

**YILDIZ TEKNİK ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ**

**H₂-O₂ YAKIT PİLLERİNDE PtRu/C ve PtIr/C KOMPOZİT
ELEKTROTLARIN SENTEZİ**

Kimya Mühendisi D. Berceste BEYRİBEY

**FBE Kimya Mühendisliği Anabilim Dalında
Hazırlanan**

YÜKSEK LİSANS TEZİ

Tez Danışmanı : Doç. Dr. Seyfettin ERTURAN (YTÜ)

İSTANBUL, 2006

İÇİNDEKİLER

	Sayfa
SİMGE LİSTESİ	iv
KISALTIMA LİSTESİ	v
ŞEKİL LİSTESİ	vi
ÇİZELGE LİSTESİ	viii
ÖNSÖZ	x
ÖZET	xi
ABSTRACT	xii
1 GİRİŞ	1
2 YAKIT PİLLERİ	3
2.1 Yakıt Pilinin Tarihçesi	3
2.2 Yakıt Pilinin Çalışma Prensibi	4
2.2.1 Yakıt İşleme Ünitesi	5
2.2.2 Güç Üretim Sistemi	5
2.2.3 Güç Dönüştürücü	6
2.2.4 Kontrol Sistemi	6
2.3 Yakıt Pillerinin Avantajları ve Dezavantajları	7
2.4 Yakıt Pillerinin Uygulama Alanları	8
2.4.1 Uzay Çalışması Uygulamaları	9
2.4.2 Askeri Uygulamalar	9
2.4.3 Evsel Uygulamalar	9
2.4.4 Sabit Güç Üretim Sistemi/Yüksek Güç Üretim Sistemi Uygulamaları	9
2.4.5 Taşınabilir Güç Kaynağı Uygulamaları	10
2.4.6 Atık/Atık Su Uygulamaları	10
2.4.7 Taşıtlar Uygulamaları	10
2.5 Yakıt Pili Çeşitleri	11
2.5.1 Alkali Yakıt Pili (AFC)	12
2.5.2 Polimer Elektrolit Membranlı Yakıt Pili (PEM)	12
2.5.3 Direk Metanol Kullanılan Yakıt Pili (DMFC)	13
2.5.4 Fosforik Asit Yakıt Pili (PAFC)	13
2.5.5 Erimiş Karbonat Yakıt Pili (MCFC)	14
2.5.6 Katı Oksit Yakıt Pili (SOFC)	14
3 POLİMER ELEKTROLİT MEMBRANLI YAKIT PİLLERİ	16
3.1 Proton Değişim Membranlı Yakıt Pillerinin Çalışma Prensibi	17
3.2 Elektrotlar ve Elektrot Yapısı	18

3.3	Elektrolit	20
3.4	PEM Yakıt Pillerinde Su Sorunu	22
3.5	Reaktan Bileşimi	23
4	DENEYSEL KISIM	26
4.1	Deneylerde Kullanılan Kimyasal Maddeler ve Cihazlar	26
4.2	Deneyin Yapılışı	31
4.3	DeneySEL Çalışma Sonuçları ve Analiz Teknikleri	33
5	SONUÇLAR VE ÖNERİLER	90
	KAYNAKLAR	92
	ÖZGEÇMİŞ	94

SİMGE LİSTESİ

E	Pil potansiyeli
E°	Standart potansiyel

KISALTMA LİSTESİ

AFC	Alkaline Fuel Cell
DMFC	Direct Methanol Fuel Cell
MCFC	Molten Carbonate Fuel Cell
MEA	Membrane Electrode Assembly
NASA	National Aeronautics and Space Administration
PAFC	Phosphoric Acid Fuel Cell
PEM	Proton Exchange Membrane
PEMFC	Proton Exchange Membrane Fuel Cell
PTFE	Politetrafloroetilen
SEM	Scanning Electrone Microscope
SOFC	Solid Oxide Fuel Cell
XRD	X-Ray Diffraction

ŞEKİL LİSTESİ

	Sayfa
Şekil 2.1	1839 yılında Sir William Grove tarafından geliştirilen ilk yakıt pili..... 3
Şekil 2.2	Yakıt pili sistemi..... 5
Şekil 2.3	PEM yakıt hücresi..... 6
Şekil 2.4	Yakıt pili türleri..... 11
Şekil 3.1	PEM yakıt pili..... 18
Şekil 3.2	Polietilen..... 21
Şekil 3.3	Politetrafloroetilen..... 21
Şekil 3.4	Perflorosülfonik asit PTFE kopolimeri..... 21
Şekil 4.1	Deney düzeneği..... 31
Şekil 4.2	Hidrazinle pH=4 ve T=25° sıcaklıkta elde edilen platin partikülleri..... 35
Şekil 4.3	Hidrazinle pH=7 ve T=25° sıcaklıkta elde edilen platin partikülleri..... 35
Şekil 4.4	Hidrazinle pH=10 ve T=25° sıcaklıkta elde edilen platin partikülleri..... 36
Şekil 4.5	Hidrazinle pH=10 ve T=25° sıcaklıkta elde edilen platin partikülleri..... 36
Şekil 4.6	T=25° sıcaklıkta, pH değişiminin partikül boyutu üzerine etkisi..... 49
Şekil 4.7	Hidrazinle pH=4 ve T=40° sıcaklıkta elde edilen platin partikülleri..... 50
Şekil 4.8	Hidrazinle pH=7 ve T=40° sıcaklıkta elde edilen platin partikülleri..... 50
Şekil 4.9	Hidrazinle pH=10 ve T=40° sıcaklıkta elde edilen platin partikülleri..... 51
Şekil 4.10	Hidrazinle pH=10 ve T=40° sıcaklıkta elde edilen platin partikülleri..... 51
Şekil 4.11	T=40° sıcaklıkta, pH değişiminin partikül boyutu üzerine etkisi..... 62
Şekil 4.12	Hidrazinle pH=4 ve T=50° sıcaklıkta elde edilen platin partikülleri..... 63
Şekil 4.13	Hidrazinle pH=7 ve T=50° sıcaklıkta elde edilen platin partikülleri..... 63
Şekil 4.14	Hidrazinle pH=10 ve T=50° sıcaklıkta elde edilen platin partikülleri..... 64
Şekil 4.15	T=50° sıcaklıkta, pH değişiminin partikül boyutu üzerine etkisi..... 74
Şekil 4.16	Dekante sudaki platin partikül boyutunun pH ile değişimini gösteren sıcaklık eğrileri..... 76
Şekil 4.17	Saf sudaki platin partikül boyutunun pH ile değişimini gösteren sıcaklık eğrileri..... 76
Şekil 4.18	Dekante sudaki platin partikül boyutunun sıcaklık ile değişimini gösteren pH eğrileri..... 77
Şekil 4.19	Saf sudaki platin partikül boyutunun sıcaklık ile değişimini gösteren pH eğrileri..... 77
Şekil 4.20	Dekante su içerisinde, zeta potansiyelinin pH ile değişimini gösteren sıcaklık eğrileri..... 78
Şekil 4.21	Saf su içerisinde, zeta potansiyelinin pH ile değişimini gösteren sıcaklık eğrileri..... 78
Şekil 4.22	Dekante su içerisinde zeta potansiyelinin sıcaklık ile değişimini gösteren pH eğrileri..... 79
Şekil 4.23	Saf su içerisinde zeta potansiyelinin sıcaklık ile değişimini gösteren pH eğrileri..... 79
Şekil 4.24	Grafit tozu..... 80
Şekil 4.25	Grafit tozu..... 81
Şekil 4.26	Hidrazinle pH=10 ve T=40° sıcaklıkta elde edilen Pt-C partikülleri..... 82
Şekil 4.27	Hidrazinle pH=10 ve T=40° sıcaklıkta elde edilen Pt-C partikülleri..... 82
Şekil 4.28	Hidrazinle pH=10 ve T=40° sıcaklıkta elde edilen Pt-C partikülleri..... 83
Şekil 4.29	Hidrazinle pH=10 ve T=40° sıcaklıkta elde edilen PtRu/C partikülleri..... 83
Şekil 4.30	Hidrazinle pH=10 ve T=40° sıcaklıkta elde edilen PtRu/C partikülleri..... 84

Şekil 4.31	Hidrazinle pH=10 ve T=40° sıcaklıkta elde edilen PtRu/C partiküllerinin dağılımı	84
Şekil 4.32	PtRu/C elektrotun XRD analizi	85
Şekil 4.33	Hidrazinle pH=10 ve T=40° sıcaklıkta elde edilen PtIr/C partikülleri	85
Şekil 4.34	Hidrazinle pH=10 ve T=40° sıcaklıkta elde edilen PtIr/C partikülleri	86
Şekil 4.35	Hidrazinle pH=10 ve T=40° sıcaklıkta elde edilen PtIr/C partiküllerinin dağılımı	86
Şekil 4.36	PtIr/C elektrotun XRD analizi	87
Şekil 4.37	Hidrazinle pH=10 ve T=40° sıcaklıkta elde edilen PtRuIr/C partikülleri	87
Şekil 4.38	Hidrazinle pH=10 ve T=40° sıcaklıkta elde edilen PtRuIr/C partikülleri	88
Şekil 4.39	Hidrazinle pH=10 ve T=40° sıcaklıkta elde edilen PtRuIr/C partiküllerinin dağılımı	88
Şekil 4.40	PtRuIr/C elektrotun XRD analizi	89

ÇİZELGE LİSTESİ

	Sayfa
Çizelge 4.1	Deneysel çalışmada kullanılan malzeme ve cihazlar..... 27
Çizelge 4.2	Hekzakloroplatinik asidin fiziksel ve kimyasal özellikleri..... 28
Çizelge 4.3	Hidrazinin fiziksel ve kimyasal özellikleri..... 29
Çizelge 4.4	Rutenyum klorürün fiziksel ve kimyasal özellikleri..... 29
Çizelge 4.5	İridyum klorürün fiziksel ve kimyasal özellikleri..... 30
Çizelge 4.6	Grafitin fiziksel ve kimyasal özellikleri..... 30
Çizelge 4.7	Hidrazin ile pH=4 ve T=25°C’de elde edilen platin partiküllerinin dekante su içerisindeki tanecik boyutu..... 37
Çizelge 4.8	Hidrazin ile pH=4 ve T=25°C’de elde edilen platin partiküllerinin saf su içerisindeki tanecik boyutu..... 38
Çizelge 4.9	Hidrazin ile pH=4 ve T=25°C’de indirgenen platin partiküllerinin dekante su içerisindeki zeta potansiyeli..... 39
Çizelge 4.10	Hidrazin ile pH=4 ve T=25°C’de indirgenen platin partiküllerinin saf su içerisindeki zeta potansiyeli..... 40
Çizelge 4.11	Hidrazin ile pH=7 ve T=25°C’de elde edilen platin partiküllerinin dekante su içerisindeki tanecik boyutu..... 41
Çizelge 4.12	Hidrazin ile pH=7 ve T=25°C’de elde edilen platin partiküllerinin saf su içerisindeki tanecik boyutu..... 42
Çizelge 4.13	Hidrazin ile pH=7 ve T=25°C’de indirgenen platin partiküllerinin dekante su içerisindeki zeta potansiyeli..... 43
Çizelge 4.14	Hidrazin ile pH=7 ve T=25°C’de indirgenen platin partiküllerinin saf sudaki zeta potansiyeli..... 43
Çizelge 4.15	Hidrazin ile pH=10 ve T=25°C’de elde edilen platin partiküllerinin dekante su içerisindeki tanecik boyutu..... 45
Çizelge 4.16	Hidrazin ile pH=10 ve T=25°C’de elde edilen platin partiküllerinin saf su içerisindeki tanecik boyutu..... 46
Çizelge 4.17	Hidrazin ile pH=10 ve T=25°C’de indirgenen platin partiküllerinin dekante su içerisindeki zeta potansiyeli..... 47
Çizelge 4.18	Hidrazin ile pH=10 ve T=25°C’de indirgenen platin partiküllerinin saf su içerisindeki zeta potansiyeli..... 48
Çizelge 4.19	T=25°C’de farklı pH değerlerinde elde edilen platin partikül boyutları..... 49
Çizelge 4.20	Hidrazin ile pH=4 ve T=40°C’de elde edilen platin partiküllerinin dekante su içerisindeki tanecik boyutu..... 52
Çizelge 4.21	Hidrazin ile pH=4 ve T=40°C’de elde edilen platin partiküllerinin saf su içerisindeki tanecik boyutu..... 53
Çizelge 4.22	Hidrazin ile pH=4 ve T=40°C’de indirgenen platin partiküllerinin dekante su içerisindeki zeta potansiyeli..... 54
Çizelge 4.23	Hidrazin ile pH=4 ve T=40°C’de indirgenen platin partiküllerinin saf su içerisindeki zeta potansiyeli..... 55
Çizelge 4.24	Hidrazin ile pH=7 ve T=40°C’de elde edilen platin partiküllerinin dekante su içerisindeki tanecik boyutu..... 56
Çizelge 4.25	Hidrazin ile pH=7 ve T=40°C’de elde edilen platin partiküllerinin saf su içerisindeki tanecik boyutu..... 57
Çizelge 4.26	Hidrazin ile pH=7 ve T=40°C’de indirgenen platin partiküllerinin dekante su içerisindeki zeta potansiyeli..... 58
Çizelge 4.27	Hidrazin ile pH=7 ve T=40°C’de indirgenen platin partiküllerinin saf su içerisindeki zeta potansiyeli..... 58

Çizelge 4.28	Hidrazin ile pH=10 ve T=40°C’de elde edilen platin partiküllerinin dekante su içerisindeki tanecik boyutu	59
Çizelge 4.29	Hidrazin ile pH=10 ve T=40°C’de elde edilen platin partiküllerinin saf su içerisindeki tanecik boyutu	60
Çizelge 4.30	Hidrazin ile pH=10 ve T=40°C’de indirgenen platin partiküllerinin dekante su içerisindeki zeta potansiyeli	61
Çizelge 4.31	Hidrazin ile pH=10 ve T=40°C’de indirgenen platin partiküllerinin saf su içerisindeki zeta potansiyeli	61
Çizelge 4.32	T=40°C’de farklı pH değerlerinde elde edilen platin partikül boyutları	62
Çizelge 4.33	Hidrazin ile pH=4 ve T=50°C’de elde edilen platin partiküllerinin dekante su içerisindeki tanecik boyutu	65
Çizelge 4.34	Hidrazin ile pH=4 ve T=50°C’de elde edilen platin partiküllerinin saf su içerisindeki tanecik boyutu	66
Çizelge 4.35	Hidrazin ile pH=4 ve T=50°C’de indirgenen platin partiküllerinin dekante su içerisindeki zeta potansiyeli	67
Çizelge 4.36	Hidrazin ile pH=4 ve T=50°C’de indirgenen platin partiküllerinin saf su içerisindeki zeta potansiyeli	67
Çizelge 4.37	Hidrazin ile pH=7 ve T=50°C’de elde edilen platin partiküllerinin dekante su içerisindeki tanecik boyutu	68
Çizelge 4.38	Hidrazin ile pH=7 ve T=50°C’de elde edilen platin partiküllerinin saf su içerisindeki tanecik boyutu	69
Çizelge 4.39	Hidrazin ile pH=7 ve T=50°C’de indirgenen platin partiküllerinin dekante su içerisindeki zeta potansiyeli	70
Çizelge 4.40	Hidrazin ile pH=7 ve T=50°C’de indirgenen platin partiküllerinin saf su içerisindeki zeta potansiyeli	70
Çizelge 4.41	Hidrazin ile pH=10 ve T=50°C’de elde edilen platin partiküllerinin dekante su içerisindeki tanecik boyutu	71
Çizelge 4.42	Hidrazin ile pH=10 ve T=50°C’de elde edilen platin partiküllerinin saf su içerisindeki tanecik boyutu	72
Çizelge 4.43	Hidrazin ile pH=10 ve T=50°C’de indirgenen platin partiküllerinin dekante su içerisindeki zeta potansiyeli	73
Çizelge 4.44	Hidrazin ile pH=10 ve T=50°C’de indirgenen platin partiküllerinin saf su içerisindeki zeta potansiyeli	73
Çizelge 4.45	T=50°C’de farklı pH değerlerinde elde edilen platin partikül boyutları	74
Çizelge 4.46	Farklı sıcaklık ve pH değerlerinde elde edilen Pt partiküllerinin ortalama tanecik boyutu	75
Çizelge 4.47	Farklı sıcaklık ve pH değerlerinde elde edilen Pt partiküllerinin ortalama zeta potansiyelleri	75

ÖNSÖZ

Bu çalışma, Yıldız Teknik Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü'ne bağlı olarak Kimya Mühendisliği Bölümü'nde yapmış olduğum yüksek lisans tezidir. Çalışmamda indirgen madde olarak hidrazin kullanılarak değişik sıcaklık ve pH değerlerinde hegzakloroplatinik asitten platin partikülleri elde edilmiş, yapılan analizlerin sonuçları doğrultusunda da uygun çalışma şartları belirlenmiştir. Daha sonra belirlenen bu çalışma şartlarında PtRu/C, PtIr/C ve PtRuIr/C kompozit elektrotları elde edilmiştir. Çalışmamın ileriki zamanlarda kompozit elektrot çalışmaları için bir kıyas niteliği taşımasını ümit ederim.

Öncelikle, çalışmalarımı gerçekleştirdiğim bu ortamı sağladıkları için Dekanımız Prof.Dr.Sabriye Pişkin'e ve Bölüm Başkanımız Prof.Dr.Ülker Beker'e; çalışmalarımda bana verdikleri bilgi ve desteklerinin yanı sıra kurmuş oldukları o güzel aileye beni de kabul ettikleri için değerli hocalarım Doç.Dr.Seyfettin Erturan'a, Yrd.Doç.Dr.Burcu Çorbacıoğlu'na ve Dr.Zehra Altın'a; lisans eğitimim boyunca ışığım olup bana hep yol gösteren Yrd.Doç.Dr.Nalan Akgün'e; tezimi yazma aşamasında yardımlarını benden esirgemeyen Arş.Gör.M.Bora Akın'a; beni bu kadar çok sevdiği ve akademik kariyeri seçmem konusunda beni hep teşvik ettiği için canım annem Esin'e; bende eksik olan her şeye sahip olarak beni tamamladığı için diğer yarım, ağabeyim Mengütay'a; hayata onunla başlayıp onsuz devam etmek zorunda kaldığım, özlemi hiç dinmeyecek olan babam Alpaslan'a; bugünlere gelmemde emeği geçen herkese, hocalarıma, dostlara, arkadaşlara sonsuz sevgiler, saygılar, teşekkürler...

Bu tezi, babam Alpaslan Beyribey'e ithaf ediyorum...

ÖZET

Fosil yakıtlar hala dünya enerji tüketiminin %90'ını karşılamaktadır. Toplam dünya enerji tüketiminin %40'ını karşılayarak zirvede olan petrolü, sırasıyla kömür ve doğalgaz takip etmektedir. Fosil yakıtların yanmasıyla oluşan bileşikler havaya yayılarak; insanların, bitkilerin, hayvanların ve tüm ekosistemin zarar görmesine neden olur. Tüm bu nedenlerden ötürü, hidrojen enerjisi ve yakıt pilleri tüm dünyada giderek daha da önem kazanmaktadır.

Bu çalışmada, daha çok proton elektrolit membranlı yakıt pillerinin verimli bir hale gelmesinde oldukça önemli olan PtRu/C, PtIr/C ve PtRuIr/C kompozit elektrotlarının eldesi üzerinde çalışılmıştır. SEM, partikül boyutu ve zeta potansiyeli analizleri ile optimum çalışma koşulları belirlenmiştir. Daha sonra, PtRu/C, PtIr/C ve PtRuIr/C kompozit elektrotları impregnasyon metodu ile elde edilmiştir. Elektrotların SEM görüntüleri alınıp XRD analizleri yapılmıştır.

Anahtar kelimeler: Yakıt pilleri, PEM yakıt pilleri, platin katalizör, PtRu/C elektrot, PtIr/C elektrot

ABSTRACT

Fossil fuels currently account for about 90 percent of world energy consumption. Petroleum leads with a share of about 40 percent of total world energy consumption, followed by coal and natural gas. In the process of burning fossil fuels compounds are emitted into the air which can cause harm to humans, plants, animals, and whole ecosystems. Relating to all these facts; hydrogen energy and fuel cells have a very high level of importance for the world.

In this work, we have more focused on PtRu/C, PtIr/C and PtRuIr/C composite electrodes which are very important to make proton exchange membrane fuel cell more efficient. The SEM, particle size and zeta potential analysis have been done for optimisation of working conditions. Then, PtRu/C, PtIr/C and PtRuIr/C composite electrodes obtained by impregnation method. SEM photograph of electrodes was taken and XRD analysis was done.

Keywords: Fuel cells, PEM fuel cells, platinumium catalyst, PtRu/C electrode, PtIr/C electrode.

1. GİRİŞ

Bilim ve teknolojinin hızla geliştiği günümüzde, en önemli konuların başında; geçen yüzyılda olduğu gibi yine enerji gelmektedir. Enerji; sanayinin, üretimin, gelişmenin ve kalkınmanın en temel girdisi olup, gerek dünyada gerekse ülkemizde nüfus artışına, sanayileşmeye ve teknolojik gelişmelere paralel olarak tüketimi artmaktadır. Buna karşılık geleneksel enerji kaynakları olan fosil yakıtların rezervleri ise gittikçe azalmaktadır. Günümüzde dünya enerji gereksiniminin % 80'i fosil yakıtlarla karşılanmaktadır. Dünyada bilinen petrol rezervlerinin ömrü 40 yıl, doğal gazın 61 yıl, kömürün ise 227 yıl olarak tahmin edilmektedir (YEKS, 2005).

Fosil yakıtlardan kaynaklanan karbon emisyonları küresel iklim değişimine neden olmaya başlayınca, çevresel endişeler giderek önem kazanmaya başlamıştır. Dünya fosil yakıtlardan vazgeçmek durumundadır. Uluslararası Enerji Ajansı (IEA) verilerine göre bugünkü enerji üretim ve tüketim alışkanlıklarının aynen devam etmesi durumunda, 2020 yılında dünya enerji ihtiyacının 1995 yılına göre %65 artacağı ve bu ihtiyacın %92'sinin fosil yakıtlardan karşılanacağı tahmin edilmektedir. Bu senaryoya göre aynı dönemde atmosferdeki karbon emisyonları %70 artacaktır. Bu artış eğiliminin sürmesi durumunda ise, 2100 yılına kadar küresel ortalama sıcaklığın 1 ile 3,5°C arasında yükselmesi ve buna bağlı olarak deniz seviyesinin yükselip, küçük adalar ile sahil şehirlerinin su altında kalması ve sıra dışı iklim değişimlerinin oluşması ile tarım ve insan yerleşiminin olumsuz etkilenmesi söz konusu olacaktır. Bu durumda asıl üzerinde durulması gereken konu artan enerji talebini karşılamak için hangi enerji kaynaklarının kullanılması gerektiğidir [1;2].

Bir yandan fosil yakıt rezervlerinin azalması, diğer yandan artan çevre kirliliği ve doğanın tahribi; etkili kalkınma hamleleri için çevre dostu olan enerji kaynaklarına yönelmeyi zorunlu kılmaktadır. Su, güneş, rüzgar, jeotermal, biyokütle gibi yenilenebilir ve nükleer enerji, yakıt hücreleri, hidrojen enerjisi gibi, yakın zamanlarda gündeme gelmiş olan yeni enerji kaynakları ise bunların başında gelmektedir (YEKS, 2005; Altın, 2002; Vizyon 2023 Projesi, 2004).

Yeni ve yenilenebilir enerjilerin katkılarına rağmen dünya hala fosil enerji çağında bulunmaktadır. Türkiye jeotermal, rüzgar ve güneş enerjisi alanlarında ciddi potansiyellere sahiptir. Fakat, ne bu alanlara ne de biyogaz, biyokütle, dalga ve hidrojen gibi enerji kaynaklarına yeterli AR-GE ve yatırımlar yapılmamaktadır [2].

Sonuç olarak; bugün yerli, yeni ve yenilenebilir enerji kaynaklarımızın kullanımı özendirilmeli ve yaygınlaştırılmalıdır. Bu kaynakların kullanımı ile elektrik enerjisi üreten

sistemler için malzeme, cihaz ve ekipmanların yerli üretim koşullarında oluşturulması ve bu alanda teknoloji üretebilir bir seviyeye ulaşmamız gerekmektedir.

Bunun için de;

Ülkemiz dışa bağımlı enerji politikalarından vazgeçmelidir.

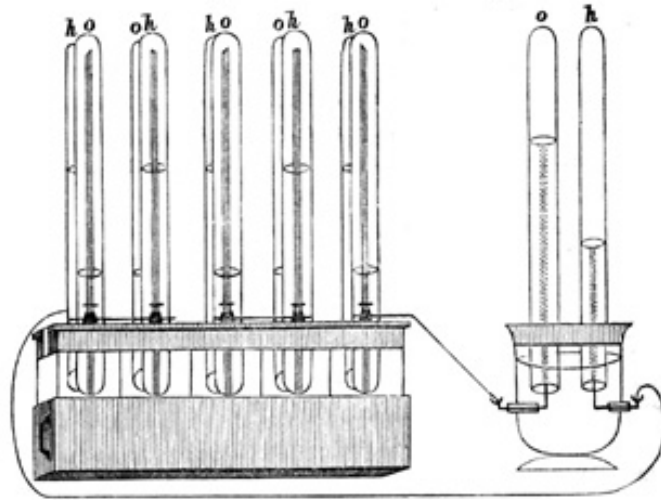
- Elektrik enerjisi üretiminde ulusal ve kamusal kaynaklar ile yerli, yeni ve yenilenebilir enerji kaynaklarına ağırlık verilmelidir.
- Yakıt teknolojilerinde kilit bir önem taşıyacak olan bor potansiyelimizi katma değere dönüştürecek politikalar üretilmeli, mevcut çalışmalar desteklenmelidir.
- Güneş enerjisinden yararlanma konusunda yol gösterici ve teşvik edici politikalar uygulanmalı, 2010 yılından itibaren maliyetlerinin düşeceği bildirilen fotovoltaik piller konusunda AR-GE çalışmaları arttırılmalıdır.
- Biyodizel üretime ve kullanımına yönelik çalışmalara önem verilmelidir.
- Hidrojen enerjisinin en önemli bağlayıcı ve en uygun sentetik yakıt olduğu gözetilerek ülkemizin su kaynakları bakımından avantajı da değerlendirilip, hidrojen enerjisine geçiş hızlandırılmalıdır.
- Otomotiv sanayisinde geleceğin yakıtı olan hidrojen yakıtının kullanılması ile ilgili olarak AR-GE çalışmalarına başlanmalı, hidrojen kullanacak içten yanmalı motorlar ve yakıt pilleri geliştirilmeli, hidrojen depolama ve dağıtım sistemleri üzerine AR-GE faaliyetleri yoğunlaştırılmalıdır (YEKS, 2005).

2. YAKIT PİLLERİ

Yakıt pilleri, sisteme dışarıdan sağlanan yakıtın ve elektrokimyasal reaksiyonun gerçekleşmesi için gerekli olan oksitleyicinin kimyasal enerjisini, doğrudan elektrik ve ısı formunda kullanılabilir enerjiye çeviren güç üretim elemanlarıdır. Temiz olmaları, çevreye zarar vermemeleri ve yüksek verimde enerji dönüşümü sağlayabilmeleri sahip oldukları teknolojinin en önemli avantajlarından [3;4;5].

2.1 Yakıt Pilinin Tarihi

İlk yakıt pili çalışmaları 1839 yılında Sir William Grove tarafından H₂-O₂ pili üzerinde yapılmıştır. Sülfürik asit çözeltisine daldırılmış iki platin elektrottan oluşmuş bir sistemde yaptığı çalışmalar sırasında suyun elektrolizinin ters reaksiyonu sonucunda sabit akım ve gücün üretildiğini fark eden Grove, böylece tesadüfen çok büyük bir buluş gerçekleştirmiştir [4;6]. Daha sonraki yıllarda Grove, önceki çalışmasında kullandığı sistemden elli tanesini birleştirerek oluşturduğu bir sistemde daha fazla elektrik akımı üretmeyi başarmıştır [7]. Şekil 2.1'de 1839 yılında Sir William Grove tarafından geliştirilen ilk yakıt pili görülmektedir.



Şekil 2.1 1839 yılında Sir William Grove tarafından geliştirilen ilk yakıt pili [7]

Yakıt pili terimi ilk olarak 1889'da Ludwing Mond ve Charles Langer tarafından Grove'un çalışmaları tekrarlanarak ortaya konmuştur. Mond ve Longer oksijen kaynağı olarak havayı, hidrojen kaynağı olarak da endüstriyel kömür gazını kullanarak 1.5 watt güç üreten ve %50 çalışma verimine sahip bir yakıt pili geliştirmişlerdir. 1894'de Wilhelm Ostwald kömür türevli yakıtlar ile çalışan elektrokimyasal bir hücre yapmıştır. 1896'da William W. Jacques,

kömürün elektrokimyasal enerjisinden doğrudan elektrik üretmeyi amaçlayarak eriyik elektrolitli yakıt pillerinin temelini atmıştır.

1937'de Emil Baur, 1900 yılında, ünlü bilim adamı Nerst'in başlattığı katı oksit elektrolit ile çalışan yakıt pili projesinin başarıya ulaşmasını sağlamıştır.

1932'de Francis T. Bacon ilk başarılı yakıt pilini geliştirmiştir. Belki de yakıt pilinin günümüzdeki yere gelmesini sağlayan en önemli çalışma Thomas Bacon'ın alkali yakıt pilleri üzerinde yaptığıdır. Bu çalışmanın önemini anlayan Pratt&Whitney şirketi bu projeye lisans vererek NASA programlarında kullanılmasını sağlamıştır. 1952'de Bacon ve arkadaşları 5 kW'lık güç üreten bir yakıt pili yapmışlardır. Aynı yılın sonlarında Harry Karl Ihring 20 beygir gücünde, yakıt piliyle çalışan bir traktör dizayn etmiştir. Bu buluş günümüzdeki modern yakıt piliyle çalışan makinelerin başlangıcı olmuştur.

1950'de uzay çalışmaları yarışı ile yakıt pillerine ilgi artmıştır. 1960'lı yıllarda NASA yakıt pili teknolojisine oldukça ciddi yatırımlar yapmıştır. Yakıt pilleri hafif olmaları ve yan ürün olarak su üretmelerinden dolayı uzay uygulamaları için düşünülmeye başlanmıştır. 1958'de ise NASA H₂-O₂ yakıt pilini uzay araçlarında kullanmaya başlamıştır. Uzay çalışmalarında yakıt pillerinin kullanılması; yüksek verim, düşük gürültü ve titreme, yüksek enerji yoğunluğu gibi avantajlar sağlamaktadır. İlk olarak ise Gemini uzay aracında General Elektrik tarafından üretilen polimer elektrolit membranlı yakıt pili kullanılmıştır [4;6;7].

1970'li yıllarda General Motor "Elektrovan" adlı yakıt piliyle çalışan bir araç geliştirmiştir. 1970'li yıllarda devlet destekli yakıt pili araştırmaları başlamış ve bu amaçla Los Alamos Ulusal Laboratuvarı ve Brookhaven Ulusal Laboratuvarları kurulmuştur [4;6].

1980'de petrol krizleri sonrası hidrojen ve hidrojenli yakıt pilleri önem kazanmıştır [4]. Günümüzde ise artan çevre kirliliği, sera etkisi ve fosil kaynaklı enerji rezervlerinin azalması nedenleriyle hidrojen enerjisine ve dolayısıyla yakıt pillerine olan ilgi ve bu konu üzerine yapılan çalışmalar her geçen gün artmaktadır.

2.2 Yakıt Pilinin Çalışma Prensibi

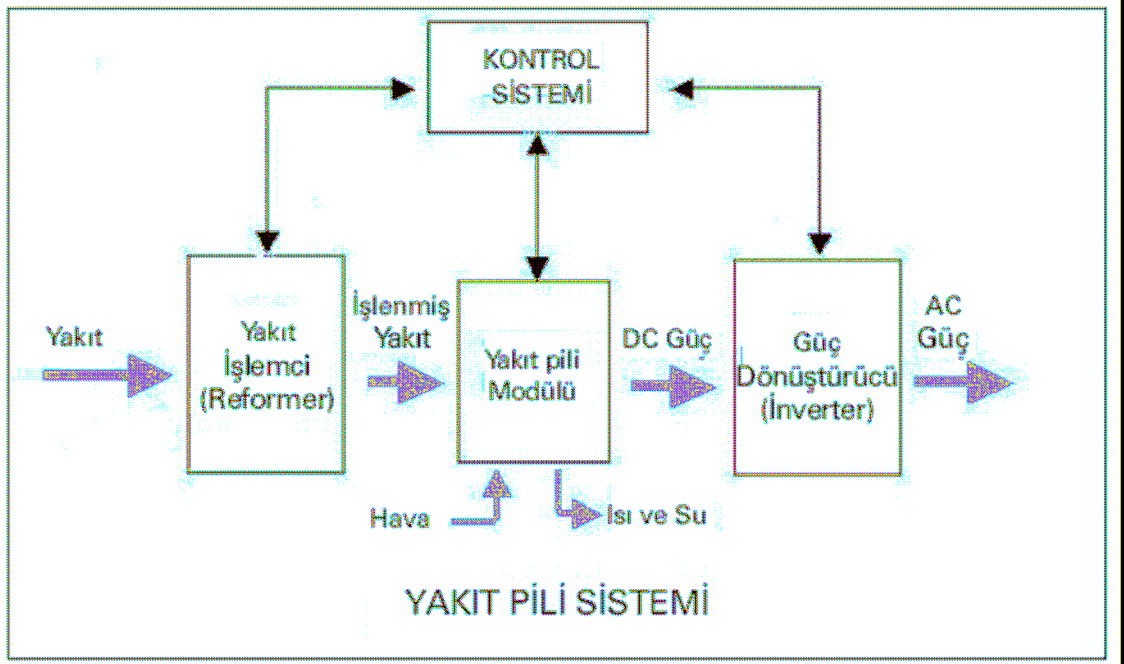
Yakıt pili elektrik üretmek için hidrojeni (ya da hidrojen zengin yakıtı) ve oksijeni kullanan bir cihazdır. Yakıt gazlarındaki kimyasal enerji; düşük enerjili, minimum hareketli parçalar içeren ve hava kirliliğine neden olmayan elektrokimyasal bir süreçte elektrik enerjisine dönüştürülür [4;7;8].

Yakıt pili denilince akümülatör veya pil akla gelmektedir. Her ikisi de kimyasal enerjiyi doğrudan elektriğe çevirir. Aralarındaki en önemli fark ise; akümülatörde, kimyasal enerji kullanımdan önce depolanmış durumdadır, yakıt pilinde ise dış kaynaklardan enerji sağlandığı sürece elektrik üretilebilir. Yakıt pilinin temel çalışma prensibi su-hidroliz reaksiyonunun ters çevrilmesinden ibarettir (Bıyıkoglu, 2003; Oral ve Çelik, 2005).

Yakıt pili; yakıt işleme ünitesi, güç üretim sistemi, güç dönüştürücü ve kontrol sistemi olmak üzere dört ana bölümden oluşmaktadır [4].

