullanıma hazır olan maddeler bir başka grup olarak yapay adsorbanlar olarak düşünülebilir. Bu gruba en büyük örnek aktif karbondur. Üretim tamamen yapay malzemelerden ya da polimerlerden olabilir ancak atık organik ya da inorganik malzemelerden de günümüzde aktif karbon üretimi söz konusudur. Aktif karbona ilave olarak aktif alümina, reçineler, silika jel, polimerler ve son zamanlarda artan bir malzeme olan geopolimerler verilebilir.

2.2.4 Adsorpsiyon kinetiği

Adsorpsiyonun kimyasal reaksiyon hızını ve adsorpsiyon sürecinin hız belirleyici adımını araştırmak için reaksiyonların kimyasal kinetik modelleri araştırılmaktadır. Adsorpsiyon işleminin reaksiyon mertebesini incelemek için tersinir birinci derece, tersinir ikinci derece, tersinmez birinci derece, tersinmez ikinci derece, yalancı birinci derece, yalancı

ikinci derece, parçacık içi difüzyon modeli, elovich modeli ve Avrami modeli gibi farklı kinetik modeller önerilmiştir.

Genel olarak, adsorpsiyonun kimyasal kinetik modelleri iki sınıfa ayrılmaktadır. Bunlar; adsorpsiyon reaksiyon kinetiği modelleri ve adsorpsiyon difüzyon kinetik modelleridir. Adsorpsiyon reaksiyonu kinetik modelleri, kimyasal reaksiyon kinetiğinden türetilir. Bununla birlikte, adsorpsiyon difüzyon kinetik modelleri aşağıdaki üç adıma dayanmaktadır:

- 1) Sıvı film difüzyonu veya harici difüzyon: adsorbat partiküllerinin etrafındaki sıvı film boyunca adsorbat difüzyonu
- 2) Parçacık içi difüzyon: gözenekler yoluyla difüzyon
- 3) Çift üstel model: son olarak adsorbat molekülü ile adsorbanın aktif bölgeleri arasında adsorpsiyon ve desorpsiyonun gerçekleşmesi.

Genellikle, atık sulardan boyar madde kirleticilerinin uzaklaştırılmasında kimyasal kinetiğinin incelenmesi için üç farklı model tercih edilmektedir. Bunlar; sözde birinci dereceden, sözde ikinci dereceden ve parçacık içi (intrapartikül) difüzyon modelleridir.

Hızı kontrol eden basamağın belirlenmesi ve adsorban olarak kullanılmak üzere malzeme seçimini belirlemek için kimyasal kinetik kullanılır. Ayrıca adsorbanın yüzey alanı, parçacık boyutu, ortamın pH değeri ve adsorpsiyon süresi gibi faktörlerin reaksiyonu nasıl etkilediği hakkında bilgi sağlar [95].

2.2.4.1 Yalancı birinci mertebeden kinetik veya Lagergren modeli

Lagergren, 1898'de katı sıvı sistemler için yaygın olarak uygulanan ve kabul edilen bir yalancı birinci mertebeden kinetik model önermiştir [96] ve denklem aşağıdaki gibi ifade edilebilir:

$$\frac{dq}{dt} = k_1 (q_e - q_t) \quad (2.7)$$

$t=0$ da $q=0$ ve $t=t$ de $q=qt$ sınır şartlarında bu eşitlik integre edildiği zaman denklem 2.8 elde edilmektedir.

$$\log(q_e - q_t) = \log q_e - \frac{k_1}{2.303} * t \quad (2.8)$$

Denklemdaki sembollerin açıklaması şu şekildedir; q_e ve q_t (mg.g^{-1}) sırasıyla dengede ve t zamanında adsorbanın adsorplama kapasitesini belirtmektedir. Burada; t 'ye karşılık $\log(q_e - q_t)$ grafiğe geçirildiği zaman eğimi ($k_1/2.303$) ve kayma değeri $\log(q_e)$ olan bir doğru elde edilmektedir. Bu doğru yardımıyla k_1 (dk^{-1}) değeri hesaplanmaktadır.

Çeşitli adsorbanların yüzeyine katyonik boyar maddelerin adsorpsiyonu için birçok adsorpsiyon sistemi, yalancı birinci derece kinetik kullanılarak incelenmiştir. Sözde birinci mertebeden model, çözeltideki yüksek adsorbat konsantrasyonu için başarıyla uygulanabilir.

2.2.4.2 Yalancı ikinci mertebeden kinetik veya Ho ve McKay modeli

Yalancı ikinci mertebeden model, düşük konsantrasyonlu çözeltiler için adsorpsiyon kinetiğini araştırma avantajına sahiptir. Ho, turba yüzeyine iki değerlikli metal iyonlarının adsorpsiyonu için 1995 yılında yalancı ikinci dereceden kinetik modeli tanımlamıştır [97]. Sözde ikinci dereceden bir reaksiyonda, hız sınırlayıcı adımın kimyasal adsorpsiyon olduğu ve adsorpsiyon kapasitesinin esas olarak adsorban üzerindeki aktif yüzey bölgelerine bağlı olduğu varsayılır. Yalancı ikinci dereceden model için diferansiyel denklem şu şekilde temsil edilir:

$$\frac{dq}{dt} = k_2 (q_e - q_t)^2 \quad (2.9)$$

$t=0$ da $q=0$ ve $t=t$ de $q=q_t$ sınır şartlarında bu eşitlik integre edildiği zaman denklem 2.10 elde edilmektedir. Eşitlikte k_2 sözde ikinci mertebe hız sabitidir ($\text{g.mg}^{-1}.\text{dk}^{-1}$).

$$\frac{t}{q_t} = \frac{1}{k_2 q_e^2} + \frac{t}{q_e} \quad (2.10)$$

Denklemden yola çıkarak t değerine karşılık t/q_t değeri grafiğe geçirildiği durumda, elde edilen doğrunun eğim değeri ile q_e , kayma değerinden ise hız sabiti k_2 değeri belirlenmektedir. Daha çok düşük konsantrasyonlarda boyar madde ya da metal iyonları adsorpsiyonunda bu model sıklıkla kullanılmaktadır.

2.2.4.3 Elovich kinetik eşitliği

Elovich kinetik adsorpsiyon modeli veya "Roginsky Zeldovich" kinetik modeli, kemisorpsiyon ile daha uyumludur ve Roginsky ve Zeldovich (1934) tarafından

önerilmiştir [98]. İlk olarak karbonmonoksitin MgO yüzeyine adsorpsiyonunu açıklamak üzere bu model uygulanmıştır. Daha sonra Elovich ve Zhabrova, aynı denklemi izleyerek etilen ve hidrojenin adsorpsiyonunu üzerine araştırmalar gerçekleştirmişlerdir. Böylece Elovich denklemi, desorpsiyon olmadan adsorpsiyon kinetiğinin kimyasal yapısını açıklamak için kullanılmaktadır ve aşağıdaki gibi ifade edilebilir.

$$\frac{dq}{dt} = \alpha \exp(-\beta q) \quad (2.11)$$

eşitlikte α ve β , ilk adsorpsiyon hızı ($\text{mg.g}^{-1}.\text{dk}^{-1}$) ve Elovich sabitidir (g.mg^{-1}). Elovich denkleminin doğrusallaştırılmış formu şu şekilde temsil edilebilir:

$$q = \frac{1}{\beta} \ln(\alpha\beta) + \frac{1}{\beta} \ln t \quad (2.12)$$

Elovich kinetik modeli uygulanan herhangi bir adsorpsiyon işleminde, adsorpsiyon verilerinden $\ln t$ 'ye karşı q değerleri kullanılarak grafiğin çizilmesiyle bir doğru elde edilmektedir. β değeri doğrunun eğiminden elde edilir. Daha sonra kayma değeri ve β değeri kullanılarak α değeri hesaplanabilir.

2.2.4.4 Avrami kinetik eşitliği

Avrami adsorpsiyon kinetik modeli, son zamanlarda çeşitli adsorban ve adsorbatlar kullanılarak uygulanmıştır [99]. Bu model reaksiyon süresine ve sıcaklığa bağlıdır ve aşağıdaki denklem ile ifade edilir.

$$q_t = q_e \{1 - \exp[-k_A t]^{n_A}\} \quad (2.13)$$

eşitlikte k_A , Avrami kinetik sabitidir (s^{-1}) ve n_A , Avrami model sabitidir. Bu denklem integre edilebilir ve daha sonra aşağıdaki gibi doğrusal bir denkleme dönüştürülebilir.

$$\ln[-\ln(1 - a)] = n_A \ln(k_A) + n_A \ln(t) \quad (2.14)$$

Avrami kinetik modeli uygulanan herhangi bir adsorpsiyon işleminde, adsorpsiyon verilerinden $\ln(t)$ 'ye karşı $\ln[-\ln(1-\alpha)]$ değerleri kullanılarak grafiğin çizilmesiyle bir doğru elde edilmektedir. Bu doğrunun eğim ve kayma değerleri ile sabitler belirlenmektedir.

2.3 Yapılan Çalışmalar

Bu kısımda geçmişte yapılan ve bu kapsamlı tez çalışmasına öncülük eden bazı çalışmalara özet şeklinde değinilecektir. Geopolimer üretimini etkileyen faktörler, kullanılan ham maddeler, kullanım amacına göre belirli bir sınıflandırma yapılarak bu çalışmalardan bahsedilecektir.

Bir çalışmada, Uçucu küle yüksek fırın cürufu ilavesinin geopolimer betonun performansı üzerindeki kullanımı ve etkisi sunulmuştur. Geopolimer betonla karşılaştırmak için portland çimento betonu karışımının bir referansı kullanılmıştır. Farklı oranlarda GGBFS ilavesinin, ortam kürünün ve kür süresinin geopolimer betonun özellikleri üzerindeki etkisi rapor edilmiştir. Tüm geopolimer beton karışımları için sodyum hidroksit çözeltisi konsantrasyonu 8 M ve çözelti/bağlayıcı oranı 0.4 olarak alınmıştır. Mikroyapısal özellikleri tahmin etmek için seçilen örnekler üzerinde SEM analizi yapılmıştır. Sonuçlar, 28 günlük ortam sıcaklığında %60 GGBFS ve %40 uçucu kül içeren bir geopolimer beton karışımının maksimum basınç dayanımına (55.63 MPa) ulaştığı bildirilmiştir [100].

Başka bir çalışmada, geopolimer harç farklı uçucu kül/öğütülmüş yüksek fırın cürufu (GGBFS) oranları kullanılarak hazırlanmış ve sodyum silikat ve sodyum hidroksit çözeltisi ile aktive edilmiştir. Çalışmada fiziksel özellikler ve mekanik dayanım araştırılmış ve Portland çimento harcı (OPC) ile karşılaştırılmıştır. Yüksek sıcaklığa maruz kaldıktan sonra malzemenin mikro yapısı çeşitli mikrokarakterizasyonlarla incelenmiştir. Sonuçlar, yüksek sıcaklığa maruz kalmadan önce, GGBFS ilavesinin malzemenin basınç dayanımını arttırdığını, ancak onu ön yükleme hasarına karşı daha zayıf hale getirerek, artan güç kaybına yol açtığını göstermektedir. Yüksek sıcaklık dayanımında ise 300 °C değerinde iyi sonuçlar göstermiştir. Ancak 500 ve 700 °C sıcaklık değerlerinde yüksek ısıya maruz kalmalarında dolayı malzemenin fiziksel görüntüsünde ve mukavemetinde düşüşler gözlenmiştir [101].

Dehghani ve diğerleri tarafından yapılan bir çalışmada, $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ 'ün başlangıç molar oranının ve uçucu külün öğütülmüş yüksek fırın cürufu (GGBFS) ile değiştirilmesinin uçucu kül ile üretilen geopolimerlerin özellikleri üzerindeki etkisini incelenmiştir. Bu çalışmada üretilen geopolimer malzemeler çevre dostu ve ortam sıcaklığında kendiliğinden gerçekleşen reaksiyonlarla meydana gelen geopolimer beton üretimine uygundur. Sonuçlar ise, $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ oranındaki artışın metakaolin yapıları geopolimerlerin aksine uçucu kül-

cüruf geopolimer sistemlerinin prizini hızlandırdığını göstermiştir. $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ oranının artmasıyla basınç dayanımında tam belirgin olmayan bir eğilim gözlenmiştir. $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ oranı 3,37 ($\text{Si}/\text{Al} = 1,68$) olduğunda elde edilen basınç dayanımı maksimum değerine ulaşmıştır. Bu oranda malzemenin daha yüksek değerlerde basınç dayanımı göstermesi, geopolimer mikroyapısının %81-84'ünden fazlasını oluşturan amorf alandaki alümina-silika bağları ile ilgili olabilir. Ayrıca bu çalışma GGBFS ile uçucu kül ikamesindeki azalmanın, geopolimer karışımlarının priz süresini uzattığını ve basınç mukavemetlerini önemli ölçüde azalttığını ortaya koymuştur [102].

Si/Al molar oranındaki değişimin metakaolin geopolimerlerinin orta ve makro ölçekli termal stabilitesi üzerindeki etkisi ve performansı yöneten temel mekanizmaları keşfetmek için Lahoti ve diğerleri tarafından kapsamlı bir şekilde araştırılmıştır. Si/Al molar oranındaki değişimin metakaolin geopolimerlerinin orta ve makro ölçekli termal stabilitesi üzerindeki etkisi ve performansı yöneten temel mekanizmaları keşfetmek için kapsamlı bir şekilde araştırılmıştır. Sonuçlara göre, tüm geopolimer numunelerinin $900\text{ }^\circ\text{C}$ 'ye kadar yüksek sıcaklığa maruz kaldıktan sonra basınç dayanımlarında azalma yaşadığını göstermektedir. Geopolimer karışımları, mikro ölçekte iyi kimyasal stabilite sergilemelerine rağmen, çok yüksek termal büzülme ile orta ölçekte zayıf hacim stabilitesine sahiptirler. Numunelerin $900\text{ }^\circ\text{C}$ 'ye maruz kalması durumunda ve daha da yüksek bir Si/Al oranında, reaksiyona girmemiş silikanın ısıtıldığında köpürmesi numunenin genleşmesine ve çatlamasına yol açarak mukavemeti azaltmıştır. Yüksek derecede çatlama hasarı ve düşük kalıntı mukavemet tutma nedeniyle, yapısal yangına dayanıklılık uygulamaları için metakaolin geopolimerlerinin makro ölçekli stabilitesinin iyileştirilmesinin gerekli olduğu belirlenmiştir [103].

Başka bir çalışmada, NaOH ve $\text{NaOH} + \text{Na}_2\text{SiO}_3$ içinde aktifleştirilmiş C sınıfı uçucu kül (FA) ve öğütülmüş yüksek fırın cürufu (GGBS) içeren geopolimer malzemelerin, priz süresi, basınç dayanımı, gözeneklilik, mikro yapı ve kristal fazların oluşumu açısından incelenmiştir. Alkali tipinin FA ve GGBS geopolimer kompozitleri üzerindeki etkileri karşılaştırıldığında, sonuçlar NaOH 'nin daha mukavemetli ve daha yoğun mikro yapı geliştirmede $\text{NaOH} + \text{Na}_2\text{SiO}_3$ 'e göre daha az etkiye sahip olduğunu ortaya koymuştur. Çünkü Na_2SiO_3 ilavesi silika kaynağının daha kompakt bir yapı geliştirmesini sağlar. Na_2SiO_3 'ün ortamda bulunması kristalliği azaltmaktadır ve malzeme, NaOH ile aktifleştirilmiş malzemelere kıyasla daha amorf olmaktadır. C sınıfı FA ve GGBS

karışımları, uçucu kül içeriğindeki artışla birlikte priz süresinde artma, mukavemetin azalması ve daha gevşek yapılı matris ile sonuçlanmıştır. Kalsiyumun karışımlardaki reaktivitesinin, artan uçucu kül içeriği ile gözlenerek mukavemet kaybına yol açtığı gözlemlenmiştir. XRD modellerinden, uçucu küldeki kalsiyumun C-S-H bağının oluşumuna katkıda bulunmadığı, ancak kristalin kalsit oluşumunun gözlemlendiği belirlenmiştir. Ayrıca, XRD analizleri, uçucu küldeki azalmanın kristallikte azalmaya yol açtığını ortaya koymuştur ve SEM mikrografları, daha yoğun bir matris oluşumunu engelleyen reaktif olmayan uçucu kül parçacıklarını göstermiştir [104].

Geopolimer teknolojisi kullanılarak üretilen betonun sürdürülebilir ve ekonomik olduğu düşünülmektedir. Kuun ve diğerleri taramalı elektron mikroskopu/enerji dağılımlı X-ışını spektroskopisi (SEM/EDX), X-ışını kırınım yöntemi (XRD), Fourier-dönüşümlü kızılötesi spektroskopisi (FT-IR), kinetik oranlar yoluyla dayanım ve mikroyapısal karakterizasyonuna dayalı olarak geopolimer bağlayıcılarda Na_2SiO_3 'ün NaOH'ye optimum bağlanma oranını bulmayı amaçlamıştır. Sonuç olarak 1.5 olan $\text{Na}_2\text{SiO}_3/\text{NaOH}$ oranının, geopolimer betonun polimerizasyonunda önemli bir artışa sahip olduğunu ve bunun da diğer oranlardan daha iyi basınç dayanımı ve mikroyapısal özelliklerle sonuçlandığını ortaya koymuştur. Ek olarak, düşük molarite (2M) ve 1.5 $\text{Na}_2\text{SiO}_3/\text{NaOH}$ oranının kullanılmasının alkali çözeltinin işlenmesiyle ilgili riski azalttığı belirlenmiştir ancak bu derece düşük molarite ile üretim yapmak malzemenin kalitesini düşürdüğü ifade edilmiştir [105].

Bir araştırma, şeker kamışı küspesi külü kullanılarak üretilen geopolimer malzemelerin sodyum hidroksit (NaOH) ve potasyum hidroksit (KOH) aktivatörlerinin etkilerini araştırmayı amaçlamıştır. Çalışmada çimentoya eklenen şeker kamışı küspesi külü ilavesi ağırlıkça harcın %20'si kadardır. NaOH ve KOH karışımı, olası tüm kombinasyonlar için %0, %20, %40, %60, %80 ve %100'lük karıştırma yüzdeleriyle ve 4, 8 ve 12 M konsantrasyonlarda hazırlanan çözeltilerden oluşmaktadır. Olası her bir çözelti kombinasyonu üzerinde bir pH testi yapıldığı ifade edilmiştir. Şeker kamışı küspesi külünün puzolanik reaktivite gösterip göstermediğini kontrol etmek için bir Chapelle testi, XRD, X-ışını floresan (XRF) ve SEM analizleri kullanılmıştır. Ayrıca, geopolimer çimento macunu basınç dayanımı, su emme, geçirgen gözeneklilik ve emicilik açılarından test edilmiştir. Molarite arttığında geopolimer-çimento hamurunun kontrol karışımlarından daha yüksek su emme değerleri gösterdiği tahmin edilmiştir. Bununla birlikte, 8 M

aktivatör solüsyonunun kombinasyonları ile hazırlanan numuneler, 4 ve 12 M aktivatör çözeltileri ve diğer geopolimer karışımları ile karşılaştırıldığında tutarlı absorpsiyon, emme ve basınç dayanımı değerleri sergilediği belirlenmiştir [106].

Portland çimentosuna (OPC) bir alternatif olarak uçucu kül, sodyum silikat ve sodyum veya potasyum hidroksitten (NaOH veya KOH) oluşan bir geopolimer malzeme üretimi İnti ve diğerleri tarafından gerçekleştirilmiştir. Ölçülen mukavemet altyapı uygulaması için uygun olsa da, NaOH'nin yüksek molaritesi tehlikeli çalışma ortamı yaratmaktadır ve ekonomik olarak ek maliyete sebep olmaktadır. Bu nedenle çalışmanın odak noktası, geopolimer üretiminde düşük molariteli (4 M) sodyum hidroksit kullanımını değerlendirmek olarak belirlenmiştir. Ayrıca kürlenme rejiminin düşük molariteli geopolimerin mukavemet ve yapısı üzerindeki etkisini belirlemek için bir dizi testler gerçekleştirilmiştir. Bu çalışmada, kürlenme rejimini optimize etmek ve düşük molar NaOH ile üretilen geopolimerin uzun vadeli dayanıklılığını sağlamak için daha fazla araştırmaya ihtiyaç olduğu düşünülmüştür [107].

Başka bir çalışmada, kaynak malzeme olarak öğütülmüş granüle yüksek fırın cürufu ile geopolimer bağlayıcıların üretiminde silika bazlı aktivatörlerin yerine tarımsal sanayi yan ürünü pirinç kabuğu külü kullanımının uygulanabilirliğini araştırılmıştır. Değişen konsantrasyonlarda sodyum hidroksit (Pirinç külü: NaOH oranı 1:0.5, 1:1.0 ve 1:1.5) ve işlem süresi (1, 2 ve 3 saat) olacak şekilde geopolimer bağlayıcı geliştirmek için işlemler gerçekleştirilmiştir. 100 °C'lik sabit sıcaklıkta işlemler gerçekleştirilmiştir. Geopolimer harç örnekleri, değişen karışım oranları için mukavemet, mineraloji ve mikro yapı için karakterize edilmiştir. Mukavemet özelliklerinden, optimum işlem süresi 2 saat olarak bulunmuş ve 3, 7 ve 28 gün zaman zarfında 2 saat işlem süresine sahip numuneler için ortam kürlenme koşullarında müteakip mikroyapısal özellikler değerlendirilmiştir. Üretiminde enerji gereksinimi ve karbon ayak izi açısından iyileştirilmiş ekolojik özelliklerin yanı sıra tarımsal kül kullanılarak hazırlanan geopolimer numuneleri ile iyileştirilmiş mikroyapı özellikleri ile basınç dayanımı sonuçlarında karşılaştırılabilir bir gelişme gözlemlendiği bildirilmiştir [108].

Sodyum silikat, ticari olarak üretilen geopolimerde yaygın olarak kullanılan bir aktivatördür. Bir çalışmada, geopolimer bağlayıcı için bir aktivatör olarak tarımsal atıklardan elde edilen pirinç kabuğu külü (RHA) kullanılmıştır. Bu beyaz renkli kül, farklı molaritelerde (8, 10 ve 12) NaOH ile beraber uygulanmıştır ve daha sonra uçucu kül

kaynaklı geopolimer bağlayıcı sentezlemek için kullanılmıştır. Geopolimerizasyon ürünlerinin mikro özelliklerini araştırmak için SEM, XRD ve FTIR uygulanmıştır. Numuneleri ölçmek ve değerlendirmek için kütle yoğunluğu, su emme, basınç dayanımı, eğilme dayanımı ve kırılma tokluğu deneyleri gerçekleştirilmiştir. Mikroyapı analizi ile hidratlı kalsiyum alümina silikat jeli (C-A-S-H) oluştuğu belirlenmiştir ve SEM görüntüsü de kompakt bir geopolimer matrisin oluştuğu gözlenmiştir. Bu nedenlerden dolayı pirinç kabuğu külü iyi bir yapısal ağa sahip geopolimer bağlayıcı üretmek için bir aktivatör veya reaktif malzeme olarak kullanılabilirdiği sonucuna varılabilir [109].

Yapılan bir araştırmanın amacı, termik santrallerde kullanılan kömürün yanmasından sonra kalan uçucu külü ve biyokütle külünü kullanarak geopolimer malzeme sentezlemektir. Geopolimerizasyon sürecinde aktivatör olarak yüksek konsantrasyonda sodyum hidroksit ve sodyum silikat çözeltileri kullanılmıştır. Sonuçlara göre geopolimerlerin üretimi için kaynak materyal olarak hem kömür uçucu külünün hem de biyokütle külünün kullanılabilirdiğini göstermiştir. Kömür ve biyokütle yanmasından elde edilen küller için ve üretilen geopolimer malzemeler için yüzey morfolojisi ve kimyasal bileşim analizleri SEM-EDS yöntemleri ile incelenmiştir. Kömür yanmasıyla elde edilen uçucu kül ihtiva eden geopolimer için küresel tane biçimlerinin neredeyse tamamen ortadan kalktığı ve yapının gözenekliliğini azalttığı belirlenmiştir. Biyokütle yanmasından kaynaklanan kül içeren geopolimer katkılı malzemelerin yapısının ise daha gözenekli olduğu belirlenmiştir. UV-VIS-NIR spektrumları, kömür uçucu külü, biyokütle külü ve geopolimerler üzerinde gerçekleştirilmiştir. Elde edilen geopolimerlerin optik ve fotokatalitik özelliklere sahip olduğunu gösterilmiştir. Ayrıca FT-IR spektrum analizleri, metal iyonlarının geopolimer malzemeler kullanılarak giderilmesi öncesi ve sonrası numunelerde gerçekleştirilmiştir. Biyokütle yanmasından kaynaklanan kül içeren geopolimerlerin, kömür yanmasından kaynaklanan uçucu kül içeren geopolimerlere kıyasla daha iyi metal iyonları giderme özelliklerine sahip olduğu belirlenmiştir [110].

Çeşitli sentez koşulları altında (100 °C (14 saat) ve 130 °C (3 saat)) klinoptilolit dolgu maddesi içeren metakaolinin alkali aktivasyonu yoluyla hazırlanan geopolimer numuneleri, sulu çözeltilerden formaldehit gideriminde adsorban olarak kullanılmaktadır. Çalışmada geopolimer adsorbanların yapısı ve fizikokimyasal özellikleri XRD, XRF, SEM ve kimyasal yöntemler kullanılarak incelenmiştir. Geopolimerlerin sentezinde klinoptilolit dolgu maddesinin eklenmesi, spesifik yüzey ve gözenek hacminde hafif bir artışa neden

olmuştur. Geopolimer adsorban numuneleri, formaldehitin (0.064-0.366 M) sulu çözeltilerinde güçlü adsorpsiyon kabiliyeti göstermiştir. Doğal klinoptilolit örneğinin 2-3 katı olan geopolimerlerin katyon değişim kapasitesi, formaldehit için güçlü adsorpsiyon kapasitelerinin olası nedeni olarak düşünülmüştür. Katyon değişiminin doğası (Na^+ , NH_4^+ , Cu^{2+}) formaldehitin (fiziksel adsorpsiyon, kimyasal adsorpsiyon ve kompleksleşme) adsorpsiyon prosesinin büyüklüğünü ve baskın mekanizmasını belirlediği anlaşılmıştır. Ayrıca geopolimer adsorbanlarda NH_4^+ ve Cu^{2+} formları durumunda Na^+ formuna kıyasla daha yüksek formaldehit adsorpsiyon değerleri elde edilmiştir [111].

Amorf bir madde olan geopolimerler, iyi bir adsorban veya katalizör olarak görülmüş ve dünyanın her yerinden büyük ilgi görmüştür. Bu alanlarda geopolimerin daha iyi uygulamalarını elde etmek için, geopolimerin mikro yapısının derinlemesine anlaşılması şiddetle gerekli olmaktadır. Bir çalışmada, uçucu külden geopolimer malzeme sentezlenmiş ve çeşitli metal iyonlarının (Li^+ , Cs^+ , Sr^{2+} ve Co^{2+}) adsorpsiyonundan sonra geopolimerin yapısal analizi XRD, SEM-EDX, FTIR, UV-VIS DRS, TG-DTA'nın yanı sıra yüzey alanı ve gözenek dağılım analizi yöntemleri kullanılarak gerçekleştirilmiştir. Bu ve bunun gibi çalışmalarla uçucu külden elde edilen geopolimer malzemeler ile bazı metal iyonlarının immobilizasyonunun gerçekleştirilebildiği gösterilmiştir [112].

Bir makalede, stronsiyum immobilizasyonu için sıradan Portland çimentosu ve metakaolin kaynaklı geopolimer blokların performanslarının karşılaştırılması üzerine çalışılmaktadır. Geopolimer blok malzemelerin deiyonize su, magnezyum, sülfürik ve asetik asit tampon çözeltilerinde çimento yapılı blok malzemelere göre daha iyi liç direncine sahip olduğu belirlenmiştir. Bu arada, oluşturulan geopolimer yapılar, donma-çözülme döngüleri ve yüksek sıcaklık testlerinden sonra daha düşük basınç dayanımı kaybı sergilemiştir. Geopolimer numunelerinin daha yoğun ve kompakt yapıda olması, stronsiyum radyonüklidin tutulması için daha başarılı olduğu belirlenmiştir. Geopolimer ve çimento ile katılmış bloklar içindeki stronsiyum radyonüklidin çoğu, amorf jel yapısına dahil olduğu düşünülmektedir. Metakaolin yapılı geopolimer matrisin çok daha iyi sertleşme performansı gösterdiği ve radyoaktif atık immobilizasyonu için daha uygun olduğu sonucuna varılabilir [113].

Zeolitler, radyoaktif atık sıvının saflaştırılması için tercih edilen inorganik iyon değişim malzemeleridir. Radyoaktif atık olarak kabul edilen radyonüklid yüklü zeolitlerin katı bir matris içinde kesinlikle kapsüllenmesi gerekmektedir. Bir çalışmada, ^{90}Sr radyonüklid

yüklü zeolitlerin metakaolin kullanılarak elde edilen geopolimerde immobilizasyonu araştırılmıştır. Elde edilen harç 28 gün kürlendikten sonra geopolimer katılmış ürününün basınç dayanımı 37.62 MPa iken, çimento blok için bu değer sadece 11.32 MPa olarak ölçülmüştür. XRD ve EDS analizleri, geopolimer katılmış bloklardaki stronsiyum radyonüklidin çoğunun yük dengeleme katyonu olarak zeolit yapısına dahil edildiğini göstermiştir. Ayrıca mikroskopik analizler geopolimer matrisin daha kompakt ve yoğun görüldüğünü ve Sr yüklü zeolit A'yı çimentoya göre daha sıkı bir şekilde kapsülediğini ortaya çıkarmıştır. Bu nedenle, metakaolin bazlı geopolimerin daha uyumlu olduğu ve radyoaktif atık immobilizasyonu için dikkate değer bir avantaj sunduğu sonucuna varılabilir [114].

Nükleer santrallerdeki madeni yağlar radyonüklidlerle kirlenebilir. Ayrıca depolama ve bertaraf sırasında ayrıştıkları ve geleneksel çimentolu stabilizasyon yöntemlerine uygun olmadıkları için arıtması gereken zorlu bir atık haline gelebilir. Bir çalışma, çimento ve bitüme kıyasla avantajları nedeniyle yenilikçi bir teknoloji olan geopolimer kullanılarak radyoaktif atıkların immobilizasyonuna değinmektedir. Bu radyoaktif atık içeren kullanılmış yağların immobilizasyonu için iki malzeme yaygın olarak kullanılmaktaydı; birincisi, petrolün dekontaminasyonu için bir emici malzeme olarak kullanılan bentonit ve ikincisi, yağın tamamen emildiği ticari bir polimer malzemelerdi. Her iki alternatif için atıklar bir geopolimer matrisinde hareketsizleştirildi (immobilizasyon) ve bu yapının basınç dayanımı, süzülme özellikleri ve homojenliği gibi nihai özellikleri değerlendirilmiştir. Ayrıca çeşitli analiz yöntemleriyle bu çalışmanın olumlu yanları ve oluşan yapılar gösterilmiştir [115].

Başka bir çalışmada, geopolimer (GP-M), kalsiyum alüminat (CAC-M) ve Portland çimentosu (PC-M) ham maddeli harçları asetik asit ortamına alınarak dayanımları karşılaştırılmıştır. Bu üç tip malzemedeki, hangi bağlayıcı türünün dahil olduğuna bağlı olarak farklı bozunma seviyelerine göre sınıflandırılma yapılmıştır. Kütle kaybı, sertlik ve bozulma derinliği dışında, mikroyapısal değişiklikleri, enerji dağılımlı spektroskopisi (SEM-EDS), cıva intrüzyon porozimetrisi (MIP), toz X-ışını kırınımı (XRD) ile taramalı elektron mikroskobu gibi test yöntemleri kullanılarak analiz edilmiştir. Ayrıca her bir bağlayıcı türü için farklı mekanizmaları gösteren termogravimetrik analiz diferansiyel tarama kalorimetresi (TGA-DSC) kullanılmıştır. Kütle kaybı, sertlik ve gözeneklilik GP-M için en az etkilenen malzeme olurken, bunu CAC-M takip etmiştir. Bu sonuçlar, geopolimer yapıları

harçların, agro-endüstriyel ortamlara maruz kalmış geleneksel çimento betonlarına potansiyel bir alternatif olarak kullanılabilir asit direncini sağlayabildiğini göstermektedir [116].

Bir çalışma, yüksek sıcaklıkta ısıl işlemin sertleştirilmiş uçucu kül geopolimer bağlayıcıların alkali ortam direnci üzerindeki etkisini araştırmak üzere gerçekleştirilmiştir. Geopolimer harçların hazırlanması için düşük kalsiyumlu (Sınıf F) uçucu külü etkinleştirmek için bir sodyum silikat ve sodyum hidroksit karışımı kullanılırken, ince agrega olarak reaktif olmayan standart silika kumu kullanılmıştır. Basınç dayanımı ve alkali genleşme testleri için sırasıyla 50 mm boyutunda küpler ve 25 x 25 x 285 mm prizma kalıplara dökülmüştür. Sertleşen geopolimer harçlar, 100, 200, 400 veya 600 °C'lik çeşitli sıcaklıklarda 6 saat boyunca kurutmaya tabi tutulmuştur. Daha sonra su, 1 M, 3 M NaOH içeren farklı çözeltilere daldırılarak 28 gün boyunca 80 °C'de muhafaza edilmiştir. Yüksek sıcaklıkta işlem görmüş numunelerin su altında veya NaOH çözeltilerinde saklanmasından önce ve sonra basınç dayanımı ve uzunluk değişimi ölçümleri yapılmıştır. Ayrıca, X-ışını kırınımı ve taramalı elektron mikroskobu kullanılarak analiz çalışmaları yapılmıştır. Elde edilen sonuçlar, 200 °C'de gerçekleştirilen kürlemenin, sertleştirilmiş uçucu kül geopolimer harçlarının alkali ortam dayanımları için önemli ölçüde direnç sağladığını ve genleşmeyi %50 oranında azalttığını göstermiştir [117].

Asit aktivatörlerin kullanıldığı bir çalışmada, fosforik asit aktivasyonu yoluyla daha yaygın olarak kullanılan susuz kaolinit yerine doğal kaolinitin geopolimerizasyonuna odaklanılmaktadır. Sonuçlara göre, asitle aktive olan kaolinitin basınç dayanımının, mikro yapısının ve kimyasal bileşiminin fosforik asit konsantrasyonundan büyük ölçüde etkilendiğini göstermiştir. Kaolinit, 10 mol/L ve 12 mol/L fosforik asit ile asitle aktive edildiğinde, P–O–Al ağ yapılı geopolimer elde edilmiştir; ancak ürünler düşük basınç dayanımı sergileyen gözenekli ve homojen olmayan mikro yapıya sahip olduğu belirlenmiştir. Kaolinit 14 mol/L fosforik asit ile asitle aktive edildiğinde, kompakt ve yoğun mikro yapıya sahip Si–O–P–O–Al ağları ile baskın geopolimer sentezlenmiştir. Ayrıca bu sonuçlar, fosforik asit aktivatörlü geopolimerin hazırlanması için başlangıç materyali olarak kaolinit kullanmanın uygulanabilirliğini göstermektedir. Bu çalışmanın bulguları, sadece kaolinitin uygulama alanını genişletmek için değil, aynı zamanda geopolimer hazırlamada enerji girdisini azalttığı için de anlam taşımaktadır [118].

3. MALZEME VE YÖNTEM

Tez çalışması kapsamında geopolimer malzeme üretimi için seçilen kaynak materyaller, endüstriyel atıklar, tarımsal atıklar ve kullanılan kimyasal maddeler hakkında bilgiler bu kısımda verilmektedir. Elde edilen bu yenilenebilir malzemenin üretim yöntemi, hazırlık evresinde yapılan işlemler ve malzemenin bazı özelliklerinin belirlenebilmesi için yapılan işlemlerden bahsedilmektedir. Potansiyel uygulamalarına örnek teşkil edebilecek yapılan çalışmalar ve bazı dayanım çalışmaları incelenmektedir. Ayrıca bu bölümde tüm üretim sürecinde kullanılan araç ve gereçler hakkında bilgi verilmektedir.

3.1 Kullanılan Ham Maddeler ve Katkı Maddeleri

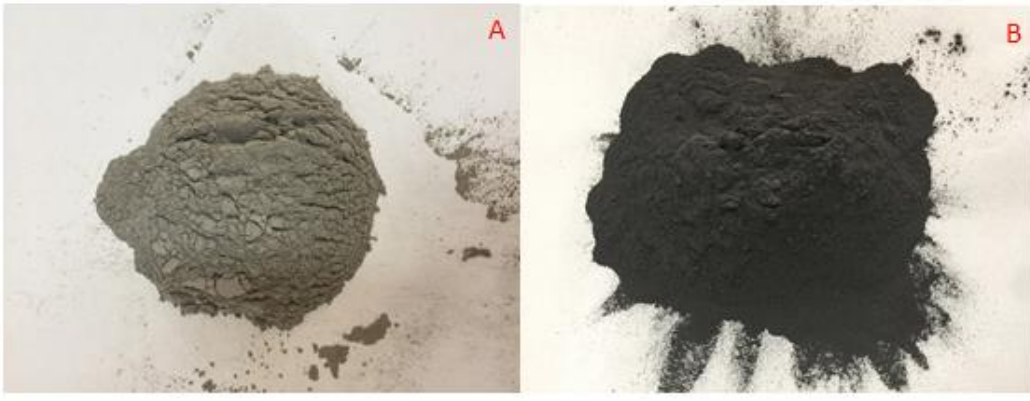
Çevre dostu ve sürdürülebilir geopolimer malzemeleri üretebilmek için kaynak malzemeler silika ve alümina açısından zengin olmalıdır. Çalışma kapsamında ham madde olarak uçucu kül ve yüksek fırın cürufu kullanılmıştır. Çevre dostu malzeme üretimi amaçlandığı için bu malzemelerin seçilmesindeki temel neden endüstriyel atıklar olmalarıdır ve bu sayede atıkların geri dönüşümü ile çevre kirliliği azaltılarak malzeme üretimi yapılmış olmaktadır.

Katkı malzemesi olarak benzer yaklaşımlarla tarımsal atıklar kullanılmaktadır. Katkı malzemelerinin kullanım amacı ise geopolimer malzeme üretiminde kullanılan kimyasal aktivatörlerin konsantrasyonunda düşüş sağlayarak çevre dostu ve sürdürülebilir bir etki elde etmektir. Çalışma kapsamında birbirleriyle mukayese edebilmek ve literatürde olmayan özgün bir değer sağlayabilmek adına birçok çeşit tarımsal atık kullanılmıştır. Bunlar; kanyaş otu (*Sorghum halepense*), mısır kabuğu ve yer fıstığı kabuğu olmak üzere üç çeşittir.

3.1.1 Uçucu kül

Bu çalışmada farklı uçucu küllerin geopolimer malzeme üretimine etkisini inceleyebilmek için iki çeşit uçucu kül kullanılmıştır. Bunlardan biri Zonguldak ili Çatalağzı mevkiinde bulunan Eren Termik Santrali'nden temin edilen uçucu küldür. Diğeri ise Kardemir Karabük Demir Çelik Termik Santrali atığı olan uçucu küldür. Her iki numune, ASTM C 618 standardına göre [119] bitümlü kömürden üretilen toplam $\text{SiO}_2+\text{Al}_2\text{O}_3+\text{Fe}_2\text{O}_3$ yüzdesi %70'den fazla olduğu için F sınıfı uçucu küller olarak adlandırılmaktadır. Aynı zamanda

bu küllerde CaO yüzdesi %10'un altında olduğu için düşük kireçli olarak da adlandırılırlar. F sınıfı uçucu küller, puzolanik özelliğe sahiptirler. Ayrıca TS EN 197-1'e göre [120] sınıflandırıldığında ise, kullanılan iki örnekte silissi (V) uçucu kül sınıfına girmektedir. Bu sınıftaki uçucu küller, genellikle puzolanik özelliklere sahip küresel yapıda taneciklerden oluşan ince bir toz formunda olup, büyük oranda silisyum dioksit (SiO_2) ve alüminyum oksitden (Al_2O_3) oluşmaktadır. Bu tipteki küllerde, reaktif kireç (CaO) oranının %10'dan az, reaktif silis miktarının %25'den fazla olduğu bilinmektedir. Temin edilen uçucu küller 200 mesh altına elendikten sonra çalışmalarda kullanılmak üzere uygun ortamlarda depolanmıştır. Uçucu küllerin görselleri Şekil 3.1 ile gösterilmektedir.



Şekil 3.1 : A-Zonguldak uçucu külü ve B-Karabük uçucu külü.

3.1.2 Yüksek fırın cürufu

Tez çalışmasında geopolimer malzeme üretiminde kaynak malzemelerin etkisini daha kapsamlı bir şekilde belirleyebilmek adına uçucu küllerin yanı sıra Kardemir Karabük demir-çelik tesislerinden temin edilen granüle yüksek fırın cürufu kullanılmıştır. Cüruf örnekleri öğütüldükten sonra 200 mesh altına elenip daha sonra çalışmalarda kullanılmıştır. Çalışmada kullanılan granüle yüksek fırın cürufunun görseli Şekil 3.2 ile gösterilmektedir.



Şekil 3.2 : Granüle yüksek fırın cürufu.

3.1.3 Kanyaş otu (*Sorghum halepense*) külü

Türkiye’de hemen hemen çoğu bölgede görebileceğimiz tarım arazilerinde istenmeyen şekilde gelişen bir bitki türü olarak *sorghum* cinsi bitkiler yetişmektedir. Tarımsal üretimde istenmeyen bir ürün olduğu için genellikle çiftçiler tarafından koparılarak doğaya terk edilmektedir. Çalışmalarımızda kullandığımız *halepense* türü bitki Malatya ili Doğanşehir ilçesinden temin edilmiştir. Kurumuş olan bitki örneği geniş bir metal kap içerisinde doğal olarak yakıldıktan sonra 500 °C sıcaklıkta kül fırınında yaklaşık 60 dk bekletilmek suretiyle külleri elde edilmiştir. Çalışmada kullanılan kuru kanyaş otunun ve elde edilen külünün görseli Şekil 3.3 ile gösterilmektedir.



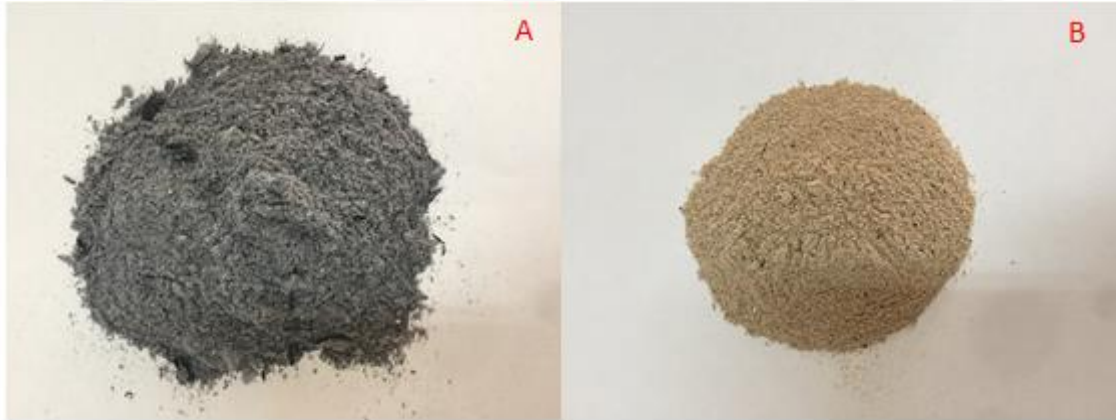
Şekil 3.3 : Kanyaş otunun hazırlanması.

3.1.3 Mısır kabuğu külü

Ülkemizde bol miktarda üretimi yapılan bitkilerden biri olan mısırın kabuğu çoğunlukla doğaya terk edilmektedir. Bu durum düşünülerek çalışmada geopolimer üretiminde katkı malzemesi olarak mısır kabuğu külü kullanılmıştır. Bu sayede diğer katkı malzemeleriyle de mukayese yapılması sağlanmıştır. Çalışmada kullanılan mısır kabuğu Malatya il civarından temin edildikten sonra laboratuvarında serilerek kurutulmuştur. Metal kap içerisinde doğal olarak yakıldıktan sonra 500 °C'de yaklaşık 60 dk kül fırınında bekletilerek külleri elde edilmiştir. Çalışmada kullanılan mısır kabuğu külünün görseli Şekil 3.4 ile gösterilmektedir.

