

T.C.
SAKARYA ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

DOĞAL HAMMADDE VE ATIKLARDAN ALÜMİNA-SİLİKA
ESASLI AEROJEL ÜRETİMİ

YÜKSEK LİSANS TEZİ

Özge KILINÇ

Metalurji ve Malzeme Mühendisliği Anabilim Dalı

HAZİRAN 2024

T.C.
SAKARYA ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

DOĞAL HAMMADDE VE ATIKLARDAN ALÜMİNA-SİLİKA
ESASLI AEROJEL ÜRETİMİ

YÜKSEK LİSANS TEZİ

Özge KILINÇ

Metalurji ve Malzeme Mühendisliği Anabilim Dalı

Tez Danışmanı: Prof. Dr. Nil TOPLAN

HAZİRAN 2024

Özge Kılınç tarafından hazırlanan “Doğal Hammadde ve Atıklardan Alümina-Silika Esaslı Aerojel Üretimi” adlı tez çalışması 13.06.2024 tarihinde aşağıdaki jüri tarafından oy birliği ile Sakarya Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Metalurji ve Malzeme Mühendisliği Anabilim Dalı’nda Yüksek Lisans tezi olarak kabul edilmiştir.

Tez Jürisi

Jüri Başkanı :

Jüri Üyesi :

Jüri Üyesi :

ETİK İLKE VE KURALLARA UYGUNLUK BEYANNAMESİ

Sakarya Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Lisansüstü Eğitim-Öğretim Yönetmeliğine ve Yükseköğretim Kurumları Bilimsel Araştırma ve Yayın Etiği Yönergesine uygun olarak hazırlamış olduğum “Doğal Hammadde ve Atıklardan Alümina-Silika Esaslı Aerojel Üretimi” başlıklı tezin bana ait, özgün bir çalışma olduğunu; çalışmamın tüm aşamalarında yukarıda belirtilen yönetmelik ve yönergeye uygun davrandığımı, tezin içerdiği yenilik ve sonuçları başka bir yerden almadığımı, tezde kullandığım eserleri usulüne göre kaynak olarak gösterdiğimi, bu tezi başka bir bilim kuruluna akademik amaç ve unvan almak amacıyla vermediğimi ve 20.04.2016 tarihli Resmi Gazete’de yayımlanan Lisansüstü Eğitim ve Öğretim Yönetmeliğinin 9/2 ve 22/2 maddeleri gereğince Sakarya Üniversitesi’nin abonesi olduğu intihal yazılım programı kullanılarak Enstitü tarafından belirlenmiş ölçütlere uygun rapor alındığını, çalışmamla ilgili yaptığım bu beyana aykırı bir durumun ortaya çıkması halinde doğabilecek her türlü hukuki sorumluluğu kabul ettiğimi beyan ederim.

(13/06/2024).

Özge Kılınç

Sabrım için kendime

TEŐEKKÜR

Yüksek lisans tez çalışmam boyunca bilgi ve deneyimleriyle beni her konuda destekleyen saygıdeğer danışmanım Prof. Dr. Nil TOPLAN ve Prof. Dr. H. Özkan TOPLAN başta olmak üzere Öğr.Gör. İbrahim Fatih KEKİK, Doç.Dr. Ünal UYSAL hocalarıma ve tecrübeleriyle bana yardımcı olan tüm hocalarıma şükran ve saygılarımı sunarım. Ayrıca süreç içerisinde laboratuvar kullanımı konusunda gerekli desteęi sunan Zafer Yavuz Merkit'e ve SEM, XRD cihazları konusunda bana destek olan Fuat Kayış'a teşekkürlerimi sunarım. BET analizi konusunda analiz desteęi aldığım Metal Oksit firmasından Bülent Uslan ve Aydın Yanarocak'a ve FTIR analizi için DRC Kauçuk Sanayi A.Ş.'ne teşekkürlerimi sunarım. Ayrıca tez esnasında her zaman yanımda olup desteklerini hiç esirgemeyen, bugünlere gelmemi sağlayan ve her zaman maddi manevi destek veren sevgili annem İlkur Kılınç'a, anneannem Sebahat Yıldız'a ve babam Mustafa Kılınç'a teşekkürlerimi sunarım.

Özge Kılınç

İÇİNDEKİLER

Sayfa

ETİK İLKE VE KURALLARA UYGUNLUK BEYANNAMESİ	v
TEŞEKKÜR	ix
İÇİNDEKİLER	xi
KISALTMALAR	xiii
SİMGELER	xv
TABLO LİSTESİ	xvii
ŞEKİL LİSTESİ	xix
ÖZET	xxi
SUMMARY	xxiii
1. GİRİŞ	1
2. ALÜMİNA-SİLİKA AEROJELLER	5
2.1. Aerojelin Tanımı ve Tarihçesi	5
2.2. Aerojel Çeşitleri	6
2.2.1. Alümina arojeller	7
2.2.2. Silika arojeller	10
2.2.3. Alümina-silika arojeller	15
2.2.4. Karbon arojeller	21
2.2.5. Diğer arojeller	24
2.3. Alümina-Silika Aerojellerin Kullanım Alanları	25
2.3.1. Yalıtım malzemesi	25
2.3.2. Katalizörler	28
2.3.3. Termal koruma sistemleri	29
2.3.4. Adsorbanlar	30
2.4. Aerojel Sentezi ve Sol-jel Prosesi	31
2.4.1. Jelin hazırlanması	34
2.4.2. Jelin yaşlandırılması	34
2.4.3. Jelin kurutulması	35
2.4.3.1. Atmosferik şartlarda kurutma	35
2.4.3.2. Süperkritik şartlarda kurutma	37
2.4.3.3. Dondurucu kurutucu ile kurutma	38
2.4.4. Sol-jel prosesinin avantajları	39
2.4.5. Sol-jel prosesinin dezavantajları	42
2.5. Alümina-silika Aerojeller Hakkında Literatür Taraması	42
3. DENEYSEL ÇALIŞMALAR	55
3.1. Amaç	55
3.2. Alümina-silika Aerojel Üretiminde Kullanılan Başlangıç Maddeleri	58
3.2.1. Şamot tuğlası	58
3.2.2. Perlit	59
3.2.3. Diatomit	60
3.2.4. Zeolit	62
3.2.5. Vollastonit	63

3.2.6. Alüminyum eloksal atığı	64
3.3. Deneyin Yapılışı	66
3.3.1. Başlangıç malzemeleri	66
3.3.2. Alümina-silika esaslı aerojel tozunun üretimi.....	66
3.3.2.1. Çözeltilerin hazırlanması	66
3.3.2.2. Jelin yaşlandırılması	67
3.3.2.3. Jelin atmosferik şartlarda kurutulması	68
3.4. Alümina-Silika Aerojelin Karakterizasyonu	71
3.4.1. SEM analizi	71
3.4.2. FESEM analizi	74
3.4.3. XRD (faz) analizi	75
3.4.4. FTIR analizi.....	76
3.4.5. BET analizi.....	78
3.4.6. Termal iletkenlik analizi.....	79
3.4.7. Yoğunluk analizi	82
4. DENEYSEL SONUÇLAR VE İRDELEME.....	83
4.1. Başlangıç Hammaddelerine Yapılan Analizler	83
4.1.1. Mikroyapı (SEM) analizi	83
4.1.2. FTIR analizi.....	86
4.1.3. XRD analizi.....	87
4.1.4. Termal iletkenlik ölçüm analizi.....	87
4.2. Sentezlenen Alümina-Silika Esaslı Aerojel Tozlarına Yapılan Analizler.....	88
4.2.1. Mikroyapı analizi	93
4.2.2. FTIR analizi.....	113
4.2.3. BET analizi.....	129
4.2.4. XRD (faz) analizi	137
4.2.5. Aerojel tozlarının yoğunluklarının belirlenmesi	148
4.2.6. Termal iletkenlik analizi.....	151
5. GENEL SONUÇ VE ÖNERİLER.....	157
5.1. Genel Sonuçlar	157
5.2. Öneriler.....	160
KAYNAKLAR.....	163
ÖZGEÇMİŞ.....	177

KISALTMALAR

AIP	: Alümiyum İzopropoksit
ASB	: Alümiyum Sekbütoksit
ATSB	: Alümiyum Trisekbütoksit
BET	: Brunauer-Emmett ve Teller Analizi
BJH	: Barrett-Joyner-Halenda
DTA	: Diferansiyel Termal Analiz
DNBP	: 2-sekonder-bütül-4,6-dinitrofenol
EDS	: Enerji Dağılımlı X-ışınları Analizi
FESEM	: Alan Emisyonlu Taramalı Elektron Mikroskobu
FTIR	: Fourier Dönüşümlü Kızılötesi Spektroskopisi
HD	: Sıcak disk
HMDZ	: Hegzametildisilazan
MTMS	: Metiltrimetoksisilan
PHMS	: Polihidrometilsiloksan
RF	: Resorsinol Formaldehit
SEM	: Taramalı Elektron Mikroskobu
TEM	: Transmisyon Elektron Mikroskobu
TEOS	: Tetraetoksisilan
TGA	: Termogravimetri
TMCS	: Trimetilklorosilan
TMMOS	: Trimetilmetoksisilan
TMOS	: Tetrametoksisilan
TPS	: Geçici Düzlem Kaynağı
TriEOS	: Trietoksisilan
VTMS	: Viniltrimetoksisilan
XRD	: X-ışınları Difraktometresi
XRF	: X-ışını Floresans Analizi

SİMGELER

\AA	: Ångström
%	: Yüzde
$^{\circ}\text{C}$: Santigrat derece
cm^3	: Santimetreküp
d	: Atom sıraları arasındaki düzlemsel aralık
E_1-E_L	: Net adsorpsiyon
g	: Gram
K	: Sıcaklık [Kelvin]
k	: Termal iletkenlik katsayısı [W/mK]
mW	: Miliwatt
nm	: Nanometre
p_0	: Doymuş buhar basıncı [kPa]
p	: Buhar basıncı [kPa]
P_0	: Sensörden gelen güç çıktısı [W]
P_c	: Kritik basınç [MPa]
R_0	: Diskin ısıtılmadan önceki özdirenci [Ω]
T_c	: Kritik sıcaklık [K]
Ω	: Özdirencin sıcaklık katsayısı
ΔT_i	: İnce yalıtım katmanları üzerinde anlık değişen sıcaklık farkı
$\Delta T_{ave(\tau)}$: Numune yüzeyinin sıcaklık artışı
λ	: Kristal numuneye çarpan X-ışınlarının karakteristik dalga boyu
γ	: Gama
θ	: Teta
δ	: Delta
η	: Eta
n_m	: Tek tabaka kapasitesi [cm^3/g]

TABLO LİSTESİ

Sayfa

Tablo 2.1. Çeşitli yalıtım malzemelerinin termal iletkenlik katsayıları.	5
Tablo 2.2. Silika arojellerin genel özellikleri.	13
Tablo 2.3. Alümina, silika ve alümina-silika kompozit arojellerin özelliklerinin kıyaslaması.	21
Tablo 3.1. Başlangıç malzemesi olarak kullanılan doğal hammadde ve atık malzemelerin kimyasal analizleri (XRF).	55
Tablo 3.2. Şamot tuğlasının Türkiye rezerv yer ve miktarları.	59
Tablo 3.3. Saf vollastonitin bazı özellikleri.	63
Tablo 4.1. Alümina-silika esaslı arojel tozu üretiminde kullanılan numune kodları ve üretim parametreleri.	89
Tablo 4.2. Alümina-silika arojel tozlarına ait numune kodları ve numunelerde oluşan piklerin türü ve dalga boyları (cm^{-1}).	114
Tablo 4.3. Alümina-silika esaslı arojel literatür çalışmalarından elde edilen FTIR dalga boyları (cm^{-1}).	127
Tablo 4.4. Silika esaslı arojel literatür çalışmalarından elde edilen FTIR dalga boyları (cm^{-1}).	128
Tablo 4.5. Alümina esaslı arojel literatür çalışmalarından elde edilen FTIR dalga boyları (cm^{-1}).	128
Tablo 4.6. Alümina-silika esaslı arojel tozlarının BET yüzey alanı sonuçları.	130
Tablo 4.7. Alümina-silika esaslı arojel tozlarının BET gözenek hacmi sonuçları.	131
Tablo 4.8. Alümina-silika esaslı arojel tozlarının BET gözenek boyutu sonuçları.	131
Tablo 4.9. Üretilen alümina-silika esaslı arojel tozlarının BET nanopartikül boyutu, gözenek çapı ve gözeneklilik verileri.	132
Tablo 4.10. Üretilen alümina-silika esaslı arojel tozlarının XRD analiz sonuçları.	147
Tablo 4.11. Üretilen alümina-silika esaslı arojel tozlarının yoğunlukları.	149
Tablo 4.12. Sentezlenen alümina-silika esaslı arojel tozlarının termal iletkenlik katsayıları.	152

ŞEKİL LİSTESİ

Sayfa

Şekil 2.1. Örnek aerojeller ve aerojel tozu makro görüntüsü.	6
Şekil 2.2. a. Hidrofilik, b. Hidrofobik aerojel yapıları.....	12
Şekil 2.3. Örnek bir silika aerojel makro görüntüsü.	13
Şekil 2.4. Silika aerojel mikroyapı görüntüsü.....	14
Şekil 2.5. Sentetik ve doğal/atık kaynaklar kullanılarak üretilen alümina-silika aerojel kompozit özelliklerinin değer aralıkları.	18
Şekil 2.6. Sol-jel yöntemiyle sentezlenmiş farklı formlardaki karbon aerojeller a. aerojel tozu, b. silindirik monolit.	22
Şekil 2.7. X-aerajelin basma testi görüntüsü.	25
Şekil 2.8. Aerajelin yalıtım malzemesi olarak kullanımı.	26
Şekil 2.9. Aerajellerin a. Stardust uydusunda, b. Bina camında kullanılması.	26
Şekil 2.10. Granüler aerajel bazlı sıvanın cephelerde kullanımı.	27
Şekil 2.11. Sol-jel yöntemi ile silika aerajel sentezinin şematik diyagramı.	32
Şekil 2.12. Hidrofobik silika aerajel üretimi akış şeması.	33
Şekil 2.13. CO ₂ sıcaklık basınç diyagramı.	37
Şekil 2.14. Numunelerin sol-jel yöntemiyle sentez şeması: a. Kolloidal soldan sentezlenen filmler ve b. Jelden sentezlenen toz.....	41
Şekil 3.1. Alümina-silika aerajel kompozit üretimi akış şeması.	57
Şekil 3.2. Alümina-silika aerajel kompozit üretimi şematik gösterim.	57
Şekil 3.3. Diatomitin kayaç yapısı.	61
Şekil 3.4. Perlit ve şamot tuğlasının a. Baz çözültüsü ile karıştırma, b. Filtrasyon işlemi ve c. Sol çözültüsü elde edilme işlemleri.	67
Şekil 3.5. Şamot tuğla harcı ve perlitten üretilen jelin a. Yaşlandırma süreci, b. Filtrasyon öncesi elde edilen jeller ve c. Yaşlandırma sonrası süzme işlemi.	68
Şekil 3.6. Şamot tuğlası ve diatomitten elde edilen a. Yaşlandırma işlemi sonrası jel hali, b. Atmosferik koşullarda kurutma işlemi ve c. Üretilen alümina-silika esaslı aerajel tozları.....	69
Şekil 3.7. Elde edilen çözültülerin yaşlandırma işlemi sırasındaki jel yapıları.	69
Şekil 3.8. SEM'in çalışma prensibi.	71
Şekil 3.9. SEM cihazı.	72
Şekil 3.10. FESEM Cihazı.....	74
Şekil 3.11. XRD prensibi.....	75
Şekil 3.12. XRD analizinde kullanılan cihaz.	76
Şekil 3.13. FTIR çalışma prensibi.....	77
Şekil 3.14. FTIR analizi yapılan cihaz.....	78
Şekil 3.15. BET cihazı.	79
Şekil 3.16. TPS yönteminin genel şeması, örnek ve sensör düzenlemesi.....	80
Şekil 3.17. a. Termal iletkenlik ölçüm cihazı, b. Sıcak disk sensörü (probu) ile numunelerin yerleşimi.....	81

Şekil 4.1. Alümina-silika aerojel tozu üretimi için kullanılan kaynaklara ait a. Şamot tuğla harcı b. Diatomit c. Zeolit d. Perlit e. Vollaştonit f. Alüminyum eloksal atığı SEM mikroyapı görüntüleri (1000X) ve EDS analizleri.....	84
Şekil 4.2. Üretilen alümina-silika esaslı aerojel tozlarının makro görüntüleri.	91
Şekil 4.3. Üretilen alümina-silika esaslı aerojel tozlarına ait 100X ve 1000X büyütmedeki SEM görüntüleri.	93
Şekil 4.4. Üretilen alümina-silika esaslı aerojel tozlarına ait EDS harita görüntüleri.	98
Şekil 4.5. Üretilen alümina-silika esaslı aerojel tozlarının 100.000X ve 200.000X büyütmelerindeki FESEM görüntüleri.	106
Şekil 4.6. Üretilen alümina-silika esaslı aerojel tozlarının 50.000X büyütmelerdeki FESEM-EDS görüntüleri.	109
Şekil 4.7. Şamot ve Perlit hammaddelerinden üretilen N1 ve N2 Kodlu alümina-silika aerojel tozlarına ait FTIR Analizleri.	115
Şekil 4.8. Şamot tuğlası ve diatomit kullanılarak N3 ve N4 kodlu numunelere ait FTIR analizi.	116
Şekil 4.9. Şamot tuğlası ve zeolit kullanılarak üretilen N5 kodlu numunelere ait FTIR analizi.	117
Şekil 4.10. Şamot tuğlası ve vollaştonit kullanılarak üretilen N6 kodlu numunelere ait FTIR analizi.....	117
Şekil 4.11. Şamot tuğlası ve eloksal atık kullanılarak N7 kodlu numuneye ait FTIR analizi.	118
Şekil 4.12. Elokşal atık ve perlitten üretilen N8 kodlu aerojel tozunun FTIR analizi.	119
Şekil 4.13. Elokşal atık ve diatomitten üretilen N9 kodlu aerojel tozunun FTIR analizi.	120
Şekil 4.14. Elokşal atık ve zeolitten üretilen N10 kodlu aerojel tozunun FTIR analizi.	120
Şekil 4.15. Elokşal atık ve vollaştonit kullanılarak elde edilen N11 kodlu alümina-silika esaslı aerojel tozlarının FTIR analizleri.....	121
Şekil 4.16. Üretilen alümina-silika esaslı aerojel tozlarının adsorpsiyon izoterm eğrileri.	133
Şekil 4.17. N1 ve N2 kodlu aerojel tozunun XRD analizi.	138
Şekil 4.18. N3 ve N4 kodlu aerojel tozlarının XRD analizi.	138
Şekil 4.19. N5 kodlu aerojel tozlarının XRD analizi.	139
Şekil 4.20. N6 kodlu aerojel tozlarının XRD analizi.	140
Şekil 4.21. N7 kodlu aerojel tozunun XRD analizi.....	141
Şekil 4.22. N8 kodlu aerojel tozunun XRD analizi.....	141
Şekil 4.23. N9 kodlu aerojel tozunun XRD analizi.....	142
Şekil 4.24. N10 kodlu aerojel tozunun XRD analizi.....	143
Şekil 4.25. N11 kodlu aerojel tozunun XRD analizi.....	144

DOĞAL HAMMADDE VE ATIKLARDAN ALÜMİNA-SİLİKA ESASLI AEROJEL ÜRETİMİ

ÖZET

Artan nüfus ve kentleşme yanında birçok endüstriyel operasyonda, ekonomik değer kazanma potansiyeli olan atık malzemeler açığa çıkmaktadır. Oluşan tonlarca atık malzemelerin bertaraf edilmesi yönünde çalışmalar artarak sürdürülmekte olup; alümina-silika esaslı aerojel üretimi için literatürdeki çalışmaların yetersiz olduğu görülmüştür. Alümina-silika arojellerin üretiminde, sentetik başlangıç malzemeleri kullanıldığında yüksek maliyetten dolayı çalışmalar doğal ve atık malzeme kullanımına doğru eğilim göstermektedir. Atık sorunlarının üstesinden gelmek için eloksal atık gibi çevreye zararlı ve alümina içeriği yüksek olan bu kaynak alümina başlangıç malzemesi olarak tercih edilmiştir. Ayrıca üretim rezervi ülkemizde bol olan perlit, diatomit, şamot tuğlası, vollastonit gibi ekonomik silika hammadde kaynaklarının, katma değeri daha yüksek olan hafif, dayanıklı ve gözenekli malzeme sınıfı olan arojellere dönüştürülebilirliği incelenmiştir. Ticari kimyasallar yerine başlangıç hammaddeleri olarak çok daha ekonomik olan bu doğal hammadde kaynaklarının ve atığın alümina-silika esaslı kompozit aerojel üretiminde kullanılarak değer kazandırılması bu tez çalışmasının temel hedeflerindedir. Aerojeller düşük termal iletkenlik ve yoğunluğun yanında yüksek yüzey alanına ve nano boyutlu gözenekliliğe sahip olduklarından günümüzde çeşitli alanlarda önem kazanmış ve birçok kullanım potansiyeline sahip olmaya başlamıştır. Alümina arojeller, yüksek sıcaklıklara (1700°C'ye kadar) dayanabilen, yüksek bir mekanik mukavemete sahip, birçok kimyasala karşı dirençli olmakla birlikte; darbelere karşı kırılğan ve hassas olabilmektedir. Silika arojeller, alümina arojellere göre daha düşük mekanik mukavemete sahip olmakla birlikte, yüksek sıcaklıktaki kırılğanlığı, sinterleme davranışı, yüksek maliyeti gibi tüm bu olumsuzluklara çözüm olmak ve termal kararlılığı arttırmak için alümina-silika esaslı kompozit aerojel üretimi özellikle doğal hammadde kaynaklarımız ve atık malzeme kullanılarak yapılmıştır. Böylece silika arojelerle daha yüksek termal ve boyutsal kararlılığa sahip bir refrakter malzemenin (alümina gibi) eklenmesi ile oluşturulan kompozit arojelin termal kararlılığının artırılması sağlanacaktır. Mevcut çalışmada pahalı sentetik başlangıç kimyasalları yerine ülkemizde rezervi bol olan hammaddelerden şamot tuğlası, eloksal atık, perlit, zeolit, diatomit ve vollastonit kullanılarak farklı Si ve Al elementel oranlarına sahip hafif, düşük yoğunluklu, iyi mekanik özelliğe, termal dayanıklılığa ve düşük termal iletkenliğe sahip yalıtım alanında kullanılanlara alternatif olarak kullanılacak alümina-silika esaslı aerojel tozları üretilmiştir. Sol-jel tekniği ile çözeltiye alınan doğal ve atık malzemeler, jelleşme ve yaşlandırma prosesleri tamamlandıktan sonra atmosferik şartlarda kurutulmuş ve üretilen aerojel tozlarının karakterizasyonu, FT-IR, SEM ve FESEM-EDS, XRD, BET, termal iletkenlik ve yoğunluk analizleri ile gerçekleştirilmiştir.

Yapılan analizler sonucunda sentezlenen alümina-silika esaslı aerojel tozlarının nano boyutlarda, mikro ve mezo gözenekli yapıya (~1,9-2,1 nm) sahip oldukları

görülmüştür. FTIR analizlerinde görülen -OH pikleri, yapıda fiziksel suyun adsorblandığını, Si-O-Al ve Si-O-Si pikleri, üretilen aerojel tozlarının kuvvetli Al ve Si bağlarını içerdiğini göstermektedir. BET analiz sonuçlarına göre, alümina-silika esaslı aerojel tozlarının yüzey alanları, partikül boyutları (gözenek çapı ve genişliği), gözenek hacimleri belirlenmiş olup; yüzey alanları 13,36-248,35 m²/g aralığında, gözenek çapları 18,783-20,01 Å aralığında, gözenek genişliği 20,574-20,968 Å aralığında, ortalama partikül boyutları 241,598-4492,363 Å aralığında ve gözenek hacimlerinin 0,006416-0,12199 cm³/g aralığında olduğu görülmüştür. Termal iletkenlik testinde alümina-silika esaslı aerojel tozlarında beklenen düşük termal iletkenlik katsayıları elde edilmiş olup; 0,0608-0,0950 W/mK aralığında olduğu tespit edilmiştir. Hacmi belli olan bir kap yardımıyla alümina-silika esaslı aerojel tozlarının yoğunlukları ölçülmüş ve oldukça düşük değerler (0,176-0,825 g/cm³ aralığında) tespit edilmiştir. Termal iletkenlik ve yoğunluk değerlerinin daha düşürülebilmesi için yeterli tozun bulunduğu numuneler için ekstra bir yıkama adımı daha yapılmış olup yeni yoğunluk değerleri 0,14-0,34 g/cm³ aralığında, termal iletkenlik katsayıları da 0,058-0,0778 W/mK aralığında tespit edilmiştir.

ALUMINA-SILICA BASED AEROGEL PRODUCTION FROM NATURAL RAW MATERIALS AND WASTES

SUMMARY

Increasing population and urbanization have led to many waste material generation problems, and efforts to dispose of tons of waste materials are continuing to increase. As an alternative to overcome waste problems, raw material resources such as perlite, diatomite, chamotte brick, wollastonite, which have high alumina content such as anodized waste and whose production reserves are abundant in our country, can be economically cheap and can be converted into aerogels, which are light, durable and porous material class with much higher added value. The conversion of these natural raw materials, which are very economical as raw materials, is one of the main objectives of the current thesis. Aerogels have gained importance today and have the potential to be used in various fields since they have high surface area and nano-sized porosity as well as low thermal conductivity and density. Alumina aerogels sinter above 1000°C due to their brittleness as well as poor mechanical strength, which limits their high temperature applications. The production of alumina-silica based composite aerogels is planned to solve all these problems such as high temperature brittleness, sintering behavior and high cost of silica aerogels and to increase thermal stability. By adding a refractory material (such as alumina) with higher thermal and dimensional stability to the silica aerogel, the thermal stability of the composite will be increased. The surface areas of pure alumina aerogels are generally lower than pure silica aerogels and their bulk densities are not as low as silica. However, alumina aerogels exhibit better thermal stability at high temperature compared to pure silica aerogels. Alumina-silica aerogel powders find applications in many fields due to their superior properties such as large surface area, well-developed pore structure, low density, low dielectric constant, low thermal conductivity coefficient and high porosity.

For use in different applications, alumina-silica based aerogels can be developed with different ratios of precursor materials. The properties of alumina-silica aerogels enable them to be used in many areas such as thermal insulation, catalyst carrier, adsorption and biomedical applications. Especially in thermal insulation applications, they have very low thermal conductivity coefficients due to their low density and nanoporous structure. Alumina-silica aerogels have shown equivalent catalyst performance when compared to reference catalysts. In the field of thermal insulation, these materials have great potential, especially in high temperature environments due to their thermal dimensional stability and inherently low thermal conductivity. The addition of alumina phase as adsorbent to silica aerogels results in higher stability and adsorption capacity and these materials are suitable for repeated adsorption/desorption cycles. These properties mean that they can be used to increase energy savings and efficiency in industrial processes. In addition, atmospheric drying technique was used in the study, which has the advantage of reducing the capillary forces acting on the nanostructures and increasing the ability of the nanostructures to withstand these forces compared to other drying methods such as supercritical drying and freeze drying, which are more

complex, expensive and require energy consumption. This reduces the production costs and therefore, it can be stated that the composite alumina-silica aerogels produced within the scope of this thesis are much more economical thanks to both the raw material and the selected drying method.

In the present study, alumina-silica based aerogel powders were produced and characterized by using natural raw materials and wastes such as chamotte brick mortar, anodizing waste, perlite, zeolite, diatomite, diatomite and wollastonite, which are abundantly reserves in our country, instead of expensive synthetic starting chemicals to prepare alumina and silica rich sol solution by sol-gel technique, using oven drying technique under atmospheric conditions. In the study, two different starting precursors used as alumina (fireclay brick mortar and anodizing waste) and silica sources (perlite, diatomite, zeolite and wollastonite) were dissolved separately in NaOH base solution at 120°C for 3 hours using a heater stirrer and the sol solutions were combined by filtering when the solutions cooled. Sieving the powder that will be included in the solvent in a sol solution to a smaller powder grain size range will facilitate the reaction of the powders and make the starting material more soluble in the sol solution. Therefore, the powders were sieved through a 45 µm sieve before being taken into the sol solution. During the aging process, the solution was kept sealed at room temperature for 2 weeks. Since the aging time is one of the important production parameters, the effect of waiting time on the structure and properties of the gel can be investigated by increasing or decreasing this time. During the gel aging step, ethanol solution was used to strengthen the skeletal structure and bonds. The gels were dried in an oven at 120°C for 2 days under atmospheric conditions and after drying, light, low density, good mechanical properties with different Si and Al elemental ratios, Alumina-silica based aerogel powders, which can be used as an alternative to those used in insulation with thermal resistance and low thermal conductivity, were characterized by FT-IR, SEM (scanning electron microscopy) and FESEM (field emission scanning electron microscopy), EDS, XRD, BET, thermal conductivity and density analysis.

The alumina-silica based aerogel powders synthesized as a result of the analyses were obtained at different Al/Si ratios and in different amounts after drying under atmospheric conditions. The reason for this difference is the gelation efficiency of the solution depending on the starting materials used and the production parameters. For all aerogel powders produced, raw material cost was eliminated as raw material sources and wastes were used.

Although the aerogel powders produced were found to have nano-sized grain size; the grain size appears large due to agglomeration in microstructural examinations. It has been determined that it has a homogeneous distribution, very low density caused by the 3-dimensional network structure, powder grain size at nano level, porous and spongy microstructure. While the aerogel powder coded N1 consists of small grain size powders, it was observed that in the sample coded N2, in addition to small grain size powders, large spherical grains were also present in the structure. This was confirmed by FTIR analysis and the presence of -OH peak in the structure caused physical adsorption of water and thus agglomeration of the powders. The powder coded N3 has a large grain size and mixed grain structure, while N4 is composed of smaller sized powder grains. Therefore, when the concentration was increased, small grain size, uniform structure and agglomerated grains were observed and it can be stated that the effect of concentration on grain size is consistent with the results obtained in various studies in the literature. Samples coded N5, N9 and N10 have small

powder grain size, while the other samples have a wide grain size range and coarse and small mixed powder grain structure. In the EDS analysis, it is seen that Si, Al and O elements are concentrated in the structure of alumina-silica based aerogel powders synthesized by drying under atmospheric conditions. In aerogel powders coded N3 and N4, where diatomite was used as silica precursor, the silica content was higher than the alumina content. This is thought to be due to the higher gelling ability of the diatomite structure; similar dominant silica effect was observed in powders produced with diatomite (such as N9). It was observed in the EDS analysis that the additions of NaOH and HCl used in aerogel production with washing processes with distilled water remained in the structure and the washing should be increased. The -OH peaks seen in FTIR analyses indicate that physical water is adsorbed in the structure, while Si-O-Al and Si-O-Al and Si-O-Si peaks indicate that the synthesized aerogel powders contain strong Al and Si bonds. The peaks caused by the vibration of Si-O-Al bonds observed in the spectra of the aerogel powders produced are due to the presence of Si-O-Si strong bonds as well as Al-O in the structure.

XRD analysis revealed the presence of kaolinite, blolite, quartz and corundum phases in chamotte brick, which is one of the initial precursors used to produce alumina-silica based aerogels, and SiO₂ peaks as well as aluminum oxide hydroxide peaks in anodized waste. While SiO₂ peaks were observed in the structure of perlite, diatomite and wollastonite used as silica precursors; the presence of clinoptilolite phase was observed in the structure of zeolite. In the alumina-silica based aerogel powders produced with these raw materials, results close to the general XRD results of alumina-silica aerogels produced in the literature were obtained and the presence of large SiO₂ peaks, which are indicative of the predominantly amorphous structure, and in addition, in the powder coded N2 produced from chamotte brick and perlite precursors, blolite; in the powder coded N7 produced from chamotte brick and anodizing waste precursors, boehmit; bayerite and berythite in powder coded N8 produced from anodized waste perlite precursors; aluminum hydroxide and berythite in powder coded N9 produced from anodized waste and diatomite precursors; aluminum hydroxide and berythite in powder coded N10 produced from anodized waste zeolite precursors; bayerite, gibbsite, berythite and aluminum hydroxide phases were also detected in powder coded N11 produced from anodized waste and wollastonite. These phases have been observed in various studies in this field in the literature and the present thesis is similar in this direction. In addition, it can be stated that the volume of base and solution directly affects the salt formation in the structure, which is clearly seen in N3 and N4. Aerogel powder coded N3 produced with 1 M 250 ml contains more NaCl peaks in XRD analysis and higher Na content in EDS analysis compared to aerogel powder produced with 3 M 100 ml base/acid solution. Similar situation was observed in aerogel powders coded N1 and N2 produced from the same precursors (chamotte brick and perlite) in 1 M 250 ml and 3 M 100 ml base/acid solution volumes, respectively; the Na content of aerogel powder coded N1 is higher. If the number of washing processes is increased, the salt content in the structure can be reduced.

Surface areas, particle sizes and pore volumes of alumina-silica based aerogel powders were determined by BET analysis. According to these data, adsorption average pore diameters ranged between 18,783-20,01 Å, pore widths ranged between 20,492-20,968 Å, average nanoparticle size results ranged between 241,598-4492,363 Å; The lowest adsorption average pore diameter was determined in the sample produced with N10 coded anodized waste-zeolite precursors, the highest pore width was determined in the sample produced from N8 coded anodized waste-perlite, the highest pore width

was determined in N8 coded anodized waste-perlite and the lowest was determined in N11 coded anodized waste-zeolite. The lowest average nanoparticle size was found in the sample obtained from N2 coded chamotte brick-perlite and the highest particle size was found in the alumina-silica aerogel powder obtained from N4 coded chamotte brick-diatomite. Surface areas were 13.36-248.35 m²/g and pore volumes were in the range of 0.006416-0.12199 cm³/g. The N2 coded sample produced from fireclay brick-perlite has the largest pore volume value with 0.12199 cm³/g, while the N4 coded sample produced from fireclay brick-diatomite has the smallest pore volume value with 0.006416 cm³/g. When the data of BET surface area analysis were analyzed, it was observed that the sample with the highest surface area was obtained from perlite-chamotte brick precursors coded N2 with a surface area of 248.35 m²/g, while the sample with the lowest surface area was the sample coded N4 produced from chamotte brick-diatomite precursors with a surface area of 13.36 m²/g. While the Langmuir surface area data ranged between 20.77-383.665 m²/g, the sample coded N2 had the highest surface area result with a value of 383.665 m²/g and the sample coded N4 had the lowest surface area result with a value of 20.77 m²/g. In the BJH adsorption surface area results, the highest value belongs to the alumina-silica aerogel powder obtained from perlite-chamotte coded N2 with 133.3291 m²/g, while the lowest value belongs to the sample obtained from diatomite-anodized waste coded N9 with 5.4267 m²/g. It was observed that the particle size data coincided with the data obtained as a result of FESEM analysis at high magnifications and the powders were spongy and nano-sized as targeted. When the grain sizes of the aerogel powders produced were compared with the literature, it was determined that the powder grain sizes were within acceptable limits.

Low thermal conductivity coefficients were obtained in the thermal conductivity test of alumina-silica based aerogel powders synthesized using anodizing waste and different natural raw materials as waste sources. As a result of the thermal analysis performed at 25°C for the powders dried under atmospheric conditions, the thermal conductivity coefficient of the sample coded N4 produced from chamotte brick and diatomite was measured as 0.0608 W/mK and it can be said that it has the most successful thermal conductivity coefficient and the lowest density (0.176 g/cm³) among the samples produced, so it can be used as a potential insulation material in thermal insulation. The thermal conductivity coefficient of chamotte brick before treatment was measured as 0.1874 W/mK and diatomite as 0.0687 W/mK; 2.7 times regression was observed in composite aerogel powder compared to chamotte brick and a lower value was obtained from both values. The value of 0.0723 W/mK was measured in aerogel powder coded N10 produced from anodizing waste and zeolite; the second lowest density value (0.2465 g/cm³) among all samples was seen in aerogel powder coded N7. It was determined that the thermal conductivity coefficient of aluminum anodizing waste before treatment was 0.8 W/mK and zeolite was 0.1188 W/mK, and after the treatments, the conductivity coefficient of aluminum anodizing waste decreased approximately 11 times and zeolite decreased approximately 1.6 times. The thermal conductivity of aerogel powder coded N2 produced from chamotte brick and perlite decreased approximately 2 times compared to anodized waste and was found to be 0.0929 W / mK. The thermal conductivity of N3 coded aerogel powder produced from fireclay brick diatomite at 1 M 250 ml base/acid volume was 0.0920 and its density was higher due to the higher Na content compared to N4 coded aerogel produced with the same precursors at 3 M 100 ml base/acid volume. The thermal conductivity (0.0950 W/mK) of aerogel powder coded N9 produced from anodized waste and diatomite was higher than the others, which can be attributed to the density

of the aerogel powder (0.3646 g/cm^3) and the highest Na content (12.88% w/w) in the samples produced. The aerogel powder coded N9 was found to be the most efficient (excess gel amount and minimum shrinkage rate) production in the scope of the study; this density ratio can be significantly reduced if the number of washes with pure water is increased due to the excess gel amount. Thermal conductivity values could not be obtained from N1, N5-N8 and N11 due to insufficient amount of powder. When compared with the literature, it is understood that this value can be considered successful. Since the increase in the amount of air-filled pores in the structure makes heat conduction difficult, the thermal conductivity coefficient value may decrease. After the 2nd washing process, the thermal conductivity values for N2, N3, N4, N9 and N10 were 0.0697 W/mK , 0.0694 W/mK , 0.058 W/mK , 0.0778 W/mK and 0.0602 W/mK , respectively, and very low values were obtained compared to the first washing.

Density values of alumina-silica based aerogel powders produced with the help of a container with a certain volume were measured and found to be quite low. The density of N6 could not be measured due to lack of powder; the densities between N1-N11 were 0.176 - 0.825 ; 0.2647 , 0.2565 , 0.407 , 0.176 , 0.2536 , 0.3565 , 0.4869 , 0.3646 , 0.2485 , 0.825 g/cm^3 respectively. The lowest density was N4 coded aerogel powder produced from fireclay brick diatomite precursor at 3 M 100 ml base/acid condition. The density of N3 coded aerogel powder produced with the same precursor and different base/acid volume is about 2.3 times, which is attributed to the Na content from the high base volume and insufficient washing. The high density of the aerogel powder coded N11, which has the highest density, is attributed to the high Al content and high Na content. A similar situation was observed in N1 and N2 coded samples produced with the same precursors; N1 had a higher density than N2 due to the higher Na content due to the base/acid solution in 250 ml volume. The densities were measured again after the second washing process on the aerogel powders (for N2, N3, N4, N9 and N10), which contained sufficient amount of powder for thermal conductivity analysis, and a decrease in density values was observed due to the decrease in sodium content.

Research on the production, characterization and applications of aerogel materials can make significant contributions to the national industry by enabling the discovery and development of more effective and diverse applications. In order to support the wider use of these materials in the future (in biomedical applications such as wound dressings, drug delivery systems and tissue engineering scaffolds due to their biocompatibility and porous structure) and their wider adoption in industrial processes, waste and natural raw materials were investigated and used in the production of aerogel powder in this thesis. In this way, it will find widespread use at affordable costs and will provide significant benefits in human life.

1. GİRİŞ

Tipik olarak aerojeller hacimce %90-%99 havadan oluşmaktadır (veya başka bir gazdan) ve üretilen en düşük yoğunluklu aerojelin hacimce %99,98 havadan oluştuğu bilinmektedir [1]. Aerojel, hacimce %90'ın üzerinde hava içeren bir malzeme olmasına rağmen; gözeneklerin çökmesini önlemek için sağlam bir katı nanoyapıya sahip, sol-jel ile kontrollü şekilde üretilen bir malzemedir. Silika aerojeller genellikle çok düşük yoğunluğa (tipik olarak $0,03 \text{ g/cm}^3$), yüksek özgül yüzey alanına ($\sim 600-1000 \text{ m}^2/\text{g}$), son derece yüksek gözenekliliğe ($\sim 90-99\%$), düşük termal iletkenliğe ($0,02 \text{ W/mK}$) ve açık gözenekli bir yapıya sahiptir. Mükemmel termal kararlılık ve düşük yoğunluklarının yanı sıra iyi termal yalıtım ve yapısal özelliği, aerojelleri gelişmiş endüstriyel cihazlarda, kimyasal sentörlerde, uzay araçlarında ve hipersonik araçlarda umut verici bir malzeme haline getirmektedir [2, 3].

Aerajeller, pratik uygulamalarda toz, bulk, film, cam, kompozit mat ve benzeri olmak üzere çeşitli formlarda üretilmektedir. Bunlar arasında aerjel tozu birincil ve esasen önemli olan bir formdur. Ayrıca, aerjel tozu, dolgu maddesi olarak (örn. VIP panellerde veya içi boş cam panellerde) veya çekirdek yalıtım bileşeni olarak (örn. aerjel boyalarda, harçlarda veya diğer hibrit malzemelerde) çeşitli ısı yalıtımlarında kullanılabilir. Tüm bu malzemeler, gelişmiş yangına dayanıklılık ve/veya yüksek sıcaklık yalıtım işlevleri gerektiren endüstriyel ve konut binalarındaki uygulamalar için büyük potansiyele sahiptir [4].

Saf alümina aerajeller, son derece hafif, gözenekli ve yüksek yüzey alanları ile dikkat çeken nano malzeme örneklerindedir. Bu aerajeller, sol-jel yönteminde, jel oluşumundan kaynaklanan bir nanopartikül ağı içinde bir sıvının yerini alır ve bu ağ çözeltinin giderilmesiyle ardında gözenekli bir yapı bırakır. Saf alümina aerajeller, genellikle yüksek sıcaklık dayanımları ve kimyasal inertlikleriyle tanınır. Bu aerajeller, pek çok bilimsel ve endüstriyel uygulamalarda kullanılır. Özellikle termal yalıtım, katalizör taşıyıcıları, gaz adsorpsiyonu ve elektrokimyasal sistemler gibi alanlarda yaygın kullanılmaktadırlar. Yüksek yüzey alanları ve gözenekli yapısı, katalitik ve adsorpsiyon uygulamalarında etkili bir performans sağlar. Ayrıca,

hafiflikleri ve termal izolasyon özellikleri, uzay arařtırmaları ve havacılık endüstrisi gibi uygulamalarda da tercih edilir. Saf alümina arojellerin sentezi karmařık olabilir, ancak genellikle sol-jel yöntemi veya süperkritik kurutma gibi teknikler kullanılarak üretilirler. Sol-jel yöntemi, alümina nanopartiküllerinin bir çözeltiliden jel oluşturmak için birlikte reaksiyona girmesini içerir. Süperkritik kurutma ise, jel matrisinin bir süperkritik sıvı ortamda kurutulmasını içerir, bu da gözenekli bir arojel oluşturur. Saf alümina arojeller, nanoteknolojinin geliřimiyle birlikte yeni ve heyecan verici uygulamalar için potansiyel sunmaktadır. Bu materyallerin özellikleri ve üretim yöntemleri hakkında yapılan arařtırmalar, ileri teknolojik çözümlerin geliřtirilmesine olanak tanırken, aynı zamanda malzeme bilimine ve nanoteknolojiye dair geniř bir anlayıřın geliřmesine katkı saęlar. Saf alümina arojellerin silika ile birleřmesi, kompozit malzemenin termal, mekanik, yüzey ve kimyasal özelliklerinin iyileřtirilmesine olanak tanırken; bu durum geniř bir uygulama yelpazesinde daha etkili ve dayanıklı malzemelerin geliřtirilmesine katkı saęlar [5, 6].

Silika arojel, 3 boyutlu nano iskelet yapısına ve gözeneklere sahip tipik bir nano gözenekli malzemedir ve düşük yoğunluk, yüksek gözeneklilik ve yüksek spesifik yüzey alanı özelliklerine sahiptir. Ultra düşük termal iletkenliğe ve yüksek sıcaklıklarda (1200°C'den yüksek) mükemmel termal stabiliteye sahip yalıtım malzemelerinin üretimi son derece zorlu olmasına karřın, silika arojeldaki düşük katı içerięi ve nano boyuttaki gözenek yapısı sayesinde, katı ve gaz fazlarında ısı transferini büyük ölçüde engelledięinden; havacılık, bina yalıtımı ve dięer alanlarda yaygın kullanıma sahiptir. Silika arojelin bir dezavantajı, yüksek sıcaklıkta katı ve gaz fazlar arasındaki yüzey enerjisi tarafından meydana gelen viskoz akıř nedeniyle 600°C'nin üzerindeki sıcaklıklarda direnci düşmekte, bu da partikül boyutunun artmasına, spesifik yüzey alanının azalmasına yol açmaktadır. Bu sorunun üstesinden gelmek için, inorganik elyafların ve iyi termal stabiliteye sahip tozların (karbon elyafları, cam elyafları, müllit whiskerleri, alümina tozları vb.) takviye edildięi silika arojel kompozitleri geliřtirilmiřtir. Bu yöntem silika arojelin ısıl direncini bir dereceye kadar iyileřtirebilse de, fiber demetlerinin veya nanopartiküllerin yüksek yüzey enerjisinden dolayı mekanik karıřtırma ve ultrasonik dispersiyon gibi mevcut hazırlama stratejilerini kullanarak arojel sistemindeki inorganik fazların homojen daęılımını gerçekleřtirmek zordur. Ayrıca kompozitteki arojel fazı, geleneksel silika arojel gibi yüksek sıcaklığa dayanamaz, bu da kompozit olduęunda farklı fazların

ayrılması, iç stresin artması ve nano-gözenekli yapının bozulması gibi birçok sorunu beraberinde getirir. Yüksek sıcaklık direncini geliştirmenin bir başka yolu, oksidi yüksek erime noktasına sahip olan alüminyum, zirkonyum ve titanyum gibi metal oksitleriyle katkılayarak hibrit (kompozit) aerojelleri hazırlamaktır. Bunların arasında, alümina-silika esaslı kompozit aerojeller kapsamlı olarak araştırılmakla birlikte; doğal hammadde ve atıklar kullanılarak yapılan çalışmaların yetersiz olduğu gözlenmiştir [4].

Alümina-silika aerojellerin üretiminde, sentetik başlangıç malzemeleri kullanıldığında yüksek maliyetten dolayı çalışmalar doğal ve atık malzeme kullanımına doğru eğilim göstermektedir. Birçok endüstriyel operasyonda, ekonomik değer kazanma potansiyeli olan atık malzemeler açığa çıkmaktadır. Bu nedenle, alümina-silika esaslı aerojellerin hazırlanmasında sentetik öncülere bir alternatif, endüstriyel atık bileşiklerinin kullanımı olabilir. Bu sayede hem bu endüstrilerin üretim maliyetlerinin düşürülmesi, üretim süresinin kısaltılması hem de aerjel maliyetinin düşürülmesi sağlanmaktadır. Alümina ve silika gibi bileşikler birçok atık malzeme içinde bol miktarda bulunmaktadır. Atık malzemeleri, katma değeri daha yüksek olan bir ürüne dönüştürmek; hem atık malzeme değerlendirme hem de çevre kirliliği problemlerine etkili bir çözüm olacaktır. Bununla beraber, bu kaynakların bolluğu ve büyük oranda endüstriyel atıkların açığa çıkması, üretimi karlı hale getirebilir.

Bu tez çalışması kapsamında atık ve doğal hammadde kaynakları kullanılarak daha ekonomik, sürdürülebilir ve katma değeri yüksek nano gözenekli alümina-silika esaslı kompozit aerojellerin üretimi amaçlanmıştır. Yalıtım alanında aerjel kullanımının daha düşük maliyetle ve düşük yakıt sarfiyatı ile hafiflik ve yalıtım özelliklerini karşıladığı görülmesi sebebiyle, kullanılma potansiyeli mevcuttur. Silika aerjel üretiminde ticari sentetik başlangıç kimyasalları kullanıldığında yüksek maliyet gerektirmesi, yüksek sıcaklıklarda zayıf ısı yalıtım performansı ve su emme nedeniyle kolay deformasyona uğraması gibi durumlar sebebiyle seri üretimi ve kullanım alanlarını büyük ölçüde sınırlamaktadır. Silika aerojele daha yüksek boyutsal ve termal kararlılığa sahip olan alüminanın eklenmesiyle kompozitin termal kararlılığını arttırmak, yüksek sıcaklıktaki kırılganlığı, sinterleme davranışı, yüksek maliyeti gibi olumsuzluklara çözüm olmak için alümina-silika esaslı kompozit aerjel üretimi planlanmıştır. Gerçekleştirilen bu çalışmada, alümina kaynağı olarak şamot tuğla harcı doğal hammaddesi ve alüminyum eloksal atığı, 4 farklı silika başlangıç malzemeleri

(perlit, diatomit, zeolit, vollastonit) kullanılarak atmosferik basınçta kurutma ile alümina-silika arojel tozları sentezlenmiştir. Sol-jel yöntemi tercih edilerek, baz katalizörü ile alümina ve silika esaslı başlangıç malzemeleri çözeltilere alınıp sodyum silikat çözeltisi ve alüminaca zengin sol çözeltisi elde edilmiş ve bu çözeltiler birleştirilmiştir ve asit katalizörü kullanımıyla jelleşme sağlanmıştır. Elde edilen jeldeki çeşitli safsızlıklar saf su kullanılarak uzaklaştırılmış ve jelin iskelet yapısı yaşlandırma işlemi ile birlikte güçlendirilmiştir. Bu farklı başlangıç alümina ve silika kaynaklarının, elde edilen alümina-silika arojel tozlarındaki kimyasal bağ yapısına, mikroyapıya, kristal yapılarına, yüzey alanları ve gözenek çapı değerlerine olan etkileri incelenmiştir. Arojel tozlarının mikroyapısal, termal ve fiziksel özellikleri yapılan analizlerle belirlenmiştir. Sol-jel metodu ile üretilen alümina-silika esaslı arojel tozlarının mikroyapısı, faz yapısı, bağ oluşumları, yüzey alanı, gözenek hacmi ve çapı, nanopartikül boyutları ve adsorpsiyon izotermi SEM/FESEM-EDS, XRD, FTIR ve BET analizleri ile belirlenmiş, tozların görünür yoğunlukları ve termal iletkenlikleri hesaplanmıştır.

2. ALÜMİNA-SİLİKA AEROJELLER

2.1. Aerojelin Tanımı ve Tarihçesi

Aerogeller bünyelerinde %99 oranlarında hava barındırdıkları için oldukça gözenekli ve hafif malzemelerdir. Gözenek boyutları milimetrenin milyarda biri olup; malzemenin içini bir ağ gibi kuşatarak onlara düşük termal iletkenlik katsayısı ve düşük dielektrik sabiti gibi özellikler sağlamaktadır. Yalıtım kabiliyetleri yüksek olup; fiberglas yalıtım malzemelerinden 40 kat daha üstün ve oldukça dayanıklı malzemelerdir. Şalomadan çıkan ateşi yalıtarak yüksek ateşte kararlı kalabilmektedirler [7, 8]. Tablo 2.1’de kullanılmakta olan bazı yalıtım malzemelerinin termal iletkenlik katsayıları verilmiş olup, aerogellerin yalıtım katsayısının birçok yalıtım malzemesinininkinden daha düşük olduğu görülmektedir.

Tablo 2.1. Çeşitli yalıtım malzemelerinin termal iletkenlik katsayıları [9-11].