2.2.1 Yakıt İşleme Ünitesi

Yakıt beslemesinin olduğu, dolaylı beslemede ise ön işlemin gerçekleştirildiği ünedir [4]. Şekil 2.2’de yakıt pili sistemi detaylı olarak gösterilmektedir.



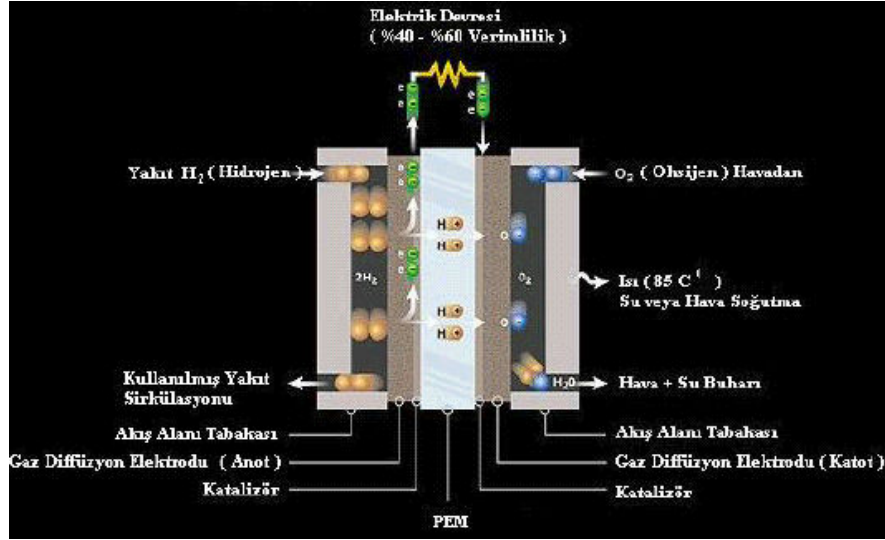
Şekil 2.2 Yakıt pili sistemi (Oral ve Çelik, 2005)

Şekil 2.2’de görüldüğü gibi yakıt, modüle beslenmeden önce reformer da denilen yakıt işleme ünitesinde bir takım ön işlemlerden geçer. Hidrojenin yakıt pili modülüne saf halde beslenmesi durumunda ise bu ön işlemlere gerek kalmadan direk besleme yapılır.

2.2.2 Güç Üretim Sistemi

Bir yakıt pili, anot (negatif, hidrojen elektrot), katot (pozitif, oksijen elektrot) ve elektrolit çözeltisinden oluşur. Anottaki hidrojenin katalitik oksidasyonu ve katotdaki oksijenin indirgenmesi elektrotlar arasında potansiyel farkı yaratır. Eğer elektrotlar arasında yalıtım

sağlayan elektrolit, iyonik kütle ve şarj aktarımına izin verirse, bu potansiyel farkı dış bir devrede kullanılabilir. Eğer kullanılırsa, ürün olarak su elde edilir ve bu reaksiyonun kimyasal enerjisi, kutuplaşma ve direnç kayıpları dolayısıyla, elektrik ve ısı olarak serbest bırakılır. Bu işlem “Carnot” ilkesine ve getirdiği sınırlamalara tabi değildir. Yakıt pilinin genel verimi; Gibbs serbest enerjisinin yakıt ısı değerine oranı şeklindedir (Bıyıkoğlu, 2003; Oral ve Çelik, 2005). Şekil 2.3’te polimer elektrolit membranlı (PEM) bir yakıt pili ve çalışması gösterilmektedir.



Şekil 2.3 PEM yakıt hücresi [4]

Yakıt pilleri yanma motorlarına göre daha fazla enerji dönüşümü sağlarlar ve kullanılan hidrojen, saf olarak kullanılabilmesi gibi doğal gaz, metanol, etanol gibi daha bir çok kaynaktan elde edilebilir. Tüm yakıt pillerinde su, pil çalışma sıcaklığına göre sıvı veya buhar şeklinde ürün olarak açığa çıkar. Eğer yakıt olarak saf hidrojen, oksitleyici olarak da saf oksijen kullanılırsa, yakıt pillerinden sadece ısı ve su çıkar ki bu da hava kirliliği ve sera gazları oluşumu sorunlarını ortadan kaldırır. Oksitleyici olarak hava kullanılması durumunda su ve azot, bileşiminde karbon bulunan yakıt kullanılması durumunda ise karbondioksit oluşur. Su, pili terk eder ve böylece pil kendini soğutmuş olur. Ancak çok yüksek sıcaklıkta çalışan pillerde soğutma ekipmanı kullanılması gerekir [4;8].

2.2.3 Güç Dönüştürücü

Hücrede üretilen doğru akımı ticari kullanım için alternatif akıma çeviren ünitedir.

2.2.4 Kontrol Sistemi

Kontrol sistemi ünitesinde sistemin tüm işleyişi denetlenir ve kontrol edilir.

2.3 Yakıt Pillerinin Avantajları ve Dezavantajları

Yakıt pillerinin diğer güç üretim sistemlerine göre bir çok avantajının olmasının yanı sıra bazı dezavantajları da vardır. Yakıt pillerinin günlük hayatımızda kullanımının yaygınlaştırılabilmesi için, avantajlarının daha çok geliştirilmesi, dezavantajlarının ise mümkün olduğu kadar azaltılması gerekmektedir [3;4].

Yakıt pillerinin diğer enerji sistemlerine göre avantajları aşağıda sıralanmıştır (Cook, 2002; Energy Center of Wisconsin, 2000):

- Yakıt pilleri verimlidir. Proseste yanma reaksiyonu olmadan, hidrojen ve oksijeni direk elektrik, su ve ısıya dönüştürürler. %80 ile %50 arasında değişen bir verim sağlarlar ki bu verim içten yanmalı motorlarda elde edilen verimin yaklaşık iki katıdır.
- Yakıt pilleri temizdir. Eğer yakıt olarak hidrojen kullanılırsa, ürün olarak sadece saf su ve ısı oluşur, çevre kirleticisi madde yayınımlı olmaz. İçten yanmalı motorlara karşıt olarak, yakıt pilleri asit yağmurlarına neden olan sülfür dioksit emisyonlarına ya da duman oluşturan azot oksit emisyonlarına neden olmaz.
- Yakıt pilleri sessizdir. Yakıt pili sistemi pompa ya da fan içerebilir. Buna rağmen yakıt pilinin kendisi hareketli bir parça içermez. Bunun sonucu olarak, elektriksel güç nispeten sessiz üretilir.
- Yakıt pilleri modülerdir. Gerekli görülen her yerde kullanılabilir ve her yere yerleştirilebilir. İstenen güç talebini karşılamak için çeşitli büyüklükte yakıt pili yığınları oluşturulabilir. Öncelerde söylendiği gibi, yakıt pili sistemleri bir kaç watt'tan megawatt'lara kadar geniş bir aralıkta güç sağlayabilirler.
- Yakıt pilleri çevre açısından güvenlidir. Tehlikeli atık ürün üretmezler.
- Yakıt pillerinde saf hidrojenin yanı sıra doğal gaz, metanol veya kömür gazları gibi çok çeşitli yakıtlar kullanılabilir.
- Yakıt pili sistemlerinde yan ürün olarak oluşan atık ısı geri kazanılabilir.
- Yakıt pilleri dayanıklı ve güvenli sistemlerdir.

Yakıt pillerinin bunca olumlu yanlarına rağmen, günümüzde hidrojen ekonomisini geliştirmede ve yakıt pillerinin başarısını sağlamada henüz çözümlenmemiş bir çok belirsizlik vardır.

Bunlar ařađıda sıralanmıřtır (Cook, 2002):

- Yakıt pillerinin başarıya ulaşması için kitle talebini ele geçirmesi gerekir. Bu da yakıt pillerinin fiyatına, güvenilirliğine, uzun ömürlü olup olmasına ve yakıtın faydalanabilirliği ile fiyatına bađlıdır. Dizel motor jeneratörleri ve piller gibi alternatiflerle karşılaştırıldığında, yakıt pilleri daha pahalı sistemlerdir. Rekabet için, yakıt pillerinde seri üretime geçilmeli ve yakıt pilleri için daha az pahalı materyaller geliştirilmelidir.
- Hidrojen ya da metanol yakıtlarının ilk olarak kitle talebini ele geçirmesi için bir alt yapı geliştirilmelidir. Yakıt depolama ve taşıma teknolojileri daha da geliştirilip güvenli ve ekonomik hale getirilmelidir.
- Günümüzde yakıt pilleri ve hidrojen teknolojisine yapılan yatırımın büyük bir kısmı otomobil üreticilerine aittir. Ancak, yakıt pillerinin otomobiller için uygun olmadığı kanıtlanırsa, yakıt pilleri ve hidrojen teknolojisi için yeni yatırım kaynakları bulmak gerekecektir.
- Günümüzde, platin yakıt pilleri için anahtar bileşendir. Platin doğal bir kaynaktır ve dünya platin piyasasındaki en geniş stoklara Güney Afrika, Rusya ve Kanada sahiptir. Platindeki kıtlıklar önceden tahmin edilemeyeceđi gibi hükümet politikalarındaki deđişimler de talebi etkileyecektir.
- Yakıt pili kullanımı, çok fazla bilgi ve ileri teknoloji gerektiren bir sistemdir. Yakıt pili uygulamalarının tam verimle gerçekleşmesi için uzun zamana ve çok paraya ihtiyaç vardır.

2.4 Yakıt Pillerinin Uygulama Alanları

Ařađıda sıralandıđı gibi yakıt pillerinin uygulama alanları genel olarak yedi ana bařlık altında incelenebilir [4].

- Uzay çalışması uygulamaları
- Askeri uygulamalar
- Eysel uygulamalar
- Sabit güç üretim sistemi/Yüksek güç üretim sistemi uygulamaları
- Tařınabilir güç kaynađı uygulamaları
- Atık/Atık Su Uygulamaları

- Taşıt uygulamaları

2.4.1 Uzay Çalışması Uygulamaları

Yakıt pillerinin ilk uygulanma alanı, uzay çalışmalarıdır. ABD’de NASA’nın çalışmaları kapsamında Apollo, Gemini, ve Space Shuttle uzay gemilerinde H₂-O₂ yakıt pili birbirine bağlı 3 ünite olarak kullanılmıştır. Bu üç gemide de 2 ünite ihtiyacı karşılamak için yapılırken, 3. ünite acil ve özel görev için hazırda tutulmuştur. Gemini gemisinde ise, farklı olarak PEM tipi yakıt pili kullanılmıştır. Bugün uzay mekiği elektriği 12 kW’lık yakıt pilleri ile üretilmektedir [4].

2.4.2 Askeri Uygulamalar

Stratejik bir önemi olan enerji kaynakları, ülkelerin politikalarında önemli bir yer tutmaktadır. Kolay kullanımı, yakıt çeşitliliği ve verimliliğinden dolayı gerek askeri araçlarda, gerek ısı ve elektrik ihtiyacı durumunda askeri alanda kullanılabilir en iyi seçeneklerden biri yakıt pilleridir [4].

2.4.3 Evsel Uygulamalar

Sessiz çalışan yakıt pilleri, ev ve apartmanlarda ısıtma sağlamak ve elektrik ihtiyacını karşılamak için kullanılabilir iyi bir alternatiftir. Bu tip yakıt pillerinde, yakıt olarak propan ve doğal gaz kullanılarak elektrik üretilmekte ve oluşan ısı geri kazanılarak ısıtma sistemlerinde kullanılmaktadır. 3-5 kW’lık yakıt pilleri evsel tüketim için uygundur [4].

2.4.4 Sabit Güç Üretim Sistemi/Yüksek Güç Üretim Sistemi Uygulamaları

Dünyada şu anda yüzlerce sabit güç kaynağı olarak kurulmuş yakıt pili istasyonları bulunmaktadır. Bu enerji üreteçleri; hastanelerde, otellerde, iş yerlerinde, okullarda, güç istasyonlarında, havaalanlarında gerek elektrik gerek ısıtma sistemlerinde kullanılmaktadır. Bu sistemleri kullanan şirketlerin enerji harcamalarında %20-40 arasında bir düşüş görülmektedir.

Yakıt pili kullanan güç üretim sistemleri az yer kaplamaktadır. 2 MW’lık bir santral 20 m²’den az bir alanda kurulabilmektedir. Minibüs büyüklüğündeki bir santral ile 20 kW güç üretilmektedir. Bu santrallerin önemli uygulamalarına örnek olarak Amerikan ONSI firmasının Kaliforniya’daki 2 MW’lık, UTC Fuel Cell firmasının Alaska’daki 200 kW’lık, Westinghouse-Kanada’nın Hollanda’daki 100 kW’lık sistemleri verilebilir [4].

2.4.5 Taşınabilir Güç Kaynağı Uygulamaları

Telekomünikasyon alanında, bilgisayar dünyasında, görüntü teknolojisinde, alarm sistemlerinde yakıt pillerinin taşınabilir güç kaynağı olarak kullanımı söz konusudur. Bu tip uygulamalar üzerinde çalışmalar sürmektedir. Minyatür yakıt pilleri pazara çıktığı zaman, cep telefonu sahipleri cep telefonlarını bir ay şarj etmeden kullanabileceklerdir. Bu tip yakıt pilleri metanol ile çalışabilen, çok küçük boyutta üretilen pillerdir [4].

2.4.6 Atık/Atık Su Uygulamaları

Atık su ve atıkların işlenmesi sırasında yanma reaksiyonları sonucunda oluşan emisyonları azaltmak ve oluşan metan gazından güç elde etmek için yakıt pilleri kullanılmaktadır [4].

2.4.7 Taşıt Uygulamaları

Elektrikli taşıtlar 2000'li yılların yeni-temiz alternatif uygulamaları arasında ön sırada yer almaktadır. Elektrikli taşıtlar:

- Enerjiyi doğrudan hattan alanlar (tren, trolleybüs, tramvay, metro gibi)
- Enerjiyi depolanmış bir sistemden kullananlar (akülü taşıtlar, ultra kapasitörlü taşıtlar)
- Taşınabilir bir sistemden anında enerji üretenler (yakıt pilli taşıtlar, güneş pilli-fotovoltaik pilli taşıtlar)
- Hibrit elektrikli taşıtlar (benzin-yakıt pili, motorin-yakıt pili taşıtları) olarak sınıflandırılabilir.

Bu uygulamalar içinde yakıt pilli elektrikli taşıtlar pek çok avantaj ile öndedir ve geleceğin otomotiv teknolojisi içinde hidrojen kullanan yakıt pilli elektrikli taşıtlar çok önemli bir yer kaplayacaktır.

Yakıt pilleri otobüs, kamyon, otomobil ve her türlü taşıt için gerekli enerjiyi sağlayabilecek kapasiteye sahiptir. Yakıt pilli araçlar, benzin ve motorin ile çalışan araçlara göre hem daha temiz hem de enerji bakımından daha verimlidirler. Günümüzde taşıt emisyonlarının çevre kirliliği üzerindeki etkileri düşünüldüğünde; yakıt pili ile çalışan araçlar çevre dostu ve karlı bir seçimdir. Elektrikli araçların verimi, içten yanmalı motorlara göre daha yüksektir. Kullanılan yakıtın enerji içeriğine bağlı olarak yakıt pili ile çalışan araçlarda güç üretimi %40-70 arasındadır. Hareketli parçası olmayan yakıt pilleri kullanımında taşıtın gürültü kirliliği de

görülür düzeyde azalmaktadır. Yakıt olarak hidrojen kullanıldığında araçlarda emisyon olarak sadece su oluşması da çevre açısından son derece önemlidir[4].

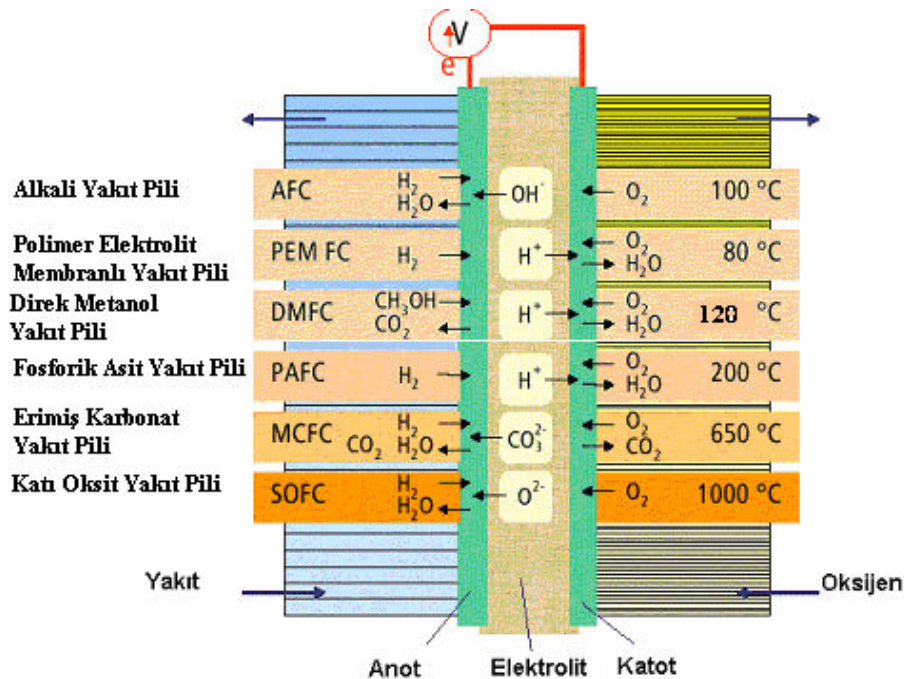
2.5 Yakıt Pili Çeşitleri

Yakıt pilleri, yakıt ve oksitleyicinin bileşimine, yakıtın dolaylı veya doğrudan beslenmesine, kullanılan elektrot ile elektrolitin cinsine ve operasyon sıcaklığına bağlı olarak çeşitli kombinasyonlarda oluşturulabilir. Esas olarak ise kullanılan elektrolite göre sınıflandırılırlar.

Üzerinde çalışılan belli başlı yakıt pili tipleri şunlardır [4;7]:

- Alkali Yakıt Pili (AFC)
- Polimer Elektrolit Membranlı Yakıt Pili (PEMFC)
- Direk Metanol Kullanılan Yakıt Pili (DMFC)
- Fosforik Asit Yakıt Pili (PAFC)
- Erimiş Karbonat Yakıt Pili (MCFC)
- Katı Oksit Yakıt Pili (SOFC)

Kullanılan elektrolite göre sınıflandırılmış olan yakıt pilleri ve çalışma sıcaklıkları Şekil 2.4'te gösterilmektedir.



Şekil 2.4 Yakıt pili türleri [7]

2.5.1 Alkali Yakıt Pili (AFC)

Alkali yakıt pilinde, konsantre potasyum hidroksit (KOH) çözeltisi hem soğutucu hem de elektrolit olarak kullanılır. Bu çözelti hidroksit iyonlarını katottan anoda iletir ve polimer elektrolit membranlı yakıt pilleri gibi 80-100°C civarında düşük sıcaklıklarda çalışır (Bıyıkoğlu, 2003).

Bazı özelliklerinden dolayı alkali yakıt pilleri, PEM yakıt pillerine alternatiftir. Oksijen indirgeme kinetiği, asit elektrolitlerdekine göre daha hızlıdır. Voltaj, elektrolit içerisinde biriken hidroksit iyonlarının konsantrasyonuna bağlı olarak değişir. Platin ve gümüş katalizörler hidroksit iyonlarının hızla ayrışmasına neden olur ve katottaki potansiyel artarak neredeyse teorik elektrokimyasal değere ulaşır. Alkali yakıt pillerinde alkali ortam asit ortama göre daha az korozif olduğundan dolayı; gümüş, katalizör olarak kullanılabilir. Ucuz bir katalizör ve sıvı bir elektrolit, alkali yakıt pillerinin PEM yakıt pillerine göre avantajını ortaya koymaktadır. PEM yakıt pillerinde önemli bir sorun olan giriş gazlarının nemlendirilmesi ise alkali yakıt pilleri için gerekmemektedir (Hacker vd., 2005).

Alkali yakıt pillerinin sakıncalarından biri karbondioksite hassas olmalarıdır. Yakıt ve oksitlenme ortamı genellikle, alkali çözeltisiyle reaksiyona girerek karbonatları üreten karbondioksit içerir. Karbonat ise hücre içerisindeki kimyasal reaksiyonlara engel olur. Bu yüzden alkali yakıt pillerinin en büyük dezavantajı çok saf hidrojen gerektirmesidir. Kullanılan katalizörlerin ve saf hidrojenin pahalı olması ile hidrojenin sıvılaştırılması ve sıkıştırılması için ekstra enerji tüketimi gerekmesi bu tür yakıt pillerinin maliyetini yükseltmektedir [4;7].

2.5.2 Polimer Elektrolit Membranlı Yakıt Pili (PEM)

1950'li yıllarda General Electric tarafından bulunan PEM teknolojisi, o yıllarda ilk defa NASA tarafından Gemini uzay aracında güç ünitesi olarak kullanılmıştır. Günümüzde PEM yakıt pilleri otomotiv sektöründe içten yanmalı motorlara alternatif olarak geliştirilmekte ve kullanılmaktadır [4].

PEM yakıt pilleri 80°C sıcaklıkta çalıştılarından ve bu sıcaklık gerçekleşen elektrokimyasal reaksiyonlar için düşük olduğundan elektrotlar ince platin tabakaları ile desteklenirler. Korozyon problemlerinin olmaması, üretimlerinin basit oluşu, CO₂ gazına tolerans göstermeleri, hidrojen ve işlenmiş yakıtlarla çalışabilmeleri ve yüksek güç yoğunluğu elde edebilmeleri PEM yakıt pillerinin avantajlarıdır [4]. Elektrotlarının platinden veya platin

içeren bileşiklerden yapılması, işlenmiş yakıtlarda bulunan karbon monoksitin zehirleyici etkisi, membranda su yönetim problemleri ve maliyet gibi unsurlar PEM yakıt pillerinin kullanımını sınırlamaktadır (Bıyıkoglu, 2003).

2.5.3 Direk Metanol Kullanılan Yakıt Pili (DMFC)

Direk metanol kullanılan yakıt pili (DMFC), PEM yakıt pillerinin bir çeşidi olmakla beraber, bir ön reformlamaya ihtiyaç duyulmadan metanolün doğrudan kullanımına imkan tanıyan bir yapıya sahiptir. Bu piller, PEM yakıt pillerinden daha yüksek bir çalışma sıcaklığına sahip olup, 120°C civarında çalışabilmektedirler [4;9].

Sıvı besleme durumunda metanolün katot tarafına geçmesi ve elektro oksidasyonu düşük aktivitede gerçekleşir. Bundan dolayı direk metanol kullanılan yakıt pillerindeki elektrotlar, H₂-O₂ PEM yakıt pillerine göre daha fazla platin kullanımı gerektirir. Bu da, DMFC'lerde kullanılan katalizör tabakasının kalınlığının PEM yakıt pillerine oranla çok daha fazla olmasına neden olur (Liu vd., 2004).

1960'lardan beri metanolün elektro kimyasal olarak direk oksidasyonu için uygun katalizörlerin geliştirilmesi üzerine çok fazla dikkat çekilmektedir. Platin esaslı bimetalik katalizörlerin metanolün oksidasyonu için kullanıldığı, günümüzde yaygın olarak kabul edilmektedir. Pt-Sn ve Pt-Ru gibi bimetalik katalizörlerin ara ürünlerin zehirleyici etkisini azalttığı ve elektro katalizörlerin uzun süreli olarak kararlılıklarını arttırdığı tespit edilmiştir. Son zamanlardaki çalışmalar ise Pt-Ru katalizörlerin birim kütle başına yüksek bir aktivite sağlayabilecek kadar iyi bir dağılımda hazırlanabildiklerini göstermektedir (Ramkumar vd., 1997).

DMFC'lerde kullanılan katalizör miktarındaki artış, fiyatta artışa neden olmakta ve bu özellik DMFC'ler için önemli bir dezavantaj oluşturmaktadır. Sıvı yakıt kullanımına imkan sağlaması ve reformlama ünitesi olmadan çalışabilir olması ise önemli avantajlarıdır.

Geliştirilme aşamasında olan DMFC teknolojisi, gelecekte cep telefonları, diz üstü bilgisayarlar ve taşınabilir güç kaynakları için potansiyel bir güç kaynağı olarak görülmekte ve bu tip yakıt pilleri üzerindeki çalışmalar son hızla devam etmektedir [4].

2.5.4 Fosforik Asit Yakıt Pili (PAFC)

Fosforik asit yakıt pili 200°C civarında çalışır. Fosforik asit kararlı bir asittir ve temel metallere çok çabuk reaksiyona girer. Bunun sonucu olarak, sadece platin ve platin alaşımlar elektrot yapımında kullanılabilir. PAFC'lerin avantajı doğal gaz veya kömür gazına dayanan

yakıtların elektrotu zehirlemeden kullanılabilmesidir [9]. Ancak, platin zehirlenmesini önlemek için karbon monoksit dönüştürülmeli yada tamamen kaldırılmalıdır. 200°C sıcaklıkta, %1,5 civarında olan karbon monoksit gazının konsantrasyonunu tolere edebilmesi ve iletkenlik için su gerektiren diğer elektrolitlerin aksine, yoğunlaştırılan fosforik asit elektrolitin suyun kaynama noktasının üzerinde çalışabilmesi, PAFC'lerin diğer önemli avantajlarından. Bununla birlikte; asit, hücre içerisindeki diğer bileşenlerin korozyona karşı dayanıklı olmasını da gerektirmektedir (Bıyıkoğlu, 2003).

1990'lı yıllarda oldukça ekonomik bir sistem olmasının yanı sıra günümüzde güç santrali uygulamalarında kullanılması hedeflenmektedir [4].

2.5.5 Erimiş Karbonat Yakıt Pili (MCFC)

Erimiş karbonat yakıt pilinde, karbonat tuzları elektrolit olarak kullanılmaktadır. 650°C sıcaklığa kadar ısıtılan tuzlar karbonat iyonlarının (CO_3) eritilip anotta katoda doğru iletilmesini sağlarlar [9]. Yüksek operasyon sıcaklığının bir sonucu olarak, yüksek sıcaklığa dayanıklı malzemeler kullanılmak zorundadır. Anotta nikel, katotta ise nikel oksit elektrot kullanılabilir. Nikel elektrotların kullanımı, CO kirlenmesine bağımsızlık kazandırır. Ayrıca MCFC, CO_2 gazına da duyarlıdır (Bıyıkoğlu, 2003).

Erimiş karbonat yakıt pillerinde karşılaşılan en önemli güçlüklerden biri, erimiş karbonat hücresinin içerisindeki kimyasal reaksiyondan kaynaklanmaktadır [4]. Elektrolitten gelen karbonat iyonları anottaki reaksiyonlarda kullanılarak tükendiği için, katotta karbondioksit gazı enjekte edilerek bu eksiklik karşılanmak zorundadır. Diğer bir güçlük ise, termal yalıtımlıya sahip olan malzemelerin yüksek sıcaklıkta bozunarak karbonlaşmaları ve yakıt pili yığımları arasında kısa devre oluşturmalarıdır (Bıyıkoğlu, 2003).

2.5.6 Katı Oksit Yakıt Pili (SOFC)

Katı oksit yakıt pilinde elektrot ve elektrolit arası, kararlı itriyum oksit ya da zirkonyum gibi katı oksit seramik bir materyalden yapılmıştır. Hem elektrolit hem de elektrotlar seramik malzemedendir. İşletim sıcaklığı 1000°C civarındadır [4;7]. Bu sıcaklıkta, doğalgaz kolaylıkla hidrojene dönüştürülebildiği için yakıtın hidrojene dönüştürülmesi gereksizdir ve dönüşüm hücrede gerçekleşir. Bu işlem süresince salınan yüksek sıcaklıktaki ısı, yüksek kaliteli uygulamalarda işlem ısısı olarak kullanılabilir (Bıyıkoğlu, 2003).

Bu tip yakıt pillerinde karşılaşılan en büyük sorun, saf hidrojen dışında kullanılan yakıtlar ile birlikte oluşan kükürt kirliliğidir. Bunun yanı sıra imalat metotları ve yapı malzemelerinin de geliştirilmesi gerekmektedir [4].

3. POLİMER ELEKTROLİT MEMBRANLI YAKIT PİLLERİ

1960'ların başında, General Electric (GE) yakıt pili teknolojisinde büyük bir başarıya imza attı. Thomas Grubb ve Leonard Niedrach sayesinde, ilk polimer elektrolit membranlı (PEM) yakıt pilini icat edip geliştirdiler. Polimer elektrolit membranlı yakıt pilleri kimyasal enerjiyi elektrik enerjisine direk ve yüksek verimde çevirmeleri, az miktarda çevre kirletici emisyonlara sahip olmaları ve düşük sıcaklıklarda çalışmaları gibi avantajlarıyla gelecek vaat eden sistemlerdir (Santiago vd., 2005). İlk olarak, Amerikan deniz kuvvetlerine ait gemilerin bürolarında ve Amerikan kara kuvvetleri sinyal kolordusunda personel için taşınabilir güç olarak kullanılmak üzere bir program kapsamı altında geliştirilmiştir. Üniteye yakıt olarak su ve lityum hidrit karışımından elde edilen hidrojen kullanılmıştır. Bu yakıt karışımı, kullanıldıktan sonra atılabilen teneke kutular içinde tutulmuştur. Bu da sahadaki personele yakıt sağlamak konusunda kolaylık sağlamıştır [10].

PEM teknolojisi, Amerikan pilot uzay programının ilk günlerinde NASA'nın Gemini projesinin bir parçası olarak hizmet etmiştir. Proje Mercury uçuşlarında, uzay aracı için gücü başlarda piller sağlıyordu fakat aya uçuşu hedef alan Apollo projesi, pillerin sağladığından daha uzun süreklilikte güç sağlayacak bir kaynak gerektirmişti. Gemini uzay programı, ana amacı Apollo için donanım ve içeriği test etmek olan on iki uçuş içermekteydi. Ne yazık ki General Electric'in PB2 modelindeki PEM hücreleri, hücre içi kirlenmesi ve membran içine doğru oksijen sızıntısı gibi tekrarlayan teknik güçlüklerle karşı karşıya kaldı. Bunun sonucunda da 1'den 4'e kadar olan Gemini uçuşlarında piller kullanıldı [10].

General Electric yakıt pilleri yeniden tasarlandı ve yeni bir model olarak sunulan P3, 6'dan 12'ye kadar olan Gemini uçuşlarında başarıyla kullanıldı. Gemini yakıt pili güç düzeneği, her biri maksimum 1000 watt güç üretebilen iki yakıt pilinden oluşmuştu.

General Electric PEM yakıt pilleri ilk geliştirildikleri zamanlarda elektrotlar üzerinde katalizör olarak çok büyük miktarlarda platin kullanımını gerektiriyordu. Bu yüzden PEM yakıt pillerinin fiyatları, onların uzay uygulamalarında kullanımını kısıtlıyordu. 1979 yılında, Kanadalı bir jeofizikçi olan Geoffrey Ballard, kimyager Keith Prater ve mühendis Paul Howard, Ballard Power System adındaki şirketi kurdular. 1980'lerin başlarında, Ballard artık üzerinde çalışılmaktan vazgeçilmiş olan GE yakıt pillerini aldı. Kanada Ulusal Savunma Bakanlığı ile anlaşmalı olarak yaptığı çalışmalarda, Ballard yakıt pillerinin güç yoğunluğunu kayda değer ölçüde arttırırken, kullanılması gereken platin miktarını düşürmeyi de başardı. Bu

gelişmelerden sonra yakıt pillerinin geleneksel güç teknolojilerine kıyasla daha küçük, daha güçlü ve yeterli ucuzlukta üretiminin mümkün olduğu anlaşıldı.

Ballard Güç Sistemleri, yakıt pillerini 1 kilowatt'tan 250 kilowatt'a kadar güç çıkışı sağlayabilecek şekilde geliştirerek PEM yakıt pili teknolojisinde dünya lideri olarak tanındı ve büyüdü. DaimlerChrysler, Ford, Japonya'daki EBARA ve Fransa'daki ALSTOM gibi bir çok şirket ile anlaşma yaptı.

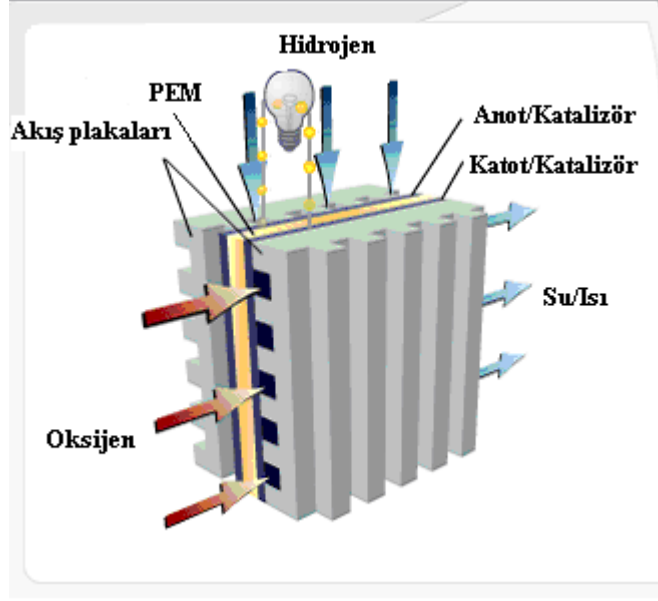
1980'lerin sonlarında ve 1990'ların başlarında Los Alamos Ulusal Laboratuvarı ve Teksas A&M Üniversitesi de PEM yakıt pillerinde kayda değer gelişmeler sağladı. Kullanılan platin miktarını önemli ölçüde düşürmenin yollarını buldular ve hidrojen yakıtının içerisindeki az miktardaki kirliliklerden kaynaklanan katalizör zehirlenmesine kısıtlama getirecek bir metot geliştirdiler (Cook, 2002).

Günümüzde ise PEM yakıt pilleri, enerji dönüşüm verimlerinin iyi olması ve yakıt kaynaklarının yüksek güç yoğunluğu sağlaması nedenleriyle, özellikle taşıma ve taşınabilir elektronik güç uygulamaları için oldukça uygundur.

3.1 Proton Değişim Membranlı Yakıt Pillerinin Çalışma Prensibi

PEM yakıt pilleri; anot (negatif elektrot), katot (pozitif elektrot) ve ikisinin arasına sıkıştırılmış bir elektrolit membrandan oluşur. PEM yakıt pillerine ait bir hücre Şekil 3.1'de ayrıntılı olarak gösterilmektedir.

Anot oksidasyonun (elektron verme) gerçekleştiği elektrottur. Bir yakıt pilinde, anot elektriksel olarak negatif yüklüdür ve düzgün bir dağılımla karbon partikülleri üzerine desteklendirilmiş olan platin partiküllerinden oluşur. Platin, katalizör görevini görerek oksidasyon prosesinin hızını artırır. Anot gözeneklidir ve bu sayede hidrojen anodun içinden geçebilir. Hidrojen yakıtı (H_2) anoda kanalizasyon edilir ve hidrojen molekülleri ilk olarak elektrot yüzeyindeki platin katalizörle temas ederler [8]. Hidrojen molekülleri birbirinden ayrılır ve zayıf H-Pt bağları ile platin yüzeye tutunurlar. Hidrojen molekülü bozunduğu gibi oksidasyon reaksiyonu başlayabilir. Her bir hidrojen atomu elektronlarını serbest bırakır ve bu elektronlar dış bir devreden katoda akarak elektrik akımını oluştururlar. Kalan hidrojen protonları ise membran yüzeyindeki su molekülleri ile bağlanarak hidronyum iyonunu (H_3O^+) oluşturur. Hidronyum iyonu, tutunduğu platin katalizör yüzeyini bir sonraki hidrojen molekülüne bırakarak membranın içinden katoda geçer (Cook, 2002).



