

## Faz Değiştirici Yalıtım Malzemelerinin Polietilen Glikolle Üretilmesi

Zuhal KARAGÖZ GENÇ<sup>\*a</sup>, Murat GENÇ<sup>b</sup>, Canan AKSU CANBAY<sup>c</sup>, Memet ŞEKERCİ<sup>d</sup>

<sup>a</sup>Adiyaman Üniversitesi, Mühendislik Fakültesi, Metalurji ve Malzeme Mühendisliği, Adiyaman, TÜRKİYE

<sup>b</sup>Adiyaman Üniversitesi, Fen Edebiyat Fakültesi, Kimya Bölümü, Adiyaman, TÜRKİYE

<sup>c</sup>Fırat Üniversitesi, Fen Fakültesi, Fizik Bölümü, Elazığ, TÜRKİYE

<sup>d</sup>Fırat Üniversitesi, Fen Fakültesi, Kimya Bölümü, Elazığ, TÜRKİYE

### ÖZET

Artan dünya nüfusuna paralel olarak hızla tüketilen enerji kaynakları nedeniyle yenilenebilir enerji kaynağı olan faz değiştirici malzemelere ihtiyaç duyulmaktadır. Bu amaçla çalışmada yaygın olarak kullanımı olan faz değiştirici malzemelerden polietilen glikol (PEG) kullanılarak, PEG uçucu kül, barit ve mermer tozu gibi farklı yalıtım malzemeleriyle katkılanmıştır. Katkılama işlemi sonrasında elde edilen faz değiştirici malzemelerin yapısal ve termal özellikleri FT-IR (Infrared spektroskopisi), SEM (Taramalı Elektron Mikroskobu), DSC (Diferansiyel Termal Analiz) ve TGA (Termogravimetrik Analiz) ile belirlenmiştir. FT-IR analiz sonuçlarına göre PEG ve yalıtım malzemeleri arasında kimyasal bir etkileşimin olmadığı belirlenmiştir. Faz değişimlerine karşılık gelen entalpi değerleri ise erime için sırasıyla 143,61 j/kg, 142,96 j/kg ve 143,26 j/kg ve donma için sırasıyla 136,23 j/kg, 134,27 ve 134,52 j/kg olduğu DSC sonuçlarına göre belirlenmiştir. SEM analiz sonuçlarına göre; katkı maddelerinin PEG içerisinde homojen olarak dağıldığı belirlenmiştir.

**Anahtar Kelimeler:** FDM (Faz Değiştiren Madde); TES (Termal Enerji Depolama); Yalıtım malzemesi

## The Production of Phase Change Building Materials by Polyethylene Glycol

### ABSTRACT

In parallel to the growing world population, phase modifier materials, which are renewable energy source, are needed due to rapidly consumed energy resources. For this purpose, it has been doped with various insulating materials such as PEG's fly ash, barite and marble powder, using the polyethylene glycol(PEG) which is extensive use of the phase modifier material. Structural and thermal properties of the phase modifier materials obtained after the doping process, determined with FT-IR (infrared spectroscopy), SEM (scanning electron microscope), DSC (Differential Scanning Calorimetry) and TGA (Thermogravimetric analysis). According to the FT-IR analysis results any chemical interaction was observed between PEG and insulation materials. Enthalpy values for the melting are 143.61 j/kg, 142.96 j/kg and 143.26 j/kg and for the freezing are 136,23 j/kg, 134,27 j/kg and 134,52 j/kg, respectively that was determined according to the DSC results. According to SEM analysis; it was determined that the additive is uniformly dispersed in the PEG.

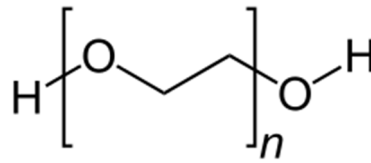
**Keywords:** Phase change materials (PCM); TES (Thermal Energy Storage); Building material

\* Sorumlu yazar: [zgenic@adiyaman.edu.tr](mailto:zgenic@adiyaman.edu.tr) (Z. Karagöz Genç)

