

Atık Alüminyumdan Elde Edilen Matrisle Grafen Takviyesiyle Üretilen Kompozitlerin Özelliklerinin İncelenmesi[†]

Burak Öztop^{1*}, Mevlüt Gürbüz²

¹Merzifon Meslek Yüksekokulu, Amasya Üniversitesi, Türkiye

²Mühendislik Fakültesi, Makine Mühendisliği Bölümü, Ondokuz Mayıs Üniversitesi, Türkiye

*burak.oztop@amasya.edu.tr

Özet – Bu çalışmada, atık alüminyum içecek kutularından elde edilen matrisle ağırlıkça %0.1, %0.3 ve %0.5 oranlarında grafen takviyesi yapılmıştır. Karıştırmalı döküm yöntemi ile kompozit malzemeler üretilmiştir. Grafen yüzde ağırlık oranlarının, üretilen kompozitlerin yoğunluk, sertlik ve mikroyapısına olan etkisinin ne olduğunun ortaya çıkarılması amaçlanmıştır. Kompozitlerin kristal yapıları X-ışını difraktometresiyle (XRD), mikroyapıları ise taramalı elektron mikroskopuyla (SEM) analiz edilmiştir. Grafen yüzde ağırlık oranının artmasıyla sertlik, 70 HV'den 80,05 HV'ye yükselmiş ve en yüksek sertlik %0.1 takviye oranında elde edilmiştir. Mikroyapı analizlerine göre grafen plakaların Al tane sınırlarına yerleştiği görülmüştür.

Anahtar Kelimeler – Atık alüminyum içecek kutusu, grafen, alüminyum matrisli kompozit, karıştırmalı döküm, sertlik, mikroyapı.

Investigation of Properties of Composites Produced by Reinforcement Graphene Matrix Obtained from Waste Aluminium

Abstract – In this study, waste aluminum beverage cans were used as matrix materials which reinforced with %0.1, %0.3 and %0.5 wt. graphene. Stir casting method was used to fabricate composites. Effect of the graphene amount on density, hardness and microstructure of composites was purposed. The crystal structure and microstructure of the composites were analyzed with X-ray diffraction device (XRD) and scanning electron microscopy (SEM). From the results, the hardness of composites increased from 70 HV to 80.05 HV for % 0.15 graphene amount. According to microstructural analyses the graphene was located to aluminum grain boundaries.

Keywords – Waste aluminium beverage can, graphene, aluminium matrix composite, stir casting, hardness, microstructure.

I. GİRİŞ

Enerji, iletişim, ulaşım, havacılık ve uzay sektörlerindeki teknolojik gelişmelerin sonucunda yeni malzemelere olan gereksinim artmıştır. Bundan dolayı, günümüz teknolojisinin ihtiyaçlarını karşılayabilecek ve konvansiyonel malzemelere göre daha yüksek özgül mukavemet, yüksek sertlik, yüksek aşınma direnci, yüksek ısı direnç ve düşük yoğunluk gibi üstün özellikler sergileyen kompozit malzemelerin üretimi ve kullanımı gün geçtikçe artmaktadır [1], [2]. Kompozit malzemeler matris türüne bağlı olarak, polimer matrisli kompozit (PMK), seramik matrisli kompozit (SMK) ve metal matrisli kompozit (MMK) şeklinde üç ana sınıfa ayrılmaktadır [3]. MMK üretiminde matris olarak sünek metaller olan Al, Mg, Zn, Cu, Ti ve Ni veya bunların alaşımları kullanılmaktadır; takviye malzemesi olarak ise silisyum karbür (SiC), bor (B), grafit, alümina (Al₂O₃), tungsten (W) ve molibden (Mo) gibi bir çok takviye türleri kullanılmaktadır [4], [5]. Son yıllarda teknolojik gelişmeler doğrultusunda, yüksek dayanım ve hafifliğin öne çıktığı, fiyatın ise ikincil önemde kaldığı otomotiv endüstrisi ile uzay ve havacılık sektöründe yapılan araştırmalar, ağırlıklı olarak alüminyum matrisli kompozitler (AMK) üzerinde yoğunlaşmaktadır.

