

GAZİ

JOURNAL OF ENGINEERING SCIENCES

## Production of Alumina-Silica Based Composite Aerogel Powder from Perlite, Diatomite, Zeolite and Chamotte Brick Mortar

Özge Kılınç<sup>a</sup>, Nil Toplan<sup>b</sup>

Submitted: 02.04.2024 Revised: 17.08.2024 Accepted: 24.10.2024 doi:10.30855/gmbd.0705AR08

### ABSTRACT

**Keywords:** Alumina-silica aerogel, perlite, diatomite, zeolite, chamotte brick mortar, sol-gel

<sup>a</sup> Sakarya University,  
Faculty of Engineering,  
Dept. of Metallurgical and Materials  
Engineering  
54050 - Sakarya, Türkiye  
Orcid: 0000-0003-4051-3970  
e mail: [ozgekilinc1998@gmail.com](mailto:ozgekilinc1998@gmail.com)

<sup>b</sup> Sakarya University,  
Faculty of Engineering,  
Dept. of Metallurgical and Materials  
Engineering  
54050 - Sakarya, Türkiye  
Orcid: 0000-0003-4130-0002  
e mail: [toplan@sakarya.edu.tr](mailto:toplan@sakarya.edu.tr)

\*Corresponding author:  
[ozgekilinc1998@gmail.com](mailto:ozgekilinc1998@gmail.com)

In this study, alumina-silica based aerogel powder was produced by the sol-gel method under atmospheric drying conditions using natural raw materials such as perlite, diatomite and zeolite as silica source and chamotte brick mortar as alumina source. Silica aerogels have superior properties such as low density, high porosity and thermal insulation. However, their dimensional stability and mechanical strength are poor at high temperatures. Alumina-silica based aerogel compositions have the potential to expand their application areas with a significant improvement in material performance. In this study, powders (perlite, diatomite, zeolite and chamotte brick mortar) were used as silica and alumina sources, NaOH, HCl as base and acid sources and ethanol to strengthen the gel structure. The powders were dissolved by boiling in NaOH solutions and neutralised after filtration. The gel was surface modified with ethanol at room temperature. The powders dried at 120°C at atmospheric pressure for 2 days were characterized using FTIR, XRD, SEM, and BET devices, and the densities of aerogel powders were calculated. As a result of the experimental studies and analyses, it was determined that alumina-silica aerogel powders with superior properties were synthesised by atmospheric pressure drying technique.

## Perlit, Diatomit, Zeolit ve Şamot Tuğla Harcından Alümina-Silika Esaslı Kompozit Aerojel Tozu Üretimi

### ÖZ

Bu çalışmada, alümina-silika esaslı aerojel tozu; silika kaynağı olarak perlit, diatomit ve zeolit gibi doğal hammaddeler ve alümina kaynağı olarak şamot tuğla harcı kullanılarak atmosferik basınçta kurutma koşulları altında sol-jel yöntemiyle üretilmiştir. Silika aerojeller düşük yoğunluk, yüksek gözeneklilik ve ısı yalıtımı gibi üstün özelliklere sahiptir. Bununla birlikte, boyutsal kararlılıkları ve mekanik mukavemetleri yüksek sıcaklıklarda zayıftır. Alümina-silika esaslı aerojeller, malzeme performansında önemli bir iyileşme ile uygulama alanlarını genişletme potansiyeline sahiptir. Çalışmada silika ve alümina kaynağı olan tozlar (perlit, diatomit, zeolit ve şamot tuğla harcı), baz ve asit kaynağı olarak NaOH, HCl ve jel yapısını güçlendirmek için etanol kullanılmıştır. NaOH çözeltilerinde kaynatılarak çözüldürülen tozlar, filtrasyon işleminin ardından nötrale edilmiştir. Jelin, oda sıcaklığında etanol kimyasal yüzey modifikasyonu yapılmıştır. 2 gün boyunca atmosferik basınçta 120°C'de kurutulmuş tozlar F kullanılarak karakterize edildi. Atmosferik basınçta 120°C'de 2 gün boyunca kurutulmuş aerojel tozları FTIR, XRD, SEM ve BET cihazları kullanılarak karakterize edilmiş ve yoğunlukları hesaplanmıştır. Atmosferik basınçta kurutma tekniği ile üstün özelliklere sahip alümina-silika esaslı aerojel tozlarının sentezi gerçekleştirilmiştir.

**Anahtar Kelimeler:** Alümina-silika aerojel, perlit, diatomit, zeolit, şamot tuğla harcı, sol-jel

## 1. Giriş (Introduction)

Aerogeller %99 oranında yapılarında hava barındırdıkları için en düşük yoğunluğa ( $0,001-0,5 \text{ g/cm}^3$ ) sahip açık gözenekli malzemelerdir [1]. İçinde barındırdığı açık gözenekler malzemenin içini bir ağ gibi kuşatarak düşük termal iletkenlik katsayısı ve düşük dielektrik sabiti gibi özellikler sağlamaktadır. Gözenekli ve nanoboyutlu parçacıklardan oluşan özgün mikroyapıları nedeniyle oldukça fazla uygulama alanlarına sahiptirler ve farklı yöntemler ile üretilebilmektedir [2]. Aerogeller yüksek yüzey alanı, düşük yığın yoğunluğu, yüksek çapraz bağlanabilme kabiliyetleri ve sürekli gözeneklilik gibi üstün özelliklerinden dolayı ısı yalıtım malzemeleri, katalizör, dolgu maddeleri ve adsorban malzemeleri gibi birçok sektörde kullanılmaktadır [3]. Alümina-silika esaslı aerogeller düşük ısı iletkenlikleri nedeniyle sıcaklığa duyarlı, enerji verimli ürünler elde etme yetenekleri ve diğer yalıtım malzemelerinden çok daha üstün özelliklere sahip olmaları sebebiyle ısı yalıtımı uygulamaları için büyük potansiyele sahiptirler [4]. Aerogeller sentetik hammaddelerin yanı sıra atık ve doğal malzemeler kullanılarak da elde edilebilmektedir. Bilinen aerogel türleri; silika aerogeller, alümina aerogeller, karbon aerogeller ve diğer aerogeller (kompozit, nanotüp, yarı iletken metal aerogeller ve polimer aerogeller vb.) şeklindedir [5].

Yapılan çalışmalarda silika matrisine daha yüksek boyutsal kararlılığa ve termal stabiliteye sahip bir refrakter fazın (alümina) eklenmesi ile gözenek stabilitesinin ve düşük termal iletkenlik değerlerinin ( $81 \text{ mWm}^{-1}\text{K}^{-1}$ 'in altında)  $1200-1400^\circ\text{C}$ 'ye kadar korunduğu görülmüştür [6]. Saf alümina aerogeller, genellikle düşük termal iletkenliğe sahiptir. Ancak, alümina-silika kompozit aerogellerde silika bulunması, bu malzemelerin termal iletkenliğini artırabilir [7]. Dolayısıyla, kompozitler genellikle saf alümina aerogellerden daha yüksek bir termal iletkenliğe sahip olabilirler. Silika, alüminaya kıyasla daha düşük mekanik dayanıklılığa sahiptir. Bu durum, alümina-silika kompozit aerogellerin genellikle saf alümina aerogellerden daha az, silika aerogellerden daha fazla mekanik dayanıklılığa sahip olabileceği anlamına gelmektedir [8]. Alümina, genellikle kimyasal olarak inert bir malzeme olarak kabul edilirken, silika bazı kimyasallara karşı daha hassas olabilir. Bu, kompozit aerogellerin kimyasal dayanıklılığının saf alümina aerogellere kıyasla değişebileceği anlamına gelmektedir. Alümina-silika kompozit aerogeller, belirli uygulama alanlarında (örneğin, belirli sıcaklık veya kimyasal koşullarda) daha uygun olabilirken, saf alümina aerogeller diğer durumlarda daha avantajlı olabilir [9,10]. Alümina-silika kompozit aerogellerin yüzey özellikleri, saf alümina aerogellerden farklı olmaktadır [8].

Aerogeller sol-jel prosesi ile çözeltiye alma-jelleştirme, yaşlandırma ve kurutma aşaması olmak üzere 3 temel adımda üretilmektedir [5]. Çözeltiye alınabilen tüm doğal hammaddeler/atıklarla başlatılan üretim süreci; kurutma tipine göre (süper kritik, dondurucu ve atmosferik şartlarda kurutma gibi) değişik özellikler sergilemektedir. Sol-jel yöntemi ile jel hazırlama, yaşlandırma ve kurutma aşamalarından geçirilerek alümina-silika kompozit aerogellerin üretiminin ilk aşamasında silika ve alümina kaynakları ayrı ayrı olarak çözeltiye alınabilmektedir Alümina ve silika sol çözeltilerinin birleştirilmesiyle hazırlanan çözeltiye katalizör eklendiğinde jelleşme meydana gelmektedir. Yaşlanma aşamasında, alümina-silika ağına yeni monomerlerin eklenmesi ile [11,12], aerogellerin stabilitesi ve gücü artarak jel bağları güçlenmektedir [3]. Alümina-silika aerogel yapısındaki bağları güçlendirmek ve malzemenin mukavemetini arttırmak için yaşlandırma aşamasında yüzey modifikasyonu yapılmaktadır. Sol-jel yöntemi ile jelin porozitesi, yoğunluğu ve diğer fiziksel özelliklerinde değişiklikler yapılarak, son ürünün istenen özellikleri belirlenebilmektedir [13,14].

Şamot ateş tuğlası en çok kullanılan refrakter malzemelerden biridir [15] ve yapısındaki ağ. %53 üzerindeki alümina sayesinde mevcut çalışmada alümina kaynağı olarak kullanılmıştır. Silika kaynağı olarak diatomit (% ağ.  $85 \text{ SiO}_2$ ), perlit (% ağ.  $74 \text{ SiO}_2$ ) ve zeolit (% ağ.  $72 \text{ SiO}_2$ ) kullanılmıştır.

Şamot ateş tuğlasının yüksek sıcaklık dayanımı ve izolasyonu sağlama yeteneği sayesinde sanayide %55 seviyelerinde metalürji, petrokimya ve rafineri, seramik ve cam ergitme sektörlerinde kullanılmaktadır [15]. Bina yapımında kullanılmayan atık tuğlalar şamot haline getirilebilir [16]. Genellikle feldspatik kayaların çözünmesi sonucu oluşan kil yapısında çözünme esnasında oluşan mineralleri de yapılarında barındırabilirler. Şamot (ateş) killerinin toplam 100 milyon ton civarındaki rezervinin 66 milyon tonu İstanbul'da Sarıyer, Eyüp, Şile, Büyükdere ve Rami, kalanı Çankırı-Korkun, Bilecik-Söğüt-İnhisar ve Kayseri-Selahiye-Badanlık'ta bulunmaktadır [15].

Diatomitin farklı kullanım alanlarına yönelik birçok araştırma yapılmıştır. Bu araştırmaların; filtrasyon işlemleri, katkı maddesi veya dolgu malzemesi, katalizör taşıyıcısı, kimyasal madde hazırlanmasında

silika kaynağı, izolasyon ve refrakter malzemesi üretiminde, hafif yapı malzemesi ve seramik hammaddesi olarak kullanımı ile diğer kullanım alanlarına yönelik birçok araştırmalar olduğu görülmektedir [17]. Türkiye'nin diatomit rezervi 125 milyon tondur [18]. Tonak ve ark., diatomit atıklarının farklı oranlarda portland çimentosu klinkerine katılarak çimento üretiminde [19], Gökçe, diatomitin üre-formaldehit bağlayıcısıyla birlikte hafif yapı elemanı üretiminde [20], Ünal ve Uygunoğlu, diatomit agregalarının hafif beton üretiminde kullanılabilirliğini araştırmışlardır [21]. Bu kaynakların bolluğu ve endüstriyel atıkların büyük miktarda üretilmesi, üretimi karlı hale getirebilmektedir.

