

3430

T. C.  
EGE ÜNİVERSİTESİ  
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ  
KİMYA MÜHENDİSLİĞİ ANABİLİM DALI

# NEM ÇEKİCİ SİLİKAJEL ÜRETİM PROSESİNİN GELİŞTİRİLMESİ VE PİLOT TESİS TASARIMI

YÜKSEK LİSANS TEZİ

HAZIRLAYAN : HAYRİ BALTACIOĞLU  
DANIŞMAN : Doç. Dr. DEVRİM BALKÖSE

T. C.  
Yükseköğretim Kurulu  
Dokümantasyon Merkezi

Bornova — İZMİR

1988

## ÖNSÖZ

Bu çalışma 050 Nolu "Nem Çekici Silikajel Üretim Prosesinin Geliştirilmesi ve Pilot Tesis Tasarımı" adlı Y.Ö.K. projesinin bir parçası olarak yapılmıştır.

Çalışma, su camı ve sülfürik asitten nem çekici silikajel üretimi için optimum çalışma koşullarının araştırılmasına dayanır.

Bana bu konuda çalışma olanakları sağlayan ve gerek moral anlamda çalışma gücü veren gerekse tüm çalışma boyunca beni yönlendiren tez yöneticim sayın Doç.Dr. Devrim Balköse'ye çok teşekkür ederim.

Ocak - 1988, İzmir

Hayri Baltacıoğlu

## İÇİNDEKİLER

Önsöz.....	i
İçindekiler.....	ii
Notasyon .....	iv
Abstrakt.....	vii
I GİRİŞ .....	1
I.1.Silikahidrosolün Hazırlanması.....	2
I.1.1.Reaktanlar.....	2
I.1.2.Karıştırma .....	3
I.1.3:Jelleşme.....	3
I.1.4.Jel Oluşum Mekanizması.....	5
I.1.5.Jel Oluşum Süresi Ve Etki Eden Etmenler.....	6
I.1.6.Silisilik Asitlerin Polimerizasyonu.....	14
I.1.7.Reaksiyon Hızlarının Ölçülmesi.....	16
I.1.8.Alfa,Beta,Gama Silisilik Asitler.....	18
I.2.Silikahidrojelün Yıkınması.....	21
I.2.1.Silikahidrojelün Yıkınmasına İlişkin Çalışmalar...23	
I.3.Silikahidrojelün Kurutulması.....	26
I.3.1.Nem İçeren Katının Kurutulması.....	26
I.3.2.Silikahidrojelün Kuruma Mekanizması.....	28
I.3.3.Silikahidrojelün Kurutulmasına İlişkin Çalışmalar.28	
I.4.Silikahidrojelün Özellikleri.....	30
I.5.Pilot Tesis Tasarımında Önemli Değişkenler.....	36
I.5.1.Sürekli Karıştırmada Reaktör Tasarımı.....	36
I.5.2.Pervaneler Ve Güç Tüketimi.....	37
I.5.3.Pompalar Ve Güç Tüketimi.....	38
I.5.4.Yıkama Prosesinin Tasarımı.....	39
I.5.5.Kurutucu Tasarımı .....	39
II. MATERYAL VE METOT.....	40
II.1.Kullanılan Kimyasal Maddeler.....	40
II.2.Kullanılan Alet Ve Cihazlar.....	40
II.3.Deneylerin Yapılışı.....	40
II.3.1.Polimerleşme Kinetiği.....	40

II.3.2.Karıştırma.....	41
II.3.2.1.Kesikli Sistem.....	41
II.3.2.2.Hidrosolun Sürekli Sistemde Hazırlanması.....	43
II.3.3.Jelleşme.....	45
II.3.4.Silikahidrojellerin Yıkanması.....	45
II.3.4.1.Yıkama Kinetiği.....	45
II.3.4.2.Hidrojellerin Yıkanması.....	46
II.3.5.Silikahidrojellerin Kurutulması.....	47
II.3.5.1.Kuruma Kinetiği.....	47
II.3.5.2.Hidrojellerin Kurutulması.....	47
II.3.6.Silikajellerin Yüzey Alanının Ölçülmesi.....	47
II.3.7.Silikajellerin Nem Çekiciliği.....	48
III. DENEYSEL BULGULAR VE TARTIŞMA.....	49
III.1. Polimerleşme Kinetiği.....	49
III.2.Karıştırma.....	58
III.3.Jelleşme Süresi.....	63
III.4.Yıkama.....	65
III.4.1.Yıkama Kinetiği.....	65
III.4.2.Hidrojellerin Yıkanması.....	77
III.5.Kurutma.....	79
III.6.Yüzey Alanının PH <sup>*</sup> la Değişimi.....	86
III.7.Nem Çekiciliğin PH <sup>*</sup> la Değişimi.....	89
III.8.Filot Proses Tesis Tasarımı.....	91
III.8.1.Yatışkın Hal Reaktör Tasarımı.....	91
III.8.2.Reaktör Etrafında Enerji Dengesi.....	93
III.8.3.Karıştırıcıda Ve Pompalarda Güç Tüketimi.....	94
III.8.4.Yıkama.....	94
III.8.5.Kurutucuda Enerji Tüketimi.....	96
III.8.6.Silikajel Üretiminde Değişken Giderler.....	98
III.8.7.Silikajel Üretiminde İlk Yatırım Giderleri.....	98
SONUÇ VE ONERİLER.....	100
ÖZET.....	101
KAYNAKLAR.....	103
EK 1 .....	107
EK 2 .....	120

## NOTASYON

- $a$  : Küresel taneciklerin yarıçapı (m)  
 $A$  : Katının suyunun buharlaştığı alan ( $m^2$ )  
 $A_1$  : Örnek için okunan absorbands değeri  
 $A_{son} = A_0$  : Su camı için okunan son absorbands değeri  
 $A_t$  : Su camı için okunan her t dakikasındaki absorbands değeri  
 $C$  : Herhangi bir andaki monomer derişimi (mol/lt)  
 $C_{A0}$  : A nın başlangıçtaki derişimi (mol/lt)  
 $C_{A1}$  : t süre sonraki derişim (mol/lt)  
 $C_1^-$  : Herhangi bir andaki yayınan madde derişimi (mol/lt)  
 $C_1^0$  : Başlangıçta jeldeki yayınan madde derişimi (mol/lt)  
 $C_p$  : Özgül ısı (kj/kg  $^{\circ}C$ )  
 $C_r$  : Silika molibdatla t anında reaksiyona giren silika kesri  
 $C_t$  :  $t=0$  da sistemde bulunan toplam silika  
 $C_2, C_1$  : Pervane tipine bağlı sabitler  
 $C_0$  : Başlangıçtaki monomer derişimi (mol/lt)  
 $C_1$  : Yıkama suyundaki madde derişimi (mol/lt)  
 $D$  : Boru çapı (m) (peker, 1983)  
 $D$  : Difüzyon katsayısı ( $m^2/s$ ) (Crank, 1975)  
 $D_a$  : Pervane çapı (m)  
 $D_{AB}$  : Difüzyon katsayısı ( $m^2/s$ )  
 $D_{Aef}$  : Etkin difüzyon katsayısı ( $m^2/s$ ).  
 $E$  : Aktifleşme enerjisi (cal/g-iyon)  
 $F_{A0}$  : Reaktöre giren A (mol/zaman)  
 $g$  : Yerçekimi ivmesi ( $m/s^2$ )  
 $\Delta H$  : Toplam basınç kaybı ( $m^2/s^2$ ) (Peker, 1983)  
 $h_f$  : Sürtünme kaybı ( $m^2/s^2$ )  
 $H_1$  : Kurutucuya giren havanın 1 kg, başına içerdiği nem  $\frac{kg \text{ nem}}{kg \text{ kuruhava}}$   
 $H_2$  : Kurutucudan çıkan havanın 1kg, başına içerdiği nem  $\frac{kg \text{ nem}}{kg \text{ kuruhava}}$   
 $\Delta H_1, \Delta H_2$  : Değişik derişimlerdeki sulfurik asit entalpileri (kj/kg)  
 $\Delta H_{sey}$  : Seyrelme ısısı (kj/kg)  
 $k_{III}$  : Monomer için hız sabiti ( $dek^{-1}$ )  
 $k_p$  : Polimer için hız sabiti ( $dek^{-1}$ )

- $k_x$  : Reaksiyon hız sabiti ( $\text{dak}^{-1}$ )  
 $k_t$  : Yayınma yolu düzeltme faktörü  
 $l$  : Boru boyu (m) (Peker,1983)  
 $L_s$  : katı miktarı (kg)  
 $L$  : Levha için tabaka kalınlığı cm, (Treybal,1955)  
 $M_t$  : t anında yayınan miktar (kg)  
 $M_\infty$  : Sonsuz süre sonunda yayınan miktar (kg)  
 $M_0$  : t=0 da sistemde bulunan toplam monomer  
 $m$  : hava debisi (kg/s)  
 $m'$  : Buharlaşan suyun debisi (kg/s)  
 $\dot{m}$  : akışkanın debisi (kg/s)  
 $N$  : Kuruma hızı ( $\text{kg nem/m}^2 \text{ s}$ ) (Treybal,1955)  
 $N_A$  : Kararlı halde yayınma akısı ( $\text{mol/m}^2 \text{ s}$ )  
 $N$  : Pervane devri ( $\text{s}^{-1}$ ) (Peker,1983)  
 $P$  : Pervane tarafından çekilen güç (W)  
 $P_B$  : Pompaaya dışarıdan verilen güç (B.G)  
 $\Delta P$  : Basınç farkı  
 $P_0$  : t=0 da sistemde bulunan toplam monomer  
 $P_x$  : Monomer veya dimer derişimi (mol/lt)  
 $Q$  : Alınan yada verilen ısı (kj/saat)  
 $q_n$  : Sabit (Crank,1975)  
 $r$  : Küresel taneciklerin yarıçapı (m)  
 $R$  : gaz sabiti  
 $r_A$  : A cinsinden reaksiyon hızı  
 $\Delta T$  : Sıcaklık farkı ( $^{\circ}\text{C}$ )  
 $T$  : Sıcaklık ( $^{\circ}\text{C}$ )  
 $t$  : zaman (S) (Crank,1975)  
 $\theta$  : Zaman (S)(Treybal,1955)  
 $\tau$  : Zaman (S)(Shamrikov ve arkadaşları,1983)  
 $X_1$  : Kurumaya başladığı andaki lkg katının içerdiği nem  $\frac{\text{kg nem}}{\text{kg kuru katı}}$   
 $X_2$  : Kurumanın sona erdiği nem  $\frac{\text{kg nem}}{\text{kg kuru katı}}$   
 $X_c$  : Kritik nem  $\frac{\text{kg nem}}{\text{kg kuru katı}}$   
 $X_E$  : Denge nemi  $\frac{\text{kg nem}}{\text{kg kuru katı}}$

- $X_A$  : Reaktörde A cinsinden dönüşme  
 $V$  : Akışkanın hızı (m/S)  
 $V$  : Reaktör hacmi ( $m^3$ )  
 $\Delta z$  : Yükseklik farkı (m)  
 $\alpha$  : Çözelti hacminin katı hacmine oranı  
 $\epsilon$  : Boşluk hacim kesri  
 $\eta$  : Pompa verimi  
 $\rho$  : Yoğunluk ( $kg/m^3$ )  
 $\mu$  : Viskozite ( $kg/m.s$ )  
 $\emptyset$  : Sabit



## ABSTRAKT

Nem çekici silikajel üretimi deneysel çalışmalar sonunda optimum işletme koşulları; su camı ve asitin pH 1'de karıştırılması, 2 cm lik küplere bölünmüş hidrojelın dokuz kez kendi hacmine eşit su ile yıkanması ve 100°C da kurutulması olarak bulunmuştur. Farklı jelleşme pH'larında hazırlanan silikahidrojellerde proton ve suyun etkin difüzyon katsayıları  $1 \times 10^{-8}$  -  $1 \times 10^{-9}$  m<sup>2</sup>/s ve 2.20 -  $2.45 \times 10^{-9}$  m<sup>2</sup>/s arasında bulunmuştur.

## ABSTRACT

Mixing of water glass and sulfuric acid at pH 1, gelation for one night, washing the hydrogel disintegrated into 2 cm pieces nine times with equal gel volumes of water and drying at 100°C were found as the result of the experimental work as the optimum operating condition for the production of silicagel for adsorption of water vapor from air. The effective diffusion coefficient of proton and water in silicahydrogels prepared at different gelation pH were determined to be between  $1 \times 10^{-8}$  -  $1 \times 10^{-9}$  m<sup>2</sup>/s and  $2.20 \times 10^{-9}$  -  $2.45 \times 10^{-9}$  m<sup>2</sup>/s respectively.



## I. GİRİŞ

Bu çalışmanın ilk aşamasında, silikahidrosolünün jelleşme süresi ve jelleşme süresine etki eden etmenlerin, silisik asidin polimerizasyon hızının, protonun ve suyun difüzyon katsayılarınının saptanması, ikinci aşamada ise elde edilen silikajellerin özelliklerindeki saptanarak en uygun silikajel üretimi için pilot tesis tasarımı amaçlanmıştır.

Silikajelin çok geniş bir kullanım alanı vardır. En önemli kullanım alanı ise gazların ve sıvıların dinamik koşullarda kurutulmasıdır. Nem çekici silikajel, kuvvetli alkali maddeleri ve ayrıca hidroflorik asit dışındaki tüm sıvıları kurutmada kullanılır. Ayrıca yapıştırıcılarda koyulaştırıcı, boyalarda viskozite ayarlayıcı, tekstil endüstrisinde köpük kesici, plastiklerde kuvvetlendirici, kimya endüstrisinde katalizör taşıyıcı olarak ve kağıt endüstrisinde karbonsuz kopya yapımında kullanılır.

Silikajel, II. dünya savaşının ilk yıllarında silahlı kuvvetlerde korozyona ve küfe karşı ambalajlama işleminde de kullanılmıştır.

Silikajel çift camlı pencerelerde de kullanılmaktadır. İki cam arasına az miktarda silikajel konulması suyun buhar basıncını düşürür ve pencere kullanıldığı sürece suyun buhar basıncını düşük tutacağı için sis oluşumunu önler. Ayrıca çiçek kulüplerinde, çiçekleri kurutmak ve aylarca saklamak içinde kullanılır.

**T. C.**  
**Yükseköğretim Kurulu**  
**Dokümantasyon Merkezi**

### I-1 Silikahidrosolün Hazırlanması

Silikajel, alkali metal silikat ve asit verici maddelerin karıştırılmasıyla hazırlanır. Silikajelin özellikleri, jelleştiği veya çöktürüldüğü, yıkandığı ve kurutulduğu koşullara bağlı olarak değişir. Farklı özelliklere sahip çok sayıda silikajel bu üç ana adımın değiştirilmesiyle elde edilir.

Silikahidrosol, alkali metal tuzu ve silisilik asidin kararsız bir çözeltisidir. Silisilik asit polimerleşkin molekül ağırlığı artışı, jel oluşum noktasına kadar hidrosolün viskozitesini artırır(Winyall,1984).

#### 1.1 Reaktanlar

Silikajel, alkali metal silikat ve asitten hazırlanır. Genellikle alkali metal silikat su camıdır.Su camı ise sodyum silikatın sulu çözeltisidir. Bunun yanında az da olsa potasyum silikatta kullanılır(Winyall, 1984).

Su camının bileşimi  $\text{SiO}_2/\text{Na}_2\text{O}$  oranına göre değişir.  $\text{SiO}_2/\text{Na}_2\text{O}$  oranının 1 veya daha küçük olduğu su camlarında monomerik silikat iyonu, dimerik silikat iyonu ve polimerik silikat iyonu miselleri bulunur. Polimerik misel derişimi artan  $\text{SiO}_2/\text{Na}_2\text{O}$  derişimi ile artar. Her oran ve derişimde monomerik ve polimerik silikat iyonları arasında dinamik bir denge vardır. Ekonomik sebeplerden dolayı  $\text{SiO}_2/\text{Na}_2\text{O}$  molar oranı 3.36 olan su camı silikajel üretiminde kullanılır.

Ticari su camları, yoğunluk, ağırlık kesri, alkali kesri, silika kesri ve viskozite özelliklerinin herhangi ikisinin belirtilmesi ile tanımlanır(Weldes,1969).

Silikajel, asit gazları, asit tuzları, organik asitler, mineral asitlerle hazırlanabilir Bunların örnekleri  $\text{H}_2\text{SO}_4$ ,  $\text{HCl}$ ,  $\text{CH}_3\text{COOH}$ ,  $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ ,  $\text{NH}_4\text{NO}_3$ ,  $\text{CO}_2$ ,  $\text{SO}_2$  ve stearik asittir.Normal olarak  $\text{H}_2\text{SO}_4$  kullanılmasına karşın ticari amaçlara uygun olarak  $\text{CO}_2$  ve  $\text{HCl}$ 'de kullanılabilir. Jelleşme için kullanılan asit tipi silikajelin özelliklerine çok az etki ettiginden asit seçimi ekonomik nedenlerle yapılır (Winyall,1984).

T. C.

Yükseköğretim Kurulu  
Dokümantasyon Merkezi

## 1-2. Karıştırma

Sulfürik asit ve sodyum silikatın en etkin biçimde karıştırılması lüle tipi karıştırıcılarda veya güçlü mekanik karıştırma ile sağlanan sürekli sistemlerde yapılır. Kesikli sistemlerde asidik hidrosol elde edilmek istendiğinde karıştırılan aside sodyum silikat eklenir. Bazik sol çözeltisi isteniyorsa karıştırılan sodyum silikata asit ilave edilir. Sürekli sistemlerin tercih nedeni kesikli sistemlerden daha homojen ve daha yüksek silika derişimine sahip silikahidro-jellerin elde edilmesidir.

Sürekli sistemde silikajel elde etmek pek çok araştırmacı için araştırma konusu olmuştur. Groth ve Hussman (1977) silikajelin sürekli şartlarda hazırlanmasını sağlayan bir çalışma yapmışlardır. Bu çalışmada jel sonsuz yatay bandlarda oluşturulur ve kurutulur. Tamburla döndürülen bandların üzerinde bulunan jeller kendiliğinden onu izleyen bandın üzerine düşmekte ve son banddan yıkama ünitesine gitmektedir.

Jaccard'da (1977) metalik olmayan maddelerin, özellikle polimerize ve kristalize olabilenlerin, sıvı fazdan katı faza geçiş işlemini araştırmıştır. Araştırmaları sonunda yatay eksende dönen bir silindirik aygıt düşünmüştür.

Yine Gerhard, Heinz ve Wilhelm (1975) yaptıkları bir çalışmada sürekli sistemde küresel tanecikli hidrojeller elde etmişlerdir. Silikahidrosolün oluşumu için sürekli akış, karıştırma bölgesinin üst kısmından asidi, alt kısmının çeşitli noktalarından su camının verilmesiyle gerçekleşir. Daha sonra bu karışım atmosfere püskürtülerek küresel hidrojeller elde edilir. Değişik lüleler kullanılarak istenilen tane boyutunda silikahidro-jeller elde edilir.

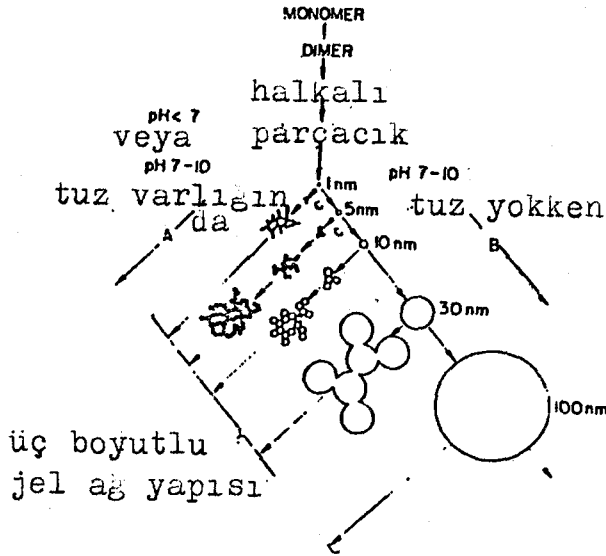
Sasaki ve arkadaşları(1984) ise kesikli tipte bir mekanik bir karıştırıcıyla silikahidrosolünü elde etmişlerdir.

## 1.3 Jelleşme

Sulfürik asit ve sodyum silikatın karıştırılmasıyla

sodyum oksitin nötralizasyonu ve silika misellerinin kondenzasyonu olur. Kondenzasyon polimerizasyonunda küçük moleküller kondenzasyon reaksiyonu ile bağlanarak polimer moleküllerini meydana getirirler. Polikondenzasyon ile ilgili tüm düşüncelerin temelini oluşturan ana özellik, onun adım adım ilerleyen bir reaksiyon karakterine sahip olmasıdır. Polikondenzasyon reaksiyonuna katılan monomer moleküllerinde fonksiyonlu grup sayısı molekül başına ikiden fazla ise üç boyutlu bir polimerik yapı elde edilir ve dallanma görülür. Polimer moleküllerindeki bir veya birkaç dal öbür polimer moleküllerine çapraz bağlarla bağlanır ve ağ yapısına yol açar. Üç boyutlu polimerizasyon, reaksiyon karışımında sonsuz bir polimer şebekesinin meydana gelmesi bir başka deyişle bir jel oluşmasıyla sonuçlanır (Baysal, 1981). Silikajel de ise farklı bir jelleşme mekanizması vardır.

Şekil 1'de silikanın polimerizasyon davranışı şematik olarak gösterilmiştir. Burada bazik çözeltide küresel tanecikler, tanecik boyutları artarak üç boyutlu bir jel haline gelirken asidik veya tuz çözeltisi varlığında taneciklerin, tane boyutu artmadan birleşerek jelleştiği görülmektedir (İler, 1979).



Şekil 1 : Silikanın polimerizasyon davranışı

#### 1.4. Jel Oluşum Mekanizması

Tüm sodyum silikatları silikahidrosolüne nötröle edilirlir. Silika monomerleri, dimer, trimer ve daha yüksek polimerleri hızla yüksek molekül ağırlığındaki miselleri oluşturur. Işık saçılmasıyla ölçülen misellerin molekül ağırlığı yaklaşık 6 milyona ulaştığında jel oluşur. Jelleşmeden sonrada polimerizasyon devam eder. Silikahidrosolün jelleşme noktasını saptamak için pekçok metot kullanılır. En basitlerinden biri, beher egildiginde beherden solün akmadığı noktanın gözlenmesidir.

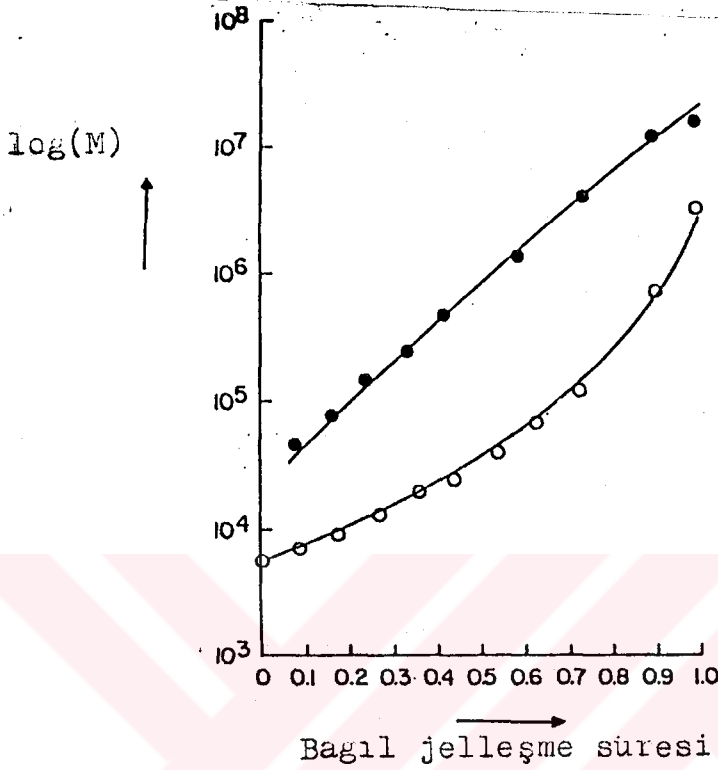
Silika miselleri bu durumda hidrojen bağları ile su molekullerine bağlanır. ( -Si-OH.....<sup>H</sup>OH.....<sup>H</sup>O-Si- )

Su, hidrojel kurutulurken uzaklaştırılır ve hidrojen bağları iki silanol arasında oluşur. Genellikle kuruma boyunca su uzaklaştırıldığı için siloksan bağları oluşur.



Polimerizasyonun bu ardışıklığı, ışık saçılması verilerinden polimerizasyon süresince molekül ağırlığının hesaplanmasıyla saptanır (Winyall,1984).

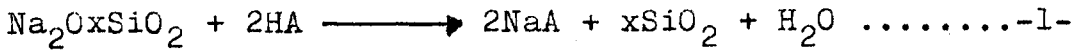
Bazik silikahidrojellerin miselleri asidik hidrojellerden daha büyüktür. Asidik koşullar altındaki miseller uzun zincirler halinde bir araya gelirler. Bu zincirler üzerindeki yukler misellerin zincirin sonuna bağlanmasını sağlar. Bu zincirlerin oldukça uzun olmasından dolayı çapraz bağlar oluşur. Şekil 2 asidik ve bazik hidrosollerin molekül ağırlıklarının jelleşme zamanına göre değişimini gösterir. Bu şekil asidik hidrosellerin jelleşmesinin 6 milyon molekül ağırlığında, bazik hidrosollerin jelleşmesinin 15 milyon molekül ağırlığında gerçekleştiğini gösterir. Deneysel veriler silika hidrojellerinde çok sayıda hidrojen bağları ve birkaç tane siloksan bağı olduğunu gösterir. Jelleşmeden hemen önce hidrojelin elastisite ölçümleri yaklaşık 2000 molekül ağırlığında bir çapraz bağlar bulunan lineer polimerik yapı olduğunu göstermiştir.



Şekil 2: Silika hidrosolünün molekül ağırlığının zamanla değişimi. (○:pH 1.5'ta %120 nötralize edilmiş %15 SiO<sub>2</sub> içeren asit hidrosolu, ●:pH 10.6'da %36 nötralize edilmiş %10 SiO<sub>2</sub> içeren bazik hidrosol)

#### 1-5. Jel Oluşum Süresi Ve Etki Eden Etmenler

Su camının herhangi bir asitle nötrleşme reaksiyonu aşağıda görüldüğü gibidir.



Reaksiyon uygun koşullar altında şeffaf, renksiz bir hidrosol oluşturur.

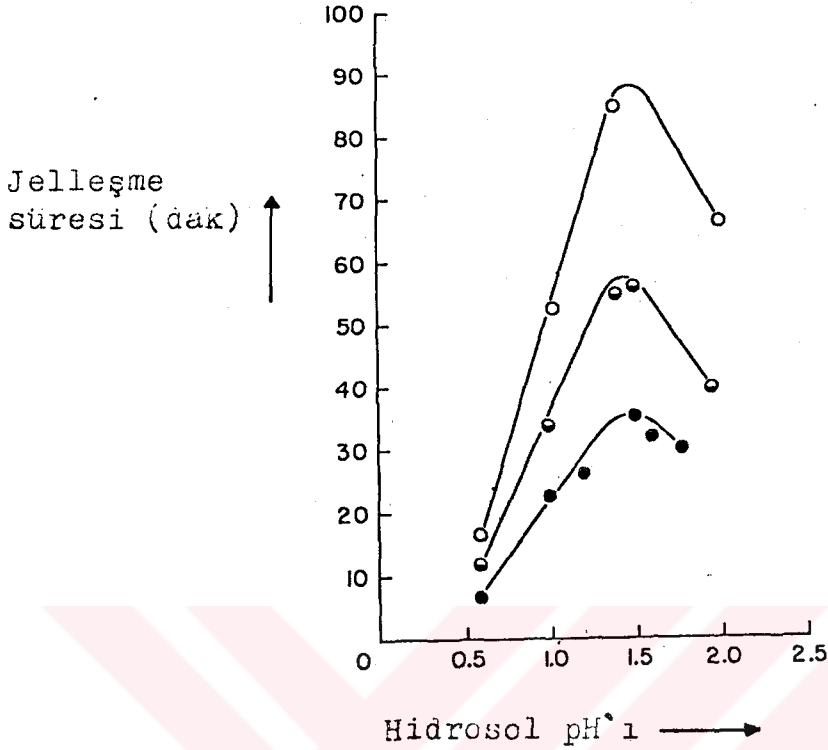
Jelleşme süresi, asit ve su camının karıştırıldığı an ile hidrosolün içinde bulunduğu kap eğildiğinde akamaz duruma geldiği an arasındaki zaman farkıdır. Silika derişimi, sıcaklık, pH ve çözünürlüğün eklenmesiyle jelleşme süresi değişir. Şekil 3'de görüldüğü gibi silika derişimiyle jelleşme süresi arasında ters bir orantı vardır. Silika derişimi ar-

tarken iyi karıştırma daha önemli olur. Kötü bir karıştırma bulanık ve homojen olmayan jel oluşturur(Winyall,1984).

Hidrojel pH, jelleşme süresini ve silikajelin diğer özelliklerini büyük oranda etkiler. Derişik hidrosolde jelleşme anındadır. Bu nedenle jelleşme süreleri ile ilgili tüm yayınlar seyreltik çözeltiler için kaydedilmiştir. Seyreltik çözeltilerde maksimum kararlılık pH 2 civarındadır. Derişik çözeltilerde ise 1.5 pH civarındadır. Şekil 3 de jel oluşum süresine pH ve silika derişiminin etkisi görülmektedir. Şeffaf hidroseller asit jelleşmesiyle elde edilir. Jel ve hidrojellerin homojenliği ve kalitesi hidrojelin şeffaflığının gözlenmesiyle saptanabilir. Bulanık hidrosol ve hidrojeller homojen olmayan jelleşme ve kötü karıştırmadan kaynaklanır (Winyall,1984).

Bazik jeller biraz daha farklıdır. PH'ın 10.6 dan aşağıya doğru inmesi jel oluşum süresini düşürür. Bazik silika hidrojelleri normal olarak bulanıktır. Bunun nedeni bu pH değerlerinde silika misellerinin boyutlarının daha büyük olmasıdır(Weldes,1969).

Jelleşme süresi farklı kimyasalların hidrosole eklenmesiyle artırılıp azaltılabilir. Bir çok tuz jel oluşum süresini düşürür ve belirli koşullar altında silika çözünürlüğünde azalır. Bu da jelleşme yerine çökelmeye neden olur. Bu olaylar genellikle bazik pH değerlerinde ve yüksek sıcaklıklara gerçekleşir(Winyall,1984).

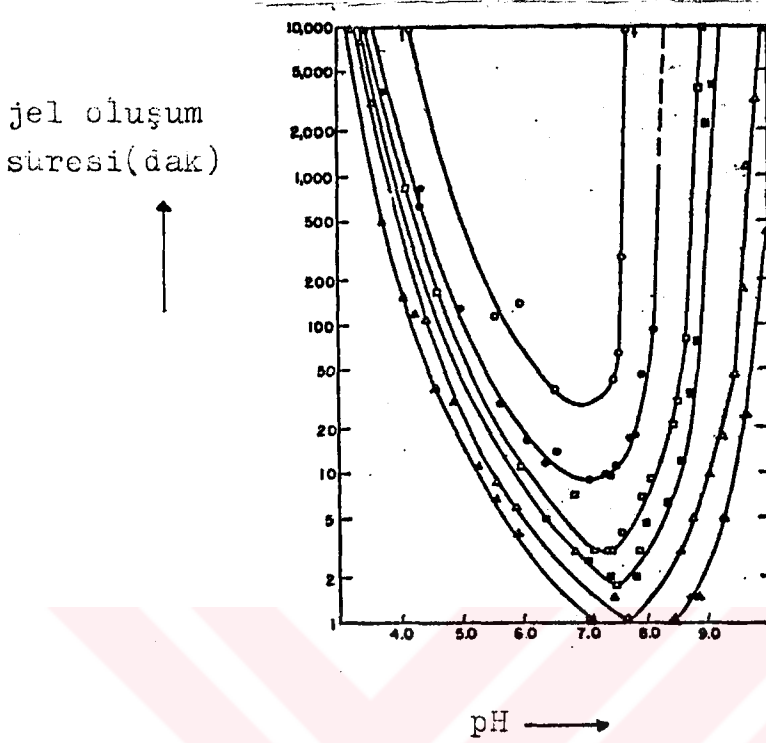


Şekil 3: 30°C'de değişik SiO<sub>2</sub> yüzdelerinde hazırlanan hidrosollerin jel oluşum süreleri (○:%16 SiO<sub>2</sub>, ◐:%17 SiO<sub>2</sub>, ●:%18 SiO<sub>2</sub> içeren hidrosoller)

Merril ve Spencer(1949) 3.3 oranındaki sodyum silikat çözeltisine sülfürik asit eklenmesiyle elde edilen hidrosollerin jel oluşum zamanlarını rapor etmişlerdir. Çalışmalarında %8.9 Na<sub>2</sub>O, %28.7 SiO<sub>2</sub> ve %62.4 H<sub>2</sub>O bileşimlerini içeren bir ticari su camı kullanılmıştır.

Şekil 4, jelleşme süresini pH'ın bir fonksiyonu olarak göstermektedir.





řekil 4 : 25°C`de karıřımın pH deęerinin bir fonksiyonu olarak 3.3 oranındaki sodyum silikat-sulfirik asit karıřımlarının jelleřme sureleri. (O:%1.0SiO<sub>2</sub>, ●:%1.5 SiO<sub>2</sub>, Δ:%3.0 SiO<sub>2</sub>,▲:%3.5 SiO<sub>2</sub>, □:%2.0 SiO<sub>2</sub> ■:%2.5 SiO<sub>2</sub>)

řekil 4`de grldę gibi Merrill ve Spencer(1949) en kısa jelleřme suresini pH 7-8 civarında bulmuřtur. En kısa jelleřme suresini Bethchold(1951) pH 5.5`de, Iler(1955) ise pH 5.5`da bulmuřlardır.

Linsen, Boer, Okkerse ve Cyrot`un(1960) yaptıkları bir alıřmada da pH 2 civarında silika zeltilerinin jelleřmeye karřı ok kararlı olduęu, dięer taraftan pH 2 nin altında veya zerinde olduęunda jelleřme suresinin azaldığı gsterilmiřtir.

Turkevich ve Bartholin(1976) Na<sub>2</sub>O/SiO<sub>2</sub> oranı 3.36 olan 40 be su camını iyon deęiřtiriciden geirerek jeller hazırlamıřlardır. Bulguları Tablo 1`de verilmiřtir.

Tablo 1 : PH ve Sıcaklığın Jelleşme Süresine Etkisi

PH	4°C	15°C	20 - 22°C
2.5	5-6 hafta	--	1-2 hafta
3.0	5-6 hafta	--	1-2 hafta
3.5	5-6 hafta	--	3-4 hafta
4.0	3-4 hafta	--	1-2 gün
4.5	2-3 hafta	8 gün	4-10 saat
5.0	1-2 hafta	1.5 gün	4-10 saat
5.5	2-3 hafta	6.5 gün	4-10 saat
6.0	3-4 hafta	9.5 gün	1-2 gün
6.5	Birkaç ay	--	2 hafta
7.0	Birkaç ay	--	2-3 hafta
7.5	Birkaç ay	--	2-3 hafta

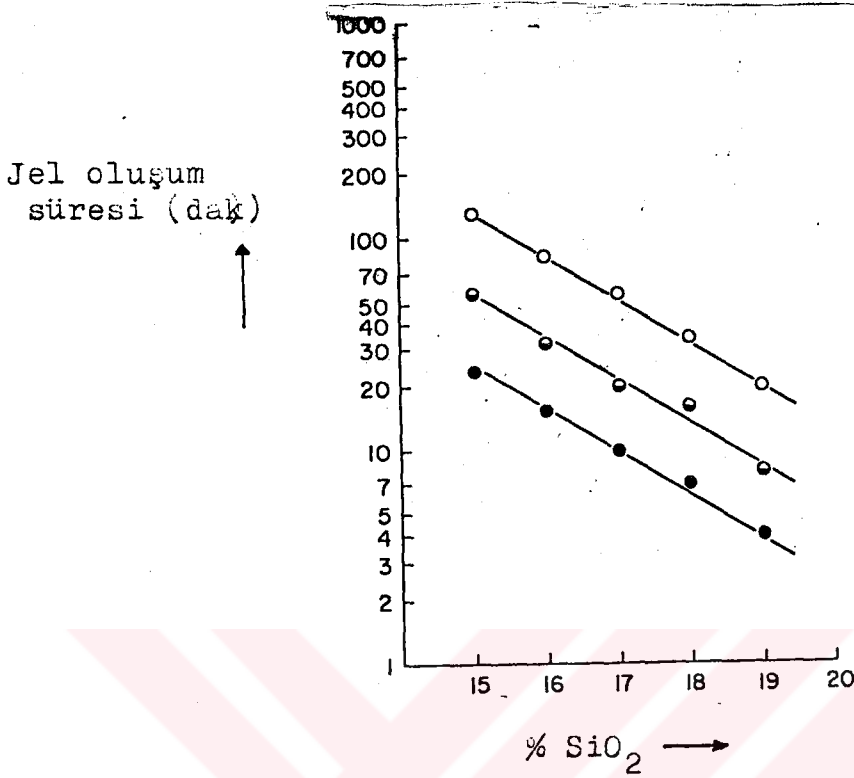
Jelleşme 4°C, 15°C ve 20-22°C sıcaklıklardaki çözeltiler için incelenmiştir. SiO<sub>2</sub> derişimi 15°C için % 2.7 dir. 4 ve 22°C ler için % 2.8 den % 3'e kadar deęişmektedir. Bu çalışmada jelleşme süresi pH 5'te en kısadır. PH 5'in altında ve üstünde artmaktadır.

Rao ve Nayar (1978)'da yaptıkları bir çalışmada deęişik pH'lardaki jel oluşum sürelerini Tablo 2'de gösterildiği gibi bulmuşlardır.

Tablo 2 : PH'in jelleşme süresine etkisi

Jel oluşum PH <sub>1</sub>	Jelleşme süresi
0.00	12 saat (Saydam değil)
0.25	16 saat
0.40	18 saat
0.90	23 saat
1.40	30 saat (Saydam)
2.15	16 saat
2.60	15 saat
3.70	1.5 saat
7.10	2 dakika (Saydam değil)

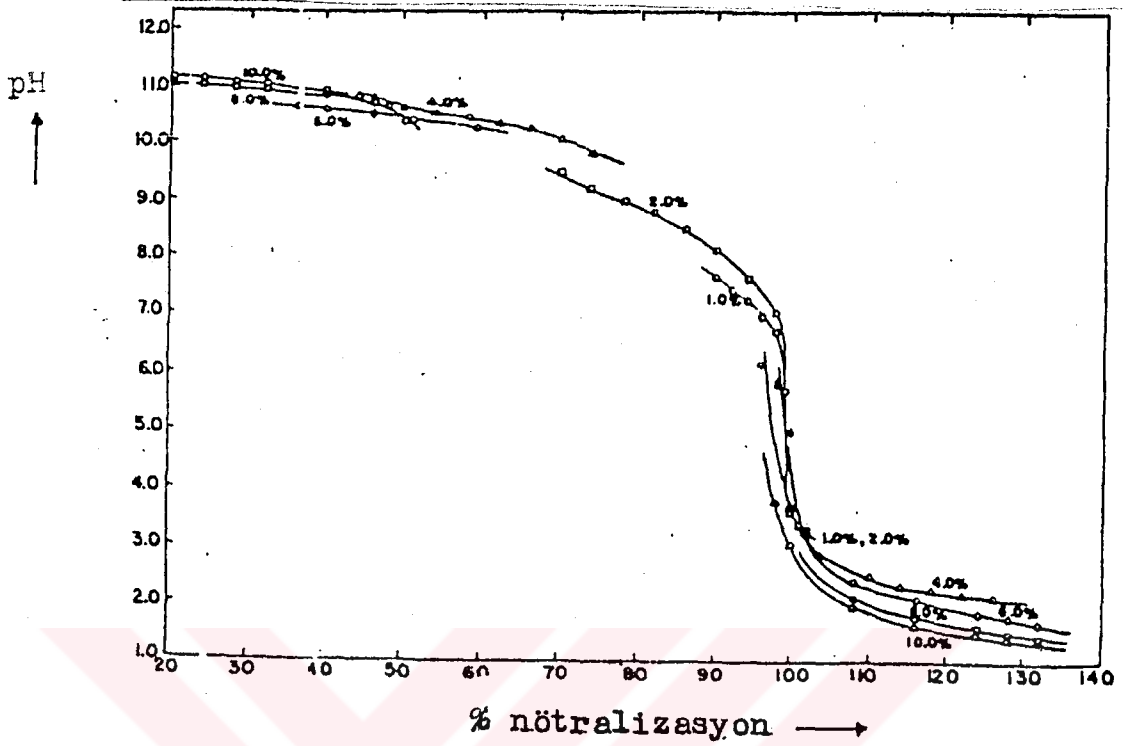
Turkevich ve Bartholin (1976) ile Rao ve Nayar (1978) çalışmalarındaki jelleşme süreleri çok farklıdır. Bir çalışmada en kısa jelleşme süresi 1-2 gün gibi saptanırken diğer çalışmada 2 dakika gibi çok daha kısa süre saptanmıştır. Bunun nedeni Rao ve Nayar'ın (1978) çalışmalarında vermedikleri SiO<sub>2</sub> derişimidir. Bu arada Rao ve Nayar'ın (1978) çalışmalarını Linsen ve arkadaşlarının çalışmaları arasında tam bir uyum varken Turkevich ve Bartholin'in (1976) çalışmalarında Bethchold (1951) ve Iler (1955)'in çalışmaları arasında uyum vardır.