Genelde AMK'lar toz metalurjisi ya da sıvı faz yöntemleriyle üretilmekle birlikte parçacık takviyeli AMK'lar sıvı faz yoluyla daha kolay üretilmektedirler. Sıvı faz üretim tekniklerinde en çok kullanılan yöntemlerden biri hem düşük maliyetli hem de basit bir yöntem olması nedeniyle karıştırmalı döküm yöntemidir [3], [6], [7].

Grafen, karbon atomlarının tek düzlemde altıgen yapıda dizilmesi sonucu oluşan iki boyutlu, bir atom kalınlığında karbon allotropu bir yapıdır [8]. Bilinen en ince malzeme olan grafenin çekme mukavemeti 130 GPa ve elastisite modülü 1 TPa'dır [9]. Grafen bu üstün mekanik özellikleri nedeniyle kompozit üretiminde son yıllarda önemli bir takviye elemanı haline gelmiştir.

Alüminyum ve alaşımları, takviye malzemeleri ile fiziksel ve kimyasal uyumluluk, hafiflik, düşük yoğunluk, yüksek elektrik, yüksek ısı iletkenliğine sahip olmaları ve geniş uygulama alanları nedeniyle MMK'larda matris malzemesi olarak tercih edilmektedirler [2]. Son yıllarda inşaat, havacılık, uzay ve ulaştırma gibi birçok alanda kullanılan alüminyumun geri dönüşümü, hem doğal kaynakların hem de enerji kaynaklarının kullanımını azaltacağından çevrenin korunması açısından önemlidir [10]. İçecek kutuları, hem alüminyumun

[†] This is an extended version of a conference paper (ISMSIT2017).

en yaygın kullanıldığı alanlardan biri olarak hem de alüminyum geri dönüşüm piyasasının temel taşı olarak karşımıza çıkmaktadır [11], [12]. Bu bilgiler doğrultusunda, endüstriyel olarak tekrar değerlendirilebilir özellikte olan atık alüminyum içecek kutularının kompozit malzeme üretiminde matris malzemesi olarak kullanılması ile üretim maliyetleri düşürülerek AMK malzemelerin ticari kullanımının yaygınlaşacağı öngörülmektedir.

Wang vd, toz metalurjisi yöntemi ile ağırlıkça %0,3 oranında grafen nanotabaka takviyeli alüminyum kompozit üretmişler ve takviyesiz Al matrise göre kompozitin çekme dayanımının %62 arttığını belirlemişlerdir [13]. Rashad vd, ağırlıkça %0,3 oranında grafen takviyesi sonucu saf alüminyumun çekme dayanımı ile sertliğinin arttığını, basma dayanımının ise düştüğünü gözlemlenmişlerdir [14]. Gao vd, toz metalurjisi yöntemi ile ağırlıkça %0.1, 0.3 ve 0.5 oranında grafen takviyeli alüminyum kompozit üretmişlerdir. Grafen takviyeli alüminyum kompozitlerin çekme dayanımı başlangıçta artmakla birlikte grafen takviyesinin artmasıyla azalmış ve kompozitin grafen içeriği %0.3 olduğunda çekme dayanımı maksimuma ulaşmıştır [15]. Venkatesan ve Xavior, karıştırma döküm yöntemi ile hazırladıkları %0.33, %0.55 ve %0.77 gibi farklı ağırlık oranlarında grafen takviyeli alüminyum metal matrisin mekanik özelliklerini incelemişlerdir. Çalışma sonucunda, karıştırma döküm yöntemiyle optimum sonuçların elde edilmesi için ağırlıkça %0.33 grafen oranını önermişlerdir [16]. Yapılan çalışmalardan görüldüğü üzere atık alüminyumun grafenle güçlendirilmesine yönelik çalışmaların bulunmaması ve pahalı toz metalurjisi yöntemlerine alternatif olması çalışmayı özgün kılmaktadır.