## 1. Giriş

Düşük veya yüksek ısı enerjisinin daha sonra kullanılmak üzere geçici süre ile depolanması işlemine ısı enerjisi depolama adı verilir. Isıl enerji depolama sistemlerinde maddelerin faz değişimleri esas alınarak, bu faz değişimi sırasında meydana gelen sıcaklık değişiminden kaynaklanan ısının depolanması (duyulur ısı depolanması) veya alınan yada verilen ısının depolanması (gizli ısı depolama) şeklindedir [1]. Gizli ısı depolama özelliğine sahip olan materyaller faz değiştirici malzeme (FDM) olarak adlandırılırlar. Faz değiştirici malzemelerin en önemli özelliği bir fazdan başka bir faza geçiş yaptıkları esnada, yani faz değiştirme prosesi boyunca ısı soğurabilen ve soğurduğu ısıyı depolayabilen, tam tersi durumda ise depoladığı ısıyı yayabilme özelliği gösteren maddelerdir [2-5]. Faz değiştiren malzemelerin en ilgi çekici özelliği ise önemli seviyede sıcaklık değişimi olmaksızın erime ve katılaşma işlemleri esnasında büyük miktarlarda gizli ısı absorbe ediyor ve yayıyor olmalarıdır. Faz değiştiren malzemeler güneş enerji depolama sistemlerinde, binalarda ısıtma ve soğutma amaçlı, tekstilde, elektronik, gıda ve medikal ürün taşınmasına kadar birçok alanda yaygın bir şekilde kullanılmaktadırlar [6-7].

Enerji tüketimimizin en önemli kısmı binalarda (%35-40) sarf edilmektedir ve bu tüketimin yaklaşık %85'i binalarda ısıtma-soğutma amaçlı kullanılmaktadır. Bu nedenle binalarda yalıtım daha da önemli hale gelmektedir [8-10]. Artan dünya nüfusuna paralel olarak artan enerji ihtiyacı nedeniyle enerji tasarrufu konuları son yıllarda daha da ön plana çıkmaktadır. Bu nedenle binalarda sağlanacak ısı yalıtımı enerji tasarrufuna önemli katkılar sağlayacaktır. Fosil yakıtların tükenebilir olması ve çevreyi daha fazla kirletmeleri nedeniyle ozon tabakasına zarar veren kloroflorokarbonlara (CFC) gereksinim duymadan doğrudan soğutma-ısıtma yapılabilen faz değiştirici malzemeler bu alanda rahatlıkla kullanılacak malzeme grubunu oluşturmaktadır [11]. Faz değiştirici malzemelerin binalarda yalıtım malzemesi olarak kullanılabilmesi için yüksek termal iletkenlik, yüksek bir gizli ısı, faz değişimi esnasında küçük hacim değişimi ve yüksek özgül ısıya sahip olmalıdır. Termal iletkenliğin yüksek olması ısı iletiminin daha rahat gerçekleşmesini sağlar. Ayrıca toksik ve korozif etki göstermemenin yanısıra aşırı soğumamaları da gerekir. Binalarda kullanılacak faz değiştirici malzemelerin maksimum 200<sup>o</sup>C'de erimesi gerekmektedir [12-14]. Sarı ve ark. polietilen glikolle yaptıkları çalışmalar bu alanda olumlu sonuçlar vermiştir [15-20]. Bu çalışma kapsamında polietilen glikolün (PEG) (Şekil 1) farklı yalıtım malzemeleriyle katılandırılmasıyla yeni faz değiştirici malzemeler elde edilerek, termal ve yapısal özellikleri incelenmiştir.



Şekil 1. Polietilen glikolün genel yapısı

## 2. Materyal ve Metot

PEG (Polietilen glikol) Merck firmasından temin edildi. Uçucu kül, barit ve mermer tozu Fırat Üniversitesi Teknoloji fakültesinden temin edildi.

### 2.1. Kullanılan Alet ve Teçhizatlar

Elde Edilen faz değiştirici malzemelerin kimyasal yapı analizleri Perkin Elmer Precisely Spectrum One cihazıyla 4000-400 cm<sup>-1</sup> absorbands aralığında yapıldı. Termal özellikleri ve termal kararlılık ölçümleri kararlılıkları Perkin Elmer marka 8000 model Diferansiyel Taramalı Kalorimetri (DSC) ve Hitachi marka 7300 model Termogravimetrik ve Diferansiyel Termal analiz(TG/DTA) (Adıyaman Üniversitesi Merkezi Araştırma Laboratuvarı) cihazlarıyla ölçüldü. SEM analizleride yine

Adıyaman Üniversitesi Merkezi Araştırma Laboratuvarında Zeiss marka EVO LS 10 modelinde SEM cihazıyla morfolojik yapısı aydınlatıldı.

