



## SERAMİK FİLTRE ALTLığı ÜRETİMİNDE Lİç EDİLMİŞ KAOLEN KULLANIMI

Osman ŞAN\*  
İlkıncı GÜLSEVER\*\*

### ÖZET

Bu çalışmada seramik filtre altlığı üretiminde kuvars, alumina, feldspat ve  $0.09\text{ M}$   $\text{HNO}_3$  ile karıştırma liç'i işlemeye tabi tutulmuş kaolen kullanılmıştır. Kaolen'in  $\text{HNO}_3$  ile liç edilmesiyle katı fazda  $\text{MgSiO}_3$ ,  $\text{Na}_2\text{SiO}_3$  ve  $\text{K}_2\text{SiO}_3$  gibi bağlayıcı metal silikatlar oluşmaktadır. Kaolen'in karıştırma liç'i 1000  $\text{dev/dk}$  ile 2.5 saat sürede yapılmıştır, daha sonra sıvı fazı 100 °C'de kurutularak ayrılmış ve katı faz filtre altlığı üretiminde kullanılmıştır. Altılıkların şekillendirilmesi filtrasyon yöntemiyle yapılmış, daha sonra 105 °C'de kurutulan malzemeler 1100 °C'de 24 saat süre ile pişirilmiştir. Deney sonuçları, liç kaolen katkılı üretilen filtre altılıklarının kuru mukavemetlerinin daha yüksek olduğunu göstermiştir. Ayrıca, üretilen altılıkların pişmiş mukavemetleri ve su geçirgenliği de daha fazla olmuştur.

**Anahtar Kelimeler:** kaolen, liç, seramik filtre altlığı.

### 1. GİRİŞ

Madencilik, seramik, kimyasal prosesler, kağıt, tekstil, cam, gıda ilaç, şeker, otomotiv, plastik, enerji ve nükleer santraller ile endüstriyel atık suların arıtımında katı-sıvı ayırmına ihtiyaç duyulur. Bu amaçla yapılan ayırma işlemlerinin son aş-

\* Dumlupınar Üniversitesi, Seramik Mühendisliği Bölümü, Kütahya

\*\* Altın Çini, Araştırma Geliştirme Bölümü, Kütahya

ması genellikle filtrasyondur. Seramik filtreler yüksek ısıya dayanımı, mekanik mukavemetinin yüksek olması, kimyasal reaktiflerin bulunduğu ortamlarda süzme yapabilmesi ve kolay temizlenmesi gibi avantajlarından dolayı endüstriyel uygulamalarda her geçen gün daha fazla kullanım alanı bulmaktadır.

Seramik filtreler altlıklı ve altlıksız olmak üzere iki çeşit üretilir. Seramik filtre altlığı ayırıcı tabakaya mesnet görevi görür ve daha gözenekli bir yapıya sahiptir. Endüstriyel uygulamalarda filtre altlığı gözenekliliği %30-40 arasında olmaktadır. Bu gözenekli yapı kullanılan hammadde türüne bağlı olarak 1100-1600 °C sıcaklıklarda pişirilerek elde edilir (Scott, 1995; Larbot vd., 1987; Charpin vd., 1987). Kullanılan hammaddeler ise genellikle kuvars ve alumina olmaktadır. Ayırıcı tabaka ise genellikle böhmít tozu, silika, zirkonyum ve titanyum dioksit gibi saf malzemelerdir ve kaplama tabakasının kalınlığı ancak birkaç mikron olmaktadır. Kaplama tabakanın gözenekleri altlık gözeneklerinden daha düşüktür. Bazen bu kaplama iki veya üç katlı, kademeli olarak gözenek çapı düşürülerek yapılır (Leenaars vd., 1985; Anderson vd., 1988; Larbot vd., 1989; Chu vd., 1986; Robert, 1996; Moosemiller vd., 1989). Seramik filtre altlıklarının genellikle kullanım amacına bağlı olarak aşağıdaki özelliklerde olması istenir;

- açık gözenekli yapısıyla akışkan ortam geçirgenliği yüksek ve daha kolay temizlenir olmalıdır,
- porozitesi yüksek, gözenek dağılımı dar aralıkta olmalıdır,
- mekanik mukavemeti yüksek olmalıdır, buna daha geçirgen yapı elde etdebilmek için mekanik mukavemet'ten fedakarlık edilebilir,
- sıcaklık artışı ile gözenek yapısı bozulmamalıdır,
- kimyasal maddelerden etkilenmemelidir,