II. MATERYAL VE YÖNTEM

A. Matris ve Takviye Malzemesi

Bu çalışmada matris malzemesi olarak daha önce yapılmış çalışmalarda kullanılan saf alüminyum veya ticari alüminyum alaşımları yerine atık alüminyum içecek kutuları, takviye malzemesi olarak ise kalınlığı ortalama 5-8 nm, çapı yaklaşık 10 µm olan grafen kullanılmıştır. Grafen takviye oranları ağırlıkça %0.1, %0.3 ve %0.5 olarak belirlenmiş ve kompozit malzemelerin üretimi için karıştırmalı döküm yöntemi kullanılmıştır.

B. Kompozit Malzemelerin Üretimi

Kompozit üretimi için öncelikle matris malzemesi hazırlanmıştır. Hazırlanan bir ön ergitme düzeneğinde içecek kutuları yaklaşık 1000 °C sıcaklıktaki ergitme potasının içine sırayla atılarak, ergime öncesi üzerlerindeki boya tabakasının yanması sağlanmıştır. AMK malzeme üretimi için karıştırma sistemli elektrikli ergitme fırını tasarlanmış ve imalatı yapılmıştır. Dış pota, paslanmaz çelik malzemeden imal edilmiştir. Dış pota üzerine bağlanan 1,5 kW gücünde tek panjurlu seramik plakalı rezistans yardımıyla sıcaklığı 900 °C'ye kadar çıkabilen bir elektrikli fırın elde edilmiştir. Fırın içerisindeki sıcaklığın kontrolü için tek modüllü kontrol cihazı ve standart 8 mm rakorlu M12 K-tip termokupl kullanılmıştır. Hem ergitme hem de döküm potası olarak kullanılacak şekilde fırının içerisine paslanmaz çelikten yapılan bir başka pota yerleştirilmiştir. Takviye malzemesinin matris içerisine karıştırılabilmesi için devir sayısı ayarlanabilen (200–3000 rpm) masa üstü mekanik karıştırıcı kullanılmıştır. Mekanik

karıştırıcıda kullanılan karıştırma mili, paslanmaz çelik malzemeden ve bir ucu 40 mm çapında dört kanatlı olarak imal edilmiştir.

Atık alüminyumdan elde edilen matris malzemeleri, hassas terazide tartılarak ağırlıkları tespit edilmiştir. Tespit edilen bu ağırlıklara göre de grafen parçacıkları, belirlenmiş olan ağırlıkça yüzde takviye oranlarına (%0.1, %0.3 ve %0.5) göre tartılarak hazırlanmıştır. Ergitme fırınının sıcaklığı 700-750 °C'ye çıkarılarak, grafen ilaveli matris malzemesi ergitme potasının içine konulmuştur. Potadaki matris malzemesi ergidikten sonra karıştırma işlemi sırasında sıvı metalin takviye malzemesini iletme yeteneğini arttırmak ve matris-takviye ara yüzeyi oluşturmak için sıcaklık 630-650 °C arasına indirilmiştir. Eriyik karışım, 400 rpm hızla 5 dakika karıştırılmıştır. Sıcaklık 700 ±10 °C'ye çıkarılarak karışım yine aynı hızla 1 dakika daha karıştırılarak homojenleştirme yapılmıştır. Karışım bu sıcaklıkta 10 dakika bekletilmiş ve döküm işleminden hemen önce yüzeyindeki oksit filmi alınmıştır. Daha sonra karışım, önceden ısıtılmış (450-500 °C) metal kalıba dökülmüştür. Katılaşmaya kadar kalıp içinde bekletilen kompozit malzeme, sonrasında kalıptan çıkarılarak soğuması için oda sıcaklığında bekletilmiştir.

Numuneler Çizelge 2.1'de gösterildiği şekilde kodlanmıştır.