3.1.4 Yer fıstığı kabuğu külü

Çok miktarda üretimi yapılan başka bir tarımsal ürün olan yer fıstığının kabukları, diğer tarımsal ürünlere benzer şekilde doğaya bırakılmaktadır. Çalışmada Adana yöresinden temin edilen yer fıstıklarının açık renkli dış kabukları kullanılmıştır. Deneysel çalışmada kullanılmak üzere parçalanıp toz haline getirilen fıstık kabukları kül fırınında 500 °C sıcaklıkta yaklaşık 60 dk bekletilerek külleri elde edilmiştir. Çalışmada kullanılan yer fıstığı kabuğu külünün görseli Şekil 3.4 ile gösterilmektedir.



Şekil 3.4 : A- Mısır kabuğu külü B- Yer fıstığı kabuğu külü.

3.2 Kullanılan Kimyasal Maddeler

Çalışma kapsamında, geopolimer malzeme üretimi ve elde edilen bu malzemelerin çeşitli testlerinde ve uygulamalarında çok sayıda kimyasal madde kullanılmıştır. Kullanılan kimyasal maddeler ve bazı özellikleri Çizelge 3.1'de verilmektedir.

Çizelge 3.1 : Kullanılan kimyasal maddeler ve bazı özellikleri.

Kimyasal Adı	Marka	Kimyasal formülü
Sodyum Hidroksit	Sigma-aldrich	NaOH
Potasyum Hidroksit	Tekkim	KOH
Sodyum metasilikat	Tekkim	Na ₂ SiO ₃
Potasyum silikat	Thermo Scientific	K ₂ O ₃ Si
Titanyum dioksit	Tito	TiO ₂
Sezyum nitrat	Sigma-aldrich	CsNO ₃
Stronsiyum nitrat	Sigma-aldrich	Sr(NO ₃) ₂
Fosforik asit	Tekkim	H ₃ PO ₄
Hidroklorik asit	Sigma-aldrich	HCl
Metilen mavisi	Carlo Erba	C ₁₆ H ₁₈ ClN ₃ S

3.3 Kullanılan Cihazlar

Numunelerin hazırlanması sürecinde laboratuvar ortamında kullanılan alet, düzenekler ve gerçekleştirilen analizlerde kullanılan cihazlar Çizelge 3.2 ile verilmektedir. Temin edilen endüstriyel ve tarımsal atıkların ayrıca üretilen malzemelerin morfolojik yapısı, karakterizasyonu ve yüzey analizleri için Bilimsel Araştırma Projeleri (BAP) Biriminden sağlanan proje desteği ile çeşitli analizler gerçekleştirilmiştir. Bu analizlerin çoğunluğu İnönü Üniversitesi Bilimsel ve Teknolojik Araştırma Merkezinde (İBTAM) gerçekleştirilmiştir. Ayrıca XRF analizi Kastamonu Üniversitesi Merkezi Araştırma Laboratuvarı Uygulama ve Araştırma Merkezinde (MERLAB) gerçekleştirilmiştir.

Çizelge 3.2 : Kullanılan cihazlar ve bazı özellikleri.

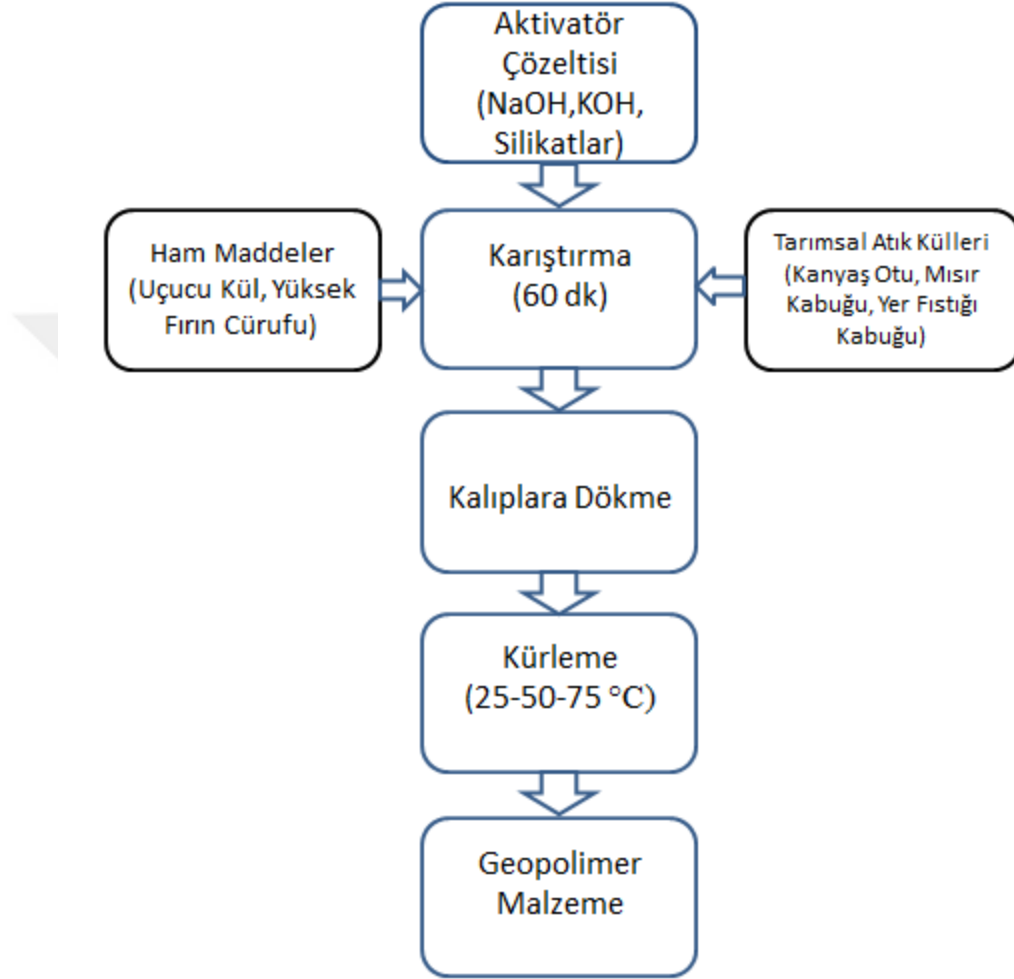
Cihaz	Marka	Model	Kullanım Amacı
Laboratuvar Terazisi	Radwag	PS 360	Numune Tartımı
Moleküler Elek	Retsch	-	Boyutlandırma, Eleme
Isıttıcılı Manyetik Karıştırıcı	JKI	MSH-Pro	Karıştırma
Etüv	MICROTEST	MST-30	Kürleme, Kurutma
Etüv	MEMMERT	UN-110	Kürleme, Kurutma
Kül Fırını	PROTHERM	PAF 10/6	Kül Eldesi
Analiz Cihazı	Eurovector	EA3000	Elementel Analiz (CHNS)
Analiz Cihazı	Spectro	Xepos II	XRF Analizi
Analiz Cihazı	Bruker	D8-Advance	XRD Analizi
Analiz Cihazı	Mattson	1000 FT-IR	FT-IR Analizi
Analiz Cihazı	LEO	EVO-40	SEM Analizi
Analiz Cihazı	Bruker	125 eV	EDX Analizi
UV Spektrofotometre	Shimadzu	2100-S	Konsantrasyon Tayini

3.4 Geopolimer Malzeme Üretimi

Tez çalışması kapsamında üretilen geopolimer malzemeler, çift kademeli yöntem ya da sulu karışım yöntemi olarak adlandırılan yöntem esasına dayanarak elde edilmiştir. Bu yöntemde göre aktivatör ortamı sulu çözelti halinde ayrı bir kaptan hazırlandıktan sonra karıştırma kabına alınır, üzerine ham madde ve katkı maddeleri eklenerek belirli bir süre karıştırılmak suretiyle üretim yapılmaktadır. Daha sonra elde edilen harçlar uygun bir numune kabına dökülerek laboratuvar koşullarında bekletilmiştir.

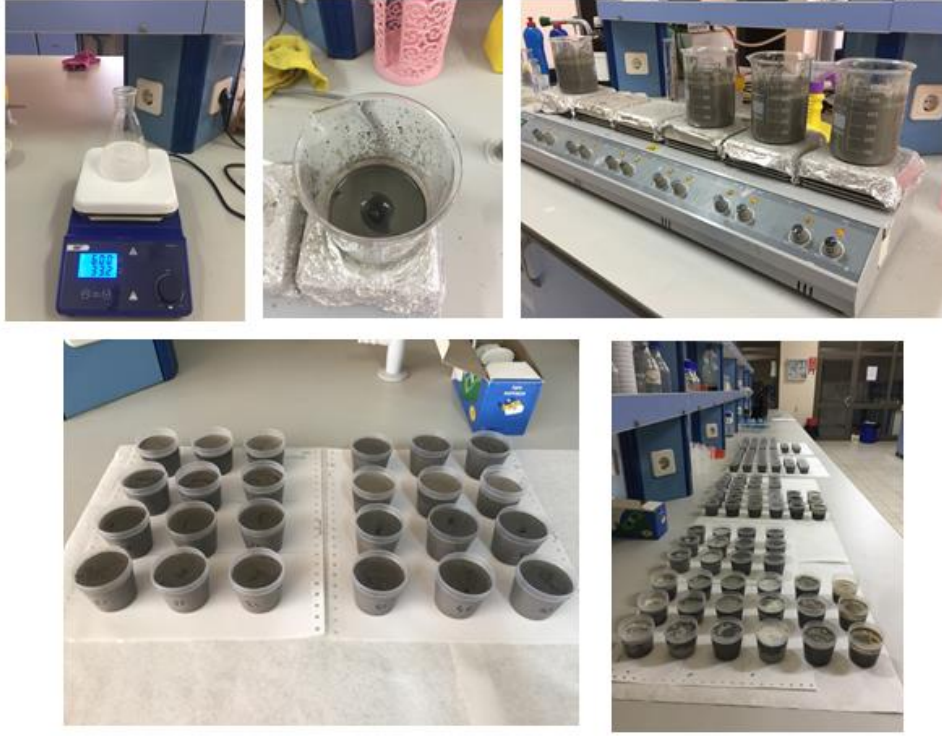
Aktivatör çözeltilerinin hazırlanması kapsamında 100 ml saf su kullanılarak erlen içerisinde ve manyetik karıştırıcı üzerinde devamlı karıştırmak suretiyle belirli

molaritelerde ve miktarlarda alkali çözeltiler hazırlanmıştır. Aktivatör çözeltileri 600 rpm karıştırma hızında en az 20 dk süreyle karıştırılarak hazırlanmıştır. Bunun yanı sıra tarımsal atık külleri, kullanılan kimyasal miktarını azaltarak yenilenebilir ve çevre dostu malzeme üretebilmek için bazı numunelerde karıştırma tankına eklenmiştir. Çalışmalara ait deneysel akım şeması Şekil 3.5 ile verilmektedir.



Şekil 3.5 : Deneysel akım şeması.

Aktivatör çözeltileri erlende hazırlandıktan sonra daha geniş olan bir behere alınarak kullanılacak ham madde ile birlikte 60 dk süreyle karıştırılmıştır. Elde edilen harç karıştırma işlemi tamamlandıktan sonra numune kaplarına dökülerek laboratuvar ortamında kurumaya bırakılmıştır. Daha sonra kütleme işlemi için numuneler etüv kullanılarak 50 ya da 75 °C sıcaklıklarda belirli sürelerde bekletilmiştir. Tüm hazırlanan geopolimer malzemeler, ham madde tipi, aktivatör tipi ve oranı, eklenen tarımsal katkı maddesi gibi etmenlere göre sınıflandırılıp kod numaraları verilmiştir. Üretim aşamalarına ait görseller Şekil 3.6 ile gösterilmektedir.



Şekil 3.6 : Geopolimer malzemelerin üretim aşamalarına ait görseller.

Geopolimer malzeme üretimi için ikisi uçucu kül, biri yüksek fırın cürufu olmak üzere üç farklı alüminosilikat kaynağının her birinde NaOH/Na₂SiO₃, NaOH/K₂SiO₃, KOH/Na₂SiO₃ ve KOH/K₂SiO₃ olmak üzere dört farklı bazik aktivatör varyasyonunun etkisi incelenmiştir. Gerçekleştirilen her bir aktivatör varyasyonunda ise;

- 6-8-10 Molar olmak üzere NaOH ve KOH konsantrasyonunun malzeme üretimine etkisi,
- 50-100-150 g olmak üzere ham madde (uçucu kül, cüruf) miktarının malzeme üretimine etkisi,
- 5-15-25 g olmak üzere silikatların (K₂SiO₃ ve Na₂SiO₃) malzeme üretimine etkisi incelenmiştir.

Birinci kısımda üretilen malzemelerde kullanılan ham maddeler, kimyasallar, tarımsal atık külleri miktarları kod numaralarıyla Çizelge 3.3 ile gösterilmektedir. Çizelgede ham madde olarak Zonguldak uçucu külü kullanıldığında GP, Karabük uçucu külü kullanıldığında GPK ve yüksek fırın cürufu kullanıldığında GPY olarak kodlanmıştır. Birinci kısımda gerçekleştirilen deneylerde; alüminosilikat etkisi, aktivatör etkisi ve bağlayıcıların etkisini incelemek adına 84 adet farklı özellikte ve her birinden üç adet olmak üzere toplamda 252 adet numune hazırlanmış ve incelenmiştir.

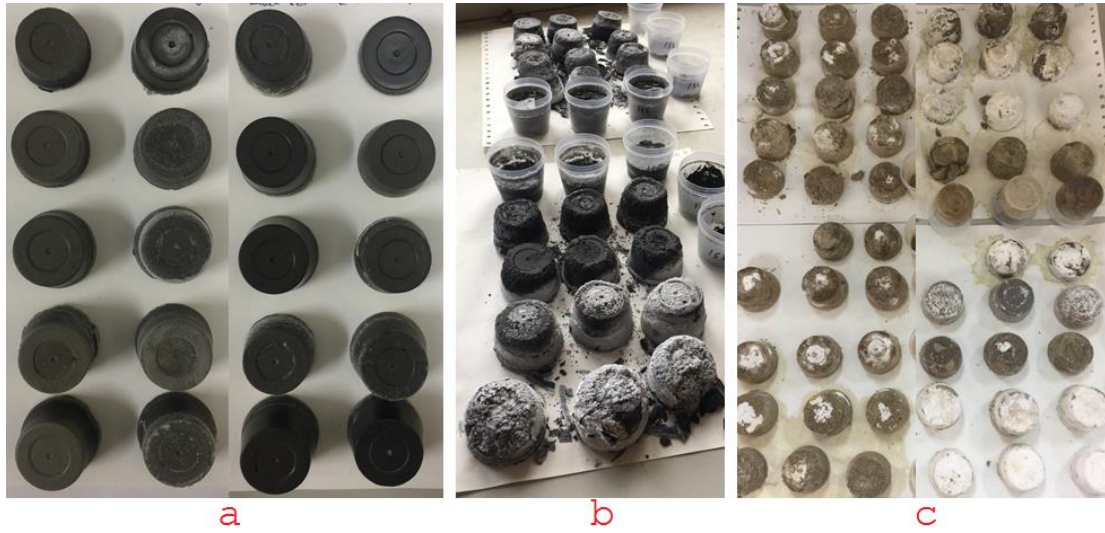
Çizelge 3.3 : Birinci kısımda üretilen geopolimer malzemeler.

GEOPLİMER NUMUNELERİ	Ham madde (g)	NaOH (M)	KOH (M)	Na₂SiO₃ (g)	K₂SiO₃ (g)	GEOPLİMER NUMUNELERİ	Ham madde (g)	NaOH (M)	KOH (M)	Na₂SiO₃ (g)	K₂SiO₃ (g)
GP-11	100	6M	-	15	-	GP-51	100	-	6M	15	-
GP-12	100	8M	-	15	-	GP-52	100	-	8M	15	-
GP-13	100	10M	-	15	-	GP-53	100	-	10M	15	-
GP-21	100	8M	-	5	-	GP-54	100	-	8M	5	-
GP-22	100	8M	-	25	-	GP-55	100	-	8M	25	-
GP-31	50	8M	-	15	-	GP-56	50	-	8M	15	-
GP-32	150	8M	-	15	-	GP-57	150	-	8M	15	-
GP-61	100	6M	-	-	15	GP-71	100	-	6M	-	15
GP-62	100	8M	-	-	15	GP-72	100	-	8M	-	15
GP-63	100	10M	-	-	15	GP-73	100	-	10M	-	15
GP-64	100	8M	-	-	5	GP-74	100	-	8M	-	5
GP-65	100	8M	-	-	25	GP-75	100	-	8M	-	25
GP-66	50	8M	-	-	15	GP-76	50	-	8M	-	15
GP-67	150	8M	-	-	15	GP-77	150	-	8M	-	15
GPK-101	100	6M	-	15	-	GPK-151	100	-	6M	15	-
GPK-102	100	8M	-	15	-	GPK-152	100	-	8M	15	-
GPK-103	100	10M	-	15	-	GPK-153	100	-	10M	15	-
GPK-104	100	8M	-	5	-	GPK-154	100	-	8M	5	-
GPK-105	100	8M	-	25	-	GPK-155	100	-	8M	25	-
GPK-106	50	8M	-	15	-	GPK-156	50	-	8M	15	-
GPK-107	150	8M	-	15	-	GPK-157	150	-	8M	15	-

Çizelge 3.3 (devam) : Birinci kısımda üretilen geopolimer malzemeler.

GEOPLİMER NUMUNELERİ	Ham madde (g)	NaOH (M)	KOH (M)	Na₂SiO₃ (g)	K₂SiO₃ (g)	GEOPLİMER NUMUNELERİ	Ham madde (g)	NaOH (M)	KOH (M)	Na₂SiO₃ (g)	K₂SiO₃ (g)
GPK-111	100	6M	-	-	15	GPK-121	100	-	6M	-	15
GPK-112	100	8M	-	-	15	GPK-122	100	-	8M	-	15
GPK-113	100	10M	-	-	15	GPK-123	100	-	10M	-	15
GPK-114	100	8M	-	-	5	GPK-124	100	-	8M	-	5
GPK-115	100	8M	-	-	25	GPK-125	100	-	8M	-	25
GPK-116	50	8M	-	-	15	GPK-126	50	-	8M	-	15
GPK-117	150	8M	-	-	15	GPK-127	150	-	8M	-	15
GPY-171	100	6M	-	15	-	GPY-161	100	-	6M	15	-
GPY-172	100	8M	-	15	-	GPY-162	100	-	8M	15	-
GPY-173	100	10M	-	15	-	GPY-163	100	-	10M	15	-
GPY-174	100	8M	-	5	-	GPY-164	100	-	8M	5	-
GPY-175	100	8M	-	25	-	GPY-165	100	-	8M	25	-
GPY-176	50	8M	-	15	-	GPY-166	50	-	8M	15	-
GPY-177	150	8M	-	15	-	GPY-167	150	-	8M	15	-
GPY-141	100	6M	-	-	15	GPY-131	100	-	6M	-	15
GPY-142	100	8M	-	-	15	GPY-132	100	-	8M	-	15
GPY-143	100	10M	-	-	15	GPY-133	100	-	10M	-	15
GPY-144	100	8M	-	-	5	GPY-134	100	-	8M	-	5
GPY-145	100	8M	-	-	25	GPY-135	100	-	8M	-	25
GPY-146	50	8M	-	-	15	GPY-136	50	-	8M	-	15
GPY-147	150	8M	-	-	15	GPY-137	150	-	8M	-	15

Birinci kısımda gerçekleştirilen deneylerden yapılan gözlemler sonucunda Zonguldak'tan temin edilen uçucu külün kullanıldığı numunelerin daha iyi sertleştiği ve görsel anlamda daha iyi durumda oldukları belirlenmiştir. Zonguldak uçucu külü, Karabük uçucu külü ve yüksek fırın cürufu kullanılarak üretilen malzemelerin görselleri Şekil 3.7 ile gösterilmektedir. Görsellere göre Karabük uçucu külü ve yüksek fırın cürufu kullanılarak elde edilen malzemelerin tam sertleşmediği, kolay bir şekilde dağıldığı ve geopolimerizasyon reaksiyonlarının gerçekleşmemesi sonucunda yüzeylerinde alkali aktivatör kalıntılarının oluşturduğu beyazlıklar görülmektedir. Ayrıca alkali aktivatör molaritesinin 8 M değerinde olması ve kullanılan silikat miktarının 15 g olması en ideal üretim değerleri olarak belirlenmiştir.



Şekil 3.7 : Zonguldak uçucu külü (a), Karabük uçucu külü (b) ve yüksek fırın cürufu (c) ile üretilen malzemelerin görselleri.

Çalışmanın ikinci kısmında, ilk kısımda belirlenen en uygun karışım oranları kullanılarak geopolimer eldesinde yardımcı malzeme olarak tarımsal atıkların (mısır kabuğu külü, kanyaş otu külü ve yer fıstığı kabuğu külü) eklenmesi ve malzeme üretimine etkisi incelenmiştir. Tarımsal atıkların eklenmesiyle kullanılan silikat miktarlarında düşüş sağlanarak üretimde kimyasal madde kullanımını azaltıp çevre dostu malzeme elde edilmesi amaçlanmıştır. Ayrıca bazı numunelerin üretiminde titanyum dioksit kullanılarak malzemenin fiziksel görünümü üzerine etkisi ve güneşten gelen UV ışınları ile fotokatalitik etki değerlendirilmiştir. İkinci kısımda gerçekleştirilen deneylerde elde edilen malzemeler ve içerikleri Çizelge 3.4 ile verilmektedir.

Çizelge 3.4 : İkinci kısımda üretilen geopolimer malzemeler.

GEOLİMER NUMUNELERİ	Ham madde (g)	NaOH (M)	KOH (M)	Na ₂ SiO ₃ (g)	K ₂ SiO ₃ (g)	TiO ₂ (g)	Mısır kabuğu külü (g)	Kanyaş otu külü (g)	Yer fıstığı kabuğu külü (g)
GP-182	150	-	8M	-	15	5	-	-	-
GP-183	150	-	8M	-	15	10	-	-	-
GP-184	150	-	8M	-	15	20	-	-	-
GP-185	150	-	8M	-	10	-	5	-	-
GP-181	150	-	8M	-	5	-	10	-	-
GP-186	150	-	8M	-	-	-	15	-	-
GP-187	150	-	8M	-	5	-	-	10	-
GP-188	150	-	8M	-	10	-	-	5	-
GP-189	150	-	8M	-	-	-	-	15	-
GP-190	150	8M	-	15	-	5	-	-	-
GP-191	150	8M	-	15	-	10	-	-	-
GP-192	150	8M	-	15	-	20	-	-	-
GP-193	150	-	8M	10	-	-	-	-	5
GP-194	150	-	8M	5	-	-	-	-	10
GP-195	150	-	8M	-	-	-	-	-	15

Malzeme üretiminin üçüncü kısmında ise Sezyum (¹³⁷Cs) ve Stronsiyum (⁹⁰Sr) radyonüklitlerin immobilizasyonu için Sezyum nitrat (CsNO₃) ve Stronsiyum nitrat (Sr(NO₃)₂) içeren geopolimer malzemeler elde edilmiştir. Bu kapsamda hazırlanan numunelerin içeriği ve karışım miktarları Çizelge 3.5 ile verilmektedir. Deneysel çalışmaların tüm aşamalarını özetleyen deneysel akış diyagramı Ek A'da verilmektedir.

Çizelge 3.5 : Üçüncü kısımda üretilen geopolimer malzemeler.

GEOPLİMER NUMUNELERİ	Ham madde (g)	KOH (M)	K₂SiO₃ (g)	TiO₂ (g)	CsNO₃ (g)	Sr(NO₃)₂ (g)
GP-201	150	8M	15	-	5.7	-
GP-202 (14 gün)	150	8M	15	-	5.7	-
GP-203 (28 gün)	150	8M	15	-	5.7	-
GP-204	150	8M	15	-	-	9.4
GP-205 (14 gün)	150	8M	15	-	-	9.4
GP-206 (28 gün)	150	8M	15	-	-	9.4
GP-207	150	8M	15	10	5.95	-
GP-2077 (28 gün)	150	8M	15	10	5.95	-
GP-208	150	8M	15	10	-	9.8
GP-2088 (28 gün)	150	8M	15	10	-	9.8

Kapsülleme matrisi yöntemine göre elde edilen bu numuneler belirli sürelerde saf su ortamında bekletilerek içeriğindeki Cs ve Sr nin su ortamına geçme durumları incelenmektedir. Radyonüklitleri yapı içerisinde mümkün olduğunca tutulabilen malzemelerin immobilizasyonda kullanılabilir olduğu kabul edilmektedir. Bu sayede elde edilen geopolimer malzemelerin, nükleer santraller gibi radyoaktif atık bulunduran farklı uygulama alanlarında atık depolama bölümlerinde kullanılabilirliği incelenmektedir.

3.5 Üretilen Malzemelerin Bazı Özelliklerinin Belirlenmesi

Sürdürülebilir, çevre dostu geopolimer malzeme üretiminin kapsamlı bir şekilde ele alındığı bu çalışmada 109 adet farklı türde ve her birinden en az üç adet örnek olmak üzere toplam 327 adet numune üretilmiştir. Üretilen bu malzemelerden uygun olarak belirlenenlerin; mikro yapısal özellikleri, yoğunluk tayini, su emme miktarı tayini, kütleme kinetiğinin belirlenmesi, asit direnci tayini, potansiyel uygulamalar açısından adsorban

olarak kullanılması ve radyonüklid immobilizasyonu gibi özelliklerini incelemek için yapılan çalışmalar aşağıda sıralanmıştır.

3.5.1 Malzemelerin mikro yapısal analizi

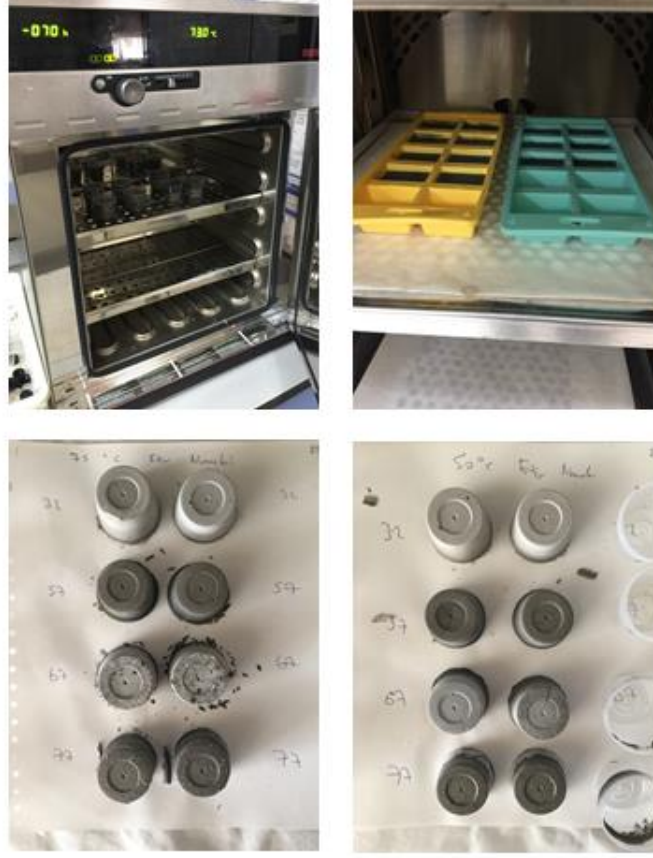
Çalışma kapsamında hem malzeme üretiminde kullanılan ham maddeler ve katkı maddeleri hem de elde edilen malzemelerin büyük çoğunluğunun yapısal analizi XRF, Elementel analiz (CHNS), XRD, FT-IR, SEM ve EDX analizleri ile ayrıntılı olarak incelenmiştir. Bu kapsamda özgün tarımsal atıklarla gerçekleştirilen deneylerin sonuçlarının ve radyoaktif atık immobilizasyonu deneylerinin sonuçlarının mukayese edilmesi birçok analiz yöntemi ile sağlanmıştır.

3.5.2 Kürleme etkisi ve kurutma kinetiği

Geopolimer malzeme üretiminde her bir aktivatör varyasyonunda, 150 g ham madde, 8 M aktivatör konsantrasyonu ve 15 gram silikat miktarına sahip; GP-32, GP-57, GP-67 ve GP-77 kod numaralı dört numune üzerinde kürleme etkisi incelenmiş ve kurutma kinetiği belirlenmiştir. Her numuneden iki adet olmak üzere 50 ve 75 °C sıcaklıklarda etüvde kürleme işlemi gerçekleştirilmiştir. Kurutma kinetiği incelemek için kürleme süresi boyunca günde iki defa olmak üzere yaklaşık 12 saate bir olacak şekilde ağırlık ölçümleri yapılmıştır. Kürleme işlemine ait görüntüler Şekil 3.8 ile gösterilmektedir. Numune ağırlığının zamanla değişimini veren ifade aşağıda Eşitlik 3.1 ile verilmektedir.

$$\text{Ağırlık kaybı (\%)} = \frac{(M_i - M_t) \cdot 100}{M_i} \quad (3.1)$$

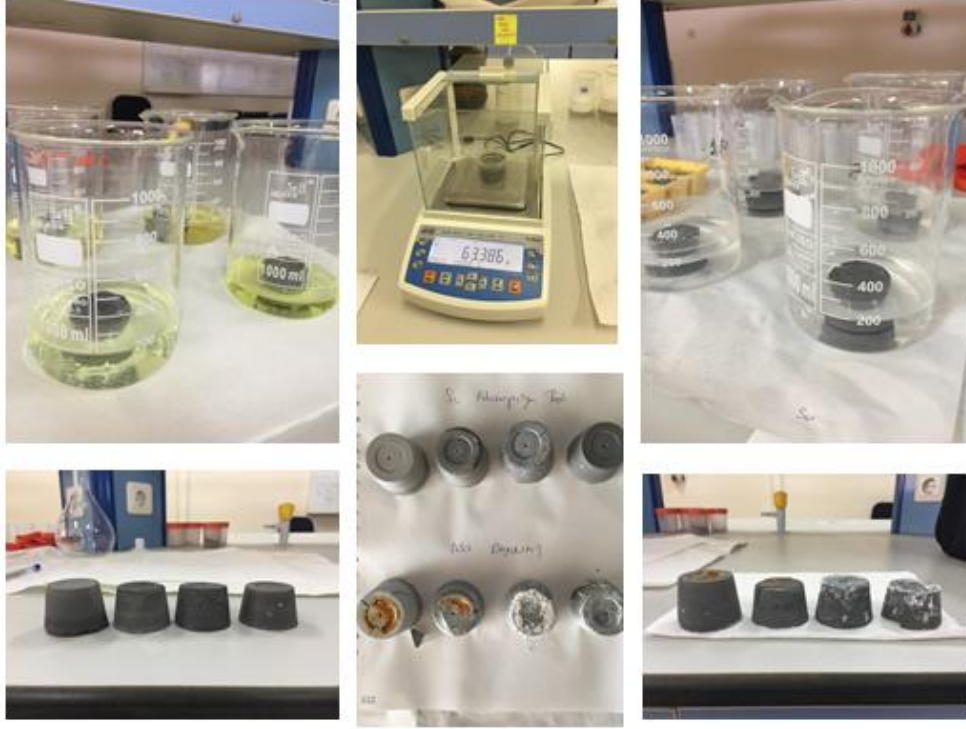
Denklemden geçen; M_i kürleme öncesi numune ağırlığını (g), M_t ise belirli sürelerde ölçülen numune ağırlığını (g) ifade etmektedir.



Şekil 3.8 : Geopolimer malzemelerin kürlenme işlemleri.

3.5.3 Asit ve su direnci tayini

Elde edilen geopolimer malzemelerin asit ve su ortamındaki gösterdiği direncin belirlenebilmesi için deneyler gerçekleştirilmiştir. Bu kapsamda ideal olarak belirlenen dört farklı numunenin (GP-32, GP-57, GP-67 ve GP-77) asit (HCl) ve su ortamlarında 7, 14, 21 ve 28 gündeki hem fiziksel hem de kütleli olarak değişimleri incelenmiştir. Asit dayanımı için hacimce %5'lik HCl çözeltisi hazırlanmıştır. Elde edilen örnekler, 600 ml hacmindeki beher içerisine konulmuş ve numunenin atmosfer ile teması kesilene kadar hazırlanan asit çözeltisi doldurulmak suretiyle teste tabi tutulmuştur. Su dayanımı testinde benzer şekilde asit çözeltisi yerine saf su kullanılarak gerçekleştirilmiştir. Ayrıca numuneler hassas terazi ile tartılmadan önce belirli bir süre bekletilerek kurutulmuştur. Yapılan deneylerin görselleri Şekil 3.9 ile gösterilmektedir.



Şekil 3.9 : Geopolimer malzemelerin asit ve su direnci tayini.

3.5.4 Su emme miktarı, yoğunluk tayini ve basınç dayanımı

Geopolimer malzemelerin bazılarının su emme miktarları ve yoğunluklarının belirlenmesi Eşitlik 3.2 ve Eşitlik 3.3 ile hesaplanmıştır. Numuneler saf su içerisinde 2 gün süresince bekletilerek belirli dakikalarda ölçüm alınmıştır.

$$\text{Su emme miktarı (\%)} = \frac{(M_1 - M_0) \cdot 100}{M_0} \quad (3.2)$$

Eşitlikte; M_0 numunenin suyla temas etmeden önceki ağırlığı, M_1 belirli sürelerde su emdikten sonraki ağırlığını temsil etmektedir.

$$d = \frac{m}{V} \quad (3.3)$$

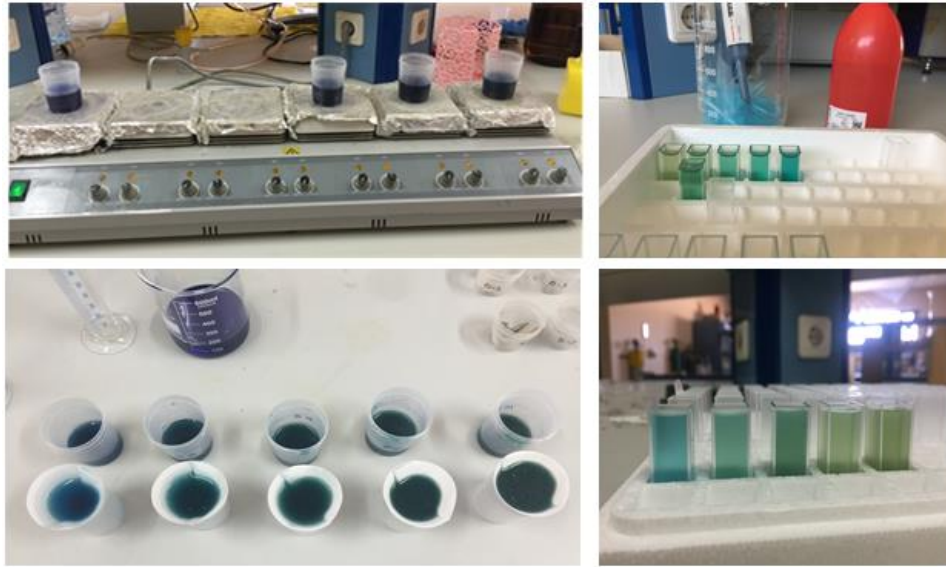
Eşitlikte; d numune yoğunluğunu ($\text{g} \cdot \text{cm}^{-3}$), m numune kütleini (g) ve V ise numunenin hacmini (cm^3) ifade etmektedir.

Elde edilen geopolimer numunelerinin bazıları için mekanik olarak sağlamlığını belirleyebilmek için ASTM C 109 standartlarına [121] uygun olarak 5x5x5 küp şeklinde kalıplanmak suretiyle basınç dayanım test cihazında incelenmiştir. Her numune için üç adet örnek teste tabi tutularak ortalamaları sonuca yansıtılmıştır.

3.5.5 Geopolimer malzemenin adsorban olarak kullanımı

Farklı deneysel kořullarda elde edilen geopolimer malzemelerin adsorban olarak kullanılabilirliđinin incelenmesi için kesikli sistemde 'batch' deneysel alıřmalar yapılmıřtır. Bu kapsamda adsorbat olarak metilen mavisi boyar maddesi kullanılmıřtır. Adsorpsiyon verimini belirlemek amacı ile 1 gram adsorban farklı konsantrasyonlarda metilen mavisi ile 50 ml hacminde 400 rpm de 1 saat karıřtırılmıřtır. En yksek yzde verime sahip geopolimer malzeme (GP-181) belirlenerek bu numune zerinden kinetik alıřmalar yapılmıřtır. Hesaplamalarda kullanılan, birim adsorban miktarı bařına yzeyine tutunan boyar madde miktarı q_e (mg/g), Eřitlik 2.5 ile verilmiřtir. Yzde adsorpsiyon verimini temsil eden ifade, Eřitlik 2.6 ile verilmiřtir.

Adsorpsiyon kinetiđinin belirlenmesi için yapılan alıřmalarda 1 g geopolimer malzeme, 100 ppm konsantrasyonunda, 50 ml hacminde metilen mavisi zltisi ile 400 rpm karıřtırma hızında 3 saat karıřtırdıktan sonra szlmřtr. Elde edilen sznt UV spektrofotometresi ile 662 nm dalga boyunda llerek konsantrasyonu belirlenmiřtir. Geopolimer malzemelerin adsorban olarak kullanılmasına iliřkin gerekleřtirilen deneylerin grselleri Őekil 3.10 ile gsterilmektedir.



Őekil 3.10 : Adsorpsiyon alıřmalarına ait grseller.

3.5.6 Radyoaktif atıklar için geopolimer malzemenin kullanımı

Radyoaktif atık sularında bulunan radyonklit atıkların immobilizasyon (hareketsizleřtirme) performansını incelemek için elde edilen geopolimer malzemeler

kullanılmıştır. Bu kapsamda yapay radyonüklid ^{133}Cs , sezyum nitrat (CsNO_3) molekülünden ve ^{90}Sr ise stronsiyum nitrat $\text{Sr}(\text{NO}_3)_2$ bileşikleri kullanılarak geopolimer malzemeler elde edilmiştir. Bu moleküllerin kütleli olarak belli miktarlarda geopolimer harçlara eklenerek malzemeler üretilmiştir. Ayrıca bünyesinde TiO_2 bulunduran sezyum ve stronsiyum içeren numuneler hazırlanarak güneşten gelen UV ışınları altında bekletilerek immobilizasyon değerleri incelenmiştir. Hazırlanan numuneler 28 gün süre ile saf su içinde bekletilerek bu radyonüklitlerin su ortamına geçme durumları incelenmiştir. Literatüre göre malzemelerin bu uzun süre zarfında hala bünyesinde bu radyonüklitleri barındırması sayesinde immobilizasyonda kullanılabilirliği ifade edilmektedir [122]. EDX, EDS veya EDAX olarak adlandırılan enerji dağıtıcı x-ışını spektroskopisi ve SEM analiz işlemleri ile deney sonrası numunelerin elementel bileşimi ve nicel analizler gerçekleştirilmiştir.

4. BULGULAR VE TARTIŞMA

4.1 Ham Madde ve Katkı Maddelerinin Mikro Yapısal Analizi

Çalışmada kullanılan ham madde ve katkı maddelerinin yapısal analizlerinin belirlenmesi için gerçekleştirilen elementel analiz sonuçları (CHNS) Çizelge 4.1 ile, içerdiği oksitlerin kimyasal analizi için yapılan XRF analizi sonuçları Çizelge 4.2 ile gösterilmektedir. Elementel analiz sonuçlarına göre Karabük'ten temin edilen uçucu külün bünyesinde kütleli yüzde olarak daha fazla karbon (C) içerdiği belirlenmiştir. Çizelge incelendiğinde eşdeğer şartlara tabi tutulmasına rağmen diğer tarımsal atıklara kıyasla mısır kabuğunun içerdiği karbon oranının daha yüksek ve renginin daha koyu olduğu görülmektedir. Bunun nedeni, mısırın lifli bir yapıya sahip olduğu için yanma işlemi sırasında gözeneklerin kapalı olarak yanması, yeterince oksijen ile temas etmemesi neticesinde yanma veriminin düşmesi olarak yorumlanmaktadır. XRF analizlerinden kullanılan tarımsal atıkların SiO₂ miktarlarını incelediğimizde kanyaş otundaki miktarın diğer atıklardan yüksek olduğu görülmektedir. Al₂O₃ miktarı dikkate alındığında yine kanyaş otunda belirgin bir farklılık ortaya çıkmaktadır. Bu durum sonraki kısımlarda değinilecek olan kanyaş otundan elde edilen geopolimerlerin yapısal ve yüzeysel özelliklerinin üstünlüğünü göstermektedir.

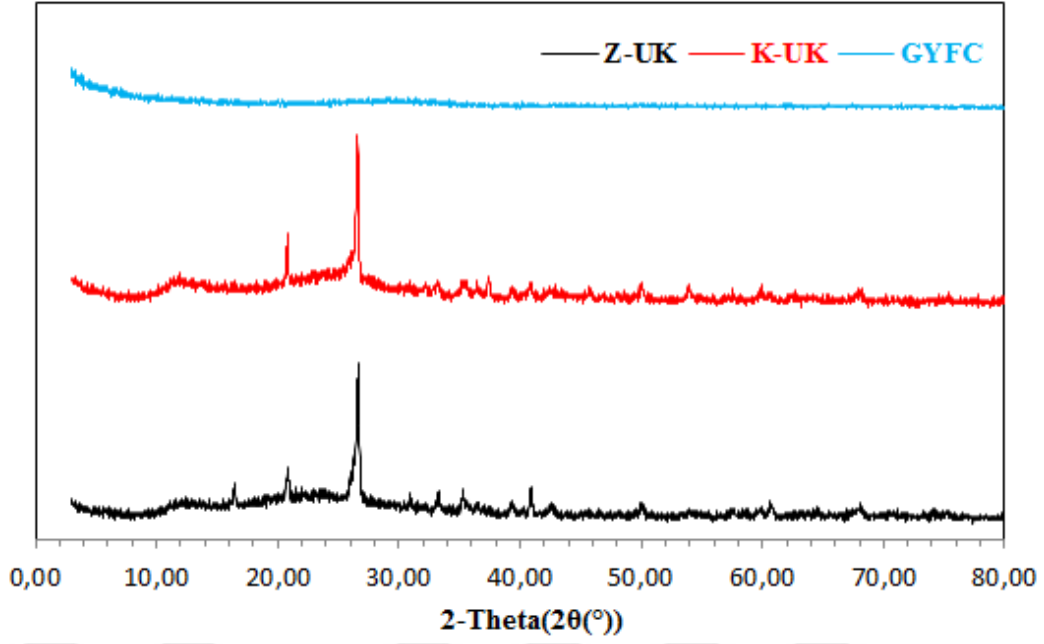
Çizelge 4.1 : Kullanılan ham maddelerin ve katkı maddelerinin elementel analiz sonuçları.

Numune	C (%)	H (%)	N (%)	S (%)
Zonguldak uçucu külü	1.279	-	0.027	-
Karabük uçucu külü	2.261	-	0.441	0.227
Yüksek fırın cürufu	0.422	-	0.057	0.531
Kanyaş otu külü	0.687	0.144	-	0.052
Mısır kabuğu külü	5.495	0.574	0.365	0.605
Yer fıstığı kabuğu külü	0.862	0.063	-	1.154

Çizelge 4.2 : Kullanılan ham maddelerin XRF analiz sonuçları.

