



Synthesis of aerogel usage of sand by ultrasonically assisted sol-gel method, characterization and thermal insulation plaster application

Nevin Karamahmut Mermer^{ID}, Sabriye Pişkin^{ID}

Department of Chemical Engineering, Yıldız Technical University, Istanbul, 34220, Turkey

Highlights:

- Synthesis of silica-based aerogel from sand
- Ultrasonic assisted sol-gel method
- Thermal insulation plaster application

Keywords:

- Aerogel
- Sand
- Hydrophobicity
- Thermal insulating plaster

Article Info:

Research Article
Received: 13.12.2017
Accepted: 06.06.2018

DOI:

10.17341/gazimmfd.460521

Correspondence:

Author: Sabriye Piskin
e-mail: piskin@yildiz.edu.tr
phone: +90 212 383 4729

Graphical/Tabular Abstract

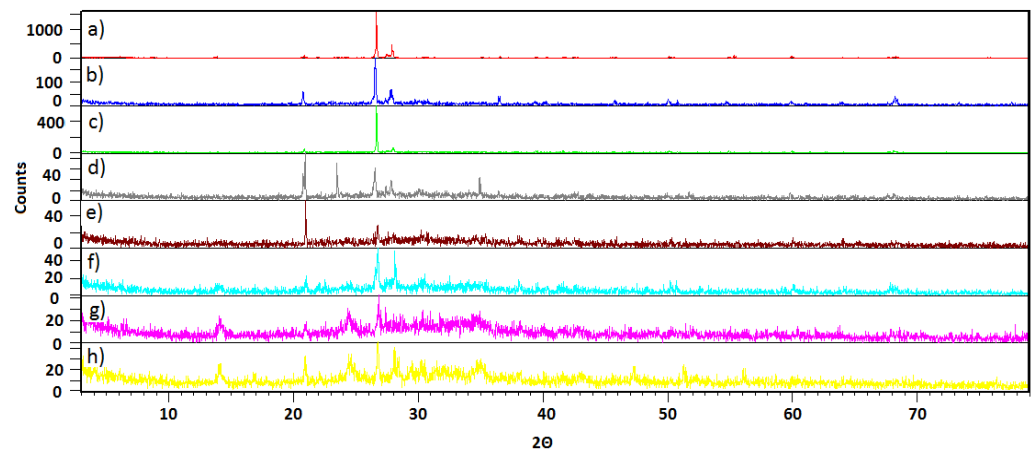


Figure A. XRD pattern of the solid phase after thermally fusion reaction a) K, b) K-0.8, c) K-1, d) K-1.2, e) K-1.4, f) K-1.6, g) K-1.8, h) K-2

Purpose: This research aims to demonstrate the synthesis of silica based hydrophobic aerogel from sand by using of ultrasonic assisted sol-gel method. The modification process of aerogel was carried out during production and all drying processes were completed at ambient pressure without the use of supercritical pressure. Optimum sample was evaluated for the production of plaster with thermal insulation properties.

Theory and Methods:

The silica solutions were obtained from the sand, and the synthesis of materials was based on the base-catalyzed sol-gel process.

Results:

Hydrophobic silica based aerogels were synthesized by using a combination of the ultrasonic method and the one step sol-gel method, with the sand. Parameters that have an effect on the synthesis of hydrophobic silica aerogel as well as on the properties of synthesized samples, such as pH, silicon/total material mass ratio, reflux time, reflux temperature, aging time, aging temperature and drying method, were investigated. The physical properties of the produced material were determined by FT-IR, contact angle and density measurements. For the sample with the lowest density, XRD, TG / DTG, N₂ adsorption / desorption and SEM analyzes were performed and evaluated in the production of thermal insulating plaster.

Conclusion:

As a result of the analyzes, optimum synthesis conditions were determined as pH 9, Si / total amount of 0.25, reflux temperature 100° C and 30 minutes, aging temperature 50° C, aging time 24 hours and fixed drying process. It was determined that the optimum sample was amorphous silicon, the surface area was 281.73 m²/g and the average pore width was 24.44 nm. The sample evaluated in the thermal insulation plaster production has been added to the mixture in various mass percentage ratios and it has been observed that the thermal conductivity coefficient decreases due to the increase in the amount of aerogel in the content until it reaches to 10%.



Ultrason destekli sol-jel yöntemi ile kumdan aerojel sentezi, karakterizasyonu ve termal yalıtım sıvası üretiminde değerlendirilmesi

Nevin Karamahmut Mermer¹, Sabriye Pişkin^{2*}

Yıldız Teknik Üniversitesi, Davutpaşa Kampüsü, Kimya Mühendisliği Bölümü, İstanbul, 34210, Türkiye

ÖNEÇIKANLAR

- Kumdan silisyum bazlı aerojel üretimi
- Ultrasonik destekli sol-jel yöntemi
- Termal yalıtım sıvası üretimi

Makale Bilgileri

Araştırma Makalesi

Geliş: 13.12.2017

Kabul: 06.06.2018

DOI:

10.17341/gazimmfd.460521

Anahtar Kelimeler:

Aerojel,
kum,
hidrofobiklik,
termal yalıtım sıvası

ÖZET

Artan nüfus yoğunluğuna bağlı olarak ortaya çıkan aşırı enerji tüketimi, çevre kirliliği ve küresel ısınma, tüm dünya için tehdit oluşturmaktadır. Çevresel alanda meydana gelen bu değişimler tüm dünyada araştırmacıların dikkatini çekmekte ve pek çok akademik ortamda çalışılan konular arasında yerini almaktadır. Binaların termal olarak yalıtımı uzun yıllardır araştırılıp geliştirilen bir konu haline gelmiştir. Son yıllarda ileri teknolojiler kullanılarak geliştirilen üstün özellikli yalıtım malzemeleri, uzun yıllardır kullanımda olan geleneksel yalıtım malzemelerinin yerini almakta ve yeni bir ticari pazar yaratmaktadır. Bu çalışmada ultrasonik destekli sol-jel yöntemi kullanılarak, ucuz ve kolay ulaşılabilir bir malzeme olan kumdan, hidrofobik özellikli aerojel üretimi gerçekleştirilmiştir. Aerojelin modifikasyon işlemi üretim sırasında gerçekleştirilmiş ve tüm kurutma işlemleri süper kritik basınç kullanılmadan ortam basıncında tamamlanmıştır. Çeşitli üretim parametrelerinin elde edilen aerojelin yoğunluğu üzerine olan etkisi incelenip en düşük yoğunluktaki malzemenin sentezlendiği koşullar optimum koşullar olarak belirlenmiştir. Üretilen malzemenin fiziksel özellikleri FT-IR, temas açısı ve yoğunluk ölçümleri ile belirlenmiştir. En düşük yoğunluğa sahip olan numune için XRD, TG/DTG, N₂ adsorpsiyon/desorpsiyon ve SEM analizleri gerçekleştirilerek malzeme karakterize edilmiş ve termal yalıtım özelliği olan sıva üretiminde değerlendirilmiştir.

Synthesis of aerogel usage of sand by ultrasonically assisted sol-gel method, characterization and thermal insulation plaster application

HIGHLIGHTS

- Synthesis of silica-based aerogel from sand
- Ultrasonic assisted sol-gel method
- Thermal insulation plaster application

Article Info

Research Article

Received: 13.12.2017

Accepted: 06.06.2018

DOI:

10.17341/gazimmfd.460521

Keywords:

Aerogel,
sand,
hydrophobicity,
thermal insulating plaster

ABSTRACT

Excessive energy consumption, environmental pollution and global warming, which arise due to increasing population density, pose a threat to the whole world. These changes attract the attention of researchers all over the world and are among the topics that are studied in many academic researches. Thermal insulation of buildings has been explored and developed for many years. Highly featured insulation materials which developed by using advanced technologies in recent years, have taken the place of traditional insulation materials that have been in use for many years and create a commercial market. In this study, ultrasonic assisted sol-gel method was used to synthesize hydrophobic aerogel by using sand which is a cheap and easily accessible material. The modification process of aerogel was carried out during production and all drying processes were completed at ambient pressure without the use of supercritical pressure. The effect of various production parameters on the aerogel density was investigated and the conditions under the lowest density material was synthesized were determined as the optimum conditions. The physical properties of the produced material were determined by FT-IR, contact angle and density measurements. XRD, TG / DTG, N₂ adsorption / desorption and SEM analyzes were performed for the optimum sample with the lowest density. Optimum sample was characterized and evaluated for the production of plaster with thermal insulation properties.