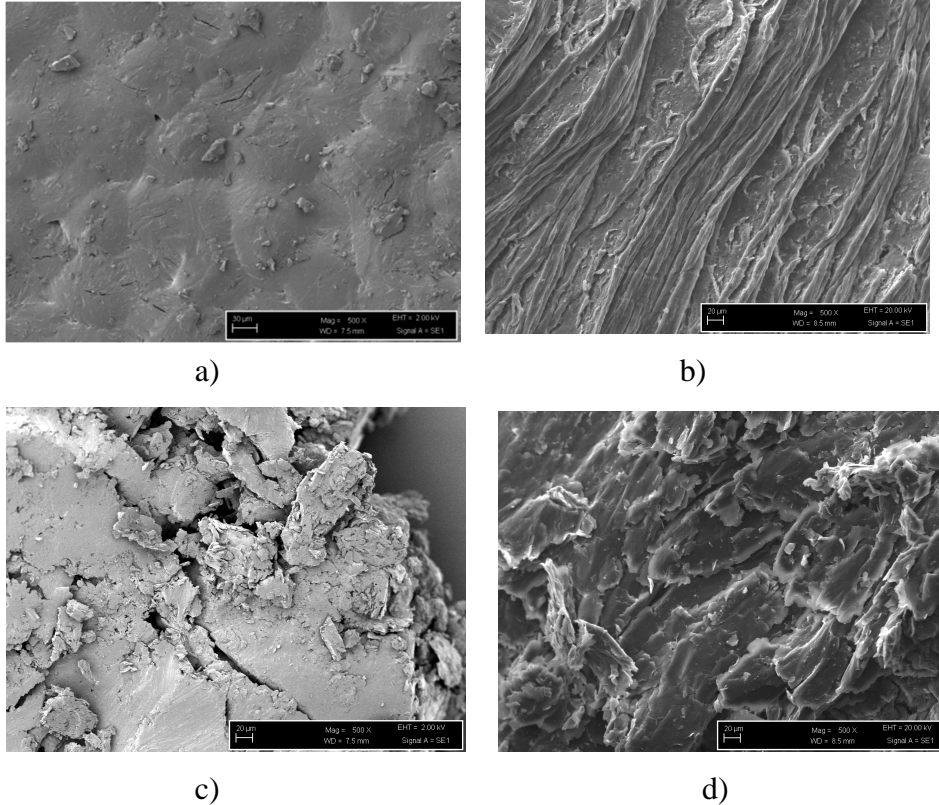
## 2.2. Metot

FDM' leri hazırlamak için PEG (1 g) ve yalıtım malzemeleri farklı oranlarda tartıldıktan sonra cam kapaklı şişelere aktarıldı. Ağız kapalı şişelerdeki bu karışımlar ultrasonik karıştırıcı su banyosunda 60-75 °C sıcaklık aralığında 12-16 saat ultrasonik titreşim yardımıyla homojen olarak karışması sağlandı. Elde edilen FDM' ler Homojenizasyon yöntemi sonrasında farklı basınçlar altında ikinci bir homojenizasyon yöntemine tabi tutuldu. Uygun basınç DSC analiz sonuçlarına göre belirlendi.

## 3. Sonuçlar

### 3.1. SEM Analizi

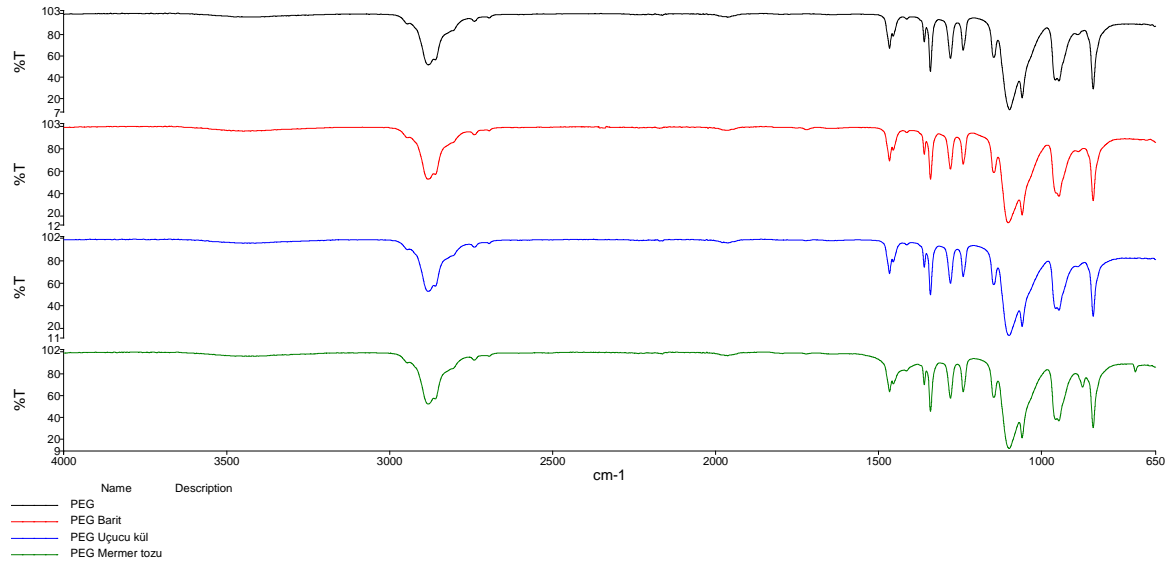
PEG, PEG-Barit, PEG-uçucu kül ve PEG-mermer tozuna ait FDM'lerin yüzey morfolojileri Scanning Elektron Mikroskopisi (SEM) analizleri ile incelenmiştir. Numunelerin SEM ölçümleri oda sıcaklığında alınmıştır. Farklı büyütmelerde SEM analizlerinin alınmamasının temel nedeni numunelerin sıvı hale geçmelerinden kaynaklanmaktadır. PEG'in katkısız saf halinde yüzey üzerinde çatlaklar (cracks) olduğu görülmektedir. PEG içine mermer tozunun katılanması ile yapının değiştiği ve liflerin oluştuğu belirlenmiştir. PEG içine uçucu kül ilavesi ile yapıda boşluklar (porosite) oluşmuştur (Şekil 2). PEG içine barite ilavesi ile yapının içerisinde dağılımın düzgün olduğu açıktır. Genel olarak bakıldığında tüm numuneler için homojen yapı esastır, deneysel olarak da amaçlanan üretilen numunelerin homojen olmasıdır. Homojen ve boşluksuz yapı iyi mukavemet ve termal dayanım için önemlidir. Yapılan termal analizlerde bu sonucu destekleyici niteliktedir.