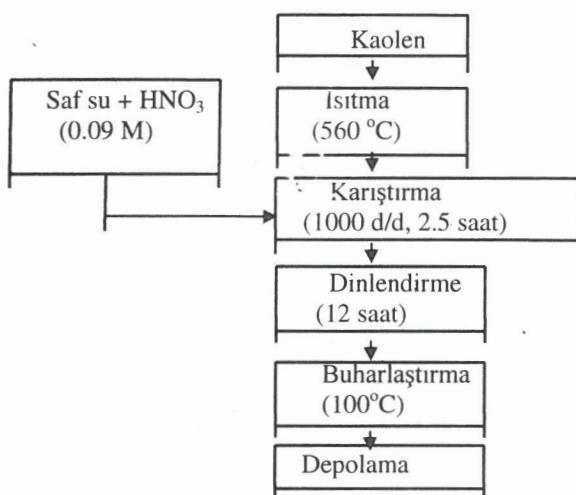
Bu çalışmada kuvars ve alumina taneleri 1100 °C gibi düşük sıcaklıkta, feldspat ve  $\text{HNO}_3$  ile liç edilmiş kaolen yardımıyla bağlanmıştır. Filtre altlığı üretiminde liç edilmiş kaolen kullanımı ile, liç işlemi sonucu oluşan  $\text{MgSiO}_3$ ,  $\text{Na}_2\text{SiO}_3$  ve  $\text{K}_2\text{SiO}_3$  gibi metal silikatların bağlayıcı özelliklerinden faydalانılmıştır.

## 2. MALZEME VE YÖNTEM

Bu çalışmada seramik filtre altlığı üretiminde kullanılan hammaddeler; kil gurubu minerallerden kaolen, kuvars ve feldspat Kütahya-Simav bölgesinden temin edilmiştir. Alumina ise %99 saflıktaki Merck firmasının ürünüdür.

Seramik filtre altlığı üretiminde bağlayıcı katkı malzemesi olarak kullanılan kaolen öncelikle reçete bileşimine doğrudan hammadde olarak, daha sonraki denemelerde ise kaolen, 0.09 M  $\text{HNO}_3$  ilavesi ile karıştırma liç'i işlemeye tabi tutularak katılmıştır. Kaolen'in liç işlemi kinetiği Gülsever, (1998) tarafından yapılmış ve 0.09 M  $\text{HNO}_3$  en uygun asit konsantrasyonu olarak tespit edilmiştir. Kaolenin liç işlemesine tabi tutulmasının amacı, reçete bileşiminde gözenekli bir yapı elde etmektir. Bu amaçla bağlayıcı miktarının azaltılması, buna karşılık bağlayıcının daha etkili hale getirilmesi gerekmektedir, dolayısıyla bu çalışmada kaolen miktarı %5 gibi oldukça düşük oranda seçilmiştir. Bilindiği gibi, kaolen  $\text{HNO}_3$  ile liç edildiğinde bağlayıcı metal silikatlar oluşmaktadır (Grupta, 1990). Kaolen'in liç işlemi akım şeması Şekil 1'de verilmiştir.

Kaolen liç işlemi öncesi  $560^{\circ}\text{C}$ 'de ısıtılarak içindeki organik maddeler yakılmıştır, böylece liç işleminde asit kaybı önlenmiştir.  $0.09\text{ M}$  asit çözeltisi içine 25 gram kaolen yarım saat sürede her dakikada eşit miktarda beslenmiş, aynı zamanda karıştırma işlemine devam edilmiştir, 1000 dev/dak dönüş hızına sahip olan karıştırıcı ile malzeme 2.5 saat süre ile karıştırılmıştır. Daha sonra 12 saat süre ile dinlennmeye bırakılan karışım,  $100^{\circ}\text{C}$ 'de sıvısı buharlaştırılarak kullanıma hazır hale getirilmiştir.



Şekil 1. Kaolen liç işleminin akım şeması.