Şekil 3.1 PEM yakıt pili [11]

Katot ise redüksiyonun (elektron kazancının) gerçekleştiği elektrottur. Bir yakıt pilinde, katot elektriksel olarak pozitif yüklüdür. Katot da düzgün bir dağılımla karbon partikülleri üzerine desteklendirilmiş olan platin partiküllerinden oluşur [8]. Oksijen molekülleri elektrot yüzeyinde platin katalizör ile temas ederler. Oksijen molekülleri birbirinden ayrılıp zayıf O-Pt bağları ile elektrot yüzeyine tutunarak redüksiyon reaksiyonunun başlamasına olanak verirler. Her bir oksijen atomu platin katalizörde tutunduğu yeri bırakarak, dış devreden akıp katoda ulaşan iki elektron ve membrandan geçip katoda gelen iki hidrojen protonu ile birleşerek tek bir su molekülünü oluştururlar. Katottaki platin katalizör ise gelecek olan bir sonraki oksijen molekülü için yeniden serbest kalmış olur (Cook, 2002).

Hidrojen ve oksijen gazlarının suya dönüşmesiyle gerçekleşen bu ekzotermik reaksiyon, her bir su molekülü için -286 kJ'lük enerji veren bir entalpi değerine sahiptir. İş yapacak olan serbest enerji, sıcaklığın fonksiyonu olarak azalır. 25°C sıcaklık ve 1 atmosfer basınçta iş yapacak olan serbest enerji -237 kJ'dür. Bu enerji de ısı ve elektrik olarak gözlenir.

3.2 Elektrotlar ve Elektrot Yapısı

Anot ve katot için en iyi katalizör platindir. PEM yakıt pilleri üzerinde çalışılmaya başlanılan ilk günlerde 28 mg/cm² olan platin yüklemesi, günümüzde 0,2 mg/cm² civarına kadar düşürülürken, elde edilen güç miktarı da arttırılmıştır (Gangeri vd., 2005). Son zamanlarda yapılan bir çok çalışma ortaya koymuştur ki; elektrolit, katalizör ve gaz sınırlarında etkili bir üçlü faz oluşturmak, katalizör kullanımında çok daha iyi sonuçlar elde edilmesini

sağlamaktadır. İyonomerlerin elektrotlar üzerine sürülmesi, emdirilmesi ya da platin partiküllerinin membran üzerine elektro kimyasal olarak yerleştirilmesi etkili bir üçlü faz sınırı elde etmek için kullanılan metotlardandır (Kim vd., 1998).

PEM yakıt pillerinde elektrot yapısı; iletken gözenekli destek, difüzyon tabakası ve katalizör olmak üzere üç katmandan oluşmaktadır. Platin katalizör, oldukça büyük partiküller halinde bulunan karbon tozu yüzeyine çok küçük platin partiküllerinin yerleşmesinden meydana gelen bir yapıdır. Platin, yüzeye çok iyi bir şekilde dağıtılır ve bu da reaktanların temas ettiği yüzey alanı oranını artırır (Gangeri vd., 2005; Larminie, 2000).

Karbon destekli katalizör elde edildikten sonra iki farklı teknik yol izlenebilir. Bunlardan biri olan ayrılmış elektrot metodunda; karbon destekli katalizör özel tekniklerle, karbon kağıdı ya da karbon bezi gibi gözenekli, iletken materyale yerleştirilir. Hidrofobik yapısından dolayı politetrafloroetilen (PTFE) eklenerek ürün olarak oluşan suyun, buharlaşabileceği yüzeye doğru uzaklaştırılması sağlanır. Karbon kağıt ya da bez elektroda mekaniksel bir yapı sağlarken, gazı katalizörün üstüne difüze ettirir. Bundan dolayı genellikle 'gaz difüzyon katmanı' olarak adlandırılır. Daha sonra, polimer elektrolit membranın her iki yüzeyine de bir elektrot tutturulur. Bunu yaparken ilk olarak, elektrolit membran %3 oranında hidrojen peroksit içeren kaynayan suya daldırılarak 1 saat boyunca temizlenir. Yine bir saat boyunca kaynayan sülfürik asit içine daldırılarak sülfonat gruplarının mümkün olduğu kadar protonla doyması sağlanır. Bu işlemden sonra, kalan asitten arınması için membran 1 saat boyunca kaynayan de-iyonize suda durulanır. Elektrotlar elektrolit membrana yerleştirilir ve bu montaja 3 saat boyunca yüksek basınç ve 140°C'de sıcak pres uygulanır. Sonuç olarak membran elektrot montajı (MEA) oluşturulmuş olur (Gangeri vd., 2005).

Alternatif metot ise elektrotun elektrolit üzerine direk olarak yapılandırılmasını içerir. Karbon destekli platin katalizör direk olarak elektrolite bağlanır. Genellikle hidrofobik PTFE ile karıştırılmış olan katalizör, elektrolit membrana uygulanırken silindirden geçirme (haddeleme) metodu, püskürtme ya da alışılmış baskı proseslerinden biri tercih edilir. Katalizör membranla birleştirildikten sonra, gaz difüzyon katmanı da eklenir. Gaz difüzyon katmanı olarak ayrılmış elektrot metodunda olduğu gibi karbon kağıt ya da karbon bez kullanılır. Aslında elektrotun bu kısmına gaz difüzyon katmanı demek, bu katmanın görevlerinin tamamını anlatmada yetersiz kalabilmektedir. Gaz difüzyon katmanı sadece gazı difüze etmekle kalmaz, aynı zamanda karbon destekli katalizör, bipolar plaka yada diğer akım toplayıcılarla elektriksel bağlantıyı da sağlar. Ayrıca, ürün olarak oluşan suyu elektrolit

yüzeyinden uzaklaştırdığı gibi, çok ince olan katalizör tabakasına koruyucu bir katman olur (Gangeri vd., 2005).

Elektrotların performansı ise bir çok parametreye bağlıdır. Bunlar; makroskopik karbon desteğin tipi (karbon kağıt, karbon bez, vs.) ve karakteristiği (gözenekliliği ve kalınlığı), katalizör tipi (metal, metal miktarı, metal partiküllerinin boyutu, katalizör desteğin tipi), ısıl davranış, difüzyon ile katalizör katmanlarının kalınlığı ve üretim prosesi olarak sıralanabilir (Larminie ve Dicks, 2000).

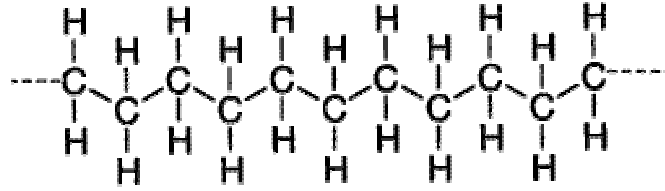
3.3 Elektrolit

Günümüzde farklı firmalar PEM yakıt pilleri için ürettikleri polimer elektrolit membranları çoğunlukla patentli şekilde kendi meslek sırları olarak saklamaktadırlar. Ancak, yaygın olarak perflorosülfonik asit esaslı membranlar; özellikle de floretoilen kullanılmaktadır. Bunlardan en çok bilineni ve en yaygın olarak kullanılanı 1960'lı yıllardan beri üzerinde çalışılan ve hala da geliştirilmekte olan Nafion (® Dupont)'dur (Larminie ve Dicks, 2000).

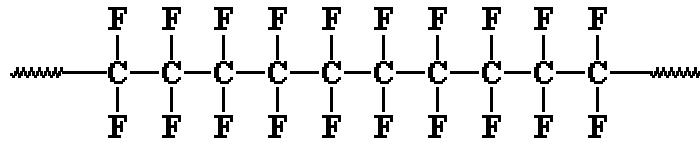
Elektrolit olarak kullanılan membran; ince, katı ve organik bir bileşiktir. Tipik olarak, 2 ile 7 arasında sayfa kalınlığına sahip bir plastiktir. Membran, pozitif yüklü protonların katoda geçmesine izin verirken negatif yüklü elektronların geçmesine izin vermez. Negatif yüklü elektronlar membranın çevresinden bir dış devreye akmalıdır. Elektronların bu akışı bir elektrik devresi halini alır. Membran, partikülleri iletmesi için nemli tutulmalıdır. Nem ve ürün olarak oluşan suyun membran ve elektrotlara girişinin kontrolü ve gaz difüzyon tabakaları genellikle, PEM yakıt pillerinin çalıştırılmasındaki en önemli zorluklar olarak kabul edilir. PEM yakıt pilleri için istenilen membran; yüksek proton, düşük reaktan ve düşük elektrik iletimine sahip, boyutsal olarak kararlı ve yüksek sıcaklıklara dayanıklı olmalıdır (Arif vd., 2004; Cao ve Djilali, 2000; Hickner vd., 2003).

Basit olarak, etilen molekülü esaslı polietilen polimerini incelersek; bu esas polimerin yapısı hidrojen yerine flor ile modifiye edilerek politetrafloroetilen (PTFE) polimeri elde edilir. Bu proses diğer bir çok bileşik için de kullanılır ve “perflorizasyon” olarak adlandırılır. Piyasada teflon olarak da bilinen bu olağanüstü materyal yakıt pillerinin geliştirilmesinde oldukça önemlidir. Flor ve karbon arasındaki güçlü bağlar, yapıya kimyasal olaylara karşı direnç ve dayanıklılık sağlar. Bir diğer önemli özellik ise çok güçlü hidrofobik yapıya sahip olmalarından dolayı, yakıt pillerinde elektrotlarda, suyun elektrottan dışarı atılmasında sürücü kuvvet olarak işlev görerek fazla suyun elektrotlardan akmasını

önlemleridir (Larminie ve Dicks, 2000). Şekil 3.2’de polietilenin, Şekil 3.3’de ise politetrafloroetilenin yapısı görülmektedir.

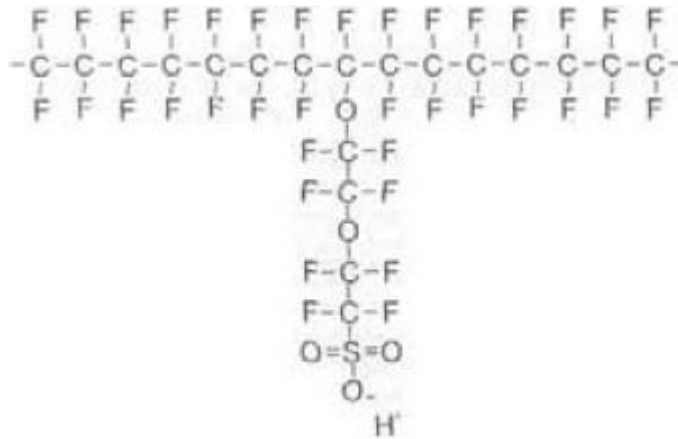


Şekil 3.2 Polietilen



Şekil 3.3 Politetrafloroetilen (PTFE)

PTFE polimerinin yapısı, elektrolit yapmak için sülfonik asit ile biten bir yan zincirin yapıya katılmasıyla sülfonlandırılır. HSO₃ grubu yapıya iyonik bağlarla bağlanır ve yan zincirin sonu aslında SO₃⁻ iyonu halindedir. SO₃⁻ ve H⁺ iyonlarından dolayı, her molekülde (+) ve (-) iyonları arasında karşılıklı güçlü bir çekim oluşur. Bunun sonucu olarak; yan zincir molekülleri materyal yapısının içinde kümeleşme eğilimi gösterirler. Burada sülfonik asidin en önemli özelliği hidrofilik yapıda olup suyu çekmesidir. Bu sayede, genel olarak hidrofobik olan yapının içinde hidrofilik bölgeler oluşturulur (Larminie ve Dicks, 2000). Şekil 3.4’te Perflorosülfonik asit PTFE kopolimerinin yapısı gösterilmektedir.



Şekil 3.4 Perflorosülfonik asit PTFE kopolimeri

Sülfonlandırılmış yan zincirlerin oluşturduğu kümelerin etrafındaki hidrofilik bölge bol miktarda suyun absorplanmasını sağlar. Bu hidratlanmış bölgenin içinde H^+ iyonları nispeten zayıf bir şekilde SO_3^- grubuna doğru çekilir ve hareket edebilir. Bu aslında bir seyreltik asit oluşturur. Bunun sonucunda materyal; dayanıklı ve güçlü hidrofobik bir yapı ve bu yapının içindeki seyreltik asit bölgeleri olmak üzere iki ayrı faz içerir. Hidratlanmış bölgelerin oldukça ayrılmış olmasına rağmen, H^+ iyonlarının uzun molekül yapıya doğru hareketi mümkündür. Ancak, bu durumun kolaylıkla görülebilmesi için hidratlanmış bölge mümkün olan en geniş alana sahip olmak zorundadır (Larminie ve Dicks, 2000).

Nafion ve diğer florosülfonat yapıdaki membranlar (Larminie ve Dicks, 2000);

- kimyasal olarak yüksek dirence sahiptirler.
- mekanik olarak dayanıklıdır ve çok ince filmler halinde üretilebilirler.
- asidik karakterdedirler.
- bol miktarda su tutabilirler.
- eğer iyi hidratlanırlarsa, H^+ iyonları tamamen serbest bir şekilde materyal içinde hareket edebilirler.
- İyi proton iletimi sağlarlar.

3.4 PEM Yakıt Pillerinde Su Sorunu

PEM yakıt pillerinde su yönetimi oldukça tehlikeli bir sorundur. Su, membranın kurumasına izin vermemek için uygulanmalı ama elektrotlarda akmaması için de geri çekilmelidir. Bu dengenin başarıyla kurulması ise oldukça zordur (Arif vd., 2004; Cao ve Djilali, 2000).

Proton iletimi, membranın içerdiği su oranına çok fazla bağlıdır ve yakıt pilinin verimli bir şekilde çalışması için yüksek proton iletimi gerekir. Bu da membranın neredeyse tamamen suyla doymuş olmasını gerektirir. Bunun yanı sıra, elektrolite bağlı olan elektrotlarda da çok fazla su olmamalıdır. Fazla su, elektrot gözeneklerini ya da gaz difüzyon tabakasını tıkar ve membranın ömrünü kısaltır (Larminie ve Dicks, 2000; Arif vd., 2004; Cao ve Djilali, 2000).

İdeal ortamda, oluşan su elektrolitin uygun su içeriğinde kalmasını sağlayacaktır. Hava katottan akıp, gerekli oksijenin uygulanmasıyla, oluşan suyun fazlası kuruyacaktır. Membran elektrolit çok ince olduğundan dolayı, su katottan anoda doğru difüze olacak ve bu sayede elektrolit hiçbir özel işlem gerektirmeden gerekli su içeriğini elde edecektir. Bu durumu çok iyi mühendislik tasarımları ile başarmak mümkün olabilir (Larminie ve Dicks, 2000).

PEM yakıt pillerinin su yönetiminde bazı güçlükler vardır. Bunlardan biri; H^+ iyonlarının anottan katoda doğru hareket ederken su moleküllerini de beraberinde sürüklemeleridir. Bu olaya “elektro-osmotik sürüklenme” denir. Genellikle her bir proton, 1 ile 2,5 arasında değişen bir miktarda su molekülü sürükler. Bu da demektir ki; özellikle yüksek akım yoğunluklarında, katot çok iyi nemlense bile elektrolitin anot tarafı kuruyacaktır. Bir diğer önemli sorun ise, yüksek sıcaklıklarda havanın kurutucu etkisidir. Yaklaşık olarak $60^{\circ}C$ 'nin üzerindeki sıcaklıklarda havanın elektrotları kurutması, H_2/O_2 reaksiyonu ile suyun oluşmasından her zaman daha hızlıdır. Bu problemleri ortadan kaldırmak için en çok tercih edilen yol; yakıt piline girmeden önce havanın, hidrojenin ya da her ikisinin de nemlendirilmesidir (Larminie ve Dicks, 2000; Cao ve Djilali, 2000).

Bir başka önemli sorun ise elektrolit boyunca su dengesini sağlamaktır. Pratik olarak, bazı bölgeler dengede, bazıları çok kuru, bazıları da aşırı nemli olabilir. Havanın hücrenin içerisinden geçişini düşünürsek; hava hücreye tamamen kuru girebilir ama birkaç elektrot geçtikten sonra uygun nem içeren bir hale gelir. Ancak, çıkışa yaklaştıkça suyla öyle doymuş hale gelir ki artık daha fazla suyu kurutamayabilir. Bu daha çok, büyük boyuttaki yakıt pillerinin dizaynında karşılaşılan bir problemdir (Larminie ve Dicks, 2000; Cao ve Djilali, 2000).

Bütün bu farklı su hareketleri; su üretimi ve suyun sürüklenmesi, akım ile doğrudan orantılıdır. Suyun buharlaşması teori ile tahmin edilebilir. Suyun katottan anoda doğru geri difüzyonu ise elektrolit membranının kalınlığına ve her iki tarafındaki relatif neme bağlı olarak değişir (Larminie ve Dicks, 2000).

Sonuç olarak, membranın su kaybetmesini önlemek için genellikle hidrojenin ve hava akımlarının nemlendirilmesine dayalı bir su yönetim planı uygulanır. Böyle planların, gaz difüzyon elektrotlarında aşırı su yoğunlaşmasını önlemek için çok dikkatli uygulanması gerekir. Aksi takdirde, aşırı su gözenekleri tıkayacak ve reaksiyona girecek olan maddelerin reaksiyon yerine doğru olan difüzyonunu engelleyecektir (Larminie ve Dicks, 2000; Cao ve Djilali, 2000).

3.5 Reaktan Bileşimi

PEM yakıt pillerinde, küçük sistemler için yakıt olarak hidrojen, oksidan olarak oksijen kullanılması sık karşılaşılan bir durumdur. Ancak, büyük sistemlerde hidrojen çeşitli yakıtların reformlanmasından elde edilir. Yakıt reformlama sistemleri hemen hemen her zaman karbon monoksit üreten bir reaksiyon içermektedir. Ancak, PEM yakıt pillerinde

katalizör olarak platin kullanılmaktadır ve karbon monoksit platine olan ilgisinden dolayı katalizör yüzeyini kaplayarak hidrojenin katalizöre ulaşmasını engeller. 10 ppm gibi düşük bir karbon monoksit konsantrasyonu bile yakıt pillerinin performansı üzerinde kabul edilemez bir etki yaratmaktadır. Bu yüzden, PEM yakıt pillerinde karbon monoksitin ortamda olmaması gerekir ve bunun için de genellikle üç yöntemden biri tercih edilir (Larminie ve Dicks, 2000).

İlk yöntemde; seçici oksidasyon reaktöründe az bir miktar hava (yaklaşık %2) yakıtta eklenir. Yakıt değerli metal katalizörün yüzeyinden geçerken, katalizör hidrojen yerine karbon monoksiti tercih ederek tutar. Katalizör yüzeyinden akan havadaki oksijen ile katalizör tarafından tutulan karbon monoksit reaksiyona girer. Fakat karbon monoksit ile reaksiyona girmeyen oksijen, hidrojen ile reaksiyona gireceğinden dolayı bir miktar yakıtın ziyan olmasına neden olacaktır. Bunun dışında sistemin de çok dikkatli kontrol edilmesi gerekmektedir. Hidrojen, karbon monoksit ve oksijen yükselmiş bir sıcaklıkta değerli bir katalizörle aynı ortamda bulunmaktadır ve patlayıcı bir karışımın meydana gelmemesi için ölçümler yapılmalıdır. Bu da, PEM yakıt pilleri ile çalışan araçlar gibi gaz akış hızlarının değişken olduğu durumlar için özel bir sorundur (Larminie ve Dicks, 2000).

İkinci yöntem; karbon monoksitin metanlaştırılmasına dayanan bir yaklaşımdır ve patlayıcı bir gaz karışımının meydana gelme tehlikesini artırır (Larminie ve Dicks, 2000).



Bu metotta hidrojenin tüketilmesi aşık bir dezavantajdır ve verimin düşmesine sebep olur. Ancak karbon monoksit içeriği yaklaşık % 0.25 gibi çok düşük oranlara kadar düşürülmüştür ve oluşan metanın da katalizörü zehirlenme etkisi yoktur (Larminie ve Dicks, 2000).

Üçüncü yöntemde ise; paladyum/platin membranlar hidrojeni ayırmak ve saflaştırmak için kullanılır. Bu teknoloji, olağanüstü saflıkta hidrojen elde etmek için uzun yıllardan beri kullanılmaktadır. Ancak, kullanılan materyallerden dolayı çok pahalı bir teknolojidir (Larminie ve Dicks, 2000).

Yakıt pillerinde, petrol gibi önceden düzenli olarak kullanılmış olan sıvı yakıtların kullanılması idealdir. Ne yazık ki, böyle yakıtlardan metanol dışında hiç biri önemlerini destekleyecek kadar yeterli oranda reaksiyona girmez. PEM yakıt pillerinde, metanol aşağıdaki reaksiyona göre, yavaş da olsa anotta reaksiyona girer (Larminie ve Dicks, 2000).



Reaksiyonun çok yavaş gerçekleşmesi, verimin düşük olması ve metanolün polimer elektrolit tarafından tutulması yakıt olarak metanolün kullanılmasındaki en büyük sorunları oluşturmaktadır (Larminie ve Dicks, 2000).

Bütün bu sorunlara rağmen; kolay elde edilebilir olması, depolanma ve işlenmesindeki kolaylıklar, yüksek enerji yoğunluğu ve metanolün yakıt olarak güvenli oluşu, düşük enerji uygulamaları için yakıt olarak kullanımını cazip kılmaktadır (Larminie ve Dicks, 2000).

PEM yakıt pillerinde, oksidan olarak saf oksijen yada havanın kullanılmasına karar vermek genelde sorun oluşturmaz. Denizaltı, uzay araçları gibi havadan bağımsız sistemlerde saf oksijen kullanılırken, diğer sistemlerde hava kullanılır. Ancak, oksidan olarak saf oksijenin kullanılması PEM yakıt pillerinin performansını önemli ölçüde etkilemektedir (Larminie ve Dicks, 2000).

4. DENEYSEL KISIM

H₂-O₂ yakıt pillerinde PtRu/C ve PtIr/C kompozit elektrotlarının sentezi konulu tezimin deneysel kısmında, ilk önce kompozit elektrot oluşturulmasının ilk aşaması olan platin eldesi üzerinde çalışılmıştır. Kullanılacak kimyasalların oksidasyon reaksiyonlarına ve potansiyel değerlerine bakılarak indirgen madde seçimi yapılmıştır. Amaç; indirgen madde olarak hidrazin kullanılarak sıcaklık ve pH'ın platin yapısı üzerindeki etkilerini incelemektir.

PEM yakıt pillerinde etkinliğin yüksek olması için elektrot yüzeyinde kullanılan platin miktarının az olması ve partiküllerin de mümkün olduğu kadar küçük boyutta elde edilmesi gerekmektedir. Bunun için, titrasyonun uygun ve sabit bir hızda gerçekleştirilmesi oldukça önemlidir. Ayrıca, indirgeme ajanı ile indirgenen kimyasal maddenin standart indirgenme potansiyelleri arasındaki fark ne kadar fazla ise indirgenme tepkimesi o kadar hızlı ve elde edilen platin partikül boyutu da o kadar küçük olur.

Daha sonraki aşamada ise impregnasyon yöntemi kullanılarak PtRu/C, PtIr/C, PtRuIr/C kompozit elektrotları elde edilmiştir.

4.1 Deneylerde Kullanılan Kimyasal Maddeler ve Cihazlar

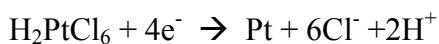
Öncelikle deneysel çalışma için gerekli malzeme ve cihazlar seçilip çalışılacak parametreler belirlenmiştir. Deneylerde kullanılan tüm malzeme ve cihazlar Çizelge 4.1'de verilmektedir.

Çizelge 4.1 Deneysel çalışmada kullanılan malzeme ve cihazlar

Cihaz veya Kimyasal Madde	Miktarı	Özellikleri
Düz Büret	1	Teknik Cam, DILEX EX 25±0.03 mL
Manyetik Karıştırıcı	1	IKA® RH-KT/C
Su Banyosu	1	JULOBO, Ultratemp FP35-HC
Santrifüj	1	Nüve®, NF 615
Hücre	1	Borucam, Çift cidarlı ve çift çıkışlı, 150 mL
Sem Cihazı	1	JEOL, JSM- 5410LX Scanning Microscope
Zetasizer Cihazı	1	MALVERN Instruments, Zetasizer 3000 HSA
XRD Cihazı	1	PHILIPS Panalytical X'per PRO
Hekzakloroplatinik asit	5 g	Sigma-Aldrich, Fluka Chemina GmbH, Hygroscopic, Photosensitive, Purum~%38Pt, Mr 409,82+aq
Hidrazin	100 ml	Sigma-Aldrich, Aldrich Chemical Company Inc., %35(ağ.)'lik sulu çözelti, d 1,011
Hidroklorik asit	100 ml	Carlo Erba Reagent, %35, M _A =36,461 g/mol
Rutenyum(III) klorür	2,1 g	Sigma-Aldrich, Batch#: 08926 JA
İridyum(III) klorür	1 g	Sigma-Aldrich, 09925 DB, Cas 10025-83-9
Grafit	113,4 g	Sigma-Aldrich, powder,-325 mesh, 99,999%, Batch#:09221AB, CAS 7782-42-5;C; FW 12.01; d 2.25

Hekzakloroplatinik asit için hegzakloroplatinat asit hidrat, kloroplatinik asit (CPA), dihidrojen hegzakloroplatinat, hidrojen hegzakloroplatinat, platin klorür gibi isimler de kullanılır. Havadan çektiği su ile eriyebilen, kızıl kahve kristal yapıya sahip inorganik bir kimyasal maddedir. 1 mol hegzakloroplatinik asidin %37.668'i saf platindir. Işık ve ısıya maruz kaldığında sulu çözelti hidrolize olur, bunu önlemek için hidroklorik asit kullanılarak çözelti kararlı hale getirilebilir. Deneyimizde hegzakloroplatinik asit, saf platin eldesi için kullanılmıştır.

Hekzakloroplatinik asidin indirgenme tepkimesi aşağıda verilmektedir (Karakuş, 2005).



$$E^0 = +0.73 \text{ V}$$

Hekzakloroplatinik asidin diğer fiziksel ve kimyasal özellikleri ise Çizelge 4.2’de verilmektedir.

Çizelge 4.2 Hekzakloroplatinik asidin fiziksel ve kimyasal özellikleri

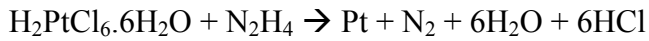
Kimyasal Formül	H ₂ PtCl ₆ .6H ₂ O
Molekül Ağırlığı	517.92 g/mol
Yoğunluk	2.43 g/mL
Erime Noktası	60 °C
Kaynama Noktası	—
Görünüm	Kızıl kahve kristal haldedir

Hidrazin; şeffaf, renksiz ve oda sıcaklığında çok hidroskobik bir sıvıdır. Amonyacı andıran keskin bir kokusu vardır ve çok polar bir çözücüdür. Susuz hidrazin çok güçlü bir indirgeme ajanıdır ve oldukça ekzotermik bir biçimde, inanılmaz bir hızla bozunabilecek kadar güçlü bir reaktif moleküldür. Bu yüzden deneyimizde indirgen madde olarak hidrazin seçilmiştir.

Hidrazinle ilgili yarı reaksiyon aşağıdadır (Gürocak, 2004):



Hekzakloroplatinik asitten hidrazin ile saf platin elde etmek için gerçekleşen reaksiyon ise aşağıda verilmektedir (Gürocak, 2004).



Hidrazinin çok az miktarı bile oldukça yanıcı olmasına rağmen, havayla teması engellendiği sürece depolanması güvenlidir. Bunun yanı sıra hidrazin zehirli bir kimyasaldır ve kanserojendir. Özellikle deri dokusu ve gözler için çok yakıcıdır. Kan tarafından kolaylıkla emilip karaciğer, böbrek, sinir sistemi ve kırmızı kan hücrelerinde kolaylıkla tahribata yol açabilir [11]. Hidrazinin diğer fiziksel ve kimyasal özellikleri ise Çizelge 4.3’te verilmektedir.

Çizelge 4.3 Hidrazinin fiziksel ve kimyasal özellikleri

Kimyasal Formül	NH ₂ NH ₂
Molekül Ağırlığı	32,05 g/mol
Yoğunluk	1,011 g/mL
Kaynama Noktası	113,5°C
Erime Noktası	2.0°C
Buhar Yoğunluğu	>1
Buhar Basıncı	5 mm Hg (25°C)
Konsantrasyon	Ağırlıkça %35 hidrazin içeren sulu çözelti

Pt-C elektrotlarda platin, katalizör yüzeyini oluşturur. Denede platinin yanı sıra yapıya iridyum ve rutenyum metalleri de katılarak elektrot yapısının nasıl etkilendiği incelenmiştir. Rutenyum ve iridyum kaynağı olarak klorür bileşikleri tercih edilmiştir. Klorür bileşikleri suda çözüldüklerinde elektrik akımını iletir ve elektroliz ile klor gazı ve metale ayrışabilirler.

Rutenyum kaynağı olarak kullandığımız rutenyum klorür, rutenyum triklorür olarak da bilinir. Siyah-gri renkli kristal yapıda toz halinde bir katıdır. Su içinde çok iyi çözünür. Rutenyum klorüre ait diğer fiziksel ve kimyasal özellikler Çizelge 4.4'te verilmektedir.

Çizelge 4.4 Rutenyum klorürün fiziksel ve kimyasal özellikleri

Kimyasal Formül	RuCl ₃
Molekül Ağırlığı	207,43 g/mol
Yoğunluk	3,11 g/cm ³
Erime Noktası	Sıcaklıkla bozunur
Kaynama Noktası	—
Görünüm	Kristal toz haldedir

İridyum kaynağı olarak kullandığımız iridyum klorür, iridyum triklorür olarak da bilinir. Kahverengi ya da zeytin renginde, kristal yapılu toz halde bir katıdır. Nem tutma eğilimindedir. Suda ve hidroklorik asitte çözünür. İridyum klorüre ait diğer fiziksel ve kimyasal özellikler Çizelge 4.5'te verilmektedir.

Çizelge 4.5. İridyum klorürün fiziksel ve kimyasal özellikleri

Kimyasal Formül	IrCl_3
Molekül Ağırlığı	298,58 g/mol
Yoğunluk	5,3 g/cm ³
Erime Noktası	763 °C
Kaynama Noktası	—
Görünüm	Kristal toz haldedir

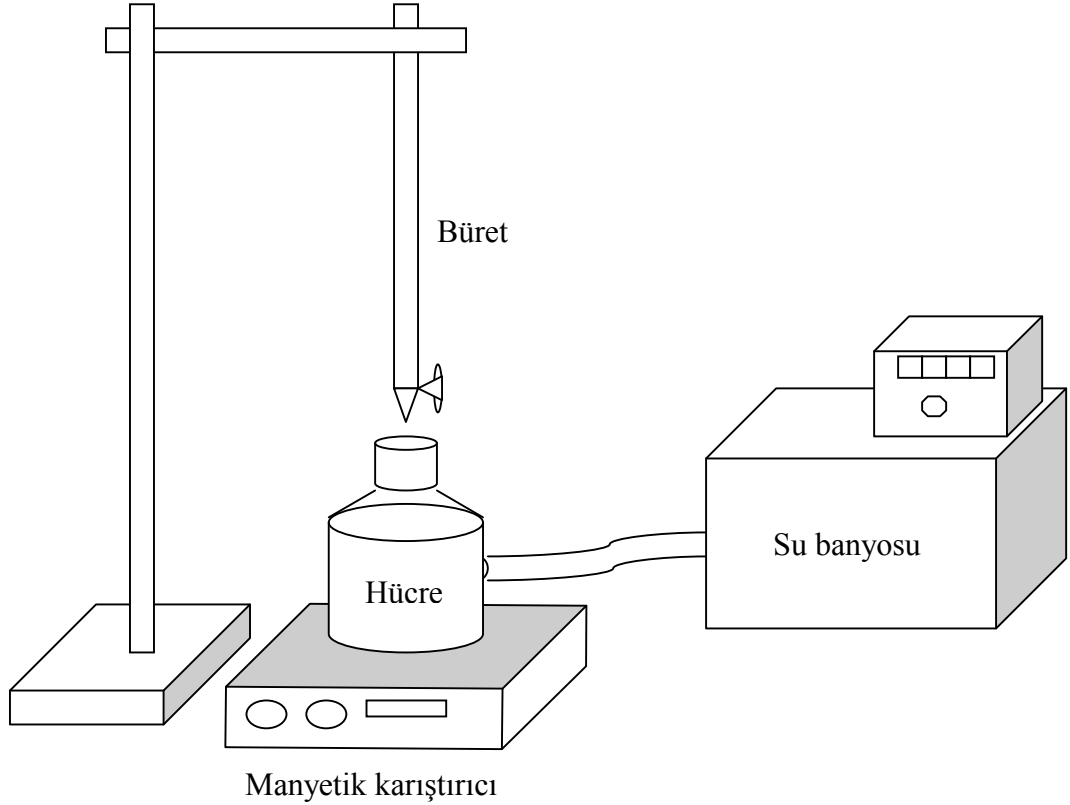
Karbon, yaşam açısından büyük öneme sahip bir elementtir. Yalın element halindeki karbon, o kadar değişik biçimlerde bulunur ki, bunların hepsinin aynı element olduğunu anlamak çok güçtür. Karbon; elmas, grafit, odunkömürü ve is gibi farklı biçimlerde bulunur. Grafit ise çok daha değişikdir. Yumuşak, yağlı, kağıtta iz bırakan, siyah renkli katı bir maddedir. Grafit, yağ haline getirilip makinelerde, çalışan parçaların birbirine sürtünürken aşınmasını azaltmak ya da engellemek amacıyla yağlayıcı olarak kullanılır. Kurşun kalemlerin içindeki uç da, içine kil katılarak biraz sertleştirilmiş grafitir. Son dönemlerde, uzay kapsüllerinin ısı kalkanlarının yapımında da grafitten yararlanılmaya başlanmıştır. Grafitin elde edildiği başlıca yerler Sri Lanka, Sibirya, Kuzey Amerika ve Meksika'dır. Grafit yapay olarak da hazırlanabilir, bunun için kok kömürünün çok yüksek sıcaklıklarda işlenmesi gerekir. Grafit çok yüksek sıcaklıklara dayanabildiği gibi, çok iyi bir elektrik iletkenliği de sahiptir. Bu nedenle günümüzde, yakıt pillerinde elektrot yapımı için en çok tercih edilen elementtir. Çizelge 4.6'da grafitin diğer fiziksel ve kimyasal özellikleri verilmiştir [12].

Çizelge 4.6 Grafitin fiziksel ve kimyasal özellikleri

Kimyasal Formül	C
Molekül Ağırlığı	12,01 g/mol
Yoğunluk	1,9-2,3 g/cm ³
Erime Noktası	3697-3652 °C
Kaynama Noktası	—
Görünüm	Toz haldedir

4.2 Deneyin Yapılışı

İndirgen madde olarak hidrazin kullanılarak farklı sıcaklık ve pH değerlerinde, heksakloroplatinik asitten platin elde etmek için kullanılan düzenek Şekil 4.1’de şematik olarak gösterilmektedir.