Şekil 2. PEG (a), PEG-Barit (b), PEG-uçucu kül (c) ve PEG-mermer tozuna (d) ait FDM'lerin SEM görüntüleri

### 3.2. FT-IR Analizi

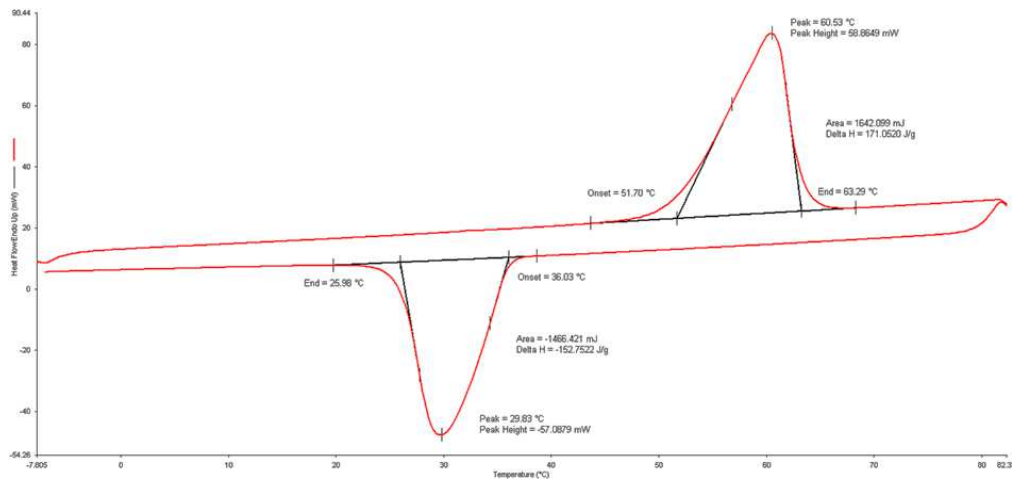
Elde edilen faz değiştirici malzemelerin yapısal analizlerinde en önemli parametrelerden biri de polietilen glikol ile yalıtım malzemeleri arasında kimyasal bir etkileşimin olmamasıdır. Bu amaçla polietilen glikol (PEG), PEG-uçucu kül, PEG-Barit ve PEG-mermer tozunun Infrared spektrumları alınmıştır. Elde edilen spektrum sonuçlarına göre PEG için 2942-2804  $\text{cm}^{-1}$  de alifatik C-H gerilme titreşimleri, 1457-1231  $\text{cm}^{-1}$  de alifatik C-H eğilme titreşimleri, 1100  $\text{cm}^{-1}$  de C-O gerilme titreşimleri gözlemlenmiştir. PEG'in uçucu kül, barit ve mermer tozu ile katkılanırılması sonucunda Şekil 3'de de görüldüğü gibi PEG'e ait piklerde herhangi bir değişiklik gözlemlenmemiştir.