*Sorumlu Yazar/Corresponding Author: nevin_karamahmut@hotmail.com, piskin@yildiz.edu.tr / Tel: +90 212 383 4726
1254

1.GİRİŞ (INTRODUCTION)

Hızlı nüfus artışı; sera etkisi, küresel ısınma, stratosferik ozon tüketimi, asit çökmesi ve aşırı enerji tüketimi gibi birçok çevresel problemi beraberinde getirmektedir. İnsan temelli olan bu sorunlar; erozyona, deniz kirliliğine, hayvan ve bitki türlerinin kaybına neden olmaktadır. Çevresel sorunların çoğu, aşırı enerji kullanımı ve CO₂ konsantrasyonundaki artış ile ilgilidir [1, 2]. Gelişmiş ülkelerin enerji stratejilerinin en temel dayanağı enerji tasarrufudur. Sınırlı enerji kaynakları ve buna bağlı çevre sorunları, enerji tasarrufunu bir zorunluluk haline getirmektedir [3].

En büyük enerji tüketimi ve kayıpları dünyanın dört bir yanındaki binalarda gerçekleşmektedir. Binaların izolasyonu; enerji kullanımının azaltılması ve birim enerji maliyetinin düşürülmesi açısından çok önemlidir. Binanın yalıtım kabiliyeti bina dış cephesinde kullanılan malzemelerin özelliklerine bağlıdır. İnşaatta kullanılan bu malzemelerin termal yalıtım özellikleri, ısı yayması veya ısı emilimi ölçülmesiyle karakterize edilir [4]. Türkiye'de düşük kaliteli yakıt kullanımı ve yetersiz yalıtım nedeniyle alan ısıtması için gereğinden fazla enerji tüketilmektedir. Isı yalıtım malzemeleri, bir binadaki dış duvarlar, iç duvarlar, tavan ve döşemelerde kullanılabilir. Bu izolasyon prosedürünün kullanılması toplam enerji kaybının %53'ünü engeller [1]. Fiberglas, perlit, selüloz ve köpük metaller yalıtım amacı ile yapı sektöründe kullanılan malzemelerdir [4, 5] Türkiye'de, ısı yalıtım teknolojileri sayesinde enerjiden yüksek oranda tasarruf sağlanabilmesi mümkündür. Uygun bir biçimde yalıtım yapılmış binaların yalıtım maliyeti, bina ömrü boyunca kendini birçok kez geri ödeyebilecek durumdadır. Yapılan yalıtım ile birlikte birlikte enerji tüketimi azalacağı gibi buna bağlı olarak da oluşan baca gazı emisyonları da azalmaktadır [6].

Aerojel, 1931'de Kistler tarafından keşfedilen ve son zamanlarda yalıtım amaçlı olarak kullanılmaya başlanan bir malzemedir. Aerojel, yüksek spesifik yüzey alanı, yüksek gözeneklilik, düşük yoğunluk, düşük dielektrik sabiti ve mükemmel ısı yalıtım özelliklerine sahip, nano gözenekli hafif bir malzemedir [7]. Aerojeller, düşük termal iletkenliklerinden dolayı; yalıtım, portatif soğutucular, havacılık uygulamaları ve kriyojenik malzeme üretiminde kullanılmaktadır [8-10]. Aerojeller gözenekli yapıları nedeniyle katalizör, adsorbentler, sensörler, yakıt depolama uygulamaları, iyon değişimi ve lazer uygulamaları için kullanılmaktadır [11-18]. Şeffaf olması aerojelin avantajlarından biridir. Bu özellik aerojellerin optik uygulamalarda ve dedektörlerde kullanılmasına olanak tanımaktadır [19-21]. Son yıllarda silika bazlı hidrofobik aerojeller tetrametoksisilan (TMOS), tetraetil ortosilikat (TEOS), polietoksidisiloksan, endüstriyel su camı, uçucu kül, diatomit, bentonit ve sodyum silikat gibi silika kaynakları kullanılarak sentezlenmektedirler [22-28]. Shi vd. gerçekleştirmiş oldukları çalışmada silisyum kaynağı olarak uçucu kül kullanmış ve ortam şartlarında kurutma ile

silisyum aerojel elde etmişlerdir. Çalışmada üretim parametrelerinin elde edilen aerojel numunelerinin yüzey alanı, gözenek hacmi ve gözenek dağılımı üzerine olan etkileri incelenmiştir [25]. Wang vd. silika aerojelleri diatomitten ortam basıncı altında üreterek farklı seyreltme oranlarının aerojellerin fiziksel özellikleri üzerindeki etkileri incelemişlerdir [26]. Suchithra vd. nın gerçekleştirmiş olduğu çalışmada SiO₂ ve polietilenglikol bentonit kullanılarak organik-inorganik hibrit aerojel üretilmiş, bu sırada baskın bir mezogözenekli ve kısmen mikrogözenekli yapı meydana gelmiştir [27]. Sarawade vd. nın çalışmasında düşük yoğunluklu şeffaf mezogözenekli silisyum aerojeller ortam koşullarında kurutma ile sodyum silikat kullanılarak sentezlenmiştir. Malzemenin çatlamasını engellemek için amonyak çözeltisi damla damla eklenmiştir [28].

Atıkların ve killerin aerojel sentezinde kullanılması, daha ekonomik ve çevre dostu bir üretim için çok büyük önem taşımaktadır. Bu çalışmada, yüksek SiO₂ içeriği göz önüne alınarak kum silisyum kaynağı olarak seçilmiştir. Kumdan silisyum esaslı aerojel sentezi ve sentez parametrelerinin aerojel üzerindeki etkisi ile ilgili bu kadar detaylı bir çalışma daha önce literatürde yer almamıştır. Çalışmanın bir diğer yeniliği ise; çalışmanın sonucu olarak elde edilen optimum özelliklere sahip numunenin termal yalıtım sıvası üretiminde değerlendirilerek bir uygulama alanı bulmasıdır. Tek basamaklı ultrasonik destekli sol-jel yöntemiyle sentezlenen numunelerin hidrofobik özellik kazandırılmak üzere gerçekleştirilen modifikasyon işlemi ayrı bir üretim basamağı olarak yapılmamış sol-jel üretimi sırasında gerçekleştirilmiştir. Sentezlenen tüm numunelerin fiziksel özellikleri; temas açısı ve yoğunluk ölçümleri gerçekleştirilerek belirlenmiştir. Optimum numunenin karakterizasyonu için için XRF, XRD, SEM ve N₂ adsorpsiyon / desorpsiyon analizleri gerçekleştirilmiştir. Termal yalıtım sıvası üretimi için optimum numune farklı oranlarda (kütleli olarak %1, %5 ve %10) kullanılmış ve en etkin oran, termal iletkenlik katsayılarının ölçülmesi ile belirlenmiştir.

2.MATERYAL VE METOT (MATERIALS AND METHODS)

2.1. Malzemeler (Materials)

Bu çalışmada kullanılan kum İstanbul, Silivri'den temin edilmiştir. Kum herhangi bir saflaştırma veya zenginleştirme işlemi yapılmadan, 24 saat boyunca 105 ° C'de kurutularak öğütülüp, 90 µm altına elenerek kullanılmıştır. Sentez aşamasında kullanılan sodyum hidroksit yerel pazarda mevcuttur. Hidroklorik asit (HCl, %37), sülfürik asit (H₂SO₄, %95-97), amonyak (NH₃, %25) ve hekzan (C₆H₁₄, ≥%99) Merck'ten, etanol (C₂H₆O, %25) ve trimetilklorosilan (C₃H₉ClSi, ≥%99) Sigma Aldrich'den temin edilmiştir.