Şekil 4.1 Deney düzeneği

Deneylerde ilk olarak hidrazin indirgeni kullanılarak platin partikülleri elde edilmiştir. 250 mg heksakloroplatinik asit 100 mL %5’lik HCl çözeltisinde çözünmüş ve deney hücresine konulmuştur. Su banyosunun sıcaklığı 25°C’ye ayarlanmıştır. Deney sırasında deney hücresindeki çözelti manyetik karıştırıcı ile sürekli olarak karıştırılmıştır. Deney hücresindeki çözeltiye 1 damla hidrazin ilavesi ile platin partikülleri hızlı ve belirgin bir şekilde çökmüştür.

Deney hücresinde, çöken platin partiküllerinin ayrılması için reaksiyon çözeltisi santrifüj işlemine tabi tutulmuştur. Santrifüjleme 3000 devir/dakika hızla gerçekleştirilmiştir. Platin partiküllerinin topaklanmasını önlemek ve düzgün dağılmasını sağlamak için deney numunesinin üzerine 1 mL kadar aseton konulmuştur. Daha sonra 110°C sıcaklığa ısıtılmış etüvde bekletilerek sıvı fazın tümü uçurulmuştur.

Kurutulan platin partiküllerinin yapısı ve dağılımı JEOL, JSM-5410LX taramalı elektron mikroskobu (SEM) ile incelenmiş, partiküllerin boyutları ve zeta potansiyelleri ise Malvern Zetasizer 3000 HSA cihazı ile ölçülmüştür.

Farklı sıcaklık ve pH değerleri için deney tekrarlanmış, elde edilen sonuçlara göre platin partiküllerinin en küçük boyutta ve en düzgün dağılımda elde edildiği parametreler belirlenmiştir. Bu parametreler hidrazin kullanılarak heksakloroplatinik asitten platin partiküllerinin elde edilmesi için optimum koşullar olarak kabul edilmiştir.

Daha sonraki aşamada ise impregnasyon yöntemi kullanılarak karbon destekli katalizör elde edilmiş ve şu yöntem izlenmiştir; 200 mg grafit karbon tozuna 5 mL saf su ve 5 mL isopropanol eklenerek 15 dakika ultrasonik karıştırıcıda karıştırılarak karbon çamuru elde edilmiştir. 42 mg platin içeren 0,120 g heksakloroplatinik asit 10 mL saf su içerisinde çözülmüş ve bu çamura eklenerek 30 dakika ultrasonik olarak karıştırılmıştır. Hazırlanan süspansiyonun pH'ı tampon çözeltisiyle ayarlanmış ve 25 mL 0,15 M hidrazin indirgeni kullanılarak titrasyon işlemi gerçekleştirilmiştir. Pt-C içeren çözelti santrifüjleme işlemine tabi tutulmuş ve 80°C'de vakum etüvünde kurutulmuştur. Elde edilen PtC katalizörün SEM görüntüleri alınarak, platin partiküllerinin karbon partikülleri üzerindeki boyut ve dağılımı incelenmiştir.

PtRu/C kompozit elektrotun eldesi için, karbon destekli platin katalizörün eldesinde olduğu gibi impregnasyon yöntemi izlenmiştir. 200 mg grafit karbon tozuna 5 mL saf su ve 5 mL isopropanol eklenerek 15 dakika ultrasonik karıştırıcıda karıştırılarak karbon çamuru elde edilmiştir. 42 mg platin içeren 0,120 g heksakloroplatinik asit 10 mL saf su içerisinde çözülmüş ve bu çamura eklenerek 30 dakika ultrasonik olarak karıştırılmıştır. Hazırlanan süspansiyonun pH'ı tampon çözeltisiyle ayarlandıktan sonra 15 mg rutenyum içeren 0,0308 g $RuCl_3$ bu süspansiyona eklenmiş ve 25 mL 0,15 M hidrazin indirgeni kullanılarak titrasyon işlemi gerçekleştirilmiştir. Pt-Ru-C içeren çözelti santrifüjleme işlemine tabi tutulmuş ve 80°C'de vakum etüvünde kurutulmuştur. Elde edilen PtRu/C katalizörün SEM görüntüleri alınarak, platin ve rutenyum partiküllerinin karbon partikülleri üzerindeki boyut ve dağılımı incelenmiş ve XRD analizi yapılmıştır.

PtIr/C kompozit elektrotun eldesinde de PtRu/C elektrotun eldesiyle aynı yol izlenmiştir. 200 mg grafit karbon tozuna 5 mL saf su ve 5 mL isopropanol eklenerek 15 dakika ultrasonik karıştırıcıda karıştırılarak karbon çamuru elde edilmiştir. 42 mg platin içeren 0,120 g heksakloroplatinik asit 10 mL saf su içerisinde çözülmüş ve bu çamura eklenerek 30 dakika ultrasonik olarak karıştırılmıştır. Hazırlanan süspansiyonun pH'ı tampon çözeltisiyle

ayarlandıktan sonra 15 mg iridyum içeren 0,02329 g IrCl_3 bu süspansiyona eklenmiş ve 25 mL 0,15 M hidrazin indirgeni kullanılarak titrasyon işlemi gerçekleştirilmiştir. Pt-Ir-C içeren çözelti santrifüjleme işlemine tabi tutulmuş ve 80°C’de vakum etüvünde kurutulmuştur. Elde edilen PtIr/C katalizörün SEM görüntüleri alınarak, platin ve iridyum partiküllerinin karbon partikülleri üzerindeki boyut ve dağılımı incelenmiş ve XRD analizi yapılmıştır.

Deneyleerde son olarak ise rutenyum ve iridyum metalleri aynı kompozit elektrotta kullanılmıştır. PtRu/C ve PtIr/C kompozit elektrotların eldesinde olduğu gibi yine impregnasyon yöntemi izlenmiş, süspansiyon elde edilip pH tampon çözeltisiyle ayarlandıktan sonra, 15 mg rutenyum içeren 0,0308 g RuCl_3 ve 15 mg iridyum içeren 0,02329 g IrCl_3 bu süspansiyona eklenmiştir. 25 mL 0,15 M hidrazin indirgeni kullanılarak titrasyon işlemi gerçekleştirilmiş, Pt-Ru-Ir-C içeren çözelti santrifüjleme işlemine tabi tutulmuştur. 80°C’de vakum etüvünde kurutma yapıldıktan sonra, elde edilen PtRuIr/C katalizörün SEM görüntüleri alınarak, platin ve iridyum partiküllerinin karbon partikülleri üzerindeki boyut ve dağılımı incelenmiş ve XRD analizi yapılmıştır.

4.3 Deneysel Çalışma Sonuçları ve Analiz Teknikleri

Yapılan deneyleerde elde edilen platin, rutenyum, iridyum partiküllerinin yapısını ve karbon destek üzerindeki dağılımlarını görmek için SEM görüntüleri alınmıştır. SEM görüntülemeye JEOL, JSM-5410LX tipi taramalı elektron mikroskobu kullanılmıştır.

Taramalı elektron mikroskobunda (SEM) görüntüleri oluşturmak için ışık yerine elektronlar kullanılır. Görüntü; yüksek voltaj ile hızlandırılmış elektronların numune üzerine odaklanması sağlanarak, bu elektron demetinin numune yüzeyinde taratılması sırasında elektron ve numune atomları arasında oluşan çeşitli girişimler sonucunda meydana gelen etkilerin uygun algılayıcılarda toplanması ve sinyal güçlendiricilerinden geçirilerek bir katot ışınları tüpünün ekranına aktarılmasıyla elde edilir. Modern sistemlerde bu algılayıcılardan gelen sinyaller dijital sinyallere çevrilip bilgisayar monitörüne verilmektedir.

Deneyleerde elde edilen platin partiküllerinin tanecik boyutu ise, Zetasizer 3000 HSA ile ölçülmüştür. Ölçüm prensibi, partiküllere gelen ışığın kırılması ile tanecik boyutunun hesaplanmasıdır. Doğru ölçümler alabilmek için, ölçüm esnasında kullanılacak numune küvetinin çizik olmaması, safsızlık ve kabarcık içermemesi çok önemlidir. Bunun yanı sıra taşıyıcı faz seçimi de çok önemlidir. Ölçümü yapılacak olan numune, platin partiküllerinin asılı kalarak iyi dağılacağı, ışığı geçiren ve olabildiğince düşük yoğunluğa sahip taşıyıcı bir faz içinde olmalıdır.

Zeta potansiyel analizi için de tanecik boyutu analizinde kullanılan Malvern'in Zetasizer 3000 HSA cihazı kullanılmıştır. Bu cihaz ile çözelti içersindeki 1,5–100 mm boyutundaki katı partiküllerin -125 ile +125 mV arasındaki yüzey potansiyelleri, +20 ile -20 mikron.sn/volt.cm arasındaki elektroforetik mobiliteleri ve ayrıca çözeltilerin 0–60.000 mikrohm.sn/cm arasındaki spesifik iletkenlikleri ölçülmektedir.

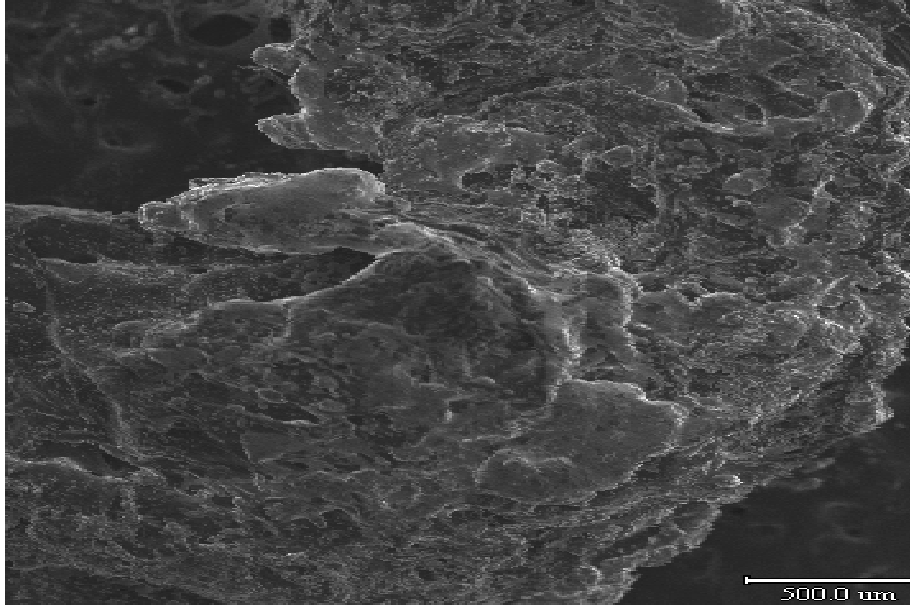
Zeta potansiyeli, partiküllerin kayma yüzeylerinde ortaya çıkan elektriksel potansiyeldir ve elektrik alana bağlı olarak oluşan yüklü partiküllerin hareketliliğinden (mobilité) ortaya çıkar. Mobilité her elektrik alan ünitesi başına düşen partikül hızı olarak tanımlanır ve partiküllere elektrik alan uygulanarak ortalama hızlarının ölçülmesiyle bulunur.

Deneyleerde elde edilen platin partiküllerinin zeta potansiyelleri ölçülmüş ve tanecik boyutu ile zeta potansiyeli arasındaki ilişki incelenmiştir.

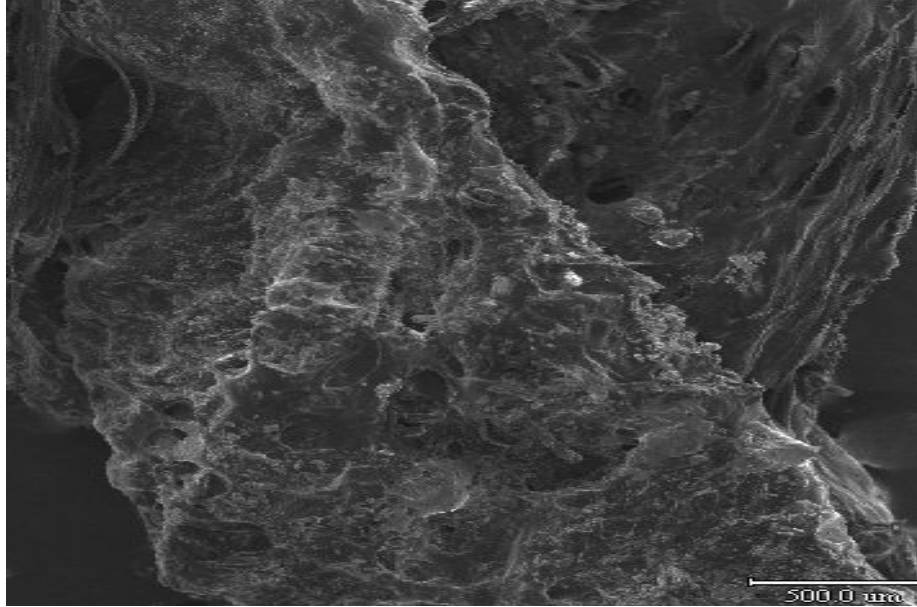
Deneyleer sonucunda elde edilen PtRu/C, PtIr/C ve PtRuIr/C katalizörlerin kalitatif analizi Philips, panalytical X'per PRO modeli XRD cihazı ile yapılmıştır. X-ray difraktometresi (XRD), materyallerin kristal yapılarını karakterize etmede güçlü ve zararsız bir tekniktir. Materyallerin yapıları, fazları ve kristal yapıları hakkında bilgi verdiği gibi; ortalama tanecik boyutu, kristallik, tür ve kristal bozukluklar gibi diğer yapısal parametreler hakkında da bilgi edinilmesini sağlar. X-ray difraktometresinin çalışma prensibi, kristal yapıdaki her maddenin kendisine özgü atomik dizilimlerine bağlı olarak X-ışınlarını karakteristik bir düzen içerisinde kırma esasına dayanır. Pik keskinlikleri, kafes yapılarıdaki atomik yerleşimlerden belirlenir. Sonuç olarak; X-ray difraksiyon şablonu, verilen materyalin periyodik ve atomik yerleşiminin parmak izidir.

Deneyleerde PtRu/C, PtIr/C ve PtRuIr/C kompozit elektrotların oluşturulması için öncelikli olarak platin eldesi üzerinde çalışılmıştır. İndirgen madde olarak hidrazin kullanılarak, değişik sıcaklık ve pH değerlerinde heksakloroplatinik asitten platin partikülleri elde edilmiştir. Sıcaklık ile pH değerlerinin platin partikül boyutu ve dağılımı üzerindeki etkileri SEM analizleri ile, iletkenlik üzerindeki etkileri ise zeta potansiyeli ölçümleri ile incelenmiştir. Analiz sonuçlarının yorumlanmasından sonra, platin partiküllerinin eldesi için optimum sıcaklık ve basınç değerleri belirlenmiştir. Bu optimum değerlerde impregnasyon yöntemi kullanılarak karbon destekli platin katalizör toz halde elde edilmiş, taramalı elektron mikroskobu ile tanecik boyutu ve dağılımları, XRD cihazı ile de kalitatif analizleri incelenmiştir.

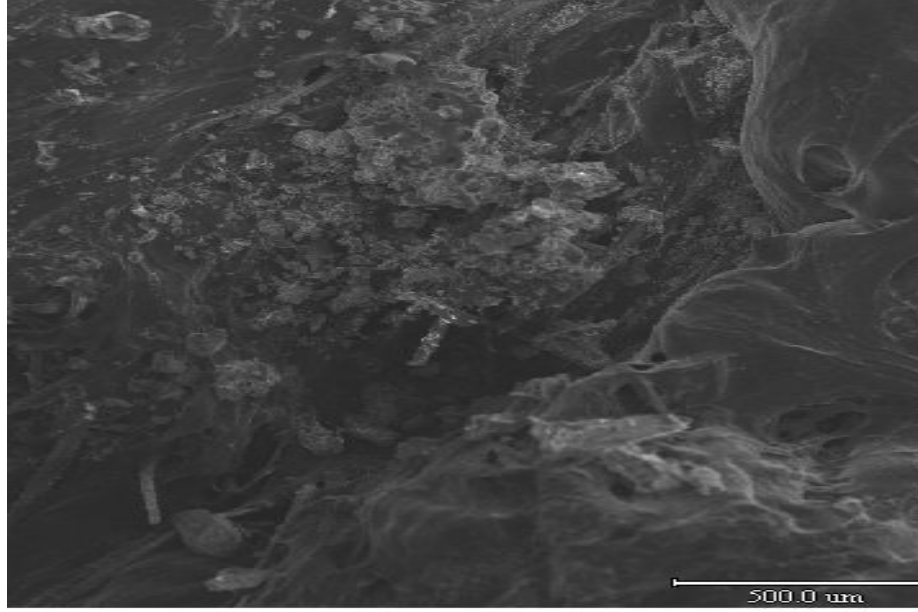
İndirgeme ajanı olarak tüm deneylerde hidrazin kullanılmıştır. Şekil 4.2 ve Şekil 4.3'te $T=25^{\circ}\text{C}$ sıcaklıkta, sırasıyla $\text{pH}=4$ ve $\text{pH}=7$ değerlerinde elde edilen platin partiküllerinin 35 X büyütme ile SEM görüntüleri verilmektedir. Şekil 4.4 ve Şekil 4.5'te ise $T=25^{\circ}\text{C}$ sıcaklıkta, $\text{pH}=10$ değerinde elde edilen platin partiküllerinin sırasıyla 50 X ve 350 X büyütme ile SEM görüntüleri verilmektedir.



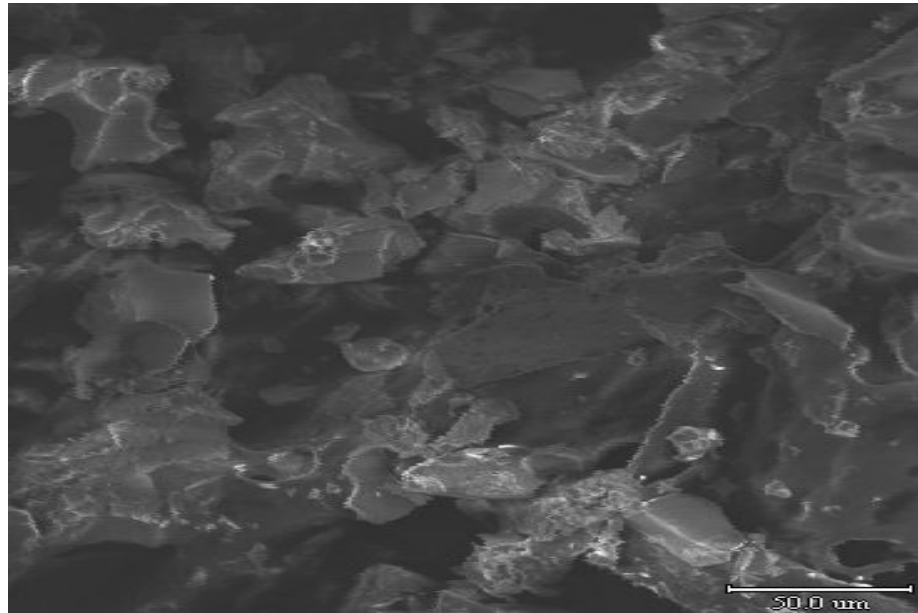
Şekil 4.2 Hidrazinle $\text{pH}=4$ ve $T=25^{\circ}\text{C}$ sıcaklıkta elde edilen platin partikülleri



Şekil 4.3 Hidrazinle $\text{pH}=7$ ve $T=25^{\circ}\text{C}$ sıcaklıkta elde edilen platin partikülleri



Şekil 4.4 Hidrazinle pH=10 ve T=25°C sıcaklıkta elde edilen platin partikülleri



Şekil 4.5 Hidrazinle pH=10 ve T=25°C sıcaklıkta elde edilen platin partikülleri

Şekil 4.2, Şekil 4.3, Şekil 4.4 ve Şekil 4.5 incelendiğinde pH değeri arttıkça platin partikül yapılarının belirginleştiği ve küçüldüğü görülmüştür. Daha sonra Zetasizer 3000 HSA cihazı kullanılarak platin partiküllerinin tanecik boyutu ve zeta potansiyeli ölçümleri yapılmıştır. Tanecik boyutu ve zeta potansiyeli ölçümlerinde taşıyıcı faz olarak reaksiyon çözeltileri ve saf su kullanılmıştır.

Çizelge 4.7 ve Çizelge 4.8’de T=25°C sıcaklıkta ve pH=4 değerinde çöktürülen platin partiküllerinin taşıyıcı faz olarak sırasıyla; dekantasyon sonrası arta kalan çözelti ve saf su içerisinde tekrar dağıtılarak yapılan tanecik boyutu analizleri verilmektedir.

Çizelge 4.7 Hidrazin ile pH=4 ve T=25°C’de elde edilen platin partiküllerinin dekantasyon sonrası arta kalan çözelti içerisindeki tanecik boyutu

Ölçüm	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	369,2	93,0	1476,6	15:46:38
2	377,8	92,9	1456,1	15:47:09
3	354,7	95,8	1279,9	14:47:41
4	349,2	75,7	1180,6	15:48:12
5	341,4	79,8	1097,6	15:48:44
6	338,3	79,3	1210,1	15:49:15
7	331,6	81,2	1136,9	15:49:47
8	324,0	82,6	1044,3	15:50:18
9	348,1	84,8	1210,3	15:50:50

Ölçüm	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	339,9	75,3	1037,8	15:51:54
2	343,1	89,9	908,8	15:52:26
3	358,0	74,0	1181,5	15:52:57
4	374,9	76,5	1126,1	15:53:28
5	333,2	80,1	1085,7	15:54:00
6	338,0	76,7	1055,5	15:54:31
7	332,1	75,4	1079,4	15:55:03
8	357,3	85,6	1154,9	15:55:34
9	318,4	87,7	996,7	15:56:06

Ölçüm	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	331,2	92,3	1102,9	15:57:10
2	296,1	94,5	980,8	15:57:42
3	304,7	92,2	1037,1	15:58:13
4	318,7	85,7	1040,1	15:58:45
5	334,5	86,0	1067,1	15:59:17
6	273,6	84,2	1088,1	15:59:48
7	279,6	81,8	1005,5	16:00:19
8	251,0	85,9	992,8	16:00:51
9	337,1	81,1	1018,8	16:01:22

	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	362,4	-	1298,7	15:51:22
2	336,4	-	1009,9	15:56:37
3	310,9	-	1000,9	16:01:51
ortalama	336,6	-	1103,2	-

Çizelge 4.8 Hidrazin ile pH=4 ve T=25°C’de elde edilen platin partiküllerinin saf su içerisindeki tanecik boyutu

Ölçüm	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	254,1	94,9	1794,1	16:22:22
2	225,9	89,7	1589,6	16:22:55
3	255,8	97,5	2216,5	16:23:29
4	234,4	93,9	1832,8	16:24:02
5	232,6	88,9	1661,2	16:24:36
6	230,6	95,5	1621,5	16:25:09
7	231,5	92,8	1636,5	16:25:43
8	198,7	84,2	1374,0	16:26:17
9	220,1	99,0	1399,9	16:26:50

Ölçüm	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	197,5	90,0	1263,4	16:28:01
2	186,6	96,9	1259,4	16:28:35
3	176,0	73,3	996,7	16:29:08
4	191,7	86,1	1203,1	16:29:42
5	165,8	79,2	920,3	16:30:16
6	213,2	68,1	960,4	16:30:49
7	165,2	78,8	859,0	16:31:23
8	145,7	68,6	841,6	16:31:56
9	182,9	81,1	846,6	16:32:30

Ölçüm	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	229,1	73,2	1097,7	16:33:41
2	179,9	67,5	916,4	16:34:14
3	207,5	81,5	962,7	16:34:48
4	170,0	64,9	877,8	16:35:21
5	136,2	72,9	769,4	16:35:55
6	85,0	73,4	721,3	16:36:31
7	143,7	73,0	817,8	16:37:04
8	146,0	73,2	876,7	16:37:38
9	169,0	62,2	936,6	16:38:11

	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	232,4	-	1701,1	16:27:24
2	171,7	-	887,4	16:33:03
3	157,9	-	935,6	16:38:45
ortalama	187,3	-	1174,7	-

Çizelge 4.7 ve Çizelge 4.8 incelendiğinde en küçük tanecik boyutu (1103,2 nm) platinin dekantasyon sonrası arta kalan çözelti içerisinde tekrar dağıtılmasıyla elde edilen süspansiyonda görülmüştür. İndirgenme işlemi sonucunda dekantasyon sonrası arta kalan çözeltideki toplam iyon konsantrasyonu düşünüldüğünde; bu iyonların indirgenmiş olan platin

partikülleri üzerinde iyonik bir kuvvet oluşturduğu görülür. Ayrıca çözeltideki iyon konsantrasyonu arttıkça çözeltilinin yoğunluğu ve viskozitesi de artar. Saf su içerisindeki platin partikülleri üzerinde bu etkilerin hiç biri yoktur ve büyük platin partikülleri belirli bir süre sonra dibe çökerler. Bu yüzden saf su içerisinde dağıtılmış platin partiküllerinin ortalama tanecik boyutunun, dekantasyon sonrası arta kalan çözelti içerisindeki kiyasla daha küçük olması beklenir. T=25°C sıcaklıkta ve pH=4 değerinde elde edilen deney sonuçlarında ise beklenenin tersine dekantasyon sonrası arta kalan çözelti içerisinde dağıtılan platin partiküllerinin boyutu daha küçük çıkmıştır. Fakat aradaki fark çok azdır, saf su içerisinde dağıtılmış olan platin partiküllerinin boyutları (1174,7 nm), dekantasyon sonrası arta kalan çözeltide dağıtılmış olan platin partiküllerinin boyutları ile hemen hemen aynıdır. Bu da; suyun polar yapıda olması nedeniyle, su moleküllerinin platin partikülleri üzerine uyguladığı etkiden kaynaklanmaktadır. Bunun dışında, T=25°C sıcaklıkta ve pH=4 değerinde elde edilen platin partiküllerinde belirgin bir yapının tam olarak elde edilememiş olması ya da platin partiküllerinin çöktürme sonrası kurutma işlemi sırasında topaklanmış olması ihtimali de deney sonuçlarını bu şekilde etkileyebilir.

Çizelge 4.9 ve Çizelge 4.10'da pH=4 ve T=25°C'de indirgenen platinin sırasıyla dekantasyon sonrası arta kalan çözelti ve saf su içerisindeki zeta potansiyeli ölçümleri verilmektedir.

Çizelge 4.9 Hidrazin ile pH=4 ve T=25°C'de indirgenen platin partiküllerinin dekantasyon sonrası arta kalan çözelti içerisindeki zeta potansiyeli

Ölçüm	KCps	Mobility ($\mu\text{s}/\text{Vcm}$)	Zeta potansiyeli (mV)	Zaman
1	3044,9	-1,284	-16,2	16:09:07
2	2935,4	-1,401	-17,7	16:09:38
3	2824,7	-1,386	-17,5	16:10:09
4	2792,9	-1,475	-18,6	16:10:41
5	2841,7	-1,429	-18,0	16:11:11
6	2855,9	-1,366	-17,2	16:11:42
7	2706,7	-1,493	-18,8	16:12:13
8	2675,1	-1,407	-17,7	16:12:44
9	2837,4	-1,426	-18,0	16:13:15
10	2733,2	-1,417	-17,9	16:13:46
ortalama	2824,8	-1,408	-17,8	-

Çizelge 4.10 Hidrazin ile pH=4 ve T=25°C’de indirgenen platin partiküllerinin saf su içerisindeki zeta potansiyeli

Ölçüm	KCps	Mobility ($\mu\text{s}/\text{Vcm}$)	Zeta potansiyeli (mV)	Zaman
1	2690,8	-0,111	-1,4	20:24:15
2	2744,4	-0,708	-8,9	20:24:57
3	2746,5	-1,158	-14,6	20:25:40
4	2593,0	-1,013	-12,8	20:26:22
5	2579,9	-1,189	-15,0	20:27:05
6	2580,4	-1,536	-19,4	20:27:47
7	2564,4	-1,183	-14,9	20:28:30
8	2578,0	-1,423	-18,0	20:29:12
9	2628,3	-1,313	-16,6	20:29:55
10	2621,1	-1,869	-23,6	20:30:37
ortalama	2632,7	-1,150	-14,5	-

Çizelge 4.9 ve Çizelge 4.10’daki zeta potansiyeli ölçümleri incelendiğinde T=25°C sıcaklıkta ve pH=4 değerinde elde edilen platin partiküllerinin ortalama zeta potansiyelinin mutlak değeri dekantasyon sonrası arta kalan çözelti içerisinde daha büyük çıkmıştır. Bu da, partikül boyutu küçüldükçe zeta potansiyelinin mutlak değerinin arttığını göstermektedir.

Çizelge 4.11 ve Çizelge 4.12’de, T=25°C sıcaklıkta ve pH=7 değerinde çöktürülen platin partiküllerinin taşıyıcı faz olarak sırasıyla; dekantasyon sonrası arta kalan çözelti ve saf su içerisinde tekrar dağıtılarak yapılan tanecik boyutu analizleri verilmektedir.

Çizelge 4.11 Hidrazin ile pH=7 ve T=25°C’de elde edilen platin partiküllerinin dekantasyon sonrası arta kalan çözelti içerisindeki tanecik boyutu

Ölçüm	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	87,8	90,4	846,5	12:48:06
2	92,6	91,6	1379,5	12:48:46
3	94,7	98,0	1843,5	12:49:25
4	90,6	93,7	998,0	12:50:05
5	107,0	99,7	2249,2	12:50:45
6	96,2	91,2	1741,2	12:51:25
7	96,9	88,5	942,0	12:52:05
8	87,6	92,1	611,9	12:52:45
9	78,2	63,8	310,4	12:53:24

Ölçüm	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	89,6	96,5	722,9	12:54:48
2	99,4	84,7	1393,5	12:55:28
3	72,2	97,0	358,3	12:56:08
4	77,6	90,4	387,9	12:56:47
5	83,3	86,7	606,6	12:57:27
6	73,8	91,8	344,3	12:58:07
7	83,7	47,7	296,4	12:58:47
8	74,9	58,8	293,2	12:59:27
9	79,9	62,0	322,7	13:00:07

Ölçüm	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	72,3	58,1	249,7	13:01:30
2	81,0	74,4	390,7	13:02:10
3	74,0	61,4	261,6	13:02:49
4	75,2	68,6	276,0	13:03:29
5	97,6	94,9	1363,9	13:04:09
6	83,1	64,1	349,1	13:04:49
7	75,0	49,0	251,3	13:05:29
8	69,0	79,7	254,8	13:06:09
9	106,6	32,7	461,8	13:06:49

	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	94,2	-	1564,1	12:54:04
2	82,7	-	692,9	13:00:46
3	80,0	-	575,0	13:07:28
ortalama	85,6	-	944,0	-

Çizelge 4.12 Hidrazin ile pH=7 ve T=25°C’de elde edilen platin partiküllerinin saf su içerisindeki tanecik boyutu

Ölçüm	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	46,6	96,2	1496,3	19:13:01
2	55,4	98,4	17540,2	19:14:02
3	43,7	90,2	1482,0	19:15:03
4	44,6	87,1	2423,0	19:16:04
5	46,6	89,3	2302,3	19:17:04
6	46,7	94,1	1437,6	19:18:05
7	58,1	93,1	5739,7	19:19:06
8	44,8	88,8	1759,4	19:20:07
9	47,6	96,8	1803,7	19:21:08

Ölçüm	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	56,7	93,4	3826,0	19:23:11
2	53,1	94,5	2169,5	19:24:12
3	62,9	88,7	6535,4	19:25:12
4	51,4	91,6	2310,9	19:26:13
5	42,9	97,6	1163,0	19:27:14
6	88,0	94,2	29038,6	19:28:15
7	43,0	93,2	1360,8	19:29:16
8	39,4	88,8	1075,4	19:30:17
9	56,3	88,8	3090,7	19:31:17

Ölçüm	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	51,4	94,2	2554,1	19:33:21
2	47,7	89,9	2523,8	19:34:22
3	44,1	29,3	583,0	19:35:23
4	42,8	94,7	1236,0	19:36:23
5	42,9	89,9	958,8	19:37:24
6	42,1	86,9	1099,9	19:38:25
7	43,0	93,4	1080,4	19:39:26
8	53,5	91,7	3947,1	19:40:26
9	59,1	91,9	6763,1	19:41:27

	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	48,0	-	5256,8	19:21:08
2	49,0	-	2300,8	19:32:18
3	47,8	-	778,8	19:42:28
ortalama	48,3	-	2778,8	-

Çizelge 4.11 ve Çizelge 4.12 incelendiğinde yine beklenenin tersine en küçük tanecik boyutu (944,0 nm) platinin dekantasyon sonrası arta kalan çözelti içerisinde tekrar dağıtılmasıyla elde edilen süspansiyonda görülmüştür. Saf su içerisinde dağıtılan platin partiküllerinin boyutları

(2778,8 nm), dekantasyon sonrası arta kalan çözeltide dağıtılanlara göre oldukça büyüktür. Bu da, T=25°C sıcaklıkta pH=7 değerinde elde edilen platin partiküllerinin çöktürme sonrası kurutma işlemi sırasında topaklanmış olduğunu düşündürmektedir. SEM görüntülerinden anlaşılacağı gibi, belirgin bir platin yapısının pH=7 değerinde de tam olarak elde edilememiş olması deney sonuçlarını olumsuz yönde etkilemiştir.

Çizelge 4.13 ve Çizelge 4.14'te, T=25°C sıcaklıkta ve pH=7 değerinde indirgenen platin partiküllerinin sırasıyla; dekantasyon sonrası arta kalan çözelti ve saf su içerisindeki zeta potansiyeli ölçümleri verilmektedir.