Şekil 5 : Değişik sıcaklıklardaki % 120 nötralizasyonda hazırlanmış hidrosollerin jel oluşum süresi. (○:30°C, ◐:40°C ●:50°C)

Jelleşme süresinin pH'ın yanında sıcaklık ve % nötralizasyonla da değiştiği görülmektedir. Şekil 5'de görüldüğü gibi sıcaklığın artmasıyla jelleşme süresi azalmaktadır (Winyall, 1984). Bu çalışma ile Turkevich ve Bartholin'in (1976) çalışmaları (Tablo 2'deki sonuçları) uyum içindedir.

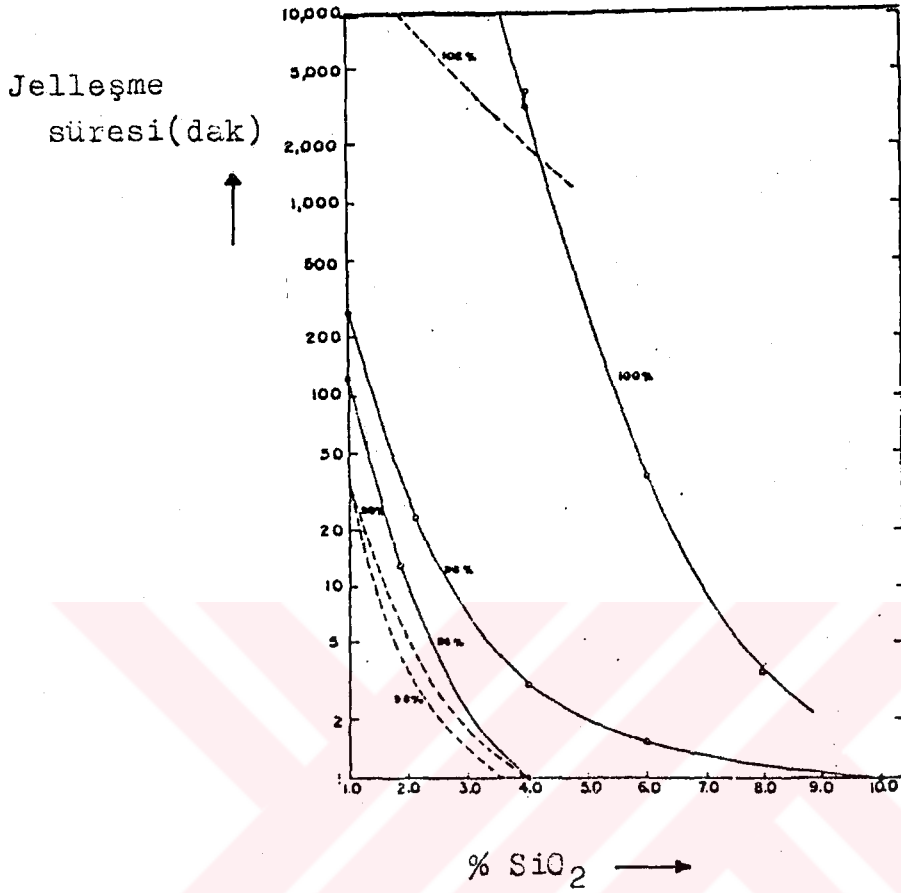
Nötralizasyon yüzdesi oluşan jelin pH'ını etkiler. Şekil 6, 8°C'da sabit SiO<sub>2</sub> derişiminde H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> - silika karışımı için pH'ın nötralizasyon yüzdesi ile değişimini göstermektedir.



Şekil 6 : pH'in nötralizasyon yüzdesi ile değişimi.  
(Eğriler üzerinde % SiO<sub>2</sub> verilmiştir)

% 2 SiO<sub>2</sub> derişiminde % 110 nötralizasyonda PH 2.75, %90 nötralizasyonda pH 8.5 degerindedir. Bu da gösterirki belirli SiO<sub>2</sub> yüzdellerinde çalışıldığında % nötralizasyonun artışıyla pH azalmaktadır. Şekil 7 ise jelleşme süresinin sıcaklık ve % SiO<sub>2</sub> nin artışı ile azaldığını, nötralizasyon yüzdesinin artışı ile arttığını gösterir.

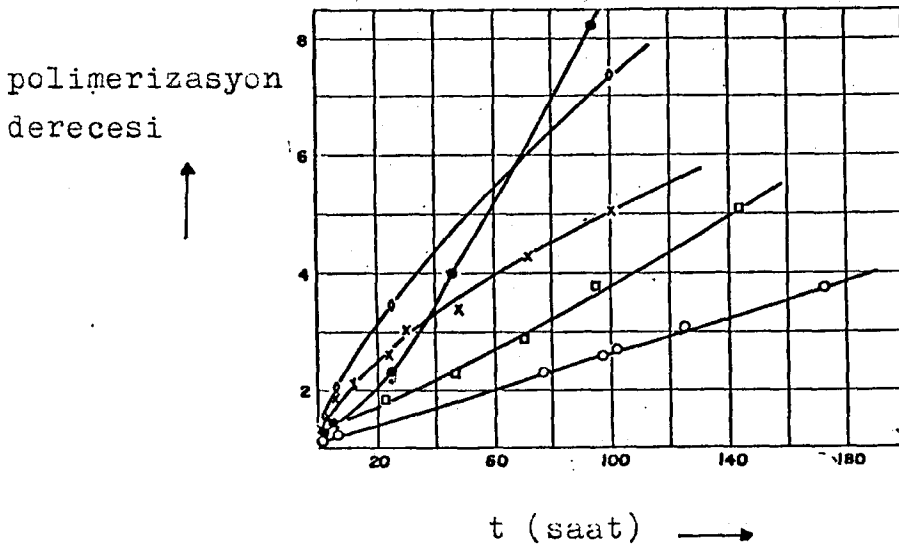
Tüm bu sonuçlar gösteriyorki jelleşme süresi, % SiO<sub>2</sub>, sıcaklık ve % nötralizasyonla değişmeler göstermektedir.



Şekil 7 : Sabit nötralizasyon yüzdelerinde değişik sili-  
kat-H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> karışımlarının jelleşme zamanı ile SiO<sub>2</sub> yüzdesi-  
nin değişimi (●—● 8°C , ----25°C)

### 1.6 Silisilik Asitlerin Polimerizasyonu

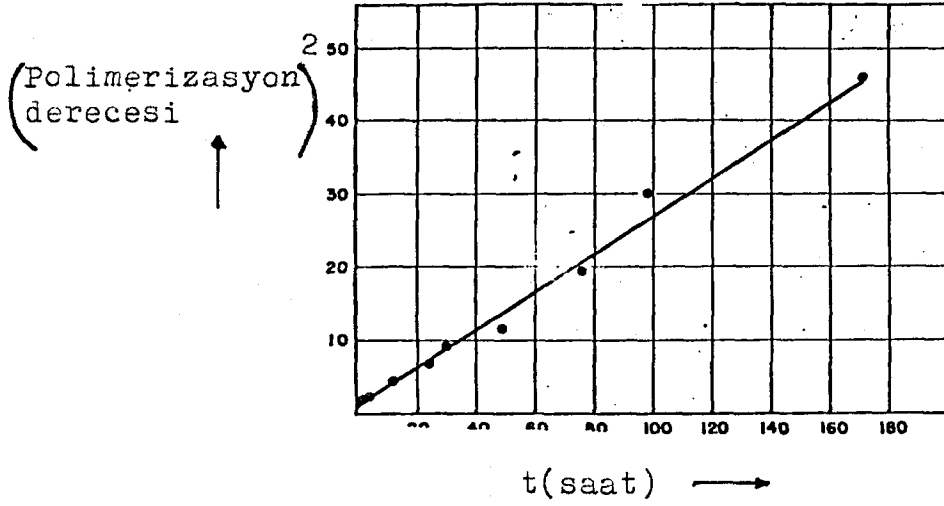
Silikajel oluşumu, silisilik asidin kondenzasyon re-  
aksiyonu sonucu polimerleşmesiyle gerçekleşmektedir(Alexan-  
der, 1954). Kondenzasyon reaksiyonu silisilik aside göre,  
pH<2 de üçüncü mertebe, pH>2 de ise yine silisilik aside gö-  
re ikinci mertebe bir kinetik izler(Alexander, 1954). Şekil  
8`de silisilik asidin polimerizasyonunda pH`ın etkisi görül-  
mektedir.



Şekil 8 :0.1M monosililik asidin  $1.9^{\circ}\text{C}$ da çeşitli pH değerlerindeki polimerizasyonu (◇:pH=1.7, X:pH=2.10, ○:pH=3.2 □:pH=3.82, ●:pH=4.36)

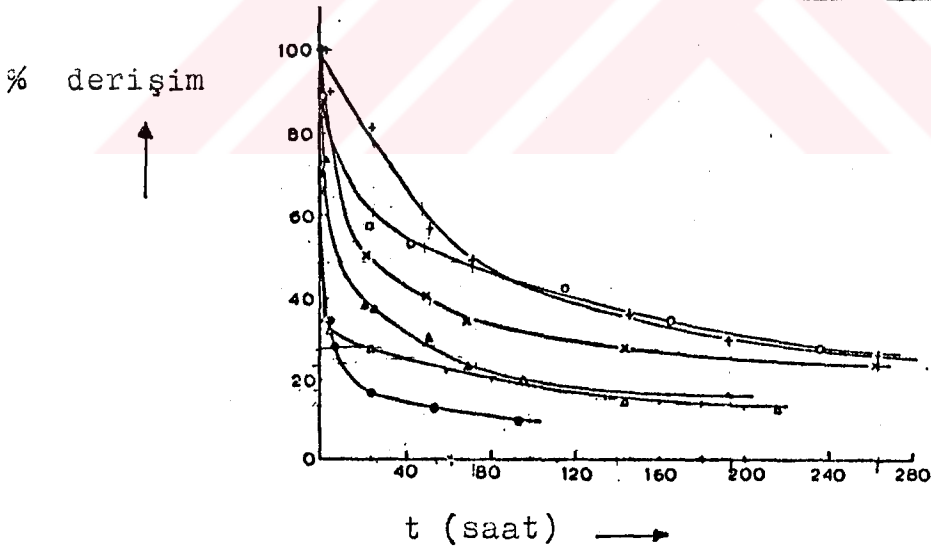
Şekil 8'de polimerizasyon egrilerinin eğimlerinde gösterildiği gibi 3.2 pH'ın altında ve üstünde silisilik asidin polimerizasyonu için farklı mekanizmalar kullanılması gerekmektedir (Alexander, 1954). Şekil 9'da görüldüğü gibi düşük pH'larda (1.7 - 2.10) polimerizasyon derecesinin karesine karşılık zamanın fonksiyonu olarak çizilen grafik doğrusal bir ilişki vermektedir (Alexander, 1954). Zamana karşı polimerizasyon derecesinin karesi çizildiğinde doğrusal bir ilişkinin olması reaksiyonun 3. mertebe olduğunu gösterir. Yüksek pH'da ise polimerizasyon derecesi zamanla doğrusal olarak değişir. Bu ise reaksiyonun ikinci mertebe olduğunu gösterir.

Baumann(1958) silisilik asidin poli ve depolimerizasyonunu değişik pH aralığında (0.5-9) molibdat aktif silisilik asidin tayini ile incelemiş ve pH 5.35'de 4. mertebe kinetik izlediğini saptamıştır.



Şekil 9 : Silisilik asidin pH 2.10'daki polimerizasyonu.

Linsen ve arkadaşları(1960) da % 0.25 SiO<sub>2</sub> derişimindeki disilisilik asidin % derişiminin pH'a göre zamanla deęişimini incelemiřler ve řekil 10'da görüldüęü gibi eęriler elde etmiřlerdir.



Şekil 10 : % 0.25 SiO<sub>2</sub> derişimindeki silisilik asidin % derişiminin zamanla deęişimi. (Δ: pH=1, X: pH=1.5, +: pH=2, O: pH=3, ▲: pH=4, ●: pH=5)

### 1-7. Reaksiyon Hızlarının Ölçülmesi

Monosilisilik asidin polimerisasyon hızı molibdik asit

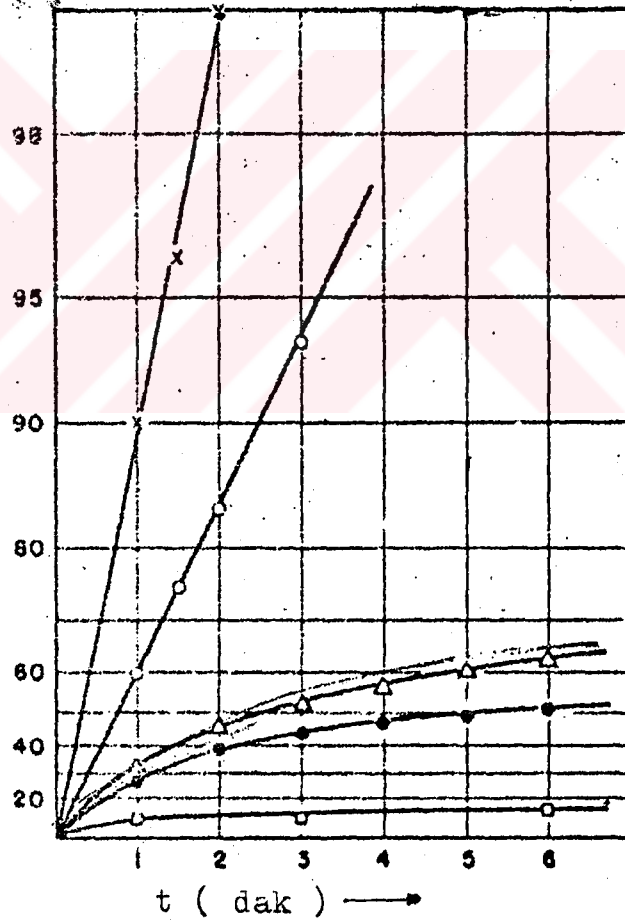


yardımı ile saptanır. Monosilisilik asidin molibdik asidin aşırısıyla reaksiyonu birinci merteye bir kinetik izler. Çünkü şekil 11'de görüldüğü gibi reaksiyona girmeyen silisilik asit derişiminin logaritması ile reaksiyon süresi arasında doğrusal bir bağıntı vardır. Molibdik asitle reaksiyona giren monomerdır. Silikamolibdat kompleksinin sarı renginin oluşum hızı reaksiyon hızını belirler. Daha yüksek polimerler için ise renk oluşumu daha yavaştır. Bu reaksiyonların hızı matematik olarak

$$-\frac{dP_x}{dt} = k_x F_x \dots\dots\dots-2-$$

gösterilebilir. Burada  $k_x$ , özgül reaksiyon hızı sabiti,  $P_x$  ise t anındaki monomer veya dimer derişimidir (Alexander, 1953).

molibdik asit  
le rxn'a  
giren % SiO<sub>2</sub>  
↑



Şekil 11 : 25°C'de molibdik asit ile sodyum silikat çözeltisinin reaksiyonu. (x: SiO<sub>2</sub>/Na<sub>2</sub>O=0.5, o: SiO<sub>2</sub>/Na<sub>2</sub>O=1.0 ve polimerizasyon derecesi 1.5; Δ: SiO<sub>2</sub>/Na<sub>2</sub>O=3.25 ve polime-

rezasyon derecesi 4.7, ●:SiO<sub>2</sub>/Na<sub>2</sub>O=4.0 ve polimerizasyon derecesi 6.7, □:SiO<sub>2</sub>=10 ve polimerizasyon derecesi 18)

1.8 Alfa, Beta, Gama Silisilik Asitler

Alfa silisilik asit, kuvvetli asidik ortamda amonyum molibdatla beş dakikadan kısa sürede tamamen reaksiyona girer.

Beta silisilik asit, 10-30 dakika içinde tamamen reaksiyona girer. Bunlara oligomerlerde denir.

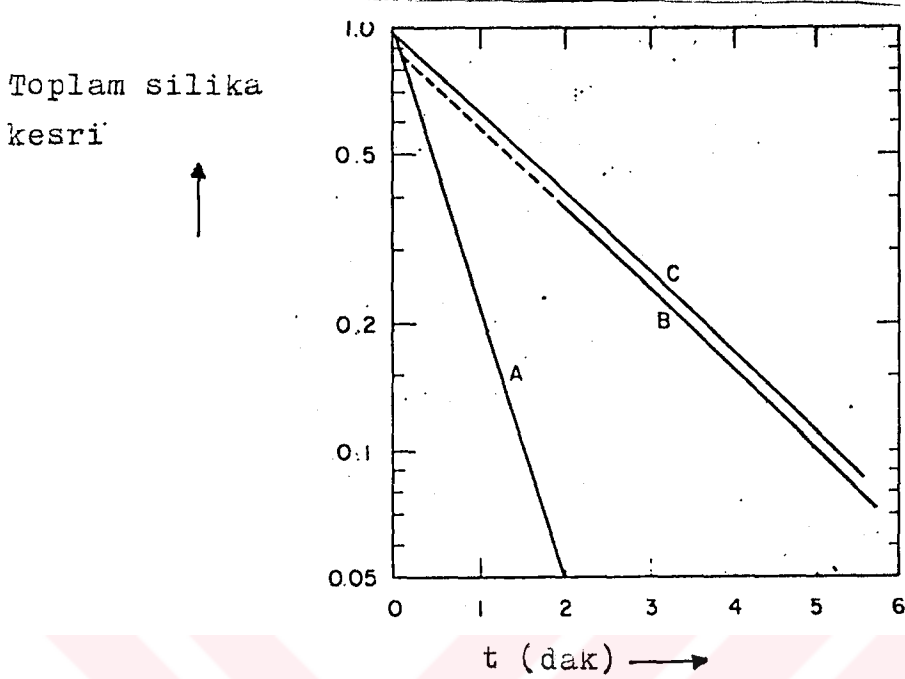
Gama silisilik asit, 10-20 dakika içinde amonyum molibdatla reaksiyonu tamamlanmayan yüksek polimerlerdir. Yüksek polimerler önce parçalanır sonra molibdik asitle reaksiyona girer(Iler, 1979).

Her silisilik asit türü için farklı bir hız sabiti vardır. Çogu çözeltilerde monomer ve yüksek polimer bir arada bulunduğundan aşağıdaki eşitlik geçerlidir(Iler, 1979).

$$\frac{C_r}{C_t} = M_o (1 - e^{-k_m t}) + P_o (1 - e^{-k_p t}) \dots\dots\dots-3-$$

- C<sub>r</sub> : Silika-molibdatla t anında reaksiyona giren silika kesri
- C<sub>t</sub> : t=0`da sistemde bulunan toplam silika.
- M<sub>o</sub> : t=0`da sistemde bulunan toplam monomer.
- P<sub>o</sub> : t=0`da sistemde bulunan polimer.
- k<sub>m</sub> : monomer için hız sabiti.
- k<sub>p</sub> : polimer için hız sabiti.

Silikanın % 9.2 sinin monomer kalanının oktamer olduğu bir sistem incelendiğinde Şekil 12`deki doğrular bulunmuştur(Betchold, 1951). Şekil 12`deki A monomerik silika için, C yüksek polimerler için, B ise buradaki karışım içindir. Tablo 3`de silisilik asitlerin molibdik asit reaktifi ile reaksiyon hız sabitlerini vermektedir (Iler, 1979)



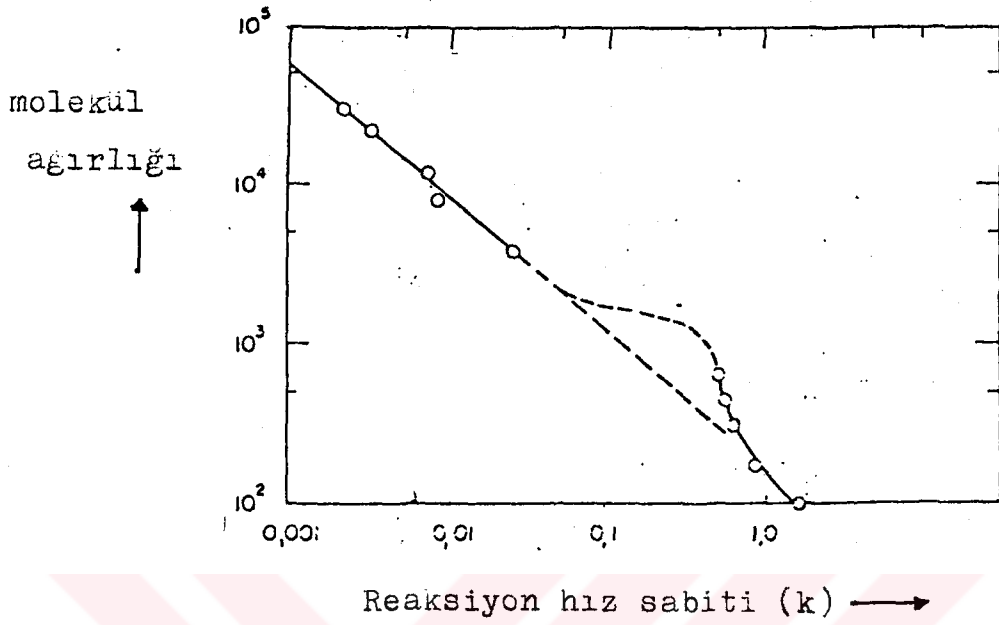
Şekil 12 : Silikanın molibdik asitle reaksiyonu.

(A: monomerik silika, B: Karışım (% 9.2 monomer, % 90.8 polimer), C: yüksek polimer.)

Tablo 3 : Alexander'ın (1954) molibdik asit ayırıcıyla, silisilik asidin reaksiyon hız sabitleri.

Silisilik asidin polimerizasyon derecesi	Polimer tipi	Hız sabiti $k(\text{dak}^{-1})$
1	monomer	1.5
2	dimer	0.82
4	tetramer	0.67
6	hegzamer	0.60
8	oktamer	0.45
	yüksek molekül ağırlıklı	0.05

Hoebbel ve Wieker(1973), molekül ağırlığının, molibdik asitle silisilik asidin reaksiyon hız sabiti arasında şekil 13'te görüldüğü gibi bir ilişki olduğunu saptamışlardır.



Şekil 13 : Silikahidrojelın molekül ağırlığı ile molibdik asitle silisilik asidin reaksiyon hız sabiti arasındaki ilişki.

## I.2 SİLİKAHİDROJELİN YIKANMASI

### Gözenekli Katılardan Yayınma

Boşluk ve gözenek içeren katılarda yayınma, boşluğun tipi ve boyutundan büyük oranda etkilenir. Kararlı halde yayınma akısı,  $N_A$

$$N_A = -D_{Aef} \frac{dC_A}{dt} \dots\dots\dots-4-$$

olarak verilir. Burada  $C_A$  yayınanın derişimidir.

$$D_{Aef} = \frac{\epsilon}{k_t^2} D_{AB} \dots\dots\dots-5-$$

$D_{Aef}$  ise (5) nolu denklemle gösterilen, içinde  $\epsilon$  boşluk hacim kesri ve  $k_t$  ile gösterilen yayınma yolunun düzeltme faktörünü içeren etkin difüzyon katsayısıdır(Alpay, 1983).

Kararsız halde tabaka geometrisinde sabit sıvı derişiminde yayınma için aşağıdaki denklem verilmektedir(Meares, 1967).

$$\frac{M_t}{M_\infty} = \frac{4}{1} \left( \frac{Dt}{\pi} \right)^{1/2} \dots\dots\dots-6-$$

Burada  $M_t/M_\infty$  t süresince yayınan miktarın sonsuz süre sonunda yayınan miktara oranı, 1 tabaka kalınlığı, D difüzyon katsayısı, t süredir.

Ayrıca küresel silikahidrojel taneciklerinden bir bileşenin çözelti derişimi sabit bir sıvıyla yıkanmasına ilişkin bir yaklaşık çözüm de (7) nolu denklemdir(Shamrikov,1983).

$$\frac{C_i^- - C_1}{C_i^0 - C_1} = \frac{6}{\pi^2} e^{-\frac{\pi^2 D \tau}{r^2}} \dots\dots\dots-7-$$

Aynı denkleme benzeyen ve Levha için geçerli olan denklem, (8) nolu denklemdir.

$$\frac{C_i^- - C_1}{C_i^0 - C_1} = \frac{8}{\pi^2} e^{-\frac{\pi^2 D \tau}{4 l^2}} \dots\dots\dots-8-$$

Burada ise  $C_i^-$  herhangi bir anda jeldeki yayınan madde derişimi,  $C_i^0$  başlangıçta jeldeki yayınan madde derişimi,  $C_1$  yı- kama suyundaki yayınan madde derişimi,  $\tau$  zaman,  $r$  küresel taneciklerin yarıçapı,  $D$  difüzyon katsayısı,  $l$  levha için tabakakalınlığıdır.(7) nolu denklemin logaritması alındığında,

$$\ln \frac{C_i^- - C_1}{C_i^0 - C_1} = \ln \frac{8}{\pi^2} - \frac{\pi^2 D \tau}{r^2} \dots\dots\dots-9-$$

elde edilir.

Kararsız halde tabaka geometrisinde sabit sıvı derişimine yayınma için aşağıdaki denklem de verilmektedir(Al- pay, 1983).

$$\text{Yayınan toplam miktar} = \frac{2}{\pi} \sqrt{D_A t} (C_{A1} - C_{A0}) \dots\dots\dots-10-$$

Burada ;  $C_{A0}$  katıda A'nın başlangıçtaki derişimi,  $C_{A1}$  ise çözeltinin sabit derişimi,  $D_A$  A'nın difüzyon katsayısıdır.

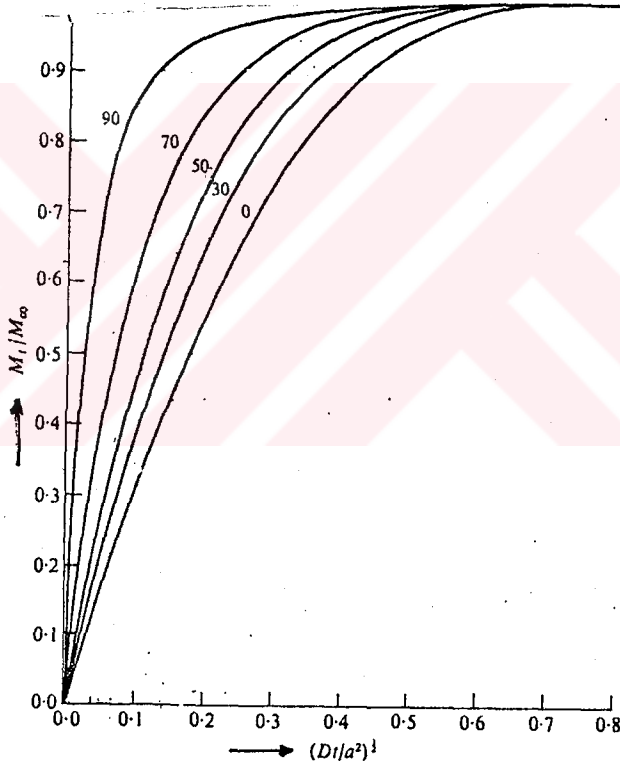
Ayrıca difüzyon kontrolünde sınırlı bir hacimde sıvı- ya, tabaka geometrisinde katıdan kararsız halde yayınma ile ilgili olarak aşağıdaki şu denkleme verilmektedir(Crank, 1975).

$$\frac{M_t}{M_\infty} = 1 - \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2\alpha(1+\alpha)}{1+\alpha+\alpha^2 q_n^2} \exp(-Dt q_n^2 / l^2) \dots\dots\dots-11-$$

Burada  $M_t$  herhangi bir anda yayınan miktar,  $M_\infty$  sonsuz zaman sonra yayınan miktar,  $\alpha$  çözelti hacminin katı hacmine oranı,  $D$  difüzyon katsayısı,  $l$  tabaka kalınlığı,  $t$  zaman,  $q_n$ ,

$$q_n = n\pi - \tan^{-1} \alpha q_n \dots\dots\dots-12-$$

eşitliği ile  $\alpha$ 'ya bağlı olarak bulunan sabitlerdir(Crank,1975) Şekil 14 ise kararsız halde küresel şekil geometrisindeki katıdan yayınma ile ilgili olarak  $M_t/M_\infty$ un  $(Dt/a^2)$  nin kare kökü ile değişimini göstermektedir.Burada  $a$  küresel taneciklerin yarıçapıdır. Şekil 14 (11) denklemine benzer bir denklemin çözümü ile elde edilmiştir(Crank,1975).



Şekil 14 : Sınırlı hacime küresel şekil geometrisinde kütle aktarımı(Eğri numaraları çözelti hacminin toplam hacime oranıdır.)

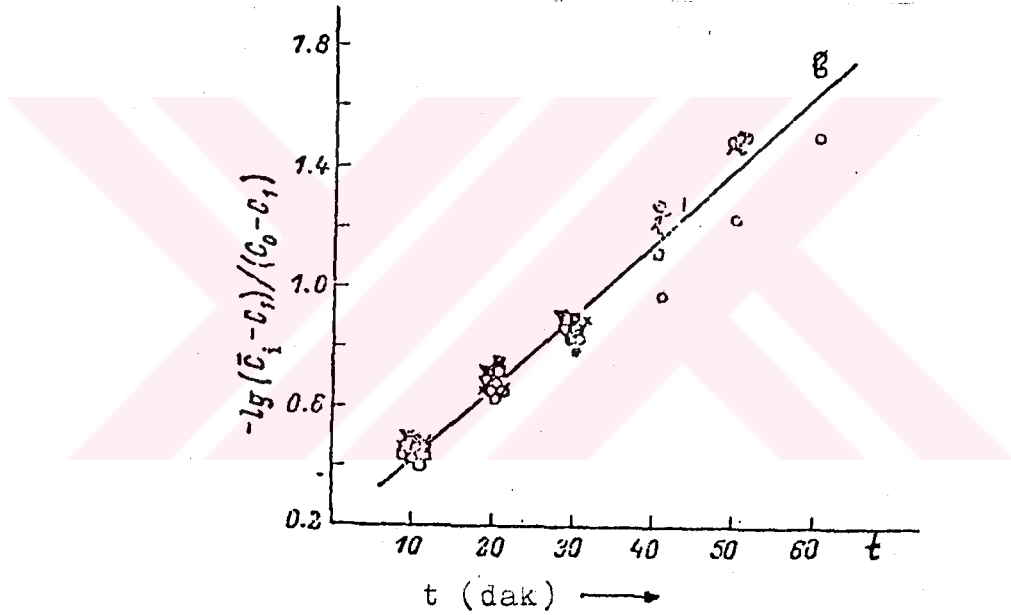
### 1.2.1 Silikajelin Yıkanmasına İlişkin Çalışmalar

(1) nolu reaksiyon sonucu oluşan silikahidrojel, içerisindeki asit ve tuzlarından yıkanarak saf olarak elde edilir. Silikahidrojelin yıkanması kinetiğini Shamrikov ve

arkadaşları(1983) incelemişler ve miseller arasındaki suda çözünmüş olan sodyum iyonlarının jel üzerindeki  $H^+$  iyonları ile iyon değişiminin başlangıçta çok hızlı ve sonraları çok yavaş olduğunu saptamışlardır.

Yıkama suyunun değişik pH değerlerinde elde edilen deneysel veriler grafiğe alındığında şekil 15'de görülen doğru elde edilmiştir(Shamrikov,1983).

Şekil 15'de görüldüğü gibi sabit sıcaklıkta  $\log (C_i^- - C_1) / (C_i^- - C_1)$  ile zaman arasında çizilen değişik pH değerlerindeki noktalar kümeleştiğinden bu noktalar arasından bir doğru geçmektedir.



Şekil 15 : Sabit sıcaklıkta jel içindeki  $Na^+$  kaybının yıkama süresine bağımlılığı ( $\circ$ :pH=7,  $\times$ :pH=5,  $\square$ :pH=3,  $\nabla$ :pH=2, yıkama suyu pH'ları,  $\circ$ :% 0.11  $C_1$ ,  $\otimes$ :% 0.31  $C_1$ ,  $\square$ :% 0.49  $C_1$ ,  $\ominus$ :% 1.01  $C_1$ ,  $\blacksquare$ :% 1.51  $C_1$  çözelti yıkama derişimleri)

Sonuç olarak değişik pH değerlerinde elde edilen doğrunun eğiminden ve 9 denkleminde sabit bir difüzyon katsayısına ulaşılmaktadır. Yani yıkama pH'ı değişse de difüzyon katsayısı sabit kalmaktadır. Şekil 15'de eğim  $D/2.303r^2$  olup buradan difüzyon katsayısı hesaplanabilir.



Şekil 15'deki grafik, sıcaklık değiştirilerek tekrarlandığında Tablo 4'de verilen Na<sup>+</sup> nın etkin difüzyon katsayıları elde edilmiştir(Shamrikov, 1983).

Tablo 4 : Değişik sıcaklıklardaki Na<sup>+</sup> un etkin difüzyon katsayısı.

Sıcaklık (°K)	Etkin difüzyon katsayısı D x 10 <sup>5</sup> (cm <sup>2</sup> /s)
303	1.21
323	1.35
343	1.99

Etkin difüzyon katsayısının sıcaklık ile ilişkisi aşağıdaki denklemde belirtildiği gibidir.

$$D = D_0 e^{-E/RT} \dots\dots\dots-13-$$

E: Aktifleşme enerjisi , R: Gaz sabiti

D<sub>0</sub>: Sabit

DeneySEL etkin difüzyon katsayıları ve sıcaklıklardan, 13 eşitliği kullanılarak enerji Na<sup>+</sup> nın difüzyon aktivasyon enerjisi 3200 cal/g.iyon olarak bulunmuştur.

Koço(1984) % 10 SiO<sub>2</sub> ve % 81 H<sub>2</sub>O içeren silikahidrojelini 5mm ortalama tane büyüklüğüne öğüttükten sonra yıkayarak çözünür tuzları kolaylıkla uzaklaştırmıştır.

Rao ve Nayar (1978) ise hidrojelini düzgün küçük parçalara keserek sülfattan arınmaya kadar yıkama yapmışlardır. FerneliouS(1946) silikahidrojelini kısmi kurutma ve doğrudan yıkama yöntemi olmak üzere iki yöntemle yıkamıştır. Kısmi kurutma yönteminde hidrojel, % 50 nem içerinceye kadar 65°C de kurutulmakta, kuruma sırasında parçalanan hidrojel üzeri su ile örtülerek yıkanmaktadır. Doğrudan yıkama yönteminde ise hidrojel 4 mesh elekten geçirilerek saf su ile üzeri örtülerek bekletilmekte ve yıkanmış ürün yogrularak tepsilere

dökülmekte ve kurutulmaktadır. Groth ve Housmann(1977) silikahidrojelci seyreltik tuz ve sülfürik asitle yıkamıştır. Sıkı gözenekli jellerin yıkanmasında son yıkama suyunun sıcaklığını 60°C'a kadar çıkartmış ve pH'ı 1.8-2.5 aralığından 6-7 aralığına yükseltmişlerdir. Geniş gözenekli jellerin yıkanmasında son yıkama suyuna sodyum klorür veya sodyum sülfat katarak yıkama suyu sıcaklığını 90°C a kadar çıkartmıştır.

Sasaki ve arkadaşlarının (1984) yaptığı bir çalışmada sürekli yıkanan silikajellerde yıkama suyu miktarının artırılması ile değişmeyen bir miktar sodyumun jel içinde kaldığı gösterilmiştir.

### 1.3 SİLİKAHİDROJELİN KURUTULMASI

#### 1.3.1 Nem İçeren Katının Kurutulması

Bir katı kurutulduğunda; katıyı çevreleyen gazdan katıya ısı aktarılarak katıdaki su buharlaştırılır. Katının içinden katının yüzeyine su, sıvı veya buhar halinde gaz fazına aktarılır.

Bir katının kuruma hızı, sıvının katı içindeki hareket mekanizmasına, sıcaklığa, nem ve kurutma ortamının hızı gibi dış etkenlere bağlıdır. Sıvının katı içindeki hareket mekanizması, karmaşık bir teorik hesaplama gerektirir. Endüstride ise cihaz tasarımı ve değerlendirmesinde dış şartların etkinliği pratik önem kazanır.

Katı içindeki nemin akışı; katının yapısına, nemin bağlanma şekline, kapilerin içindeki sıcaklık ve basınca bağlıdır. Katı içindeki sıvı hareketi için, sıvı difüzyon modeli, kapiler akış modeli, iç buharlaşma modeli gibi modeller vardır.

Katıların kurutulmasında başlıca sabit hızda kuruma periyodu ve azalan hızda kuruma periyodu olmak üzere iki bölüm görülür. Su, katı yüzeyine gelme hızından daha hızlı buharlaştığında azalan hız periyodu başlar. Kuruma hızı N,

$$N = \frac{-L_s}{A} \frac{dx}{de} \dots\dots\dots-14-$$

eşitliği ile verilir(Treybal, 1955).

Burada  $L_s$  kg olarak katı miktarı,  $A$  katı suyun buharlaştığı yüzeyin alanı ( $m^2$ ),  $N$  birim alandan buharlaşma hızı,  $dx/de$  ise 1 kg kuru katı içindeki nem miktarının zamanla değişimidir. (14) nolu denklemin integrasyonu sonucu sabit kuruma periyodundaki süre,

$$\theta = \frac{L_s}{A N_c} (X_1 - X_c) \dots\dots\dots-15-$$

azalan hız periyodundaki süre ise, kuruma hızının nemlilik ile doğrusal değişimi göz önüne alınarak (14) nolu denklemin integrasyonu sonucu,

$$\theta = \frac{L_s (X_c - X_2)}{N_m A} \dots\dots\dots-16-$$

bulunur. Burada  $X_c$  kritik nem,  $X_2$  kurumanın sona erdiği nem,  $N_m$  ise logaritmik ortalama buharlaşma hızıdır(Treybal, 1955).

Jel yapıllı maddelerde azalan hız periyodundaki kuruma hızı suyun jel içindeki difüzyonu ile kontrol edilir. Tabaka şeklindeki maddelerde başlangıçtan herhangi bir ana kadar difüzenen madde miktarının başlangıçtan sonsuza kadar difüzenen madde miktarına oranının yaklaşık çözümü (6) eşitliği ile verilmiştir.(Meares, 1967).

Coulson ve Richardson'da (1978) tabaka geometrisinde difüzyon kontrollü kuruyan katıların kurumasına ilişkin aşağıdaki yaklaşık çözümü vermişlerdir.

$$\frac{\bar{X} - X_E}{X_C - X_E} = \frac{8}{\pi^2} e^{-Dt(\pi/l)^2} \dots\dots\dots-17-$$

Burada,  $\bar{X}_c$  kurumanın difüzyon kontrolünde olmaya başladığı andaki nem, (kritik nem,  $\text{kg su/kg kuru katı}$ ),  $X_E$  sonsuz süre sonundaki nem ( $\text{kg su/kg kuru katı}$ ),  $\bar{X}$  ise herhangi bir andaki nem,  $t$  zaman,  $l$  tabaka kalınlığı,  $D$  difüzyon katsayısıdır.

### I.3.2 Silikahidrojel Kuruma Mekanizması

Jel tanecikleri uç boyutlu ağ veya rijid olarak bağlı kısa tanecik zincirlerinden oluştuğuna göre ve silika tanecikleri inelastik olduğu için, jel kuruyup büzülürken ağ yapısı katlanır ve kırışır. Jelin son yapısı çözeltide oluşan yapının egrilmiş ve buzulmuş halidir (Winyall, 1984).

Silikajelle ilgili olarak en önemli nokta, yapı büzülürken, silika tanecikleri inelastik olduğundan yapıdaki tanecikler arası bağların bir kısmının kırılmasıdır. Eğer jelin yapısı kompakt ve kütle kırılğan ise jel parçalanacaktır. Jel, yumuşak ve jelatin gibi ise çatlamadan buzülecektir. Çünkü herhangi bir anda tüm kütle bir arada tutacak kadar ağ yapısı vardır (Iler, 1979).

Kuruma hızı parça boyutunu büyük oranda etkiler.  $100^\circ\text{C}$  nin üstünde hızlı kuruma esnasında silikajelin küçük gözenekleri içindeki su atılmadan,  $100^\circ\text{C}$  nin üstüne ısıtılarak buharlaşır. Bu olay olduğunda iç basınçla parçacıklar parçalanır ve yalnızca 25 mesh'den küçük olanlar kalır. Kuruma sırasında jelin parçalanması; kuruma sıcaklığının düşürülmesi, kuruma ortamının bağıl neminin artırılması, jel yatağı içinden geçirilen hava akımının düşürülmesiyle azaltılabilir. Bunlar iç bağımlı değişkenlerdir ve normal olarak uçünün kombinasyonu kullanılır. Silikajel kurutucularından atılan hava genellikle % 100 bağıl neme yakındır.