Isı Yalıtım Malzemesi	Isı İletim Katsayısı (W/mK)
Polietilen	0,040
Cam yünü	0,035-0,050
Taş yünü	0,035-0,040
Cam köpüğü	0,052
Genleştirilmiş polistiren	0,035-0,040
Ekstrüde polistiren	0,035-0,040
Elastomerik kauçuk köpüğü	0,036
Poliüretan	0,035
Fenol köpüğü	0,04
Isı yalıtım sıvası	0,036
Ağaç kabuğu	0,061-0,076
Selüloz	0,037
Kaya yünü	0,04
Aerogel	0,013

Aerojel kavramı 1932’de Kistler tarafından jel içindeki sıvının (çözeltinin) büzülme olmaksızın gaz ile yer değiştirdiği malzemeler şeklinde tanımlanmıştır. Üretilen ilk aerojel silika esaslı iken, zaman içerisinde çeşitleri artmıştır. Teichner ve arkadaşları basit ve ikili oksitleri araştırmışlardır. 1940 sonrasında aerojeller ticari olarak kullanılabilir bir düzeye ulaşmış, 1980’den sonra ise üretilip farklı alanlarda kullanılmaya başlanmıştır. 1990 yılının başlarında karbon aerojeller üretilmeye başlanmış ve sonrasında aerojellerin özelliklerinin daha da geliştirilmesi için kompozit yapıda aerojeller üzerine çalışmalar yapılmıştır. Çalışmalar zaman içerisinde çeşitlendikçe karbon nanotüp, karbit, silikon ve grafen aerojeller gibi formlar da üretilmiş olup; neredeyse her malzeme kullanılarak aerojel üretiminin mümkün olduğu görülmüştür [12-14]. Şekil 2.1’de aerojel ve aerojel tozuna ait makro görüntüler görülmektedir.



Şekil 2.1. Örnek aerojeller ve aerojel tozu makro görüntüsü [15-17].

Aerójellerin yüksek gözenekli yapıları, düşük yoğunlukları ve geniş bir yüzey alanına sahip olmaları gibi özelliklerden dolayı geniş bir alanda (kimya, inşaat, havacılık, elektrik, uzay ve biyoloji gibi) kullanılmaları mümkün olmaktadır. Ancak tüm bu avantajlı özelliklerine rağmen kırılğan olmaları, sanayi için büyük ölçeklerde üretilmelerinin zor ve yüksek maliyette olması gibi sorunlardan dolayı aerójeller günümüzde yaygın olarak kullanım alanı bulamamışlardır [13, 14].

2.2. Aerojel Çeşitleri

İlk olarak 2002 yılında üretimi gerçekleştirilen bakır katkılı metal aerójellerin saydamlık, geçirgenlik ve fotoluminesas özellikleriyle eşsiz bir yapıya sahip olduğu görülmüştür. Farklı yöntemlerle aerojel ve nanotüpün bir araya gelmesi sonucu verimli bir yapının oluşması sağlanmıştır ancak bu oluşan malzeme mezo gözenekli ve tek

parça olmadığından literatürde bilinen aerojel tanımıyla uyuşmamış ve elastik duman şeklinde adlandırılmıştır [18].

Aerojeller doğal veya yapay hammaddelerden elde edilebilir. İlk üretilen aerojel silika esaslı olsa da, günümüzde aerojel üretiminde kullanılmakta olan başlangıç malzemeleri oldukça çeşitlenmiştir. Aerojeller, içerdikleri kimyasal bileşime göre çeşitlere ayrılmaktadır. Bilinen aerojel çeşitleri: silika, alümina, karbon ve diğer aerojeller (nanotüp, yarı iletken metal ve polimer aerojeller gibi) şeklindedir. Aerojellerin içerdikleri bileşen sayısı göz önüne alınarak tek veya birden fazla bileşenli (kompozit) aerojeller olarak ayrılmaktadır [19]. Ancak aerojeller görünüşlerine, mikroyapılarına göre de sınıflandırılmaktadırlar. Görünüşlerine göre aerojeller toz/boncuk, film ve monolitlere ayrılabilir. Aerojeller mikroyapılarına göre ayrıca mikro gözenekli (<2 nm), mezo gözenekli (2-50 nm) ve karışık gözenekli aerojeller olarak da sınıflandırılabilir. Kurutma yöntemine bakıldığında, aerojel olarak adlandırılacak ilk malzemeler, çözücünün süperkritik duruma geçişi sağlanarak kurutulmuştur; bunun temel avantajı, gözenekli yapının ıslak aşamadan itibaren bozulmadan korunmasıdır. Bununla birlikte, örneğin dondurarak kurutma ve sililasyon ve atmosferik kurutmanın kombine aşamaları durumunda, önemli bir büzülme olmadan jel yapısını koruyan başka kurutma yaklaşımları da uygulanabilir. Bu durumlarda nihai ürün aerojel olarak da adlandırılabilir ancak sırasıyla kriyojel veya aerojel benzeri malzeme olarak da adlandırılabilir. Mevcut çalışmada silika ve alümina aerojeller başta olmak üzere, karbon ve diğer kompozit yapıları aerojellerden de bahsedilmiştir.

2.2.1. Alümina aerojeller

Alümina aerojeller yüksek yüzey alanına sahip olup; çoğunlukla Bayer prosesi ile üretilen alüminadan üretilebilir. Üretim esnasında yapıda kalan kalıntılar (safsızlık), alüminanın çeşitli uygulamalardaki kullanımını negatif olarak etkileyebilmektedir. Alümina esaslı seramikler yüksek yüzey alanı haricinde, yüksek mukavemete ve gelişmiş termal kararlılığa da sahiptirler. Alüminanın bu özelliklerinden sebep düşük yoğunlukta alümina aerojeller üretilebilmektedir [14, 20].

Yüksek yüzey alanı ve gözenek hacmine sahip alümina aerojel üretiminde genellikle alüminyum sek bütoksit vb. gibi pahalı sentetik alümina kaynakları kullanılmaktadır [14, 20]. Alümina aerojellerin, yüksek spesifik yüzey alanı ve üstün fiziksel özellikleri

sebebiyle alümina sentetik öncül kimyasallarıyla bu konuda çalışmalar yapılmıştır. Başlangıç malzemesi olarak metal elementleri kullanılarak, sol-jel yönteminin proses süresinin uzatılmasıyla metal oksit esaslı aerojeller üretilmiştir. Alümina aerojeller alüminyum alkoksitlerin hidroliz tepkimeleri ile üretilen ıslak jellerin kurutulmasıyla meydana gelmektedir. Alümina aerojel sentezlenmesinde; kullanılan metal ile hidroksil metalin merkezinde buluşmasıyla Al-OH yapısını meydana getirir ve Al-OH yapısının yoğunlaşması alümina aerojeli meydana getirmektedir. Süper kritik kurutucu katkılarının yapılması ve çözücü giderilmesi, alümina hidroksitlerin termal dehidrasyonun yapılması ve kurutulmuş alüminaların kalsinasyonu ile uygulama alanına göre kullanılacak aerojel malzemeler üretilmektedir [21]. Bu proses aşamalarının en sonunda metal oksit-metal köprüsü (Al-O-Al) meydana gelerek alümina aerojel oluşmaktadır [14]. Üretim aşamasında kullanılan tri-sek-bütoksit yüksek viskoziteye sahiptir. Tri-sek-bütoksit malzemesinin atmosferdeki nemle hidroliz tepkimesi oluşmasını engellemek için şırıngayla hava ve bazı alkoksitlerin arındırılması yapılmaktadır [20].

Alümina aerojel üretiminde değişken olan şartlar haricinde, ortalama olarak 7,5 saatlik sürelerde alümina aerojel üretiminin mümkün olduğu görülmüştür [14, 22]. Bu aerojellerin özellikleri üretim sırasında farklı özel malzemeler eklenerek geliştirilebilmektedir. Örnek olarak alümina aerojellere hidrofobik özellik, üretim esnasında trimetilmetoksisilan (TMMOS) ile yapılan modifikasyon sonucu kazandırılabilir. Alümina aerojel üretimi, kuruma esnasındaki çatlamaya yatkınlık ve karmaşık reaksiyonlardan dolayı zor olabilmektedir. Çeşitli kimyasallar ve üretim parametreleriyle jelin yapısı önemli ölçüde etkilenebilir. Literatürde sentezlenen alümina aerojeller ortalama olarak 800°C'de 98 mW/mK kadar düşük bir termal iletkenlik katsayısına sahip olup; yüzey alanları 460-840 m²/g aralığında, yoğunlukları ise 0,025-0,079 g/cm³ aralığında değişmektedir. Açık hücreli gözenek yapısına sahip olan alümina aerojeller oldukça düşük yoğunluklara sahiptirler. Yüksek yüzey alanları ise reaksiyona maruz kalan bölgenin artmasını sağlayarak verimi artırmaktadır. Literatürde alümina aerojellere ait çalışmalar silika aerojellere göre daha az olup; en yüksek gözenekliliğin %95 dolaylarında olduğu görülmüştür [8, 14].

Özellikle alümina aerojellerin, ısı yalıtımı ve kataliz gibi yüksek sıcaklık (>800 °C) uygulamalarında silika aerojellere göre daha iyi oldukları yaygın olarak kabul görmektedir. Bununla beraber, alümina aerojellerin hazırlanması, geniş ölçekte

kullanılması ve termal stabilitesi ile ilgili hala bazı zorluklar ve gelişmeler mevcuttur. Bunlardan ilki, geleneksel alümina aerojellerin üretiminde süperkritik kurutma tekniği ve alüminyum alkoksitler gibi sentetik öncüller kullanıldığından dolayı sentezi pahalı, zaman alıcı ve riskli olmasıdır, bu da alümina aerojellerin evrensel ve ekonomik üretimini engellemektedir. İkincisi ise, alüminanın yüksek sıcaklıklarda faz dönüşümü, yani yarı kararlı alümina fazlarının (γ , θ , δ , η -Al₂O₃) 1050 °C'nin üzerindeki kalsinasyondan sonra kararlı α -Al₂O₃'e dönüşümüdür, bu da nano gözenekli yapının çökmesine katkıda bulunur ve bu sebeple önemli miktarda yüzey alanı kaybı meydana gelecektir. Üçüncü zorluk, alümina aerojelin kendine özgü ince 3 boyutlu iskeleti nedeniyle yaşlanma ve takip eden kurutma süreci sırasında büzölmeye ve parçalanmaya karşı hassas olmasıdır [23]. Mevcut yöntemlerle üretilmesi daha güç olan alümina aerojeller, diğer aerojellere göre yüksek sıcaklıklardaki mükemmel kararlılıklarıyla yüksek sıcaklık uygulamaları için daha umut verici olup daha yüksek sıcaklıklarda termal yalıtım sağlayabilmektedirler [14, 20]. Alümina aerojellerin daha fazla alanda kullanılmasının, özelliklerinin geliştirilmesi ve atmosferik şartlarda kurutma yönteminin benimsenmesiyle mümkün olabileceği düşünülmektedir [24].

İç yapıları gözeneklerle bir ağ gibi sarılı olan alümina aerojeller, yüksek mukavemet ve yüksek sıcaklıklardaki termal kararlılıkları sayesinde, özellikle aşındırıcı ortamlardaki uygulamalarda kullanım alanı bulmalarının yanında yüksek sıcaklıktaki termal izolasyonlarda (yalıtım), ısı depolama, güneş enerji sistemlerinde, gaz filtrelerinde ve katalizörlerde (örn. otomotiv katalitik konvertörlerde paladyum destekli alümina katalizör kullanımı) de kullanılmaktadırlar. Alümina aerojeller alkol dehidrasyonlarında ve çeşitli azaltma katalizörleri olarak (emici ve manyetik taşıyıcı olarak kullanılan Fe₂O₃-Al₂O₃ kompozit aerojeli) da kullanılırlar [25].

Alümina aerojellerle ilgili çalışmalar temel olarak yüksek sıcaklıklardaki yapısal özellikler ve katalitik özellikler üzerine odaklanmıştır. Örneğin, Keysar ve ark., TGA/DTA, BET, XRD ile ısıtım sırasında alümina aerojel filmlerinin ve monolitlerin faz dönüşümlerini ve morfolojik değişikliklerini ve SEM mikroyapı görüntü analizini araştırmış ve ısıtım sırasında filmin yapı gelişimini açıklayan bir model önermişlerdir [26]. Koçer yaptığı çalışmada ürettiği alümina esaslı aerojel tozlarından elde ettiği sonuçlara göre alümina aerojellerin silika aerojellere göre daha iyi termal yalıtım özelliği sağladığını belirtmiştir [14]. Horiuchi ve ark., kararlı termal katalizör olarak silika ile modifiye edilmiş alümina aerojelleri hazırlamış ve 1400°C'de

1 saat ısıtıldıktan sonra ağırlıkça %2,5-%10 arasında farklı silika fraksiyonlarına sahip alümina arojel numunelerinin faz dönüşümünü ölçmüştür. Alümina arojellerin ısı transferi analizleri için gerekli olan alümina arojellerin ışıma özelliklerine ilişkin az sayıda çalışma vardır [1].

2.2.2. Silika arojeller

Silika arojeller, silika esaslı hammadde öncülleri kullanılarak üretilen, yalıtım kabiliyeti yüksek, düşük kırılma indisine, gözenekli yapı ve düşük yoğunluğa ($0,03-0,35 \text{ g/cm}^3$) sahip nano yapıli malzemelerdir. Gözenekli yapıya sahip olmaları yaklaşık $500-1500 \text{ m}^2/\text{g}$ aralığında geniş bir yüzey alanına sahip olmalarını da sağlamaktadır. Ortalama gözenek çaplarının 20 nm , partikül boyutunun ise $2-10 \text{ nm}$ aralığında olduğu söylenebilmektedir [14, 27-29].

IUPAC'ın (International Union of Pure and Applied Chemistry) gözenekli malzeme sınıflandırmasında; ortalama gözenek çapı 50 nm 'den büyük ise makro, $2-50 \text{ nm}$ aralığında ise mezo, 2 nm 'den küçük ise mikro gözenekli olarak isimlendirilmektedir. Silika arojellerde genellikle geniş gözenek boyut aralığı ve mezo gözenekli yapı görülmektedir. Ayrıca silika arojeller, gözenekli yapıları sebebiyle, daha iyi termal iletim yapmaktadırlar [14, 28].

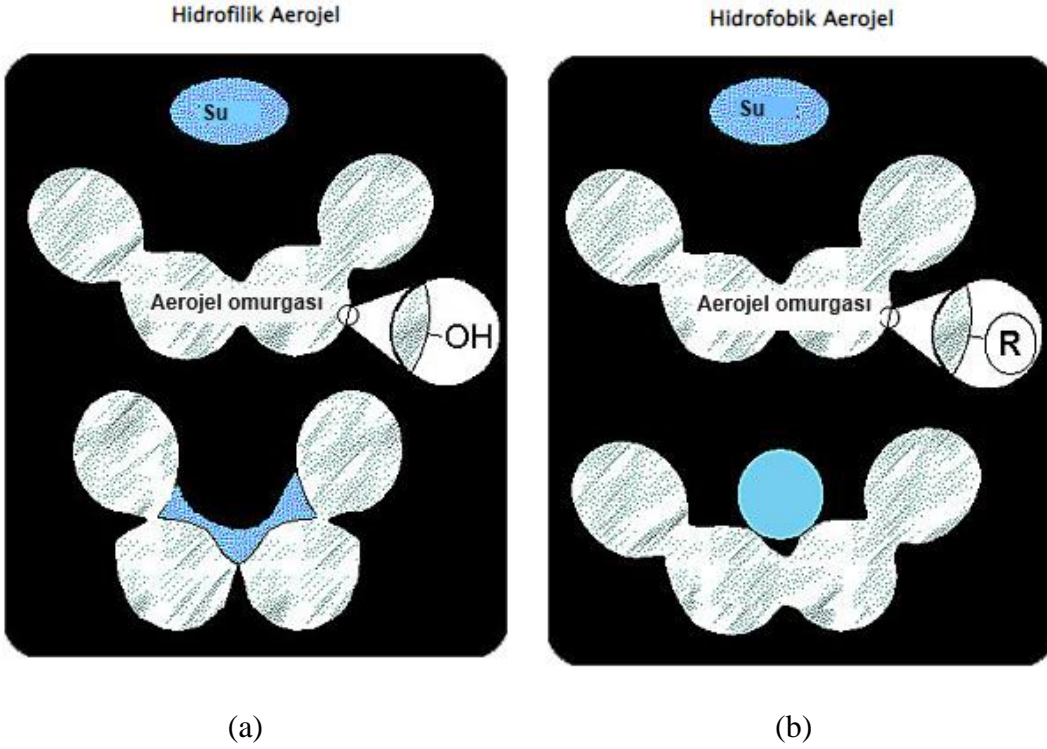
Kistler'in yaptığı bir çalışmada, atmosferik basınçta silika arojelin termal iletkenliğini $0,02 \text{ W/mK}$ bulmuştur [14, 27]. Düşük yoğunlukları ve geniş yüzey alanları silika arojellere çeşitli alanlarda kullanılmak için olanak sağlamaktadır. Örneğin düşük elektrik iletkenlikleri sayesinde entegre devrelerde ve çeşitli metal-oksit bazlı cihazların performansını iyileştirmede kullanılabilir. Silika arojeller, şeffaf yapıda oldukları için Cherenkov dedektörlerinde ve çift katmanlı cam yapımında ara katman olarak tercih edilebilmektedir. Ayrıca havacılık, askeri alanlar ve termal yalıtım malzemesi olarak pek çok alanda kullanım potansiyeli bulunmaktadır [14].

Silika arojellerin adsorpsiyon kapasiteleri aktif karbonlara kıyasla 10 kat daha yüksek olup; güneş enerji sistemleri, buzdolabı, termal şişeler ve termonükleer füzyon reaksiyonları gibi alanlarda süper yalıtkan olarak kullanılmaktadırlar. Yapılan çalışmalarda çimento karışımının ağırlıkça %2'sine silika arojel eklenmesi halinde termal yalıtımın %75 oranında arttığı görülmüştür [28, 29]. Kullanılmakta olan çoğu yalıtım malzemesine göre daha iyi yalıtım sağlamakta olan silika arojellerin kullanımları

yüksek maliyetli olmaları sebebiyle sınırlandırılmıştır. Örneğin inşaat sektöründe yalıtım ürünü olarak beton ve harç içerisinde kullanılabilir iken, yüksek maliyeti sebebiyle kullanılamamaktadır [30].

Silika aerogeller alümina aerogellerde de olduğu gibi üretim koşullarına (parametrelerine) bağlı olarak hidrofobik ya da hidrofilik özellik gösterebilmektedir. Aerojel yapısındaki Si-OH polar grubu suyu adsorblama özelliği gösterdiği için hidrofilik yapı sunar. Aerojel yapısına yüksek sıcaklıklarda süperkritik kurutma sonrasında hidrofobik özellik kazandırılabilir. Bu özelliklerin değişimi, kurutma sırasında farklı yüzey gruplarının meydana gelmesinden kaynaklanmaktadır [29]. Örneğin süperkritik alkol kurutma işlemi kullanılarak bir aerogel hazırlanırsa yüzeyi alkoksi (-OR) gruplarından oluşabilir. Öte yandan karbondioksit kurutma işleminde yüzeyin neredeyse tamamı hidroksil (-OH) grupları ile kaplanmaktadır. Tamamen hidroksillenmiş yüzeylere sahip silika aerogeller bu nedenle "hidrofilik" olarak sınıflandırılır. Hidrofilik yapıda olması durumunda açık ortamlarda silika aerogellerin kullanımında bir sorun teşkil etse de bu sorun, yüzeydeki hidroksil (-OH) gruplarının polar olmayan (-OR) gruba dönüştürülmesiyle aşılmaktadır. Trimetilsilil grupları en yaygın olmasına rağmen, R birçok olası alifatik gruptan biri olduğunda modifikasyonda etkilidir. Türevlendirme süperkritik kurutmadan önce (ıslak jel üzerinde) veya sonra (aerojel üzerinde) gerçekleştirilebilir. Bu, su ile silika yüzeyi arasındaki çekme kuvvetlerini ortadan kaldırarak aerogeli sıvı suyun vereceği zarardan tamamen korur. Aslında bu şekilde işlenen silika aerogelleri su ile ıslanamaz ve "hidrofobik" olarak sınıflandırılır. Şekil 2.2'de suyun silika aerogellerin gözenek yapısı ve katı omurgası ile etkileşimi görülmektedir.

Silika aerogel, açık hücreler, yüksek gözeneklilik ve yüzey alanı, düşük yoğunluk, iyi ısı yalıtım özellikleri, çok düşük kırılma indeksi ve çok düşük dielektrik sabiti gibi sıra dışı ve mükemmel özelliklere sahiptir ve bu özellikleri sebebiyle sensör malzemesi, katalizör ve adsorban olarak kullanılmaktadır [32]. Silika aerogeller, başlangıç hammaddesi olarak yağ kili kullanılarak yüksek spesifik yüzey alanı ve gözenek hacmine sahip olarak sentezlenebilmektedir. Silika aerogeller, mezo gözenekli yapıları, düşük yoğunluk, yüksek yüzey alanı ve çok düşük termal iletkenlik gibi ilgi çekici özellikleriyle yalıtım malzemesi olarak tercih edilmektedir [33, 34].



Şekil 2.2. a. Hidrofilik, b. Hidroforik aerogel yapıları [31].

Silika aerogeller 1930'lu yıllarda üretildiğinde beklenen gelişimi başlarda gösterememiş fakat son yıllarda farklı parametreler ve başlangıç hammaddeleri kullanımı ile yapılan çalışmalarla önem kazanmıştır. Mükemmel özellikleriyle çoğu bilimsel araştırmalardaki mevcut ve potansiyel kullanımlarıyla dikkat çekmektedir. Tablo 2.2'de silika aerogellerin bazı genel özellikleri verilmiştir [29].

Silika aerogeller, günümüzde üretimlerinde başlangıç maddeleri ve parametrelerin değiştirilmesiyle elde edilen özelliklerindeki değişimler ve gelişmeler dikkat çekmektedir. Silika aerogeller, sensör ve yalıtım malzemesi, adsorbant, katalizör, mimari, uzay ve havacılık, inşaat uygulamalarında potansiyel madde olarak ve termonükleer füzyon tepkimelerinde iç hapsedme füzyonu olarak kullanılabilir [36]. Hücre yapısının açık oluşu, düşük yoğunluklu, geniş yüzey alanına sahip, yüksek termal yalıtım özelliğine, yüksek gözenekliliğe, düşük kırılma özelliği ve dielektrik sabitine sahip olması gibi üstün özellikleri sebebi ile tercih edilmektedir [37].

Tablo 2.2. Silika arojellerin genel özellikleri [29, 35].

Özellik	Değeri
Yoğunluk	0,003 g/cm ³
Yüzey Alanı	500-1000 m ² /g
Gözenek Yüzdesi	% 80-99,8
Gözenek Çapı	20-150 nm
Primer Parçacık Çapı	2-5 nm
Termal İletkenlik	0,017-0,021 W/m.K
Termal Genleşme Katsayısı	2,0-4,0x10 ⁻⁶
Ses Hızı	100 m/s
Dielektrik Sabiti	1,1
Kırılma İndisi	1-1,05

Silika arojellerle karşılaştırıldığında, alümina arojeller daha iyi termal kararlılığa sahip olup; yüksek sıcaklıklarda (>800 °C) hala yüksek yapısal bütünlüğü ve yüksek gözenekliliği koruyabilir. Bu nedenle, alümina arojellerin, havacılık ve uzay için ısı yalıtımı ve endüstriyel termal koruma gibi yüksek sıcaklık alanlarında iyi uygulama beklentilerine sahip olduğu düşünülmektedir [37]. Şekil 2.3'te örnek bir silika arojelin makro görüntüsü görülmektedir.

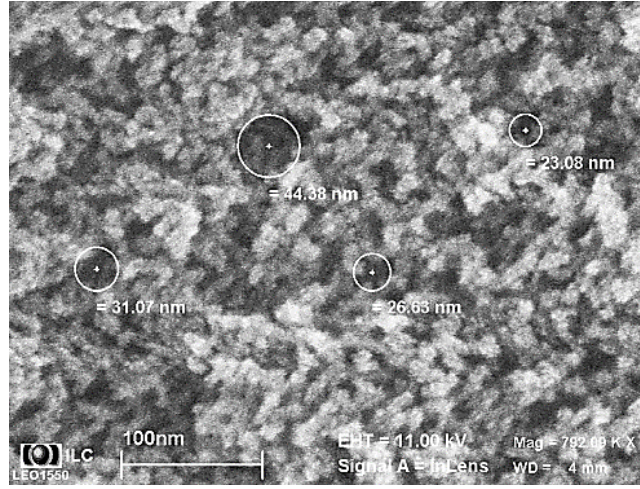


Şekil 2.3. Örnek bir silika arojelin makro görüntüsü [38].

SiO₂, arojelin üretiminde kullanılmakta olan önemli malzemelerden birisi olup; günümüzde SiO₂ esaslı arojelin çalışmaları yaygın olarak yapılmaktadır. Arojelin

üretiminde SiO₂ haricinde kullanılan hammaddeler de bulunmakta ve farklı türdeki öncül maddelerden elde edilen aerojellerin fiziksel veya kimyasal özellikleri farklılık gösterdiğinden kullanım yerleri de değişmektedir [39].

Silika esaslı aerojeller, hidrofilik veya hidrofobik özelliklere sahip olabilmektedir. Hidrofilik silika aerojeller, sulu çözeltilerde çözünebilir organik maddeleri yüzeyde tutabilmekteyken, hidrofobik silika aerojeller ise çözünürlük kuvveti düşük olan organik maddeleri yüzeyde tutabilmektedirler [40]. Şekil 2.4'te üretilen bir silika aerojelin mikroyapı görüntüsü görülmektedir.



Şekil 2.4. Silika aerjel mikroyapı görüntüsü [41].

İnorganik (silika, alümina vb. gibi) aerojeller kapsamında literatürde birçok çalışma bulunabilmektedir. İnorganik aerojeller, metal alkoksitlerin polikondenzasyonundan elde edilen çapraz bağlı olan ve saydam hidrojellerden sentezlenmektedir ve buna sol-jel denilmektedir [42]. İnorganik aerojeller, yüksek poroziteli yapı ve yüzey alanı, düşük dielektrik katsayısı ve yoğunluk gibi özelliklere sahiptir. Ayrıca inorganik aerojeller düşük termal iletme sahip olup yalıtım malzemelerinin üretiminde tercih edilmektedir. Bu yöntemle silika başlangıç hammaddesi su ve alkol karışımı veya bir asit/baz katalizörü ile karıştırılmaktadır. Karışım sonrası sol meydana gelmekte ve bu yapı koloidal-çapraz bağlı partiküllerden oluşmaktadır. Oluşan sol, partiküllerin boşluklarına sıvı madde şeklinde dolmasıyla uzun bir bağ yaparak jelleşme meydana getirmektedir [43].

2.2.3. Alümina-silika aerojeller

Yapılan çalışmalara göre silika matrisine daha yüksek boyutsal termal stabiliteye bir refrakter fazın (alümina) eklenmesi tipik bir silika aerojelin gözenek stabilitesinin 1200–1400 °C'ye kadar korunmasını sağladığı ve çok yüksek sıcaklıklarda düşük termal iletkenlik ($81 \text{ mWm}^{-1}\text{K}^{-1}$ 'in altında) değerlerini koruduğu görülmüştür. Dolayısıyla alümina-silika kompoziti aerojel özelliklerini iyileştirecek ve geliştirecektir. Katalizör alanında alümina-silika aerojeller, referans katalizörlerle karşılaştırıldığında eşdeğer performans göstermiştir. Isı yalıtımı alanında bu malzemeler, ısıl boyutsal kararlılıkları ve doğal olarak düşük ısı iletkenlikleri nedeniyle özellikle yüksek sıcaklıktaki ortamlarda geniş potansiyel uygulama alanı göstermektedir. Adsorban olarak alümina fazının silika aerojellere eklenmesiyle daha yüksek stabilite ve adsorpsiyon yeteneği elde edilmiş ve bu malzemelerin tekrarlanan adsorpsiyon/desorpsiyon döngüleri için yeniden kullanılabilir olduğu belirtilmiştir. Dolayısıyla yapılan çalışmalarda silika ve alümina fazlarının birleştirilmesinin sinerjik etkisiyle aerojel performansında önemli bir iyileşme genellikle elde edilmiş ve bu da uygulama alanlarının genişletilmesi beklentisini desteklemektedir [5].

Silika bazlı aerojeller, amorf silikaya yakın iskelet yoğunluğuna ($2,2 \text{ g/cm}^3$) sahip, yüksek gözeneklilik (%80-99,8) ve düşük kütle yoğunluğu ($\sim 0,03\text{-}0,5 \text{ g/cm}^3$) sunan amorf malzemelerdir. Genellikle, yüksek spesifik yüzey alanı ($500\text{-}1200 \text{ m}^2/\text{g}$) sağlayan, tipik olarak 5-100 nm arasında değişen boyutlarda birbirine bağlı gözeneklere ve 20 ila 40 nm arasında ortalama gözenek çapına sahip, mezo-gözenekli bir ağa sahiptirler. Silika aerojellerin diğer iki önemli özelliği ise çok düşük ısı iletkenlikleri ($0,012\text{-}0,020 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$) ve yanmaz olmaları, onları ısı yalıtım sistemleri için umut verici malzemeler haline getirmektedir. Ek özellikler arasında ultra düşük dielektrik sabiti ($\sim 1\text{-}2$) ve düşük kırılma indeksi ($\sim 1,05$) yer alır ve oldukça farklı yüksek teknoloji segmentlerinde uygulamanın önünü açmaktadır. Bu özelliklerine rağmen silika aerojelleri, zayıf seramik yapısal bağlantıları nedeniyle 500-600 °C'nin üzerindeki sıcaklıklarda yoğunlaşmaya ve sonunda yapının çökmesine maruz kalmakta ve bu da çekici özelliklerinin kaybolmasına neden olmaktadır. Silika sisteminde olduğu gibi, saf alümina bazlı aerojeller genellikle sentetik alümina öncülleri ile elde edilir; alüminyum alkoksitler ve alüminyum tuzları en çok kullanılan bileşiklerdir. Alümina aerojeller, çoğunlukla silika aerojellerin özelliklerine paralel olarak düşük yoğunluklu ($\sim 0,035\text{-}0,4 \text{ g/cm}^3$), yüksek gözenekliliğe ve yüzey alanına

(350-700 m² g⁻¹) sahip nano gözenekli malzemelerdir. Bununla birlikte, yüksek sıcaklıklarda doğrulan kristal ve lifli ağ mikro yapıları nedeniyle alümina arojeller, saf silika arojellerden daha iyi termal stabilite gösterir. Alümina arojelleri ayrıca silika arojellerde bulunanlardan 10 MPa'ya kadar daha yüksek Young modülü ile iyi mekanik özellikler gösterir. Bu anlamda alümina-silika arojeller bazı uygulamalar için iyi bir çözüm teşkil etmektedir [5, 12, 29, 30].

Alümina-silika arojeller, sentetik öncüllerin yanı sıra, bileşimlerinde yüksek oranda alüminyum ve silika içeren kil/mineraller başta olmak üzere doğal hammaddelerden elde edilebilir. Böhmit (AlOOH) genellikle alüminyum alkoksitler veya inorganik alüminyum tuzları gibi alüminyum bileşiklerinden hazırlanır. Bu nedenle böhmit, alümina-silika arojellerin hazırlanmasında, kurutulmuş üründe kararsız bir ara faz olabilir. Isıl işlemler daha sonra alümina fazlarına geçişi ortaya çıkarabilir. Hibrit jellerin elde edilmesi için hidroksit karışımları (alümina-silika gibi) birlikte çöktirmektedir. Başlangıç maddesi olarak böhmit kullanan alümina-silika jelleri, yüzey negatif yüklü silika parçacıkları (yaklaşık pH 2) böhmit parçacıklarının pozitif yüklü yüzeyi ile etkileşime girdiğinden ve aralarında polimerleştiğinden, düşük pH koşullarında elde edilebilir. Her iki oksidin parçacık boyutlarına bağlı olarak iki farklı jelleşme mekanizması mümkündür: a) silika parçacıkları böhmit parçacıklarından çok daha küçükse, böhmit parçacıklarının etrafında bir kabuk oluşturur ve bu kompozit parçacıkların jelleşmesi silikaninkine benzer, b) silika parçacıklarının boyutu daha büyükse, böhmit parçacıkları silika çekirdeği üzerinde büyür ve jelleşme mekanizması böhmitinkine benzerdir [5].

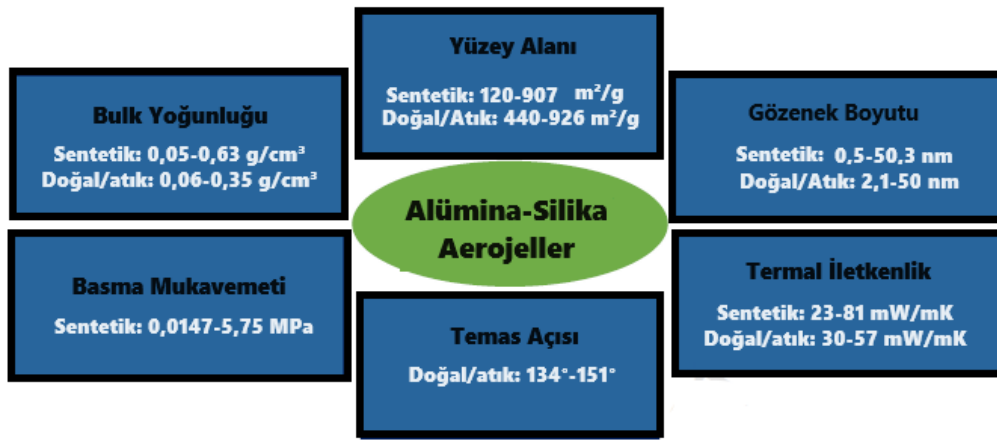
Saf silika arojeller, farklı şekillerde (toz/boncuklar veya monolitler gibi) üretilip kullanılabilen olup; günümüzde bazı şirketler halihazırda bu ürünleri farklı uygulamalar için tedarik etmektedir. Bu malzemeler binaların yalıtımında ve Çerenkov dedektörlerinde, Mars keşif gezicilerinde ısı yalıtımı olarak ve NASA'nın Stardust görevlerinde parçacık toplayıcı olarak kullanılmıştır. Daha yakın bir zamanda Dell, 2018'de gelişmiş termal performans için silika arojel kullanan bir dizüstü bilgisayarını piyasaya sürmüştür. Daha iddialı uygulamalarda kullanılmasını engelleyen nedenlerden biri mekanik dayanımlarının zayıf olması ve yüksek sıcaklık koşullarında gözlemlenen yoğunlaşmaların yalıtım performanslarını düşürmesidir. Saf gözenekli silika arojeler daha yüksek termal ve boyutsal kararlılığa sahip bir refrakter

fazın eklenmesi, oluşturulan kompozitlerin termal stabilitesini arttırabilmektedir [4, 5, 14].

Genel olarak aerojel kompozitlerin sentezi, farklı sol çözeltilerinin ayrı ayrı hazırlandığı iki aşamalı bir asit/baz sol-jel işlemiyle gerçekleştirilir; etanol genellikle kullanılan çözücü olup HCl, NaOH ve NH₄OH en yaygın asit ve baz katalizörlerdir. Alümina-silika aerojel kompozit üretimindeki ayrı sol çözeltilerinin hazırlanması, özellikle alüminyum alkoksitlerin, daha düşük elektronegatiflik ve daha yüksek Lewis asitliği nedeniyle suda alkoksisilanlara göre çok daha reaktif olması sebebiyle daha verimli olacağı vurgulanmıştır. Suyla daha yüksek reaktiviteleri hidrolizlerini daha hızlı bir hale getirir ve bu da, alüminanın hidrolize silika öncüllerine bağlanmadan önce çökmesine yol açabilir ve muhtemelen fazların ayrılması meydana gelir. Ayrıca alüminyum alkoksitler, hidroliz ve yoğunlaşma hızlarını kontrol etmek ve sentez sırasında çökelmeyi engellemek için karmaşık solvent karışımları veya etilasetoasetat veya asetilaseton gibi kenetleme (bağların güçlenmesi) maddelerinin eklenmesini de gerektirebilir. Çalışmalarda çoğunlukla silika öncülü olarak silika alkoksitleri, alümina öncülleri olarak metal tuzları tercih edilmektedir çünkü alüminyum alkoksitleri maliyetli ve zaman alıcı olabilmektedir. Alümina-silika aerojellerin üretiminde kullanılan en baskın kurutma yöntemi, yüksek sıcaklıkta etanol ile süperkritik kurutma olup; bunun yanında, metanol veya aseton ile süperkritik kurutma ve ortam basıncında (atmosferik şartlarda) kurutma gibi başka kurutma prosedürleri de kullanılmaktadır [5, 14, 44].

Alümina-silika aerojellerin üretimi, iki farklı sol-jel sisteminin farklı reaktivitesinden ve aynı zamanda başlangıç malzemelerinin yüksek maliyetinden dolayı sınırlandırılmıştır. Bu aerojellerin maliyetini düşürmek amacıyla literatürde doğal hammaddelere dayalı (örn. alümina ve silika içeren mineraller ve killer) alümina-silika aerojellerin üretimini gerçekleştiren çalışmalar bulunmaktadır. Bu nedenle, alümina-silika bazlı aerojellerin hazırlanmasında sentetik öncüllere bir alternatif olarak endüstriyel atık veya doğal hammadde bileşikleri kullanılarak yapılacak çalışmalar hem bu endüstrilerin üretim maliyetlerinin, çevre kirliliğinin ve hem de aerojel maliyetinin azaltılmasının sağlanması açısından arttırılmalıdır. Örneğin kömür gangi, kömür madenciliği sürecinde üretilen başlıca katı atıklardan biri olup; Çin'de orijinal kömür üretiminin %10-20'sini oluşturmaktadır. Uçucu kül ise fabrikalar ve termik santrallerden çıkan, esas olarak silika ve alümina içeren bir tür katı atıktır. Dünyada

her yıl yaklaşık olarak 800 milyon ton uçucu kül üretilmektedir. Bu hammaddelerden elde edilen aerogeller, sentetik kaynaklar kullanılarak elde edilenlere yakın özellikler sergilemiş, bu da doğal hammadde veya atık kullanımının aerogel üretimi için büyük bir potansiyel oluşturacağını göstermektedir. Bu bileşikleri kullanmanın tek dezavantajının, safsızlıkların giderilmesi ve hidrolize edilmiş türlerin elde edilmesi için gerekli olan doğal malzeme veya atıkların ön arıtılması gibi ekstra bir aşamaya ihtiyaç duyulması olduğu tespit edilmiştir. Ancak bu kaynakların bolluğu ve endüstriyel atıkların büyük miktarda üretilmesi, üretimi karlı hale getirebilmektedir [5].



Şekil 2.5. Sentetik ve doğal/atık kaynaklar kullanılarak üretilen alümina-silika aerogel kompozit özelliklerinin değer aralıkları [5, 44-51].

Şekil 2.5'te görüldüğü üzere, alümina-silika aerogel kompozitlerin her iki öncül kaynak için de çok yüksek bir yüzey alanına (sentetik öncüllerde 907 m²/g'a doğal/atık öncüllerde 926 m²/g'a kadar) sahip olduğu görülmektedir. Doğal/atık kaynaklardan elde edilen aerogellerin yoğunluğu ($\leq 0,35$ g/cm³), sentetik öncüller için verilen değerden ($\leq 0,63$ g/cm³) daha düşük olduğu görülmektedir, ancak özellikle atıklar tarafında az çalışma bulunmaktadır ve geliştirilmelidir. Doğal/atık öncüllerle hazırlanan alümina-silika aerogel kompozitlerin en düşük gözenek boyutu $\sim 2,1$ nm [44], sentetik kaynaklar için 0,5 nm [45] iken, her iki durumda da 50 nm kadar büyük boyutlu olabildiğinden, çoğunlukla mezogözenekli oldukları söylenebilir. Temas açısı testleri, yüzey modifikasyonundan sonra aerogellerin hidrofobikliğini ortaya çıkarmıştır. Sentetik öncüllere sahip aerogellerin ısı iletkenlik değerleri ise 23 mW/mK [46], doğal/atık kaynaklardan elde edilenler için ise 30 mW/mK [47] kadar düşüktür.

Alümina-silika aerojellerin hazırlanması için silika öncülleri olarak tetrometoksisilan (TMOS) veya tetraetoksisilan (TEOS), alümina öncülleri olarak da böhmit (γ -AlO(OH)), müllit ($Al_6Si_2O_{13}$), alüminyum oksit (Al_2O_3) ve alüminyum trisekbütoksit gibi farklı alümina içeren bileşikler eklenmektedir. Silika öncülü olarak TMOS kullanıldığı çalışmalarda alümina öncülü olarak alüminyum trisek-bütoksit (ATSB, $Al[OCH(CH_3)C_2H_5]_3$) kullanılmış olup; TEOS kullanılması durumunda ise böhmit, ATSB, alüminyum izopropoksit (AIP, $Al[OCH(CH_3)_2]_3$), alüminyum nitrat ($Al(NO_3)_3$) ve alüminyum klorür ($AlCl_3$) kullanılmaktadır. Eski çalışmalarda genellikle TMOS kullanılmaktayken, son dönemdeki çalışmalarda yalnızca TEOS kullanılmaktadır. Bunun nedeni TMOS'un TEOS'a kıyasla daha yüksek maliyeti, aşındırıcı ve toksik özelliklerinden kaynaklanmaktadır. PHMS (polihidrometilsiloksan) polimeri de bir kez alümina-silika nano lifli aerjel üretmek için kullanılmıştır [48].

TMOS içeren tüm alümina-silika sistemlerinde, daha düşük alüminyum konsantrasyonları için daha düşük bir gözenek boyutu elde edilmiştir. TMOS-ATSB bazlı aerjeller için daha büyük gözenek boyutu değerleri elde edilmiş ve alüminyum içeriğinin artmasıyla yarıçapları 11,4 nm'den 36,4 nm'ye çıkmıştır. Yüksek sıcaklığa maruz bırakıldığında tüm numunelerde gözenek boyutunda bir azalma meydana gelmiştir. TEOS-böhmit kompozitleri için, Al içeriğindeki artışla birlikte gözenek boyutu azalmış ve aynı durum, TEOS-AIP nanokompozitlerinde Al'in mol olarak %2-20 arasında değişmesi durumunda da doğrulanmıştır. He ve arkadaşları tarafından alüminyum içeriği değişimiyle gözenek boyutunda doğrusal olmayan bir artış rapor edilmiştir. TEOS- $Al(NO_3)_3$ aerjelleri [49] için 600 °C'de kalsine edildikten sonra; en yüksek değer %30 mol Al'de (6,7 nm) elde edilmiştir. TEOS- $AlCl_3$ kompozit malzeme için 600 °C'deki ısıtma işlemi gözenek boyutu dağılımını değiştirmezken, kuvars elyaf takviyeli alümina-silika aerjel için 1100 °C'de ısıtma sonrasında gözenek çaplarında bir azalma gözlenmiştir. Gözenek hacmine ilişkin olarak sıcaklık artışıyla birlikte genellikle azalma gözlenmektedir. TEOS-böhmit ve TEOS-AIP aerjel kompozitleri için Al içeriğinin artmasıyla gözenek hacmi azalırken; TEOS-ATSB esaslı aerjelde bir artış gözlenmiş ve TMOS-ATSB türevi aerjel için gözenek hacmi neredeyse alüminyum içeriğinden bağımsız olduğu belirlenmiştir [49].

Kullanılan alümina öncüsünden bağımsız olarak hem TEOS hem de TMOS'tan üretilen alümina-silika aerjeller için yapılan çalışmalarda, yüzey alanı alüminyum

içeriğine bağlı olup; genellikle daha düşük miktarda alümina öncüsü kullanıldığında, kütle yoğunluğu sonuçlarıyla uyumlu olarak daha yüksek yüzey alanı değerleri elde edilmiştir. En yüksek yüzey alanı değeri olan 907 m²/g, %0,01 mol Al₂O₃ içeren TMOS-böhmit aerogel için elde edilmiş olup [50], 1:1 mol oranında TEOS-ATSB kullanılarak hazırlanan aerogel kompozit için çok daha az bir yüzey alanı değeri (120 m²/g) elde edilmiştir [51].

Saf alümina aerojellerin yüzey alanları genel olarak saf silika aerojellerden daha düşüktür ve kütle yoğunlukları daha yüksektir. Ancak alümina aerojeller, saf silika aerojellerle karşılaştırıldığında yüksek sıcaklıkta daha iyi termal stabilite sergilemektedir. Dolayısıyla iki oksit fazının karıştırılmasıyla fiziksel ve termal özelliklerinde elde edilebilecek gelişmelerden dolayı farklı uygulamalarda kullanılmak üzere, alümina-silika aerojeller farklı oranlarda başlangıç maddeleriyle tasarlanabilir. Yang ve ark. ile Peng ve ark. [51, 52] Al:Si molar oranları 2-8 aralığında hazırlanmış hibrit aerojellerin yüzey alanı değerlerinin, saf alümina aerojellerle karşılaştırıldığında çok fazla değişmediğini göstermişlerdir. Bununla birlikte, yüksek sıcaklıklara (1200 °C'ye kadar) maruz bırakıldığında, hem kompozit hem de saf aerojellerin yüzey alanında bir azalma olmasına rağmen, kompozit aerojeller, özellikle Al:Si 3 ve 4 olanların, iki kat daha yüksek yüzey alanına sahip oldukları görülmüştür. Aerogel kompozitlerin kütle yoğunluğu değerleri saf alümina aerogel veya saf silika aerogel ile karşılaştırıldığında daha yüksek olsa da silika matris üzerinde az miktarda alüminanın bulunması bu değerlerin artmasına sebep olmuş ve alümina ilave edildiğinde, Al:Si molar oranının artmasıyla yığın yoğunluğu değerlerinde azalma gözlenmiştir. Ayrıca silika aerojellerin yüksek sıcaklıkta kütle yoğunluğunun artması, kompozit aerojellerle büyük ölçüde azaltılmıştır.

Alümina-silika aerojellerin termal iletkenliği, saf alümina aerojellerinkiyle karşılaştırılabilir düzeydeyken, alüminanın silika aerojellere eklenmesiyle bu değerde bir azalma gözlenmiştir. Dolayısıyla, hibrit alümina-silika aerojellerin, saf silika veya saf alümina aerojellerle karşılaştırıldığında gelişmiş veya farklı özellikler gösterdiği ve bu özelliklerin, malzeme bileşimindeki Al'in Si'ye oranı değiştirilerek ayarlanabileceğini doğrulanmıştır.

Endüstriyel atıklar söz konusu olduğunda bunların kullanımı şu anda oldukça sınırlıdır. Bu dezavantajlara rağmen, aerojellerin üretimiyle ilişkili çevresel etki, sentetik olanlar yerine bu hammaddelerin kullanılmasıyla hafifletilebilir. Pinto ve ark.

[53] tarafından gerçekleştirilen silika aerojel üretiminde, atmosferik şartlarda elde edilen aerojellerin, süperkritik olarak hazırlanan aerojellere göre genellikle daha düşük çevresel etkilere yol açtığı ve doğal/atık kaynakları ile sunulan çalışmalar, atmosferik basınçta kurutmanın nihai malzemelerin özelliklerini bozmadan kullanılabilceğini doğruladığı da bulunmuştur. Tablo 2.3'te literatürdeki saf alümina, silika ve alümina-silika kompozit aerojellerin çeşitli özelliklerinin karşılaştırması verilmiştir.

Tablo 2.3. Alümina, silika ve alümina-silika kompozit aerojellerin özelliklerinin kıyaslaması [3, 5, 20, 24, 44, 46, 50, 51, 54-60].

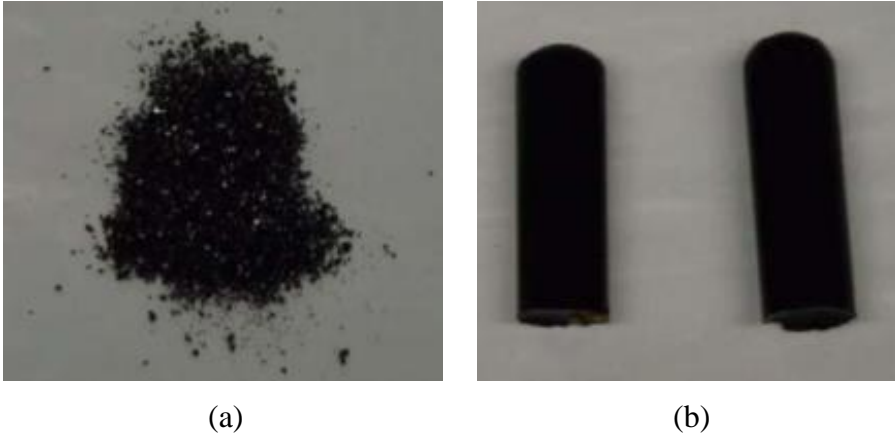
Aerojeller			
Özellik	Alümina	Silika	Alümina-Silika
Yoğunluk (g/cm ³)	0,035-0,4 [5]	0,03-0,5 [5]	Sentetik öncüller: 0,05-0,63 [5] Doğal öncüller: 0,06-0,348 [3, 54]
Yüzey Alanı (m ² /g)	350-700 [5]	500-1200 [5]	Sentetik öncüller: 3-907 [50, 51] Doğal öncüller: 136-930 [47, 55]
Gözenek Boyutu (nm)	2-50 [5]	2-50 [5]	Sentetik öncüller: 2,1-50 [5, 56] Doğal öncüller: 2,2-50 [4, 44]
Gözenek Hacmi (cm ³ /g)	1-5	1-5	Sentetik öncüller: 0,2-8,81 [46, 57] Doğal öncüller: 0,1-2,70 [3]
Isıl İletkenlik (W/mK)	0,015-0,098 [5, 20]	0,012-0,020 [5]	Sentetik öncüller: 0,023-0,081 [46, 57] Doğal öncüller: 0,025-0,074 [3]
Yüzey Açısı	69-115° [24, 58]	~152° [3]	Sentetik öncüller: >140° [59] Doğal öncüller: 134-151° [60]

2.2.4. Karbon aerojeller

Karbon aerojeller, düşük yoğunluklu (0,1 g/cm³ civarında), yüksek yüzey alanı (~300-3000 m²/g) ve kontrol edilebilir bir gözenek yapısına sahip olup; katı hal, yaprak veya toz formlarında üretilebilmektedirler. Organik aerojellerin pirolizi yöntemi ile elde edilirler. Resorsinol formaldehit (RF) aerojeller genellikle karbon aerojel üretiminde başlangıç maddesi olarak tercih edilmektedirler. Üretim koşullarına göre fiziksel özellikleri değişebilen karbon aerojeller, yüksek elektrik iletkenliği de gösterebilmektedirler. Karbon aerojeller farklı fiziksel özelliklerde ve fiziksel formlarda (karbon kağıtların karbon aerojellere emdirilmesiyle oluşan karbon aerojel kompozit kağıtları gibi) üretilebilmektedirler. Oldukça mukavemetli bir yapıya sahip olan karbon aerojeller kızılötesi spektrumda siyah olmaları sebebiyle solar enerji depolayıcı olarak kullanılabilirler. Enerjiyi absorbe edebilme yetenekleri sayesinde güvenlik alanında da önemli bir yere sahiptirler. Ses yalıtımında ve cam malzemelerle birlikte

kullanımları da mümkündür [7, 14]. Karbon aerojellerin çevre dostu oluşu, tercih edilmelerinde önemli bir etken olup; atık su arıtımında, bazı organik kirleticilerin uzaklaştırılmasında ve iyon giderme teknolojisinde de oldukça verimlidirler [61].

Karbon aerojeller, üç boyutlu simetrik ve asimetrik ağ yapısında, yüksek ve kontrol edilebilir gözenek yapısına sahip, kovalent bağlı ve nanometre boyutundaki malzemelerdir. Karbon aerojeller zehirsiz, inert, çevre dostu bir yapıda ve nano gözenek yapısını optimize edebilmek kolay olduğu için özellikle son yıllarda araştırmacıların daha verimli üretim sağlayabilmek adına yoğun olarak araştırdığı bir konu olmuştur [61]. Karbon aerojeller, üç aşamalı olan sol-jel yöntemiyle poliüretan, poliüre, resorsinol-formaldehit (RF), fenol-furfural veya melamin-formaldehitten üretilmektedir. RF metodu karbon aerojel üretimi için tercih edilen basit bir yol olup; partikül boyutu, pH, sıcaklık, reaksiyon zamanı ve derişim gibi hazırlama şartları kolayca kontrol edilebilmektedir [32]. Karbon aerojeller Şekil 2.6'daki gibi farklı şekillerde olmaktadır. Monolitik karbon aerojel yapısı (sürekli olan) yüksek yüzey alanı ve elektriksel iletkenlik sağlamakta ve bu formda olan karbon aerojellerin fiziksel özellikleri ve mikro yapıları büyük oranda kontrol edilebilmektedir. Çok yüksek yüzeyli karbon aerojel tozları sol-jel üretim metoduna bağlı olup aktivasyon işlemine bağlı değildir [62].