Silika kaynağı olarak kullanılan perlit, doğal olarak oluşan silika esaslı volkanik kayalara verilen isimdir [3]. Perlit diğ er volkanik tozlardan ayıran en önemli özelliğ i yumuşama sıcaklığı civarında ısıtıldığında orijinal hacminin yaklaşık 20 katına kadar çıkabilmesidir. Dünya rezervinin büyük çoğunluğ u Türkiye'de olan perlit hammaddesi 870°C'nin üzerine hızla ısıtıldığında termal olarak genleşerek çok sayıda gözenek oluşturabildiğ inden [22]; bu gözenek yapısı sayesinde mükemmel ısı ve ses yalıtım özelliğ i göstermektedir [23]. Perlit, inşaat malzemeleri endüstrisinin yanı sıra tarım, bahçecilik vb. alanlarda da değerli bir hafif malzemedir. Genleştirilmiş perlitin hem üretimi hem de işlenmesi sırasında, bir miktar ince taneli atık perlit oluşmaktadır. Atık genleştirilmiş perlitin son derece düşük yağın yoğunluğ u nedeniyle taşınması, kullanılması zordur ve toz oluşumuna neden olmaktadır [23]. Atık genleştirilmiş perlitin; Kotwica ve arkadaşlarınca yüksek performanslı puzzalonik çimentoda [24], El Mir ve G. Take tarafından betonda dolgu malzemesi olarak [25] kullanımı araştırılmıştır. Jia ve arkadaşları ise genleştirilmiş perlitin gözenekli yapısına aerogelin doldurulmasıyla binalarda yeni bir ısı yalıtım malzemesi kompoziti aerogel/genleştirilmiş perlit (AEP) üretiminde [26] kullanımı ile ilgili çalışmalar yapmışlardır.

Zeolitler 1756 yılında İsveçli mineralog Axel Fredrik Cronstedt tarafından keşfedilen yüksek yüzey alanına (350–450 m<sup>2</sup>/g) neden olan, moleküler boyutlarda düzenli ve tek tip gözeneklere ve kanallara sahip mikro gözenekli kristalli alümina silikatlardır. Zeolitler büyük ölçekte üretilmektedir saf silis içeriğ i, düşük yoğunluğ u, hafifliğ i, gözenek boyutu ve yapısı sayesinde adsorban olarak, su arıtmada, gaz ayırmada, ilaç taşınımında, tarımda, fotovoltaiik güneş pillerinde, petrol rafinasyonunda, tarım hayvancılıkta, metalürji malzeme ve petrokimya endüstrilerinde ve daha birçok alanda kullanılmaktadır. Zeolitler hidrotermal sentez yoluyla üretilmekte olup bu sürecin ilk adımı, silika ve alümina içeren amorf reaktanların bazik bir ortamda bir katyonla birlikte karıştırılmasıdır. Karışım sonrasında bir otoklavda 100°C'nin üzerine ısıtılarak bu sıcaklıkta amorf alüminosilikat hidrojelden kristal alüminosilikat zeolitlere dönüşümün gerçekleşmesi için bekletilir ve sonrasında filtrasyon, yıkama ve kurutma işlemlerinden sonra son haline getirilir. Zeolitler gözeneklilik, gözenek boyutu, asitlik, bazlık, yüzey alanı, yaklaşık 800°C'ye kadar termal kararlılık gibi birçok avantaja sahiptir ve özel gereksinimleri karşılamak üzere modifiye edilebilirler. Zeolitlerdeki gözenek boyutları 0,3-1,0 nm arasında değ işir [3,27,28]. Doğal ve saf zeolitlerin kullanımı 1950'li yıllardan sonra deniz ve gölsel tüflerde zeolit ham maddesine rastlanması ile yaygınlaşmaya başlamıştır [3]. Sashkina ve arkadaşları silika aerogel matrisine gömülü Fe içeren zeolit nanokristallere dayanan yeni kompozit malzeme üretmişler ve bu malzemenin; N<sub>2</sub>O ile benzenin fenole hidroksilasyonu, nitrik oksidin amonyak ile katalitik indirgenmesi, organik bileşiklerin değerli ürünler üretmek için hidrojen peroksit ile kısmi oksidasyonu, organik kirleticilerin toplam oksidasyonu yoluyla suyun arıtılması ve radyoaktif atıklardan radyonüklitlerin uzaklaştırılması gibi çeşitli uygulamalarda kullanılma potansiyeli taşıyacağı çalışma kapsamında vurgulanmıştır [28].

Bu çalışmada alümina-silika kompozit aerogelleri üretmek için pahalı sentetik malzemeler yerine şamot tuğla harcı, perlit, diatomit ve zeolit gibi doğal hammadde kaynakları kullanılarak daha ekonomik olarak ve çevre dostu üretim gerçekleştirilmiştir. Alümina-silika aerogelleri genellikle pahalı sentetik ve çevreye zararlı başlangıç malzemeleri kullanılarak sentezlenebildiğ inden [2,3,5,8], bu dezavantajı ortadan kaldırmak için çevre dostu doğal aerogel hammadde kaynakları kullanılarak üretim yapılmasına yönelik çalışmalar geliştirilmeye devam edilmelidir. Wang ve arkadaşları 2013'te yaptıkları çalışma kapsamında diatomitten silika esaslı aerogel üretmişlerdir [29]. Hu ve arkadaşları 2016 yılında, hammadde olarak kaolen içeren ve ortam basıncında kurutulan hidrofobik silika aerogelleri sentezlemişlerdir [30]. Zhu ve arkadaşları 2015 yılında bekleme süresi ve kalsinasyon sıcaklığı etkilerini araştırdıkları bir çalışmada, sıfır maliyetli madencilik atığı olan kömür gangını hammadde olarak kullanarak SiO<sub>2</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> aerogeli sentezlemişlerdir [31]. Aerogel üretimi esnasında tercih edilen kurutma işlemi, önemli ve kritik bir parametredir. Süperkritik kurutma, maliyeti arttırırken çok pahalı ve büyük miktarda enerji kullanımına yol açmaktadır. Dolayısıyla çalışma

kapsamında daha ucuz ve doğal hammaddelerin kullanılması ve kurutma işleminin atmosferik basınç koşullarında gerçekleştirilmesi ile hem hammadde hem de üretim maliyeti düşürülmüştür. Bu çalışmada, silika kaynağı olarak perlit, diatomit ve zeolit, alümina kaynağı olarak ise şamot tuğla harcı kullanarak, sol-jel metodu ile farklı Al/Si oranlarında atmosfer basıncında kurutma ile alümina-silika esaslı aerojel tozu üretimi gerçekleştirilmiştir. Üretilen aerojel tozları taramalı elektron mikroskobu (SEM), XRD (X-Ray Difraktometre), FTIR ve BET cihazları kullanılarak karakterize edilmiş; yoğunluk ve termal iletkenlik katsayıları hesaplanmıştır.

## 2. Deneysel Çalışmalar (Experimental Studies)

### 2.1. Başlangıç malzemeleri (Precursor materials)

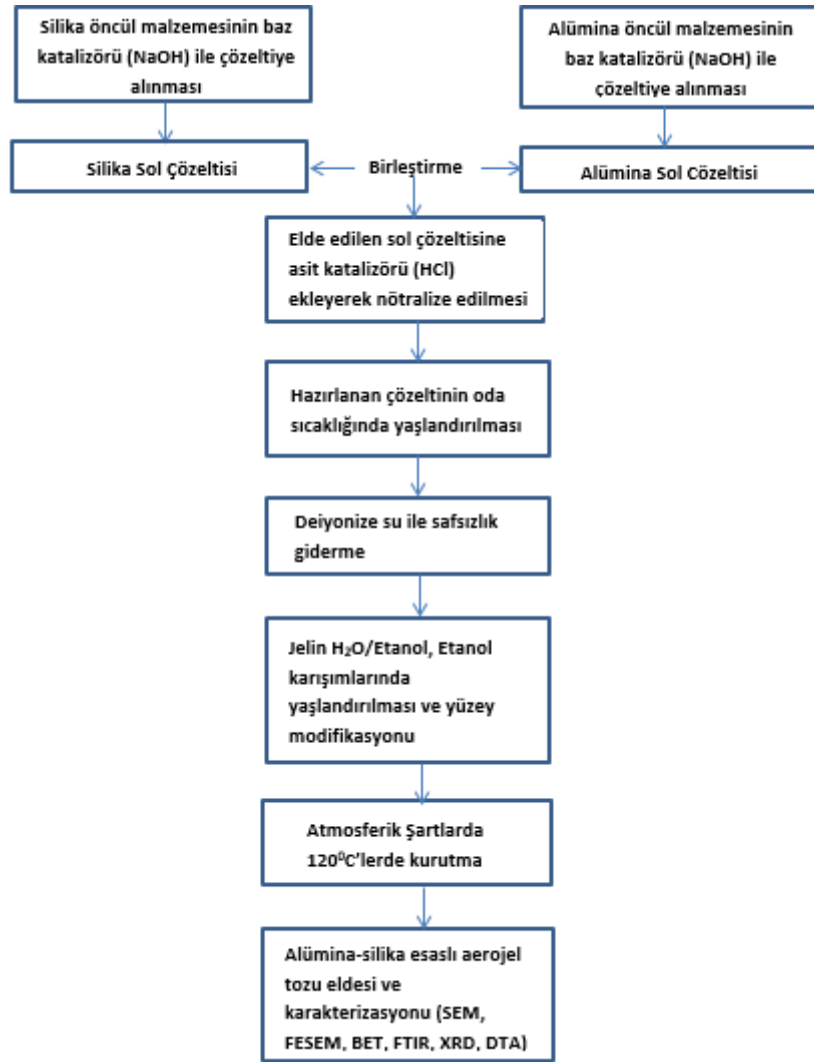
Çalışmada baz kaynağı olarak NaOH (Merck Kimya 40 g/mol), asit kaynağı olarak HCl (Merck Kimya %37), silika kaynağı olarak perlit, diatomit ve zeolit tozları, alümina kaynağı olarak ise şamot tuğla harcı kullanılmıştır. Perlit, diatomit, zeolit ve şamot tuğla harcının kimyasal bileşimleri XRF analizi ile belirlenmiş ve sonuçlar Tablo 1'de paylaşılmıştır. Ayrıca jel yapısını modifiye etmek ve güçlendirmek için Etanol C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>OH (Isolab %99,9) kullanılmıştır. Perlit malzemesinde silika içeriği ağırlıkça %74, diatomit tozunda ağırlıkça %85, zeolitte ise ağırlıkça %72, şamot tuğlasında ise alümina oranı ağırlıkça %53 iken; silika içeriği ağırlıkça %42'dir. Üretim sırasında jelin yıkanması aşamaları saf su kullanılarak gerçekleştirilmiştir. Üretilen tüm numuneler 3 Molar (M) hacminde baz/asit çözeltileri kullanılarak hazırlanmıştır. H1 kodlu aerojel tozu 10 gr perlit, 20 gr şamot tuğlası ile, H2 kodlu aerojel tozu 10 gr diatomit, 20 gr şamot tuğlası ve H3 kodlu aerojel tozu 10 gr zeolit ve 20 gr şamot tuğlası kullanılarak hazırlanmıştır.