### I.3.3 Silikahidrojel Kurutulmasına İlişkin Çalışmalar

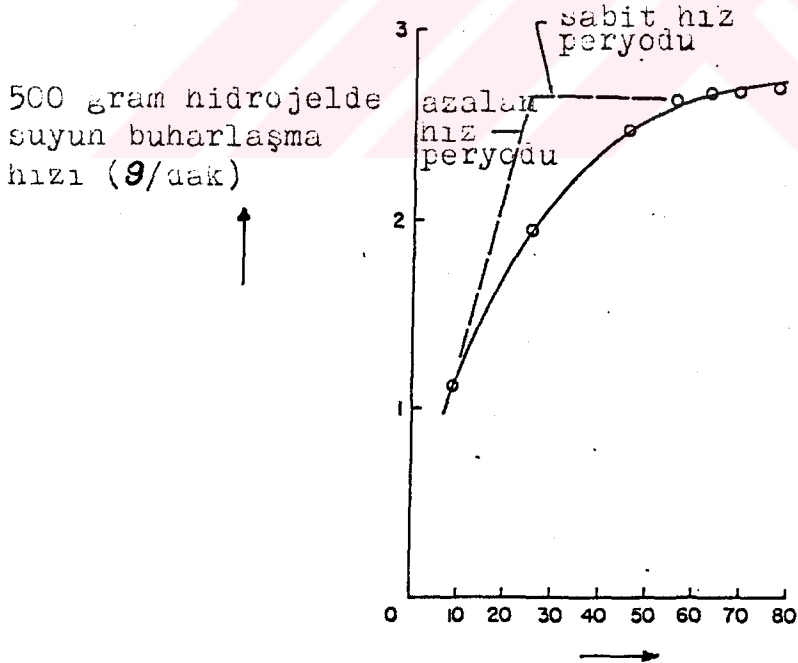
Silikahidrojel kuruma davranışının incelenmesi pek çok araştırmacıya konu olmuştur.

Şekil 16 da silikahidrojel kuruma eğrisi verilmiştir (Winyall, 1984).

Silika hidrojelini kurutulması çok değişik şartlarda yapılmıştır. Hidrojeli; Fernelius(1946) 110°C'da bir kurutma fırınında, Egon ve Gottfried(1970) püskürtmeli kurutucuda Coudrier ve arkadaşları(1971) -50°C ve 10<sup>-3</sup> torr basınçta, Groth(1977) % 70-80 bağıl nemli havada 80°C'da, Jaccard(1977) 120°C'da, Rao ve Nayar(1978) 12 saat 100°C'da kurutma fırınında kurutmuşlardır. Tokoyanagi(1978), kolloidal silikaya amonyum klorür katılmasıyla elde edilen silika hidrojelini; kurutulması sırasında üzerinde çok ince çatlaklar meydana geldiğini belirtmiştir.

Asworth ve Carter(1980), 2.8-3.2 mm(ortalama 3mm) çaplı silika jel granüllerini 100mmx50mm yüzey alanı olan bir tepsiye dizerek, ıslak termometre sıcaklığı 25-30°C ve kuru termometre sıcaklığı 55-66.5°C olan 1 m/s hava akımında kurutulmuştur.

Ciborowski ve Wlojny(1983), 3-4 mm ve 5-6 mm çapında ıslak silika jel kürelerini 0.3-0.43 mm çapında kuru silika jel



Hidrojeldeki yüzde nemlilik

Şekil 16 : 150°C'de % 120 nötrale edilmiş % 15 SiO<sub>2</sub> içeren hidrojelini kuruma eğrisi.

taneleri ile mekanik olarak karıştırarak kurutmuş, deneysel olarak kütle transferine ana direncin kürelerin içinde olduğunu saptamıştır. Problem, küre etrafında sınırlı hacimde iyi karıştırılmış ince taneciklerin bulunduğu fazdan, küreye sıvı veya buharın difüzyona indirgenerek çözülmüş etkin difüzyon katsayıları bulunmuştur. Silikajel kürelerde etkin difüzyon katsayısı % 15-30 hata ile (15-16°C'da)  $25 \times 10^{-5} \text{cm}^2/\text{dak}$  ve (27-28°C'da)  $37 \times 10^{-5} \text{cm}^2/\text{dak}$  olarak bulunmuştur.

Rajon ve İbrahim(1984) suda bekletilerek ıslatılmış silikajelin kuruma eğrisinin kısa bir azalan hız periyodu içeren üstel bir fonksiyonla gösterildiğini saptamıştır.

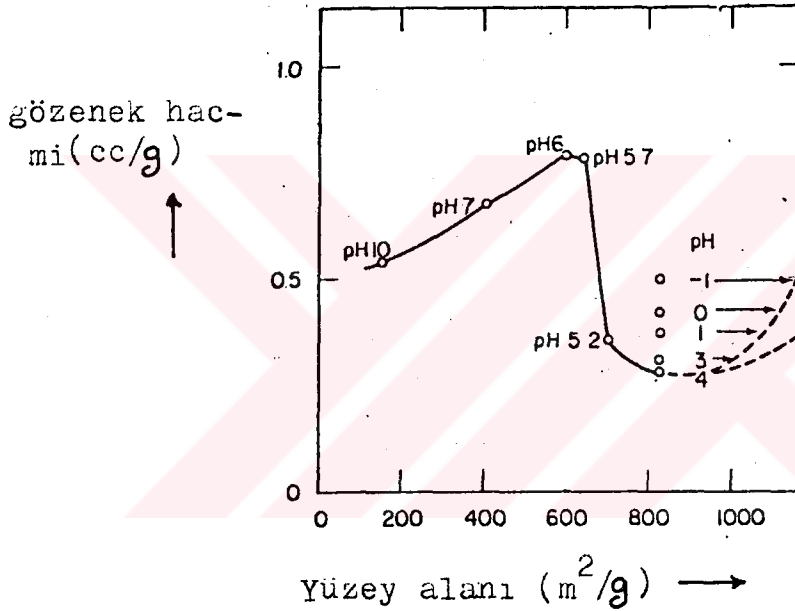
#### I.4 SİLİKAJELİN ÖZELLİKLERİ

Silikajel, yoğunluk, yüzey alanı, gözenek hacmi ve gözenek boyut dağılımı gibi parametreleri içeren yapısıyla belirlenir(Rao ve Nayar, 1978). Jelin fiziksel özellikleri, her hazırlanma adımıdaki fiziksel ve kimyasal koşullara bağlıdır(Iler, 1979). Bunlardan bir kısmı,

- 1°- Primer silika taneciklerin çözeltisindeki derişimleri ve jel ağ yapısının kompaktlığı;
- 2°- Primer silika taneciklerinin jelleşme anındaki boyutları;
- 3°- Jelin yaş halde iken olan yaşlandırma prosesinin pH, tuz derişimi, sıcaklık ve süresi;
- 4°- Kurutma sırasındaki mekanik basınç veya kayma kuvvetleri;
- 5°- Jelden uzaklaştırılan sıvının uzaklaştırma sırasındaki sıcaklık, basınç, pH, tuz derişimi ve yüzey gerilimi;
- 6°- Jelin kurutulmasından sonra ısıtıldığı havanın sıcaklığı, süresi ve tipidir(Iler,1979).

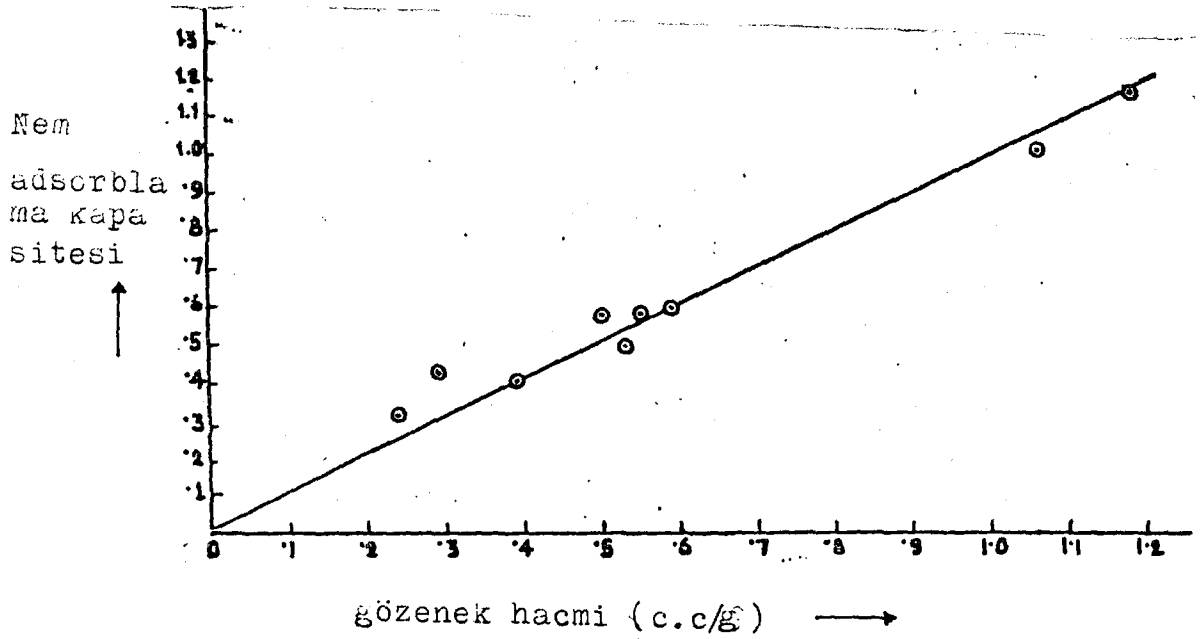
Silikajellerin yüzey alanı  $1 \text{m}^2/\text{g}$  ile  $1000 \text{m}^2/\text{g}$  arasında, gözenek hacimlerinde  $0.1 \text{ml}/\text{g}$  ile  $3 \text{ml}/\text{g}$  arasında değişir (Winyall,1984). Gözenek çapı ise  $10-500 \text{Å}$  arasındadır.Silikajelin fiziksel özellikleri hazırlanmasındaki çok küçük değişikliklerle hızla değişir. Bu nedenle tiplere ayırmak olanaksızdır(Winyall,1984)(Mukherje,1984).

Farklı pH'da oluşturulup, iyi yıkanmış ve kurutulmuş jellerde pH ile gözenek hacmi arasında Şekil 17'de görüldüğü gibi bir ilişki vardır(Okkerse,1961). Şekil 17'de düşük yüzey alanında gözenek hacminin  $0.45 \text{ cm}^3/\text{g}$  olduğu görülmektedir. Küçük tanecikleri olan jellerin gözenek çapları ise daha küçüktür.  $600 \text{ m}^2/\text{g}$  yüzey alanında ve  $0.8 \text{ cm}^3/\text{g}$  gözenek hacminde tanecikler  $3.5 \text{ nm}$  yarıçapındadır ve gözenek  $20 \text{ \AA}$  dan büyük değildir.

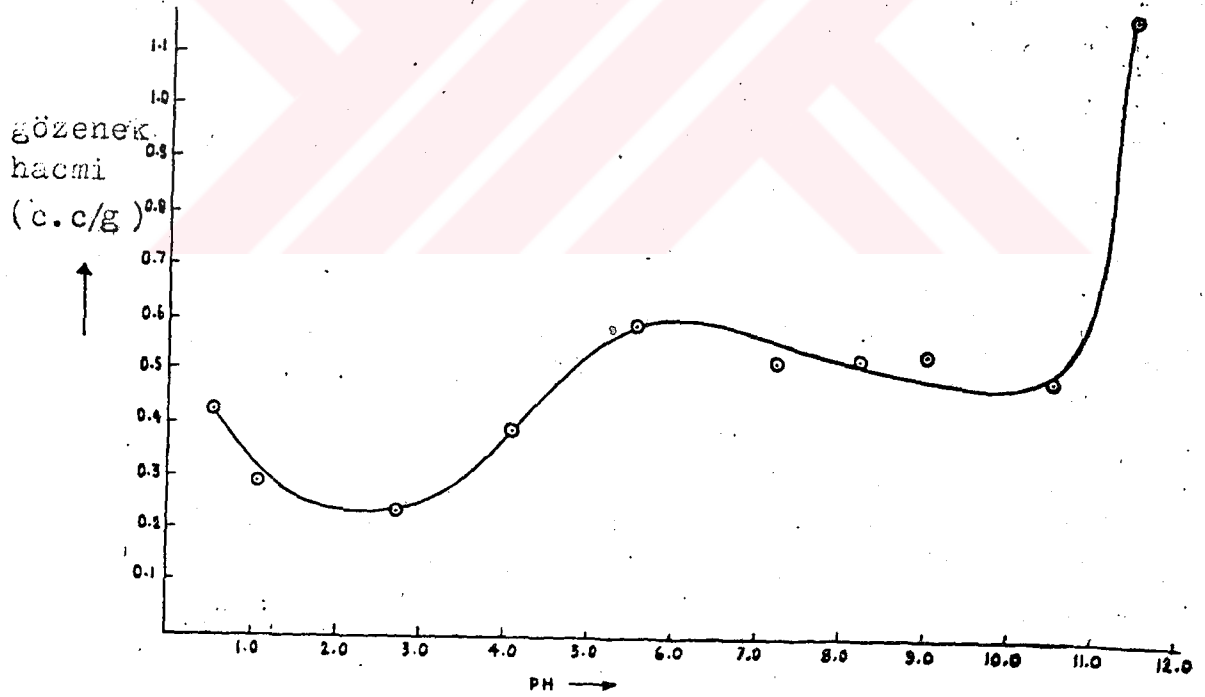


Şekil 17 : Yüzey alanı ve gözenek hacmi arasındaki ilişki.

Mukherjee ve arkadaşları(1984) yaptıkları bir çalışmada gözenek hacmi ile nem adsorblama kapasitesi arasında Şekil 18'de olduğu gibi doğrusal bir ilişki olduğunu buldular. Gözenek hacminin pH ile değişimi de Şekil 19'da olduğu gibidir.



Şekil 18 : 40°C'da % 96 bağıl nemde nem adsorblama kapasitesi ile gözenek hacmi arasındaki ilişki.

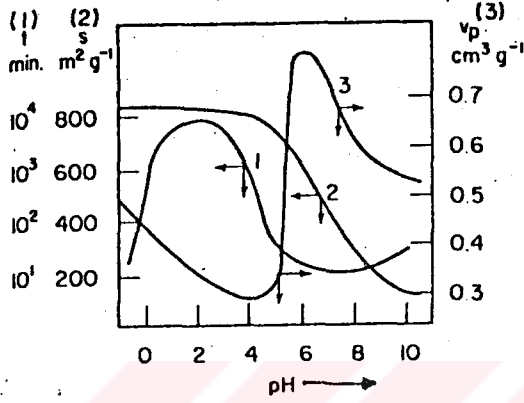


Şekil 19 : silikajelin gözenek hacminin hazırlanma pH'ı ile değişmesi.

Yüzey alanı ve gözenek boyutu, taneciklerin büyüklüğü ile kararlaştırılır. Okkerse ve De Boer(1960) pH'ın jelleşmeden önce silika taneciklerinin büyümesini etkilediğini

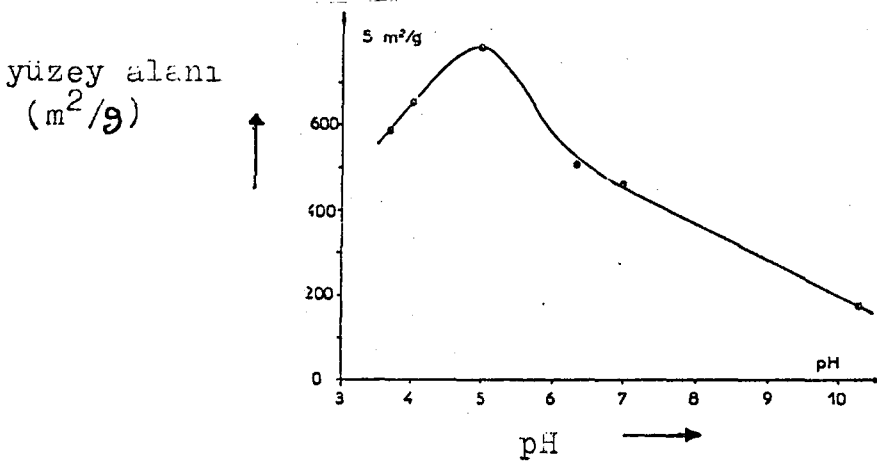


gösteren çalışmalar yaptı. Şekil 20'de görüldüğü gibi tane boyutunun pH 4'den 8'e kadar hızla arttığını, yüzey alanının  $800 \text{ m}^2/\text{g}$  dan (3-4nm çap)  $200 \text{ m}^2/\text{g}$  a (14nm çap) düşmesi ile saptadılar.



Şekil 20 : pH'in yüzey alanı, gözenek hacmi ve jelleşme süresine etkisi.(1: jelleşme süresi, 2: Yüzey alanı, 3: gözenek hacmi)

Coudurier, Bandru ve Donnet'de (1971) yüzey alanının pH'la değişiminin Şekil 21 de gösterildiği gibi olduğunu saptamıştır.

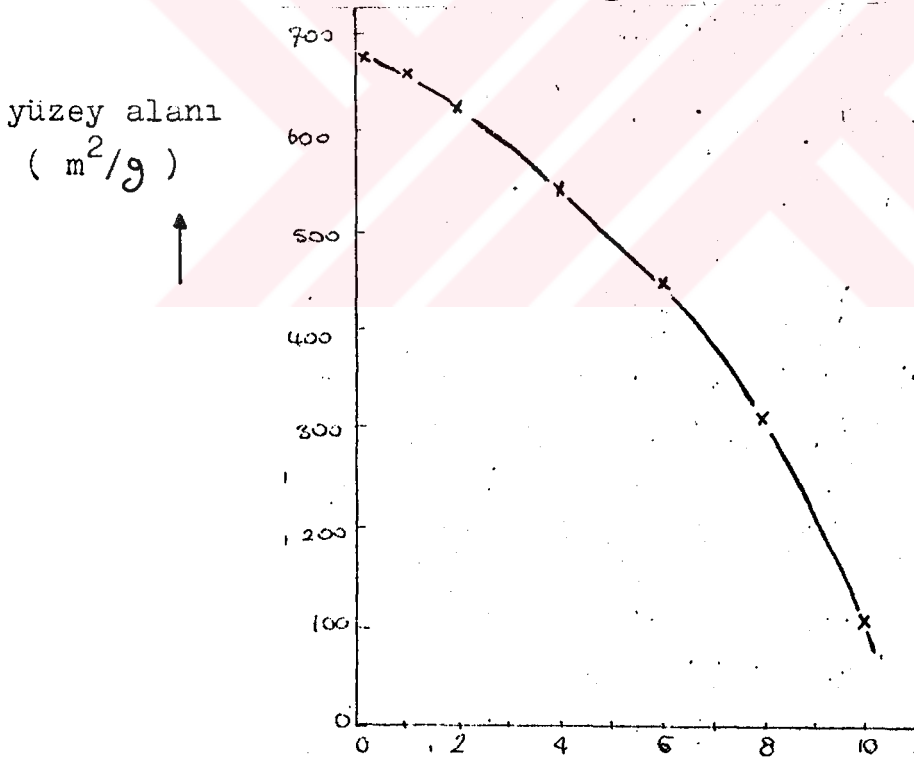


Şekil 21 : Silikajelin yüzey alanına pH'in etkisi.

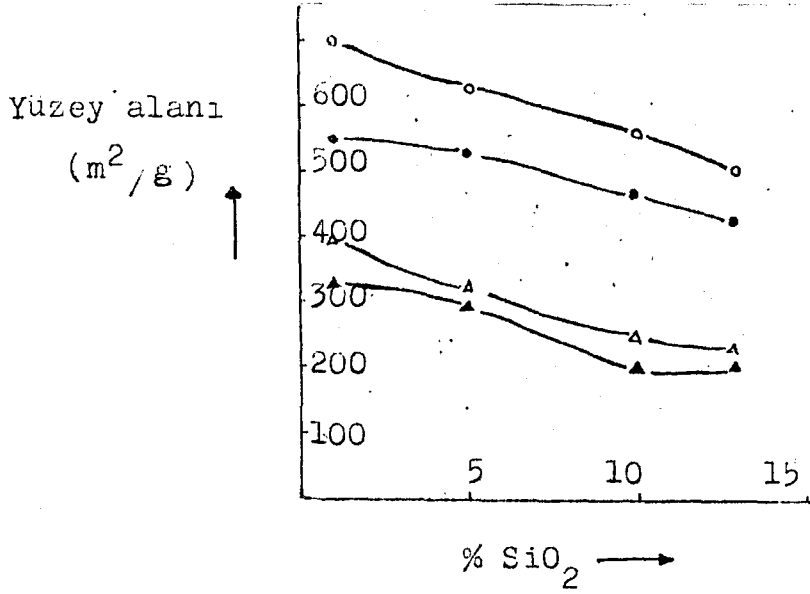
Sasaki ve arkadaşları da (1984) karıştırma pH'ının artması ile silikajelin yüzey alanının azaldığını saptamış-

lardır. Şekil 22, %19 SiO<sub>2</sub> içeren hidrojelın 35°C'da jelleşme pH'ı ile yüzey alanının değişimini göstermektedir. Şekil 23'de ise yüzey alanının reaksiyon karışımındaki SiO<sub>2</sub> derişimi ile azaldığı görülmektedir(Sasaki, 1984).

Üç ayrı çalışmadaki yüzey alanı ölçümlerinde de farklılıklar görülmektedir.Okkerse ve De Boer (1960) in çalışmalarında 0-5 pH aralığında yüzey alanının 800 m<sup>2</sup>/g da sabit kaldığı, Coudurier, Bondru ve Donnet (1971) in çalışmalarında 3-5 pH aralığında pH'ın artmasıyla yüzey alanının yaklaşık 300m<sup>2</sup>/g dan 800 m<sup>2</sup>/g arttığı,Sasaki ve arkadaşlarının (1984) yaptığı çalışmada ise 0-5 pH aralığında artan pH'la yüzey alanının yaklaşık 675 m<sup>2</sup>/g dan 475 m<sup>2</sup>/g a azaldığı görülmektedir.Buna karşın pH 5'den sonra üç çalışmada yüzey alanının artan pH'la azaldığı görülmektedir.



Şekil 22 : % 19 SiO<sub>2</sub> içeren silikahidrojelın 35°C'da jelleştirilmesi sonucu pH'ı ile yüzey alanı arasındaki değişimi.



Şekil 23 : Silikajelin yüzey alanı ile reaksiyon sistemindeki % SiO<sub>2</sub> arasındaki ilişki. (○:pH=1.5, ●:pH=2, △:pH=4, ▲:pH=8 )

Yüzey alanı ölçümleri için en son yöntem düşük sıcaklıkta azot adsorbsiyonuna dayanır. Özgül yüzey alanı, ticari bir cihaz olan Fischer Area metresinde basınç farkı ölçülerek

$$S_g = \frac{A \Delta h}{m} + \frac{B}{\rho_p} \dots\dots\dots -18-$$

denkliğinden hesaplanır. Burada S<sub>g</sub> yüzey alanı (m<sup>2</sup>/g), A nomogramdan bulunan bir sabit (Bu sabit Δh ve denge basıncı ile değişir), m örneğin kütlesi(g), B yine nomogramdan bulunan bir sabit, ρ<sub>p</sub> örneğin yoğunluğu, Δh azot adsorbsiyonu sonucu oluşan ve diferansiyel monometreden okunan basınç farkı (mm Hg) dir.

### 1.5 Pilot Tesis Tasarımında Önemli Değişkenler

Pilot tesis tasarımı yapılacak silikajel üretimi prosesi aşağıdaki sınırlamalar gözönüne alınarak seçilecektir.

1- Su camı ve asit karıştırıldığında polimerizasyon ve jelleşme hızı reaktörde katı ürün oluşmasını engelleyecek şekilde seçilmelidir.

2- Jelleşme süresi en az reaktörden tepsilere hidrosolü aktarmaya yetecek kadar uzun olmalı ve üretimin yavaşlamaması için bir geceyi geçmemelidir.

3- Yıkama prosesi en az su ile en etkin yıkamanın sağlandığı proses olarak seçilmelidir. Elde edilen silikajelde % 5 oranına kadar  $\text{Na}_2\text{SO}_4$  bulunması özelliklerini etkilemediğinden silikahidrojeldeki  $\text{Na}_2\text{SO}_4$  derişiminin bu değeri sağlayacak kadar düşürülmesi gerekmektedir(Winyall, 1984). Yıkama pH'ı elde edilen jelin özelliklerini etkileyeceğinden dikkatle seçilmelidir(Iler,1979).

4- Kurutma sıcaklığı, jelin kurutma sırasında parçalanmasını önlemek için en fazla  $100^\circ\text{C}$  olmalıdır(Winyall, 1984).

Yukarıdaki sınırlamaları sağlayan proses koşulları deneysel çalışmalar sonunda saptandıktan sonra, prosesin kütle ve enerji denkliği gerçekleştirilebilir ve proses birimlerinin tasarımı yapılabilir.

Proses için tasarlanması gereken ana birimler şunlardır.

1<sup>o</sup>- Sürekli karıştırmanın yapıldığı bir reaktör

2<sup>o</sup>- Yıkama sistemi

3<sup>o</sup>- Kurutucu

Prosesin su, hava ve enerji giderleri ana birimlerin boyutlandırılmasından sonra gerçekleştirilir.

#### 1.5.1 Sürekli Karıştırmada Reaktör Tasarımı

Çok iyi karıştırmanın bir sonucu olarak sürekli karıştırılan akış reaktörü sıcaklık ve derişim yönünden tek biçim gösterir. Bu nedenle yatışkın halde kütle ve enerji dengelerini eş anlı olarak göz önünde tutmak gereksizdir.

Optimum koşullar sadece kütle dengesi temel alınarak hesaplanabilir. Sonra enerji dengesi kullanılarak istenilen sıcaklığı korumak için gerekli dış koşullar saptanır (Froment, 1979).

Reaktör etrafında kütle dengesi yazılacak olursa,

$$\frac{V}{F_{Ao}} = \frac{X_A}{-r_A} \dots\dots\dots-19-$$

denkliği elde edilir.

Burada B reaktör hacmi,  $F_{Ao}$  reaktöre giren A (mol/zaman),  $X_A$  A cinsinden dönüşme,  $r_A$  ise A cinsinden reaksiyon hızıdır.

Kondenzasyon reaksiyonu pH 2 de üçüncü mertebe kinetik izlediğinden (Linsen ve arkadaşları, 1960) (Alexander, 1954)  $r_A$  eşitliği (19) nolu denklemde yerine konulursa, reaktör hacmi

$$V = \frac{X_A F_{Ao}}{k C_{Ao}^3 (1-X_A)^3} \dots\dots\dots-20-$$

denkliğinden bulunur.

Enerji dengesi ise; referans sıcaklığı olarak girenlerin sıcaklığı seçilir ve çıkanların sıcaklığında girenlerin sıcaklığına eşit alınır şöyle yazılabilir.

$$Q = m C_p \Delta T \dots\dots\dots-21-$$

Burada Q reaksiyonla açığa çıkan ısı, m soğutma suyu debisi,  $C_p$  soğutma suyunun özgül ısısı,  $\Delta T$ 'de soğutma suyu giriş ve çıkışları arasındaki farktır. Burada değişik T'ler seçilerek soğutma suyu debisi bulunabilir.

### 1.5.2 Pervaneler ve Güç Tüketimi

Pervaneli karıştırıcılarda tank içindeki sıvının karışması pervanenin yarattığı kayma ve sıvı yer değişimi ile sağlanır.

İyi bir karıştırmanın sağlanabilmesi için pervane seçimi önemlidir. Pervane tipinin seçiminde, pervane çapının tank çapına oranı, pervanenin maksimum lineer hızı ve karıştırılabileceği sıvının viskozitesi göz önünde bulundurulmalıdır. Bu kriterler göz önüne alınarak pervane tipi seçilir (Peker, 1983).

Karıştırıcılarda güç tüketimi; pervane çapının, pervane devrinin, karıştırıcı boyutlarının ve akışkanın fiziksel özelliklerinin bir fonksiyonudur.

Re < 10 ise karıştırıcı içinde laminer rejim vardır ve güç  $P = C_1 N^2 Da^3 \rho$  .....-22- denklemleri ile bulunur.

Re > 10.000 ise karıştırıcı içinde akışkan tam gelişmiş türbülanslı rejimdedir ve güç

$P = C_2 N^3 Da^5 \rho$  .....-23- denklemleri ile bulunur. Reynold sayısı

$Re = Da^2 N \rho / \mu$  .....-24- denklemlerinden bulunur. Burada P pervane tarafından çekilen güç (W), N pervane devri ( $S^{-1}$ ), Da pervane çapı (m),  $\rho$  akışkanın yoğunluğu ( $kg/m^3$ ),  $\mu$  akışkanın viskozitesi ( $kg/m.s$ ),  $C_1$  ve  $C_2$  tablolarında verilen birer sabittirler. Örneğin 2 kanatlı pervaneler için  $C_1 = 36.5$ ,  $C_2 = 1.7$  olarak verilmiştir. Ara rejimde güç tüketimi ise Reynold sayısına bağlı olarak Reynold sayısı, güç grafiklerinden bulunur.

### I.5.3 Pompalar ve Pompalarda Güç Tüketimi

Akışkanların iletiminde temel prensip, akışkana enerji verilerek hızının, basıncının veya yüksekliğinin artırılmasıdır. Bu sıvılarda pompalar aracıyla yapılır. İletilecek akışkanın özelliklerine ve istenen özelliklerine göre pompa seçilir (Peker, 1983).

Pompalarda güç tüketimi,

$$P_B = \frac{m \Delta H}{736 \eta} \text{ .....-25-}$$

denklemlerinden bulunur. Burada  $P_B$  pompaya dışarıdan verilen güç (B.G.) m akışkanın debisi ( $kg/s$ ),  $\Delta H$  toplam basınç kaybı ( $m^2/s^2$ ),  $\eta$  ise pompa verimidir (Peker, 1983). Toplam basınç kaybı,

$$\Delta H = \frac{\Delta P}{g} + \frac{v^2}{2} + g \Delta z + h_f \text{ .....-26-}$$

denkleminde bulunur. Burada  $\Delta P$  akışkanın iletildiği iki yer arasındaki basınç farkı,  $V$  akışkanın hızı,  $\Delta Z$  akışkanın iletildiği iki yer arasındaki yükseklik farkı,  $h_f$  ise borularda meydana gelen basınç kaybıdır.

$$h_f = 4\phi \frac{L}{D} V^2 \dots\dots\dots -27-$$

denkleminde bulunur. Bu denklemdeki  $L$  boru uzunluğu,  $D$  boru iç çapı,  $V$  akışkan hızı,  $\phi$  ise laminer rejimde

$$\phi = \frac{8}{Re} \dots\dots\dots -28-$$

denkleminde, turbulento rejimde Reynold sayısı  $\phi$  grafiğinden bulunan bir sabittir.

#### 1.5.4 Yıkama Prosesinin Tasarımı

Yıkama prosesi difüzyon kontrolünde olduğundan, hidrojel kurutulduğunda dolgulu kolonda kullanılabilecek boyutta silikajeller verebilecek parçalara bölünerek çeşme suyu ile gerçekleştirilecektir.

#### 1.5.5 Kurutucu Tasarımı

Kurutucu tasarımı silikahidrojelinin kuruma davranışının incelenmesi ile kuruma süresi bulunarak yapılacaktır. Yıkanmış hidrojel parçalarının tek sıra tepsilere dizilmesi ile ortaya çıkan alan kuruma alanı olarak önerilecektir.

Kuruma süresi, sabit hız periyodunda ve azalan hız periyodunda ayrı ayrı bulunduktan sonra, her iki periyotta da buharlaşan su miktarı bilindiği için buharlaşan suyun debisi bulunabilir. Giriş ve çıkış havasının koşullarında 1 kg kuru havanın aldığı nem miktarı bulunabilir. Buharlaşan suyun debisi bilindiği için buradanda kurutucuya verilmesi gereken hava debisi bulunabilir. Denklemle yazacak olursak

$$m(H_2 - H_1) = m^1 \dots\dots\dots *29-$$

şeklinde olur.

Burada  $m^1$  buharlaşan suyun debisi,  $m$  kurutucuya verilen havanın debisi,  $H_1$  kurutucuya giren havanın 1 kg, başına içerdiği nem miktarı,  $H_2$  ise kurutucudan çıkan havanın 1 kg, başına içerdiği nem miktarıdır.

## II. MATERYAL VE METOT

### II.1. Kullanılan Kimyasal Maddeler

- 1- Su camı " % 25.6 SiO<sub>2</sub>, % 9.7 Na<sub>2</sub>O, % 64.7 H<sub>2</sub>O, Tunçtaş İzmir ürünü" yoğunluk = 1.39 gr/cm<sup>3</sup>
- 2- Sülfürik asit " % 96 H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>, % 4 H<sub>2</sub>O; Yarımca Klor Alkali-İzmit ürünü" yoğunluk = 1.816 gr/cm<sup>3</sup>
- 3- Amonyum molibdat
- 4- Saf su.

### II.2. Kullanılan Alet ve Cihazlar

- 1- Yüzey alanı ölçümleri için Fischer area-meter kullanılmıştır.
- 2- Silikanın amonyum molibdatla olan renk reaksiyonunun incelenmesi için Jena görünür bölge spektrofotometrisi kullanılmıştır.
- 3- Kuruma deneyleri için Fischer marka tepsili kurutucu kullanılmıştır.
- 4- PH ölçümleri için Emaf EM78X pH metresi kullanılmıştır.

### II.3 Deneylerin yapılışı

#### II.3.1. Polimerleşme Kinetiği

Bileşimi bilinen su camından büyük hacimli % 0.1 SiO<sub>2</sub> içeren çözelti hazırlandı. Bu çözelti dört ayrı kaba bölünecek bunların üzerine her biri ayrı pH'ta (pH, 1, 2, 3, 4) olacak şekilde birkaç damla 3N H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> ve çok seyreltik H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> damlatıldı.

Bu hazırlanan örneklerde polimerizasyon hızları Alexander'in (19) geliştirdiği bir yöntemle saptandı.

Silikamolibdik asit kompleksinin oluşumu, hazırlanan bir renk çözeltisi ile silisilik asit çözeltisinin karıştırılması esasına dayanır.

Renk çözeltisi şöyle hazırlandı, 100 gram amonyum molibdat saf suda çözülerek bir litreye seyreltildi. Bunun 40 mililitresi 500ml suya katıldı. Üzerine 100ml 1N H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> katıldı ve tüm çözelti 1 litreye seyreltildi.

Daha sonra 1mg SiO<sub>2</sub> içeren 1ml çözelti 49 ml renk çözeltisi ile karıştırıldı. Her 30 saniyede 10 dakika süresince



410 nm'deki spektrofotometreden absorbanans deęerleri okundu. Deneyler 4 ayrı pH (1,2,3,4) ve 2 farklı sıcaklıkta (20 ve 30°C) tekrarlandı.

### II.3.2 Karıştırma

Hidrosolün hazırlanması, sürekli ve kesikli olmak üzere iki ayrı şekilde yapıldı.

#### II-3-2.1 Kesikli Sistem

Kesikli sistemde 3 deney grubu yapılmıştır. Bunlardan ilk grup üç boyunlu küresel bir kapta soğutma olmaksızın yapıldı. Diğer 2 grup ise 5 litrelik silindirik bir kapta soğutma suyu geçirilerek yapıldı.

Nötralisasyon yüzdesini belirlemek için önce 50ml 3N H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> çözeltisine, 1/1 oranında seyreltilerek hazırlanan su camı çözeltisi ilave edilerek, daha sonra 400 ml 1/1 oranında seyreltilmiş su camına 3N H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> ilave edilerek pH'nın ilave edilen su camı miktarı ile deęişimi gözlemlendi. Bu deęerler grafiğe geçirilerek istenilen nötralizasyon yüzdesinin bulunmasında kullanıldı.

#### Hidrosolün Üç Boyunlu Küresel Kapta Hazırlanması

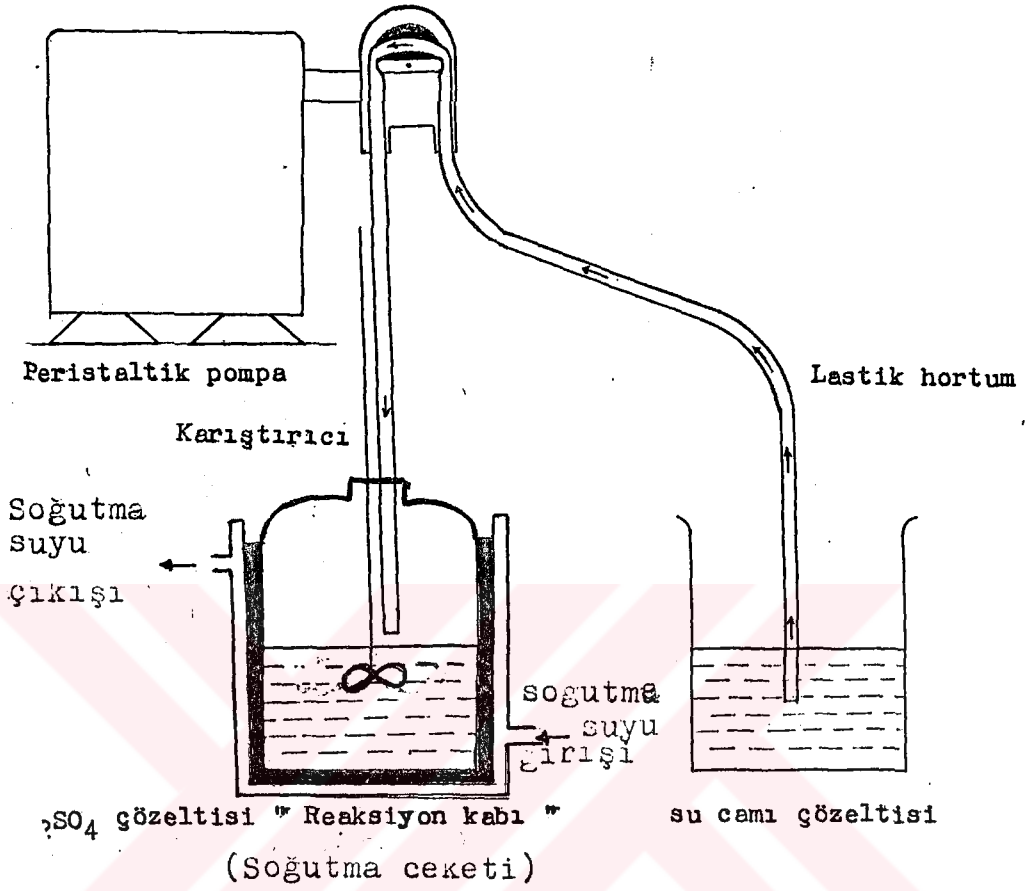
Reaktöre önce 1.3 litre 3N H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> çözeltisi konuldu. Karıştırıcı hemen çalıştırılmaya başlandı. Hemen sonra 280 ml/dak besleme hızındaki 1.7 litre su camı (% 5.6 Na<sub>2</sub>O, % 14.89 SiO<sub>2</sub>, % 79.49 H<sub>2</sub>O) beslemesi peristaltik pompo (Heildoph 380V, 75W) yardımıyla yapıldı. Reaksiyona girecek maddelerin ilk sıcaklıkları 25°C'a getirildi. Hazırlanan su camı çözeltisinin bitmesiyle 1.88 pH'ta 3 litrelik ana hidrosol çözeltisi hazırlanmış oldu. Hidrosol çözeltisinin sıcaklığı 35°C idi. Daha sonra 2 litrelik beherlere 500'er mililitre hidrosol çözeltisi alınarak 94, 172.5, 150, 267, 271.5 mililitre seyreltik su camıyla (% 0.66 Na<sub>2</sub>O, % 1.75 SiO<sub>2</sub>, % 97.59 H<sub>2</sub>O) pH'ları 2, 2.5, 2.76, 3 ve 4'e ayarlandı.

#### Hidrosolün Silindirik Kapta Hazırlanması

Deney Düzenegi şematik olarak Şekil 24'de gösterilmiştir. Bu reaktörde iki deney grubu yapılmıştır ve reaktör etrafındaki soğutma ceketi ile reaksiyon ısısı alınarak sol

sıcaklığı sabit tutulmuştur. İlk deney grubunda istenilen pH'larda hidrosol elde etmek için seyreltik su camı (% 0.66 Na<sub>2</sub>O, % 1.75 SiO<sub>2</sub>, % 97.59 H<sub>2</sub>O), ikinci deney grubunda ise istenilen pH'lar, hidrosolün elde edilmesinde kullanılan su camının derişiminde (%5.6 Na<sub>2</sub>O, %14.89 SiO<sub>2</sub>, %79.49 H<sub>2</sub>O) kullanıldı. Buradaki ilk deney grubunda yine 1.3 litre 3N H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> çözeltilisine 1.7 litre su camı çözeltilisinin 280 ml/dak debiy-le peristaltik pompa aracıyla beslenip, karıştırılması ile hidrosol elde edildi. Elde edilen solun sıcaklığı 22°C idi. Sonra yine 2 litrelik beherlere 500 er ml hidrosol alındı ve 90, 127, 165, 272.5 ml seyreltik su camı ilave edilerek pH'ları 2.5, 2.76, 3 ve 4.01'e ayarlandı

İkinci deney grubunda ise 1.3 litrelik 3N H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> çözeltilisine yine aynı koşullarda 1.3 litre su camının karıştırılarak ilave edilmesiyle hidrosol hazırlandı. Solun sıcaklığı 22°C idi. Yine 500 er ml hidrosol çözeltilisi alınarak aynı su camından 25.7, 38.8, 52.8 ve 63.3 ml karıştırılarak ilave edildi ve pH'ları 1.3 , 1.4, 1.6 ve 1.8'e ayarlandı.



