

SiO₂ katkısının Al₂TiO₅ seramiklerinin fiziksel özelliklerine etkisi The effect of SiO₂ addition on physical properties of Al₂TiO₅ ceramics

Melih ÖZÇATAL^{1*}, Mustafa Serhat BAŞPINAR²

^{1,2}Metalurji ve Malzeme Mühendisliği Bölümü, Teknoloji Fakültesi, Afyon Kocatepe Üniversitesi, Afyonkarahisar, Türkiye.
mozcatal@aku.edu.tr, sbaspinar@aku.edu.tr

Geliş Tarihi/Received: 29.04.2019
Kabul Tarihi/Accepted: 02.09.2019

Düzeltilme Tarihi/Revision: 17.07.2019

doi: 10.5505/pajes.2019.54910
Araştırma Makalesi/Research Article

Öz

Alüminyum Titanat (Al₂TiO₅), düşük ısı iletkenlik katsayısına ve yüksek ısı şok direncine sahip seramik bir malzemedir. Al₂TiO₅'in sinterlemesi süresince oluşan mikro çatlaklar düşük mekanik mukavemete yol açmaktadır. Mekanik özelliklerin iyileştirilmesi amacıyla çeşitli oksit katkı malzemeleri kullanılmaktadır. Bu çalışmada, katkı malzemesi olarak SiO₂ kullanılarak gözeneklilik, faz kompozisyonu, eğme mukavemeti ve mikroyapı üzerindeki etkileri araştırılmıştır. Kompozisyonlar α-Al₂O₃ ve rutil (TiO₂)'nin eş molar karışımına ağırlıkça %10'a kadar kuvars (SiO₂) eklenerek hazırlanmıştır. Toz karışımı tek eksenli bir pres vasıtasıyla şekillendirilmiş ve 1450 °C'de 3 sa. sinterlenmiştir. Deneysel sonuçlar SiO₂ ilavesi ile gözenekliliğin düştüğünü ve mekanik mukavemetin arttığını göstermektedir. SiO₂ ilavesi ile mullit oluşumunun meydana geldiği ve çatlakların azaldığı tespit edilmiştir. Saf Al₂TiO₅'in eğme mukavemeti 6.80 MPa iken, %10 SiO₂ ilavesiyle 38.43 MPa eğme mukavemeti elde edilmiştir. Sonuç olarak, SiO₂ ilavesi Al₂TiO₅ seramiklerinin fiziksel ve mikroyapısal özelliklerinin iyileştirilmesinde etkin bir rol oynamıştır.

Anahtar kelimeler: Al₂TiO₅, Sinterleme, Katkı malzemeleri, SiO₂, 3 nokta eğme mukavemeti.

Abstract

Aluminum Titanate (Al₂TiO₅) is a ceramic material with coefficient of low thermal conductivity and high thermal shock resistance. The micro cracks formed during the sintering of Al₂TiO₅ lead to low mechanical strength. Various oxide additives are used to improve mechanical properties. In this study, SiO₂ was used as additive and its effects on porosity, phase composition, bending strength and microstructure were investigated. The compositions were prepared by adding up to 10% (by wt.) quartz (SiO₂) to the equimolar mixture of α-Al₂O₃ and rutile (TiO₂). The powder mixture was shaped by an uniaxial press and sintered at 1450 °C for 3 hours. Experimental results show that porosity decreases and mechanical strength increases with the addition of SiO₂. It was determined that mullite formation occurred and the number of cracks decreased with the addition of SiO₂. The bending strength of the pure Al₂TiO₅ was 6.80 MPa, while the bending strength of 38.43 MPa was obtained by addition of 10% SiO₂. As a result, the addition of SiO₂ has played an active role in improving the physical and microstructural properties of Al₂TiO₅ ceramics.

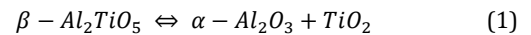
Keywords: Al₂TiO₅, Sintering, Additives, SiO₂, 3 point bending strength.

1 Giriş

Aluminum Titanat (Al₂TiO₅) yüksek erime noktasına (1860 °C), düşük ısı genleşme katsayısına (0.2 - 1x10⁻⁶ K⁻¹), yüksek termal şok direncine sahip sentetik seramik bir malzemedir. Buna ek olarak, eriyik alüminyum korozyonuna karşı direncinin yüksek olması gibi üstün özellikleri sayesinde özellikle şiddetli termal şok uygulamalarında öne çıkan malzeme seçeneklerinden birisi olmaktadır. Günümüzde Al₂TiO₅ seramikleri özellikle ısı yalıtım dolgu ve dizel parçacık filtresi olarak kullanılmaktadır. Ayrıca endüstride nozul yapımında, dökümcülükte ve demir dışı döküm sanayinde kullanılmaktadır [1]-[6].