Şekil 2.6. Sol-jel yöntemiyle sentezlenmiş farklı formlardaki karbon aerojeller a. aerjel tozu, b. silindirik monolit [7].

Gözenekli karbonlarla ilgili yüksek yüzey alanı, gelişmiş ve ayarlanabilir gözenek yapısı ve iletken karbon çerçevesi gibi önemli özelliklerinden dolayı birçok kapsamlı araştırma yürütülmekte olup; yenilenebilir enerji, adsorpsiyon, ilaç, kataliz ve çevresel temizlik de dahil olmak üzere birçok alanda kullanım alanı mevcuttur [63].

Karbon aerogeller, kovalent bağı ve nanometre boyutunda malzemeler olup ağ yapıları üç boyutlu simetrik ve asimetrik olabilmektedir. Kontrol edilebilir gözenekliliği sayesinde değişik formlarda (toz, katı hal vb.) üretilebilmektedirler. Karbon aerogellerin inert, çevre dostu ve zehirsiz oluşunun yanında gözenek yapı kontrolleri de basit olduğundan dolayı son zamanlarda araştırma konusu haline gelmiştir. RF aerogeller genellikle karbon aerogel üretiminde en sık kullanılan türü olup; poliüre, fenol formaldehit gibi kimyasallarla üretilebilmektedir. Bu proseste, pH, tepkime zamanı, sıcaklık ve derişim kontrol edilebilmektedir. Yüksek absorblama özelliklerinden dolayı reaktif boya atık işlemede ve çevre dostu oldukları için organik kirleticilerin uzaklaştırılarak atık suların arındırılması, iyon giderme ve çeşitli yalıtım alanlarında kullanılmaktadır [14, 24, 32].

Organik aerogeller, kovalent bağı, 3 boyutlu, yüksek spesifik yüzey alanı ve kontrol edilebilir poroziteli bir yapıya ve düşük dielektrik katsayısı gibi özelliklere sahiptir. Organik aerogellerin yapıları içerisindeki porozite miktarını kontrol altında tutabilme durumu onlara çeşitli alanlarda farklı şekillerde sentezlenebilme imkanı da vermektedir [61]. Organik aerogeller içerilerindeki bileşenlerden dolayı herhangi bir çevresel soruna ve kirliliğe sebep vermemekte olup; çevre kirliliğinin azaltılması çalışmalarında, uzay sanayisinde, günlük kullanılan beyaz eşyalarda yalıtım malzemesi olarak çeşitli kullanım alanlarına sahiptirler. Ayrıca organik aerogeller kinetik enerjiyi absorbe etme özelliklerinden dolayı gelecek çalışmalar için umut vericidirler.

Tüm farklı aerogel türleri içinde, karbon aerogelleri mezogözenekli yapılarını yüksek sıcaklıklarda koruyabilirler, bu nedenle 2000 °C'nin üzerindeki inert atmosfer altında en mükemmel termal stabiliteye sahiptirler. Bununla birlikte, karbon aerogeller için oksidasyon, 400 °C'nin üzerindeki sıcaklıklarda oksitleyici atmosfer altında kolayca gerçekleşir, bu nedenle uygulamaları bazen sınırlı olabilir. Bu sorunun en geleneksel çözümü, karbon bazlı malzemelerin yüzeyine yüksek emisyonlu bir kaplama eklemek olsa da bu durum, aerogellerin mezogözenekli yapılarına zarar verebilmektedir. Bu nedenle, bazı araştırmacılar, karbon aerogelin oksidasyon direncini iyileştirmek için karbon bazlı kompozit aerogel üretmeye odaklanmıştır. Yapılan bir çalışmada karbonlu SiC/müllitin oksidasyon direnci, karbon bazlı aerogel ile karşılaştırıldığında 85 °C'de iyileştirilmiştir. Matris içindeki bir miktar amorf silika, SiO₂'nin oksidasyon atmosferi altında termal kararlı olduğu düşünüldüğünde, karbon aerogelin oksidasyon direncini

daha da artırılabilir [2]. Bu nedenle, Mohamad ve ark. novolak/silika hibrit hiper gözenekli malzemeye dayalı yeni bir C/SiO₂/SiC üçlü aerojel geliştirmiştir [64].

2.2.5. Diğer arojeller

Karbon, silika ve alümina arojeller haricinde nanotüp, yarı iletken metal ve polimer arojeller diğer aerojel çeşitlerinden sayılmaktadır. Bunların yanında, bakır katkılı metal arojeller 2002 yılında üretilmiş olup; saydamlık, geçirgenlik ve fotoluminesans özelliklerinin vermiş olduğu avantajlar sayesinde benzersiz bir yapıya sahip olmuştur. Elastik duman olarak isimlendirilen madde, aerojel ve nanotüp bir araya gelmesiyle bir yapı oluştursa da nihai ürünün mezo gözenekli ve tek parça olmaması sebebiyle aerojel olarak tanımlanamamıştır [12].

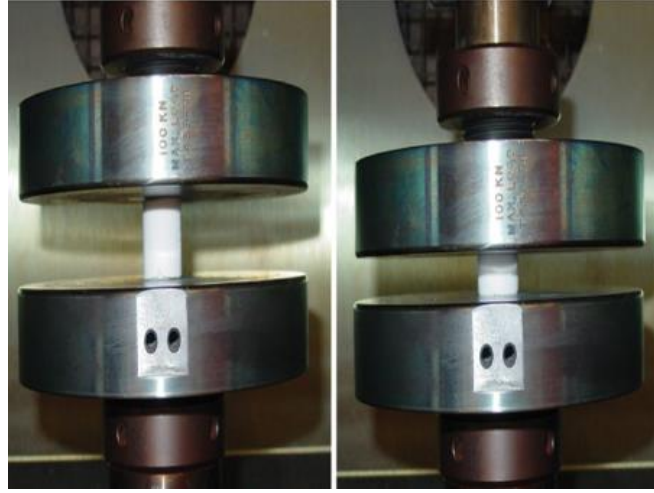
Arojeller kullanılan başlangıç malzemesine ve üretim parametreleriyle ilişkili olarak farklı üstün özellikler gösterdiklerinden farklı malzemelerden elde edilebilmektedirler. Selüloz, jelatin, tungstik gibi malzemelerden, organik veya biyolojik polimerlerden, metallere, aktinit veya lantinit metal oksitlerden de aerojel sentezlenebilmektedir [7, 14]. Bakır esaslı metal arojellerin optik saydamlık ve ışık geçirgenliği açısından eşsiz bir yapıya sahip oldukları söylenebilmektedir. Yapılan çalışmalar 0,16 mg/cm³ yoğunluğuna sahip grafen arojelin en hafif katı olmasının yanında oldukça önemli bir adsorbant olduğunu da göstermektedir. 1 gram grafen arojeli saniyede 68,8 gram petrol adsorplayabilmekte ve bu sayede deniz kirliliğini önlemede önemli rol oynayabilme potansiyelindedir [14, 22].

Organik, inorganik ve alümina haricindeki aerojel çeşitleri: bora-silikat, zirkonya karbonize, formaldehit, kalkojenit, gradient arojellerdir ve hala farklı türde aerojel sentezlenmeye devam edilmektedir. Çok iyi özelliklere sahip X-ajrojeller, NASA tarafından sentezlenmiş ve bu arojeller elastik, düşük yoğunluklu ve iyi mekanik özelliklere sahip olmaları sebebiyle ısı yalıtıcıları ve roket sanayisinde kullanım alanı bulmaktadır [65].

X-ajrojellerin avantajları [66]:

1. Hali hazırda üretimi yapılmakta olan normal arojellerden daha güçlüdür.
2. Çok yüksek sıcaklıklarda dayanımları yüksek olup, termal yalıtkanlık özelliğine sahiptirler.
3. Optik saydamlık özellikleri vardır.

4. Elastiklik özellikleri yüksek olup uygulanan kuvvetlere karşı yapılarında şekil bozukluğuna izin vermemektedirler. Şekil 2.7’de verilen X-aerojelin mekanik dayanımını gösteren basma testi görüntüsünde malzemenin herhangi bir deformasyona uğramadığı görülmüştür [66].



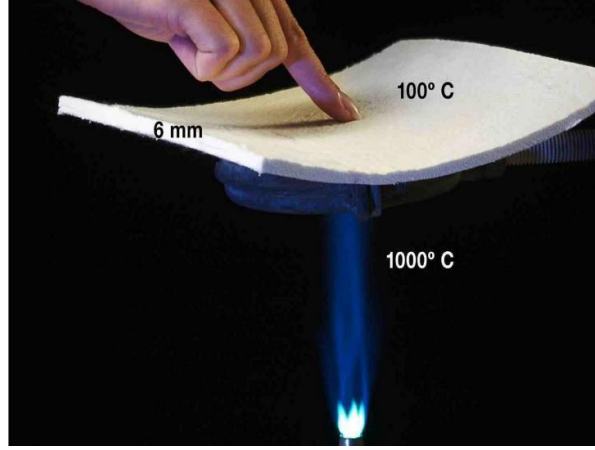
Şekil 2.7. X-aerojelin basma testi görüntüsü [66].

2.3. Alümina-Silika Aerojellerin Kullanım Alanları

Aerojellerin sahip oldukları düşük yoğunluk, hafiflik, gözenekli yapı, yüksek yüzey alanı ve yalıtım özellikleri sayesinde ısı ve ses yalıtımı, kimyasal emilim (örn. adsorban), güç depolama, katalizör, sensör malzemesi, uzay ve havacılık, mimari, hava ve sıvı filtrasyonu, katı hal depolama ve inşaat uygulamaları gibi çeşitli uygulama alanlarında potansiyel madde olarak kullanılabilirler [7, 34].

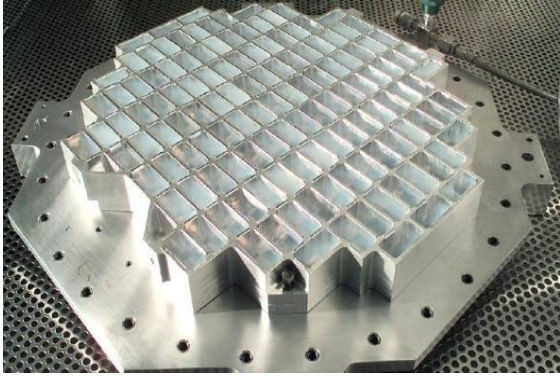
2.3.1. Yalıtım malzemesi

Aerojellerin yapılarında yüksek oranda porozite olduğundan ısı ve elektrik iletiminde yalıtkan malzeme olarak kullanılabilirler olup; yalıtkanlık özellikleri, geliştirilmiş en iyi fiber-cam kompozit malzemesinden 40 kat daha iyidir. Bu sayede ısı transferi mevcut durumdan en aza indirilebilmektedir. Aerojellerin poroziteli yapısından dolayı, günümüzde ısı kaybının önüne geçilmesi için akıllı binaların cephe kaplama işleminde yalıtım malzemesi olarak ve yüksek sıcaklıklara karşı dayanıklı oluşundan yanmaz koruyucu ürünlerde ve yangın malzemelerinde de kullanılmaktadır. Şekil 2.8’de aerojelin yalıtım malzemesi olarak kullanımını görülmektedir.



Şekil 2.8. Aerojelin yalıtım malzemesi olarak kullanımı [67].

Aerojeller pek çok alanda verimi arttırarak faydalı olmalarına rağmen yüksek maliyetleri nedeniyle geniş kullanım alanı bulamamış olup; maliyetlerinin azaltılması halinde çeşitli alanlarda kullanılabileceklerdir. Şekil 2.9’da aerojellerin Stardust uydusu ve bina camındaki kullanımları gösterilmiştir.



(a)



(b)

Şekil 2.9. Aerojellerin a. Stardust uydusunda, b. Bina camında kullanılması [68, 69].

Aerojellerin en önemli özellikleri ve uygulama alanları Tablo 2.4’te verilmiştir.

Aerojeller üstün özellikleri sayesinde tarihi dış cephelerde ve birçok yerde yaygın kullanım alanı bulmaktadır. Şekil 2.10’da da görüldüğü üzere, aerojel granüllerinden elde edilen granül esaslı sıvanın cephe yapımında çeşitli avantajı olup bunlar; buldukları çevreye ve iklime uygun tasarıma sahip olma, termal, görsel ve akustik konfor koşullarını sağlayabilme, enerji korunumu ve ısı yalıtımıdır [70, 71].

Tablo 2.4. Aerojellerin özellikleri ve kullanım alanları [13, 27, 70].

Ana Özellik	Aerojel Özelliği	Uygulama Alanı
Yoğunluk/Gözeneklilik	-Düşük yoğunluk -Yüksek gözeneklilik	-Sensör -Katalizör
Yüzey Alanı	-Geniş yüzey alanı	-Adsorban madde -İyon değiştirici -Isı yalıtım ve izolasyon
Termal İletkenlik	-Düşük termal iletkenlik -Düşük yalıtım katsayısı -Düşük sıcaklık dayanımı	-Depolama ortamı -İnşaat sektörü termal yalıtımı -Uzay ve hava araçları -İlaç salınım sistemleri
Kırılma İndeksi	-Düşük ve yüksek kırılma indeksi	-Cherenkov dedektörleri -Çift cam yapıları
Mekanik	-Elastiklik	-Aşırı hızlı parçacık tuzaklayıcı -Enerji absorbe edici
Akustik	-Düşük ses geçirgenliği	-Ses geçirmez odalar -Akustik empedans eşleştirici
Elektrik	-Düşük dielektrik sabiti	-Kapasitörler ve entegre devreler -Yüksek voltaj izolasyonu



Şekil 2.10. Granüler aerojel bazlı sıvanın cephelerde kullanımı [72].

Çeşitli üstün özelliklere sahip aerojellerin mimari yapılar ve binalarda kullanımı üç şekilde sağlanmaktadır.

1. Bina dış cephelerinde ışığı geçiren katkı malzemesi olarak (pencere gibi yapı malzemelerinde),

2. Dış cephe mantolamada sık kullanılmakta olan yapı malzemelerinin yerine fiber takviyeli aerojel olarak,
3. Yalıtım malzemesi olarak vakumlu panellere yerleştirilerek kullanılmasıdır.

2.3.2. Katalizörler

Yüksek sıcaklıktaki katalizör destekleri, heterojen katalize dayanan birçok işlem için kullanılmaktadır. Alümina, geniş yüzey alanı, termal stabilitesi ve inertliği nedeniyle katalizör destekleri için en yaygın kullanılan malzemedir. Bununla birlikte, 1150 °C'de ısıtıldıktan sonra yüzey alanı önemli ölçüde azalır ve bu noktada θ fazından α fazına faz dönüşümü meydana gelir. Yüksek sıcaklıklarda bile geniş bir yüzey alanını korumak için faz dönüşümünden kaçınılması gerekmektedir. Si gibi diğer elementlerin eklenmesinin faz dönüşümünü etkili şekilde önlemiş olduğu rapor edilmiştir [73]. Alümina tozlarının kütle yoğunluğunun azaltılması aynı zamanda malzemenin termal stabilitesini de arttırmaktadır [74]. Bu nedenlerden dolayı alümina-silika esaslı aerogeller, katalizör destekleri üretmek için iyi bir alternatiftir. Horiuchi ve ark. [75], katalizör destekleri için TEOS ve böhmitten türetilmiş, silika ile modifiye edilmiş bir alümina aerojel üretmişlerdir. Yüksek sıcaklıklarda yapıyı yüksek yüzey alanında tutabilmek katalizörün çok önemli bir özelliğidir. Mizushima ve Hori [76], yüksek katalitik aktiviteye sahip, TEOS ve alümina sek-bütoksit öncüllerine dayalı, paladyum destekli alümina-silika aerogelden oluşan bir katalizör geliştirdiler. Ayrıca yüksek sıcaklıkta süperkritik kurutma ile kurutulan aerogellerin, CO₂ kurutma yöntemiyle hazırlananlara göre daha fazla aktivite sergilediğini kanıtlamışlardır. Bu, paladyum parçacıklarının daha büyük gözenek boyutu dağılımına dayandırılmıştır.

Wijaya ve ark. [77], Diels-Alder siklo ilavesi ve ardından 2,5-dimetilen ve etilenin dehidrasyonu yoluyla p-ksilen üretimi için alümina-silika aerojel katalizörleri geliştirdiler. Bu katalizörlerin en iyisi Si/Al'in molar oranı 1 olan örnek için elde edilmiştir ve reaksiyon dönüşümü %50-60 olmuştur. Bu örnek katalizörün yüksek aktivitesi, yüksek yüzey alanına, büyük mezo-gözenekli hacmine ve yüksek asit bölgesi konsantrasyonlarına (referans katalizörlere benzer) atfedilebilir. Asidik katalizörler çoğunlukla polimerlerin bozunma çalışmalarında kullanılır ve en yaygın katalizörler amorf alüminosilikatlar, zeolitler ve diğer mezogözenekli yapılardır [78]. Sivrie ve ark. [79] polilaktik asitin (PLA) termal bozunmasında kullanılmak üzere alüminyum katkılı silika aerojel bazlı bir katalizör geliştirdiler ve alüminyum katkısını

ağırlıkça %2,5'ten %15'e arttırdıklarında PLA bozunma reaksiyonunun aktivasyon enerjisinde 262 kJ/mol'den 190 kJ/mol'e bir azalma gözlemişlerdir.

2.3.3. Termal koruma sistemleri

Termal koruma sistemleri, bir gövdeyi veya bölmeyi olumsuz sıcaklık koşullarından korumak için geliştirilir ve kullanılır. Metaller termal iletkenlik katsayısı (k) genellikle yüzlerce W/mK değeriyle en iyi termal iletkenlerdir. Polimerler ve organik malzemeler gibi diğer malzemelerin termal iletkenlik değerleri W/mK'nin onda biri değerlerine sahipken, cam, kum ve mineraller gibi malzemeler 10 W/mK'den küçüktür [80]. Isı yalıtım malzemelerinin k değerleri tipik olarak 0,1 W/mK'nin altındadır ve poliüretan köpükler veya fenolik reçineler gibi yüksek performanslı izolatörler, süper yalıtım malzemeleri için üst sınır 0,020 W/mK'e yakındır [81]. Isı yalıtım malzemeleri, iyi ısı yalıtım özelliklerine sahip bir silika aerojel ve seramik fiber malzemedir veya bir opaklaştırıcıdan oluşabilmektedir [5]. Bu karışımlara alümina parçacıkları veya alümina lifleri formunda alümina takviye edilebilir [5]. Ortaya çıkan malzemelerin yüksek sıcaklıklarda sinterlenme ve büzülme eğilimi azalmaktadır [82]. Wang ve arkadaşları tarafından yapılmış bir çalışmada, yüksek sıcaklıkta ısı yalıtımı amacıyla alümina takviyeli silika aerojel üretilmiş olup; silika aerojel matrisine alümina-silika seramik elyaflar (Al_3O_2 : %43-45; SiO_2 : %49-52; Fe_2O_3 : %0,5-0,8) ve TiO_2 parçacıkları (%30 TiO_2 + ağırlıkça %3 seramik elyaflar) dahil edilmesi sonucu malzemenin 800 K'de 38 mW/mK'lik bir termal iletkenliğe ulaştığı görülmüştür. Geleneksel bir yalıtım malzemesi 100 mW/mK civarındayken bu değer oldukça düşüktür [83].

Ağır sanayi, bina inşaatı, uzay ve havacılık endüstrisi gibi zorlu uygulamalar ve çeşitli amaçlar için yüksek performanslı termal koruma sistemlerine ihtiyaç duyulmaktadır [5]. Uzay uygulamalarında kullanılan malzemeler aşırı sıcaklık koşullarına (-250-2000 °C arasında) maruz kalabilir. Bu uygulamalar arasında, kriyojenik sıvı kapları, parçacık toplayıcılar, geziciler ve yeniden giriş araçlarının korunması gibi yeni malzemelerin uygulamaları için yüksek performanslı hafif yalıtım malzemelerine ihtiyaç vardır [5]. Mevcut malzemelerin azaltılmış ağırlığa ve iyileştirilmiş yalıtım ve mekanik özelliklere duyulan ihtiyaç hâlâ bir zorluk teşkil etmektedir. Alümina-silika esaslı arojeller, uzay uygulamalarında yer alan ortamlar ve çalışma koşullarıyla uygun uyumluluğa sahip malzemeler geliştirmek için iyi bir alternatif olarak

görülmektedir. Yüksek termal performans sergileyen umut verici malzemeler arasında Liu ve ark. [84], müllit öncüsünden termal olarak kararlı müllit bazlı lifler üretmiş ve bunları nano lifli aerojeller elde etmek için başlangıç malzemeleri olarak kullanmışlardır. Bu aerojeller, ultra düşük yoğunluk ($34,64-48,89 \text{ kg/m}^3$) ve düşük termal iletkenlik katsayısı ($32,74-43,17 \text{ mW/mK}$) sergilediği görülmüş, sinterleme sıcaklığı 1400°C 'lerde olduğundan, çeşitli uzay operasyonlarında sorunsuzca kullanılma potansiyeline sahiptir [84]. Peng ve arkadaşları [85] müllit fiber takviyeli alümina-silika aerogel kompozitlerinin (MFAS'ler) sentezi için doğrudan sol-daldırma-jel ve süperkritik akışkan kurutma stratejisi geliştirilmiştir. Kütle yoğunluğu $0,4 \text{ g/cm}^3$ 'ün altında olan MFAS'ler, hava atmosferinde 1500°C 'ye maruz kaldığında bile hiçbir deformasyon ve ultra düşük boyutsal büzülme yaşamamış, iyi bir basınç dayanımı ve sağlamlık da sergilemiştir. Müllit lifleri ve alümina-silika aerogel birleşimi ile üretilen MFAS'ların oldukça düşük termal iletkenlik (1200°C 'de $0,082 \text{ W/(m}\cdot\text{K)}$) gösterdiği ve kuvars lamba ısıtma testi sırasında çok iyi ısı yalıtımı sağladığı kanıtlanmıştır. Üstün ısı direncine ve ısı yalıtım performanslarına sahip hafif, güçlü MFAS'ler, uzay araçları için termal koruma sistemi gibi yüksek sıcaklıktaki ısı yalıtımlarına yönelik acil ihtiyacı karşılayabilmektedir.

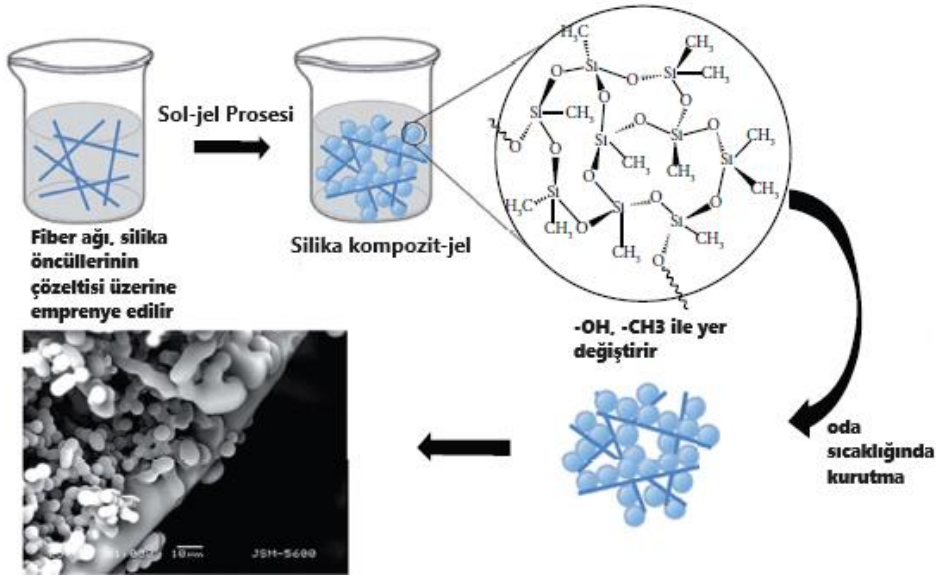
2.3.4. Adsorbanlar

Çevre iyileştirmeye yönelik kullanılan kirleticilerin adsorpsiyonu için silika aerojellerine dayanan çok sayıda malzeme halihazırda bulunmaktadır [5]. Kirleticiler arasında olan uçucu organik bileşikler ve ağır metaller en tehlikeli sınıfları temsil etmektedir. Örneğin, kurşun birikiminden kaynaklanan çevre kirliliği son yıllarda artarak halk sağlığı, canlı kaynaklar ve ekolojik sistemler için bir sorun haline gelmiştir. Medine ve ark. [86], kurşun iyonlarını sulu çözeltilerden tamamen uzaklaştırabilen, sol-jel teknolojisiyle hazırlanan gözenekli alümina-silika nanopartiküller geliştirmiş ve bu gözenekli yapılar, iç ve dış yüzeylerde, temel koşullar altında kurşun iyonlarıyla bağlantı kurulmasına olanak sağlamak üzere protonu giderilebilen hidroksil grupları içermektedir. Chatterjee ve ark. uçucu kül ve hurda alüminyum folyo kalsinasyonundan elde edilen ve $136,18 \text{ m}^2/\text{g}$ yüzey alanına sahip, farklı alümina-silika oranlarına sahip, mezogözenekli bir alümina-silika nano-sorbent geliştirmiştir. Adsorbanlar, Ni(II) adsorpsiyonu için maksimum adsorpsiyon kapasitesinin pH 7 değerinde, 318 K 'de yaklaşık 50 mg/g olduğu görülmüştür [87]. Bu nedenle, çalışmaların sonuçlarına bakıldığında, alümina-silika aerojellerin iyi bir

adsorban performansı sergilediği ve gelecek vadettiğini belirtilebilir. Gaz halindeki bileşiklerle ilgili olarak Knez ve arkadaşları [88] su buharını adsorbe etmek için silika, alümina ve alümina-silika esaslı olmak üzere hazırlamış oldukları üç farklı aerojelden en iyi kararlılık ve en yüksek adsorpsiyon kabiliyetinin alümina-silika esaslı aerojellerden elde edildiğini belirtmişlerdir. Adsorpsiyon performansı, tekrarlanan 25 adsorpsiyon/desorpsiyon döngüsü boyunca sabit kalmıştır (bir kg adsorban başına 1,0 ila 1,2 kg su buharı). Alnajjar ve ark. sulu çözeltilerden bir ilacın (metformin) giderimi için etkili bir adsorban olarak 470 m²/g yüzey alanına sahip, mikro/mezoporoz bir alümina-silika kompoziti geliştirmiştir. Adsorpsiyon testleri, yüksek metformin konsantrasyonlarının, optimum pH 9,0'da maksimum 46 mg L⁻¹ giderimle sulu çözeltilerden verimli bir şekilde uzaklaştırıldığını göstermiştir. Adsorban 673 K'de tamamen yenilenmiş ve 3 döngüden sonra %95'lik bir uzaklaştırma kapasitesini korumuştur [89]. Adsorpsiyon kapasitesi esas olarak metforminin monoprotonik formu ile alümina-silika malzemenin iç ve dış yüzeyindeki negatif yüklü Brønsted asit bölgeleri arasında meydana gelen elektrostatik etkileşimlere atfedilmiştir. Gözenekli yapıları sayesinde sulardaki atık maddelerin uzaklaştırılmasında ve denize yayılan petrolün adsorpsiyonunda kullanılırlar [5, 89].

2.4. Aerojel Sentezi ve Sol-jel Prosesi

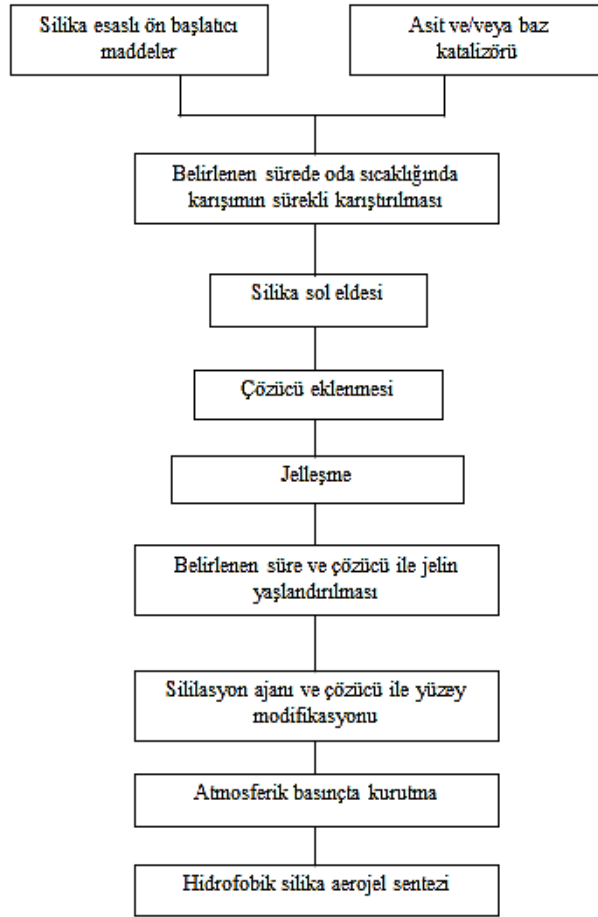
Aerojeller, metal alkoksitlerin veya inorganik tuzların hidroliz ve kondenzasyon aşamalarını kapsayan sol-jel yöntemiyle sentezlenmektedirler. Sol-jel yöntemi bir sol çözeltilenin oluşturularak jelleştirilmesi, bu jelin çeşitli ajanlar (kimyasallar) kullanılarak yaşlandırılması ve ardından jelin kurutulması ile gerçekleşir (Şekil 2.11). Sol çözeltilisi boyutları 1 nm-1 µ aralığında değişen katı partiküllerin sıvı süspansiyonu şeklinde tanımlanmaktadır. Sol partiküllerinin kondenzasyonu sonucunda iki fazlı malzeme olan “jel” oluşmaktadır. Oluşan jeller, kullanılan çözücüye göre isimlendirilmekte olup; su çözücü olarak kullanıldığında oluşan jelle akuajel, alkol kullanıldığında alkojel olarak adlandırılmaktadır. Jeller yaşlandırma işleminden sonra, yapıdaki çözücünün uzaklaştırılması için kurutulurlar. Kurutulmuş akuajellere kserojel, alkojellere ise aerojel denilmektedir [7, 8].



Şekil 2.11. Sol-jel yöntemi ile silika aerojel sentezinin şematik diyagramı [90].

Sol-jel prosesi ile malzemenin yoğunluk, sertlik, esneklik, kırılma indisi ve aşınma direci gibi fiziksel özellikleri ve organik moleküller sayesinde malzemenin gözenekliliği kontrol edilebilmektedir [91]. Sol-jel yöntemiyle üretilen kompozit malzemeler, üstün özelliklere sahip olup birçok alanda (kaplama alanında ve düşük sıcaklıkta cam seramik üretiminde vb.) kullanılabilir [7].

Hidrofilik aerogeller ortam havasına ve nemli ortamlara maruz bırakıldıklarında zaman içerisinde bozulabilmektedirler. Yapısal kararsızlık hidrofilik aerogellerin kullanımını sınırlar ve bu durum da hidrofobik aerogellerin üretimindeki araştırmaların artırılmasını gerektirir. Silika aerogellere çeşitli sililasyon ajanları ile hidrofobik özellik kazandırılabilir [91]. Şekil 2.12’de atmosferik basınçta üretilen bir hidrofobik silika aerogelin örnek bir üretim akış şeması verilmiştir.



Şekil 2.12. Hidroforik silika aerojel üretimi akış şeması [92].

Sol-jel prosesi aşağıdan yukarıya bir sentez metodu olup bu süreçte çeşitli kimyasal reaksiyonların gerçekleştirilmesiyle nihai ürünler oluşmaktadır. Bu reaksiyonlar sırasında birincil homojen moleküller (sol), jel adı verilen sonsuz üç boyutlu bir molekül haline gelmektedir.

İkili veya üçlü hibrit (kompozit) sistemlerin üretimi için farklı kimyasal bileşimlere sahip tuzların karışımı kullanılabilir. Birincil tuzların her birinin benzersiz bir reaksiyon hızı vardır ve pH, konsantrasyon, çözücü tipi ve sıcaklık gibi çeşitli faktörlere bağlıdır. Hücrenin yoğunluğundan oluşmakta olan jel üç boyutlu bir yapı olup boşlukların birleştirilmesiyle (moleküllerin birbirine yaklaşması) oluşmaktadır. Jel kuruduktan sonra hacimsel büzülme nedeniyle sert ve katı bir yapı elde edilir. Jelin kuruma koşullarını kontrol ederek nanoboyutlu gözeneklilik elde etmek mümkündür. Örneğin, nano gözenekli karbon malzemeler hidrojeni depolamak için kullanılır, böylece hidrojen karbon malzemenin gözenekliliğinde tutulur ve depolanır. Sol-jel prosesinde sol'un jele dönüşümü genellikle pH'ın değiştirilmesi veya çözeltilerin konsantrasyonunun değiştirilmesiyle yapılmaktadır [90].

2.4.1. Jelin hazırlanması

Jelin hazırlanma süreci, katı partiküllerin sıvı (çözelti) içerisinde dağıldığı sol çözeltisinin eldesi ve partiküllerin çöktürülmesi ile elde edilen gözenekli jelin oluşmasını kapsamaktadır. TEOS (tetraetil ortosilikat), MTMS (metiltrimetoksisilan), sodyum silikat, TMOS (tetrametilortosilikat), TriEOS (trietoksisilan) genellikle alümina-silika esaslı aerojel üretiminde silika öncülleri olarak yaygın olarak kullanılan başlatıcı malzemelerdir. Baz ve asit katalizörleri altında silika ve alümina başlangıç malzemelerinin hidroliz ve kondenzasyon tepkimeleri sonucunda sol jeller oluşmaktadır. Elde edilen alümina ve silikaca zengin olan sol çözeltisi yine bir katalizörün yardımıyla bir süre bekletilerek jelleşme, yani jelasyon, çözeltinin akışkanlığını kaybederek, “elastik katı” olarak tanımlanan bir hal alması ile oluşmaktadır. Yaygın kullanılan katalizörler hidroklorik asit, sodyum hidroksit, amonyum hidroksit, amonyum florür, silisik ve okzalik asittir. Dolayısıyla silika ve alümina başlangıç malzemeleri bir baz katalizörü ile önceden belirlenmiş koşullar doğrultusunda karıştırılıp, sonrasında yaklaşık nötr bir pH'a getirilerek reaksiyonun hızlandırılması ve bekletilmesi ile oluşan jel, tepkimeye girmeyen alkoksit gruplarını da içermektedir. Bu nedenle jel yaşlandırmaya aşamasına da tabi tutularak safsızlıklardan arındırılması ve omurga yapısının güçlendirilmesi gerekmektedir. Kondenzasyon ve hidroliz reaksiyonları sonrasında gözenekler çözücüyle dolu bir yapıya sahiptir ve bu karışım yapısal çökme olmadan ıslak jelden çıkartılarak aerojel oluşturulmaktadır [8, 14, 93, 94].

2.4.2. Jelin yaşlandırılması

Yaşlandırma süreci, jelin bir alkol/su karışımıyla ıslatılmasıyla bileşimde meydana gelen değişiklikleri içermektedir. Jelin hazırlanması ve jelleşme sonrası yapıda kalan kalıntıların, jel içerisindeki alkoksitlerin ve tepkimeye girmemiş grupların bu aşamada giderimi, arındırılması amaçlanır. Ortaya çıkan jelde yüzey fonksiyonel grupları arasındaki yoğunlaşma jel noktasının ötesinde de devam eder. Jel ağında gözenek sıvısı mevcut olduğu sürece jel kararsız olacak ve birçok değişikliğe uğrayacaktır. Ortaya çıkan jel için yüzey fonksiyonel grupları arasındaki yoğunlaşma (kondenzasyon) jelleşme sonrasında da devam etmekte olduğundan hazırlanan jel çözeltisi alkol/su karışımı veya saf alkol içerisinde belli bir süre bekletilir. Meydana gelen kimyasal reaksiyonlar nedeniyle yapıdaki çapraz bağlar ve dolayısıyla jelin

viskozitesi de artar ve jel, yaşlanma süreciyle omurgası (bağ yapısı) güçlenen bir yapıya sahip olur [7, 8, 14]. Kurutma aşamasındaki olası büzülme durumunu engellemek için yaşlanma süresinin kısa tutulması gereklidir [32].

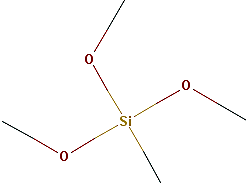
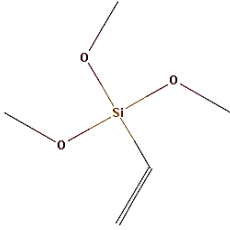
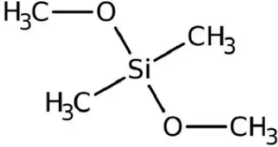
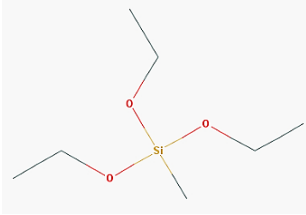
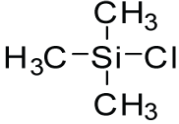
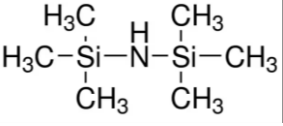
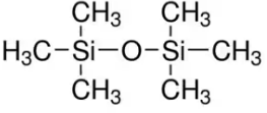
2.4.3. Jelin kurutulması

Aerojel üretiminde jelin kuruma aşaması çok önemlidir. Yaşlanma aşamasından sonra daha güçlü bir iskelet yapısına sahip olan jel, bu aşamada topaklaşma olmadan aerojel formunu alacaktır. Jelin matrisini korumak ve kuruma sırasında büzülmeyi en aza indirmek için çözeltilinin jelden uzaklaştırılması gerekir. Islak jelden aerojel üretmek için, sıvı çözücünün sol-jel matrisinden çıkarılması esnasında, modifiye edilmeyen ıslak jelin hassas nano yapısı, sıvı-buhar arayüzündeki yüzey gerilimi nedeniyle kurutma sırasında ortaya çıkan önemli kılcal kuvvetlere dayanamama gibi durumlardan dolayı bazı zorluklar ortaya çıkabilmektedir. Islak jel kurudukça kılcal kuvvetler nanoyapının bozulmasına neden olur. Çözücüyü jelden uzaklaştırmak için yapılan kurutma işlemi, atmosferik, süper kritik ve dondurarak kurutma olmak üzere üç ayrı yöntemle yapılabilmektedir [8]. Her yöntem yüzey gerilimi etkisinden dolayı kılcal kuvvetleri en aza indirmek veya ortadan kaldırmak üzere tasarlanmıştır [91].

2.4.3.1. Atmosferik şartlarda kurutma

Atmosferik kurutma yöntemi, ıslak jelin bir fırında (etüvde) ortam basıncında kurutulmasını içerir. Yüksek basınç koşulları gerektirmediğinden bu yöntem oldukça ekonomik ve zararsızdır. Tüm kurutma proseslerinde olduğu gibi atmosferik şartlarda kurutma işleminde de jelin büzülmeden yapıdan uzaklaştırılması sağlanır. Bu, nanoyapıya etki eden kılcal kuvvetleri azaltmak veya nanoyapının bu kuvvetlere direnme yeteneğini arttırmak için uzun çözücü değişim süreleriyle kimyasal işlem gerektirmektedir. Malzeme, atmosferik basınçta kuruyarak ve yüzeyi sililasyon ajanlarıyla modifiye edilerek hidrofobik özelliklerini kazanmaktadır. Tablo 2.5'te farklı sililasyon ajanları ve bağ yapıları verilmiştir [27, 90]. Bu yöntem süperkritik kurutma yöntemine göre daha güvenli ve az maliyetli olduğu için son zamanlarda daha fazla tercih edilmektedir.

Tablo 2.5. Hidrofobik aerojel üretiminde kullanılan sililasyon ajanları ve bağ yapıları [91, 95].

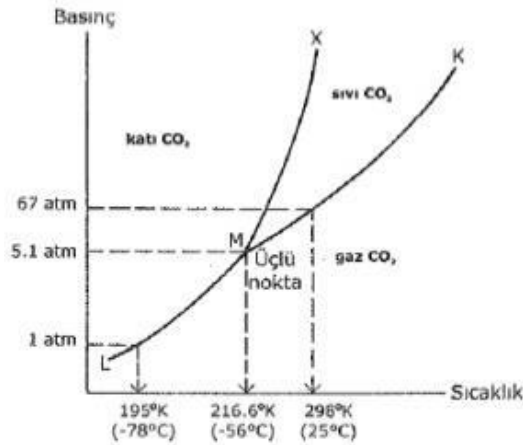
Sililasyon Ajanları	Bağ Yapıları	Kısaltma
Metiltrimetoksisilan $\text{Si}(\text{OCH}_3)_3\text{CH}_3$		MTMS
Viniltrimetoksisilan $\text{CH}_2=\text{CHSi}(\text{OCH}_3)_3$		VTMS
Dimetildimetoksisilan $\text{Si}(\text{OCH}_3)_2(\text{CH}_3)_2$		DMDMS
Metiltrieoksisilan $\text{Si}(\text{OC}_2\text{H}_5)_3\text{CH}_3$		MTES
Trimetilklorosilan $\text{Si}(\text{CH}_3)_3\text{Cl}$		TMCS
Hegzametildisilazan $\text{HN}(\text{Si}(\text{CH}_3)_3)_2$		HMDZ
Hegzametildisiloksan $\text{O}(\text{Si}(\text{CH}_3)_3)_2$		HMDSO

2.4.3.2. Süperkritik şartlarda kurutma

Atmosferik şartlarda kurutulmasıyla elde edilen arojellerin, daha az büzülmeyle kurutulabilmesi için Kistler 1930'lu yıllarda süperkritik şartlarda kurutma yöntemini geliştirmiş olup; bu yöntemle elde edilen arojellerin daha fazla gözenekli bir yapıya sahip oldukları görülmektedir [12].

Süperkritik şartlarda kurutma, gazlara uygulanan yüksek basınca rağmen sıvı hale geçemeyeceği bir kritik sıcaklık (T_c) olan süperkritik sıcaklığa ısıtılması ve karbondioksit, etanol veya metanol gibi bir maddeyle çözücünün yer değiştirmesi olarak tanımlanmaktadır. Çözelti oluşturan maddenin kritik sıcaklığı ve basıncı (T_c , P_c), bu yöntemde kullanılan sıcaklık ve basınçtan daha düşük olması gerekmektedir [96].

Kritik sıcaklığın ve basıncın üzerine çıkan maddelere kritik sıvı denilmektedir. Süperkritik şartlarda sıvı molekülleri serbest bir şekilde hareket edebilecek enerjiye sahiptir ve böylece ıslak jel içerisinde rahatça boşaltılabilmektedir. Bu sayede de oldukça gözenekli yapıda "kuru katı iskelet" elde edilmiş, böylece, süperkritik şartlar altında yapılan kurutma tekniği jelde bulunan gözeneklerde sıvı-buhar ara yüzünün meydana gelmesi engellenmektedir. Gözenekleri dolduran sıvı, süper kritik koşullar altında ($T_c=304K$, $P_c=7,38 MPa$) süper kritik şartlara kolay erişebilirliği ve sistemden rahatça uzaklaştırılabilmesi, inert ve ucuz, yanıcı olmaması gibi nedenlerden dolayı yaygın olarak CO_2 ile giderilmektedir [14]. Ortam şartlarında CO_2 gaz halini alacağı için arojelin iskelet yapısı korunmaya devam eder ve böylelikle gözenek hacmi yüksek, partikül boyutu ve yoğunluğu düşük arojeller elde edilir [8]. CO_2 'ye ait sıcaklık-basınç faz diyagramı Şekil 2.13'te görülmektedir.



Şekil 2.13. CO_2 sıcaklık basınç diyagramı [97].

Süperkritik ekstraksiyon metotlarında, çözücü süperkritik noktanın üzerine getirilerek ve süperkritik akışkan olarak sol-jel matrisinden uzaklaştırılarak sıvı/buhar sınır çizgisini önlemekte ve kılcal gerilmeler oluşturmamaktadır. Süper kritik şartlarda kurutmanın düşük ve yüksek sıcaklıklarda olmak üzere iki farklı şekli vardır. 50-100 atm basınç ve 300-600°C arasındaki sıcaklıklarda organik çözücülerde patlayıcı ve yanıcı riskler ortaya çıkabilmektedir [61]. Dolayısıyla yüksek kritik basınç ve sıcaklıklarda kurutma prosesi, zorlukları beraberinde getirdiği için çeşitli güvenlik ve koruma önlemleri alınması gerekmektedir. Bu kurutma yönteminde seçilecek basınç ve sıcaklık çözücünün kritik nokta sıcaklık ve basıncından daha yüksek bir değer olması gerekmektedir. Çeşitli kimyasal katkıları alkoksit çözeltilerine ilave edilmesiyle arojelin kurutma hızı ayarlanabilmektedir. Kullanılan bazı kimyasallar (metanamid (NH₂CHO), gliserol (C₃H₈O₈), oksalik asit (C₂H₂O₄.2H₂O) gibi) çözeltiye ilave edildiğinde, jelin gözenekleri içerisindeki buhar basıncını, gözenek boyutunu ve kurutma esnasındaki zorlanmayı ayarlayarak jel yoğunluğunun ve dayanımının artmasını sağlamaktadırlar [98]. Yüksek sıcaklıklardaki süper kritik kurutma 1930'lu yıllarda geliştirilirken, düşük sıcaklıklardaki süper kritik kurutma 1985'te denenmiştir. Ek olarak hızlı süper kritik kurutma tekniği de geliştirilmiştir [27].

Tercih edilen kurutma yöntemleri, üretilen jellerdeki gerilim ve yapıdaki değişikliği ortadan kaldırmak için uygulanmaktadır. Bu tekniğin maliyetli olması, işlem karışıklığı ve uygulama esnasında oluşacak risklerinin olması olumsuz yönleri arasındadır. Katkı malzemesinin yüksek basınçta süper kritik hale getirilmesi sırasında yanıcılık ve patlayıcılık gibi riskler ve tehlikeler meydana gelmektedir. Bu sebeple, riskleri azaltmak için uygun çözücüler ve farklı kurutma yöntemleri belirlenmesi gerekmektedir [99].

2.4.3.3. Dondurucu kurutucu ile kurutma

Aerojel sentezinde tercih edilebilen diğer bir kurutma yöntemi olan dondurucu kurutucu yönteminde, sıvı-gaz arasında faz sınırı olmamakta ve dolayısıyla kapiler basıncın rolü önemli olmamaktadır. Nemli olan ıslak jel dondurulur ve çözelti içerisinde bulunan, yapıdan uzaklaştırılmak istenen çözücü, yüksek vakum altında bekletilerek düşük süblimleşme basıncı ve düşük genişleme katsayısında süblime edilir. Dolayısıyla bu proses, basıncın normal düzeyden düşürülmüş ve düşük sıcaklıkta

hidrojeldeki suyun dehidrasyonunu içermekte olup; gözenekler dondurularak kriyojel olarak adlandırılan malzeme elde edilmektedir.

Dondurucu kurutma ile üretilen arojellerin gözenek hacmi atmosferik şartlarda kurutulan jellere göre daha büyük olup düşük yoğunluğa, yüksek gözenekliliğe ve mekanik kuvvete sahiptir [98, 100]. Dondurma basamağı, süreç içerisinde en kritik öneme sahip olup tüm kurutma işlemlerinin süblimasyon ile sağlanabilmesi için konsantre sıvı bariyerlerinin bulunmaması gerekmektedir. Genellikle -50-85°C aralığında bir donma sıcaklığı tercih edilmektedir. Dondurarak kurutma sırasında kullanılmakta olan donma yöntemi, oluşan buz yapısını, birincil kurutmada su buharı ve nihai kurutulmuş ürünün kalitesi gibi parametreleri etkilemektedir [101]. Aşırı kristal boyutu, hücre zarları ve nihai ürün dokusunu etkileyebilmektedir. Birincil kurutma sırasında, malzemede bulunan suyun yaklaşık %95'i süblime edilerek basınç çok düşük seviyelere indirilirken, sıcaklık çözücü süblimasyonunu kolaylaştırmak için yükseltilmektedir. İkincil kurutmada ise donmamış su moleküllerinin yok edilmesi amaçlanmakta ve hem kalıntı çözücünün uzaklaştırılması hem de vakum basıncının düşürülmesi için sıcaklık birincil kurutma işlemine kıyasla daha yüksek değerlere yükseltilmektedir [102].

Donma oranı, buz kristallerinin boyutunu ve kuru katmanın gözenekliliğini kontrol edeceği için kuruma süresini etkileyebilmektedir. Bu oran ne kadar düşükse, buz parçacıklarının boyutu da o kadar yüksek olmakta ve spesifik yüzey alanı daha düşük olmaktadır [101].

Bu yöntem, kısa sürede gerçekleşmesi, ucuz olması ve süper kritik şartlarda kurutma yönteminin söz konusu olduğu tehlikeleri içermemesinden dolayı daha avantajlıdır [14, 103].

2.4.4. Sol-jel prosesinin avantajları

Üretim yöntemi olarak sol-jel yöntemini tercih etmenin avantajları şu şekilde sıralanabilir;

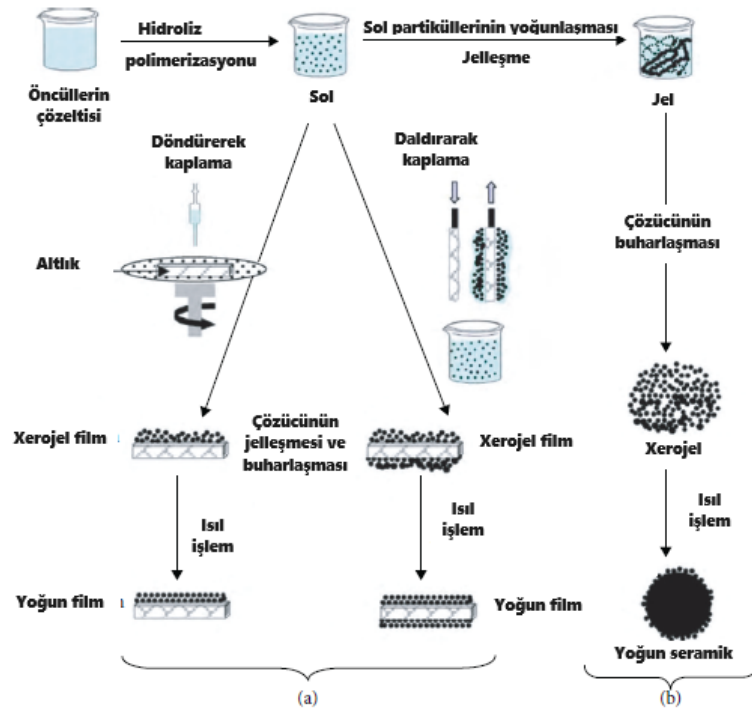
1. Geleneksel diğer yöntemlere göre sol-jelle çok daha düşük sıcaklıklarda (70-320°C) metal ve seramik nanomalzeme üretimi gerçekleştirilirken; diğer yöntemlerde 1400–3600°C sıcaklık aralığında nanomalzeme

üretilebilmektedir. Bu sayede yüksek sıcaklıklardaki faz dönüşümlerinin ve buharlaşma kaynaklı kayıpların önlenmesi,

2. Çalışma şartlarının kolaylığı ve sol-jel işleminin basit olması (özellikle atmosferik kurutma tercih edilirse),
3. Yüksek saflıkta (~%99,99 saflık), dar partikül boyut dağılımında ve düşük sıcaklıklarda tekdüze nanoyapıda ve oldukça homojen ürün elde edilebilmesi,
4. Çok yüksek üretim verimliliği sağlanması,
5. Sentez aşamalarını etkileyen parametrelerin dikkatli bir şekilde değiştirilmesi yoluyla kimyasal bileşimi tasarlama ve kontrol etmeye imkan sağlayarak elde edilen bileşiklerin fiziko-kimyasal özellikleri üzerinde kontrol imkanı gibi eşsiz özelliklere sahip olması ve homojen bir bileşim elde etme yeteneği,
6. Bu sentez yönteminin amorf malzemeleri ince tabakalar halinde sentezlemek için kullanabilme yeteneği,
7. Karmaşık/özel şekilli bileşenlerin üretimine (aerojel veya elyaf gibi) ve kompozit oksitler formunda tek biçimli bileşiklerin sentezine olanak sağlaması,
8. Sol çözeltilerinin yüksek akışkanlıkları sayesinde ince kaplama film tabakalarının kolay hazırlanabilmesi,
9. Yüksek sıcaklıklarda malzemelerin hazırlanmaları sırasında fiziksel ve kimyasal değişikliklerin oluşma riskinin olmaması,
10. Düşük termal genişleme katsayısına sahip malzemelerin üretimi UV emilimi ve yüksek optik şeffaflık,
11. Organik ve polimerik bileşiklerle gözenekli ve verimli malzemelerin üretimi,
12. Çözelti aşamasındaki proses nedeniyle öncüllerin yüksek kimyasal reaktivitesi,
13. Jelin kuruma koşullarını kontrol ederek nanoboyutlu gözeneklilik elde etmek mümkündür. Nano gözenekliliğin avantajı, normal gözenekliliğe kıyasla çok geniş spesifik yüzey alanıdır [61, 92, 104, 105].