Tablo 1. Perlit, diatomit, zeolit ve şamot tuğla harcının kimyasal bileşimleri (Chemical compositions of perlite, diatomite, zeolite and chamotte brick mortar)

Bileşenler	Hammaddeler (% ağı.)			
	Perlit	Diatomit	Şamot tuğlası	Zeolit
SiO <sub>2</sub>	74	85	42	71,9
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	14,33	5	53	13,2
CaO	0,58	1	0,3	2
K <sub>2</sub> O	4,95	-	-	3,5
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0,97	1,5	1,5	1,4
MgO	0,28	0,5	0,2	1,1
Na <sub>2</sub> O	3,5	-	-	0,3

### 2.2. Deneyin yapılışı (Experimental procedure)

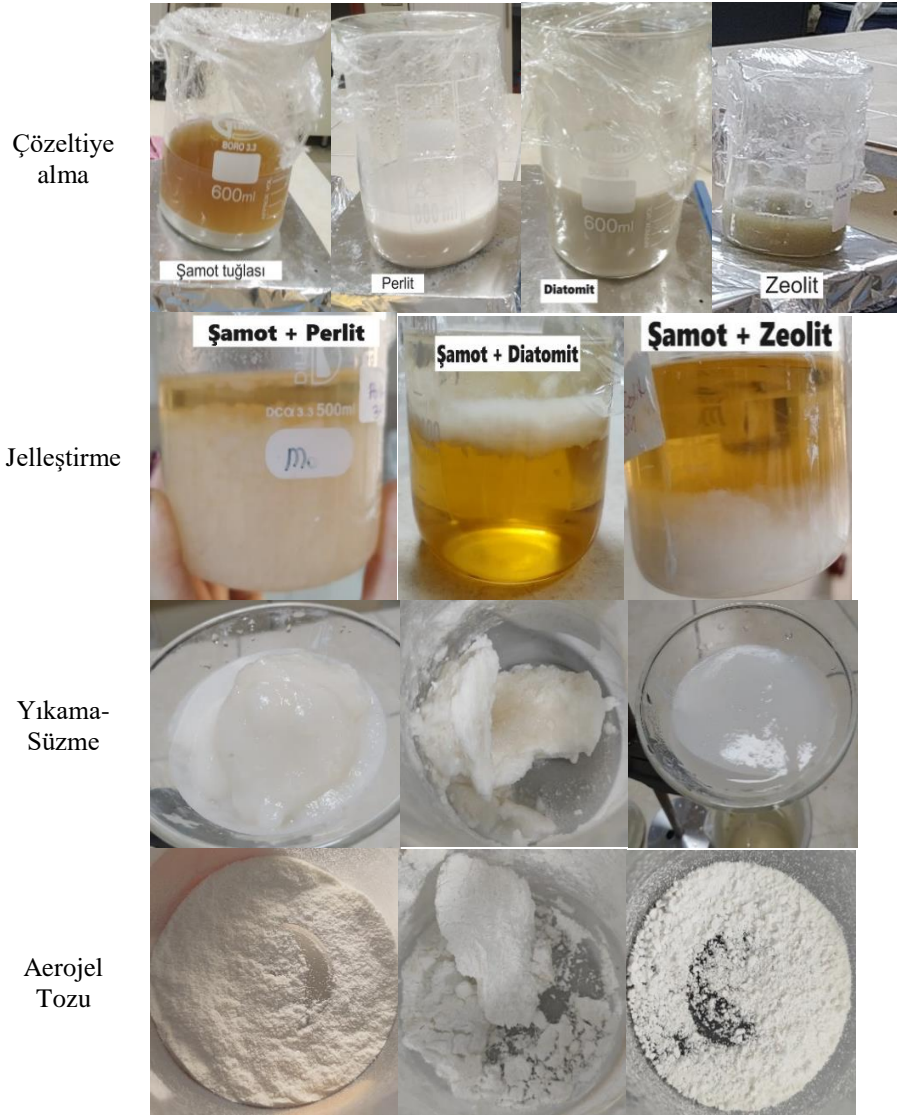
Hammaddeler (Şamot tuğlası, diatomit, zeolit ve perlit tozları) çözeltiliye alma işlem kademesi öncesi 45 µm'luk elekten geçirilmiştir. Şekil 1'de üretim akım şeması verilen alümina-silika esaslı kompozit aerojel tozu için alümina kaynağı olan şamot tuğla harcı (20 g) ve silika kaynakları olan perlit, diatomit ve zeolit tozları (10 g), ayrı ayrı 100 ml'lik beher içerisinde 100 ml 3 M NaOH çözeltisinde 120°C'de 4 devir/dk karıştırma hızında 3 saat boyunca karıştırılarak çözüldürülmüştür. 3 saat sonra karışımdaki çözünmemiş kalıntılar 125 mm çaplı filtre kağıdı ile süzülerek ayrılmıştır. Filtre kağıdından süzülen karışım 3 molarlık HCl kullanılarak pH'ı yaklaşık 7'ye nötrleme işlemi yapılmıştır. 2 hafta oda sıcaklığında yaşlandırılan karışım sonrasında saf suda 1 hafta boyunca bekletilip süzülerek yapıdaki safsızlıklar (sodyum ve klorür tuzları) giderilmeye çalışılmıştır. Süzme işleminin ardından yaşlandırma sürecinde alümina-silika jeli hacimce %45 Etanol/saf su çözeltisinde 2 gün süreyle etüvde 60°C'de bekletilmiştir. Daha sonra süzülerek %100 Etanol içerisinde etüvde 60°C'de 5 gün bekletilerek yaşlandırma işlemi devam etmiş, sonrasında 120°C de 2 gün etüvde kurutma (atmosfer basıncında) işlemi yapılmıştır Şekil 2'de şamot tuğlası-perlit (H1), şamot tuğlası-diatomit (H2) ve şamot tuğlası-zeolit (H3) çözeltilerinin yaşlandırma sonrası elde edilen jellere ve üretilen tozlara ait makro görüntüler verilmiştir.



Şekil 1. Alümina-silika esaslı aerogel tozu üretim akış şeması  
(Alumina-silica based aerogel powder production flow chart)

### 2.3. Karakterizasyon (Characterization)

Şamot tuğlası, perlit, diatomit ve zeolit başlangıç malzemesini içeren alümina-silika esaslı aerogel tozlarının özelliklerinin belirlenmesi için karakterizasyon işlemi uygulanmıştır. Alümina-silika aerogel tozlarının mikro yapısı, morfolojisi ve elementel analizleri taramalı elektron mikroskobu (SEM-EDS), faz yapıları X-ışını Kırınımı (XRD), yapıdaki bileşiklerin ve bağ türlerinin belirlenmesi için Fourier Dönüşümlü Kızılötesi Spektroskopisi (FTIR) analizleri, spesifik yüzey alanı ve gözenek boyut dağılımı, Micromeritics Tristar II BET ölçüm cihazı kullanılarak belirlenmiştir. BET yöntemi, analiz edilecek numune tabakasının tek bir moleküler yapı ile kaplanması için mevcut gaz miktarının belirlenmesi prensibine dayanır. Analiz işleminden önce numuneler degas ünitesine yerleştirilerek 300°C'ye kadar ısıtma yapılarak saflaştırılıp sudan arıtma işlemi yapılır ve ardından numuneler sıvı azot gazı kullanılarak analiz edilir. Aerogel tozlarının yoğunlukları ise  $0,9817 \text{ cm}^3$ 'lük hacme sahip bir kaptaki  $d=m/v$  formülü ile yaklaşık olarak hesaplanmıştır. Termal iletkenlik katsayıları ise Hotdisk marka termal iletkenlik ölçüm cihazı kullanılarak gerçekleştirilmiştir. Termal iletkenlik katsayısı ölçümü için sentezlenmiş tozlar ölçüm kabına konularak 3,189 mm yarıçapa sahip olan prop, tozların arasına yerleştirilmiştir. Ortam sıcaklığı ortalama 25°C olup; ölçüm süresi 20 sn ayarlanmıştır.

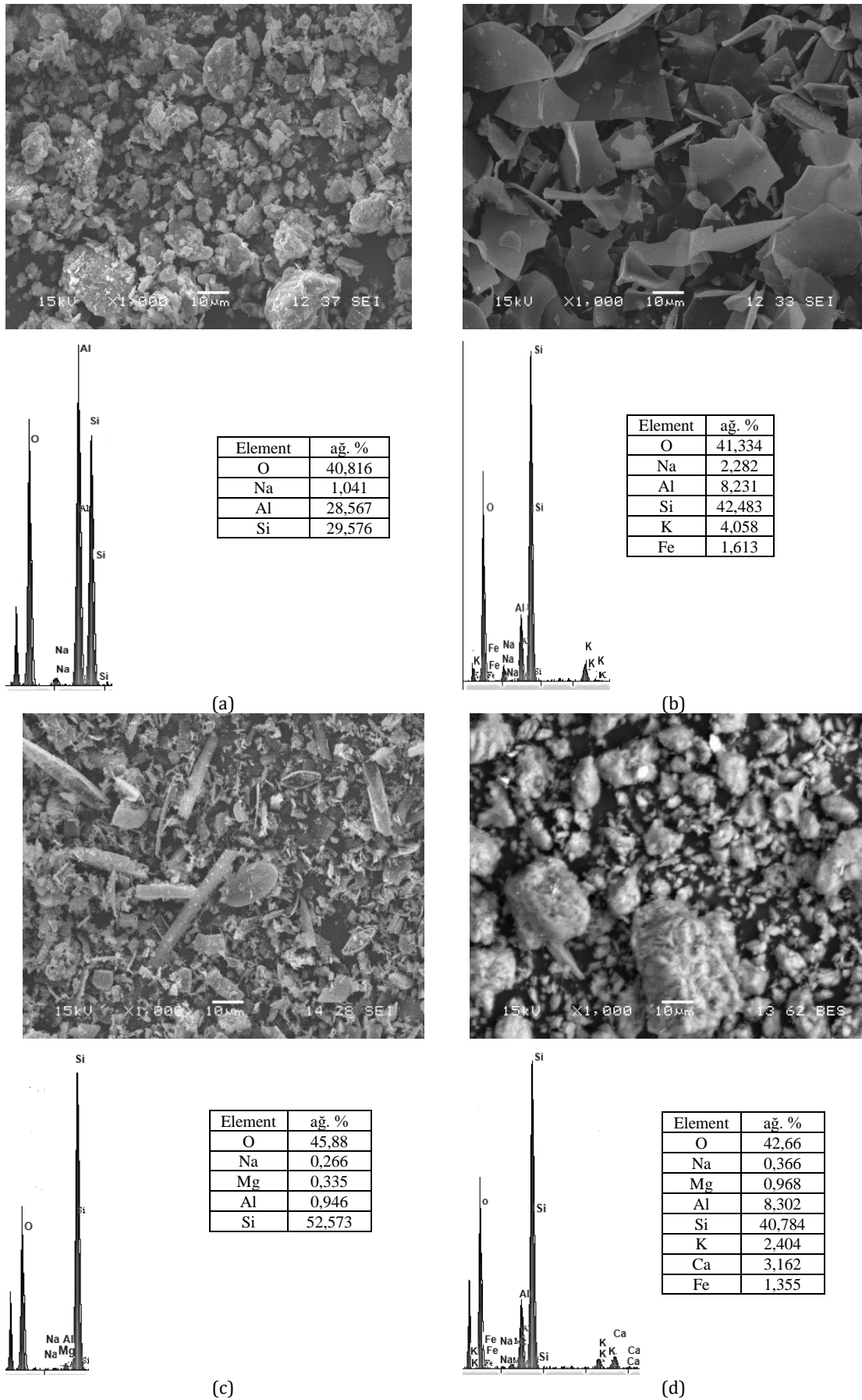


Şekil 2. Alümina-silika esaslı aerojel tozu eldesinde çözeltiyeye alma, jelleştirme ve kurutma aşamalarına ait makro görüntüler  
(Macro images of the dissolution, gelling and drying stages of alumina-silica based aerogel powder production)