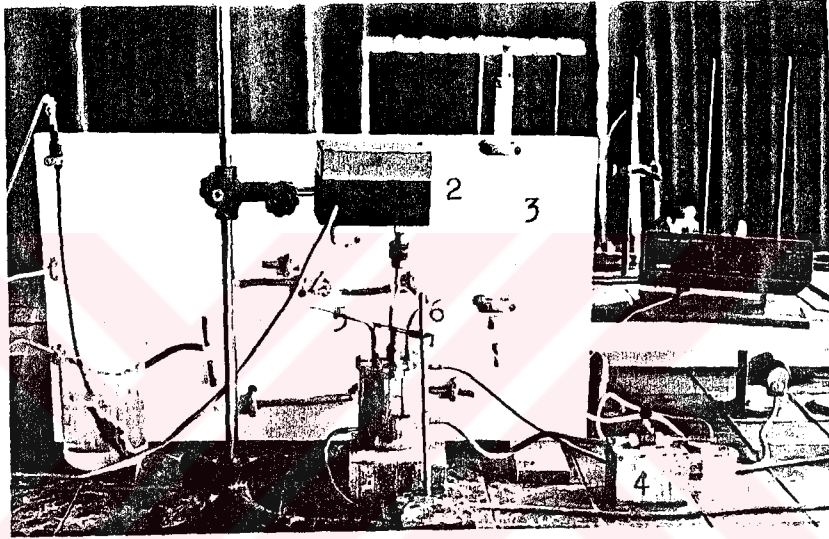
Şekil : 24 : Silikahidrosolün kesikli sistemde hazırlanışı.

### II.3.2.2 Hidrosolün Sürekli Sistemde Hazırlanması

Sürekli sistemde hidrosolün hazırlanması düzenegi, su camı pompası, asit pompası, reaktör, pervane, karıştırıcı, flowmetre, teflon vana vepH metreden oluşmuş olup deney düzeneginin bir resmi şekil 25'de verilmiştir.

Reaktör 2mm et kalınlığında paslanmaz çelikten olup 7.3 cm çapında ve 9.5 cm boyunda, 400 ml hacindedir. Reaktör bir soğutma ceketi ile çevrilidir. Soğutma ceketinin su girişi ve su çıkışı olmak üzere iki bağlantısı vardır. Reaktörden ürün çıkışı için bir bağlantı ve çıkış debisinin ayarlanması için bir teflon iğne vana bulunmaktadır. Kullanılan su camı pompası Heildoph, 380V, 75W, 0.18A 50 Hz. özelliklerindeki peristaltik pompadır. Asit pompası ise dakikada 0-14 ml sıvı pompalayabilen Coöe Parmer marka diyafram pompadır.

Karıştırıcı "220V, devir/dak: 80-2000. 28 Watt" özelliklerindeki Termal Kundel K.G. markadır. Pervane 5.3 cm çapında yatayla 25 derece açı yapan 2 kanatlı bir pervanedir. Pervane başlangıçta konulan 100 ml  $H_2SO_4$  ü karıştırabilecek şekilde dipten 2 cm yukarıda olup dönme hızı 240 devir/dak. dir. Flowmetre, Gilmont marka olup ölçme aralığı su için 0.2-35 ml/dak arasındadır.



Şekil 25 : Karıştırmanın sürekli sistemde sağlandığı deney düzeneginin görünüşü.(1- Reaktör, 2- Karıştırıcı, 3- Flowmetre, 4- Teflon vana, 5- Asit besleme 6- Su camı besleme, 7- PH metre)

Deneyler iki ayrı grupta yapılmıştır. Önce istenilen pH'ta (PH=1)hidrosol hazırlamak için flowmetre ile asit pompası 12.0 ml/dak, su camı pompası 12.5 ml/dak debiye ayarlandı. Daha sonra reaktöre 100ml 3N  $H_2SO_4$  konarak karıştırıcı çalıştırıldı. pH,1 olacak şekilde önce su camı pompası çalıştırıldı.PH,1 olduktan sonra asit pompasında çalıştırılarak sürekli akış sağlandı. Bu arada hemen reaktör çıkışındaki vana, daha önceden saptanan açıklıkta açılarak 24.5 ml/dak debide ürün çıkışı sağlandı.Böylece reaktörde 200 ml lik sü-

rekli karıştırılan bir çözelti sağlanmış oldu.

Buradan elde edilen hidrosollerden 2 litrelik beherlere 1'er litre konularak su camı ile pH'ları 1.5, 2.0, 2.5, 3.0, 3.36, 3.53 ve 3.65 olarak ayarlandı.

### II.3.3 Jelleşme

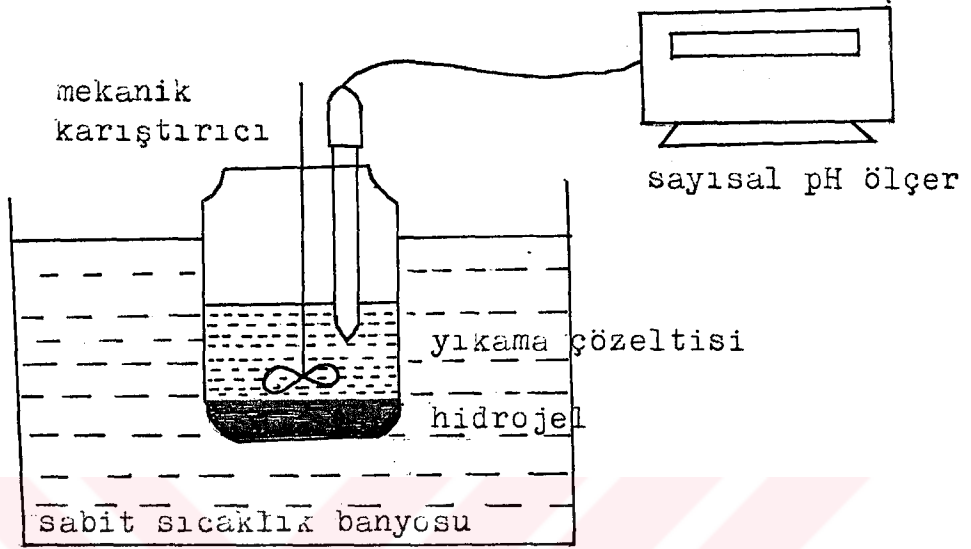
Jelleşme süresi, hidrosolün konulduğu kap eğildiğinde akamaz duruma geldiği an olarak saptandı.

### II.3.4 Silikahidrorojellerin Yıkama

Yıkama, yıkama kinetiğinin incelenmesi ve hidrojellerin yıkamasını içerir.

#### II.3.4.1 Yıkama Kinetiği

Yıkama kinetiğini incelemek için pH ayarı yapılan hidrosol çözeltilerinden, kesikli sistem ile elde edilenlerin 100'er mililitresi sürekli sistemde elde edilenlerin 50'er mililitresi 6 cm çapındaki kavanozlara konuldu. Bu kavanozlara konulan hidrosol 25°C'da sabit sıcaklık banyosunda jelleşmeye bırakıldı. Jelleştikten sonra şekil 26'da görüldüğü gibi kavanozun içine karıştırıcı ve cam elektrot daldırıldı. Karıştırıcı çalıştırılarak 200 ml saf su ilave edildi. Çözeltinin ilk pH değeri sayısal pH ölçerlerden okundu. Bundan sonrada 5'er dakika ara ile çözeltinin pH değerleri okundu.



Şekil 26 : Silikahidrojelî yıkama düzenegi.

#### II.3.4.2 Hidrojellerin Yıkaması

FH ayarı yapılan hidrosellerin bir kısmı yıkama kine-tiği ve kuruma deneyleri için ayrıldıktan sonra geri kalan kısmı jelleşmeye bırakıldı. Jelleştikten sonra su kaybı ne-deniyile parçalanmaya başlayan jel ortalama 2cmX2cmX2cm bo-yutlarında elle parçalandı. 500ml hidrosol alınarak pH aya-rı yapılan kesikli sistemdeki hidrojeller, 250 ml saf su i-le her yarım saatte bir suyu değiştirilerek, sürekli sistem-de pH 1 ve 2.0 aralığında hazırlanan jeller 500 ml pH 2.5-4.0 aralığında hazırlanan jeller 750 ml saf su ile her yarım saatte bir suyu değiştirilerek yıkandı.

### II.3.5 Silikahidrorojellerin Kurutulması

#### II.3.5.1 Kuruma Kinetiği

Kuruma kinetiğini incelemek için 100 er mililitrelik hidrosol çözeltisi 11 mm çapındaki petri kaplarında jelleştirildi. Kesikli sistemde üç boyunlu küresel kapta oluşturulan silikahidrorojellerin kurutma kinetiği deneyleri yıkanmadan, sürekli sistemde nazırlanan silikahidrorojeller ise 2 gün boyunca 1.5 lt saf suda bekletilip içindeki asit ve tuzlarından yıkanarak, 100°C a ayarlanmış Fischer tepsili kurutucuda her 45 dakikada bir tartım alınmak suretiyle kurutuldu. Bu sırada silikahidrorojellerin büzülerek kuruduğu ve parçalanarak taneciklendiği gözlemlendi.

#### II.3.5.2 Hidrojellerin Kurutulması

Silikahidrojeller, 100°C ayarlanmış Fischer tepsili kurutucuda kristalizuarlarda , 60-67°C katı sıcaklığında kurutuldu. Bu arada kurutucuya giriş sıcaklığı 19-29°C arasında değişirken çıkış sıcaklığında 81-89°C arasında değişmiştir. Hava debisi 9.9 kg/s olarak seçilmiştir. Aynı koşullarda saf suyunda buharlaşma hızı saptanmıştır.

#### II.3.6 Silikajellerin Yüzey Alanının Ölçülmesi

Yüzey alanı ölçümleri için Fischer area-meter kullanılmıştır. Aletin çalışma prensibi Branauner, Emmet ve Teller'in (BET) düşük sıcaklıkta azot adsorbsiyonuna dayanır.

Oda sıcaklığında örneğin adsorblanmış olduğu tüm yabancı molekülleri uzaklaştırmak için, örneği içeren ölçme şişeleri ısıtıcıda 150°C'ye azot gazı geçirilerek (en az 2 saat) temizlendi.

Ölçme gazı azot, soğuk banyo ise sıvı azottur. Ölçme prensibi, aynı hacimde iki cam adsorbsiyon kabının kullanılmasına dayanır. Ölçme kabına örnek konur, referans kabı ise boş kalır. Her iki kaptada sıcaklığındaki azot ile doldurulur. Soğuk banyoda sıvı azot sıcaklığına kadar soğutulur. Örnekteki azot adsorbsiyonu referans ve örnek kabı arasında basınç farkı olarak diferansiyel manometreden okunur. Yüzey

alanı (18) nolu denklemden **bülunür.**

### II.3.7 Silikajellerin Nem Çekiciliđi

Surekli sistemde elde edilen silikahidrojellden 1 er gram tartılarak küçük cam şişelere konuldu. Bu silikajeller, 25°C'da doymuş NH<sub>4</sub>Cl çözeltisi ile dengede olan % 70-80 bağıl nemde 1 hafta bekletildi. Daha sonra tartılarak adsorbladıkları nem miktarı saptandı.

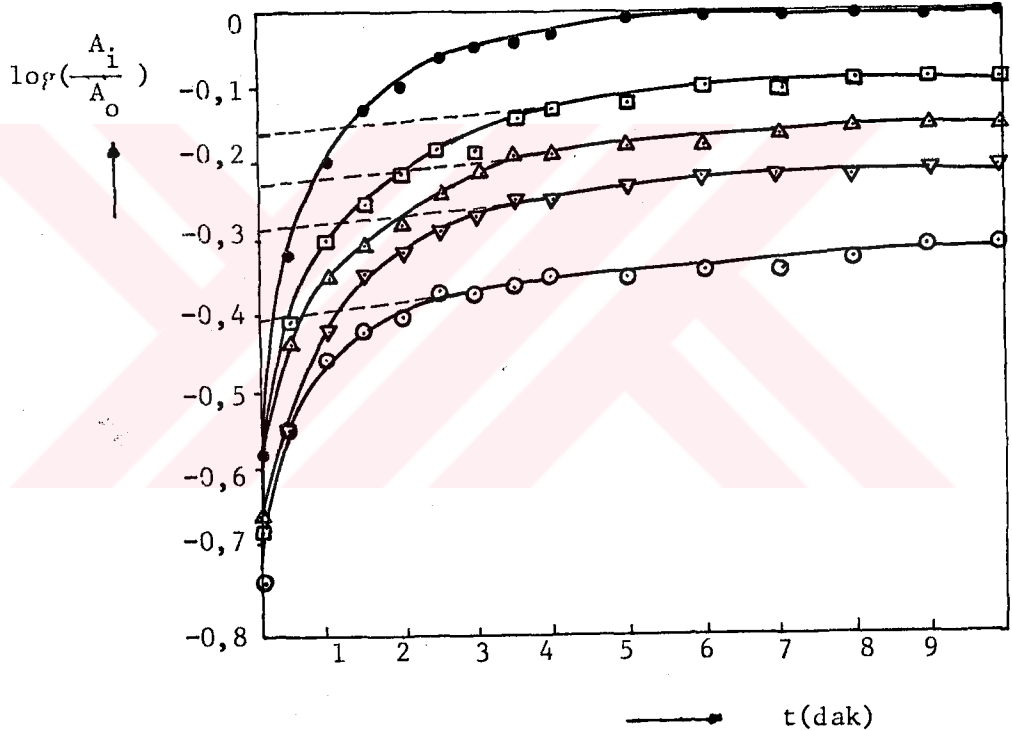


### III. DENEYSEL BULGULAR VE TARTIŞMA

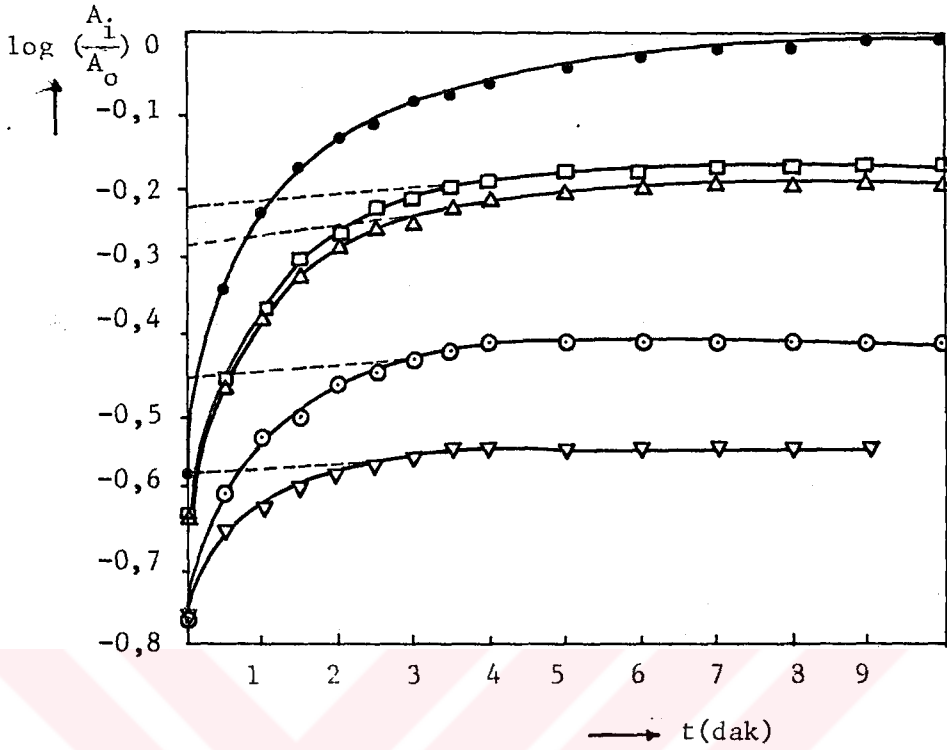
#### III.1. Polimerleşme Kinetiği

Çözünebilir silika, molibdik asit ile reaksiyona girerek sarı silikamolibdik asit kompleksini oluşturur. Silikamolibdik asit kompleksinin oluşumu, silikanın polimerleşme derecesini ve reaksiyon hızının saptanmasını sağlar.

% 0.1 derişimde  $\text{SiO}_2$  içeren su camının ve 4 ayrı pH' taki (1,2,3,4) silikahidrosolunun 20 ve 30°C'da amonyum molibuatla olan renk reaksiyonu, 410 nm'de spektrofotometrede okunan absorbans değerleriyle incelendi.



Şekil 27 : 20°C daki su camının ve değişik pH'lardaki silikahidrosolün molibdik asitle reaksiyonu.(●: su camı, ○: pH=1, □: pH=2, △: pH=3, ▽: pH=4)

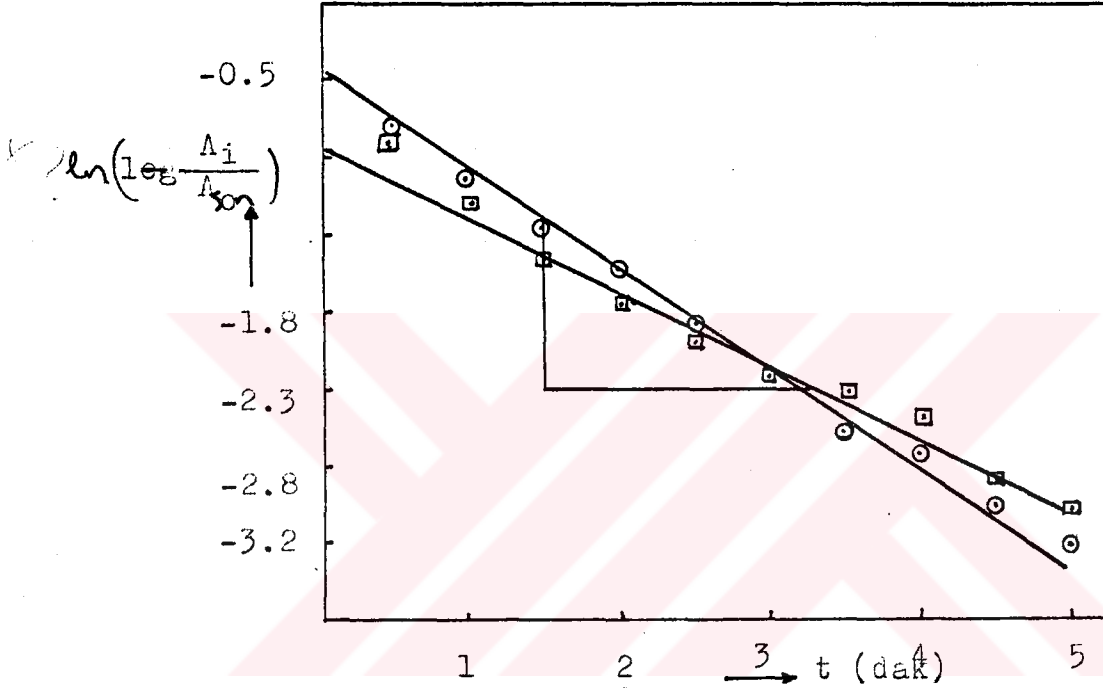


Şekil 28 : 30°C daki su camının ve değişik pH'lardaki silikahidrosolün molibdik asitle reaksiyonu. (●: su camı, ○: pH=1, □: pH=2, △: pH=3, ▽: pH=4)

Şekil 27 ve şekil 28'de olduğu gibi zamana karşı  $\log \frac{A_1}{A_0}$  grafiğe geçirildi. Burada  $A_1$ , örnek için her t dakikasında okunan absorbands değeri,  $A_0$  ise su camı için okunan son absorbands değeridir. Yani  $A_0$ , ortamda oluşabilecek tüm silika-molibdik asit derişimini,  $A_1$  ise o anda oluşan silikamolibdik asit derişimini gösterir. Oluşan silikamolibdik asit derişimi, ortamdaki silisilik asit derişimi ve monomer derişimi ile orantılı olduğu için 27 ve 28. şekillerdeki eğrilerin doğrusallaştığı yerden çizilen tegetlerin sıfır zamana ektropole edilmesi ile çözeltideki monomer derişimi bulundu. Dört ayrı pH'ta ve 2 ayrı sıcaklıkta oluşturulan silikahidrosollerin amonyum molibdatla olan reaksiyonları 10 gün süresince izlenerek çözeltideki monomer derişimleri bulundu.

Şekil 27 ve 28'deki su camı eğrilerinden ve (2) denkleminden yararlanarak zamana karşı  $\ln(1 - \frac{A_t}{A_{son}})$  şekil 29'da olduğu gibi grafiğe geçirilip eğrilerin eğimlerinden sarı

silikamolibdik asit kompleksi oluşumu için 20 ve 30°C 'daki reaksiyon hız sabitleri 0.61 dak<sup>-1</sup> ve 0.45 dak<sup>-1</sup> olarak bulundu. Buradaki A<sub>t</sub> su camı için her t dakikasında ölçülen absorbans değeri, A<sub>son</sub> ise su camı için son t değerinde okunan absorbans değeridir. Reaksiyon hız sabitisi sıcaklıkla artmalıdır. Buradaki azalma reaksiyonu mekanizmasındaki bir farklılığa işaret etmektedir.



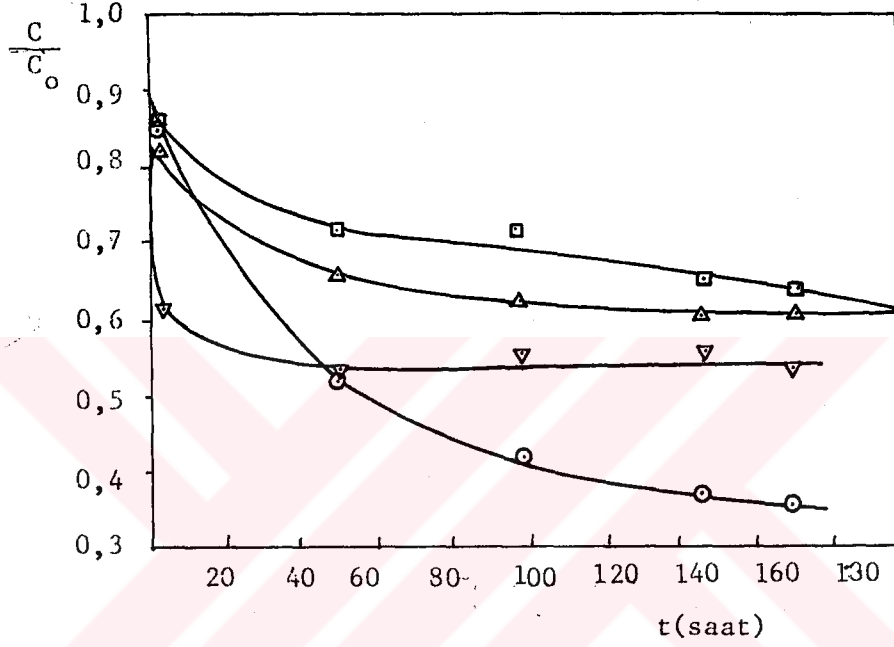
Şekil 29 : 20 ve 30°C'daki özgül reaksiyon hız sabitlerinin bulunuşu. (○:20°C, □:30°C)

(2) nolu denklemin integrasyonu sonucu  $-\ln \frac{P_x}{P_0} = kt$  çıkar. Burada P<sub>x</sub> herhangi bir andaki monomer derişimi, P<sub>0</sub> ise başlangıçtaki monomer derişimidir. (A<sub>son</sub> - A<sub>t</sub>) değeri t anındaki monomer derişimi ile orantılı olduğundan  $\frac{P_x}{P_0}$  değeri  $\frac{A_{son} - A_t}{A_{son}}$  değerine eşittir.

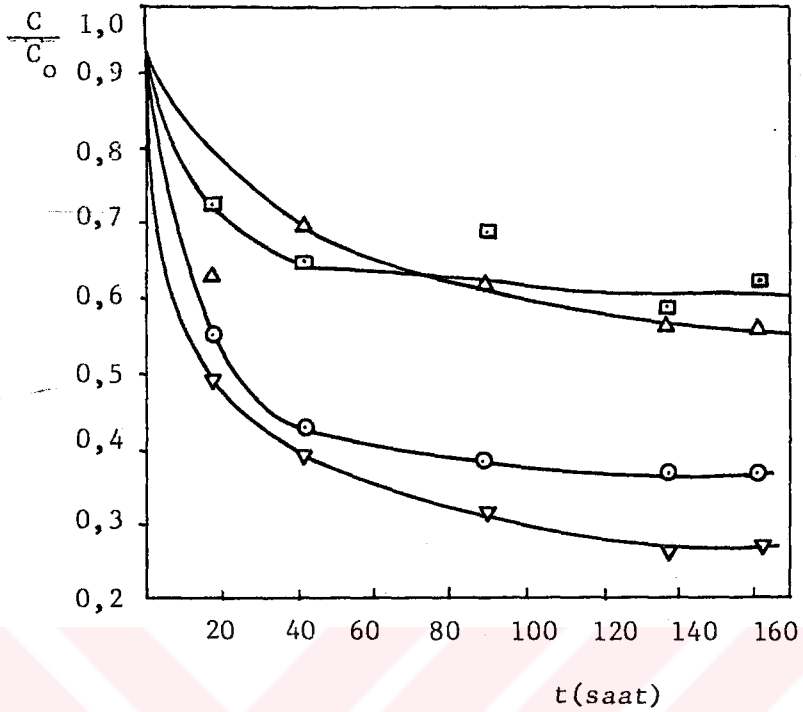
Bulunan k değerleri için Tablo 3'den incelenen su camı örneğinde monomer yerine tetramer ve oktomer olduğu bulundu. Şekil 13'den bulunan k değerleri 0.61 dak<sup>-1</sup> ve 0.45 dak<sup>-1</sup>, SiO<sub>2</sub> polimerinin molekül ağırlığı yaklaşık 450 olarak okundu. Su camı içinde SiO<sub>2</sub> nin polimerizasyon derecesi,

$$\text{Polimerizasyon Derecesi} = \frac{\text{Molekül ağırlığı}}{\text{Tekrar birim ağırlığı}} \dots\dots-30-$$

denkleminde 7.4 olarak bulundu. Asit katılmasıyla tetramer ve oktamerlerde polimerleşecektir.

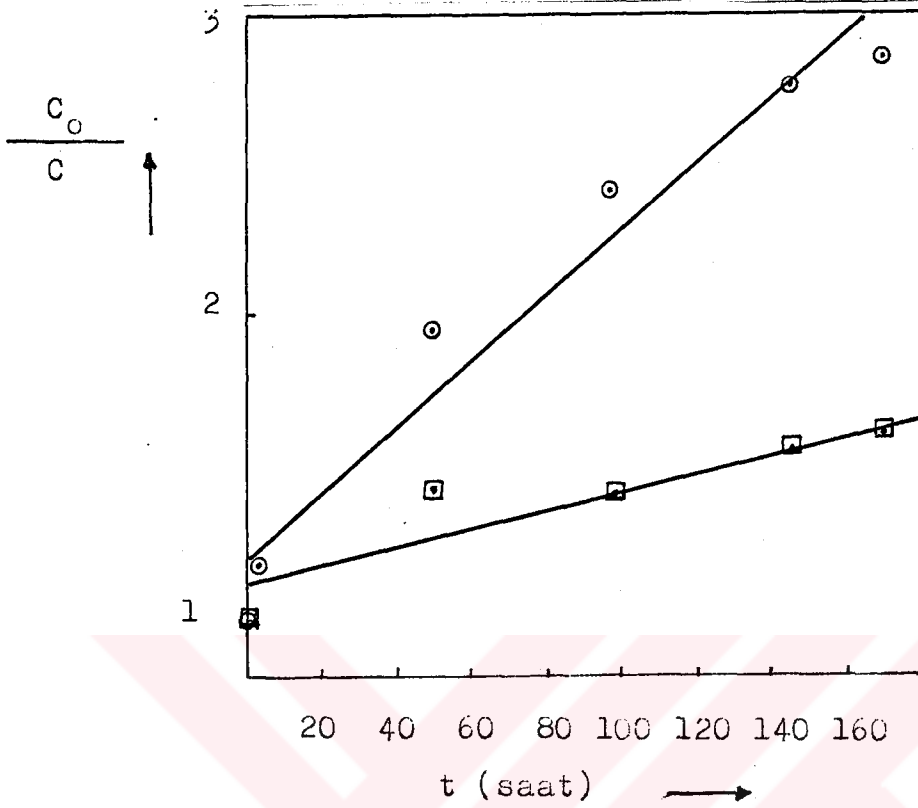


Şekil 30 : 20°C'da çözeltideki monomer kesrinin zamanla değişimi. (○: pH=1, □: pH=2, △: pH=3, ▽: pH=4)



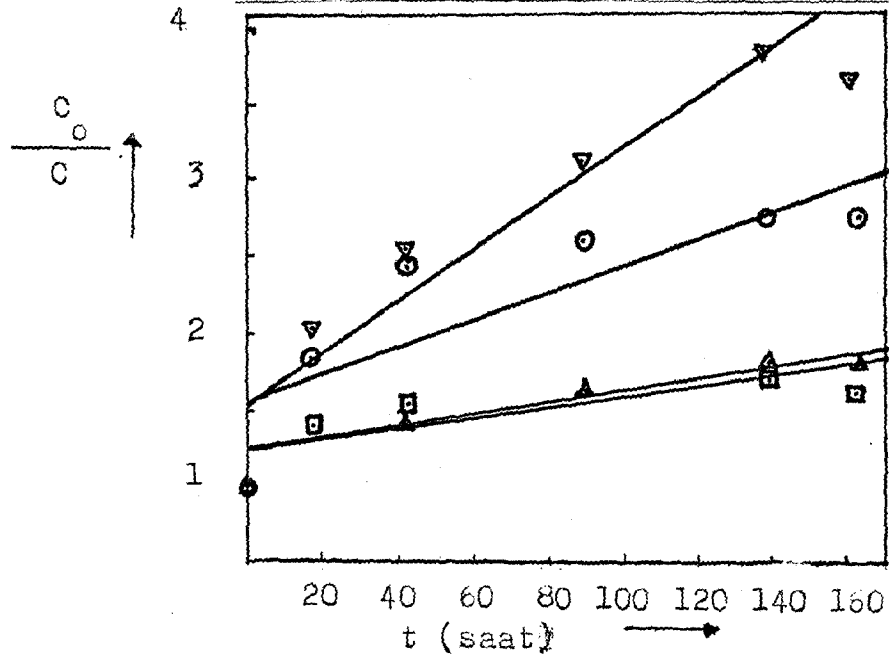
Şekil 31 : 30°C'da çözeltideki monomer kesrinin zamanla değişimi. (○:pH=1, □:pH=2, △:pH=3, ▽:pH=4)

Şekil 30 ve 31'de zamana karşı  $C/C_0$  değerleri grafiğe geçirildi. Burada  $C_0$  başlangıçtaki monomer derişimi,  $C$  ise herhangi bir andaki monomer derişimidir.  $C/C_0$  değeri  $A_1/A_0$  değerine,  $C$ 'de  $\frac{1}{A_0} \times C_0$  değerine eşittir.  $C_0$  ise %0.1  $SiO_2$  içeren ve moleköl ağırlığı 450 gr/mol olan tetramer ve oktamer karışımından  $2.22 \times 10^{-3}$  mol/lt olarak bulundu. Şekil 30 ve 31'deki eğriler, linsen, Boer ve Okkerse'nin (1960) çalışmalarında gösterdikleri şekil 10'daki eğrilerle uyum içindedir.



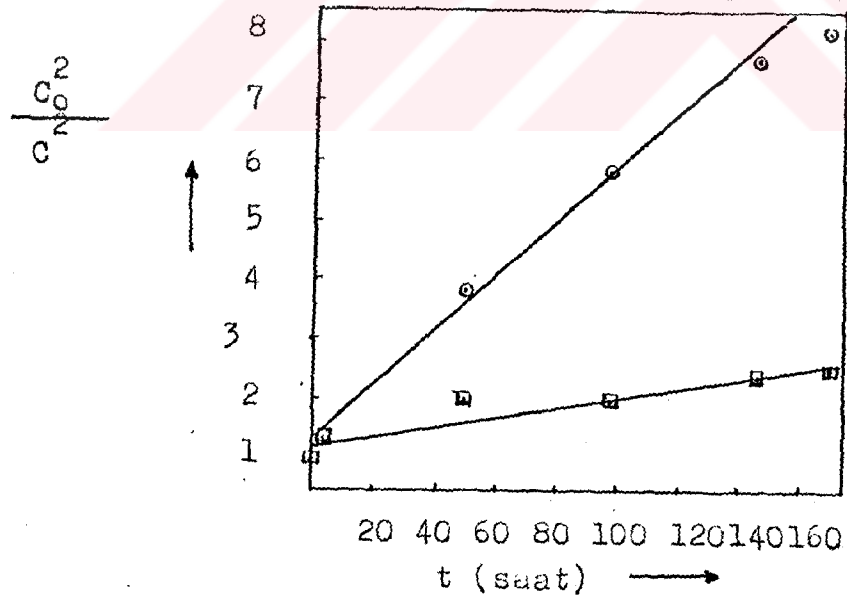
Şekil 32 : 20°C`da pH`a göre zamanla  $C_0/C$  nin değışımi (○:pH=1, □:pH=2)

Şekil 30 ve 31`den yararlanarak Şekil 32 ve 33`de  $C_0/C$  değerleri zamana karşı grafiğe geçirildi.

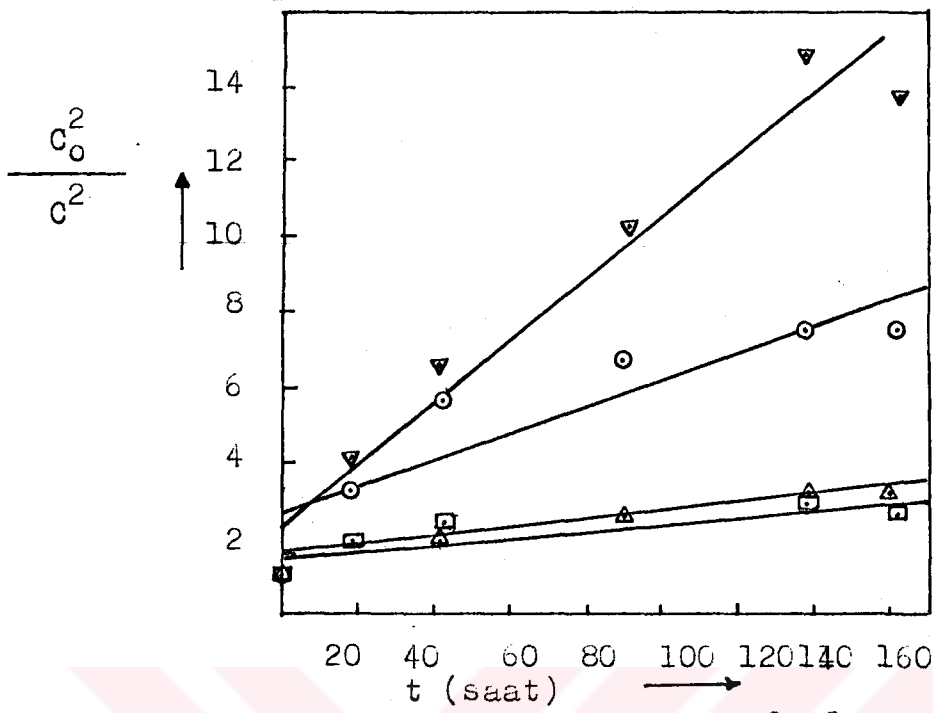


Şekil 33 : 30°C'da pH'a göre  $C_0/C$  nin zamanla değişimi. (○:pH=1, □:pH=2, △:pH=3, ▽:pH=4)

Şekil 34 ve 35'de  $C_0^2/C^2$ , zamana karşı çizildiğinde doğrusal bir ilişkinin olması reaksiyonun 3. mertebe olduğunu gösterir.



Şekil 34 : 20°C'da pH'a göre  $C_0^2/C^2$  nin zamanla değişimi. (○:pH=1, □:pH=2)



Şekil 35 : 30°C'da pH'a göre  $C_o^2/C^2$  nin zamanla değişimi. ( ○: pH=1, ◻: pH=2, △: pH=3, ▽: pH=4)

Zamana karşı  $C_o/C$  ve  $C_o^2/C^2$  değerlerini grafiğe geçirdiğimizde doğruların  $t=0$ 'da eksenini kesim noktasının 1 olması gerekirdi. Bizim grafiklerimizdeki doğruların hiç birinin  $t=0$ 'da 1 noktasından geçmemesini, çözeltilerin hazırlanmasıyla ilk ölçümün yapıldığı an arasında polimerizasyon reaksiyonunun hızlı olmasıyla açıklayabiliriz. Ayrıca başlangıç değişiminin polimerizasyon reaksiyonunun hızını büyük ölçüde etkilediğini söyleyebiliriz.  $C_o^2/C^2$  nin zamanla doğrusal değişiminin korelasyon katsayısı,  $C_o/C$  nin zamanla doğrusal değişiminin korelasyon katsayısından daha büyük olduğu için reaksiyonların tümünün 3. mertebeden olduğuna karar verildi. 2. ve 3. mertebe kabul edilerek bulunan  $kC_{Ao}$  ve  $kC_{Ao}^2$  değerleri korelasyon katsayıları ile birlikte Tablo 5'de gösterildi.



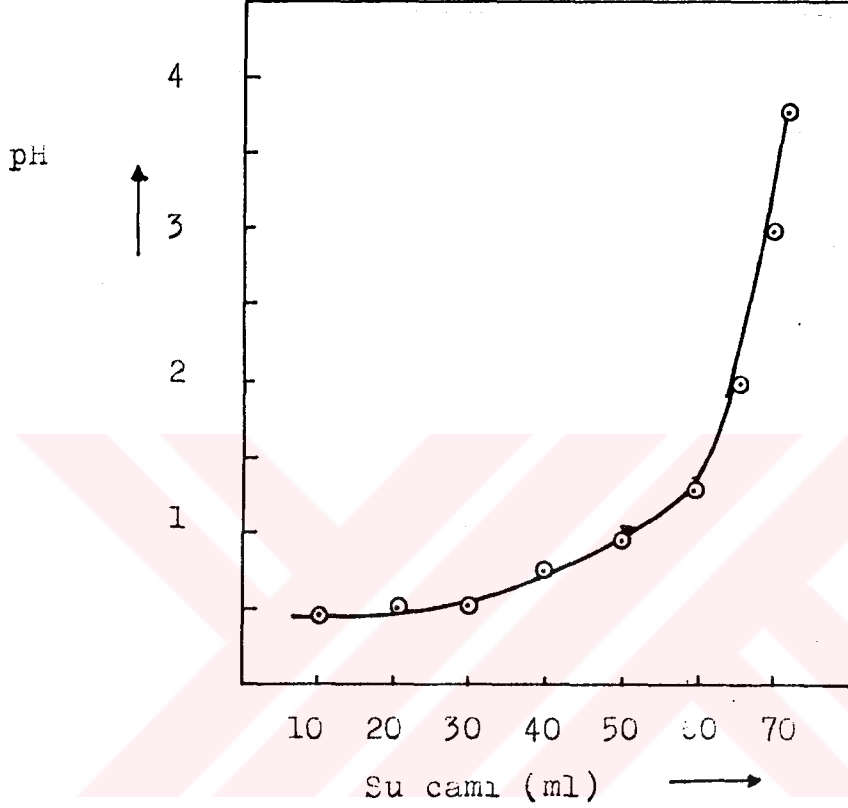
Tablo 5 :  $C_0=2.22 \times 10^{-3}$  mol/lt için 20 ve 30°C daki  $kC_0$  ve  $kC_0^2$  degerleri(t,saat)

T(°C)	PH	2.mertebe hız sabiti $\times C_0$	Kesim noktası	Korelasyon katsayısı	3.mertebe hız sabiti $\times C_0^2$	Kesim noktası	Korelasyon kat sayısı
20	1	$1.1 \times 10^{-2}$	1.19	0.98	$2.15 \times 10^{-2}$	1.33	0.99
20	2	$2.9 \times 10^{-3}$	1.12	0.93	$3.8 \times 10^{-3}$	1.27	0.94
30	1	$8.9 \times 10^{-3}$	1.55	0.85	$1.8 \times 10^{-2}$	2.61	0.89
30	2	$2.95 \times 10^{-3}$	1.23	0.79	$4.05 \times 10^{-3}$	1.53	0.81
30	3	$3.76 \times 10^{-3}$	1.25	0.83	$0.55 \times 10^{-2}$	1.61	0.87
30	4	$1.55 \times 10^{-2}$	1.56	0.94	$4.02 \times 10^{-2}$	2.36	0,97

Alexander (1954) 1.9°C'de pH 2 nin altında polimerizasyon 3.mertebe bir kinetik izlediğini, linsen, Boer, Okkerse'de (1960) pH 2 nin altında 3. mertebe bir kinetik izlediğini göstermişlerdir. Bizim yaptığımız deneylerde ise mertebenin pH'a bağlı olmadığı ve tüm pH'larda 3. mertebeden bir kinetik izlediği görülmüştür. Baumann(1958) ise 4. mertebe bir kinetik izlediğini göstermiştir. Görüldüğü gibi literatürde bile birbiriyle uymayan sonuçlar vardır. Literatür sonuçlarının böyle olması değişik koşullarda çalışmaktan kaynaklanmaktadır. Bu nedenle bu kinetik inceleme bizim koşullarımızda reaksiyon hız sabitlerini verdiğinden çok yararlı olmuştur.