Al₂TiO₅ birer mol Al₂O₃ ve TiO₂'in reaktif sinterlenmesiyle elde edilmektedir. 1 mol Al₂TiO₅ oluşması için dört Al³⁺ katyonunun TiO₂ arayüzüne, üç Ti⁴⁺ katyonunun Al₂O₃ arayüzüne difüze olması gerekmektedir. Polikristal Al₂TiO₅'a ilgi Bachmann'ın (1948) yaptığı çalışmadan sonra başlamıştır [7]. Al₂TiO₅ psödobrokit minerali (Fe₂TiO₅) ile izomorf olan birkaç malzemenin biridir. Bu yapıda her bir Al³⁺ veya Ti⁴⁺ katyonu 6 oksijen iyonu ile çevrelenerek oksijen oktahedrasını oluşturmaktadır. AlO₆ ve TiO₆ oktahedraları <001> yönünde çift zincirleri oluşturarak zayıf köşe paylaşımı ile bağlanırlar [8]. Bu yapısal özellik yüksek ısı genleşme anizotropisinden sorumludur. Yüksek anizotropi, ısı uygulamalarda malzeme içinde bölgesel iç gerilmeler neden olarak mikro çatlaklar oluşturmaktadır. Mikro çatlaklar malzemeyi zayıflatmasına

rağmen yüksek ısı şok direnci ve düşük ısı genleşme katsayısı kazandırmaktadır. Lang ve diğ. (1952) yaptığı çalışmada Al₂TiO₅'in 2 farklı allotropunun olduğunu saptamıştır. Bu 2 allotroptan α-Al₂TiO₅ fazı 1820°C sıcaklık ile erime noktası (1860°C) arasında, β-Al₂TiO₅ fazı ise oda sıcaklığından 750 °C'ye kadar ve 1300 °C'den 1820 °C'ye kadar kararlıdır. Bu sıcaklık aralıkları dışında kalan sıcaklık aralığında yani 750 °C ve 1300 °C arasında β-Al₂TiO₅ kararsızdır ve Al₂O₃ ile TiO₂'e ayrışır [9]. Ayrışmanın nedeni, Al³⁺ iyonları tarafından işgal edilen kafes bölgelerinin çok büyük olması ve bitişik Al³⁺ (0.54 Å) ve Ti⁴⁺ (0.67 Å) oktahedrasının çökmesidir. Bu çökmeden elde edilen termal enerji Al³⁺ iyonlarının yer değiştirmesine izin vermektedir. Sonuç olarak korundum (α-Al₂O₃) ve rutile (TiO₂) yapısal çözünme gerçekleşmektedir [10]. Bu iki fazın birbirine dönüşümü (1) numaralı reaksiyondan görüldüğü gibi kendiliğinden ve tersinirdir [11],[12].



Al₂TiO₅'in ısı olarak kararsız olması ve düşük mekanik mukavemete sahip olması nedeniyle bu malsurların giderilmesi için bazı katkı malzemeleri kullanılmaktadır. Araştırmacılar, Al₂TiO₅'in mekanik ve ısı özelliklerini geliştirmek için mineral psödobrookite ile izomorf olan sistemler kullanmıştır. Bu sistemlerde MgO veya Fe₂O₃ gibi oksit katkı maddeleri ile katı çözeltilerin oluşumu üzerine birçok çalışma yapılmıştır [13]-[17]. Ayrıca; SiO₂, ZrO₂, ZrTiO₄,

*Yazışılan yazar/Corresponding author

mullit ($3Al_2O_3 \cdot 2SiO_2$) ve forsterit (Mg_2SiO_4) kullanılarak seramik kompozit malzemeler üretilmiştir. Bu katkı maddeleri Al_2TiO_5 ile katı çözeltiler oluşturamaktadır fakat katkı malzemeleri Al_2TiO_5 'in ayrışma eğilimini engellemektedir [18]-[20].

Bu çalışmada, Al_2TiO_5 'in, $\alpha-Al_2O_3$ ve TiO_2 'in eşit mol karışımına, ağırlıkça %1.25, %2.5, %5 ve %10 SiO_2 (kuvars) ilavesinin eğme mukavemetine, kütle yoğunluğuna, faz kompozisyonuna ve mikroyapıya etkileri araştırılmıştır. Deney numuneleri, 60 MPa'lık düşük bir basınçta tek eksenli bir pres ile şekillendirilmiş ve 1450 °C'de 3 sa. hava atmosferinde reaksiyon sinterleme yöntemi kullanılarak üretilmiştir.