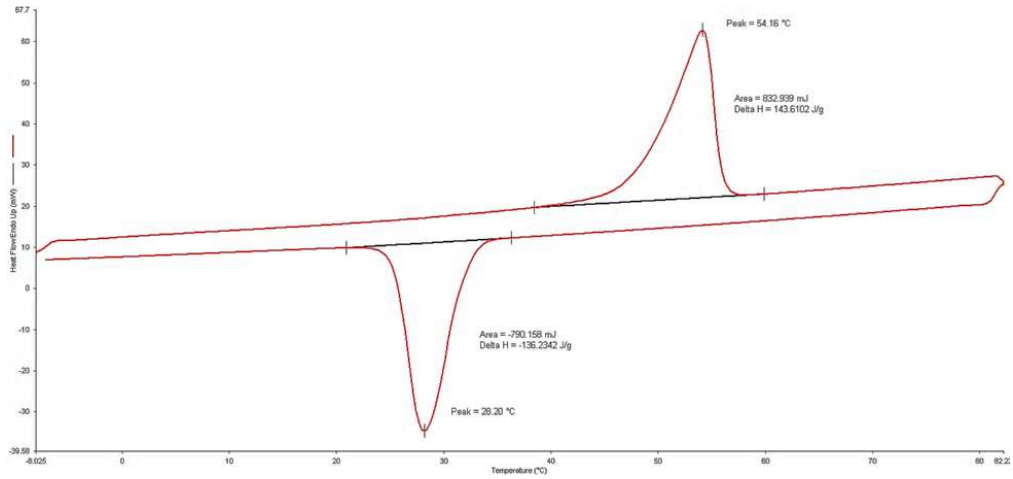
Şekil 3. Polietilen glikol (PEG), PEG-uçucu kül, PEG-Barit ve PEG-mermer tozunun FT-IR spektrumu

### 3.3. DSC Analizi

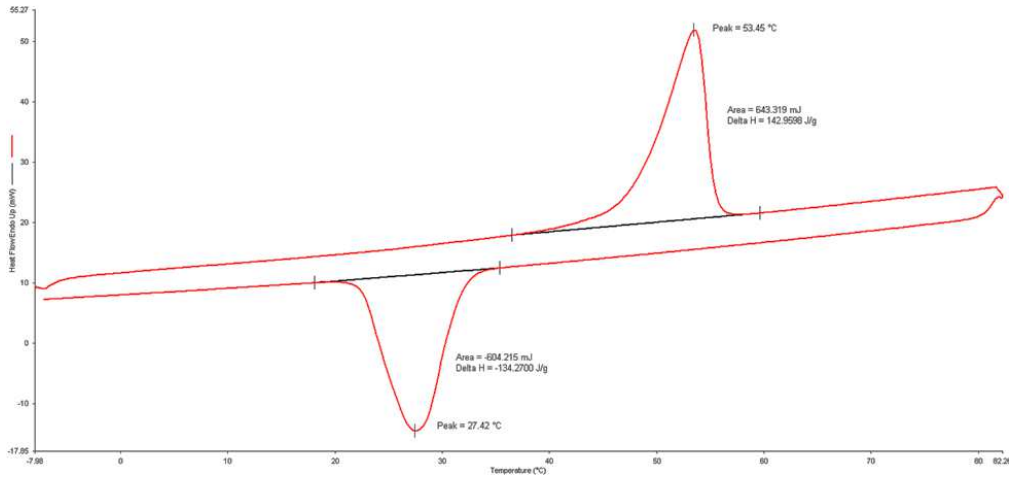
Elde edilen PEG, PEG-uçucu kül, PEG-Barit ve PEG-mermer tozu faz değiştirici yalıtım malzemelerinin erime entalpileri; 171.05 j/kg, 143.61 j/kg, 142.96 j/kg ve 143.26 j/kg ve erime sıcaklıkları sırasıyla ise; 60.53  $^{\circ}\text{C}$ , 54.16  $^{\circ}\text{C}$ , 53.45  $^{\circ}\text{C}$  ve 53.16  $^{\circ}\text{C}$ 'dir. Donma entalpileri; 152.75 j/kg, 136.23 j/kg, 134.27 j/kg ve 134.52 j/kg ve donma sıcaklıkları ise; 29.82  $^{\circ}\text{C}$ , 28.20  $^{\circ}\text{C}$ , 27.42  $^{\circ}\text{C}$  ve 26.93  $^{\circ}\text{C}$ 'dir (Şekil 4-7).