Çizelge 4.13 Hidrazin ile pH=7 ve T=25°C'de indirgenen platin partiküllerinin dekantasyon sonrası arta kalan çözelti içerisindeki zeta potansiyeli

Ölçüm	KCps	Mobility ($\mu\text{s}/\text{Vcm}$)	Zeta potansiyeli (mV)	Zaman
1	1993,2	-2,171	-27,4	13:15:02
2	1969,2	-2,872	-36,2	13:15:41
3	1943,0	-2,963	-37,4	13:16:21
4	1917,7	-3,066	-38,7	13:17:00
5	1922,2	-2,887	-36,4	13:17:40
6	1936,6	-3,065	-38,7	13:18:19
7	1915,6	-2,884	-36,5	13:18:58
8	1947,0	-3,130	-39,5	13:19:38
9	1964,4	-3,001	-37,9	13:20:17
10	1924,1	-3,032	-38,3	13:20:57
ortalama	1943,3	-2,907	-36,7	-

Çizelge 4.14 Hidrazin ile pH=7 ve T=25°C'de indirgenen platin partiküllerinin saf sudaki zeta potansiyeli

Ölçüm	KCps	Mobility ($\mu\text{s}/\text{Vcm}$)	Zeta potansiyeli (mV)	Zaman
1	2233,1	-2,251	-28,4	14:03:35
2	2132,4	-2,355	-29,7	14:04:27
3	2209,8	0,103	1,3	14:05:18
4	2199,2	-3,609	-45,5	14:06:10
5	2130,6	-0,147	-1,9	14:07:01
6	2142,1	-0,414	-5,2	14:07:53
7	2125,5	-1,899	-24,0	14:08:44
8	2156,4	-1,238	-15,6	14:09:36
9	2155,5	-3,809	-48,1	14:10:27
10	2174,2	-0,800	-10,1	14:11:19
ortalama	2165,9	-1,642	-20,7	-

Bilindiği gibi, zeta potansiyeli taneler arasındaki itme veya çekme kuvvetinin bir ölçümüdür ve partikül boyutu küçüldükçe zeta potansiyelinin mutlak değeri artar. Çizelge 4.13 ve

Çizelge 4.14'te zeta potansiyeli ölçümleri incelendiğinde $T=25^{\circ}\text{C}$ sıcaklıkta ve $\text{pH}=7$ değerinde elde edilen platin partiküllerinin ortalama zeta potansiyelinin mutlak değeri dekantasyon sonrası arta kalan çözelti içerisinde daha büyük çıkmıştır. $T=25^{\circ}\text{C}$ ve $\text{pH}=7$ değerleri için yapılan deneylerde en küçük partikül boyutu dekantasyon sonrası arta kalan çözelti içerisinde elde edildiğinden dolayı, zeta potansiyelinin dekantasyon sonrası arta kalan çözelti içerisinde daha büyük çıkması beklenen bir sonuçtur. Yüklü platin taneciklerinin dekantasyon sonrası arta kalan çözelti içerisindeki diğer iyonlarla etkileşim halinde bulunmaları, dekantasyon sonrası arta kalan çözelti içerisindeki zeta potansiyelinin artmasına neden olmuştur.

Çizelge 4.15 ve Çizelge 4.16'da $T=25^{\circ}\text{C}$ sıcaklıkta ve $\text{pH}=10$ değerinde çöktürülen platin partiküllerinin taşıyıcı faz olarak sırasıyla; dekantasyon sonrası arta kalan çözelti ve saf su içerisinde tekrar dağıtılarak yapılan tanecik boyutu analizleri verilmektedir.

Çizelge 4.15 Hidrazin ile pH=10 ve T=25°C’de elde edilen platin partiküllerinin dekantasyon sonrası arta kalan çözelti içerisindeki tanecik boyutu

Ölçüm	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	157,7	93,0	353,7	17:57:21
2	151,6	97,6	353,6	17:58:01
3	147,4	93,5	205,5	17:58:41
4	146,8	86,3	198,9	17:59:21
5	151,0	97,7	222,1	18:00:01
6	148,6	96,9	215,3	18:00:41
7	148,4	96,9	200,5	18:01:20
8	152,1	99,3	248,4	18:02:00
9	154,0	75,2	203,4	18:02:40

Ölçüm	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	148,9	95,0	204,5	18:04:01
2	145,4	93,8	192,9	18:04:41
3	153,3	98,2	221,2	18:05:21
4	144,5	99,3	190,4	18:06:01
5	146,8	92,5	199,8	18:06:41
6	148,5	88,3	192,9	18:07:21
7	154,2	81,3	199,0	18:08:00
8	149,7	85,3	193,8	18:08:40
9	145,2	89,3	190,4	18:09:20

Ölçüm	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	147,7	75,0	187,3	18:10:41
2	146,6	90,7	187,2	18:11:21
3	150,9	82,0	197,0	18:12:01
4	141,5	93,2	181,1	18:12:41
5	145,1	92,6	184,3	18:13:20
6	153,2	83,9	190,0	18:14:00
7	163,6	37,0	191,0	18:14:40
8	171,0	56,8	219,0	18:15:20
9	155,8	70,8	204,3	18:16:00

	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	150,3	-	247,6	18:03:20
2	146,8	-	198,6	18:10:00
3	148,7	-	193,0	18:16:40
ortalama	148,6	-	213,1	-

Çizelge 4.16 Hidrazin ile pH=10 ve T=25°C’de elde edilen platin partiküllerinin saf su içerisindeki tanecik boyutu

Ölçüm	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	147,5	90,4	430,1	18:34:06
2	154,5	92,0	525,2	18:34:46
3	158,9	94,0	561,0	18:35:26
4	149,0	94,5	606,7	18:36:05
5	147,2	89,2	764,8	18:36:45
6	159,6	95,1	615,2	18:37:25
7	145,6	92,6	513,2	18:38:05
8	181,0	96,1	3857,4	18:38:45
9	138,3	94,6	464,7	18:39:24

Ölçüm	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	154,6	62,0	409,1	18:40:48
2	149,6	92,4	592,5	18:41:28
3	144,0	91,8	438,8	18:42:08
4	147,3	95,7	558,5	18:42:47
5	149,3	94,4	889,3	18:43:27
6	138,8	91,5	394,4	18:44:07
7	143,9	50,7	349,8	18:44:47
8	169,4	95,7	1693,7	18:45:27
9	142,7	94,8	398,0	18:46:07

Ölçüm	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	154,3	49,0	401,2	18:47:30
2	150,7	90,6	821,0	18:48:10
3	139,3	63,6	358,4	18:48:49
4	147,7	94,6	653,0	18:49:29
5	175,8	39,2	462,7	18:50:09
6	129,9	75,0	318,9	18:50:49
7	145,1	76,4	351,2	18:51:29
8	137,2	72,5	334,1	18:52:09
9	134,2	70,9	368,0	18:52:49

	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	149,0	-	573,8	18:40:04
2	146,7	-	695,0	18:46:46
3	139,8	-	404,2	18:53:28
ortalama	145,2	-	557,7	-

Çizelge 4.15 ve Çizelge 4.16 incelendiğinde en küçük tanecik boyutu (213,1 nm), pH=4 ve pH=7 değerlerinde elde ettiğimiz deney sonuçlarında olduğu gibi, yine beklenenin tersine platinin dekantasyon sonrası arta kalan çözelti içerisinde tekrar dağıtılmasıyla elde edilen süspansiyonda görülmüştür. Saf su içerisinde dağıtılmış olan platin partiküllerinin boyutları

(557,7 nm), dekantasyon sonrası arta kalan çözeltide dağıtılmış olanlarla kıyaslandığında; aralarında pH=7 değerinde elde ettiğimiz sonuçlarda olduğu kadar büyük farklılıklar olmadığı gözükmemektedir. Zetasizer cihazı büyük partikülleri ölçmeye daha meyilli olduğundan dolayı, süspansiyon içerisindeki küçük partiküller yerine büyük olanları tercih etmektedir. Dekantasyon sonrası arta kalan çözelti ve saf su içerisinde dağıtılan platin partiküllerinin boyut analizlerinin birbirine yakın olması, elde edilen platin partiküllerinin boyut dağılımının artık daha dar bir aralık içerisinde kaldığını göstermektedir. pH=10 değerinde yapılan deneylerde elde edilen platin partiküllerinin boyut dağılımı homojenleşmeye başladığı gibi, kristal yapıları da artık fark edilebilir şekilde belirginleşmiştir.

Çizelge 4.17 ve Çizelge 4.18’de T=25°C sıcaklıkta ve pH=10 değerinde indirgenen platin partiküllerinin sırasıyla; dekantasyon sonrası arta kalan çözelti ve saf su içerisindeki zeta potansiyeli ölçümleri verilmektedir.

Çizelge 4.17 Hidrazin ile pH=10 ve T=25°C’de indirgenen platin partiküllerinin dekantasyon sonrası arta kalan çözelti içerisindeki zeta potansiyeli

Ölçüm	KCps	Mobility ($\mu\text{s}/\text{Vcm}$)	Zeta potansiyeli (mV)	Zaman
1	1835,1	-3,063	-38,7	18:22:27
2	1849,8	-4,841	-61,1	18:23:02
3	1829,1	-4,784	-60,3	18:23:37
4	1837,7	-4,531	-57,1	18:24:12
5	1819,5	-4,838	-61,0	18:24:47
6	1856,7	-4,613	-58,2	18:25:22
7	1847,6	-4,666	-58,9	18:25:57
8	1843,8	-4,854	-61,2	18:26:32
9	1852,8	-5,575	-70,3	18:27:06
10	1862,7	-4,978	-62,8	18:27:41
ortalama	1843,5	-4,674	-59,0	-

Çizelge 4.18 Hidrazin ile pH=10 ve T=25°C’de indirgenen platin partiküllerinin saf su içerisindeki zeta potansiyeli

Ölçüm	KCps	Mobility ($\mu\text{s}/\text{Vcm}$)	Zeta potansiyeli (mV)	Zaman
1	2731,9	-6,790	-85,6	18:57:31
2	2553,4	-5,475	-69,1	18:58:02
3	2678,4	-5,855	-73,8	18:58:33
4	2564,2	-6,571	-82,9	18:59:05
5	2669,6	-5,835	-73,6	18:59:36
6	2727,3	-5,989	-75,6	19:00:07
7	2582,1	-6,178	-77,9	19:00:38
8	2633,6	-7,097	-89,6	19:01:10
9	2540,9	-5,817	-73,4	19:01:41
10	2647,4	-6,314	-79,6	19:02:12
ortalama	2632,9	-6,192	-78,1	-

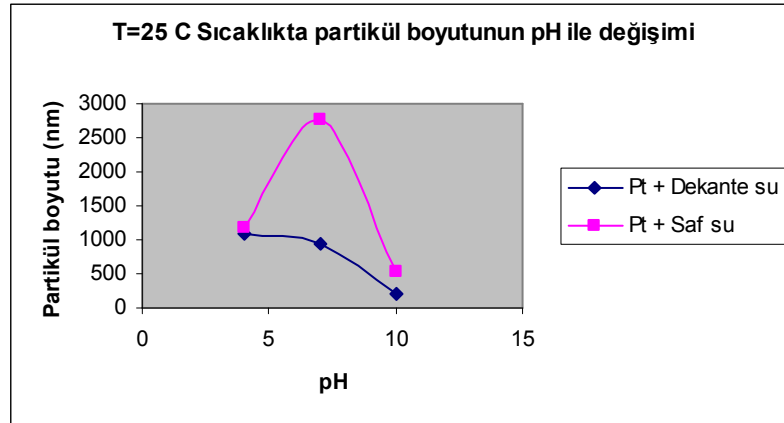
Çizelge 4.17 ve Çizelge 4.18’de zeta potansiyeli ölçümleri incelendiğinde T=25°C sıcaklıkta ve pH=10 değerinde elde edilen platin partiküllerinin ortalama zeta potansiyelinin mutlak değeri saf su içerisinde daha büyük çıkmıştır. Partikül boyutu küçüldükçe zeta potansiyelinin mutlak değeri arttığından dolayı, dekantasyon sonrası arta kalan çözelti içerisinde elde edilen zeta potansiyeli mutlak değerinin daha büyük olması beklenmekteydi. Beklenmeyen bu sonuç, Zetasizer cihazının süspansiyon içerisinde asılı partiküllerden büyük boyutta olanları ölçmeye yatkın olmasıyla açıklanabilir. Saf su içerisinde zeta potansiyelinin yüksek olması, süspansiyon içerisinde çoğunlukla küçük partiküllerin olduğunu göstermektedir. Fakat süspansiyon içerisinde yer alan büyük boyuttaki platin partikülleri cihaz tarafından ölçülerek, ortalama partikül boyutunu analizimizi olumsuz yönde etkilemiştir.

Çizelge 4.19’da, T=25°C’de farklı pH değerlerinde elde edilen platinin dekantasyon sonrası arta kalan çözelti ve saf su içerisindeki partikül boyutları ayrı ayrı gösterilmektedir.

Çizelge 4.19 T=25°C’de farklı pH değerlerinde elde edilen platin partikül boyutları

Partikül Boyutu Analizi (nm)		
T=25°C		
pH=4	Pt+D	1100
	Pt+Su	1174
pH=7	Pt+D	944
	Pt+Su	2778
pH=10	Pt+D	213
	Pt+Su	557

T=25°C sıcaklıkta, pH değişimlerinin platin partikül boyutu üzerine etkisi Şekil 4.6’da, dekantasyon sonrası arta kalan çözelti ve saf su içerisinde yapılan analizler için ayrı ayrı gösterilmektedir.

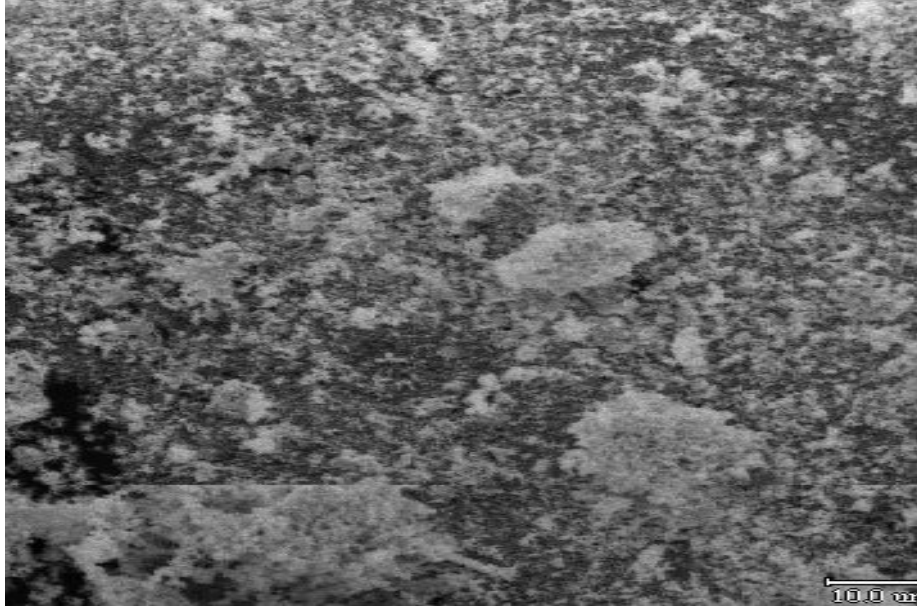


Şekil 4.6 T=25°C sıcaklıkta, pH değişiminin partikül boyutu üzerine etkisi

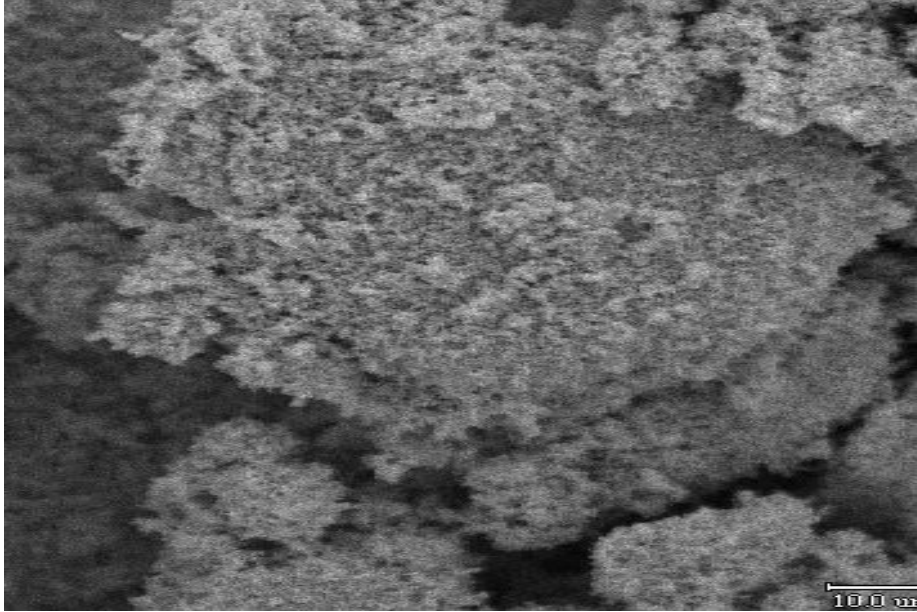
Şekil 4.6 incelendiğinde, genel olarak pH değerinin artmasıyla platin partikül boyutunun küçüldüğü söylenebilir. Saf su içerisindeki platin partikül boyutunun pH=7 değerinde ani bir şekilde artması ise kurutma sırasında topaklanma olması ve cihazın süspansiyon içerisindeki en büyük partikülleri ölçmeye meyilli olmasıyla açıklanabilir. pH=7 değerinde elde edilen platin partiküllerinin geniş bir boyut aralığına sahip olması küçük partiküllerin ölçülmesini engellemektedir.

Şekil 4.7 ve Şekil 4.8’de T=40°C sıcaklıkta, sırasıyla pH=4 ve pH=7 değerlerinde elde edilen platin partiküllerinin 1000 X büyütme ile SEM görüntüleri verilmektedir. Şekil 4.9 ve

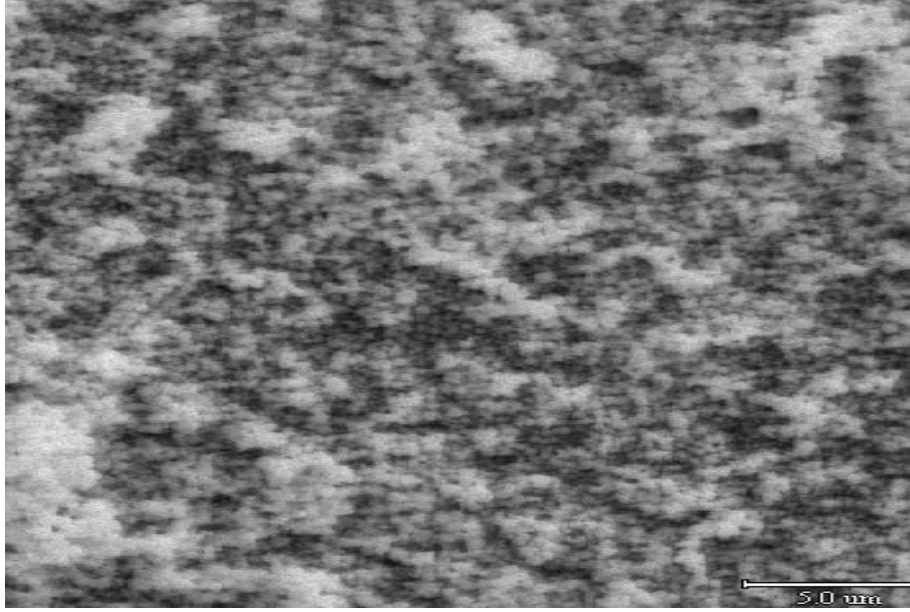
Şekil 4.10'da ise $T=40^{\circ}\text{C}$ sıcaklıkta, $\text{pH}=10$ değerinde elde edilen platin partiküllerinin sırasıyla 3500 X ve 7500 X büyütme ile SEM görüntüleri verilmektedir.



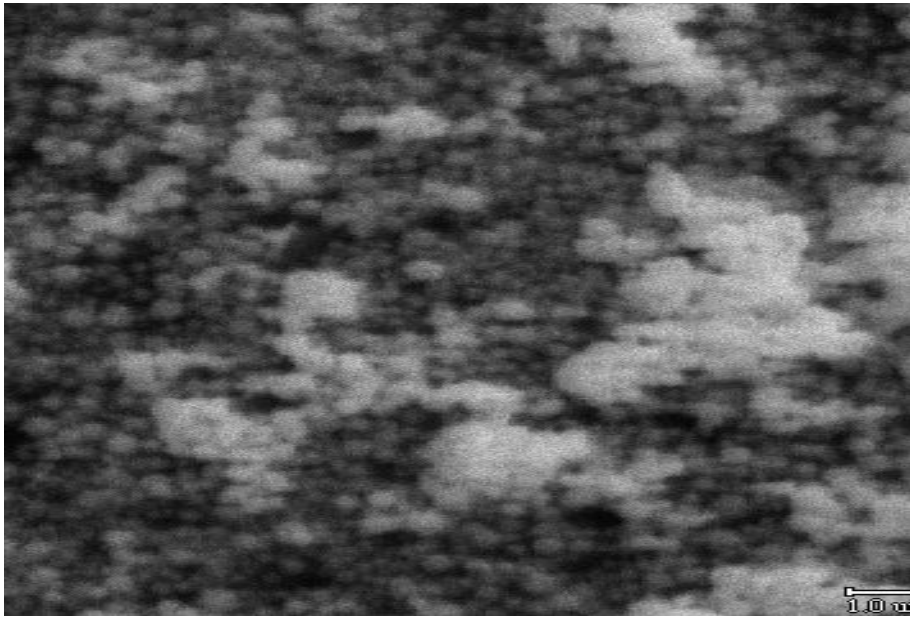
Şekil 4.7 Hidrazin ile $\text{pH}=4$ ve $T=40^{\circ}\text{C}$ sıcaklıkta elde edilen platin partikülleri



Şekil 4.8 Hidrazin ile $\text{pH}=7$ ve $T=40^{\circ}\text{C}$ sıcaklıkta elde edilen platin partikülleri



Şekil 4.9 Hidrazin ile pH=10 ve T=40°C sıcaklıkta elde edilen platin partikülleri



Şekil 4.10 Hidrazin ile pH=10 ve T=40°C sıcaklıkta elde edilen platin partikülleri

Şekil 4.7, Şekil 4.8, Şekil 4.9 ve Şekil 4.10 incelendiğinde pH değeri arttıkça platin partikül boyutunun küçüldüğü görülmüştür. T=25°C’de elde edilen platin partiküllerinin SEM görüntüleri ile karşılaştırıldığında, sıcaklığın artırılmasının platin partiküllerinin yapısını olumlu yönde etkilediği görülmektedir. Her iki sıcaklık değeri için de pH=10 değerinde elde edilen platin partiküllerinin SEM görüntüleri incelendiğinde; T=40°C’de platin partikül yapısının kübik bir hal aldığı, platin partikül boyutu dağılımının da homojenleştiği görülmektedir.

Çizelge 4.20 ve Çizelge 4.21’de, T=40°C sıcaklıkta ve pH=4 değerinde çöktürülen platin partiküllerinin taşıyıcı faz olarak sırasıyla; dekantasyon sonrası arta kalan çözelti ve saf su içerisinde tekrar dağıtılarak yapılan tanecik boyutu analizleri verilmektedir.

Çizelge 4.20 Hidrazin ile pH=4 ve T=40°C’de elde edilen platin partiküllerinin dekantasyon sonrası arta kalan çözelti içerisindeki tanecik boyutu

Ölçüm	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	293,5	55,5	755,6	14:46:13
2	292,0	84,9	952,4	14:46:47
3	243,0	91,7	803,2	14:47:22
4	284,5	87,2	1235,1	14:47:58
5	315,4	87,4	1567,1	14:48:32
6	281,7	57,3	820,9	14:49:08
7	243,6	77,5	907,9	14:49:43
8	305,9	82,4	1248,8	14:50:17
9	313,1	90,5	1107,9	14:50:52

Ölçüm	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	301,9	91,5	1016,6	14:52:05
2	254,8	90,1	1078,8	14:52:41
3	266,6	87,4	980,4	14:53:14
4	299,1	87,9	1446,2	14:53:50
5	282,3	81,3	1053,6	14:54:25
6	289,7	92,1	1165,7	14:54:59
7	317,1	82,8	1140,0	14:55:35
8	277,0	82,1	1166,6	14:56:08
9	287,8	83,7	1054,9	14:56:44

Ölçüm	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	288,3	92,0	1027,6	14:57:57
2	249,1	89,3	831,0	14:58:32
3	260,3	80,8	1355,9	14:59:06
4	322,9	93,4	1136,4	14:59:42
5	305,4	98,9	1168,7	15:00:17
6	308,0	89,2	1472,4	15:00:51
7	255,4	94,6	1358,1	15:01:27
8	254,0	92,2	1179,3	15:02:02
9	287,4	85,0	1014,4	15:02:36

	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	296,5	-	1192,9	14:51:28
2	287,4	-	1075,0	14:57:20
3	279,2	-	1060,3	15:03:12
ortalama	287,7	-	1109,4	-

Çizelge 4.21 Hidrazin ile pH=4 ve T=40°C’de elde edilen platin partiküllerinin saf su içerisindeki tanecik boyutu

Ölçüm	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	222,5	94,7	357,3	15:31:52
2	221,9	97,9	354,7	15:32:28
3	220,7	91,9	341,6	15:33:04
4	225,3	94,5	326,4	15:33:39
5	223,8	85,9	329,9	15:34:15
6	228,1	93,6	331,6	15:34:51
7	228,8	97,7	339,8	15:35:26
8	224,0	96,2	321,7	15:36:02
9	224,2	94,7	327,3	15:36:08

Ölçüm	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	221,7	96,1	313,9	15:37:53
2	223,3	97,2	312,7	15:38:28
3	226,2	93,9	312,5	15:39:04
4	226,5	94,7	307,9	15:39:39
5	223,2	97,1	314,1	15:40:15
6	227,7	94,1	313,3	15:40:51
7	230,0	98,4	307,2	15:41:26
8	225,9	95,9	298,9	15:42:02
9	233,7	93,2	317,1	15:42:38

Ölçüm	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	229,6	94,7	315,9	15:43:53
2	224,3	94,7	310,9	15:44:28
3	232,1	95,5	320,1	15:45:04
4	223,9	98,4	306,8	15:45:40
5	223,7	96,8	307,4	15:46:15
6	233,4	97,8	322,4	15:46:51
7	234,0	98,2	311,6	15:47:27
8	236,2	97,7	308,8	15:48:02
9	227,5	96,9	311,9	15:48:38

	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	224,5	-	334,4	15:37:13
2	224,8	-	311,1	15:43:13
3	228,3	-	310,1	15:49:14
ortalama	225,9	-	318,6	-

Çizelge 4.20 ve Çizelge 4.21 incelendiğinde en küçük tanecik boyutu (318,6 nm), platinin saf su içerisinde tekrar dağıtılmasıyla elde edilen süspansiyonda görülmüştür. T=40°C sıcaklıkta ve pH=4 değerinde elde edilen deney sonuçlarında, beklendiği gibi saf su içerisinde dağıtılan

platin taneciklerinin boyutu daha küçük çıkmıştır. Dekantasyon sonrası arta kalan çözelti içerisinde dağıtılmış olan platin partiküllerinin boyutları (1109,4 nm), saf suda dağıtılmış olanlarla kıyaslandığında aralarındaki farklılığın nedeni olarak, dekantasyon sonrası arta kalan çözeltideki iyon konsantrasyonundan dolayı daha büyük boyutta platin partiküllerinin süspansiyonda asılı kalmış olması ya da dekantasyon sonrası arta kalan çözelti içerisindeki platin partiküllerinin saf sudaki kadar iyi dağılmamış olması söylenebilir.

Dekantasyon sonrası arta kalan çözelti, saf suya kıyasla çok fazla iyon içerir ve bu iyonlar da platin partikülleri üzerinde bir etki oluştururlar. Bu iyonlarla etkileşim halindeki platin partikülleri de ölçüm sırasında cihaz tarafından, etraflarındaki bu iyonlarla birlikte algılanırlar ve bu yüzden dekantasyon sonrası arta kalan çözelti içerisindeki ölçüm sonuçları gerçek değerlerden daha büyük elde edilir. Bunun dışında dekantasyon sonrası arta kalan çözeltideki iyonlarla platin moleküllerinin etkileşim halinde olması, büyük boyuttaki partiküllerin dibe çökmesini engeller ve süspansiyon içerisinde büyük partikülleri ölçmeye meyilli zetasizer cihazı tarafından algılanarak yine yanıltıcı sonuçlar elde etmemize neden olur. Saf suda bu etkiler oluşmadığı için bir süre sonra büyük platin partikülleri dibe çökecek, böylelikle süspansiyonda en küçük boyuttaki platin partikülleri asılı kalacaktır.

Deney sonuçları $T=40^{\circ}\text{C}$ sıcaklıkta, $\text{pH}=4$ değerinde elde edilen platin partiküllerinde kurutma sırasında topaklanma olmadığını da göstermektedir. Saf su içerisinde platin partikülleri topaklanmadan iyi bir şekilde dağılmıştır.

Çizelge 4.22 ve Çizelge 4.23'de $T=25^{\circ}\text{C}$ sıcaklıkta ve $\text{pH}=10$ değerinde indirgenen platin partiküllerinin sırasıyla; dekantasyon sonrası arta kalan çözelti ve saf su içerisindeki zeta potansiyeli ölçümleri verilmektedir.

Çizelge 4.22 Hidrazin ile pH=4 ve T=40°C’de indirgenen platin partiküllerinin dekantasyon sonrası arta kalan çözelti içerisindeki zeta potansiyeli

Ölçüm	KCps	Mobility (µs/Vcm)	Zeta potansiyeli (mV)	Zaman
1	2913,2	-1,096	-13,8	15:08:00
2	2750,7	-1,106	-13,9	15:08:30
3	2700,8	-1,200	-15,1	15:09:00
4	2726,4	-1,283	-16,2	15:09:30
5	2697,8	-1,239	-15,6	15:10:00
6	2755,5	-1,246	-15,7	15:10:31
7	2611,7	-1,248	-15,7	15:11:01
8	2687,3	-1,248	-15,7	15:11:31
9	2697,8	-1,224	-15,4	15:12:01
10	2691,6	-1,238	-15,6	15:12:31
ortalama	2723,3	-1,213	-15,3	-

Çizelge 4.23 Hidrazin ile pH=4 ve T=40°C’de indirgenen platin partiküllerinin saf su içerisindeki zeta potansiyeli

Ölçüm	KCps	Mobility (µs/Vcm)	Zeta potansiyeli (mV)	Zaman
1	3970,6	-3,206	-40,5	15:55:40
2	3921,0	-3,384	-42,7	15:56:10
3	4096,2	-3,452	-43,6	15:56:39
4	4345,8	-3,519	-44,4	15:57:09
5	3999,5	-3,460	-43,6	15:57:38
6	4035,2	-3,469	-43,8	15:58:08
7	3896,1	-3,552	-44,8	15:58:38
8	4004,0	-3,568	-45,0	15:59:07
9	3923,3	-3,570	-45,0	15:59:37
10	3945,6	-3,555	-44,9	16:00:06
ortalama	4013,7	-3,473	-43,8	-

Çizelge 4.22 ve Çizelge 4.23’te zeta potansiyeli ölçümleri incelendiğinde T=40°C sıcaklıkta ve pH=4 değerinde elde edilen platin partiküllerinin ortalama zeta potansiyelinin mutlak değeri beklendiği gibi saf su içerisinde daha büyük çıkmıştır. Yüklü platin partiküllerinin etrafını, yüksek polar özellik gösteren su molekülleri ile çevrilmiştir ve bu polar moleküler yapı zeta potansiyelinin artmasına neden olmuştur.

Çizelge 4.24 ve Çizelge 4.25’de T=40°C sıcaklıkta ve pH=7 değerinde çöktürülen platin partiküllerinin taşıyıcı faz olarak sırasıyla; dekantasyon sonrası arta kalan çözelti ve saf su içerisinde tekrar dağıtılarak yapılan tanecik boyutu analizleri verilmektedir.

Çizelge 4.24 Hidrazin ile pH=7 ve T=40°C’de elde edilen platin partiküllerinin dekantasyon sonrası arta kalan çözelti içerisindeki tanecik boyutu

Ölçüm	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	234,8	94,3	1003,6	12:25:46
2	244,7	95,9	1075,7	12:26:22
3	245,6	91,7	988,7	12:26:57
4	243,8	96,3	1009,3	12:27:33
5	249,0	96,6	1116,8	12:28:09
6	234,9	89,8	1038,8	12:28:44
7	215,1	88,8	898,9	12:29:20
8	230,8	92,2	861,4	12:29:56
9	218,8	82,1	816,5	12:30:31

Ölçüm	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	176,4	79,9	696,1	12:31:44
2	196,6	78,8	827,4	12:32:20
3	195,0	81,2	862,7	12:32:56
4	225,7	95,2	962,8	12:33:31
5	216,0	81,1	828,0	12:34:07
6	229,3	80,5	908,6	12:34:43
7	232,2	91,1	1112,8	12:35:18
8	255,5	82,4	893,1	12:35:54
9	264,1	77,3	983,6	12:36:29

Ölçüm	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	205,0	94,1	856,1	12:37:43
2	232,4	80,3	919,9	12:38:18
3	192,2	83,6	767,7	12:38:54
4	192,7	89,2	792,3	12:39:30
5	207,7	78,1	830,6	12:40:05
6	207,8	82,1	925,3	12:40:41
7	198,6	92,9	836,3	12:41:16
8	207,9	92,1	828,4	12:41:52
9	209,8	94,6	876,7	12:42:28

	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	241,4	-	1006,1	12:31:07
2	235,1	-	874,1	12:37:05
3	203,7	-	759,6	12:43:04
ortalama	226,8	-	880,0	-

Çizelge 4.25 Hidrazin ile pH=7 ve T=40°C’de elde edilen platin partiküllerinin saf su içerisindeki tanecik boyutu

Ölçüm	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	522,9	97,0	309,1	13:01:27
2	523,6	97,9	307,4	13:01:59
3	523,6	95,8	300,3	13:02:30
4	522,7	96,8	301,6	13:03:01
5	518,9	97,1	289,4	13:03:33
6	523,8	95,1	301,2	13:04:04
7	525,6	94,5	296,5	13:04:36
8	518,6	99,5	296,4	13:05:07
9	520,1	96,0	289,4	13:05:39

Ölçüm	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	515,5	96,1	294,2	13:06:43
2	523,0	97,2	303,0	13:07:15
3	518,3	96,2	298,1	13:07:46
4	528,6	91,8	298,4	13:08:18
5	520,7	97,2	289,3	13:08:49
6	523,0	96,3	297,4	13:09:21
7	524,1	95,2	294,2	13:09:52
8	522,9	98,7	289,7	13:10:24
9	512,4	98,0	287,5	13:10:55

Ölçüm	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	519,5	95,3	294,8	13:12:00
2	521,9	94,5	285,2	13:12:31
3	519,8	97,1	293,5	13:13:02
4	526,1	97,0	297,4	13:13:34
5	520,9	94,7	293,0	13:14:05
6	534,5	96,6	302,2	13:14:37
7	525,5	95,7	285,7	13:15:08
8	507,9	92,9	279,0	13:15:40
9	525,2	96,3	298,7	13:16:11

	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	523,3	-	299,7	13:06:10
2	519,6	-	289,8	13:11:26
3	525,1	-	290,8	13:16:43
ortalama	522,7	-	293,4	-

Çizelge 4.24 ve Çizelge 4.25 incelendiğinde en küçük tanecik boyutu (293,4 nm), platinin saf su içerisinde tekrar dağılmasıyla elde edilen süspansiyonda görülmüştür. T=40°C sıcaklıkta

ve pH=7 değerinde elde edilen deney sonuçlarında da beklendiği gibi saf su içerisinde dağıtılan platin taneciklerinin boyutu daha küçük çıkmıştır.

Çizelge 4.26 ve Çizelge 4.27’de T=40°C sıcaklıkta ve pH=7 değerinde indirgenen platinin sırasıyla; dekantasyon sonrası arta kalan çözelti ve saf su içerisindeki zeta potansiyeli ölçümleri verilmektedir.