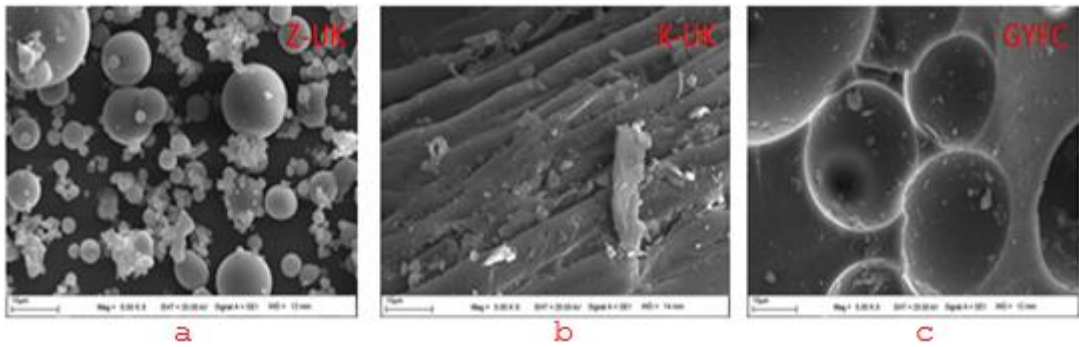
Numune	SiO₂ (%)	Al₂O₃ (%)	Fe₂O₃ (%)	CaO (%)	MgO (%)	NaO (%)	SO₃ (%)	K₂O (%)
Zonguldak Uçucu kül	64.60	25.93	3.243	1.724	1.497	0.037	0.365	1.644
Karabük Uçucu kül	52.39	30.84	6.077	4.960	1.015	1.394	1.671	1.503
Yüksek fırın cürufu	42.89	17.06	0.512	23.04	1.52	1.043	1.318	0.579
Kanyaş otu külü	53.83	14.88	1.26	9.62	4.83	0.014	1.801	1.722
Mısır kabuğu külü	28.98	1.225	0.23	3.787	19.91	0.014	4.056	24.912
Yer fıstığı kabuğu külü	17.4	6.299	2.584	12.06	28.85	3.547	6.537	15.888

Malzeme üretiminde kullanılan alüminosilikat kaynakların SEM, XRD ve FT-IR analizleri ile karakterizasyonu gerçekleştirilmiştir. Analiz sonuçları gösterilirken Zonguldak uçucu külü Z-UK olarak, Karabük uçucu külü K-UK olarak ve granüle yüksek fırın cürufu GYFC olarak şekillerde temsil edilmiştir. Malzemenin kristalin/amorf yapısını belirlemek için gerçekleştirilen XRD analizi Şekil 4.1 ile gösterilmektedir. Uçucu külün ana bileşenleri Si ve Al oksitleri, çeşitli metalik oksitler ve yanmamış karbondur. Şekilde meydana gelen titreşimlere göre uçucu küldeki ana fazların amorf yapı ile birlikte kuvars ve mullit olduğu düşünülmektedir. 2θ 'da 50, 41, 35 ve 33 ° deki pikler kuvarslara aittir [123]. Ayrıca yapıdaki mullit oluşumunu gösteren titreşimler 23 ve 26 ° değerlerindeki pikler ile görülmektedir [124].



Şekil 4.1 : Alüminosilikat kaynaklarının XRD analizi.

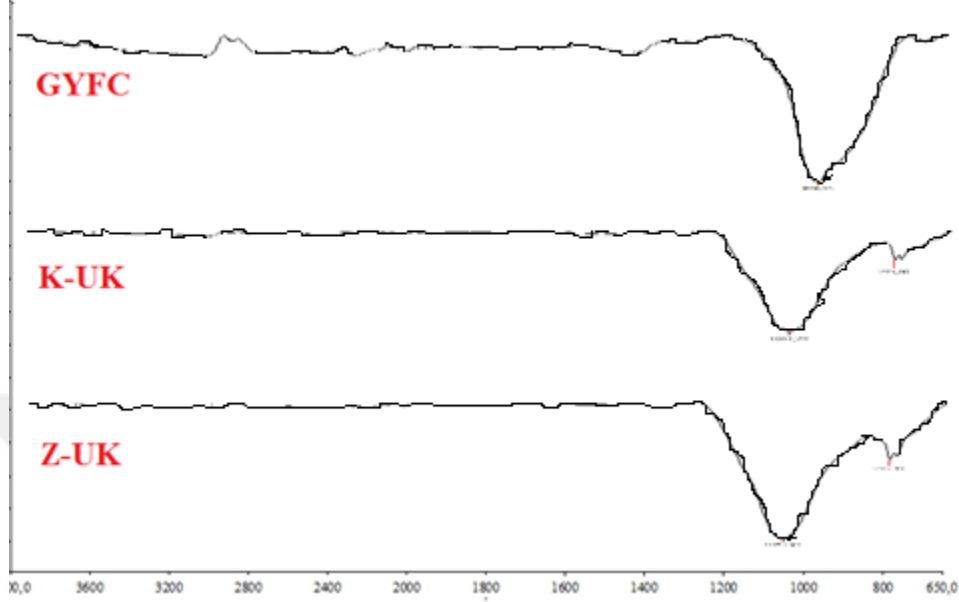
Kullanılan ham madde kaynaklarının morfolojik yapısını belirlemek için SEM yüzey görüntülerine başvurulmuştur. Şekil 4.2 ile SEM görüntüleri gösterilmektedir. Görüntüler incelendiğinde Zonguldak uçucu külünün yüksek SiO_2 ve Al_2O_3 içeriğine bağlı küresel yapılar ortaya çıkmaktadır. Kardemir uçucu külünde ise kartezyen ve gözeneksiz bir yapı görünmektedir. Yüksek fırın cürufu ise az ve büyük çeyrek küre formunda gözeneklere sahip olduğu görülmektedir. XRF analizi ile belirlendiği üzere kullanılan uçucu küllerin her ikisi de F sınıfı küllere girmektedir ve görüntüleri doğrular niteliktedir.



Şekil 4.2 : Z-UK (a), K-UK (b) ve GYFC (c) kaynakların SEM görüntüleri.

Fonksiyonel gruplar ve bağ yapılarının belirlenmesi için FT-IR analizi sonuçları Şekil 4.3 ile gösterilmektedir. Şekil incelenirse neredeyse bütün örneklerde yaklaşık $950\text{-}1100\text{ cm}^{-1}$ dalga sayılarında görünen pikler Si-O-Si ve Si-O-Al gruplarının numune içerisinde

bulunması sebebiyle gözlenmektedir [125]. Ayrıca yaklaşık 770-810 cm^{-1} dalga sayıları aralığında gözlemlenen pikler ise analiz edilen numune içerisinde Si-O-Ca gruplarının mevcudiyetini ifade etmektedir.



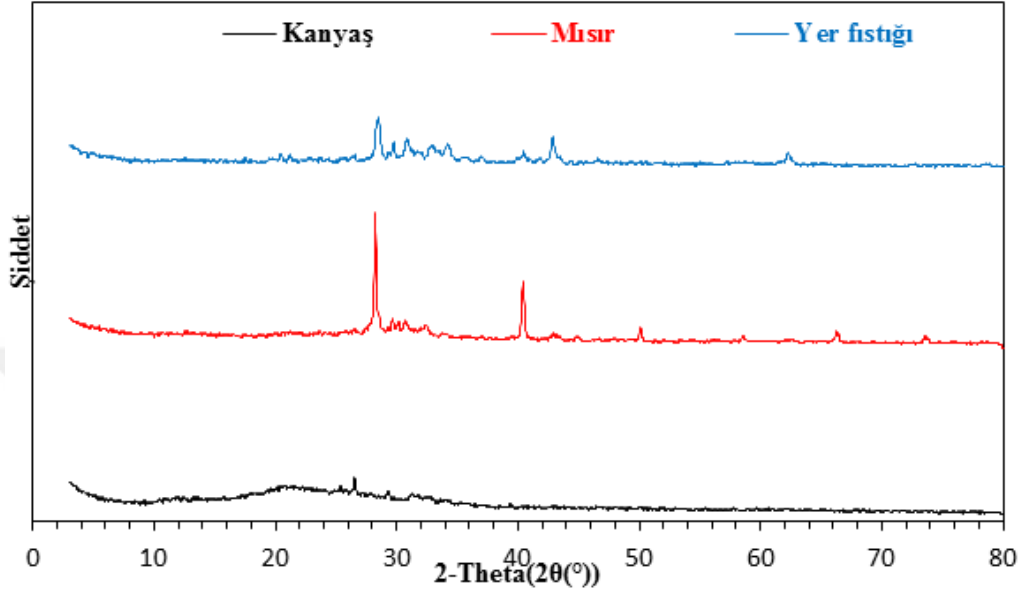
Şekil 4.3 : Alüminosilikat kaynaklarının FT-IR analizleri.

Kullanılan üç farklı kaynak malzemenin XRF analiz sonuçlarına göre major faz SiO_2 olarak tespit edilmiştir. İkincil faz olarak ise yapı içerisinde Al_2O_3 bulunduğu görülmektedir. Sonuçlar literatürle uyum içerisindedir. Üç numune ile gerçekleştirilen deney setlerinde ön fiziksel incelemelere göre en iyi sonuçlar Zonguldak uçucu külü ile elde edilmiştir. Oluşturulan numunelerin istenilen seviyede bağ yapması, sertliği bu kaynağı seçmemizdeki temel nedendir. Ayrıca analiz sonuçlarından dolayı SiO_2 ve Al_2O_3 oranlarının diğer numunelere göre yüksek olması, XRD pikleri ve FT-IR dalga sayılarının literatür ile daha uyumlu olması bu tercihimizi kuvvetlendirmiştir [125].

Kimyasal katkı maddelerinin kullanım miktarını düşürerek, çevre kirliliğini azaltmak ve sürdürülebilir etkiyi artırmak için kullanılan tarımsal atıkların mikro yapısal analizleri benzer şekilde XRD, SEM ve FT-IR analizleri kullanılarak yapılmıştır.

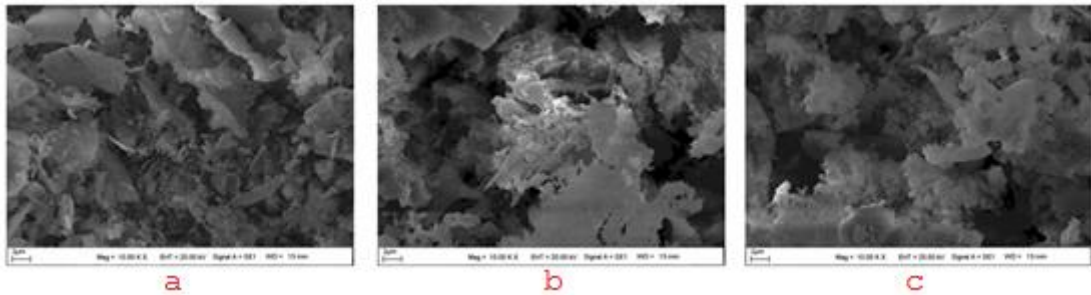
Tarımsal atıklardan kanyaş otu, mısır kabuğu ve yer fıstığı kabuğu küllerinin kristalin/amorfl yapılarını belirlemek için XRD analizi sonuçları Şekil 4.4 ile gösterilmektedir. Şekil incelendiğinde kanyaş otunun diğer örneklere göre şiddeti daha düşük pikler verdiği görülmektedir. Mısır kabuğu ise 28, 40, 50 ve 66 ° seviyelerinde

belirgin dört adet pik verdiği görülmektedir. Yer fıstığı kabuğu ise 28-34 ° arasında belirgin beş adet ve 40, 42 ve 62 ° seviyelerinde pikler verdiği görülmektedir. Genel anlamda üç numune için kristalin yapıda oldukları söylenebilir. Kanyaş otu 15-35 ° arasında verdiği yayvan pikler ile biraz daha amorf yapıda olduğu düşünülebilir [126].



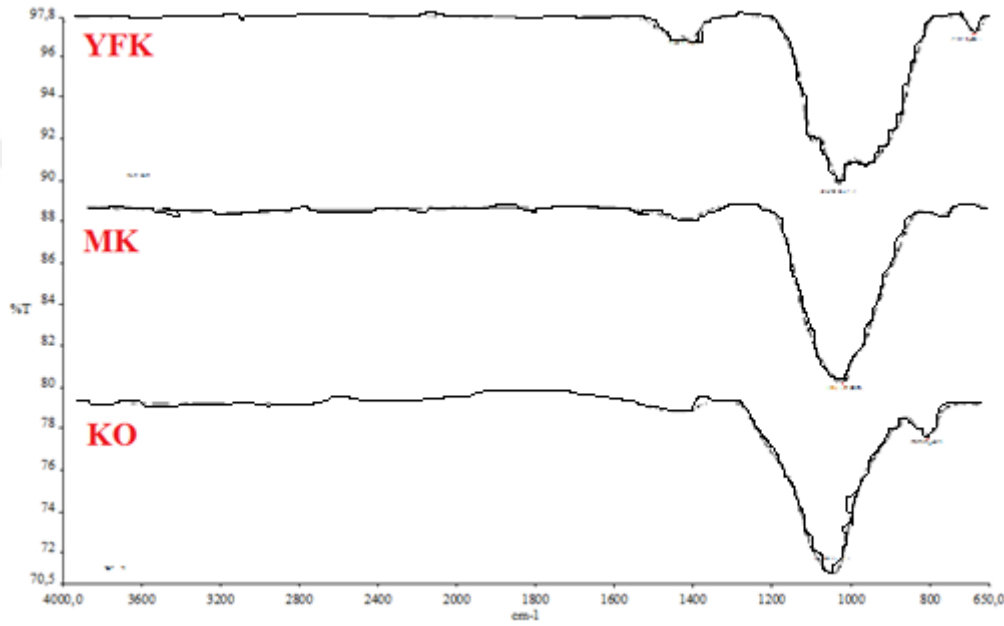
Şekil 4.4 : Katkı maddelerinin XRD analizi.

Tarımsal atıklardan elde edilen küllerin yüzey yapılarının belirlenmesi için SEM cihazı ile görüntüler elde edilmiştir ve sonuçlar Şekil 4.5 ile gösterilmektedir. Görüntüler incelendiğinde, üç malzemenin de benzer şekilde gözenekli yapıya sahip oldukları gözlemlenmektedir. Üç bileşende kül formunda bulunduğu için bu denli benzerlik göstermeleri beklenen bir durumdur. Dikkatli incelendiğinde kanyaş otunun birim alanda daha fazla gözenekli bir yapıya sahip olduğu, mısır kabuğu ve yer fıstığının ise bazı bölgelerinde birim yüzey alanda pürüzsüz (yapraksı) ve iğnemsı yapılar bulundurduğu görülmektedir.



Şekil 4.5 : KO (a), MK (b) ve YFK (c) için SEM görüntüleri.

Kanyaş otunun, mısır kabağının ve yer fıstığı kabağının FT-IR analiz sonuçları Şekil 4.6 ile gösterilmektedir. Şekle göre kanyaş otunun 1048 cm^{-1} ve 800 cm^{-1} titreşim bantları verdiği görülmektedir. Mısır kabağı 1012 cm^{-1} dalgalarında, yer fıstığı kabağı ise 1031 cm^{-1} de geniş 1417 ve 617 cm^{-1} de kısa titreşimler verdiği görülmektedir. Yaklaşık 1048 ve 800 cm^{-1} karşılık gelen karakteristik titreşim bantları Si-O bağlarının sırasıyla gerilme ve bükülmesiyle meydana gelen titreşimlerdir. 1048 cm^{-1} ana titreşim bandının konumu ve şekli stokiyometrik olarak SiO_2 yapısını ifade etmektedir [127]. C-OH alkil gruplarındaki gerilmeyi yaklaşık olarak 1417 cm^{-1} titreşimleri temsil etmektedir.



Şekil 4.6 : Katkı maddelerinin FT-IR analizleri.

4.2 Elde Edilen Geopolimer Malzemelerin Karakterizasyonu

Bu kısımda geopolimer malzeme sentezinde ideal olarak belirlenen malzemeler üzerine bazı parametrelerin değişiminin etkilerinin sonuçları incelenmektedir. Deneysel çalışmalar sonucunda elde edilen geopolimer malzemelerin bazılarının karakterizasyonu XRD, SEM ve FT-IR analizleri ile gerçekleştirilmiştir.

Bu analizlerde sırasıyla GP-32, GP-57, GP-67 ve GP-77 numaralı numuneler ile alkali aktivatör etkisi (NaOH-KOH) ve bağlayıcı (sodyum silikat-potasyum silikat) etkisini incelemek üzere gerçekleştirilmiştir. GP-182, GP-183 ve GP-184 numaralı numuneler KOH ve potasyum silikat kullanılarak aktive edilmiş olup, yapı içerisinde titanyum dioksit içermektedir. Aynı şekilde GP-190, GP-191 ve GP-192 numaralı numuneler NaOH ve

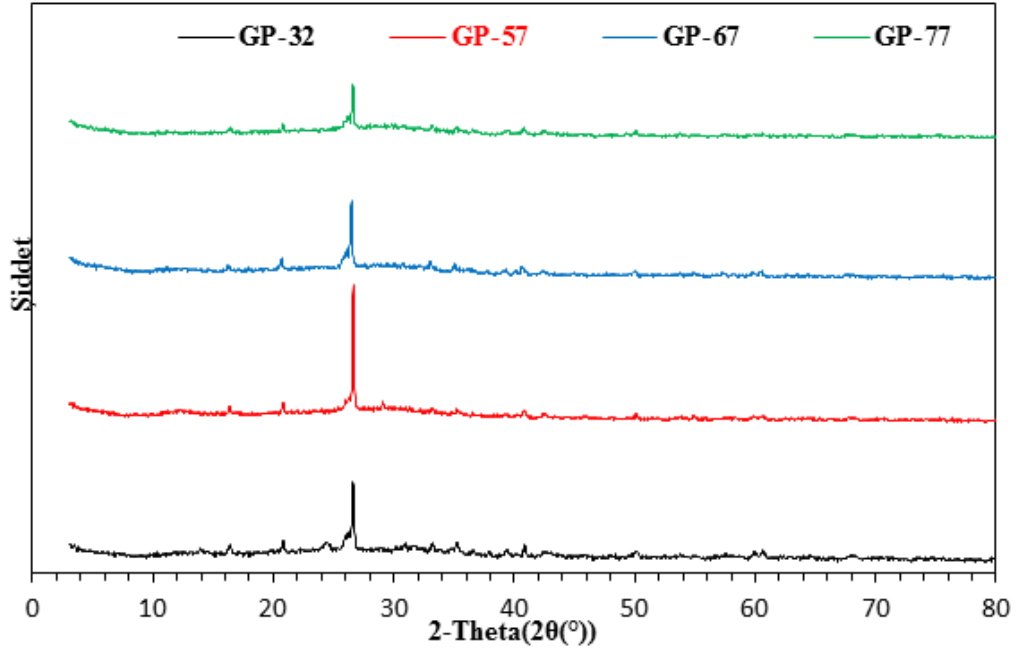
sodyum silikat kullanılarak aktive edilmiş olup, yapı içerisinde titanyum dioksit içermektedir. Bu numunelerde sırasıyla 5, 10 ve 20 g TiO_2 kullanılmıştır. Mısır kabuğu külünün etkisi ise GP-185, GP-181 ve GP-186 numaralı numuneler ile incelenmiştir. Bu numunelerde sırasıyla 5, 10 ve 15 g mısır kabuğu külü kullanılmıştır. Bu numunelerde ise mısır kabuğu külü arttığı oranda potasyum silikat miktarı azaltılmıştır. Ayrıca GP-186 numaralı numunede kimyasal bağlayıcı (potasyum silikat) miktarı sıfırlanmış ve yerine tarımsal atık (mısır kabuğu) külü kullanılmıştır. Potasyum silikat yerine tamamen tarımsal atık kullanılması ile malzeme yapısında bir değişim görünmemesi yani benzer nitelikte malzeme elde edilmesi, çevre dostu malzeme vasfını karşılamaktadır.

Farklı tarımsal atıkların etkisini belirleyebilmek için GP-185, GP-188 ve GP-193 numaralı numuneler incelenmiştir. Bu numuneler sırasıyla mısır kabuğu külü, kanyaş otu külü ve yer fıstığı kabuğu külü içermektedir.

4.2.1 XRD analizi sonuçları

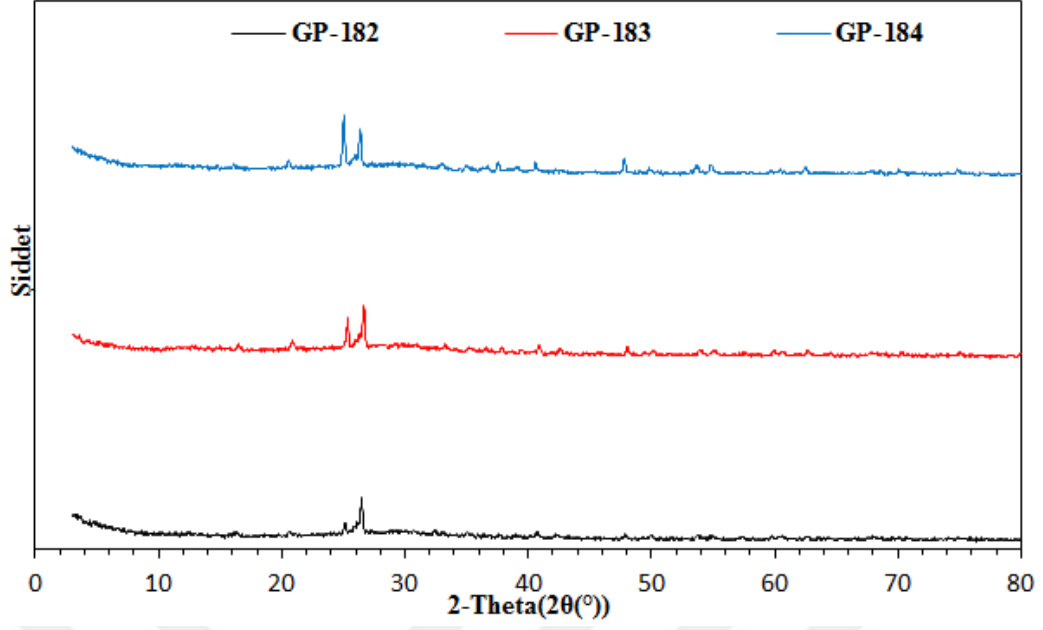
Zonguldak uçucu külü kullanılarak sentezlenen malzemelerde aktivatör etkisini belirlemek için dört farklı varyasyon kullanılarak deneyler gerçekleştirilmiştir. GP-32 ve GP-67 numaralı numunelerde NaOH, GP-57 ve GP-77 numaralı numunelerde KOH kullanılmıştır. GP-32 ve GP-57 numaralı numunelerde sodyum silikat (Na_2SiO_3), GP-67 ve GP-77 numaralı numunelerde ise potasyum silikat (K_2SiO_3) kullanılmıştır. Aktivatör değişiminin etkisinin belirlenmesi için bu dört numune mukayese edilmiştir. Şekil 4.7 ile bu numunelerin XRD analizi sonuçları gösterilmektedir. Genel olarak dört numunede geopolimer yapısına uygun kristalin yapıdadır ve amorflik gösterdiği difraksiyon açılarında (yaklaşık 21 ve 26 °) benzerlik göstermektedir.

Titanyum dioksit (TiO_2) beyaz ve inorganik bir pigmenttir. Beyaz olmasından dolayı kapaticı, beyazlaştırıcı, ışığı yansıtıcı özellikler taşır. TiO_2 içeren malzemeler ile kaplanmış maddeler güneş ışığına karşı direnç ve mikroplarını barındırmama gibi özellikler gösterir. Bu pozitif etkilerinden dolayı geopolimer üretiminde TiO_2 kullanılması durumunda yapı üzerinde oluşturacağı olumlu veya olumsuz etki incelenmiştir. TiO_2 etkisini kapsamlı bir şekilde belirleyebilmek için iki farklı varyasyonda alkali aktivatör kullanılarak numuneler hazırlanmıştır.

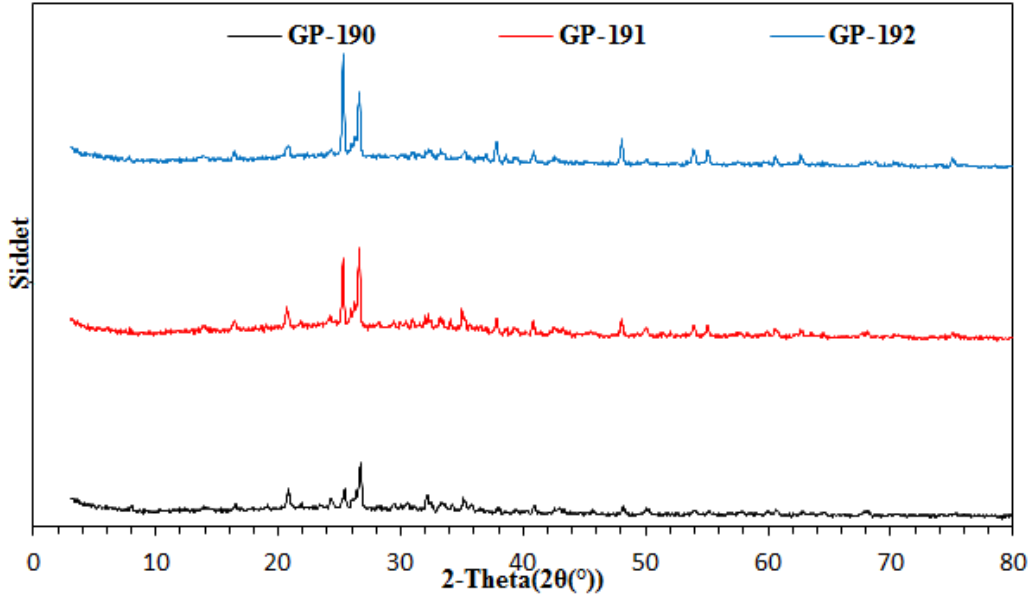


Şekil 4.7 : GP-32, GP-57, GP-67 ve GP-77 numunelerinin XRD sonuçları.

Titanyum dioksitin malzeme üzerine etkisi, GP-182, GP-183 ve GP-184 numaralı numuneler ile KOH ve K_2SiO_3 kullanılarak, GP-190, GP-191 ve GP-192 numaralı numuneler ile NaOH ve Na_2SiO_3 kullanılarak sırasıyla 5, 10 ve 20 g olmak üzere TiO_2 miktarları artırılarak gerçekleştirilmiştir. Şekil 4.8 ve Şekil 4.9 ile bu numunelerin XRD analizi sonuçları gösterilmektedir. Sonuçlar incelendiğinde her iki durumda da ana geopolimer fazları üzerinde yapı değiştirici bir etki görülmemektedir. TiO_2 kullanımının geopolimer matris yapısına uygun olduğu ancak her iki aktivatör için TiO_2 miktarları artırdığında yaklaşık 25° açısındaki piklerin şiddetlerinde bir artış meydana gelmektedir. Bu derecede görünen pikler TiO_2 varlığından kaynaklanan rutil fazı temsil etmektedir. Rutil yapıyı temsilen görünen piklerin NaOH ile aktive edilen numunelerde daha şiddetli seviyelerde olduğu görülmektedir.

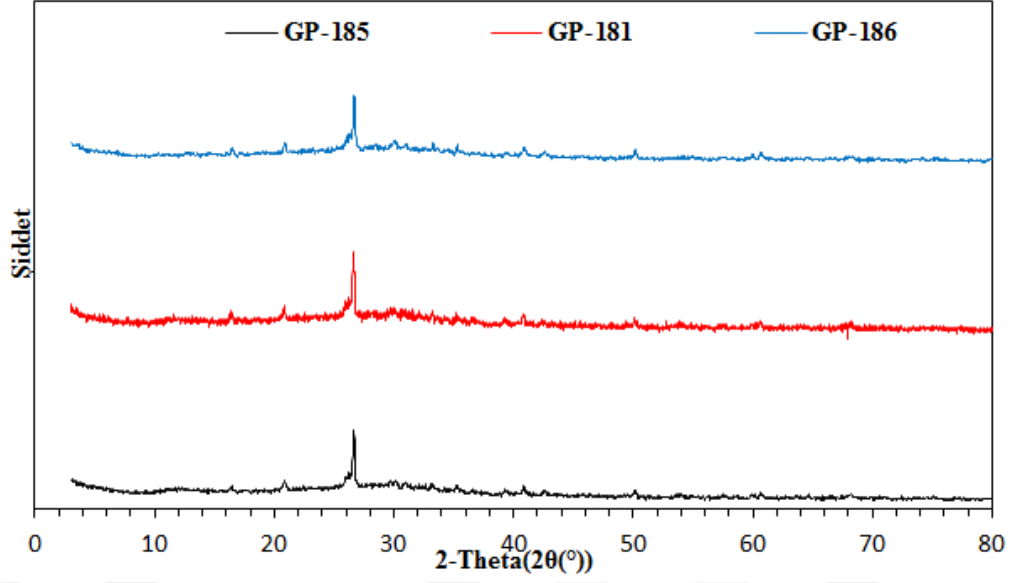


Şekil 4.8 : GP-182, GP-183 ve GP-184 numunelerinin XRD sonuçları.



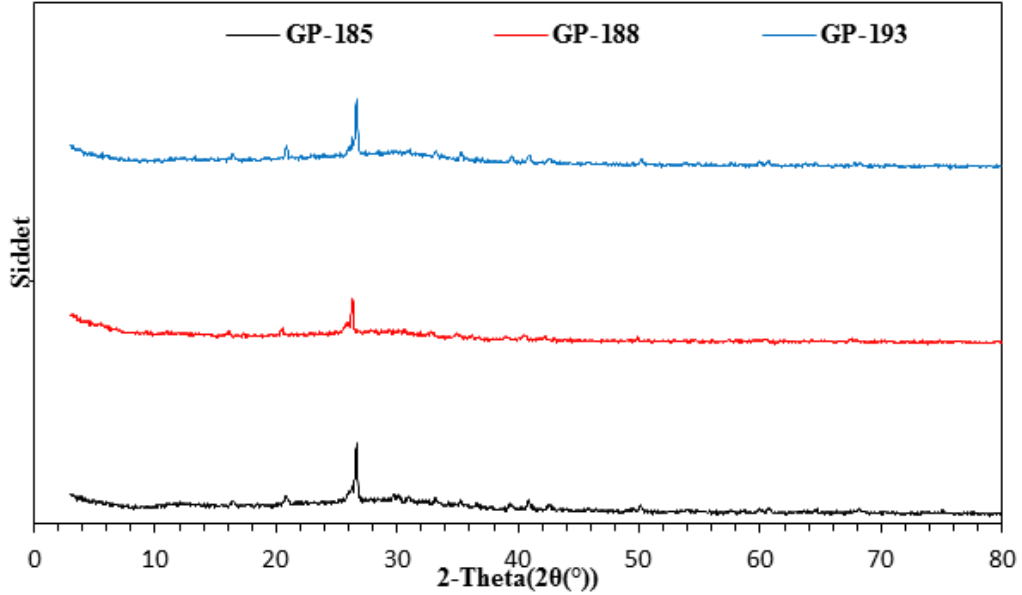
Şekil 4.9 : GP-190, GP-191 ve GP-192 numunelerinin XRD sonuçları.

Mısır kabağı külü kullanımının malzeme üretimine etkisini incelemek üzere GP-185, GP-181 ve GP-186 numaralı numuneler hazırlanmıştır. Bu numunelerin üretiminde kullanılan K_2SiO_3 miktarı azaltılarak yerine farklı oranlarda mısır kabağı külü kullanılmıştır. Şekil 4.10 ile XRD analiz sonuçları gösterilmektedir. Sonuçlar incelendiğinde yapısal anlamda bir değişiklik olmadığı ve bu sayede tarımsal atık küllerinin kullanılabilir olduğu belirlenmiştir.



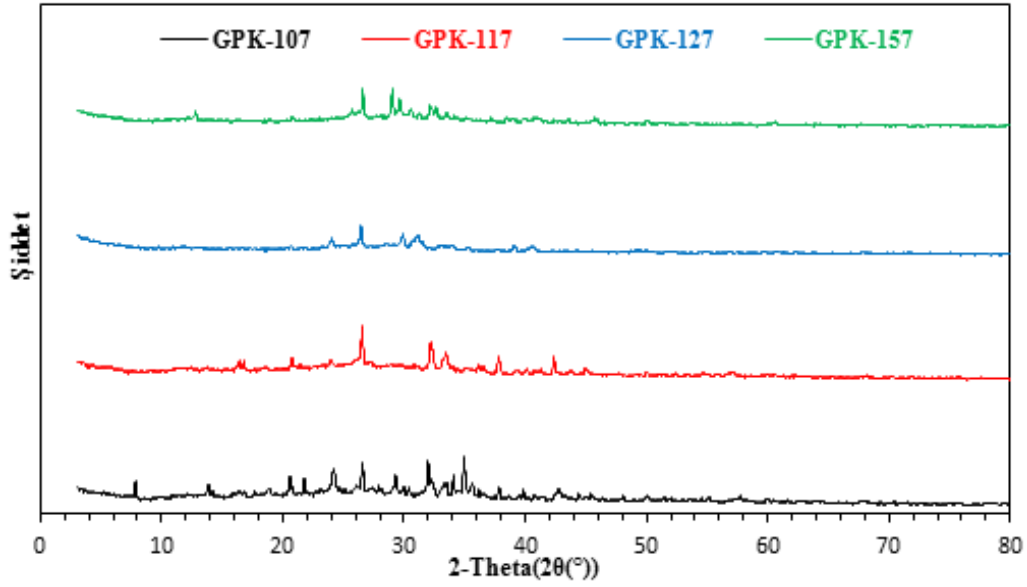
Şekil 4.10 : GP-185, GP-181 ve GP-186 numunelerinin XRD sonuçları.

Son olarak tarımsal atık küllerinin birbiri ile mukayese edilmesi için GP-185, GP-188 ve GP-193 numaralı numuneler sırasıyla mısır kabuğu, kanyaş otu ve yer fıstığı kabuğu kullanılarak gerçekleştirilmiştir. Şekil 4.11 incelendiği zaman kanyaş otu külünün eklendiği numunede 26 ° bandında beliren pikin şiddetinin daha az olduğu görülmektedir. Genel olarak geopolimer yapısının bozulmadığı üç durum için de söylenebilir.



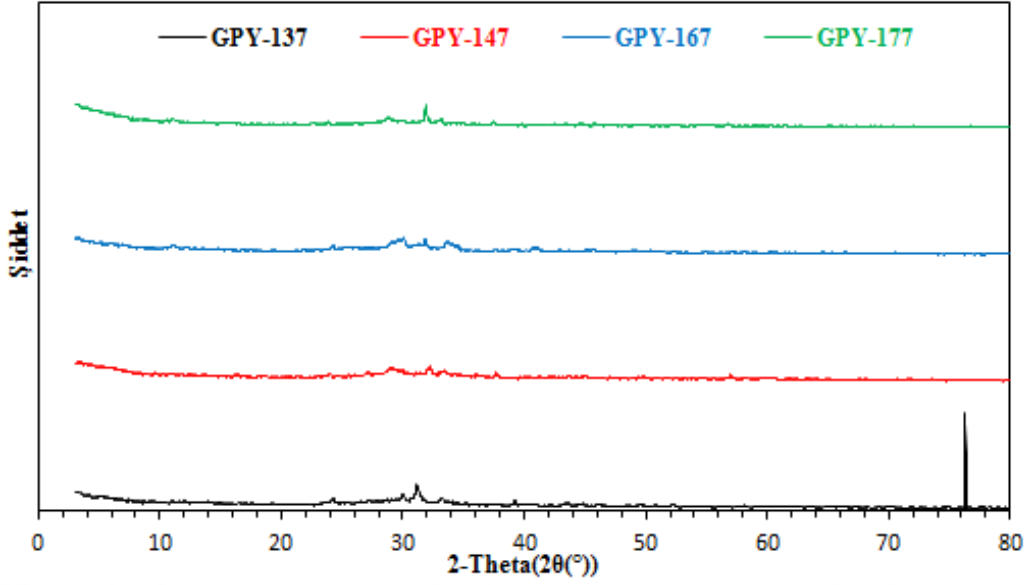
Şekil 4.11 : GP-185, GP-188 ve GP-193 numunelerinin XRD sonuçları.

İdeal olarak belirlenen karışım oranlarında (150 g ham madde, 8 M aktivatör ve 15 g silikat) Karabük uçucu külü kullanılarak dört farklı varyasyonda elde edilen GPK-107, GPK-117, GPK-127 ve GPK-157 kod numaralı numunelerin XRD analizleri Şekil 4.12 ile gösterilmektedir. Şekil incelendiğinde ideal numunelerden farklı olarak çok sayıda difraksiyon açılarında pikler verdiği ve 26 ° açısında şiddetin azaldığı görülmektedir. Sonuç olarak kristal yapının yerini amorf yapıya bıraktığı görülmektedir. Fiziksel olarak görsellerde numunelerin tam sertleşmediği ve dağılmaların olması bu sonuçları destekler niteliktedir.



Şekil 4.12 : GPK-107, GPK-117, GPK-127 ve GPK-157 numunelerinin XRD sonuçları.

İdeal olarak belirlenen karışım oranlarında (150 g ham madde, 8 M aktivatör ve 15 g silikat) yüksek fırın cürufu kullanılarak dört farklı varyasyonda elde edilen GPY-137, GPY-147, GPY-167 ve GPY-177 kod numaralı numunelerin XRD analizleri Şekil 4.13 ile gösterilmektedir. Şekil incelendiğinde dört numunenin de geopolimer jelleşmesini temsil eden 21-36 ° değer aralığında şiddetli pikler vermediği görülmektedir. Numunelerin genel olarak herhangi bir difraksiyon açısında pikler vermediği ve daha çok amorf yapının hakim olduğu söylenebilir. Bu sonuçlar fiziki olarak malzemelerin sertleşmeme ve parçalanma gibi istenmeyen durumlarını desteklemektedir.



Şekil 4.13 : GPY-137, GPY-147, GPY-167 ve GPY-177 numunelerinin XRD sonuçları.

Gerçekleştirilen XRD analizleri sonrasında tespit edilen yapılar ve difraksiyon açıları literatür sonuçları incelenerek Çizelge 4.3 ile özetlenmiştir. Çizelge incelendiğinde genel olarak geopolimer yapısında olması gereken yapılar analiz sonucunda tespit edilmiştir. Elde edilen malzemelerin sağlamlıkları ve yoğunluk değerleri gibi bazı fiziksel sonuçları bu yapıların varlığını destekler niteliktedir.

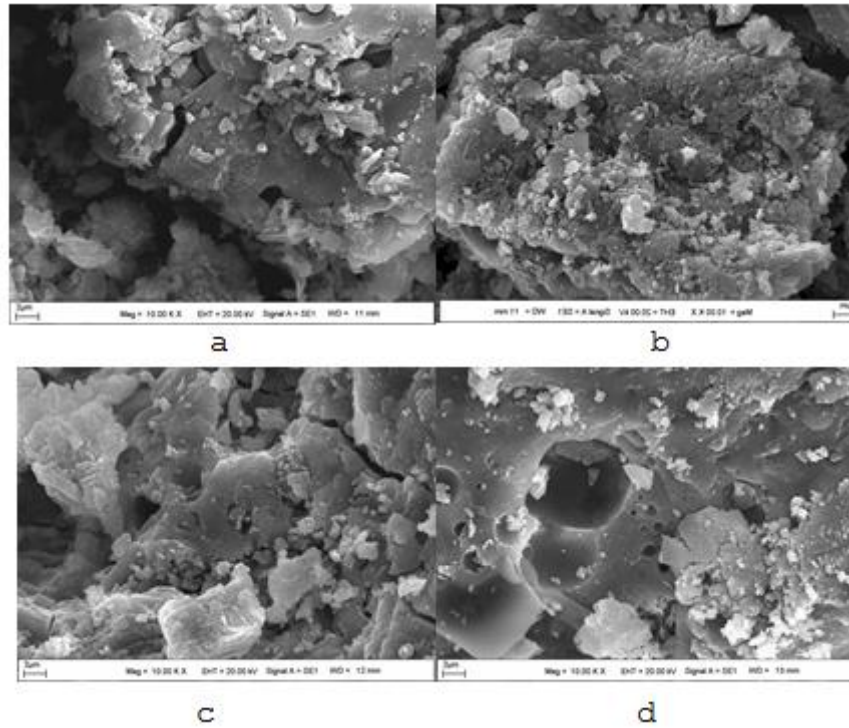
Çizelge 4.3 : XRD analizlerinde tespit edilen yapılar.

Görülen Yapı	2 θ °			Görülen Yapı	2 θ °
Jelleşme	21-36			Hematit	32-37
Zeolit	6-14	40-43	60-63	Anatas (TiO ₂)	24-25
Kuvars	21-27	49-51		Rutil (TiO ₂)	26-27
C-S-H (Kalsiyum Silikat Hidrat)	27-31			Ettringit	42-45
Mullit	14-19	34-41		Opal	21-24

4.2.2 SEM analizi sonuçları

İdeal olarak belirlenen karışım oranları ile elde edilen örnekler ve bu oranlar üzerinden farklı katkı maddeleri eklenerek elde edilen numunelerin yüzeylerinin morfolojik yapısını incelemek için SEM analizleri gerçekleştirilmiştir. XRD analizindeki benzer sıralamayla SEM görüntüleri sırasıyla gösterilmektedir. Görüntüler standart çekimlere oranla 20000x büyütme yapılarak görüntülenmektedir.

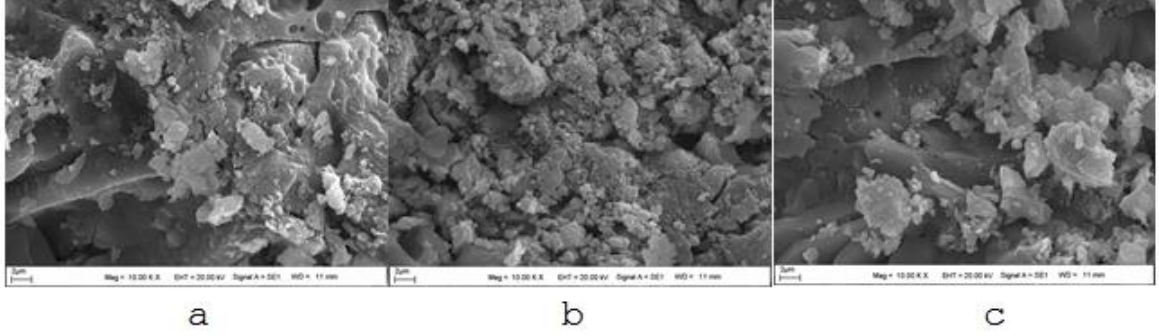
Aktivatör değişiminin yüzey yapılarına etkisini incelemek için Şekil 4.14 ile SEM görüntüleri verilmektedir. Görsellere göre GP-32 ve GP-67 NaOH ile GP-57 ve GP-77 ise KOH ile sentezlendiği için ana fazda KOH etkisiyle mikrogözenekliliğinin azaldığı kafes şeklinde yapıların geliştiği gözlenmektedir. GP-32 ve GP-57 numaralı numuneler sodyum silikat, GP-67 ve GP-77 numaralı numunelerde ise potasyum silikat kullanılmıştır. Sodyum silikatın yüzeyde mikro gözenekliliği arttırdığı görülmektedir [128].



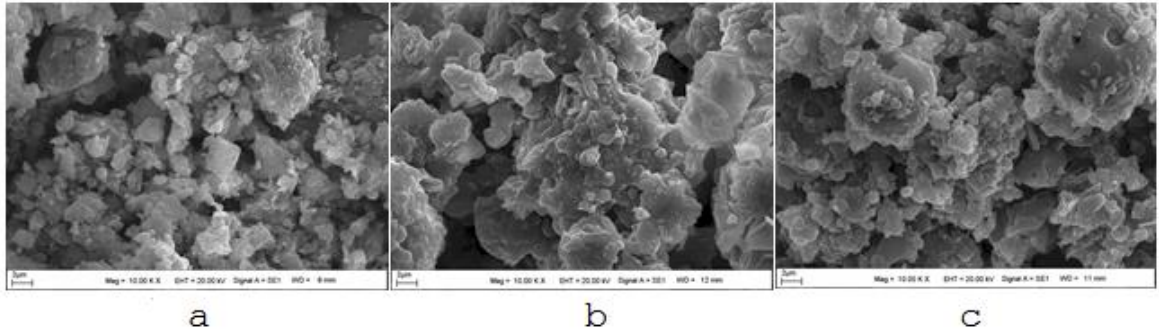
Şekil 4.14 : GP-32 (a), GP-57 (b), GP-67 (c) ve GP-77 (d) numunelerinin SEM görüntüleri.