2 Materyal ve metot

Numune üretiminde, korundum - Al_2O_3 (>%99.7, 2 μm , $\rho=3.95$ g/cm³, Nabaltec), rutil- TiO_2 (>%98, 0.19 μm , $\rho=4.2$ g/cm³, TRONOX® 8400) ve kuvars - SiO_2 (>%99, $\rho=2.65$ g/cm³, Merck) başlangıç hammaddeleri olarak seçilmiştir. Molce eşit miktarlarda Al_2O_3 ve TiO_2 karışımından oluşan başlangıç tozlarına ağırlıkça %1.25, %2.5, %5 ve %10 olacak şekilde SiO_2 katkısı yapılmıştır. Elde edilen kompozisyon homojen hale getirilmek amacıyla porselen bilyeli değirmende karıştırılmıştır. Karıştırma işlemi 30 dk. boyunca etil alkol ortamında gerçekleştirilmiştir. Değirmenden alınan karışım behere konulup etüvde 24 sa. 80 °C'de bekletilerek alkolün uzaklaştırılması sağlanmıştır. Elde edilen kuru toz karışımı değirmende öğütüldükten sonra 100 μm elekten geçirilerek preslenebilir toz haline getirilmiştir.

Numuneler tek eksenli pres ve 2 farklı çelik kalıp kullanılarak şekillendirilmiştir. Silindirik presleme kalıbının iç çapı $\varnothing=30$ mm, dikdörtgen prizma kalıbın ölçüleri 80 mm×15 mm'dir. Hassas terazi ile kütlesi ölçülen toz karışımı kalıba konulup 60 MPa basınçta preslenerek silindirik ve dikdörtgen prizma numuneler üretilmiştir. Ölçüm kolaylığı sağlamak amacıyla Arşimed yöntemi ile yoğunluk belirlemede silindirik numuneler kullanılmıştır. Mekanik özelliklerin belirlenmesi amacıyla gerçekleştirilen 3 nokta eğme testlerinde standarda uygun prizmatik numuneler kullanılmıştır.

Sinterleme fırını olarak Protherm marka $MoSi_2$ ısıtıcı elemana sahip yüksek sıcaklık fırını kullanılmıştır. Numuneler 1450 °C'de 3 sa. hava atmosferinde sinterlenmiştir. Fırının ısıtma hızı 5 °C/dk., soğutma hızı ise 2 °C/dk. olarak kontrollü bir şekilde gerçekleştirilmiştir.

Deneysel çalışmalarda sonuçların güvenilirliği açısından tekrarlanabilirlik önemli bir parametredir. Bu amaçla her bir kompozisyon için 3'ü silindirik, 9'u dikdörtgen prizma olacak şekilde toplam 12 adet numune üretilmiştir. Üretilen silindirik numuneler ile her kompozisyonun Arşimed yöntemi testleri 3 tekrar ile doğrulanarak gerçekleştirilmiştir. Arşimed yöntemi testleri neticesinde numunelerin kütle yoğunluğu, görünür gözenekliliği ve su emme değerleri elde edilmiştir. Mekanik dayanım özelliklerinin belirlenmesi amacı ile 3 nokta eğme mukavemetleri, bilgisayar kontrollü elektronik universal test makinesi (Shimadzu, AGS-J 10 kN) ile ölçülmüştür. 3 nokta eğme testlerinde her bir kompozisyonun mukavemetini belirlemek amacıyla 9 adet dikdörtgen prizma şeklinde numune kullanılmıştır.

Faz belirlemek için gerçekleştirilen X-ışını difraksiyonu (XRD) spektrumları analizinde 2 θ açısı 15°'den 70°'ye kadar ele alınmıştır. Analizler 1.25°/dk.'lık bir gonyometre hızında, 40kV'luk hızlanma voltajında ve 30 mA'lık bir akımda taranarak gerçekleştirilmiştir (Shimadzu, XRD-6000).

Numunelerin kırık yüzeyleri karbon ile kaplanarak ~10 mm çalışma mesafesi (WD) ile 20kV hızlandırma voltajı altında taramalı elektron mikroskopuna (SEM) bağlı geri saçınımlı elektron (BSE) dedektörü ile incelenmiştir (LEO-1430VP).

3 Deneysel sonuçlar ve tartışma

SiO_2 katkısının etkilerinin anlaşılması amacıyla, katkı malzemeleri ağırlıkça %1.25, %2.5, %5 ve %10 olarak eklenmiş ve numuneler 1450 °C'de 3 sa. sinterlenerek hazırlanmıştır. Katkı oranlarına göre numuneler kısaca AT, S1, S2, S3 ve S4 olarak ifade edilmiştir (Tablo 1).