Çizelge 2.1. Malzeme kodları

Malzeme	Kod
Al	AL
Al - % 0.1 Grafen	ALGR01
Al - % 0.3 Grafen	ALGR03
Al - % 0.5 Grafen	ALGR05

C. Yoğunluk ve Porozite Ölçümü

Üretilen kompozit malzemelerin ve takviyesiz matris malzemesinin deneysel olarak yoğunluk ölçümleri Arşimet prensibi kullanılarak gerçekleştirilmiştir. Karışımlar kuralına [(matris yoğunluğu x yüzde matris ağırlık oranı) + (takviye malzemesi yoğunluğu x yüzde takviye ağırlık oranı)] göre ise teorik yoğunlukları belirlenmiştir. Malzemelerin teorik yoğunluk ile ölçülen gerçek yoğunluk değerleri kullanılarak porozite oranları,

$$\% \text{ porozite} = \left(\frac{\rho_{\text{teorik}} - \rho_{\text{deneysel}}}{\rho_{\text{teorik}}} \right) \cdot 100 \quad (1)$$

formülü ile hesaplanmıştır.

D. Sertlik Ölçümü

Takviyesiz matris malzemesinin ve üretimi yapılan kompozit malzemelerin sertliklerini tespit etmek ve artan ağırlıkça takviye oranlarına bağlı olarak kompozit malzemelerde meydana gelen sertlik değişimlerini belirlemek için sertlik ölçümleri Vickers sertlik ölçüm yöntemi kullanılarak gerçekleştirilmiştir. TMTECK marka HV-1000B tipi sertlik ölçüm cihazında 20 saniye süre ile 1.96 N (200 g) yük altında her bir numune için 6 kez ölçüm yapılmış ve ölçülen değerlerin ortalamaları alınarak sertlik değerleri tespit edilmiştir.

E. Mikroyapı Analizi

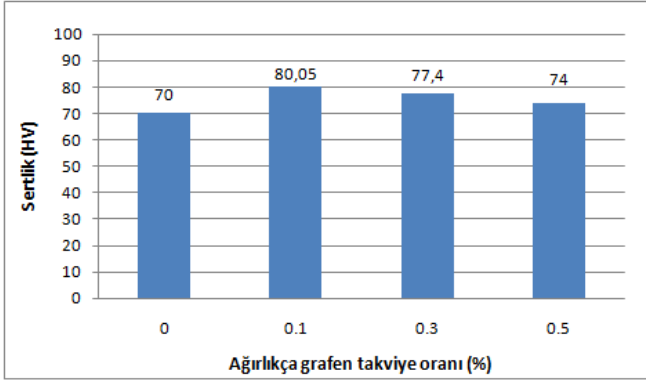
Üretimi gerçekleştirilen kompozitlerin ve takviye malzemesi olarak kullanılan grafenin X-ışınları kırınım (XRD) analizleri, Rigaku Smartlab marka X ışını kırınım cihazı ile

gerçekleştirilmiştir. Ayrıca hem grafenin mikroyapı analizi hem de kompozitlerden hazırlanan numunelerin kırık yüzeylerinden gerçekleştirilen mikroyapı incelemeleri için EDS donanımlı Jeol JSM 7001F tipi taramalı elektron mikroskobu (SEM) kullanılmıştır.

III. BULGULAR VE TARTIŞMA

A. Sertlik

Takviyesiz matris malzemesi ile grafen takviyeli kompozit malzemelerin sertlik değerleri grafik olarak Şekil 3.1'de verilmiştir.