TiO₂ eklenmesiyle oluşan yapılar Şekil 4.15 ve Şekil 4.16 ile gösterilmektedir. Şekil 4.15 ile gösterilen numuneler KOH ve potasyum silikat kullanılarak sentezlenmiştir. Titanyum dioksit varlığını yüzey üzerindeki küçük küresel gözenekli yapılarla göstermiştir. Özellikle

GP-183 numaralı numunede bu durum daha fazla görünmektedir. Şekil 4.16 ile gösterilen numuneler NaOH ve sodyum silikat kullanılarak sentezlenmiştir. Burada NaOH ile elde edilen numunelerde yüzeydeki küresel gözenekli yapıların daha çok olduğu görülmektedir.

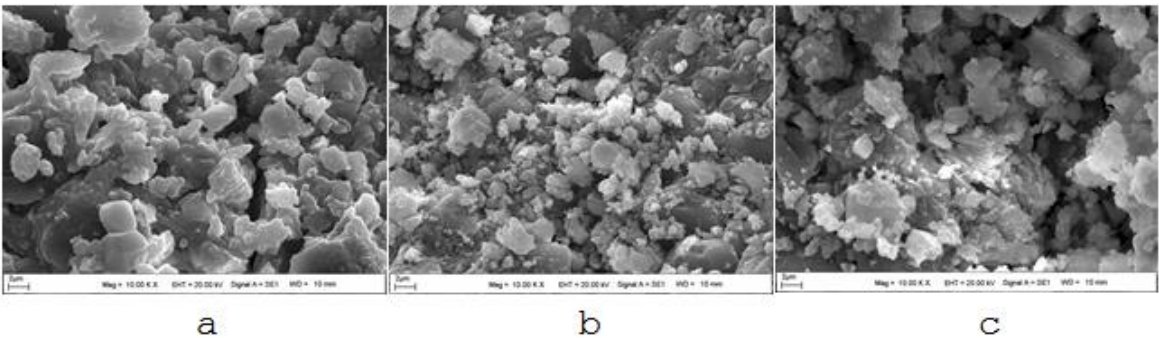


Şekil 4.15 : GP-182 (a), GP-183 (b) ve GP-184 (c) numunelerinin SEM görüntüleri.



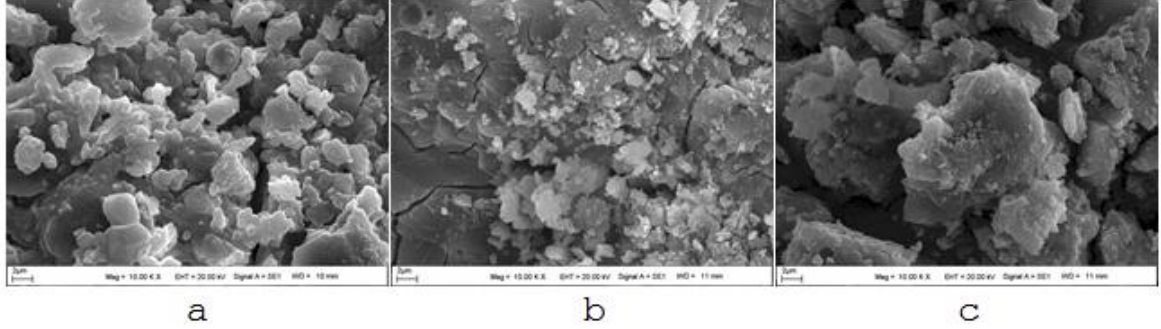
Şekil 4.16 : GP-190 (a), GP-191 (b) ve GP-192 (c) numunelerinin SEM görüntüleri.

Mısır küllerinin miktarının değişiminin yüzey özelliklerine etkisi Şekil 4.17 ile gösterilen SEM görüntüleriyle incelenmektedir. Görüntülere bakıldığında ana numuneye göre yüzeyde topaklanmaların olduğu görülmektedir. Mısır külü miktarındaki değişimin yüzeyde belirgin bir etki yapmadığı gözlemlenmektedir.



Şekil 4.17 : GP-185 (a), GP-181 (b) ve GP-186 (c) numunelerinin SEM görüntüleri.

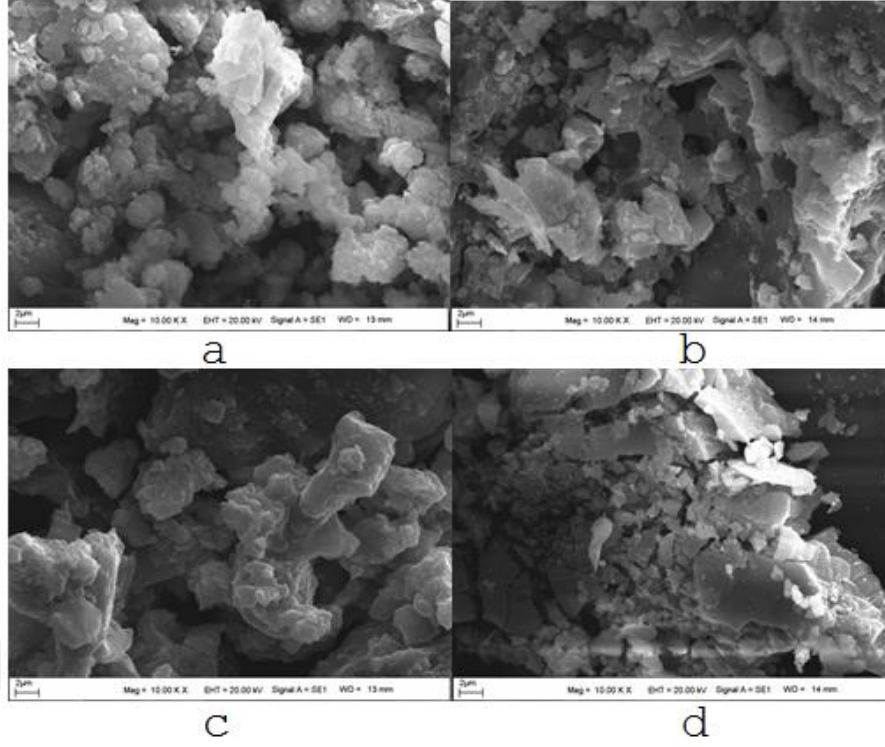
Tarımsal atıklardan elde edilen küllerin mukayese edildiği GP-185, GP-188 ve GP-193 numaralı numuneler Şekil 4.18 ile gösterilmektedir. Kanyaş otu kullanılarak gerçekleştirilen numunede yapının daha stabil ve prüzsüz olduğu göze çarpmaktadır. Mısır kabağı külünün etkisiyle yüzeyde mezogözeneklilik oluşmaktadır. Genel olarak elde edilen numunelerde yapıyı bozacak bir etmen görülmemektedir.



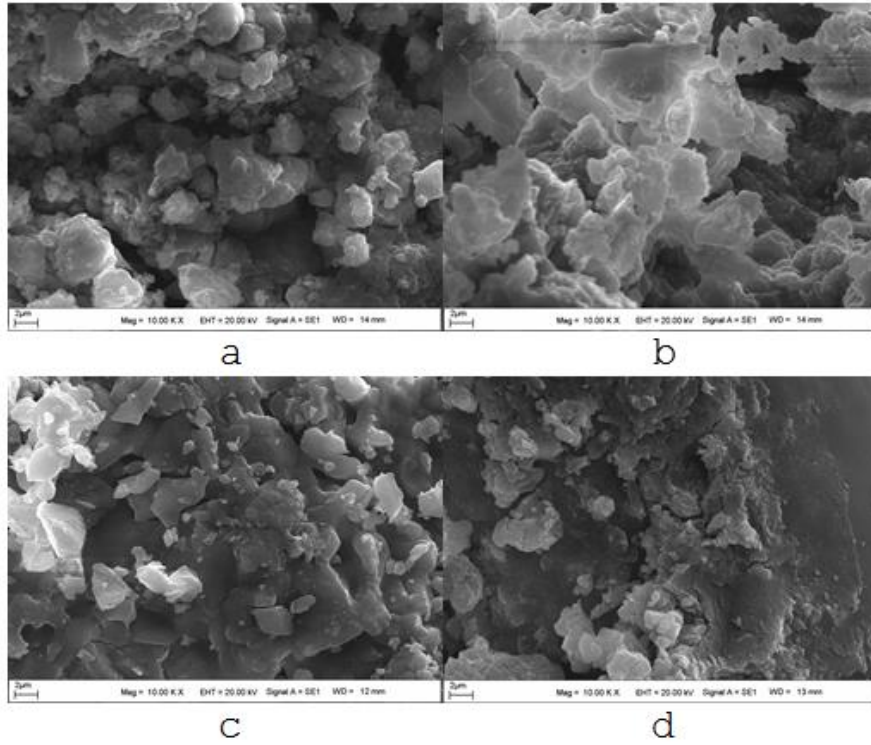
Şekil 4.18 : GP-185 (a), GP-188 (b) ve GP-193 (c) numunelerinin SEM görüntüleri.

Çalışmanın ilk kısmında Karabük uçucu külü ile elde edilen ancak fiziksel olarak uygun olmadığı belirlenen GPK-107, GPK-117, GPK-127 ve GPK-157 numaralı numunelerin SEM yüzey görüntüleri Şekil 4.19 ile verilmektedir. Görsellere göre GPK-107 ve GPK-117 NaOH ile GPK-127 ve GPK-157 ise KOH ile sentezlendiği için ana fazda KOH etkisiyle mikrogözenekliliğinin azaldığı kafes şeklinde yapıların geliştiği gözlenmektedir. GPK-107 ve GPK-157 numaralı numuneler sodyum silikat, GPK-117 ve GPK-127 numaralı numunelerde ise potasyum silikat kullanılmıştır. Sodyum silikatın yüzeyde mikro gözenekliliği arttırdığı görülmektedir.

Yüksek fırın cürufu ile elde edilen ancak fiziksel olarak istenilen geopolimer malzeme yapısına ulaşamadığı belirlenen GPY-137, GPY-147, GPY-167 ve GPY-177 numaralı numunelerin SEM yüzey görüntüleri Şekil 4.20 ile verilmektedir. Bu numunelerden GPY-147 ve GPY-177 NaOH ile GPY-137 ve GPY-167 ise KOH ile aktive edilerek üretilmiştir. Ayrıca GPY-137 ve GPY-147 numaralı numuneler potasyum silikat, GPY-167 ve GPY-177 numaralı numuneler ise sodyum silikat içermektedir. Dört numunenin benzer şekilde gözeneksiz, bölgesel çatlaklara ve yüzeyde küresel topaklanmalara sahip olduğu görülmektedir.



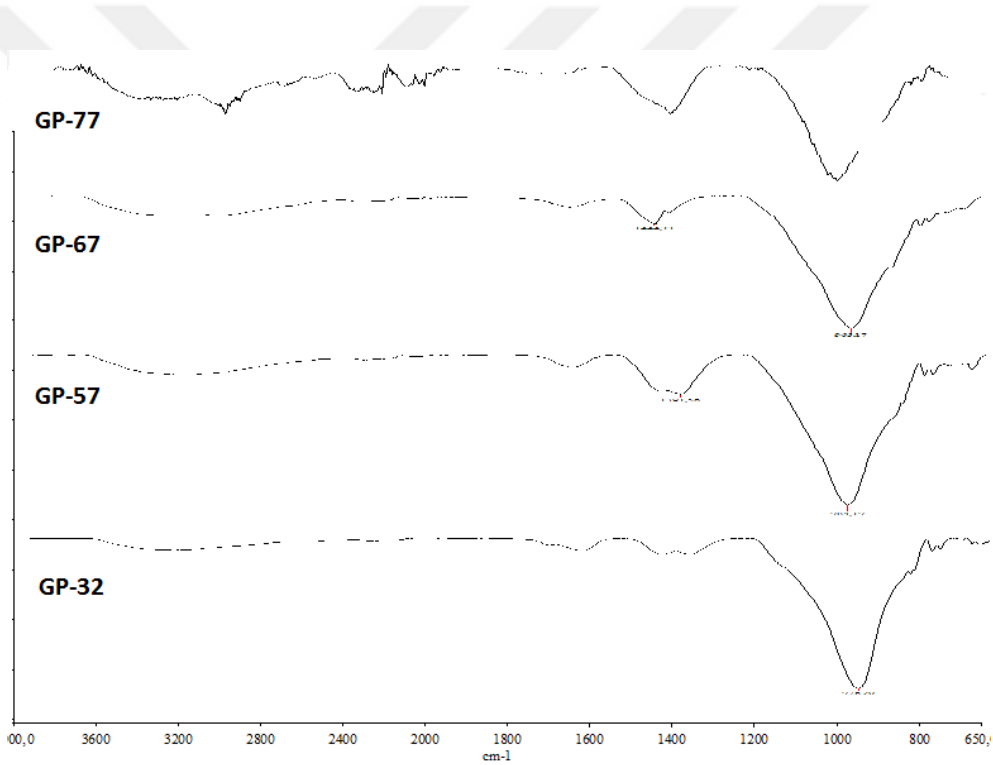
Şekil 4.19 : GPK-107 (a), GPK-117 (b), GPK-127 (c) ve GPK-157 (d) numunelerinin SEM görüntüleri.



Şekil 4.20 : GPY-137 (a), GPY-147 (b), GPY-167 (c) ve GPY-177 (d) numunelerinin SEM görüntüleri.

4.2.3 FT-IR analizi sonuçları

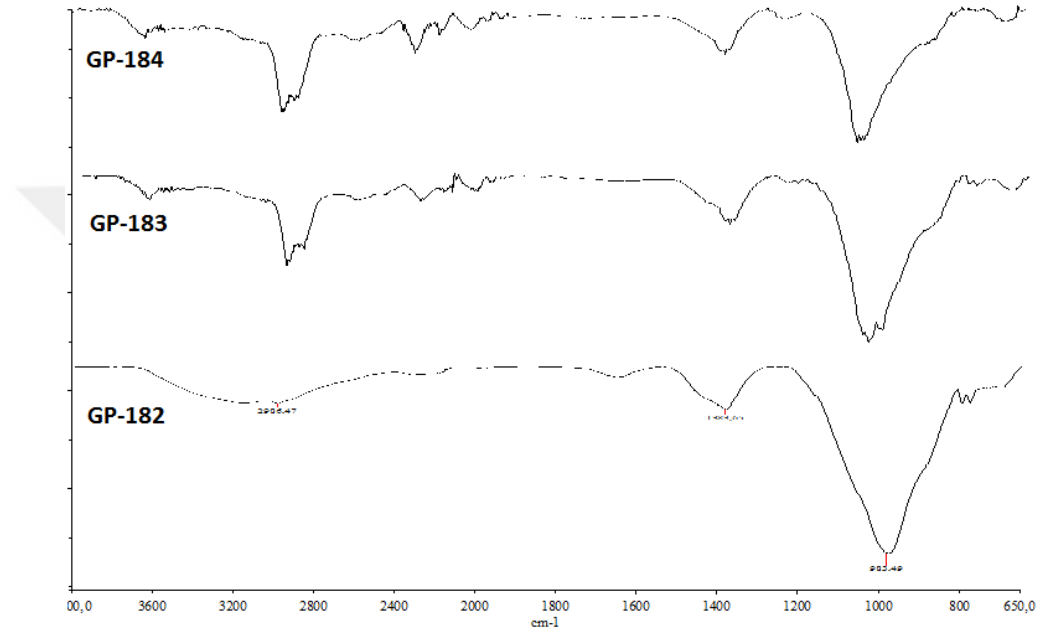
Malzeme üretiminde kullanılan aktivatör cinsinin oluşan bağ yapılarında etkisini belirlemek için FT-IR analizi sonuçları Şekil 4.21 ile gösterilmektedir. Şekil incelendiğinde bütün örneklerde yaklaşık 950-1000 cm^{-1} aralığında gözlemlenen pikler Si-O-Si ve Si-O-Al gruplarının malzeme içerisinde yer almasından kaynaklanmaktadır. Elde edilen geopolimer numunelerdeki yaklaşık 870 cm^{-1} ve 1430 cm^{-1} arasında gözlemlenen pikler kafes yapısının dışında kalan CO_2 ile reaksiyona girmeyen Sodyum (Na) arasındaki reaksiyon sonucu oluşan ürünlerden birisi olan $(\text{CO}_3)^{2-}$ iyonlarının varlığı sebebiyle gözlemlendiği düşünülmektedir. Yaklaşık 700 cm^{-1} dolaylarında gözlemlenen pikler ise alüminosilikat kaynaklarından gelen silisyum ile oksijen molekülleri arasında gerçekleşen Si-O bağlı grupların varlığı sonucu meydana gelmektedir [129].



Şekil 4.21 : GP-32, GP-57, GP-67 ve GP-77 numunelerinin FT-IR sonuçları.

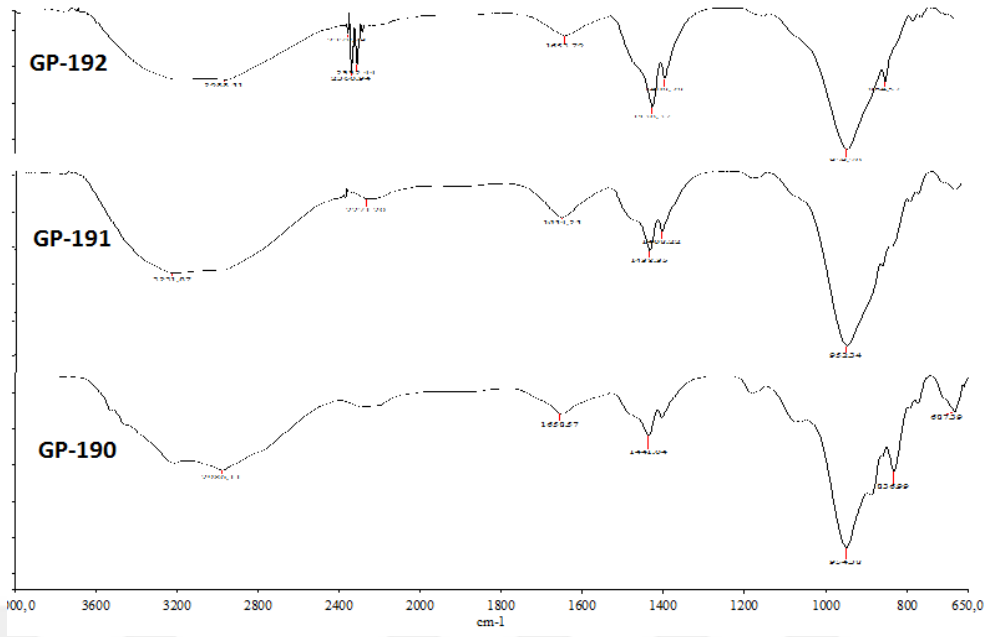
Titanyum dioksit varlığının malzeme bağ yapıları üzerinde oluşturduğu etkinin incelenmesi için FT-IR analizi sonuçları Şekil 4.22 ve Şekil 4.23 ile gösterilmektedir. İki şekil beraber irdelendiğinde NaOH ile sentezlenen malzemelerde daha farklı yapılar da bağlar oluştuğunu söylemek mümkündür. GP-182 nolu numunenin TiO_2 miktarı az olduğu için 2800 cm^{-1} civarında oluşan dalga sayılarında titreşim göstermediği ve bağ yapıları diğer numunelere göre farklı olduğu söylenebilir. 2970 cm^{-1} , 1630 cm^{-1} , 1430 cm^{-1} ve 960

cm^{-1} dalga sayılarında gözlemlenen oluşumlar sırasıyla alifatik C-H bağlarına, geopolimer içerisinde su emme durumundan dolayı gelişen yapıların H-O-H titreşimlerine, kondenzasyon aşamasında meydana gelen C-O gruplarına ve Al-OH gruplarına aittir. 3200 ve 1640 cm^{-1} civarındaki oluşumlar yapı içerisinde yer alan H-O-H grubuna ait piklerdir. 3200 cm^{-1} civarındaki şiddetli ve yayvan dalga sayıları ise kimyasal bağ ile bağlanmış su moleküllerini, 1600 cm^{-1} civarındaki pikler ise fiziksel bağ ile bağlanmış su moleküllerini göstermektedir [130].



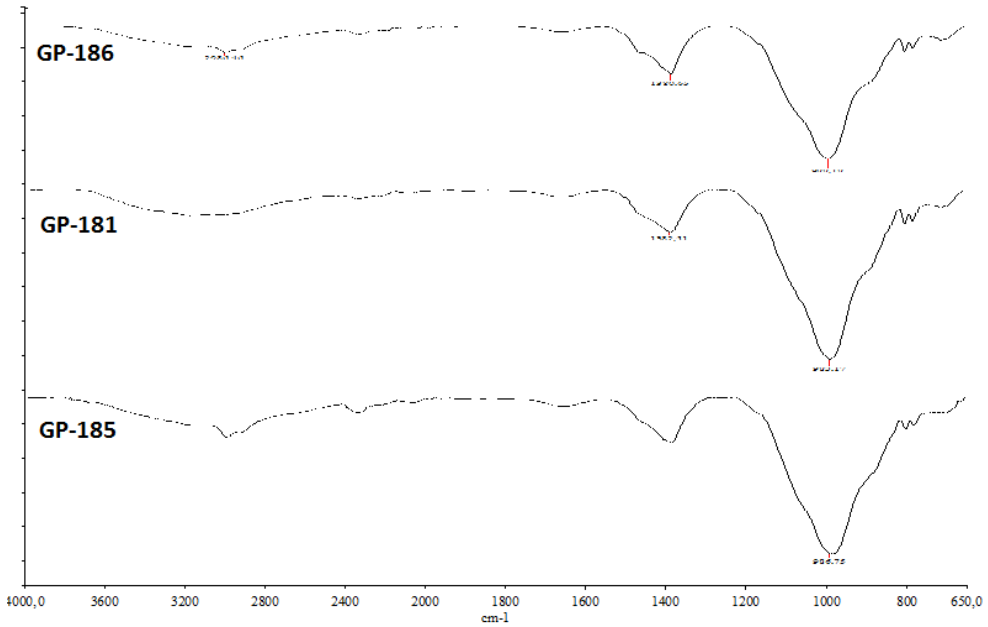
Şekil 4.22 : GP-182, GP-183 ve GP-184 numunelerinin FT-IR sonuçları.

Şekil 4.23’de GP-192 numaralı numune 2400 cm^{-1} civarında diğer numunelere göre birkaç adet pik oluşturduğu görülmektedir. Bu durum yüksek miktardaki TiO_2 ’nin malzeme içerisinde farklı yapıda oluşumlar meydana getirmesi olarak yorumlanmıştır. Ayrıca GP-191 numaralı numunenin 830 cm^{-1} civarında pik vermemesi ideal oranda katkı miktarı olarak yorumlanmaktadır.



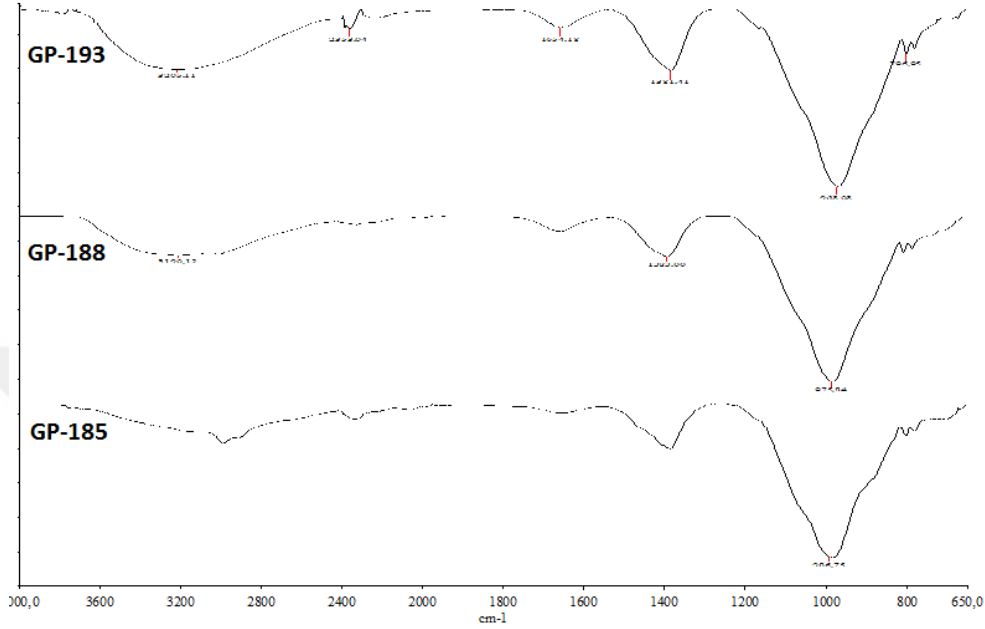
Şekil 4.23 : GP-190, GP-191 ve GP-192 numunelerinin FT-IR sonuçları.

Mısır kabuğu küllerinin miktarının artmasıyla oluşabilecek bağların incelenmesi için FT-IR analizi sonuçları Şekil 4.24 ile gösterilmektedir. Şekil incelendiğinde üç numunenin de benzer bağ yapıları bulundurması mısır kabuğu külünün farklı yapıda bir oluşum meydana getirmedeğini göstermektedir.



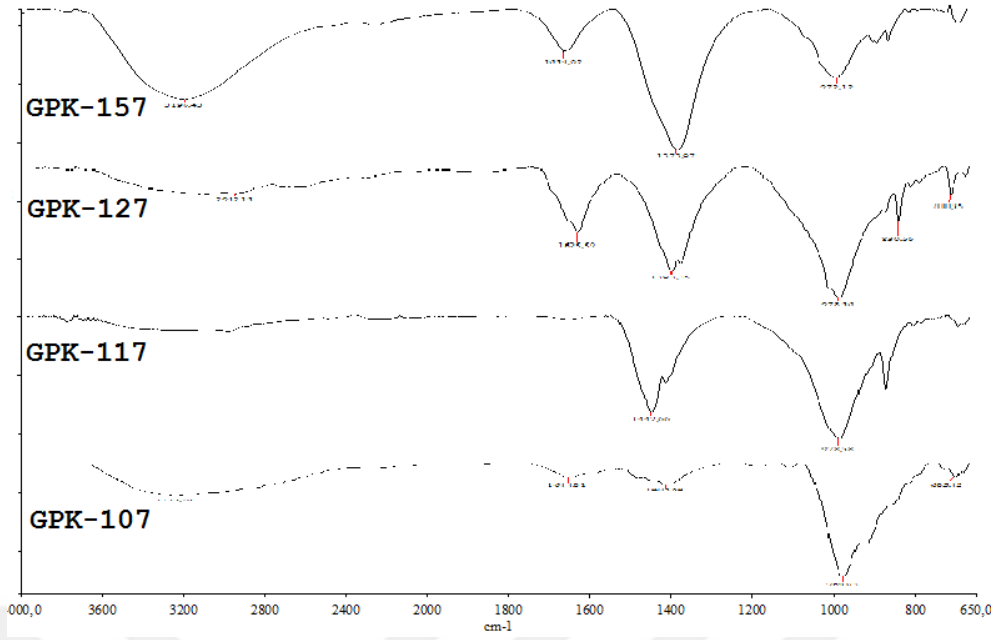
Şekil 4.24 : GP-185, GP-181 ve GP-186 numunelerinin FT-IR sonuçları.

Farklı tarımsal atıkların külleri kullanılarak elde edilen malzemelerin FT-IR analiz sonuçları Şekil 4.25 ile gösterilmektedir. Şekil incelendiğinde farklı küllerin eklenmesiyle geopolimer malzeme oluşumunda meydana gelen bağların dışında yapıyı bozacak farklı oluşumlar gözlemlenmemektedir.



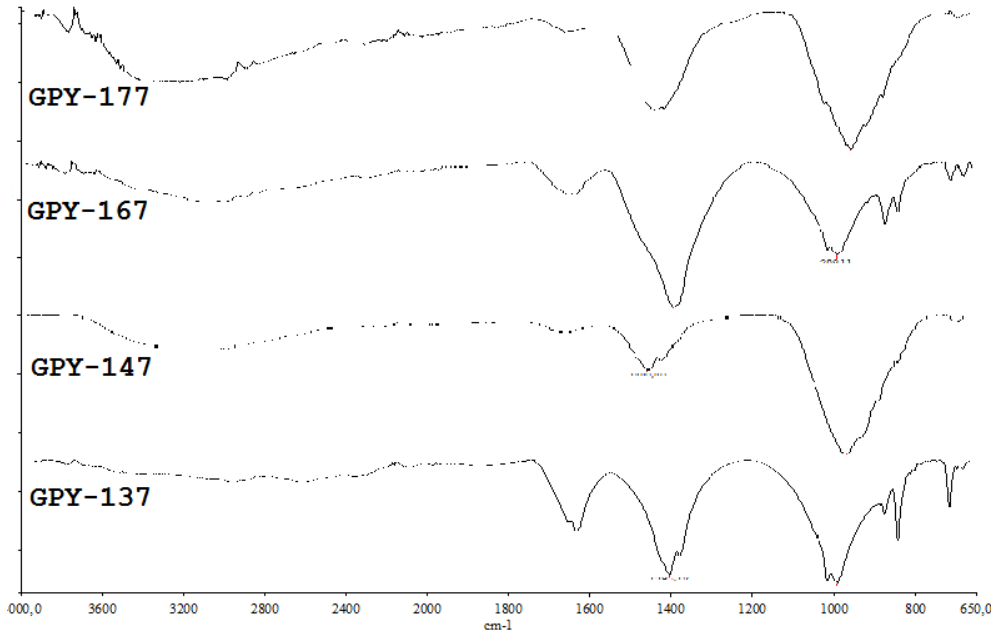
Şekil 4.25 : GP-185, GP-188 ve GP-193 numunelerinin FT-IR sonuçları.

Çalışmanın ilk kısmında Karabük uçucu küllü ile elde edilen ancak fiziksel olarak uygun olmadığı belirlenen GPK-107, GPK-117, GPK-127 ve GPK-157 numaralı numunelerin FT-IR analizi sonuçları Şekil 4.26 ile verilmektedir. Bu numuneler farklı aktivatör varyasyonları kullanılarak elde edilmişlerdir. Yapıda oluşan bağlar geopolimer malzeme üretiminde meydana gelebilecek bağlar olarak görülmektedir. Ancak fiziksel gözlemler sonucu bazı numunelerin istenilen düzeyde sertleşmediği ve bölgesel dağılımların meydana geldiği belirlenmiştir. Özellikle 1400 cm^{-1} civarında görünen şiddetli pikler yapı içerisinde H-O-H fiziksel su bağlarının varlığını göstermektedir.



Şekil 4.26 : GPK-107, GPK-117, GPK-127 ve GPK-157 numunelerinin FT-IR sonuçları.

Yüksek fırın cürufu ile elde edilen ancak fiziksel olarak istenilen geopolimer malzeme yapısına ulaşamadığı belirlenen GPY-137, GPY-147, GPY-167 ve GPY-177 numaralı numunelerin FT-IR analizi sonuçları Şekil 4.27 ile verilmektedir. Bu numunelerden GPY-147 ve GPY-177 NaOH ile GPY-137 ve GPY-167 ise KOH ile aktive edilerek üretilmiştir. Ayrıca GPY-137 ve GPY-147 numaralı numuneler potasyum silikat, GPY-167 ve GPY-177 numaralı numuneler ise sodyum silikat içermektedir.



Şekil 4.27 : GPY-137, GPY-147, GPY-167 ve GPY-177 numunelerinin FT-IR sonuçları.

Yapılan tüm FT-IR analizleri sonucunda tespit edilen dalga sayıları Çizelge 4.4 ile özetlenmiştir. Özellikle literatüre göre geopolimer malzeme oluşumunda gerçekleşen bağların oluştuğu görülmektedir.

Çizelge 4.4 : FT-IR analizlerinde tespit edilen yapılar ve dalga sayıları.

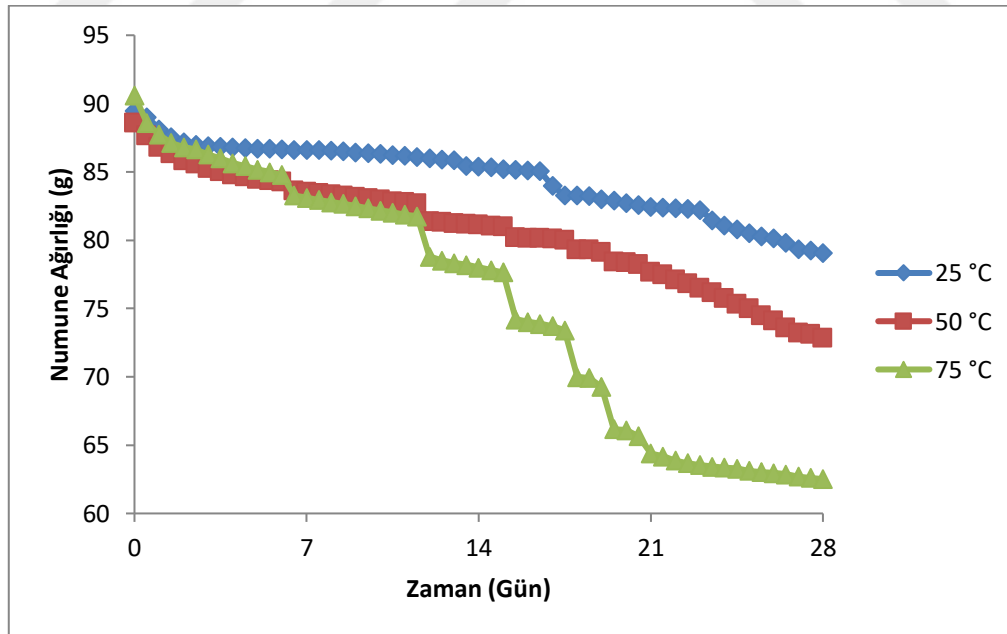
Fonksiyonel gruplar	Dalga sayısı (cm ⁻¹)		
Si-O-Si	900-1100	900-1100	
Si-O-Al	900-1100	680-800	
Si-O-Ca	870-1000		
H-O-H (kimyasal)	3250-3400		
H-O-H (fiziksel)	1400-1700		
C-O (Karbonat)	800-900	1375-1450	
Ca-OH	3600-3680		
S-O	1098-1117		
Ca-Si-OH (Kalsiyum silkat hidrat)	960-990		
C-O-C	1400-1500		
Si-OH	420-500 (bükme)	550-560 (germe)	708-1098
Al-OH	420-500 (bükme)	550-560 (germe)	1645-3364
Ti-O	1403-1630		
Fe-O Fe-O-Si(Al)	420-570		

4.3 Krleme Etkisi ve Kurutma Kinetiđi

Geopolimer malzemelerin nihai haline ulařmasında krlemenin etkisi byk önem arz etmektedir. Bu yzden aktivatr etkisinin belirlendiđi GP-32, GP-57, GP-67 ve GP-77 numaralı numuneler ile krleme sıcaklıđı ve krleme kinetiđi incelenmiřtir.

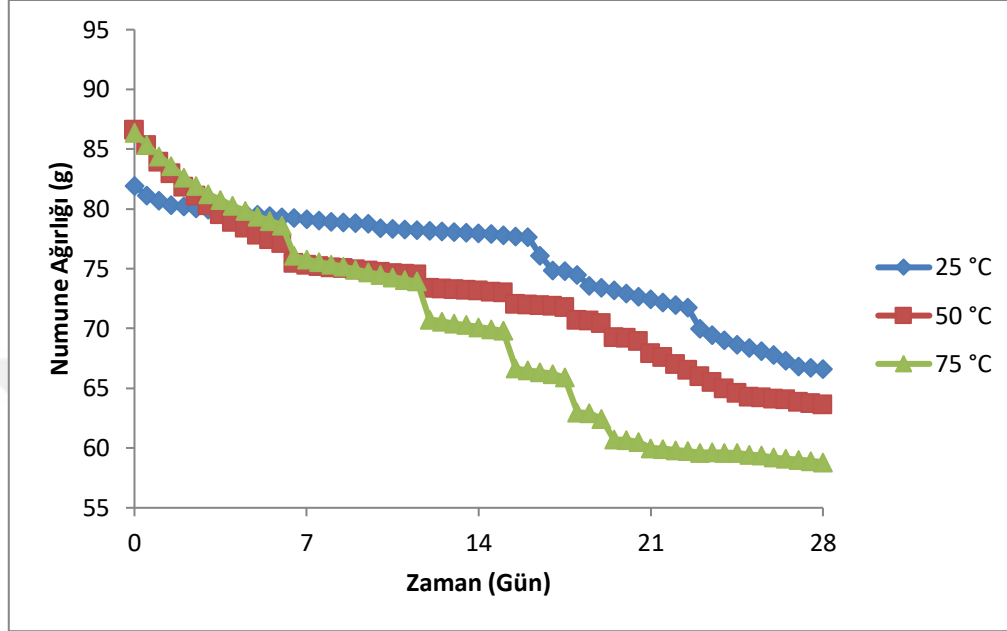
Oda sıcaklıđı (25 °C), 50 °C ve 75 °C sıcaklıklarında etvde bekletilen numunelerden 12 saatte bir lm alınarak 28 gn boyunca krleme iřlemi gerekleřtirilmiřtir. GP-32 numaralı numune Őekil 4.28, GP-57 numaralı numune Őekil 4.29, GP-67 numaralı numune Őekil 4.30 ve GP-77 numaralı numune Őekil 4.31 ile gsterilmektedir. Genel olarak tm numunelerde krleme sıcaklıđının artmasıyla numune ađırlıđının daha ok azaldıđı grlmektedir. Sıcaklık arttıka buharlařma hızlanacađından dolayı bu beklenen bir sonutur.

GP-32 numaralı numunede 75 °C sıcaklıkta zellikle 14 gn sonrasında ani ktle kayıpları sz konusudur. Bunun nedeni belirli bir zaman sonra gzeneklerin daha fazla aılarak kısmi atlaklar oluřturması ve bunun sonucunda buharlařmaya bađlı ani nem kayıplarının gerekleřmesi olarak dřnlmektedir. 50 °C sıcaklıkta gerekleřtirilen krleme sonucunda numunede yaklařık %16 oranında ktle kaybı gerekleřmiřtir.



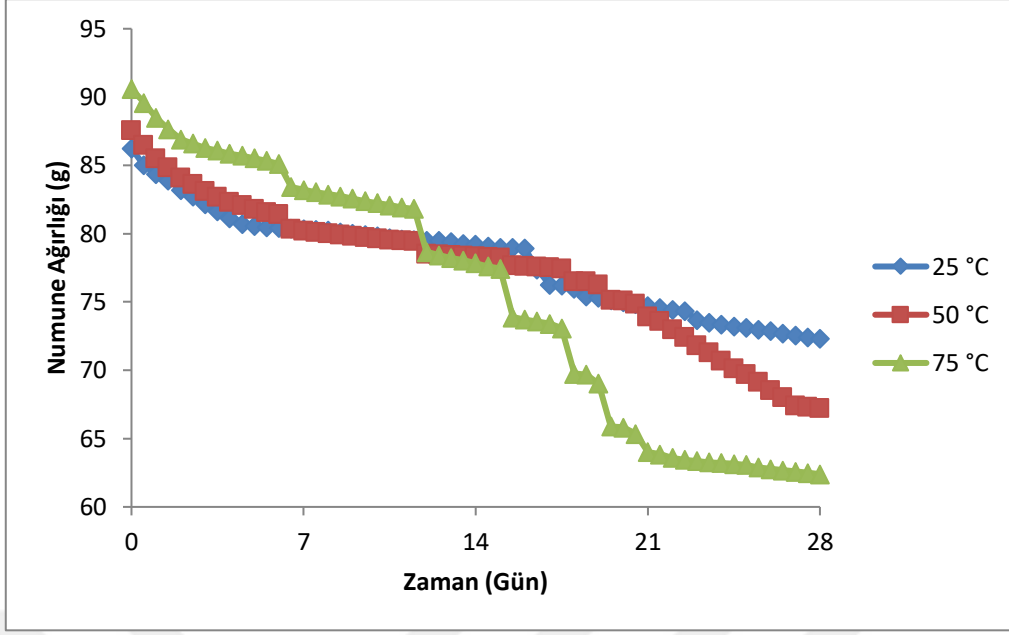
Őekil 4.28 : GP-32 numaralı numunenin krleme kinetiđi.

GP-57 numaralı numune için şekil incelendiğinde ani kütle kayıpları görünmemektedir. Bu yüzden numunenin yüksek sıcaklıklara daha fazla dayanabileceği sonucu çıkarılabilir. Optimum kürlenme sıcaklığı olarak belirlenen 50 °C sıcaklıkta, yüzde kütle kaybının yaklaşık %23 seviyelerinde olduğu belirlenmiştir.



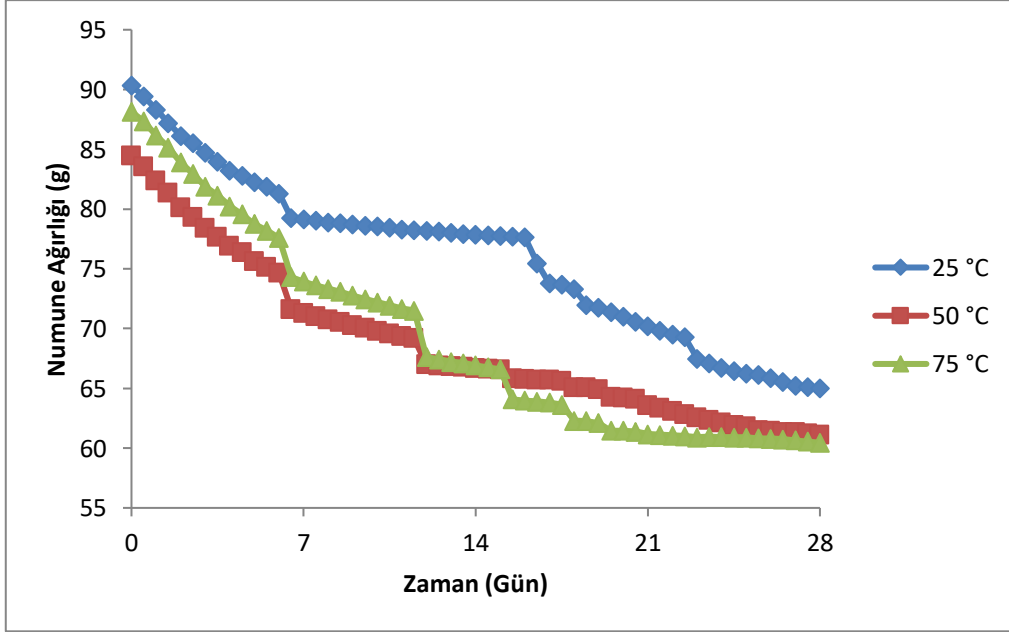
Şekil 4.29 : GP-57 numaralı numunenin kürlenme kinetiği.

Şekil 4.30 ile GP-67 numaralı numunenin kürlenme kinetiği incelendiğinde GP-32 numaralı numuneye benzer şekilde 75 °C sıcaklıktaki kürlenme işleminde ani kütle kayıpları görülmektedir. Bu kütle kayıpları yine yaklaşık 14 gün sürelerinde gerçekleşmektedir. Bu iki numunenin ortak özelliği aktivatör olarak sodyum hidroksit (NaOH) kullanılmasıdır. Yapılan çalışmalarda aktivatör kullanımının malzeme üretimine etkisi olarak somut bir bilgi yer almamaktadır. Bazı malzemelerin KOH ile bazılarının NaOH ile aktifleştirildiğinde daha avantajlı olduğu görülmektedir [131-134]. Potasyum hidroksitin bizim kullandığımız uçucu kül ile daha fazla uyum içerisinde olduğu söylenebilir. 50 °C sıcaklıktaki kürlenme kinetiği sonuçlarına göre GP-67 numaralı numunede yaklaşık %23 oranında kütle kaybı gerçekleşmektedir.



Şekil 4.30 : GP-67 numaralı numunenin kütleme kinetiği.

GP-77 numaralı numune kütleme kinetiğine göre 50 °C sıcaklıkta yaklaşık %26 oranında ağırlık kaybı gerçekleştiği belirlenmiştir. Potasyum silikat ve potasyum hidroksit ile aktiflenen bu numune için bağ yapılarının sağlam olduğu kütleme kinetiği sonuçlarının da ideal olduğu söylenebilir. Yapı içerisinde yer almayan su moleküllerini rahat bir şekilde ortamdaki uzaklaştırılmasıyla dayanımlı malzeme oluşumuna örnek teşkil etmektedir [135].