Çizelge 4.26 Hidrazin ile pH=7 ve T=40°C’de indirgenen platin partiküllerinin dekantasyon sonrası arta kalan çözelti içerisindeki zeta potansiyeli

Ölçüm	KCps	Mobility ($\mu\text{s}/\text{Vcm}$)	Zeta potansiyeli (mV)	Zaman
1	4274,4	-4,257	-53,7	12:47:55
2	3490,6	-2,426	-30,6	12:48:24
3	3403,3	-2,506	-31,6	12:48:54
4	3400,0	-2,506	-31,6	12:49:23
5	3667,0	-2,519	-31,8	12:49:52
6	3373,8	-2,600	-32,9	12:50:22
7	3516,3	-2,546	-32,1	12:50:51
8	3508,4	-2,571	-32,4	12:51:20
9	3120,7	-2,529	-31,9	12:51:50
10	3480,4	-2,581	-32,6	12:52:19
ortalama	3523,5	-2,705	-34,1	-

Çizelge 4.27 Hidrazin ile pH=7 ve T=40°C’de indirgenen platin partiküllerinin saf su içerisindeki zeta potansiyeli

Ölçüm	KCps	Mobility ($\mu\text{s}/\text{Vcm}$)	Zeta potansiyeli (mV)	Zaman
1	4019,2	-5,045	-63,6	13:28:09
2	4087,3	-4,252	-53,6	13:28:39
3	4125,9	-3,848	-48,5	13:29:09
4	3876,0	-3,504	-44,2	13:29:39
5	3995,8	-4,083	-51,5	13:30:08
6	3756,9	-3,748	-47,3	13:30:38
7	3835,1	-3,510	-44,3	13:31:08
8	3901,5	-4,193	-52,9	13:31:38
9	3749,8	-3,901	-49,2	13:32:08
10	3996,2	-4,177	-52,7	13:32:38
ortalama	3934,4	-4,026	-50,8	-

Çizelge 4.26 ve Çizelge 4.27’de zeta potansiyeli ölçümleri incelendiğinde T=40°C sıcaklıkta ve pH=7 değerinde elde edilen platin partiküllerinin ortalama zeta potansiyelinin mutlak değeri beklendiği gibi saf su içerisinde daha büyük çıkmıştır.

Çizelge 4.28 ve Çizelge 4.29’da T=40°C sıcaklıkta ve pH=10 değerinde çöktürülen platin partiküllerinin taşıyıcı faz olarak sırasıyla; dekantasyon sonrası arta kalan çözelti ve saf su içerisinde tekrar dağıtılarak yapılan tanecik boyutu analizleri verilmektedir.

Çizelge 4.28 Hidrazin ile pH=10 ve T=40°C’de elde edilen platin partiküllerinin dekantasyon sonrası arta kalan çözelti içerisindeki tanecik boyutu

Ölçüm	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	283,3	95,4	784,1	16:39:27
2	290,8	93,9	792,3	16:40:00
3	302,7	95,2	802,5	16:40:34
4	305,6	96,6	847,2	16:41:07
5	312,0	95,9	809,8	16:41:41
6	328,0	96,8	852,4	16:42:14
7	329,2	90,0	832,0	16:42:48
8	337,0	94,8	874,3	16:43:22
9	348,4	97,4	866,7	16:43:55

Ölçüm	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	357,9	98,6	858,3	16:45:06
2	362,1	95,3	891,2	16:45:40
3	371,9	95,4	952,2	16:46:13
4	377,5	96,3	922,7	16:46:47
5	379,6	94,2	923,7	16:47:20
6	393,4	97,4	958,5	16:47:54
7	399,0	97,2	933,5	16:48:27
8	406,3	95,9	982,0	16:49:01
9	401,0	98,3	934,9	16:49:34

Ölçüm	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	413,3	94,5	990,0	16:50:45
2	422,4	96,7	931,5	16:51:19
3	429,5	96,6	962,3	16:51:52
4	437,8	95,0	962,1	16:52:26
5	424,4	95,9	904,7	16:53:00
6	442,6	98,1	997,6	16:53:33
7	451,0	95,6	1039,7	16:54:07
8	450,9	96,5	1027,3	16:54:40
9	459,6	95,1	989,6	16:55:14

	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	319,0	-	838,8	16:44:29
2	392,8	-	934,2	16:50:08
3	439,8	-	979,4	16:55:47
ortalama	383,9	-	917,5	-

Çizelge 4.29 Hidrazin ile pH=10 ve T=40°C’de elde edilen platin partiküllerinin saf su içerisindeki tanecik boyutu

Ölçüm	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	304,0	95,3	318,9	17:20:24
2	312,6	89,7	321,9	17:20:57
3	325,7	97,2	314,2	17:21:31
4	338,9	95,1	307,0	17:22:04
5	324,7	99,1	314,5	17:22:38
6	308,6	97,4	300,1	17:23:11
7	310,3	98,9	304,1	17:23:45
8	322,8	96,8	315,9	17:24:18
9	320,6	92,6	303,9	17:24:52

Ölçüm	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	329,2	97,7	312,9	17:26:01
2	323,0	95,2	292,3	17:26:34
3	330,1	96,5	307,6	17:27:08
4	323,3	98,4	296,1	17:27:41
5	339,2	98,6	289,7	17:28:15
6	330,4	98,2	301,9	17:28:49
7	339,5	98,7	304,3	17:29:22
8	336,7	96,2	291,7	17:29:56
9	332,4	95,4	289,6	17:30:29

Ölçüm	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	333,5	98,3	298,2	17:31:38
2	323,5	96,0	290,0	17:32:11
3	340,0	99,2	297,2	17:32:45
4	338,2	95,9	291,0	17:33:18
5	332,1	98,0	297,2	17:33:52
6	329,7	98,2	299,3	17:34:26
7	336,0	96,5	309,1	17:34:59
8	335,4	98,6	310,5	17:35:33
9	340,4	96,2	302,2	17:36:06

	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	320,8	-	308,7	17:25:28
2	332,6	-	297,9	17:31:03
3	334,7	-	299,8	17:36:40
ortalama	329,4	-	302,1	-

Çizelge 4.28 ve Çizelge 4.29 incelendiğinde en küçük tanecik boyutu (302,1 nm), platinin saf su içerisinde tekrar dağıtılmasıyla elde edilen süspansiyonda görülmüştür. T=40°C sıcaklıkta pH=10 değerinde elde edilen deney sonuçlarında da beklendiği gibi saf su içerisinde dağıtılan platin taneciklerinin boyutu daha küçük çıkmıştır.

Çizelge 4.30 ve Çizelge 4.31’de T=40°C sıcaklıkta ve pH=10 değerinde indirgenen platinin sırasıyla; dekantasyon sonrası arta kalan çözelti ve saf su içerisindeki zeta potansiyeli ölçümleri verilmektedir.

Çizelge 4.30 Hidrazin ile pH=10 ve T=40°C’de indirgenen platin partiküllerinin dekantasyon sonrası arta kalan çözelti içerisindeki zeta potansiyeli

Ölçüm	KCps	Mobility (µs/Vcm)	Zeta potansiyeli (mV)	Zaman
1	4991,8	-1,922	-24,2	17:04:38
2	5307,2	-2,263	-28,5	17:05:08
3	4960,6	-2,164	-27,3	17:05:37
4	5212,7	-2,264	-28,5	17:06:07
5	4955,4	-2,294	-28,9	17:06:37
6	5267,0	-2,226	-28,0	17:07:06
7	5004,1	-2,222	-28,1	17:07:36
8	5212,6	-2,200	-27,8	17:08:05
9	4838,0	-2,272	-28,7	17:08:35
10	5629,9	-2,247	-28,3	17:09:05
ortalama	5137,9	-2,207	-27,8	-

Çizelge 4.31 Hidrazin ile pH=10 ve T=40°C’de indirgenen platin partiküllerinin saf su içerisindeki zeta potansiyeli

Ölçüm	KCps	Mobility (µs/Vcm)	Zeta potansiyeli (mV)	Zaman
1	4287,5	-3,551	-44,8	17:40:17
2	4282,0	-3,365	-42,4	17:40:46
3	4161,7	-3,460	-43,6	17:41:15
4	4188,7	-3,493	-44,0	17:41:45
5	4378,5	-4,290	-54,1	17:42:14
6	4360,2	-3,469	-43,7	17:42:43
7	4225,1	-3,467	-43,7	17:43:13
8	4217,2	-3,561	-45,0	17:43:42
9	4215,1	-3,609	-45,5	17:44:11
10	4258,6	-3,700	-46,7	17:44:41
ortalama	4257,5	-3,597	-45,4	-

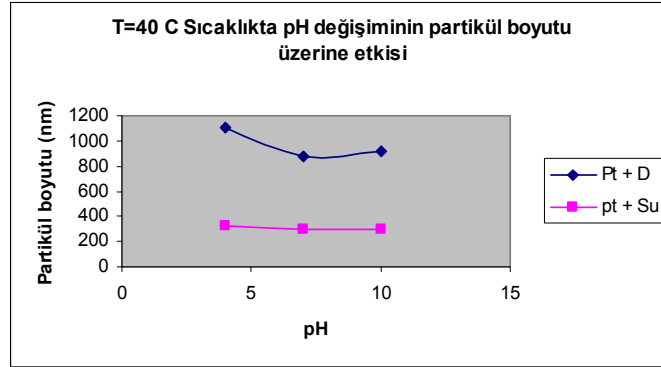
Çizelge 4.30 ve Çizelge 4.31’de zeta potansiyeli ölçümleri incelendiğinde T=40°C sıcaklıkta ve pH=10 değerinde, platin partiküllerinin ortalama zeta potansiyelinin mutlak değeri beklendiği gibi saf su içerisinde daha büyük çıkmıştır.

Çizelge 4.32’de, T=40°C’de farklı pH değerlerinde elde edilen platinin dekantasyon sonrası arta kalan çözelti ve saf su içerisindeki partikül boyutları ayrı ayrı gösterilmektedir.

Çizelge 4.32 T=40°C’de farklı pH değerlerinde elde edilen platin partikül boyutları

Partikül Boyutu Analizi (nm)		
T=40°C		
pH=4	Pt+D	1109
	Pt+Su	318
pH=7	Pt+D	880
	Pt+Su	293
pH=10	Pt+D	917
	Pt+Su	302

T=40°C sıcaklıkta, pH değişimlerinin platin partikül boyutu üzerine etkisi Şekil 4.11’de, dekantasyon sonrası arta kalan çözelti ve saf su içerisinde yapılan analizler için ayrı ayrı gösterilmektedir.

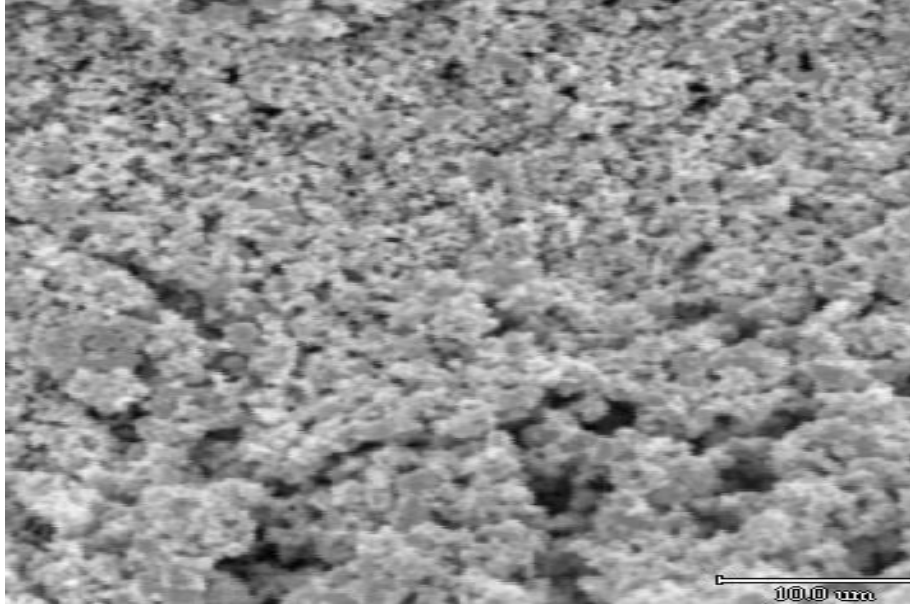


Şekil 4.11 T=40°C sıcaklıkta, pH değişiminin partikül boyutu üzerine etkisi

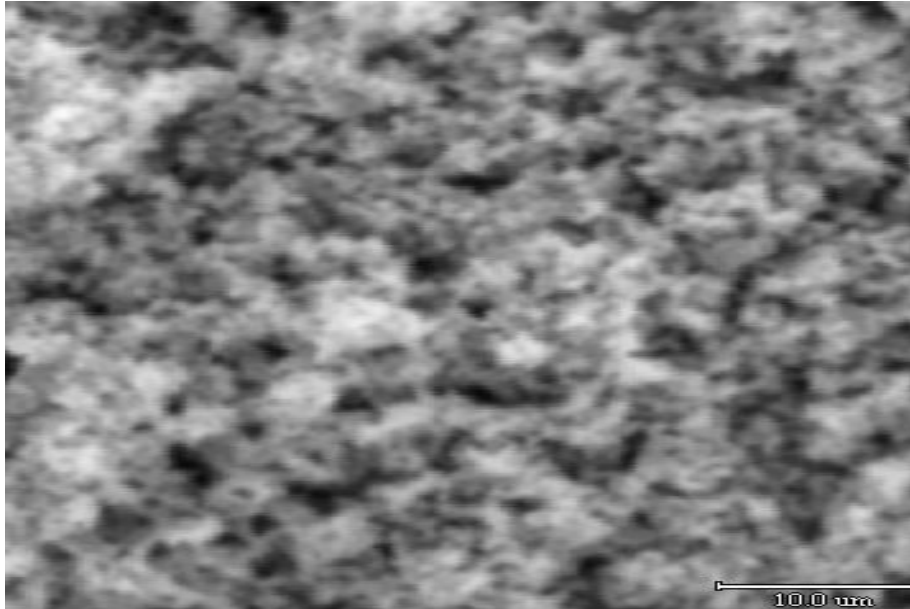
Şekil 4.11 incelendiğinde, T=40°C sıcaklıkta genel olarak pH değerinin artmasıyla platin partikül boyutunun pek değişmediği söylenebilir. Saf su içerisindeki platin partikül boyutunun pH değişimine karşı son derece kararlı olduğu grafikte görülmektedir. Dekantasyon sonrası arta kalan çözelti içerisindeki partikül boyutlarının daha büyük olması ise, dekantasyon sonrası arta kalan çözelti içerisindeki iyonların platin partikülleri üzerine uyguladığı iyonik kuvvetlerden kaynaklanmaktadır. Elde edilen platin partikülleri oldukça aktif bir halde bulduklarından dolayı etraflarındaki bir çok iyon ile etkileşim halindedirler. Bu da partikül boyutlarının, ölçüm sırasında etraflarındaki iyonlarla birlikte ve olduklarından daha büyük

boyutta algılanmalarına neden olur. Aynı zamanda, platin partiküllerinin etraflarındaki iyonlarla etkileşim halinde bulunmaları büyük partiküllerin çökmesini de engelleyecektir.

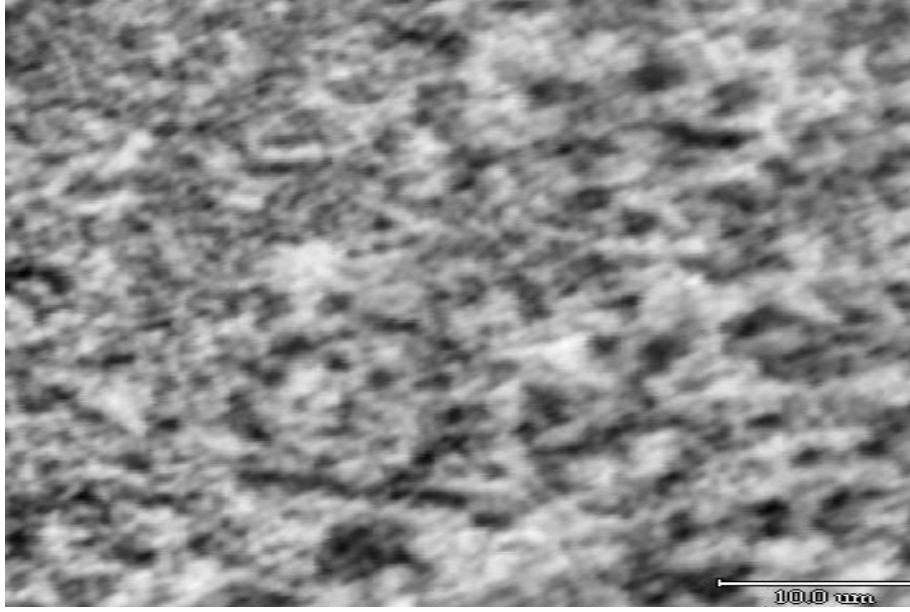
Şekil 4.12, Şekil 4.13 ve Şekil 4.14'te $T=50^{\circ}\text{C}$ sıcaklıkta sırasıyla; $\text{pH}=4$, $\text{pH}=7$ ve $\text{pH}=10$ değerlerinde elde edilen platin partiküllerinin 2000 X büyütme ile SEM görüntüleri verilmektedir.



Şekil 4.12 Hidrazinle $\text{pH}=4$ ve $T=50^{\circ}\text{C}$ sıcaklıkta elde edilen platin partikülleri



Şekil 4.13 Hidrazinle $\text{pH}=7$ ve $T=50^{\circ}\text{C}$ sıcaklıkta elde edilen platin partikülleri



Şekil 4.14 Hidrazinle pH=10 ve T=50°C sıcaklıkta elde edilen platin partikülleri

Şekil 4.12, Şekil 4.13 ve Şekil 4.14 incelendiğinde T=50°C sıcaklıkta da elde edilen platin partiküllerinin boyutunun pH değeri arttıkça küçüldüğü görülmüştür. Ayrıca, taramalı elektron mikroskopunda (SEM) görüntüleri oluşturmak için ışık yerine elektronlar kullanıldığından dolayı; T=50°C sıcaklıkta elde edilen SEM görüntülerinin net değil de bulanık elde edilmiş olması, bu sıcaklıkta elde edilen platin partiküllerinin iletkenliğinin T=40°C sıcaklıkta elde edilen platin partiküllerinin iletkenliğine kıyasla daha kötü olduğunu düşündürmektedir.

Çizelge 4.33 ve Çizelge 4.34'te T=50°C sıcaklıkta ve pH=4 değerinde çöktürülen platin partiküllerinin taşıyıcı faz olarak sırasıyla; dekantasyon sonrası arta kalan çözelti ve saf su içerisinde tekrar dağıtılarak yapılan tanecik boyutu analizleri verilmektedir.

Çizelge 4.33 Hidrazin ile pH=4 ve T=50°C’de elde edilen platin partiküllerinin dekantasyon sonrası arta kalan çözelti içerisindeki tanecik boyutu

Ölçüm	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	422,8	96,6	3463,8	17:34:50
2	356,2	88,8	3511,5	17:35:20
3	430,2	93,3	5794,7	17:35:49
4	353,5	85,9	3101,6	17:36:18
5	371,8	90,6	3328,4	17:36:48
6	336,8	94,9	2895,5	17:37:17
7	329,3	87,2	2816,1	17:37:46
8	357,5	91,2	4996,5	17:38:16
9	329,4	87,7	2871,3	17:38:45

Ölçüm	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	393,6	95,0	4211,5	17:39:48
2	370,7	98,0	3871,9	17:40:18
3	299,5	92,0	3036,3	17:40:49
4	294,5	87,8	2943,6	17:41:18
5	270,3	93,6	2181,5	17:41:47
6	321,1	92,1	4636,9	17:42:17
7	289,1	93,1	5509,5	17:42:46
8	209,8	96,2	2089,6	17:43:16
9	203,9	87,0	2099,7	17:43:45

Ölçüm	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	224,4	80,5	1639,4	17:44:48
2	267,0	93,7	2239,2	17:45:17
3	233,2	88,0	1649,9	17:45:49
4	185,4	86,9	1132,7	17:46:18
5	206,9	92,4	1461,6	17:46:48
6	184,3	95,3	1156,3	17:47:17
7	197,7	87,6	1815,3	17:47:46
8	206,3	91,1	1596,7	17:48:16
9	185,8	89,7	1818,1	17:48:45

	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	373,6	-	3804,8	17:39:14
2	282,2	-	3100,7	17:44:14
3	210,1	-	1692,6	17:49:14
ortalama	288,6	-	2866	-

Çizelge 4.34 Hidrazin ile pH=4 ve T=50°C’de elde edilen platin partiküllerinin saf su içerisindeki tanecik boyutu

Ölçüm	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	337,5	92,5	1497,6	18:04:12
2	396,9	90,6	2599,5	18:04:43
3	320,2	92,7	1427,8	18:05:15
4	336,9	85,4	1557,1	18:05:46
5	313,8	90,8	1366,7	18:06:18
6	342,5	93,8	1458,3	18:06:49
7	352,7	90,4	1641,1	18:07:21
8	324,9	99,0	1451,4	18:07:52
9	295,7	88,4	1473,4	18:08:24

Ölçüm	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	305,3	96,1	1310,8	18:09:31
2	307,0	95,6	1439,4	18:10:02
3	263,2	85,8	1069,3	18:10:34
4	250,3	87,3	1049,9	18:11:05
5	286,7	93,7	1489,1	18:11:37
6	204,5	88,9	741,1	18:12:08
7	259,6	92,3	1001,9	18:12:40
8	208,4	87,2	1213,2	18:13:11
9	257,5	95,4	1292,2	18:13:43

Ölçüm	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	237,1	95,4	1497,1	18:14:49
2	255,8	94,8	1114,9	18:15:21
3	268,5	89,2	1768,6	18:15:52
4	232,5	96,7	702,0	18:16:27
5	243,6	90,3	1721,2	18:16:55
6	245,2	93,8	886,2	18:17:27
7	244,0	93,7	1122,5	18:17:58
8	223,6	98,6	772,3	18:18:30
9	223,0	87,9	734,0	18:19:01

	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	331,4	-	1522,6	18:08:55
2	276,7	-	1259,5	18:14:14
3	241,7	-	924,1	18:19:33
ortalama	283,3	-	1235,4	-

Çizelge 4.33 ve Çizelge 4.34 incelendiğinde en küçük tanecik boyutu (1235,4 nm), platinin saf su içerisinde tekrar dağıtılmasıyla elde edilen süspansiyonda görülmüştür. T=50°C

sıcaklıkta pH=4 değerinde elde edilen deney sonuçlarında da beklendiği gibi saf su içerisinde dağıtılan platin taneciklerinin boyutu daha küçük çıkmıştır.

Çizelge 4.35 ve Çizelge 4.36’da T=50°C sıcaklıkta ve pH=4 değerinde indirgenen platinin sırasıyla; dekantasyon sonrası arta kalan çözelti ve saf su içerisindeki zeta potansiyeli ölçümleri verilmektedir.

Çizelge 4.35 Hidrazin ile pH=4 ve T=50°C’de indirgenen platin partiküllerinin dekantasyon sonrası arta kalan çözelti içerisindeki zeta potansiyeli

Ölçüm	KCps	Mobility ($\mu\text{s}/\text{Vcm}$)	Zeta potansiyeli (mV)	Zaman
1	1961,7	-1,549	-19,5	17:51:29
2	1650,6	-2,144	-27,0	17:52:09
3	1525,8	-2,199	-27,7	17:52:48
4	1514,3	-1,823	-23,0	17:53:28
5	1624,6	-1,681	-21,2	17:54:08
6	1774,1	-1,434	-18,1	17:54:48
7	1915,1	-1,839	-23,2	17:55:27
8	2012,9	-1,592	-20,1	17:56:07
9	2015,2	-1,245	-15,7	17:56:47
10	2040,6	-1,620	-20,4	17:57:26
ortalama	1803,5	-1,713	-21,6	-

Çizelge 4.36 Hidrazin ile pH=4 ve T=50°C’de indirgenen platin partiküllerinin saf su içerisindeki zeta potansiyeli

Ölçüm	KCps	Mobility ($\mu\text{s}/\text{Vcm}$)	Zeta potansiyeli (mV)	Zaman
1	2204,6	-2,418	-30,5	18:21:42
2	2238,7	-2,877	-36,3	18:22:15
3	2168,7	-2,462	-31,1	18:22:48
4	2224,8	-2,284	-28,8	18:23:21
5	2160,0	-2,320	-29,3	18:23:54
6	2103,0	-2,396	-28,1	18:24:27
7	2069,7	-2,150	-30,2	18:25:00
8	2096,4	-2,144	-27,1	18:25:33
9	2087,3	-2,005	-27,1	18:26:06
10	2080,4	-2,329	-25,3	18:26:39
ortalama	2143,4	-2,338	-29,4	-

Çizelge 4.35 ve Çizelge 4.36’da zeta potansiyeli ölçümleri incelendiğinde T=50°C sıcaklıkta ve pH=4 değerinde elde edilen platin partiküllerinin ortalama zeta potansiyelinin mutlak değeri beklendiği gibi saf su içerisinde daha büyük çıkmıştır.

Çizelge 4.37 ve Çizelge 4.38’de T=50°C sıcaklıkta ve pH=7 değerinde çöktürülen platin partiküllerinin taşıyıcı faz olarak sırasıyla; dekantasyon sonrası arta kalan çözelti ve saf su içerisinde tekrar dağıtılarak yapılan tanecik boyutu analizleri verilmektedir.

Çizelge 4.37 Hidrazin ile pH=7 ve T=50°C’de elde edilen platin partiküllerinin dekantasyon sonrası arta kalan çözelti içerisindeki tanecik boyutu

Ölçüm	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	359,2	0,0	284,0	14:12:31
2	389,6	90,1	2320,7	14:13:04
3	392,2	89,3	2774,0	14:13:38
4	375,7	96,4	1996,4	14:14:11
5	382,3	92,9	2055,9	14:14:45
6	357,7	94,4	1623,2	14:15:18
7	414,9	94,0	3500,6	14:15:52
8	374,6	92,8	1917,3	14:16:25
9	369,7	91,3	2017,9	14:16:59

Ölçüm	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	369,7	0,0	789,8	14:18:08
2	362,6	87,6	1116,4	14:18:42
3	319,8	93,2	1024,2	14:19:15
4	283,5	96,3	989,5	14:19:49
5	260,1	92,9	1704,7	14:20:22
6	250,6	86,1	698,6	14:20:56
7	269,9	88,9	1014,2	14:21:29
8	258,5	91,0	823,4	14:22:03
9	267,3	93,6	777,2	14:22:37

Ölçüm	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	290,5	92,6	825,6	14:23:46
2	261,6	94,0	898,8	14:24:19
3	297,1	93,6	633,9	14:24:53
4	243,1	87,4	849,2	14:25:26
5	292,0	96,6	1006,0	14:26:00
6	288,5	97,1	1074,3	14:26:34
7	282,6	86,7	845,6	14:27:07
8	274,9	89,2	1681,5	14:27:41
9	267,6	89,1	731,2	14:28:14

	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	369,7	-	2267,0	14:17:33
2	281,2	-	1124,9	14:23:10
3	286,0	-	715,8	14:28:48
ortalama	312,3	-	1369,3	-

Çizelge 4.38 Hidrazin ile pH=7 ve T=50°C’de elde edilen platin partiküllerinin saf su içerisindeki tanecik boyutu

Ölçüm	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	386,7	95,6	410,8	14:45:17
2	383,5	91,9	391,1	14:45:48
3	369,9	96,3	376,7	14:46:20
4	889,6	97,3	405,3	14:46:51
5	385,6	97,0	381,5	14:47:23
6	380,4	96,3	375,5	14:47:54
7	393,7	93,0	420,4	14:48:26
8	389,5	97,6	381,2	14:48:57
9	380,7	95,0	353,9	14:50:00

Ölçüm	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	388,5	87,5	369,6	14:50:33
2	378,4	95,8	370,9	14:51:05
3	374,1	90,4	348,0	14:51:36
4	367,4	94,8	359,4	14:52:07
5	369,0	96,1	348,0	14:52:39
6	371,7	97,0	355,2	14:53:10
7	380,2	95,9	342,5	14:53:42
8	376,7	94,2	337,9	14:54:13
9	371,7	96,0	341,7	14:54:45

Ölçüm	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	375,4	92,2	343,7	14:55:49
2	375,0	98,3	339,7	14:56:21
3	364,5	94,6	332,7	14:56:52
4	381,0	97,8	344,1	14:57:23
5	372,8	97,6	336,1	14:57:55
6	365,4	92,3	304,9	14:58:29
7	368,6	90,7	333,1	14:58:59
8	378,2	95,8	334,6	14:59:30
9	380,1	97,6	315,0	15:00:01

	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	384,5	-	386,8	14:50:00
2	373,8	-	354,7	14:55:16
3	378,3	-	342,0	15:00:32
ortalama	378,9	-	361,2	-

Çizelge 4.37 ve Çizelge 4.38 incelendiğinde en küçük tanecik boyutu (361,2 nm), platinin saf su içerisinde tekrar dağıtılmasıyla elde edilen süspansiyonda görülmüştür. T=50°C sıcaklıkta ve pH=7 değerinde elde edilen deney sonuçlarında da beklendiği gibi saf su içerisinde dağıtılan platin taneciklerinin boyutu daha küçük çıkmıştır.

Çizelge 4.39 ve Çizelge 4.40’da T=50°C sıcaklıkta ve pH=7 değerinde indirgenen platinin sırasıyla; dekantasyon sonrası arta kalan çözelti ve saf su içerisindeki zeta potansiyeli ölçümleri verilmektedir.

Çizelge 4.39 Hidrazin ile pH=7 ve T=50°C’de indirgenen platin partiküllerinin dekantasyon sonrası arta kalan çözelti içerisindeki zeta potansiyeli

Ölçüm	KCps	Mobility ($\mu\text{s}/\text{Vcm}$)	Zeta potansiyeli (mV)	Zaman
1	2011,6	3,927	49,5	14:32:30
2	1938,5	-3,677	-46,4	14:33:01
3	1851,7	-3,745	-47,2	14:33:33
4	1853,1	-4,079	-51,4	14:34:04
5	1858,7	-3,858	-48,6	14:34:36
6	1853,2	-3,863	-48,7	14:35:07
7	1861,5	-3,474	-43,8	14:35:39
8	1909,6	-3,456	-43,6	14:36:11
9	1959,7	-3,381	-42,7	14:36:42
10	2023,8	-3,485	-43,9	14:37:14
ortalama	1912,1	-2,909	-36,7	-

Çizelge 4.40 Hidrazin ile pH=7 ve T=50°C’de indirgenen platin partiküllerinin saf su içerisindeki zeta potansiyeli

Ölçüm	KCps	Mobility ($\mu\text{s}/\text{Vcm}$)	Zeta potansiyeli (mV)	Zaman
1	2935,2	-3,512	-44,3	15:03:16
2	3164,0	-4,167	-52,5	15:03:46
3	2907,4	-4,265	-53,8	15:04:16
4	3004,8	-4,440	-56,0	15:04:46
5	2907,3	-4,418	-55,7	15:05:17
6	2825,8	-4,519	-57,0	15:05:47
7	2988,3	-4,598	-58,1	15:06:17
8	2941,1	-4,581	-57,8	15:06:47
9	2817,0	-4,633	-58,4	15:07:17
10	2892,9	-5,044	-63,6	15:07:47
ortalama	2938,4	-4,418	-55,7	-

Çizelge 4.39 ve Çizelge 4.40’da zeta potansiyeli ölçümleri incelendiğinde T=50°C sıcaklıkta ve pH=7 değerinde, platin partiküllerinin ortalama zeta potansiyelinin mutlak değeri beklendiği gibi saf su içerisinde daha büyük çıkmıştır.

Çizelge 4.41 ve Çizelge 4.42’de T=50°C sıcaklıkta ve pH=10 değerinde çöktürülen platin partiküllerinin taşıyıcı faz olarak sırasıyla; dekantasyon sonrası arta kalan çözelti ve saf su içerisinde tekrar dağıtılarak yapılan tanecik boyutu analizleri verilmektedir.

Çizelge 4.41 Hidrazin ile pH=10 ve T=50°C’de elde edilen platin partiküllerinin dekantasyon sonrası arta kalan çözelti içerisindeki tanecik boyutu

Ölçüm	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	292,4	96,5	1085,8	16:19:26
2	293,5	92,7	1263,8	16:19:59
3	283,4	92,7	1302,4	16:20:33
4	303,1	92,7	1474,3	16:21:06
5	291,9	96,8	1356,7	16:21:40
6	286,9	91,9	1240,1	16:22:14
7	288,6	97,1	1274,0	16:22:47
8	292,0	96,6	1365,3	16:23:21
9	278,9	95,2	1325,4	16:23:54

Ölçüm	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	302,4	92,6	1377,0	16:25:05
2	294,3	94,3	1329,1	16:25:39
3	321,1	72,8	1298,8	16:26:14
4	285,9	95,7	1281,1	16:26:48
5	290,4	89,9	1388,2	16:27:21
6	275,6	85,3	1140,4	16:27:55
7	272,6	74,7	1129,7	16:28:28
8	284,5	74,0	1188,1	16:29:02
9	284,6	71,4	1299,3	16:29:35

Ölçüm	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	288,0	78,2	1175,6	16:30:47
2	229,0	97,8	932,0	16:31:21
3	210,6	88,8	1028,4	16:31:54
4	338,4	74,9	1356,4	16:32:28
5	314,6	79,8	1279,2	16:33:01
6	255,7	78,6	1099,0	16:33:35
7	340,0	88,5	1162,1	16:34:08
8	310,2	79,4	1228,5	16:34:42
9	317,2	86,8	1167,3	16:35:15

	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	289,8	-	1210,9	16:24:28
2	289,7	-	1308,6	16:30:09
3	274,2	-	1096,0	16:35:49
ortalama	284,6	-	1205,2	-

Çizelge 4.42 Hidrazin ile pH=10 ve T=50°C’de elde edilen platin partiküllerinin saf su içerisindeki tanecik boyutu

Ölçüm	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	356,6	96,3	642,8	16:49:03
2	364,7	96,4	683,1	16:49:35
3	363,1	96,7	677,1	16:50:06
4	365,7	96,5	687,1	16:50:40
5	369,6	95,3	682,4	16:51:11
6	362,6	96,4	648,2	16:51:43
7	365,2	96,4	672,0	16:52:17
8	369,9	92,3	695,6	16:52:50
9	366,8	94,3	648,0	16:53:21

Ölçüm	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	368,9	93,3	660,7	16:54:30
2	371,0	96,4	649,7	16:55:02
3	371,8	94,0	633,3	16:55:33
4	374,5	93,6	647,6	16:56:05
5	372,0	93,0	655,2	16:56:36
6	366,4	92,1	639,2	16:57:10
7	359,8	97,2	604,1	16:57:43
8	371,4	92,9	634,4	16:58:17
9	374,7	94,5	636,9	16:58:50

Ölçüm	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	351,6	92,8	588,3	16:59:57
2	396,5	91,8	669,6	17:00:29
3	387,7	90,1	619,5	17:01:00
4	370,7	97,7	606,4	17:01:34
5	405,9	99,0	629,0	17:02:07
6	425,4	95,8	658,1	17:02:39
7	388,8	95,1	650,5	17:03:10
8	355,2	98,3	590,7	17:03:44
9	354,1	95,4	579,0	17:04:17

	KCps	% Tanecik dağılımı	Tanecik boyutu (nm)	Zaman
1	363,0	-	661,1	16:53:55
2	368,7	-	632,3	16:59:22
3	383,4	-	624,1	17:04:51
ortalama	371,7	-	639,2	-

Çizelge 4.41 ve Çizelge 4.42 incelendiğinde en küçük tanecik boyutu (639,2 nm), platinin saf su içerisinde tekrar dağıtılmasıyla elde edilen süspansiyonda görülmüştür. T=50°C sıcaklıkta ve pH=10 değerinde elde edilen deney sonuçlarında da beklendiği gibi saf su içerisinde dağıtılan platin taneciklerinin boyutu daha küçük çıkmıştır.