Sol-jel prosesi, çeşitli teknikler kullanılarak sol çözeltisinden jele dönüşümü içermektedir. Jelin kuruma esnasında büzülme ve çatlak oluşumu da mümkün olabileceği için bu durumu engelleyecek uygun koşulların sağlanması bu süreçteki en önemli konulardan biridir. Üretilen jelin döküm kabiliyeti vardır ve kalıplanıp kurutularak entegre parçalar üretmek mümkündür. Döküm veya kalıplamadan elde

edilen ürünler filtre veya membran olarak kullanılır. Sol-jel yöntemiyle 50 ila 500 nm kalınlığında ince filmler oluşturmak mümkündür. Bu amaçla daldırma ve döndürerek kaplama, sprey kaplama, akışla kaplama, kılcal kaplama ve tırmanarak kaplama işlemi (the climbing cover process) gibi farklı kaplama yöntemleri kullanılabilir. Sol-jel ince filmler elektronik ve kimya sektörlerinde geniş uygulama alanlarına sahiptir. Ayrıca sol-jel yöntemiyle elde edilen kaplamalar malzemenin optik özelliklerini de etkilemektedir. Şekil 2.14’de çeşitli sol-jel kaplama işlemlerininin özet niteliğinde sentez şeması ve üretilen formları gösterilmektedir.



Şekil 2.14. Numunelerin sol-jel yöntemiyle sentez şeması: a. Kolloidal soldan sentezlenen filmler ve b. Jelden sentezlenen toz [90].

Sol-jel yöntemi kompozit veya nanokompozit malzemelerin üretiminde kullanılabilir. Bu amaçla nano ölçekteki sürekli gözeneklilik, ikincil malzemelerin yüklenmesi (boşluklara madde eklenmesi) için bir yer olarak kullanılmaktadır. Bu, erimiş fazda saflaştırma veya kimyasal reaksiyonlar gibi yöntemler kullanılarak yapılır. Nano gözenekli malzemelerin uygulamalarından biri de katalitik endüstrilerdeki kullanımlarıdır. Nano gözenekli malzemelerin gözenekleri çeşitli endüstriyel katalizörler ile doldurulur ve bu malzemelerin aktif yüzey alanının çok geniş olması nedeniyle katalitik verim artar ve ürünün maliyeti düşer [90].

2.4.5. Sol-jel prosesinin dezavantajları

Sol-jel yönteminin avantajlarının yanı sıra dezavantajları olsa da büyük bir kısmı bertaraf edilebilmektedir. Sol-jel yönteminin dezavantajları şu şekilde özetlenebilir;

- Başlangıç hammaddelerin ve üretim sırasında kullanılan sarf malzemelerin maliyetlerinin yüksek oluşu,
- Jelleşmenin veya jellerin kurutulması sırasında azımsanmayacak bir büzülmenin/çatlamanın meydana gelebilmesi,
- Süreç esnasında oluşmuş hidroksil veya organik kalıntıların ortamdan uzaklaştırılmaması,
- Oksit ağında kontrol edilmesi güç fazla gözenekli yapıların oluşması,
- Uzun işlem süresi ve düşük mekanik özellikler [61, 106]

2.5. Alümina-silika Aerojeller Hakkında Literatür Taraması

Yang ve arkadaşları başlangıç malzemesi olarak $AlCl_3 \cdot 6H_2O$, 3 boyutlu yumuşak şablon olarak kitosan ve takviye olarak TEOS kullanarak kitosan/ $Al_2O_3-SiO_2$ arojelini atmosferik şartlarda kurutma yöntemiyle sentezlemişlerdir. Ortaya çıkan kitosan/ $Al_2O_3-SiO_2$ (CAS) kompozit arojel, 3 boyutlu bir ağ sergilemiş, radyal ve aksenel yönde şaşırtıcı derecede düşük büzülme (%17) göstermiştir. Kitosan eklenmesinin $Al_2O_3-SiO_2$ arojelinin gözenekli yapısını termal kararlılığa zarar vermeden iyileştirdiği de bulunmuştur. Asetik asit (HAc) dozunu ayarlayarak makroyapının ve nanoyapının kontrolü gerçekleştirilebilir; bu da çeşitli uygulama alanları için uygundur. Monolitik kitosan/ $Al_2O_3-SiO_2$ kompozit arojelin, yüksek gözenekliliğinin yanı sıra hidrofilik bölgelerinin yüksek nüfuz akışı ve iyi kirlenme önleyici özellikler sağladığı varsayıldığından, polimer membranların modifikasyonunda faydalı olacağı tahmin edilmektedir. Ek olarak, iyi bir termal stabiliteye sahip, fiziksel olarak kompakt ve mezo-gözenekli CAS kompozit arojel, yüksek sıcaklıklarda emici, katalizör ve katalizör desteği ile ilgili araştırmalar için umut vericidir [23].

L. Gan ortam basıncında kurutma yöntemiyle kompozit alümina arojelleri oluşturmak için hammadde olarak $Al(NO_3)_3 \cdot 9H_2O$ ve takviye olarak TEOS kullanmışlardır. Silikanın dahil edilmesi, $\alpha-Al_2O_3$ 'ün faz geçiş sıcaklığını koruyarak alümina

aerojellerin yüksek sıcaklık performansını arttırmanın etkili bir yolu olarak görülmektedir [107].

Liu ve arkadaşları, alümina aerojelin özelliklerini geliştirmek için, müllit elyaf/alümina kompozit aerjel elde etmek için müllit elyafı, alüminyum hidroksit soluna eklemişlerdir. Müllit elyafın eklenmesinin aerojelin yoğunluğunu ve bükülme mukavemetini artırabildiğini, aynı zamanda termal yalıtım performansını geliştirdiği görülmüştür. SEM görüntüleri, müllit fiberlerin alümina aerjele iyi bir şekilde dahil edildiğini ve mezo-gözenekli yapının, aerjel malzemeye etkili bir şekilde mükemmel ısı yalıtım performansı kazandırabildiğini göstermektedir. Ağırlıkça %0,5 müllit fiber içeren kompozit aerojelin termal iletkenliği ve bükülme mukavemeti sırasıyla 0,03341 W/(m·K) ve 1,08 MPa'dır. Müllit elyaf miktarının ağırlıkça %0,5'ten %2'ye arttırılmasıyla müllit elyaf/alümina kompozit aerojeller tamamen farklı performans özellikleri sergilemiştir. Kompozit aerojelin yoğunluğu, bükülme mukavemeti ve termal iletkenliği belirgin şekilde artarken; spesifik yüzey alanı ve gözenek hacmi keskin bir şekilde azalmıştır. Özellikle ağırlıkça %0,5 müllit fiber içeren kompozit aerjel, daha düşük yoğunluk, daha düşük ısı iletkenliği ve daha yüksek bükülme mukavemeti göstererek, mükemmel bir ısı yalıtım malzemesi adayı olduğunu göstermektedir [108].

Zhu ve arkadaşlarının kömür gangından hazırladıkları SiO₂-Al₂O₃ aerojelinin spesifik yüzey alanının, Al(NO₃)₃·9H₂O veya Al izopropoksit ve süperkritik kurutma koşuluna sahip tetraetoksisilan gibi nispeten pahalı hammaddelerden hazırlananlarla karşılaştırılabilir olabileceğini göstermişlerdir. Adsorpsiyon testleri ile SiO₂-Al₂O₃ aerojelinin organik çözücüler üzerinde iyi adsorbe edilebilirliğe sahip olduğunu, kömür gangının maksimum ayrışma hızını elde etmek için en uygun parametrelerin m(Kömür gangı)/m(Na₂CO₃) 1:0,6, bekletme süresi 3 saat ve kalsinasyon sıcaklığı 900 °C olduğu tespit edilmiştir. Nihai ürün güçlü bir hidrofobikliğe (su ile temas açısı 134°), havada 431°C'den önce oksitlenemeyen yüksek termal stabiliteye, geniş spesifik yüzey alanına (493,5 m²/g), küçük gözenek boyutuna (ortalama gözenek çapı 4,8 nm) ve düşük yoğunluğa (0,3475 g/cm³) sahip olmuştur [54].

Wu ve arkadaşlarının ucuz inorganik tuz kullanarak farklı alümina/silika (Al/Si) molar oranlarına sahip Al₂O₃-SiO₂ kompozit aerjeli sentezledikleri bir çalışmada Al/Si molar oranlarının ve kalsinasyon sıcaklıklarının Al₂O₃-SiO₂ kompozit aerjellerin mikroyapıları ve özellikleri üzerindeki etkileri araştırılmıştır. SiO₂'nin esas olarak amorf olduğunu, Al₂O₃'ün ise kurutulmuş kompozit aerjeller için ağırlıklı olarak

polikristalin böhmite halinde bulunmuştur. Al/Si molar oranlarının artmasıyla birlikte morfolojiler, birbirine bağlı küresel parçacıklardan, nanometre boyutunda lifli parçacıklara ve değişen çaplarda ağ benzeri mikro yapılara doğru değişmektedir. Isıl işlem sıcaklığı 600°C'ye çıktıkça tüm kompozit aerogellerde böhmitten γ -Al₂O₃'e yapısal geçiş meydana gelmiş ve 1000°C civarında Al/Si molar oranının 1 olmasıyla müllitleşme gerçekleşmiştir. Farklı Al/Si mol oranlarındaki kompozit aerogellerin spesifik yüzey alanı 600°C ve 1200°C'de artma-azalma-artma göstermiştir. Al/Si molar oranı 8 olduğu numunede spesifik yüzey alanı 1200°C'de şimdiye dek tespit edilen en yüksek değer olan 166 m²/g ulaştığı bildirilmiştir. Müllit elyaf mat takviyeli aerogel kompozitin oda sıcaklığındaki termal iletkenlikleri, 2,3 ve 8 Al/Si molar oranıyla 0,023 W/mK, 0,029 W/mK ve 0,025 W/mK'dir ve verimli ısı yalıtımı kullanımlarına uygundur [46].

Yapılan başka bir çalışmada ağırlıkça %5, 10, 15, 20 ve 25 alümina içeren silika-alümina aerogeller, hibrit bir sol-jel tekniği ve ardından atmosferik kurutma ile sentezlenmiştir. Jelleşme pH 3 ve 5 değerlerinde gerçekleşmiş olup, bu değerler alkoksitlerin hidroliz ve yoğunlaşma hızını etkileyen belirleyici bir parametre olmakta, ayrıca nihai malzemenin yüzey alanı ve gözeneklilik özelliklerini de etkilemektedir. Düşük pH değerlerinde (pH 3'te) jelleşme süresinin daha uzun olduğu, nitrojen sorpsiyon çalışmalarında karışık oksit aerogellerin doğası gereği mezo-gözenekli yapıda olduğu ve pH 3'teki jelleşmenin pH 5 ile hazırlananlardan daha yüksek yüzey alanına sahip olduğu bulunmuştur. Karışık oksit aerogelin homojenliğini doğrulamak için transmisyon elektron mikroskobu ve X-ışını kırınım analizi yapılmıştır. TEM mikroyapı analizi, aerogelin amorf olduğunu ve 1200°C'de kalsinasyondan sonra bile α -alüminanın XRD ile tespit edilememesi, alüminanın silika ağı içinde homojen bir şekilde dağılmasının doğrudan bir sonucu olduğunu göstermektedir [56].

Li ve arkadaşları yaptıkları çalışmada ultra hafif müllit (3Al₂O₃·2SiO₂) aerogel üretimi gerçekleştirmek için suda dağılmış 2 boyutlu Al-MOF nano tabakaları (Al kaynağı), TMA-POSS (Si kaynağı) ve PEO kimyasallarını hammadde kaynakları olarak kullanmışlardır. Doğrusal PEO ve 2D Al-MOF nano tabakaları arasındaki kendi kendini destekleyen bir matris, dondurarak kurutma işlemi sırasında öncül maddenin yapısının çökmesini engellemek için gereklidir. Havada 1200°C'de sinterlendikten sonra kurutulan öncül monolitik müllite dönüştürülmüştür. Bu metot ile hazırlanan müllit aerogel, ultra düşük yoğunluk (26,6 mg/cm³) ve gözenekli yapı gibi özellikler

sergilemiştir. Dondurarak kurutma işlemi sırasında doğrusal PEO ve 2D Al-MOF nano tabakaları arasındaki kendi kendini destekleme nedeniyle öncül, sağlam yapısını korumuştur. Bu yöntem, tipik sol-jel üretimiyle karşılaştırıldığında, sol-jel yöntemindeki karmaşık jelleşme ve tehlikeli süperkritik kurutma aşamalarını elimine ettiği için çok daha basit ve kullanışlı olmuştur [109].

Ji ve arkadaşlarının sol-jel yöntemi ve ortam basıncında kurutma ile alüminayla zenginleştirilmiş bir $Al_2O_3-SiO_2$ aerogel üretmek için yaptıkları çalışmada öncül madde olarak ucuz bir inorganik alüminyum tuzu $Al(H_2O)_9(NO_3)_3$ ve takviye maddesi olarak TEOS kullanılmıştır. TEOS'un aerogel üzerindeki etkisini göstermek amacıyla yapısı ve özellikleri FESEM, TEM, BET, FTIR ve Raman spektrumlarına bakılmıştır. FTIR spektroskopisi, takviye edici bir madde olarak TEOS'un, alkojel yüzeyindeki -OH bağıni etkili bir şekilde ortadan kaldırdığını ve jelin iç ağına Al-O-Si bağlarını dahil ettiğini göstermiştir. Ayrıca, TEOS kendi kendine yoğunlaşma reaksiyonlarından alkojel gözenegi içinde bazı uzun Al-O-Si-O-Si-O-Al zincirleri oluşmuş ve bu durum da, alkojel iskeletini güçlendirmiş ve ortam basıncında kurutma işlemi sırasında olası büzülme ve çatlamayı etkili bir şekilde önlemiştir. Raman spektrumları, Al ve Si bağlarının mevcut olduğunu doğrulamış ve Si/Al mol oranının 0'dan 3'e artmasıyla Al-O-Al bağlarının birincil jel iskeletinin kademeli olarak Si-O-Si bağlarına dönüştüğü görülmüştür. Si/Al mol oranı 3'den büyük olduğunda, Si bağları son aerogeldeki birincil bağlar haline gelmiştir. SEM ve TEM görüntüleri, TEOS ile takviye edilmeyen alkojelin, ortam basıncında kurutma işlemi sırasında aşırı büzülme ve çatlamaya maruz kaldığını göstermiştir. Hazırlanan toplu aerojellerin spesifik yüzey alanı 233,12-481,79 m^2/g arasında ve yoğunluğu 0,35-0,50 g/cm^3 arasında değişmiştir [110].

Mondal ve arkadaşları, atık plastiklerin bertarafı sorunu nedeniyle çevresel tehlide yönelik, atık düşük yoğunluklu polietilen ve yüksek yoğunluklu polietilenin, sol-jel ile üretilen silika-alümina (ASA) ve Ti-katkılı silika-alümina (ASA + Ti) katalizörleri üzerinde pirolize edilmesine yönelik bir çalışma yapmışlardır. Katalizörler 500 °C'de kalsine edilmiş ve XRD, FTIR, TG/DTA, SEM, EDS ve BET gibi farklı tekniklerle karakterize edilmiştir. Karakterizasyon sonucunda, nanopartiküllerin Si-O-M (Al veya Ti) bağlantıları yoluyla halkalardan oluştuğu, bunun da termal stabiliteğini ve katalitik aktivitelerini iyileştirdiği tahmin edilmiştir. Ti katkılı silika-alümina katalizörü, nispeten düşük sıcaklıklarda (376°C) maksimum dönüşüm (%96) ve benzin

seçiciliği (%45,33) göstermiş olup; en yüksek spesifik yüzey alanı, tek biçimli mezo gözenekliliği ve bimetalik iskeleti ile en iyi performans elde edilmiştir. Elde edilen sıvı ürün hem dallanmış alifatik hem de aromatik hidrokarbonlardan oluşurken, çalışma sonucu 1 kg tüketim sonrası atık plastikten yaklaşık 44,13 MJ enerji kaynağı geri kazanılabildiği görülmüştür [111].

Aripin ve arkadaşları yaptıkları bir çalışmada alümina (α -Al₂O₃) ve sago atık külünden üretilen silika kserojelden müllit içeren seramikler hazırlamışlardır. Silika kserojel öğütülerek farklı içeriklerde α -Al₂O₃ ile karıştırılmış ve 900°C ila 1700°C arasındaki sıcaklıklarda sinterlenen silindirik numuneler üzerinde ölçümler gerçekleştirilmiştir. Müllitleşme sürecini ve yapı oluşumunu anlamak için XRD, SEM, FTIR ve TGA analizleri gerçekleştirdiler. Müllit fazının 1100°C kadar düşük bir sıcaklıkta ve %20 mol kadar düşük bir α -Al₂O₃ konsantrasyonunda oluşabileceğini görmüşlerdir. 1600°C'de sinterlenen %40 mol α -Al₂O₃ bileşimi için tam bir müllitleşmenin gerçekleştiği görülmüştür. 1100-1700°C aralığındaki sıcaklıklarda sinterlenen numunelerde başlangıç bileşimindeki α -Al₂O₃ içeriği arttığında (dolayısıyla silika kserojel içeriği azaldığında) amorf faz miktarının da azaldığı görülmüştür. Müllit hazırlama için başlangıç malzemesi olarak silika kserojel tozu kullanmanın avantajları, düşük müllitleşme sıcaklığı, düşük α -Al₂O₃ konsantrasyonu ve benzersiz mikro yapıdır. Düşük maliyetli bir hammadde olan sago atık külünden elde edilen silika kserojel, müllit üretiminin maliyetini daha da azaltarak, pahalı endüstriyel sınıf kimyasallara bir alternatif oluşturmuştur [112].

Wang ve arkadaşlarının 2016'da yaptıkları bir çalışmada sol-jel yöntemiyle endüstriyel uçucu külden türetilen TiO₂ nanopartikülleri ve SiO₂-Al₂O₃ arojelden oluşan üçlü bir kompozit hazırlamışlardır. TiO₂/SiO₂-Al₂O₃ arojel kompozitinin yapısal özellikleri, X-ışını toz kırınımı, Fourier dönüşümü kızılötesi spektroskopisi, transmisyon elektron mikroskobu, gaz adsorpsiyon ölçümleri ve dağınık yansıma UV-görünür spektroskopisi ile araştırılmıştır. 2-sekonder-bütül-4,6-dinitrofenolün (DNBP) fotokatalitik bozunması için en uygun koşulların, görünür ışık altında 6 g/L katalizör konsantrasyonu ile pH=4,86'da 0,167 mmol/L'lik bir başlangıç DNBP konsantrasyonu ile olduğu görülmüştür. Kompozit, DNBP bozunması için saf TiO₂'ninkinden daha yüksek fotokatalitik aktivite göstermiştir. Elde edilen TiO₂/SiO₂-Al₂O₃ arojel kompoziti, görünür ışık ışınımı altında DNBP'nin bozunması için yüksek adsorpsiyon kapasitesine ve gelişmiş fotokatalitik aktiviteye sahip olmuştur. Fotokatalitik

reaksiyonların, 0,0629 ila 0,2087 mmol/L DNBP konsantrasyon aralığında reaksiyon hızı sabiti 0,52-0,13 saat⁻¹ ile birinci dereceden kinetiğe uyduğu görülmüştür. TiO₂/SiO₂-Al₂O₃ aerjel kompozit katalizörü, beş katalitik bozunma döngüsünden sonra fotokatalitik verimde belirgin bir düşüş gözlemlenmeden yeniden kullanılabilmiştir. Çalışma sonucunda TiO₂/SiO₂-Al₂O₃ aerjel kompozit malzemesinin sudan organik kirleticilerin uzaklaştırılmasında etkili bir fotokatalizör olarak kullanılabileceğini göstermektedir [113].

Ghica ve arkadaşları kevlar® hamuruyla güçlendirilmiş alümina-silika aerjel kompozitlerine dayanan çalışmalarında, baz katalizörleri ve ortam basıncında kurutma ile iki alümina öncüsü (ATSB ve AlCl₃) kullanarak hazırlamışlardır. Silika öncülleri olarak TEOS ve viniltrimetoksisilan (VTMS), kompozitlerin sililasyonu için heksametildisilazan (HMDZ) kullanılmıştır. Aerojellere alümina fazının dahil edilmesi, Si'nin bir kısmının (%15 mol'e kadar) Al ile değiştirilmesiyle alüminyum klorür (AlCl₃) veya ATSB öncülleri aracılığıyla gerçekleştirilmiştir. Sistemin optimizasyonu için aerjelin temel özelliklerini (kütle yoğunluğu, termal iletkenlik ve termal stabilite) etkileyebilecek çeşitli parametreler, yani baz katalizörler, yıkama ve ısı işlem koşulları araştırılmıştır. Hazırlanan tüm kompozitler oldukça hidrofobik olup, özellikleri kullanılan alüminyum öncülüne ve içeriğine bağlı ve en umut verici kompozitler, 120 kg m⁻³ ve 28 mW/mK'e kadar düşük kütle yoğunluğu ve termal iletkenlik değerleri elde eden AlCl₃ bazlı kompozitler olup ve bunların 550°C'ye kadar termal olarak kararlı olduğu görülmüştür. Bu da daha zorlu ortamlardaki ısı yalıtımı uygulamalarına uygun olduklarını göstermiştir. Yığın yoğunluğu ve ısı iletkenlik testlerinin sonuçları, AlCl₃ ile hazırlanan aerjeller için çok daha düşük değerler göstermiştir. Bu sistemin jelleştirme ajanı ve yıkama koşulları açısından optimizasyonu, amonyum hidroksit ile jelleştirmenin yanı sıra etanol ve heptan ile yıkamanın en verimli prosedür olduğu görülmüştür. Nanokompozitlerin termal stabilitesini arttırmak için, eğer kütle yoğunluğu ve termal iletkenlik değerleri çok önemli değilse, yan ürünlerin suyla yıkanarak ve ısı işlemle uzaklaştırılması iyi bir çözüm olabileceği görülmüştür. VTMS yardımcı öncülünün eklenmesi, ısı yalıtım özelliğinden ödün vermeden kompozitlerin mekanik direncini arttırmak için iyi bir yol olduğu tespit edilmiştir [59].

Chen ve arkadaşları yaptıkları bir çalışmada Al₂O₃-SiO₂ kompozit aerjeli, öncül olarak alüminyum klorür heksahidrat (AlCl₃·6H₂O) ve TEOS kullanılarak sol-jel

işlemi ve etanol süperkritik kurutma teknolojisi yoluyla hazırlamışlardır. Jelleşme başlatıcısı olarak kullanılan propilen oksit koşulu altında, işlem sırasında gözenekli ve geniş spesifik yüzey alanına, yaprak şeklindeki parçacıklardan oluşan gözenekli ağ yapısına sahip Al₂O₃-SiO₂ aerogel elde edilmiştir. Al/Si = 3/1 mol oranına sahip Al₂O₃-SiO₂ aerogelinin daha iyi ısı yalıtım performansına ve yüksek sıcaklık stabilitesine sahip olduğunu görmüşlerdir. Aynı zamanda, Al₂O₃-SiO₂ aerogel oda sıcaklığında 0,071 g/cm³ düşük yoğunluk, 600°C'de 708 m²/g spesifik yüzey alanı ve 1200°C'de 255 m²/g spesifik yüzey alanı göstermiştir. Al₂O₃-SiO₂ aerogel, oda sıcaklığında polikristalin böhmüt (γ -AlOOH) fazında iken; sıcaklık arttıkça 600°C'de γ -Al₂O₃'e, 1200°C'de ise müllit fazına geçmiştir [114].

Dong ve arkadaşlarının yaptığı çalışma kapsamında etanol süperkritik akışkan kurutma tekniği kullanılarak silika ve alümina-silika aerogel kompoziti hazırlanmış, fiziksel özellikleri XRD, TEM ve azot adsorpsiyonu kullanılarak karakterize edilmiştir. Aerogel ve dağıtıcı madde içeren yağın tribolojik özellikleri, dört bilyeli bir makine ve halka üzerinde blok tribotester kullanılarak değerlendirilmiş ve daha yüksek aşınma direnci, yük taşıma kapasitesi ve daha düşük bir sürtünme katsayısı gösterdiği görülmüştür. Bakır stearat, dağıtıcı bir katkı maddesi olarak dodesil alkolden daha üstün olup ultrasonik işlem, aerogelin yağ içinde dağılımını artırmaya yardımcı olmuştur [115].

Sivri ve arkadaşları, alüminyum yüklü silika aerogel bazlı katalizörleri, polilaktik asitin (PLA) bozunmasındaki performanslarını araştırmak için farklı alüminyum katkılarında (ağ. %2,5-15) sol-jel yöntemi ile üretilen silika aerogele emdirilmesiyle sentezlemişlerdir. Sentezlenen katalizörler, malzemelerin mezogözenekliliğini gösteren H1 histerezisli Tip IV izoterm göstermiş olup, yüksek yüzey alanı (743–510 m²/g), gözenek hacmi (1,79–0,69 cm³/g) ve gözenek çapı (6,38–3,60 nm) açısından olumlu özellikler göstermişlerdir. Mezogözenekli yapıları BET analizi kullanılarak doğrulanmıştır. Termogravimetrik analiz, metal yüklü silika aerogel katalizörlerin PLA'nın bozunma profili üzerinde etkili olduğunu göstermiş, alüminyum yüklemesindeki artışla aktivasyon enerjisinde azalma (262 kJ/mol'den 190 kJ/mol'e) elde edilmiştir. Bu bulgular, silika aerogel katalizörlerinin, gözenek özellikleri ve asitlik düzeylerinin PLA'nın geri dönüşüm süreçleri için umut verici olduğunu ve bozunma performansını önemli ölçüde etkilediğini göstermektedir [79].

Yao ve arkadaşlarının yaptıkları çalışmada, öncül olarak su camı ve alüminyum klorür kullanarak sol-jel yöntemi ve atmosferik basıncında kurutma yoluyla yüksek ısıya dayanıklı ASA hazırlamak için basit bir yöntem geliştirilmiştir. Başlangıç maddesindeki Al/Si molar oranının, kalsinasyon sıcaklığının ve değiştirici tipinin ASA'nın kristallliği, morfolojisi ve gözenek yapısı üzerindeki etkileri araştırılmıştır. Al/Si molar oranının ve kalsinasyon sıcaklığının ASA'nın 600–1000 °C sıcaklık aralığında yapısı ve ısıya dayanıklılık performansı üzerinde önemli etkileri olduğu görülmüştür. Alüminyum içeriğinin son derece düşük (ağ. %0,18) olmasına rağmen, ASA'nın yüksek ısı direncinin, SiO₂ kafesindeki alüminyumun etkili katkılanması ve Si⁴⁺'nin Al³⁺ iyonlarıyla değiştirilmesiyle tetiklenen komşu nanopartiküller arasındaki karşılık gelen elektrostatik itmeden kaynaklı olarak büyük ölçüde iyileşmiştir. Al atomlarının dahil edilmesinin, TMCS kullanıldığında silika aerojellerin ısı direncini etkili bir şekilde artırabildiği ve Al/Si molar oranı 0,15 olan numunenin, 600 °C'ye ısıtıldığında 805,9 m²/g ile en yüksek spesifik yüzey alanı ve 5,038 cm³/g gözenek hacmi gösterdiği ve ısıtıldıktan sonra 1000 °C'ye kadar sırasıyla 179,5 m²/g ve 1,295 cm³/g değerlerini koruduğu, dolayısıyla süperkritik kurutmaya dayanan önceki çalışmalarla karşılaştırılabilir en iyi performansı gösterdiği görülmüştür [4].

Silika aerogel, yüksek spesifik yüzey alanı, nano boyuttaki gözenekli yapısı ve mikro yapısının düşük yoğunluğu sebebiyle mükemmel ısı yalıtım özelliklerine sahip olmasına karşın düşük yoğunluklu ve yüksek boşluklu özellikleri, zayıf mekanik özelliklere neden olmaktadır. Malzemelerin mukavemetini arttırmak için Song ve arkadaşlarının yaptığı çalışmada ısı yalıtımlı kompozit malzemeyi silika aerogel ve müllit elyaftan üretmişlerdir. Kompozit malzemenin iyi bir dayanıklılığa sahip ve 600°C'de mükemmel termal stabiliteyi koruduğunu görmüşlerdir. Ayrıca silika jel içeriğinin artmasıyla kompozitin yoğunluğu azalmıştır. SEM görüntüsünden mikron ölçekte silika aerogelin müllit fiber ile kaplandığı ve müllit fiberin gözeneklerinin doldurulduğu görülmektedir. Müllit fiberi ayrıca silika jel kurutma işleminde sertleştirme etkisi de yapmıştır. Müllit fiberi çatlatsa bile kompozit malzemenin makro blok yapısını korumuştur. Aerogel içeriği daha yüksek olduğu için yalıtım etkisinin daha iyi olduğu görülmüştür. Silika aerogel içeriğinin artmasıyla birlikte kompozit malzemenin yoğunluğunun da daha küçük olduğu gözlemlenmiştir [116].

Himmel ve arkadaşlarının yaptıkları bir çalışmada farklı mol fraksiyonlarında düşük yoğunluklu xSiO₂-(1-x)Al₂O₃ aerojelleri, CO₂ süperkritik kurutulması yoluyla

hazırlanmış, küçük ve büyük açılarda X-ışını saçılımının yanı sıra elektron kırınımı ve transmisyon elektron mikroskobu ile yapısal olarak karakterize etmişlerdir. Doğrusal büzülmenin ısı işleme bağımlılığı araştırılarak, aerojel sinterlenmesinin ağdaki Al_2O_3 varlığından etkilendiği bulunmuştur. Aerojeller, boyutları Al_2O_3 içeriğiyle (10-60 nm çapında) artan, birbirine bağlı küresel parçacıkların bir dağılımı ile karakterize edilmektedir. SiO_2 aerojeli ve $0.7SiO_2-0.3Al_2O_3$ aerojeli, $900^\circ C$ 'de ısı işlemden sonra sırasıyla yaklaşık %48 ve yalnızca %25'lik bir doğrusal büzülme göstermiştir. Kristalizasyon $100^\circ C$ 'de başlamış ve iyi kristalize edilmiş müllitin büyük parçacıklarının (>80 nm) oluşmasıyla sonuçlanmıştır. SiO_2 aerojelinin yapısı için, transmisyon elektron kırınım verilerinden, iç parçacık yapısının muhtemelen mikro boşluklar tarafından oldukça bozulmuş olması gerektiği sonucuna varılmıştır [49].

Fiberle güçlendirilmiş aerojel kompozitler, ısı yalıtımı ve enerji tasarrufu alanlarında yaygın olarak kullanılırken, fiber ve aerojel arasındaki zayıf arayüz kombinasyonu, fiber takviyesinin etkisini zayıflatmaktadır. Bu probleme çözüm olarak Yi ve arkadaşları, kolay ve çevreye zararsız bir yöntemle alümina silikat fiber/müllit whisker/silika aerojel kompozitleri sentezlemişlerdir. Fiber üzerinde büyüyen nano ölçekli müllit whiskerler, arayüzey bağımlı güçlendirerek düşük yoğunluk ve ısı yalıtım performanslarından ödün vermeden kompozitin mekanik özelliklerini geliştirmektedir. Alümina silikat fiber/müllit whisker/silika aerojel kompozitleri, %50 gerilimde ultra yüksek sıkıştırma gerilimi ve 6,45 MPa ve 69,74 MPa modülü sağlamış; bu da çıplak fiberle güçlendirilmiş silika aerojelinden 6,14 kat ve 9,07 kat daha yüksek olmuştur. Kompozitin (Mo-C), 200 döngü boyunca %30 gerilimde sıkıştırıldıktan sonra maksimum %97,8'lik yüksek bir gerilim tutma oranını koruduğu görülmüştür. Ayrıca kompozit, $27,5 \text{ mW m}^{-1} \text{ K}^{-1}$ ultra düşük termal iletkenlik ve $0,26 \text{ g/cm}^3$ düşük yoğunluk sergilemiştir. Mo-C'nin mükemmel mekanik özelliği, düşük yoğunluğu ve üstün ısı yalıtımı, onu termal koruma alanlarında büyük bir potansiyel haline getirmiş ve ayrıca flor içermeyen kataliz kullanımının, müllit whisker hazırlanmasında elyaf iskelesinin zarar görmesini, çevre kirliliğini, ekipmanlarda korozyonu ve canlılara yönelik potansiyel toksisiteyi önlediği de belirtilmiştir [117].

Hu ve arkadaşları hammadde olarak kaolen içeren ve ortam basıncında kurutulan hidrofobik silika aerojelleri sentezlemişlerdir. Aerojel hazırlama işlemi kaolenin aktivasyonu, ıslak silika jelin hazırlanması ve hidrofobik modifikasyon olmak üzere üç aşamadan oluşmaktadır. Hidroklorik asit konsantrasyonunun silika aerojelin

fiziksel özellikleri ve yapıları üzerindeki etkileri ve Na⁺'nın çözücünden uzaklaştırılmasının aerogelin yapısı ve özellikleri üzerindeki etkileri tartışılmıştır. Kaolen ile elde edilen aerogel, diğer pahalı silika kaynakları ile hazırlananlarla karşılaştırılabilir bir yapıya ve özelliğe sahiptir. Kaolenin sodyum karbonatla 0,6 ağırlık oranında karıştırılması ve ardından ısı işlem uygulanması, kaoleni aktive ederek aerogel üretimi için silika kaynağı kullanılabilir. Kaolenle elde edilen aerogelin, diğer pahalı sentetik silika kaynaklarıyla hazırlananlara göre benzer yapıya ve özelliğe sahip olduğunu görmüşlerdir. HCl çözeltisinin konsantrasyonu, mevcut araştırmada kaolen için 4 mol/L'lik optimal konsantrasyon ile silika aerogelin gözenek yapısını optimize etmek için önemli olduğu görülmüştür. Elde edilen silika aerogelin spesifik yüzey alanı 465,03 m²/g ve toplam gözenek hacmi 2,70 cm³/g'dır. Na⁺'nın giderilmesi, kurutma işlemi sırasındaki dengesiz potansiyelin neden olduğu jel büzülmesini ve çatlamasını önlemiş ve bu da aerogel ağ yapısının oluşumu ve aerogel yoğunluğunun azaltılması için avantajlı olmuştur. Islak silika jelin yüzey modifikasyonu, bir yandan ortam basıncında kurutma işlemini optimize edebilir, diğer yandan aerogele hidrofobik özelliği sağlamaktadır [3].

Wu ve arkadaşlarının geliştirdiği ucuz inorganik tuz kullanarak farklı alümina/silika (Al/Si) molar oranlarına sahip Al₂O₃-SiO₂ kompozit aerogel senteziyle, değişen Al/Si molar oranlarının ve kalsinasyon sıcaklıklarının Al₂O₃-SiO₂ kompozit aerogellerin mikroyapıları ve özellikleri üzerindeki etkisi araştırılmıştır. Sonuçlar kapsamında SiO₂'nin esas olarak amorf olduğu ve Al₂O₃'ün ise kurutulmuş kompozit aerogeller için ağırlıklı olarak polikristalin böhmite halinde bulunduğu görülmüştür. Al/Si molar oranlarının artmasıyla birlikte morfolojiler, birbirine bağlı küresel parçacıklardan, nanometre boyutunda lifli parçacıklara ve değişen çaplarda ağ benzeri mikro yapıya doğru değişmektedir. Isıl işlem sıcaklığı 600 °C'ye çıktıkça tüm kompozit aerogellerde böhmitten γ -Al₂O₃'e yapısal geçiş meydana gelir ve 1000 °C civarında Al/Si molar oranının 1 olmasıyla ilk olarak mülitleşme meydana gelir. Farklı Al/Si molar oranlarındaki kompozit aerogellerin spesifik yüzey alanı 600 °C ve 1200 °C'de artma-azalma-artma göstermiştir. Al/Si molar oranı 8 olan numunenin spesifik yüzey alanı 1200 °C'de 166 m²/g olup; bu şimdiye kadar bildirilenlerden daha yüksektir. Müllit elyaf mat takviyeli aerogel kompozitin oda sıcaklığındaki termal iletkenlikleri, 2,3 ve 8 Al/Si molar oranlarıyla 0,023 W·m⁻¹ K⁻¹, 0,029 W·m⁻¹ K⁻¹ ve 0,025 W·m⁻¹ K⁻¹ olup, verimli ısı yalıtımı kullanımlarına uygundur [46].

Silika aerogelin yüksek sıcaklıkta kırılabilirliğinin ve sinterlenme davranışının üstesinden gelmek için Ma ve arkadaşları ısıya dayanıklı ve güçlü alümina ile modifiye edilmiş, silikon oksikarbür (SiOC) aerogelinin endüstriyel böhmite sol ile emprenye edilmesiyle alümina-silika aerogel üretmişlerdir. Piroliz sırasında SiOC aerogelinin kısmi sinterlenmesi, alümina-silika aerogele yüksek mukavemet kazandırmıştır. SiOC'deki karbon, havadaki kalsinasyon sırasında O₂ ile oksidasyon nedeniyle gözenek oluşturucu görevi de görebilmektedir. Kompozit aerogel, nano gözenekli ağlar, yüksek yüzey alanı (278 m²/g) ve 2,17 MPa'ya kadar basınç dayanımı sergilemiştir. Aynı yöntemle hazırlanan SiO₂ aerogel ile karşılaştırıldığında kompozit aerogelin ısıya daha dayanıklı olduğu görülmüştür. 1000°C ve 1200°C'ye 2 saat ısıtıldıktan sonra kompozit aerogelin yüzey alanı sırasıyla 183 ve 22 m²/g'ya ulaşmış, doğrusal büzülme karşılık gelen değerler ise %6,93 (1000°C için) ve %18,90 (1200°C için) olmuştur. XRD desenleri, alümina ilavesi kompozit aerogelin yüksek sıcaklıklarda faz dönüşümünü de baskılamasından kaynaklı olarak 1200°C'de ısıtılma işleminden sonra amorf SiO₂ ve γ -Al₂O₃'ün kompozit aerogelde kaldığını göstermiştir [118].

Jia ve arkadaşlarının yaptığı bir çalışmada Al₂O₃-SiO₂ aerogelinin alümina çerçevelerle birleştirilmesiyle kompozitler hazırlandı. Matris görevi gören alümina çerçeve, birbirine kenetlenmiş altıgen alümina plakalardan oluşuyordu. Vakum emdirme yöntemiyle eklenen Al₂O₃-SiO₂ aerogeli, alümina plakaları kapladığı ve alümina çerçevenin gözeneklerini kısmen doldurduğu tespit edildi ve bunun sonucunda çerçevenin özgül yüzey alanının ve sıkıştırma mukavemeti artmıştır. Al₂O₃-SiO₂ aerogel/alümina çerçeve kompozitinin hacim yoğunluğu, görünür gözeneklilik, spesifik yüzey alanı ve sıkıştırma mukavemeti sırasıyla 1,29 g/cm³, %63,1, 57,8 m²/g ve ~21 MPa idi. Kompozit malzemenin hiyerarşik gözenekli yapısı ve özellikleri, yüksek reaksiyon sıcaklıklarında katalizör destekleyici uygulamalar için uygun olduğu görülmüştür. Bu özellikler, Al₂O₃-SiO₂ aerogel/alümina çerçeve kompozitlerinin, yüksek reaksiyon sıcaklıklarında katalizör desteği için uygun şekilde uygulanabileceğini göstermektedir [119].

Liu ve arkadaşlarının yaptıkları çalışmada, matris olarak farklı alümina/silika molar oranlarına (3:2, 3:1 ve 3:0) sahip elektrospun nanolifler kullanılarak jel döküm ve dondurarak kurutma yöntemleriyle müllit bazlı nano lifli aerogeller üretilerek müllit bazlı lifli aerogel bileşiminin numunenin fiziksel ve mekanik özelliklerine etkileri

araştırılmıştır. Tüm müllit bazlı nano lifli aerojeller benzer çok düzeyli gözenek yapısı göstermiştir. Küçük gözenekler nano liflerin üst üste binmesiyle oluşmuş, büyük gözenekler buz kristalinin süblimleşmesiyle oluşmuştur. Bu çok seviyeli gözenek yapısı, sinterleme sıcaklığı 1400 °C kadar yüksek olmasına rağmen, müllit bazlı nano lifli aerojellerin ultra düşük yoğunluk (34,64–48,89 mg/cm³) ve düşük termal iletkenlik (0,03274–0,04317Wm⁻¹ K⁻¹) sergilemesini sağlamıştır. Üretilen numune, geleneksel seramik elyaf tuğlanın yerine farklı termal koruma sistemlerinde yüksek sıcaklık yalıtım malzemeleri olarak kullanılabilmesi gösterilmiş, bu da çeşitli endüstriyel fırınların ve hipersonik araçların termal koruma sisteminin ağırlığını ve hacmini önemli ölçüde azaltabilecektir [84].

Bir çalışmada, yüksek yüzey alanı ve iyi mekanik özelliklere sahip monolitik alümina-silika aerojeller, çözücü değişimi olmadan kolay bir sol-jel yöntemiyle sentezlenmiş, yüzey alanları, mikro yapıları ve mekanik özellikleri araştırılmıştır. Yarı kararlı alümina nanopartiküllerinin sinterlenmesi ve faz dönüşümleri, alümina-silika aerojellerdeki eşit şekilde dağılmış Si sayesinde bastırıldığı için alümina-silika aerojeller, saf alümina aerojellerle karşılaştırıldığında 800°C (575,5 m²/g), 1000°C (443,2 m²/g) ve 1200°C'de (120,6 m²/g) kalsine edildikten sonra çok yüksek spesifik yüzey alanlarını koruyabilmektedirler. Çalışma kapsamında hazırlanan yüksek yüzey alanlı alümina-silika aerojeller oldukça yüksek mukavemet göstermektedir. Bu güç esas olarak yumuşak sol-jel işlemiyle kontrol edilen düzgün, iyi bağlanmış mikro yapılardan ve Si ilavesiyle oluşturulan Al-O-Si bağlarından kaynaklanmaktadır. Çalışmada üretilen alümina-silika aerojellerin yüksek sıcaklıkta ısı yalıtkanları ve katalizör olarak iyi adaylar olabileceği belirtilmiştir. Alüminanın tetrahedral bölgelerine girdiği düşünülen düzgün dağılmış Si'nin kafes titreşimini ve alüminyum atomlarının yeniden düzenlenmesini askıya alabileceğinden dolayı alümina-silika aerojelleri 1100°C'nin altında zayıf bir kristalliğe sahiptir. Alümina-silika aerojelleri 1200°C'de mulitizasyona uğrar, böylece düzgün dağılmış bir müllit fazı oluşur, bu da alümina miktarını azaltabilir [51].

Yüksek termal kararlılıkta ve iyi mekanik özelliklerde olan Al₂O₃-SiO₂ aerojeli (ASA), yaşlanma işlemi sırasında silika biriktirme yöntemi kullanılarak Al₂O₃ iskeletine SiO₂'nin eklenmesiyle üretilmiştir. Silika birikimi olmayan ASA ile karşılaştırıldığında Si-ASA, 1000 °C (384,0 m²/g), 1100 °C (245,5 m²/g) ve 1200 °C'de

(124,2 m²/g) kalsine edildikten sonra daha yüksek spesifik yüzey alanlarını korumaktadır [120].

3. DENEYSEL ÇALIŞMALAR

3.1. Amaç

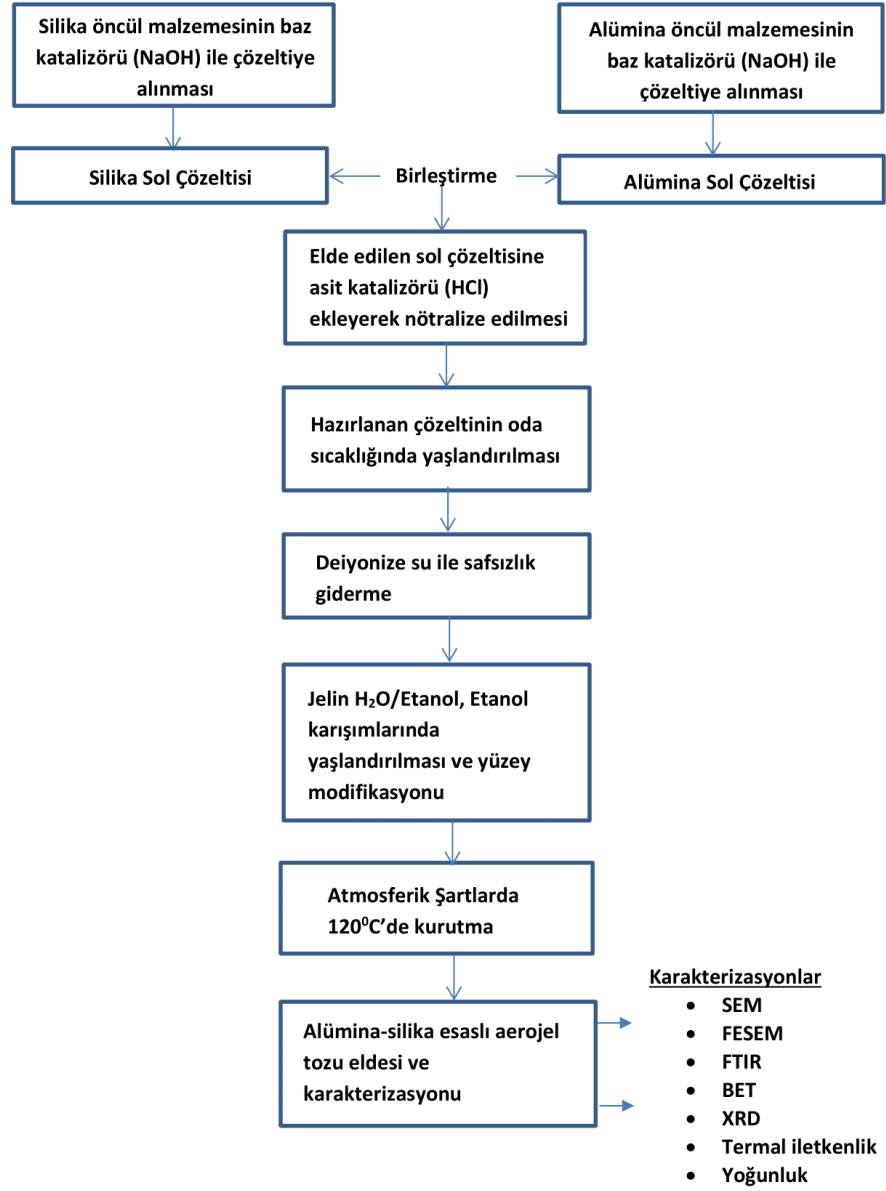
Bu çalışmada, doğal hammadde kaynakları olarak şamot tuğlası, perlit, zeolit, diatomit ve vollastonit; atık kaynağı olarak da eloksal atık kullanılarak sol-jel yöntemiyle alümina-silika esaslı aerojel tozu üretimi hedeflenmiştir. Atıkların ve doğal hammaddelerin değerlendirilmesi ve geri dönüştürülmesi için bu malzemeler kullanılarak farklı başlangıç malzemeleriyle üstün özelliklerde olan aerojelin en verimli şekilde uygun maliyetteki eldesi üzerine çalışılmıştır. Atık kullanımı ile üretilen aerojellerin maliyetinin düşük olması dolayısıyla, havacılık, yalıtım gibi sektörlerde kullanım alanı bularak insan hayatını kolaylaştırabilecektir. Genellikle sentetik başlangıç hammaddeleri kullanılarak yapılan çalışmalara yenilikçi bir yaklaşım olarak mevcut çalışmada atık ve doğal hammaddeler kullanılarak hammadde maliyeti ve enerji sarfiyatları düşürülerek daha ekonomik olarak aerojel üretimi gerçekleştirilmiştir. Yapılan mevcut çalışmada; farklı başlangıç malzemeleri kullanılarak, farklı molaritelerde asit ve baz katalizörleri denenerek alümina-silika esaslı aerojel tozları üretilmiş ve üretilen tozların mikroyapısal özellikleri, faz yapıları, tane boyut analizleri, kimyasal bağ yapıları ve termal özellikleri incelenmiştir. Kullanılan hammaddelerin kimyasal analizleri Tablo 3.1’de verilmiştir.

Tablo 3.1. Başlangıç malzemesi olarak kullanılan doğal hammadde ve atık malzemelerin kimyasal analizleri (XRF).

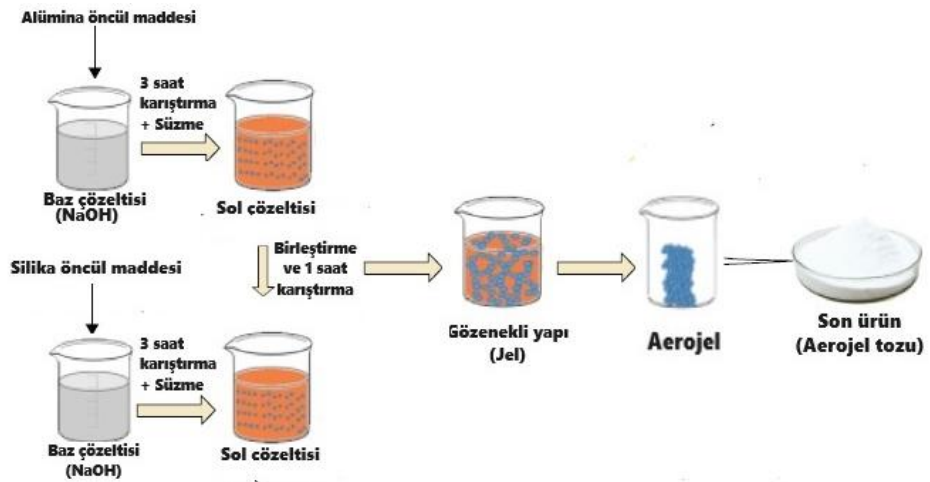
Bileşenler (ağ. %)	Şamot tuğlası	Perlit	Diatomit	Zeolit	Vollastonit	Eloksal atık
SiO ₂	42	74	85	71,9	52	1,098
Al ₂ O ₃	53	14,33	5	13,2	1	62,777
CaO	0,3	0,58	1	2	43,20	0,559
K ₂ O	-	4,95	-	3,5	0,20	0,169
Fe ₂ O ₃	1,5	0,97	1,5	1,4	0,25	0,365
MgO	0,2	0,28	0,5	1,1	1	0,517
Na ₂ O	-	3,5	-	0,3	0,20	1,129
TiO ₂	1,3	-	-	0,1	-	-
MnO	-	-	-	0,1	-	-
ZnO	-	-	-	-	-	4,66

Öncül maddeler hazırlanan baz/saf su (NaOH) çözeltilerinde belirli bir karıştırma hızında (4 rpm), belirli bir süre sıcaklık etkisiyle (120°C, 3 saat) çözündürülmüş ve sonrasında filtrasyon yapılarak alümina ve silikaca zengin sıvı sol çözeltileri elde edilmiştir. Elde edilen sol çözeltileri birleştirilerek 1 saat süre ile karıştırılarak alümina-silika sol çözeltisi elde edilmiştir. Bu çözeltilerin pH'ı asit/distile su çözeltisi kullanılarak nötralize edilmiş (pH~7) ve üzerleri streç film ile kaplanarak 15 gün boyunca beklenmiş, 15. gün sonunda süzülerek jel elde edilmiştir. Jeller elde edildikten sonra saf suda 1 hafta boyunca bekletilmiş ve bu esnada saf suyla yenileme işlemi yapılmıştır. Yaşlandırma işlemlerine sırasıyla, hacimce %45'lik saf su/etanol (2 gün), %100 etanol (5 gün) içerisinde jeller bekletilerek yaşlanma işlemine devam edilmiştir. Alümina-silika aerojel yapısındaki bağları kuvvetlendirerek malzemenin dayanımını arttırabilmek için yaşlandırma evresinde özellikle etanol ile yüzey modifikasyonu yapılmıştır. Yaşlandırma işlemi ardından süzülüp iskelet yapısı kuvvetlendirilmiş alümina-silika esaslı jeller, belirli sürelerde ve sıcaklıklarda atmosfer basıncı altında kurutularak yapılarındaki sıvı uzaklaştırılmış olup alümina-silika esaslı aerojel tozları elde edilmiştir.