2.2. Ekipmanlar (Apparatus)

Malzemenin kristalografik özelliklerinin belirlenmesi için X-ışını kırınımı (XRD) analizi, 3-80° tarama aralığında 45

kV ve 40 mA'da Cu-K α tüp ($\lambda = 0,153$ nm) ile PANalytical Xpert Pro X-ışını kırınım ölçer kullanılarak gerçekleştirilmiştir. Kumun kimyasal bileşimi, Rigaku, NEX CG X-Ray Flouresans (XRF) kullanılarak Na-U elemanları aralığında üç tekrar ile belirlenmiştir. Kumdan elde edilen silisyum çözeltisinin element analizi, Perkin Elmer Optima 2100 DV indüktif çift plazma optik emisyon spektrometresi (ICP-OES) kullanılarak analiz edilmiştir. Yüzeysel modifikasyonu işlemi sonucunda numuneler Perkin Elmer Spectrum One marka Fourier dönüşümü infrared spektrometresi (FT-IR) kullanılarak 4000-450 cm⁻¹ aralığında KBr tekniği ile analiz edilmiştir. Temas açısı (θ) ölçümleri PicPick yazılımı ile RoHs optik mikroskop kullanılarak gerçekleştirilmiştir. Elde edilen silika aerogellerin yoğunlukları, numunelerin kütle / hacim oranları ölçülerek volumetrik olarak hesaplanmıştır [28]. N₂ adsorpsiyon / desorpsiyon izotermeleri ve sentezlenen numunelerin gözenek çapı dağılımı Micromeritics ASAP 2020 yüzey alanı ve porozimetri analizörü kullanılarak ölçülmüştür. Numunenin yüzey alanı ve gözenek çapı dağılımları sırasıyla Brunauer-Emmett-Teller (BET) ve Barrett-Joyner-Halenda (BJH) yöntemleriyle hesaplanmıştır. Elde edilen optimum özellikteki ürünün mikroyapısal özellikleri Hitachi Mikroskop TM3030Plus marka Taramalı elektron mikroskobu (SEM) ile incelenmiştir. Aerogel bazlı sıva örneklerinin termal iletkenlikleri TCi C-Therm Thec analizörü kullanılarak ölçülmüştür.

2.3. Kumdan Alkali Füzyon Yöntemi ile Silisyum Çözeltisi Elde Edilmesi

(Extraction of Silicon Solution by Alkali Fusion Method from Sand)

Kum temin edildikten sonra 105°C'de kurutulmuş ve mekanik öğütücüde öğütülerek tane boyutunun homojen hale gelmesi sağlanmıştır. Öğütme işleminden sonra kum kalibre edilmiş eleklerle 90 μ m altına eilen ve herhangi bir ön işlem yapılmaksızın kullanılabilir hale getirilmiştir. Kumdan silisyum çözeltisi eldesi işlemi için; Shigemoto vd. tarafından gerçekleştirilen füzyon işlemi temel alınmış bazı modifikasyonlar yapılarak kullanılmıştır[29].

Kumdan silisyum eldesi için NaOH kullanılarak füzyon işlemi gerçekleştirilmiş ve NaOH/kum oranı için 0,8, 1, 1,2, 1,4, 1,6 1,8 ve 2 oranları denenmiştir. Kumdan alkali füzyon yöntemi ile silisyum çekilmesi işlemi taranan parametreler Tablo 1'de verilmektedir.

Kum belirlenen oranda NaOH ile nikel kroze içerisinde homojen hale getirilinceye kadar karıştırılmış 550°C'de kül fırınında 1 saat süreyle ısıtılma tabi tutulmuştur. Farklı füzyon oranlarının elde edilen çözeltideki silisyum konsantrasyonuna etkisi böylelikle incelenmiştir. Füzyon neticesinde elde edilen katı ürün yeniden öğütülerek belirli miktarda saf su ile karıştırılmıştır. Sulu çözelti 25°C'de 16 saat süreyle çalkalamalı su banyosunda karıştırılmıştır. Karışım mavi bantlı süzgeç kâğıdı kullanılarak ana çözeltiden ayrılmıştır. Elde edilen sıvı fazın silisyum içeriği ICP-OES analizi ile belirlenmiştir. Kumun katı fazına füzyon işlemi öncesinde ve sonrasında XRD ve XRF analizleri yapılmıştır.

Tablo 1. Silisyum çözeltisi eldesi için kullanılan parametreler

(Parameters used to obtain silicon solution)

Hammaddeler	Madde/NaOH oranı	Sıcaklık (°C)	Süre (saat)
Kum	1:0,8	550	1
	1:1	550	1
	1:1,2	550	1
	1:1,4	550	1
	1:1,6	550	1
	1:1,8	550	1
	1:2	550	1

2.4. Silisyum Çözeltisinden Aerogel Üretimi

(Aerogel Synthesis from Silicon Solution)

Füzyon yöntemi ile elde edilen silisyum çözeltisinin pH'ı sülfürik asit kullanılarak istenilen değere ayarlanmıştır. pH'ı ayarlanan çözelti TMCS: Etanol: H₂O: HCl mol oranları 0,36:3,1:1,2:7x10⁻⁴ olacak şekilde ultrasonik probda 1-1 saniye sarsma ile 10 dakika süresince karıştırılmıştır. Reaksiyon koşulları için Li vd. nin çalışması esas alınmıştır [30]. Karışım belirlenen süre ve sıcaklıklarda riflaks altında bekletilmiştir. Riflaks sonrası etanol, su ve amonyak mol oranları 1: 7: 5x10⁻⁴ olacak şekilde başlangıç çözeltisine eklenip manyetik karıştırıcıda 15 dakika süre ile karıştırılmıştır. Yaşlandırma süre ve sıcaklıkları için gerekli bekleme yapılarak jel oluşumu gözlemlenmiş ve oluşan jel heklanla yıkanıp kurutmaya alınmıştır. Bu çalışma için pH, silisyum/toplam malzeme oranı, riflaks sıcaklığı, riflaks süresi, yaşlandırma sıcaklığı, yaşlandırma süresi ve kurutma tipinin üretime etkisi incelenmiştir.

2.4.1. pH etkisi (pH Effect)

Malzeme üretimine pH etkisini incelerken diğer bütün parametreler sabit tutulmuş ve numuneler K-pH-X şeklinde isimlendirilmiştir. K; kumu temsil etmektedir. pH değerini temsil eden X değeri 3, 5, 7, 9 ve 11 olacak şekilde taranmıştır. Elde edilen numunelerin yoğunluk, temas açısı ölçümleri ve FT-IR analizleri gerçekleştirilmiş, yoğunluğu en düşük olan numunenin sentezlendiği pH değeri üretim için optimum pH olarak belirlenmiştir.

2.4.2. Si/toplam madde miktarı (Si/Total mass ratio)

Malzeme üretimine silisyum miktarı/toplam madde miktarının etkisini incelerken pH 9 olarak alınarak diğer bütün parametreler sabit tutulmuş ve numuneler K-X şeklinde isimlendirilmiştir. K; kumu temsil etmektedir. Si/toplam madde miktarını temsil eden X değeri 0,25, 0,5 ve 0,75 olacak şekilde taranmıştır. Elde edilen numunelerin yoğunluk, temas açısı ölçümleri ve FT-IR analizleri gerçekleştirilmiş ve yoğunluğu en düşük olan numunenin sentezlendiği madde miktarı değeri üretim için optimum olarak belirlenmiştir.

2.4.3. Riflaks sıcaklığı (Reflux temperature)

Riflaks sıcaklığı jelleşme üzerine etkisi olan bir parametredir. Dolayısı ile riflaks parametrelerinin malzeme üzerindeki etkisi incelenmiştir. Riflaks kolonunda numune karıştırırken kullanılan sıcaklık değerleri için 80°C, 100°C ve 120°C denenerek elde edilen numunelere yoğunluk, temas açısı ölçümleri ve FT-IR analizleri yapılmış, yoğunluğu en düşük olan numunenin sentezlendiği riflaks sıcaklığı değeri üretim için optimum riflaks sıcaklığı olarak belirlenmiştir. Malzeme üretimine riflaks sıcaklığı etkisini incelerken diğer bütün parametreler sabit tutulmuş ve numuneler K-R-XS şeklinde isimlendirilmiştir.