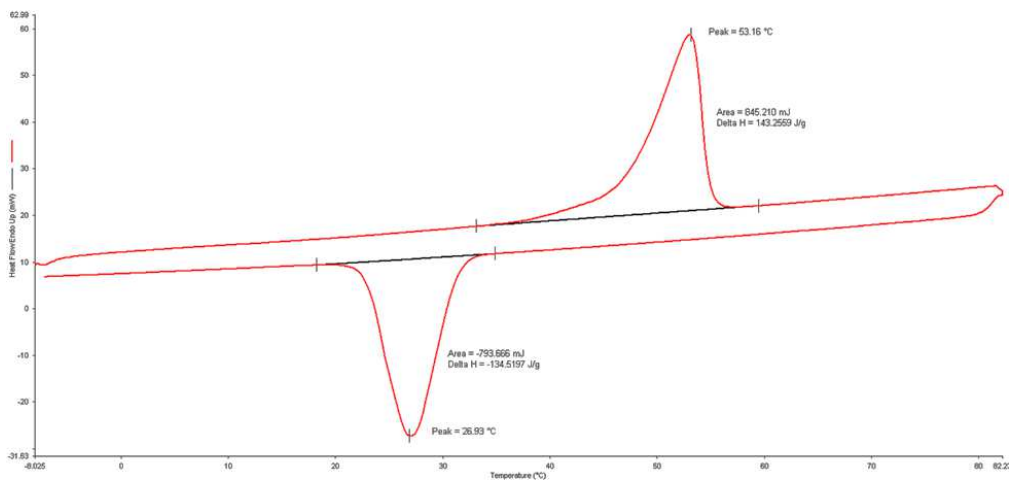
Şekil 4. Polietilen glikolün ısınma-soğuma DSC eğrisi



Şekil 5. PEG-Uçucu kül ısınma-soğuma DSC eğrisi



Şekil 6. PEG-barit ısınma-soğuma DSC eğrisi



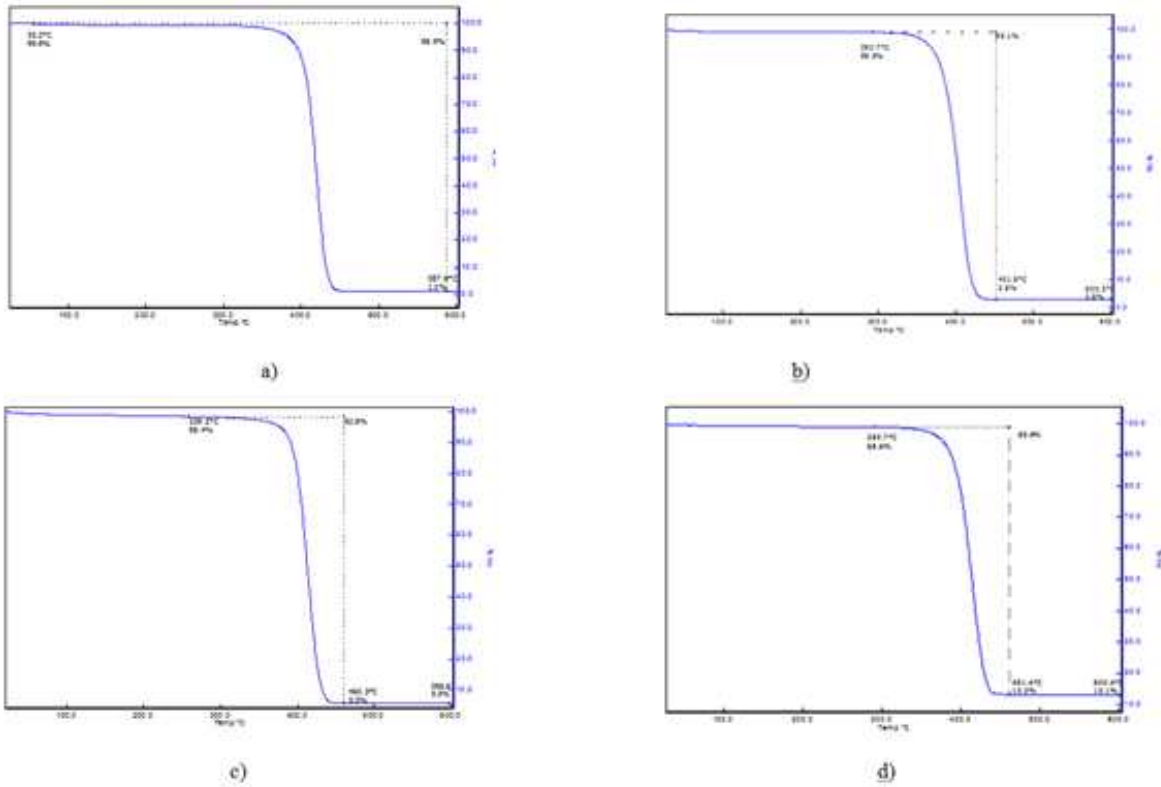
Şekil 7. PEG-mermer tozu ısınma-soğuma DSC eğrisi

Faz deęiřtirici malzemelerde en önemli parametrelerden biri de yalıtım malzemelerinin PEG ierisine katkılanma oranlarıdır. (1) eřitlięine gre yalıtım malzemelerinin katkılanma oranları PEG-uucu kl, PEG-Barit ve PEG-mermer tozu iin; 83.73, 83.57 ve 83.75'dir. Katkılanma yzdeleri deęerlendirildięinde kullanılan yalıtım malzemelerinin katkılanma oranlarının birbirine ok yakın olduęu ve olduka iyi bir katkılanma saęlandıęı belirlenmiřtir.