Şekil 3.1 ve Şekil 3.2'de atık ve doğal malzemelerden sol-jel yöntemi ile üretilen alümina-silika esaslı aerojel tozlarının üretim akış şeması ve şematik gösterim verilmiştir. Elde edilen alümina-silika esaslı aerojel tozlarına SEM, EDS, FESEM, XRD, BET, FTIR, yoğunluk ve termal iletkenlik analizleri yapılmış ve üretilen tozların özellikleri karşılaştırılmıştır.



Şekil 3.1. Alümina-silika aerojel kompozit üretimi akış şeması.



Şekil 3.2. Alümina-silika aerojel kompozit üretimi şematik gösterim.

3.2. Alümina-silika Aerojel Üretiminde Kullanılan Başlangıç Maddeleri

Alümina-silika esaslı aerojel tozları üretmek için; alümina kaynağı olarak şamot tuğlası ve alüminyum eloksal atık, silika kaynağı olarak perlit, diatomit, zeolit (Mec enerji) ve vollastonit doğal hammaddeleri ve atık malzemeleri kullanılmıştır. Silika-alümina esaslı aerojel üretim sürecinde sodyum hidroksit (NaOH, %99), etanol (C₂H₅OH, %99,5), hidroklorik asit (HCl, %37) ve elde edilen jelin yıkama ve çözeltiye alma aşamalarında saf su kullanılmıştır. NaOH, C₂H₅OH ve HCl Merck Kimya firmasından temin edilmiştir.

3.2.1. Şamot tuğlası

Şamot; refrakter kil vb. hammaddelerin pişirilip öğütülmesiyle elde edilen kalsine edilerek suyu çıkarılmış, kuruma ve pişirme küçülmesi azaltılmış ve alüminyum oksit içeriği yükseltilmiş hammadde biçiminde tanımlanmaktadır. Üretim sürecinde maruz kaldığı işlemler sonucu yapısında tuz veya organik madde bulundurmamaktadır, kuruma küçülmesi azaltılmış ve alüminyum oksit içeriği yükseltilmiştir. Bu tanıma uygun az plastik veya plastik olmayan killere Avrupa’da ve ülkemizde şamot, ABD’de ise kalsine kil denilmektedir. Kaolen ve halloysitte şamotlaştırılarak refrakter hammadde olarak kullanılabilir. Hatta yüksek alüminalı alünitlerden de aynı amaçla şamot üretilebilmektedir [14, 121].

Şamot ateş tuğlası, refrakter malzeme grubundakiler arasında en çok sarfedilenlerden olup sanayide kullanımını %55 seviyelerinde olup; başlıca yapısını Al₂O₃ ve SiO₂ oluşturmaktadır. Şamot killeri genellikle göl ortamlarında, su altındaki feldispatça zengin yüzey taşlarının (andezit vb.) veya volkanik tüflerin bozuşması sonucu oluşur [14, 122]. Kilin oluşması için su içerisinde uygun pH ortamı varlığında yeterince humus asitin bulunması gereklidir çünkü bu asit, kilin ateşe dayanıklılığını önleyen oksitleri (Fe₂O₃, K₂O, Na₂O, CaO gibi) çözerek bünyesinden uzaklaştırmaktadır. Bu oksitlerin varlığı kilin refrakterliğini önemli ölçüde düşürmektedir.

Şamot killerinin renkleri genellikle açık bej, kurşuni ve açık kahverengi olup; suda hemen dağılmaları ile tanınmaktadırlar. İç bünyelerine sudaki organik maddeleri kolaylıkla almaları ve su barındırmaları sebebiyle, ateş kayıpları da yüksektir. Islak halde kurşuni renklerdeyken, pişirildiklerinde açılır ve bünyeleri büyük ölçüde kırılabilirlik kazanmaktadır. Şamot kil yataklarının ana kil minerali kaolenit ve buna takiben gibsitir (Al₂O₃.3H₂O).

Şamot (ateş) killerinin toplam rezervi 100 milyon ton kadar olup, bunun 66 milyon tonu İstanbul'da Sarıyer, Eyüp, Şile, Büyükdere ve Rami kesimlerinde, kalanı da Çankırı-Korkun, Bilecik-Söğüt-İnhisar ve Kayseri-Felahiye-Badanılık kesimlerinde yer almaktadır [121, 122, 123, 124]. Türkiye toplam rezervi Tablo 3.2'de gösterilmiştir.

Tablo 3.2. Şamot tuğlasının Türkiye rezerv yer ve miktarları [125].

Rezerv yerleri	Rezerv miktarı (ton)
İstanbul (Sarıyer, Şile, Eyüp, Büyükdere ve Rami)	66.485.000
Çankırı (Korkun, Kayaçıvi)	27.000.000
Bilecik (Söğüt, İnhisar ve Esiri)	6.040.000
Kayseri (Felahiye ve Badanılık)	456.000
Çanakkale (Yenice, Yarış ve Çandere)	300.000
Toplam	100.281.000

Yapılarında bulunan ağ. %53 ve üzeri alüminyum oksit sebebiyle şamot tuğla harcı mevcut çalışmada önemli bir alümina kaynağı olarak kullanılmıştır.

3.2.2. Perlit

Perlit, düşük yoğunluğu sebebiyle oldukça hafif ve yüksek gözenekli olup ısıyla genişleme özelliği olan bir kayadır. Doğadan bir çeşit taş olarak çıkarılmakta olan perlit öncelikle öğütülüp toz hale getirilerek çok yüksek sıcaklıklarda pişirilirlir ve bu toz taneleri tıpkı bir mısır tanesi gibi patlayarak hafif perlit tozlarını oluşturmaktadırlar. Pişirme süresi ve sıcaklığıyla orantılı olarak farklı granül boyutlarında üretilebilmektedir. Herhangi bir işlem görmeden önce perlit rengi açık griden parlak siyaha doğru iken, genişlediğinde tamamen beyazlaşmaktadır. Bileşiminde bulunan %2-6 oranlarındaki su, perlitin kararlılığını sağlamaktadır [126]. Türkiye, Yunanistan, Japonya ve ABD perlit rezervleri bakımından zengin ülkelerdendir. Özellikle ülkemiz perlit kaynakları açısından oldukça zengindir.

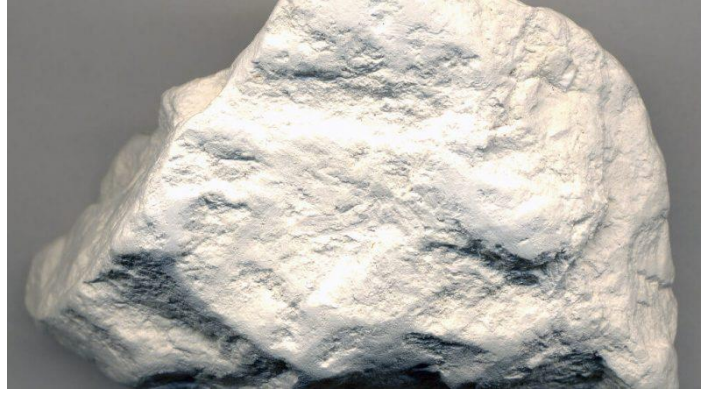
Dünya perlit rezervlerinin %74'ü ülkemizde bulunmakta olup; yaklaşık olarak 7,7 milyar ton perlit rezervi olduğu bilinmekte; bu rezervin 2 milyar tonu aşan %34'lük bölümü Kars'ta bulunmaktadır. Hammadde olarak ekonomik açıdan maliyeti düşük

olan bu doğal hammadde kaynağının katma değeri yüksek ürünlere dönüştürülmesi ülke ekonomisi ve insan yararı açısından önemlidir. Perlit üstün özelliklerinden dolayı inşaat, tarım, gıda, ilaç ve kimya, metalurji gibi birçok alanda kullanım bulmakta olup; kullanım alanları şu şekilde sıralanabilir:

1. Isı ve ses yalıtımında dolgu maddesi olarak,
2. Yüzey döşemelerinde ısı veya ses yalıtıcı olarak,
3. Toprağın fiziksel özelliklerini arttırıcı "substrat" maddesi olarak,
4. Kimyasal ürünlerin üretiminde özellikle ilaç ve gıda sanayisinde süzme yardımcı maddesi olarak,
5. Sıvılaştırılmış gaz tanklarının termal yalıtımında,
6. Soğuk hava depolarının yalıtılmasında,
7. Katkı maddesi özelliğiyle seramik yapı malzemeleri ve cam sanayiinde ve
8. Kimya sektöründe kullanılan dolgu malzemelerinde kullanım yeri bulunduğu söylenebilmektedir [127].

3.2.3. Diatomit

Diatomit, İngilizce literatürde diatome toprağı veya Almanca ve Fransızca literatürde kizelgur olarak da isimlendirilebilen bir mineral olup, su yosunları sınıfından tek hücreli mikroskobik alglerin (diatom) fosilleşmiş silisli kavkılarında oluşmaktadır. Türkiye, diatomit rezervi bakımından oldukça zengin olup, ülkemizde yaklaşık 200 milyon ton civarında bulunduğu düşünülmektedir. Dünya diatomit rezervi ise 1 milyar ton civarında tahmin edilmektedir [128]. Diatomitin özellikle Avrupa'da kaliteli ve işlemeye elverişli kaynakları giderek azalmaktadır. Ülkemizde oldukça bol ve kaliteli rezervleri bulunmakta ve katma değerli ürünlere dönüştürülebilmesi için üretimden tüketime kadar her aşamada gerekli ilgi ve desteğin sağlanması, pazarlama ve ihracat imkânlarının araştırılarak artırılması, ülkemizdeki mevcut ve muhtemel diatomit rezervlerinin de araştırılması gerekmektedir [129]. Diatomitin filtrasyondan dolgu malzemelerine ve refrakterlere kadar uzanmakta olan geniş bir alanda kullanımı mevcuttur [128]. Şekil 3.3'te diatomitin kayaç yapısı gösterilmektedir.



Şekil 3.3. Diatomitin kayaç yapısı [130].

Diatomların yaşam döngülerini tamamlamasıyla silisli kabukları bir araya toplanarak çökelmekte ve diatomit kaynaklarını oluşturmaktadır. Aktif diatome kolonileri tür, çoğalma hızları, ortam şartları gibi değişen koşullar da göz önünde bulundurularak yılda 0,1-4 mm arası bir kalınlıkta bir çökeltme hızına ulaşabilmektedir [128]. Diatomitin 1 cm³'ünde her biri 0,0001-4 mm çapında olan 1-30 milyon adet diyatome kabuğu ve bu kadar da gözenek bulunmaktadır [131]. Diatomların hücre çeperleri amorf silisten (SiO₂.nH₂O) oluşmuş olsa da diatomun yaşamı için gerekli olan çeşitli elementleri (Al, Fe, Ca, Mg, Na, K) de yapılarında bulunmaktadır [128]. Rezervler, oluşma ortamının yapı ve koşulları ile ilişkili olarak, kil, volkanik kül, kum ve organik kalıntılar barındırabilmektedir [132].

Diatomitin %85–90 gözenekliliğe sahip bir doku meydana getirebilecek özel yapısı, kimyasal etkilere karşı direnci, steril özelliği, hemen hemen rakipsiz olduğu kullanım alanı gibi eşsiz özelliklere sahiptir. Gözenekli yapısı ona, geniş bir süzme yüzeyi sağlamakta olup; yağ ve bazı mikroorganizmaları adsorbe etmesi ve hacimli olması nedeniyle filtrasyonun hızlı olmasını da sağlamaktadır. Diatomit kullanımı filtrasyon alanında %66 civarlarında en fazla paya sahip olup; minimum %84 SiO₂ içermesi istenmektedir. Diatomitin en büyük pazarının filtrasyon alanı olduğu ve özellikle bira filtrasyonunda %95 oranında diatomit kullanıldığı bildirilmektedir. Çevre kirliliğinin giderilmesine yönelik olarak birçok araştırmacı diatomiti ağır metal ve boyar madde giderimi alanında adsorbant olarak kullanmayı denemiş ve bu çalışmalar son yıllarda artmaktadır [133]. Diatomitin en yaygın kullanıldığı alanlar: boya, plastik, kâğıt, lastik, ilaç, kozmetik, cila, kibrit, diş macunu ve bazı kimyasal maddelerin üretimidir [132].

3.2.4. Zeolit

1950'li yıllarda doğal ve saf zeolitlerin kullanımı deniz ve gösel tüflerde zeolit hammaddesine rastlanması ile yaygınlaşmaya başlamıştır. Adsorpsiyon ve moleküler elek özelliği, saf silisyum içeriği, düşük yoğunluğu, hafifliği, gözenek boyutu ve yapısı gibi çeşitli özellikleri sayesinde birçok endüstriyel sektörde (tarım ve hayvancılık, enerji, kirlilik kontrolü ve önlenmesi, metalürji ve malzeme vb. gibi) kullanım alanı bulmuşlardır [134].

Zeolitler, düzenli, üniform gözenekli ve moleküler boyutlarda kanallara ve dolayısıyla yüksek yüzey alanına ($350-450 \text{ m}^2/\text{g}$) sahip alüminasilikatlardır. Zeolitler ve zeotipler, oksijenle bağlanmış T'nin dörtyüzlü birimlerinden oluşur (T, zeolitler için tipik olarak Si ve Al'dir, geçiş metalleri ve zeotipler için B, Ga, Fe, Ge, Ti, Cu vb. gibi diğer elementlerdir). Zeolitlerin ayarlanabilir mikro gözenekliliği, onları şekil seçici moleküler elekler yapar. Zeolitler ve zeotipler adsorbanlar, katalizörler ve iyon değiştiriciler olarak geniş kullanım alanı bulmaktadır. Zeolitlerin kullanım alanları arasında gaz sensörleri, fotovoltaj güneş pilleri, ilaç dağıtımı ve gaz depolama bulunmaktadır. Zeolitlerin kristal içi difüzyon kısıtlamaları, zeolit yüzeyinin düşük kullanımına sebebiyet verdiği ve bağlayıcıların kullanımını gerektirdiği için zayıf kalıplama özelliklerine yol açan temel sorunlardır. Difüzyon kısıtlamaları, zeolit partiküllerinin boyutunu azaltarak veya mikro gözenekleri ve mezo/makro gözenekleri taşımayı birleştiren hiyerarşik bir gözenek mimarisi yaratarak ortadan kaldırılabilir. Bağlayıcılar kullanılarak zeolitlerin kalıplanması, genellikle mikro gözeneklerin tıkanmasından kaynaklanan kütle taşınmasını engelleme sorununa neden olur.

Silika aerojel kompozitleri genellikle konuk partiküllerin jelleşmeden önce ıslak silika sol içinde dağıtılmasıyla veya kuru silika arojelin moleküler öncülerle emprenye edilmesiyle hazırlanmaktadır. Silika aerojel kompozitlerle ilgili literatür verileri, TiO_2 , Ag, Au, Pd, CuO, SnO_2 nanoparçacıkları, vollastonit, sepiyolit gibi çok çeşitli farklı dağılmış malzemeleri kapsar. Yapılan bir çalışmada silika arojelin matrisine gömülü Fe içeren zeolit nanokristallerine dayanan yeni kompozit malzemeler sentezlendi. Fenole N_2O ile benzen hidroksilasyonu, amonyak ile nitrik oksidin katalitik indirgenmesi, organik bileşiklerin hidrojen peroksit ile kısmi oksidasyonu, organik kirleticilerin toplam oksidasyonu ve radyoaktif atıklardan radyonüklidlerin çıkarılması gibi katalitik uygulamalar Fe içeren zeolit/silika aerojel kompozitlerinin uygulama alanlarındandır. Mezogözenekli silika aerojel matrisinde zeolit

nanokristallerinin dağılması, kütle taşıma engellerini ve geleneksel kalıplama ile ilişkili mikro gözeneklerin tıkanmasını çözmektedir. Yapılan bir çalışmada zeolit/silika aerojel kompozitleri, monolitler ve mikroküreler şeklinde emülsiyon/jelasyon tekniği ile sentezlenmiştir [135].

3.2.5. Vollastonit

Vollastonit bir endüstriyel bir mineral olup, doğal kalsiyum metasilikat (CaSiO_3) olarak tanımlanmaktadır. Yapılan araştırmalar neticesinde, vollastonitin birçok endüstriyel kullanım alanına sahip olduğu ve geleneksel minerallerin yerine kullanıldığında da pek çok avantaja sahip olduğunu kanıtlanmıştır. Üretim esnasında karışım içerisindeki vollastonitin birleştirici rolü, Amerikan seramik endüstrisinde geniş uygulama alanları yaratmıştır. Vollastonit kullanımıyla üründeki mukavemetin artışı ve tek pişirim karolarda pişme süresinin önemli oranda azalması gibi avantajlar görülmektedir. Vollastonitin teorik bileşimi %48,3 CaO ve %51,7 SiO_2 'den oluşmaktadır. Ticari olarak değerlendirilebilen vollastonitin belirli yörelerden alınan numuneler üzerinde yapılan kimyasal analizleri Tablo 3.3'te gösterilmiştir.

Tablo 3.3. Saf vollastonitin bazı özellikleri.

Sertlik (Mohs skalası)	4,5-5
Yoğunluk (g/cm^3)	2,8-309
Molekül ağırlığı	116
Erime noktası ($^{\circ}\text{C}$)	1540
Isısal genleşme katsayısı ($\text{mm}/^{\circ}\text{C}$)	$6,5 \times 10^6$
Suda eriyebilirliği ($\text{gr}/100 \text{ ml}$)	0,0095
Nem içeriği (max %)	4
Kırılma indeksi	a=1,616-1,640 b=1,628-1,650 g=1,631-1,653
Kristal sistemi	Monoklinik ya da triklinik
Mevcut bulunma şekli	İğne ya da bıçak şekilli kristal agregat kitleleri
Polimorflar	Vollastonit (triklinik)-düşük sıcaklık oluşumlu
Psödovollastonit (triklinik)	Yüksek sıcaklık oluşumlu
Parlaklık	Camsı, şeffaf, yarı-şeffaf
Renk	Genellikle beyaz, bazen krem ve gri

Saf halde beyaz lifsi bir görünümde olan mineral, empüriteler (safsızlıklar) nedeniyle gri ya da kahverengi renge sahip olabilmektedir. Jeolojik olarak; skarn zonlarında kontakt metamorfizma ürünü olarak, genellikle kireçtaşı, granit kontaktlarında oluşmaktadır. Skarnlar, magmadan kireçtaşlarına silikat, alüminyum, demir ve manganez aktarımı ile oluşmuştur. Dolayısıyla meydana gelen reaksiyon skarn zonlarından veya magmadan silikat ve kireçtaşından kalsitin gelişi ile gerçekleşmektedir. $SiO_2 + CaCO_3 = CaSiO_3 + CO_2$ denklemi ile oluşmaktadır. Kuvars ve kalsit, düşük sıcaklıklarda (450-600°C) vollastoniti oluşturmaktadır. Vollastonit dönüşümü ile, CO_2 yayılımı sebebiyle basınç yükselir ve reaksiyonun devamlılığı için yüksek sıcaklık ihtiyacı artar. Bu esnada, CO_2 gazının kırık ve çatlak zonlarına kaçma eğiliminden dolayı basınç azalmakta ve reaksiyon düşük sıcaklıklarda devam etmektedir. Ancak basınç yükseldiğinde reaksiyon sıcaklığı aniden artmaz, tersine reaksiyon ve kalsit oluşumu gerçekleşmektedir.

Vollastonitin kristal sistemleri farklı iki adet polimorfu mevcut olup bunlar; düşük sıcaklık oluşumlu vollastonit ve yüksek sıcaklık oluşumlu psödovollastonit (bourgeoisite)'dir. Minerolojik esaslara göre, düşük sıcaklıkla oluşan α -vollastonit, yüksek sıcaklıkla oluşan ise β -vollastonit olarak adlandırılmaktadır. Çimento endüstrisinde ise yüksek sıcaklık oluşumlu olana α - $CaSiO_3$, düşük sıcaklıkla oluşan vollastonite ise β - $CaSiO_3$ adı verilir.

Düşük sıcaklık polimorf oluşumlarının iki tipi olup bunlar; mineralojik olarak triklinik kristal sistemli ve monoklinik kristal sistemli (paravollastonit) olarak bilinmektedir. Vollastonit oluşumları, genellikle triklinik sistemlidir. Monoklinik sistemde oluşan paravollastonitin vollastonite dönüşümü mümkündür. Wonte Somma, Vesuvius, Crestmore, California ve Csiklova-Romanya'da paravollastonit oluşumları tanımlanmıştır. İki vollastonit tipi de zaman zaman benzer koşullar altında kristalleşerek bir arada oluşum da gösterebilmektedirler. İri yapraklı kütleler halinde oluşan vollastonit iyi bir kristal yapı göstermekte olup; genellikle iğne uçlu sivri görünümlü veya küçük parçacıklar içinde lifli bir yapıda gözlenmektedir [136].

3.2.6. Alüminyum eloksal atığı

Alüminyum eloksal atık, alüminyumun çeşitli kullanımları sonucunda oluşmuş ve geri dönüştürülememiş çevreye zararlı bir atık türüdür. Alüminyum, hafifliği ve dayanıklılığı sebebiyle günümüzde pek çok farklı sektörde kullanım alanlarına

sahiptir. Alüminyumun dayanıklılığını arttırmak ve dekoratif bir görüntü sağlamak için “eloksal” denilen bir yüzey işlem prosesi uygulanmaktadır. Alüminyum eloksal kaplama banyolarından geçirilmeden önce mekanik (polisaj (parlatma), satinaj, çapak alma, veya kumlama vb.) ve kimyasal (yağ alma, matlaştırma) bazı ön işlemlerden geçirildikten sonra eloksal işlemine alınmaktadır [137].

Ambalaj malzemeleri, içecek kutuları, alüminyum folyo, alüminyum levhalar, alüminyum profil parçaları, endüstriyel atıklar veya eski alüminyum eşyalar gibi kaynaklar, alüminyumun kazanılması için kullanılacak potansiyel atıklardandır.

Alüminyum atık geri kazanımı süreci, kullanılmış veya işlenmiş alüminyum malzemelerin geri dönüştürülerek üretimde tekrar kullanılabilir hale getirildiği süreçtir. Alüminyum atık geri dönüşü olarak da adlandırılan bu süreç; atığın çevreye olan zararlı etkilerini azaltmak, doğal kaynakları korumak ve enerji tasarrufu sağlamak açısından son derece önemlidir. Alüminyum malzeme, geri dönüştürülebilir ve sonsuz kez kullanılabilir malzemedir. Bu nedenle alüminyum geri dönüşümü üretimde sürdürülebilirliğin sağlanması açısından önemli bir konudur. Ambalaj gibi alüminyum malzemelerin geri kazanımı, doğal kaynakların korunması açısından da oldukça önemlidir [138].

Üretimde kullanılan alüminyum eloksal atığı çeşitli işlemlerden geçirilerek üretimde kullanılması sonucu gerçekleşen alüminyum atık geri kazanımı süreci; kaynakların korunması, enerji tasarrufu ve çevreye zararlı etkilerin azaltılması açısından büyük bir öneme sahiptir. Alüminyum atıkların geri dönüşümü doğaya fayda sağladığı gibi üretim sürecine de katkı sağlayarak üretimin sürdürülebilir olmasını sağlayacaktır. Alüminyumun ekstrakte edilmesi ve işlenmesi oldukça fazla enerji gerektiren bir işlemdir. Alüminyumun geri dönüşüm işlemi enerji ve doğal kaynak tüketimini azaltmaktadır. Bu sayede ormansızlaşma, maden ocaklarının açılması gibi faaliyetlerden ileri gelen doğal kaynaklara zarar verilmesi önlenmektedir. Alüminyum geri kazanımı, yeni alüminyum üretimine kıyasla yaklaşık %95 daha az enerji gerektirmektedir. Ayrıca geri dönüşüm işlemi, iklim değişikliği ile mücadele konusuna katkı sağlamak için fosil yakıt tüketimini ve sera gazı emisyonlarını, atık hacmini ve çöp sahası kullanımını azaltmaktadır. Bu sayede yakma ve düzenlenmemiş depolama alanları gibi tehlikeli atık bertaraf yöntemlerinin kullanımını azaltacağı için atık bertaraf sorunlarının ve çevre kirliliğinin önlenmesini sağlanmış olacaktır. Dolayısıyla alüminyum atıkların geri dönüştürülmesi sürdürülebilir bir geleceğe,

kaynakların verimli kullanılmasına, enerji tasarrufuna, atıkların ve çevrenin yönetimine katkı sağlamaktadır. Bunun amacı daha iyi yaşam koşullarına ulaşmak ve gelecek nesiller için kaynakların devamlılığının sağlanmasıdır [138].

3.3. Deneyin Yapılışı

3.3.1. Başlangıç malzemeleri

Baz kaynağı olarak NaOH (MERCK 40 g/mol), alümina kaynağı olarak şamot tuğlası ve eloksal atık, silika kaynağı olarak perlit, diatomit, zeolit, vollastonit, jel yapısını güçlendirmek için etanol (ISOLAB %99,9), asit kaynağı olarak HCl (ISOLAB %37) kullanılmıştır.

3.3.2. Alümina-silika esaslı aerojel tozunun üretimi

3.3.2.1. Çözeltinin hazırlanması

Ön işlemler: Kullanılan hammadde kaynakları 45 µm elekten elenmiştir.

20 gram alümina (şamot tuğla harcı) ve 10 gram silika başlangıç tozları, hazırlanan sırasıyla 1M ve 3M'lık 100 ml baz/saf su (NaOH) çözeltileri ile ağzı kapalı bir beherin içinde manyetik karıştırıcıda 3 saat 120°C sıcaklıkta karıştırılarak alüminaca ve silikaca zengin sol çözeltileri ayrı ayrı elde edilmiştir. Çözelti bir süre bekletilerek soğuduktan sonra çözünmemiş olan katı parçacıkların ayrılması için süzülmüştür. Filtre edilme (süzülme) işlemi için 125 mm çapında filtre kağıtları kullanılmıştır. Eloksal atığın alümina öncülü olarak kullanıldığı N7-N11 kodlu numuneler 15 gram alümina öncülü 15 gram silika öncülü oranlarında sadece 3 M baz/asit derişiminde hazırlanmıştır. Şekil 3.4'te örnek olarak perlit ve şamot tuğlasına uygulanan karıştırma, filtre etme (süzme) ve sol çözeltisi eldesi aşamaları gözlenmektedir.



(a)

(b)

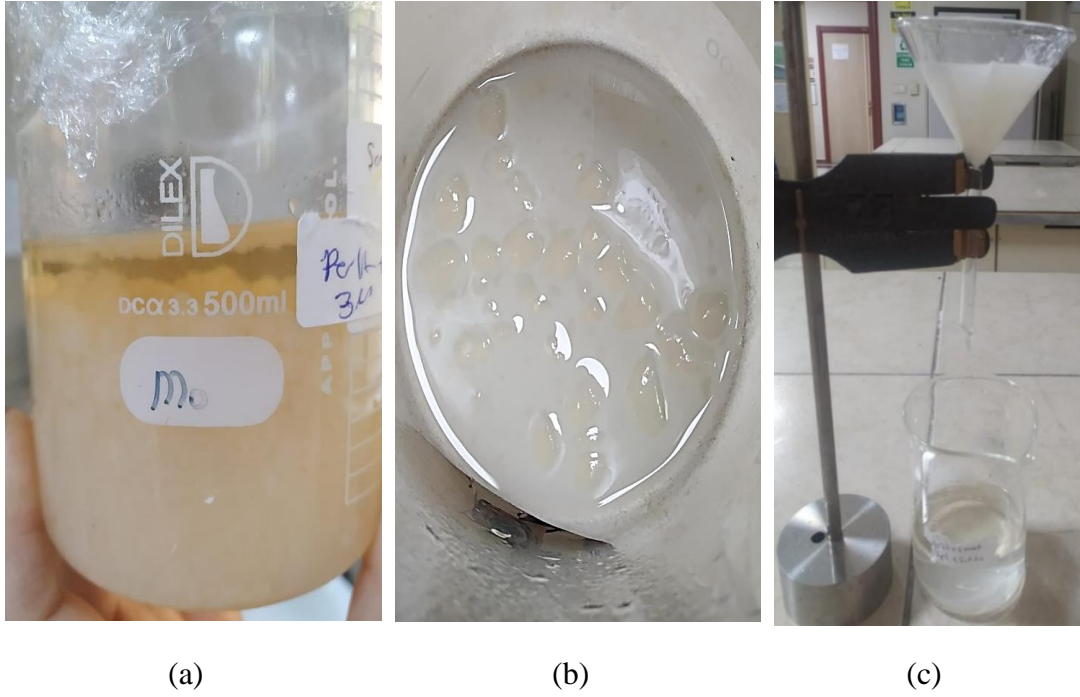
(c)

Şekil 3.4. Perlit ve şamot tuğlasının a. Baz çözeltisi ile karıştırma, b. Filtrasyon işlemi ve c. Sol çözelti eldesi işlemleri.

3.3.2.2. Jelin yaşlandırılması

Çözeltilerin pH'ı asit/distile su (HCl, çözeltisi ile nötralize edilmiş (pH~7) ve üst kısımları streç filmle kapatılan çözeltiler, yaşlandırma işlemi için 14 gün süreyle bekletilmiştir.

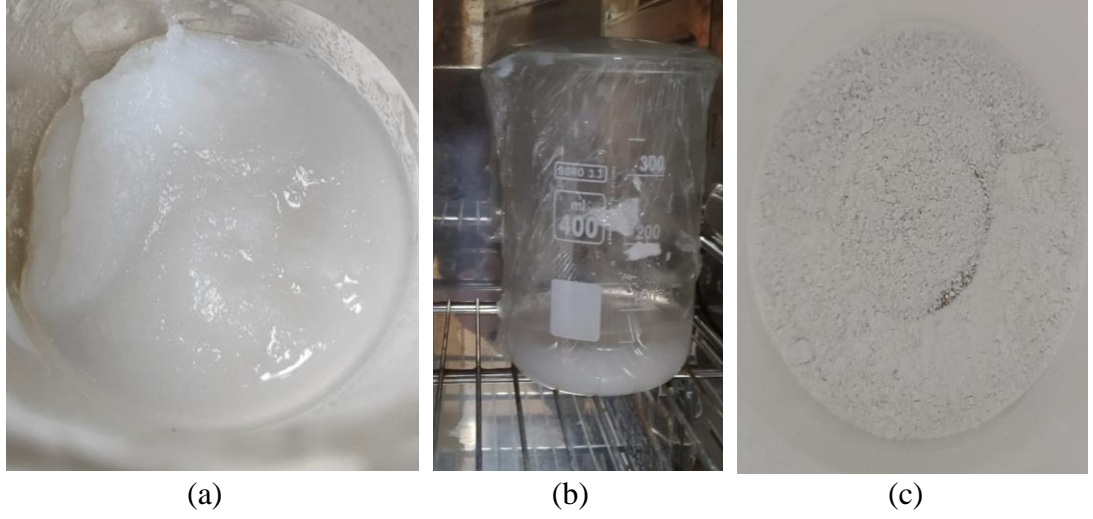
Yaşlandırma işlemi ardından jel distile su ile yıkanıp süzülerek bünyesindeki sodyum hidroksit ve sodyum klorür kalıntıları uzaklaştırılarak Na oranı düşürülmüştür. Elde edilen jel iki kez değiştirilmek üzere 7 gün süreyle saf suda bekletilip süzülerek çözeltilerden ayrıştırılmıştır. Jelin iskelet yapısını sağlamlaştırıp, bağ yapılarını güçlendirebilmek amacıyla uygulanan yaşlandırma işlemlerine, hacimce %45'lik saf su/etanol (2 gün) 60°C'de, çözeltiyi tekrar filtre edip %100 etanol çözeltisinde (5 gün) 60 °C'de ve sonucunda filtre edilen jel oda sıcaklığında 1 gün bekletildikten sonra 120 °C'de 2 gün kurutulmuştur. Hazırlanan bu çözeltiler ve etanol içinde bekletilen jelin yaşlandırılarak modifikasyonundaki amaç jel iskelet yapısını güçlendirerek bağları sağlamlaştırmaktır. İskelet yapısı kuvvetlenmiş alümina ve silikaca zengin jeller, 48 saat 120 °C atmosfer basıncı altında kurutma ile kurutulmuş; yapılarındaki sıvı (çözelti) yapıdan uzaklaştırılarak alümina-silika esaslı aerojel tozları elde edilmiştir. Şekil 3.5'te şamot tuğla harcı ve perlitten elde edilen yaşlandırma aşaması için bekletilen jel ve yaşlandırma aşamasındaki filtrasyon işlemi verilmiştir.



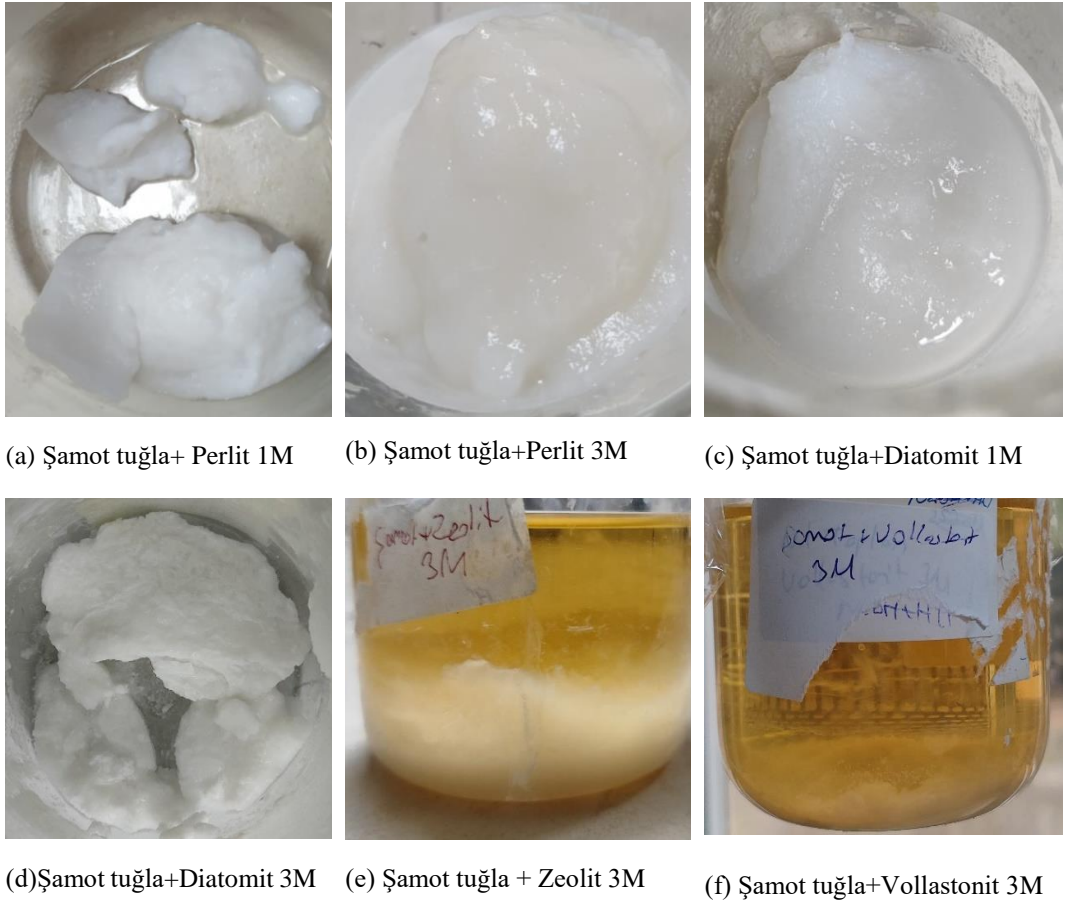
Şekil 3.5. Şamot tuğla harcı ve perlitten üretilen jelin a. Yaşlandırma süreci, b. Filtrasyon öncesi elde edilen jeller ve c. Yaşlandırma sonrası süzme işlemi.

3.3.2.3. Jelin atmosferik şartlarda kurutulması

Elde edilen jellerin iskelet yapılarını koruyabilmek amacıyla çözücülerin jelden giderilmesine yönelik yaşlandırma işleminin ardından jel, etüvde 120 °C'de 48 saatte atmosferik koşullarda kurutulmuştur. Kurutma işleminden sonra alümina-silika esaslı aerojel tozu elde edilmiştir. Şekil 3.6'da şamot tuğlası ve perlit çözeltisinin yaşlandırma sonrası jel hali, atmosferik koşullar altında kurutma ve aerojel tozu eldesi aşamaları; Şekil 3.7'de ise tüm atıklardan elde edilmiş farklı kodlara sahip alümina-silika esaslı kompozit aerojellerin elde edilen jel görüntüleri görülmektedir. Kompozit aerojel tozu eldesi için şamot tuğla harcı ve perlit tozlarına uygulanan tüm proses aşaması şamot tuğlasıyla birleştirilen zeolit, vollastonit ve diatomite, eloksal atık ile birleştirilen perlit, zeolit, vollastonit ve diatomite de uygulanmış ve böylece 6 farklı hammadde ve atıktan alümina-silika esaslı aerojel tozu üretimi gerçekleştirilmiştir.



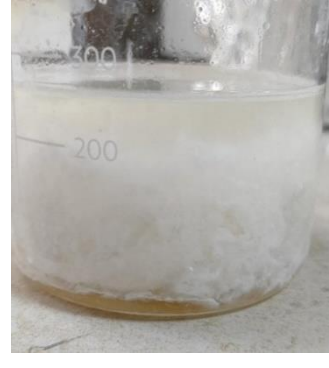
Şekil 3.6. Şamot tuğlası ve diatomitten elde edilen a. Yaşlandırma işlemi sonrası jel hali, b. Atmosferik koşullarda kurutma işlemi ve c. Üretilen alümina-silika esaslı aerjel tozları



(a) Şamot tuğla+ Perlit 1M (b) Şamot tuğla+Perlit 3M (c) Şamot tuğla+Diatomit 1M

(d)Şamot tuğla+Diatomit 3M (e) Şamot tuğla + Zeolit 3M (f) Şamot tuğla+Vollastonit 3M

Şekil 3.7. Elde edilen çözeltilerin yaşlandırma işlemi sırasındaki jel yapıları.



(g) Şamot tuğla+Eloksal atık 1M (h) Eloksal atık + Perlit 3 M (i) Eloksal atık + Diatomit 3M



(i) Eloksal atık+Zeolit 3 M



(j) Eloksal atık+Vollastonit 3 M

Şekil 3.7. (Devamı) Elde edilen çözeltilerin yaşlandırma işlemi sırasındaki jel yapıları.

Şamot tuğlası ve perlitten üretilecek olan kompozit aerjel tozu için ilk olarak 100 ml hacminde 1 M NaOH çözeltisi hazırlanmış fakat jelleşme görülmemiştir. Bu sebeple molarite değişikliği öncesinde 1 M 250 ml denenmiş ve yeterli jelleşme görülmüştür. N1 kodlu, 20 gr şamot tuğlası, 10 gr perlit ile 1 M NaOH 250 ml çözeltisine alınarak ve HCl ile nötralize edilerek (pH~7) üretilmiştir. Kompozit aerjel üretimi yapıldığı ve öncüller ayrı ayrı 250 ml’de çözeltilere alındığı için nötralizasyon ile birlikte en az 1000 ml’lik beherler gerekmektedir. Bu da süreci zorlaştırdığı için (etüve sığmama, malzeme sarfiyatının fazla olması vb.) diğer üretimlerde 100 ml hacimde denenerek devam edilmiştir.

Tüm Deneyleerde Kullanılacak parametreler;

- Silika öncüllerinin değişimi (Perlit, zeolit, diatomit, vollastonit)
- Alümina öncüllerinin değişimi (Eloksal atık, şamot tuğla harcı)
- Baz türü (NaOH)
- Asit türü (HCl)
- Asit ve baz miktarının değiştirilmesi (1M, 3M)
- Yaşlandırma kimyasalı (%45 etanol/saf su, % 100 etanol)
- Saf su ile yıkama

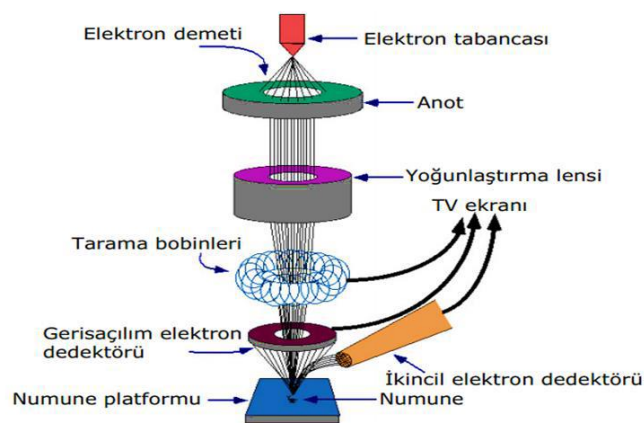
- Atmosferik Şartlarda Kurutma

3.4. Alümina-Silika Aerojelin Karakterizasyonu

Atık malzeme ve doğal hammaddelerden üretilen alümina-silika esaslı aerojel tozlarının yapısal özellikleri çeşitli karakterizasyon yöntemleriyle karakterize edilerek belirlenmiştir. SEM (Scanning Electron Microscopy) ve FESEM (Field Emission Scanning Electron Misroscopy) ile üretilen tozların mikroyapı ve elementel analizi, toz tane aralık ve boyutları, XRD (X-Işını Difraktometresi) ile faz tayini, FTIR (Fourier Transform Infrared Spectroscopy) analizi ile bileşiklerin tespiti ve kimyasal bağların analizi (hangi tür bağların bulunduğu), BET (Brunauer-Emmett-Teller) metodu ile yüzey alanı, ortalama gözenek çapı, gözenek hacmi ve partikül boyutu analizleri yapılmıştır. Ayrıca üretilen tozların termal iletkenlik katsayılarının belirlenebilmesi için termal iletkenlik analizi ve hacmi belli bir kap yardımıyla yoğunluk hesaplamaları da gerçekleştirilmiştir.

3.4.1. SEM analizi

Taramalı Elektron Mikroskobunda (SEM) görüntü, analiz edilecek numune yüzeyine demet halinde gönderilen elektronların numune boyunca taranması ve numuneden saçılan elektronların algılayıcılarda toplanarak bir katot ışını tüpünün ekranına verilerin gönderilmesiyle elde edilmektedir [139]. Şekil 3.8’de SEM’in çalışma prensibi verilmiştir.



Şekil 3.8. SEM'in çalışma prensibi [139].

Topografik bir inceleme metodu olup numunelerin mikroyapı özelliklerini belirlemek için yapılmaktadır [14]. Bu çalışmada alümina ve silika başlangıç tozlarının ve

sentezlenen alümina-silika esaslı aerojellerin mikro yapısal özelliklerini ve elementel analizini belirlemek için SEM analizi yapılmıştır. Ayrıca tozlardaki elemental yüzdelerini inceleyebilmek için EDS analizi yapılmıştır. Şekil 3.9’da görülen Jeol 6060 LV model taramalı elektron mikroskobu (SEM) kullanılmıştır. Elde edilen veriler Bölüm 4.2’de sentezlenen alümina-silika esaslı aerojellere yapılan analizler kısmında verilmiştir.



Şekil 3.9. SEM cihazı.

Büyütme, çözme gücü ve derinliği SEM cihazının avantajları arasındayken, vakum, iletken numune, bakım masraflarının yüksek ve pahalı bir cihaz olması SEM’in dezavantajları arasındadır.

SEM cihazının kullanım alanları şu şekilde sıralanabilir:

Adli Tıp: Metal veya tahta parçaları, boya ve mürekkep gibi maddelerin karşılaştırılmasının yanında saç, deri parçaları, iplik gibi maddeler de adli laboratuvarlarda delil incelemeleri için kullanılmaktadır.

Metaller: Güvenlik sebebiyle güçlü metal kullanımının önemli olduğu uçak, otomobil, tren, gemi gibi araçlarında yapımında kullanılan metallerin dayanıklılığının belirlenmesinde kullanılmaktadır.

Bilimsel Araştırmalar: Biyologlar bitki ve hayvan dokularını (botanik, hücre biyolojisi alanlarında) incelemede, kimyagerler ve mühendisler ise maddelerin içerik analizlerini belirlemede, malzeme araştırmalarında, mikroskobik kristalleri ve plastik, metal, seramik gibi yapıları, pürüzlü yüzeyleri incelemede SEM’den yararlanabilmektedirler. Ayrıca, tıp (anatomi, biyokimya, fizyoloji, mikrobiyoloji, patoloji, toksikoloji gibi), üç boyutlu cisim incelemesi ve yüzey topografyası, malzeme hasarlarının incelemesi, dış

hekimliđi, arkeoloji, tekstil, mikroelektronikte yonga (chip) üretimi, sanayide hata analizleri gibi birçok alanda da SEM'den yararlanılmaktadır [140].

SEM içinde incelenen numuneler iletken olanlar ve olmayanlar şeklinde iki kısma ayrılmaktadır ve numune hazırlama esnasında dikkat edilecek faktörler şu şekildedir:

1. Numunenin boyutları: max. 7,5 cm en, max. 7,5 cm boy, max. 1,5 cm yükseklik olmalıdır. Gerekli olması halinde numunenin konulacağı yere uyması için küçültülmelidir.

2. Madde SEM içindeki yüksek vakuma karşı koyabilmeli, şekil değişikliğine uğramamalı ve fazla gaz çıkışı olmamalıdır. Soğuk stage bu durumda yardımcı olabilir.

3. Yük birikimi ve kirlenme gibi etkilere sebep olmaması için numune tozsuz, temiz, lekesiz ve yağsız olmalıdır.

4. Numunenin altınla kaplanması görüntünün daha iyi olmasını sağlayabilmektedir.

5. Hazırlama işlemleri esnasında yapının zarar görmesi durumunda bazı yüzeysel ayrıntılar meydana gelebilmekte olup bunlar resimleri kaydetme aşamasında anlaşılmaya çalışılmalıdır.

6. Çıkan sonuç neticesinde hazırlama işleminin hatalı olduğu düşünülüyorsa kontrol numunesi kullanılmalıdır.

7. Numunenin yüzeyi ve numune tutucusu arasında iyi bir elektrik teması olmalıdır. Örneğin numuneye gümüş iletken boyalar sürülebilir veya gerektiği durumda numune yeteri kadar kaplanabilir.

8. Numune tutucusu olabildiğince az backscattered ve secondary elektronlara yol açmalıdır. Genelde alüminyum tutucular kullanılsa da X-ışını mikroanaliz uygulamalarında karbon tutucular da kullanılabilir.

9. Küçük parçacıkların en az background sinyal vermesi için mass foill'e iyi monte edilmelidir. Örneğin alüminyum halkası üzerinde uzanan naylon film gibi.

10. Numune, numune tutucusuna elektron ışınına maruz bırakıldığında hareket etmeyecek şekilde iliştilmeli.

SEM'de analiz yapılacak numunenin eni ve boyu maksimum 7,5 cm, yüksekliği ise maksimum 1,5 cm olmalıdır [140].

3.4.2. FESEM analizi

Alan emisyonlu taramalı elektron mikroskopunda, X-ışını (alan emisyon) kaynağından koparılan negatif yüke sahip elektronlar vakum altındaki bir kolonda toplayıcı merceklerin yardımı ile numunenin üzerine düşürülerek yüzeyindeki atomlarla elektron demetinin etkileşimi neticesinde meydana gelen parçacıklar ve x-ışınları detekte edilerek, incelenmekte olan numunenin topoğrafyası ve kimyasal bileşimi ile ilgili bilgi edinilebilmektedir. Taramalı elektron mikroskopuna (SEM) kıyasla daha yüksek büyütme ve çözünürlükte nano boyuttaki numunelerin mikroyapısal özellikleri analiz edilebilmekte ve EDS ile birlikte değerlendirildiğinde daha detaylı alan tarayabilmeyi sağlamaktadır. FESEM'in X-ışını dedektörü, analizörü ve yazılım arayüzü ile iletken kaplamaya gerek olmadan X-ışını Spektroskopisi kullanarak belirli bir noktada veya haritada kantitatif element analizi gerçekleştirilebilmektedir [141]. Elde edilen alümina-silika aerogel tozlarının mikroyapı özelliklerini daha yüksek büyütmeyle çıkılarak inceleyebilmek için Şekil 3.10'da görülen Quanta 450 FEG Marka FESEM cihazı kullanılmıştır.



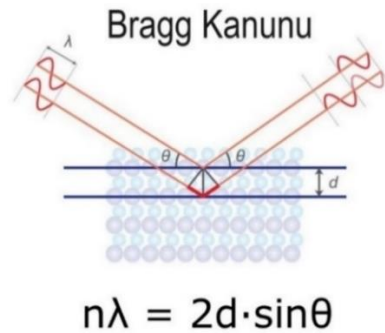
Şekil 3.10. FESEM Cihazı.

FESEM, malzemelerdeki kaplama genişliğinin tespit edilmesi, bünye bütünlüğünün ölçümü ve nano boyutta olan malzemelerin analizleri gibi birçok alanda (Kapı genişlikleri, kapı oksitleri, film kalınlıkları ve yapı detayları için yarı iletken cihaz kesit analizleri, gelişmiş kaplama kalınlığı ve yapı bütünlüğünün belirlenmesi, küçük kirlenme özelliği geometrisi ve element bileşimi ölçümü gibi) kullanılmaktadır [142]. Bu tez kapsamında üretilen tozların yapısı 200.000X büyütme kadar çıkılarak incelenmiş ve nano boyutlu tozların yapısındaki elementleri belirlemek için EDS

analizi yapılmıştır. Analiz sonucu alınan görüntüler ve EDS analizleri bölüm 4.2.1’de SEM ve FESEM (mikroyapı) analizi kısmında verilmiştir.

3.4.3. XRD (faz) analizi

X-Işını difraktometresi (XRD) her kristal fazın kendisine özgü atomik dizilimine bağlı olarak X-ışınlarının belli bir düzen içerisinde kırılması sonucunda yansıyan ışınların cihazdaki veri tabanında bulunan verilerle karşılaştırılması esasına dayanmakta ve toz veya sıvılar gibi bütün materyalleri analiz etmede kullanılan tahribatsız bir yöntemdir. Bu kırınım, parmak izi gibi ait olduğu kristali tanımlamakta; dolayısıyla bu teknik ile çeşitli malzemelerdeki kristal yapıların tespiti ve kristal fazların kantitatif analizleri yapılmaktadır [143]. Malzemelerin karakterizasyonunda ve kalite ölçümlerinde çok tercih edilen bir teknik olup kristal yapı malzemelerin üç boyutlu atomik yapıları elde edilebilmektedir. XRD analizi Bragg denklemi ($n\lambda = 2d\sin\theta$) ile açıklanmakta olup, bu denklemde n bir tam sayıdır, λ kristal numuneye çarpan X-ışınlarının karakteristik dalga boyu, d atom sıraları arasındaki düzlemsel aralık ve θ X-ışınlarının yüzey açısıdır. Bu denklem sağlandığında, periyodik bir yapının düzlemindeki atomlar tarafından saçılan X-ışınları aynı fazdadır ve kırınım, θ açısıyla tanımlanan yönde meydana gelir. Kırınım sonucu saçılan ışınlar, gösterilen difraksiyon açısı yönünde gerçekleşmektedir [144]. Şekil 3.11’de X-Işını difraktometresinin uygulama prensibi şematik olarak verilmiştir.