2.4.4. Riflaks süresi (Reflux time)

Riflaks süresinin üretime etkisi incelenen parametreler arasındadır. Riflaks kolonunda numune karıştırırken taranan süreler (X) 30, 60 ve 120 dakikadır. Üretime riflaks süresinin etkisini incelemek adına sentezlenen numunelere yoğunluk, temas açısı ölçümü ve FT-IR analizleri yapılmış ve elde edilen numuneler K-R-XT olarak adlandırılmıştır. Yoğunluk ölçümü sonucunda en düşük yoğunluğa sahip olan numunenin sentezlendiği riflaks süresi optimum süre olarak belirlenmiş ve çalışmanın ilerleyen basamaklarında sabit tutulmuştur.

2.4.5. Yaşlandırma sıcaklığı (Aging temperature)

Kumdan silika bazlı aerogel üretiminde yaşlandırma sıcaklığı üretime etkisi incelenen parametreler arasındadır. Üretim ile kurutma aşamaları arasında gerçekleştirilen yaşlandırma işleminde sıcaklığın etkisi taranarak yaşlandırma sıcaklığı olarak 25°C, 50°C ve 75°C denenmiştir. Elde edilen numuneler K-Y-XS olarak adlandırılmıştır. K-Y-25S, K-Y-50S ve K-Y-75S numunelerine numunelere yoğunluk, temas açısı ölçümleri ve FT-IR analizleri yapılmıştır. Yoğunluk ölçümü neticesinde en düşük yoğunluğa sahip olan numunenin yaşlandırıldığı sıcaklık en iyi yaşlandırma sıcaklığı olarak belirlenmiş ve çalışmanın ilerleyen basamaklarında sabit tutulmuştur.

2.4.6. Yaşlandırma süresi (Aging time)

Yaşlandırma süresi jel oluşumuna etki eden bir parametredir ve çalışma kapsamında üretime etkisi incelenmiştir. Yaşlandırma süresi olarak 0, 6, 12, 24 ve 48 saat süreler taranmış ve elde edilen numuneler K-Y-XT olarak adlandırılmıştır. Numunelere daha önceki parametrelerde olduğu gibi yoğunluk, temas açısı ölçümleri ve FT-IR analizleri yapılmıştır. Yoğunluk ölçümü neticesinde en düşük yoğunluğa sahip olan numunenin yaşlandırılma süresi en iyi yaşlandırma süresi olarak belirlenmiş ve çalışmanın ilerleyen basamaklarında sabit tutulmuştur.

2.4.7. Kurutma tipi (Drying Programme)

Jel oluşumunun ardından; kurutma yönteminin üretime olan etkisinin incelenmesi için sabit kurutma 50°C'de 6 saat

süreyle ve kademeli kurutma işlemi sırasıyla 60°C, 80°C, 120°C ve 180°C'de ikişer saat süreyle gerçekleştirilmiştir. Numuneler K-SABİT ve K-KADEMELİ olarak isimlendirilmiştir. Numunelere daha önceki parametrelerde olduğu gibi yoğunluk, temas açısı ölçümü ve FT-IR analizleri yapılmıştır. Yoğunluk ölçümü neticesinde en düşük yoğunluğa sahip olan numune, kumdan üretimde en iyi özellikteki numune olarak belirlenmiştir.

2.5. Aerojel Esaslı Termal Yalıtım Sıvası Üretimi (Production of aerogel based thermal insulating plaster)

Termal yalıtım özelliğine sahip sıva üretimi için optimum numune kullanılarak aerogel esaslı sıva örnekleri hazırlanmıştır. Termal yalıtım sıvası üretimi için belirlenen miktarda aerogel etanol ile karıştırılarak homojen bir karışım elde edilmiştir. Aynı zamanda alçı bazlı sıva ile su gerekli oranlarda manyetik karıştırıcı ile karıştırılıp homojen hale getirilmiştir. Aerojel-etanol ve sıva-su karışımları bir araya getirilerek 15 dakika süre ile karıştırılmıştır. Bu aşamada sıva içerisinde bulunan aerogel miktarının yalıtım üzerindeki etkisini incelemek amacıyla farklı kütle oranlarında (%1, %5 ve %10) aerogel-etanol karışımı kullanılmıştır. Elde edilen harçlar kalıplara boşaltılmış ve 1 gün süre ile oda koşullarında kurumak üzere bekletilmiştir.

3. SONUÇLAR VE TARTIŞMALAR (RESULTS AND DISCUSSIONS)

3.1. Kumun Karakterizasyonu (Characterization of sand)

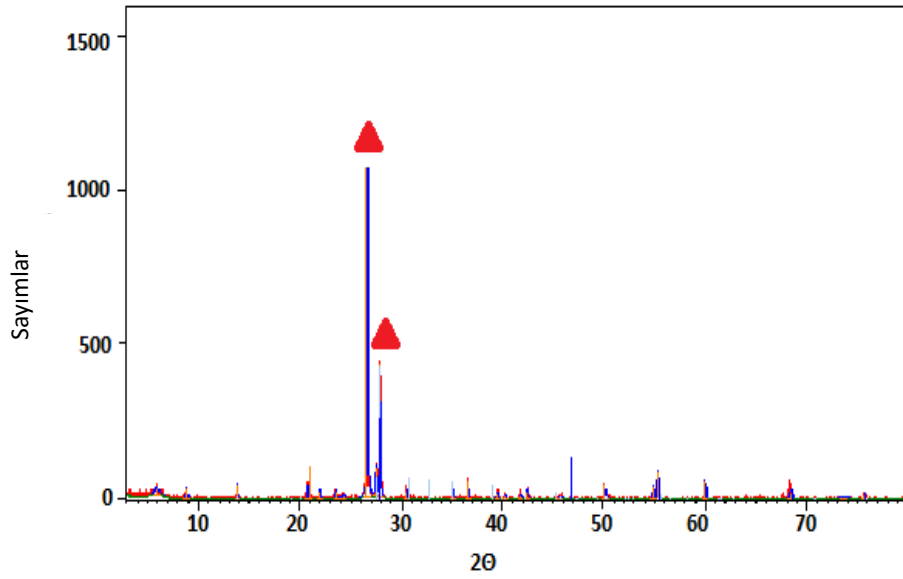
Deneyisel çalışmada kullanılan kumun yapısal özellikleri XRD ve XRF analizleri gerçekleştirilerek incelenmiştir. Kumdan elde edilen silisyum çözeltisinin konsantrasyonu ise ICP-OES cihazı kullanılarak tespit edilmiştir. Kumun kristal yapısı XRD analizi ile 3-80° arasında değişen difraksiyon açılarında gerçekleştirilmiştir. Şekil 1'de kuma ait XRD difraktogramı verilmektedir. Analiz sonucuna göre kumun yapısında (PDF no: 01-085-0794) kuvars bulunmaktadır.

Kumun kimyasal bileşimi XRF analizi ile tespit edilmiş ve kumun %76,1 oranında silisyum içerdiği tespit edilmiştir. Kumda SiO₂'den sonra sırasıyla %7,79 oranında Al₂O₃, %6,4 oranında Na₂O ve %3,73 oranında K₂O bulunmaktadır. Bileşimde yer alan diğer tüm oksitler %2'nin altındadır. Analiz sonucu Tablo 2'de verilmiştir.