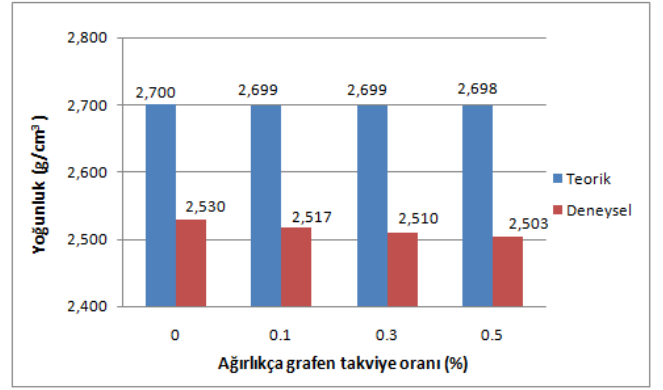


Şekil 3.1. Grafen yüzde ağırlık oranı ile sertlik değişimi

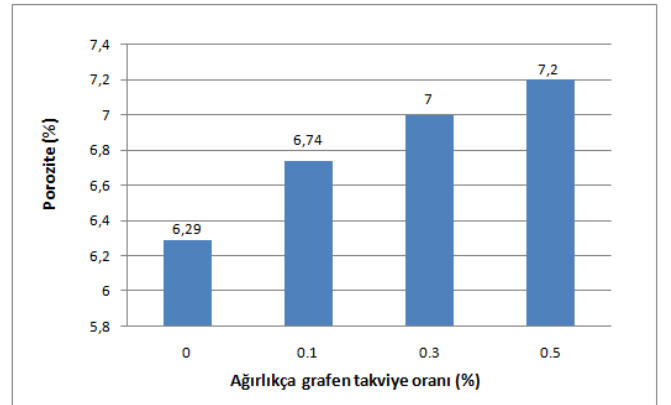
Grafen yüzde ağırlık oranının artmasıyla kompozit malzemelerin sertliği 70 HV'den 80,05 HV'ye kadar artmış ve en yüksek sertlik ağırlıkça %0.1 takviye oranında elde edilmiştir. Bu oranın üzerindeki ilavelerde ise matrise göre sertlik değerleri daha fazla olmasına rağmen takviye oranının artmasıyla sertliğin düştüğü belirlenmiştir. Takviye oranının artmasıyla kompozitlerin sertliğinde görülen artış, takviye malzemesinin sertliğinin yanı sıra aynı zamanda matris içerisinde toplanmadan homojen olarak dağılması sonucu gerçekleşmektedir. Tozların birbiriyle etkileşime girmesi, homojen olmayan toprakların oluşmasına ve dolayısıyla da sertliğin düşmesine neden olmaktadır. [17]. Ağırlıkça %0.1'in üzerinde takviye oranında sertlik değerinin gittikçe azalmasının, bu duruma bağlı olarak gerçekleştiği düşünülmektedir.

B. Yoğunluk ve Porozite

Takviyesiz matris malzemesinin ve kompozit malzemelerin teorik ve deneysel yoğunlukları Şekil 3.2'de, takviye oranlarına göre porozite oranlarının değişimi ise Şekil 3.3'de verilmiştir. Grafenin yoğunluğunun, matrisin yoğunluğundan düşük olması nedeniyle ağırlıkça takviye oranlarının artmasıyla, kompozit malzemelerin yoğunluklarının da azaldığı görülmüştür. Porozite oranları ise kompozitler içindeki grafen takviye oranının artmasıyla artmıştır. Bu sonuç daha önceki çalışmalarda da gözlenmiştir [6], [18]-[20].



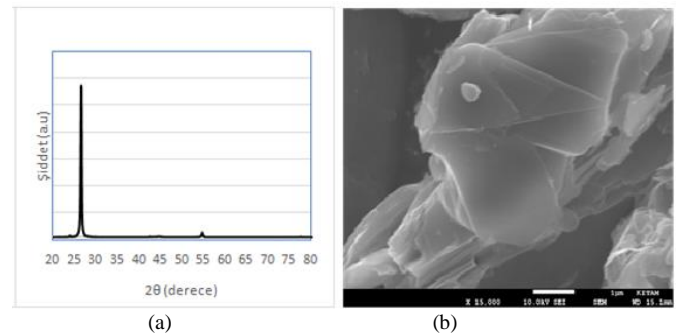
Şekil 3.2. Grafen takviye oranlarının artışıyla yoğunluk değişimi