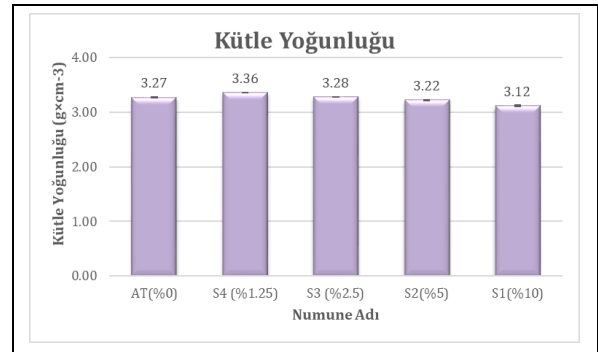
Tablo 1. SiO_2 katkısının ağırlıkça oranları ve numune isimleri.

Table 1. Ratios of SiO_2 addition by weight and sample names.

Numune Adı	SiO_2 katkı oranı (ağ.%)
AT	-
S1	10
S2	5
S3	2.5
S4	1.25

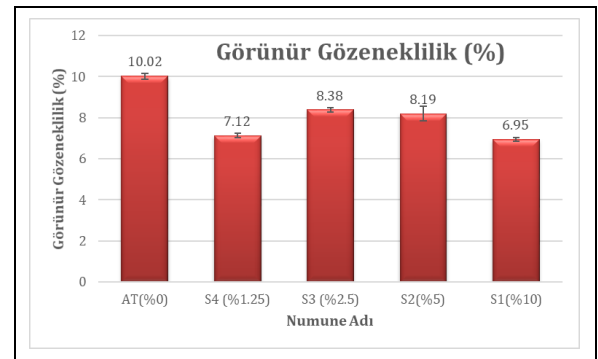
Şekil 1-4'te verilen deney sonuçlarının standart sapma değerleri grafik üzerinde gösterilmiştir. Şekillerden görüldüğü gibi deney sonuçlarında yüksek bir tekrarlanabilirlik sağlanmıştır.

Kütle yoğunluğu ve görünür gözeneklilik, katkı malzemelerinin Al_2TiO_5 seramiklerinin sinterleme özelliklerine etkisini değerlendirmek için kullanılabilir. Al_2TiO_5 seramiklerinde katkı malzemelerinin rolü sinterlemeyi iyileştirmekle ilgilidir. Genel olarak katkı maddeleri, katı çözeltiler veya sıvı fazlarda sinterleme için gerekli enerjiyi azaltan bileşenlerdir.



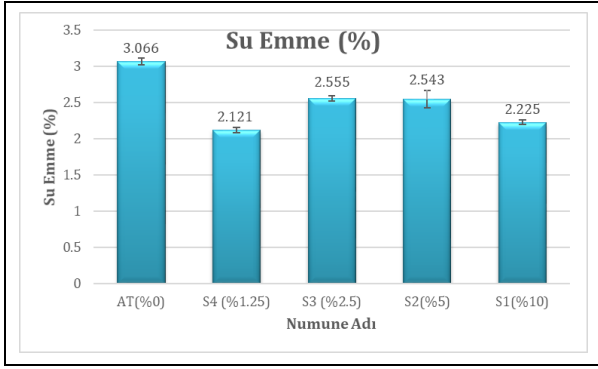
Şekil 1. Sinterlenmiş numunelerin kütle yoğunluğu değerleri.

Figure 1. The bulk density of the sintered samples.

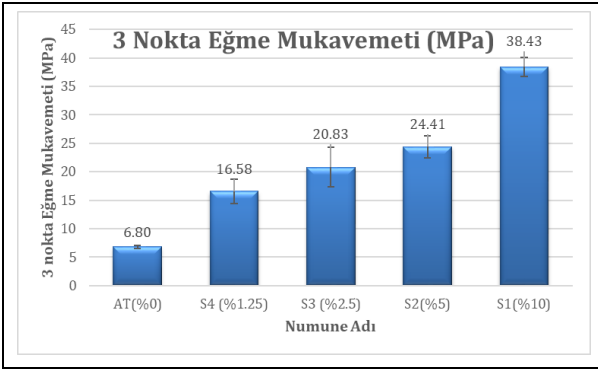


Şekil 2. Sinterlenmiş numunelerin görünür gözeneklilik değerleri (%).

Figure 2. The apparent porosity of the sintered samples (%).



Şekil 3. Sinterlenmiş numunelerin su emme değerleri (%).
Figure 3. The water absorption of the sintered samples (%).



Şekil 4. Sinterlenmiş numunelerin 3 nokta eğme mukavemeti değerleri (MPa).

Figure 4. The 3 point bending strength of the sintered samples (MPa).

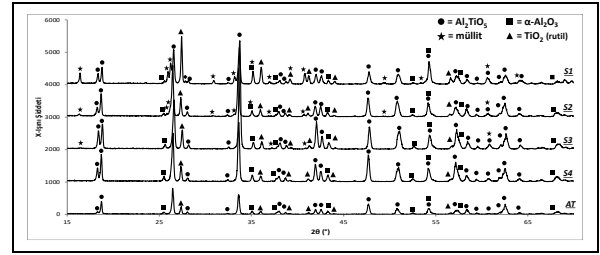
Numunelerin Arşimed yöntemi ile belirlenen kütle yoğunluk değerleri Şekil 1’de verilmiştir. SiO₂ katkısı önce kütle yoğunluğunu artırmış daha sonra ise azaltmıştır.