3.2. Kumdan elde edilen silisyum çözeltisinin ve katı fazın analizleri

(Characterization of silicon solution and solid phase obtained from sand)

Kumdan silisyum çözeltisi eldesi işleminin ardından elde edilen sıvı çözeltiliye ICP-OES analizi yapılarak en yüksek silisyum konsantrasyonunun elde edildiği Si/NaOH miktarı belirlenmiştir. Daha hassas olması açısından iki paralel kullanılarak çalışılmıştır. Tablo 3'de kumdan elde edilen silisyum çözeltilerinin ICP-OES analiz sonuçları verilmektedir. ICP-OES sonuçlarına bakılarak kum/NaOH kütle oranı arttıkça elde edilen çözeltinin Si konsantrasyonunun arttığı görülmektedir. 1:1,8 oranından



Şekil 1. Kuma ait XRD difraktogramı (Δ: kuvars) (XRD diffractogram of sand (Δ: quartz))

Tablo 2. Kuma ait XRF Tablosu (XRF Table of Sand)

SiO ₂	Al ₂ O ₃	K ₂ O	Fe ₂ O ₃	Na ₂ O	CaO	MgO	SO ₃	P ₂ O ₅
76,1	7,79	3,73	1,77	6,4	2,01	1,77	0,08	0,13

Tablo 3. Kumdan elde edilen silisyum çözeltilerinin ICP-OES analiz sonuçları (ICP-OES analysis results of silicon solutions obtained from sand)

Numune Adı	Konsantrasyon (ppm)				Ortalama Si Konsantrasyonu
	Al	Si	Na	Fe	
K-0,8	799,5 ± 4,94	29250 ± 1796,05	58200 ± 3408,3	29,79 ± 0,23	29250
K-1-1	1374 ± 4,24	46680 ± 1838,48	86055 ± 530,33	39,675 ± 3,20	46680
K-1,2	1790,5 ± 103,94	52400 ± 70,71	105450 ± 7141,78	35,085 ± 0,56	52400
K-1,4	2448,5 ± 109,60	94465 ± 8676,2	181000 ± 17253,4	30,165 ± 2,01	94465
K-1,6	3130 ± 246,07	84870 ± 4157,79	147200 ± 7495,33	13,705 ± 0,44	84870
K-1,8	2978,5 ± 238,295	150610 ± 9913,63	186300 ± 8768,12	11,67 ± 0,39	150610
K-2	3738,5 ± 348,6	108500 ± 1979,89	213000 ± 20647,52	12,16 ± 1,25	108500

sonra konsantrasyonda bir azalma meydana gelmiştir. Ayrıca alkali füzyon işleminden sonra silisyum çözeltisi filtrasyon ile ayrılıp elimizde kalan katı faza da XRD ve XRF analizleri uygulanmış, böylece füzyon işleminin katı faza etkisi incelenmiştir. ICP-OES analizi sonuçları XRF analizi ile desteklenerek en yüksek oranda silisyumun çekildiği kum/NaOH oranı belirlenmiştir. Kum için kum/NaOH oran taramasından elde edilen katı fazın XRF sonuçları Tablo 4’de verilmiştir.

Kum için kum/NaOH oran taramasından elde edilen katı fazın XRD difraktogramları Şekil 2’de verilmiştir. Analiz sonuçlarına bakılarak kristal SiO₂ yapısında olan kumun alkali füzyon işlemi sonrasında sodyum silikat ve NaOH

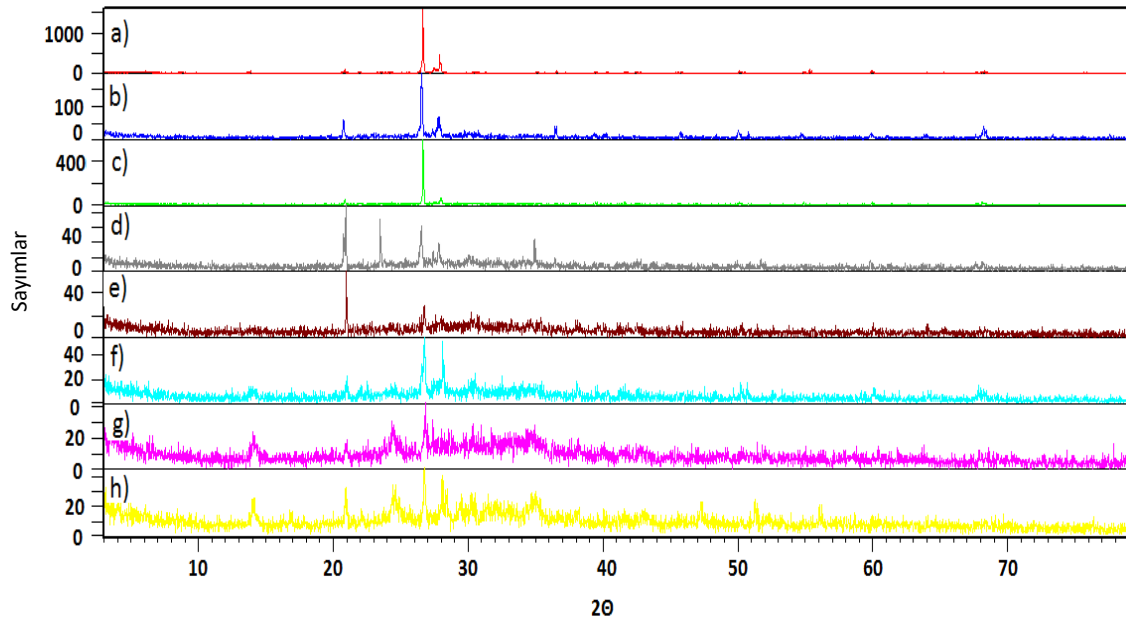
içeriğine sahip olduğu ve SiO₂ piklerinin artan NaOH oranına bağlı olarak sodyum silikata dönüşüp kaybolduğu görülmektedir [31, 32].

3.3. Sentezlenen Aerojel Numunelerinin Karakterizasyonu (Characterization of synthesized aerogel samples)

Sentezlenen numunelerin yoğunluk ve temas açısı ölçümleri Tablo 5’te verilmiştir. Yoğunluk ölçümlerine göre en düşük yoğunluğa sahip olan numune optimum olarak belirlenmiş ve termal yalıtım sıvası üretiminde kullanılmıştır. Temas açısı ölçümleri sentezlenen numunelerin hidrofobik özelliklerinin tespit edilmesi için gerçekleştirilmiş ve elde edilen sonuçlara göre sentezlenen tüm numunelerin 90°’den

Tablo 4. Füzyon sonrası katı fazın XRF analizi (XRF analysis of the solid phase after fusion)

Numune Adı	Kütlece % Bileşim						
	Na ₂ O	MgO	Al ₂ O ₃	SiO ₂	K ₂ O	CaO	Fe ₂ O ₃
K-0,8	45	2	9,4	37	1,92	1,94	2,1
K-1	46	3	10	34,7	1,68	2,17	2,5
K-1,2	42	3	10	36,7	2,03	2,88	3,51
K-1,4	41	3	10	36,7	2,02	3,5	3,69
K-1,6	44	3	8,7	34,8	2,33	3,76	3,19
K-1,8	57	9,5	5,6	20,2	1,33	2,88	3,28
K-2	46	3	8,9	33,7	1,72	3,36	3,07

**Şekil 2.** Füzyon sonrası katı fazın XRD analizi a) K b) K-0,8 c) K-1 d) K-1,2 e) K-1,4 f) K-1,6 g) K-1,8 h) K-2
(XRD analysis of the solid phase after fusion a) K b) K-0.8 c) K-1 d) K-1.2 e) K-1.4 f) K-1.6 g) K-1.8 h) K-2)

büyük temas açısına sahip olup hidrofobik özellikte olduğu belirlenmiştir. Yoğunluk ölçümü sonuçlarına göre farklı pH ve Si/toplam madde miktarı değerleri için sentezlenen numunelerden K-pH-9 ve K-0,25 numuneleri sırası ile 0,239 g/cm³ ve 0,162 g/cm³ yoğunlukları ile bu iki parametre için optimum olarak belirlenmiştir. Rifleks sıcaklığı ve rifleks süresi taramalarında en düşük yoğunluğa sahip optimum numuneler K-R-100S ve K-R-30T olarak bulunmuş olup yoğunlukları sırası ile 0,122 g/cm³ ve 0,115 g/cm³'tür. Yaşlandırma sıcaklığı, yaşlandırma süresi çalışmalarında optimum olarak elde edilen numuneler; 50°C yaşlandırma sıcaklığında 24 saat yaşlandırma süresi ile sabit kurutma işlemi ile elde edilmiş olup yoğunluğu 0,097 g/cm³'tür.