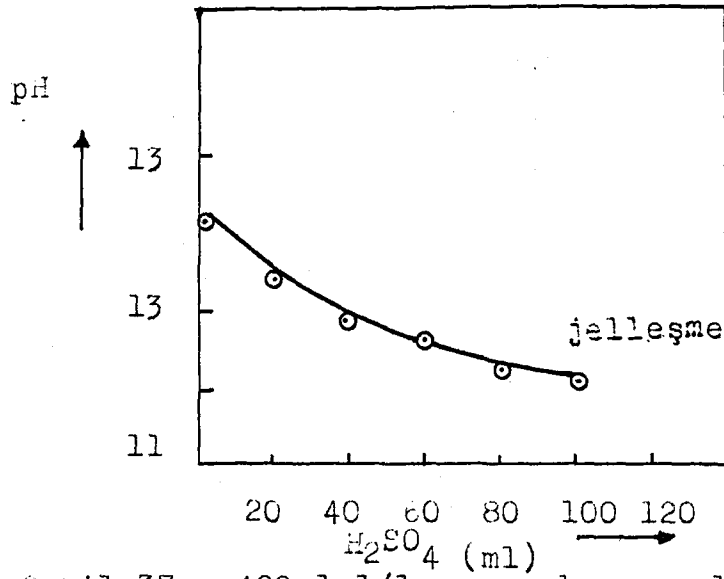
### III.2.Karıştırma

Önce pH'ın su camı ve asit miktarları ile değişimini belirlemek için belirli hacimde 3N asit 1:1 oranında seyreltilmiş su camıyla, daha sonra belirli hacimde 1:1 su camıda 3N asitle titre edildi.

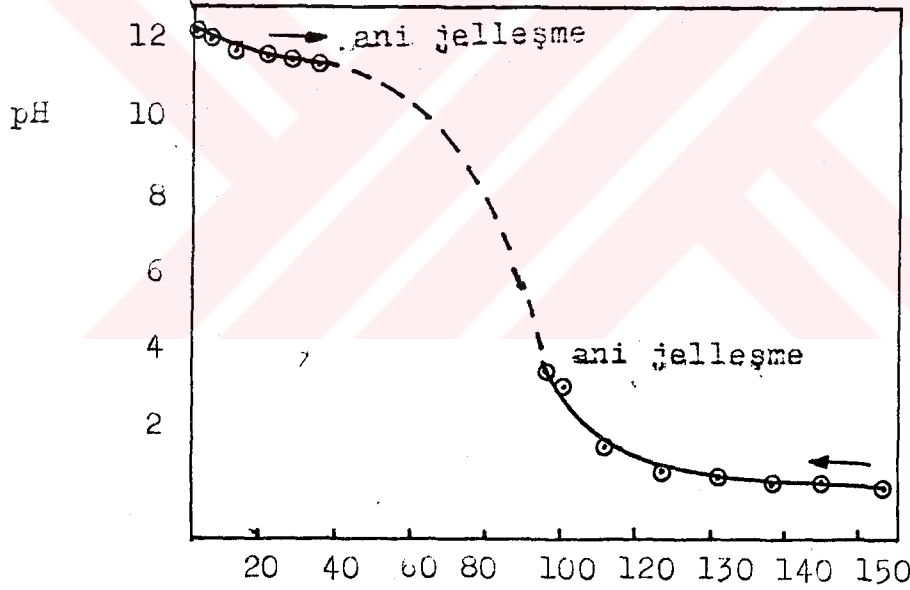


Şekil 36 : 50 ml 3N  $H_2SO_4$  çözelti pH'ının katılan su camı miktarı ile değişimi.

Şekil 36 da katılan su camı ile şekil 37 de ise katılan asit ile pH'ın değişimi verilmiştir.



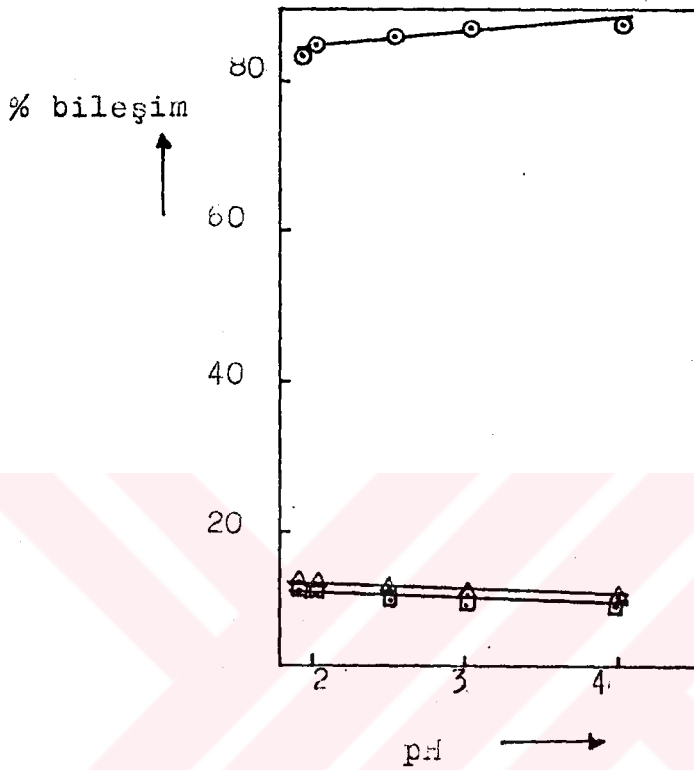
Şekil 37 : 400ml 1/1 oranında seyreltilmiş su camının pH'nın katılan asit miktarı ile değişimi.



Şekil 38 : pH'in % nötralizasyonla değişimi.

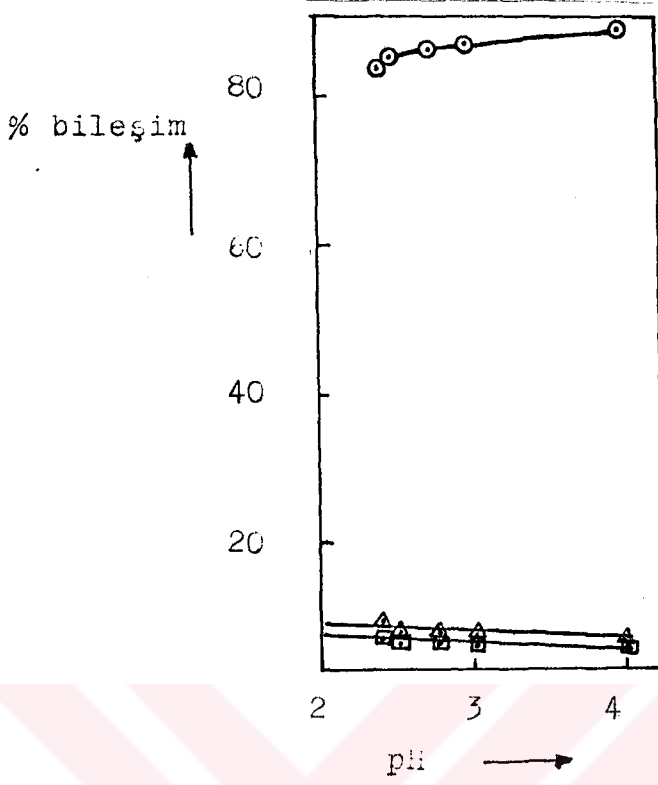
Şekil 36 ve 37'den yararlanarak her pH değerindeki % nötralizasyon değerleri hesaplanıp Şekil 38'de görüldüğü gibi yüzde nötralizasyon değerlerine karşı pH değerleri grafiğe geçirildi.

Daha sonra her deney için kütle denklilikleri kurularak bileşen içerikleri hesaplandı. Şekil 39, 40, 41 ve 42'de hidrojellerde  $\text{SiO}_2$ ,  $\text{Na}_2\text{SO}_4$  ve  $\text{H}_2\text{O}$  yüzdesinin pH ile değişimleri gösterilmiştir.

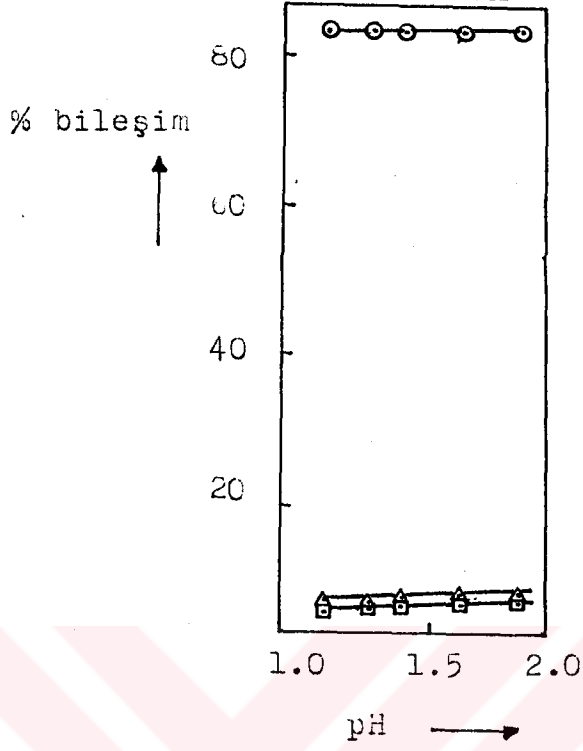


Şekil 39 : Üç boyunlu balon tipli kesikli reaktörde elde edilen silikahidrosollerin  $\text{SiO}_2$ ,  $\text{Na}_2\text{SO}_4$  ve  $\text{H}_2\text{O}$  cinsinden % bileşimlerinin pH'a göre değişimi. (●: %  $\text{H}_2\text{O}$ , ◻: %  $\text{Na}_2\text{SO}_4$ , ▲: %  $\text{SiO}_2$ )

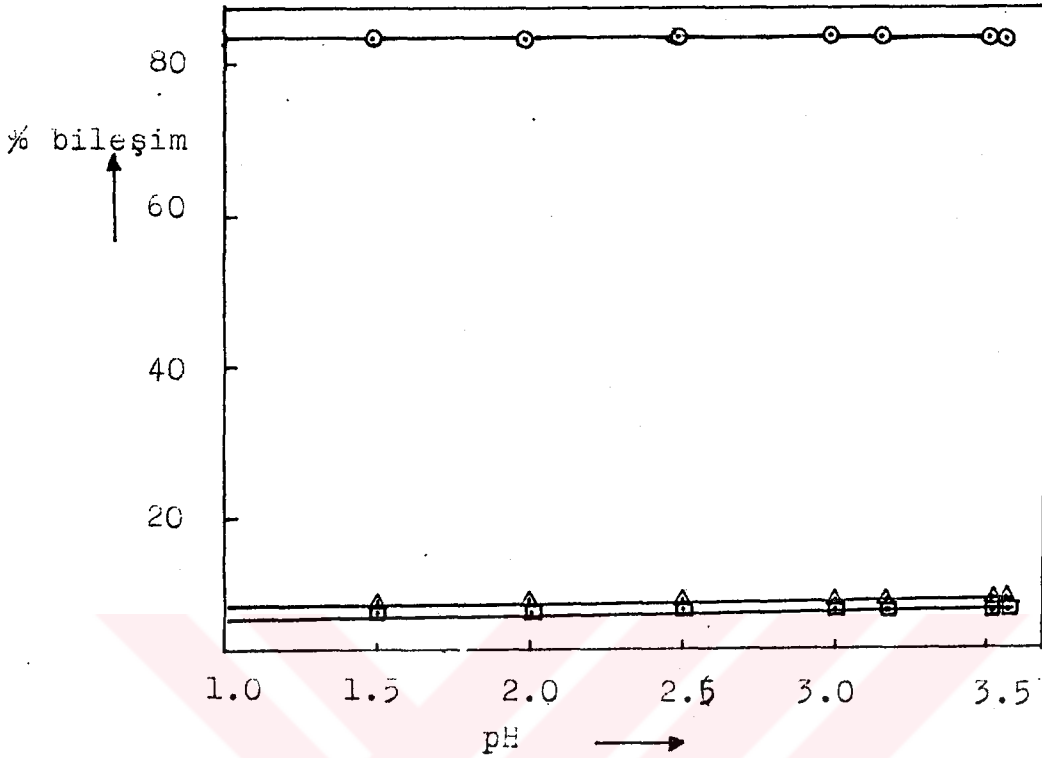
Şekil 39 ve 40'da görüldüğü gibi artan pH'la %  $\text{SiO}_2$  ve %  $\text{Na}_2\text{SO}_4$  azalmakta, %  $\text{H}_2\text{O}$  azda olsa artmaktadır. Çünkü bu iki deney grubunda sonradan yapılan pH ayarlamaları çok seyreltik su camıyla yapılmıştır. pH ayarlamaları aynı su camıyla yapılsaydı şekil 41'deki gibi artan pH'la azda olsa artan  $\text{SiO}_2$  yüzdesi elde edilecekti.



Şekil 40 : Silindir tipli kesikli reaktörde elde edilen silikahidrosollerin SiO<sub>2</sub>, Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> ve H<sub>2</sub>O cinsinden % bileşimlerinin pH'a göre değişimi. (○:%H<sub>2</sub>O, △:%SiO<sub>2</sub>, □:%Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>)



Şekil 41 : Silindir tipli kesikli reaktörde elde edilen silikahidrosollerin SiO<sub>2</sub>, Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> ve H<sub>2</sub>O cinsinden % bileşimlerinin pH'a göre değişimi. (○:%H<sub>2</sub>O, △:%SiO<sub>2</sub>, □:%Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>)



Şekil 42 : Sürekli sistemde değişik pH'larda elde edilen silikahidrosollerin SiO<sub>2</sub>, Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> ve H<sub>2</sub>O cinsinden % bileşimlerinin pH'a göre değişimi. (○:%H<sub>2</sub>O, ▲:%SiO<sub>2</sub>, ◻:%Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>)

Şekil 41 ve Şekil 42'de artan pH'la % SiO<sub>2</sub> ve % Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> derişimleri çok azda olsa artmaktadır. Çünkü pH ayarlamaları silikahidrosolu oluşturan su camıyla yapılmıştır.

### III.3. Jelleşme Süresi

Jelleşme, genellikle gece olduğu için jelleşme süreleri tam olarak saptanamadı. pH'a göre jelleşme süresinin değişimi, jelleşme süresi aralığı olarak Tablo 6'da gösterildi. Jelleşme süresinin artan pH'la azaldığı, pH 4 civarında anında jelleşme olduğu gözlemlendi. Merril ve Spencer (1949) daha seyreltik silikahidrosollerde çalıştığından pH 4 civarında jelleşme süresini 1.5 saat civarında saptamışlardır. Rao ve Nayari'de (1978) pH 4 civarında jelleşme süresini 1.5 saatte bulurken pH 7 civarında anında jelleşme olduğunu saptamışlardır. Biz onlara göre daha derişik silikahidrosollerde çalış-

tiğimiz için pH 4 civarında gözlenen ani jelleşme uygundur. Çünkü Merril ve Spencer'in (1949) çalışmalarında da artan  $\text{SiO}_2$  yüzdesiyle jelleşme süresi azalmaktadır.

Tablo 6 : Sürekli sistemde elde edilen silikahidrosollerin jelleşme süresinin pH'la değişimi.

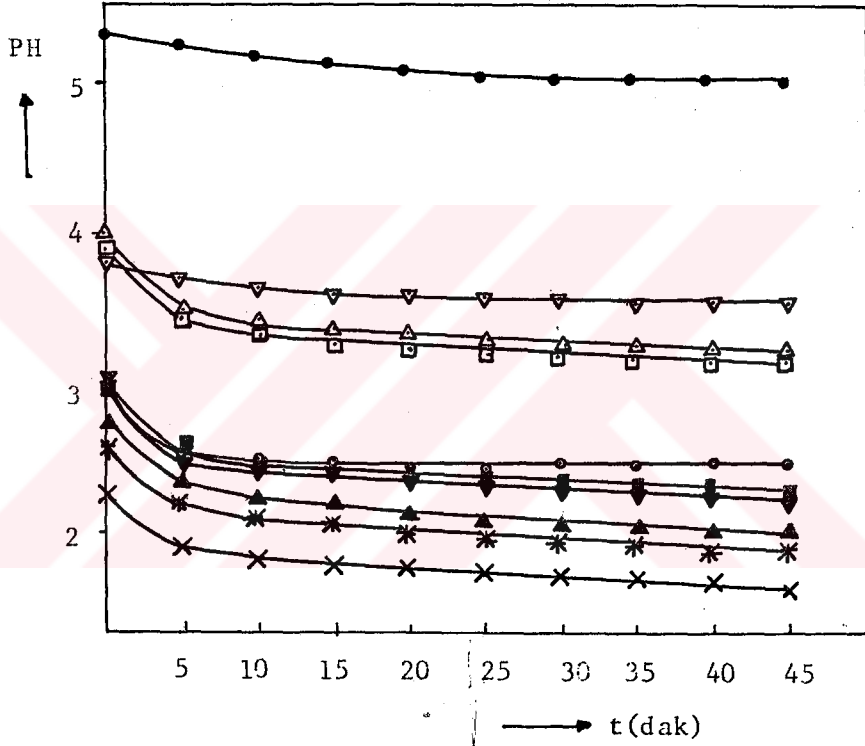
PH	Jelleşme Süresi
1.0	6-20 saat
1.5	6-20 saat
2.0	6-20 saat
2.5	2-18 saat
3.0	2-18 saat
3.36	1.5 saat
3.53	5 dakika
3.65	5 dakika
4.00	anında



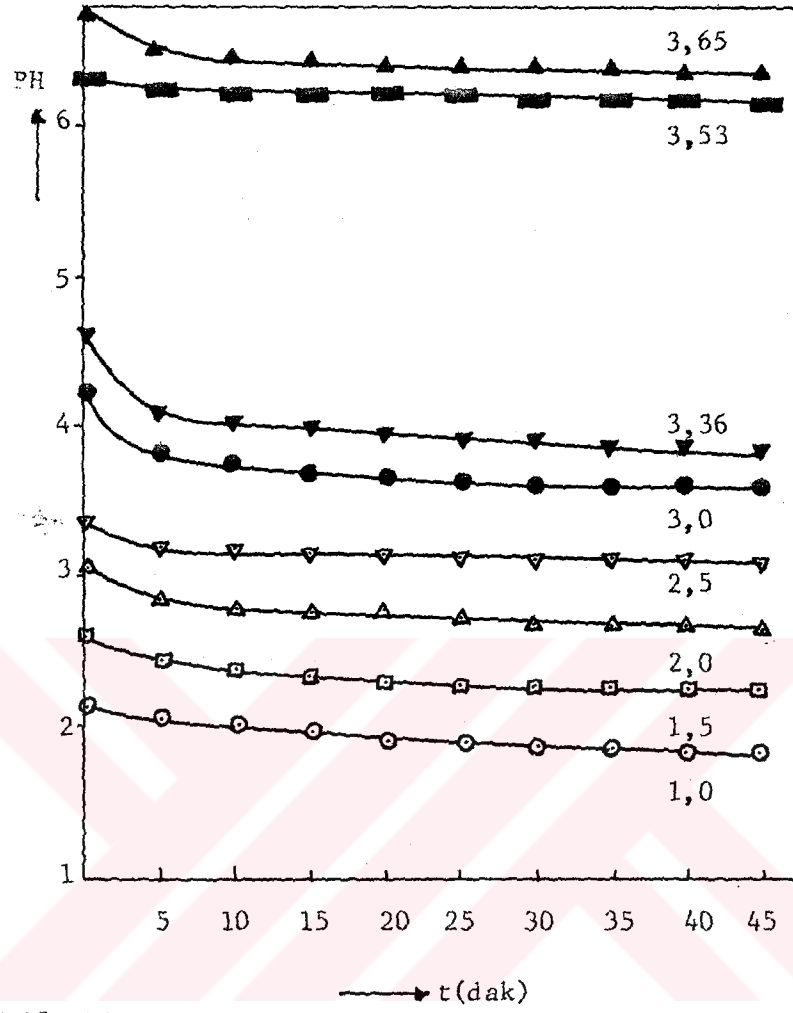
### III.4. Yıkama

#### III.4.1 Yıkama Kinetiği

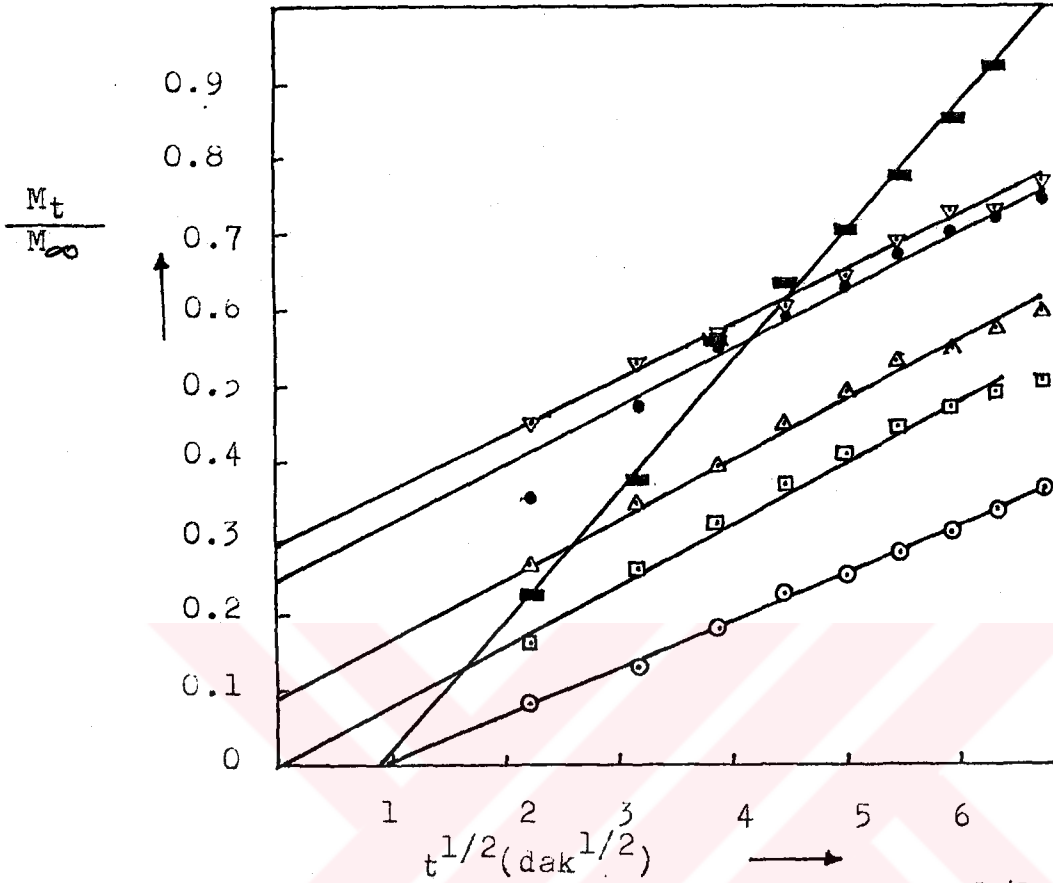
Yıkama, yıkama kinetiğinin incelenmesi ve hidrojellerin yıkanması olarak 2 ayrı şekilde yapıldı. Şekil 43 ve 44'de yıkama kinetiği deneylerinde pH'nın zamanla değişimi gösterildi. PH'nın artık zamanla değişmediği pH değeri, sonsuz pH değeri olarak alındı. Herhangi bir andaki proton derişiminin sonsuz süre sonundaki proton derişimine oranının zamanla değişimi şekil 45 de gösterilmiştir.



Şekil 43 : Kesikli sistemde elde edilen hidrojellerin yıkanması sırasında pn'nin zamanla değişimi. (○: pH=2, ◻: pH=2.5, △: pH=2.76, ▽: pH=3.0, ●: pH=4, ■: pH=1.8, ▲: pH=1.4, ▼: pH=1.6, \*: pH=1.3, x: pH=1.14)



Şekil 44 : Sürekli sistemde elde edilen hidrojelilerin yıkanması sırasında pH'ın zamanla değişimi. (○:pH=1.0, □:pH=1.5, △:pH=2.0, ▽:pH=2.5, ●:pH=3.0, ▼:pH=3.36, ■:pH=3.53, ▲:pH=3.65)



Şekil 45 : Yıkama deneyinde  $M_t/M_\infty$  un  $t^{1/2}$  ile değişimi. (○:pH=1.0, □:pH=1.5, △:pH=2.0 ▽:pH=2.5 ●:pH=3.0 ■:pH=3.53)

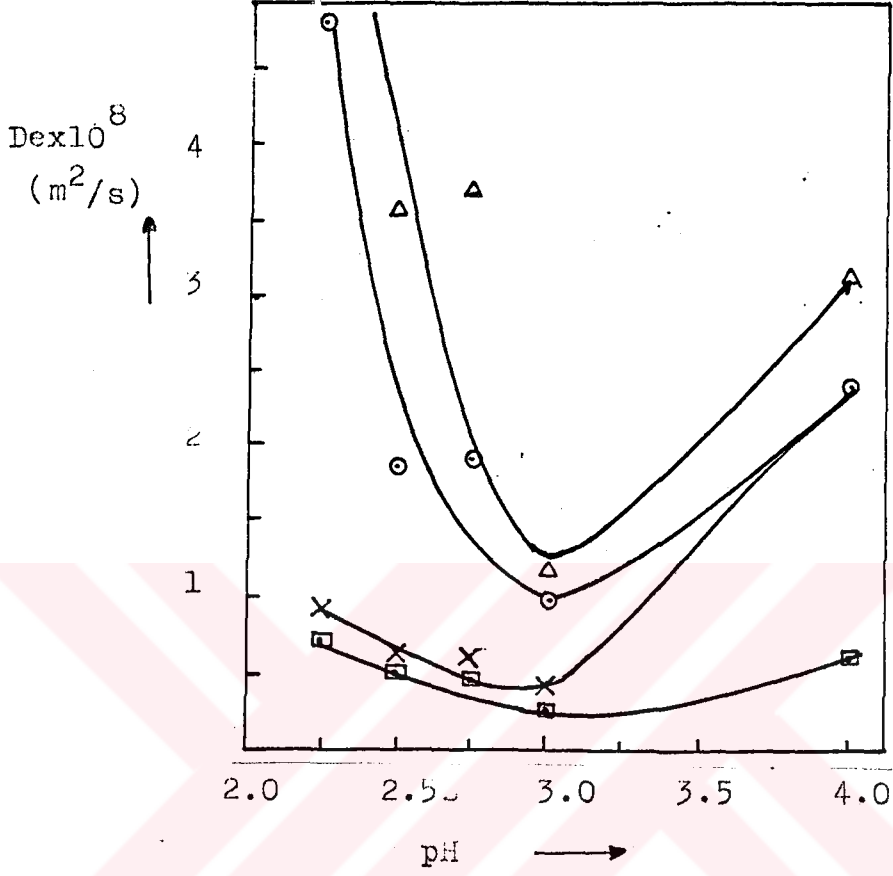
Şekil 45'de herhangi bir andaki proton derişiminin sonsuz proton derişimine oranı zamanın kareköküne karşı çizildiğinde aralarında 0.97-0.99 korelasyon katsayısı ile gösterilen doğrusal bir ilişki olduğu görüldü. Fakat  $t \rightarrow 0$ 'da eksenini kesim noktaları bazı deneyler için 0.02 gibi sifıra çok yakın olmasına karşın bazı deneylerde 0.2-0.3 olduğu görüldü. Halbuki (6) nolu denklemde eğimin  $\frac{4}{1} - \left(\frac{D}{\pi}\right)^{1/2}$  eşit olduğu ve doğrunun sifır noktasından geçeceği görülmektedir. (6) nolu denklem bilgisayarda Yıkdif 1 adlı en küçük kareler metodunu içeren bir programla çözülmüştür. Denklem çözümlerinden difüzyon katsayıları bulunmuş ve şekil 46,47,48,49'da gösterilmiştir.

Daha sonra levha için geçerli olan (8) denkleminde difüzyon katsayıları bulunmuştur. Bu denklemin çözümü içinde en küçük kareler metodunu içeren Yıka5 adlı bilgisayar programı kullanılmıştır.  $C_1$  t zamanda ölçülen pH değerlerinden hesaplanan çözelti  $H^+$  derişimi,  $C_1^0$  denge pH'ından giderek hesaplanan başlangıçta jel içindeki  $H^+$  derişimi,  $C_i$  ise t zamanında jelden yayınan miktarlar göz önüne alınarak hesaplanan jeldeki proton derişimleridir. Bu denkleminde de  $\ln \frac{C_i - C_1}{C_i^0 - C_1}$  ile t arasındaki doğrusal ilişkinin yüksek bir korelasyon katsayısıyla olduğu (0.94-0.99) fakat t=0 başlangıç değerinde  $\ln \frac{8}{\pi^2} = -0.2$  değerinden geçmesi gerekirken  $10^{-2}$  mertebesinde sıfıra yakın noktalardan geçtiği görüldü. Yine bu denkleminde (egim,  $\frac{\pi^2 D}{12}$ ) egim eşitliğinden difüzyon katsayıları hesaplanarak şekil 45,46,47,48'de gösterilmiştir.

Ayrıca kararsız halde tabaka geometrisinde yayınma için verilen (10) nolu denklem iki ayrı şekilde çözümlenerek difüzyon katsayıları hesaplanmıştır. İlkinde her deney için her t dakikasında ( $C_{A1} - C_{A0}$ ) farkını ve yayınan miktarları kullanılarak Yıka3 adlı bilgisayar programıyla difüzyon katsayıları bulunmuş ve aynı deney için bunların ortalamaları alınarak tek bir difüzyon katsayısı hesaplanmıştır. Burada  $C_{A0}$  olarak her t dakikasında jeldeki proton derişimi,  $C_{A1}$  olarak da her t dakikasında çözeltinin proton derişimi alınmıştır. Her deney için bulunan standart sapmaların, difüzyon katsayısının 0.04 ü ile 0.29 u arasında değiştiği görülmüştür. İkinci olarak da en küçük kareler metodunu içeren Yıka4 adlı bilgisayar programıyla  $y=a+bx$  şeklindeki doğrusal denklemin a ve b katsayıları bulunmuştur. Burada da y; yayınan miktar, x ise zamanın karekökünü göstermektedir. Yine her t dakikasındaki  $C_{A1} - C_{A0}$  farkı ve egim olan b değeri kullanılarak bir deney için t tane difüzyon katsayısı hesaplanmış ve bunların ortalaması alınmıştır. Her deney için egim

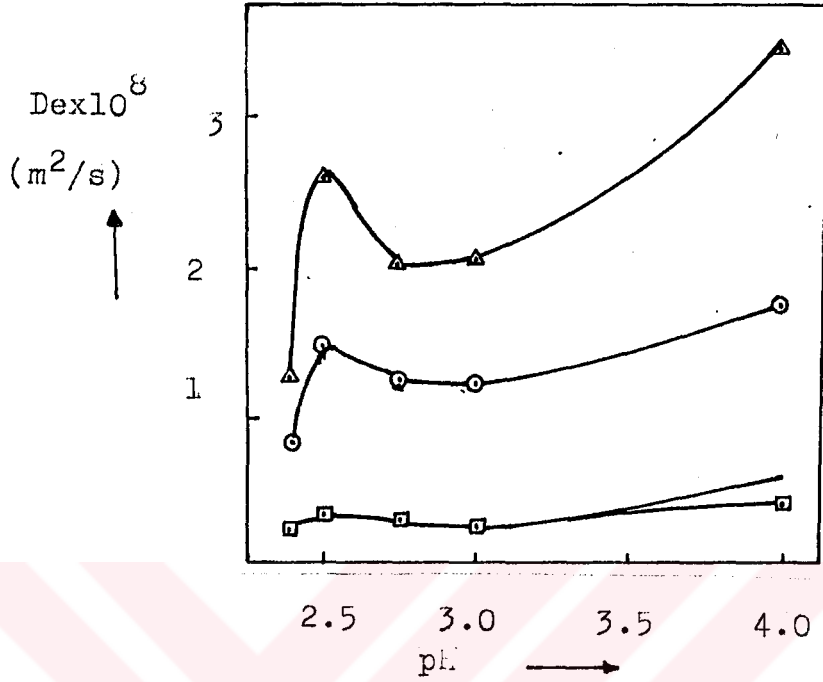
(0.95-0.99) arasındaki korelasyon katsayısıyla bulunmuş olup yine tek bir deney için ayrı ayrı hesaplanan difüzyon katsayılarının standart sapmaları hesaplanan difüzyon katsayılarının 0.15-0.30 u arasında değiştiği görülmüştür.

Yukarıda 3 formulden giderek bulunan difüzyon katsayılarının hepsi belirli oranda hata içermektedir. Çünkü bu denklemler sınırlı bir hacime yayınma için çözülmemiştir. Fakat (11) nolu denklem sınırlı hacime yayınma için çözüldüğünden en az hata ile çözüm bu denklemin çözümüdür. Bu denklemde kökle adlı bilgisayar programıyla Ragule Falsi (Aktaş, 1981) nümerik kök bulma yöntemiyle çözülmüştür. Bu yöntemin tek sakıncası kökün hangi aralıkta olacağını bilinmesinin gerekli olmasıdır. Biz bundan, tahmini difüzyon katsayısına belirli artışlarda bulunarak fonksiyon işaret değiştirdiği aralıkta kök değerinin olduğunu düşünerek kurtulduk. Hassasiyeti artırıp iteratif olarak denklemi çözdük. Bir deney için her t dakikasında bir difüzyon katsayısı bulduğumuz için yine aynı deney için difüzyon katsayısını bunların ortalamasını alarak hesapladık. Standart sapmaların hesaplanan difüzyon katsayılarının 0.03-0.16 sı arasında değiştiği görüldü.



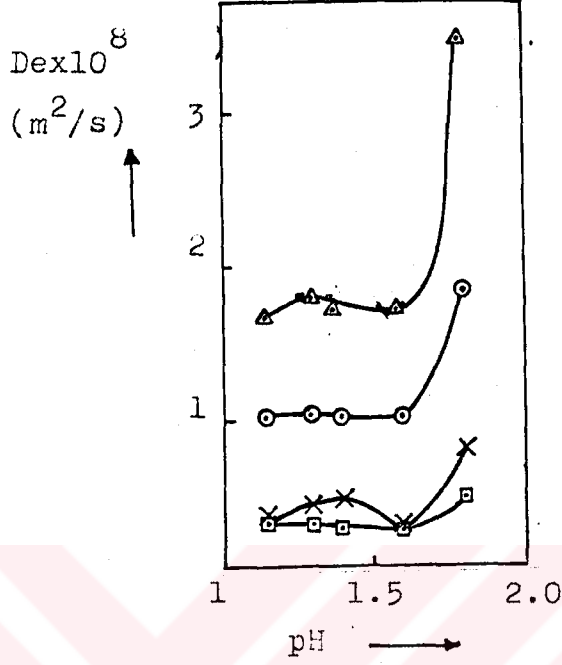
Şekil 46 : Üç boyunlu kesikli sistemde elde edilen silikajellerin difüzyon katsayısının pH'la değişimi. ( $\odot$ :(11) nolu denklemden,  $\times$ :(6) nolu denklemden,  $\square$ :(8) nolu denklemden  $\triangle$ :(10) nolu denklemden bulunan difüzyon katsayıları)

Şekil 46'da 4 ayrı denklemle bulunan difüzyon katsayılarının pH'a karşı değişim eğrilerinin pH 3 civarında bir minimumdan geçtiği görülmektedir. (6) ve (8) nolu denklemlerin çözümünün birbirlerine daha yakın olmasına karşılık (10) ve (11) nolu denklemlerin çözümleride birbirlerine yakındır.



Şekil 47 : Silindirik kaptaki kesikli sistemde elde edilen silikajellerin difüzyon katsayısının pH ile değişimi. (●:(11) nolu denklemden, X:(6) nolu denklemden, ▲:(10) nolu denklemden, □:(8) nolu denklemden bulunan difüzyon katsayıları.)

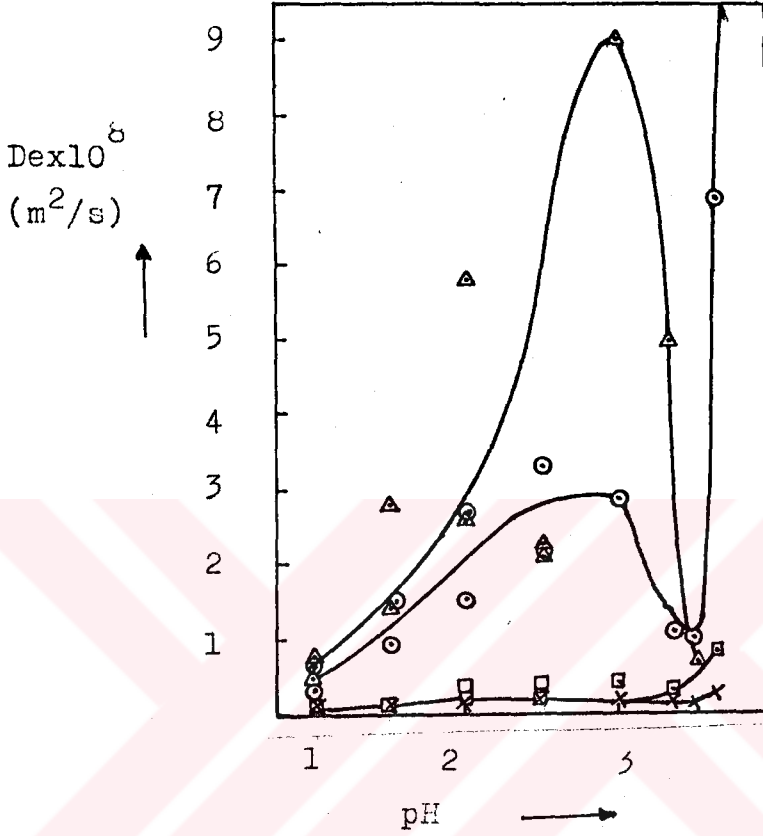
Şekil 46 ve 47 aynı pH'lardaki difüzyon katsayılarının göstermektedir. İki şekilde de pH 3 civarında eğrilerin bir minimumdan geçmesine rağmen aynı difüzyon katsayılarını vermektedir. (6) ve (8) nolu denklemlerden bulunan difüzyon katsayıları çok fazla değişmezken (10) ve (11) nolu denklemlerden bulunan difüzyon katsayıları daha fazla değişmektedir.



Şekil 48 : Silindirik kaptaki kesikli bir şekilde elde edilen silikahidrokolün yine aynı su camıyla pH ayarının yapılarak elde edilen silikajellerin difüzyon katsayılarının pH ile değişimi. ( $\circ$ :(11) nolu denklemden,  $\times$ :(6) nolu denklemden,  $\Delta$ :(10) nolu denklemden,  $\square$ :(8) nolu denklemden bulunan difüzyon katsayıları)

Şekil 48'deki ayrı denklemlerden bulunan difüzyon katsayılarında bir paralellik görülmektedir. Eğrilerin yerlerinde yine aynı kalmıştır.(8) nolu denklemden bulunan difüzyon katsayıları yine pH ile çok az değişmektedir.