Su emme değerleri açık gözenek miktarının dolaylı bir göstergesidir. Belirli bir gözeneklilik değerine sahip bir malzemenin su emme değerleri görünür gözeneklilik değerlerine çok yakın ise malzemedeki mevcut gözenekler büyük oranda açık gözeneklerden oluşmaktadır. Ancak bu değerler arasındaki fark fazla ise malzemede hem açık hem de kapalı gözenekler bulunmaktadır. Su emme ve görünür gözeneklilik değerleri arasındaki ilişki bu şekilde açıklanabilir.

Su emme ve görünür gözeneklilik değerleri birbirine benzer davranış göstermiştir (Şekil 2, 3). SiO₂ ilavesi öncelikli olarak görünür gözeneklilik ve su emme değerlerinde önemli bir düşüşe neden olmuştur. Ağırlıkça %1.25 SiO₂ katkısı görünür gözenekliliği büyük oranda düşürmüştür daha sonra az bir artış gösterse de genel olarak SiO₂ katkısının % görünür gözenekliliği düşürdüğü belirlenmiştir. Gözenek miktarının azalması ile kütle yoğunluğunda bir artış gözükmektedir. %10 SiO₂ katkılı S1 numunesinde görünür gözenekliliğin diğer kompozisyonlara göre düşük olmasına rağmen kütle yoğunluğundaki azalma, sinterlenmiş malzemeyi oluşturan hammaddelerin kütle yoğunlukları farkından kaynaklanabilir. Al₂TiO₅’in teorik yoğunluğu 3.70 g/cm³, çalışmada katkı malzemesi olarak kullanılan SiO₂’nin teorik yoğunluğu ise 2.65 g/cm³’tür. Katkı oranının artmasıyla gözeneklilik değerlerinde bir azalma gözlenirse de SiO₂’nin yoğunluğunun daha düşük olması nedeniyle sinterlenmiş numunelerde kütle yoğunluğunun düşmesi beklenmektedir.

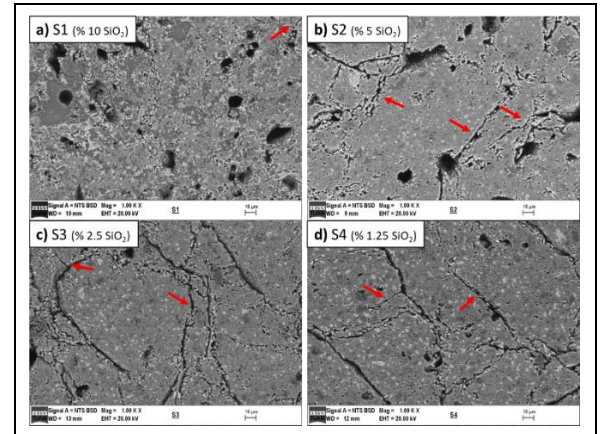
3 nokta eğme mukavemeti değerleri Şekil 4’te verilmiştir. Genel olarak SiO₂ katkısının 3 nokta eğme mukavemetini büyük bir oranda artırdığı gözükmektedir. SiO₂, Al₂O₃ ile reaksiyona girerek iğne benzeri bir yapıya sahip mullit oluşturabilir. Mullit, yüksek erime noktasına, yüksek mukavemete ve sürünmeye karşı mükemmel dirence sahip olduğundan, Al₂TiO₅ seramiklerinin mukavemetini artırmak için kullanılmaktadır [21]. Ağırlıkça %1.25 SiO₂ katkısı mukavemeti yaklaşık 2.5 kat artırmıştır. Ağırlıkça %10 SiO₂ katkısı 3 nokta eğme mukavemetini 6.80 MPa’dan 38.43 MPa’a çıkarmıştır. 3 nokta eğme mukavemetindeki bu artış esas olarak, sinterlemenin iyileşmesinden ve gözenekliliğin azalmasından kaynaklanmaktadır.