Seramik filtre allığı üretiminde kullanılan hammaddelerin kimyasal analiz sonuçları Çizelge 1'de, ham kaolen ve  $\text{HNO}_3$  ile karıştırma liç'ine tabi tutulmuş kaolen'e ait fiziksel özellikler ise Çizelge 2'de verilmiştir, ham kaolen'in yoğunluk suyu liç edilmiş kaolen'e göre daha yüksek, kuru mukavemet değerde daha düşüktür. Dolayısıyla ham kaolen katkısı ile hazırlanan bünyelerin şekillendirilmesi daha güç olmuştur. Kuvars ve feldspat'in tane boyut aralığı  $63\text{-}80\text{ }\mu\text{m}$ , alumina'nın  $63\text{-}200\text{ }\mu\text{m}$  ve kaolen'in liç işlemi öncesi  $100\text{ }\mu\text{m}$  altıdır. Liç işlemi öncesi kaolen'in ortalama tane boyutu  $6.11\text{ }\mu\text{m}$ , liç işlemi sonrası ise ortalama tane boyutu  $4.75\text{ }\mu\text{m}$  olmuştur. Kuvars ve feldspat'in tane boyut dağılımları elek analizi ile tespit edilmiş, alumina ve kaolen'in boyut analizi ise Malvern Master Sizer ile yapılmıştır. Liç işlemi sonunda kaolen'in tane boyutunun azalmasında yüksek devirde yapılan karıştırmanın yanısıra kimyasal çözünmenin de etkili olduğu tahmin edilmektedir. Liç işlemi sonrası kaolen'in kimyasal bileşimindeki farklılaşma, (Çizelge 1), tanelerde çözülmenin gerçekleştiğini göstermektedir. Çizelge 3'de görülen şartlarda hazırlanan seramik filtreler mekanik mukavemet, porozite ve su geçirgenlik testlerine tabi tutulmuştur.

Deneysel çalışmalar Çizelge 4'de görüldüğü gibi iki grupta planlanmıştır. Birinci grup çalışmalarında eşit miktarlarda katılan kuvars ve alumina, %35-65 oranında değişen miktarlarda feldspat ve %5 oranında ham kaolen ile bağlanmıştır. İkinci gurup çalışmalarında kullanılan kaolen ise  $0.9\text{ M}$   $\text{HNO}_3$  ile karıştırma liç'i işlemeye tabi tutulmuştur.

**Çizelge 1. Deneysel çalışmalarında kullanılan hammaddelerin kimyasal analiz sonuçları<sup>1</sup>.**

OKSİTLER	Kaolen		Kuvars	Potasyum Feldspat
	Ham kaolen	Liç edilmiş kaolen		
<b>SiO<sub>2</sub></b>	58.32	57.60	91.85	72.71
<b>Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub></b>	25.89	28.50	4.21	14.68
<b>Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub></b>	0.12	0.40	0.45	0.26
<b>CaO</b>	0.41	0.28	0.73	0.74
<b>MgO</b>	0.69	-	0.24	0.28
<b>Na<sub>2</sub>O</b>	0.44	0.70	0.49	3.14
<b>K<sub>2</sub>O</b>	0.79	0.42	1.00	7.85
<b>TiO<sub>2</sub></b>	0.12	0.22	0.16	0.07
<b>SO<sub>3</sub></b>	-	-	0.10	0.10
<b>A.Z.</b>	12.63	11.48	1.00	0.55

### 3. BULGULAR VE TARTIŞMA

Seramik filtre allığı üretiminde bağlayıcı olarak kullanılan kaolen 0.09 M HNO<sub>3</sub> ile karıştırma liç'i işlemeye tabi tutulmuştur. Bu işlem sonucunda Şekil 2'de görülen bileşikler elde edilmektedir (Gupta, 1990). Burada özellikle MgSiO<sub>3</sub>, Na<sub>2</sub>SiO<sub>3</sub> ve K<sub>2</sub>SiO<sub>3</sub> gibi bağlayıcı silikatların oluşması, seramik filtre allığı üretiminde şekillendirme kolaylığı sağlamaktadır.

**Çizelge 2. Deneysel çalışmalarında kullanılan kaolen'in fizikal özelliklerini<sup>2</sup>.**

FİZİKSEL ÖZELLİKLER	Ham kaolen	Liç edilmiş kaolen
Yoğrulma suyu, (%)	7.00	6.40
Kuru çekme, (%)	2.00	2.60
Pişme çekmesi, (%)	3.00	3.40
Kuru mukavemet, (kg/cm <sup>2</sup> )	3.50	6.40
Pişmiş mukavemet, (kg/cm <sup>2</sup> )	14.70	12.00
Pişme rengi, (1100 °C)	beyaz	beyaz