Şekil 3.3. Grafen takviye oranlarının artışıyla porozite değişimi

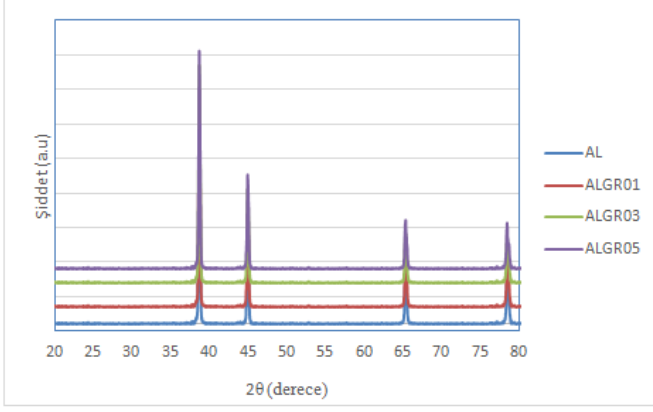
C. Mikroyapı

Şekil 3.4'de kompozit üretiminde kullanılan grafenin XRD ve SEM analizleri verilmiştir. XRD analizinden kullanılan tozların tamamen grafen olduğu, SEM analizinden ise kullanılan grafenin üst üste istiflenmiş ve tabakalı bir yapıda olduğu görülmektedir.



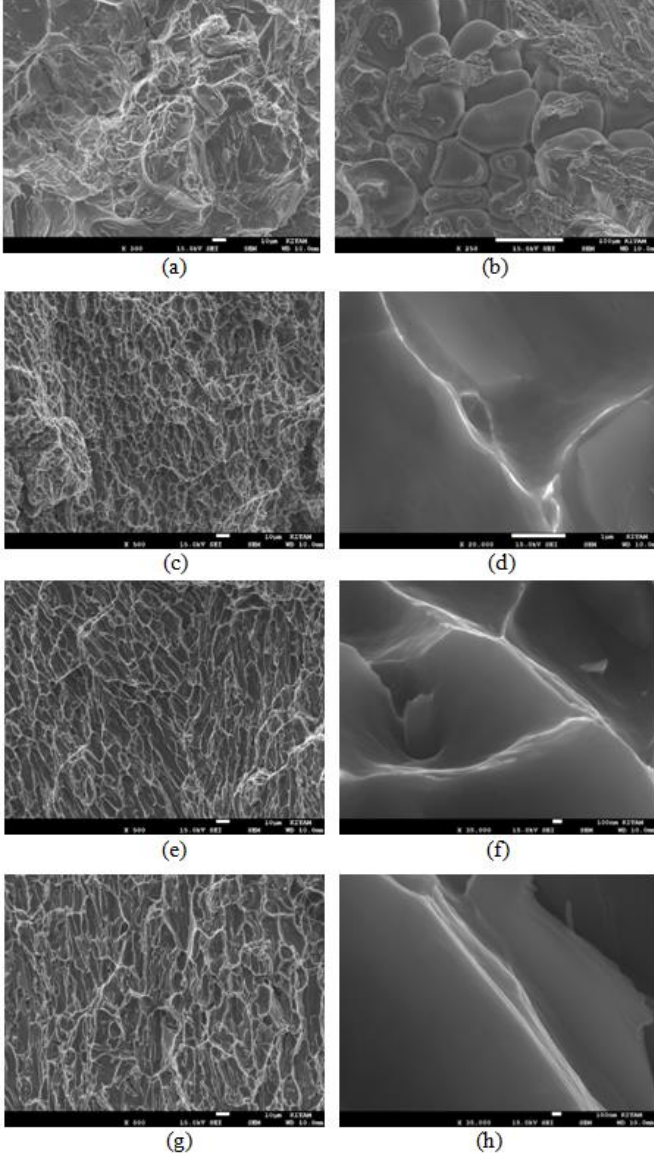
Şekil 3.4. Grafen tozlarının XRD örgü deseni (a) ve SEM analizleri (b)

Şekil 3.5'de ise grafen takviyeli alüminyum kompozitlerin XRD örgü deseni verilmiştir. Şekilden görüldüğü üzere yapıda grafene ait pikin bulunmaması; kullanılan grafen miktarının eser miktarda olması ve cihazın deteksiyon limitinin düşük olmasından kaynaklanmaktadır.