XRD faz analizi grafikleri Şekil 5’te verilmiştir. Tespit edilen piklerin faz bilgileri belirlenmiştir. Ağırlıkça %1.25 SiO₂ katkısı Al₂TiO₅ fazının piklerini keskinleştirip şiddetini artırmıştır. Böylelikle Al₂TiO₅ fazının miktarı ve kristalitesi artmıştır. Ağırlıkça %2.5 SiO₂ katkısıyla beraber mullit oluşumunun başladığı görülmektedir. Ağırlıkça %10 SiO₂ katkılı S1 numunesinde mullit oluşumu büyük oranda belirginleşmiştir. Si⁴⁺ iyonlarının Al₂TiO₅ kristaline difüzyonu mümkün olmadığı için tane sınırlarında difüzyonu engellediği ve Al₂TiO₅ tane büyümesini engellediği ayrıca Şekil 6 ve Şekil 8’de verilen SEM-BSE görüntülerinde de gözükmektedir. XRD faz analizinde, SiO₂ katkısı arttıkça reaksiyona girmemiş TiO₂ (rutil) ve Al₂O₃ (korundum) miktarında artış olduğu anlaşılmaktadır.



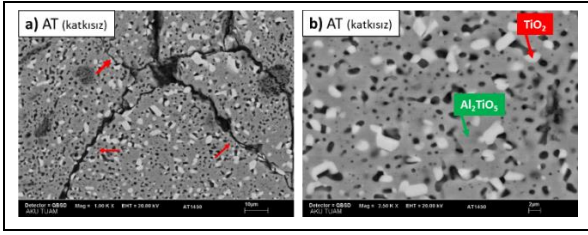
Şekil 5. Sinterlenen numunelerin XRD paternleri.

Figure 5. XRD patterns of the sintered samples.



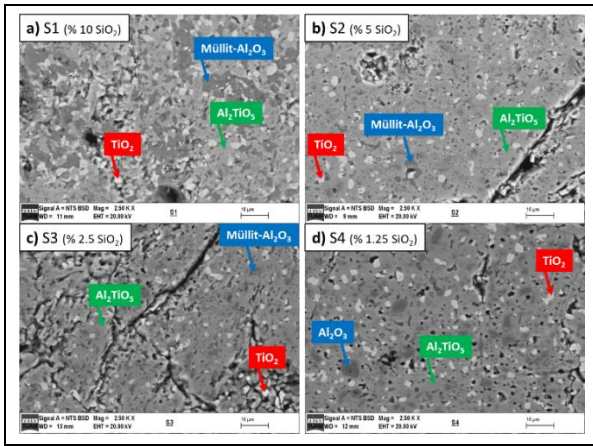
Şekil 6. Sinterlenen numunelerin SEM-BSE görüntüleri (Kırmızı oklar çatlakları göstermektedir). (a): S1 (ağ.%10 SiO₂ katkılı), (b): S2 (ağ.%5 SiO₂ katkılı), (c): S3 (ağ.%2.5 SiO₂ katkılı), (d): S4 (ağ.%1.25 SiO₂ katkılı).

Figure 6. SEM-BSE images of the sintered samples (Red arrows indicate cracks). (a): S1 (10 wt.% SiO₂), (b): S2 (5 wt.% SiO₂), (c): S3 (2.5 wt.% SiO₂), (d): S4 (1.25 wt.% SiO₂).



Şekil 7. Katkısız olarak sinterlenen numunelerin SEM-BSE görüntüleri. (a): 1000 büyütme (Kırmızı oklar çatlakları göstermektedir), (b): 2500 büyütme, (oklar Al_2TiO_5 ve TiO_2 fazlarını belirtmektedir).

Figure 7. SEM-BSE images of sintered samples without additives. (a): 1000 magnification (Red arrows indicate cracks), (b): 2500 magnification, (arrows indicate Al_2TiO_5 and TiO_2 phases).



Şekil 8. Sinterlenen numunelerin SEM-BSE görüntüleri (2500 büyütme). (a): S1 (ağ.%10 SiO_2 katkılı), (b): S2 (ağ.%5 SiO_2 katkılı), (c): S3 (ağ.%2.5 SiO_2 katkılı), (d): S4 (ağ.%1.25 SiO_2 katkılı).

Figure 8. SEM-BSE images of sintered samples (2500 magnification). (a): S1 (10 wt.% SiO_2), (b): S2 (5 wt.% SiO_2), (c): S3 (2.5 wt.% SiO_2), (d): S4 (1.25 wt.% SiO_2).

Bununla beraber 2500 büyütmede elde edilen SEM-BSE görüntülerinde reaksiyona girmemiş fazlar gözükmemektedir (Şekil 8). Al_2TiO_5 tane sınırlarında, SiO_2 ve Al_2O_3 , mullit oluşturarak taneler arasında engel görevi gördüğü düşünülmektedir [6].

Ayrıca SEM-BSE görüntülerine göre SiO_2 katkısının sıvı fazı oluşumunu artırdığı (koyu gri bölgeler), çatlakları azaltarak sinterlemeyi iyileştirdiği ve sonuç olarak Al_2TiO_5 'ın mekanik özelliklerini bu mekanizma ile iyileştirdiği anlaşılmaktadır [22].