**Çizelge 3. Seramik filtre üretim şartları.**

PROSES ŞARTLARI	YÖNTEM
Çamur Hazırlama	Yaş çamur hazırlama
Şekillendirme	Filtrasyon
Kurutma	Açık havada 24 saat
Pişirme	1100 °C'de tünel fırında 48 saat süreyle
Boyutlar	6 cm çap, 8 mm kalınlıkta disk şeklinde

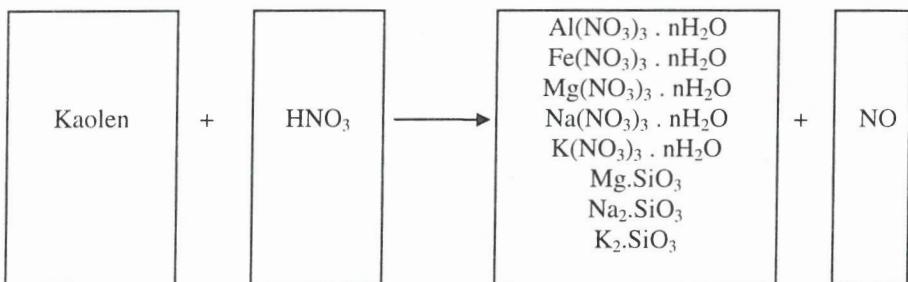
<sup>1</sup> Kütahya Porselen Ar-Ge Laboratuvarında, Perkin Elmer 1100B model cihazda Atomik Absorbsiyon Spektroskopisi metodu ile yapılmıştır.

<sup>2</sup> TS-EN 176 standartlarına göre Gürafi Porselen Ar-Ge Laboratuvarlarında yapılmıştır.

**Çizelge 4. Ham ve liç edilmiş kaolen katkılı altlık üretiminde deneyel planlama.**

Deney Gurubu	Diğer Katkı Maddeleri	Potasyum Feldspat miktarı, %						
		35	40	45	50	55	60	65
I	Kuvars	30.0	27.5	25.0	22.5	20.0	17.5	15.0
	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	30.0	27.5	25.0	22.5	20.0	17.5	15.0
	Ham kaolen	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0
II	Kuvars	30.0	27.5	25.0	22.5	20.0	17.5	15.0
	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	30.0	27.5	25.0	22.5	20.0	17.5	15.0

Çizelge 5'de kuvars-alumina-potasyum feldspat-ham kaolen bileşiminden üretilen seramik filtre altlıklarının fiziksel özellikleri görülmektedir. Aynı deneyler liç işlemeye tabi tutulmuş kaolen katkısı ile yapıldığında elde edilen sonuçlar Çizelge 6'da görülmektedir. Bu sonuçlara göre, liç edilmiş kaolen ile hazırlanan bünyelerin kuru mukavemeti ham kaolen kullanılan bünyelere göre daha yüksektir. Ham kaolen kullanılan bünyelerde şekillendirme sonrası kayıplar daha fazla olmuştur, üretilen bünyelerin şekillendirme işlemi sonrası filtreden çıkarılması sırasında kenarlarında çatlaklar meydana gelmiştir. Ayrıca bünyenin kuru mukavemetinin düşük olması sebebiyle taşınma işlemi sırasında kırılmalar meydana gelmektedir. Bu bünyelerde şekillendirme ve kurutma işlemi sonrası %50 oranında kayıp meydana gelmiştir. Aynı reçeteler liç edilmiş kaolen katkısı ile hazırlandığında kurutma ve şekillendirme sonrası kayıplar ancak %5 oranında kalmaktadır.



**Şekil 2. Kaolen'in HNO<sub>3</sub> ile liç işlemi sonucunda oluşan bileşikler.**

Liç edilmiş kaolen katkısı ile üretilen bünyelerin pişmiş mukavemet değerleri ortamdaki feldspat miktarı %35-65 oranında değiştiğinde  $32 \pm 1.5 \text{ kg/cm}^2$  gibi bir değerde kalmaktadır. Bünyede ham kaolen kullanıldığında ise feldspat miktarı %45 oranında bulunduğuunda en yüksek değeri olan  $39.95 \text{ kg/cm}^2$  olmaktadır. Bünyedeki feldspat miktarı %45 oranından daha az veya fazla olduğunda bünyenin pişmiş mukavemeti  $30.48 \text{ kg/cm}^2$  değerine kadar düşmektedir.