$$FDM(\text{aęırlık}\%) = \frac{\Delta H_{PEG-uucu\ kl,PEG-Barit\ ve\ PEG-mermer}}{\Delta H_{PEG}} \times 100\% \quad (1)$$

### 3.4. Termal Kararlılık

Faz deęiřtirici malzemelerin yalıtım malzemesi olarak kullanımı iin en önemli zelliklerinden biri de termal olarak kararlılıklarıdır. Faz deęiřtirici yalıtım malzemelerinin termal kararlılıklarını belirleyebilmek iin 15°C/dk ısıtma hızı ile 600 °C'ye kadar PEG, PEG-uucu kl, PEG-Barit ve PEG-mermer tozu ısıtma iřlemine tabi tutulmuřtur. řekil 8'de de grldęu gibi PEG'in oda sıcaklıęından 280°C'ye kadar kararlı kaldıęı ve bu sıcaklıktan bařlayarak 450°C'ye kadar %100'e yakınının tamamen bozunduęu belirlenmiřtir. PEG-uucu kln termal kararlılık eęrisi incelendięinde yaklaşık 290°C'ye kadar kararlı kaldıęı bu sıcaklıkta bařlayan bozunmanın 461°C'ye kadar devam ettięi ve bu sıcaklık aralıęında meydana gelen aęırlık kaybının %85.6 olduęu tespit edilmiřtir. PEG-Baritin termal eęrisi incelendięinde ise faz deęiřtirici malzemenin 259 °C'ye kadar kararlı kaldıęı bu sıcaklıkta bařlayan bozunmanın %92.8'lik aęırlık kaybı ile 460 °C'de tamamlandıęı gzlemlenmiřtir. PEG-mermer tozuna ait TGA eęrisi incelendięinde faz deęiřtirici malzemenin yaklaşık 290 °C'ye kadar kararlı kaldıęı ve bu sıcaklıkta bařlayan bozunmanın 460 °C'de %13.3'lk bir aęırlık kaybı ile tamamlandıęı gzlemlenmiřtir.



řekil 8. PEG (a), PEG-uucu kl (b), PEG-Barit (c) ve PEG-mermer tozuna (d) ait TGA eęrisleri

### 3.5. Termal İletkenlik

Faz deęiřtirici malzemelerin ısı depolama kapasitelerinin önemli bir ölçüsü olan termal iletkenlikleri oda sıcaklığında KD2 pro cihazı ile alındı. Buna göre elde edilen termal iletkenlik deęerleri PEG, PEG-uçucu kül, PEG-Barit ve PEG-mermer tozu için sırasıyla; 0.065 W/mK, 0.069 W/mK, 0.058 W/mK ve 0.079 W/mK olarak bulunmuřtur.

## 4. Tartıřma

Çalıřmada polietilen glikolün uçucu kül, barit ve mermer tozu ile faz deęiřtirici malzemeleri ultrasonik karıřtırıcı yardımıyla üretilmiřtir. Elde edilen faz deęiřtirici yalıtım malzemelerinin yüzey morfolojisi SEM analizi ile aydınlatılmıřtır. Elde edilen faz deęiřtirici malzemelerle yalıtım malzemeleri arasında kimyasal etkileřip olup olmadıęı FT-IR cihazıyla belirlenmiřtir. FT-IR sonuçlarına göre PEG'in yalıtım malzemeleri ile katkılandıktan sonra yapısında kimyasal bir deęiřiklik meydana gelmedięi tespit edilmiřtir. DSC analizi ile elde edilen FDM'lerin erime-donma entalpileri ve erime-donma sıcaklıkları belirlenmiřtir. DSC analiz sonuçlarına göre PEG-uçucu kül ve PEG-baritin entalpi deęerleri katkılanma yapılan dięer FDM'lere göre daha yüksek çıkmıřtır. Entalpi deęerlerinin saf PEG'e göre daha düşük çıkmasının temel nedeni PEG içerisinde yalıtım malzemelerinin bulunmasından kaynaklanmaktadır. Termal kararlılıkları incelendięinde ise PEG-uçucu külün ve PEG-baritin 290 °C' ye kadar kararlı kaldıęı fakat PEG-uçucu külün %85.6'sının bozunduęu gözlemlenmiřtir. Sonuçların tamamı dikkate alındıęında iyi bir yalıtım malzemesi olarak özellikle PEG-uçucu külün ve PEG-baritin kullanılabileceęi belirlenmiřtir.