Gözenek ve çatlaklar bütün numunelerde mevcuttur (Şekil 6-7). AT numunesinde çok büyük çatlaklar ve gözenekler dikkat çekmektedir. Anormal tane büyümesi, yüksek sinterleme sıcaklığı nedeniyle görülmektedir. Ayrıca reaksiyona girmemiş fazlar bulunmaktadır. Beyaz renkli fazlar rutil, koyu olanlar korundum ve gri matris Al_2TiO_5 fazlarıdır [23]. Reaksiyona girmemiş rutil ve korundum fazları XRD analizi ile de belirtilmiştir. Al_2TiO_5 fazının oluşumuyla birbirine yakın rutil ve korundum taneleri tükenmiş ve reaksiyona girmemiş fazlar ayırık hale gelmiştir. Bu mekanizma iyonlar ve atomların difüzyon yolunu bloke etmiştir. Küçük tane boyutu seçimi ya da

yüksek verimli karıştırma ve öğütme yöntemlerinin kullanılması daha homojen bir mikroyapı için etkili olabilir.

Başlangıç tozlarının reaksiyona girmemiş taneleri tüm numunelerin mikro-yapısında bulunmaktadır (Şekil 6, 8). Yüksek genleşme anizotropisi nedeniyle Al_2TiO_5 fazının oluşumu sırasında birçok çatlak meydana gelmiştir. Yüksek sinterleme sıcaklığı nedeniyle tane büyümesi gözlemlenmiştir. Artan sinterleme sıcaklığı ile reaksiyona girmemiş taneler azalmış ve taneler büyümeye başlamıştır.

4 Sonuçlar

Bu çalışmada ağırlıkça %1.25, %2.5, %5, %10 SiO_2 katkı ve katkısız Al_2TiO_5 seramikleri 1450 °C'de sinterlenerek üretilmiştir. Elde edilen numunelerin; kütle yoğunluğu, görünür gözeneklilik, su emme, 3 nokta eğme mukavemeti, XRD faz analizi ve SEM mikroyapı analizleri ile karakterizasyon çalışmaları yapılmıştır. Sonuç olarak Al_2TiO_5 seramiklerine SiO_2 katkısının etkilerinin şu şekilde olduğu görülmüştür:

- Ağırlıkça %1.25 ve %2.5 SiO_2 katkısı kütle yoğunluğu değerlerini artırmış, %5 ve %10 ise azaltmıştır.
- SEM ve XRD çalışmalarına göre, katkısız ve SiO_2 katkı olarak üretilen numuneler reaksiyona girmemiş rutil ve korundum fazları içermektedir. Ağırlıkça %2.5 SiO_2 katkısıyla beraber mullit oluşumunun başladığı görülmektedir.
- Yüksek ısıl genleşme anizotropisi nedeniyle Al_2TiO_5 fazının oluşumu sırasında birçok çatlak meydana gelmiştir.
- SiO_2 katkısı sinterleme esnasında tane büyümesini engellemiş ayrıca mullit oluşumuyla 3 nokta eğme mukavemetini büyük ölçüde artırmıştır.
- SiO_2 katkı miktarı arttıkça 3 nokta eğme mukavemetinin belirgin bir şekilde arttığı gözlenmiştir.

5 Results

In this study, 1.25, 2.5, 5, 10 (wt.% SiO_2) and additive-free Al_2TiO_5 ceramics were produced by sintering at 1450 °C. Of the samples obtained; characterization studies were carried out with bulk density, apparent porosity, water absorption, 3-point bending strength, XRD phase analysis and SEM microstructure analysis. As a result, the effects of SiO_2 addition on the Al_2TiO_5 ceramics are as follows:

- 1.25% and 2.5% SiO_2 addition increased bulk density, while 5% and 10% decreased.
- According to the SEM and XRD studies, samples produced with and without additives contain unreacted rutile and corundum phases. It is determined that the mullite formation started with 2.5 wt.% SiO_2 addition.
- Many cracks occurred during the formation of the Al_2TiO_5 phase due to high thermal expansion anisotropy.
- SiO_2 addition is prevented grain growth during sintering and also greatly enhanced the three point bending strength with mullite formation.
- It was observed that as the SiO_2 additive amount increased, the 3-point bending strength increased significantly.

6 Teşekkür

Bu çalışma Afyon Kocatepe Üniversitesi Bilimsel Araştırma Projeleri Komisyonu Proje No: 18.KARIYER.52 ve 16.FEN.BİL.04 tarafından desteklenmiştir.