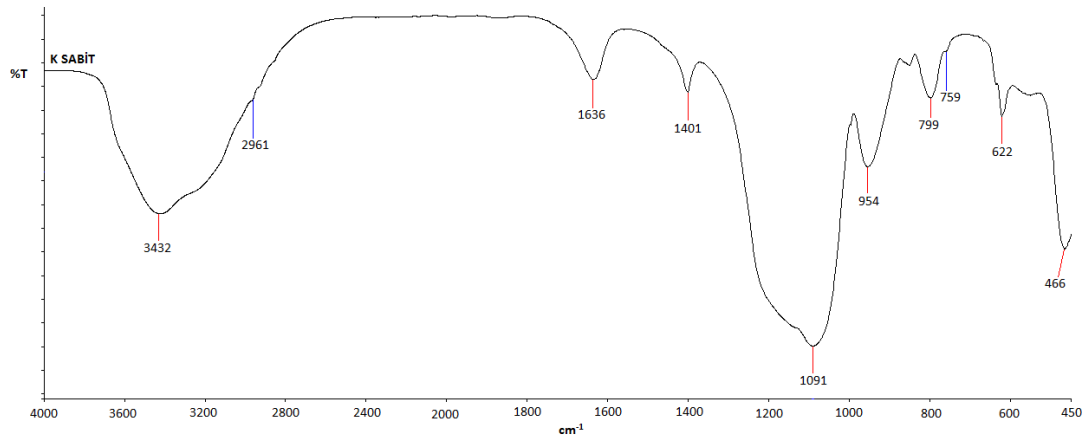
3.4. Optimum Aerojel Numunesinin Karakterizasyonu (Characterization of optimum aerogel sample)

Yoğunluk ölçüm sonuçlarına göre elde edilen optimum sentez koşulları pH 9, Si/toplam madde miktarı 0,25, rifleks sıcaklığı 100°C, rifleks süresi 30 dakika, yaşlandırma sıcaklığı 50°C, yaşlandırma süresi 24 saat ve sabit kurutma işlemi olarak belirlenmiştir. Optimum numunenin karakterizasyonu için FT-IR, XRD, N₂

adsorpsiyon/desorpsiyon ve SEM analizleri gerçekleştirilmiştir. Optimum numuneye ait FT-IR spektrumu Şekil 3'te verilmiştir. Numunenin FT-IR spektrumuna göre; 3400 cm⁻¹ ve 1630 cm⁻¹ dolaylarında fiziksel olarak adsorplanmış olan sudan kaynaklanan O-H titreşimleri, 1080 cm⁻¹ ve 750-790 cm⁻¹'de asimetric ve simetric Si-O-Si gerilmeleri, 2960 cm⁻¹ dolaylarında -CH₃ grubundan, 1250 cm⁻¹ ve 840-850 cm⁻¹'de hidrofoblaştırma ajanı olarak kullanılan TMCS'nin yapıya bağlanmasından dolayı oluşan Si-C ve Si-CH₃ absorpsiyon bantları gözlemlenmiştir. Si-C ve Si-CH₃ absorpsiyon bantlarının gözlemlenmesi sentezlenen numunelerin hidrofobik özellikte olduğunu göstermektedir. Malzemelerin hidrofobik özellikte olduğu temas açısı ölçümleri ile de teyit edilmiştir. [26, 33]. Kumdan elde edilen optimum aerogel numunesine ait XRD difraktogramı Şekil 4'de verilmektedir. Analiz sonucu elde edilen XRD difraktogramı literatürle uyum göstermektedir. Numunenin amorf yapıda olduğu ve 2θ = 24°'de amorf silisyum piki yer aldığı ve başka bir oluşumun bulunmadığı görülmektedir. XRD diftogramında amorf silisyum piki dışında bir pike rastlanmamış olması yapıda herhangi bir safsızlığın bulunmadığını göstermektedir. [34]. Kumdan üretilen optimum aerogel numunesinin N₂

Tablo 5. Sentezlenen numunelerin yoğunluk ve temas açısı ölçümleri
(Density and contact angle measurements of synthesized samples)

Parametreler	Numune Adı	Yoğunluk (g/cm ³)	Temas Açısı (°)
pH	K-pH-3	0,362	107,46
	K-pH-5	0,278	109,89
	K-pH-7	0,251	118,06
	K-pH-9	0,239	111,12
	K-pH-11	0,273	114,56
Si/toplam madde miktarı	K-0,25	0,162	105,24
	K-0,5	0,239	111,12
	K-0,75	0,322	109,3
Riflaks sıcaklığı (°C)	K-R-80S	0,162	105,24
	K-R-100S	0,122	106,84
	K-R-120S	0,211	104,82
	K-R-30T	0,115	105,99
Riflaks süresi (dakika)	K-Y-60T	0,122	106,84
	K-Y-120T	0,123	104,82
	K-Y-25S	0,115	105,99
Yaşlandırma sıcaklığı (°C)	K-Y-50S	0,097	108,58
	K-Y-75S	0,105	101,98
	K-Y-0T	0,119	108,42
	K-Y-6T	0,107	101,47
	K-Y-12T	0,120	105,54
Yaşlandırma süresi (saat)	K-Y-24T	0,097	108,58
	K-Y-48T	0,124	114,14
	K- SABİT	0,097	112,33
Kurutma tipi	K-KADEMELİ	0,129	114,75

**Şekil 3.** Optimum numunenin FT-IR spektrumu (FT-IR spectrum of the optimum sample)

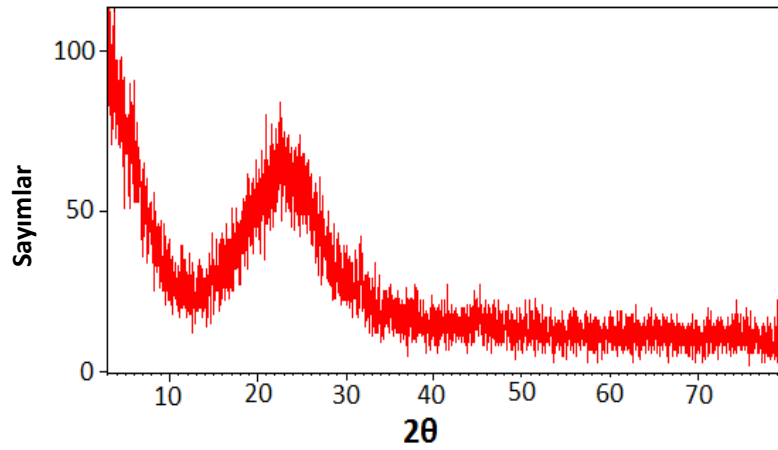
adsorpsiyon/desorpsiyon izotermi ve gözenek dağılım grafiği Şekil 5a ve 5b'de verilmektedir.

77 K'de elde gerçekleştirilen adsorpsiyon/desorpsiyon analizi sonucu adsorblanan gaz miktarı kısmi basıncın bir fonksiyonu olarak verilmiştir. Silika aerojelin literatürle uyumlu olarak aerojelin IUPAC sınıflandırmasına göre IV. tip N₂ adsorpsiyon/desorpsiyon izotermi ile uyumlu ve H3-tipi histerisine sahip olduğu olduğu görülmektedir [35-37]. Numunede gözlemlenen histerisis doygun basınç altında numunenin gözeneklerinde oluşan kılcal yoğunlaşma ile açıklanabilir [36]. Numunenin yüzey alanı 281,73 m²/g ve

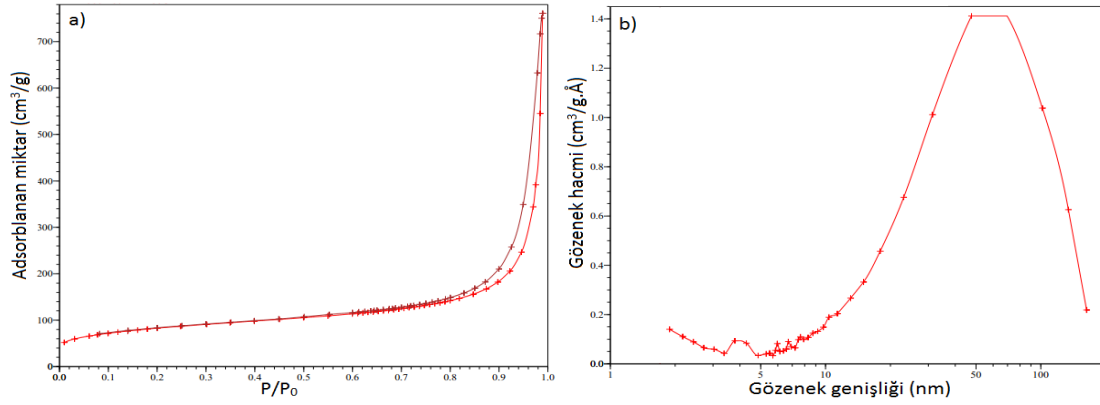
ortalama gözenek genişliği 24,44 nm olarak bulunmuştur ve mezo gözenekli malzeme olduğu belirlenmiştir [38].