Şekil 3.11. XRD prensibi [144].

Başlangıç hammaddelerinden olan şamot tuğlası, alüminyum eloksal atık, perlit, vollastonit, zeolit, diatomit ve bu öncüllerden sentezlenen numunelerin kristal yapısını (faz yapısı) incelemek için Şekil 3.12’deki RIGAKU D/MAX/2200/PC marka XRD cihazı kullanılmıştır. Analizler sırasında $\text{CuK}\alpha$ ($\lambda=1,54056$ nm) radyasyonu kullanılarak tarama açısı 2θ , 5 ile 80° arasında ve tarama hızı ise $2^\circ/\text{dk}$ olup; X-ışınları

difraksiyon paternleri üzerinde yapılan hesaplamalar ile tespit edilen düzlemler arası mesafe verileri ASTM kartları ile kıyaslanarak fazlar belirlenmiştir. Üretilen alümina-silika aerojel tozlarının bu analiz sonucunda kristal yapıları belirlenmiştir. Elde edilen XRD sonuçları Bölüm 4.2’de verilmiştir.



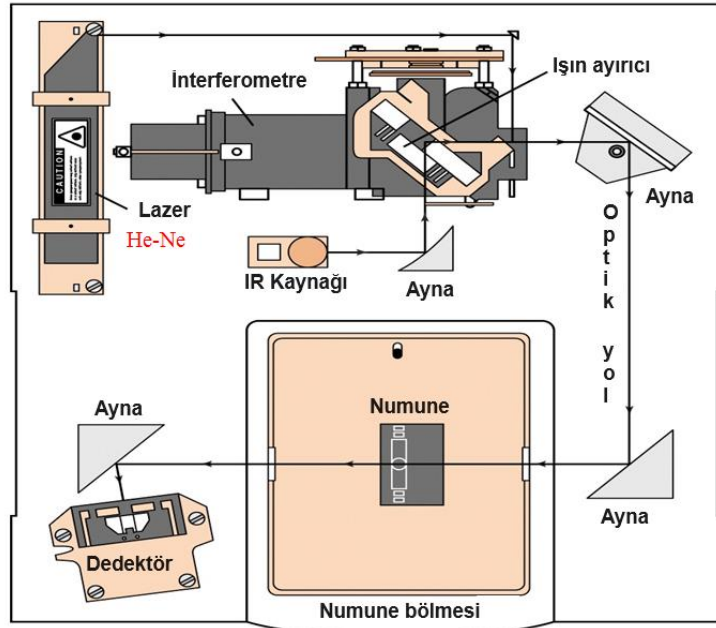
Şekil 3.12. XRD analizinde kullanılan cihaz.

3.4.4. FTIR analizi

Numunelerin kimyasal bileşimlerinin (organik ve inorganik) belirlenmesi için kullanılan Fourier Transform Infrared Spektroskopisi (FTIR) kısa süre içinde numune miktarının az olduğu durumlarda dahi sonuçlar, geniş spektrumlar vermesi ve kalibrasyonunun yapılabilmesi gibi sebeplerden dolayı hem güvenilir hem de ucuz bir tekniktir. Bu teknikte, her maddenin kendine has olan IR spektrumu, malzeme içerisinde bulunan ve maddenin yapı taşı olan atomların arasındaki bağların titreşim yapmasıyla açığa çıkan frekanslara karşılık gelen absorpsiyon pikleridir [93, 145]. Oluşan spektrumların her madde için özgün olması kaidelerini bozan tek şey optik izomerlerdir. 2000 cm^{-1} 'den sonrasındaki kısım organik maddelerin spektrumlarında daha detaylı olup bu kısma parmak izi alanı (bölgesi) denir ve daha geniş çapta incelenerek malzemede mevcut olan bağlar hakkında detaylı bilgiye sahip olunabilmektedir. Analiz esnasında oluşan frekanslar her molekül bağı için farklı olmaktadır [145, 146].

FTIR cihazının çalışma yöntemi; bir ışın kaynağından iletilen ışınlar, beamsplitter denilen bir ışın ayırıcısından geçerek sistemdeki hareketli ve sabit aynalara gönderilmektedir. Işınlar gönderildikleri aynalardan geri ayırıcıya gelmekte ve numunenin olduğu yere yönlendirilmektedir. Bu süreçte heterokromatik ışınlar, monokromatik yani tek dalga boyuna sahip bir duruma gelmektedirler. Işının numuneyle temas etmesinden sonra etrafındaki algılayıcılarla algılanmaktadır. Bu işlemden sonra bilgisayarda ölçüm yapılabilecek duruma getirilmektedir (Şekil 3.13) [147].

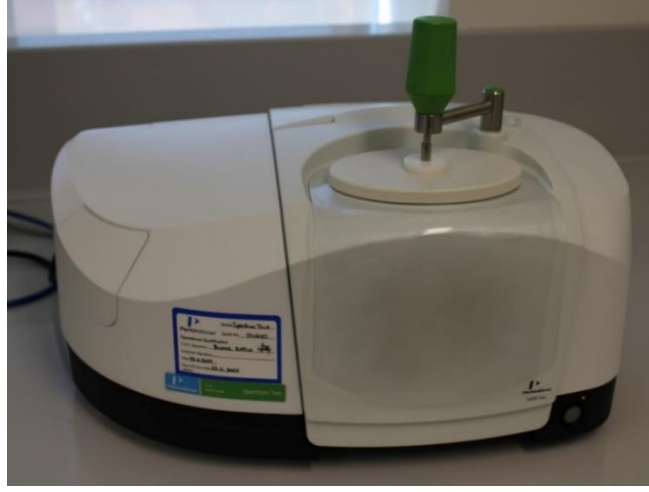
Çeşitli hammadde ve atık kaynaklarından sentezlenen alümina-silika esaslı aerojellerin yapılarındaki farklı bağlara ait titreşim frekanslarının ölçülerek fonksiyonel gruplar hakkında bilgi sahibi olabilmek için FTIR analizi gerçekleştirilmiştir. Üretilen tüm alümina-silika esaslı aerjel tozlarına ve kullanılan başlangıç doğal hammadde ve atık malzemelerine Perkin Elmer Spectrum Two FTIR cihazı kullanılarak $4000-450\text{ cm}^{-1}$ dalga boyu aralığında FTIR analizi yapılmış ve Bölüm 4.2.2’de verilmiştir [146].



Şekil 3.13. FTIR çalışma prensibi [148].

FTIR tekniğinin geniş spektrumlar vermesi ve düşük sayıdaki numunelerle dahi analizin yapılabilmesi geniş uygulama alanları bulabilmesini sağlamaktadır. Sıvı, çözelti veya katı maddelerin yapılarındaki moleküler bağların varlığı, bağlanma şekilleri ve fonksiyonel gruplar ile ilgili bilgiler verebilmektedir. Cihazın

kalibrasyonunun yapılmasıyla yapılacak analizlerin güvenilirliği, doğruluğu ve kalite sürdürülebilirliğini sağlanabilmektedir [149]. Şekil 3.14'te FTIR analizinin yapıldığı cihaz görülmektedir.



Şekil 3.14. FTIR analizi yapılan cihaz.

3.4.5. BET analizi

Gözenekli yapıya sahip alümina-silika aerojel tozlarının yüzey alanları, gözenek hacimleri, boyutları ve dağılımlarını ölçebilmek için tek noktalı BET analizi yapılmıştır. BET yöntemi, analizi yapılacak numune yüzeyinin tek bir moleküler yapı ile kaplanmasına yönelik mevcut gaz miktarının tespit edilmesine dayanmaktadır. Analiz işlemi için aerojel tozları degas ünitesine yerleştirilerek 300°C'ye kadar ısıtma yapılarak saflaştırılır ve sudan arıtılır. Sonrasında numunelerin sıvı N₂ gazı (77 K sıcaklıkta) yardımıyla analizleri yapılmaktadır [150]. Yapılan deneyler doğrultusunda toz numunelerinin adsorpladığı azot miktarını gösteren “adsorpsiyon izotermi” tespit edilmektedir. Analiz sonuçlarında alümina-silika aerojel tozlarının yüzey alanları, spesifik gözenek ve partikül boyutları, hacimleri ve adsorpsiyon eğrileri gözlemlenmiştir. Şekil 3.15'deki Micromeritics TriStar II BET cihazı kullanılarak tek noktalı BET analizi yapılmıştır. Gözenek çapı 2 nm'den küçük ise mikrogözenekli, 2 ila 50 nm aralığında mezogözenekli, 50 nm'den büyük ise makrogözenekli bir yapıda olduğu söylenmektedir. Toz numunelerinin boyutları ve şekilleri tozların üretim parametrelerine bağlı olarak değişiklik gösterebilmektedir. Adsorplama şiddetinin çok fazla olması, gözenekli malzemelerin en önemli özelliklerinden biri kabul edilmektedir [151]. BET izoterm denklemi denklem 3.1'de görüldüğü gibi olup, p₀ adsorplananın deney sıcaklığındaki doymuş buhar basıncını, p adsorpsiyonun

ölçüldüğü esnadaki buhar basıncını, n_m ise tek tabaka kapasitesini göstermektedir. Denklem 3.1'deki C değeri ise, denklem 3.2'deki bağıntıya göre adsorpsiyon ısısının, yoğunlaşma ısısını aşan miktarının ölçüsü olan bir sabittir. (E1-EL) ise net adsorpsiyon ısısıdır.

$$\frac{p}{n_a(p_0 - p)} = \frac{1}{n_m C} + \frac{(C - 1)}{n_m C} * \frac{p}{p_0} \quad (3.1)$$

$$C = e^{\frac{E1-EL}{RT}} \quad (3.2)$$



Şekil 3.15. BET cihazı.

3.4.6. Termal iletkenlik analizi

Malzemelerin termofiziksel özelliklerinden en önemlilerinden biri olan termal iletkenlik, malzemenin sahip olduğu ısı iletme performansının tespit edilmesidir. Termal iletkenlik değerlerinin tespiti durumu, malzemelerin kullanılacakları alanda optimum performansı gösterebilmeleri açısından oldukça önemli olup; termal iletkenlik analiziyle malzemeler için termal iletkenlik katsayılarını bulunabilmektedir [147]. Termal iletkenliği ölçme yöntemleri, kararlı durum yöntemi ve kararsız durum yöntemi olarak iki kategoriye ayrılabilir. Kararsız yöntem, lazer flaş yöntemini, geçici sıcak tel/şerit yöntemini, geçici düzlem kaynağı (TPS) yöntemini vb. içerir. Bu yöntemler Fourier difüzyon yasasına dayanır ve enerji denklemi, ısı

iletiminin kararsız bir diferansiyel denklemdir. TPS yönteminin geniş test aralığı (0,005– 500 W/m·K) ve farklı formlardaki (katı, toz, sıvı veya gözenekli malzemeler gibi) ve şekillerdeki (bulk, levha, ince film vb.) numunelere yüksek hassasiyette ölçüm imkanı sağlayabilmesi gibi birçok benzersiz avantajı vardır [152].

Aerogeller ve köpük malzemeleri üstün yalıtım performansına sahiptir ve bu nedenle ısı yalıtımı alanında yaygın uygulama potansiyeline sahiptir. Bu malzemeler yüksek gözenekliliğe ve nano veya mikro gözenekli ($\leq 2\text{nm}$) yapıya sahiptir. Birçok araştırmacı, aerogellerin yüksek sıcaklıktaki termal iletkenliğini ve yayılımını ölçmek için uygun ve doğru bir yöntem olan, sıcak disk (HD) olarak da adlandırılan geçici düzlem kaynağı (TPS) tekniğini benimsemiştir [152, 153]. TPS tekniği, Gustafsson tarafından tek bir geçici test yoluyla termal iletkenliği ve termal yayılımı aynı anda ölçmek için önerilmiştir. TPS tekniği bir sensörü hem ısı kaynağı hem de sıcaklık sensörü olarak kullanır ve Şekil 3.16'da Hot disk cihazının bölümleri, sensör kısmının yapısı görülmektedir. Sensör, nikelden yapılmış ve kapton veya mika yalıtım tabakası ile kaplanmış çift sarmal yapıdan oluşur. Sensör iki numune arasına yerleştirilerek sandviç bir yapı oluşturulur [152].



Şekil 3.16. TPS yönteminin genel şeması, örnek ve sensör düzenlemesi [152].

Sıcak diskin nasıl davrandığının teorisini açıklamak için, ısı iletim denklemi, sıcak diskin sonsuz büyük bir numunede bulunan belirli sayıda eşmerkezli halka ısı kaynaklarından oluştuğu varsayılarak çözülür. Sıcak disk elektrikle ısıtılırsa, zamanın bir fonksiyonu olarak direncindeki artış şu şekilde (denklem 3.3) verilmektedir [153]:

$$R(t) = R_0[1 + \Omega(\Delta T_i + \Delta T(\tau))] \quad (3.3)$$

burada R_0 diskin ısıtılmadan ($t=0$) hemen önceki direnci, Ω öz direncin sıcaklık katsayısı (TCR), ΔT_i ince yalıtım katmanları üzerinde neredeyse anlık olarak gelişen sabit sıcaklık farkıdır. Sıcak disk sensör malzemesinin (nikel) iki tarafını kaplayan ve sıcak diski kullanışlı bir sensör haline getiren $\Delta T_{ave}(\tau)$, yalıtım katmanının diğer tarafındaki numune yüzeyinin sıcaklık artışıdır ve sıcak disk sensörüne bakacak şekilde denklem 3.4'ten, sensör tarafından kaydedilen sıcaklık artışı elde edilir:

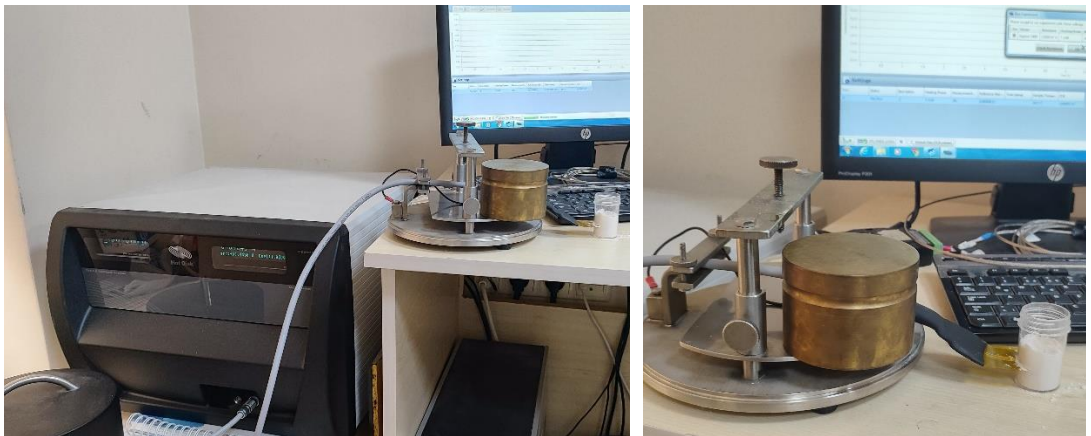
$$\Delta T_{ave}(\tau) + \Delta T_i = \{R(t)/R_0\} - 1/\Omega \quad (3.4)$$

Burada ΔT_i , sensör ile numune yüzeyi arasındaki "termal temasın" bir ölçüsüdür ve $\Delta T_i = 0$ mükemmel "termal teması" temsil eder; Zamana bağlı sıcaklık artışı teoride şu şekilde (denklem 3.5) verilmektedir:

$$\Delta T_{ave}(\tau) = [P_0/(\pi^{3/2}ak)]D(\tau) \quad (3.5)$$

burada P_0 sensörden gelen toplam güç çıkışıdır, a diskin genel yarıçapıdır, k test edilen numunenin termal iletkenliğidir ve $D(\tau)$ boyutsuz zamana bağlı bir fonksiyondur.

Analizler Şekil 3.17'de verilen Hot Disk marka termal iletkenlik ölçüm cihazı ve cihaza bağlı probun toz numune arasına yerleştirilmesiyle gerçekleştirilmiştir.



Şekil 3.17. a. Termal iletkenlik ölçüm cihazı, b. Sıcak disk sensörü (probu) ile numunelerin yerleşimi.

3.4.7. Yoğunluk analizi

Üretilen alümina-silika esaslı arojel tozlarının yoğunlukları hacmi $d=m/v$ (d =yoğunluk, m =kütle, v =hacim) formülü ile belirlenmiş bir kap kullanılarak yaklaşık olarak hesaplanmıştır. Çalışma da hammadde olarak kullanılan şamot tuğla harcı, eloksal atık, perlit, diatomit, zeolit ve vollastonit tozlarından sol-jel tekniği ile atmosferik koşullarda arojellerin etüvde kurutulmasıyla alümina-silika esaslı arojel tozları üretilmiştir. Arojellerin yoğunluklarının düşük olması en önemli özelliklerinden biri olup; sentezlenen tozların yoğunluğu düşük olması üretim verimliliğini belirleyen önemli bir parametre olacaktır. Tozların yoğunluk ölçümü için $0,09817 \text{ cm}^3$ hacminde bir ölçüm kabı kullanılmıştır. Yoğunlukları belirlenecek tozlar, darası alınmış kaba yerleştirilerek hassas terazide ayrı ayrı tartılmıştır. Tartım sonucunda elde edilen değerlere göre genel yoğunluk formülünden her toz için görünür yoğunluk değerleri hesaplanmıştır.

4. DENEYSEL SONUÇLAR VE İRDELEME

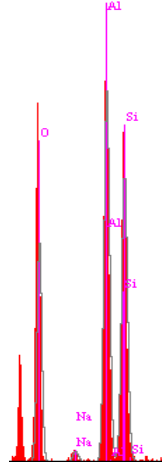
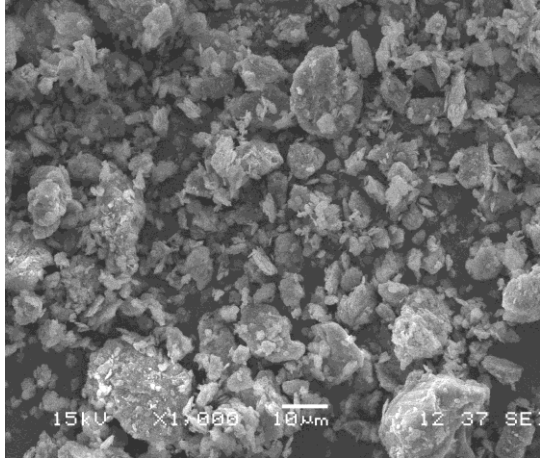
Yapılan çalışmada sol-jel tekniğiyle alümina öncül hammaddesi olarak şamot tuğla harcı ve alüminyum eloksal atık, silika öncül hammaddesi olarak ise perlit, diatomit, zeolit ve vollastonit kullanılarak alümina-silika esaslı aerojel tozları sentezlenmiştir. Üretimde kullanılan hammaddelerin ve üretilen aeojel tozlarının kimyasal bağ yapılarını tespit etmek için FTIR analizi, yapılarında mevcut olan fazların belirlenmesi için XRD analizi, yüzey morfolojisi ve mikroyapılarını incelemek için SEM-FESEM ve elemental analizleri için EDS, yüzey alanı ve gözenek boyutlarının belirlenmesi için BET analizi yapılmış ve aerojel tozlarının termal iletkenlikleri ve yoğunlukları ölçülmüştür.

4.1. Başlangıç Hammaddelerine Yapılan Analizler

Başlangıç hammaddelerinden olan şamot tuğla harcı, alüminyum eloksal atık, perlit, zeolit, diatomit ve vollastonite SEM, FTIR, XRD, yoğunluk ve termal iletkenlik analizleri yapılarak sırasıyla mikroyapıları, bağ yapıları, fazları, yoğunlukları ve termal iletkenlik katsayısı ayrıntılı şekilde incelenmiş, elde edilen son ürünlerle karşılaştırılmıştır.

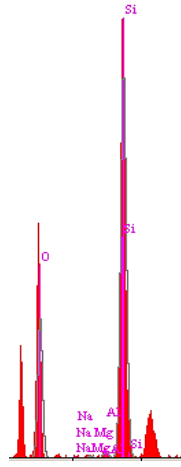
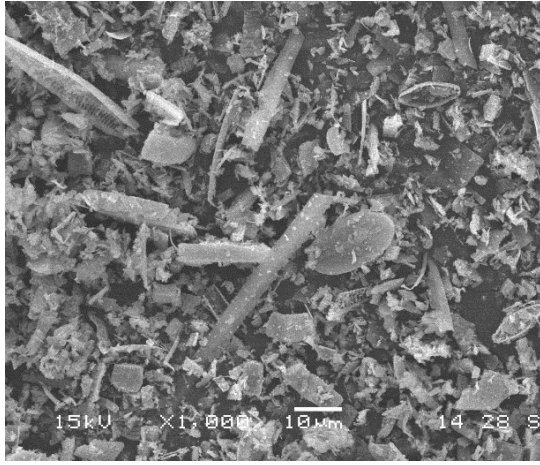
4.1.1. Mikroyapı (SEM) analizi

Mikroyapı analizi sonuçlarında, hem alümina ve silika kaynakları olarak tercih edilen doğal hammadde ve atıkların hem de sol-jel sürecinin sonunda elde edilen alümina-silika esaslı aerojel tozlarının karakterizasyonları yapılmış ve mevcut çalışmada incelemeli şekilde verilmiştir. Şekil 4.1'de alümina-silika esaslı aerojel tozları üretebilmek üzere kullanılan atık malzeme ve doğal hammadde kaynaklarının 1000X büyütmelelerdeki SEM görüntüleri ve yine aynı büyütmede incelenen genel EDS analizleri sunulmuştur.



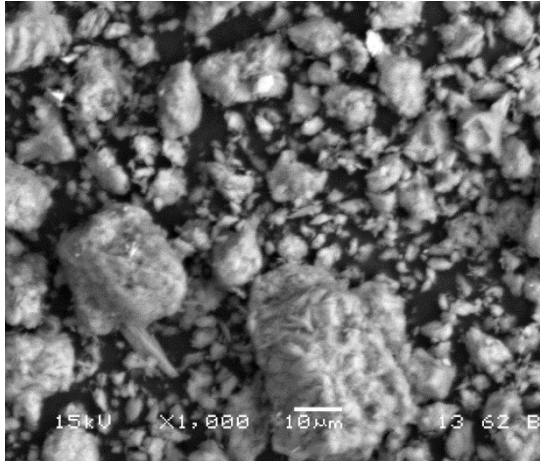
Element	ağ. %
O	40,816
Na	1,041
Al	28,567
Si	29,576

(a)



Element	ağ. %
O	45,88
Na	0,266
Mg	0,335
Al	0,946
Si	52,57

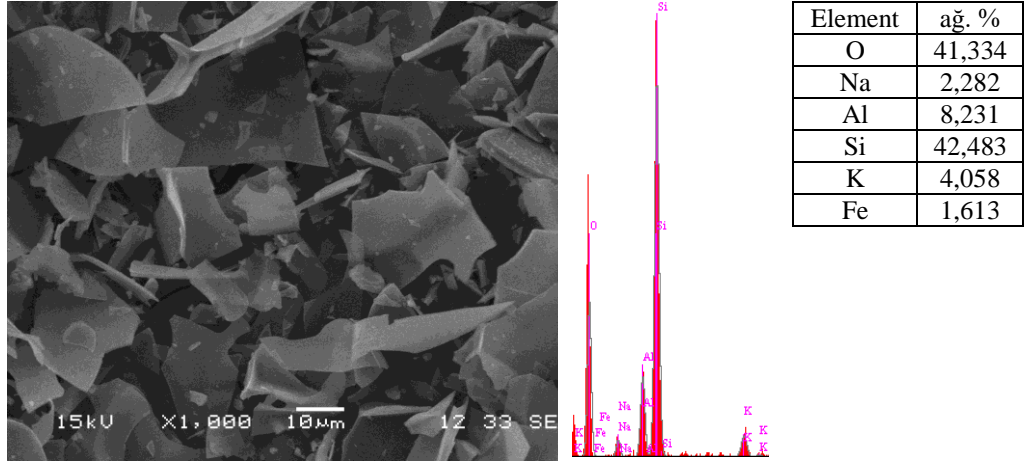
(b)



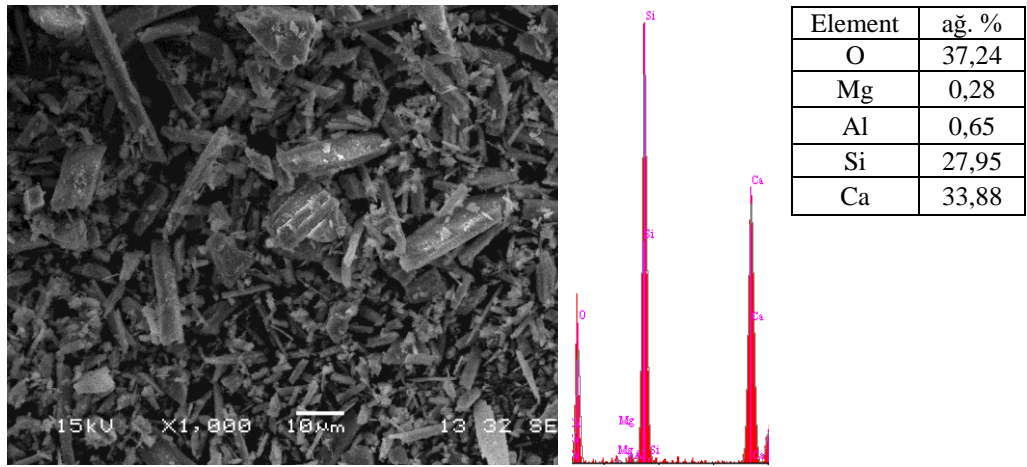
Element	ağ. %
O	42,660
Na	0,336
Mg	0,968
Al	8,302
Si	40,784
K	2,404
Ca	3,162
Fe	1,355

(c)

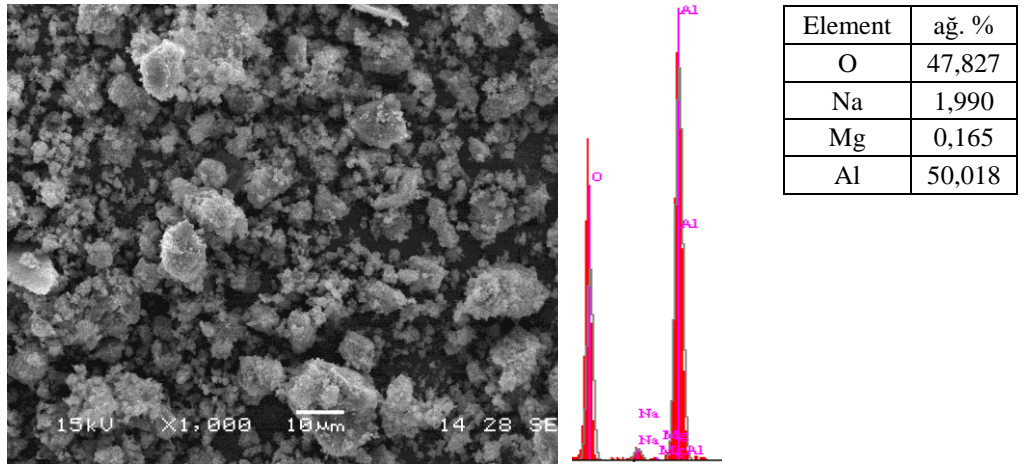
Şekil 4.1. Alümina-silika aerogel tozu üretimi için kullanılan kaynaklara ait a. Şamot tuğla harcı b. Diatomit c. Zeolit d. Perlit e. Vollastonit f. Alüminyum eloksal atığı SEM mikroyapı görüntüleri (1000X) ve EDS analizleri



(d)



(e)



(f)

Şekil 4.1. (Devamı) Alümina-silika aerojel tozu üretimi için kullanılan kaynaklara ait a. Şamot tuğla harcı b. Diatomit c. Zeolit d. Perlit e. Vollastonit f. Alüminyum eloksal atığı SEM mikroyapı görüntüleri (1000X) ve EDS analizleri

Yapılan analizlerden de görüleceği üzere kullanılan kaynaklar farklı oranlarda alümina ve silika içeriğine ve safsızlıklara sahip olup; mikroyapı görüntüleri farklılık göstermektedir. Şamot tuğlası tozunun iri ve küresel tanelerden oluştuğu, geniş toz boyut aralığında olduğu ve hemen hemen yakın alümina ve silika içeriğine sahip olduğu görülmüştür. Diatomit tozunun ise çubuksu ve plaka şeklinde karma bir tane yapısına sahip olduğu görülmüş olup; yüksek oranda silika ihtiva etmektedir. Zeolit tozunun iri ve aglomere olmuş tanelerden oluştuğu, geniş toz boyutu aralığında olduğu ve yüksek oranda silika ihtiva ettiği görülmüştür. Perlitin geniş toz boyut aralığında köşeli ve yapraksı tane yapısına sahip; içerisindeki safsızlıkların yanısıra yüksek oranda silika ihtiva ettiği görülmektedir. Vollaistonitin keskin köşeli ve çubuksu formda tane yapısına sahip olduğu ve daha az alümina ihtiva ettiği görülmüştür. Eloksal atığın ise küresel toz yapısı ve içerisindeki safsızlıkların yanı sıra yüksek alümina içeriği dikkat çekmektedir. Kullanılan tüm hammadde ve atıkların ayrıca XRF analiz sonuçları Tablo 3.1’de detaylı olarak paylaşılmıştır.

4.1.2. FTIR analizi

Başlangıç hammaddeleri olarak kullanılan şamot tuğla harcı, eloksal atık, zeolit, vollaistonit, perlit ve diatomit bünyelerindeki bağ yapıları ve fonksiyonel grupları tespit etmek için FTIR analizi yapılarak bağların titreşimleri ölçülmüştür. Analiz 450-4000 cm^{-1} dalga boyları aralığında gerçekleşmiş ve parmak izi şeklinde isimlendirilen kısım dikkate alınmıştır. Analiz, farklı basınç miktarlarının uygulanmasıyla ve spektroskopik potasyum bromür kullanımı ile numunenin yüzeyinde saydam bir tabaka oluşturulmuş ve titreşim dalgaları elde edilmiştir. FTIR analizinde elde edilen piklerin şiddetlerinin artmasıyla bağ kuvvetleri de artmaktadır. Kullanılan doğal hammadde ve atık öncüllerine yapılan FTIR analizi bölüm 4.2’deki sentezlenen alümina-silika esaslı arojel tozlarına yapılan analizler kısmında karşılaştırmalı olarak verilmiş ve detaylandırılmıştır. Alümina öncülü olarak kullanılan hammadde kaynaklarından olan şamot tuğlasında 3696 cm^{-1} ve 1628 cm^{-1} ’de -OH bağları, 1031 cm^{-1} ’de Si-O-Al, 534 cm^{-1} ’de Si-O, 910, 800 ve 687 cm^{-1} ’de Al-O bağlarının oluştuğu, bir alümina atığı olan eloksal atıkta ise 3382 cm^{-1} ve 1655 cm^{-1} ’de -OH, 1091 cm^{-1} ’de Al-O-H ve 490 cm^{-1} ’de Al-O bağları oluştuğu görülmüş ve bölüm 4.2’de yer alan FTIR grafiklerinde sentezlenen arojel tozları ile birlikte toplu olarak sunulmuştur. Aynı şekilde toplu grafiklerde yer alan silika kaynaklarından olan perlitte 3443 ve 1628 cm^{-1} ’de -OH, 1027 cm^{-1} ’de Si-O-Si ve 782 cm^{-1} ’de Al-O bağları oluştuğu, diatomitte 1079 ve 801

cm^{-1} 'de Si-O-Si bağlarının olduğu, zeolitte 3445 cm^{-1} ve 1645 cm^{-1} 'de $-\text{OH}$, 1031 cm^{-1} 'de Si-O-Si, 798 cm^{-1} 'de Si-O ve 602 cm^{-1} 'de Al-O, vollastonitte ise 1462 cm^{-1} 'de C-O, 1018 ve 896 cm^{-1} 'de Si-O-Si ve 645 ve 565 cm^{-1} 'de Si-O bağlarının olduğu tespit edilmiştir.

4.1.3. XRD analizi

X-ışını kırınımı yöntemi, malzemenin içinde bulunan kristal yapıya bağlı değişmekte olan atom düzlemlerine gönderilen X-ışının kırılması ile elde edilen karakteristik ışınımların algılanması şeklinde tanımlanabilir. XRD analizi yapılırken cihazda, dalga boyu $\lambda=1,54056 \text{ nm}$ olan $\text{CuK}\alpha$ kullanılmıştır. Tarama hızı $2^\circ/\text{dk}$ ve tarama açısı 2θ , 10 ile 80° arasında belirlenmiştir. Alümina kaynağı olarak şamot tuğla harcı ve eloksal atık, silika kaynağı olarak ise perlit, diatomit, zeolit ve vollastonit kullanılarak elde edilen numunelerin faz yapılarını incelemek için XRD analizi uygulanmıştır. Kullanılan doğal hammadde ve atık öncüllerine yapılan XRD analizi bölüm 4.2'deki sentezlenen alümina-silika esaslı arojel tozlarına yapılan analizler kısmında karşılaştırmalı olarak verilmiş ve detaylı olarak incelenmiştir. XRD analizi ile alümina-silika esaslı arojelleri üretmek için kullanılan başlangıç öncüllerinden olan şamot tuğlasında kaolinit, müllit, kuvars ve korundum fazları, eloksal atıkta ise SiO_2 piklerinin yanısıra alüminyum oksit hidroksit pikleri de tespit edilmiştir. Silika öncülleri olarak kullanılan perlit ve diatomit yapısında SiO_2 pikleri görülürken; zeolitin yapısında klinoptilolit fazının, vollastonitte ise vollastonit fazının varlığı görülmüştür.

4.1.4. Termal iletkenlik ölçüm analizi

Kompozit arojel sentezinde kullanılan doğal hammadde ve atık başlangıç öncüllerine termal iletkenlik ölçümü yapılabilmesi için Hot Disk cihazı kullanılmıştır. Alüminyum eloksal atığın çözeltiliye alınmadan önce termal iletkenlik katsayısının $0,8 \text{ W/mK}$, şamot tuğlasının $0,1874 \text{ W/mK}$ perlitin $0,0444 \text{ W/mK}$, zeolitin $0,1188 \text{ W/mK}$, vollastonitin $0,1054 \text{ W/mK}$ ve diatomitin $0,0687 \text{ W/mK}$ olduğu tespit edilmiştir. Üretilen alümina-silika esaslı arojel tozlarında bu katsayılar göre kayda değer bir gerileme görülmüş olup bölüm 4.2.6'da verilmiştir.

4.2. Sentezlenen Alümina-Silika Esaslı Aerojel Tozlarına Yapılan Analizler

Mevcut tez çalışmasında, doğal silika hammadde kaynakları olarak perlit, diatomit, vollastonit ve zeolit; atık ve doğal alümina kaynağı olarak alüminyum eloksal atık ve şamot tuğla harcı kullanılarak sol-jel yöntemiyle farklı karakteristikte özellikleri olan alümina-silika esaslı aerojel tozları sentezlenmiştir. Alümina-silika esaslı aerojellerin üretim aşamalarından biri olan kurutma işlemi atmosferik şartlarda yapılmıştır. Üretilen alümina-silika esaslı aerojel tozlarının mikroyapı analizleri SEM, FESEM, EDS haritası ile, faz analizleri XRD yardımıyla, gözenek çapı, boyutu, hacmi, partikül boyutu ve yüzey alanı analizleri BET kullanımıyla, kimyasal bağ yapıları FTIR ile gerçekleştirilmiş olup; elde edilen tüm sonuçlar değerlendirilerek sentezlenen alümina-silika esaslı aerojel tozlarının özellikleri tespit edilmiştir.

Alümina-silika esaslı aerojel tozlarının üretim aşamasındaki farklı parametreler ile kullanılan numune kodları Tablo 4.1’de görülmektedir. Tabloda görüldüğü üzere yapılan bazı denemelerdeki parametrelerin (molarite ve hacim) çözeltinin reaksiyon hızı konusunda yetersiz olması ve moleküllerin yeterince hızlandırılmamış ve yaklaştırılmamış olması sebebiyle çözeltide jel oluşumu gözlenmemiş dolayısıyla toz elde edilememiş ve sonuç olumsuz olarak nitelendirilmiş olarak tabloda görülmektedir.

Şamot tuğlası alümina öncülü olarak kullanılmış ve beraberinde silika öncülü olarak seçilen perlit, zeolit, diatomit ve vollastonit ile 2:1 oranında şamot tuğlası:silika kaynağı olacak şekilde ayrı ayrı sol çözeltileri hazırlanarak birleştirilmiş ve nötralize edilmiştir.

Eloksal atığın alümina öncülü olarak kullanıldığı numunelerde ise eloksal atık:silika kaynakları alümina oranının şamot tuğlasına göre çok daha yüksek (%50) olması sebebiyle 1:1 kütle oranında çözeltiliye alınarak birleştirilmiş ve nötralize edilmiştir.

Tablo 4.1. Alümina-silika esaslı aerojel tozu üretiminde kullanılan numune kodları ve üretim parametreleri.

Numune Kodları	Alümina Kaynağı	Silika Kaynağı	Baz	Asit	Yaşlandırma Süresi	Sonuç
			Katalizörü (Molarite ve Hacmi)	Katalizörü (Molarite ve Hacmi)		
N1	Şamot tuğlası	Perlit	NaOH 1 M 100 ml	HCl 1 M 100 ml	2 hafta	Olumsuz
			NaOH 1 M 250 ml	HCl 1 M 250 ml		Olumlu
N2	Şamot tuğlası	Perlit	NaOH 3 M 100 ml	HCl 3 M 100 ml	2 hafta	Olumlu
			NaOH 1 M 100 ml	HCl 1 M 100 ml		Olumsuz
N3	Şamot tuğlası	Diatomit	NaOH 1 M 100 ml	HCl 1 M 100 ml	2 hafta	Olumsuz
			NaOH 1 M 250 ml	HCl 1 M 250 ml		Olumlu
N4	Şamot tuğlası	Diatomit	NaOH 3 M 100 ml	HCl 3 M 100 ml	2 hafta	Olumlu
			NaOH 1 M 100 ml	HCl 1 M 100 ml		Olumsuz
N5	Şamot tuğlası	Zeolit	NaOH 1 M 250 ml	HCl 1 M 250 ml	2 hafta	Olumsuz
			NaOH 3 M 100 ml	HCl 3 M 100 ml		Olumlu
N6	Şamot tuğlası	Vollastonit	NaOH 1 M 100 ml	HCl 1 M 100 ml	2 hafta	Olumsuz
			NaOH 3 M 100 ml	HCl 3 M 100 ml		Olumlu
N7	Şamot tuğlası	Eloksal atık	NaOH 1 M 250 ml	HCl 1 M 250 ml	2 hafta	Olumlu
N8	Eloksal atık	Perlit	NaOH 3 M 100 ml	HCl 3 M 100 ml	2 hafta	Olumlu
N9	Eloksal atık	Diatomit	NaOH 3 M 100 ml	HCl 3 M 100 ml	2 hafta	Olumlu
N10	Eloksal atık	Zeolit	NaOH 3 M 100 ml	HCl 3 M 100 ml	2 hafta	Olumlu
N11	Eloksal atık	Vollastonit	NaOH 3 M 100 ml	HCl 3 M 100 ml	2 hafta	Olumlu

Şamot tuğlası ve perlit hammaddeleri kullanılarak üretilen 1 M NaOH derişimiyle 100 ml hacminde baz ve asit çözeltileri ile jelleşme işleminde başarı sağlanamadığından aynı molaritede 250 ml hacminde sol çözeltileri ile üretime devam edilmiş (N1) ve başarılı jel oluşumu sağlanmıştır. Oluşan sol çözeltileri (herbiri 250'er ml) alümina-silika esaslı kompozit aerojel üretmek için nötrale edilmiş ve bu işlemle birlikte en az 1000 ml'lik beherlerin kullanılması hem malzeme sarfiyatı hem de atık çözelti açısından dezavantaj olarak bulunmuş ve sonrasında deneysel çalışmalara 3M'lık 100 ml'lik çözelti hacmi ile devam edilmiştir. 1 M gibi düşük derişim ve yüksek çözelti hacimle sentezlenen N1 ve N3 kodlu aerojel tozlarının jelin bünyesine fazla çözücü

alması, kurutma esnasında ıslak jel matrisindeki fazla çözücünün uzaklaşması gerekeceğinden jel kararsızlığına sebep olup daha fazla büzüldüğü ve bir miktar çatlama durumunun olduğu gözlenmiştir [3]). Şekil 4.2'deki N1 ve N3 kodlu numunelerin makro görüntülerinde de bu çatlama ve büzülme etkisi görülmektedir. N2 için 3 M 100 ml koşullarında da jel oluşumu yeterli görülmüş ve başka parametreler denenmemiştir. Şamot tuğlası ve diatomit için de aynı parametreler denenmiş olup 1 M 100 ml'de jelleşme görülmemesinden dolayı 1 M 250 ml (N3) ve 3 M 100 ml (N4) parametreleri denenmiştir. Şamot tuğlası ve zeolit için 1M 100 ml, 1M 250 ml'de jelleşme görülemediği için bundan sonra üretilecek tüm tozlarda baz/asit molaritesi 3M olarak hazırlanmıştır. N5 kodlu şamot tuğlası ve zeolitten hazırlanan denemede 3 M 100 ml parametresinde yeterli jelleşme görülmüştür. Şamot tuğlası ve vollastonit öncülleri kullanılarak hazırlanan denemede 1M için hiç jelleşme görülmemiş, 3 M'de (N6 kodlu) ise az bir miktar toz elde edilebilmiştir. Şamot tuğlası ve eloksal atıkta ise 1 M 100 ml'de jelleşme elde edilememiş, 1 M 250 ml'de ise (N7) istenen jel elde edilmiş, farklı bir parametre denenmemiştir. Dolayısıyla 1M asit-baz derişimlerinde 100 ml hacminde yapılan üretimlerde jel oluşumu görülmemiş olup; 1 M derişimle üretim yapılırsa 250 ml hacminde sol çözeltisi hazırlayarak verimli jel oluştuğu tespit edilmiştir. Alümina öncülü olarak kullanılan eloksal atıkların hepsi 3 M derişiminde çözeltiye alınmış ve nötrale edilmiştir. Elokosal atıkta alüminanın şamot tuğlasına (ağ. ~%28,5) göre yüksek oranda (ağ. ~%50) olması sebebiyle kütlece 1:1 oranında eloksal atık-perlit (N8), eloksal atık-diatomit (N9), eloksal atık-zeolit (N10) ve eloksal atık-vollastonit öncülleri denenmiş ve alümina-silika esaslı kompozit arojel tozu üretimi gerçekleştirilmiştir.

Üretilen alümina-silika esaslı arojel tozlarının makro görüntüleri Şekil 4.2'de verilmiş olup; tozların beyaz renkte oldukları görülmektedir.



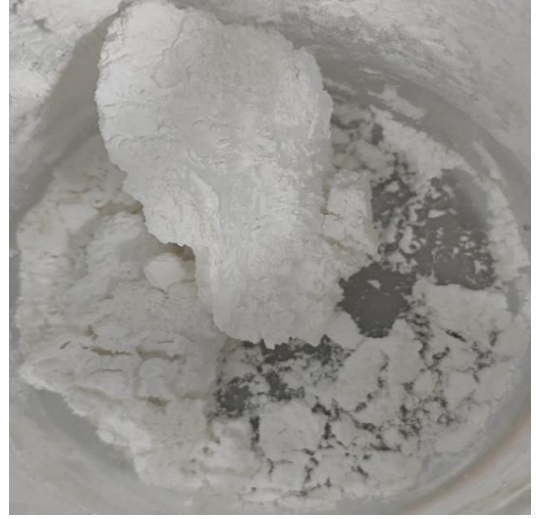
N1



N2



N3



N4

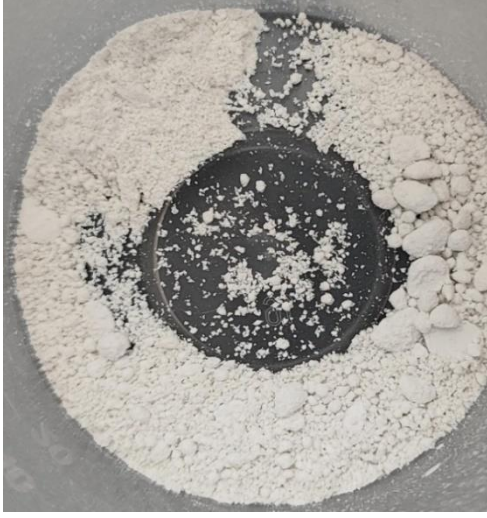


N5

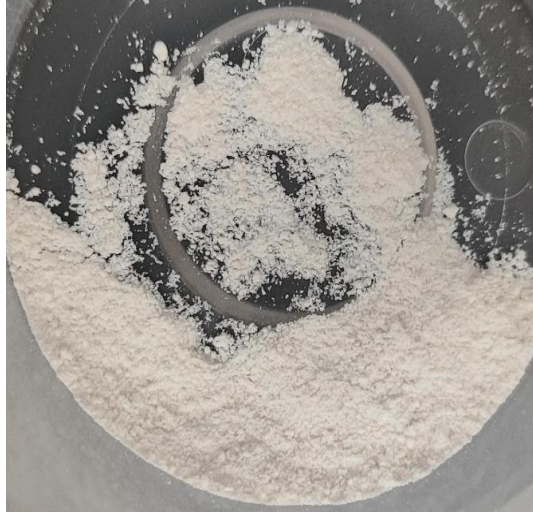


N6

Şekil 4.2. Üretilen alümina-silika esaslı aerojel tozlarının makro görüntüleri.



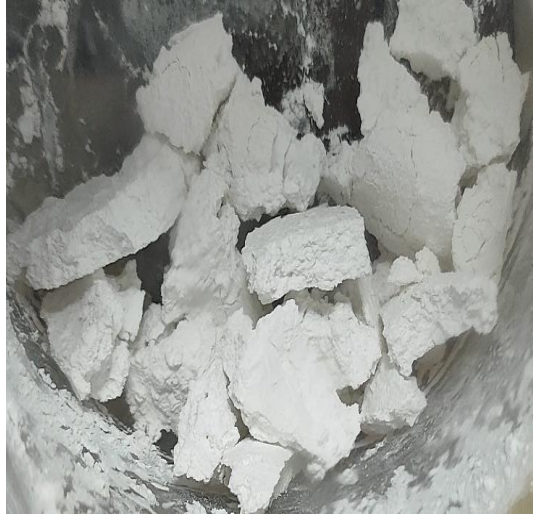
N7



N8



N9



N10



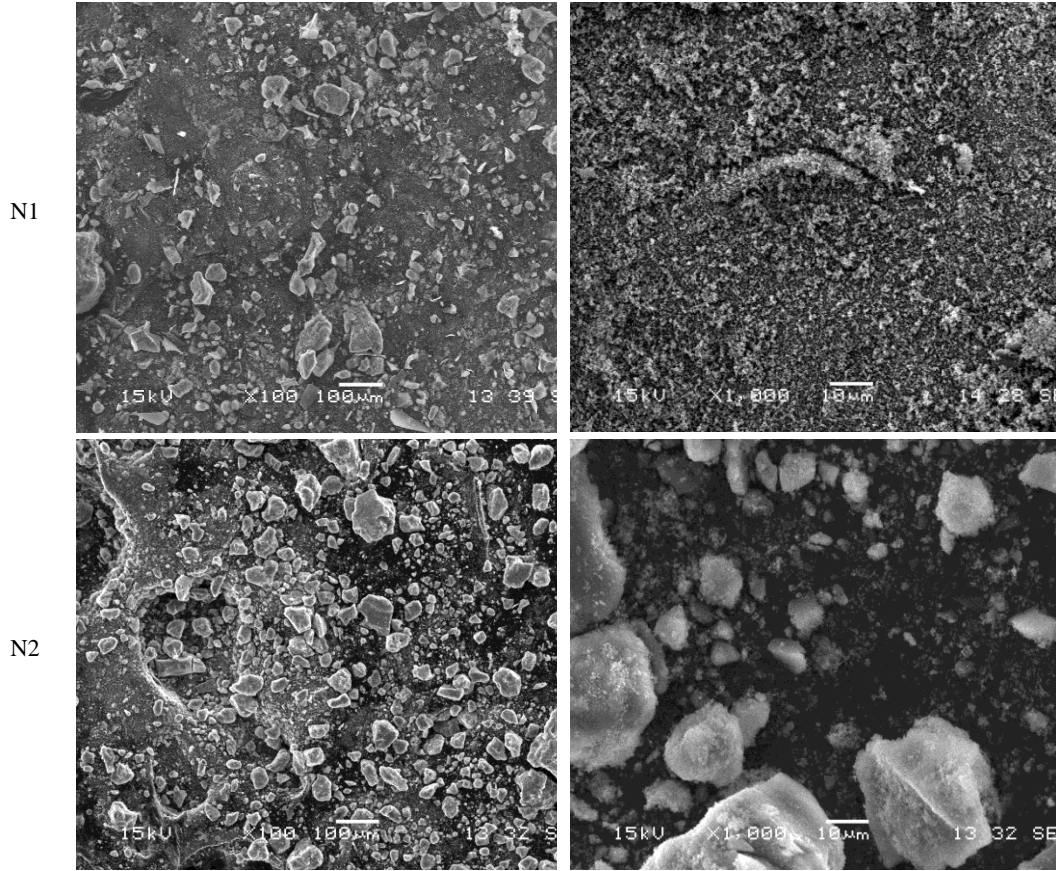
N11

Şekil 4.2. (Devamı) Üretilen alümina-silika esaslı aerogel tozlarının makro görüntüleri.

Kullanılan farklı doğal hammaddelerin ve atık malzemelerden üretilen alümina-silika aerojel tozlarının analizleri için: kimyasal bağ yapıları FTIR, mikroyapıları SEM-EDS, FESEM-EDS, yüzey alanı ve gözenek çapı değerleri BET, faz yapıları XRD kullanılarak yapılmıştır. Ayrıca üretilen tozların yoğunlukları ve termal iletkenlik katsayıları tespit edilmiştir.

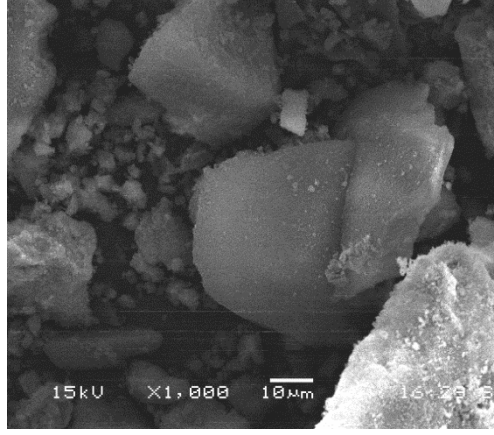
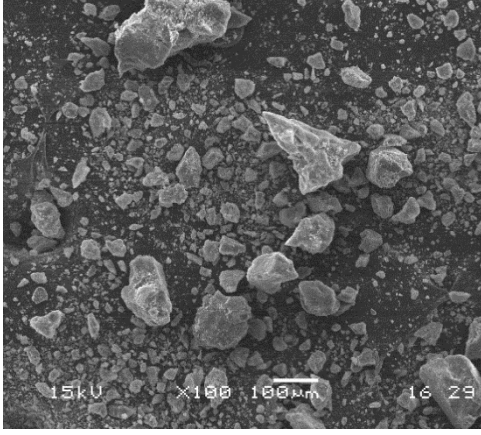
4.2.1. Mikroyapı analizi

Şekil 3.1’de verilen üretim akış şeması doğrultusunda elde edilen alümina-silika esaslı aerojel tozlarının mikroyapısal analizleri yapılmış ve bu çalışmada veri olarak sunulmuştur. Üretilen alümina-silika esaslı aerojel tozlarının nano boyutta olduğu BET analizi ile belirlenmiş olup, SEM-EDS analizlerinin yanında, FESEM-EDS analizleri de yapılarak üretilen tozların mikroyapıları, toz boyut ve şekilleri detaylı olarak incelenmiştir. Farklı bileşim oranlarına sahip üretilen alümina-silika esaslı aerojel tozlarının SEM görüntüleri (100X ve 1000X) Şekil 4.3’te verilmiş olup mikroyapısal analizleri toplu olarak incelenmiştir.