Çizelge 4.43 ve Çizelge 4.44'te T=50°C sıcaklıkta ve pH=10 değerinde indirgenen platinin sırasıyla; dekantasyon sonrası arta kalan çözelti ve saf su içerisindeki zeta potansiyeli ölçümleri verilmektedir.

Çizelge 4.43 Hidrazin ile pH=10 ve T=50°C'de indirgenen platin partiküllerinin dekantasyon sonrası arta kalan çözelti içerisindeki zeta potansiyeli

Ölçüm	KCps	Mobility ($\mu\text{s}/\text{Vcm}$)	Zeta potansiyeli (mV)	Zaman
1	3394,0	-2,862	-36,0	16:38:00
2	3290,0	-3,108	-39,4	16:38:30
3	3309,1	-3,126	-39,5	16:39:01
4	3347,1	-3,263	-41,2	16:39:31
5	3424,0	-3,242	-40,9	16:40:02
6	3363,2	-3,239	-40,9	16:40:32
7	3372,5	-3,209	-39,8	16:41:03
8	3396,2	-3,243	-40,9	16:41:33
9	3400,4	-3,208	-40,5	16:42:03
10	3335,6	-3,197	-40,3	16:42:34
ortalama	3363,2	-3,170	-40,0	-

Çizelge 4.44 Hidrazin ile pH=10 ve T=50°C'de indirgenen platin partiküllerinin saf su içerisindeki zeta potansiyeli

Ölçüm	KCps	Mobility ($\mu\text{s}/\text{Vcm}$)	Zeta potansiyeli (mV)	Zaman
1	4949,3	-3,548	-44,8	17:07:59
2	4861,7	-3,892	-49,2	17:08:28
3	5701,8	-3,946	-49,8	17:08:57
4	5681,8	-4,053	-51,2	17:09:27
5	5460,2	-4,770	-60,4	17:09:56
6	5452,2	-4,190	-52,8	17:10:25
7	5381,3	-4,184	-52,7	17:10:55
8	4663,3	-4,225	-53,3	17:11:24
9	4721,0	-4,347	-54,8	17:11:53
10	4446,9	-4,355	-55,0	17:12:23
ortalama	5131,9	-4,151	-52,4	-

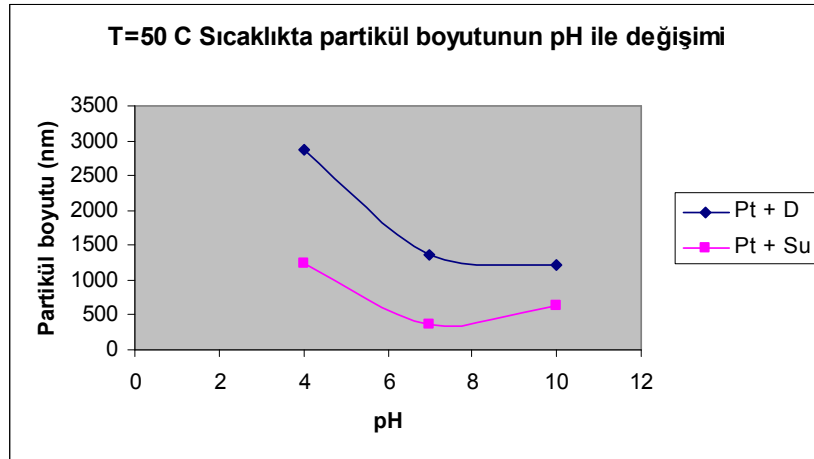
Çizelge 4.43 ve Çizelge 4.44'te zeta potansiyeli ölçümleri incelendiğinde T=50°C sıcaklıkta ve pH=10 değerinde elde edilen platin partiküllerinin ortalama zeta potansiyelinin mutlak değeri beklendiği gibi saf su içerisinde daha büyük çıkmıştır.

Çizelge 4.45'te, T=50°C'de farklı pH değerlerinde elde edilen platinin dekantasyon sonrası arta kalan çözelti ve saf su içerisindeki partikül boyutları ayrı ayrı gösterilmektedir.

Çizelge 4.45 T=50°C’de farklı pH değerlerinde elde edilen platin partikül boyutları

Partikül Boyutu Analizi (nm)		
T=50°C		
pH=4	Pt+D	2866
	Pt+Su	1235
pH=7	Pt+D	1369
	Pt+Su	361
pH=10	Pt+D	1205
	Pt+Su	639

T=50°C sıcaklıkta, pH değişimlerinin platin partikül boyutu üzerine etkisi Şekil 4.15’te, dekantasyon sonrası arta kalan çözelti ve saf su içerisinde yapılan analizler için ayrı ayrı gösterilmektedir.



Şekil 4.15 T=50°C sıcaklıkta, pH değişimlerinin platin partikül boyutu üzerine etkisi

Şekil 4.15 incelendiğinde, genel olarak pH değerinin artmasıyla platin partikül boyutunun pH=7 değerine kadar düştüğü, daha sonra ise arttığı söylenebilir. Dekantasyon sonrası arta kalan çözelti içerisindeki partikül boyutlarının daha büyük olması ise, yine dekantasyon sonrası arta kalan çözelti içerisindeki iyonların platin partikülleri üzerine uyguladığı iyonik kuvvetlerden kaynaklanmaktadır.

Farklı sıcaklık ve pH değerlerinde elde ettiğimiz platin partiküllerinin, taşıyıcı faz olarak dekantasyon sonrası arta kalan çözelti ve saf su içerisinde dağıtılarak ölçülen ortalama tanecik boyutları Çizelge 4.46’da, ortalama zeta potansiyelleri ise Çizelge 4.47’de verilmektedir.

Çizelge 4.46 Farklı sıcaklık ve pH değerlerinde elde edilen Pt partiküllerinin ortalama tanecik boyutu

Tanecik Boyutu Analizi (nm)		T=25°C	T=40°C	T=50°C
pH=4	Pt+D	1100	1109	2866
	Pt+Su	1174	318	1235
pH=7	Pt+D	944	880	1369
	Pt+Su	2778	293	361
pH=10	Pt+D	213	917	1205
	Pt+Su	557	302	639

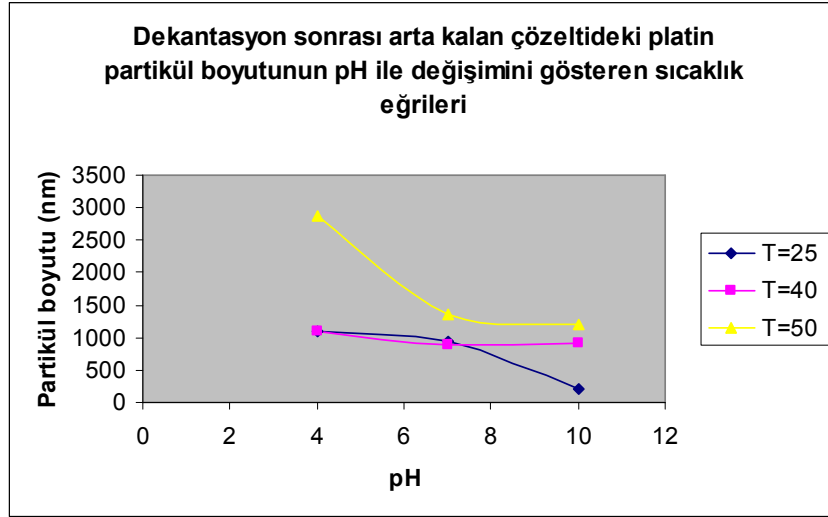
Çizelge 4.47 Farklı sıcaklık ve pH değerlerinde elde edilen Pt partiküllerinin ortalama zeta potansiyelleri

Zeta Potansiyel Analizi (mV)		T=25°C	T=40°C	T=50°C
pH=4	Pt+D	-17,8	-15,3	-21,6
	Pt+Su	-14,5	-43,8	-29,4
pH=7	Pt+D	-36,7	-34,1	-36,7
	Pt+Su	-20,7	-50,8	-55,7
pH=10	Pt+D	-59,0	-27,8	-40,0
	Pt+Su	-78,1	-45,4	-52,4

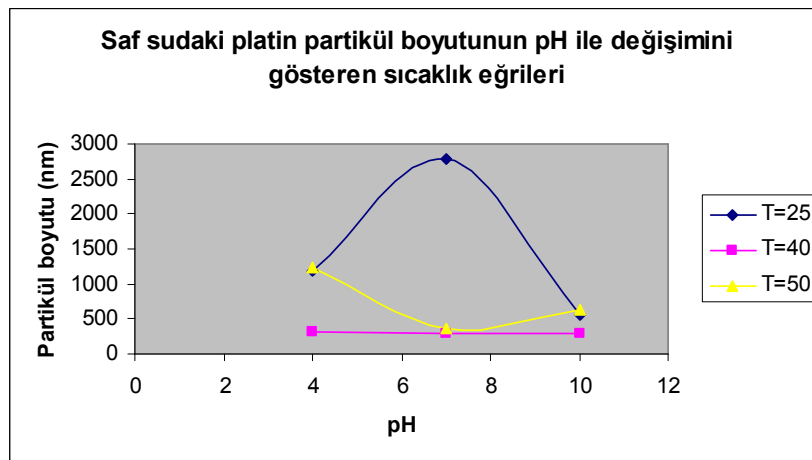
Çizelge 4.46’da görüldüğü gibi T=25°C sıcaklıkta ve pH=10 değerinde, en küçük tanecik boyutu (213 nm) platinin dekantasyon sonrası arta kalan çözelti içerisinde dağıtılmasıyla yapılan analizler sonucunda elde edilmiştir. Fakat SEM görüntüleri incelendiğinde, T=25°C’de elde edilen platin partiküllerinin genel dağılımının kötü olduğu görülmektedir. Platin partikülleri belirgin bir biçimde oluşmadığı gibi, homojen bir dağılıma da sahip değildir. Platin partikül boyutu kadar homojen dağılım da önemli olduğundan, T=25°C’de çalışmanın uygun olmadığı görülmektedir. T=40°C’de yapılan deneylerde her pH değerinde,

beklenildiği gibi en küçük partikül boyutları platinin saf su içerisinde dağıtılmasıyla yapılan ölçümlerde elde edilmiştir. Ayrıca $T=40^{\circ}\text{C}$ 'de yapılan deneylerde farklı pH değerleri için elde edilen ortalama partikül boyutlarının da birbirine çok yakın olduğu görülmektedir. Bu da $T=40^{\circ}\text{C}$ 'de yapılan deneylerde platin partikül yapısının pH değişikliklerine karşı daha kararlı olduğunu göstermektedir. $T=50^{\circ}\text{C}$ 'de elde edilen deney sonuçları, $T=40^{\circ}\text{C}$ 'de elde edilen deney sonuçları ile karşılaştırıldığında ise platin partiküllerinin tekrardan büyümeye başladığı görülmektedir.

Şekil 4.16 ve Şekil 4.17'de sırasıyla; dekantasyon sonrası arta kalan çözelti ve saf su içerisindeki platin partikül boyutunun pH ile değişimi her sıcaklık için ayrı ayrı gösterilmektedir.



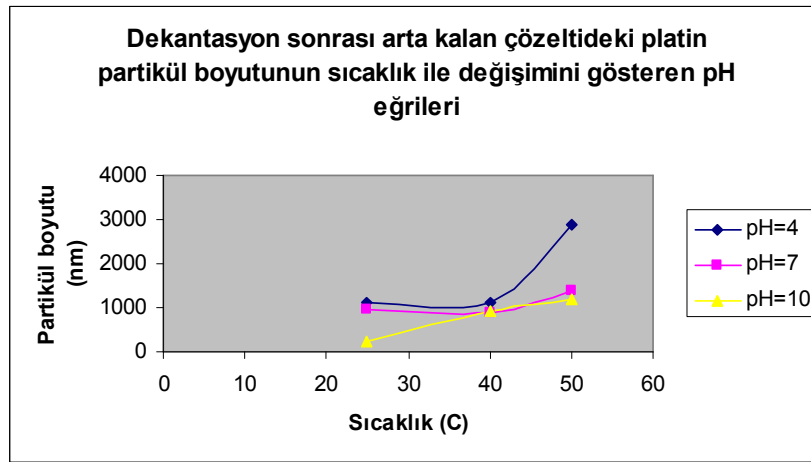
Şekil 4.16 Dekantasyon sonrası arta kalan çözeltideki platin partikül boyutunun pH ile değişimini gösteren sıcaklık eğrileri



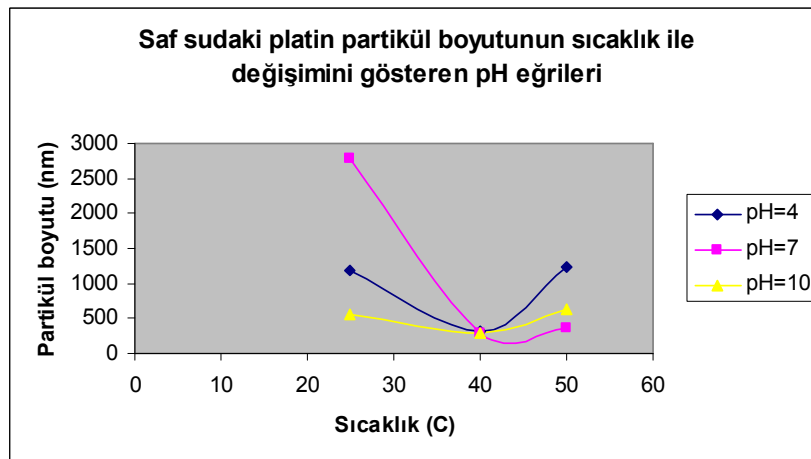
Şekil 4.17 Saf sudaki platin partikül boyutunun pH ile değişimini gösteren sıcaklık eğrileri

Şekil 4.16 ve Şekil 4.17 incelendiğinde, $T=40^{\circ}\text{C}$ 'de platin partiküllerinin küçük boyutta elde edilmeleri, saf su ve dekantasyon sonrası arta kalan çözelti içerisinde benzer ölçüm sonuçları vermeleri ve pH değişimlerine karşı daha kararlı olmaları gibi avantajlarından dolayı, bundan sonraki deneylerimizde çalışma sıcaklığı olarak $T=40^{\circ}\text{C}$ seçilmiştir. Ayrıca bu sıcaklıkta elde edilen platin partiküllerine ait SEM görüntülerinin çok net olması, bu sıcaklıkta elde edilen platin partiküllerinin elektron iletkenliğinin de iyi olduğunu düşündürmektedir. Yine SEM görüntülerinden anlaşılacağı gibi, platin partiküllerinin kübik yapıda ve homojen bir dağılımda elde edilmiş olması çalışma sıcaklığı olarak $T=40^{\circ}\text{C}$ 'nin seçilmiş olmasında son derece etkilidir.

Şekil 4.18 ve Şekil 4.19'da ise sırasıyla; dekantasyon sonrası arta kalan çözelti ve saf su içerisindeki platin partikül boyutlarının sıcaklık ile değişimi her pH değeri için ayrı ayrı gösterilmektedir.



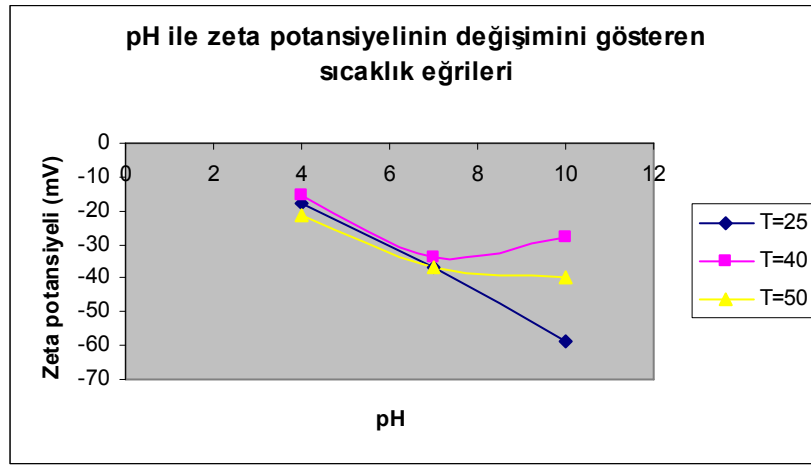
Şekil 4.18 Dekantasyon sonrası arta kalan çözeltideki platin partikül boyutunun sıcaklık ile değişimini gösteren pH eğrileri



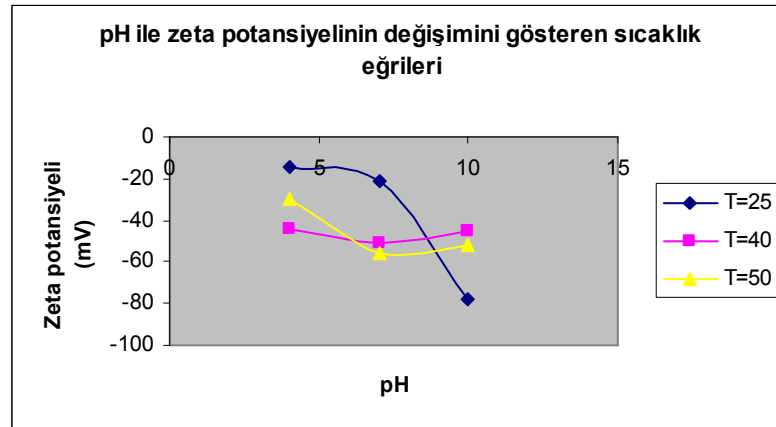
Şekil 4.19 Saf sudaki platin partikül boyutunun sıcaklık ile değişimini gösteren pH eğrileri

Şekil 4.18 ve Şekil 4.19 incelendiğinde, $T=40^{\circ}\text{C}$ için tüm pH değerlerinde hemen hemen aynı boyutta platin partiküllerinin elde edildiği görülmektedir. Saf su içerisindeki platin partikül boyutu $\text{pH}=10$ değerinde sıcaklık değişimlerine karşı daha karardır ve SEM görüntülerinden de anlaşılacağı gibi bu pH değerinde platin partikülleri daha homojen bir boyut dağılımına sahiptir. Bu yüzden, bundan sonraki deneylerimizde çalışma pH'ı olarak, $\text{pH}=10$ seçilmiştir.

Şekil 4.20 ve Şekil 4.21'de sırasıyla; dekantasyon sonrası arta kalan çözelti ve saf su içerisinde, zeta potansiyelinin pH ile değişimini gösteren sıcaklık eğrileri verilmiştir.



Şekil 4.20 Dekantasyon sonrası arta kalan çözelti içerisinde, zeta potansiyelinin pH ile değişimini gösteren sıcaklık eğrileri



Şekil 4.21 Saf su içerisinde, zeta potansiyelinin pH ile değişimini gösteren sıcaklık eğrileri

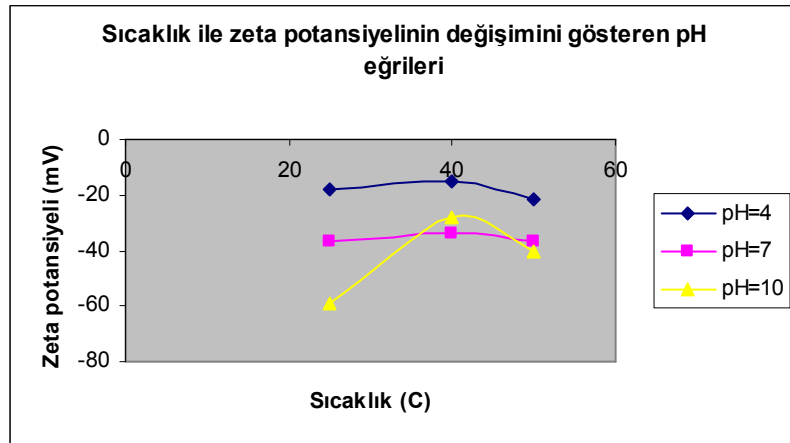
Şekil 4.20 incelendiğinde, dekantasyon sonrası arta kalan çözeltide $T=25^{\circ}\text{C}$ 'de zeta potansiyeli mutlak değerinin lineer olarak arttığı görülmektedir. $T=40^{\circ}\text{C}$ ve $T=50^{\circ}\text{C}$ 'de zeta potansiyelinin $\text{pH}=7$ değerine kadar arttığı, daha sonra ise azaldığı görülmektedir. Bütün

sıcaklık değerleri için zeta potansiyelinin mutlak değerinin pH=7 değerine kadar arttığı ve bu pH değerinde tüm sıcaklıklar için zeta potansiyelinin optimum bir değere ulaştığı görülmektedir.

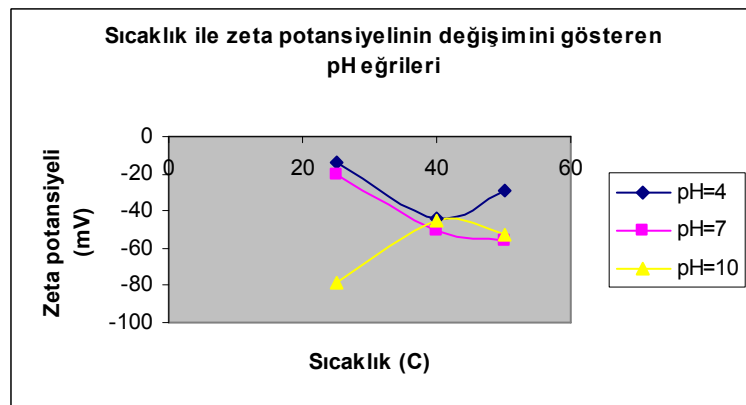
Şekil 4.21 incelendiğinde, saf suda T=25°C’de pH değeri arttıkça zeta potansiyeli mutlak değerinin de arttığı görülmektedir. T=40°C’de zeta potansiyeli mutlak değeri pH değişimine bağlı olarak bir değişme göstermemektedir. T=50°C’de ise zeta potansiyeli mutlak değerinin pH=7 değerine kadar artma, daha sonra ise azalma eğiliminde olduğu görülmektedir.

Şekil 4.20 ve Şekil 4.21’de, farklı sıcaklıklarda yapılan zeta potansiyeli ölçümlerinin pH değişimlerine karşı dekantasyon sonrası arta kalan çözelti ve saf su içerisinde benzer ölçüm sonuçları verdiği görülmektedir.

Şekil 4.22 ve Şekil 4.23’te sırasıyla; dekantasyon sonrası arta kalan çözelti ve saf su içerisinde, zeta potansiyelinin sıcaklık ile değişimini gösteren pH eğrileri verilmiştir.



Şekil 4.22 Dekantasyon sonrası arta kalan çözelti içerisinde zeta potansiyelinin sıcaklık ile değişimini gösteren pH eğrileri

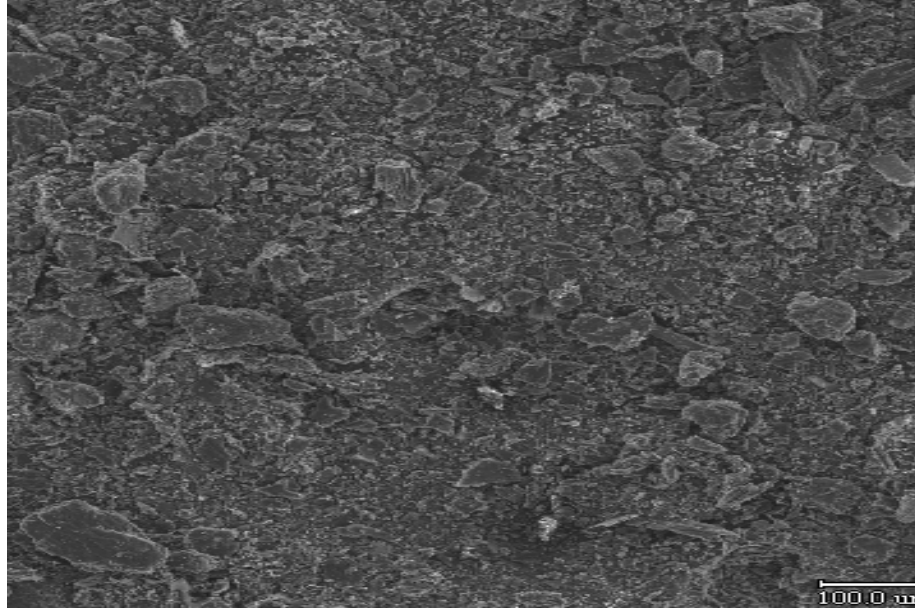


Şekil 4.23 Saf su içerisinde zeta potansiyelinin sıcaklık ile değişimini gösteren pH eğrileri

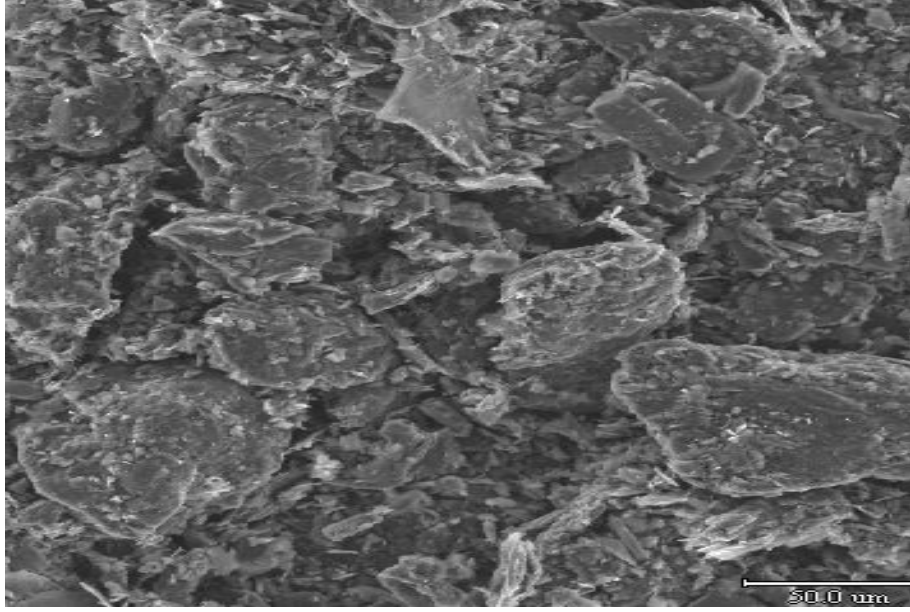
Şekil 4.22 incelendiğinde, dekantasyon sonrası arta kalan çözelti içerisinde pH=4 ve pH=7 değerlerinde zeta potansiyeli mutlak değerinin sıcaklığa bağlı olmadığı görülmektedir. pH=10 değerinde ise zeta potansiyeli mutlak değerini sıcaklıktan etkilenmektedir. pH=10 ve T=40°C’de taneciklerin yüzeyinde maksimum elektrik yük yoğunluğu oluşmaktadır. T=40°C’ye kadar zeta potansiyeli mutlak değeri azalmaktadır. Sıcaklık arttıkça dekantasyon sonrası arta kalan çözelti içerisindeki iyonlar çöker ve bu da platin partiküllerinin etrafındaki yük yoğunluğunu azaltır. Platin partiküllerinin etrafındaki yük yoğunluğunun azalması ise zeta potansiyeli mutlak değerinin azalmasına neden olur. T=40°C’den sonra ise zeta potansiyeli mutlak değeri tekrardan artmaya başlar.

Şekil 4.23 incelendiğinde, saf su içerisinde pH=4 değerinde zeta potansiyeli mutlak değerinin T=40°C’ye kadar arttığı, T=40°C’den sonra azaldığı görülmektedir. pH=7 değerinde ise zeta potansiyeli mutlak değeri sıcaklık arttıkça azalmaktadır. pH=10 değerinde ise T=40°C’ye kadar zeta potansiyeli mutlak değeri azalmakta, T=40°C’den sonra ise artmaktadır. T=40°C’de tüm pH değerleri için zeta potansiyelinin optimum bir değere ulaştığı görülmektedir.

Şekil 4.24 ve Şekil 4.25’te, elektrot yapımında kullandığımız grafit tozunun sırasıyla; 100 X ve 350 X büyütme ile SEM görüntüleri verilmektedir.



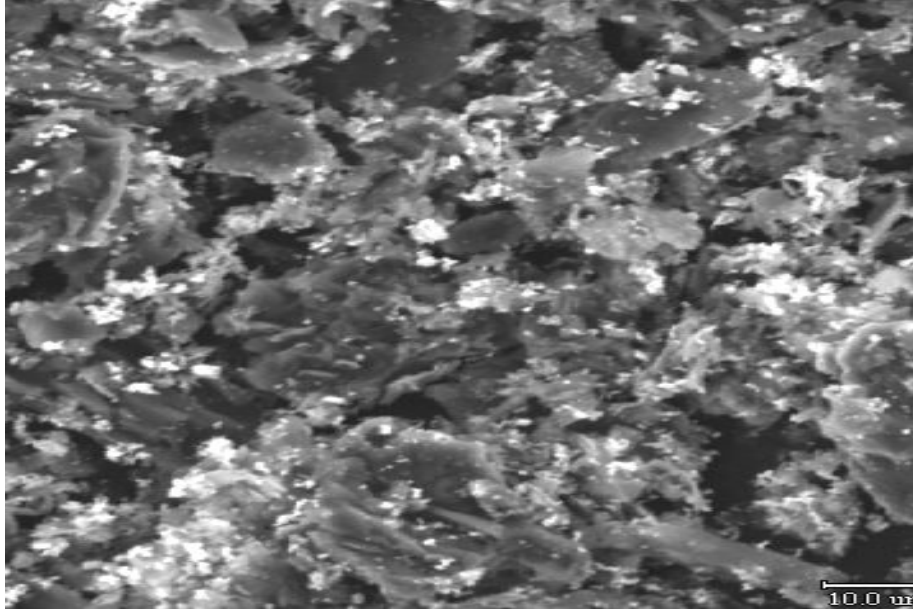
Şekil 4.24 Grafit tozu



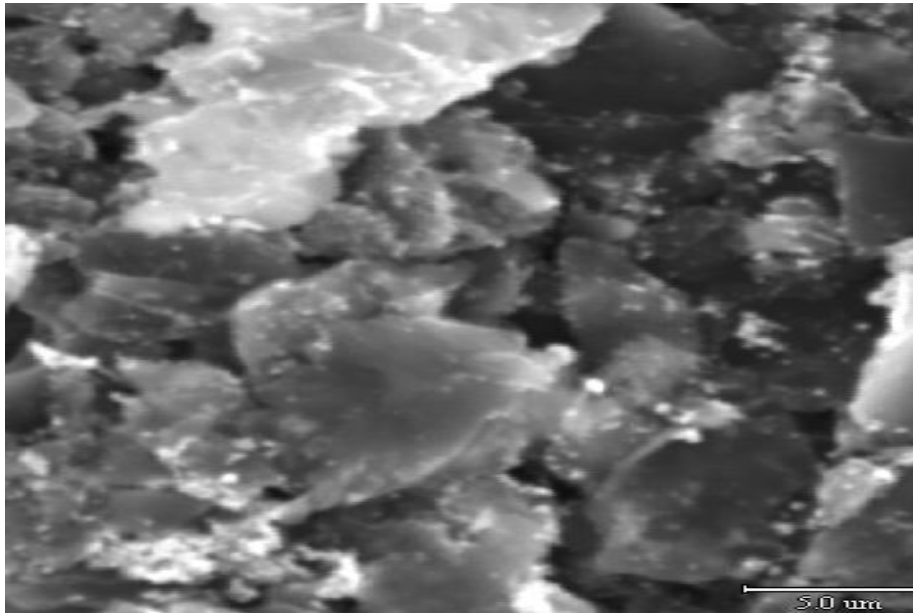
Şekil 4.25 Grafit tozu

Şekil 4.24 ve Şekil 4.25'teki SEM görüntüleri, deneylerimizde kullandığımız grafit tozuna ait partikül boyut ve dağılımı hakkında bize fikir vermektedir. Bu görüntüler, deneyimizin ilerleyen aşamalarında impregnasyon yöntemi ile elde edilen karbon destekli platin katalizör için bir kıyas olması amacı ile verilmektedir.

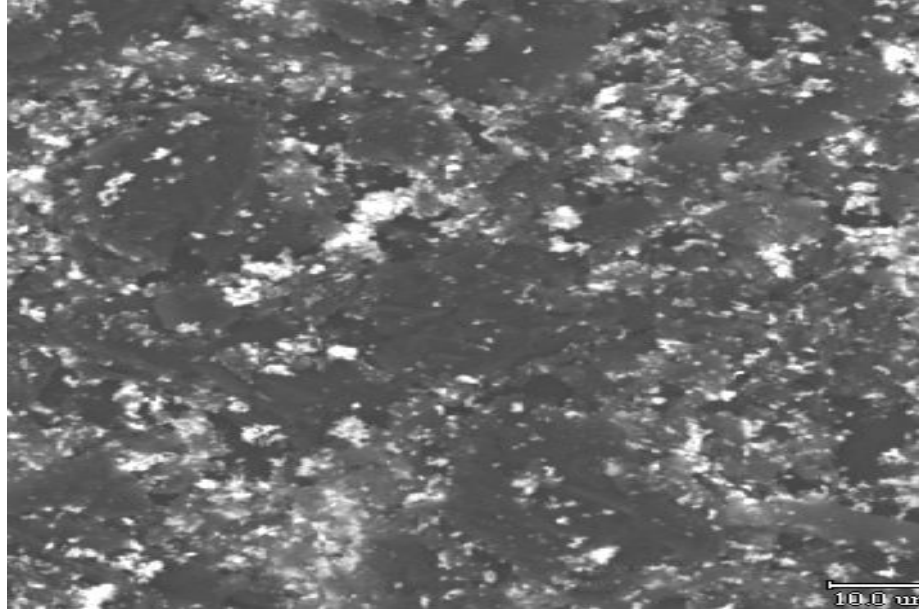
Şekil 4.26 ve Şekil 4.27'de impregnasyon yöntemi ile karbon üzerine çöktürülen platin partiküllerinin sırasıyla; 1000 X ve 3500 X büyütme ile SEM görüntüleri verilmektedir. Şekil 4.28'te ise karbon üzerine çöktürülen platin partiküllerinin 1000 X büyütme ile kompozisyon çekimi görülmektedir.