Kumdan üretilen aerojel numunesinin SEM analizine ait görüntü Şekil 6'da verilmiştir.

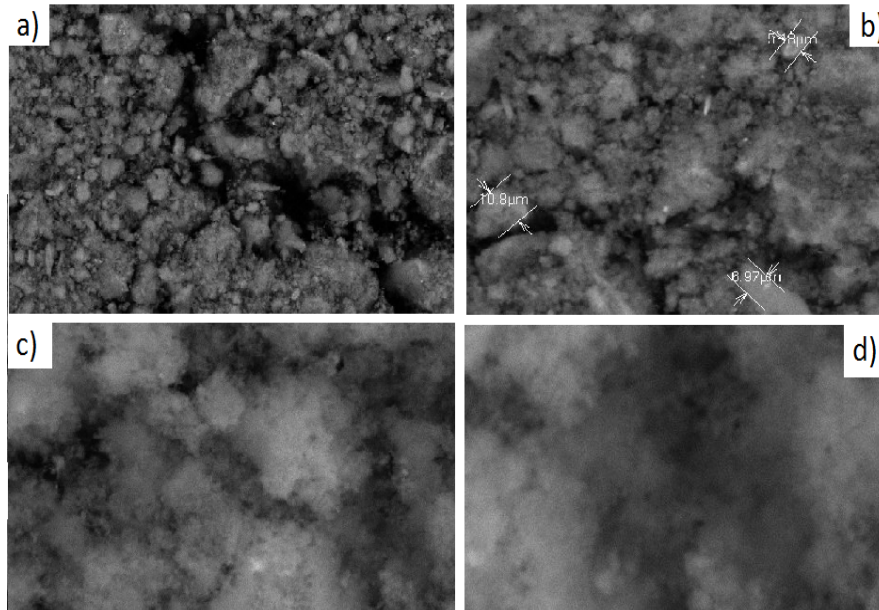
Malzemenin farklı büyütme oranlarında çekilen SEM görüntülerine bakılarak, malzemenin homojen tane boyutuna sahip olmadığı, taneciklerin hafif köşeli yapıda olduğu ve toplanarak kümeler haline geldiği gözlemlenmiştir [39]. 1000 büyütmede yapılan tane boyutu ölçümüne göre malzemenin tane boyutu 5,18 µm ile 29,3 µm aralığında değişmektedir.



Şekil 4. Optimum numunenin XRD difraktogramı (XRD diffractogram of the optimum sample)



Şekil 5 a) b) Optimum aerjel numunesinin N₂ adsorpsiyon/desorpsiyon izotermi ve gözenek dağılım grafiği (a) b) N₂ adsorption / desorption isotherm and pore scatter chart of the optimum aerogel sample)

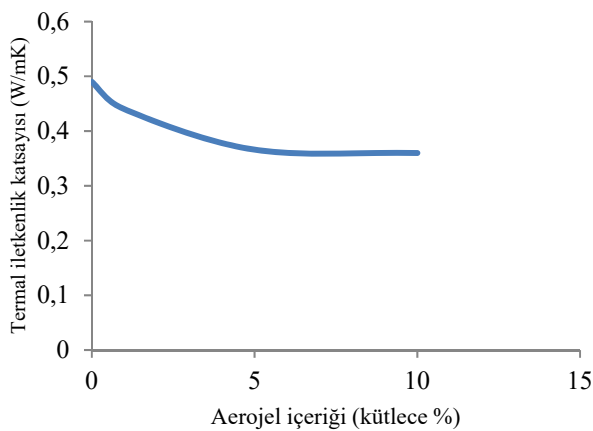


Şekil 6. Optimum aerjel numunesinin SEM görüntüleri a)100X, b)1000X, c)2500X ve d)5000X (SEM images of the optimum aerogel sample a) 100X, b) 1000X, c) 2500X and d) 5000X)

3.5. Yalıtım Sıvalarının Termal İletkenlik Katsayısı Ölçümleri

(Thermal conductivity measurement of insulating plaster samples)

Farklı kütle oranlarında aerojel içerecek şekilde hazırlanan yalıtım sıvalarının termal iletkenlik katsayısı ölçüm sonuçları grafik halinde Şekil 7'de verilmiştir. Analiz sonuçlarına göre sıva içerisinde artmakta olan aerojel miktarına bağlı olarak termal iletkenlik katsayısının azaldığı görülmektedir. Grafiğe bakılarak %10 oranında aerojel içeren sıvanın en iyi yalıtım özelliğine sahip olduğu görülmektedir. Tablo 6'da kütlece aerojel yüzdesine bağlı olarak termal iletkenlik katsayısında meydana gelen düşüş değerleri yüzdece hesaplanarak verilmiştir.



Şekil 7. Aerojel içeren sıvaların termal iletkenlik katsayısı değerleri

(Thermal conductivity coefficient values of aerogel-containing plasters)

Tablo 6. Yalıtım sıvaların termal iletkenlik azalış oranları (Thermal conductivity reduction rates of insulation plasters)

Aerojel içeriği (kütlece %)	0	1	5	10
Azalma oranı (%)	-	10,2	25,36	26,05

%10 oranında aerojel içeren sıva karışımı aerojel içermeyen sıvaya göre %26,05 değerinde daha etkin yalıtım özelliğine sahiptir. Aerojel miktarı arttıkça yalıtım özelliğinin iyileştiği görülmektedir. Daha yüksek oranlar için yapılan denemelerde; aerojel malzemesinin yoğunluğunun düşük olması sebebiyle karışımda hacimce yüksek oranda aerojel bulunması nedeniyle sıvanın bağlayıcı özelliğini kaybettiği görülmüştür.

4. SONUÇLAR (CONCLUSIONS)

Bu çalışmada kum silisyum kaynağı olarak kullanılarak, ultrasonik destekli sol-jel metodu ile düşük yoğunluklu aerojel üretimi gerçekleştirilmiştir. Üretime etkisi olabilecek parametrelerden; pH, Si/toplam madde miktarı, riflaks sıcaklığı, riflaks süresi, yaşlandırma sıcaklığı, yaşlandırma süresi ve kurutma tipinin malzeme üzerindeki etkileri incelenmiştir. Yapılan analizler sonucunda optimum sentez koşulları pH 9, Si/toplam madde miktarı 0,25, riflaks sıcaklığı 100°C, riflaks süresi 30 dakika, yaşlandırma

sıcaklığı 50°C, yaşlandırma süresi 24 saat ve sabit kurutma işlemi olarak belirlenmiştir. Optimum numunenin amorf silisyum yapısında olduğu, yüzey alanının 281,73 m²/g ve ortalama gözenek genişliğinin 24,44 nm olduğu tespit edilmiştir. Elde edilen en düşük yoğunluklu malzeme tüm sentezlenen numuneler gibi hidrofobik özellikte olup yoğunluğu 0,097 g/cm³ olarak bulunmuştur.

Termal yalıtım sıvası üretiminde değerlendirilen numune çeşitli kütlece yüzde oranlarında karışıma katılmış ve %10 değerine ulaşıncaya kadar içerikteki aerojel miktarının artışına bağlı olarak termal iletkenlik katsayısının düştüğü ve dolayısı ile yalıtım özelliğinin iyileştiği gözlemlenmiştir. Gerçekleştirilen çalışma sonucunda pahalı saf silisyum kaynakları yerine ucuz bir hammadde olan kum kullanılarak aerojel sentezinin gerçekleştirilebileceği ve yalıtım özellikli sıva üretiminde değerlendirilebileceği görülmektedir.