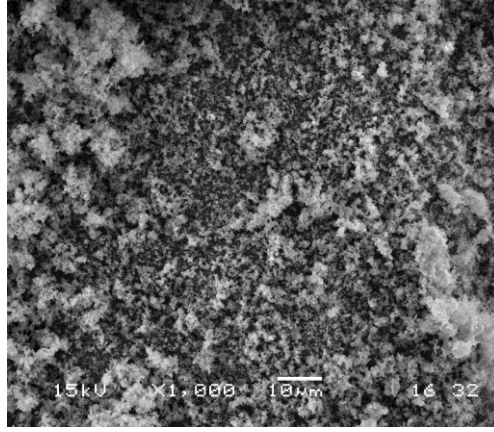
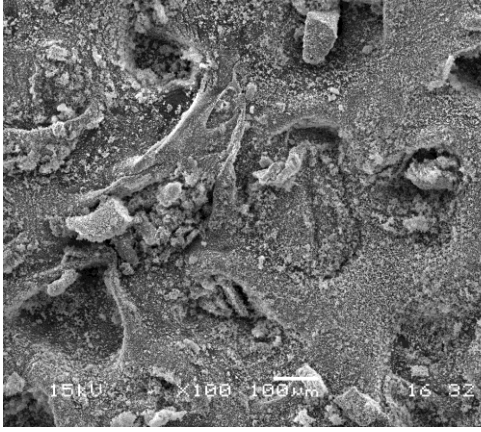


Şekil 4.3. Üretilen alümina-silika esaslı aerojel tozlarına ait 100X ve 1000X büyütmedeki SEM görüntüleri.

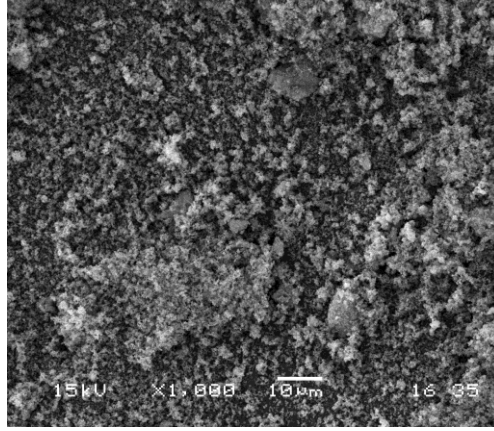
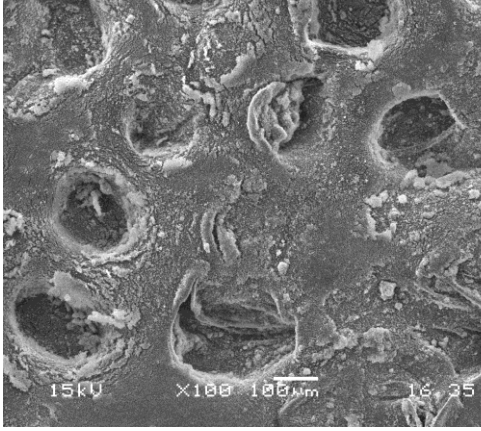
N3



N4

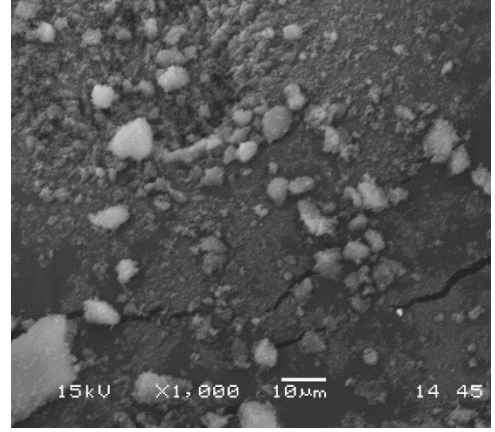
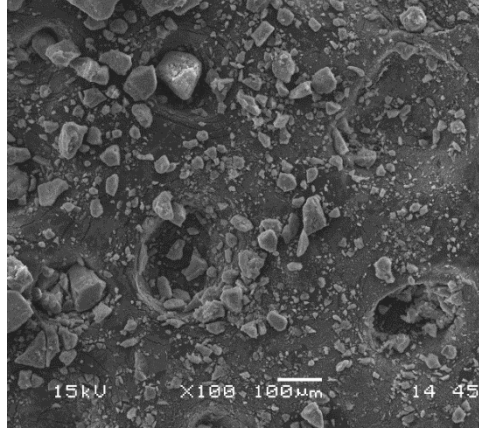


N5

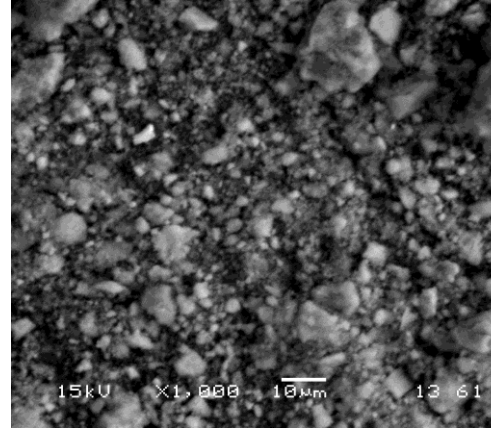
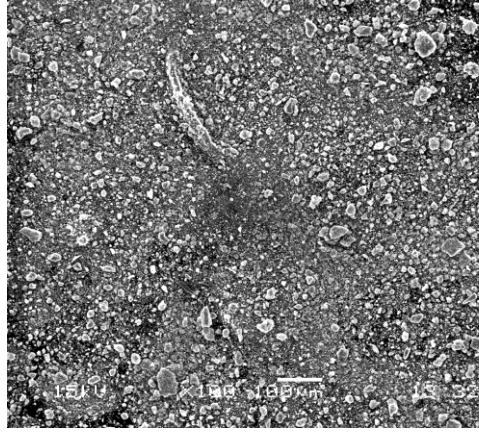


Şekil 4.3. (Devamı) Üretilen alümina-silika esaslı aerojel tozlarına ait 100X ve 1000X büyütmedeki SEM görüntüleri.

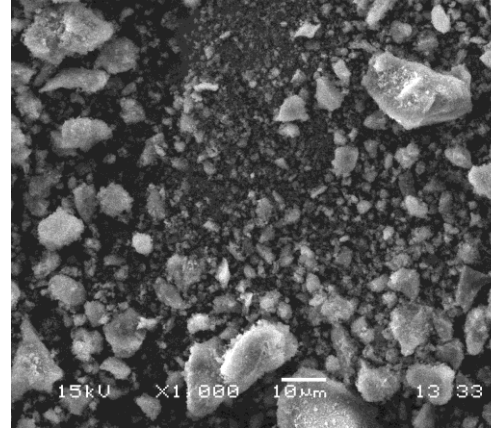
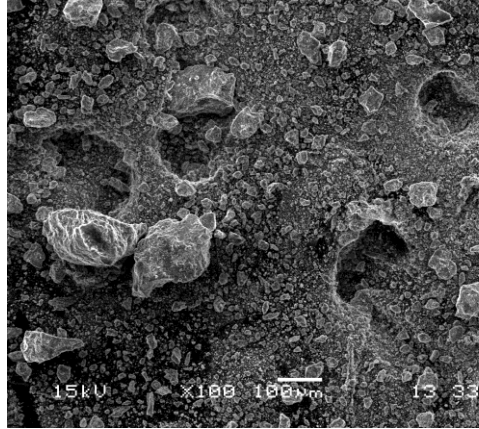
N6



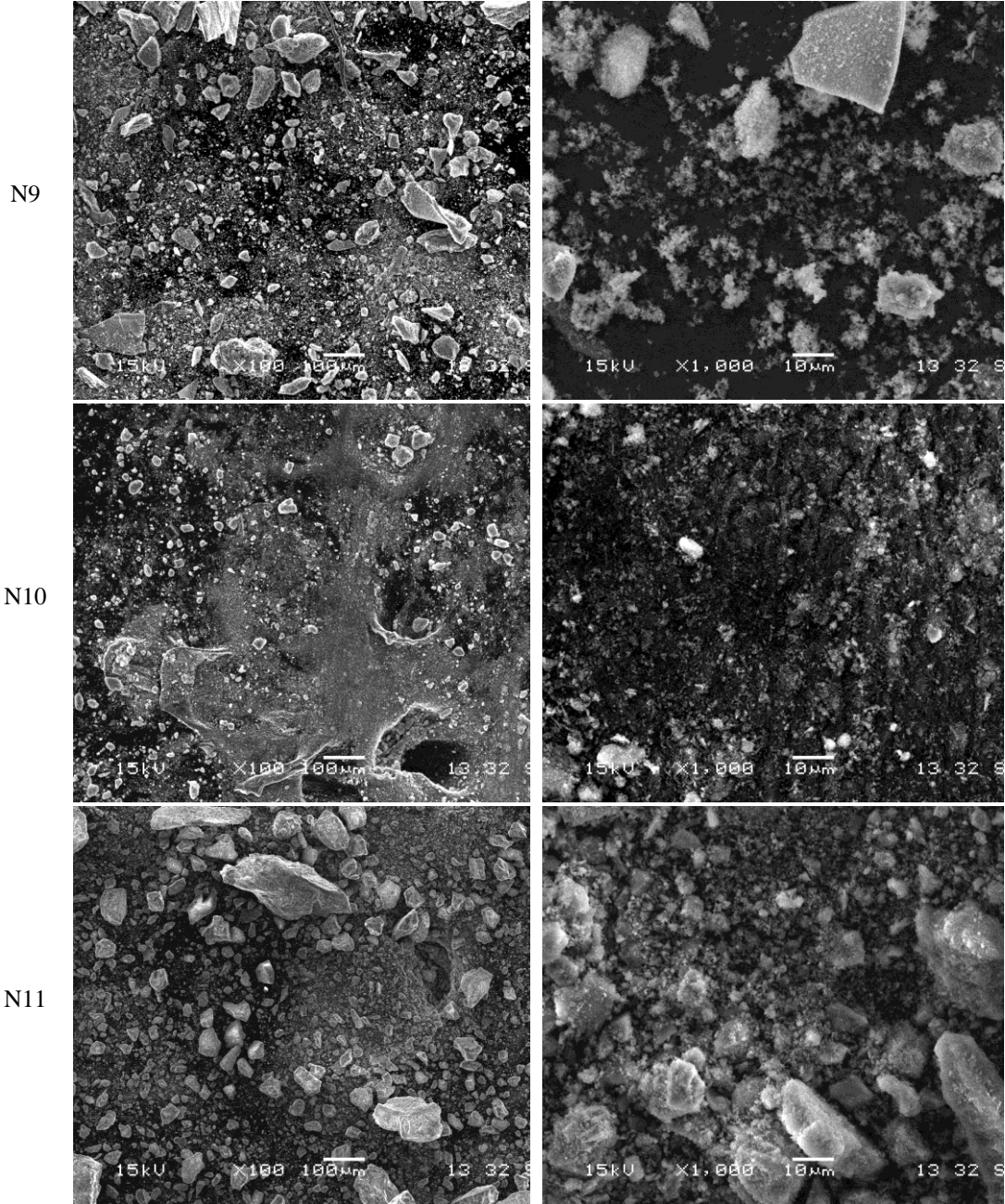
N7



N8



Şekil 4.3. (Devamı) Üretilen alümina-silika esaslı aerojel tozlarına ait 100X ve 1000X büyütmedeki SEM görüntüleri.



Şekil 4.3. (Devamı) Üretilen alümina-silika esaslı aerojel tozlarına ait 100X ve 1000X büyütmedeki SEM görüntüleri.

Şamot tuğlası tozunun başlangıçtaki mikro yapısı iri ve küresel tanelerden oluştuğu, geniş toz boyutu aralığında olduğu, perlitin ise geniş toz boyut aralığında köşeli ve yapraksı tane yapısına sahip olduğu görülmüştü. Yapılan analizler neticesinde şamot tuğlası ve perlitten (1 M) sentezlenen N1 kodlu toza ait görüntülerde, genel olarak küçük tane boyutlu tozlar gözlemlenmiş olup; FTIR analizindeki (Şekil 4.7) -OH bağlarıyla da doğrulandığı gibi aglomerasyon varlığı gözlenmiştir. Aynı öncülden fakat farklı molaritede baz ve asit çözeltisinden (3M asit/baz derişimi) elde edilen N2 kodlu alümina-silika esaslı aerojel tozuna ait görüntülerde, küçük tane boyutlu tozların

yanı sıra gözlemlenen iri küresel taneler, toz yapısında aglomerasyonun meydana geldiğini göstermektedir. Yapılan çalışmalarda [3] molaritenin artması ile birlikte tane boyutunda küçülme ve jelleşme aşamasında hava kabarcıklarının çökmesinden kaynaklanan düzensiz gözenek yapısının gözlemlendiği belirtilmekle beraber mevcut çalışmada tane büyümesi çok sayıda nano boyutlu tozların aglomerasyona uğramasına bağlanmaktadır. Bu durumu FTIR analizindeki -OH bağlarının varlığı desteklemektedir.

Şamot tuğlası ve diatomitten (1 M asit/baz derişimi) sentezlenen N3 kodlu toza ait görüntülerde, büyük tane boyutlu tozlar gözlemlenmiş olup; karma toz tane yapısına sahip olduğu gözlenmiştir. Aynı öncülden fakat farklı molaritede baz ve asit çözeltisinden (3M asit/baz derişimi) elde edilen N4 kodlu alümina-silika esaslı aerojel tozuna ait görüntülerde, N3'ye göre daha küçük tane boyutlu tozlar görülmektedir. Bu durumda doğal hammadde kaynağı olarak kaolenin kullanıldığı bir çalışmaya [3] benzer olarak düşük derişimdeki baz-asit katalizörü ile üretilen N3 kodlu aerojel tozunun N4 kodluya göre daha büyük parçacık boyutunda olduğu, derişim yükseltildiğinde (N4 kodlu) ise toz şeklinin daha düzgün, pürüzsüz ve kompakt hale geldiği çalışmaların sonuçları ile uyumludur.

Zeolit tozunun başlangıçtaki mikro yapısı iri, küresel şekilli ve geniş toz boyut aralığına sahip tanelerden oluşurken; şamot tuğlası ve zeolitten (3M asit/baz derişimi) sentezlenen N5 kodlu aerojel tozunun daha küçük tane boyutlu, üniform yapıda ve aglomere olmuş toz yapısına sahip olduğu görülmüştür.

Şamot tuğlası ve vollastonitten üretilen N6 kodlu aerojel tozunun mikroyapısında plaka şekilli ve keskin köşeli toz tane yapıları görülmüş olup karma bir toz tane yapısına sahip olduğu söylenebilir. Şamot tuğlasının başlangıçtaki mikroyapısında çoğunlukla küresel taneler gözlenirken, vollastonit tozları çubuksu forma sahiptir. Üretilen kompozit aerojel tozunda ise çoğunlukla plaka formlara dönüşüm olduğu görülmüştür.

Eloksal atık başlangıçta küresel toz yapısına sahip iken; şamot tuğlası ve eloksal atıktan üretilen (1 M asit/baz derişimi) N7 kodlu aerojel tozunun ise küçük, küresel ve farklı tane boyut aralığına sahip toz yapısı sergilediği görülmüştür.

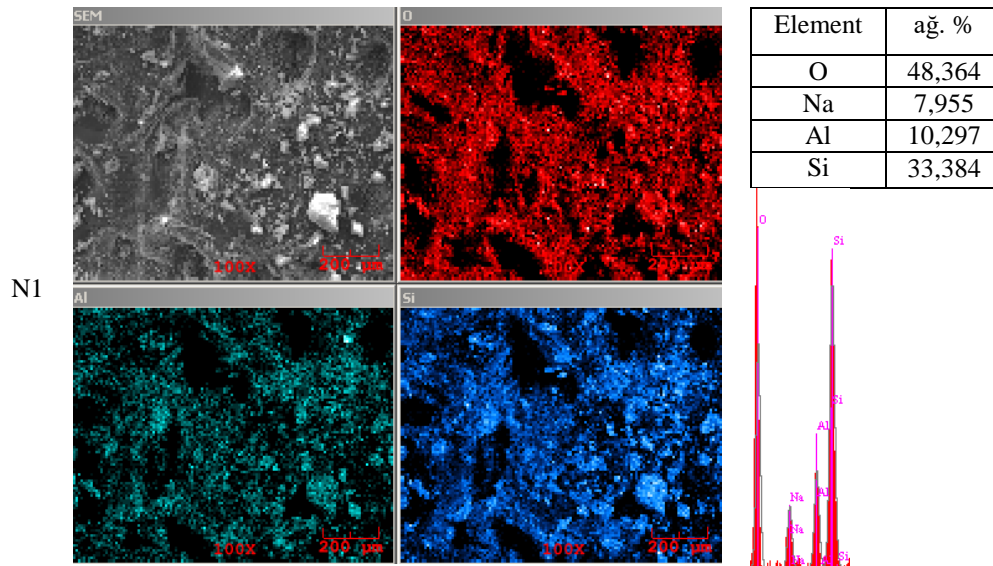
Eloksal atık ve perlitten üretilen N8 kodlu aerojel tozunun yapısında küçük ve iri taneler bulunmakta ve yapıda aglomerasyonun meydana geldiğini görülmektedir.

Perlit tozunun başlangıçtaki yapısı yapraksı iken üretilen aerojel tozunun yapısı küresel formda olduğu tespit edilmiştir.

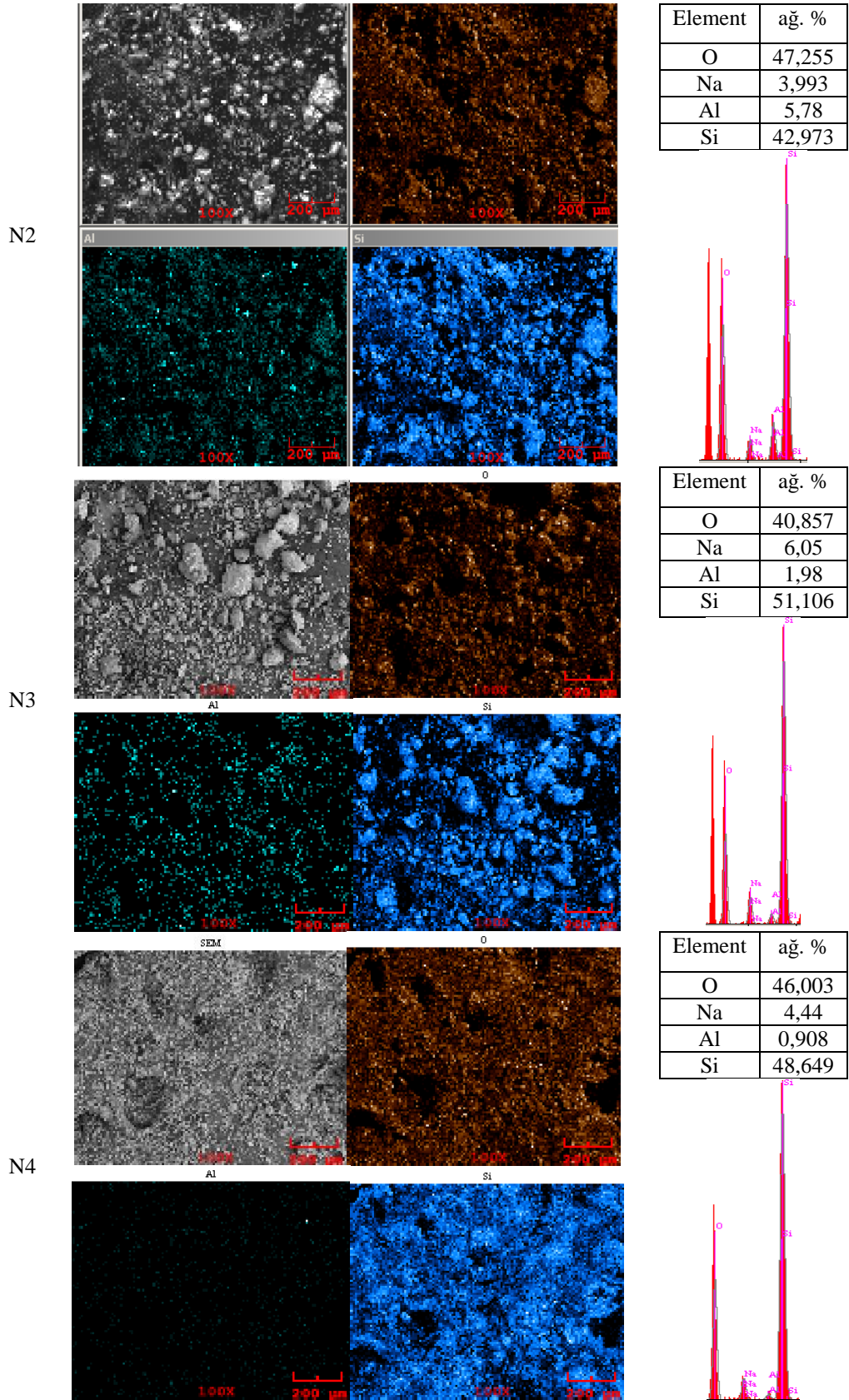
Diatomit tozunun başlangıçtaki yapısı çubuksu ve plaka şekilli karma toz tane yapısına sahipken, eloksal atık ve diatomitten üretilen N9 kodlu aerojel tozu keskin köşeli tane yapısına sahiptir. Diatomit tozunun başlangıçtaki yapısı iri ve aglomere olmuş tanelerden oluşurken; eloksal atık ve zeolitten oluşan N10 kodlu aerojel tozu neredeyse homojen dağılımlı, küresele yakın, daha küçük toz tane yapısı sergilemiştir.

Vollastonit tozunun başlangıçta çubuksu formda tane yapısı mevcutken, eloksal atık ve vollastonitten oluşan N11 kodlu aerojel tozunun; başlangıç hammaddesinin sahip olduğu çubuksu formun küreselimsi ve plaka formlarına dönüşmesiyle karma toz tane yapısına sahip olduğu tespit edilmiştir.

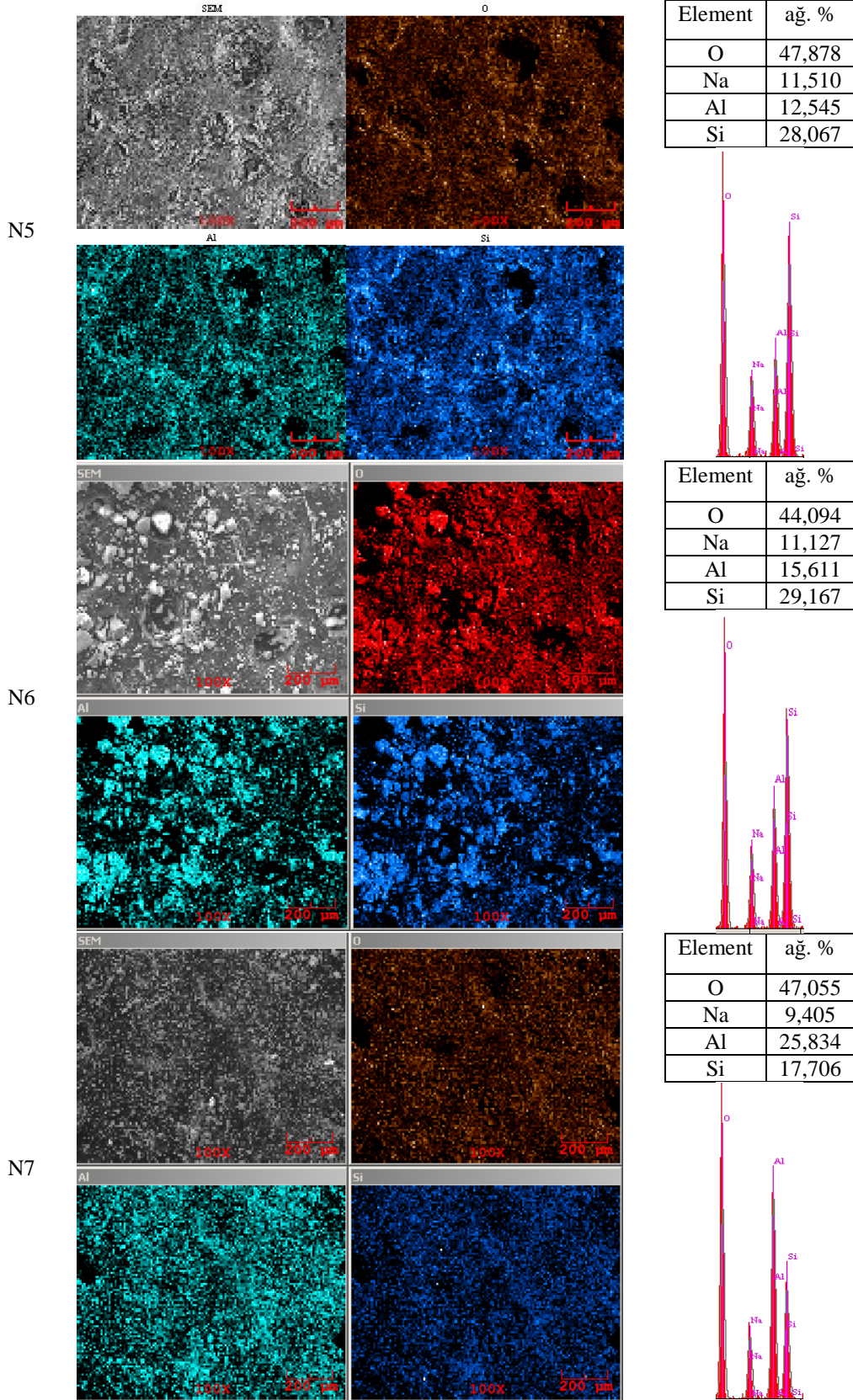
Üretilen tüm alümina-silika esaslı aerojel tozlarının BET analiziyle de doğrulandığı gibi nano boyutta olmalarına rağmen; mikroyapılarda tane boyutunun mikron seviyelerde gözükmesi tozların aglomerasyona uğraması ile açıklanabilmektedir. Bu durum FTIR analizlerindeki -OH bağlarının varlığına bağlanmaktadır. Üretilen kompozit alümina-silika esaslı aerojel tozlarındaki alümina ve silika içeriklerinin toz yapısındaki dağılımlarının homojen olup olmadığını belirlemek için EDS haritalama ile Si, Al ve O elementlerinin genel mikroyapıdaki dağılımları Şekil 4.4'te görülmektedir.



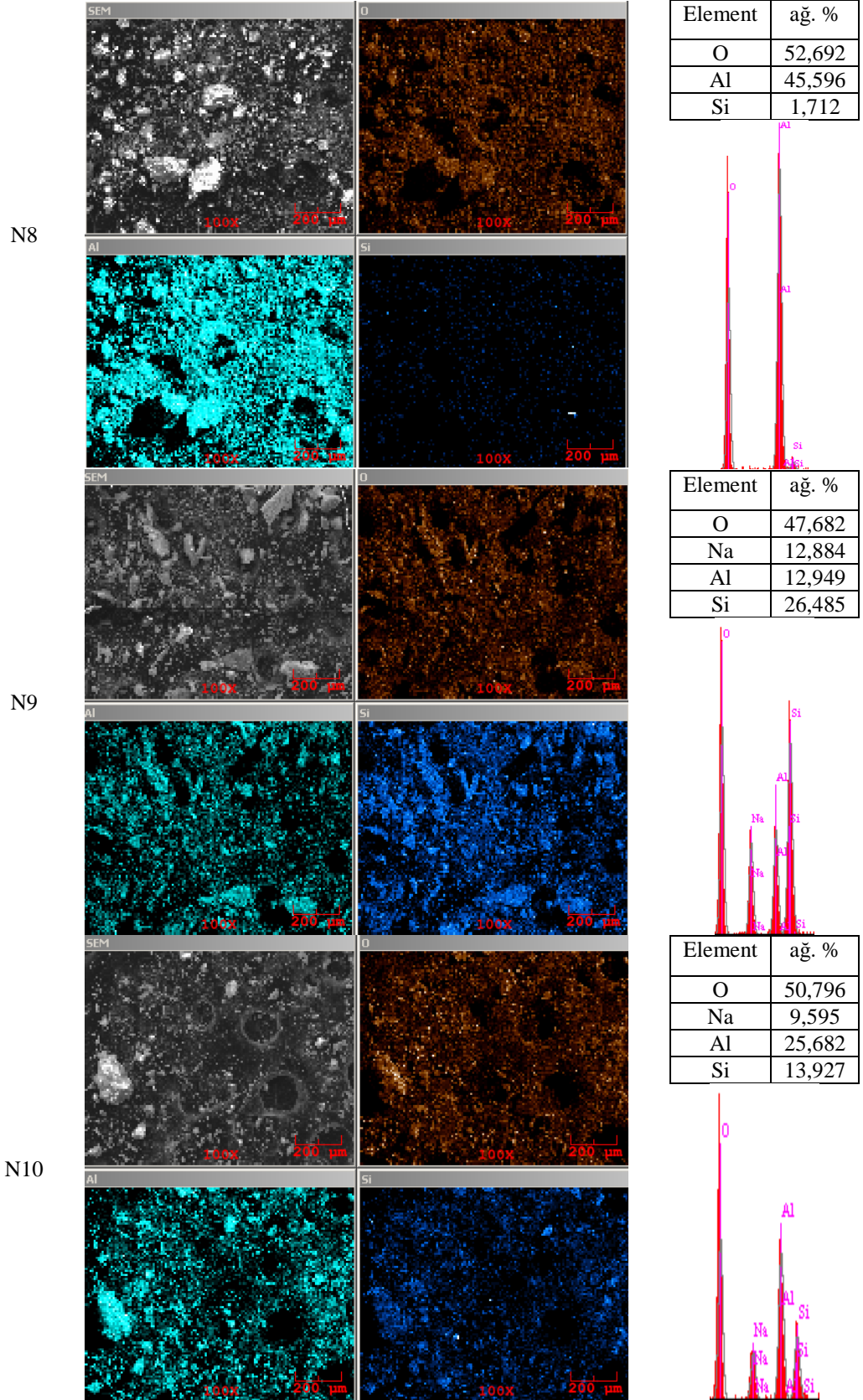
Şekil 4.4. Üretilen alümina-silika esaslı aerojel tozlarına ait EDS harita görüntüleri.



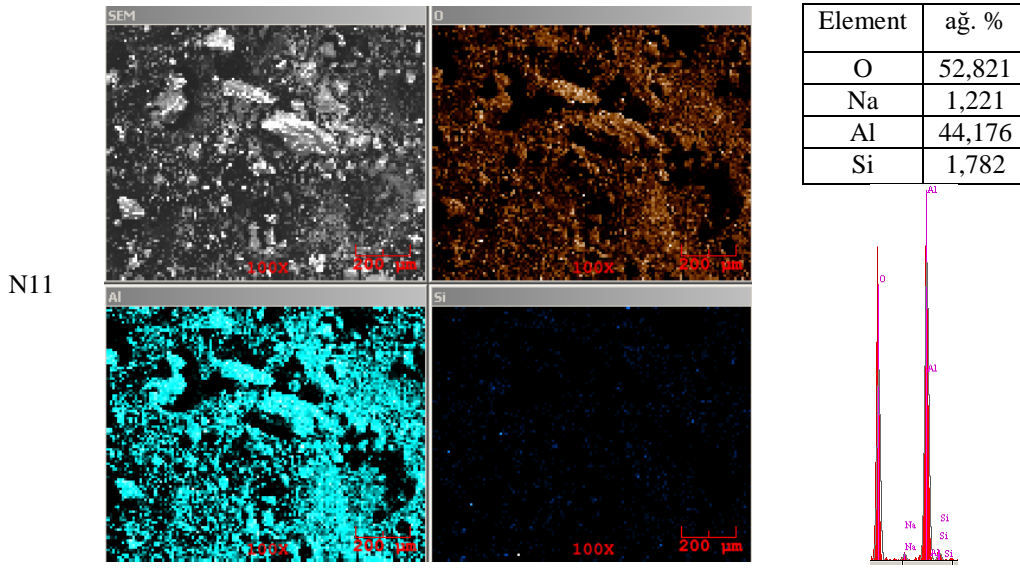
Şekil 4.4. (Devamı) Üretilen alümina-silika esaslı aerojel tozlarına ait EDS harita görüntüleri.



Şekil 4.4. (Devamı) Üretilen alümina-silika esaslı aerojel tozlarına ait EDS harita görüntüleri.



Şekil 4.4. (Devamı) Üretilen alümina-silika esaslı aerojel tozlarına ait EDS harita görüntüleri.



Şekil 4.4. (Devamı) Üretilen alümina-silika esaslı aerojel tozlarına ait EDS harita görüntüleri.

Kompozit aerojel tozu eldesi için alümina öncülü olarak kullanılan şamot tuğlası, diğer silika öncü kaynakları ile (perlit, zeolit, diatomit ve vollastonit) 2:1 alümina/silika kütle oranıyla ve diğer bir grup olan eloksal atık ile diğer silika öncü kaynakları 1:1 oranında ayrı ayrı 1 saat süreyle karıştırılarak çözeltilere alınarak sol çözeltileri hazırlanmış ve sonrasında HCl ile nötrale edilmiştir. 2 hafta HCl çözeltisi içinde bekletilen jeller sonrasında süzülerek 1 hafta saf su içinde (1 defa değiştirilerek), 2 gün %45 Etanol/su çözeltisi, 5 gün de %100 etanol/su çözeltisi içinde bekletilmiştir. Yaşlanma süresi tüm üretilen numunelerde aynı olup 2 haftadır.

Şekil 4.4'teki alümina-silika esaslı aerojel tozlarının EDS görüntüleri incelendiğinde, şamot tuğlası ve perlitten 1 M baz-asit derişimi ile üretilen N1 kodlu aerojel tozunda Si (ağ. %33,384), Al (ağ. %10,297) elementine göre yapıda biraz daha fazla bulunmaktadır. Bunun sebebi, şamot tuğlasında yüksek oranda alümina bulunmasının yanında silika da ihtiva ettiği etmesinden kaynaklıdır. Buna rağmen üretilen aerojel tozunda alümina/silika oranının üretilen diğer aerojel tozları ile uyumlu oranda olduğu söylenebilir. MAP analizinde üretilen toz yapısında Si, Al ve O element dağılımlarının nispeten homojen olduğu gözükmektedir. Na elementinin varlığı kullanılan baz katalizöründen (NaOH) ve başlangıç hammadde ve atıkların yapısında bulunmasından kaynaklı olarak bir miktar yapıda kalmış olduğu düşünülmektedir, saf su ile yıkama işlem sayısı sonraki aerojel tozu üretim çalışmaları için arttırılarak bu oran azaltılabilir. Aynı öncüller kullanılarak 3 M derişiminde baz-asit çözeltisi ile sentezlenen N2 kodlu

aerojel tozunda ise Si oranı ağırlık % 42,973 iken Al oranı ağırlık % 5,78'dir. Na oranının N1 kodlu aerojel tozuna göre daha düşük (%3,99) olması yapıdaki safsızlığın daha verimli şekilde azaltıldığını göstermektedir. Bunun sebebi toz üretimi için 3 M ve 100 ml hacminde daha az sol çözeltisi kullanılması nedeni ile 1 M'lık 250 ml'ye çözeltiye göre daha az (daha az NaOH çözeltisi kullanıldığından) Na miktarının tespit edildiğinden saf su ile yıkama yeterli olmuştur. Şamot tuğlası ve perlit için 1 M'lık 100 ml hacminde sol çözeltisi hazırlanmış ancak jel oluşumu gözlenemediğinden çalışma 1 M 250 ml sol çözeltisi ile devam etmiştir. 250 ml hacimli çözeltide 100 ml'e göre daha fazla jel elde edilmiş, bu da çözeltinin içindeki öncül maddelerin daha homojen ve geniş alanda dağılmasına ve jel veriminin daha fazla olmasını sağlamaktadır. Bunun yanında, derişim de jelleşme aşamasında önemli bir faktör olup, düşük derişimlerde elde edilemeyen jelleşmelerde derişim artırılarak moleküler etkileşim, reaksiyon hızı gibi faktörler artırılarak çözelti jelleşme verimine katkıda bulunulabilir [154-156].

Şamot ve diatomitten üretilen N3 ve N4 kodlu aerojel tozları sırasıyla 1 M ve 3 M derişimindeki baz-asit çözeltisi ile üretilmiş olup; N3 kodlu aerojel tozunun Si oranı ağırlık %51,106, Al oranı %1,98; N4'te ise Si %48,649, Al %0,908'dir. N3 ve N4 kodlu aerojel tozlarında Si oranının çok yüksek olması şamot tuğla harcından gelen silika ve diatomitin yapısındaki yüksek silika (ağırlık %52,57) oranı ile ilişkilendirilebilir. Ayrıca diatomit yapısının jelleşme kabiliyetinin daha yüksek olduğu çalışma kapsamında görülmüş olup; diatomit ile üretilen tozlarda (N9 gibi) benzer baskın silika etkisi görülmüştür. Ek olarak 1 M ile üretilen N3 kodlu aerojel tozunun kurutma esnasında daha fazla büzüldüğü ve bir miktar çatlama durumunun olduğu gözlenmiştir. Bunun sebebi, N3 kodlu tozun 1 M 250 ml baz-asit çözeltisi kullanılarak üretilmesi sebebiyle çözücü hacminden dolayı jelin bünyesine fazla çözücü alması, benzer bir çalışmada da [3] doğrulanan azalan hidroklorik asit konsantrasyonunun, ıslak silika jeldeki su içeriğinin artmasına sebep olması ve dolayısıyla kurutma esnasında ıslak jel matrisindeki fazla çözücünün uzaklaşması gerekeceğinden jel kararsızlığına sebep olup bünyenin küçülmesine bağlanabilir. Kurutma sürecinde yapılacak değişikliklerle (sıcaklığın kademeli artırılarak değiştirilmesi gibi) bu büzülme miktarı yönetilebilir. Ayrıca jel matrisindeki bağları güçlendirmek, çapraz bağ oluşumunu teşvik etmek için yaşlanma esnasında modifiye edici sililasyon ajanları (TEOS, TMES gibi) kullanılabilir. Ji ve ark. yaptığı çalışmada TEOS kullanımı ile aerojel büzülme ve

çatlamasının önüne geçildiği belirtilmiştir [110]. Ayrıca benzer bir çalışmada [3] Na^+ 'nın giderilmesi ile, kurutma işlemi sırasında jeldeki büzülme ve çatlama önlenmiş, bu durum için saf su ile yıkama miktarı artırılarak Na^+ bünyeden uzaklaştırılmasının sağlandığı belirtilmiştir.

Şamot tuğlası ve zeolitten üretilen N5 kodlu aerojel tozunda Si oranı (ağ. %28,067) Al oranına (ağ. %12,545) göre nispeten yüksek olsa da değerler diğer numunelere göre birbirine yakın olup MAP analizinde de homojen dağılımlı bir görüntü tespit edilmiştir.

Şamot tuğlası ve vollastonitten üretilen N6 kodlu aerojel tozunda diğer numunelere kıyasla daha az miktarda toz eldesi görülmüştür. Si oranı ağ. %29,16 Al oranı ise %15,61'dir.

Şamot tuğlası ve eloksal atıktan üretilen N7 kodlu aerojel tozunda Al (ağ. %25,834), Si elementine (ağ. %17,706) göre yapıda biraz daha fazla mevcuttur. Bunun sebebi de eloksal atığın yapısında yüksek oranda alümina bulunmasının yanında çözeltiye şamottan da bir miktar alümina geçmiş olduğudur. Dolayısıyla öncüllerden gelen baskın alümina oranına rağmen; üretilen aerojel tozunda alümina/silika oranının üretilen diğer aerojel tozları ile uyumlu oranda olduğu tespit edilmiştir. MAP analizinde üretilen toz yapısında Si, Al ve O element dağılımlarının homojen olduğu gözükmemektedir. Na, kullanılan baz katalizöründen (NaOH) kaynaklı olarak bir miktar yapıda kalmış olup, saf su değişimi sonraki çalışmalar için artırılarak bu oran azaltılabilir.

Eloksal atık ve perlitten üretilen N8 kodlu numunenin MAP analizinde ise Si elementinin (ağ. %1,712) Al elementine (ağ. %45,596) göre daha az olduğu görülmüş; sebebi eloksal atıktaki yüksek alümina miktarıyla beraber perlitin içerisinden de gelen alümina miktarının varlığına bağlanabilir. Si oranını yükseltmek için numune hazırlama sürecinde karıştırma süresi artırılabilir veya alümina-silika kompozitteki perlit oranı artırılarak üretim yapılabilir.

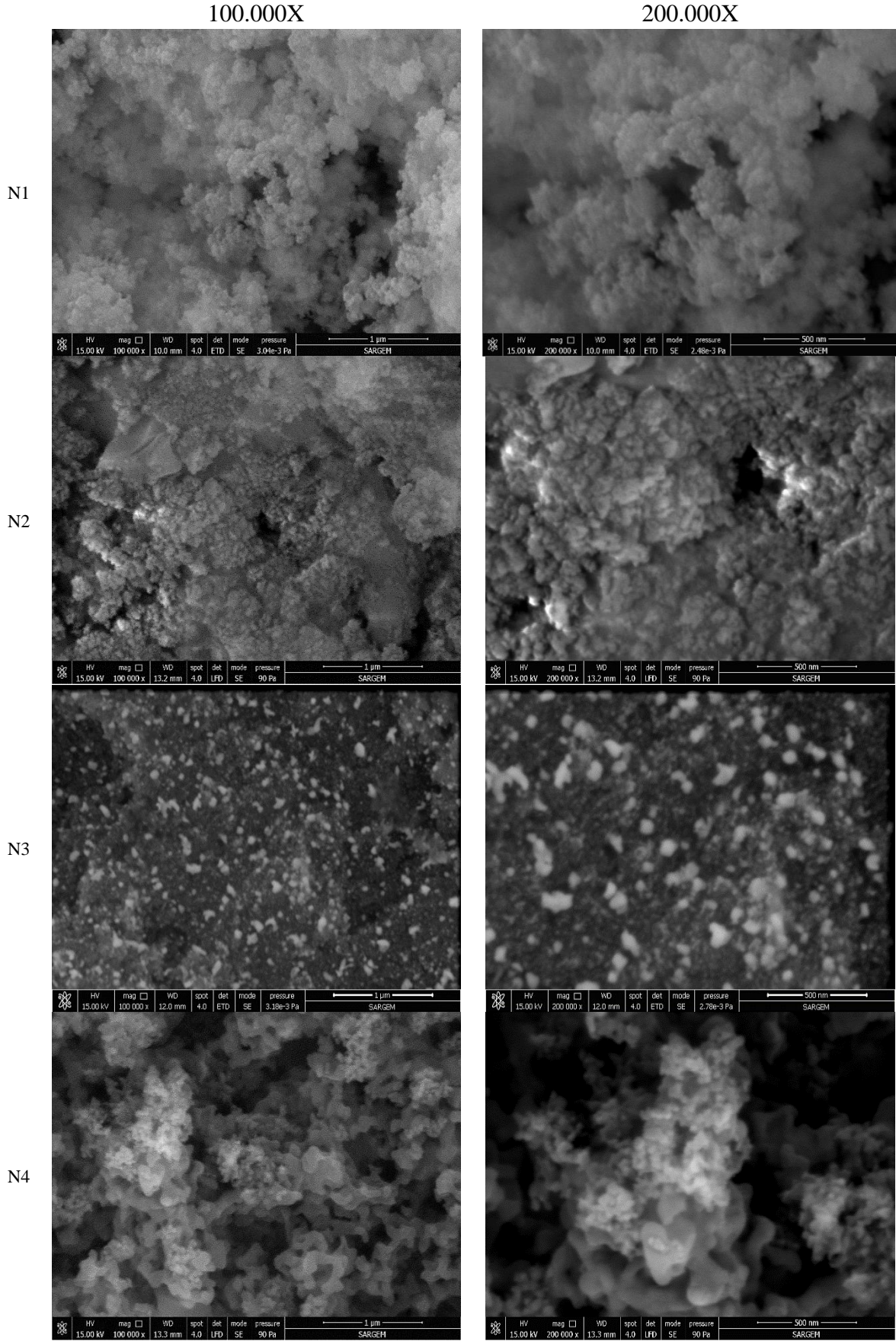
Eloksal atık ve diatomitten üretilen N9 kodlu numunenin MAP analizinde ise Si elementinin (ağ. %26,485) Al elementine (ağ. %12,949) göre daha fazla olduğu görülmüştür. Hammadde olarak kullanılan diatomitte %85 oranında silika varken, perlitte ise %74 silika olması üretilen N9 kodlu aerojel tozunun silika içeriğinin N8 kodlu toza göre daha yüksek olmasının sebeplerinden biri olduğu düşünülmektedir.

Çalışma kapsamında diatomit öncülünün bulunduğu numunelerin jelleşme kabiliyetinin daha yüksek ve verimli olduğu görülmüş, dolayısıyla mevcut çalışmada da diatomit eloksal atık kullanılarak üretilen kompozit aerojel tozunda benzer baskın etkiyi gösterdiği gözlemlenmiştir. Alümina oranını yükseltmek için numune hazırlama sürecindeki karıştırma süresi artırılarak daha homojen bir sol çözeltisi elde edilebilir.

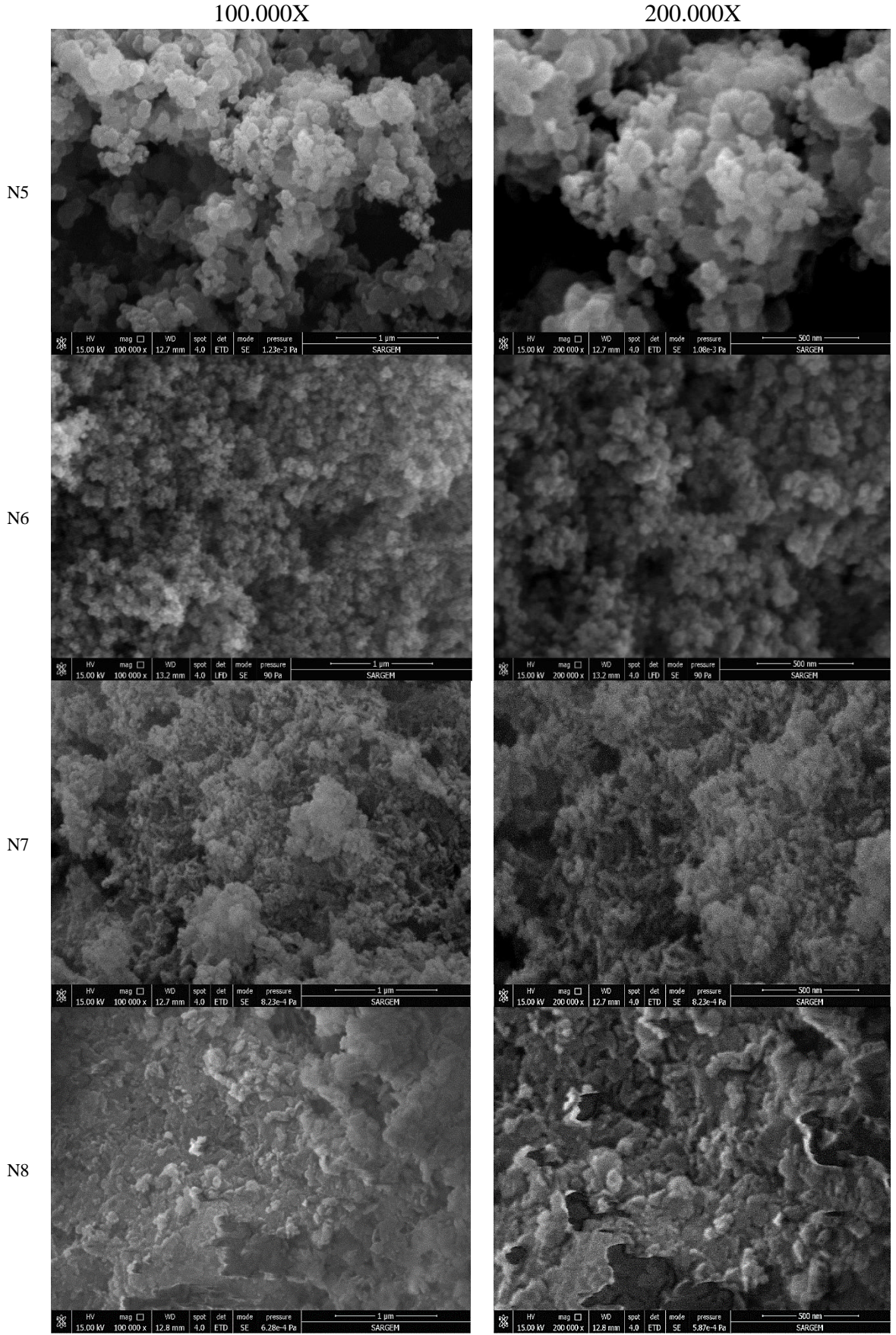
Eloksal atık ve zeolitten üretilen N10 kodlu numunenin MAP analizine göre ise Al elementinin (ağ. %25,682) Si elementine (ağ. %13,927) göre daha fazla yapıda mevcut olduğu görülmüştür. Bunun sebebinin eloksal atıktaki yüksek Al miktarıyla beraber zeolitin içerisinde de gelen Al (ağ. %8,302) miktarının varlığına bağlanabilir. MAP analizinde, üretilen N10 kodlu kompoziti oluşturan ana bileşenlerin (Si, O, Al) yapı içerisinde homojen olarak dağıldığı görülmektedir.

Eloksal atık ve vollastonitten üzerilen N11 kodlu numunede Al elementinin Si elementine göre daha fazla yapıda olduğu görülmüştür. Bunun sebebinin vollastonitin kararlı yapısı nedeniyle eloksal atıktan daha az jelleşmesi ve eloksal atıktaki Al miktarının vollastonitteki Si oranına göre daha yüksek olmasına bağlanabilir. Bu durumu teyit etmek amaçlı vollastonit kullanılarak aynı parametrelerde aerojel üretimi çalışması yapılmış ve jelleşme gözlenmemiştir. Sonraki çalışmalarda vollastonitin çözeltiliye alınmasında başka parametreler (süre, baz ve asit molaritesi, sıcaklık gibi) denenerek verimin artışı çalışılabilir.