Şekil 3.5. Takviyesiz ve grafen takviyeli Al kompozitlerin XRD örgü deseni

Şekil 3.6'da, üretilen grafen takviyeli kompozitlerin SEM görüntüleri bulunmaktadır. Kırık yüzey SEM görüntülerinden grafen plakaların (aydınlık bölgeler), Al tane sınırlarına yerleştiği görülmektedir. Grafen plakaların tane sınırlarında bariyer olarak davranarak dislokasyon hareketini engellediği ve mukavemet artışı sağladığı öngörülmektedir.



Şekil 3.6. Takviyesiz ve grafen takviyeli Al kompozitlerin kırık yüzey görüntüleri: (a-b) AL, (c-d) ALGR01, (e-f) ALGR03, (g-h) ALGR05

IV. SONUÇ

- 1) Atık alüminyum içecek kutularından elde edilen matrisle grafen takviyesiyle kompozit malzemelerin üretimi, karıştırma döküm yöntemi kullanılarak başarılı bir şekilde gerçekleştirilmiştir.
- 2) Takviye yüzde ağırlık oranının artmasıyla sertlik, 70 HV'den 80,05 HV'ye yükselmiş ve en yüksek sertlik %0.1 takviye oranında elde edilmiştir. Bu oranın üzerindeki ilavelerde ise matrisle göre sertlik değerleri daha fazla olmasına rağmen, artan grafen miktarıyla topaklanma eğiliminin artması sonucu sertliğin düştüğü belirlenmiştir.
- 3) Takviye yüzde ağırlık oranının artmasıyla, kompozit malzemelerin yoğunluklarının azaldığı, porozitenin ise arttığı tespit edilmiştir.
- 4) Grafen takviyeli kompozitlerin kırık yüzey SEM görüntülerinden, grafen plakaların Al tane sınırlarına yerleştiği ve homojen dağıldığı görülmüştür.