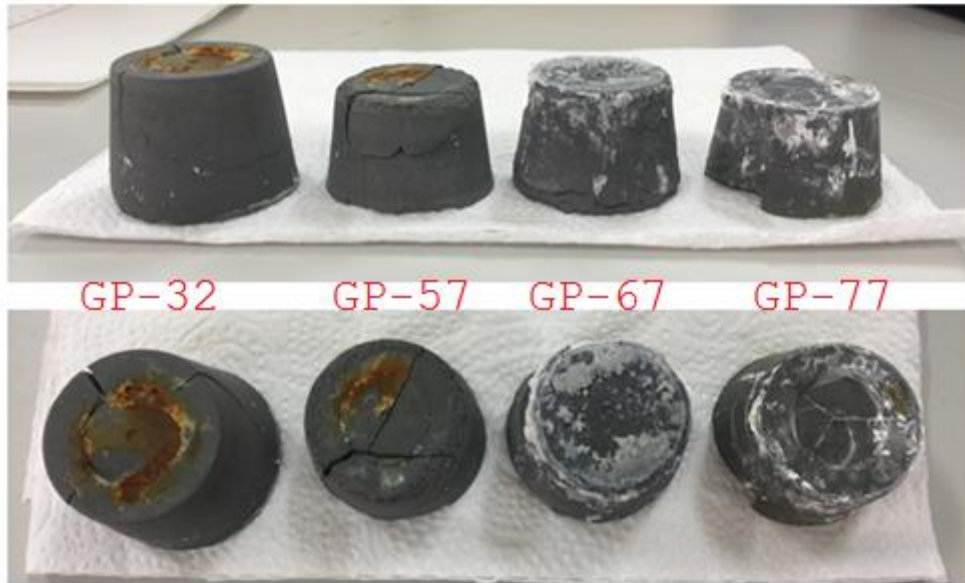


Şekil 4.31 : GP-77 numaralı numunenin kütleme kinetiği.

4.4 Malzemenin Asit ve Su Ortamına Direncinin Gözlemlenmesi

Elde edilen geopolimer malzemelerin aktivatör türü farklı olan dört numune için asit ve su ortamında 28 gün bekletilerek ağırlık değişimleri ve fiziksel değişimler tespit edilerek bu ortamlara dayanımları hakkında bilgi sağlamaya çalışılmıştır. Tüm numuneler başlangıçta kuru halleri tartılmış ve 7 gün arayla sıvı ortamdan çıkarılıp belirli sürelerde bekletilerek kuruması sağlanıp ondan sonra tartılmıştır.

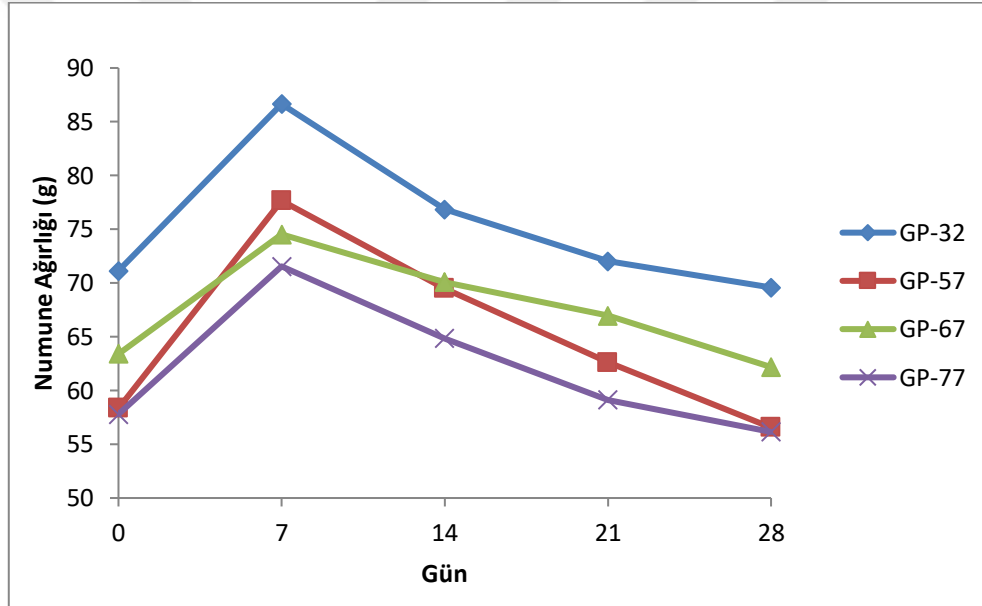
Şekil 4.32 ile asit (%5'lik HCl) ortamında 28 gün bekletilen numunelerin son halleri gösterilmektedir. Şekle bakıldığında özellikle GP-32 ve GP-57 numaralı numunelerin yapısında çatlaklar ve pasa benzer lekelerin olduğu görülmektedir. Bu numuneler elde edilirken aktivatör olarak sodyum silikat (Na_2SiO_3) kullanılmıştır. GP-67 ve GP-77 numaralı numunelerde ise çatlakların daha az olduğu ve yüzeyinde tuz yapısına benzer oluşumlar meydana geldiği gözlemlenmektedir. Bu numuneler elde edilirken potasyum silikat (K_2SiO_3) kullanılmıştır. Bu durum, potasyum silikatın NaOH, KOH ve ham madde ile yeterli seviyede bağlanamayarak ortamda bu hidroksitlerin bolluğu dolayısıyla asit ile etkileşime girerek tuz oluşması olarak yorumlanabilir. Bu numunelerin ilk iki numuneye göre asit ortamına daha fazla dayanım sergilediği düşünülebilir.



Şekil 4.32 : Asit ortamında bekletilen numunelerin görsel olarak değişimleri.

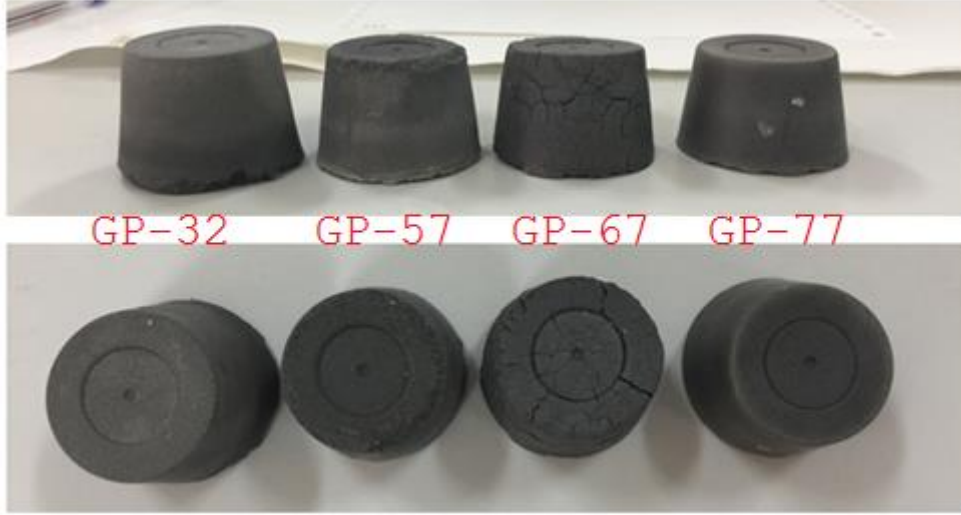
Şekil 4.33' de numunelerin başlangıçta, 7, 14, 21 ve 28 gün süre zarfındaki ağırlıklarının değişimini gösteren grafik verilmektedir. Şekle göre her numunenin ağırlıklarının önce arttığı ve günler geçtikçe azaldığı görülmektedir. Bunun nedeni şu şekilde açıklanmaktadır; Numuneler sıvı ortamına bırakıldığında, sıvı moleküller gözeneklerden yapı içerisine nüfuz etmektedir. Daha sonra ortamdaki moleküller (asit ya da su) zamanla katı ile etkileşime girdikleri için malzemeyi tahrip ederek yapısını bozup çatlaklara sebep olmaktadır. Sürekli devam eden bu durum neticesinde çatlakların koparak malzemedan sıvı ortama dağılması sonucunda malzemenin kütlesi azalmaktadır [136].

GP-32 ve GP-57 numaralı numuneler çatlaklarla daha fazla tahrip olduğunu bu grafik destekler niteliktedir. Çünkü bu iki numunenin kütle kayıpları yaklaşık olarak %2 ve %2,5 değerlerinde gerçekleşmiştir.



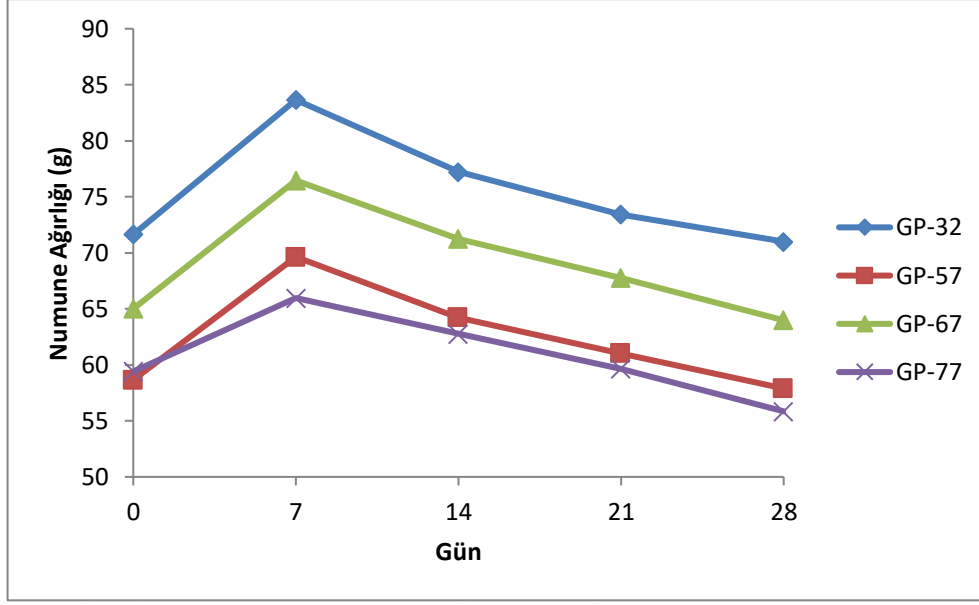
Şekil 4.33 : Asit ortamında bekletilen numunelerin ağırlık değişimleri.

Belirtilen numunelerin su ortamında 28 gün süre ile bekletilerek su ortamına dayanımlarının tespiti fiziksel gözlem ve ağırlık kaybı miktarının belirlenmesiyle gerçekleştirilmiştir. Şekil 4.34 ile 28 gün süreyle saf su ortamında bekletilen numunelerin son halleri gösterilmektedir. Şekil incelendiğinde GP-67 numaralı numunenin hafif çatlaklara sahip olduğu görülmektedir. Bu numune NaOH ve potasyum silikat (K_2SiO_3) kullanılarak aktive edilmiştir.



Şekil 4.34 : Saf su ortamında bekletilen numunelerin görsel olarak değişimleri.

Şekil 4.35’de başlangıçta ve belirli günlerde tartımları yapılan numunelerin ağırlık değişimleri gösterilmektedir. Grafiğe göre sırasıyla GP-32, GP-57, GP-67 ve GP-77 numaralı numunelerin başlangıç ve son değere göre ağırlık kayıpları %0,9, %1,3, %1,7 ve %0,6 olarak hesaplanmıştır. Görselde belirlendiği gibi GP-67 numaralı numunenin bünyesindeki çatlaklardan dolayı diğer örneklere göre daha fazla ağırlık kaybı yaşadığı belirlenmiştir. Bu durum geopolimer elde edilirken aktivatör olarak kullanılan NaOH ile K_2SiO_3 arasındaki bağlanmanın istenilen şekilde gerçekleşmediği bunun sonucunda da bu boşluklara su moleküllerinin girmesi ile çatlakların oluştuğunu göstermektedir. GP-67 geopolimerine ait SEM görüntülerindeki (Şekil 4.14) kırılmalarda bu değişimin nedenini açıklamaktadır.

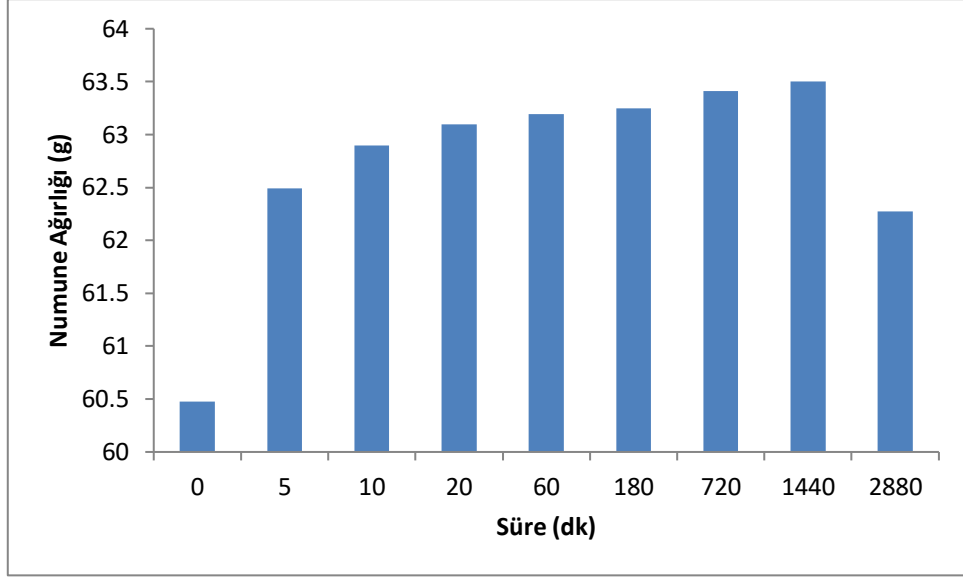


Şekil 4.35 : Saf su ortamında bekletilen numunelerin ağırlık değişimleri.

4.5 Su Emme Miktarı, Yoğunluk Tayini ve Basınç Dayanımı

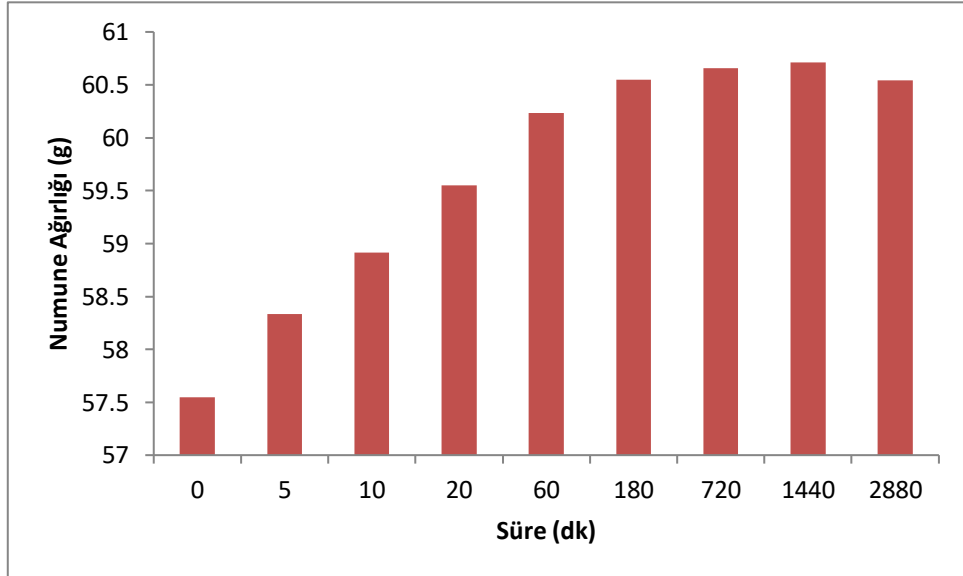
Elde edilen numunelerden aktivatör etkisi için kullanılan dört numune için 2 gün boyunca saf su ortamında bırakılarak ve belirli sürelerde ağırlık ölçümleri yapılarak su emme (absorplama) miktarları belirlenmiştir. Her numune için ayrı sütun grafiklerinde belirtilen dakikaların sonlarında yapılan ölçümlere göre ağırlıkları yazılmıştır.

Şekil 4.36 ile GP-32 numaralı numune için su emme miktarları ve numune başlangıç kütlesi gösterilmektedir. Şekil incelendiğinde, yapılan hesaplamalara göre ilk günün sonunda (1440 dk) başlangıçtaki duruma göre yaklaşık %5 civarında kütle artışı söz konusudur. Gerçekleşen bu kütle artışının yaklaşık %3,5'lük değeri ilk 5 dk içerisinde gerçekleşmiştir. Birinci gün ve ikinci gün arasında ise bir kütle kaybı görülmektedir. Bunun nedeni su emme işleminin yaklaşık bir gün içerisinde gerçekleştiği ve tüm kılcal gözeneklere sıvının nüfuz etmesidir. İçeri giren su molekülleri dışarı çıkarken yapı içerisinde tahribata sebep vermesi sonucunda kütle kaybı gerçekleşmektedir [137].



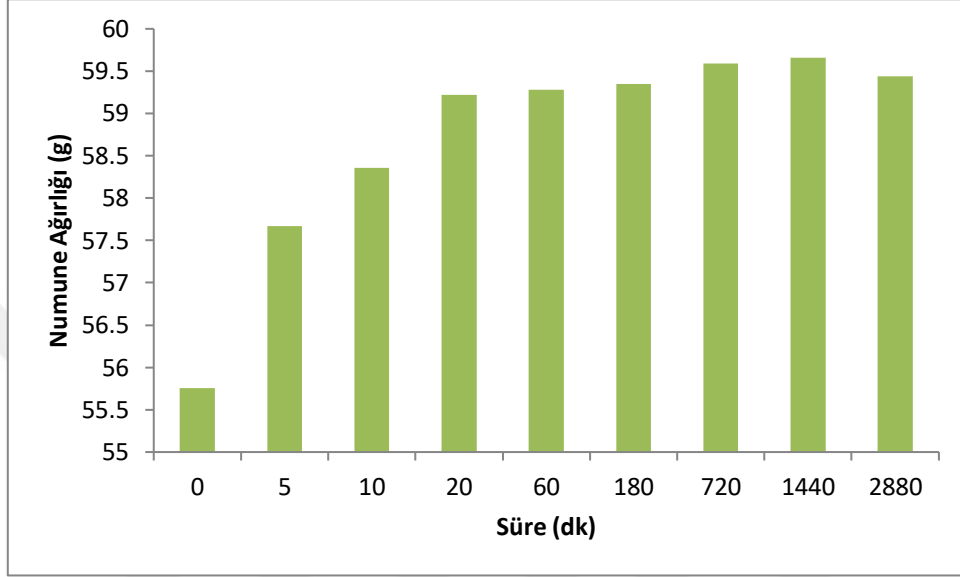
Şekil 4.36 : GP-32 numaralı numunenin su emme miktarının zamana göre değişimi.

GP-57 numaralı numune için belirli süreler sonunda su emme ve başlangıç kütleleri Şekil 4.37 ile gösterilmektedir. Şekil incelendiğinde kütle artışının orantılı bir şekilde arttığı ve başlangıç kütlesi ile birinci gün sonundaki kütle farkının yaklaşık %5,5 olduğu hesaplanmıştır. Benzer şekilde birinci gün ve ikinci gün arasında kütle azalması görülmektedir. İlk 3 saat içerisinde düzenli bir şekilde su emmesi gerçekleşen numunede daha sonraki sürelerde küçük değişimler göze çarpmaktadır.



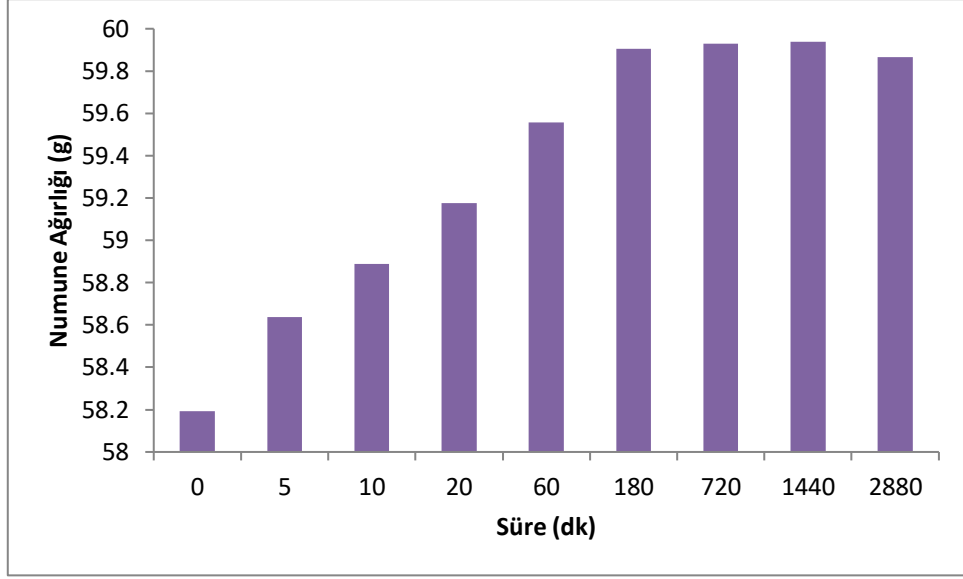
Şekil 4.37 : GP-57 numaralı numunenin su emme miktarının zamana göre değişimi.

Şekil 4.38 ile GP-67 numaralı numunenin su emme performansı gösterilmektedir. Numunenin başlangıç kütlesi ile ilk gün sonundaki kütlesi arasında yaklaşık 4 gramlık bir fark görünmektedir. Ayrıca kütle artış oranı yaklaşık olarak %7 civarındadır. Şekil incelendiğinde su emme hızının ilk 20 dakika için son derece hızlı olduğu söylenebilir ancak sonrasında gün sonuna kadar emme hızında yavaşlama olduğu görülmektedir.



Şekil 4.38 : GP-67 numaralı numunenin su emme miktarının zamana göre değişimi.

GP-77 numaralı numune için su emme miktarları numune ağırlığı esas alınarak Şekil 4.39 ile gösterilmektedir. Şekil incelendiğinde numune başlangıç ağırlığının yaklaşık 58,2 g olduğu ve gün sonunda nihai kütlesinin ise yaklaşık 60 g olduğu görülmektedir. Bu değerlere göre ağırlık artışı yaklaşık %3 seviyelerindedir. Şekil incelendiğinde su emme hızının yaklaşık 180 dk sürelerine kadar sabit olduğu görülmektedir.



Şekil 4.39 : GP-77 numaralı numunenin su emme miktarının zamana göre değişimi.

Grafikler incelendiğinde en yüksek su emme oranına sahip numunenin GP-67 olduğu görülmektedir. Bu numunenin emme oranının yüksek olmasının sebepleri olarak, daha fazla çatlaklı ve kılcal yapıya sahip olması ve su dayanımının daha düşük olması gösterilmektedir. Daha sonra GP-32 ve GP-57 numaralı numunelerin su emme yüzdeleri gelmektedir. Malzeme içerisine geçen toplam su miktarı en düşük seviyede olduğu için GP-77 numaralı numunenin daha kararlı bir yapıda olduğu düşünülmektedir. Sonuçların dört numune içinde literatür ile uyumlu olduğu görülmektedir. Bu yüzden elde edilen bu numunelerin su emme oranlarının ideal seviyelerde olduğu söylenebilir [138].

Malzeme biliminde elde edilen malzemenin özellikleri belirlenirken başvurulan yöntemlerden biriside yoğunluğunun belirlenmesidir. Hatta inşaatlarda kullanılan betonların yoğunluklarına göre sınıflandırılması işlemleri yapılmaktadır. TS EN 206-1'e göre [139] beton normal, ağır ve hafif olmak üzere üç sınıfa ayrılmıştır.

Çalışmada sentezlenen malzemelerden bazıları için yoğunluk hesaplama işlemleri gerçekleştirilmiştir. Deneysel çalışmalarda malzemeler kesik koni biçimindeki plastik kaplara döküldüğü için hacim hesaplamalarında kesik koninin hacminin pratik bir şekilde hesaplanması Denklem 4.1 ile ifade edilmektedir.

$$V = \frac{\pi}{3} h(R^2 + r^2 + Rr) \quad (4.1)$$

İfadede, V (cm^3) kesik koni hacmini temsil etmektedir. r , kesik koninin taban dairesinin yarı çapı, R tavan dairesinin yarı çapı ve h koninin yüksekliği olarak (cm) uzunluklarıdır. Yoğunluk (g/cm^3) ifadesi ise, numunenin tartılan kütesinin (g) hacmine (cm^3) bölünmesi ile hesaplanmıştır.

Kod numaraları ve özellikleri verilen, çalışmanın birinci ve ikinci kısmında elde edilen numunelerden bazıları için yoğunluk hesaplama işlemleri gerçekleştirilmiş ve elde edilen sonuçlar Çizelge 4.5 ile gösterilmektedir.

Çizelge 4.5 : Elde edilen bazı numunelerin yoğunluk değerleri.

NUMUNE NUMARASI	Kütle (g)	Hacim (cm^3)	Yoğunluk (g/cm^3)	NUMUNE NUMARASI	Kütle (g)	Hacim (cm^3)	Yoğunluk (g/cm^3)
GP-61	80.231	43.215	1.857	GP-71	88.647	43.321	2.046
GP-62	81.654	44.037	1.854	GP-72	92.647	43.47	2.131
GP-63	83.456	41.253	2.023	GP-73	93.421	42.983	2.173
GP-64	81.457	42.616	1.911	GP-74	91.724	44.896	2.043
GP-65	83.654	43.321	1.931	GP-75	92.654	42.659	2.172
GP-66	83.691	44.57	1.878	GP-76	92.803	43.858	2.116
GP-67	86.047	45	1.912	GP-77	93.014	42.19	2.205
GP-182	88.948	42,036	2.116	GP-187	112.328	44,77	2.509
GP-183	84.728	40,443	2.095	GP-188	99.051	40,232	2.462
GP-184	85.017	41,655	2.041	GP-189	102.63	41,333	2.483
GP-185	92.142	42,364	2.175	GP-193	101.133	42,034	2.406
GP-181	105.61	44,096	2.395	GP-194	105.717	42,611	2.481
GP-186	84.369	43,783	1.927	GP-195	101.074	42,255	2.392

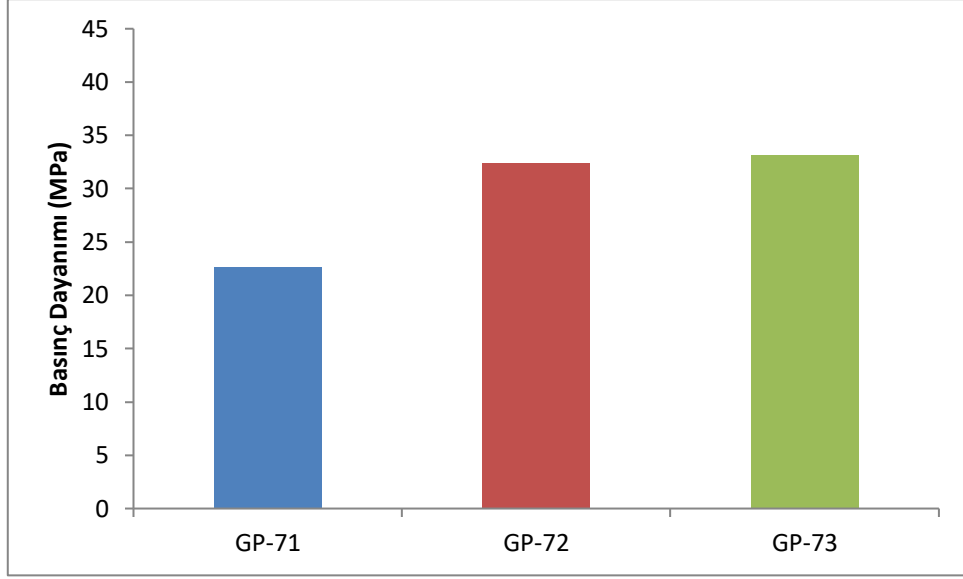
Yoğunluk hesaplamalarında, birinci kısmında ideal olarak belirlenen numunelerden bazıları ve ikinci kısımda çeşitli katkı maddeleri eklenerek elde edilen numunelerden bazıları ele alınmıştır. Yoğunluğu belirlenen numunelerin içeriği Çizelge 3.3 ve 3.4 ile verilmektedir. Toplamda 26 adet numunenin yoğunluğu incelenmiştir.

Çizelge 4.5 incelendiğinde numunelerin yoğunluklarının 2- 2.5 g.cm⁻³ değerleri arasında olduğu görülmektedir. Standartlara göre normal sınıf betonlar 2 ve 2.5 g.cm⁻³ değerleri arasında olmaktadır. Çalışma kapsamında hazırlanan numunelerin amacı yapı malzemesi oluşturmaktan ziyade çevreci ve sürdürülebilir bir fonksiyonel malzeme elde etmek olduğu için agrega kullanılmamıştır. Agrega kullanımı durumunda bu değerlerinde üzerine çıkılabileceği tahmin edilmektedir. Elde edilen malzemelerin yoğunluk değerlerinin normal beton standartlarında olduğu görülmektedir.

Çizelgeye göre kanyaş otu içeren GP-187 numaralı numunenin 2.509 g.cm⁻³ değerleri ile en yüksek yoğunluğa sahip olduğu görülmektedir. Genel olarak tarımsal atık küllerinin kullanıldığı durumlarda yoğunluğun arttığı gözlemlenmektedir. Katkı maddesi olarak TiO₂ kullanıldığı zaman yoğunluk değerleri üzerinde ciddi değişiklikler görülmemektedir. Mısır kabuğu külünün belli oranlarda eklendiğinde yoğunluğun arttığı ancak yüksek miktarda (15 g) kullanıldığı GP-186 numaralı numunenin yoğunluğunun azaldığı saptanmıştır.

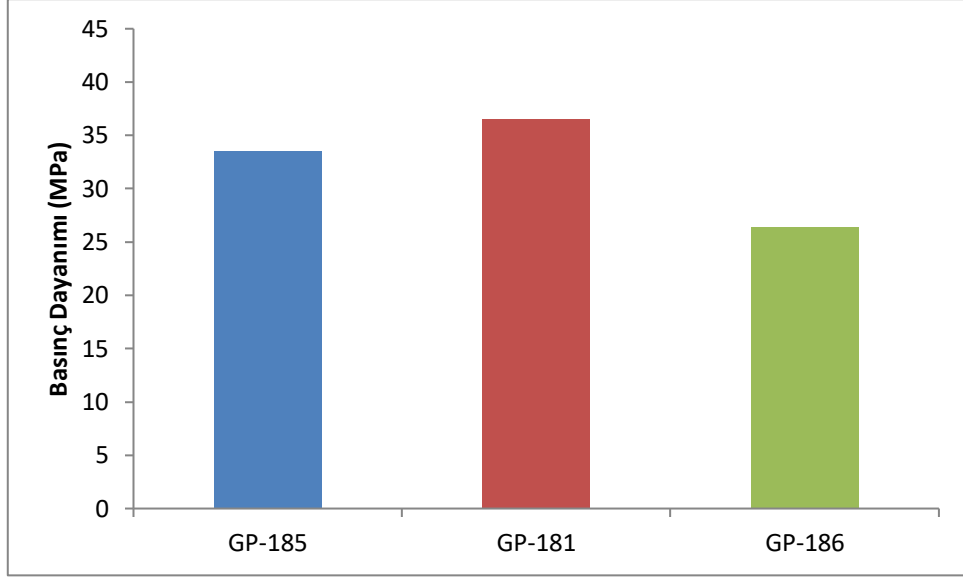
Üretilen geopolimer malzemelerin fiziksel yapısı hakkında bilgi sahibi olabilmek için bir başka yöntem ise basınç dayanımının belirlenmesidir. Bu kapsamda aktivatör molaritesinin basınç dayanımına etkisi, mısır külü miktarının etkisi, TiO₂ miktarının etkisi ve çeşitli tarımsal atık küllerinin basınç dayanımına etkisi incelenmiştir. Numuneler basınç dayanım test cihazında analiz edilebilmesi için 5 cm ayrıtlı küp kalıplara dökülerek 21 gün bekletilmiştir. Toplam 11 adet numune basınç dayanım testine tabi tutulmuştur.

Aktivatör molar konsantrasyonu sırasıyla 6, 8 ve 10 M olan GP-71, GP-72 ve GP-73 numaralı numunelerin basınç dayanımları Şekil 4.40 ile verilmektedir. Aktivatör konsantrasyonunun artmasıyla basınç dayanımının arttığı görülmektedir. 8 ve 10 M değerlerinde basınç dayanımının çok değişmediği ancak 6 M aktivatör ile hazırlanan malzemenin basınç dayanımının düşük olduğu görülmektedir. Literatüre göre sonuçlar uyum içerisindedir. İdeal alkali aktivatör konsantrasyonu 8-10 M değerleri arasında değişmektedir [140-143].



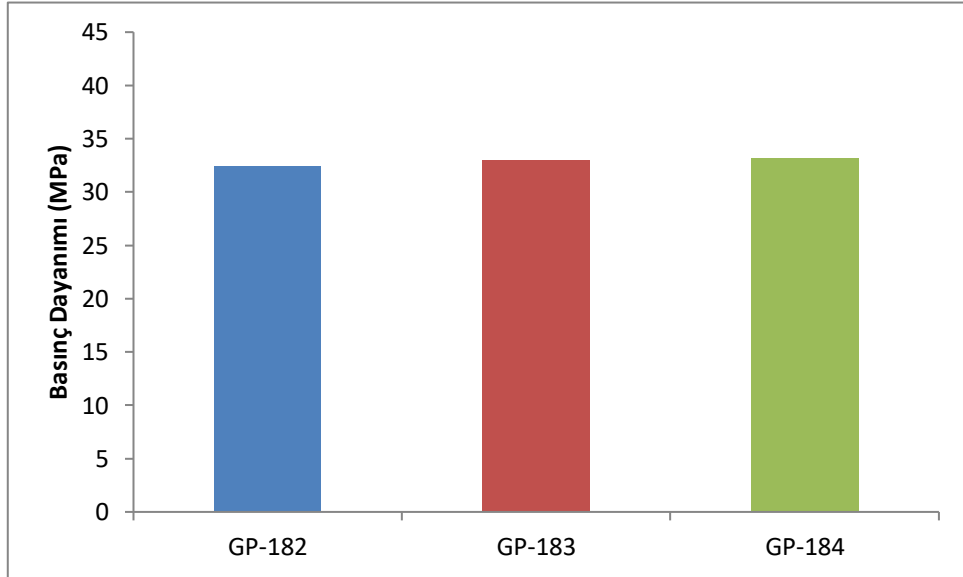
Şekil 4.40 : Aktivatör konsantrasyonunun basınç dayanımına etkisi.

Mısır kabuğu külü miktarının değişiminin basınç dayanımı üzerine etkisi Şekil 4.41 ile gösterilmektedir. Sırasıyla GP-185, GP-181 ve GP-186 numaralı numunelerde 5, 10 ve 15 g olmak üzere farklı miktarlarda mısır kabuğu külü potasyum silikat yerine kullanılmıştır. Yani aynı sıralamaya göre bu numunelerde 10, 5 ve 0 g olmak üzere potasyum silikat kullanılmıştır. Bu sayede potasyum silikat yerine çevre dostu ve maliyetsiz bir malzeme kullanılmaya çalışılmıştır. Basınç dayanımları incelendiğinde en yüksek değer 36,54 MPa ile GP-181 numaralı numuneye ait olduğu görülmektedir. Mısır kabuğu külünün silikat yerine kullanılması uygun olabilir ancak GP-186 numaralı numuneye göre silikat kullanımının hiç olmadığı durumda ise basınç dayanımının büyük oranda azaldığı görülmektedir. Belirli bir seviyeye kadar tarımsal atık külleri basınç dayanımını arttırmakta ancak bağlayıcı silikatların ortamda hiç olmaması olumsuz sonuçlara sebep olmaktadır [144].



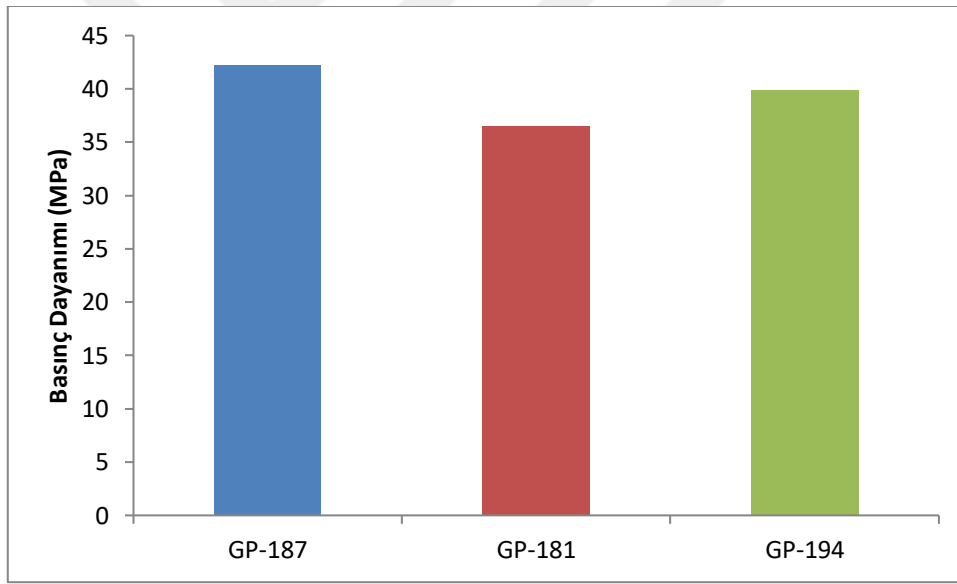
Şekil 4.41 : Mısır kabuğu külü miktarının basınç dayanımına etkisi.

TiO₂ ilavesinin basınç dayanımına etkisi incelemek üzere yapılan testlerin sonuçları Şekil 4.42 ile gösterilmektedir. Sırasıyla GP-182, GP-183 ve GP-184 numaralı numuneler 5, 10 ve 20 g olmak üzere farklı miktarlarda TiO₂ içermektedir. Sonuçlara göre TiO₂ içeriğinin basınç dayanımına etkisinin olmadığı düşünülmektedir. Çünkü bu numunelerin, herhangi bir ekleme olmadan hazırlanan GP-72 numaralı numune ile benzer basınç dayanımlarına sahip oldukları görülmektedir. Ayrıca TiO₂ eklenmesi malzeme üzerinde pürüzlü yapının azalmasını sağlamaktadır.



Şekil 4.42 : TiO₂ miktarının basınç dayanımına etkisi.

Son olarak, çeşitli tarımsal atık küllerinin silikat miktarını düşürerek yapı içerisinde kullanılmasıyla elde edilen numunelerin basınç dayanımına etkisi incelenmiştir ve sonuçlar Şekil 4.43 ile gösterilmektedir. GP-187 numaralı numune kanyaş otu kullanılarak, GP-181 mısır kabuğu külü kullanılarak ve GP-194 numaralı numune yer fıstığı kabuğu kullanılarak elde edilmiştir. Ayrıca tüm numuneler diğerlerinde olduğu gibi KOH ve potasyum silikat ile aktive edilmiştir ancak potasyum silikat miktarı sadece 5 g miktarındadır. Sonuçlara göre; 42.22 MPa değeriyle kanyaş otu eklenen numune basınç dayanımı yapılan tüm malzemelere göre daha yüksek bir seviyeye ulaşmıştır. Aynı şekilde yer fıstığı kabuğu külü eklendiği numune 39.91 MPa değeriyle yüksek bir dayanım sergilemiştir. Bu durumun sebebinin kanyaş otu ve yer fıstığı küllerinde SiO₂ ve CaO miktarlarının yüksek olması, bu sayede C-S-H bağlarının daha çok sayıda ve kuvvetli olmasından kaynaklandığı düşünülmektedir [145]. Bu olumlu durumların sonucunda geopolimerizasyon reaksiyonları ve oluşan bağların sayısının artması ile daha kararlı malzemeler elde edilmektedir.



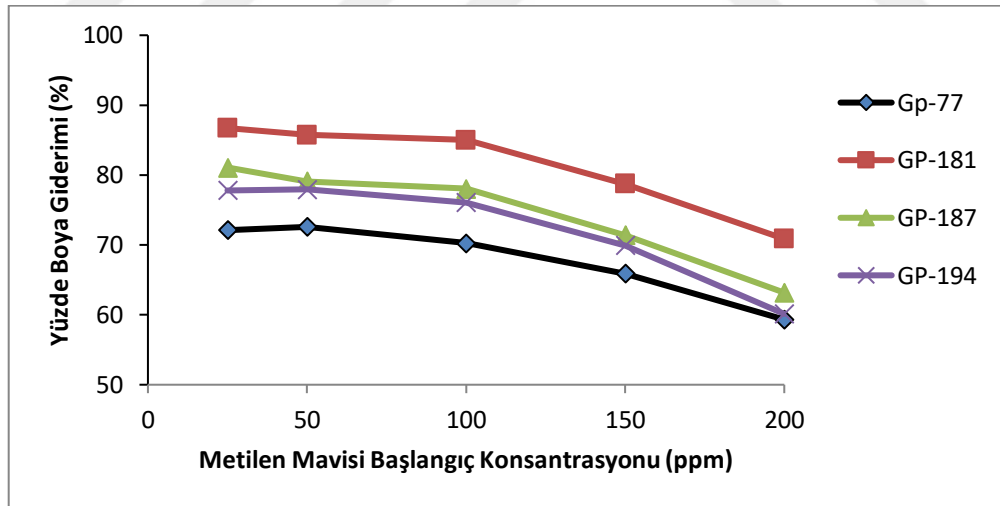
Şekil 4.43 : Farklı tarımsal atık küllerinin basınç dayanımına etkisi.

Genel olarak basınç dayanım değerlerinin çok yüksek olmadığı ancak basit yapı malzemeleri için veya atık deposu immobilizasyon ünitesi gibi spesifik alanlarda kullanılabilmesi için yeterli seviyelerde olduğu düşünülmektedir. Ayrıca tez kapsamında elde edilen çevre dostu malzemelerin üretim aşamalarında agrega kullanılmadığı için sadece bir yapı malzemesi olarak düşünülmemesi daha doğru bir yaklaşım olacaktır.

4.6 Adsorpsiyon Çalışmaları

Çalışma kapsamında elde edilen geopolimer malzemelerden ideal olarak kabul edilen ve tarımsal atıklar kullanılarak sentezlenen bazı numunelerin adsorban olarak kullanımını incelemek amacıyla deneysel çalışmalar gerçekleştirilmiştir. Adsorpsiyon çalışmalarından beklenen etki, elde ettiğimiz geopolimer malzemelerin ortamdaki istenmeyen kirliliklerin uzaklaştırılmasında kullanılabilecek özel amaçlı fonksiyonlara sahip olup olmadığını belirleyebilmektir. Bu kapsamda metilen mavisi boyar maddesinin giderimini incelemek için farklı boyar madde konsantrasyonlarında, 1 gram adsorban malzeme, 1 saat süre ile adsorpsiyon işlemine tabi tutulmuştur. Daha sonra yüzde boya giderimi en fazla olan numunenin adsorpsiyon kinetiğini incelemek için farklı sıcaklıklarda çalışmalar yapılmıştır.

Adsorpsiyon çalışmalarında ilk olarak, ideal olarak belirlenen KOH ve potasyum silikat kullanılarak elde edilen GP-77, mısır kabuğu külü kullanılarak elde edilen GP-181, kanyaş otu külü kullanılarak elde edilen GP-187 ve yer fıstığı kabuğu külü kullanılarak elde edilen GP-194 numaralı numunelerin yüzde adsorplama değerleri belirlenmiştir. Yüzde boya giderim sonuçları Şekil 4.44 ile gösterilmektedir.



Şekil 4.44 : Geopolimer malzemelerin yüzde boya giderimleri.