Şekil 4.26 Hidrazinle pH=10 ve T=40°C sıcaklıkta elde edilen Pt-C partikülleri

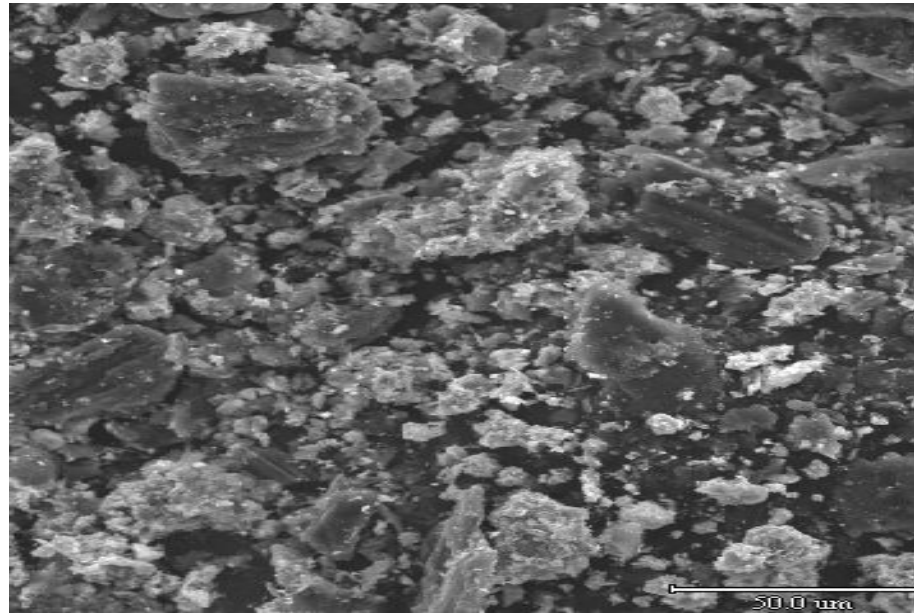


Şekil 4.27 Hidrazinle pH=10 ve T=40°C sıcaklıkta elde edilen Pt-C partikülleri

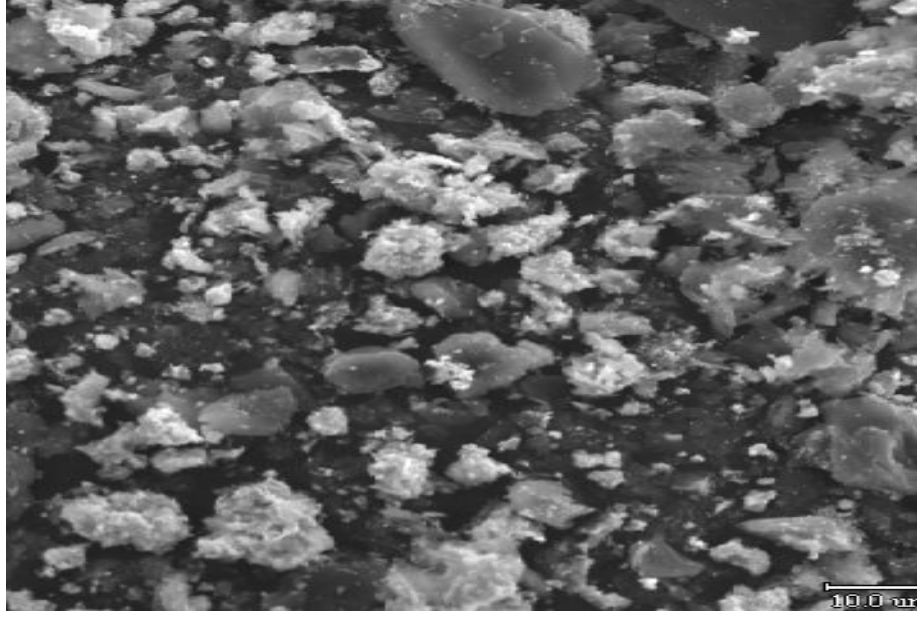


Şekil 4.28 Hidrazinle pH=10 ve T=40°C sıcaklıkta elde edilen Pt-C partikülleri

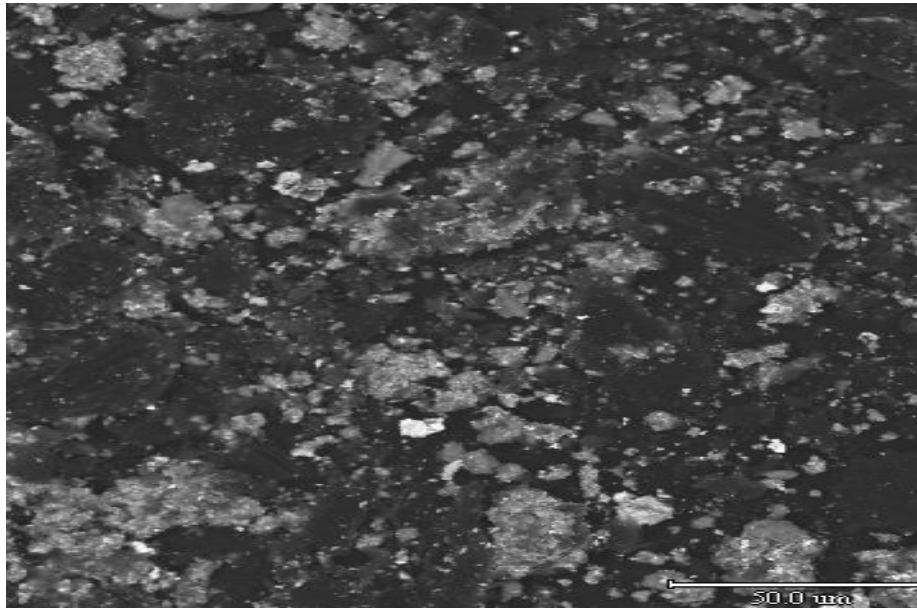
Şekil 4.29 ve Şekil 4.30'da impregnasyon yöntemi ile hazırlanmış PtRu/C katalizörün sırasıyla; 500 X ve 1000 X büyütme ile SEM görüntüleri verilmektedir. Şekil 4.31'de ise PtRu/C katalizörün 500 X büyütme ile kompozisyon çekimi verilmektedir.



Şekil 4.29 Hidrazinle pH=10 ve T=40°C sıcaklıkta elde edilen PtRu/C partikülleri

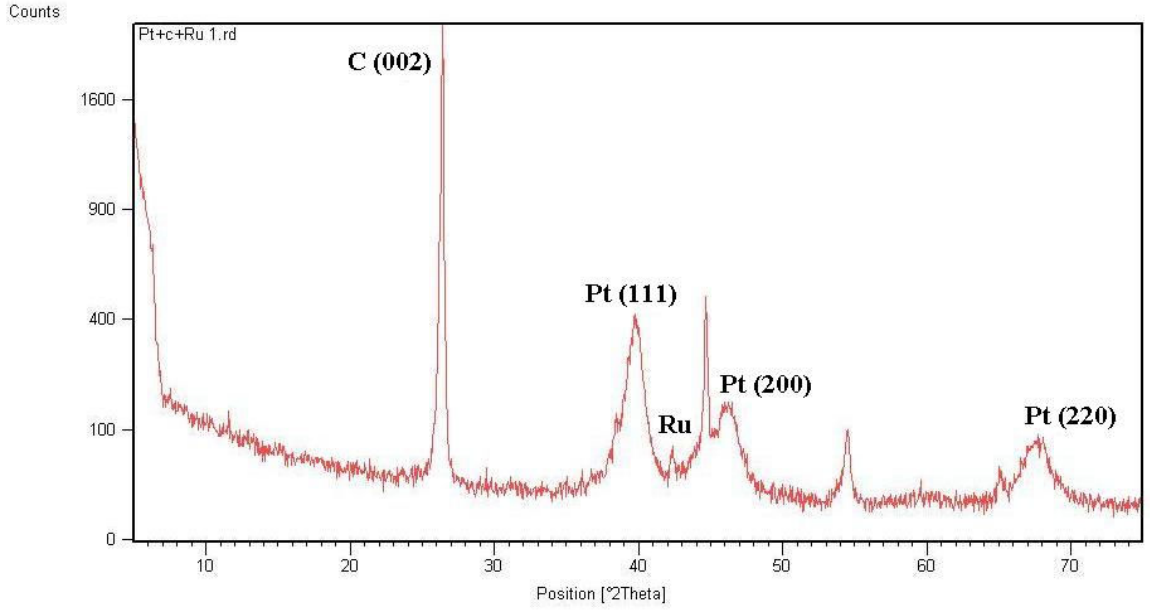


Şekil 4.30 Hidrazinle pH=10 ve T=40°C sıcaklıkta elde edilen PtRu/C partikülleri



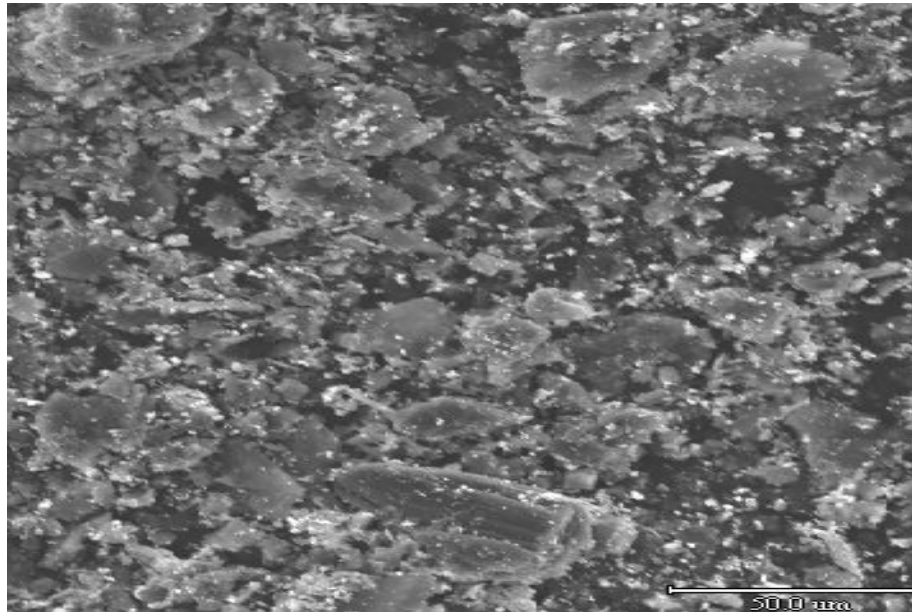
Şekil 4.31 Hidrazinle pH=10 ve T=40°C sıcaklıkta elde edilen PtRu/C partiküllerinin dağılımı

PtRu/C elektrotun XRD analizi Şekil 4.32’de verilmektedir.

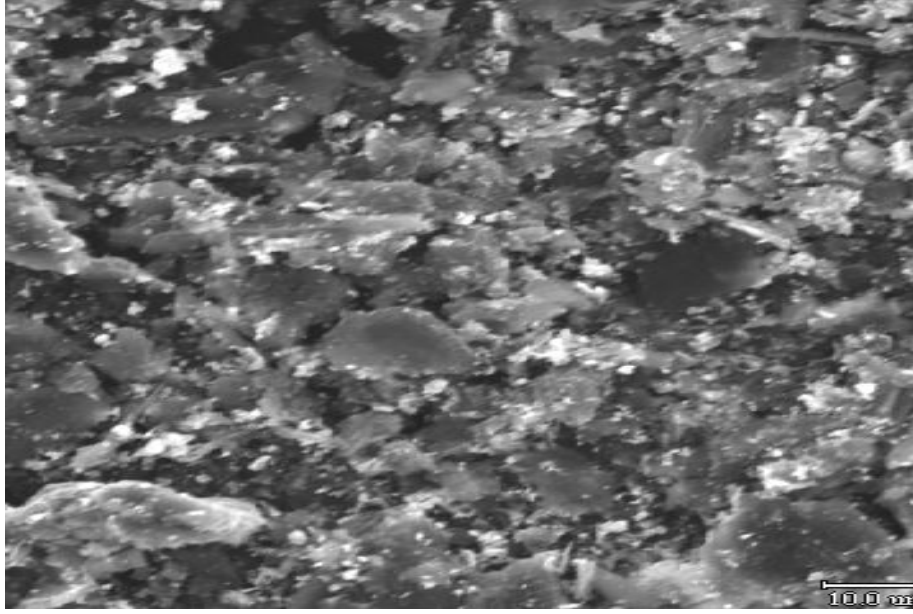


Şekil 4.32 PtRu/C elektrotun XRD analizi

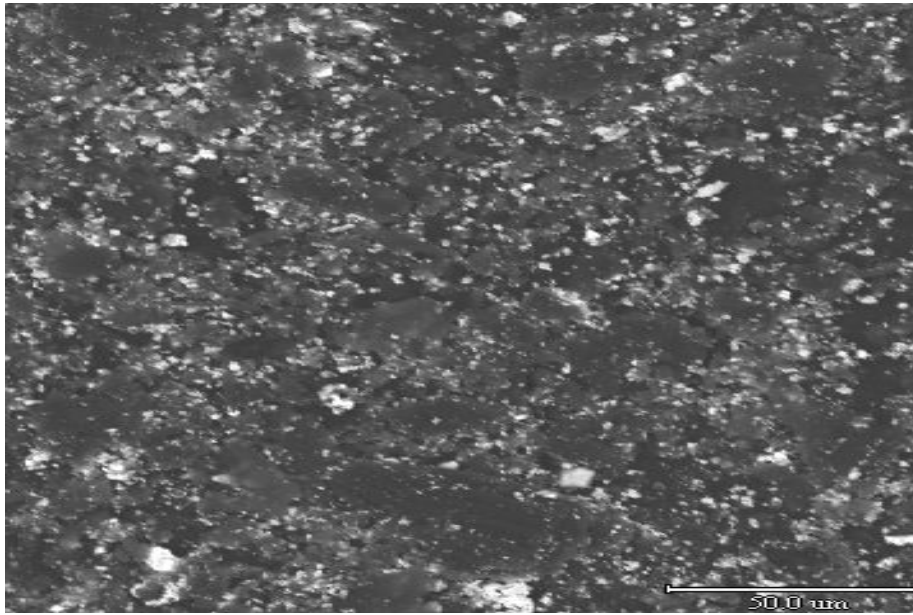
Şekil 4.33 ve Şekil 4.34’de impregnasyon yöntemi ile hazırlanmış PtIr/C katalizörün sırasıyla; 500 X ve 1000 X büyütme ile SEM görüntüleri verilmektedir. Şekil 4.35’te ise PtIr/C katalizörün 500 X büyütme ile kompozisyon çekimi verilmektedir.



Şekil 4.33 Hidrazinle pH=10 ve T=40°C sıcaklıkta elde edilen PtIr/C partikülleri

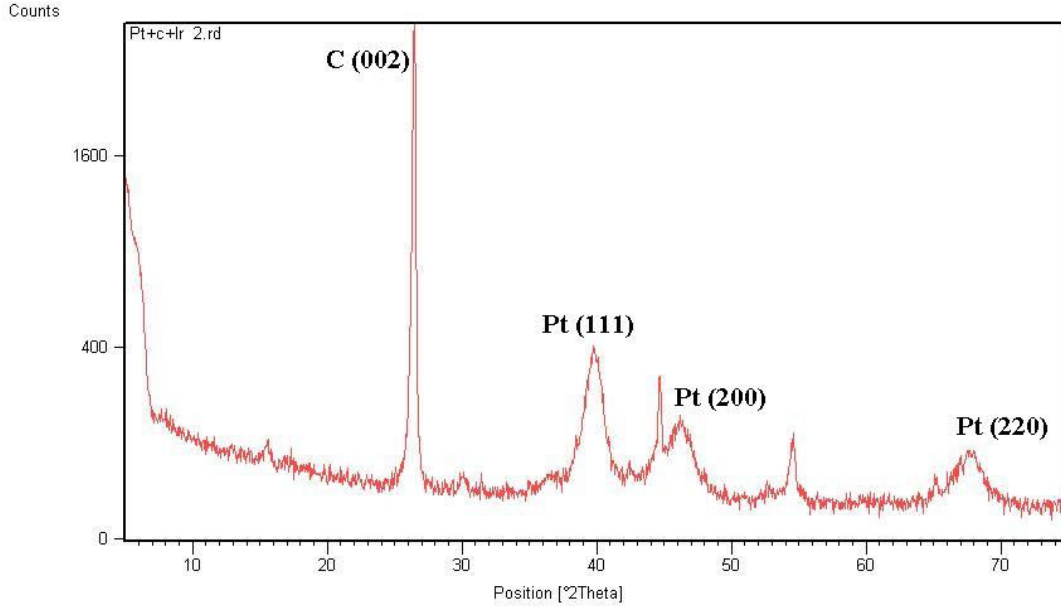


Şekil 4.34 Hidrazinle pH=10 ve T=40°C sıcaklıkta elde edilen PtIr/C partikülleri



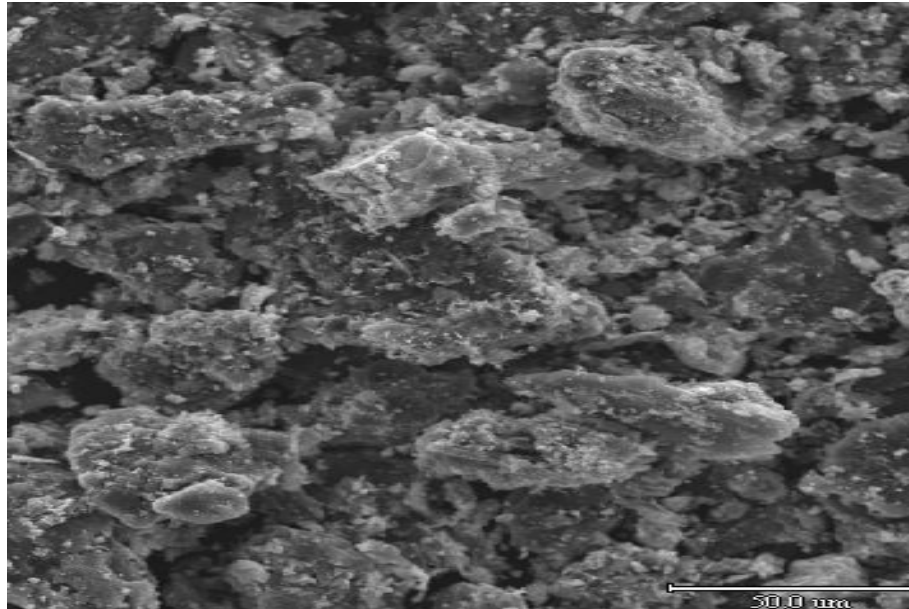
Şekil 4.35 Hidrazinle pH=10 ve T=40°C sıcaklıkta elde edilen PtIr/C partiküllerinin dağılımı

PtIr/C elektrotun XRD analizi Şekil 4.36'da verilmektedir.

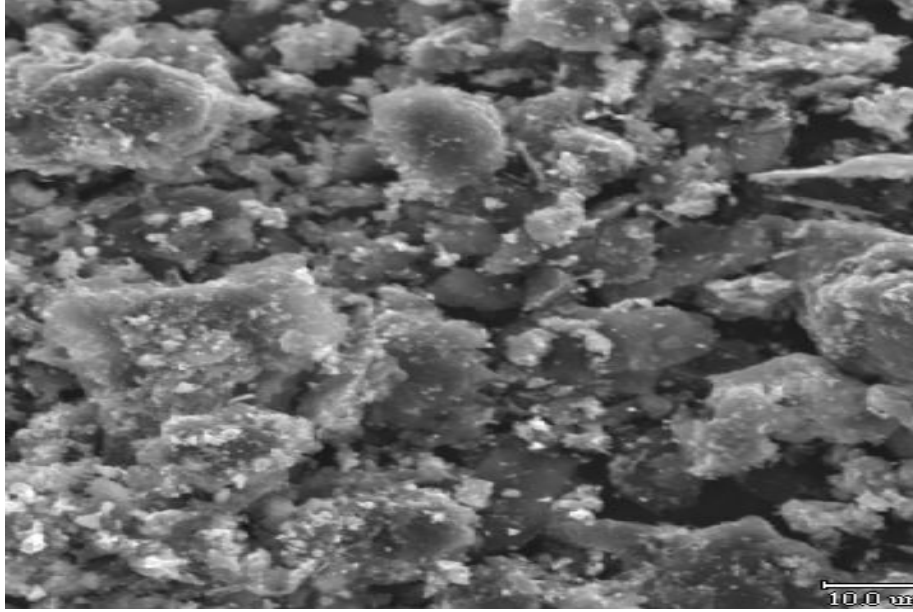


Şekil 4.36 PtIr/C elektrotun XRD analizi

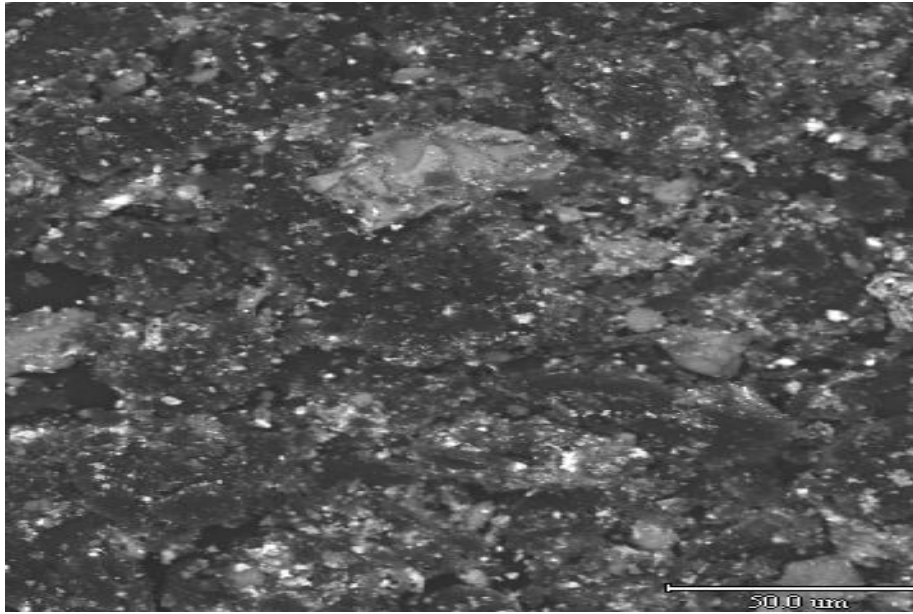
Şekil 4.37 ve Şekil 4.38'de impregnasyon yöntemi ile hazırlanmış PtRuIr/C katalizörün sırasıyla 500 X ve 1000 X büyütme ile SEM görüntüleri verilmektedir. Şekil 4.39'da ise PtRuIr/C katalizörün 500 X büyütme ile kompozisyon çekimi verilmektedir.



Şekil 4.37 Hidrazinle pH=10 ve T=40°C sıcaklıkta elde edilen PtRuIr/C partikülleri

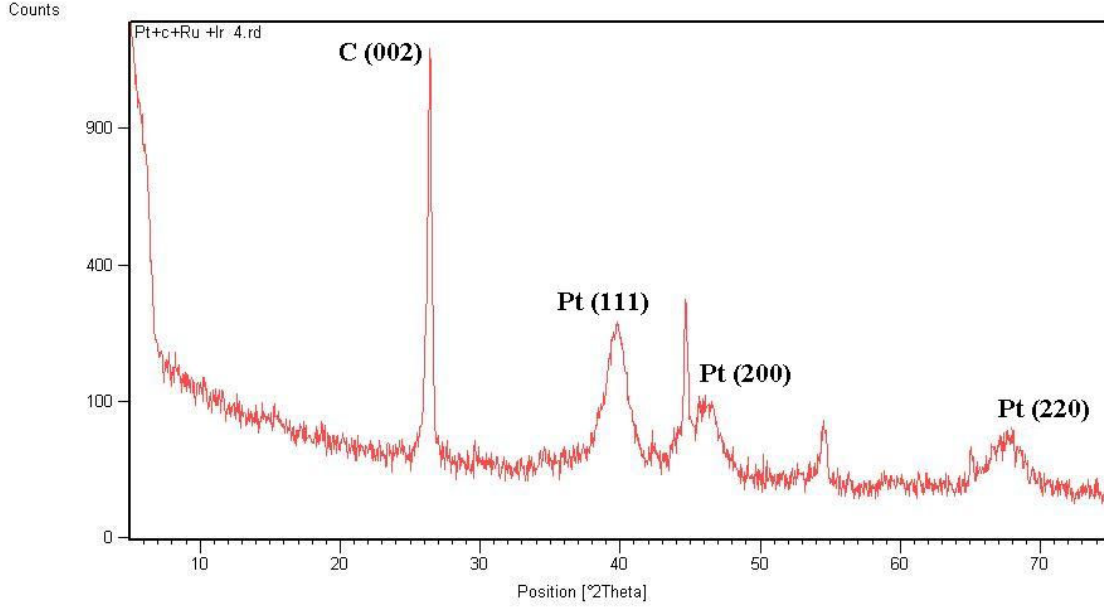


Şekil 4.38 Hidrazinle pH=10 ve T=40°C sıcaklıkta elde edilen PtRuIr/C partikülleri



Şekil 4.39 Hidrazinle pH=10 ve T=40°C sıcaklıkta elde edilen PtRuIr/C partiküllerinin dağılımı

PtRuIr/C elektrotun XRD analizi Şekil 4.40'da verilmektedir.



Şekil 4.40 PtRuIr/C elektrotun XRD analizi

Şekil 4.32, Şekil 4.36 ve Şekil 4.40 incelendiğinde, her üç örnekte de C (grafit formu) baskın bileşen olarak görülmektedir. Platin ve rutenyuma ait 100 şiddetindeki pikler de rahatlıkla görülebilmektedir. XRD analizleri bu çalışmada elde edilen toz katalizörlerdeki C, Pt, Ru ve Ir varlığını doğrulamaktadır.

5. SONUÇLAR VE ÖNERİLER

Bilim ve teknolojinin hızla geliştiği günümüzde, en önemli konuların başında; geçen yüzyılda olduğu gibi yine enerji gelmektedir. Gerek dünyada gerekse ülkemizde nüfus artışına, sanayileşmeye ve teknolojik gelişmelere paralel olarak enerji tüketimi artmaktadır. Buna karşılık ise geleneksel enerji kaynakları olan fosil yakıtların rezervleri gittikçe azalmaktadır. Fosil yakıtlardan kaynaklanan karbon emisyonlarının neden olduğu küresel iklim değişimi ise her geçen gün daha büyük bir endişe yaratmaktadır. Dünya artık fosil yakıtlardan vazgeçmek durumundadır.

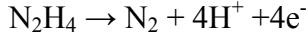
Fosil enerji kaynaklarının yerine güneş enerjisi, rüzgar enerjisi, su gücü (hidrolik enerji, jeotermal enerji, dalga enerjisi, gelgit enerjisi vs.), biyokütle ve hidrojen enerjisi gibi doğa ile dost, yeni ve yenilenebilir enerji kaynaklarının kullanımı üzerine çalışmalar her geçen gün daha da artmaktadır. Suyun elektrolizinden hidrokarbonların işlenmesine kadar bir çok kaynaktan elde edilebilen hidrojen ise günümüzde üzerinde en çok çalışılan temiz ve yeni enerji kaynağıdır.

Hidrojen ve kolaylıkla hidrojene dönüşebilen yakıtların yüksek verimde kullanımına olanak sağlayan yakıt pili gibi sistemlerin devreye sokulması ise orta ve uzun vadede fosil yakıtlara alternatif olacak bir çözümdür.

Polimer Elektrolit Membranlı yakıt pilleri (PEMFC) enerji dönüşüm verimlerinin iyi olması ve yakıt kaynaklarının yüksek güç yoğunluğu sağlaması nedenleriyle, özellikle taşıma ve taşınabilir elektronik güç uygulamaları için oldukça uygundur. PEM yakıt pillerinde katalizör olarak platin kullanılmaktadır. Yakıt hücresindeki etkinliğin yüksek olması için katalizörün performansını arttırmak oldukça önemlidir. Katalizör performansı ise; partikül boyutu, dağılımı ve şekli ile doğrudan bağlantılıdır. Partikül boyutu ne kadar küçük olursa katalizörün yüzey alanı ve dolayısıyla katalizörün kararlılığı da o kadar artar.

Yapılan deneyler sonucunda, partikül boyutuna etki eden faktörler; indirgen madde, pH, sıcaklık ve konsantrasyon olarak belirlenmiştir. İndirgen madde olarak kullanılan hidrazinin yükseltgenme reaksiyonunda N_2 gazı oluşur ve N_2 'un inert bir gaz olmasından dolayı platin partikülleri ile etkileşime girmezler.

Genel olarak pH değeri arttıkça partikül boyutunun küçüldüğü gözlemlenmiştir. Ortamda konsantrasyonları artan OH^- iyonları aşağıda verilen hidrazinin yükseltgenme tepkimesinde oluşan H^+ iyonlarını ortamdan çekerek denge durumunun sağ tarafa doğru bozulmasını ve reaksiyonun sağ tarafa doğru hızlanmasını sağlar.



Reaksiyonun hızlanması ise partiküllerin büyümesine izin vermeyerek daha küçük boyutta platin partiküllerinin elde edilmesine neden olur.

Sıcaklığın artması ise genelde çözeltilerdeki partiküllerin kinetik enerjilerini ve dolayısıyla partikülleri arası etkileşimi artırır. Bu da reaksiyonun hızını arttırarak yine partiküllerin büyümesine fırsat vermeyerek daha küçük boyutta partiküller elde edilmesini sağlar. T=50°C sıcaklıkta beklenenin tersine partikül boyutunun küçülmesi ise atmosfere açık ortamda gerçekleştirilen deneylerde, NH₃ gibi zayıf bir baz etkisi gösteren hidrazinin bu sıcaklıkta bir miktarının uçarak hidrazin konsantrasyonunun azalmasından kaynaklandığı düşünülmektedir.

Hidrazin konsantrasyonu ise kullanılan hegzakloroplatinik asitin konsantrasyonuna göre analitik olarak hesaplanmıştır.

Deneilerimizde hegzakloroplatinik asitten platin partiküllerinin elde edilmesi için en uygun indirgen madde olarak hidrazin seçilmiştir. Platin partikül boyutunu etkileyen sıcaklık ve pH faktörleri de göz önünde bulundurularak en uygun sıcaklık ve pH, çalışma koşulları olarak belirlenmiştir. Daha sonra impregnasyon yöntemi ile PtRu/C, PtIr/C ve PtRuIr/C katalizörler elde edilmiş, SEM görüntüleri alınıp XRD analizleri yapılmıştır. Yaptığımız çalışma, elde ettiğimiz toz katalizörlerin elektrot haline getirilip elektrot potansiyellerinin ölçülmesi ve CO toleranslarının kıyaslanması ile PEM yakıt pilleri için en uygun elektrotun belirlenmesinde sonraki çalışmalara referans olacaktır.

KAYNAKLAR

- Altın, V., (2002), Enerji, Bilim ve Teknik Dergisi, TÜBİTAK, Ocak 2002.
- Arif, M., Jacobson, D.L., Hussey, D.S. ve Garland, N.L., (2004), "Neutron Imaging Study of the Water Transport in Operating PEM Fuel Cells", DOE Hydrogen Program, FY 2004 Progress Report, 545-548.
- Bıykođlu, A., (2003), "Yakıt Hücrelerinin Tarihsel Gelişimi, Çalışma Prensipleri ve Bugünkü Durumu", G.Ü. Fen Bilimleri Dergisi, 16(3): 523-542.
- Cao, J., ve Djilali, N., (2000), "Computational Simulation of Water Transport in PEM Fuel Cells Using an Improved Membrane Model", 10th Canadian Hydrogen Conference, 447-456, Quebec City, May, 2000.
- Cook, B., (2002), "An Introduction to Fuel Cells and Hydrogen Technology", Heliocentris, April 2002, Canada.
- Energy Center of Wisconsin, (2000), Fuel Cells for Distributed Generation , A Technology and Marketing Summary, March 2000.
- Frey, T. ve Linardi M., (2004), "Effects of Membrane Electrode Assembly Preparation on the Polymer Electrolyte Membrane Fuel Cell Performance", Electrochimica Acta, 50:99-105.
- Gangeri, M., Centi, G., La Malfa, A., Perathoner, S., Vieira, R., Pham-Huu, C. ve Ledoux, M.J., (2005), "Electrocatalytic Performances of Nanostructured Platinum-Carbon Materials", Catalysis Today, 102-103:50-57.
- Gürocak, A., (2004), Pt-Rh-C Kompozit Elektrotta Kullanılan Platin'in Eldesi, Yüksek Lisans Tezi, YTÜ Fen Bilimleri Enstitüsü.
- Hacker, V., Wallnöfer, E., Baumgartner, W., Schaffer, T., Besenhard, J.O., Schröttner, H. Ve Schmied, M., (2005), "Carbon Nanofiber-Based Active Layers for Fuel Cell Cathodes-Preparation and Characterization", Electrochemistry Communications, 7:377-382.
- Hickner, M.A., McGrant, J.E., Wilkes, G.L., Baird, D.G., Davis, R.M. ve Zawodzinski, T.A., (2003), "Transport and Structure in Fuel Cell Proton Exchange Membranes", August 2003, Virginia
- Karakuş, Ö., (2005), Yakıt Pilleri için Tasarlanan Pt-C-Os Elektrotun Eldesi, Yüksek Lisans Tezi, YTÜ Fen Bilimleri Enstitüsü.
- Kim, C.S., Chun, Y.G., Peck, D.H. ve Shin, D.R., (1998), "A Novel Process to Fabricate Membrane Electrode Assemblies for Proton Exchange Membrane Fuel Cells", International Association for Hydrogen Energy, 11:1045-1048.
- Larminie, J. ve Dicks, A., (2000), Fuel Cell Systems Explained, John Wiley & Sons, New York.
- Liu, J.H., Jeon, M.K., Choi, W.C. ve Woo, S.I., (2004), "Highly-Optimized Membrane Electrode Assembly for Direct Methanol Fuel Cell Prepared by Sedimentation Method", Journal of Power Sources, 137:222-227.
- Oral, E. ve Çelik, V., (2005), "Hidrojen Yakıtlı Motor Teknolojisi", Mühendis ve Makina Dergisi, 46(540):30-40.
- Ramkumar, R., Dheenadayalan, S. ve Pattabiraman, R., (1997), "Development of Porous Carbon Electrodes for Direct Methanol Fuel Cells", Journal of Power Sources, 69:75-80.

Santiago, E.I., Paganin, V.A., Carmo, M., Gonzalez, E.R. ve Ticianelli, E.A., (2005), “Studies of CO tolerance on Modified Gas Diffusion Electrodes Containing Ruthenium Dispersed on Carbon”, Journal of Electroanalytical Chemistry, 575:53-60.

Vizyon 2023 Projesi, (2004), Enerji ve Çevre Teknolojileri Stratejisi, TÜBİTAK, Ağustos 2004, Ankara.

YEKS 2005, (2005), “Sonuç Bildirgesi”, Yeni ve Yenilenebilir Enerji Kaynakları/Enerji Yönetimi Sempozyumu, TMMOB Makina Mühendisleri Odası, 03-04 Haziran 2005, Kayseri.

INTERNET KAYNAKLARI

[1]www.igdas.com.tr

[2]www.geocities.com

[3]www.eie.gov.tr

[4]www.mmoistanbul.org/yayin/Scripts/prodView.asp?idproduct=309

[5]www.fuelcells.org

[6]www.wikipedia.com

[7]http://yunus.hacettepe.edu.tr/~yilser/protondegisim.htm

[8]www.eere.energy.gov/hydrogenandfuelcells/fuelcells

[9]www.fuelcellworks.com/typesoffuelcells.html

[10]www.americanhistory.si.edu/csr/fuelcells/future/furmain.htm

[11]www.chm.bris.ac.uk

[12]http://tr.wikipedia.org

ÖZGEÇMİŞ

Doğum tarihi 01.04.1980

Doğum yeri İstanbul

Lise 1995-1998 Bakırköy Sabri Çalışkan Lisesi

Lisans Hazırlık 1998-1999 Yıldız Teknik Üniversitesi Yabancı Diller Yüksek Okulu, İngilizce Hazırlık

Lisans 1999-2004 Yıldız Teknik Üniversitesi Kimya-Metalurji Fakültesi Kimya Mühendisliği Bölümü

Yüksek Lisans 2004-2006 Yıldız Teknik Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Kimya Mühendisliği

Çalıştığı kurum

2005-Devam ediyor YTÜ Fen Bilimleri Enstitüsü Araştırma Görevlisi