KAYNAKÇA

- [1] Ö. Özkök, "α-Si₃N₄ içeren alüminyum matrisle kompozit malzeme üretimi ve özelliklerinin araştırılması," *Yüksek Lisans Tezi, Gazi Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Metal Eğitimi Anabilim Dalı*, Ankara, Türkiye, Nisan 2004.
- [2] C. Kılıç, "Sıkıştırma döküm yöntemi ile üretilmiş ve soğuk haddelenmiş AlMg₃/SiCp kompozitinin aşınma özelliklerinin incelenmesi," *Yüksek Lisans Tezi, Trakya Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Makina Mühendisliği Anabilim Dalı*, Edirne, Türkiye, Ağustos 2008.
- [3] M.K. Surappa, "Aluminum matrix composites: Challenges and opportunities," *Sadhana*, vol. 28, no. 1-2, pp. 319-334, February/April 2003.
- [4] O. Toprak, "AlMg₃/SiCp kompozitlerinin basma dayanımı özelliklerinin incelenmesi," *Yüksek Lisans Tezi, Trakya Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Makina Mühendisliği Anabilim Dalı*, Edirne, Türkiye, Şubat 2010.
- [5] E. Şahin, "AlMg₃/SiCp kompozit malzemelerinin darbe davranışının takviye oranı ile değişiminin incelenmesi," *Yüksek Lisans Tezi, Trakya Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Makina Mühendisliği Anabilim Dalı*, Edirne, Türkiye, Ağustos 2011.
- [6] G. Sur, Y. Şahin ve H. Gökkaya, "Ergimiş metal karıştırma ve basınçlı döküm yöntemi ile alüminyum esaslı tanecik takviyeli kompozitlerin üretimi," *Gazi Üniversitesi Mühendislik-Mimarlık Fakültesi Dergisi*, vol. 20, no. 2, pp. 233-238, Mart 2005.
- [7] J. Hashim, L. Looney and M.S.J. Hashmi, "Metal matrix composites: production by the stir casting method," *Journal of Materials Processing Technology*, vol. 92-93, pp. 1-7, August 1999.
- [8] M. C. Şenel, M. Gürbüz ve E. Koç, "Grafen takviyeli alüminyum matrisli yeni nesil kompozitler," *Mühendis ve Makina*, vol. 56, no. 669, pp. 36-47, Ağustos 2015.
- [9] C. Lee, X. D. Wei, J. W. Kysar and J. Hone, "Measurement of the elastic properties and intrinsic strength of monolayer graphene," *Science*, vol. 321, pp. 385-388, July 2008.
- [10] D. Pulat, M. Altubay, E. Erzi, Ç. Yüksel ve D. Dışpınar, "Alüminyum geri dönüşümünde verimlilik ve akışkanlığın incelenmesi," *15th International Materials Symposium (IMSP 2014)*, 2014, pp. 905-909.
- [11] Ç. Ediz, "Alüminyumun geri dönüşüm süreci ve süreçte kullanılan malzemelerin alüminyum bileşenlerine etkileri," *Yüksek Lisans Tezi, Bilecik Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Makina ve İmalat Mühendisliği Anabilim Dalı*, Bilecik, Türkiye, 2011.
- [12] N. İzgi, "Alüminyumun geri dönüştürülmesi ve özelliklerinin geliştirilmesi," *Yüksek Lisans Tezi, İstanbul Teknik Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Metalurji ve Malzeme Mühendisliği Anabilim Dalı*, İstanbul, Türkiye, Mayıs 2011.

- [13] J. Wang, Z. Li, G. Fan, H. Pan, Z. Chen and D. Zhang, "Reinforcement with graphene nanosheets in aluminum matrix composites," *Scripta Materialia*, vol. 66, no.8, pp. 594–597, January 2012.
- [14] M. Rashad, F. Pan, A. Tang and M. Asif, "Effect of graphene nanoplatelets addition on mechanical properties of pure aluminum using a semi-powder method," *Progress in Natural Science: Materials International*, vol. 24, no.2, pp. 101-108, April 2014.
- [15] X. Gao, H. Yue, E. Guo, H. Zhang, X. Lin, L. Yao and B. Wang, "Preparation and tensile properties of homogeneously dispersed graphene reinforced aluminum matrix composites," *Materials & Design*, vol. 94, pp. 54-60, January 2016.
- [16] S. Venkatesan and M. A. Xavier, "Mechanical behaviour of aluminium metal matrix composite reinforced with graphene particulate by stir casting method," *Journal of Chemical and Pharmaceutical Sciences*, vol. 10, no. 1, pp.55-59, January - March 2017.
- [17] M. Singla, D. D. Dwivedi, L. Singh and V. Chawla, "Development of aluminium based silicon carbide particulate metal matrix composite," *Journal of Minerals and Materials Characterization and Engineering*, vol. 8, no. 6, pp. 455-467, 2009.
- [18] M. Kok, "Production and mechanical properties of Al₂O₃ particle reinforced 2024 aluminium alloy composites," *Journal of Materials Processing Technology*, vol. 161, no. 3, pp. 381-387, 2005.
- [19] U. Çöçen, K. Önel and İ. Özdemir, "Microstructures and age hardenability of Al-5%Si-0.2%Mg based composites reinforced with particulate SiC", *Composites Science and Technology*, vol. 57, no. 7 pp. 801-808, 1997.
- [20] İ. Özdemir, Ü. Çöçen and K. Önel, "The Effect of forging on the properties of particulate – SiC - reinforced aluminium - alloy composites", *Composites Science and Technology*, vol. 60, no.3, pp. 411-419, February 2000.