### 3. Bulgular (Findings)

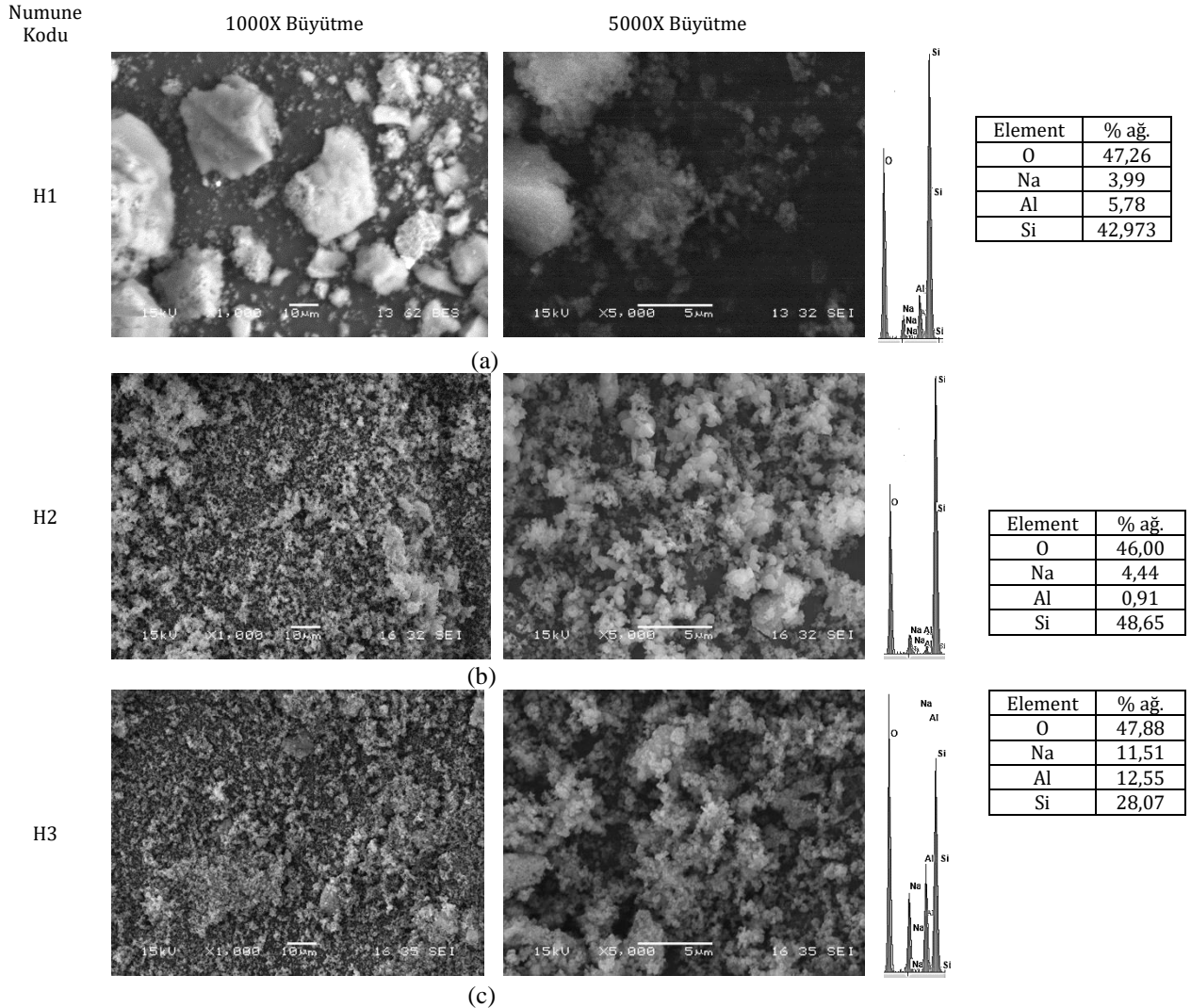
#### 3.1. Mikroyapı analizi (Microstructure analysis)

Başlangıç malzemeleri olarak kullanılan şamot tuğla harcı, perlit, diatomit ve zeolit tozlarına ve bu tozlardan elde edilen alümina-silika esaslı aerojel tozlarına ait SEM-EDS mikroyapı analiz görüntüleri incelenmiştir. Şekil 3'de şamot tuğla harcı, perlit, diatomit ve zeolit tozlarının 1000X büyütmede; Şekil 4'te şamot tuğlası-perlit (H1), şamot tuğlası-diatomit (H2) ve şamot tuğlası-zeolitten (H3) üretilen alümina-silika esaslı kompozit aerojel tozlarının 1000X ve 5000X büyütmelerdeki SEM mikroyapı ve genel EDS analizleri verilmiştir.



Şekil 3. a) Şamot tuğlası, b) Perlit, c) Diatomit ve d) Zeolit tozlarının 1000X büyütmedeki SEM-EDS Analizi (SEM-EDS Analysis of a) Chamotte brick, b) Perlite, c) Diatomite and d) Zeolite powders at 1000X magnification)

Şekil 3'de görüldüğü gibi, kullanılan hammadde kaynakları farklı miktarlarda alümina, silika ve safsızlıklar içermektedir ve her birinin mikroyapısı farklıdır. Şamot tuğlası tozlarının, geniş toz boyut aralığına sahip, birbirine yakın oranda Al (ağ. %28,567) ve Si (%29,576) içeriklerine sahip büyük ve küresel parçacıklardan oluştuğu gözlemlenmiştir. Diatomit tozunun karışık toz morfolojisine (çubuksu ve plaka benzeri) sahip mikroyapı sergilediği ve büyük miktarda Si (%52,573) içerdiği gözlemlenirken; zeolit tozunun, yüksek Si içeriğine (%40,784) sahip, büyük ve aglomere olmuş parçacıklardan oluştuğu, perlit tozunun ise köşeli yaprak benzeri (plaka gibi) parçacık yapısına sahip olduğu ve aynı zamanda büyük miktarda Si (%42,483) içerdiği tespit edilmiştir.



Şekil 4. a) Şamot tuğlası-perlit (H1), b) Şamot tuğlası-diatomit (H2) ve c) Şamot tuğlası-zeolit (H3) tozlarından üretilen alümina-silika aerojel tozlarının 1000X ve 5000X büyütmelerdeki SEM-EDS Analizi  
(SEM-EDS Analysis of alumina-silica aerojel powders produced from a) chamotte brick-perlite (H1), b) chamotte brick-diatomite (H2) and c) chamotte brick-zeolite (H3) powders at 1000X and 5000X magnifications)

Şekil 4'deki EDS sonuçlarından görüldüğü üzere silikanın en yüksek olduğu üretim şamot tuğlası ve diatomit öncülleriyle üretilen H2 kodlu aerojel tozunda görülmüş olup; alümina ve silika oranlarının birbirine en yakın olduğu numune ise şamot tuğlası ve zeolitten üretilen H3 kodlu aerojel tozu olmuştur. Mikroyapılarda görünen aglomerasyon (toz partiküllerinin ortam rutubetinden kaynaklı topaklaşması sorunu) (Şekil 5.'teki FTIR analizlerinde görülen belirgin -OH bağı ile de doğrulanmakta olup; üretilen diğer tozlarda da benzer durum görülmektedir), toz tane boyut aralığının geniş olması, nano boyutta tanelerin olması (BET analizi ile belirlenmiştir) ve mikropartiküllerin süngerimsi bir yapıya sahip olması, toz şekillerinin çoğunlukla küresel morfolojide olduğu tespit edilmiştir. Ancak H1 kodlu numunede plaka benzeri toz tane yapılarının da olduğu gözlemlenirken, EDS analizlerinde alümina ve silika bileşimine ilave olarak baz (NaOH) çözeltisinden kaynaklı Na pikleri de tespit edilmiştir. Üretilen tozların sodyum içeriği, şamot tuğlası-perlit için yaklaşık ağırlık %3,99, şamot tuğlası-diatomit için %4,44 ve şamot tuğlası-zeolit için %11,51 olup; saf su ile yıkama sayısı artırılarak Na



miktarı yapıdan mümkün olduğunca giderilebilir. Zhu ve arkadaşlarının başlangıç malzemesi olarak kömür gangi kullanarak atmosfer basıncında kurutma sonucunda elde ettikleri  $\text{SiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  aerojellerin iskeletinin 50nm'den küçük nanopartiküllerden oluştuğu ve homojen, parçacıklar arası oluşan bağlantı kümelerinin birbirine bağlanmaları halinde sürekli oluşturulan bağlantı nedeniyle fazla sayıda gözenek oluştuğu gözlemlenmiştir [32]. Peng ve arkadaşları başlangıç malzemesi olarak alüminyum-sek-bütoksit ve tetraetilortosilikat (TEOS) kullanılarak çözelti değişimi olmadan sol-jel yöntemi ile süper kritik kurutma şartları altında (süper kritik etanol) alümina-silika aerojelleri sentezlemişlerdir. Yapılan çalışmada sunulan farklı şartlardaki numunelere ait SEM görüntülerinde tozların oldukça küçük homojen dağılmış nano parçacıklardan oluştuğu ve yüzey alanının artmasıyla gözenek boyutlarında iyileşmeler olduğu gözlemlenmiştir [33].

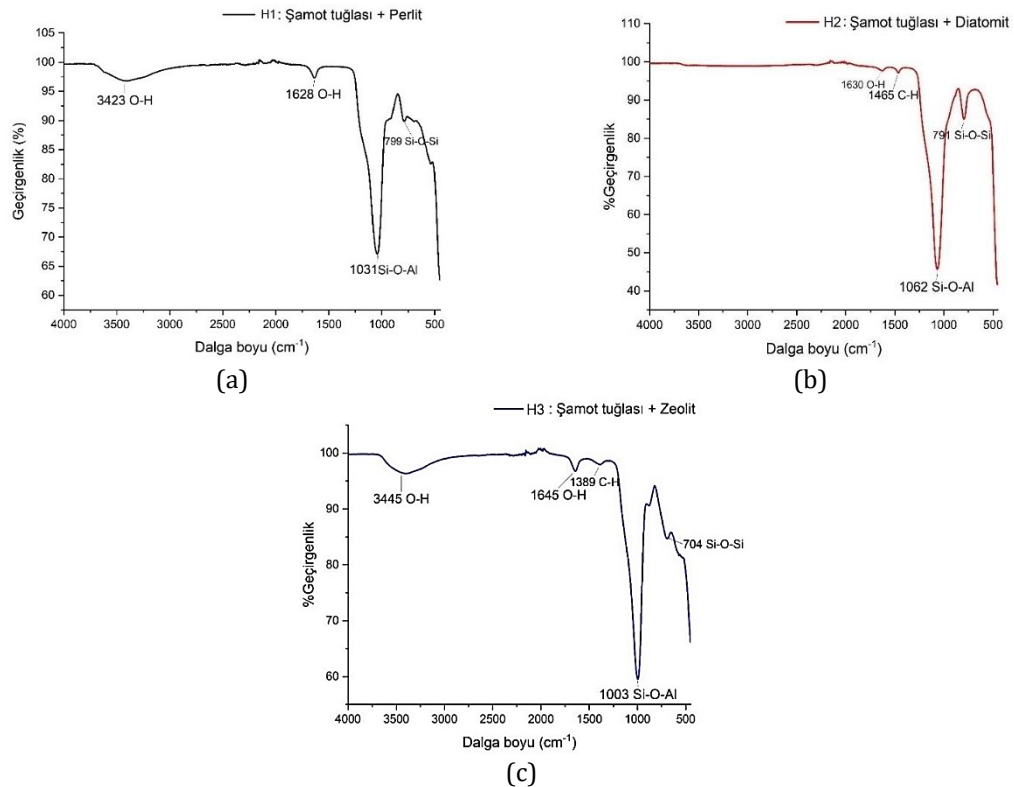
### 3.2. FTIR analizi (FTIR analysis)

Alümina kaynağı olarak şamot tuğla harcı ve silika kaynakları olarak perlit, diatomit ve zeolit kullanılarak üretilen alümina-silika esaslı kompozit aerjel tozlarının yapılarındaki fonksiyonel gruplar hakkında bilgi sahibi olabilmek için FTIR analizi 450-4000  $\text{cm}^{-1}$  dalga boyu aralığında gerçekleştirilmiştir. Tablo 2'de şamot tuğla harcı-perlit (H1), şamot tuğla harcı-diatomit (H2) ve şamot tuğla harcı-zeolitten (H3) üretilen aerjel tozlarına uygulanan FTIR analizi sonucunda elde edilen piklerin türü ve dalga boyuları verilmiştir.