Bünyede feldspat miktarı düşük olduğunda ortamda yeterli akışkanlık sağlanamamış, miktarı belirli oranın üzerine çıktıığında ise yapıyı daha kırılgan hale getirmiştir.

Çizelge 7'de üretilen seramik filtre altlıklarının su geçirgenliği test sonuçları görülmektedir. Su geçirgenlik testleri filtrasyon deney düzeneğinde yapılmıştır (Şan vd., 1994). Geçirgenlik testi için filtre allığı modül haline getirilerek filtrasyon setine bağlanmıştır. Filtre allığının geçirgenliği, test sonuçları kullanılarak D'arcy eşitliğinden hesaplanmıştır (Denklem 1). Filtrasyon basıncı 30 kPa olarak alınmıştır.

$$(1/A)(dV/dt) = (1/\mu)(K_m P_m / L_m) \quad (1)$$

Burada A: filtre allığı kesit alanı, V: filtre allığından geçen toplam su hacmi, t: zaman,  $\mu$ : suyun viskozitesi,  $K_m$ : filtre allığı geçirgenliği,  $P_m$ : hidrolik su basıncı,  $L_m$ : filtre allığı kalınlığı.

Çizelge 7'den görüldüğü gibi, bünyede ham kaolen kullanıldığından feldspat miktarı %45 oranında bulunduğuanda en yüksek değerde su geçirgenliği elde edilmektedir. Bu oranda feldspat katkısı ile aynı zamanda daha mukavemetli ve porozitesi yüksek filtre altlıkları üretilmiştir (Çizelge 5 ve Çizelge 6), %45 feldspat katkılı bünyelerde daha fazla pekişme sağlandığı görülmektedir. Bünyedeki feldspat miktarı %45 oranından daha az veya fazla olduğunda filtre allığının geçirgenliği bünyenin gözenekliliğine bağlı olarak azalmaktadır. Buna karşılık, liç edilmiş kaolen bağlayıcı silikatlar içerdiginden daha düşük oranda feldspat kullanılarak daha gözenekli ve su geçirgenliği yüksek filtre altlıkları üretilmiştir.

#### **Çizelge 5. Kuvars-alumina-potasium feldspat-ham kaolen bileşiminden üretilen seramik filtre altlıklarının fizikal özelliklerini.**

<b>FİZİKSEL TESTLER</b>	<b>Potasium Feldspat Miktarı, %</b>						
	<b>35</b>	<b>40</b>	<b>45</b>	<b>50</b>	<b>55</b>	<b>60</b>	<b>65</b>
Litre ağırlığı (g/l)	1603	1599	1596	1590	1590	1588	1585
Kuru çekme (%)	1.47	1.50	1.51	1.51	1.58	1.60	1.66
Pişme çekmesi (%)	2.83	3.00	2.99	3.09	3.32	3.40	4.04
Kuru mukavemet (kg/cm <sup>2</sup> )	2.61	2.65	2.58	2.57	2.55	2.49	2.44
Pişmiş mukavemet (kg/cm <sup>2</sup> )	36.66	38.18	39.28	37.53	34.77	29.69	26.53
Su emme (%)	34.48	36.75	37.29	34.85	33.33	33.19	32.98
Porozite (%)	48.13	48.75	50.11	49.19	47.5	46.67	46.15

#### 4. SONUÇLAR

Bu çalışmada, liç kaolen katkılı üretilen filtre altlıklarının ham kaolen katkılı filtre altlıklarına göre aşağıdaki avantajları sağladığı deneyel olaraq gözlenmiştir:

1. Filtre allığı liç edilmiş kaolen katkısıyla daha plastik bir özellik kazandığından kurutma aşamasındaki çatlamalar önlenmiştir.
2. Üretilen altlıkların kuru mukavemetleri daha yüksektir, liç kaolen katkısı ile kuru mukavemet değerinde %98 oranında artış sağlanmıştır.
3. Liç kaolen katkısı ile daha düşük oranda feldspat kullanılarak daha gözenekli ve su geçirgenliği yüksek filtre altlıkları üretmenin mümkün olduğu görülmüştür.