Şekil 4.44 incelendiğinde 25, 50, 100, 150 ve 200 ppm olmak üzere farklı başlangıç boya konsantrasyonlarında dört farklı geopolimer malzemenin adsorplama verimleri gösterilmektedir. Buna göre dört numune için ortak özellik olarak 25, 50 ve 100 ppm değerlerinde yüzde giderim değerlerinin çok değişmediği ve 150 ve 200 ppm

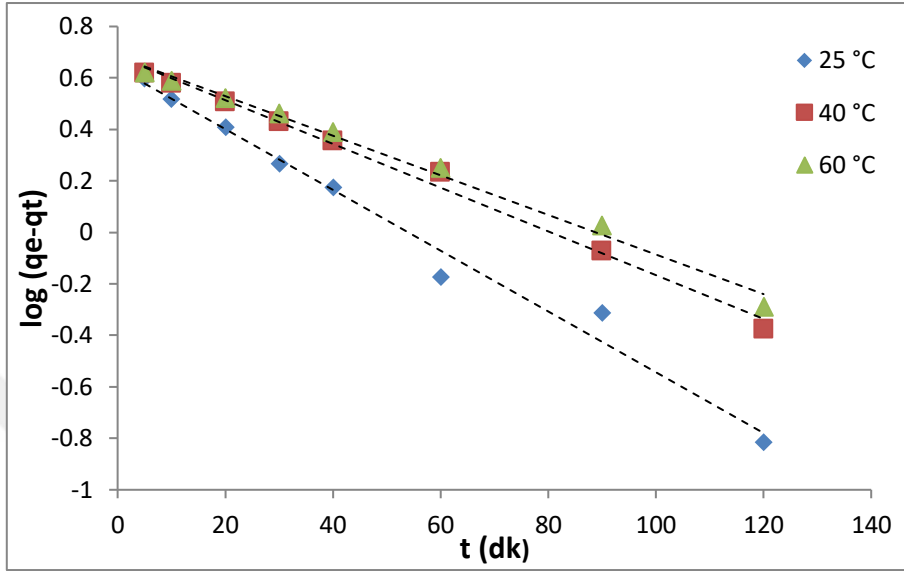
değerlerindeki giderim oranlarının düştüğü görülmektedir. Örnek olarak GP-77 numaralı numunede 25, 50 ve 100 ppm değerlerinde yüzde giderim oranı yaklaşık %70 seviyelerinde görülürken, 150 ppm değerinde %65.88 ve 200 ppm değerinde %59.32 değerinde olmaktadır. Ayrıca en yüksek yüzde giderim oranının %85.91 değeriyle mısır kabuğu külü içeren GP-181 numaralı numuneye ait olduğu görülmektedir. Bu değerlere göre elde edilen geopolimer malzemelerin adsorban olarak kullanılabilir olduğu belirlenmiştir. Ayrıca tarımsal atıkların külleri kullanılarak elde edilen geopolimerlerin adsorban olarak kullanıldığı durumlarda boya giderim verimlerinin daha yüksek değerlere ulaştığı görülmektedir.

En yüksek adsorplama verimine sahip GP-181 numaralı numunenin adsorpsiyon kinetiğini belirlemek için 25, 40 ve 60 °C sıcaklıklarda 3 saat süre ile adsorpsiyon işlemi gerçekleştirilmiştir ve belirli sürelerde konsantrasyon değerleri ölçülmüştür. Adsorpsiyon kinetiğinin belirlenebilmesi için deneysel veriler Yalancı birinci merteye, Yalancı ikinci merteye, Elovich ve Avrami kinetik modelleri olmak üzere dört farklı modele uyumu incelenmiştir. Uygulanan kinetik modellerin listesi Çizelge 4.6 ile gösterilmektedir. Çizelge ile uygulanan kinetik modeller, modellerin matematiksel ifadeleri, bu denklemlerin lineer halleri ve sabitlerin belirlenmesi için çizilen grafiklerin eksenleri ifade edilmektedir.

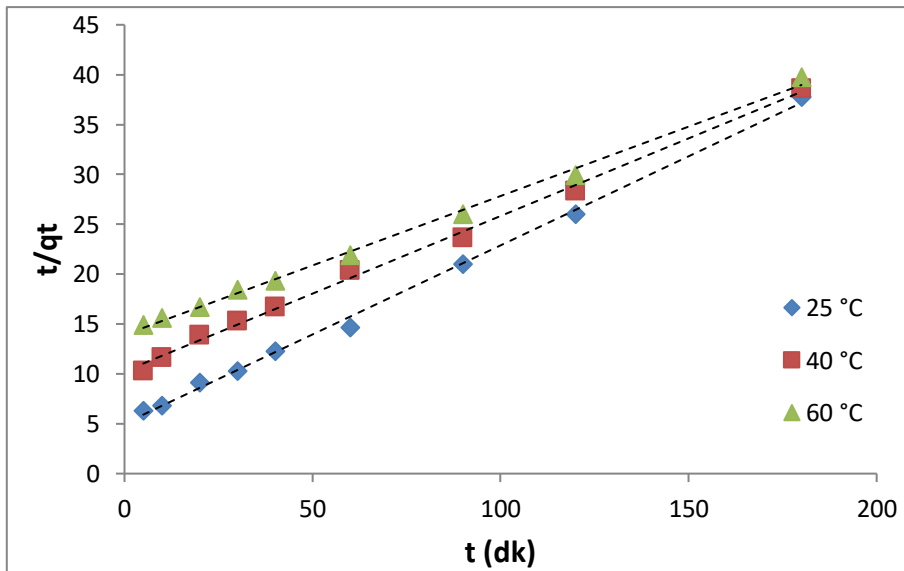
Çizelge 4.6 : Deneysel verilere uygulanan kinetik modeller.

Model	Denklem	Lineer hali	Grafik
Yalancı birinci merteye	$\frac{d_q}{d_t} = k_1 (q_e - q_t)$	$\log(q_e - q_t) = \log q_e - \frac{k_1}{2.303} * t$	t' ye karşı $\log(q_e - q_t)$
Yalancı ikinci merteye	$\frac{d_q}{d_t} = k_2 (q_e - q_t)^2$	$\frac{t}{q_t} = \frac{1}{k_2 q_e^2} + \frac{t}{q_e}$	t' ye karşı $\frac{t}{q_t}$
Elovich	$\frac{d_q}{d_t} = a \exp(-\beta q_t)$	$q_t = \frac{1}{\beta} \ln(\alpha \beta) + \frac{1}{\beta} \ln t$	$\ln(t)$ 'ye karşı q_t
Avrami	$q_t = q_e \{1 - \exp[-k_A t]^{n_A}\}$	$\ln[-\ln(1 - a)] = n_A \ln(k_A) + n_A \ln(t)$	$\ln(t)$ 'ye karşı $\ln[-\ln(1 - a)]$

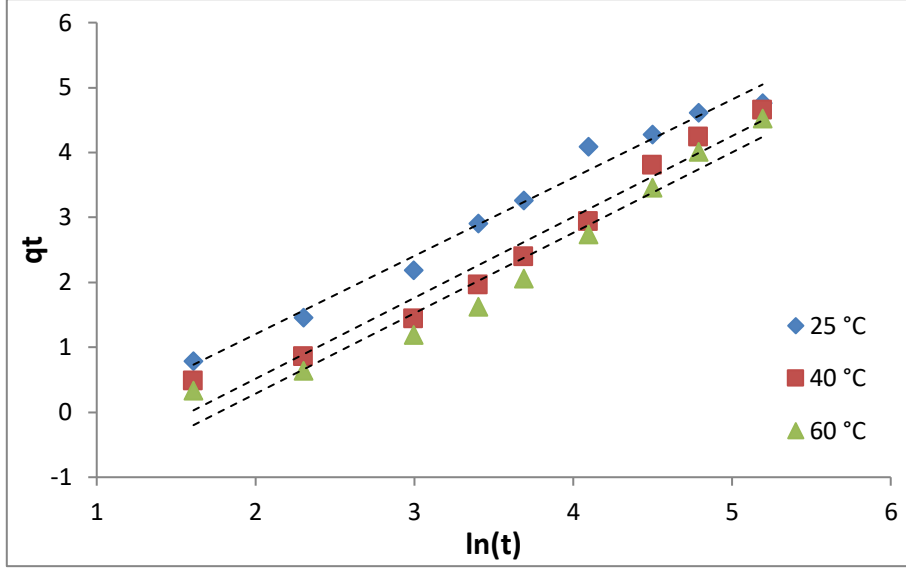
Adsorpsiyon kinetiğinin belirlenmesi için üç farklı sıcaklıkta gerçekleştirilen deneylerden elde edilen verilerin Yalancı birinci merteye (Şekil 4.45), Yalancı ikinci merteye (Şekil 4.46), Elovich (Şekil 4.47) ve Avrami (Şekil 4.48) kinetik modellerine uygulanması sonucu elde edilen grafikler aşağıda gösterilmektedir.



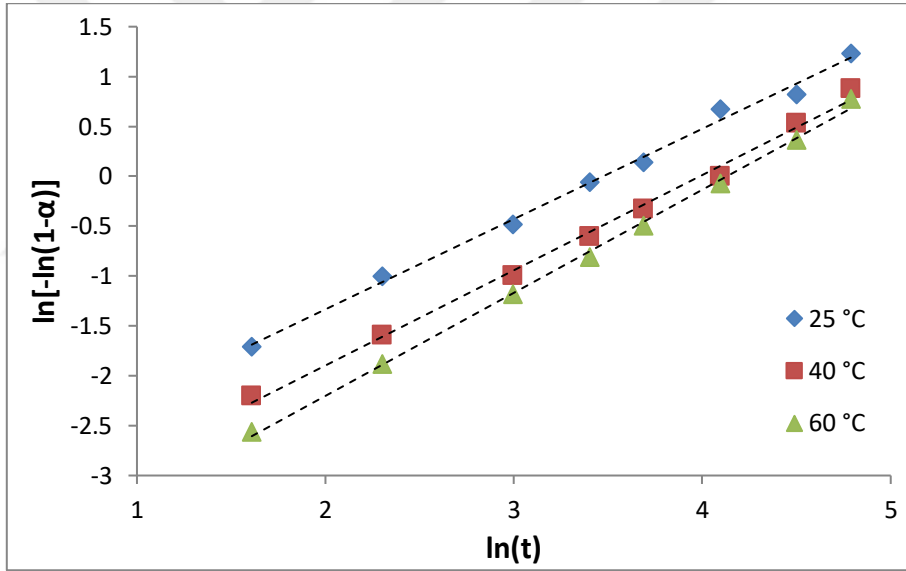
Şekil 4.45 : GP-181 numaralı numunenin deneysel verilerinin Yalancı birinci merteye kinetik modele uygulanması.



Şekil 4.46 : GP-181 numaralı numunenin deneysel verilerinin Yalancı ikinci merteye kinetik modele uygulanması.



Şekil 4.47 : GP-181 numaralı numunenin deneysel verilerinin Elovich kinetik modele uygulanması.



Şekil 4.48 : GP-181 numaralı numunenin deneysel verilerinin Avrami kinetik modele uygulanması.

Deneysel verilerin kinetik modellere uygulanmasının sonuçları Çizelge 4.7 ile gösterilmektedir. Çizelge incelendiğinde R^2 değerinin neredeyse 1 değerine eşit olduğu için adsorpsiyon kinetiğinin yalancı ikinci merteye ve avrami modelleri ile uyum içerisinde olduğu görülmektedir. Deneysel verilere göre dengede birim adsorban başına adsorplanan boyar madde miktarı 25 °C sıcaklıkta 4.765 mg.g^{-1} olarak hesaplanmıştır. Sıcaklığın artması ile adsorplama kapasitesinde önemli bir değişim olmamıştır. Bu durum

malzemenin oda sıcaklığında etkin bir adsorplayıcı olduğunu göstermektedir. Yalancı ikinci mertebe uyumu, yapı içerisinde geopolimerin ve boyanın etkin olduğunu bize kanıtlamaktadır. Avrami kinetik modeli kristal yapılar içerisindeki değişimler için daha fazla kullanılmaktadır. Elde ettiğimiz geopolimer aynı zamanda kristal bir yapıya da sahip olduğundan bu kristal örgü içerisinde de adsorpsiyon işleminin kayda değer bir oranda (R^2 değerleri 1'e yakın olduğu için) gerçekleştiğini göstermektedir. Bu malzeme sahip olduğu adsorplama kapasitesine bağlı olarak özel amaçlı dekoratif uygulamalarda rahatlıkla kullanılabilir.

Çizelge 4.7 : Deneysel verilerin kinetik modellere uygulanması ile elde edilen sabitler.

Sıcaklık (°C)	25	40	60
q_e (deneysel) ($mg.g^{-1}$)	4.765	4.660	4.529
Yalancı Birinci Mertebe			
q_e ($mg.g^{-1}$)	4.340	4.828	4.824
k_1 (dk^{-1})	0.027	0.019	0.017
R^2	0.9845	0.9925	0.9917
Yalancı İkinci Mertebe			
q_e ($mg.g^{-1}$)	5.599	6.423	7.184
k_2 (dk^{-1})	$6.354 \cdot 10^{-3}$	$2.363 \cdot 10^{-3}$	$1.393 \cdot 10^{-3}$
h ($mg.g^{-1}.dk^{-1}$)	0.0355	0.0974	0.0718
R^2	0.9979	0.9960	0.9967
Elovich			
α ($mg.g^{-1}.dk^{-1}$)	3.272	6.080	7.271
β ($g.mg^{-1}$)	0.831	0.803	0.807
R^2	0.9827	0.9658	0.9537
Avrami			
k_A (dk^{-1})	32.265	53.905	62.209
n_A	0.9053	0.9547	1.0336
R^2	0.9950	0.9952	0.9981

Deneysel verilere uygulanan kinetik modeller arasından ideal olanın belirlenmesi sürecinde regresyon katsayısına ek olarak istatistiksel hata analizleri kullanılmaktadır. Bu bağlamda hata kareler ortalaması (MSE), hata kareler ortalamasının karekökü (RMSE) ve ortalama mutlak yüzde hata (MAPE) olmak üzere üç farklı hata analizi deneysel değerlere uygulanmıştır. Bu analizlerin uygulanması sırasında kullanılan matematiksel ifadeler aşağıda tanımlanmıştır [146,147].

$$MSE = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (y_i - x_i)^2 \quad (4.2)$$

$$RMSE = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^N (y_i - x_i)^2}{N}} \quad (4.3)$$

$$MAPE (\%) = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \left(\left| \frac{y_i - x_i}{x_i} \right| \right) \cdot 100 \quad (4.4)$$

İfadelerde x_i ve y_i sırasıyla deneysel değerleri ve kullanılan model yardımıyla hesaplanan teorik değerleri temsil etmektedir. N, veri sayısı olarak ifade edilmektedir.

Hata analizlerinin kinetik modellere uygulanması ile elde edilen sonuçlar Çizelge 4.8 ile gösterilmektedir. Hata oranlarının düşük olması kinetik modelin deneysel değerlerle uyumlu olduğunu anlamına gelmektedir. Çizelge incelendiğinde yüksek regresyon katsayılarına (R^2) ek olarak en düşük hata değerlerinin yalancı ikinci mertebe ve avrami modellerinde olduğu görülmektedir. Bu sonuçlara göre kullanılan geopolimer malzemenin metilen mavisi boyar maddesinin gideriminde adsorpsiyon kinetiğinin yalancı ikinci mertebe ve avrami kinetik modellerine uyum içerisinde olduğu belirlenmiştir.

Çizelge 4.8 : Deneysel verilere uygulanan kinetik modeller için hata analizleri.

Sıcaklık (°C)	25	40	60
Yalancı Birinci Mertebe			
R ²	0.9845	0.9925	0.9917
MSE	1.6852	1.1961	1.4307
RMSE	1.2981	1.0936	1.1961
MAPE	5.9321	5.2460	5.3726
Yalancı İkinci Mertebe			
R ²	0.9975	0.9960	0.9967
MSE	0.4265	0.4901	0.5085
RMSE	0.6530	0.7000	0.7131
MAPE	3.5241	3.9211	3.9082
Elovich			
R ²	0.9827	0.9658	0.9537
MSE	1.879	2.1463	2.8423
RMSE	1.3707	1.4650	1.6859
MAPE	7.4732	9.0248	9.6124
Avrami			
R ²	0.9950	0.9952	0.9981
MSE	0.5234	0.4765	0.3651
RMSE	0.7234	0.6903	0.6042
MAPE	5.1045	4.8912	4.0642

4.7 Radyoaktif Atıklar İçin Geopolimer Malzemenin Kullanımı

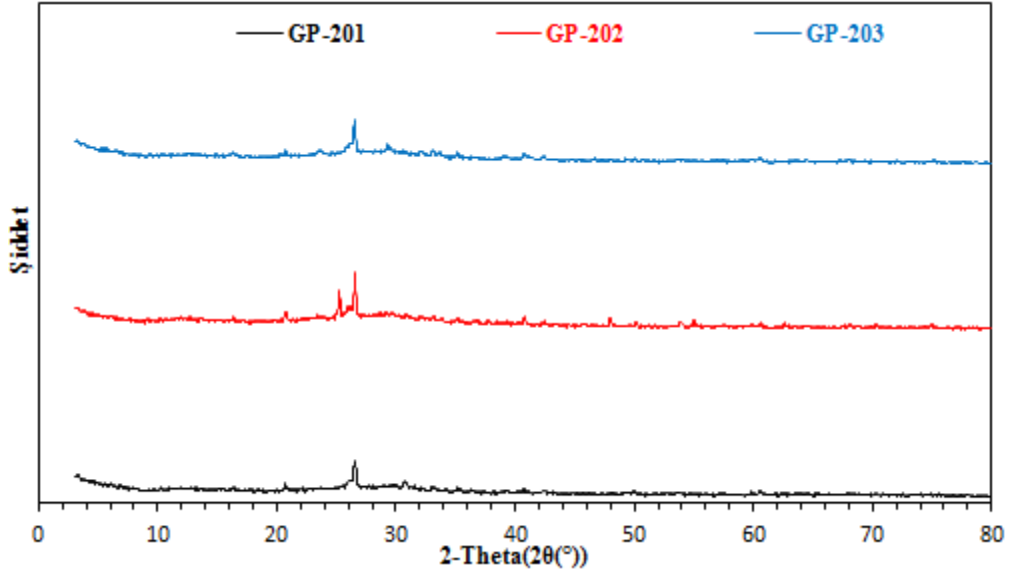
Radyoaktif atıkların depolanması için elde edilen geopolimerlerin kullanılabilirliğini incelemek için, radyoaktif elementler arasında daha yüksek beta bozunma enerjilerine sahip olan ve uzun yarı ömürlere sahip (yaklaşık 30 yıl) iki element olan Sezyum (¹³⁷Cs) ve Stonsiyum (⁹⁰Sr) kullanılmıştır [148]. Bu kapsamda, kapsülleme yöntemi olarak adlandırılan yöntem kullanılmıştır. Öncelikle farklı oranlarda Cs⁺ ve Sr²⁺ iyonlarını içeren geopolimer malzemeler hazırlanmıştır. Daha sonra bu malzemeler saf su ortamında 28 gün süresince bekletilerek bu süre zarfında bu iyonların su (çözücü) ortamına geçip geçmediği

ve şayet geçtiyse hangi oranlarda geçtiğinin belirlendiği liç prosesi incelenmiştir. Kapsülleme matrisi yöntemi, ^{90}Sr ve ^{137}Cs 'nin radyoaktif doğasını azaltamasa da, bu tür bir hareketsizleştirme stratejisi, radyoaktif elementleri depolamak ve bunların sızmasını önlemek için kullanılan hala etkili bir yoldur. Çalışmalarda radyoaktif etkisi bulunmayan zararsız ancak benzer davranışları sergileyen Sezyum nitrat (CsNO_3) ve Stronsiyum nitrat $\text{Sr}(\text{NO}_3)_2$ bileşikleri kullanılmıştır.

Deneysel çalışmalarda, sezyum ve stronsiyum moleküllerinin matris içerisinde tutunabilme durumu ayrıca sezyum ve stronsiyuma ek olarak TiO_2 içeren numunelerin davranışları incelenmiştir. Nitel ve nicel analizler için XRD, FT-IR ve EDAX analizleri gerçekleştirilmiştir.

GP- 201, GP-202 ve GP-203 numaralı numuneler CsNO_3 içermektedir. GP- 204, GP-205 ve GP-206 numaralı numuneler $\text{Sr}(\text{NO}_3)_2$ içermektedir. GP-207 numaralı numune CsNO_3 ve TiO_2 içermektedir. GP-208 $\text{Sr}(\text{NO}_3)_2$ ve TiO_2 içermektedir. GP-2077 ve GP-2088 numaralı numuneler ise GP-207 ve GP-208 numaralı numunelerin TiO_2 etkisini görebilmek için güneş ışığında saf su içerisinde bekletildikten sonraki durumlarını göstermektedir. Sezyum nitrat ve stronsiyum nitrat bileşikleri içeren geopolimerler elde edildikten sonra faz yapılarında değişim olup olmadığını kontrol etmek amacı ile XRD ve FT-IR analizleri gerçekleştirilmiştir.

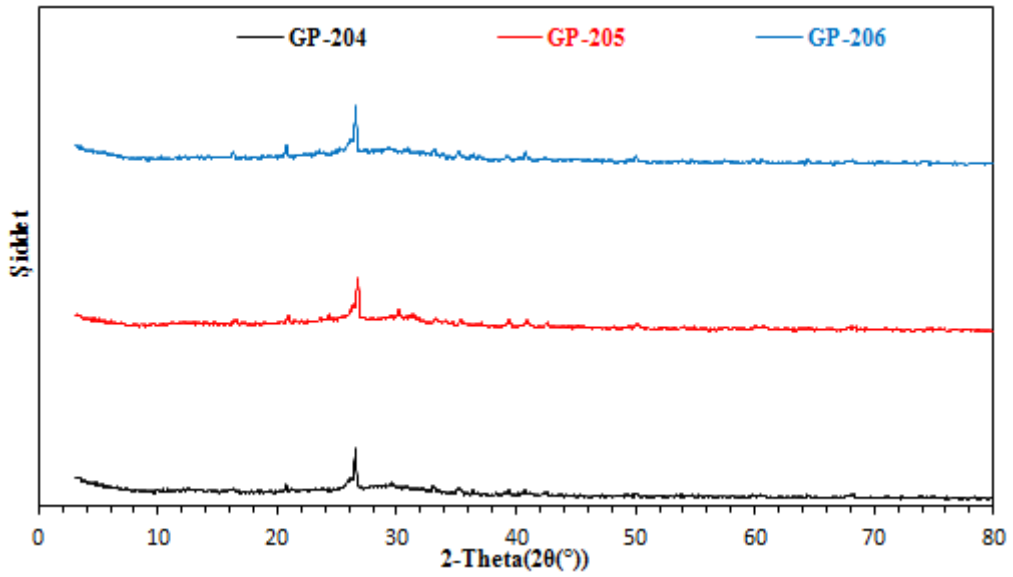
GP-201, GP-202 ve GP-203 numaralı numunelerin XRD analizleri Şekil 4.49 ile gösterilmektedir. Şekil incelendiğinde CsNO_3 içeren ve içermeyen geopolimerler arasında kristal fazlarda çok az kayda değer değişiklikler göze çarpmaktadır. Ayrıca Cs miktarındaki değişimin XRD pik derecelerinde veya şiddetlerinde farklılıklara yol açmadığı belirlenmiştir.



Şekil 4.49 : GP-201, GP-202 ve GP-203 numunelerinin XRD sonuçları.

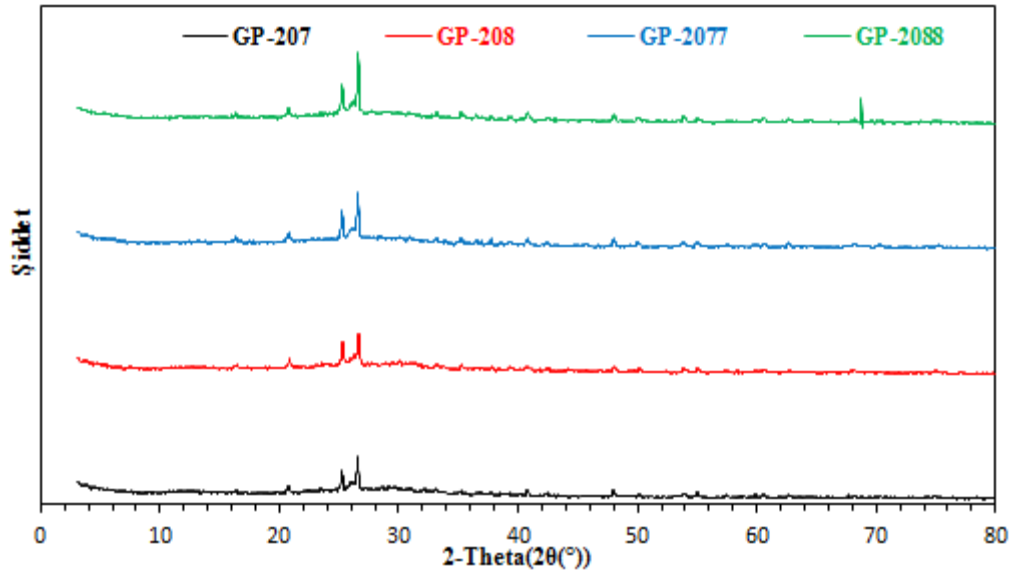
Genel olarak bu radyonüklitlerin bulunduğu geopolimer malzemelerde geopolimer kristal ve amorf yapılar üzerinde neredeyse hiçbir etkisinin olmadığını görülmektedir, bu yüzden eklenen bu iyonların geopolimer malzeme matrisinin içerisine dahil olduğu düşünülmektedir.

GP- 204, GP-205 ve GP-206 numaralı numunelerin XRD analizleri Şekil 4.50 ile gösterilmektedir. Şekil incelendiğinde $\text{Sr}(\text{NO}_3)_2$ içeren ve içermeyen geopolimerlerin matrisleri arasında kayda değer değişiklikler gözle çarpmamaktadır.



Şekil 4.50 : GP-204, GP-205 ve GP-206 numunelerinin XRD sonuçları.

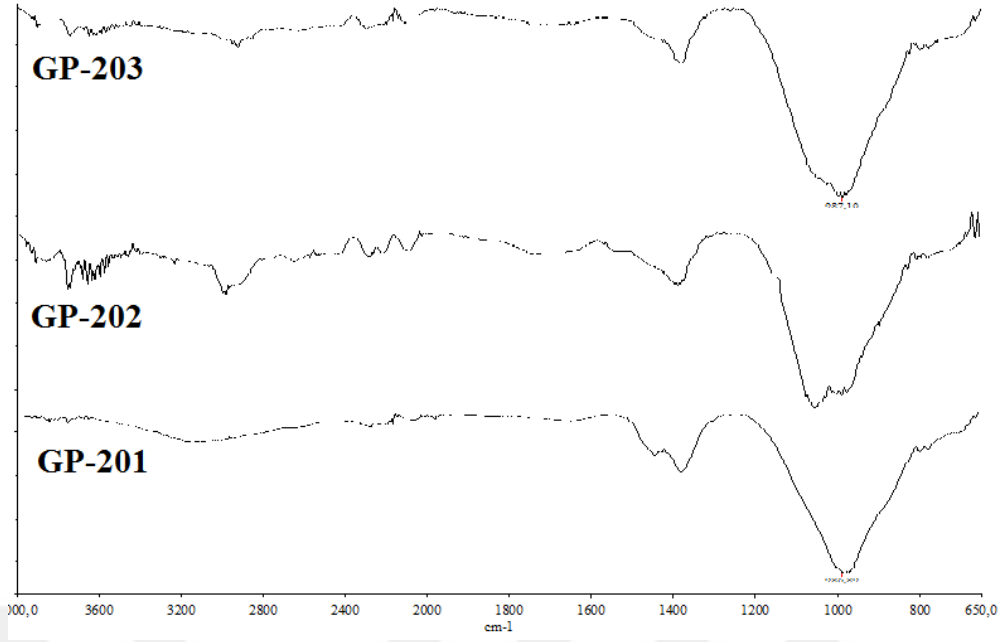
GP- 207, GP-208, GP-2077 ve GP-2088 numaralı numunelerin XRD analizleri Şekil 4.51 ile gösterilmektedir. Şekil incelendiğinde diğerlerinden farklı olarak sadece GP-2088 numaralı numunede 70 °2θ dolaylarında pik görülmektedir. TiO₂ ait olan yapı 25 °2θ civarında kendini göstermektedir. Genel olarak kristal yapının bozulmadığı görülmektedir. Ayrıca GP-2077 ve GP-2088 numaralı numunelerin pik şiddetleri diğer iki numuneye göre daha fazla olduğu görülmektedir. Bu iki numune güneş ışığı altında bekletildikten sonra analiz edilen numunelerdir. Güneşten gelen UV ışınları ile TiO₂'in fotokatalitik etkileşimi sonucu yapı içerisindeki safsızlıkların giderilmesi sağlandığı için ölçümlerde pik şiddetleri daha belirgin olarak görülmektedir [149].



Şekil 4.51 : GP-207, GP-208 , GP-2077 ve GP-2088 numunelerinin XRD sonuçları.

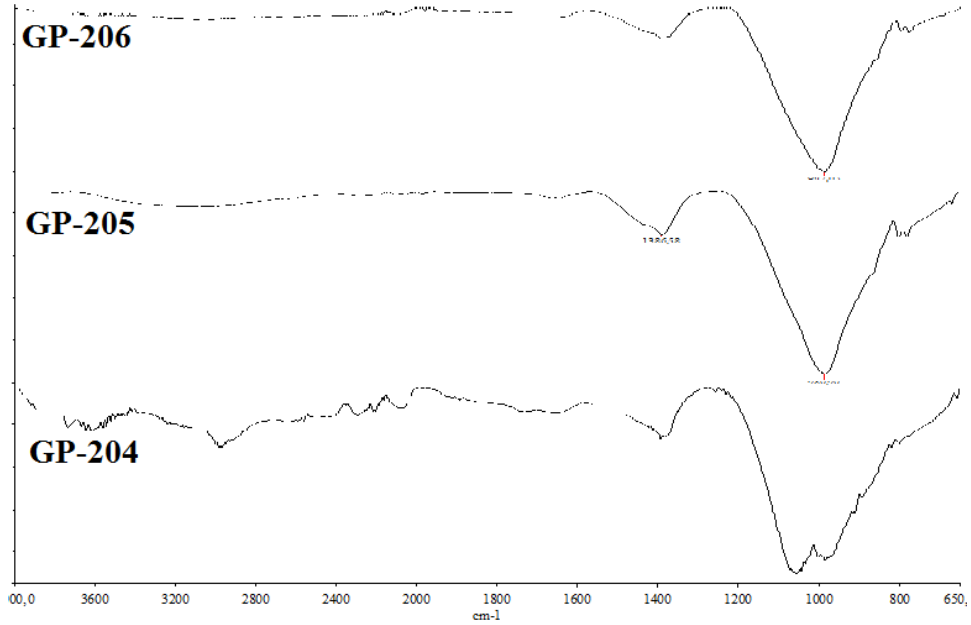
Aynı şekilde CsNO₃ ve Sr(NO₃)₂ bileşikleri içeren geopolimerler elde edildikten sonra bağ yapılarının ve fonksiyonel grupların incelenmesi için FT-IR analizi gerçekleştirilmiştir.

GP- 201, GP-202 ve GP-203 numaralı numunelerin FT-IR analizleri Şekil 4.52 ile gösterilmektedir. Şekil incelendiğinde Sezyum nitrat (CsNO₃) eklenmeyen GP-77 numaralı numune ile benzer dalga sayılarında titreşimler sergilediği görülmektedir. Ancak GP-202 numaralı numunede yaklaşık 3500-3700 cm⁻¹ arasındaki verdiği pikler daha fazla titreşimli olarak görülmektedir. Bunun durumun numunede Ca-OH ve Al-OH bağlarının sayısının diğer numunelere göre daha çok olmasından kaynaklandığı düşünülmektedir.



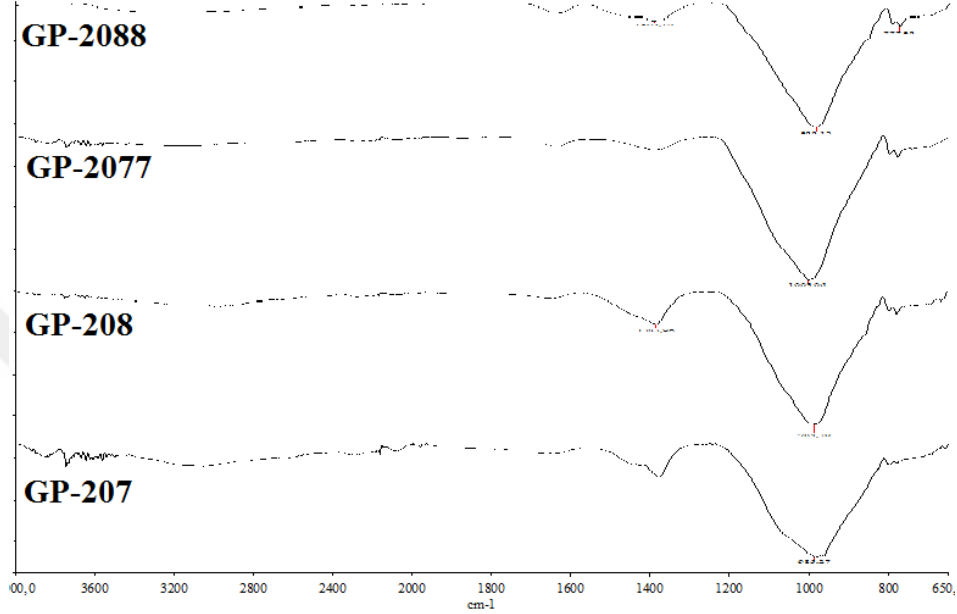
Şekil 4.52 : GP-201, GP-202 ve GP-203 numunelerinin FT-IR sonuçları.

Stronsiyum nitrat içeren GP-204, GP-205 ve GP-206 numaralı numunelerin FT-IR analiz sonuçları Şekil 4.53 ile gösterilmektedir. Şekil incelendiğinde genel olarak yapının bozulmadığı ancak başlangıç numunesinde yaklaşık 3000-3600 cm⁻¹ arasındaki dalga sayılarında pikler görülmektedir. Bu durumun analiz esnasında numunede nemden dolayı H-O-H bağlarının varlığından dolayı olabileceği düşünülmektedir.



Şekil 4.53 : GP-204, GP-205 ve GP-206 numunelerinin FT-IR sonuçları.

GP- 207, GP-208, GP-2077 ve GP-2088 numaralı numunelerin FT-IR analizleri Şekil 4.54 ile gösterilmektedir. Şekil incelendiğinde bütün numunelerin bağ yapılarının ve fonksiyonel gruplarının ideal geopolimer numuneleri ile benzer yapıda olduğu, eklenen Sezyum nitrat (CsNO_3) ve Stronsiyum nitrat $\text{Sr}(\text{NO}_3)_2$ bileşikleri ve TiO_2 ilavelerinin malzeme yapısı ile bütünleşerek herhangi bir farklılık oluşturmadığı gözlemlenmektedir.

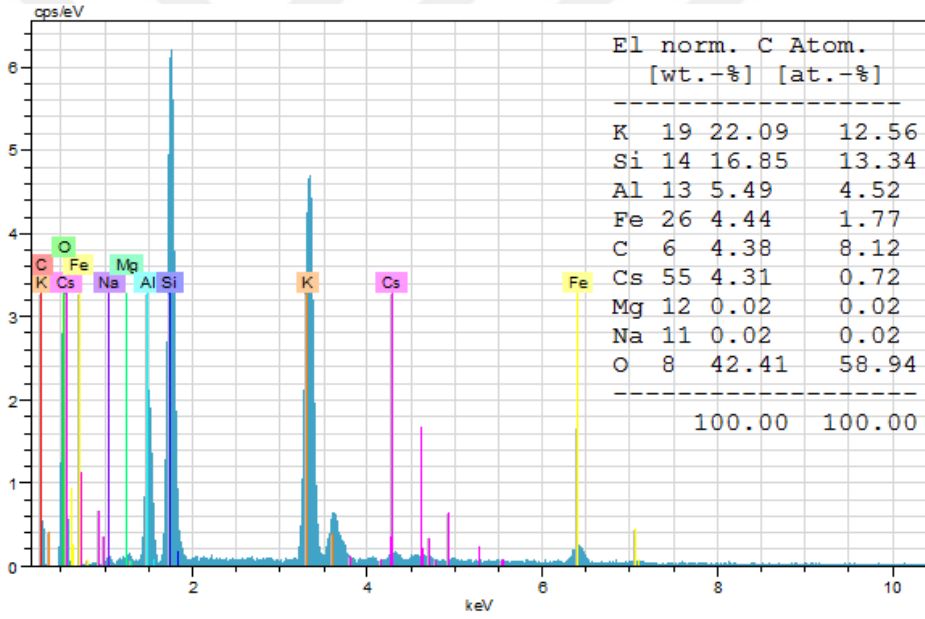
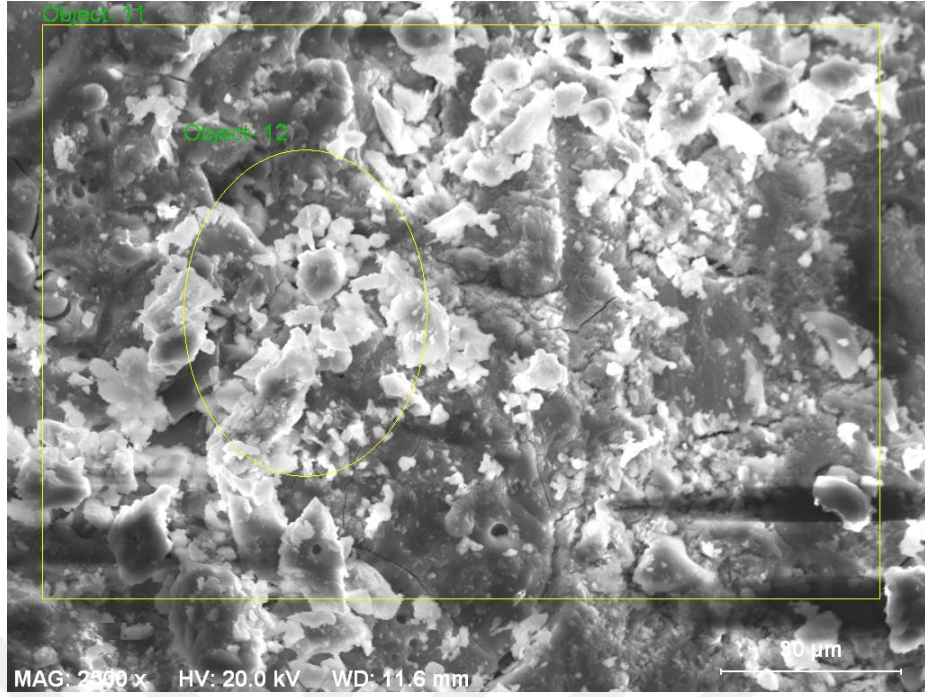


Şekil 4.54 : GP-207, GP-208, GP-2077 ve GP-2088 numunelerinin FT-IR sonuçları.

Yapılan XRD ve FT-IR analizleri sonucunda sezyum nitrat (CsNO_3) ve stronsiyum nitrat $\text{Sr}(\text{NO}_3)_2$ bileşikleri eklenmesi genel geopolimer matrisi içerisinde uyumlu bir şekilde yer aldığını göstermektedir. Herhangi farklı bir bağ oluşumu ya da fonksiyonel grup belirlenmemiştir. Ayrıca kristal yapının değişime uğramadığı belirlenmiştir.

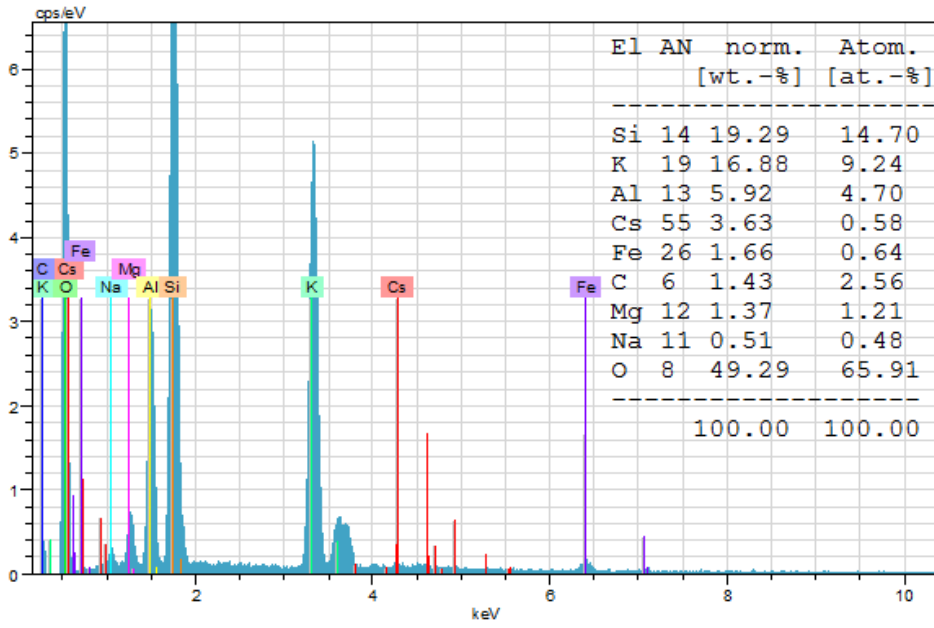
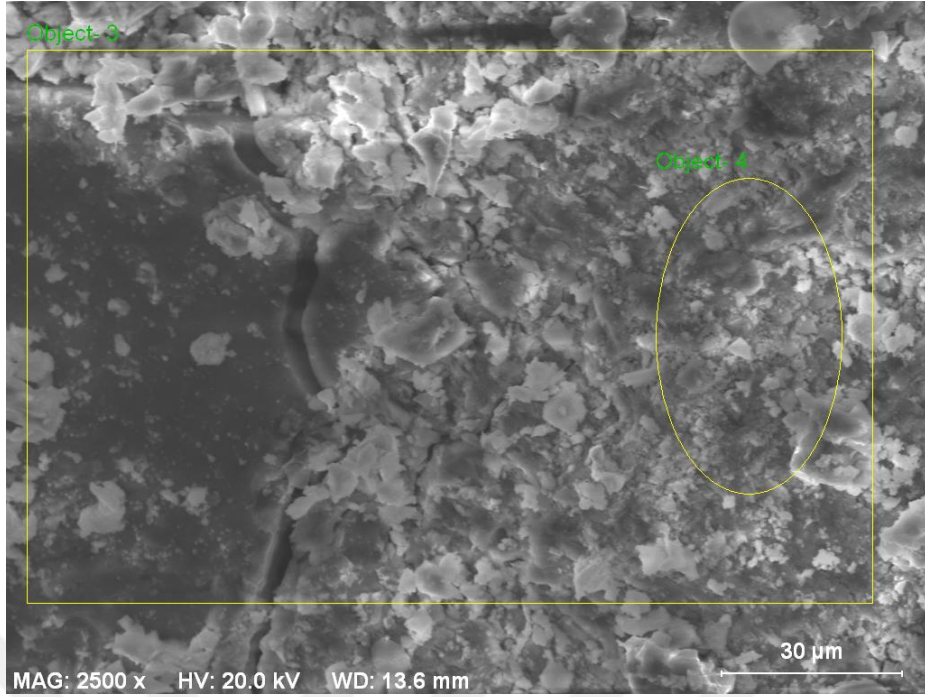
Cs ve Sr içeren numunelerin başlangıç ve son durumlarında geopolimer matrisi içerisindeki miktarlarını belirlemek için SEM-EDX analizleri gerçekleştirilmiştir. Ayrıca sonuçların tutarlılığını görebilmek için numunelere XRF analizleri uygulanmıştır.

Cs içeren GP-201 numaralı numunenin SEM-EDX analizi Şekil 4.55 ile gösterilmektedir. Numune su ortamına bırakılmadan önceki halini temsil etmektedir. Sonuçlara göre numune %4.31 oranında Cs içermektedir.