Tablo 2. Alümina-silika aerjel tozlarının FTIR pik türleri ve dalga boyu değerleri (FTIR peak types and wavelength values of alumina-silica aerogel powders)

Numune kodları	Pikler			
	O-H	Si-O-Al	Si-O-Si	C-H
H1	~3423 $\text{cm}^{-1}$ ~1628 $\text{cm}^{-1}$	~1031 $\text{cm}^{-1}$	~799 $\text{cm}^{-1}$	-
H2	~1630 $\text{cm}^{-1}$	~1062 $\text{cm}^{-1}$	~791 $\text{cm}^{-1}$	~1465 $\text{cm}^{-1}$
H3	~3445 $\text{cm}^{-1}$ ~1645 $\text{cm}^{-1}$	~1003 $\text{cm}^{-1}$	~704 $\text{cm}^{-1}$	~1389 $\text{cm}^{-1}$

Şekil 5.a'da H1, Şekil 5.b'de H2 ve Şekil 5.c'de H3 kodlu aerjel tozlarına yapılan FTIR analizi sonuçları verilmiştir.



Şekil 5. a) H1, b) H2 ve c) H3 kodlu aerjel tozlarının FTIR analizleri.  
(FTIR analysis of (a) H1, b) H2 and c) H3 coded aerogel powder)

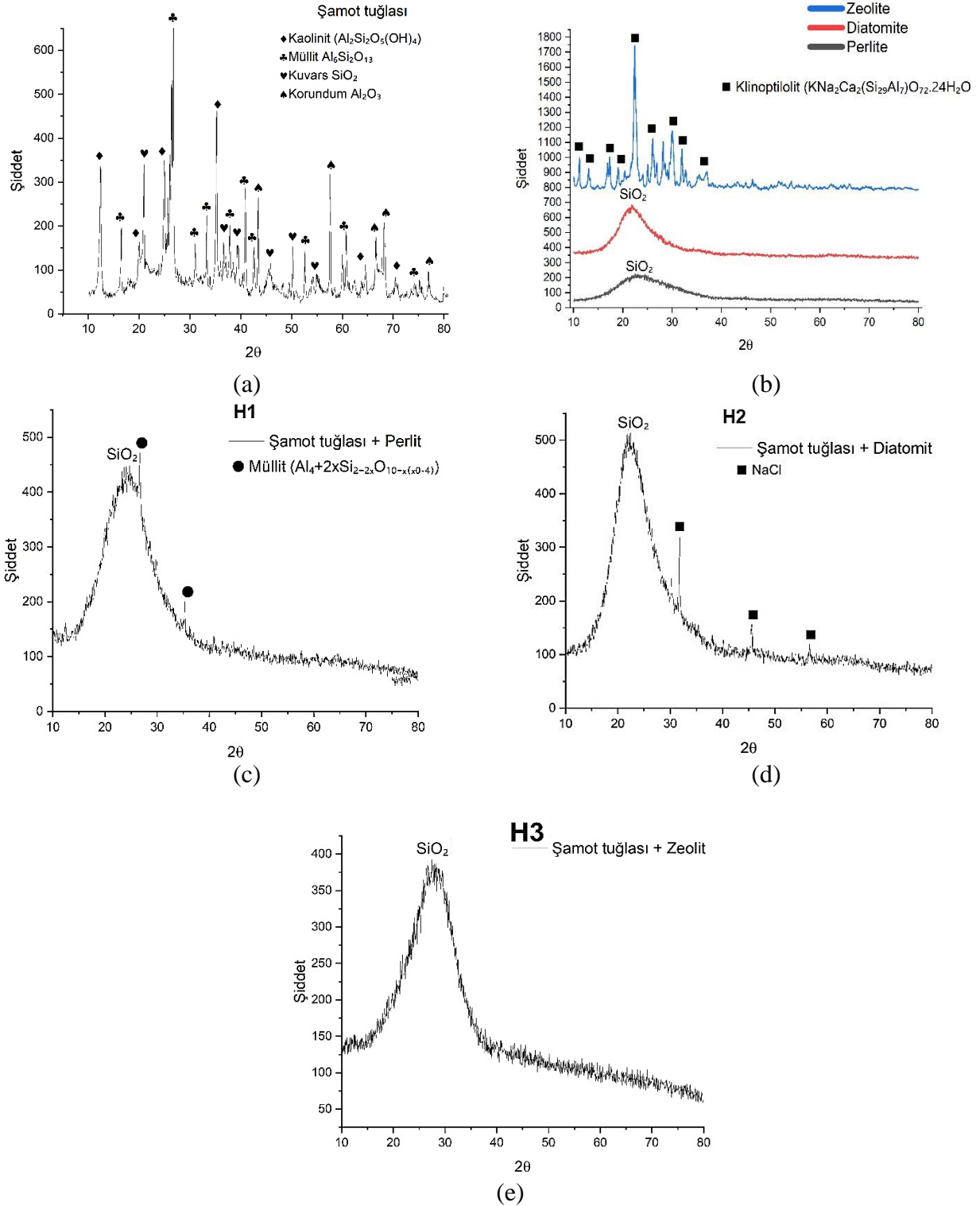
Şekil 5.a'da şamot tuğlası ve perlitten üretilen H1 kodlu numuneye yapılan FTIR analizi sonuçları

verilmiştir.  $\sim 799 \text{ cm}^{-1}$  bandı Si-O-Si asimetrik bağ gerilme titreşimi ile ilişkilidir. Si-O-Si asimetrik ve simetrik bağlar, bağ bükülmesi ve esneme titreşimi nedeniyle gözlenmektedir.  $\sim 3423 \text{ cm}^{-1}$  ve  $\sim 1628 \text{ cm}^{-1}$ 'de yüzeyde tutunan suyun fiziksel olarak adsorbe edilmesi nedeniyle -OH adsorpsiyon bağları oluşmuştur. H1 kodlu alümina-silika esaslı kompozit aerogel tozunda  $1031 \text{ cm}^{-1}$ 'de Si-O-Al bağları tespit edilmiş olup; üretimin başarılı olduğu söylenebilmektedir. Şekil 5.b'de H2 kodlu aerogel tozunda  $1062 \text{ cm}^{-1}$ 'de güçlü ve belirgin Si-O-Al bağı,  $\sim 791 \text{ cm}^{-1}$ 'de Si-O-Si asimetrik bağları, C-H bağları  $\sim 1465 \text{ cm}^{-1}$ 'de ve fiziksel olarak emilen su dolayısı ile  $\sim 1630 \text{ cm}^{-1}$ 'de -OH bağı oluşmuştur. Şekil 5.c.'de şamot tuğlası ve zeolitten üretilen H3 kodlu numuneye yapılan FTIR analizinde  $\sim 704 \text{ cm}^{-1}$ 'de asimetrik Si-O-Si bağlanmaları dolayısı ile belirgin ve güçlü pik,  $\sim 3445 \text{ cm}^{-1}$  ve  $\sim 1645 \text{ cm}^{-1}$ 'de fiziksel olarak emilen suyun gözeneklerin içerisine nüfuz etmesiyle -OH bağları ve  $\sim 1003 \text{ cm}^{-1}$ 'de Si-O-Al bağı ve  $\sim 1389 \text{ cm}^{-1}$ 'de etanol modifikasyonuna ve adsorpsiyona bağlı olarak C-H pikleri oluştuğu belirlenmiştir. FTIR analizinde oluşan piklerin şiddeti bağların kuvvetli oluşu ile doğru orantılı olup Si-O-Al ve Si-O-Si bağlarının kuvvetli olduğu yorumu yapılabilmektedir.