Şekil 49 : Sürekli sistemde elde edilen silikajellerde protonun difüzyon katsayısının pH'la değişimi (○:(11) nolu denklemden, X:(6) nolu denklemden, △:(10) nolu denklemden, □:(8) nolu denklemden bulunan difüzyon katsayıları)

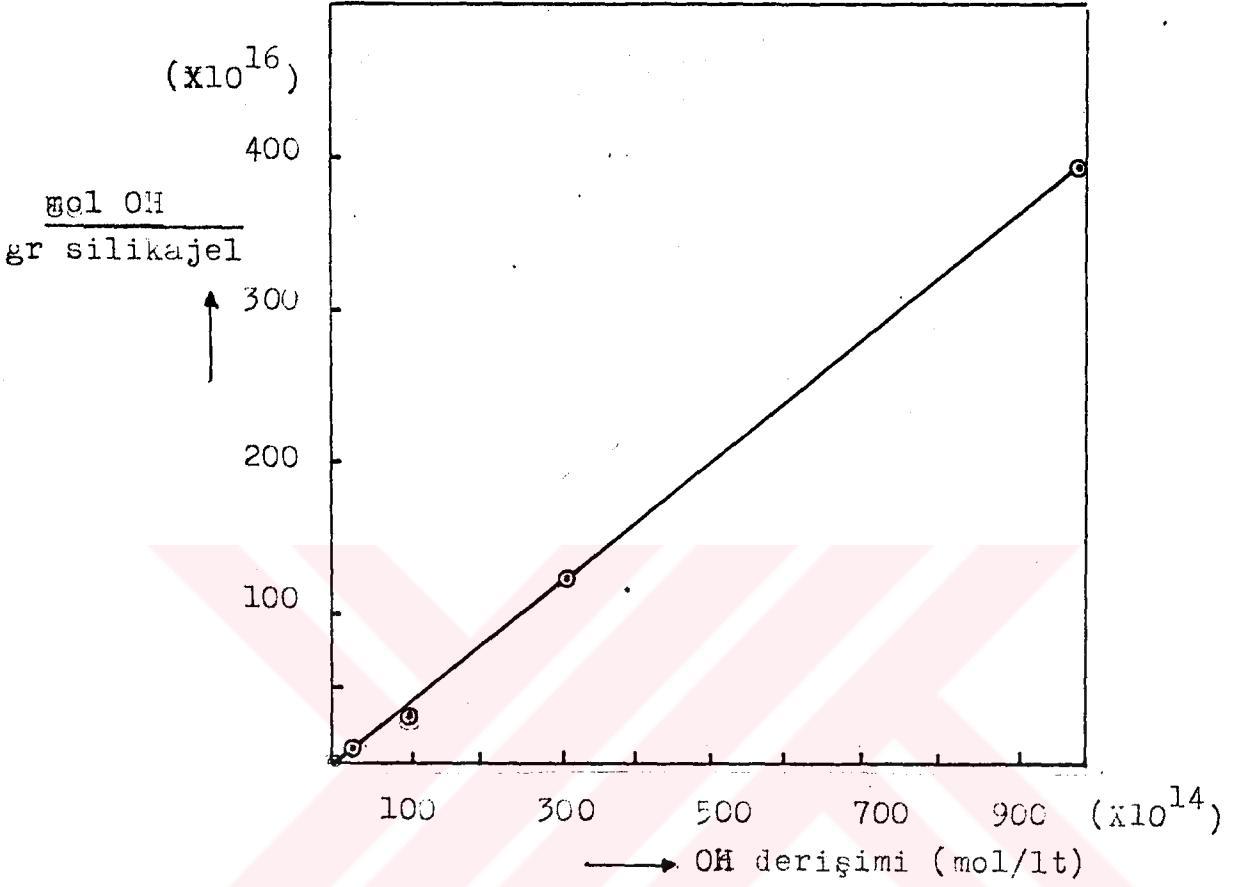
Şekil 49'da sürekli sistemde elde edilen silikajellerde H<sup>+</sup> nın difüzyon katsayısının pH'la değişimi gösterilmiştir. Burada da (6) ve (8) nolu denklemden hesaplanan difüzyon katsayıları çok az bir değişme gösterirken, (10) ve (11) nolu denklemlerden hesaplanan difüzyon katsayılarında belirgin bir düzenlilik görülmektedir. Buna rağmen pH, 2.5 a kadar difüzyon katsayısının arttığı bundan sonraki pH'larda ise artma ve azalmaların olduğu görülmektedir.

Difüzyon katsayısının protonun öz difüzyon katsayısı olan  $9.3 \times 10^{-9} \text{ m}^2/\text{S}$  den büyük çıkması, ortamda protonun

arttığını yada silikajel üzerinde çözeltiden  $\bar{O}H$  in absorblan-  
dığını gösterir. Bunun böyle olduğu ; jel oluşum  $pH^*$  ı ile  
sonsuz süre sonunda dengeye geldiği andaki  $pH$  ölçümlerinden  
giderek olması gereken jel oluşum  $pH^*$  ı arasındaki farktan  
anlaşılmıştır. Her deney için ayrı ayrı, denge derişiminden  
giderek başlangıçta olması gereken derişimler hesaplanmış ve  
başlangıçta ölçülen çözelti derişimleri ile karşılaştırarak  
silikajel üzerinde absorblanan  $\bar{O}H$  miktarı bulunmuştur. Çözel-  
tidedeki  $\bar{O}H$  derişimi ise

$$K_{su} = (H^+) \cdot (\bar{O}H) = 10^{-14} \dots\dots\dots 31-$$

denkleminde çözeltinin proton derişimi biliniyor olduğu için  
kolaylıkla hesaplanmıştır. Şekil 50'de  $pH$  1, 1.5, 2, 2.5 ve 3  
de yapılan deneylerdeki çözeltinin  $\bar{O}H$  derişimine karşı tu-  
tulan  $\bar{O}H$  miktarı arasında çizilen grafiğin doğrusal olarak  
arttığı görülmektedir.  $\bar{O}H$  in silikajel üzerinde absorblanmış  
olması, protonun jel içerisinde yayınma katsayısının hesap-  
lanmasında hatalara neden olacaktır.



Şekil 50 : Çözeltideki OH derişimi ile silikajel üzerine adsorblanan OH miktarı arasındaki ilişki  
Tablo 7 ve 8 de kesikli ve sürekli sistemde hazırlanan silikajellerin 4 ayrı denklemden bulunan difüzyon katsayılarının en alt ve en üst değerleri korelasyon katsayıları ve standart sapmaları verilmiştir.

Tablo 7 : Kesikli sistemde hazırlanan silikajelerde protonun denklemlerden bulunan difüzyon katsayıları.

Denklem	Dex $10^8$ (m <sup>2</sup> /s)	Ortalama kesim nok.	Korelasyon katsayısı	Standart 9 sapma x 10 (m <sup>2</sup> /s)
(6)	0.25-2.3	0.01	0.97-0.99	--
(10)Denk. 2.metot	1.28-6.5	--	0.97-0.99	0.99-1.37
(11)	0.95-5.57	--	--	0.37-9.89
(8)	0.27 -7.43	0.01	0.95-0.99	--
(10)Denk. 2.metot	1.2-8.68	--	--	0.74-4.98

Tablo 8 : Surekli sistemde hazırlanan silikajelerde protonun farklı denklemlerden bulunan difüzyon katsayıları.

Denklem	Dex $10^8$ (m <sup>2</sup> /s)	Ortalama kesim nok.	Korelasyon katsayısı	Standart 9 sapma x 10 (m <sup>2</sup> /s)
(6)	0.2-5.59	0.01	0.98-0.99	--
(10)Denk. 1.metot	0.85-42.8	--	--	4.01-19.5
(11)	0.33-6.84	--	--	0.09-1.8
(8)	0.16-0.82	0.01	0.91-0.99	--
(10)Denk. 2.metot	0.64-22.4	--	0.95-0.99	1.27-177

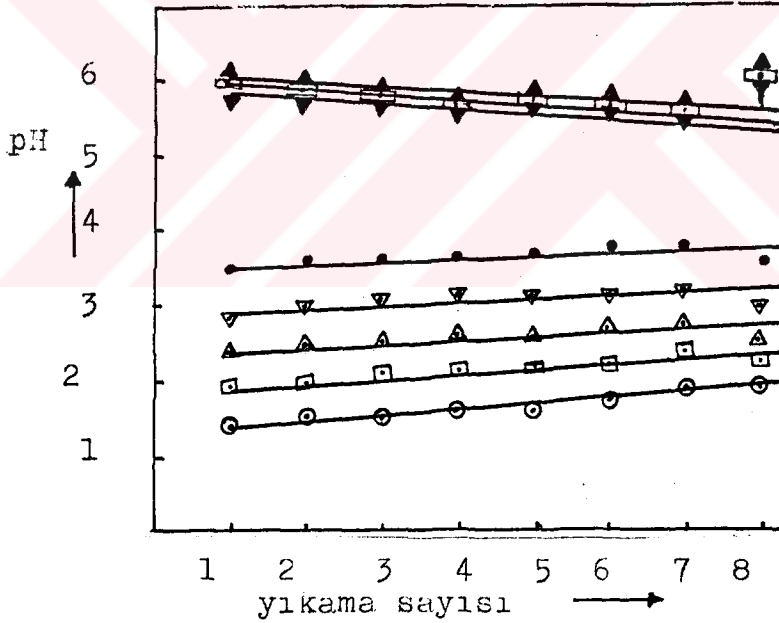
Farklı denklemlerden bulunan difüzyon katsayılarının  $10^{-8}$  mertebesinde çıkması bizi oldukça düşündürdü. Çünkü protonun öz difüzyon katsayısı  $9.3 \times 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$  dir. En azından bundan daha küçük bir değer çıkmasını bekliyorduk. Fakat tuz varlığında çözeltilerde protonun difüzyon katsayısının  $10^{-8}$

mertebesine yukselbileceği de bilinmektedir(Sherwood,1975).

Sonuç olarak, protonun en küçük ve en büyük difüzyon katsayıları bile, literatürde  $\text{Na}^+$  için verilen difüzyon katsayısından ( $1.21 \times 10^{-9} - 1.99 \times 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$ ) büyük olduğu için yıkama adımıını  $\text{Na}_2\text{SO}_4$ 'ın yayınması kontrol ediyor diyebiliriz.

#### III.4.2 Hidrojellerin Yıkaması

Hidrojeller her yarım saatte bir suları değiştirilerek yıkandı. Yıkama sayısı arttıkça jelleşme pH'ı 3 den küçük olan jellerin yıkama suyu pH'ları artmasına rağmen jelleşme pH'ı 3 den büyük olan jellerin yıkama suyu pH'larında ise azalma görüldü. Bu da bize pH 3 ten sonra % 100 nötürleşmeyi geçtiği fikrini verdi. Şekil 51'de yıkama sayısı ile sürekli sistemde oluşturulan jellerin yıkama suyu pH'ının yıkama sayısı ile değişimi gösterilmiştir.



Şekil 51 : Sürekli sistemde elde edilen jellerin her yarım saatte bir yıkandıktan sonraki pH'ları (○:pH=1, □:pH=1.5, △:pH=2.0, ▽:pH=2.5, ●:pH=3.0, ◻:pH=3.53, ▾:pH=3.56, ▲:pH=3.65)

Tablo 9 'da sürekli sistemde elde edilen silikajellerdeki protonun ne kadarının 8 yıkama sonunda çözeltiye geçtiği gösterilmiştir.

Tablo 9 : Sürekli sistemde elde edilen silikajelle - rin oluşum pH'ı ile 8 yıkama sonunda çözeltiye geçen proton miktarının başlangıçtaki proton miktarına oranı ile değişimi.

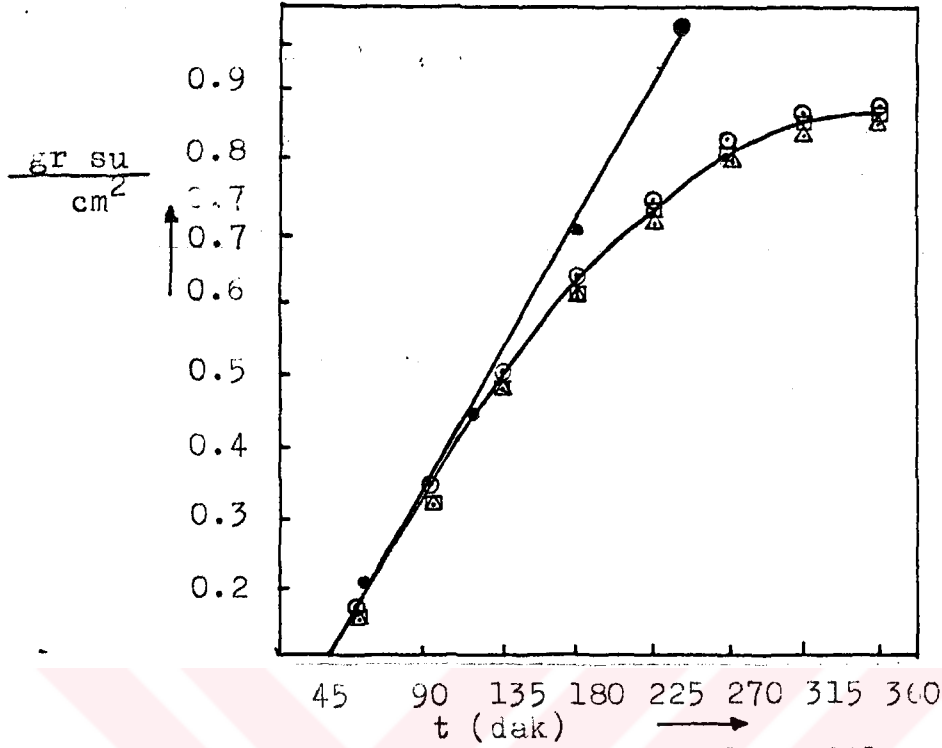
Sürekli sistemde elde edilen silikajelle- rin oluşum pH'ı	8 yıkama sonunda yıkama suyuna geçen proton miktarının yüzdesi
1.0	0.66
1.0	0.71
1.5	0.54
1.5	0.57
2.0	0.58
2.0	0.65
2.5	0.73
2.5	0.92
3.0	0.73
3.36	0.01
3.53	2.28
3.67	2.77

Görüldüğü gibi pH 3'den sonra 8 yıkama sonunda ya çok az protonun çözeltiye geçtiğini yada başlangıçta olanın 2 katından fazlasının geçtiği gözlenmiştir. Bunun nedeni pH 3'ten sonra ölçülen jel oluşum pH larının çözelti pH'ı ile uyumsuz olabileceğidir. Çünkü pH 3'ten sonra, % 100 nötrleşmeyi geçmiş olan pH'ın sıçrama aralığıdır.

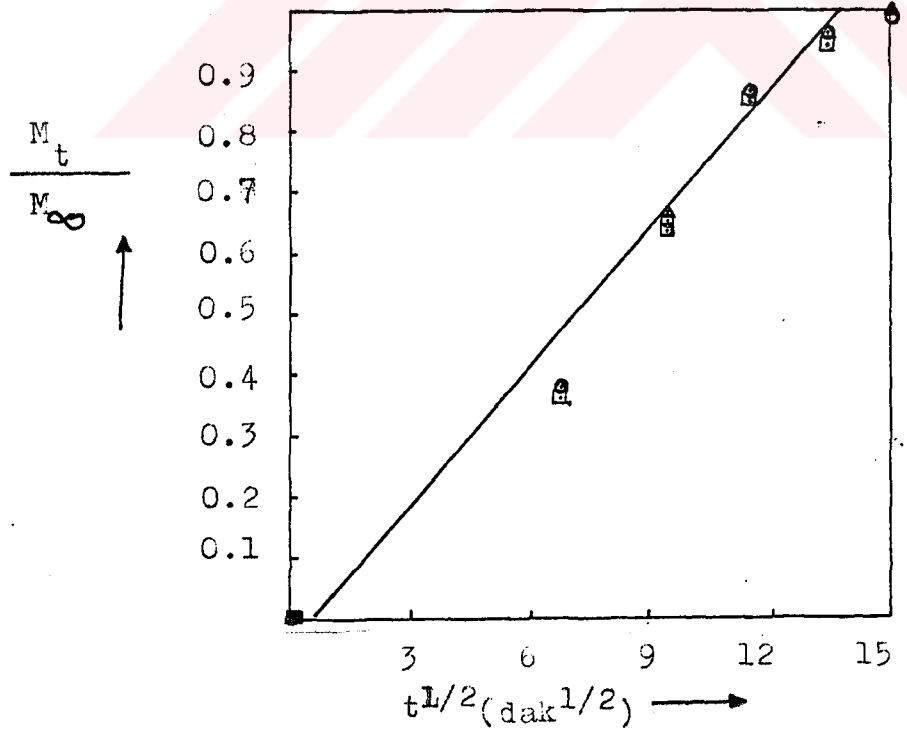
Daha önce hesaplanan difüzyon katsayılarından ve şekil 14'den yararlanarak 8 yıkama sonunda  $H^+$  tamamının çözeltiliye geçmesi gerektiği bulunmaktadır. Görüldüğü gibi protonun tamamının çözeltiliye geçmesi gerekirken deneysel olarak bu sağlanamamıştır. Bu da bize proton için bulunan difüzyon katsayılarının katı üzerindeki  $\bar{O}H$  adsorbsiyonundan dolayı hatalı olabileceği fikrini vermektedir.

### III.5 Kurutma

Silikahidrojelinden ve sudan birim alandan buharlaşan su miktarının zamanla değişimi Şekil 52'de gösterilmiştir. İlk 2 saat saf sudan ve silikajelden buharlaşan su miktarının aynı olduğu gözlemlendi. Bu dakikadan sonra hidrojellerin difüzyon kontrollü kurumaya başladığı görüldü. Silikahidrojelinde sıvı suyun etkin difüzyon katsayısının hesabı için  $M_t/M_\infty$  un  $t^{1/2}$  ye göre değişimi Şekil 53'de gösterilmiştir. Burada  $M_t$  kurumanın difüzyon kontrollü olmaya başladığı andan itibaren herhangi bir ana katman buharlaşan su miktarı,  $M_\infty$  ise kurumanın difüzyon kontrollü olduğu zamandan itibaren sonsuz süre sonunda buharlaşan su miktarıdır. Bu kuruma deneylerinde tabaka kalınlığı 1.2 cm dir.



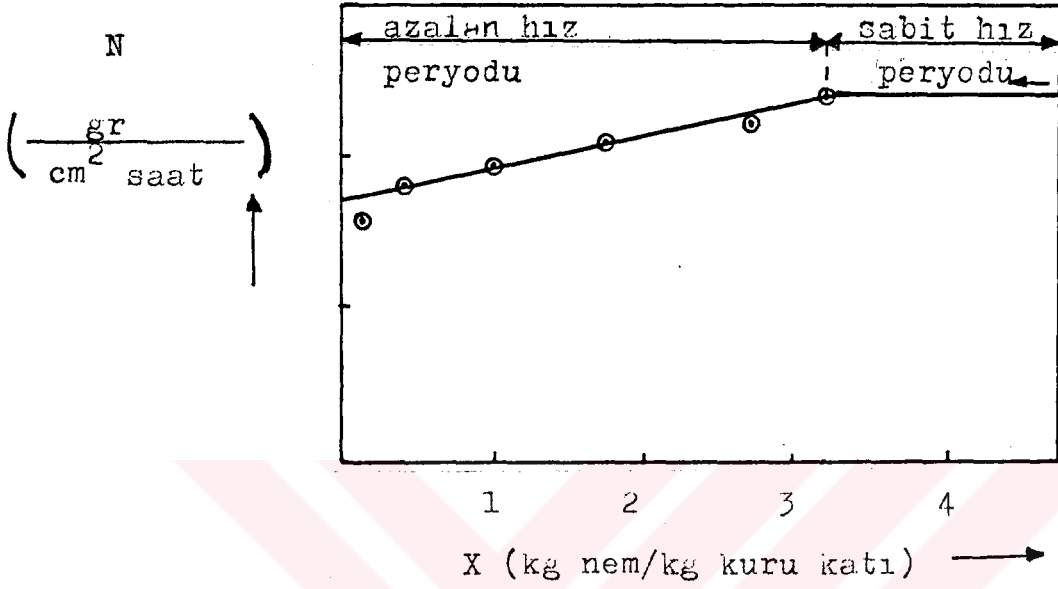
Şekil 52 : Sürekli sistemde elde edilen silikehidrojellerden birim alandan buharlaşan toplam su miktarının zamanla değişimi. (●:saf su, ○:pH=1, ◻:pH=1.5, △:pH=2)



Şekil 53 : Kuruma deneyinde  $M_t / M_∞$  un  $t^{1/2}$  ye göre değişimi. (○:pH=1.0, ◻:pH=1.5, △:pH=2.0)



Şekil 54'de ise şekil 52'den yararlanarak sabit kuruma koşullarında kuruma hızı eğrileri bulundu.



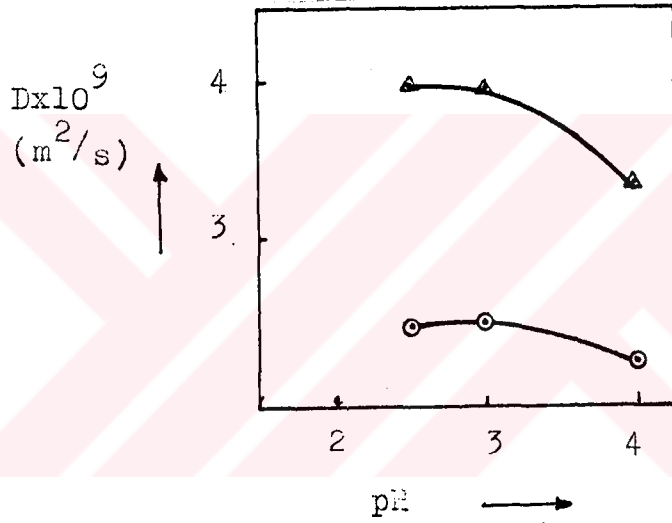
Şekil 54 : Sürekli koşullarda hazırlanan hidrojel-lerde kuruma hızının katı nemi ile değişmesi. Ayrıca en küçük kareler metodu içeren Kurdif adlı bilgisayar programıyla (6) eşitliği için deneysel verilerden eğim ve doğrunun y eksenini kesim noktası bulundu. Eğimden difüzyon katsayısı hesaplandı. Doğrunun korelasyon katsayıları 0.98-0-99 arasında değişirken, doğrunun y eksenini kesim noktasıda beklendiği gibi  $10^{-2}$  mertebesinde sifıra çok yakındır.

Difüzyon katsayısı, birde Coulson ve Richardson'ın (1978) verdiği (17) nolu denklemden ve deneysel verilerden Kurdif 1 adlı bilgisayar programıyla çözüldü. (17) nolu denklemin her iki tarafının logaritması alındığında

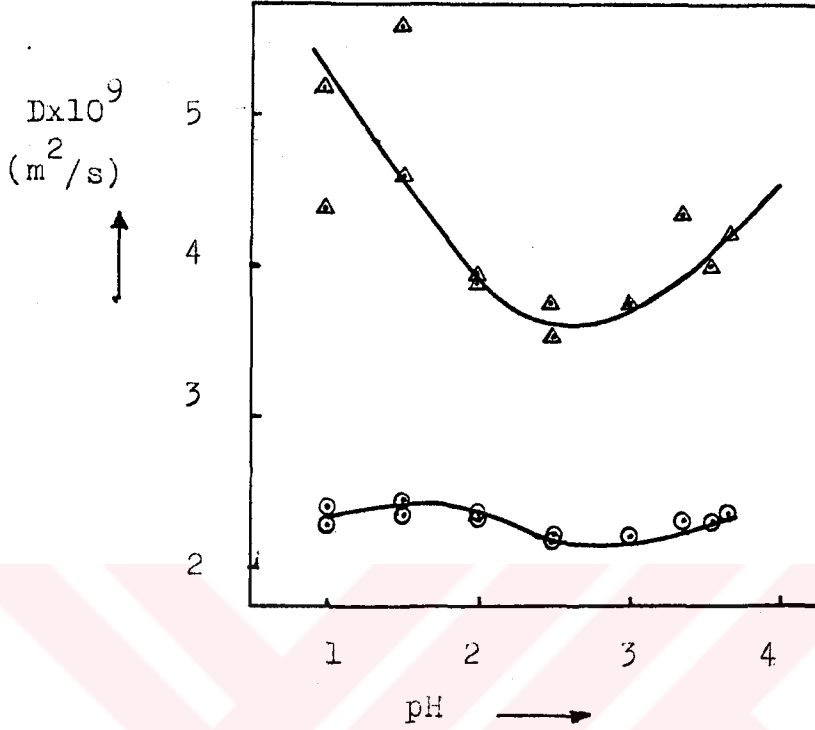
$$\ln \frac{X-X_e}{X_C-X_E} = \ln \frac{8}{\pi^2} - D t \left( \frac{\pi}{L} \right)^2 \dots \dots \dots -32-$$

eşitliği elde edilir.  $X_E$  sonsuz süre sonundaki kurutma sonrası katıdaki nem olarak sifır alınmıştır.  $X_C$  ise kurumunun

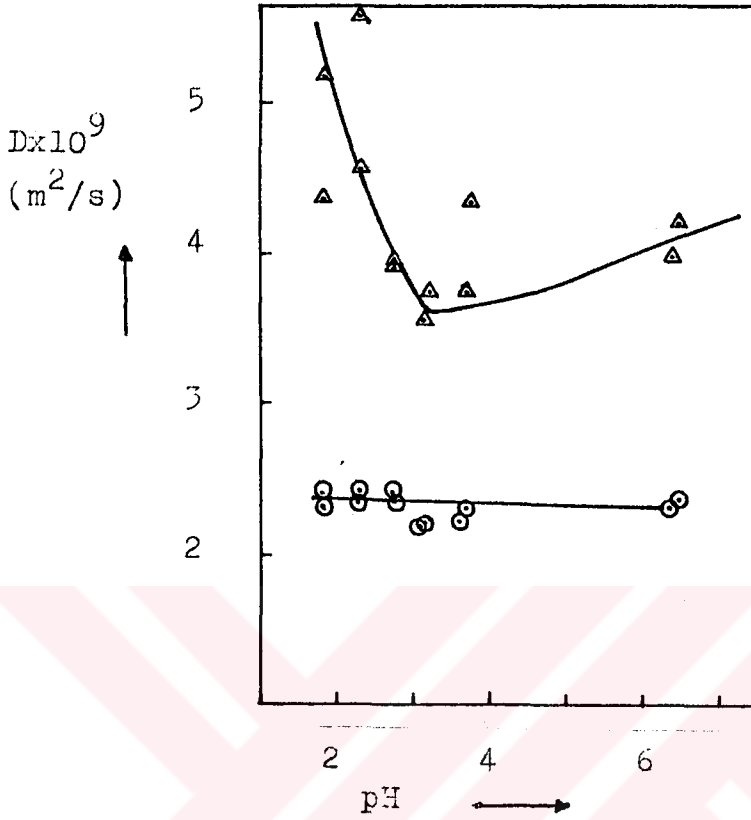
difüzyon kontrollü olmaya başladığı andaki katının içerdığı nem,  $X$  ise difüzyon kontrollü kurumaya başladığı andan sonraki ölçülen her  $t$  dakikasındaki katının içerdığı nemdir. Her deney için bulunan doğru denklemlerinin korelasyon katsayısının 0.98-0.99 arasında değiştiği görülmüştür. Doğru denkleminin  $y$  eksenini kesim noktası,  $\ln \frac{8}{\pi^2}$  -0.2 ye eşit olması gerekir. Fakat bizim deneylerimizde (0.04-0.14) arasında olduğu gözlenmiştir. Bunun nedeni kururken hacim küçülmesi olması ve  $X_E$  değerinin tam sıfır olmasıdır.



Şekil 5.5 : Kesikli sistemde elde edilen silikajellerin kuruma deneyinde suyun difüzyon katsayısının jelleşme  $\pi^2$ 'i ile değişimi. (O:(16) nolu denklemden, Δ:(32) nolu denklemden bulunan difüzyon katsayıları)



Şekil 56 : Sürekli sistemde elde edilen silikajelle-  
rin kuruma deneylerinde suyun difüzyon katsayısının jelleş-  
me pH'ı ile değişimi. ( $\odot$ :(16) nolu denklemden,  $\Delta$ :(32) nolu  
denklemden bulunan difüzyon katsayıları)



Şekil 57 : Sürekli sistemde elde edilip yıkanan sili-kajellede suyun difüzyon katsayısının kurutucuya girmeden önceki yıkama suyu pH'ları ile değişimi. ( $\Delta$ :(32) nolu denklemden,  $\odot$ :(16) nolu denklemden bulunan difüzyon katsayıları)

Kurumada difüzyon katsayısının pH'la değişmesi Şekil 55, 56, ve 57'de gösterilmiştir. Burada (16) nolu denklemden bulunan difüzyon katsayıları  $2.20 \times 10^{-9}$  -  $2.45 \times 10^{-9} m^2/s$  arasında değişmektedir. Ayrıca bu denklemden bulunan difüzyon katsayılarının pH arttıkça çok azda olsa azaldıkları görüldü. (32) nolu denklemden bulunan difüzyon katsayılarının ise  $3.55 \times 10^{-9} m^2/s$  ile  $5.6 \times 10^{-9} m^2/s$  arasında değiştiği görüldü. (32) nolu denklemden bulunan difüzyon katsayılarının pH'la değişimi ise  $pH \approx 2.5$  ta bir minimumdan geçmektedir. Bu pH'ın her iki tarafında da difüzyon katsayısı artmaktadır. Suyun  $60^\circ C$  daki difüzyon katsayısı ile ( $5.3 \times 10^{-9} m^2/s$ ) karşılaştırıldığında (6) nolu denklemden bulunan difüzyon katsayıla-

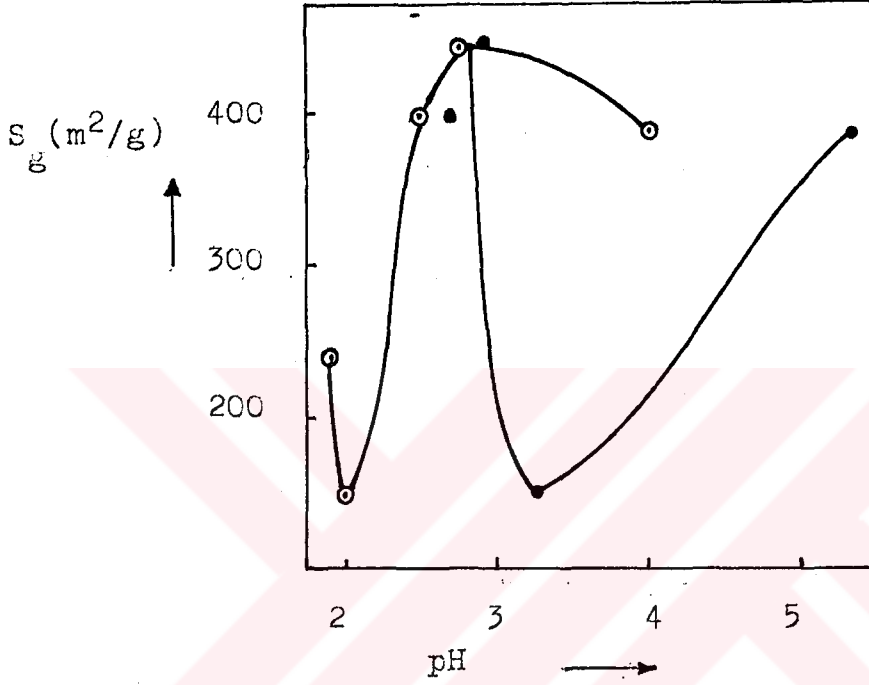
rının tumunun,(32) nolu denklemden bulunan difüzyon katsayılarında ikisi haricinde uygun olduğu görülmektedir.(32) nolu denklemin hatası  $X_E$  nin sıfır alınmasından kaynaklanabilir. Yıkama ve kurutma adımlarından sonra yapılan kütle dengelerinde yıkama adımının  $Na_2SO_4$  dan arındırılmasında çok önemli olduğu gözlenmiştir. Örneğin kurutma deneyinin yapıldığı jeller uzun süreli bir kez yıkamadan sonra kurutulup tartıldıklarıdaki katı miktarı, yüzde bileşimlerinden bulunan katı miktarından çok fazladır(Tablo 8). Bunun nedeni yıkamanın iyi olmaması ve katının  $Na_2SO_4$  içermesidir.

Tablo 10 : Sürekli sistemde elde edilen silikajellerin yıkama ve kuruma deneylerinde kütle dengesi

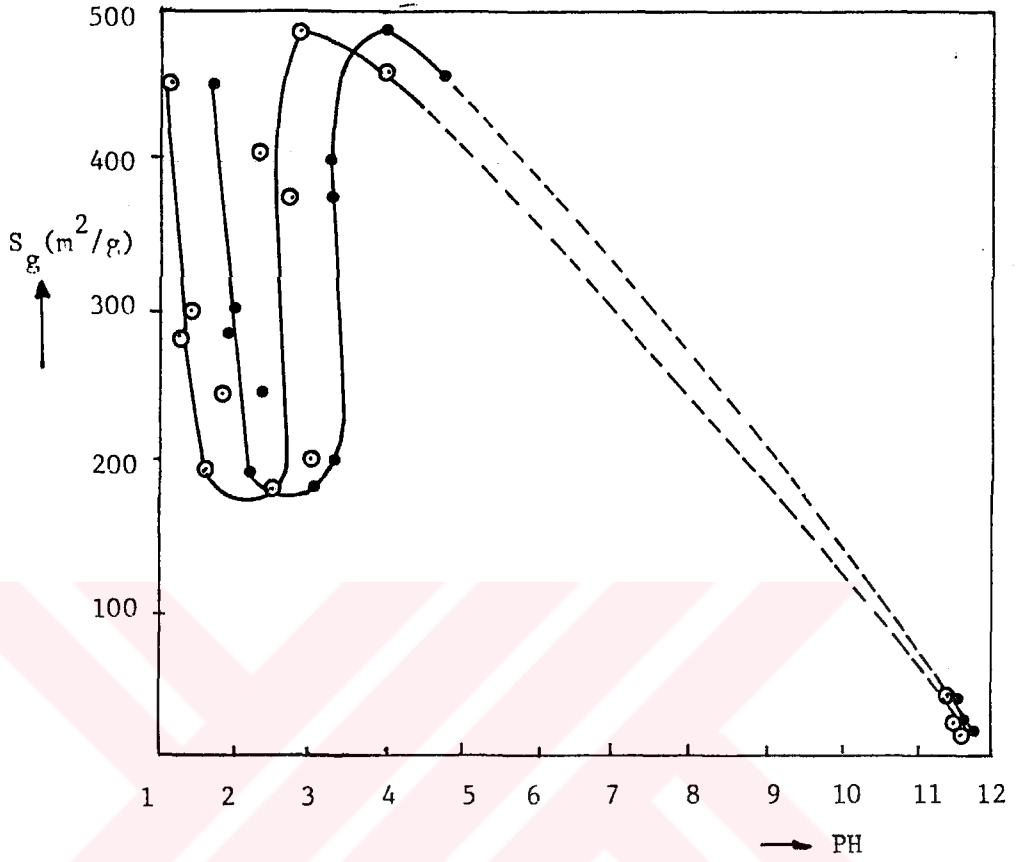
Oluşum pH'sı	Giren $SiO_2$ % si kütle dengesinden	Kuru jel % si 1 kez yıkamada	Kuru jel % si 8 kez yıkamada
1.0	7.78	11.23	9.22
1.0	7.90	11.27	8.96
1.5	8.82	12.43	9.67
1.5	8.84	12.71	10.47
2.0	9.04	13.11	10.02
2.0	9.19	13.25	10.50
2.5	8.89	12.80	9.27
2.5	8.93	12.80	9.50
3.0	9.12	12.28	9.76
3.36	9.22	12.47	9.69
3.53	9.24	12.87	10.68
3.65	9.24	12.87	8.70

### III.6 Yüzey Alanının pH'la Değişimi

Yüzey alanı ölçümleri için Fischer area-meter kullanıldı. Ölçülen yüzey alanlarının jelleşme pH'ı ve son yıkama suyu pH'ı ile değişimi Şekil 58, 59 ve 60'da gösterildi.

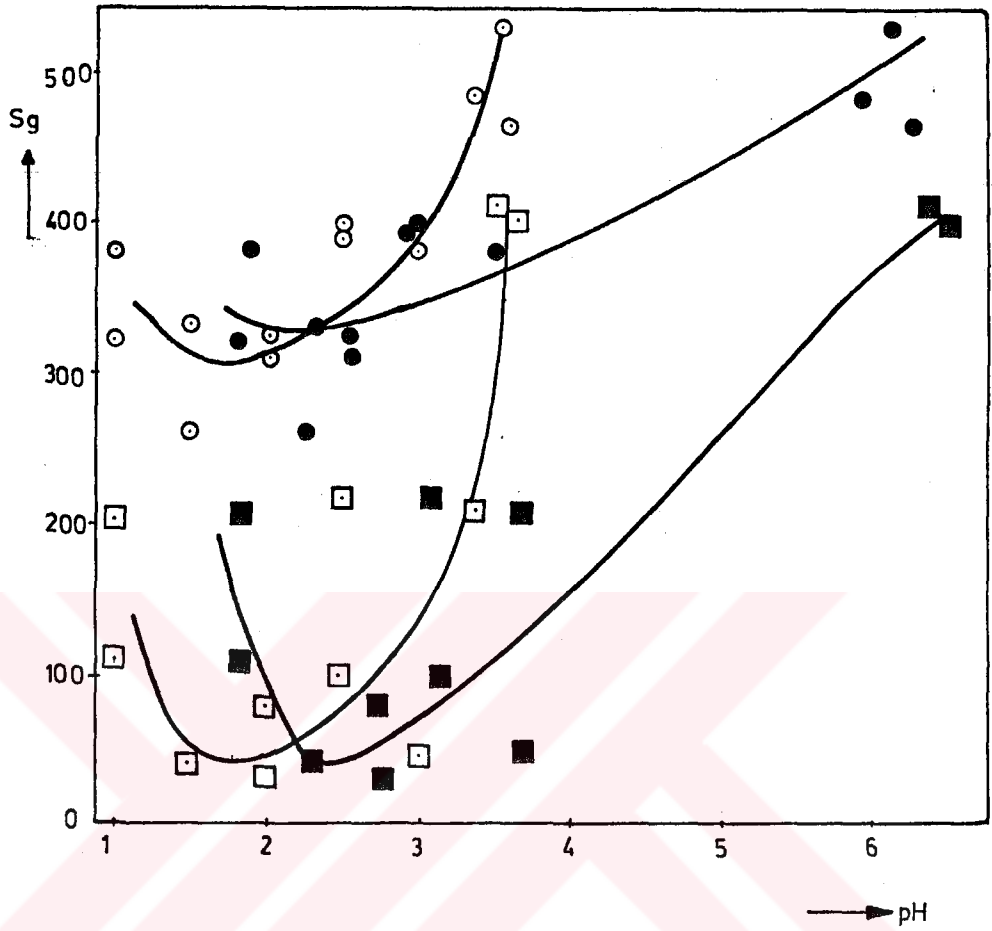


Şekil 58 : 35°C de kesikli olarak oluşturulan silika-jellerin yüzey alanlarının pH'la değişimi. (○: oluşum pH'ı ile değişim, ●: yıkama suyu pH'ı ile değişim)



Şekil 59 : 22°C'de kesikli olarak oluşturulan silika-jellerin yüzey alanlarının pH'la değişimi. (○: oluşum pH'ı ile değişim, ●: son yıkama suyu pH'ı ile değişimi)

Şekil 58, 59 ve 60'dan da pH'ın 1-2 bölgesinde yüzey alanı artan pH'la azaldığı, pH'ın 2-3 bölgesinde artan pH'la yüzey alanının arttığı, pH'ın 3 den sonraki bölgesinde ise yine artan pH'la yüzey alanının azaldığı görülmektedir. Burada yüzey alanının bir minimumdan geçmesi taneciklerin bu pH'da yüksüz (izoiyonik noktada) olması ile açıklanabilir. Tanecikler küçüktür ve birbirine yaklaşıp bağlanabilir. pH'ın 2-4 bölgesinde iki ayrı sıcaklıkta silikahidrojel elde edildiğinde aynı yüzey alanında silikajeller elde edilmemektedir.



Şekil 60 : Sürekli sistemde elde edilen silikajellerin yüzey alanının pH'a göre değişimi. (□: Uzun süreli bir kez yıkamada oluşum pH'ına göre, ○: 8 kez yarım saat süreli yıkamada oluşum pH'ına göre, ●: yarım saat süreli de son yıkama pH'ına göre, ■: Uzun süreli de son yıkama pH'ına göre.

Şekil 60'da görüldüğü gibi yıkama koşullarının değişmesi yüzey alanının değişmesine neden olmuş ve 8 kez yarım saat süreyle yıkanan silikajellerin yüzey alanlarının bol su ile uzun süreli bir kez yıkananlardan daha fazla olduğu görülmüştür. Yıkama sayısının artırılmasıyla yüzey alanının artması silikajel gözeneklerinde bulunan  $\text{Na}_2\text{SO}_4$ 'ın arındırılmasındandır. Şekil 60'da, Yüzey alanının, oluşum pH'ı ve son yıkama suyu pH'ı ile değişim eğrilerinin birbirini paralel olarak izlediği-



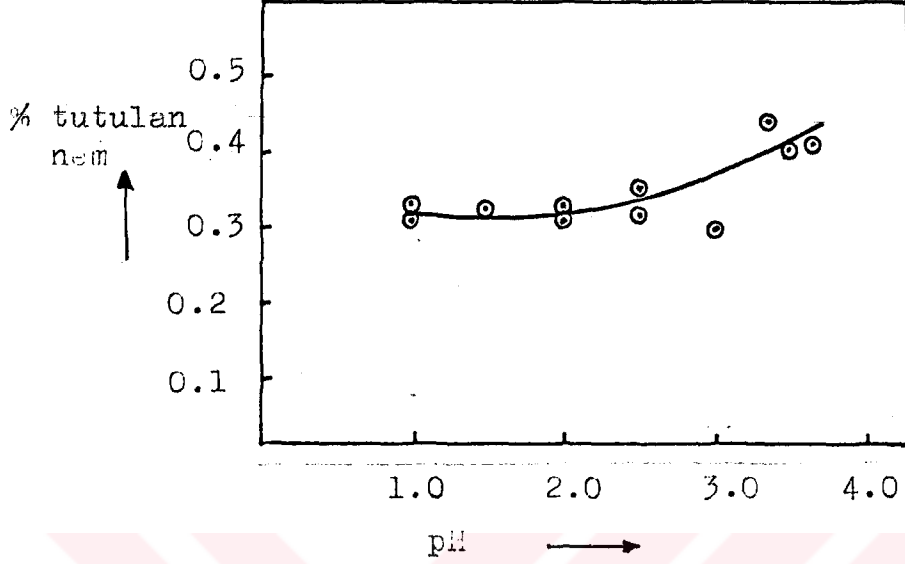
görülmektedir. Kuruma sırasında taneciklerin birbirine yapışarak Si-O-Si bağlarını vermesi taneciklerin küçüklüğü, taneciklerin yükü ve bir asit yada baz katalizörünün varlığına bağlıdır. Tüm bu etkilerde yüzey alanı ölçümlerinde kendini gösterir.