7 Kaynaklar

- [1] Bayer G. "Thermal expansion characteristics and stability of pseudobrookite-type compounds, Me_3O_5 ". *Journal of the Less Common Metals*, 24(2), 129-138, 1971.
- [2] Ishitsuka M, Sato T, Endo T, Shimada M. "Synthesis and thermal stability of aluminum titanate solid solutions". *Journal of the American Ceramic Society*, 70(2), 69-71, 1987.
- [3] Skala RD, Li D, Low IM. "Diffraction, structure and phase stability studies on aluminium titanate". *Journal of the European Ceramic Society*, 29(1), 67-75, 2009.
- [4] Palacio FR. *Reactive Sintering of Aluminum Titanate*. Editör: Lakshmanan A. Sintering of Ceramics-New Emerging Techniques, 501-526, Rijeka, Croatia, InTech, 2012.
- [5] Nagano M, Nagashima S, Maeda H, Kato A. "Sintering behavior of Al_2TiO_5 base ceramics and their thermal properties". *Ceramics International*, 25(8), 681-687, 1999.
- [6] Jiang L, Chen XY, Han GM, Yu MENG. "Effect of additives on properties of aluminium titanate ceramics". *Transactions of Nonferrous Metals Society of China*, 21(7), 1574-1579, 2011.
- [7] Bachmann JL. Investigations of Properties of Aluminium Oxide and Some Aluminous Materials. Ph.D Thesis, Pennsylvania State University, Pennsylvania USA, 1948.
- [8] Freudenberg B. Etude de la reaction à l'état solide: $Al_2O_3+TiO_2-Al_2TiO_5$. Tesis Doctoral, École Polytechnique, Lausanne Suisse, 1987.
- [9] Lang SM, Fillmore CL, Maxwell LH. "The system beryllia-alumina-titania: phase relations and general physical properties of three-component porcelains". *Journal of Research of the National Bureau of Standards*, 48, 298-312, 1952.
- [10] Bayer G. "Thermal expansion characteristics and stability of pseudobrookite-type compounds, Me_3O_5 ". *Journal of the Less Common Metals*, 24(2), 129-138, 1971.
- [11] Low IM, Oo Z. "Reformation of phase composition in decomposed aluminium titanate". *Materials Chemistry and physics*, 111(1), 9-12, 2008.
- [12] Low IM, Oo Z. "In Situ Diffraction Study of Self-Recovery in Aluminum Titanate". *Journal of the American Ceramic Society*, 91(3), 1027-1029, 2008.
- [13] Korim T. "Effect of Mg^{2+} -and Fe^{3+} -ions on formation mechanism of aluminium titanate". *Ceramics International*, 35(4), 1671-1675, 2009.
- [14] Kim IJ, Supkwak H. "Thermal shock resistance and thermal expansion behaviour with composition and microstructure of Al_2TiO_5 ceramics". *Canadian metallurgical quarterly*, 39(4), 387-396, 2000.
- [15] Rezaie HR, Naghizadeh R, Farrokhnia N, Arabi S, "The effect of Fe_2O_3 addition on tialite formation". *Ceramics international*, 35(2), 679-684, 2009.
- [16] Maki R, Suzuki Y. "Microstructure and mechanical properties of MgO-doped Al_2TiO_5 prepared by reactive sintering". *Journal of the Ceramic Society of Japan*, 121(1415), 568-571, 2013.
- [17] Fukuda M, Yoko T, Takahashi M. "Decomposition free Al_2TiO_5 - $MgTi_2O_5$ ceramics with low-thermal expansion coefficient". *New Journal of Glass and Ceramics*, 3(4), 111-115, 2013.
- [18] Guedes-Silva CC, Carvalho FMDS, Ferreira TDS, Genova LA. "Formation of aluminum titanate with small additions of MgO and SiO_2 ". *Materials Research*, 19(2), 384-388, 2016.
- [19] Aneziris CG, Dudczig S, Gerlach N, Berek H, Veres D. "Thermal shock performance of fine grained Al_2O_3 ceramics with TiO_2 and ZrO_2 additions for refractory applications". *Advanced Engineering Materials*, 12(6), 478-485, 2010.
- [20] Kucuk I, Boyraz T, Gökçe H, Öveçoğlu ML, "Thermomechanical properties of aluminium titanate (Al_2TiO_5)-reinforced forsterite (Mg_2SiO_4) ceramic composites". *Ceramics International*, 44(7), 8277-8282, 2018.
- [21] Jiang L, Chen XY, Han GM, Yu MENG. "Effect of additives on properties of aluminium titanate ceramics". *Transactions of Nonferrous Metals Society of China*, 21(7), 1574-1579, 2011.
- [22] Oikonomou P, Dedeloudis C, Stournaras CJ, Ftikos C. "Stabilized tialite-mullite composites with low thermal expansion and high strength for catalytic converters". *Journal of the European Ceramic Society*, 27(12), 3475-3482, 2007.
- [23] Kim D, Kim HJ, Kim HT, Namkung J, Kim I, Choi SC, Ryu SS. "Mechanical properties of Al_2TiO_5 ceramics for high temperature application". *Current Nanoscience*, 10(1), 154-158, 2014.