Lei ve arkadaşlarının yaptığı silika aerojellere nano  $\text{Al}_2\text{O}_3$  tozlarının katıldığı bir çalışmada  $880$  ve  $495 \text{ cm}^{-1}$ 'deki pikler Al-O'nun titreşimine,  $1069 \text{ cm}^{-1}$ 'deki, Al-OH'ye,  $1074$ ,  $770$  ve  $479 \text{ cm}^{-1}$  civarındaki yoğun piklerin sırasıyla üç boyutlu Si-O-Si'nin asimetrik ve simetrik bağ gerilme ve bükülme titreşimlerine ait olduğu açıklanmıştır.  $968 \text{ cm}^{-1}$ 'deki pik, Si-OH gerilme titreşimine karşılık gelmektedir [6]. Wu ve arkadaşlarının yaptığı alümina katkılı silika aerojeller ile ilgili çalışmasında;  $3450$  ve  $1638 \text{ cm}^{-1}$ 'deki pikler su adsorpsiyonunun (-OH) varlığını,  $1095 \text{ cm}^{-1}$ 'deki geniş bant Si-O-Si'nin asimetrik gerilme titreşim pikine ve  $798$  ve  $466 \text{ cm}^{-1}$ 'deki bantlar Si-O-Si'nin simetrik gerilme titreşim pikine karşılık gelmektedir.  $400^\circ\text{C}$ 'nin altındaki  $2972$ ,  $2898$  ve  $1402 \text{ cm}^{-1}$  bantları hidrokarbon gruplarının Si- $\text{CH}_3$  titreşimini gösterdiği ve  $500^\circ\text{C}$ 'nin üzerindeki ısı işlem sonrasında kaybolduğu bildirilmiştir. Si-OH'nin bükülme titreşim pikine ilişkin olan  $955 \text{ cm}^{-1}$ 'deki bant, sıcaklığın artmasıyla kademeli olarak azalır ve  $800^\circ\text{C}$ 'deki ısı işleminden sonra tamamen kaybolmaktadır. Bu sonuç, önemli doğrusal bükülmeyle sonuçlanan Si-OH'nin dehidrasyon reaksiyonunu göstermektedir. Al-O-Al ve Al-OH bağları alüminanın nispeten düşük katkılama içeriği nedeniyle FTIR spektrumlarında gözlemlenmemiştir [7]. Wang ve arkadaşlarının diatomitten aerogel ürettikleri çalışmada  $2963 \text{ cm}^{-1}$ 'deki - $\text{CH}_3$  absorpsiyon piki ile  $847 \text{ cm}^{-1}$ 'de görülen Si-C piklerinin yüzey modifikasyonu için kullanılan trimetilklorosilan (TMCS) kaynaklı olduğu bildirilmiştir.  $1094 \text{ cm}^{-1}$  ve  $463 \text{ cm}^{-1}$ 'deki piklerin O-Si-O titreşimlerine,  $3448 \text{ cm}^{-1}$  ve  $1637 \text{ cm}^{-1}$ 'deki piklerin ise, -OH gruplarına ait olduğu gösterilmiştir [29]. Yu ve arkadaşlarının, tetraetoksisilan (TEOS) başlangıç malzemesi kullanarak alümina-silika aerogel sentezlemiş oldukları çalışmada, kalsinasyon sıcaklığı  $1000^\circ\text{C}$ 'yi aştığında mullit fazının oluşmaya başladığı görülmüştür. Silika birikiminin parçacıklar arasındaki viskoz akışı sınırlayabildiğini ve parçacıkların büyümesi ve iskeletin kabalaşması yoluyla iskelet mukavemetini artırabildiğini ve sistemde daha fazla Si-O-Al bağları oluşturarak  $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 'ün büyümesini sınırlayabildiğini göstermektedir. Saf  $\text{Al}_2\text{O}_3$  aerogeldeki  $880$ ,  $785$ ,  $619$  ve  $487 \text{ cm}^{-1}$  ve  $1164 \text{ cm}^{-1}$ 'deki zirveler sırasıyla boehmitin Al-O ve Al-O-H bağlarının titreşimlerini temsil etmektedir. Saf  $\text{SiO}_2$  aerogeldeki  $1085$ ,  $800$  ve  $465 \text{ cm}^{-1}$ 'deki tepe noktaları Si-O-Si'nin asimetrik ve simetrik gerilmesini ve bükülmesini temsil ederken,  $1640$  ve  $960 \text{ cm}^{-1}$ 'deki tepeler Si-OH'nin gerilme titreşimini temsil etmektedir. Alümina-silika aerogel (ASA) ve silika katkılı alümina-silika aerogel (Si-ASA) numuneleri için,  $950$  ile  $1250 \text{ cm}^{-1}$  arasındaki geniş güçlü absorpsiyon piki, Si-O ve Si-O-Si'nin asimetrik gerilme titreşimlerine,  $1145$  ve  $1085 \text{ cm}^{-1}$ 'deki piklerden gelen katılara dayandırılmıştır. Si-O-Al bağları  $1039 \text{ cm}^{-1}$ 'de ve Si- $\text{CH}_3$  bağları ise  $1204 \text{ cm}^{-1}$ 'deki piklerde görülmüştür. Si-ASA'nın Al-O ve Al-O-H bağlarının absorpsiyon tepe yoğunluğunun ASA'ninkinden daha düşük ve Si-ASA'nın Si-O-Al bağlarının absorpsiyon pik yoğunluğu ASA'ninkinden daha yüksek olduğu görülmüştür. Bu, silikanın ASA'ya dahil edildiğini ve silika birikiminin Si-O-Al bağlarının miktarını artırabildiğini göstermektedir [34]. Literatürdeki çalışmalar incelendiğinde; mevcut çalışmada elde edilen verilerin literatürdeki verilerle benzerlik gösterdiği ve şamot tuğla harcı, perlit, diatomit ve zeolitten üretilen alümina-silika esaslı aerojellerde Si-O-Al bağ yapısının sağlandığı görülmüştür.

### 3.3. Faz analizi (Phase analysis)

Şamot tuğlası, perlit, diatomit ve zeolitten elde edilen numunelerin faz yapısını incelemek için XRD analizi  $\lambda=1,54056 \text{ nm}$  dalga boyunda  $\text{CuK}\alpha$  kullanılarak  $2^\circ/\text{dk}$  tarama hızı ve  $2\theta$  tarama açısı ise  $10\text{-}80^\circ$  aralığında gerçekleştirilmiştir. Hammaddede kullanılan şamot tuğlası, perlit ve diatomitin yanında bunlardan üretilen şamot tuğla harcı-perlit (H1) ve şamot tuğla harcı-diatomit (H2) ve şamot tuğla harcı-zeolit (H3) aerogel tozlarına uygulanan XRD analiz sonuçları Şekil 6'da verilmiştir.



Şekil 6. a) Şamot tuğla harcı ve b) perlit, diatomit, zeolit tozları ve c) şamot tuğla harcı-perlitten (H1), d) şamot tuğla harcı-diatomit (H2) ve e) şamot tuğla harcı-zeolitten (H3) üretilen aerjel tozlarına ait XRD analizi. (XRD analysis of aerogel powders produced from a) chamotte brick mortar and b) perlite, diatomite, zeolite and c) chamotte brick mortar-perlite, d) chamotte brick mortar-diatomite and e) chamotte brick mortar-zeolite)

Şamot tuğla harcı başlangıç malzemesine yapılan Şekil 6.a'da verilen XRD analizinde yapıda kaolinit ( $\text{Al}_2\text{Si}_2\text{O}_5(\text{OH})_4$ ), müllit ( $\text{Al}_6\text{Si}_{12}\text{O}_{13}$ ), kuvars ( $\text{SiO}_2$ ) ve korundum ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) pikleri, perlit ve diatomit başlangıç malzemelerine yapılan analizde  $2\theta = 20-40^\circ$  aralığında geniş amorf ( $\text{SiO}_2$ ) pikleri görülürken, zeolitin yapısında klinoptilolit ( $\text{KNa}_2\text{Ca}_2(\text{Si}_{29}\text{Al}_7)\text{O}_{72}\cdot 24\text{H}_2\text{O}$ ) fazına ait pikler belirlenmiştir. Üretilen tüm aerjel tozlarında  $\text{SiO}_2$  pikleri görülmüş olup, ek olarak şamot tuğlası-perlitten üretilen H1 kodlu tozda  $2\theta=35,299^\circ$ 'de müllit pikleri ve şamot tuğlası-diatomitten üretilen H2 kodlu aerjel tozunda  $2\theta=31,78, 45,56$  ve  $56,68^\circ$ 'lerde NaCl tuz pikleri görülmüştür. H2 kodlu numunenin jel miktarının fazla

olmasından dolayı yıkama işlemi ile tuz giderimi yetersiz olmuştur. Distile su ile yıkama işlem sayısının artırılması tuz giderimi için önemlidir. Wu ve arkadaşlarının [35] uçucu kül ve trona cevherinden silika aerjel ürettikleri çalışmada; XRD analizinde geniş amorf silika pikinin yanı sıra NaCl piki de gözlemlenmiştir. Zhu ve arkadaşlarının kömür gangından sentezledikleri alümina-silika aerjelin [32] XRD analizinde  $2\theta=25^\circ$  civarında amorf  $\text{SiO}_2$  piki,  $2\theta=30^\circ-80^\circ$  arasında ise  $\text{Al}_2\text{O}_3$  pikleri görülmüştür. Literatürde yapılan diğer çalışmalarla karşılaştırıldığı zaman alümina-silika esaslı aerjellerin genel XRD sonuçlarına yakın sonuçlar elde edildiği, yapıda amorf yapının göstergesi olan geniş  $\text{SiO}_2$  piklerinin, müllit fazının (H1) ve NaCl piklerinin varlığı (H2) saptanmıştır.

### 3.4. BET analizi (BET analysis)

Doğal alümina ve silika kaynaklarından elde edilen alümina-silika esaslı aerjel tozlarının yüzey alanlarını, gözenek hacim ve boyutlarını ve partikül boyutlarını ölçmek için Micromeritics TriStar II cihazı kullanılarak tek noktalı BET analizi yapılmıştır. Şamot tuğlası ve perlitten elde edilen H1 kodlu alümina-silika esaslı aerjelde BET yüzey alanının  $248 \text{ m}^2/\text{g}$ , gözenek hacminin  $0,122 \text{ cm}^3/\text{g}$ , gözenek boyutunun ise  $19,648 \text{ \AA}$  (1,96 nm), H2 kodlu aerjel tozunun BET yüzey alanı  $13,356 \text{ m}^2/\text{g}$ , gözenek hacmi  $0,006416 \text{ cm}^3/\text{g}$ , gözenek boyutunun ise  $19,214 \text{ \AA}$  (1,92 nm) H3 kodlu aerjel tozunun ise yüzey alanı  $27,46 \text{ m}^2/\text{g}$ , gözenek hacmi  $0,01314 \text{ cm}^3/\text{g}$  ve gözenek boyutu  $19,146 \text{ \AA}$  (1,91 nm) olarak tespit edilmiştir ve dolayısıyla nanoboyutta, mikro gözenekli alümina-silika esaslı aerjel tozu üretilebildiği görülmüştür.

Lei ve arkadaşlarının yaptığı çalışmada saf silika aerjelin yüzey alanı  $837 \text{ m}^2/\text{g}$  iken; 1 gr  $\text{Al}_2\text{O}_3$  toz ilavesi ile  $358,5 \text{ m}^2/\text{g}$  olmuştur. Ortalama gözenek boyutu ise saf silika aerjelde  $12,3 \text{ nm}$  iken  $\text{Al}_2\text{O}_3$  tozunun katkı miktarı arttıkça artmış olup; 1 gr ilavede  $22 \text{ nm}$  olmuştur [6]. Zhu ve arkadaşlarının kömür gangından silika aerjel ürettikleri çalışmada gözenek çapı  $20-60 \text{ nm}$  aralığında belirlenmiştir [31]. Wu ve arkadaşlarının uçucu kül ve trona cevheri kullanarak ürettikleri silika aerjelde mikro gözenek hacimlerinin ve BET özgül yüzeyinin önce arttığı, sonra azaldığı, ısı işlem sıcaklığı  $500 \text{ }^\circ\text{C}$ 'ye yaklaştığında  $856,2 \text{ m}^2/\text{g}$  maksimum değere ulaştığı görülmüştür. BJH gözenek hacimleri de  $500 \text{ }^\circ\text{C}$ 'lik ısı işleminden sonra maksimuma yükselerek  $2,92 \text{ cm}^3/\text{g}$  olduğu görülmüştür. Bu değerlerin daha sonra azalması silika aerjel iskeletinin yüksek sıcaklıklar altında büzülmesine bağlanmıştır [35].

### 3.5. Yoğunluk analizi (Density analysis)

Aerjel tozlarının yoğunlukları ise  $0,9817 \text{ cm}^3$ 'lük hacme sahip bir kaptaki  $d=m/v$  formülasyonu ile yaklaşık olarak hesaplanmış olup; sonuçlar Tablo 3'te verilmiştir.

Tablo 3. Şamot tuğlası-perlit, b) Şamot tuğlası-diatomit ve c) Şamot tuğlası-zeolit tozlarından üretilen alümina-silika aerjel tozlarının yoğunluk değerleri (Density values of alumina-silica aerjel powders produced from chamotte brick-perlite, b) chamotte brick-diatomite and c) chamotte brick-zeolite powders)

Numune Kodları	Yoğunluk ( $\text{g}/\text{cm}^3$ )
H1	0,2565
H2	0,176
H3	0,2536

Tablo 3'te görüldüğü üzere şamot tuğla harcı ve diatomitten üretilen H2 kodlu aerjel tozunun yoğunluğu  $0,176 \text{ g}/\text{cm}^3$  olup diğer iki numuneye göre en düşüktür. EDS analizleri (Şekil 4) ile doğrulandığı üzere hem Na oranının diğerlerine göre daha düşük olması hem de silika oranının yüksek alümina oranının daha düşük olması sebebiyle (silikanın yoğunluğu < alüminanın yoğunluğu) yoğunluğunun da düşük olması beklenen bir durum olmuştur. Şamot tuğlası-perlit ve şamot tuğlası-zeolitten üretilen aerjel tozlarının yoğunlukları ise birbirine yakın olup sırasıyla  $0,2565 \text{ g}/\text{cm}^3$  ve  $0,2536 \text{ g}/\text{cm}^3$  olup; literatürdeki sonuçlarla uyumlu ve ideal bir aralıkta olduğu söylenebilmektedir.