Şekil 59 ve Şekil 60'da yüzey alanının 2-3 pH aralığında bir minimumdan geçmesi Okkerse ve De Boer'in (1960) ve Sasaki ve arkadaşlarının (1984) çalışmalarına uymamaktadır. Okkerse ve De Boer (1960) 0-5 pH aralığında yüzey alanını sabit, 5-11 pH aralığında ise azalan yüzey alanı eğrisi bulmuşlardır. Sasaki ve arkadaşları (1984) ise pH ile gittikçe azalan yüzey alanı eğrisi bulmuşlardır. Fakat Coudurier, Bandru ve Donnet'in (1971) pH, yüzey alanı eğrisi bizim Şekil 59'daki eğrimize çok benzemektedir. Coudurier, Bandru ve Donnet (1971) 0-3 pH aralığında çalışmamış olup 3-5 pH aralığında pH'la gittikçe artan yüzey alanı ve pH 5'de bir maksimumdan geçen pH yüzey alanı eğrisi bulmuşlardır. Bu eğri bizim eğrimize çok benzemekle birlikte yüzey alanı değerleri aynı pH'lar da daha fazladır

### III.7. Nem Çekiciliğin PH'la Değişimi

Nem çekiciliği deneyi yalnızca sürekli sistemde elde edilen silikajeller için yapıldı. Sonuçlar Şekil 61'de gösterildi. Şekil 61'den de görüleceği gibi pH'ın 1-2 bölgesinde nem tutma kapasitesinin değişmediği, pH 2 den sonra artan pH'la nem tutma kapasitesinin arttığı gözlemlendi.

Silikajelin diğer özellikleri ise Abugaliye F. (1988) tarafından incelendi.



Şekil 61 : Nem tutma kapasitesinin silikahidrosolün oluşum pH'ı ile değişimi.

Tüm bu veriler göz önüne alındığında silikajelin pH 3-4 civarında üretilmesi gerektiği sonucu çıkarılabilir. Fakat bu pH civarında üretilen silikajeller sert değildir ve yığın yoğunluğu çok azdır. Nem çekme amacıyla kullanılacak olan silikajelin defalarca rejenere edileceği düşünülürse pH 3-4 civarında üretilen silikajellerin çok az kullanım süresi olacaktır.

pH 1-2 arasında üretilen silikajellerin sert ve kırılmaz bir yapıda olduğu gözlemlendi. Yine bu pH'ta yüzey alanının büyük olduğu ve nem tutma kapasitesinin diğerlerinden az olmadığı görülmektedir. Ayrıca anında jelleşme olmadığı için işletim açısından uygundur. Silikahidrosolün içerdiği yüzde  $\text{SiO}_2$  derişiminin pH'la çok fazla değişmediği de göz önünde bulundurulursa en uygun üretim pH'ı olarak 1 alınabilir.

### III.8 Pilot Proses Tesis Tasarımı

Deneyisel çalışmalarımızda elde ettiğimiz verilerden yararlanarak günde 1kg silikajel üreten bir tesisin tasarımı yapılacaktır. Pilot tesiste bu araştırma için satın alınan vana, pompa, flowmetre ve karıştırıcıdan yararlanılacaktır.

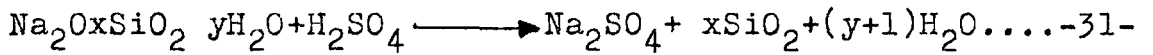
Tasarımı yapılacak proses koşulları aşağıdaki gibidir.

1. Su camı ve asit karışım pH'ı 1 olarak seçilmiştir. Çünkü bu pH'ta jelleşme süresi 6-20 saat arasında olup reaktörde jelleşme olasılığı yoktur.
2. Jeller 2 cm büyüklüğünde parçalara bölünerek, kesikli olarak yıkanacaktır. Kuru jelde Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> derişimi % 5 oluncaya kadar yıkama işlemi tekrarlanacaktır.
3. Kurutma, kuruma deneylerinin yapıldığı şartlarda 100°C giriş sıcaklığındaki hava ile yapılacaktır. Şekil 62'de prosesin kütle bilançosu görülmektedir.

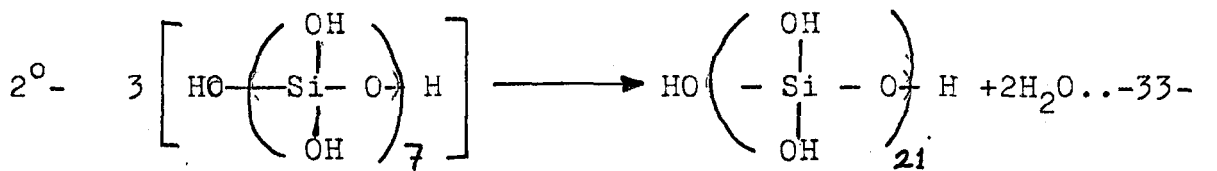
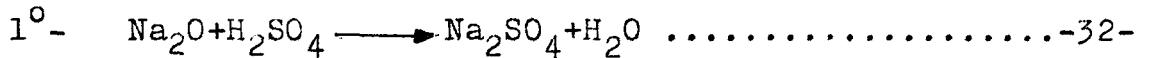
#### III.8.1 Yatışkın Hal Reaktör Tasarımı

Günde 1 kg silikajel üreten reaktörün, 7.8 saat çalıştığı ve kullanılan sürekli sistem pompalarının maksimum kapasiteleri düşünüldüğünde, dakikada 12.5 ml %14.9 SiO<sub>2</sub>, % 5.6 Na<sub>2</sub>O içeren su camı ve 12 ml 3N H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> reaktöre beslenmekte ve 24.5 ml/dak hidrosol alınmaktadır.

Reaksiyonumuz,

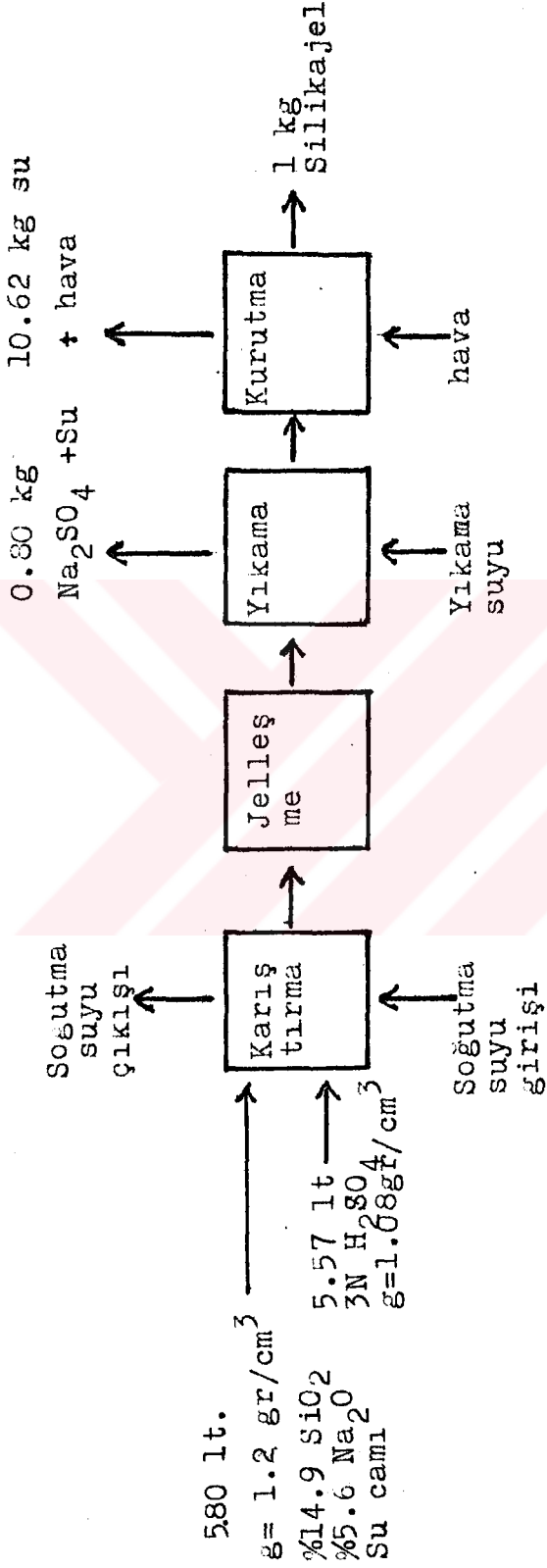


şeklindedir. Burada 2 ayrı reaksiyon vardır. Su camındaki Na<sub>2</sub>O ve SiO<sub>2</sub> şu şekilde 2 ayrı reaksiyona girer.



İlk reaksiyon kuvvetli asit baz nötralleşme reaksiyonudur ve reaksiyon hızı çok yüksektir. İkinci reaksiyon

3A → R+2S şeklinde gösterilebilen ve bizi ilgilendiren



Şekil 62 : Prosesin kütle bilançosu.

polimerizasyon reaksiyonudur.

Deneysel bulgularımız ; su camı ve asit karışımında pH 1'de üçüncü merteye bir polimerizasyon reaksiyonu olduğunu kullandığımız su camında ise ortalama molekül ağırlığı 450 olan polisilisilik asit bulunduğunu göstermişti. Su camı ve asit karıştırıldığı anda monomer derişimi  $C_{A0}$ , 0.202 mol/lt dir. Hacimsel debi ve başlangıç derişiminden reaktöre giren  $F_{A0}$ , 0,297 mol/saat olarak bulunur. T, 20°C ve PH, 1 için Tablo 5'den  $kC_{A0}^2$ ,  $2.15 \times 10^{-2}$  saat<sup>-1</sup> alınarak  $k, 4362.5$  lt<sup>2</sup>/mol<sup>2</sup> saat bulunur.

$X_A$ , 0.70 dönüşme için reaktör hacmi (20) nolu denklemden 0.214 lt bulunur. Bu dönüşme jelleşme olmaması yönünden güvenli bir sınırdadır.

### III.8.2 Reaktör Etrafında Enerji Dengesi

Reaktör etrafında enerji dengesinin amacı istenilen sıcaklıkta hidrojel elde edilmesi için soğutma suyu debisinin ne olması gerektiğinin bulunmasıdır. Girenlerin sıcaklığında ürün elde edilmek istendiğinde dışarıdan alınması gereken ısı, reaksiyonla açığa çıkan ısıdır. Reaksiyonla açığa çıkan ısı asidin seyrelme ısısı, nötralleşme ısısı ve polimerizasyon ısısıdır. Tablo 11'de 12.5 ml/dak su camı ve 12 ml/dak asit debilerinde açığa çıkan ısılar verildi.

Tablo 11 : Reaktör etrafında enerji dengesi

	Entalpi (kj/mol)	Debi (mol/dak)	açığa çıkan ısı (kj/dak)
H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> 'un seyrelme ısısı (3N'den 1.5N'e)	5.7 (Lewis, 1954)	0.018 H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	0.025
Nötralleşme ısısı	55.8 (Alberty, 1980)	0.013 Na <sub>2</sub> O	0.76
Polimerizasyon ısısı	33.4 (İler, 1979)	0.005	0.17
Toplam açığa çıkan ısı			0.95

Soğutma suyu debisi ise;

$C_{psu}$ , 4.18 kJ/kg<sup>o</sup>C ve  $T$ , 3<sup>o</sup>C alınarak  $m_{su}$ , 0.08 kg/dak bulunur. Burada  $m_{su}$  soğutma suyunun debisi,  $C_{psu}$  soğutma suyunun özgül ısısı,  $T$ 'de soğutma suyunun giriş ve çıkış sıcaklıkları arasındaki farktır. Reaktörün günde 7.8 saat çalıştığı düşünülürse 422 kJ enerji açığa çıkar, bu enerjiyi almak içinde 38 kg soğutma suyuna gereksinim duyulur.

### III.8.3 Karıştırıcıda Ve Pompalarda Güç Tüketimi

Karıştırıcılarda güç tüketimini hesaplayabilmek için önce Reynold sayısını hesaplamalıyız.

$N$ , 4 saniye<sup>-1</sup>;  $Da$ ,  $5.3 \times 10^{-2}$  m;  $\rho = 1100$  kg/m<sup>3</sup>;  $\mu$ ,  $1.10^{-3}$  kg/m<sup>3</sup> alınarak Reynold sayısı (24) denkleminde 12360 olarak bulunur. Reynold sayısı 10000 den büyük olduğu için pervane-  
deki güç tüketimi (23) nolu denklemden  $C_2$  de 1.7 alınarak  $P$ , 0.05 W olarak bulunur. 7.8 saat çalıştığı düşünülürse  $0.39 \times 10^{-3}$  kW lı enerji harcadığı görülmüştür.

Pompalardaki güç tüketimi ise (25) nolu denklemden bulunur. (25) nolu denklemdaki  $\Delta H$ ;  $\Delta P$  ve  $\Delta Z$ , 0,  $V$ ,  $54 \times 10^{-3}$  m/s<sup>2</sup>, 1,1m;  $D$ ,  $0.7 \times 10^{-2}$  m alınıp su camı ve sülfürik asidin fiziksel özellikleri kullanılarak 26, 27 ve 28 denklemlerinden bulunur. (25) nolu denklemden  $m$ ,  $2.5 \times 10^{-4}$  kg/s;  $\eta$ , 0.6 alınarak güç tüketimi  $7.5 \times 10^{-7}$  W bulunur.

### III.8.4 Yıkama

Yıkama adımını  $Na_2SO_4$ 'ın difüzyon hızı kontrol eder.  $Na^+$ 'ın difüzyon hızı Tablo 4'de verildiği gibi  $1.21 \times 10^{-9}$  m<sup>2</sup>/s dir.

Silika hidrojel'in yarıçapı 1cm olan küresel parçacıklara parçalandığını, silika hidrojel hacmi kadar su ile yarımsaer saat süre ile yıkandığını kabul ederek yıkama sayısını ve süreyi bulalım.

Şekil 14'den  $(Dt/a^2)^{1/2}$  ye karşılık gelen  $M_t/M_\infty$  değeri okunarak yarım saat sonunda yıkama suyuna geçen  $Na^+$  miktarı bulunur. Burada  $D$  difüzyon katsayısı,  $t$  süre,  $a$  ise küresel taneciklerin yarıçapı,  $M_t$  yarım saat sonunda

çözeltiye geçen  $\text{Na}^+$  miktarı,  $M_{\infty}$  ise dengede çözeltiye geçen  $\text{Na}^+$  miktarıdır. Yıkamanın yeterliliğine, jel kurutulduğunda  $\text{SiO}_2$  içinde  $\text{Na}_2\text{SO}_4$  miktarının 0.05'i geçmeyecek şekilde olması belirler. Bu miktarda  $\text{Na}^+$  cinsinden 0.016'dır (Winyall, 1984). Böylece yıkama sayısı 9 olarak bulunur. Tablo 11'de her yıkama sonunda 1 kg silikajel içinde kalan  $\text{Na}_2^+$  miktarı verilmiştir.

1 kg silikajel için, 12.5 kg hidrojel eşit hacimde su ile dokuz kere yıkanacağından günde 102 litre yıkama suyu gerekmektedir.

Tablo 11: Kurutulduğunda 1 kg silikajel elde edilecek olan silikahidrojinin her yıkama sonundaki  $\text{Na}^+$  miktarları.

Yıkama sayısı	$\text{Na}^+$ miktarı (kg)
Başlangıçta	0.81
1	0.53
2	0.35
3	0.23
4	0.15
5	0.10
6	0.06
7	0.04
8	0.02
9	0.016

### III.8.5 Kurutmada Enerji Tüketimi

Kuruma, sabit hız periyodunda ve azalan hız periyodunda olmak üzere 2 ayrı periyotta olduğu için kuruma sürelerini ayrı ayrı hesaplamamız gerekir.

1 kg silikajel üretimi için,  $L_s, 1000\text{gr}$ ;  $A, 4830\text{ cm}^2$  (2 cm kalınlığı için);  $N_c, 0.24\text{ gr/cm}^2$  saat  $X_1, 10.625$ ;  $X_c, 3.21$ ; alınarak denklem (15) den sabit hız periyodundaki kuruma süresi 6.4 saat bulunur.

Azalan hız periyodundaki kuruma süresi için  $N_m$  Şekil 54'den yararlanarak  $0.20\text{ gr/cm}^2$  saat olarak bulundu ve  $X_c, 3.21, X_2, 0.05$  alınarak denklem (16) dan kuruma süresi 3.2 saat hesaplandı.

Toplam kuruma süresi ise 9.6 saat olarak bulunur. Sabit hızda kuruma periyodunda buharlaşan su miktarı  $70.42\text{kg}$  dir. Bu miktar sabit hızda kuruma periyodu süresine bölünürse buharlaşan suyun debisi  $1.16\text{ kg/saat}$  olarak bulunur. Azalan hız periyodunda buharlaşan su miktarıda  $3.21\text{ kg}$  dir. Bu miktarda kuruma süresine bölünürse azalan hız periyodundaki buharlaşan suyun debisi  $1.0\text{ kg/saat}$  olarak bulunur.

Giriş havasının koşullarından ( $T, 20^\circ\text{C}$  ve % 40 bağıl nem) nem diyagramları kullanarak 1 kg kuru havanın içerdiği nem miktarı  $H_1, 0.007\text{ kgnem/kgkuru}$  hava olarak okunur (Treyb 1955). Bir saat temel alınarak buharlaşan suyun debisi ( $m; 1.16$ ) kurutucuya giren havanın 1 kg başına içerdiği nem miktarı ( $H_1$ ) ve kurutucudan çıkan havanın 1 kg başına içerdiği nem miktarı ( $H_2$ ) bilinirse (24) nolu denklemden kurutucuya verilmesi gereken hava debisi bulunabilir. Onun için önce  $H_2$  nin bulunması gerekir.

$H_2$ , giriş havasının  $100^\circ\text{C}$  ye ısıtılmasından sonra nem diyagramından adyabatik soğuma eğrisi takip edilerek istenilen çıkış sıcaklığı ve bağıl neminden bulunur (Treybal, 1955). Böylece fan ile verilmesi gereken kuru hava miktarı hesaplanır. Kuru havanın özgül hacmiyle ( $0.84\text{ m}^3/\text{kg}$ ) çarpılırsa girişteki hava miktarı bulunmuş olur. Buna göre Tablo 12'de çıkış havasının koşullarına göre sahip olduğu nem ni-



celiği ve buna karşılık fonda verilmesi gereken hava debisi verildi.

Tablo 12 : Sabit hız periyodunda çıkış havasının koşullarına göre kurutucuya verilmesi gereken hava miktarı

T (°C) kurutu cudan çıkış sıcaklığı	Bağ. Nem	H(kg nem/kg kuruhava)	m(m <sup>3</sup> hava/saat)
65° C nin üstünde	%10un altında	0.02nin altında	74.7nin üstünde
65	% 10	0.020	74.7
53	% 20	0.023	60.9
52	% 30	0.026	51.2
48	% 40	0.027	48.7
45	% 50	0.028	46.3
42	% 60	0.029	44.2
40	% 70	0.030	42.3
38	% 80	0.032	38.9
36	% 90	0.033	37.4
35	% 100	0.034	31.1

Bu durumda % 90 bağıl nemde çıkış havası seçilmeli (Winyall, 1984). Çıkış havasının debisinde 37.4 m<sup>3</sup>/saat olmalıdır. Çünkü dışarıya % 10 bağıl nemli hava atmaktansa % 90 bağıl nemli hava atmak enerji tasarrufu açısından önemlidir. Bu debideki havanın 100°C ye ısıtılmasıyla verilmesi gereken enerji 8.20 kw-h olarak bulunur. Tabii tüm bunlar değişen hava debileri ile silikajelin aynı kuruma karakteristiğini gösterdiği kabulüne dayanarak söylenmektedir.

### III.8.6 Silikajel Üretiminde Değişken Giderler

Silikajel üretimindeki değişken giderleri, hammadde giderleri ve enerji giderleri olarak 2 ye ayırabiliriz. 1 kg silikajel başına değişken giderler Tablo 13'de verilmiştir.

Tablo 13 : 1 kg silikajel üretimi için değişken giderler

Girdiler	Miktar	Birim fiyat (TL)	Maliyet (TL)
Ham madde giderleri			
Su camı(saf)	3.5 kg	80 .-	280.-
Sülfürik asit (% 98)	1.0 kg	100.-	100.-
Yıkama Ve Soğutma Suyu	140 kg	0.15.-	21.-
Enerji giderleri			
Kurutucu	8.20kw-h	47.-	385.-
Pompa ve karıştırıcı	$0.39 \times 10^{-3}$ kw-h	47.-	-

Toplam değişken giderler (1 kg silikajel başına)= 786.-

### III.8.7 Silikajel Üretiminde İlk Yatırım Giderleri

Silikajel üretimindeki piyasa araştırmasına dayalı pilot tesis yatırım giderleri Tablo 14'de verilmiştir.

Tablo 14 : Silikajel üretimindeki yatırım giderleri

	Adet	Birimfiatı (TL)	Toplam(TL)
Pompa	3	300.000.-	900.000.-
Flowmetre	1	200.000.-	200.000.-
Reaktör	1	100.000.-	100.000.-
Karıştırıcı	1	90.000.-	90.000.-
Kurutucu	1	600.000.-	600.000.-
Yıkama Ve Kurutma tepsileri	3	50.000.-	150.000.-
PH-metre	1	400.000.-	400.000.-

Toplam sabit yatırım=2.440.000.- TL dir

Amortisman süresi 10 yıl olarak alınırsa, sabit yatırım giderleri 2.440.000 TL/yıl yılda 360 gün çalışıldığı düşünülerek 680.- TL/gün sabit yatırım giderleri olarak bulunur. Bu cihazlar çok küçük kapasiteli cihazlar olduğundan fiyatları yüksektir. Aynı masrafı yaparak çok daha büyük üretim kapasiteli bir tesis kurulabilir. Bu durumda 100 kg silikajel üreten bir tesis için, sabit yatırım giderleri silikajelin bir kg başına yaklaşık 10 TL olur.Günde 1 kg silikajel üreten pilot tesiste silikajelin üretim maliyeti 1466 TL dir.

### SONUÇ VE ONERILER

Su camı ve sülfürik asitten değişik pH ve bileşimler de hidroseller elde edildi. Bu hidroseller jelleştirildikten sonra yıkanıp kurutularak aktive edildiklerinde yüzey alanının  $200 \text{ m}^2/\text{g}$  -  $500 \text{ m}^2/\text{g}$  arasında, nem tutma kapasitesinin ise % 30-40 arasında değiştiği görüldü. İyi bir yıkamanın olmadığı durumlarda silikajelin nem tutma kapasitesinin düştüğü gözlemlendi. Yıkama suyuna geçen  $\text{Na}_2\text{SO}_4$  dan da yararlanılabileceği düşünülerek kesikli yıkama koşulları düşünüldü. Silikajelin yıkama adımının maliyet açısından çok az katkısı olmasına karşın ürün kalitesi yönünden etkisi vardır.

Kurumanın ise silikajel üretiminde en yavaş adım olduğu ve silikahidrojel içerdiği yüksek miktarda su nedeniyle maliyetin çok büyük bir kısmını oluşturduğu gözlemlendi. Farklı bileşim ve koşullarda oluşturulan silikahidrojellerin sabit kuruma koşullarında aynı kuruma karakteristiğini gösterdiği saptandı.

Yapılan pilot proses tesis tasarımında silikajelin üretim maliyeti açısından 1466 TL'ye mal olduğu ve bunun 385 TL'si kurutmadan geldiği gözlemlendi.

Eğer bir fabrika tasarımı düşünülüyorsa bu kurutucunun tünel tipli sürekli bir kurutucu olması önerilir. Ayrıca daha yüksek  $\text{SiO}_2$  derişimli solların hazırlanması kurutmadaki maliyeti düşüreceği için daha değişik karıştırma biçimleri ve kuruma sırasında iç bağımlı değişkenlerin (kuruma ortamı bağıl nemi, kuruma sıcaklığı, hava akımı) değişik kombinasyonları denerek kuruma olayının daha iyi incelenmesi düşünülmelidir.

## ÖZET

Bu çalışmada su camı ve sülfürik asitten nem çekici silikajel üretimi ile ilgili optimum çalışma koşulları araştırıldı.

Jelleşme süresi ve jelleşme süresine etki eden etmenler araştırıldı ve jelleşme süresinin artan  $\text{SiO}_2$  derişimiyle, artan sıcaklıkla ve artan pH'la azaldığı ve pH 4 civarında anında jelleşme olduğu gözlemlendi. Derişik çözeltilerde ve pH'ın 3 ten büyük olduğu çözeltilerde topaklaşma olduğu için iyi bir karıştırmanın mümkün olmadığı görüldü.

Silisilik asidin polimerizasyon hızının 3. mertebe bir kinetik izlediği ve pH'tan bağımsız olduğu bulundu.

Jel içerisindeki protonun etkin difüzyon katsayısının değişik pH değerleri için  $1 \times 10^{-8}$  -  $1 \times 10^{-9}$   $\text{m}^2/\text{s}$  arasında olduğu bulundu. Bununda jel içerisindeki  $\text{Na}_2\text{SO}_4$ 'ın yayınma katsayısından büyük olduğu ve yıkama adımını kontrol eden  $\text{Na}_2\text{SO}_4$ 'ın yayınması olduğu görüldü.

Üretimde en yavaş adımın silikahidrojel kurutulması olduğu ve  $65^\circ\text{C}$ 'deki jel sıcaklığında suyun hidrojel içinde difüzyon katsayısının  $2.20 \times 10^{-9}$  -  $2.45 \times 10^{-9}$   $\text{m}^2/\text{s}$  arasında olduğu saptandı.

Silikajelin nem çekme kapasitesinin % 30-40 arasında olduğu, yüzey alanının ise asidik silikajelerde 200 - 500  $\text{m}^2/\text{g}$ , bazik silikajelerde ise çok küçük olduğu ( $50 \text{m}^2/\text{g}$  in altında) görüldü.

Tüm bu deneysel bilgilerin ışığı altında pilot proses tesis tasarımı yapıldı.

**T. C.**  
**Yükseköğretim Kurulu**  
**Dokümantasyon Merkezi**

### SUMMARY

The optimum operation condition for the production of silicagel for adsorption of water vapor were investigated in this work.

The gelation period and the variables affecting gelation period were investigated and it is observed that gelation period decreased as the  $\text{SiO}_2$  concentration, temperature and pH were increased. Instant gelation took place around pH 4 since hydrogel granules formed during mixing at concentrated solution and at pH greater than 3 it was not possible to have a homogeneous mixing under these conditions.

The effective diffusion coefficient of proton in silicahydrogel were found between  $1 \times 10^{-8}$  and  $1 \times 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$ . Since this were greater than the effective diffusion coefficient of  $\text{Na}_2\text{SO}_4$  the diffusion of  $\text{Na}_2\text{SO}_4$  determines the washing of silicahydrogel. The slowest step in the production of silicagel was the drying of silicahydrogel and the effective diffusion coefficient of water in silicahydrogel were observed as between  $2.2 \times 10^{-9}$  and  $2.45 \times 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$ .

The moisture adsorbing capacity of silicagel were between 30 and 40 per cent and the surface area 200-500  $\text{m}^2/\text{g}$  for acidic silicagels and below 50  $\text{m}^2/\text{g}$  for basic silicagels.

A pilot plant designed by using these experimental variables.

KAYNAKLAR

- 1- Abugaliye F., "Silikajel Dolgulu Kolonda Havanın Kurütulmasına Silikajelin Üretim Koşullarının Etkisi", Yüksek lisans tezi, Yöneten Balköse D., E.Ü. Müh.Fak., İzmir, (1988)
- 2- Aktaş Z., Öncül H., Ural S., Sayısal Çözümleme, O.D.T.Ü. Bilgisayar Mühendisliği Böl.(1981).
- 3- Alberty R., Dannies F., Physical Chemistry, John Wiley and Sons, Newyork,(1980).
- 4- Alexander G.B., The Polymerization of Monosilicic Acid, Journal Amerikan Chemical Society, Vol. 76, 2094-2096, (1954).
- 5- Alexander G.B., The Reaction of Low Moleculer Weight Silicic Acids With Molybdic Acid, Journal American Chemical Society, Vol. 75, 5655-5657,(1953)
- 6- Alpay E., Kütle Aktarımı , E.Ü.Müh Fak., İzmir,(1983).
- 7- Asworth J.C., Carter J.W., Examination of Drying behavior of Silicajel granules by continious Weighing in air stream, Mujumdar A.S.(Editor), Drying 80, Developments in Drying, Mc Grow Hill, Newyork , (1980).
- 8- Baumann V.H., Polymerisation und De polymerisation der Kieselsaure unter Verschiedenen Bedingungen, KolloidZeitschrift, band 162, 28-35,(1958).
- 9- Baysal B., Polimer Kimyası, O.D.T.Ü. Fen ve Edebiyat Fak. Ankara, (1981).
- 10- Betchold M.F., Amerikan Patent, 2-754-902, (1951).
- 11- Ciborowski J., Wolny 4."Dryig of wet solid spheres trough Contact With Dry Fine solid particles during mixing, int. J.Heat an Mars,(1983).
- 12- Coudurier M., Baudru B., Donnet J.B., Etude de la Polycondensation de l'acide Disilicique, Bulletin de la Societe Chimique de France N° 9, 3154-3160, (1971).
- 13- Coulson J.M., Richardson J.F., Chemical Engineering, Pergamon Press, Oxford, (1978).

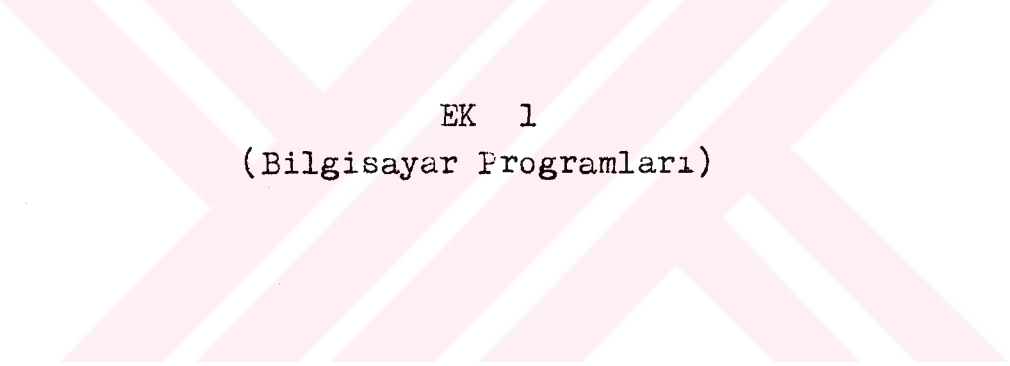
- 14- Crank J., The Mathematics of Diffusion, second edition, Oxford University Press, London(1975).
- 15- Egon, Gottfried, Silicagel und Verfahren u Seirer Herstellung, Alman patent, 19-26-214,(19707).
- 16- Fernelius W.C., Inorganic Synthesis, Mc Graw Hill, Newyork (1946).
- 17- Froment M., Bischoff., K.B., Chemical Reactor Analysis and Desingn, John Wiley and sons, Inc. Newyork,(1979).
- 18- Gerhard M., Heinz G., Wilhelm C., Proses for the manufacture of Substantially spherical, silica containing hydrogels, American patent, 3-872-217,(1975).
- 19- Groth W., Hausmann P., Verfahren und Anlage Zur Herstellungmnguoen Silicagel, Isviçre patenti, 59-2024,(1977)
- 20- Hoebbel D.,Wieker W., Z.Anorg. Allgem.Chem.400, 148, (1973).
- 21- Iler R.K., The Chemistry of Silica, A Wiley Interscience Publication, John Wiley and Sons, Newyork,(1979).
- 22- Iler R.K. The Colloid Chemistry of Silica and Silicatee, Cornell University, Newyork,(1951).
- 23- Jaccard P., Conversion of Luquid Phases of Nonmetallic Substances, Especially Polymerizeble or Grystallizable substances into Solid Phases, Amerikan patent, 40-51-208, (1977).
- 24- Koho K., Japan Patent, 59-08-615 (CA),(1984).
- 25- Lewis W.K., Radasch A.H., Lewis H.C., Industrial Stoichio-  
metry, Mc Graw Hill, Inc., Tokyo,(1954).
- 26- Linsen B.G., Boer J.H., Okkerse C., Cyrot J., Le Mecanisme de La Condensation Catalytique de L'acide Silicique, Journal Chimie Physique, N<sup>o</sup>32, -439-444, (1960).
- 27- Meares P., Polymers Structure and Bulk Properties, Von Nostrand, Newyork,(1967).
- 28- Merrill R.C., Spencer R.W., Gelation of Sodium Silicate Effect of Sulfuric acid, Hydrochloric acid, Ammonium Sulfate and Sodium Aluminate, 806-812,(1949).



- 29- Merrill R.C., Middleton A.B., Spencer R.W., Gelation Times of Various Silica Sols, Effect of Low Temperatures, Industrial Engineering Chemistry, 43A, 1129-1132, (1951).
- 30- Mukherjee N.P., Ramachandran L.V., Saran T., Pal B.I., Effect of Reaction Variables on Pore Structure of Silicagel, Fuel Science Technology Vol.3, pp 23-27,(1984).
- 31- Okkerse C., "Submicroporus and Macroporous Silica" thesis Delft Uitgevers Maarschappij. N.V. Delft, Netherlands, (1961)
- 32- Okkerse C., De Boer J.H, Cyrot M., J.Chim. Phys.57-534, (1960).
- 33- Peker S., Özsaygı I.R., Akışkanlar Mekanigi, E.Ü.Kimya Fak., İzmir, (1983).
- 34- Rao S., Nayar B.C., Influence of pH of Formation of Silicagel on its Sorption-Desorption Hystresis With Water, Indian Journal of Chemistry, 16A, 120-122, (1978).
- 35- Rağon, İbrahim, " Drying, 84-110-113, Hemisphere Pub.Com. Newyork,(1984).
- 36- Sasaki Hiromi, Miyoshi, Takao, Tanaka, Tadashi, Silicagel with Desired Physical Properties, Alman patenti, 33-24-740 (CA),(1984).
- 37- Shamrikov V.M., Malikman V., Neimark N.E., Kesareva G.M., Mil'man D.I., Verbuk V.M., Study of Kinetics of Silicic Acid Hydrogel During Silicagel Production, Zh Prikl. Khim.(A), 56(11) 2421(CA), Leningrad,(1983).
- 38- Sherwood T., Pigford R., Wilke C.R., Mass Transfer, Mc Graw Hill, Newyork,(1975).
- 39- Treybal E.R., Mass- Transfer Operations, Mc Grow Hill, Newyork, (1955).
- 40- Tokanagi T., Characteristic Changes after Naturel Drying and Heating of Silicahydrogel Produced by Adding Ammonium Chloride to Collöidal Silica ; Imano, 25(12), 733-81 (CA), (1978).

- 41- Turkevich J., Bartholin M., Formation of Silica Gels And Sols for use as Catalysts, Revista Del Instituto Mexicano Del Petroles, 87-95,(1976).
- 42- Weldes H.H., Lange R.K., Soluble Silicates, Industrial and Engineering Chemistry, Vol. 61, pp. 29-44,(1969).
- 43- Winyall M.E., Silicagels Preperation and Properties, Applied Industrial Catalysis, Vol.3,pp 43-61,(1984).