**Çizelge 6. Kuvars-alumina -potasyum feldspat-liç edilmiş kaolen bileşiminden üretilen seramik filtre altlıklarının fizikal özelliklerini.**

FİZİKSEL TESTLER	Potasyum Feldspat Miktarı, %						
	35	40	45	50	55	60	65
Litre ağırlığı (g/l)	1595	1592	1588	1587	1574	1570	1569
Kuru çekme (%)	1.47	1.52	1.49	1.50	1.56	1.63	1.70
Pişme çekmesi (%)	2.83	2.78	2.81	2.90	2.94	3.37	4.10
Kuru mukavemet (kg/cm <sup>2</sup> )	5.17	5.14	5.09	5.13	5.02	4.98	4.97
Pişmiş mukavemet (kg/cm <sup>2</sup> )	30.48	31.81	32.56	33.48	32.13	31.71	30.68
Su emme (%)	39.32	38.51	35.65	35.05	34.67	33.16	32.66
Porozite (%)	51.17	49.67	48.65	48.50	47.29	47.60	45.42

**Çizelge 7. Üretilen seramik filtre altlıklarının su geçirgenlikleri.**

ALTLIK ÇEŞİDİ	Seramik filtre allığı geçirgenliği, $\times 10^{10}$ , m <sup>2</sup>						
	Potasyum Feldspat Miktarı, %						
	35	40	45	50	55	60	65
Kuvars-alumina-feldspat-ham kaolen	1.47	2.16	2.42	2.24	1.88	1.63	1.61
Kuvars-alumina-feldspat-liç edilmiş kaolen	1.69	1.48	1.16	1.15	1.14	1.09	1.04

## TEŞEKKÜR

Bu çalışmanın finansmanı DPT 96K120630 nolu Projesi tarafından sağlanmıştır. Ayrıca, filtre allığına uygulanan fiziksel testler Altın Çini, Araştırma Geliştirme Bölümü Laboratuvarlarında yapılmıştır. Bu katkılarından dolayı fabrika yönetimine teşekkürü bir borç bilirim.

## KAYNAKLAR

1. Anderson, M.A., Gieselman, M.J., 1988, Titania and Alumina Ceramic Membranes, **Journal of Membrane Science**, No. 39, pp. 243-251.
2. Charpin, J., Bergez, P., Valin, F., 1987, Inorganic Membranes: Preparation, Characterization, Specific Application, High Tech Ceramics (P.Vincenzini, ed) Elsevier Sci. Pub. V.B., Amsterdam, pp. 2211-2221.
3. Chu, L., Anderson, M.A., 1996, Microporous silica membranes deposited on porous supports by filtration, **Journal of Membrane Science**, No.110, pp. 141-149.
4. Gupta, C. K., 1990, Hydrometallurgy in Extraction Processes, Volume I, CRC Press, Inc. USA.
5. Gülsever, İ., 1998,  $\text{SiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  Seramik Filtre Altılıklarında Liç Edilmiş Sındırıcı Kaoleni Kullanımı, Dumlupınar Üniversitesi, Yüksek Lisans Tezi.
6. Larbot, A., Alary, J.A., Guizard, C. And Cot L., 1987, New inorganic ultrafiltration membranes: preparation and characterisation, **International Journal of High Technology Ceramics**, No.3, pp. 143-152.
7. Larbot, A., Fabre, J.P., Guizard, C., Cot, L. and Gillot, J., 1989, New Inorganic Ultrafiltration Membranes: titania and zirconia membranes, **Journal of American Ceramic Society**, Vol. 72, No. 2, pp.257-267.
8. Leenaars, A.F.M, Burggraaf, A.J., 1985, The preparation and Characterization of Alumina Membranes with Ultrafine Pores: The Formation of Supported Membranes, **Journal of Colloid and Interface Science**, Vol. 105, No.1, pp. 27-39.
9. Moosemiller, M.D. and Hill, C.G., 1989, Physicochemical Properties of Supported  $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$  and  $\text{TiO}_2$  Ceramic Membranes, **Separation Science and Technology**, Vol.24, No. 9-10, pp. 641-657.
10. Robert, P., Cohen, H., 1996, Silica-supported polyvinylpyrrolidone Filtration Membranes, **Journal of Membrane Science**, No.115, pp. 179-190.
11. Scott, K., 1995, **Handbook of Industrial Membranes**, Elsevier Science Ltd, Oxon, UK.
12. Şan, O. ve Hoşten, Ç., 1994, Filtration of ceramics factors wastewater with membrane and ceramic type filter media. **Proceeding of 5<sup>th</sup> International Mineral Processing Symposium**. Cappadocia/Turkey, 6-8 September, 509-512.