Ji ve arkadaşlarının sol-jel yöntemi kullanarak alüminayla zenginleştirilmiş bir  $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$  aerjeli ürettikleri çalışmada öncül olarak ucuz bir inorganik alüminyum tuzu  $\text{Al}(\text{H}_2\text{O})_9(\text{NO}_3)_3$  ve iskelet takviye maddesi olarak tetraetoksilan (TEOS) kullanılmıştır. Saf alümina aerjel numunenin yoğunluğu  $1,3$  iken Si/Al mol oranı  $0,5$  olanın  $0,3$ ,  $1$  olanın  $0,35$  ve  $3$  olanın  $0,5 \text{ g}/\text{cm}^3$  olmuştur [36]. Zhu ve arkadaşlarının doğal hammadde kaynağı olarak kömür gangi kullandıkları ve atmosferik şartlar altında kurutma yöntemi tercih ettikleri alümina-silika esaslı aerjel çalışmalarında ürettikleri aerjelin yoğunluğu  $0,3475 \text{ g}/\text{cm}^3$  olarak ölçülmüştür [32]. Literatürdeki çalışmalara kıyasla mevcut çalışmadaki yoğunluk değerinin sentetik kaynaklarla üretilen alümina-silika aerjellere göre daha

düşük (hafif) olması, hem maliyetin düşürülmesi hem de rezervi bol olan doğal hammadde kaynaklarının katma değerli bir ürüne dönüştürebilmesi ve hafifliğin önemli olduğu çeşitli alanlarla (yalıtım, sensör, katalizör taşıyıcısı vb.) kullanılma potansiyeli taşıması gibi avantajlar açısından önemli görülmektedir.

### 3.6. Termal iletkenlik analizi (Thermal conductivity analysis)

Termal özellikler ve diğer birçok malzeme özelliğinin yanı sıra maliyet açısından farklılık gösteren birçok yalıtım malzemesi türü mevcuttur. Aerojellerin nano ölçekli gözenek boyutundan dolayı normal sıcaklık ve basınçtaki termal iletkenliği, havanınkinden daha düşüktür ve bundan dolayı süper yalıtım malzemesi olarak bilinmektedir. Aerojel nano-gözenekli yalıtım malzemelerinin son derece düşük ısı iletkenliği, onların doğal karmaşık nanoyapılarından kaynaklanmaktadır. Nano gözenekli malzemelerin nanopartikülleri, karmaşık bir üç boyutlu ağ yapısı oluşturmak üzere birbirine bağlanan zincir iskeletleri oluşturmak üzere rastgele bir araya gelmektedir. Aerojellerin içindeki gözenek boyutu, gaz moleküllerinin ortalama serbest yolundan daha küçük veya buna yakınken; nano gözenekler, gaz moleküllerinin serbest hareketini ciddi şekilde kısıtlayacak ve gaz molekülleri arasındaki ısı transferini ciddi şekilde zayıflayacaktır. Ayrıca ısı katı iskelet üzerinden aktarıldığında, nano gözenekli yalıtım malzemelerinin karmaşık iskelet yapısı, ısı transfer yolunu arttırarak, nano gözenekli aerojel yalıtım malzemelerinin büyük termal direnç göstermesini sağlayacak dolayısıyla katı termal iletkenlik daha da düşecektir [37].

Sıcak disk (HD), Gustafsson probu veya Halldahl olarak da adlandırılan geçici düzlem kaynağı (TPS) tekniği, malzemelerin termal iletkenliğini ölçmek için uygun ve doğru bir yöntemdir. Hot disk AB tarafından üretilen sıcak disk (HD), bir numunenin termal iletkenlik, termal yayılma ve özgül ısı gibi termal aktarım özelliklerini ölçmek için tasarlanmış bir sistemdir. Genel olarak termal iletkenlik, yoğunluk, sıcaklık, nem içeriğinin yanı sıra yapılarında bulunan bileşenlere ve boşluklara da bağlıdır. TPS sensörü, birkaç eşmerkezli daireye sarılmış ve her iki tarafı da iyi kimyasal dirence ve mekanik özelliklere sahip ince bir polimerle kaplanmış bir şerit olarak kabul edilebilir. Eşmerkezli daireler çift sarmal şeklinde yapılmış, böylece akım bir uçtan diğer uca iletilebilir. TPS sensörü, test edilecek numune malzemenin iki parçası arasına yerleştirilir. Bu sensör hem numunenin sıcaklığını arttırmak için bir ısı kaynağı hem de zamana bağlı sıcaklık artışını kaydetmek için bir direnç termometresi görevi görmektedir. Belirlenmiş bir süre boyunca 200 direnç veri noktası alınır ve bunlardan sıcaklık ve zaman arasındaki ilişki kurulur. Sensörün başlangıçtaki termal kütle etkisi nedeniyle, genellikle ilk birkaç saniye boyunca kaydedilen veriler göz ardı edilir. Sıcak diskin ana avantajları doğruluk, geniş iletkenlik ölçümü aralığı, nispeten çok kısa bir sürede sonuçlar üretmesi ve farklı numune türlerini barındırmak için farklı sensör boyutları kullanabilmesidir [38]. Üretilen aerojel tozlarından elde edilen termal iletkenlik katsayısı değerleri kullanılan hammadde kaynaklarının termal iletkenlik katsayısı değerleriyle birlikte Tablo 4'te verilmiştir.

Tablo 4. H1, H2 kodlu aerojel tozlarının ve başlangıç hammaddelerinin termal iletkenlik değerleri (Thermal conductivity values of H1, H2 coded aerogel powders and precursor raw materials)

Hammaddeler ve Numune kodları	Termal iletkenlik katsayısı (W/mK)
Şamot tuğlası	0,1874
Perlit	0,0412
Diatomit	0,0687
Zeolit	0,1188
H1	0,0929
H2	0,0608
H3	0,0720

Elde edilen sonuçlarda başlangıç öncüllerinden olan şamot tuğlası, perlit, diatomit ve zeolitin termal iletkenlik katsayısı değerleri sırasıyla 0,1874, 0,0412, 0,0687 ve 0,1188 W/mK olduğu görülmüş olup; en düşük değere sahip olan perlit iken; en yüksek termal iletkenlik değeri zeolit hammaddesinde bulunmuştur. Şamot tuğlası ve perlitten üretilen aerojel tozu (H1) termal iletkenlik değeri 0,0929 W/mK, şamot tuğlası ve zeolitten üretilen aerojel tozunun ise (H3) 0,072 W/mK olduğu görülmüştür. Şamot tuğlası ve diatomitten üretilen Tablo 3'den de en düşük yoğunluklu olduğu görülen H2 kodlu aerojel tozunun termal iletkenliği 0,0608 W/mK olup bu değer oldukça düşük olduğu görülmüş ve ısı yalıtımında ısı yalıtım elemanı olarak kullanılmak için uygun değer ve daha ucuz bir muadil olacağı söylenebilir.

Yu ve arkadaşlarının yaptığı bir çalışmada fiber takviyeli Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-SiO<sub>2</sub> aerojellerin termal iletkenliği, fiber

içeriğine bağlı olarak 0,0403 W/mK-0,0545 W/mK aralığında değiştiği görülmüştür [39]. Liu ve arkadaşlarının mullit fiber ( $3\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 2\text{SiO}_2$ ) takviyeli alümina aerjel üretimlerinde mullit fiber içeriğinin artmasıyla numunelerin yoğunluğunun 0,12 g/cm<sup>3</sup>'ten 0,33 g/cm<sup>3</sup>'e yükselmesiyle, oda sıcaklığında termal iletkenlik katsayısının da 0,032'den 0,050 W/m·K'e arttığı, dolayısıyla mullit fiber içeriği arttıkça aerjelin katı içeriği de arttığı için termal iletkenliğin artmasına neden olduğu açıklanmıştır [40]. Yu ve arkadaşlarının düşük maliyetli ve yüksek performanslı bir kompozit yalıtım malzemesi olarak atmosferik şartlarda kurutma ile hazırladıkları kuvars elyaf/ $\text{Al}_2\text{O}_3$ - $\text{SiO}_2$  aerjellerde termal iletkenliğin oda sıcaklığında 0.049 W/mK olduğu görülmüştür [41].

#### 4. Sonuçlar ve Tartışma (Results and Discussion)

Mevcut çalışma sol-jel yöntemi ile silika kaynağı olarak perlit, diatomit ve zeolit alümina kaynağı olarak şamot tuğla harcı kullanarak ortam basıncında kurutma ile alümina-silika esaslı aerjel tozu üretimini ve üretilen tozların karakterizasyonunu kapsamaktadır.

- SEM analizi ile üç boyutlu ve gözenekli mikroyapıya sahip olması sebebiyle düşük yoğunluğa sahip olduğu, toz tane boyutunun nano seviyede olduğu, yüzeyin süngerli yapıya sahip olduğu gözlemlenmektedir. EDS analizi ile Si, Al ve O elementlerinin hakim olduğu gözlenmiştir.
- FTIR analizi ile asimetrik ve simetrik bağlanmadan dolayı belirgin ve güçlü Si-O-Al ve Si-O-Si piklerinin meydana geldiği, adsorbe edilen sudan kaynaklı ise -OH pikleri tespit edilmiştir.
- XRD analizi ile alümina-silika esaslı aerjellerin amorf yapının göstergesi olan geniş  $\text{SiO}_2$  piklerinin yanısıra mullit fazının varlığı da saptanmıştır.
- H1, H2 ve H3 kodlu alümina silika esaslı aerjelleri sırasıyla 248, 27,46 ve 13,356 m<sup>2</sup>/g gibi yüksek BET yüzey alanları, 0,122, 0,006416 ve 0,01314 cm<sup>3</sup>/g gözenek hacmi ve ~1,9 nm civarlarında ortalama gözenek boyutları gösterdiği görülmüştür.
- H1, H2 ve H3 kodlu alümina silika esaslı aerjellerin sırasıyla yoğunluk değerlerinin 0,2565, 0,176 ve 0,2536 g/cm<sup>3</sup> olduğu, termal iletkenlik değerlerinin ise H1, H2 ve H3 için sırasıyla 0,0929, 0,0608 ve 0,072 W/mK olduğu tespit edilmiş olup sonuçların literatürdeki çalışmalarla oldukça uyumlu olduğu görülmüştür.
- Yapılan karakterizasyon testleri sonucunda literatürdeki alümina-silika esaslı aerjellere benzer sonuçlar elde edilmiştir. Böylece alümina kaynağı olarak şamot tuğla harcı, silika kaynakları olarak perlit, diatomit ve zeolit kullanılarak Si-O-Al bağ yapısında, amorf yapı göstergesi olan  $\text{SiO}_2$  piklerine sahip, nano boyutta alümina-silika aerjel tozları üretilebilmiştir. Mevcut proses etkili alümina-silika aerjel tozlarının üretimi için çok uygundur. Doğal silika ve alümina hammaddelerinden ortam basıncında kurutma yöntemiyle aerjel üretimi çok önemli ve birçok endüstriyel alan için faydalıdır. Alümina-silika aerjellerin pahalı kimyasalların yanısıra doğal hammadde ve atıklardan üretildiği ile ilgili literatürde çalışmalar mevcut olmakla birlikte; şamot tuğla harcı, perlit, diatomit ve zeolit kullanılarak üretilen aerjel çalışmalarına rastlanmamıştır.

#### Çıkar Çatışması Beyanı (Conflict of Interest Statement)

Yazarlar tarafından herhangi bir çıkar çatışması bildirilmemiştir.