## Teřekkür

Çalıřmamızda SEM görüntülerini, DSC ve TG/DTA ölçümlerini alan Adıyaman Üniversitesi Merkezi Arařtırma Laboratuvarı personeli Kimya Mühendisi İlyas ŞAHİN'e teřekkür ederiz.

## Kaynaklar

- [1] Kuru A, Aksoy SA. Faz Deęiřtiren Maddeler ve Tekstil Uygulamaları. Tekstil ve Mühendis 2012; 19(86):41-48.
- [2] Alay S, Göde F, Alkan C. Preparation and Characterization of Poly(methylmethacrylate-co-glycidyl methacrylate)/n-hexadecane Nanocapsules as a Fiber Additive for Thermal Energy Storage. Fibers and Polymers 2010;11(8):1089-1093.
- [3] Mondal, S. Phase Change Materials for Smart Textiles – An Overview. Applied Thermal Engineering 2008; 28:1536–1550.
- [4] Alay S, Gode F, Alkan C. Isıl Enerji Depolama için Poli(etil akrilat)/hekzadekan Mikrokapsüllerin Üretilmesi ve Karakterizasyonu. Teknolojik Arařtırmalar Dergisi 2009; 3:33-46.
- [5] Konuklu Y, Paksoy HÖ. Faz Deęiřtiren Maddeler ile Binalarda Enerji Verimlilięi. X. Ulusal tesisat mühendislięi kongresi, İzmir, Türkiye; 2011.
- [6] Dinçer I, Rosen MA. Thermal Energy Storage, Systems and applications. England John Wiley&Sons; 2002.
- [7] Ghoneim AA, Klein SA, Duffie JA. Analysis of collector-storage building walls using phase-change materials. Solar Energy 1991;47; 237-242.
- [8] Mehling H, Hiebler S, Cabeza LF. News on the Application of PCMS for Heating and Cooling of Buildings. IEA, ECES IA Annex 17, Advanced thermal energy storage through phase change materials and chemical reactions-feasibility studies and demonstration projects. 3rd Workshop, Tokyo, Japan; 2002
- [9] Dikici D, Paksoy H, Kandırılmaz S. and Konuklu S. Availability of Cold for Injection with Borehole Thermal Energy Storage in Turkey. 9th International Conference on Thermal Energy Storage, Warsaw, Poland; 2003.

- [10] Gehlin SEA, Hellstrom G. Influence on Thermal Responce Test by Ground Water Flow in Veritical Fractures in Hard Rock. *Renewable Energy* 2003; 28; 2221- 2238.
- [11] Schossig P, Henning HM, Gschwander S, Haussmann T. Microencapsulated phase change materials integrated into construction materials. *Solar energy materials & Solar Cells* 2005; 89: 297-306.
- [12] Huang MJ, Eames PC, Hewitt NJ. The application of a validated numerical model to predict the energy conservation potential of using phase change materials in the fabric of a Building. *Solar energy Materials&Solar Cells* 2006; 90: 1951-1960.
- [13] Kissock K, Hanning M, Whitney TI, Drake ML. Testing and Simulation of phase change wallboard for thermal storage in buildings. *International Solar Energy Conference, New York, USA; 1998.*
- [14] Özönür, Y. Düşük Sıcaklıkta Termal Enerji Depolamasına Uygun Faz Değiştiren Maddelerin Mikrokapsüllemesi. *Ç.Ü. Fen Bilimleri Ens. Yüksek Lisans Tezi, Adana, 2004.*
- [15] Karaman S, Karaipekli A, Sarı A, Bicer A Polyethylene glycol (PEG)/diatomite composite as a novel form-stable phase change material for thermal energy storage. *Solar Energy Materials and Solar Cells* 2011; 95(7):1647–1653.
- [16] Sharma A, Tyagi VV, Chen CR, Buddhi D Review on thermal energy storage with phase change materials and applications. *Renewable & Sustainable Energy Reviews* 2009; 13: 318-345.
- [17] Wang W, Yang X, Fang Y, Ding J Preparation and performance of form-stable polyethylene glycol/silicon dioxide composites as solid-liquid phase change materials. *Applied Energy* 2009; 86: 170–174
- [18] Qian T, Li J, Min X, Deng Y, Guan W, Ma H Polyethylene glycol/mesoporous calcium silicate shape-stabilized composite phase change material: Preparation, characterization, and adjustable thermal property. *Energy*, 2015; 82: 333-340.
- [19] Xia L, Zhang P, Wang RZ Preparation and thermal characterization of expanded graphite/paraffin composite phase change material. *Carbon*, 2010; 48: 2538-2548.
- [20] Qian Y, Wei P, Jiang P, Li Z, Yan Y, Liu J Preparation of shape-stabilized co-crystallized poly (ethylene glycol) composites as thermal energy storage materials. *Applied Energy*, 2013; 106: 321-327.