KAYNAKLAR (REFERENCES)

1. Comaklı K., Yuksel B., Environmental impact of thermal insulation thickness in buildings, Applied Thermal Engineering, 24, 933–940, 2004.
2. Kon O., Calculation of fuel consumption and emissions in buildings based on external walls and windows using economic optimization, Journal of the Faculty of Engineering and Architecture of Gazi University, 33 (1), 101-113, 2018.
3. Dombaycı O.A., Golcu M., Pancar Y., Optimization of insulation thickness for external walls using different energy-sources, Applied Energy, 83, 921–928, 2006.
4. Al-Homoud M.S., Performance characteristics and practical applications of common building thermal insulation materials, Building and Environment, 40, 353–366, 2005.
5. Sertkaya A.A., Akbaba B., Experimental and numerical analysis of a two dimensional heat transfer on open cell aluminum foams, Journal of the Faculty of Engineering and Architecture of Gazi University, 31 (2), 435-448, 2016.
6. Ertürk M., A new approach to calculate the energy saving per unit area and emission per person in exterior wall of building using different insulation materials and air gap, Journal of the Faculty of Engineering and Architecture of Gazi University, 31 (2), 395-406, 2016.
7. Tamon H., Kitamura T., Okazaki M., Preparation of Silica Aerogel from TEOS, Journal of Colloid And Interface Science, 197, 353–359, 1998.
8. Baetens R., Jelle B.P., Gustavsen A., Aerogel insulation for building applications: a state-of-the-art review. Energy Build., 43 (4), 761–769, 2011.
9. Jensen K.I., Schultz J.M., Kristiansen F.H., Development of windows based on highly insulating aerogel glazings. J Non-Cryst Solids., 7, 350-351, 2004.
10. Jones S.M., Aerogel: space exploration applications, J Sol-Gel Sci Technol., 40 (2), 351–7, 2006.
11. Hrubesh L.W., Aerogel applications, J Non-Cryst Solids, 225, 335–342, 1998.
12. Cha J., Kim S., Park K.W., Lee D.R., Jo J.H., Kim S., Improvement of window thermal performance using

- aerogel insulation film for building energy saving, *J Therm Anal Calorim.*, 116(1), 219–224, 2014.
13. Hrubesh L.W., Poco J.F., Thin aerogel films for optical, thermal, acoustic and electronic applications, *J Non-Cryst Solids*, 188 (1–2), 46–53, 1995.
 14. Jones S.M., Aerogel: space exploration applications, *J Sol-Gel Sci Technol.*, 40 (2), 351–357, 2006.
 15. Buratti C., Merli F., Moretti E., Aerogel-based materials for building applications: Influence of granule size on thermal and acoustic performance, *Energy and Buildings*, 152, 472–482, 2017.
 16. Dunn B.C., Cole P., Covington D., Webster M.C., Pugmire R.J., Ernst R.D., Silica aerogel supported catalysts for Fischer–Tropsch synthesis, *Appl Catal A*, 278 (2), 233–238, 2005.
 17. Anas M., Gönel A.G., Bozbag S.E., Erkey C., Thermodynamics of Adsorption of Carbon Dioxide on Various Aerogels, *Journal of CO₂ Utilization*, 21, 82–88, 2017.
 18. Wang C.T., Wu C.L., Chen I.C., Huang Y.H., Humidity sensors based on silica nanoparticle aerogel thin films, *Sens Actuators B Chem.*, 107 (1), 402–410, 2005.
 19. Tabata M., Adachi I., Hatakeyama Y., Kawai H., iMorita T., Sumiyoshi T., Large-area silica aerogel for use as Cherenkov radiators with high refractive index, developed by supercritical carbon dioxide drying, *The Journal of Supercritical Fluids*, 110, 183–192, 2016.
 20. Iijima T., Adachi I., Enomoto R., Suda R., Sumiyoshi T., Leoni-dopoulos C., Aerogel Cherenkov counter for the BELLE detector, *Nucl Instrum Methods Phys Res Sect A*, 453 (1), 321–325, 2000.
 21. Sumiyoshi T., Adachi I., Enomoto R., Iijima T., Suda R., Leoni-dopoulos C., Silica aerogel Cherenkov counter for the KEK B-factory experiment, *Nucl Instrum Methods Phys Res Sect A*, 433 (1), 385–391, 1999.
 22. Sarsabili M., Kalantari K., Khezri K., SR&NI atom transfer radical random copolymerization of styrene and butyl acrylate in the presence of MPS-functionalized silica aerogel nanoparticles, *Journal of Thermal Analysis and Calorimetry*, 126, 1261–1272, 2016.
 23. Chao X., Jun S., Bin Z., Ultralow density silica aerogels prepared with PEDS, *Journal of Non-Crystalline Solids*, 355, 492–495, 2009.
 24. Firoozmandan M., Moghaddas J., Yasrebi N., Performance of water glass-based silica aerogel for adsorption of phenol from aqueous solution, *Journal of Sol-Gel Science and Technology*, 79 (1), 67–75, 2016.
 25. Shi F., Liu J.X., Song K., Wang Z.Y., Cost-effective synthesis of silica aerogels from fly ash via ambient pressure drying, *Journal of Non-Crystalline Solids*, 356, 2241–2246, 2010.
 26. Wang B., Ma H., Song K., Preparation and characterization of silica aerogels from diatomite via ambient pressure drying, *Russian Journal of Physical Chemistry A*, 88, 1196–1201, 2014.
 27. Suchithra P., Vazhayal L., Mohamed A.P., Ananthakumar S., Mesoporous organic–inorganic hybrid aerogels through ultrasonic assisted sol–gel intercalation of silica–PEG in bentonite for effective removal of dyes, volatile organic pollutants and petroleum products from aqueous solution, *Chemical Engineering Journal*, 200, 589–600, 2012.
 28. Sarawade P.B., Kim J.K., Hilonga A., Kim H.T., Production of low density sodium silicate-based hydrophobic silica aerogel beads by a novel fast gelation process and ambient pressure drying process, *Solid State Sciences*, 12, 911–918, 2010.
 29. Shigemoto N., Hayashi H., Miyaura K., Selective Formation of Na-X Zeolite from Coal Fly Ash by Fusion with Sodium Hydroxide Prior to Hydrothermal Reaction, *Journal of Materials Science*, 28, 4781–4786, 1993.
 30. Li J., Cao J., Huo L., He X., One-step synthesis of hydrophobic silica aerogel via in situ surface modification, *Materials Letters*, 87, 146–149, 2012.
 31. Music S., Filipovic-Vincekovic N., Sekovanic L., Precipitation of Amorphous SiO₂ Particles and Their Properties, Kinetics and Catalysis; *Reaction Engineering; and Materials Science*, 28, 2011.
 32. Majchrzak-Kucęba I., Nowak W., Characterization of MCM-41 Mesoporous Materials Derived from Polish Fly Ashes, *International Journal of Mineral Processing*, 101, 100–111, 2011.
 33. Bhagat S.D., Kim Y.H., Suh K.H., Ahn Y.S., Yeo J.G., Han J.H., Superhydrophobic silica aerogel powders with simultaneous surface modification, solvent exchange and sodium ion removal from hydrogels, *Microporous Mesoporous Materials*, 112, 504–509, 2008.
 34. Fricke J., *Aerogels*; Ed.; Springer, Berlin, 1986.
 35. Sarawade P.B., Kim J.K., Kim H.K., Kim H.T., High specific surface area TEOS-based aerogels with large pore volume prepared at an ambient pressure, *Applied Surface Science*, 254, 574–579, 2007.
 36. Sarawade P.B., Shao G.N., Quang D.V., Kim H.T., Effect of Various Structure Directing Agents on the Physicochemical Properties of the Silica Aerogels Prepared at an Ambient Pressure, *Applied Surface Science*, 287, 84–90, 2013.
 37. Thommes M., Physical Adsorption Characterization of Nanoporous Materials, *Chemie Ingenieur Technik*, 82, 1059–1073, 2010.
 38. Çelik M.Y., Tıǧlı R., The investigation of the water repellent chemical influence on salt crystallization in high porously building Stones, *Journal of the Faculty of Engineering and Architecture of Gazi University*, 34 (1) 535–552, 2019.
 39. Chetty L., Serukenya I.W., Ijumba N.M., Vegetable Oil Based Liquid Nanocomposite Dielectric, *South African Journal of Science*, 109, 1–6, 2013.