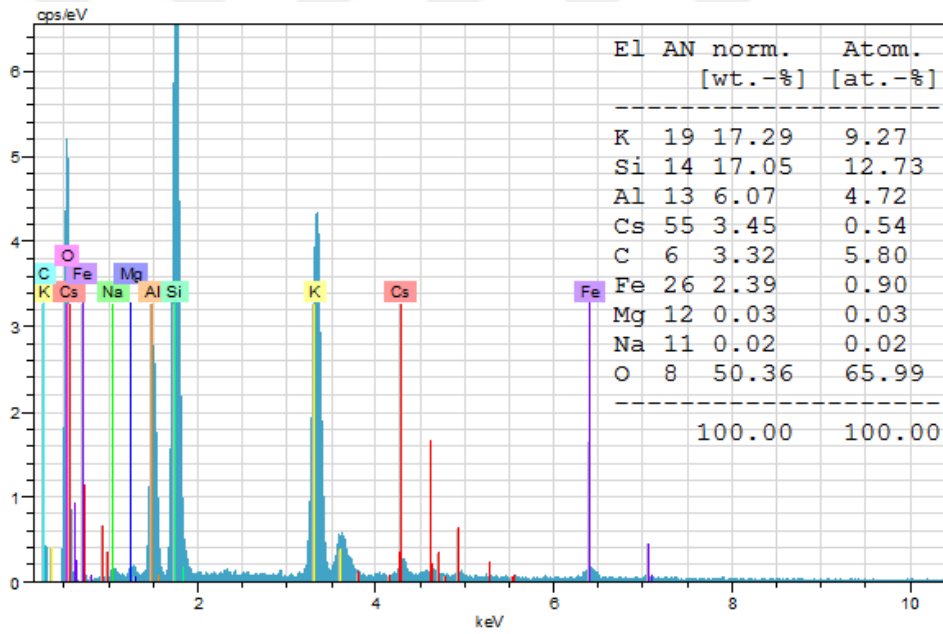
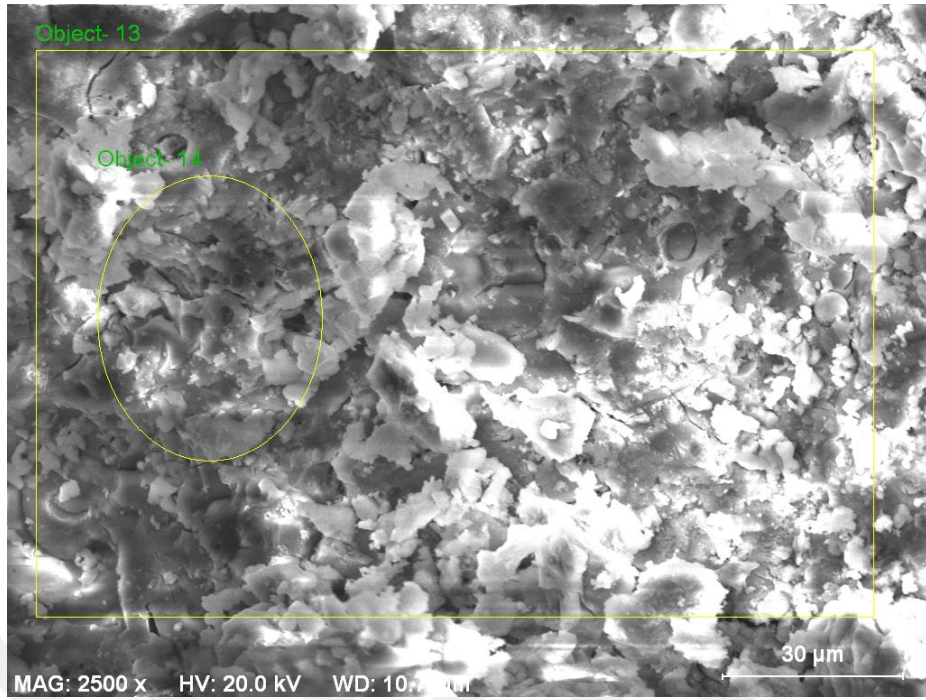
Şekil 4.55 : GP-201 numaralı numunenin SEM-EDX analizi sonuçları.

GP-202 numaralı numune GP-201 numaralı numunenin saf su ortamında 14 gün bekletildikten sonraki halini temsil etmektedir. GP-202 numaralı numunenin SEM-EDX analizi Şekil 4.56 ile gösterilmektedir. Sonuçlara göre numune kütleli olarak %3.63 oranında Cs içermektedir.



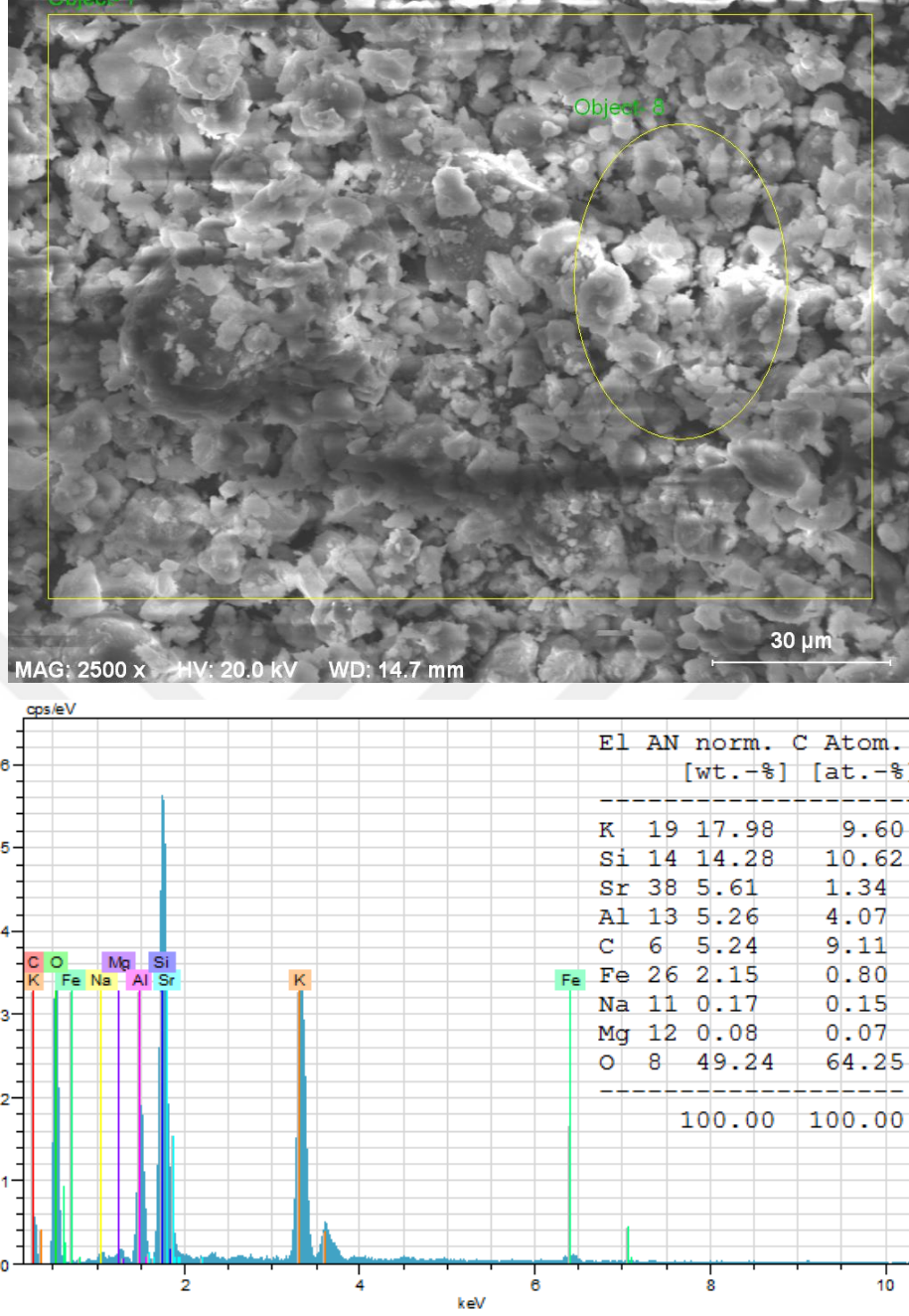
Şekil 4.56 : GP-202 numaralı numunenin SEM-EDX analizi sonuçları.

GP-203 numaralı numune GP-201 numaralı numunenin saf su ortamında 28 gün bekletildikten sonraki halini temsil etmektedir. GP-203 numaralı numunenin SEM-EDX analizi Şekil 4.57 ile gösterilmektedir. Sonuçlara göre numune kütleli olarak %3.45 oranında Cs içermektedir.



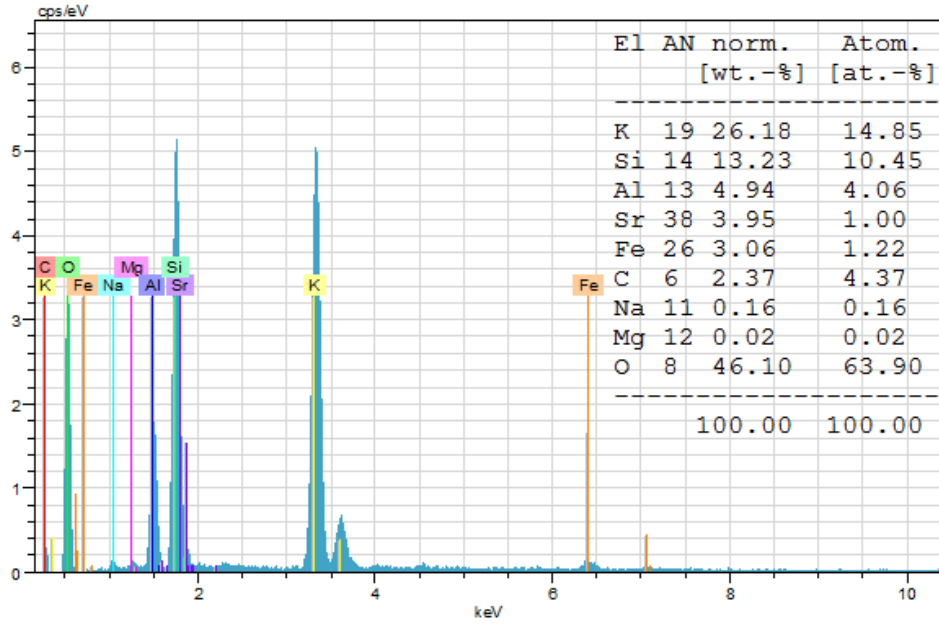
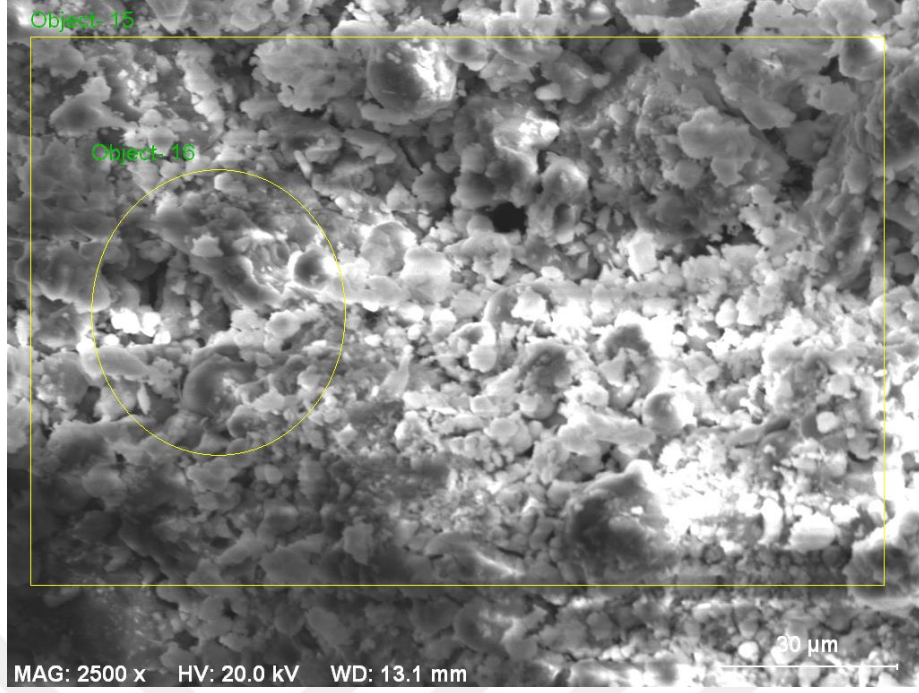
Şekil 4.57 : GP-203 numaralı numunenin SEM-EDX analizi sonuçları.

Sr içeren GP-204 numaralı numunenin SEM-EDX analizi Şekil 4.58 ile gösterilmektedir. Numune su ortamına bırakılmadan önceki halini temsil etmektedir. Sonuçlara göre numune kütleli olarak %5.61 oranında Sr içermektedir.



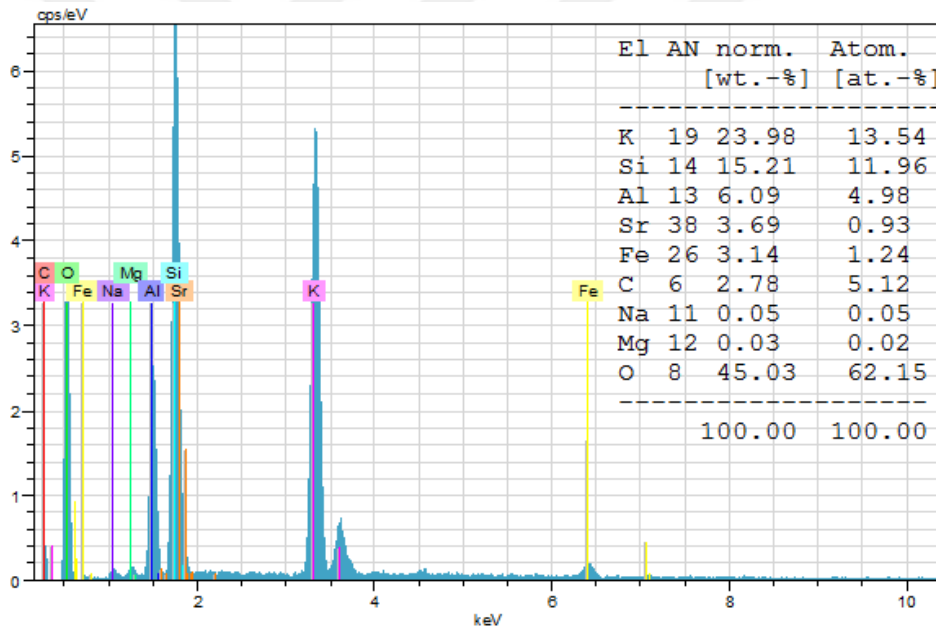
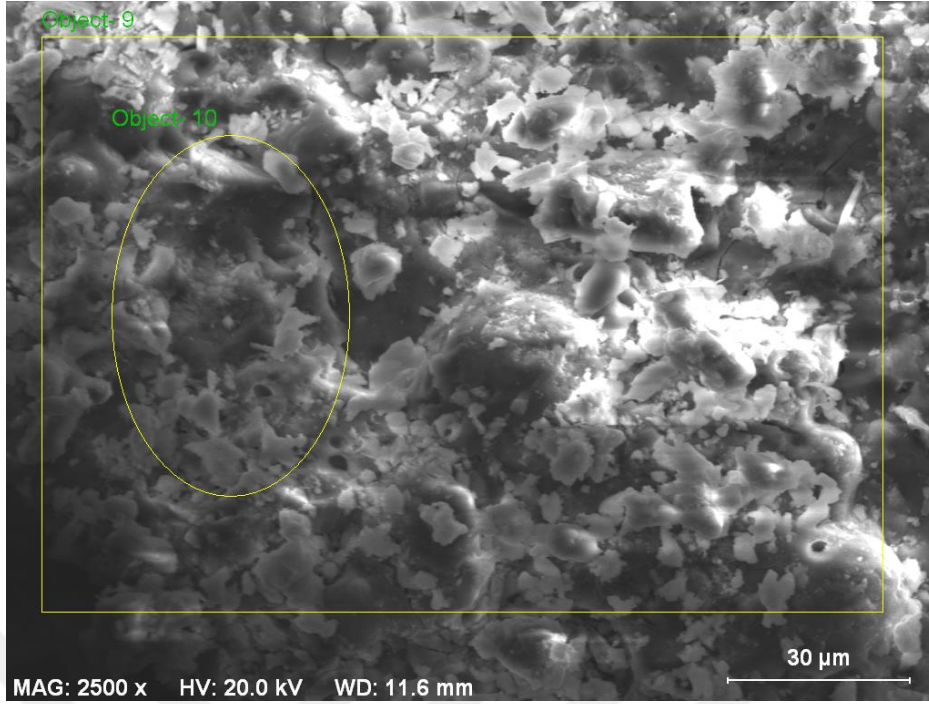
Şekil 4.58 : GP-204 numaralı numunenin SEM-EDX analizi sonuçları.

GP-205 numaralı numune GP-204 numaralı numunenin saf su ortamında 14 gün bekletildikten sonraki halini temsil etmektedir. GP-205 numaralı numunenin SEM-EDX analizi Şekil 4.59 ile gösterilmektedir. Sonuçlara göre numune kütleli olarak %3.95 oranında Sr içermektedir.



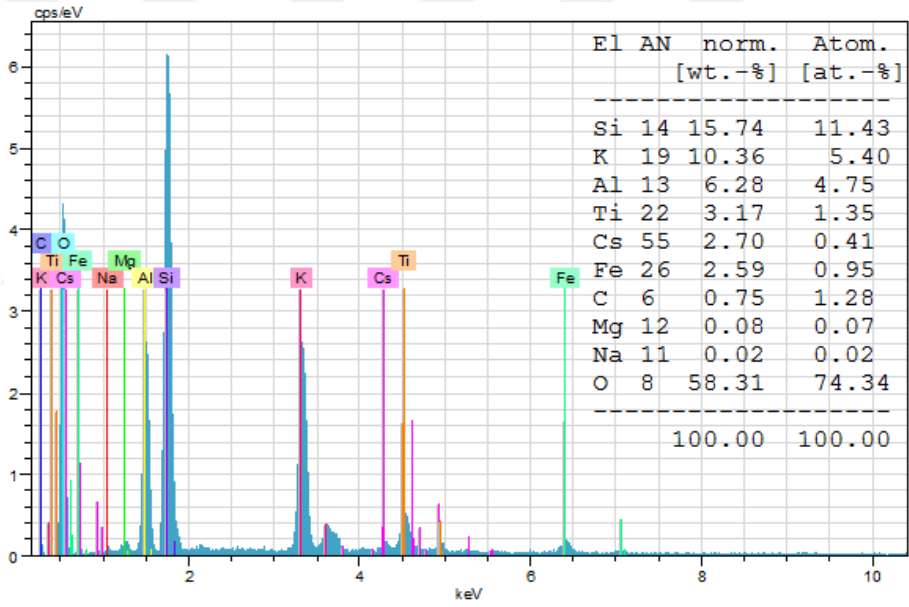
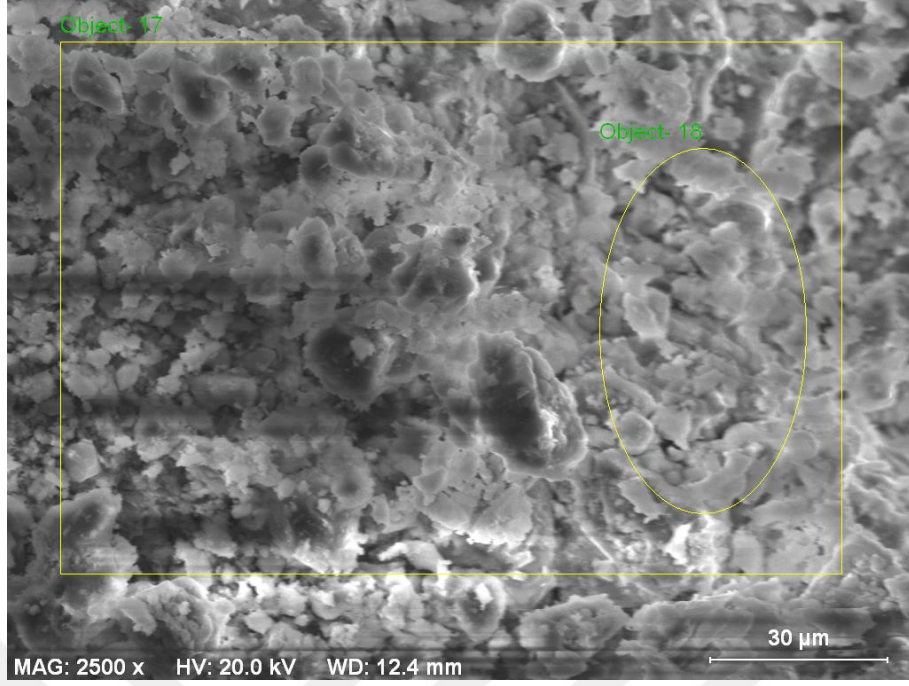
Şekil 4.59 : GP-205 numaralı numunenin SEM-EDX analizi sonuçları.

GP-206 numaralı numune GP-204 numaralı numunenin saf su ortamında 28 gün bekletildikten sonraki halini temsil etmektedir. GP-206 numaralı numunenin SEM-EDX analizi Şekil 4.60 ile gösterilmektedir. Sonuçlara göre numune kütleli olarak %3.69 oranında Sr içermektedir.



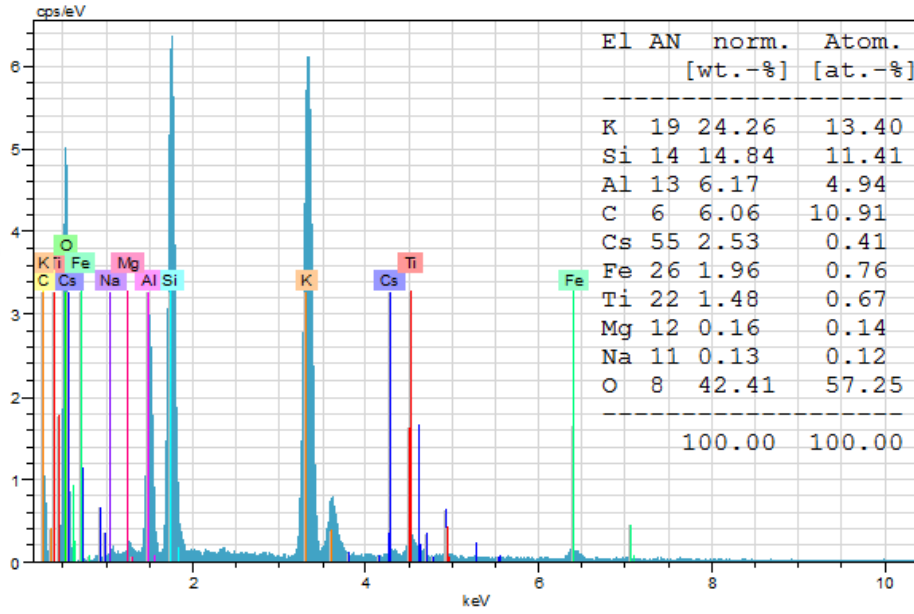
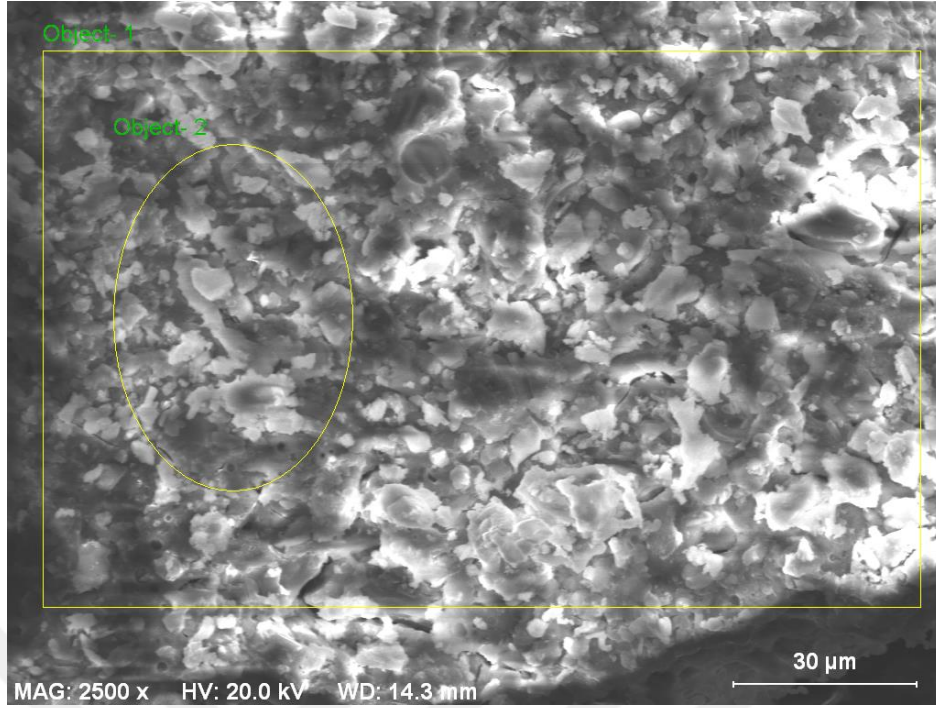
Şekil 4.60 : GP-206 numaralı numunenin SEM-EDX analizi sonuçları.

Cs ve TiO₂ içeren GP-207 numaralı numunenin SEM-EDX analizi Şekil 4.61 ile gösterilmektedir. Numune güneş ışığı altında su ortamına bırakılmadan önceki halini temsil etmektedir. Sonuçlara göre numune kütleli olarak %2.70 oranında Cs içermektedir.



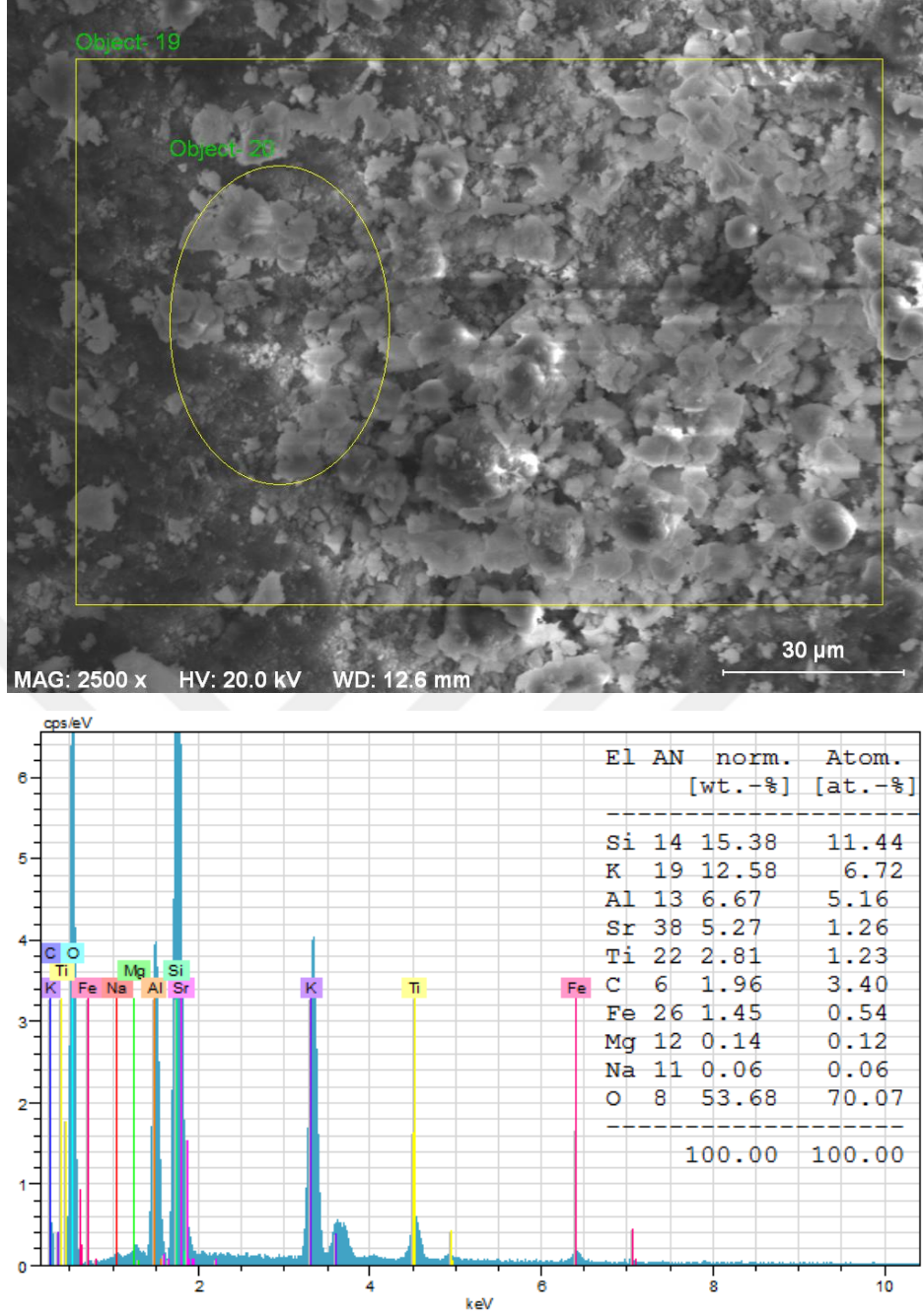
Şekil 4.61 : GP-207 numaralı numunenin SEM-EDX analizi sonuçları.

GP-2077 numaralı numune GP-207 numaralı numunenin güneş ışığı altında saf su ortamında 28 gün bekletildikten sonraki halini temsil etmektedir. GP-2077 numaralı numunenin SEM-EDX analizi Şekil 4.62 ile gösterilmektedir. Sonuçlara göre numune kütleli olarak %2.53 oranında Cs içermektedir. Güneş ışığı altında TiO₂ 'in fotokatalitik etkisine bağlı kalarak, Cs'nin kütleli olarak 2.70 değerinden 2.53 değerine çok küçük bir azalma gösterdiğini, yapı matrisi içerisinde kalarak immobilizasyonun yaklaşık % 93.7 oranında sağlandığı görülmektedir.



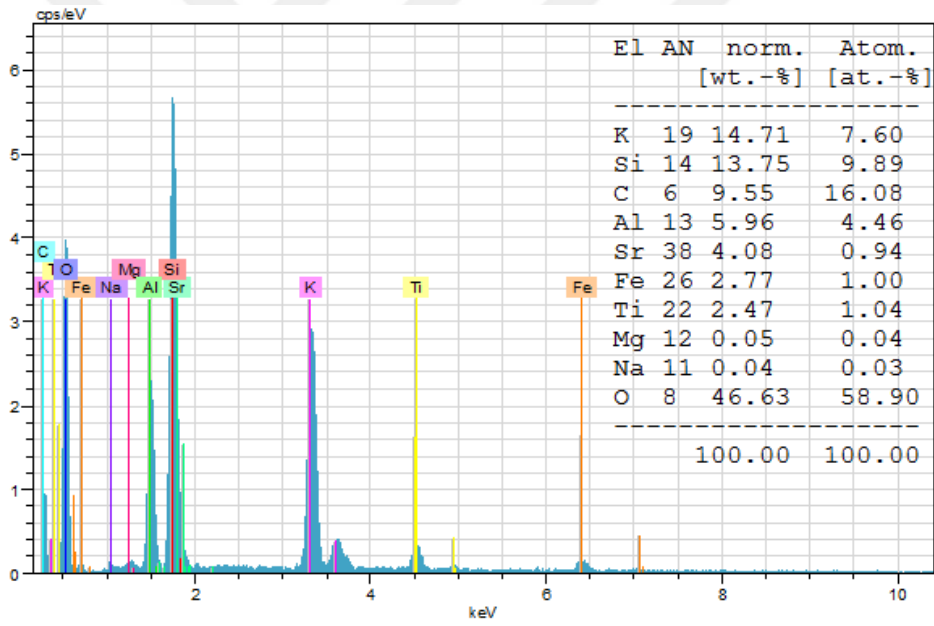
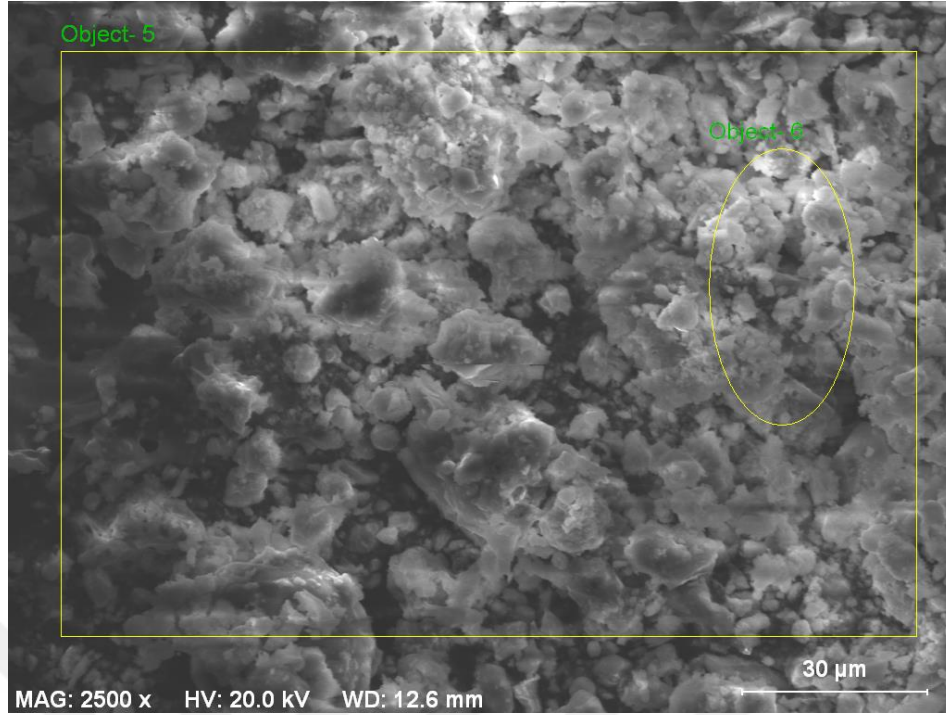
Şekil 4.62 : GP-2077 numaralı numunenin SEM-EDX analizi sonuçları.

Sr ve TiO_2 içeren GP-208 numaralı numunenin SEM-EDX analizi Şekil 4.63 ile gösterilmektedir. Numune güneş ışığı altında su ortamına bırakılmadan önceki halini temsil etmektedir. Sonuçlara göre numune kütleli olarak %5.27 oranında Sr içermektedir.



Şekil 4.63 : GP-208 numaralı numunenin SEM-EDX analizi sonuçları.

GP-2088 numaralı numune GP-208 numaralı numunenin güneş ışığı altında saf su ortamında 28 gün bekletildikten sonraki halini temsil etmektedir. GP-2088 numaralı numunenin SEM-EDX analizi Şekil 4.64 ile gösterilmektedir. Sonuçlara göre numune kütleli olarak %4.08 oranında Sr içermektedir. Bu durum Sr'nin % 77.42 oranında matris içerisinde kaldığını göstermektedir.



Şekil 4.64 : GP-2088 numaralı numunenin SEM-EDX analizi sonuçları.

Kapsülleme matrisi yöntemi ile Cs, Sr ve TiO₂ eklenerek hazırlanan Geopolimer malzemelerin su ortamında bekletilmeleri ile radyoaktif atıkları temsilen Cs ve Sr moleküllerini belirli süreler boyunca bünyesinde tutabilme durumları Çizelge 4.9 ile gösterilmektedir.

Çizelge 4.9 : Radyoaktif elementlerin malzeme matrisinde tutunma yüzdeleri.

Numune Kodu	EDX Sonucu (Kütleli Yüzde)	Tutabilme Yüzdesi	XRF Sonucu (Kütleli Yüzde)	Tutabilme Yüzdesi
GP-201	%4.31	-	%2.06	-
GP-202 (14gün)	%3.63	%84.22	%1.768	%85.825
GP-203 (28gün)	%3.45	%80.04	%0.638	%79.529
GP-204	%5.61	-	%1.624	-
GP-205 (14gün)	%3.95	%70.41	%1.131	%69.642
GP-206 (28gün)	%3.69	%65.77	%1.007	%62.007
GP-207	%2.70	-	%1.843	-
GP-2077 (28gün)	%2.53	%93.70	%1.676	%90.938
GP-208	%5.27	-	%1.222	-
GP-2088 (28gün)	%4.08	%77.42	%0.978	%80.033

Çizelge 4.8 incelendiğinde EDX ve XRF analiz sonuçlarının büyük oranda birbirleriyle uyum içerisinde oldukları görülmektedir. GP-201 numaralı numunenin 28 gün sonunda (GP-203) yaklaşık %80 oranında Cs moleküllerini yapısında tutabildiği belirlenmiştir. GP-204 numaralı numunenin 28 gün sonunda (GP-206) yaklaşık %65 oranında Sr moleküllerini yapısında muhafaza ettiği görülmektedir. TiO₂ içeren GP-207 numaralı numune güneşteki UV ışınlarının etkisiyle 28 gün sonunda (GP-2077) yaklaşık %90 seviyelerinde Cs moleküllerini malzeme içerisinde tutabilmiştir. Bu değer numuneler arasında en yüksek seviyede immobilizasyon sağlandığı sonuç olarak görülmektedir. UV

ışınları altında Sr moleküllerinin immobilizasyonu için GP-208 numaralı numune 28 gün sonunda (GP-2088) yaklaşık %78 oranında malzeme matrisi içerisinde tutunma başarısı göstermiştir.

Tüm numuneler dikkate alındığında, sezyum elementinin stronsiyum elementine göre daha yüksek oranlarda matris içerisinde kaldığı görülmektedir. Ayrıca aynı radyoaktif atıkları içeren numuneler düşünüldüğünde, UV ışınların etkisiyle TiO_2 içeren numunelerin TiO_2 içermeyen numunelere göre matris içerisinde daha yüksek oranlarda tutulabildiği belirlenmiştir. Genel olarak çalışma kapsamında elde edilen ve ideal olarak belirlenen geopolimer malzemelerin, radyoaktif atıkların immobilizasyonunda kullanılabilir olduğu sonucuna ulaşılmaktadır. Bu durum fotokatalitik etkinin güneş ışınları vasıtasıyla ortaya çıkması ve yapı içerisinde istenilen tutulmanın sağlanmasına neden olmuştur. Nükleer reaktörlerin özellikle dış ortama bakan kısımlarının bu tip geopolimer malzeme ile kaplanması oluşabilecek sızıntıların giderimi konusunda büyük etki yaratabilecektir.

5. SONUÇLAR VE ÖNERİLER

Bu tez çalışmasında iki farklı yerden temin edilen uçucu kül ve yüksek fırın cürufu olmak üzere üç farklı özellikte endüstriyel atıklardan temin edilen alüminosilikat kaynağı kullanılarak sürdürülebilir, doğa dostu geopolimer malzeme üretimi gerçekleştirilmiştir. Sürdürülebilir etkiyi sağlayabilmek adına kimyasal madde kullanımını azaltmak için çeşitli tarımsal atıkların külleri kullanılmıştır. Potansiyel uygulama alanlarında kullanılabilirliğini ortaya koyabilmek için birçok fiziksel teste tabi tutulan malzemelerin, toksik boyar madde gideriminde adsorban olarak kullanımı ve radyoaktif atıkların immobilizasyonunda kullanımı incelenmiştir. Yapılan bu kapsamlı çalışma sonucunda;

- Çalışmanın ilk kısmında gerçekleştirilen deneylere göre alüminosilikat kaynakları arasından Zonguldak uçucu külü ile elde edilen numunelerin fiziksel anlamda daha kararlı yapıda olduğu belirlenmiştir. XRF sonuçlarına göre %64.4 oranında SiO_2 ve %26 oranında Al_2O_3 içerdiği belirlenmiştir. Yüksek oranlarda Si ve Al içermesi geopolimerizasyon sürecine olumlu yönde katkı yapmaktadır. Bu sonuç XRD, SEM ve FT-IR analizleri ile doğrulanmıştır.
- Malzeme üretiminde optimum karışım oranının belirlenmesi için yapılan deneyler sonucunda; 150 g kaynak madde, 8 molar 100 ml alkali aktivatör çözeltisi ve 15 g silikat kullanılarak elde edilen malzemelerin ideal yapıda olduğu tespit edilmiştir.
- Çalışmanın ikinci kısmında ideal olarak belirlenen oranlarda hazırlanan ve ek olarak TiO_2 ve tarımsal atık külleri içeren numunelerin mikroyapı analizleri gerçekleştirilmiştir. XRD analizi ile kuvars, mullit, geopolimerizasyondan kaynaklı C-S-H yapıları ve jelleşme ait açılarda piklerin varlığı saptanmıştır. SEM analizi ile genel olarak mezo gözeneklere sahip polimerizasyon sonucu C-S-H jelleşmelerinin görüldüğü ve katkı maddelerinin bu yapıları bozmadığı belirlenmiştir. FT-IR analizi ile literatürde geopolimer malzemelerde belirlenen C-O, Si-O-Si, Al-O-Si, Si-O, Ca-Si-OH ve O-H fonksiyonel gruplar elde edilen tüm malzemelerde görülmektedir. Özellikle kanyaş otunun içerdiği yüksek SiO_2 miktarından dolayı silikatlar yerine belirli oranda kullanılabileceği tespit edilmiştir ki bu durum daha az kimyasal kullanımı anlamına gelir ve bunun sonucunda da sürdürülebilir çevre dostu malzeme üretimi sağlanmış olur.

- Aktivatör etkisinin belirlendiği numuneler ile kütleme sıcaklığı ve kinetiği incelenmiştir. En iyi kürlenmenin 50 °C sıcaklıkta gerçekleştiği tespit edilmiştir ve daha yüksek sıcaklıklarda numunelerde meydana gelen çatlamlar nedeniyle ani ağırlık kayıpları oluşmuştur. KOH ve K₂SiO₃ ile aktiflenen numunenin ani kütle kayıplarının olmaması ve toplam kütle kaybının az olması nedeniyle kütleme kinetiği sonuçlarının ideal olduğu belirlenmiştir.
- Elde edilen numunelerin asit ve su dayanımlarının çok iyi seviyelerde olmadığı görülmüştür. Gözenekliliği fazla olan numunelerin yapı içerisine çok miktarda asit ve su aldığı için daha fazla tahribata uğradığı belirlenmiştir.
- Yoğunluk analizi sonuçlarına göre numunelerin yaklaşık 1.5 ile 2 g.cm⁻³ arasında değiştiği görülmektedir. Standartlara göre normal sınıf betonlara yakın değerlere ulaşıldığı saptanmıştır. Elde edilen en yoğun numunenin 2,217 g.cm⁻³ değerine sahip olduğu hesaplanmıştır.
- Aktivatör molaritesinin, mısır kabuğu külü miktarının, TiO₂ miktarının ve çeşitli tarımsal atık küllerinin basınç dayanımına etkisi incelenmiştir. Aktivatör konsantrasyonunun artmasıyla basınç dayanımının arttığı ve 8 ve 10 molar değerlerinde basınç dayanımının çok değişmediği ancak 6 molar aktivatör ile hazırlanan malzemenin basınç dayanımının büyük oranda düştüğü görülmektedir. Belirli bir seviyeye kadar mısır kabuğu külleri basınç dayanımını arttırdığı ancak silikatların yerine tamamen mısır kabuğu külleri bulunduğunda basınç dayanımı azalmaktadır. Sonuçlara göre TiO₂ içeriğinin basınç dayanımına etkisinin olmadığı ve TiO₂ miktarı arttığında bile basınç dayanımlarının değişmediği tespit edilmiştir. Sonuçlara göre; 42.22 MPa değeriyle kanyaş otu eklenen numune basınç dayanımı yapılan tüm malzemelere göre daha yüksek bir seviyeye ulaşmıştır. Aynı şekilde yer fıstığı kabuğu külü eklenen numune 39.91 MPa değeriyle yüksek bir dayanım sergilemiştir.
- Elde edilen geopolimer malzemelerin boyar madde gideriminde kullanılabilirliğini incelemek için dört farklı numune adsorban olarak kullanılmıştır. En yüksek yüzde giderim oranının %85.91 değeriyle mısır kabuğu külü içeren numuneye ait olduğu belirlenmiştir. Bu numune için adsorpsiyon kinetiğinin belirlenmesi için yapılan deneyler sonrasında R² değerinin 0.998 değerine eşit olduğu için adsorpsiyon kinetiğinin yalancı ikinci merteye model ile uyum içerisinde olduğu tespit

edilmiştir. Deneysel verilere göre dengede birim adsorban başına adsorplanan metilen mavisi miktarı 25 °C sıcaklıkta 4.765 mg.g⁻¹ olarak hesaplanmıştır. Böylelikle özel amaçlı kirlilik gideriminde kullanılabilir yapı veya dekoratif malzeme üretimi sağlanmıştır.