#### Kaynaklar (References)

- [1] N. Saraç ve N. Toplan, "Dünyanın En Hafif Katı Malzemesi: Aerjeller," *Metal Dünyası Dergisi*, no. 276, pp. 68-72, Haziran 2016.
- [2] A. E. Çimen ve N. Toplan, "Döküm Kumu ve atık döküm kumundan silika esaslı aerjel toz eldesi," *Metal Dünyası Dergisi*, no. 329, pp. 50-56, Kasım 2020.
- [3] N. Saraç, "Silika esaslı doğal hammadde ve atıklardan aerjel tozu üretimi ve karakterizasyonu," Doktora tezi, Sakarya Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Sakarya, Türkiye, 2018.
- [4] A. Köken ve M. Kanık, "Aerjellerle Isı Yalıtımı ve Tekstil Uygulamaları," *Tekstil ve Mühendis*, vol. 29, no. 128, pp. 249-260, 2022. doi: 10.7216/teksmuh.1222488
- [5] A. E. Çimen, "Döküm Kumu ve Atık Döküm Kumundan Silika Esaslı Aerjel Üretimi Ve Karakterizasyonu," Yüksek lisans tezi, Sakarya Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Sakarya, Türkiye, 2021.
- [6] Y. Lei, X. Chen, H. Song, Z. Hu and B. Cao, "Improvement of thermal insulation performance of silica aerogels by  $\text{Al}_2\text{O}_3$  powders doping," *Ceramics International*, vol. 43, no. 14, pp. 10799-10804, 2017. doi: 10.1016/j.ceramint.2017.05.100

- [7] Y. Wu, X. Wang, L. Liu, Z. Zhang and J. Shen, "Alumina-Doped Silica Aerogels for High-Temperature Thermal Insulation," *Gels*, vol. 7, no. 3, pp. 1-12, 2021. doi: 10.3390/gels7030122
- [8] C. M. Almeida, M.E. Ghica and L. Duraes, "An overview on alumina-silica-based aerogels," *Advances in Colloid and Interface Science*, vol. 282, pp. 1-25, 2020. doi:10.1016/j.cis.2020.102189
- [9] D.C. Öz ve N. Kaya, "Sol-jel yöntemiyle üretilen alümina alkojelin fizikokimyasal ve yapısal özellikleri üzerine kurutma türünün etkisi", *Politeknik Dergisi*, vol. 23, no. 3, pp. 657-669, 2020. doi:10.2339/politeknik.456871
- [10] S. Karamikamkar, H. E. Naguib and C. B. Park, "Advances in precursor system for silica-based aerogel production toward improved mechanical properties, customized morphology, and multifunctionality: A review," *Advances in colloid and interface science*, vol. 276, pp. 1-29, 2020. doi:10.1016/j.cis.2020.102101
- [11] D. C. Öz, B. Öz ve N. Kaya, "Alümina aerogellerin fiziksel özellikleri üzerine yaşlandırma ve kurutma süresinin etkisi," *Balıkesir Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Dergisi*, vol. 20, no. 1, pp. 198-211, Temmuz 2018. doi:10.25092/baunfbed.348344
- [12] A. Kochanek, C. Üffing and A. Hartwig, "Interaction of Poly (dimethylsiloxane) and octamethylcyclotetrasiloxane with aluminum oxides comprising different acid-base properties," *Polymer Degradation and Stability*, vol. 161, pp. 19-29, 2019. doi:10.1016/j.polymdegradstab.2019.01.01.
- [13] J. Estella, J. C. Echeverría, M. Laguna and J. J. Garrido, "Effects of aging and drying conditions on the structural and textural properties of silica gels," *Microporous and mesoporous materials*, vol. 102, no. 1-3, pp. 274-282, 2007. doi:10.1016/j.micromeso.2007.01.007.
- [14] A.S. Dorcheh and M. H. Abbasi, "Silica aerogel; synthesis, properties and characterization," *Journal of materials processing technology*, vol. 199, no. 1-3, pp. 10-26, 2008. doi:10.1016/j.jmatprotec.2007.10.060.
- [15] A. Kösematoğlu, "Yurdumuzdaki şamot ateş tuğlası hammadde yatakları," *Scientific Mining Journal*, vol. 1, no. 2, pp. 98-109, 1961.
- [16] Vandersanden, "Malzemelerin yeniden kullanımı ve geri dönüşümü," *vandersanden.com*, June 8, 2021. [Online]. Available: <https://www.vandersanden.com/tr-tr/malzemelerin-yeniden-kullanimi-ve-geri-donusumu>. [Accessed: Jan. 12, 2024].
- [17] S. É. Elvanov and A. V. Belyakov, "Diatomite and its applications," *Glass & Ceramics*, vol. 65, 2008.
- [18] B. Taş ve M. Çetin, "Biyolojik orijinli tek doğal mineral: diyatomit," *Tübav Bilim Dergisi*, vol. 5, no. 2, pp. 28-46, 2012.
- [19] N. Değirmenci ve A. Yılmaz, "Use of diatomite as partial replacement for Portland cement in cement mortars," *Construction and Building Materials*, vol. 23, no. 1, pp. 284-288, 2009.
- [20] M. V. Gökçe ve İ. Koç, "Diyatomit esaslı hafif yapı elemanı üretiminde üre-formaldehitin bağlayıcı olarak kullanılması," Doktora tezi, Selçuk Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Konya, 2010.
- [21] Ü. Osman ve T. Uygunoğlu, "Diyatomitin hafif beton üretiminde kullanılması," *Teknik Dergi*, vol. 18, no. 86, pp. 4025-4034, 2007.
- [22] Pertaş, "Perlit madeni," *pertas.net*, Apr. 12, 2004. [Online]. Available: <http://www.pertas.net/Perlit.html>. [Accessed: Dec. 12, 2023]
- [23] Ł. Kotwica, W. Pichór, E. Kapeluszná and A. Różycka, "Utilization of waste expanded perlite as new effective supplementary cementitious material," *Journal of Cleaner production*, vol. 140, pp. 1344-1352, Jan. 2017. doi: 10.1016/J.JCLEPRO.2016.10.018
- [24] E. Kapeluszná, Ł. Kotwica, G. Malata, P. Murzyn and W. Nocuń-Wczelik, "The effect of highly reactive pozzolanic material on the early hydration of alite-C<sub>3</sub>A-gypsum synthetic cement systems," *Construction and Building Materials*, vol. 251, Aug. 2020. doi:10.1016/j.conbuildmat.2020.118879
- [25] A. El Mir and S. G. Nehme, "Utilization of industrial waste perlite powder in self-compacting concrete," *Journal of Cleaner Production*, vol. 156, pp. 507-517, July 2017. doi:10.1016/j.jclepro.2017.04.103
- [26] G. Jia, J. Guo and Z. Li, "Controllable preparation of aerogel/expanded perlite composite and its application in thermal insulation mortar," *Construction and Building Materials*, vol. 394, Aug. 2023. doi:10.1016/j.conbuildmat.2023.132257
- [27] M. Harila, "Biobased carbon aerogels incorporated with zeolite nanoplates for carbon dioxide adsorption," master dissertation, Luleå University of Technology, Luleå, Sweden, 2021.
- [28] K. A. Sashkina, P. A. Gurikov, A. B. Ayupov, I. Smirnova and E. V. Parkhomchuk, "Zeolite/silica aerogel composite monoliths and microspheres," *Microporous and Mesoporous Materials*, vol. 263, pp. 106-112, June 2018. doi:10.1016/j.micromeso.2017.12.010
- [29] B. Wang, H. Ma and K. Song, "Preparation and characterization of silica aerogels from diatomite via ambient pressure drying," *Russian Journal of Physical Chemistry A*, vol. 88, pp. 1196-1201, June 2014. doi:10.1134/S0036024414070036
- [30] W. Hu, M. Li, W. Chen, N. Zhang, B. Li, M. Wang and Z. Zhao, "Preparation of hydrophobic silica aerogel with kaolin dried at ambient pressure," *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, vol. 501, pp. 83-91, July 2016. doi:10.1016/j.colsurfa.2016.04.059

- [31] P. Zhu, M. Zheng, S. Zhao, J. Wu and H. Xu, "Synthesis and thermal insulation performance of silica aerogel from recycled coal gangue by means of ambient pressure drying," *Journal of Wuhan University of Technology-Mater. Sci. Ed.*, vol. 30, no. 5, ss. 908-913, Oct. 2015. doi:10.1007/s11595-015-1248-9
- [32] J. Zhu, S. Guo and X. Li, "Facile preparation of a SiO<sub>2</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> aerogel using coal gangue as a raw material via an ambient pressure drying method and its application in organic solvent adsorption," *RSC Advances*, vol. 5, no. 125, pp. 103656-103661, Nov. 2015. doi:10.1039/C5RA20392A.
- [33] F. Peng, Y. Jiang, J. Feng, L. Li, H. Cai and J. Feng, "A facile method to fabricate monolithic alumina-silica aerogels with high surface areas and good mechanical properties," *Journal of the European Ceramic Society*, vol. 40, no. 6, pp. 2480-2488, June 2020. doi:10.1016/j.jeurceramsoc.2020.01.058
- [34] F. Lou, S. Dong, K. Zhu, X. Chen and Y. Ma, "Thermal insulation performance of aerogel nano-porous materials: characterization and test methods," *Gels*, vol. 9, no. 3, March 2023. doi:10.3390/gels9030220
- [35] X. Wu, M. Fan, J. F. McLaughlin, X. Shen and G. Tan, "A novel low-cost method of silica aerogel fabrication using fly ash and trona ore with ambient pressure drying technique," *Powder Technology*, vol. 323, pp. 310-322, Jan. 2018. doi:10.1016/j.powtec.2017.10.022
- [36] X. Ji, Q. Zhou, G. Qiu, B. Peng, M. Guo and M. Zhang, "Synthesis of an alumina enriched Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-SiO<sub>2</sub> aerogel: Reinforcement and ambient pressure drying," *Journal of Non-Crystalline Solids*, vol. 471, pp. 160-168, Sept. 2017. doi:10.1016/j.jnoncrysol.2017.05.038
- [37] F. Lou, S. Dong, K. Zhu, X. Chen, and Y. Ma, "Thermal insulation performance of aerogel nano-porous materials: characterization and test methods," *Gels*, vol. 9, no. 3, March 2023. doi:10.3390/gels9030220
- [38] S. A. Al-Ajlan, "Measurements of thermal properties of insulation materials by using transient plane source technique," *Applied thermal engineering*, vol. 26, no. 17-18, pp. 2184-2191, 2006. doi:10.1016/j.applthermaleng.2006.04.006
- [39] Y. Yu, K. Peng, J. Fang, R. Zhang, G. Wang and X. Peng, "Mechanical and thermal conductive properties of fiber-reinforced silica-alumina aerogels," *International Journal of Applied Ceramic Technology*, vol. 15, no. 5, pp. 1138-1145, March 2018. doi:10.1111/ijac.12891
- [40] L. Liu, X. Wang, Z. Zhang, Y. Shi, Y. Zhao, S. Shen and J. Shen, "A facile method for fabricating a monolithic mullite fiber-reinforced alumina aerogel with excellent mechanical and thermal properties." *Gels*, vol. 8, no. 6, June 2022. doi:10.3390/gels8060380
- [41] H. Yu, Y. Jiang, Y. Lu, X. Li, H. Zhao, Y. Ji and M. Wang, "Quartz fiber reinforced Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-SiO<sub>2</sub> aerogel composite with highly thermal stability by ambient pressure drying," *Journal of Non-Crystalline Solids*, vol. 505, pp. 79-86, Feb. 2019. doi:10.1016/j.jnoncrysol.2018.10.039

This is an open access article under the CC-BY license