EK 1  
(Bilgisayar Programları)

```
5 REM yikdif1 adli bilgisayar programi
10 REM Yikama Deneyindeki Difuzyon Katsayilarinin Bulunmasi
20 DIM x(40),y(40),m(40),v(40),zz(40)
30 REM l1:tabaka kalinligi,xs1:M sonsuz degerine karsilik gelir,xs2:t=0 anindaki
   konsantrasyon degerine karsilik gelir.
40 l1=2.5
50 xs1=2.43;xs2=3.05
60 xs1=108(-xs1);xs2=108(-xs2)
65 xs1=xs1-xs2
70 READ n
90 FOR i=1 TO n
90 READ x(i)
100 NEXT i
110 FOR j=1 TO n
120 READ y(j)
130 y(j)=((108(-y(j)))-xs2)/xs1
140 NEXT j
150 FOR i=1 TO n
160 k=k+x(i)*y(i)
170 l=l+x(i)
180 m=m+y(i)
190 c=c+x(i)82
200 o=o+y(i)82
210 NEXT i
220 b=(k-l*m/n)/((c-(l82)/n))
230 a=m/n-b*(l/n)
240 r=(k-l*m/n)/((c-(l82)/n)*(o-(m82)/n)80.5
250 De=(b*l1)82*PI/16
260 De=De/600000
270 PRINT "Deney Nosunu ve pH'ini Giriniz"
280 INPUT dn,ph
290 PRINT "t81/2 "
300 PRINT "(dak.1/2) ", "Mt/Ms "
310 PRINT "-----", "-----"
320 FOR i=1 TO n
330 PRINT x(i),USING"###":y(i)
340 NEXT i
350 PRINT
360 PRINT "Densy No=":dn
370 PRINT
380 PRINT" Olusum pH'i=":ph
390 PRINT
400 PRINT "a'nin degeri=":a
410 PRINT
420 PRINT "b'nin degeri=":b
430 PRINT
440 PRINT "Difuzyon Katsayisi=":De:"metrekare/saniye"
450 PRINT
460 PRINT"korelasyon katsayisi=":r
470 DATA 9
480 DATA 2.24,3.16,3.87,4.47,5.0,5.48,5.92,6.32,6.71
490 DATA 2.81,2.73,2.69,2.66,2.65,2.64,2.63,2.62,2.61
```

```
3 REM yika5 adli bilgisayar programi
4 REM denge pH'larindan giderek bulunan olmasi gereken pH'lar
5 DIM xss(15),yss(15),ph(15)
10 FOR i=1 TO 15
20 READ xss(i)
30 NEXT i
40 FOR i=1 TO 15
50 yss(i)=(296/96)*108*(-xss(i))
60 yss(i)=-LOG(yss(i))/LOG(10)
70 PRINT yss(i)
75 ph(i)=yss(i)
80 NEXT i
90 DATA 2.43,2.72,3.11,4.73,2.76,2.72,2.81,2.95,4.33,2.63,1.4,1.5,1.67,1.88,1.16
100 REM ln((ca0-ca1/ca0-ca1))'e karsi t grafiginden difuzyon katsayisi hesaplar.
110 DIM t(10),m1(10,15),y(10,15),ca1(10,15),da(15),ca0(11,15),x(10),calort(15),a
(15),b(15),r(15),zz(15),r2(15),yc(10,15),daw(15)
120 pi=PI*0.6282/4
130 n=10
140 FOR j=1 TO 15
160 FOR i=1 TO 1
170 ca0(i,j)=108(-ph(j))
180 NEXT i,j
190 FOR i=2 TO 10
200 READ t(i)
210 x(i)=t(i)
220 NEXT i
230 FOR j=1 TO 15
240 topt=0
250 FOR i=1 TO 10
260 READ m1(i,j)
270 ca1(i,j)=108(-m1(i,j))
280 topt=topt+ca1(i,j)
290 NEXT i
300 calort(j)=topt/10
310 NEXT j
320 FOR j=1 TO 15
330 FOR i=1 TO 10
340 y(i,j)=(ca1(i,j)-ca1(1,j))*0.2
350 NEXT i,j
360 FOR j=1 TO 15
370 FOR i=1 TO 10
380 ca0(i+1,j)=(ca0(i,j)*0.048)-y(i,j)
390 ca0(i+1,j)=ca0(i+1,j)*1000/48
400 NEXT i,j
410 FOR j=1 TO 15
420 FOR i=1 TO 10
430 y(i,j)=(ca0(i,j)-ca1(i,j))/(ca0(i,j)-ca1(1,j))
440 y(i,j)=-LOG(y(i,j))
450 NEXT i,j
460 FOR j=1 TO 15
470 t=29+j
480 PRINT ,t; ". deneydeki ca0,ca1, ve yayilan miktarlar"
490 PRINT "-----"
500 PRINT "ca0          ca1          yayilan miktarlar"
510 PRINT "-----"
520 FOR i=1 TO 10
530 PRINT ca0(i+1,j);TAB(15)ca1(i,j);TAB(30)y(i,j)
540 NEXT i,j
550 FOR j=1 TO 15
560 x(1)=0;y(1,1)=0
---
```

```
570 k=0:l=0:m=0:c=0:o=0
580 FOR i=1 TO 10
590 k=k+x(i)*y(i,j)
600 l=l+x(i)
610 m=m+y(i,j)
620 c=c+x(i)*2
630 o=o+y(i,j)*2
640 NEXT i
650 xort=l/10:yort=m/10
660 pp=0:yy=0
670 FOR i=1 TO 10
680 pp=pp+(x(i)-xort)*2
690 yy=yy+(y(i,j)-yort)*2
700 NEXT i
710 sx=(pp/9)*0.5
720 sy=(yy/9)*0.5
730 b(j)=((n*k)-(l*m))/(n*c-l*2)
740 a(j)=((m*c)-(l*K))/(n*c-l*2)
750 r(j)=b(j)*sx/sy
760 top=0
770 FOR i=1 TO 10
780 yc(i,j)=a(j)+b(j)*x(i)
790 top=top+(y(i,j)-yc(i,j))*2
800 NEXT i
810 syx=(top/8)*0.5
820 r2(j)=(k-l*m/n)/((c-l*2)/n)*(o-m*2)/n)*0.5
830 NEXT j
840 ll=2.5
850 FOR j=1 TO 15
870 t=j
872 IF j>5 AND j<11 THEN t=1+j
874 IF j>=11 THEN t=2+j
880 PRINT ,t:".deneydeki egim=":b(j)
890 PRINT ,t:".deneydeki y eksenini kesim noktası=":a(j)
900 PRINT ,t:".deneydeki korelasyon katsayısı=":r(j)
910 da(j)=((b(j)*ll*2)/PI*2)/600000
920 PRINT ,t:".deneydeki difuzyon katsayilari=": da(j)
930 NEXT j
950 DATA 5,10,15,20,25,30,35,40,45
960 DATA 3.05,2.81,2.73,2.69,2.66,2.65,2.64,2.63,2.62,2.61
970 DATA 3.9,3.42,3.32,3.26,3.21,3.17,3.16,3.13,3.11,3.1
980 DATA 3.78,3.68,3.59,3.57,3.54,3.52,3.5,3.48,3.47,3.46
990 DATA 5.30,5.27,5.16,5.09,5.04,5.01,4.98,4.96,4.94,4.93
1000 DATA 4.3,4.7,3.37,3.31,3.26,3.22,3.2,3.17,3.15,3.14
1010 DATA 3.85,3.41,3.32,3.27,3.24,3.22,3.19,3.17,3.16,3.14
1020 DATA 3.9,3.51,3.43,3.39,3.35,3.33,3.3,3.28,3.27,3.26
1030 DATA 4.13,3.67,3.6,3.55,3.51,3.47,3.47,3.46,3.44,3.42
1040 DATA 5.54,5.06,4.95,4.88,4.83,4.8,4.77,4.75,4.73,4.7
1050 DATA 3.7,3.4,3.32,3.26,3.22,3.19,3.16,3.14,3.13,3.11
1060 DATA 2.6,2.21,2.12,2.04,1.98,1.96,1.92,1.9,1.87,1.85
1070 DATA 2.76,2.35,2.22,2.18,2.12,2.08,2.03,2.01,1.98,1.96
1080 DATA 3.2,4.7,2.4,2.34,2.3,2.27,2.24,2.21,2.18,2.16
1090 DATA 2.9,2.56,2.46,2.4,2.35,2.3,2.27,2.25,2.24,2.22
1100 DATA 2.3,1.92,1.85,1.78,1.74,1.72,1.69,1.66,1.64,1.62
```

```
10 DIM t(10),m(10,27),y(10,27),w(10),ca1(10,27),da(10,27),daw(27),ph(27),ca0(11,
29),pp(27)
20 REM deney nolarinin girilmesi
21 FOR i=1 TO 27
30 READ pp(i)
31 NEXT i
32 DATA 30,31,32,33,34,35,36,37,38,39,40,41,1,2,3,4,5,7,8,9,10,11,13,14,15,16,17
33 REM s:yayilan yuzeyin alanı
40 s=PI*0.6262/4
50 FOR j=1 TO 27
60 READ ph(j)
70 FOR i=1 TO 1
80 ca0(i,j)=106(-ph(j))
90 NEXT i,j
100 FOR i=2 TO 10
110 READ t(i)
120 NEXT i
130 FOR j=1 TO 27
140 FOR i=1 TO 10
150 READ m(i,j)
160 ca1(i,j)=106(-m(i,j))
170 NEXT i,j
180 FOR j=1 TO 27
190 FOR i=2 TO 10
200 y(i,j)=(ca1(i,j)-ca1(1,j))*0.2
210 NEXT i,j
220 FOR j=1 TO 27
230 FOR i=1 TO 10
232 IF j>12 THEN 256
240 ca0(i+1,j)=(ca0(1,j)*0.048)-y(i,j)
250 ca0(i+1,j)=ca0(i+1,j)*1000/48
252 GOTO 260
254 ca0(i+1,j)=(ca0(1,j)*0.096)-y(i,j)
277 ca0(i+1,j)=ca0(i+1,j)*1000/96
250 NEXT i,j
270 FOR j=1 TO 27
290 'PRINT#8, ,pp(j):". deneydeki ca0,ca1 ve yayilan miktarlar"
300 'PRINT#8, "-----"
310 'PRINT#8, "ca0          ca1          yayilan miktar"
320 'PRINT#8, "-----"
330 FOR i=1 TO 10
340 'PRINT#8, ca0(i+1,j):TAB(15)ca1(i,j):TAB(30)y(i,j)
350 NEXT i,j
360 FOR j=1 TO 27
380 top=0
390 FOR i=2 TO 10
400 da(i,j)=(PI*(y(i,j))62)/(4*t(i)*((ca1(i,j)-ca0(i,j))62)*s82)
410 da(i,j)=da(i,j)/6000
420 PRINT#8, ,pp(j):". deneydeki difuzyon katsayilari=";da(i,j)
430 top=top+da(i,j)
440 NEXT i
450 daort=top/9
540 PRINT#8, ,pp(j):". deneydeki difuzyon katsayisi arit =";daort
550 NEXT j
560 DATA .83,.85,1.33,1.36,1.8,1.87,2.26,2.28,2.78,2.93,5.43,5.62
565 DATA 1.94,2.23,2.62,4.24,2.27,2.23,2.32,2.46,3.84,2.14,.91,1.01,1.18,1.39,.6
7
570 DATA 5,10,15,20,25,30,35,40,45
580 REM sureklinin verileri
```

590 '30 deney  
600 DATA 2.17,2.07,2.01,1.97,1.93,1.91,1.89,1.87,1.85,1.83  
610 '31 deney  
620 DATA 2.15,2.07,1.95,1.92,1.89,1.87,1.85,1.83,1.81,1.79  
630 '32 deney  
640 DATA 2.6,2.45,2.38,2.34,2.31,2.29,2.27,2.26,2.25,2.24  
650 '33 deney  
660 DATA 2.7,2.44,2.38,2.34,2.32,2.30,2.28,2.27,2.26,2.25  
670 REM 34. deney  
680 DATA 3.08,2.85,2.8,2.77,2.74,2.72,2.7,2.69,2.68,2.67  
690 REM 35. deney  
700 DATA 3.1,2.87,2.8,2.76,2.73,2.7,2.69,2.68,2.67,2.66  
710 REM 36. deney  
720 DATA 3.26,3.11,3.09,3.08,3.07,3.06,3.05,3.04,3.04,3.03  
730 REM 37. deney  
740 DATA 3.37,3.2,3.18,3.16,3.15,3.13,3.12,3.11,3.1,3.09  
750 REM 38. deney  
760 DATA 4.22,3.82,3.74,3.69,3.67,3.65,3.63,3.62,3.61,3.6  
770 REM 39. deney  
780 DATA 4.62,4.09,4.02,3.98,3.94,3.92,3.89,3.86,3.85,3.84  
790 REM 40. deney  
800 DATA 6.3,6.26,6.23,6.21,6.20,6.19,6.18,6.17,6.16,6.15  
810 REM 41. deney  
820 DATA 7.01,6.5,6.45,6.43,6.4,6.38,6.37,6.36,6.35,6.34  
830 DATA 3.05,2.81,2.73,2.69,2.66,2.65,2.64,2.63,2.62,2.61  
840 DATA 3.9,3.42,3.32,3.26,3.21,3.17,3.16,3.13,3.11,3.1  
850 DATA 3.78,3.68,3.59,3.57,3.54,3.52,3.5,3.48,3.47,3.46  
860 DATA 5.30,5.27,5.16,5.09,5.04,5.01,4.98,4.96,4.94,4.93  
870 DATA 4,3.47,3.37,3.31,3.26,3.22,3.2,3.17,3.15,3.14  
880 DATA 3.85,3.41,3.32,3.27,3.24,3.22,3.19,3.17,3.16,3.14  
890 DATA 3.9,3.51,3.43,3.39,3.35,3.33,3.3,3.28,3.27,3.26  
900 DATA 4.13,3.67,3.6,3.55,3.51,3.47,3.47,3.46,3.44,3.42  
910 DATA 5.54,5.06,4.95,4.88,4.83,4.8,4.77,4.75,4.73,4.7  
920 DATA 3.7,3.4,3.32,3.26,3.22,3.19,3.16,3.14,3.13,3.11  
930 DATA 2.6,2.21,2.12,2.04,1.98,1.96,1.92,1.9,1.87,1.85  
940 DATA 2.76,2.35,2.22,2.18,2.12,2.08,2.03,2.01,1.98,1.96  
950 DATA 3,2.47,2.4,2.34,2.3,2.27,2.24,2.21,2.18,2.16  
960 DATA 2.9,2.56,2.46,2.4,2.35,2.3,2.27,2.25,2.24,2.22  
970 DATA 2.3,1.92,1.85,1.78,1.74,1.72,1.69,1.66,1.64,1.62



```
10 REM yika4 adli bilgisayar programi
20 DIM pp(27),t(10),m1(10,27),y(10,27),ca1(10,27),da(10,27),ph(27),ca0(11,27),x(
10),calort(27),a(27),b(27),r(27),zz(27),r2(27),yc(10
,27),daw(27)
30 REM deney no'larinin girilmesi
40 FOR i=1 TO 27
50 READ pp(i)
60 NEXT i
70 DATA 30,31,32,33,34,35,36,37,38,39,40,41,1,2,3,4,5,7,8,9,10,11,13,14,15,16,17
75 REM s: yayinan yuzeyin alani
80 s=PI*0.625*14
90 n=10
95 REM siviye derisimlerin hesaplanmasi
100 FOR j=1 TO 27
110 READ ph(j)
120 FOR i=1 TO 1
130 ca0(i,j)=108*(-ph(j))
140 NEXT i,j
145 REM zaman degerleri
150 FOR i=2 TO 10
160 READ t(i)
170 x(i)=t(i)*80.5
180 NEXT i
185 REM siviye derisimlerin hesaplanmasi
190 FOR j=1 TO 27
200 topt=0
210 FOR i=1 TO 10
220 READ m1(i,j)
230 ca1(i,j)=108*(-m1(i,j))
240 topt=topt+ca1(i,j)
250 NEXT i
260 calort(j)=topt/10
280 NEXT j
285 REM yayinan miktarlarin hesaplanmasi
290 FOR j=1 TO 27
300 FOR i=2 TO 10
310 y(i,j)=(ca1(i,j)-ca1(1,j))*0.2
320 NEXT i,j
330 FOR j=1 TO 27
340 FOR i=1 TO 10
350 IF j>12 THEN 390
360 ca0(i+1,j)=(ca0(1,j)*0.048)-y(i,j)
370 ca0(i+1,j)=ca0(i+1,j)*1000/48
380 GOTO 410
390 ca0(i+1,j)=(ca0(1,j)*0.096)-y(i,j)
400 ca0(i+1,j)=ca0(i+1,j)*1000/96
410 NEXT i,j
415 REM yazdirma
420 FOR j=1 TO 27
430 t=29+j
440 PRINT ,pp(j);". deneydeki ca0,ca1, ve yayinan miktarlar"
450 PRINT "-----"
460 PRINT "ca0          ca1          yayinan miktarlar"
470 PRINT "-----"
480 FOR i=1 TO 10
490 PRINT ca0(i+1,j);TAB(15)ca1(i,j);TAB(30)y(i,j)
500 NEXT i,j
```

```
505 REM korelasyon hesabi
510 FOR j=1 TO 27
520 x(1)=0:y(1,1)=0
530 k=0:l=0:m=0:c=0:o=0
540 FOR i=1 TO 10
550 k=k+x(i)*y(i,j)
560 l=l+x(i)
570 m=m+y(i,j)
580 c=c+x(i)^2
590 o=o+y(i,j)^2
600 NEXT i
610 xort=l/10:yort=m/10
620 pp=0:yy=0
630 FOR i=1 TO 10
640 pp=pp+(x(i)-xort)^2
650 yy=yy+(y(i,j)-yort)^2
660 NEXT i
670 sx=(pp/9)^0.5
680 sy=(yy/9)^0.5
690 b(j)=((n*k)-(l*m))/(n*c-l^2)
700 a(j)=((m*c)-(l*K))/(n*c-l^2)
710 r(j)=b(j)*sx/sy
720 top=0
730 FOR i=1 TO 10
740 yc(i,j)=a(j)+b(j)*x(i)
750 top=top+(y(i,j)-yc(i,j))^2
760 NEXT i
770 syx=(top/8)^0.5
800 NEXT j
805 REM sonuclarin yazdirilmesi
810 FOR j=1 TO 27
820 top=0
830 PRINT ,pp(j);".deneydeki egim=";b(j)
840 PRINT ,pp(j);".deneydeki eksen noktas=";a(j)
850 PRINT ,pp(j);".deneydeki korelasyon katsayisi=";r(j)
860 FOR i=2 TO 10
870 da(i,j)=((b(j)^2*PI)/(4*(ca1(i,j)-ca0(i,j))^2*s^2))/6000
880 PRINT ,pp(j);".deneydeki difuzyon katsayilari="; da(i,j)
890 top=top+da(i,j)
900 NEXT i
910 daort=top/9
1030 PRINT ,pp(j);".deneydeki difuzyon katsayisi arit =";daort
1040 NEXT j
1050 DATA .83,.85,1.33,1.36,1.8,1.87,2.26,2.28,2.78,2.93,5.43,5.62
1060 DATA 1.94,2.23,2.62,4.24,2.27,2.23,2.32,2.46,3.84,2.14,.91,1.01,1.18,1.39,.
67
1070 DATA 5,10,15,20,25,30,35,40,45
1080 REM sureklinin verileri
1090 '30 deney
1100 DATA 2.17,2.07,2.01,1.97,1.93,1.91,1.89,1.87,1.85,1.83
1110 '31 deney
1120 DATA 2.15,2.07,1.95,1.92,1.89,1.87,1.85,1.83,1.81,1.79
1130 '32 deney
1140 DATA 2.6,2.45,2.38,2.34,2.31,2.29,2.27,2.26,2.25,2.24
1150 '33 deney
1160 DATA 2.7,2.44,2.38,2.34,2.32,2.30,2.28,2.27,2.26,2.25
1170 REM 34. deney
1180 DATA 3.08,2.85,2.8,2.77,2.74,2.72,2.7,2.69,2.68,2.67
1190 REM 35. deney
```

1200 DATA 3.1,2.87,2.8,2.76,2.73,2.7,2.69,2.68,2.67,2.66  
1210 REM 36. deny  
1220 DATA 3.26,3.11,3.09,3.08,3.07,3.06,3.05,3.04,3.04,3.03  
1230 REM 37. deny  
1240 DATA 3.37,3.2,3.18,3.16,3.15,3.13,3.12,3.11,3.1,3.09  
1250 REM 38. deny  
1260 DATA 4.22,3.82,3.74,3.69,3.67,3.65,3.63,3.62,3.61,3.6  
1270 REM 39.deny  
1280 DATA 4.62,4.09,4.02,3.98,3.94,3.92,3.89,3.86,3.85,3.84  
1290 REM 40.deny  
1300 DATA 6.3,6.26,6.23,6.21,6.20,6.19,6.18,6.17,6.16,6.15  
1310 REM 41. deny  
1320 DATA 7.01,6.5,6.45,6.43,6.4,6.38,6.37,6.36,6.35,6.34  
1330 DATA 3.05,2.81,2.73,2.69,2.66,2.65,2.64,2.63,2.62,2.61  
1340 DATA 3.9,3.42,3.32,3.26,3.21,3.17,3.16,3.13,3.11,3.1  
1350 DATA 3.78,3.68,3.59,3.57,3.54,3.52,3.5,3.48,3.47,3.46  
1360 DATA 5.30,5.27,5.16,5.09,5.04,5.01,4.98,4.96,4.94,4.93  
1370 DATA 4,3.47,3.37,3.31,3.26,3.22,3.2,3.17,3.15,3.14  
1380 DATA 3.85,3.41,3.32,3.27,3.24,3.22,3.19,3.17,3.16,3.14  
1390 DATA 3.9,3.51,3.43,3.39,3.35,3.33,3.3,3.28,3.27,3.26  
1400 DATA 4.13,3.67,3.6,3.55,3.51,3.47,3.47,3.46,3.44,3.42  
1410 DATA 5.54,5.06,4.95,4.88,4.83,4.8,4.77,4.75,4.73,4.7  
1420 DATA 3.7,3.4,3.32,3.26,3.22,3.19,3.16,3.14,3.13,3.11  
1430 DATA 2.6,2.21,2.12,2.04,1.98,1.96,1.92,1.9,1.87,1.85  
1440 DATA 2.76,2.35,2.22,2.18,2.12,2.08,2.03,2.01,1.98,1.96  
1450 DATA 3,2.47,2.4,2.34,2.3,2.27,2.24,2.21,2.18,2.16  
1460 DATA 2.9,2.56,2.46,2.4,2.35,2.3,2.27,2.25,2.24,2.22  
1470 DATA 2.3,1.92,1.85,1.78,1.74,1.72,1.69,1.66,1.64,1.62



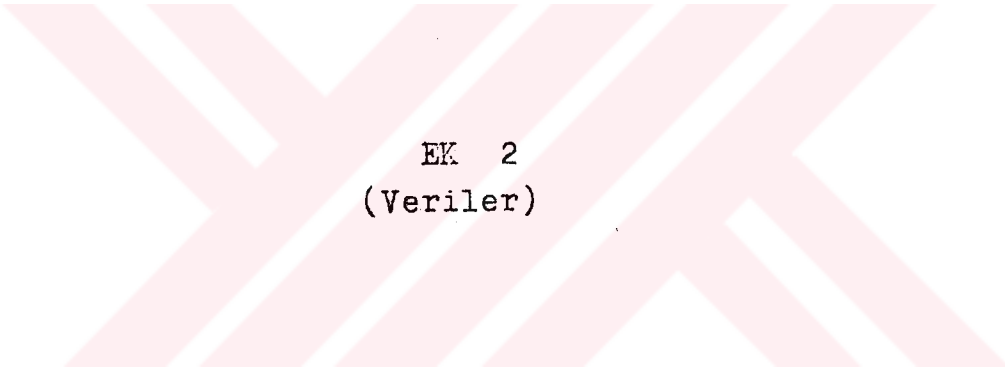
```
10 CLS
15 REM kokle adli bilgisayar programi
17 REM Mt/ms=1-(2*a(1+a))/(1+a+aö2*qö2)exp(-dqöt/1ö2) denklemine gore bulur
18 REM aa:sivi hacminin katli hacmine orani,1:abaka kalinligi,q(n):aa'ya bagli
tablolardan bulunan sabitler
20 n=9 :mm=0:top=0:topd=0
30 PRINT"DENEY NOSUNU GIRINIZ"
40 INPUT dn
50 PRINT"DENEY NO=";dn
60 DIM y(n),at(n),bt(n),d(n),ct(n),t(n),tt(50),dd(50)
70 REM Mt/ms=1-(2*a(1+a))/(1+a+aö2*qö2)exp(-dqöt/1ö2) denklemine gore bulur
80 aa=4:l=2.5
90 FOR i=1 TO 6
100 READ q(i)
110 NEXT i
120 DATA 1.7155,4.7648,7.8857,11.0183,14.1549,17.2933
130 FOR i=1 TO 6
140 a(i)=(2*aa*(1+aa))/(1+aa+aaö2*q(i)ö2)
150 b(i)=q(i)ö2/1ö2
160 c(i)=a(i)*-b(i)
170 NEXT i
175 REM zaman degerlerinin okunusu
180 FOR i=1 TO n
190 READ t(i):NEXT i
200 DATA 5,10,15,20,25,30,35,40,45
205 REM mt/ms lerin hesabi
210 'xs1=4.73:xs2=5.3
211 PRINT "t=0 anindaki pH degerini giriniz"
212 INPUT xs2
213 PRINT "t=sonsuzdaki pH degerini giriniz"
214 INPUT xs1
220 xs1=10ö(-xs1):xs2=10ö(-xs2)
230 xs1=xs1-xs2
240 FOR j=1 TO n
250 READ y(j)
260 y(j)=((10ö(-y(j)))-xs2)/xs1
270 PRINT y(j)
280 NEXT j
290 PRINT"-----"
295 REM fonksiyonun kok araliginin bulunmasi
300 dd(0)=15:j=1:d(j)=dd(0):GOSUB 950
310 tt(0)=fon
320 PRINT tt(0),dd(0)
330 FOR j=1 TO n
340 FOR i=1 TO 50
350 dd(i)=0.2*dd(i-1)
360 tt(i)=y(j)-1+a(1)*EXP(-dd(i)*b(1)*t(j))+a(2)*EXP(-dd(i)*b(2)*t(j))+a(3)*EXP(-dd(i)*b(3)*t(j))+a(4)*EXP(-dd(i)*b(4)*t(j))+a(5)*EXP(-dd(i)*b(5)*t(j))+a(6)*EXP(-dd(i)*b(6)*t(j))
370 IF (tt(i)/tt(i-1))<0 THEN a=dd(i):b=dd(i-1):GOTO 460
380 PRINT tt(i),dd(i)
390 NEXT i
400 PRINT"fonksiyon asimtotik cozum yok"
410 mm=mm+1:zz=j: PRINT"cozum yok":GOTO 880
420 PRINT "alt sinir degerini giriniz"
430 INPUT a
440 PRINT "ust sinir degerini giriniz"
450 INPUT b
```

```
450 GLS
470 at(j)=a:bt(j)=b
490 sayac=0
490 REM alt sinir degeri icin hesap
500 sayac=sayac+1:LOCATE 5,5:PRINT sayac
510 d(j)=at(j)
520 GOSUB 950
530 aif=fon
540 REM ust sinir degeri icin hesap
550 d(j)=bt(j)
560 GOSUB 950
570 bif=fon
580 IF ABS(at(j)-bt(j))<0.000000001 THEN 690
590 ct(j)=(at(j)+bt(j))/2
600 d(j)=ct(j)
610 REM orta nokta hesabi
620 GOSUB 950
630 cif=fon
640 IF(aif/cif)<0 THEN 670
650 at(j)=ct(j)
660 GOTO 490
670 bt(j)=ct(j)
680 GOTO 490
690 GOSUB 950
700 ep1=fon
710 IF (ABS(ep)<0.0001) THEN 780
720 PRINT ,j". difuzyon katsayisi=":d(j)
730 PRINT ,j". difuzyon katsayisi2=":at(j)
740 PRINT ,j". deneydeki bulunan difuzyon katsayisinin denkleme yerine konuldu
gundaki fonksiyon degeri=":ep1
750 PRINT"bulunan kok degeri dogru degildir.Alt ve ust sinir araligini degistirm
ek icin herhangi bir tusa basiniz."
760 IF INKEY#="" THEN 760
770 GOTO 420
780 d(j)=d(j)/600000
790 at(j)=at(j)/600000
800 PRINT ,j". difuzyon katsayisi=":d(j)
810 PRINT ,j". difuzyon katsayisi2=":at(j)
820 PRINT ,j". deneydeki bulunan difuzyon katsayisinin denkleme yerine konuldu
gundaki fonksiyon degeri=":ep1
830 IF j=zz THEN 880
840 top=top+d(j)
850 topd=topd+d(j)*2
860 PRINT ,j". Difuzyon Katsayisi=":d(j)
870 NEXT j
880 dort=top/(n-mm)
890 varyans=(topd-top)/2/n/(n-1)
900 stasap=SQR(vary)
910 PRINT "Ortalama Difuzyon Katsayisi=":dort
920 PRINT "varyans=":vary
930 PRINT"standart sapma=":stasap
940 END
950 fonc(j)=1+a(1)*EXP(-d(j)*b(1)*t(j))+a(2)*EXP(-d(j)*b(2)*t(j))+a(3)*EXP(-d(j)
*b(3)*t(j))+a(4)*EXP(-d(j)*b(4)*t(j))+a(5)*EXP(-d(j)
*b(5)*t(j))+a(6)*EXP(-d(j)*b(6)*t(j))
960 RETURN
1100 DATA 5.27,5.16,5.09,5.04,5.01,4.98,4.96,4.94,4.93
```

```
10 REM kurdif adli bilgisayar programi
20 REM Kuruma Deneyindeki Difuzyon Katsayilarinin azalan hiz periyodundaki deger
lerin Mt/Ms formulunden Bulunmasi
30 DIM x(40),y(40),m(40),v(40),zz(40)
40 REM l1:tabaka kalinligi:xs1:difuzyon kontrollu kurumaya baslayincaya kadar uz
aklastirilan su miktarı
50 l1=1.2
60 xs1=47.37
70 READ n
80 FOR i=1 TO n-1
90 READ x(i)
100 x(i)=x(i)^0.5
110 NEXT i
120 FOR j=1 TO n
130 READ y(j)
140 y(j)=y(j)-xs1
150 PRINT y(j)
160 NEXT j
170 FOR j=1 TO n-1
180 y(j)=y(j)/y(n)
190 NEXT j
200 FOR i=1 TO n-1
210 k=k+x(i)*y(i)
220 l=l+x(i)
230 m=m+y(i)
240 c=c+x(i)^2
250 o=o+y(i)^2
260 NEXT i
270 b=(k-l*m/n)/((c-l^2)/n)
280 a=m/n-b*(l/n)
290 r=(k-l*m/n)/((c-l^2)/n)*(o-m^2/n)^0.5
300 De=(b*l1)^2*PI/16
310 De=De/600000
320 PRINT "Deney Nosunu Giriniz"
330 INPUT dn
340 PRINT "t^1/2 "
350 PRINT "(dak.1/2) ", "Mt/Ms "
360 PRINT "-----", "-----"
370 FOR i=1 TO n-1
380 PRINT x(i),USING"###";y(i)
390 NEXT i
400 PRINT
410 PRINT "Deney No=";dn
420 PRINT
430 PRINT "a'nin degeri=";a
440 PRINT
450 PRINT "b'nin degeri=";b
460 PRINT
470 PRINT "Difuzyon Katsayisi=";De;"metrekare/saniye"
480 PRINT
490 PRINT "korelasyon katsayisi=";r
500 DATA 5
510 DATA 45,90,135,180
520 DATA 59.94,70.47,77.95,82.41,86.57
```

```
5 REM kurdifi1 adli bilgisayar programi
10 REM Kuruma Deneyindeki Difuzyon Katsayilarinin azalan hiz periyodundaki deger
lerin (x-xc)/(xc-xe) formulunden Bulunmasi

20 DIM x(40),y(40),m(40),v(40),z(40)
30 REM l1:tabaka kalinligi,xs1:M sonsuz degerine karsilik gelir.
40 l1=1.2
50 xs1=88.55
55 ss1=12.99
60 READ n
70 FOR i=2 TO n
80 READ x(i)
90 NEXT i
100 FOR j=1 TO n
110 READ y(j)
112 y(j)=(xs1-y(j))/ss1
130 NEXT j
132 FOR i=2 TO n
134 y(i)=LOG(y(i)/y(1))
136 NEXT
140 FOR i=2 TO n
150 k=k+x(i)*y(i)
160 l=1+x(i)
170 m=m+y(i)
180 c=c+x(i)*2
190 o=o+y(i)*2
200 NEXT i
210 b=(k-1*m/n)/((c-(1*2)/n))
220 a=m/n-b*(1/n)
230 r=(k-1*m/n)/((c-(1*2)/n)*(o-(m*2)/n))*0.5
240 De=-b*1182/PI*2
250 De=De/600000
260 PRINT "Deney Nosunu ve pH'ini Giriniz"
270 INPUT dn,ph
280 PRINT "t*81/2 "
290 PRINT "(dak.1/2) ", "Mt/Ms "
300 PRINT"-----", "-----"
310 FOR i=2 TO n
320 PRINT x(i),USING"##.###":y(i)
330 NEXT i
340 PRINT
350 PRINT "Deney No=":dn
360 PRINT
370 PRINT "Olusum pH'i=":ph
380 PRINT
390 PRINT "a'nin degeri=":a
400 PRINT
410 PRINT "b'nin degeri=":b
420 PRINT
430 PRINT "Difuzyon Katsayisi=":De:"metrekare/saniye"
440 PRINT
450 PRINT "korelasyon katsayisi=":r
460 DATA 4
470 DATA 45,90,135
480 'DATA 62.37,72.27,79.41,83.63
490 DATA 59.09,73.18,81.28,85.28
```



EK 2  
(Veriler)



Tablo 1 : Kesikli sistemde elde edilen silikahidro-  
jellerin yıkama deneyinde pH'ın zamanla değişimi.

luşum Hları	t (dak)										
	0	5	10	15	20	25	30	35	40	45	t
2.00	3.05	2.81	2.73	2.89	2.66	2.65	2.64	2.63	2.62	2.61	2.43
2.50	3.90	3.42	3.32	3.26	3.21	3.17	3.16	3.13	3.11	3.10	2.72
3.00	3.78	3.68	3.59	3.57	3.54	3.52	3.50	3.48	3.47	3.46	3.11
4.00	5.30	5.27	5.16	5.09	5.04	5.01	4.98	4.96	4.94	4.93	4.73
2.76	4.00	3.47	3.37	3.31	3.26	3.22	3.20	3.17	3.15	3.12	2.76
2.50	3.85	3.41	3.32	3.27	3.24	3.22	3.19	3.17	3.16	3.14	2.72
2.76	3.90	3.51	3.43	3.39	3.35	3.33	3.30	3.28	3.27	3.26	2.81
3.00	4.13	3.87	3.60	3.55	3.51	3.47	3.47	3.46	3.44	3.42	2.95
4.01	5.54	5.06	4.95	4.88	4.83	4.80	4.77	4.75	4.73	4.70	4.33
2.39	3.70	3.40	3.32	3.26	3.22	3.19	3.16	3.14	3.13	3.11	2.63
1.30	2.60	2.21	2.12	2.04	1.98	1.96	1.92	1.90	1.87	1.85	1.40
1.40	2.76	2.35	2.22	2.18	2.12	2.08	2.03	2.01	1.98	1.96	1.50
1.60	3.00	2.47	2.40	2.34	2.30	2.27	2.24	2.21	2.18	2.16	1.67
1.80	2.90	2.56	2.46	2.40	2.35	2.30	2.27	2.25	2.24	2.22	1.88
1.14	2.30	1.92	1.85	1.78	1.74	1.72	1.69	1.66	1.64	1.62	1.16

Tablo 2 : Sürekli sistemde eld edilen silikahidrojel-  
rin yıkama deneyinde pH'ın zamanla değişimi.

Olusum pH <sub>1</sub>	t (dak)										
	0	5	10	15	20	25	30	35	40	45	t <sub>2</sub>
1.00	2.17	2.07	2.01	1.97	1.93	1.91	1.89	1.87	1.85	1.83	1.54
1.00	2.15	2.07	1.95	1.92	1.89	1.87	1.85	1.83	1.81	1.79	1.56
1.50	2.60	2.45	2.38	2.34	2.31	2.29	2.27	2.26	2.25	2.24	2.05
1.50	2.70	2.44	2.38	2.34	2.32	2.30	2.28	2.27	2.26	2.25	2.08
2.00	3.08	2.85	2.80	2.77	2.74	2.72	2.70	2.69	2.68	2.67	2.52
2.00	3.10	2.87	2.80	2.76	2.73	2.70	2.69	2.68	2.67	2.66	2.59
2.50	3.26	3.11	3.09	3.08	3.07	3.06	3.05	3.04	3.04	3.03	2.98
2.50	3.37	3.20	3.18	3.16	3.15	3.13	3.12	3.11	3.10	3.09	3.00
3.00	4.22	3.82	3.74	3.69	3.67	3.65	3.63	3.62	3.61	3.60	3.50
3.36	4.62	4.09	4.02	3.98	3.94	3.92	3.89	3.86	3.85	3.84	3.65
3.53	6.30	6.26	6.23	6.21	6.20	6.19	6.18	6.17	6.16	6.15	6.10
3.65	7.01	6.50	6.45	6.43	6.40	6.38	6.37	6.36	6.35	6.34	6.33

Tablo 3 : Silikajelin özelliklerini incelemek için gerekli silikahidrojelın yıkama deneyindeki pH'ın yıkama sayısına göre değişimi

Düşük pH 1	Her yarım saatte bir yıkama sayısı							
	1	2	3	4	5	6	7	8
2.00	3.30	3.28	3.28	3.33	3.29	3.35	3.22	3.25
2.50	2.40	2.47	2.50	2.63	2.70	2.75	2.68	2.70
3.00	2.85	2.88	2.96	2.96	2.96	3.00	2.88	2.91
4.00	4.68	7.22	6.00	5.80	5.61	5.61	5.69	5.43
2.76	2.92	2.96	2.96	3.02	3.16	3.04	2.91	2.91
2.50	2.76	2.81	2.92	3.00	3.00	3.00	3.02	3.05
2.76	2.97	3.05	3.14	3.17	3.15	3.15	3.16	3.18
3.00	3.18	3.24	3.30	3.32	3.28	3.29	3.29	3.30
4.01	4.37	4.39	4.45	4.48	4.47	4.54	4.47	4.56
2.39	3.15	3.25	3.25	3.27	3.26	3.26	3.27	3.27
2.86	3.98	4.02	4.06	4.02	3.98	4.03	4.05	4.03
1.30	1.46	1.51	1.57	1.66	1.75	1.74	1.87	1.96
1.40	1.56	1.60	1.66	1.73	1.82	1.82	1.95	2.05
1.60	1.71	1.77	1.83	1.91	1.99	1.99	2.12	2.22
1.80	1.92	1.97	2.03	2.11	2.19	2.30	2.31	2.41
1.14	1.24	1.28	1.32	1.40	1.47	1.54	1.60	1.72
11.54	11.63	11.57	11.46	11.52	11.53	11.37	11.37	11.67
11.39	11.50	11.42	11.28	11.35	11.39	11.25	11.22	11.65
11.46	11.60	11.54	11.41	11.43	11.49	11.37	11.37	11.63
1.00	1.41	1.51	1.58	1.59	1.61	1.77	1.90	1.90
1.00	1.39	1.49	1.55	1.57	1.64	1.73	1.89	1.79

Tablo 3 ün devamı

Cluŝum pH 1	Her yarım saatte bir yıkama sayısı							
	1	2	3	4	5	6	7	8
1.50	1.94	2.03	2.11	2.17	2.16	2.26	2.40	2.27
1.50	1.93	2.04	2.11	2.16	2.17	2.28	2.42	2.28
2.00	2.39	2.50	2.54	2.64	2.58	2.69	2.75	2.53
2.00	2.40	2.53	2.55	2.63	2.60	2.69	2.75	2.54
2.50	3.02	3.08	3.13	3.15	3.18	3.22	3.26	2.98
2.50	2.84	3.00	3.05	3.09	3.12	3.12	3.19	2.95
3.00	3.45	3.57	3.62	3.63	3.68	3.78	3.82	3.50
3.36	5.72	5.65	5.63	5.62	5.58	5.51	5.45	5.93
3.53	5.94	5.85	5.74	5.71	5.74	5.65	5.60	6.11
3.65	6.15	5.97	5.86	5.72	5.82	5.74	5.75	6.24

Tablo 4 : Her deneydeki sol miktarlarını ve her yarım saatte bir yıkama suyu miktarları

Oluşum pH'ı	Sol miktarı (ml)	yıkama suyu miktarı (ml)
2.00	384	250
2.50	462.5	250
3.00	557	250
4.00	561.5	250
2.76	440	250
2.50	490	250
2.76	527	250
3.00	565	250
4.01	400	250
2.39	400	250
1.30	425.7	250
1.40	438.8	250
1.60	452.8	250
1.80	463.3	250
1.14	500	250
11.54	400	250
11.39	382	250
11.46	377	250
1.00	850	500
1.00	865	500
1.50	990	500
1.50	992	500

Tablo 4 devamı

Oluşum pH'ı	sol miktarı (ml)	yıkama suyu miktarı (ml)
2.00	1026	500
2.00	1050	500
2.50	1000	750
2.50	1007	750
3.00	1038	750
3.36	1053.5	750
3.53	1057	750
3.65	1058	750

Tablo 5 : Kuruma deneyinde zamanla buharlaşan su miktarları.

Oluşum pH <sub>1</sub>	t (dak)								
	45	90	135	180	225	270	315	360	t
2.00	15.66	33.73	49.08	62.37	72.27	79.41	83.63	--	--
2.50	13.18	30.46	46.03	59.09	73.18	81.28	85.28	--	88.55
3.00	16.15	37.54	52.12	66.56	77.36	83.69	86.67	--	89.21
4.00	13.82	24.99	47.37	59.94	70.47	77.95	82.41	--	86.57
2.76	14.44	32.72	48.92	62.82	74.66	82.09	85.23	--	--
1.00	16.32	32.29	47.31	59.64	69.78	77.09	80.33	81.32	81.55
1.00	15.59	30.99	46.22	59.21	69.29	76.93	80.38	81.77	82.47
1.50	15.36	30.67	44.96	57.59	67.77	75.82	79.15	80.68	81.01
1.50	14.04	32.83	47.27	59.77	69.31	76.59	79.29	80.22	80.22
2.00	15.45	30.42	44.95	57.66	67.65	74.47	77.81	79.18	79.18
2.00	14.92	28.76	41.57	52.27	62.89	70.89	75.01	76.56	77.17
2.50	15.28	27.01	41.27	51.57	61.25	69.70	74.94	77.42	78.67
2.50	12.82	24.87	38.31	49.34	59.22	67.45	72.58	74.96	75.89
3.00	15.66	28.54	41.22	51.43	58.32	67.06	70.01	71.79	72.90
3.36	13.84	28.10	41.37	53.98	64.10	71.79	76.07	77.70	78.14
3.53	11.53	24.17	34.91	47.22	57.21	66.11	70.73	73.13	73.72
3.65	14.34	25.29	37.99	48.77	58.24	66.52	71.04	73.24	73.46

Tablo 6 : Sudan zamanla buharlaşan su miktarları

t(saat)	m(gr/cm <sup>2</sup> )
1	0.195
2	0.448
3	0.704
4	0.989
5	1.190
6	1.406
7	1.728



Tablo 7 : Kesikli sistemde elde edilen silikajellerin kristalizuarda her yarım saatte bir suyu deđiştirilmek suretiyle 8 kez yıkanıp kurutulduktan sonraki yüzey alanları.

Deney No	Oluşum PH <sup>1</sup>	Kurutucuya girmeden önceki PH <sup>1</sup>	Sg(m <sup>2</sup> /g)
1	2.00	3.25	148.9
2	2.50	2.70	402.9
3	3.00	2.91	362.4
4	3.00	5.43	391.3
5	2.76	2.91	443.8
6	1.88	--	240
7	2.50	3.05	180
8	2.76	3.18	373.2
9	3.00	3.30	200
10	4.01	4.56	455.1
11	2.39	3.27	404.9
12	2.86	4.03	484.7
13	1.30	1.96	282.4
14	1.40	2.05	301.3
15	1.60	2.22	192.7
16	1.80	2.41	246
17	1.14	1.72	451.6
18	11.54	11.67	14
19	11.39	11.65	43
20	11.46	11.63	29.9

Tablo 8 : Sürekli sistemde elde edilen silikajellerin yüzey alanları ve nem tutma yüzdeleri.

Oluşum pH'ı	8 kez yıkanan silikajellerin son yıkama suyu pH'ı	1 kez 1.5lt su ile yıkanan silikajellerin yıkama suyu pH'ı	8 kez 0.5 ve 0.75 lt su ile yıkanan jellerin yüzey alanı (m <sup>2</sup> /g)	1 kez yıkanan silikajellerin yüzey alanı (m <sup>2</sup> /g)	8 kez yıkanan silikajellerin nem tutma yüzdeleri
1.0	1.90	1.83	378	110	32.4
1.0	1.79	1.81	322	204	30.9
1.5	2.24	2.31	262	45	32.5
1.5	2.28	2.32	333	43	32.1
2.0	2.53	2.74	308	82	30.7
2.0	2.54	2.76	323	61	32.1
2.5	2.98	3.10	387	217	35.3
2.5	2.95	3.14	397	101	31.2
3.0	3.5	3.68	380	50	29.2
3.36	5.93	3.62	486	212	44.4
3.53	6.11	6.40	530	409	39.8
3.65	6.24	6.45	466	404	41.0