- Elde edilen malzemelerin radyoaktif atıkların immobilizasyonunda kullanılabilirliğinin incelenmesi için yapılan deneylerin sonuçlarına göre, sezyumun stronsiyuma göre matris içerisinde daha yüksek oranlarda tutunduğu ve numunede TiO₂ bulunması durumunda 28 gün sonunda yaklaşık %90 gibi yüksek seviyede immobilizasyon sağlandığı sonucuna ulaşılmıştır. Son zamanlarda ülkemizde ve dünyada sorun oluşturan nükleer santrallerdeki sızıntılar sonucu ortaya çıkacak çevre sorunları da, bu santrallerde reaktör dış yüzeylerinin bu tip geopolimer malzemeler ile kaplanması sonucu çözüm bulacaktır.

Tüm bu sonuçlar düşünüldüğünde sürdürülebilir, potansiyel uygulama alanlarına sahip ve doğa dostu bir malzeme elde edilmiştir. Üretime farklı bir bakış açısı kazandırması hususunda aşağıda sıralanan önerilerin gelecek çalışmalara yol gösterebileceği düşünülmektedir.

- Geopolimer eldesinde kullanılan hammaddenin önemi büyüktür. Farklı özelliklerdeki uçucu küllerin karıştırılması ile oluşturulacak yeni reçeteler geopolimer eldesinde kullanılabilir.
- Ülkemiz ekonomisinin büyük bir kısmını tarımsal üretim oluşturmaktadır. Bu ürünlerin gerek çekirdeğinden, gerek posasından, gerek kabuğundan oluşabilecek kayda değer atık miktarı oldukça fazladır. Bu atıkların değerlendirilmesi hem çevresel hem de ekonomik olarak katkı sunacaktır. Bu açıdan özellikle yüksek silisyum kaynağına sahip atıkların (bunları tarımsal olarak sınırlamadan endüstriyel atıkları da bunun içine katarak) silikat kaynağı olarak geopolimer eldesinde kullanılması çalışmaları genişletilebilir.
- Özellikle kendi kendini temizleyen malzeme üretiminde geopolimer içerisinde kullanılacak TiO₂ miktarı üzerine çalışmalar yapılarak yeni nesil malzeme üretimi sağlanabilir.
- Elde edilen geopolimerlerin yüzeylerinin fonksiyonelliğini daha iyileştirmek adına, farklı kaplama teknikleri kullanılabilir.

KAYNAKLAR

- [1] **Li, H., Deng, Q., Zhang, J., Xia, B., & Skitmore, M.** (2019). Assessing the life cycle CO₂ emissions of reinforced concrete structures: Four cases from China. *Journal of cleaner production*, 210, 1496-1506.
- [2] **Miller, S. A., & Moore, F. C.** (2020). Climate and health damages from global concrete production. *Nature Climate Change*, 10(5), 439-443.
- [3] **Naqi, A., & Jang, J. G.** (2019). Recent progress in green cement technology utilizing low-carbon emission fuels and raw materials: A review. *Sustainability*, 11(2), 537.
- [4] **Amran, Y. M., Alyousef, R., Alabduljabbar, H., & El-Zeadani, M.** (2020). Clean production and properties of geopolymer concrete; A review. *Journal of Cleaner Production*, 251, 119679.
- [5] **Hassan, A., Arif, M., & Shariq, M.** (2019). Use of geopolymer concrete for a cleaner and sustainable environment—A review of mechanical properties and microstructure. *Journal of Cleaner Production*, 223, 704-728.
- [6] **Singh, N. B., & Middendorf, B.** (2020). Geopolymers as an alternative to Portland cement: An overview. *Construction and Building Materials*, 237, 117455.
- [7] **Zhuang, X. Y., Chen, L., Komarneni, S., Zhou, C. H., Tong, D. S., Yang, H. M., ... & Wang, H.** (2016). Fly ash-based geopolymer: clean production, properties and applications. *Journal of Cleaner Production*, 125, 253-267.
- [8] **Assi, L., Carter, K., Deaver, E. E., Anay, R., & Ziehl, P.** (2018). Sustainable concrete: Building a greener future. *Journal of Cleaner Production*, 198, 1641-1651.
- [9] **Almutairi, A. L., Tayeh, B. A., Adesina, A., Isleem, H. F., & Zeyad, A. M.** (2021). Potential applications of geopolymer concrete in construction: A review. *Case Studies in Construction Materials*, 15, e00733.
- [10] **Kim, B., Lee, J., Kang, J., & Um, W.** (2021). Development of geopolymer waste form for immobilization of radioactive borate waste. *Journal of Hazardous Materials*, 419, 126402.
- [11] **Li, J., Chen, L., & Wang, J.** (2021). Solidification of radioactive wastes by cement-based materials. *Progress in Nuclear Energy*, 141, 103957.
- [12] **Singh, N. B., & Middendorf, B.** (2020). Geopolymers as an alternative to Portland cement: An overview. *Construction and Building Materials*, 237, 117455.
- [13] **Provis, J. L., & Bernal, S. A.** (2014). Geopolymers and related alkali-activated materials. *Annual Review of Materials Research*, 44, 299-327.
- [14] **Provis, J. L.** (2014). Geopolymers and other alkali activated materials: why, how, and what? *Materials and Structures*, 47(1), 11-25.
- [15] **Davidovits, J.** (1989). Geopolymers and geopolymeric materials. *Journal of Thermal Analysis*, 35(2), 429-441.

- [16] **Provis, J. L., & Van Deventer, J. S. J. (Eds.).** (2009). *Geopolymers: structures, processing, properties and industrial applications*. Elsevier.
- [17] **Koleżyński, A., Król, M., & Żychowicz, M.** (2018). The structure of geopolymers—Theoretical studies. *Journal of Molecular Structure*, 1163, 465-471.
- [18] **Provis, J. L., & Van Deventer, J. S.** (2009). Introduction to geopolymers. In *Geopolymers* (pp. 1-11). Woodhead Publishing.
- [19] **San Nicolas, R. V. R., Walkley, B., & van Deventer, J. S. J.** (2017). Fly ash-based geopolymer chemistry and behavior. In *Coal Combustion Products (CCP's)* (pp. 185-214). Woodhead Publishing.
- [20] **Rees, C. A.** (2007). *Mechanisms and kinetics of gel formation in geopolymers* (p. 198). University of Melbourne, Department of Chemical and Biomolecular Engineering.
- [21] **Rajamane, N. P., Nataraja, M. C., & Lakshmanan, N.** (2011). An introduction to geopolymer concrete. *Indian Concr J*, 85(11), 25-28.
- [22] **Rożek, P., Król, M., & Mozgawa, W.** (2019). Geopolymer-zeolite composites: a review. *Journal of cleaner production*, 230, 557-579.
- [23] **Sturm, P., Gluth, G. J. G., Simon, S., Brouwers, H. J. H., & Kühne, H. C.** (2016). The effect of heat treatment on the mechanical and structural properties of one-part geopolymer-zeolite composites. *Thermochimica acta*, 635, 41-58.
- [24] **Davidovits, J. (Ed.).** (2005). *Geopolymer, green chemistry and sustainable development solutions: proceedings of the world congress geopolymer 2005*. Geopolymer Institute.
- [25] **Liew, Y. M., Heah, C. Y., & Kamarudin, H.** (2016). Structure and properties of clay-based geopolymer cements: A review. *Progress in Materials Science*, 83, 595-629.
- [26] **Abdullah, M. M. A., Hussin, K., Bnhussain, M., Ismail, K. N., & Ibrahim, W. M. W.** (2011). Mechanism and chemical reaction of fly ash geopolymer cement-a review. *Int. J. Pure Appl. Sci. Technol*, 6(1), 35-44.
- [27] **Weil, M., Dombrowski, K., & Buchwald, A.** (2009). Life-cycle analysis of geopolymers. In *Geopolymers* (pp. 194-210). Woodhead Publishing.
- [28] **Khale, D., & Chaudhary, R.** (2007). Mechanism of geopolymerization and factors influencing its development: a review. *Journal of materials science*, 42(3), 729-746.
- [29] **Rao, F., & Liu, Q.** (2015). Geopolymerization and its potential application in mine tailings consolidation: a review. *Mineral Processing and Extractive Metallurgy Review*, 36(6), 399-409.
- [30] **Dimas, D., Giannopoulou, I., & Panias, D.** (2009). Polymerization in sodium silicate solutions: a fundamental process in geopolymerization technology. *Journal of materials science*, 44(14), 3719-3730.
- [31] **Davidovits, J.** (1994). High-alkali cements for 21st century concretes. *Special Publication*, 144, 383-398.

- [32] **Wan, Q., Rao, F., Song, S., García, R. E., Estrella, R. M., Patino, C. L., & Zhang, Y.** (2017). Geopolymerization reaction, microstructure and simulation of metakaolin-based geopolymers at extended Si/Al ratios. *Cement and Concrete Composites*, 79, 45-52.
- [33] **Sukmak, P., Horpibulsuk, S., & Shen, S. L.** (2013). Strength development in clay–fly ash geopolymer. *Construction and Building Materials*, 40, 566-574.
- [34] **Muñoz-Villarreal, M. S., Manzano-Ramírez, A., Sampieri-Bulbarela, S., Gasca-Tirado, J. R., Reyes-Araiza, J. L., Rubio-Ávalos, J. C., ... & Amigó-Borrás, V.** (2011). The effect of temperature on the geopolymerization process of a metakaolin-based geopolymer. *Materials Letters*, 65(6), 995-998.
- [35] **Papa, E., Medri, V., Amari, S., Manaud, J., Benito, P., Vaccari, A., & Landi, E.** (2018). Zeolite-geopolymer composite materials: Production and characterization. *Journal of Cleaner Production*, 171, 76-84.
- [36] **Kaze, R. C., Naghizadeh, A., Tchadjie, L., Adesina, A., Djobo, J. N. Y., Nemaleu, J. G. D., ... & Tayeh, B. A.** (2022). Lateritic soils based geopolymer materials: A review. *Construction and Building Materials*, 344, 128157.
- [37] **ASTM C618** (2003). *Standard specification for coal fly ash and raw or calcined natural pozzolan for use in concrete*. American society for testing and materials. West Conshohocken, PA, USA: ASTM International.
- [38] **Zhuang, X. Y., Chen, L., Komarneni, S., Zhou, C. H., Tong, D. S., Yang, H. M., ... & Wang, H.** (2016). Fly ash-based geopolymer: clean production, properties and applications. *Journal of Cleaner Production*, 125, 253-267.
- [39] **Zhang, P., Gao, Z., Wang, J., Guo, J., Hu, S., & Ling, Y.** (2020). Properties of fresh and hardened fly ash/slag based geopolymer concrete: A review. *Journal of Cleaner Production*, 270, 122389.
- [40] **Shariq, M., Prasad, J., & Masood, A.** (2010). Effect of GGBFS on time dependent compressive strength of concrete. *Construction and Building Materials*, 24(8), 1469-1478.
- [41] **Hu, Y., Tang, Z., Li, W., Li, Y., & Tam, V. W.** (2019). Physical-mechanical properties of fly ash/GGBFS geopolymer composites with recycled aggregates. *Construction and Building Materials*, 226, 139-151.
- [42] **Zhang, G., He, J., & Gambrell, R. P.** (2010). Synthesis, characterization, and mechanical properties of red mud–based geopolymers. *Transportation research record*, 2167(1), 1-9.
- [43] **Muraleedharan, M., & Nadir, Y.** (2021). Factors affecting the mechanical properties and microstructure of geopolymers from red mud and granite waste powder: A review. *Ceramics International*, 47(10), 13257-13279.
- [44] **Thomas, B. S., Yang, J., Mo, K. H., Abdalla, J. A., Hawileh, R. A., & Ariyachandra, E.** (2021). Biomass ashes from agricultural wastes as supplementary cementitious materials or aggregate replacement in cement/geopolymer concrete: A comprehensive review. *Journal of Building Engineering*, 40, 102332.

- [45] **Nazari, A., & Sanjayan, J. G.** (2015). Synthesis of geopolymer from industrial wastes. *Journal of Cleaner Production*, 99, 297-304.
- [46] **Zhang, P., Wang, K., Li, Q., Wang, J., & Ling, Y.** (2020). Fabrication and engineering properties of concretes based on geopolymers/alkali-activated binders-A review. *Journal of Cleaner Production*, 258, 120896.
- [47] **Abdul Rahim, R. H., Rahmiati, T., Azizli, K. A., Man, Z., Nuruddin, M. F., & Ismail, L.** (2015). Comparison of using NaOH and KOH activated fly ash-based geopolymer on the mechanical properties. In *Materials science forum* (Vol. 803, pp. 179-184). Trans Tech Publications Ltd.
- [48] **Chen, C., Li, Q., Shen, L., & Zhai, J.** (2012). Feasibility of manufacturing geopolymer bricks using circulating fluidized bed combustion bottom ash. *Environmental technology*, 33(11), 1313-1321.
- [49] **Lu, C., Wang, Q., Liu, Y., Xue, T., Yu, Q., & Chen, S.** (2022). Influence of new organic alkali activators on microstructure and strength of fly ash geopolymer. *Ceramics International*, 48(9), 12442-12449.
- [50] **Tchakouté, H. K., & Rüscher, C. H.** (2017). Mechanical and microstructural properties of metakaolin-based geopolymer cements from sodium waterglass and phosphoric acid solution as hardeners: A comparative study. *Applied Clay Science*, 140, 81-87.
- [51] **Shuai, Q., Xu, Z., Yao, Z., Chen, X., Jiang, Z., Peng, X., ... & Li, H.** (2020). Fire resistance of phosphoric acid-based geopolymer foams fabricated from metakaolin and hydrogen peroxide. *Materials Letters*, 263, 127228.
- [52] **Celerier, H., Jouin, J., Mathivet, V., Tessier-Doyen, N., & Rossignol, S.** (2018). Composition and properties of phosphoric acid-based geopolymers. *Journal of Non-Crystalline Solids*, 493, 94-98.
- [53] **Sellami, M., Barre, M., & Toumi, M.** (2019). Synthesis, thermal properties and electrical conductivity of phosphoric acid-based geopolymer with metakaolin. *Applied Clay Science*, 180, 105192.
- [54] **Dong, M., Elchalakani, M., & Karrech, A.** (2020). Development of high strength one-part geopolymer mortar using sodium metasilicate. *Construction and Building Materials*, 236, 117611.
- [55] **Zhang, P., Gao, Z., Wang, J., Guo, J., Hu, S., & Ling, Y.** (2020). Properties of fresh and hardened fly ash/slag based geopolymer concrete: A review. *Journal of Cleaner Production*, 270, 122389.
- [56] **Novais, R. M., Pullar, R. C., & Labrincha, J. A.** (2020). Geopolymer foams: An overview of recent advancements. *Progress in Materials Science*, 109, 100621.
- [57] **Kastiukas, G., Ruan, S., Liang, S., & Zhou, X.** (2020). Development of precast geopolymer concrete via oven and microwave radiation curing with an environmental assessment. *Journal of Cleaner Production*, 255, 120290.
- [58] **Laskar, M. S., & Talukdar, S.** (2018). Influence of superplasticizer and alkali activator concentration on slag-fly ash based geopolymer. *Urbanization Challenges in Emerging Economies*, 330-337.

- [59] **Elyamany, H. E., Abd Elmoaty, M., & Elshaboury, A. M.** (2018). Setting time and 7-day strength of geopolymer mortar with various binders. *Construction and Building Materials*, 187, 974-983.
- [60] **Huseien, G. F., Mirza, J., Ismail, M., & Hussin, M. W.** (2016). Influence of different curing temperatures and alkali activators on properties of GBFS geopolymer mortars containing fly ash and palm-oil fuel ash. *Construction and Building Materials*, 125, 1229-1240.
- [61] **Hadi, M. N., Zhang, H., & Parkinson, S.** (2019). Optimum mix design of geopolymer pastes and concretes cured in ambient condition based on compressive strength, setting time and workability. *Journal of Building engineering*, 23, 301-313.
- [62] **Bohra, V. K. J., Nerella, R., & Madduru, S. R. C.** (2019). Material properties, processing & characterization of fly ash based geopolymer. *Materials Today: Proceedings*, 19, 2617-2621.
- [63] **Olewi, S. M., Algin, Z., Nassani, D. E., & Mermerdaş, K.** (2018). Multi-objective optimization of alkali activator agents for FA-and GGBFS-based geopolymer lightweight mortars. *Arabian Journal for Science and Engineering*, 43(10), 5333-5347.
- [64] **Yeddula, B. S. R., & Karthiyaini, S.** (2020). Experimental investigations and GEP modelling of compressive strength of ferrosialate based geopolymer mortars. *Construction and Building Materials*, 236, 117602.
- [65] **da Silva Rocha, T., Dias, D. P., França, F. C. C., de Salles Guerra, R. R., & de Oliveira, L. R. D. C.** (2018). Metakaolin-based geopolymer mortars with different alkaline activators (Na^+ and K^+). *Construction and Building Materials*, 178, 453-461.
- [66] **Rovnaník, P.** (2010). Effect of curing temperature on the development of hard structure of metakaolin-based geopolymer. *Construction and building materials*, 24(7), 1176-1183.
- [67] **Sethi, H., Bansal, P. P., & Sharma, R.** (2019). Effect of addition of GGBS and glass powder on the properties of geopolymer concrete. *Iranian Journal of Science and Technology, Transactions of Civil Engineering*, 43(4), 607-617.
- [68] **Ranjbar, N., Mehrali, M., Mehrali, M., Alengaram, U. J., & Jumaat, M. Z.** (2015). Graphene nanoplatelet-fly ash based geopolymer composites. *Cement and Concrete Research*, 76, 222-231.
- [69] **Wongsa, A., Kunthawatwong, R., Naenudon, S., Sata, V., & Chindaprasirt, P.** (2020). Natural fiber reinforced high calcium fly ash geopolymer mortar. *Construction and Building Materials*, 241, 118143.
- [70] **Zhang, J., Shi, C., Zhang, Z., & Ou, Z.** (2017). Durability of alkali-activated materials in aggressive environments: A review on recent studies. *Construction and Building Materials*, 152, 598-613.
- [71] **Jindal, B. B., & Sharma, R.** (2020). The effect of nanomaterials on properties of geopolymers derived from industrial by-products: A state-of-the-art review. *Construction and Building Materials*, 252, 119028.

- [72] **Robayo-Salazar, R., Jesús, C., de Gutiérrez, R. M., & Pacheco-Torgal, F.** (2019). Alkali-activated binary mortar based on natural volcanic pozzolan for repair applications. *Journal of Building Engineering*, 25, 100785.
- [73] **Provis, J. L., & Van Deventer, J. S. (Eds.)**. (2013). *Alkali activated materials: state-of-the-art report, RILEM TC 224-AAM* (Vol. 13). Springer Science & Business Media.
- [74] **Raza, M. H., Zhong, R. Y., & Khan, M.** (2022). Recent advances and productivity analysis of 3D printed geopolymers. *Additive Manufacturing*, 102685.
- [75] **Gualtieri, M. L., Romagnoli, M., & Gualtieri, A. F.** (2015). Preparation of phosphoric acid-based geopolymer foams using limestone as pore forming agent—Thermal properties by in situ XRPD and Rietveld refinements. *Journal of the European Ceramic Society*, 35(11), 3167-3178.
- [76] **Rickard, W. D., Kealley, C. S., & Van Riessen, A.** (2015). Thermally induced microstructural changes in fly ash geopolymers: Experimental results and proposed model. *Journal of the American Ceramic Society*, 98(3), 929-939.
- [77] **Tochetto, G. A., Simão, L., de Oliveira, D., Hotza, D., & Immich, A. P. S.** (2022). Porous geopolymers as dye adsorbents: Review and perspectives. *Journal of Cleaner Production*, 133982.
- [78] **Maleki, A., Mohammad, M., Emdadi, Z., Asim, N., Azizi, M., & Safaei, J.** (2020). Adsorbent materials based on a geopolymer paste for dye removal from aqueous solutions. *Arabian Journal of Chemistry*, 13(1), 3017-3025.
- [79] **He, P., Cui, J., Wang, M., Fu, S., Yang, H., Sun, C., ... & Zhou, Y.** (2020). Interplay between storage temperature, medium and leaching kinetics of hazardous wastes in Metakaolin-based geopolymer. *Journal of hazardous materials*, 384, 121377.
- [80] **Innocentini, M. D., Botti, R. F., Bassi, P. M., Paschoalato, C. F., Flumignan, D. L., Franchin, G., & Colombo, P.** (2019). Lattice-shaped geopolymer catalyst for biodiesel synthesis fabricated by additive manufacturing. *Ceramics International*, 45(1), 1443-1446.
- [81] **Haris, A., Irhamsyah, A., Permatasari, A. D., Desa, S. S., Irfanita, R., & Wahyuni, S.** (2020). Pervaporation membrane based on laterite zeolite-geopolymer for ethanol-water separation. *Journal of Cleaner Production*, 249, 119413.
- [82] **Ban, C. C., Ken, P. W., & Ramli, M.** (2017). Mechanical and durability performance of novel self-activating geopolymer mortars. *Procedia engineering*, 171, 564-571.
- [83] **Jadhav, U. U., Lahoti, M., Chen, Z., Qiu, J., Cao, B., & Yang, E. H.** (2018). Viability of bacterial spores and crack healing in bacteria-containing geopolymer. *Construction and Building Materials*, 169, 716-723.
- [84] **Biondi, L., Perry, M., McAlorum, J., Vlachakis, C., & Hamilton, A.** (2020). Geopolymer-based moisture sensors for reinforced concrete health monitoring. *Sensors and Actuators B: Chemical*, 309, 127775.

- [85] **Haris, A., Irhamsyah, A., Permatasari, A. D., Desa, S. S., Irfanita, R., & Wahyuni, S.** (2020). Pervaporation membrane based on laterite zeolite-geopolymer for ethanol-water separation. *Journal of Cleaner Production*, 249, 119413.
- [86] **Dąbrowski, A.** (2001). Adsorption—from theory to practice. *Advances in colloid and interface science*, 93(1-3), 135-224.
- [87] **Bruch, L. W., Cole, M. W., & Zaremba, E.** (2007). *Physical adsorption: forces and phenomena*. Courier Dover Publications.
- [88] **Webb, P. A.** (2003). Introduction to chemical adsorption analytical techniques and their applications to catalysis. *Micromeritics Instrument Corp. Technical Publications*, 1-12.
- [89] **Yang, R. T.** (2003). *Adsorbents: fundamentals and applications*. John Wiley & Sons.
- [90] **Wiśniewska, M.** (2012). The temperature effect on the adsorption mechanism of polyacrylamide on the silica surface and its stability. *Applied Surface Science*, 258(7), 3094-3101.
- [91] **Ruthven, D. M.** (2000). Adsorption, fundamentals. *Kirk-Othmer Encyclopedia of Chemical Technology*.
- [92] **Onay, M., & Ozdemir, C. S.** (2021). Applications of dye adsorption in fixed bed column and modeling studies. *Desalination and Water Treatment*, 222(2021), 209-218.
- [93] **Sarici Ozdemir, Ç.** (2018). Adsorptive removal of methylene blue by fruit shell: Isotherm studies. *Fullerenes, Nanotubes and Carbon Nanostructures*, 26(9), 570-577.
- [94] **Ali, I.** (2012). New generation adsorbents for water treatment. *Chemical reviews*, 112(10), 5073-5091.
- [95] **Wang, J., & Guo, X.** (2020). Adsorption kinetic models: Physical meanings, applications, and solving methods. *Journal of Hazardous materials*, 390, 122156.
- [96] **Lagergren, S.** (1898). Zur theorie der sogenannten adsorption gelöster stoffe. *Kungliga svenska vetenskapsakademiens. Handlingar*, 24, 1-39.
- [97] **Revellame, E. D., Fortela, D. L., Sharp, W., Hernandez, R., & Zappi, M. E.** (2020). Adsorption kinetic modeling using pseudo-first order and pseudo-second order rate laws: A review. *Cleaner Engineering and Technology*, 1, 100032.
- [98] **Chien, S. H., & Clayton, W. R.** (1980). Application of Elovich equation to the kinetics of phosphate release and sorption in soils. *Soil Science Society of America Journal*, 44(2), 265-268.
- [99] **George, R., & Sugunan, S.** (2014). Kinetics of adsorption of lipase onto different mesoporous materials: Evaluation of Avrami model and leaching studies. *Journal of Molecular Catalysis B: Enzymatic*, 105, 26-32.

- [100] **Bellum, R.R., Muniraj, K. & Madduru, S.R.C.** (2020). Exploration of mechanical and durability characteristics of fly ash-GGBFS based green geopolymer concrete. *SN Appl. Sci.* 2, 919.
- [101] **Qu, F., Li, W., Tao, Z. et al.** (2020). High temperature resistance of fly ash/GGBFS-based geopolymer mortar with load-induced damage. *Mater Struct* 53, 111.
- [102] **Dehghani, A., Aslani, F., & Panah, N. G.** (2021). Effects of initial SiO₂/Al₂O₃ molar ratio and slag on fly ash-based ambient cured geopolymer properties. *Construction and Building Materials*, 293, 123527.
- [103] **Lahoti, M., Wong, K. K., Yang, E. H., & Tan, K. H.** (2018). Effects of Si/Al molar ratio on strength endurance and volume stability of metakaolin geopolymers subject to elevated temperature. *Ceramics International*, 44(5), 5726-5734.
- [104] **Sasui, S., Kim, G., Nam, J., Koyama, T., & Chansomsak, S.** (2019). Strength and microstructure of class-C fly ash and GGBS blend geopolymer activated in NaOH & NaOH+ Na₂SiO₃. *Materials*, 13(1), 59.
- [105] **Kuun Reddy, S. R., & Bala Murugan, S.** (2020). Experimental and microstructural assessment of ternary blended geopolymer concrete with different Na₂SiO₃-to-NaOH volume ratios. *Innovative Infrastructure Solutions*, 5(1), 1-14.
- [106] **Rehman, S. K. U., Imtiaz, L., Aslam, F., Khan, M. K., Haseeb, M., Javed, M. F., ... & Alabduljabbar, H.** (2020). Experimental investigation of NaOH and KOH mixture in SCBA-based geopolymer cement composite. *Materials*, 13(15), 3437.
- [107] **Inti, S., Sharma, M., & Tandon, V.** (2017). Influence of Curing on the Properties of Geopolymer Mortar Made with Low Molarity Sodium Hydroxide. *Transportation in Developing Economies*, 3(2), 1-8.
- [108] **Rajan, H. S., & Kathirvel, P.** (2021). Sustainable development of geopolymer binder using sodium silicate synthesized from agricultural waste. *Journal of Cleaner Production*, 286, 124959.
- [109] **Handayani, L., Aprilia, S., Rahmawati, C., Aulia, T. B., Ludvig, P., & Ahmad, J.** (2022). Sodium Silicate from Rice Husk Ash and Their Effects as Geopolymer Cement. *Polymers*, 14(14), 2920.
- [110] **Sitarz-Palczak, E., Kalembkiewicz, J., & Galas, D.** (2019). Comparative study on the characteristics of coal fly ash and biomass ash geopolymers. *Archives of Environmental Protection*, 45(1).
- [111] **Novikova, L. A., Bogdanov, D. S., Belchinskaya, L. I., Kolousek, D., Doushova, B., Lhotka, M., & Petukhova, G. A.** (2019). Adsorption of formaldehyde from aqueous solutions using metakaolin-based geopolymer sorbents. *Protection of Metals and Physical Chemistry of Surfaces*, 55(5), 864-871.
- [112] **Tian, Q., & Sasaki, K.** (2021). Structural characterizations of fly ash-based geopolymer after adsorption of various metal ions. *Environmental Technology*, 42(6), 941-951.

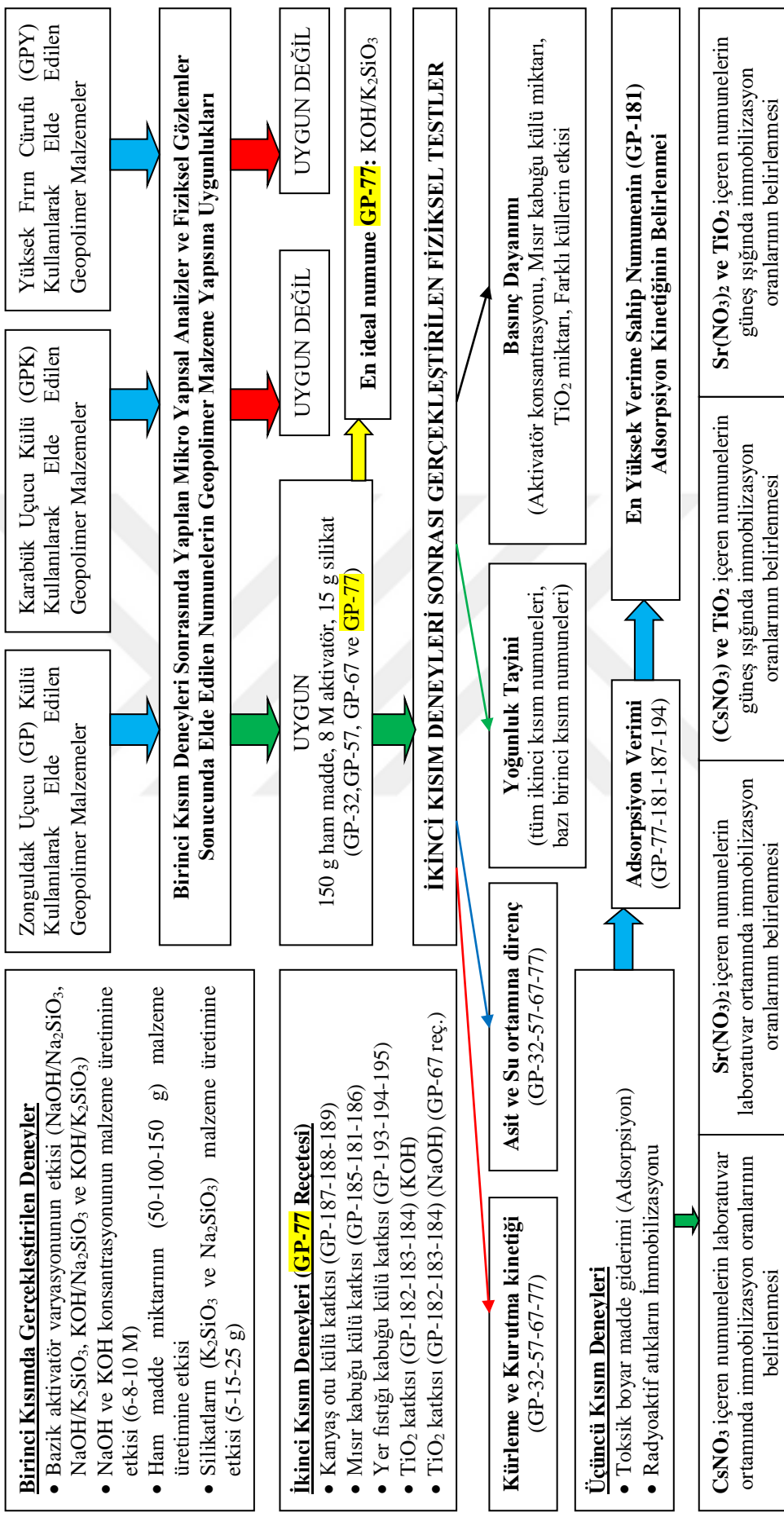
- [113] **Tan, Q., Li, N., Xu, Z., Chen, X., Peng, X., Shuai, Q., & Yao, Z.** (2019). Comparative performance of cement and metakaolin based-geopolymer blocks for strontium immobilization. *Journal of the Ceramic Society of Japan*, 127(1), 44-49.
- [114] **Xu, Z., Jiang, Z., Wu, D., Peng, X., Xu, Y., Li, N., ... & Li, P.** (2017). Immobilization of strontium-loaded zeolite A by metakaolin based-geopolymer. *Ceramics International*, 43(5), 4434-4439.
- [115] **Cuccia, V., Freire, C. B., & Ladeira, A. C. Q.** (2020). Radwaste oil immobilization in geopolymer after non-destructive treatment. *Progress in Nuclear Energy*, 122, 103246.
- [116] **Ukrainczyk, N., Muthu, M., Vogt, O., & Koenders, E.** (2019). Geopolymer, calcium aluminate, and Portland cement-based mortars: Comparing degradation using acetic acid. *Materials*, 12(19), 3115.
- [117] **Naghizadeh, A., Ekolu, S. O., & Musonda, I.** (2020). High temperature heat-treatment (HTHT) for partial mitigation of alkali attack in hardened fly ash geopolymer binders. *Case Studies in Construction Materials*, 12, e00341.
- [118] **Zhang, B., Guo, H., Deng, L., Fan, W., Yu, T., & Wang, Q.** (2020). Undehydrated kaolinite as materials for the preparation of geopolymer through phosphoric acid-activation. *Applied Clay Science*, 199, 105887.
- [119] **ASTM C618** (2003). *Standard specification for coal fly ash and raw or calcined natural pozzolan for use in concrete*. American society for testing and materials. West Conshohocken, PA, USA: ASTM International.
- [120] **TS EN 197-1** (2012). *Genel Çimentolar - Bileşim, Özellikler ve Uygunluk Kriterleri*, Türk Standartları Enstitüsü, Ankara.
- [121] **ASTM C109** (2016). *Standard test method for compressive strength of hydraulic cement mortars (using 2-in. or [50-mm] cube specimens)*. Annual Book of ASTM Standards, 4.
- [122] **He, P., Cui, J., Wang, M., Fu, S., Yang, H., Sun, C., ... & Zhou, Y.** (2020). Interplay between storage temperature, medium and leaching kinetics of hazardous wastes in Metakaolin-based geopolymer. *Journal of hazardous materials*, 384, 121377.
- [123] **Williams, R. P., & Van Riessen, A.** (2010). Determination of the reactive component of fly ashes for geopolymer production using XRF and XRD. *Fuel*, 89(12), 3683-3692.
- [124] **Wang, H., Li, H., & Yan, F.** (2005). Synthesis and mechanical properties of metakaolinite-based geopolymer. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 268(1-3), 1-6.
- [125] **Revathi, T., & Jeyalakshmi, R.** (2021). Fly ash–GGBS geopolymer in boron environment: a study on rheology and microstructure by ATR FT-IR and MAS NMR. *Construction and Building Materials*, 267, 120965.
- [126] **Rosas-Casarez, C. A., Arredondo-Rea, S. P., & Acuña-Agüero, O. H.** (2014). Experimental study of XRD, FTIR and TGA techniques in geopolymeric materials. *Int. J. Adv. Comput. Sci. Appl*, 4(4), 221-226.

- [127] **Aredes, F. G. M., Campos, T. M. B., Machado, J. P. B., Sakane, K. K., Thim, G. P., & Brunelli, D. D.** (2015). Effect of cure temperature on the formation of metakaolinite-based geopolymer. *Ceramics International*, *41*(6), 7302-7311.
- [128] **Guo, X., & Pan, X.** (2018). Mechanical properties and mechanisms of fiber reinforced fly ash–steel slag based geopolymer mortar. *Construction and Building Materials*, *179*, 633-641.
- [129] **Ryu, G. S., Lee, Y. B., Koh, K. T., & Chung, Y. S.** (2013). The mechanical properties of fly ash-based geopolymer concrete with alkaline activators. *Construction and building materials*, *47*, 409-418.
- [130] **Nazari, A., Maghsoudpour, A., & Sanjayan, J. G.** (2014). Characteristics of boroaluminosilicate geopolymers. *Construction and Building Materials*, *70*, 262-268.
- [131] **Vijai, K., Kumutha, R., & Vishnuram, B. G.** (2010). Effect of types of curing on strength of geopolymer concrete. *International Journal of the Physical Sciences*, *5*(9), 1419-1423.
- [132] **Somna, K., Jaturapitakkul, C., Kajitvichyanukul, P., & Chindaprasirt, P.** (2011). NaOH-activated ground fly ash geopolymer cured at ambient temperature. *Fuel*, *90*(6), 2118-2124.
- [133] **Görhan, G., & Kürklü, G.** (2014). The influence of the NaOH solution on the properties of the fly ash-based geopolymer mortar cured at different temperatures. *Composites part b: engineering*, *58*, 371-377.
- [134] **Singh, B., Ishwarya, G., Gupta, M., & Bhattacharyya, S. K.** (2015). Geopolymer concrete: A review of some recent developments. *Construction and building materials*, *85*, 78-90.
- [135] **Rovnaník, P.** (2010). Effect of curing temperature on the development of hard structure of metakaolin-based geopolymer. *Construction and building materials*, *24*(7), 1176-1183.
- [136] **Pham, T. M., Lim, Y. Y., & Malekzadeh, M.** (2021). Effect of pre-treatment methods of crumb rubber on strength, permeability and acid attack resistance of rubberised geopolymer concrete. *Journal of Building Engineering*, *41*, 102448.
- [137] **Longhi, M. A., Rodriguez, E. D., Zhang, Z., Torres, S. M., Barata, M. S., & Kirchheim, A. P.** (2022). Kaolin mining waste to produce geopolymers: Physicomechanical properties and susceptibility to efflorescence formation. *Case Studies in Construction Materials*, *16*, e00846.
- [138] **Ruan, S., Yan, D., Chen, S., Jiang, F., & Shi, W.** (2022). Process and mechanisms of multi-stage water sorptivity in hydrophobic geopolymers incorporating polydimethylsiloxane. *Cement and Concrete Composites*, *128*, 104460.
- [139] **TS EN 206-1** (2002). *Beton, Özellik, Performans, İmalat, Uygunluk*, Türk Standartları Enstitüsü, Ankara
- [140] **Guo, X., Shi, H., & Dick, W. A.** (2010). Compressive strength and microstructural characteristics of class C fly ash geopolymer. *Cement and Concrete Composites*, *32*(2), 142-147.

- [141] **Ng, C., Alengaram, U. J., Wong, L. S., Mo, K. H., Jumaat, M. Z., & Ramesh, S.** (2018). A review on microstructural study and compressive strength of geopolymer mortar, paste and concrete. *Construction and Building Materials*, 186, 550-576.
- [142] **Ahmed, H. U., Mohammed, A. S., Faraj, R. H., Qaidi, S. M., & Mohammed, A. A.** (2022). Compressive strength of geopolymer concrete modified with nano-silica: Experimental and modeling investigations. *Case Studies in Construction Materials*, 16, e01036.
- [143] **Qaidi, S., Najm, H. M., Abed, S. M., Ahmed, H. U., Al Dughaiishi, H., Al Lawati, J., ... & Milad, A.** (2022). Fly ash-based geopolymer composites: A review of the compressive strength and microstructure analysis. *Materials*, 15(20), 7098.
- [144] **Thomas, B. S., Yang, J., Mo, K. H., Abdalla, J. A., Hawileh, R. A., & Ariyachandra, E.** (2021). Biomass ashes from agricultural wastes as supplementary cementitious materials or aggregate replacement in cement/geopolymer concrete: A comprehensive review. *Journal of Building Engineering*, 40, 102332.
- [145] **Jamil, N. H., Abdullah, M. M. A. B., Pa, F. C., Mohamad, H., Ibrahim, W. M. A. W., & Chaiprapa, J.** (2020). Influences of SiO₂, Al₂O₃, CaO and MgO in phase transformation of sintered kaolin-ground granulated blast furnace slag geopolymer. *Journal of Materials Research and Technology*, 9(6), 14922-14932.
- [146] **Alardhi, S. M., Fiyadh, S. S., Salman, A. D., & Adelikhah, M.** (2023). Prediction of methyl orange dye (MO) adsorption using activated carbon with an artificial neural network optimization modeling. *Heliyon*, e12888.
- [147] **Dolatabadi, M., Mehrabpour, M., Esfandyari, M., & Ahmadzadeh, S.** (2020). Adsorption of tetracycline antibiotic onto modified zeolite: Experimental investigation and modeling. *MethodsX*, 7, 100885.
- [148] **Kuenzel, C., Cisneros, J. F., Neville, T. P., Vandeperre, L. J., Simons, S. J. R., Bensted, J., & Cheeseman, C. R.** (2015). Encapsulation of Cs/Sr contaminated clinoptilolite in geopolymers produced from metakaolin. *Journal of Nuclear Materials*, 466, 94-99.
- [149] **Maiti, M., Sarkar, M., Maiti, S., Malik, M. A., & Xu, S.** (2020). Modification of geopolymer with size controlled TiO₂ nanoparticle for enhanced durability and catalytic dye degradation under UV light. *Journal of Cleaner Production*, 255, 120183.

EKLER

EK A: Deneysel Akış Diyagramı



Şekil A.1 : Tez çalışması kapsamında elde edilen numuneler ve uygulamalarının akış diyagramı.

ÖZGEÇMİŞ

Ad-Soyad : Muhammed ONAY

ÖĞRENİM DURUMU:

- **Lisans** : 2014, Fırat Üniversitesi, Mühendislik Fakültesi, Kimya Mühendisliği Bölümü
- **Yüksek Lisans** : 2018, İnönü Üniversitesi, Kimya Mühendisliği Anabilim Dalı

MESLEKİ DENEYİM:

- **2020-Devam** : Malatya Turgut Özal Üniversitesi, Mühendislik ve Doğa Bilimleri Fakültesi, Mühendislik Temel Bilimleri Bölümünde, Araştırma Görevlisi olarak görev yapmaktadır.

BİLİMSEL FAALİYETLER:

- **Onay, M., & Ozdemir, C. S.** (2022). Equilibrium Studies for Dye Adsorption onto Red Clay. *NATURENGS*, 3(2), 36-45.
- **Onay, M., & Ozdemir, C. S.** (2021). Applications of dye adsorption in fixed bed column and modeling studies. *Desalination and Water Treatment*, 222(2021), 209-218.
- **Ozdemir, C. S., & Onay, M.** (2018). Determination of Parameters in Fixed Bed with Industrial Waste Used as Adsorbent. *Journal of Physical Chemistry and Functional Materials*, 1(1), 27-35.
- **Ozdemir, C. S., Karadaş, K., & Onay, M.** (2019). Fıstık kabuğundan elde edilen fotokatalizörlerin yüzey özelliklerinin incelenmesi, ISPEC ULUSLARARASI MÜHENDİSLİK VE FEN BİLİMLERİ KONGRESİ, 3-4 Mayıs, Malatya.
- **Onay, M., & Ozdemir, C. S.** (2017). Determination of optimum conditions in fixed bed dye adsorption onto fly ash, International Conference on Advances and Innovations in Engineering (ICAIE), 10-12 Mayıs, Elazığ.

- **Ozdemir, C. S., & Onay, M.** (2018). Effect of solution pH on fixed bed adsorption studies, International Conference on Physical Chemistry and Functional Materials (PCFM'18), 19-21 Haziran, Elazığ.
- **Onay, M., & Ozdemir, C. S.** (2019). Biyoyakıt üretiminde asit ve baz katalizörlerin karşılaştırması, 1. Uluslararası Malatya Uygulamalı Bilimler Kongresi, 20-22 Aralık, Malatya.
- **Ozdemir, C. S., & Onay, M.** (2019). Modifiye edilmiş kayısı çekirdeği kabuğunun malahit yeşili adsorpsiyonda etkisi, 1. Uluslararası Malatya Uygulamalı Bilimler Kongresi, 20-22 Aralık, Malatya.
- **Ozdemir, C. S., & Onay, M.** (2019). Boya Giderim Kinetiğinin İncelenmesi, ISPEC ULUSLARARASI MÜHENDİSLİK VE FEN BİLİMLERİ KONGRESİ, 3-4 Mayıs, Malatya.
- **Onay, M., & Ozdemir, C. S.** (2017). Usability of Composite Materials in Fixed Bed, 8th International Advanced Technologies Symposium, 19-22 Ekim, Elazığ.
- **Ozdemir, C. S., & Onay, M.** (2017). Adsorption of malachite green from aqueous solution onto clay, International Conference on Advances and Innovations in Engineering (ICAIE), 10-12 Mayıs, Elazığ.