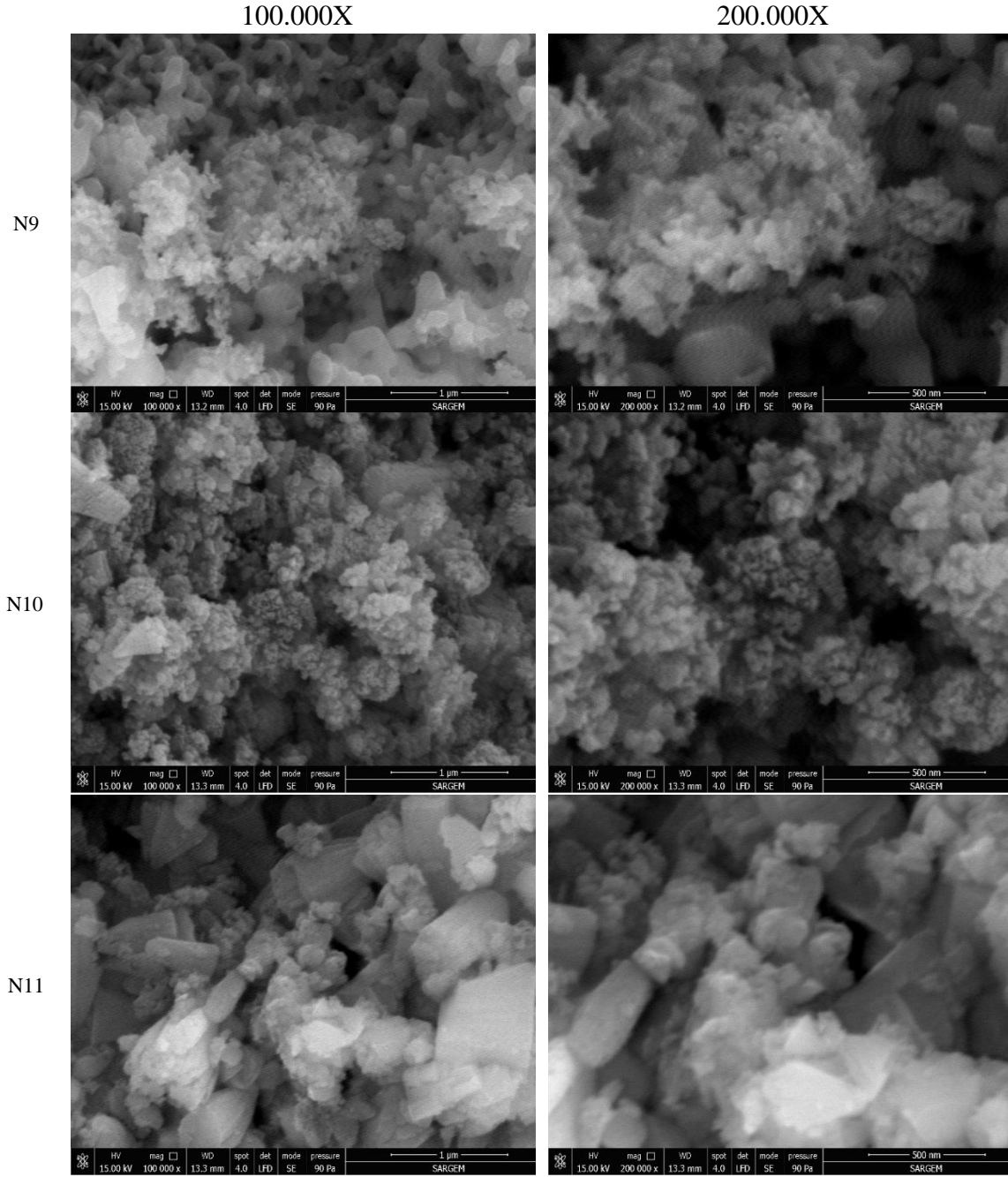
Nano boyutlardaki tozların mikroyapılarının daha iyi anlaşılabilmesi amacıyla yüksek büyütmelelere çıkılarak FESEM görüntüleri incelenmiş ve ayrıca BET analizi de yapılarak tozların ortalama toz partikül boyutları da incelenmiştir. Üretilen alümina-silika esaslı aerojel tozlarının 100.000X ve 200.000X büyütmelerdeki FESEM görüntüleri Şekil 4.5'te, 50.000X büyütmelerdeki FESEM görüntüleri ve EDS sonuçları ise Şekil 4.6'da görülmektedir. Yapılan FESEM-EDS analizleri sonucunda Şekil 4.6'da belirtildiği üzere yapıdaki mevcut elementlerin Si, Al ve O olduğu görülmektedir.



Şekil 4.5. Üretilen alümina-silika esaslı aerojel tozlarının 100.000X ve 200.000X büyütmelerindeki FESEM görüntüleri.



Şekil 4.5. (Devamı) Üretilen alümina-silika esaslı aerojel tozlarının 100.000X ve 200.000X büyütmelerindeki FESEM görüntüleri.

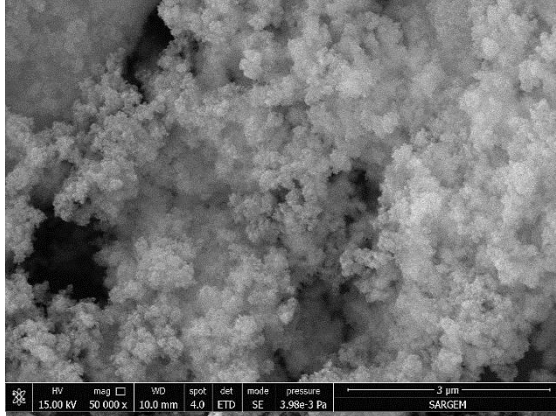


Şekil 4.5. (Devamı) Üretilen alümina-silika esaslı aerojel tozlarının 100.000X ve 200.000X büyütmelerdeki FESEM görüntüleri

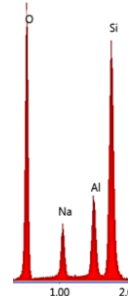
50.000 X

EDS

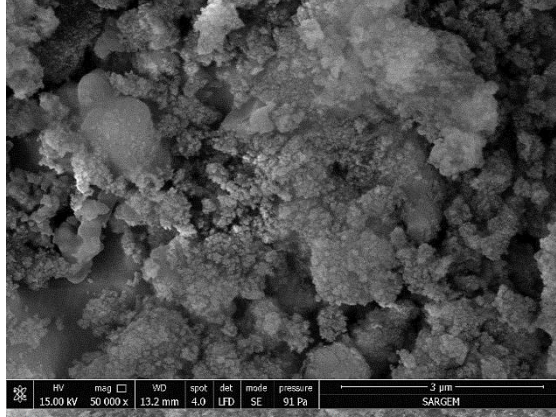
N1



Element.	ağ. %
O	45,59
Na	9
Al	10,25
Si	31,16



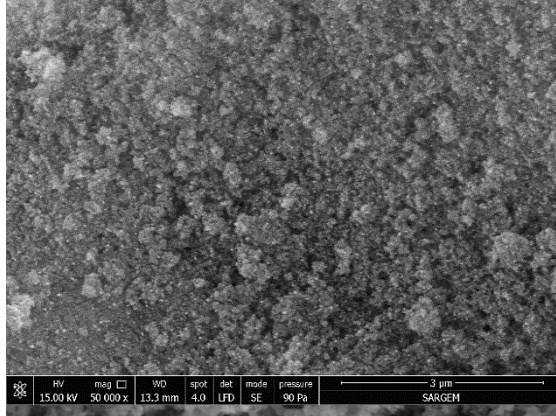
N2



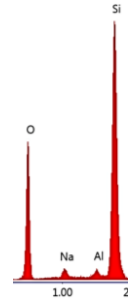
1.YIKAMA		2.YIKAMA	
Elt.	ağ. %		
O	45,5	47,52	
Na	5,38	4,29	
Al	7,87	5,5	
Si	41,25	42,7	



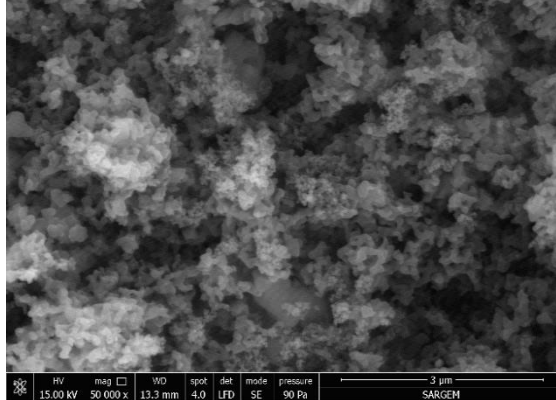
N3



1.YIKAMA		2.YIKAMA	
Elt.	ağ. %		
O	40,32	45,69	
Na	5,78	2,13	
Al	4,68	1,41	
Si	49,22	50,77	



N4



1.YIKAMA		2.YIKAMA	
Elt.	ağ. %		
O	51,31	51,92	
Na	4,55	4,11	
Al	2,47	1,31	
Si	41,67	42,67	

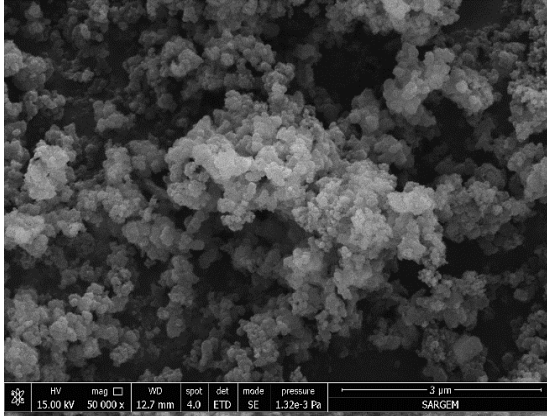


Şekil 4.6. Üretilen alümina-silika esaslı aerojel tozlarının 50.000X büyütmeledeki FESEM-EDS görüntüleri.

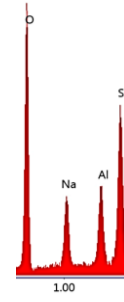
50.000 X

EDS

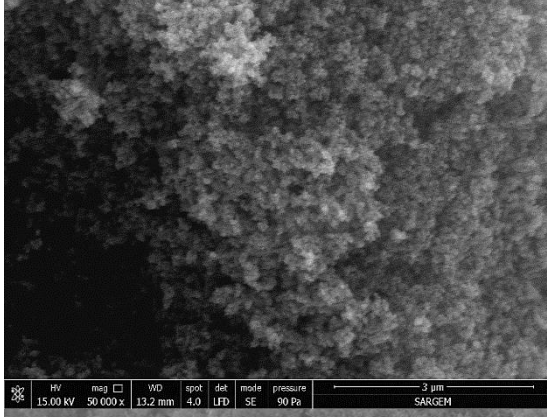
N5



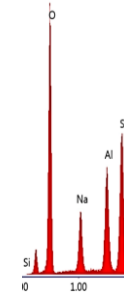
Elt.	ağ. %
O	50,88
Na	12,75
Al	11,42
Si	24,95



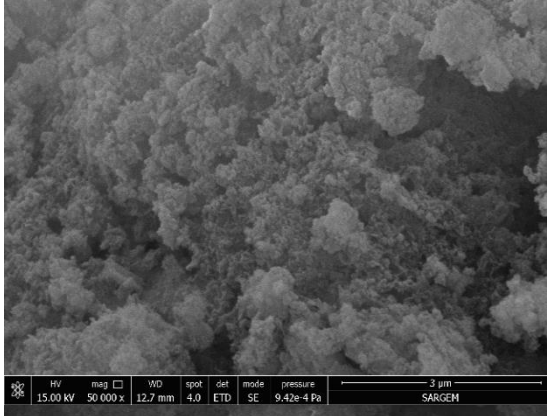
N6



Elt.	ağ. %
O	50,12
Na	12,03
Al	15,18
Si	22,66



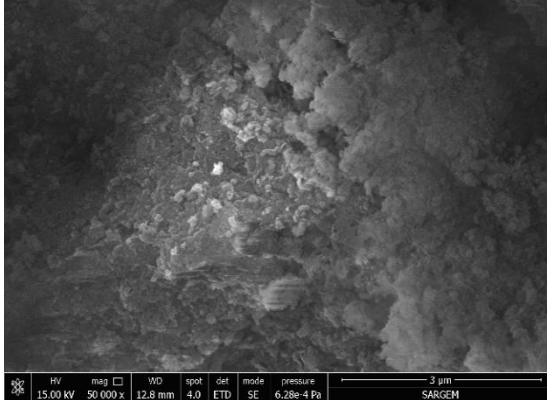
N7



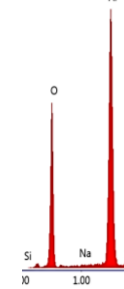
Elt.	ağ. %
O	53,52
Na	0,04
Al	45,35
Si	1,09



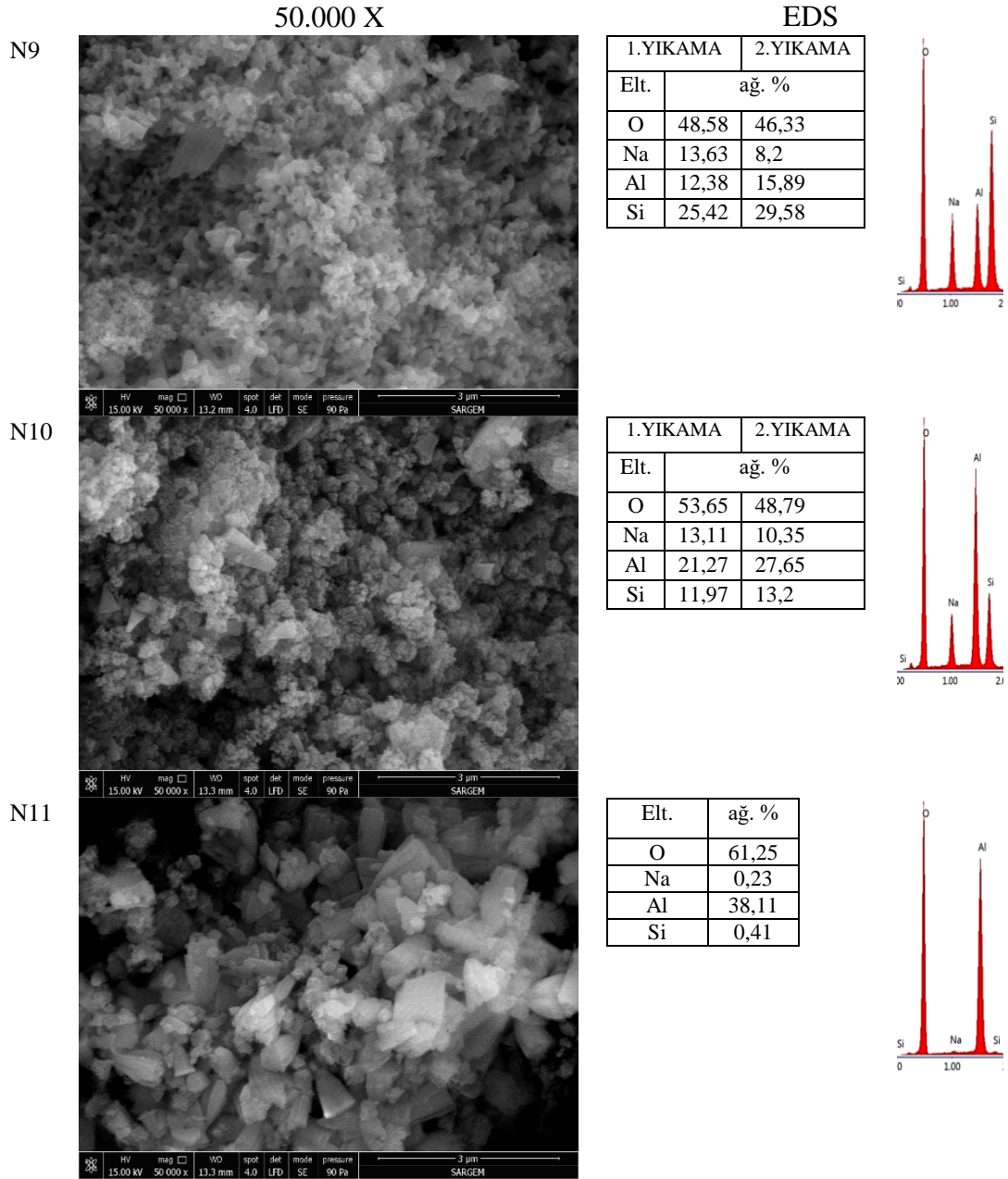
N8



Elt.	ağ. %
O	47,61
Na	0
Al	51,32
Si	1,07



Şekil 4.6. (Devamı) Üretilen alümina-silika esaslı aerojel tozlarının 50.000X büyütmelemlerdeki FESEM-EDS görüntüleri.



Şekil 4.6. (Devamı) Üretilen alümina-silika esaslı aerojel tozlarının 50.000X büyütmelerdeki FESEM-EDS görüntüleri.

Çeşitli bileşimlerde ve farklı koşullarda sentezlenen alümina-silika esaslı aerojel tozlarının yüksek büyütmelerde (50.000X, 100.000X ve 200.000X) yapılan FESEM analizleri sonucunda üretilen tozların nano boyutlu (8-50 nm), homojen dağılımlı ve gözenekli tane yapısında oldukları görülmüştür. Nano boyuttaki tozların çoğunlukla birleşerek taneler arasında aglomerasyonlar gözlenmiş olup; bu durum Şekil 4.3'teki SEM görüntüleri ve Tablo 4.2'de verilen FTIR analizindeki –OH bağlarının varlığı ile doğrulanmaktadır. Öğütmenin daha iyi (bilyalı değirmen yardımıyla) yapılması durumunda toz boyutları daha belirgin görülebilir. Çalışmadaki sonuçlar, literatür ile

kıyas edildiğinde sentezlenen tozların beklenen toz tane boyut aralığında ve gözenekli bir yapıya sahip olduğu tespit edilmiştir. Toz partikül boyutları ayrıca BET analiziyle de değerlendirilerek; FESEM ile gözlenen değerlerle doğrulanmıştır. FESEM-EDS analizlerindeki elemental oranlara bakıldığında, SEM-EDS ile uyumlu olduğu görülmüştür. Termal iletkenlik ve yoğunluk değerlerinin düşürülebilmesi için (Na giderimi ile) yapılan ekstra bir yıkama işlemi ile yapıdaki Na miktarının ilk haline göre giderildiği (N2, N3, N4, N9 ve N10. numuneler için) görülmüştür. Yalnızca bu numunelerin yıkanmasının sebebi termal iletkenlik ölçümü için yeterli tozun mevcut olmasıdır. Yapılan FESEM-EDS analizleri sonucunda yapıdaki safsızlıkların büyük oranda giderildiği görülmektedir. Üretilen tüm alümina-silika esaslı aerogel tozları arasında en düşük Al pik değeri (ağ. % 1,31) N4 kodlu şamot tuğlası-diatomit tozlarından üretilen aerogel tozunda elde edilmiştir. En düşük Si değeri ise (ağ. % 0,41) N11 kodlu eloksal atık-vollastonitten elde edilmiştir. Vollastonit kullanılarak üretilen N6 ve N11 kodlu numunelerin yeterli jelleşmemesi sebebiyle az toz üretimi ve çözeltiye vollastonitten gelecek olan Si alımının yetersiz olduğu tespit edilmiştir. En yüksek Si ve Al oranına sahip numuneler ise N3 kodlu (şamot tuğlası-diatomit, Si ağ. %50,77) ve N8 kodlu (eloksal atık-perlit, Al ağ. % 51,32) olmuştur. Diatomit tozu kullanılarak yapılan üç numunede de (N3, N4 ve N9) benzer etki görülmüş olup; silika oranı yüksek çıkmıştır. Elokosal atık kullanılarak üretilen (N8-N11) numunelerde eloksal atığın baskın alümina oranı ve jelleşmenin ilgili parametrelerde verimli olması sebebiyle alümina miktarının şamot tuğlasının alümina öncülü olduğu numunelere (N1-N6) göre daha yüksek olduğu görülmüştür.

Zhu ve arkadaşlarının $\text{SiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ aerogel sentezinde kömür gangının Na_2CO_3 'e farklı kütlece oranları, bekleme süresi ve kalsinasyon sıcaklığının etkisini araştırdıkları bir çalışmada; başlangıç malzemesi olarak kömür gangı kullanarak sol-jel tekniğiyle atmosferik kurutma sonucunda sentezledikleri aerogellerin 50 nm'den küçük nanopartiküllerden oluştuğu ve homojen, parçacıklar arası oluşan bağlantı kümelerinin birbirine bağlanmaları halinde sürekli oluşturulan bağlantı nedeniyle fazla sayıda gözenek oluştuğu gözlemlenmiştir [54].

Peng ve arkadaşlarının alümina-silika aerogellerin yüzey alanı, mikro yapıları ve mekanik özellikleri üzerine kalsinasyon süresinin etkisini araştırdıkları bir çalışmada; başlangıç malzemesi olarak alüminyum sekbütoksit (ASB) ve TEOS kullanılarak çözelti değişimi olmadan sol-jel yöntemiyle hazırlanan aerogeller süper kritik etanol

şartlarındaki kurutma ile sentezlenmiştir. Kalsinasyon sıcaklığının artmasıyla, alümina-silika aerojellerinin yüzey alanında artış olduğu görülmüştür. 800°C’de 575,5 m²/g, 1000°C’de 443,2 ve 1200°C’de 120,6 m²/g yüzey alanı değerleri elde edilmiştir. Numunelerin nano ölçekli morfolojisi ve kristal fazları HRTEM ile araştırıldığında alümina-silika aerojellerin, küçük, yaprak benzeri, neredeyse amorf nanopartiküllerden oluştuğu görülmüştür. Nano boyuttaki silika, alümina aerojellere homojen olarak katkılındığında; Al-O-Si bağlarının tüm ağ yapısını güçlendirdiği tespit edilmiştir. 1000°C’de ısıtıldıktan sonra aerojelde bazı γ -Al₂O₃ mikrokristalleri varken, 1300°C’de alümina-silika aerojel ısıtıldıktan sonra müllit mikro kristalleri ortaya çıkmış olup, parçacıklar ise hala 50 nm’den küçük kalmaktadır. Bu sonuçlar, silika katkılamanın aerojellerdeki alümina nanoparçacıklarının sinterlenmesini, faz dönüşümünü ve kristal büyümesini sınırladığını göstermektedir. Yapılan çalışmadaki numunelerin SEM görüntülerinde, elde edilen tozların oldukça küçük ve homojen dağılımlı nano parçacıklardan oluştuğu görülmüş; yüzey alanının artmasıyla da gözenek boyutlarında iyileşmeler gözlemlenmiştir [51].

Shalygin ve arkadaşlarının sol-jel yöntemiyle sentezledikleri alümina-silika aerojellerin özelliklerine, silika/alümina oranının etkisini araştırdıkları çalışmada farklı oranlarda Si/Al’dan oluşan numuneler çalışılarak elde edilen sonuçlar incelenmiştir. %100 alüminadan oluşan alümina aerojelin TEM görüntülerinde tozlara ait nano parçacıkların yaklaşık 50 nm boyutlarında böhmite kristalin yapısına sahip olduğu görülmüştür. Farklı oranlardaki alümina-silika aerojellerin mikroyapı görüntülerinde 3 ila 100 nm aralığında nano parçacıkların varlığı tespit edilmiştir [157].

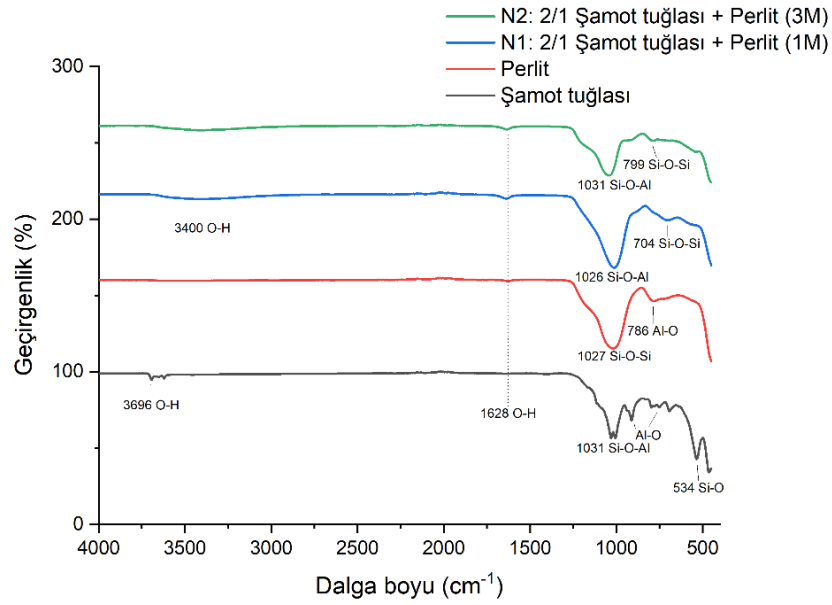
4.2.2. FTIR analizi

Çeşitli hammaddelerden sentezlenen alümina-silika esaslı aerojel tozlarının yapılarındaki çeşitli bağlara ait titreşim frekansları ölçülmesiyle fonksiyonel gruplar ile ilgili bilgi alabilmek için FTIR analizi gerçekleştirilmiştir. Spektrum 450-4000 cm⁻¹ dalga boyu aralığında yapılmıştır. Spektrumdaki 3600-1200 cm⁻¹ arasında olan bölgeye fonksiyonel grup bölgesi, 1200-600 cm⁻¹ aralığındaki bölge ise parmak izi olarak adlandırılan, malzeme içerisindeki küçük yapısal farklılıkların görüldüğü bölgedir. Tablo 4.2’de alümina-silika aerojel tozlarına ait numune kodları ve bu numunelerde mevcut olan piklerin türleri ve dalga boyları verilmiştir.

Tablo 4.2. Alümina-silika aerojel tozlarına ait numune kodları ve numunelerde oluşan piklerin türü ve dalga boyları (cm⁻¹).

Kodlar	-OH	Al-O	Si-O-Si	Si-O-Al	C-H
N1	~3400 ~1628	-	~704	~1026	-
N2	~3423 ~1628	-	~799	~1031	-
N3	~1630		~802	~1065	-
N4	~1630	-	~791	~1062	~1465
N5	~3445 ~1645	-	~704	~1003 ~562	-
N6	~3465 ~1643	~506	-	~1032	-
N7	~3443 ~1635	~846	~691	~980	-
N8	~3443 ~1655	~476	-	~1010	-
N9	~3446 ~1645	-	~710	~994	~1460
N10	~3455 ~1655	-	-	~978 ~720	-
N11	~3461 ~1653	~726 ~490	-	~1016	-

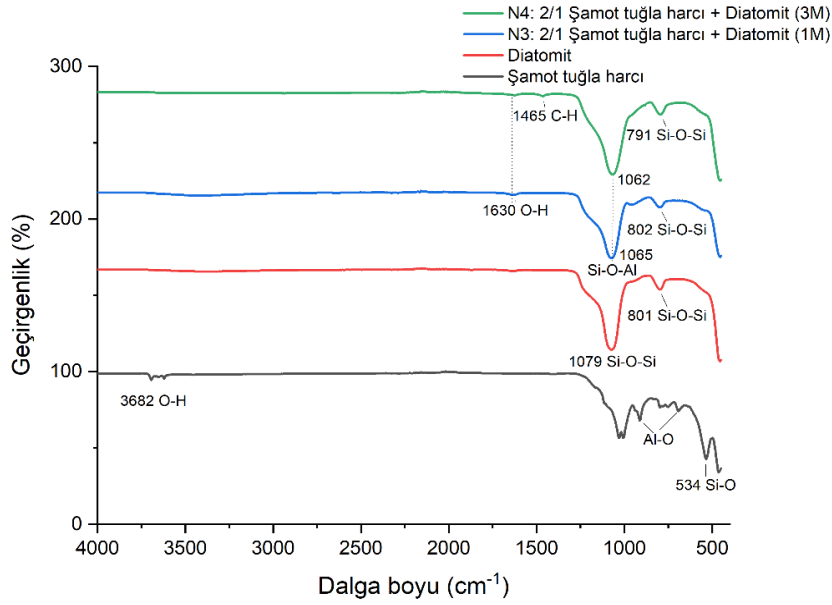
Şekil 4.7’de şamot tuğla harcı ve perlit tozu kullanılarak üretilen N1 ve N2 kodlu numunelere yapılan FTIR analizleri başlangıç tozlarının sonuçlarıyla karşılaştırmalı olarak verilmiştir. N1 kodlu toz 2:1 şamot tuğla harcı-perlit kütle oranında olup 1 M NaOH baz ve HCl asit katalizörü ile üretilmiş olup N2 ise 2:1 şamot tuğla harcı-perlit kütle oranında olup 3M NaOH baz ve HCl katalizörleri kullanılarak üretilmiştir.



Şekil 4.7. Şamot ve Perlit hammaddelerinden üretilen N1 ve N2 Kodlu alümina-silika aerojel tozlarına ait FTIR Analizleri.

Şekil 4.7’de üretilen N1 kodlu aerojel tozunda 3400 cm^{-1} ve 1628 cm^{-1} ’de, N2 kodlu tozda ise 3423 cm^{-1} ve 1628 cm^{-1} ’de fiziksel olarak emilen su ile ilişkili olarak -OH bağları oluşmuştur. Yüzeyde tutunan ve gözenek içlerine nüfuz eden su (rutubet, nem), -OH bağlarının oluşum kaynağı olmaktadır. FTIR analizinde görülen piklerin şiddeti bağların kuvvetli oluşu ile doğru orantılıdır. Dolayısıyla -OH bağı için pik şiddeti çok düşük olması sebebiyle tozların iyi kurutulduğu söylenebilir. Üretilen numunelerde (N1, N2) sırasıyla yaklaşık 1026 cm^{-1} ve 1031 cm^{-1} ’de belirgin ve güçlü Si-O-Al pikleri oluştuğu görülmüştür. Böylelikle alümina-silika aerojel kompozitinde istenen bağların sağlandığı söylenebilir. Şamot tuğlasının yapısında da yaklaşık benzer oranlarda silika ve alümina bulunmasından kaynaklı olarak Si-O-Al pikleri gözlemlendiği söylenebilir. N1 ve N2 kodlu numunelerin sırasıyla 704 cm^{-1} ve 799 cm^{-1} de oluşan simetrik ve asimetrik Si-O-Si bağları belirgin ve güçlü pikler vermiştir. Bu durum da N1 ve N2’nin EDS analizinde kompozitteki silika oranının yüksek olması ile orantılıdır. Şamot tuğlası ise yapısında hem silika hem de alümina barındırmasından dolayı 534 cm^{-1} ’de Si-O ve 909 cm^{-1} ve 760 cm^{-1} ’de Al-O pikleri mevcuttur.

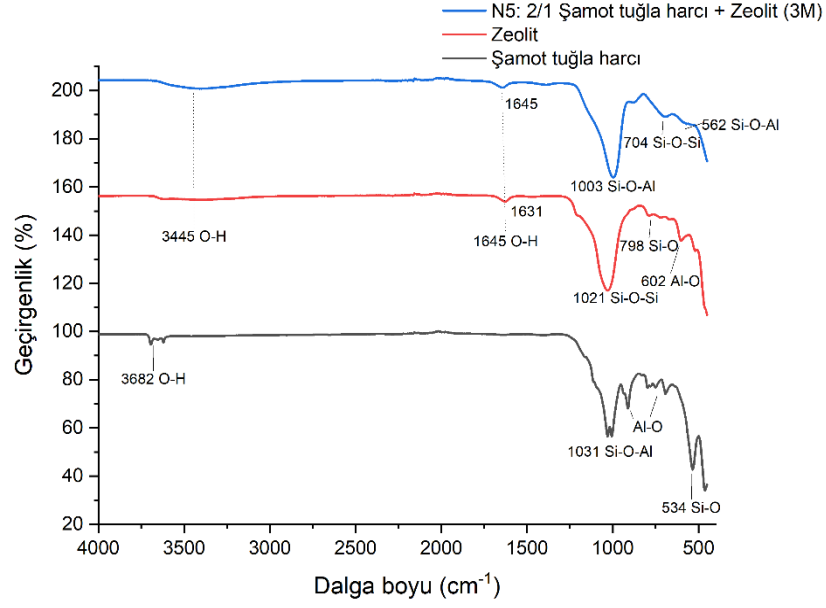
Şekil 4.8’de şamot tuğla harcı ve diatomit kullanılarak üretilen N3 ve N4 kodlu numunelere ait FTIR analizi öncül hammaddelerin analizleri ile karşılaştırmalı olarak verilmiştir. N3, 2:1 şamot tuğla harcı-perlit kütle oranında olup 1 M NaOH baz ve HCl asit katalizörü ile üretilmiş olup N4 ise 2:1 şamot tuğla harcı-perlit kütle oranında olup 3M NaOH baz ve HCl katalizörleri kullanılarak üretilmiştir.



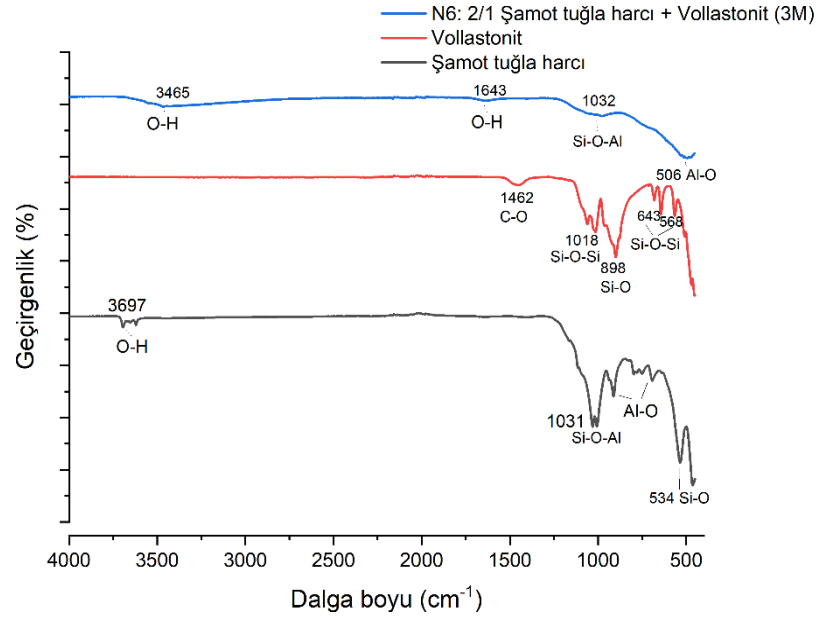
Şekil 4.8. Şamot tuğlası ve diatomit kullanılarak N3 ve N4 kodlu numunelere ait FTIR analizi.

N3 ve N4 kodlu numunelerde Şekil 4.8’de görüldüğü üzere 1630 cm^{-1} ’de -OH ağ piki, N3 kodlu numune adsorpsiyondan ve etanol ile yapılan yüzey modifikasyonundan kaynaklı 1465 cm^{-1} ’de C-H bağ piki, N3 ve N4 kodlu tozlarda sırasıyla 1065 cm^{-1} ve 1062 cm^{-1} ’de güçlü ve belirgin Si-O-Al bağ pikleri, diğer numunelere kıyasla N3 ve N4 kodlu aerojel tozlarında silikanın varlığının yüksek olduğu EDS sonuçlarıyla da (Şekil 4.4) doğrulandığı üzere sırasıyla 802 cm^{-1} ve 791 cm^{-1} ’de Si-O-Si ağ pikleri oluşmuştur. Şekil 4.9’da şamot tuğlası ve zeolit (2:1 kütle oranında) kullanılarak üretilen N5 kodlu numuneye ait FTIR analizi sonuçları verilmiştir.

Şamot tuğlası ve zeolitten 3 M baz-asit derişiminde üretilen N5 kodlu aerojel tozuna ait Şekil 4.9’daki grafikte 3445 cm^{-1} ve 1645 cm^{-1} ’de -OH gerilme bandının pikleri görülürken, 704 cm^{-1} ’de simetrik Si-O-Si titreşimine ait pikler, 1003 ve 562 cm^{-1} ’de ise Si-O-Al titreşimine ait pikler görülmektedir. Şamot tuğlası ve zeolit öncülleriyle 1 M NaOH ve HCl kullanılarak çözeltiye alınan numunede jelleşme olmaması sebebiyle toz üretilmemiştir. Şekil 4.10’da şamot tuğlası ve vollastonit (2:1 kütle oranında) kullanılarak üretilen N6 kodlu numunenin FTIR analizi sonuçları verilmiştir.



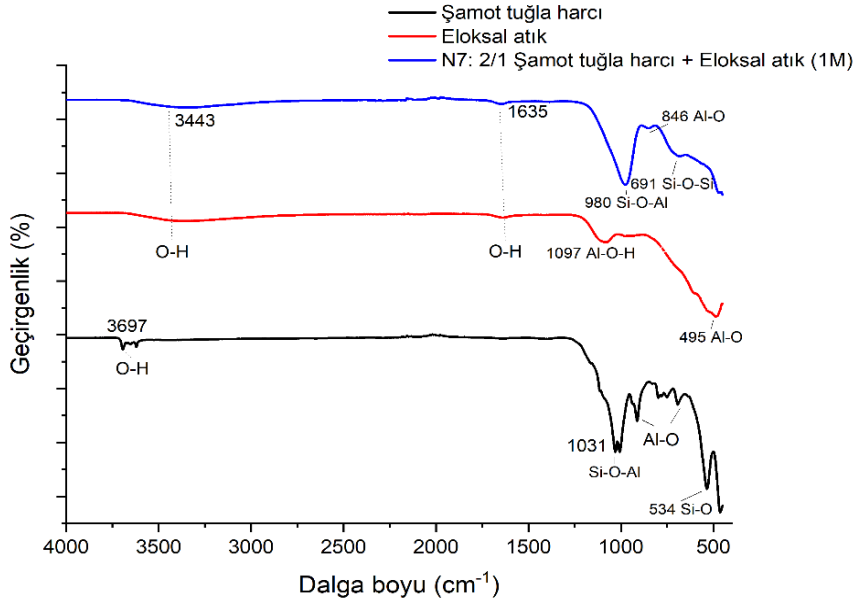
Şekil 4.9. Şamot tuğlası ve zeolit kullanılarak üretilen N5 kodlu numunelere ait FTIR analizi.



Şekil 4.10. Şamot tuğlası ve vollaştonit kullanılarak üretilen N6 kodlu numunelere ait FTIR analizi.

N6 kodlu numunede 3465 ve 1643 cm^{-1} 'de -OH ağ pikleri, 1032 cm^{-1} 'de Si-O-Al bağ pikleri, 506 cm^{-1} 'de Al-O ağ pikleri oluşmaktadır. N6 kodlu aerojel tozu üretilirken kullanılan hammaddelerden olan vollaştonitin 1462 cm^{-1} 'deki pik, karbonat grubunun (CO_3^{2-}) C-O gerilmesine ait olduğu düşünülmektedir. Sonuçlar, Palakurthy ve arkadaşlarının yaptığı çalışmada vollaştonit hammaddesine yapılan FTIR analizi ile de

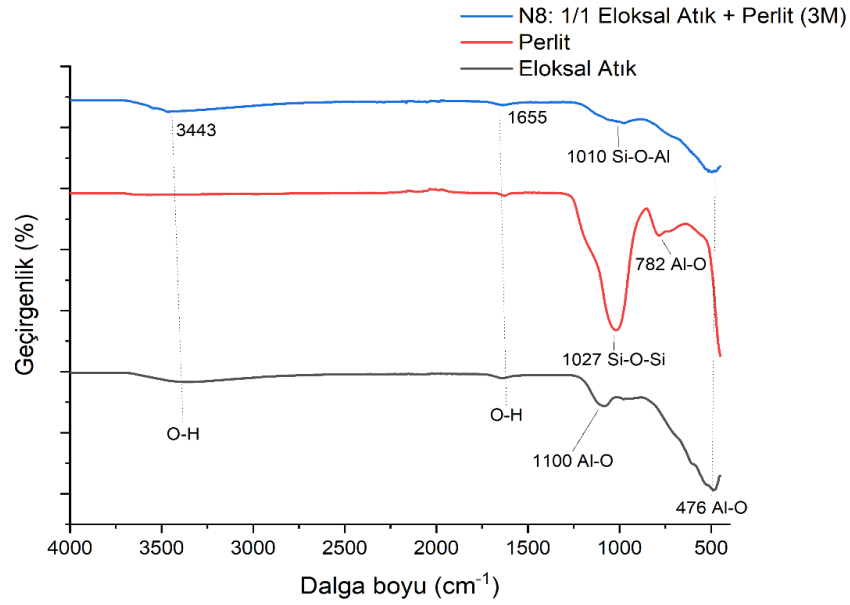
uyuşmaktadır [158]. Yapısındaki silisyum ve alüminyumdan kaynaklı olarak 1018 cm^{-1} 'de Si-O-Al bağ piki, 900 cm^{-1} 'deki Si-O-Si ve 565 cm^{-1} 'de Si-O bağ pikleri görülmektedir. Şekil 4.11'de şamot tuğlası ve eloksal atık (2:1 kütle oranında) kullanılarak üretilen N7 kodlu arojel tozuna ait FTIR analiz sonucu verilmiştir.



Şekil 4.11. Şamot tuğlası ve eloksal atık kullanılarak N7 kodlu numuneye ait FTIR analizi.

Şekil 4.11'deki FTIR grafiğine göre kullanılan şamot tuğlası ve eloksal atık öncülleri kullanılarak üretilen N7 numunesinde 3443 cm^{-1} ve 1635 cm^{-1} 'de -OH ağ piki oluşurken, sırasıyla şamot tuğlası ve eloksal atıkta 3697 cm^{-1} ve 3500 cm^{-1} 'de -OH ağ piki görülmüştür. N7 kodlu arojel tozunda 980 cm^{-1} 'de Si-O-Al ağ pikleri gözlenmiştir. 691 cm^{-1} 'de belirgin ve güçlü Si-O-Si bağ pikleri ve 846 cm^{-1} 'de Al-O bağ pikleri oluşmaktadır.

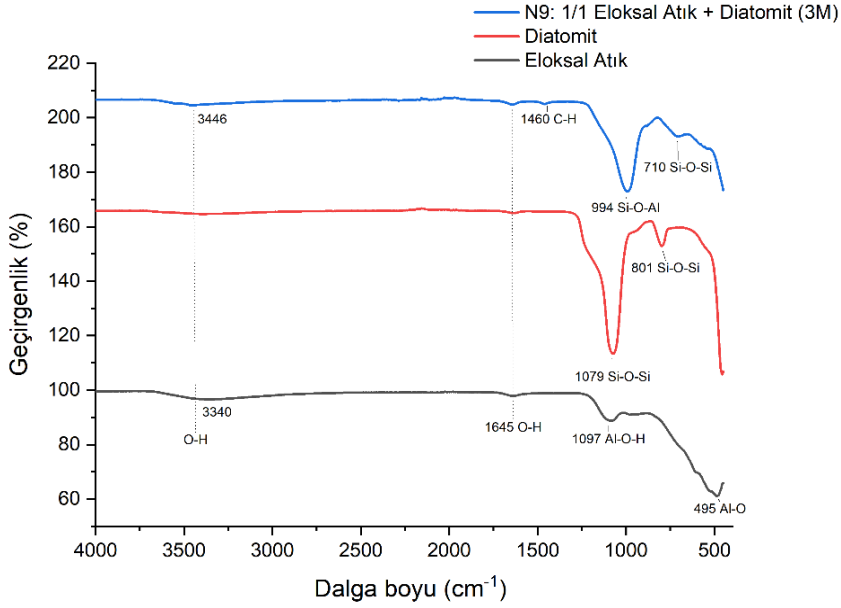
Şekil 4.12'de eloksal atık ve perlit kullanılarak üretilen 1:1 eloksal atık/perlit kütle oranında, 3M NaOH ve HCl asitinin katalizör olarak kullanıldığı N8 kodlu alümina-silika esaslı arojel tozuna ait FTIR analizleri verilmiştir.



Şekil 4.12. Elokسال atık ve perlitten üretilen N8 kodlu aerojel tozunun FTIR analizi.

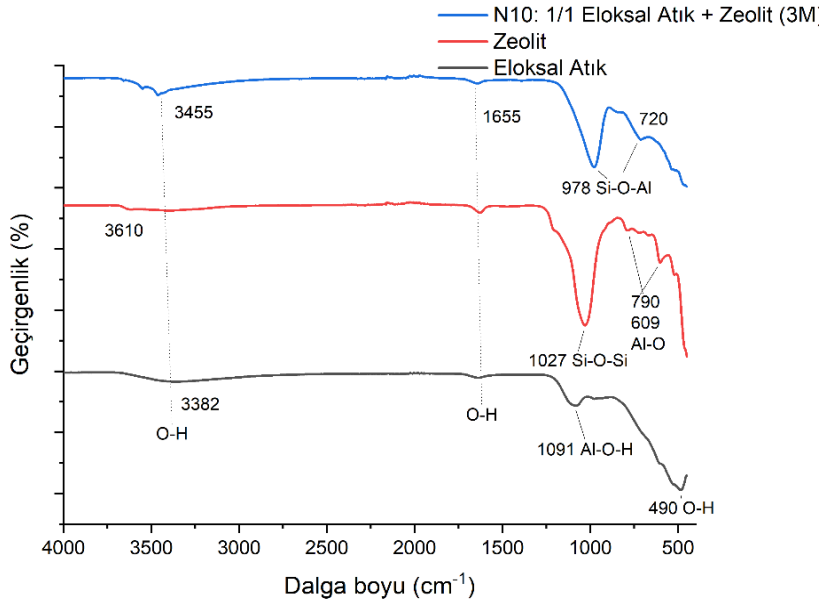
N8 kodlu numuneye ait FTIR analizi sonuçlarına bakıldığında 3443 cm^{-1} ve 1655 cm^{-1} 'de -OH ağ piki, 1010 cm^{-1} 'de Si-O-Al bağ pikleri oluşmaktadır. 476 cm^{-1} 'de Al-O piklerinin oluşması üretilen tozun yapısındaki yüksek alümina oranı (ağ. %45,60) sebebiyle olup; EDS sonuçları ile uyumludur. Perlit ve elokسال atık hammaddelerine bakıldığında 1660 cm^{-1} 'de -OH ağ piki görülmüştür. Bu da öncül maddenin nem tutmasından kaynaklıdır. Perlitte yapısındaki Si sebebiyle 1027 cm^{-1} 'de güçlü ve Si-O-Si pikleri ve yapıdaki daha düşük miktardaki Al sebebiyle 782 cm^{-1} 'de Al-O piki görülürken, elokسال atıkta 1100 cm^{-1} ve 476 cm^{-1} 'de Al-O pikleri görülmüştür. Şekil 4.13'te elokسال atık ve diatomit (1:1 kütle oranında) kullanılarak üretilen N9 kodlu numunenin FTIR analizi sonuçları verilmiştir.

N9 kodlu alümina-silika aerojel tozuna ait FTIR grafiğinde (Şekil 4.13) 3446 ve 1645 cm^{-1} 'de -OH bandını temsil eden gerilmeler gözlenmiştir. Bu bağlar, gözenekli yapının suyu çekmesi kaynaklı olup pik şiddetleri oldukça düşüktür. Bunun sonucunda kurutmanın yeterli olduğu söylenebilir. Üretilen N9 kodlu aerojel tozunda 994 cm^{-1} 'de belirgin Si-O-Al bağ pikleri ve 710 cm^{-1} 'de simetrik Si-O-Si bağları oluşmuştur. Yaşlandırmanın son aşamasında yapılan etanol ile modifikasyondan kaynaklanan C-H bağları 1460 cm^{-1} 'de görülmektedir. Bunun yanında silika öncülü olarak kullanılan diatomitte 1079 ve 801 cm^{-1} 'de Si-O-Si, alümina kaynağı olarak kullanılan elokسال atıkta 1097 cm^{-1} 'de Al-O-H ve 495 cm^{-1} 'de kuvvetli şekilde bağlanmış Al-O bağlarının gerilmelerine ait pikler görülmüştür.



Şekil 4.13. Eloksal atık ve diatomitten üretilen N9 kodlu aerojel tozunun FTIR analizi.

Şekil 4.14’te eloksalsal atık ve zeolit kullanılarak üretilen 1:1 kütle oranında, 3M NaOH ve HCl baz-asit katalizörü kullanılarak üretilen N10 kodlu alümina-silika esaslı aerojel tozuna ait FTIR analizleri verilmiştir. N10 kodlu aerojel tozunu üretirken kullanılan zeolit ve eloksalsal atık hammaddelerinin de FTIR pikleri aynı grafikte gösterilmiştir.

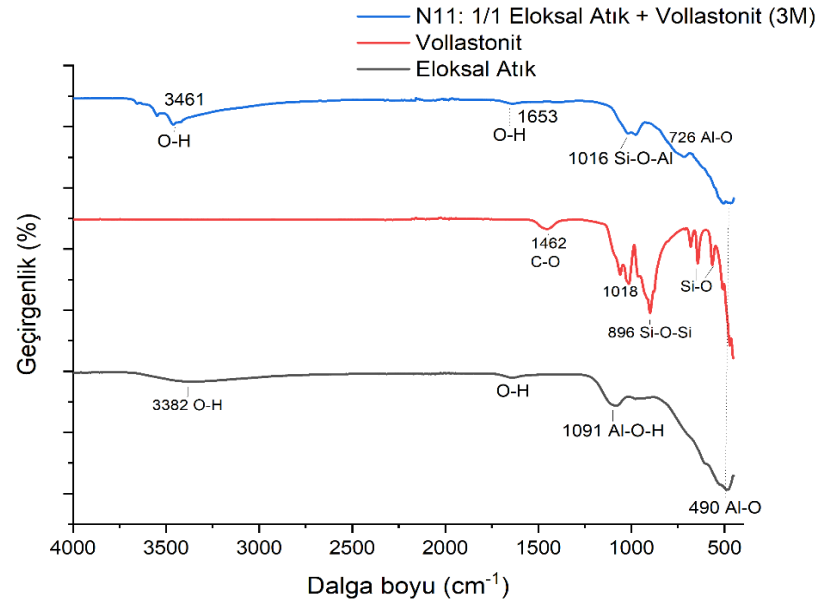


Şekil 4.14. Eloksalsal atık ve zeolitten üretilen N10 kodlu aerojel tozunun FTIR analizi.

Hidroksil grubuna ait -OH gerilmesine ait pikler, kurutma işleminin yetersiz kalması ve aerojel toz yapısının gözenekli olması sebebiyle yapıda bulunan nem kaynaklı olup;

N10 kodlu numuneye ait grafikte (Şekil 4.14) 3455 cm^{-1} ve 1655 cm^{-1} dalga boylarında gözlenmiştir. N10 kodlu aerojel tozunun öncüllerinden olan zeolit in ise 3610 ve 1621 cm^{-1} dalga boylarında -OH pikleri görülürken, eloksal atığın ise 3382 ve 1630 cm^{-1} 'de görülmektedir. Al-O-H gerilmesini temsil eden pikler N10 kodlu numune üretiminde kullanılan eloksal atıkta 1091 cm^{-1} 'de görülmektedir. N10 kodlu numunenin üretiminde silika öncülü olarak kullanılan zeolit in yüksek Si miktarı nedeniyle 1027 cm^{-1} 'de şiddetli bir asimetrik ve simetrik Si-O-Si piki, alümina öncülü olarak kullanılan eloksal atığın ise 790 cm^{-1} ve 609 cm^{-1} 'de Al-O piki görülmüştür. Üretilen alümina-silika esaslı aerojelde ise Si-O-Al bağlarının 978 cm^{-1} ve 720 cm^{-1} 'de bükülme titreşimine karşılık gelen bir absorpsiyon zirvesi gözlenmiştir titreşimi görülmüş olup bu da alüminyum atomlarının SiO_2 kafesine başarılı bir şekilde dahil olduğunu göstermekte ve üretilen aerojelin alümina ve silikaca zengin alümina-silika aerojel grubundan olduğunu göstergesidir.

Şekil 4.15'te eloksal atık ve vollastonit kullanılarak üretilen 1:1 kütle oranında, 3M NaOH ve HCl katalizörünün kullanıldığı N11 kodlu alümina-silika esaslı aerojel tozunun FTIR analizleri verilmiştir.



Şekil 4.15. Eloksal atık ve vollastonit kullanılarak elde edilen N11 kodlu alümina-silika esaslı aerojel tozlarının FTIR analizleri

N11 kodlu aerojel tozunda yapıda bulunan nemden kaynaklı 3461 ve 1653 cm^{-1} 'de hidroksil grubuna ait olan -OH pikleri meydana gelmiştir. 1016 cm^{-1} 'de Si-O-Al

gerilmesine ait pik görülürken, 726 v 490 cm^{-1} 'de yapının zengin Al içeriğinden (ağ. %44,17) kaynaklı Al-O gerilmelerine ait pikler gözlenmiştir.

FTIR analizinde oluşan bağların kuvvetleri pik şiddetleri ile orantılıdır. Alümina-silika esaslı aerojel tozlarının FTIR analizleri sonucunda elde edilen titreşim frekansları ve frekansların ait olduğu bağlar incelendiğinde tüm numunelerde Si-O-Si, Al-O ve Si-O-Al bağları gözlenmiştir. Si-O-Si ve Al-O bağlarının sebebinin hammadde bileşiminde mevcut olan silika ve alüminanın üretim işlem kademelerinde varlığını sürdürmesi kaynaklıdır.

Chen ve arkadaşlarının, öncül olarak alüminyum klorür heksahidrat ($\text{AlCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$) ve tetraetoksisilan (TEOS) kullanılarak sol-jel yöntemi ve etanol süperkritik kurutma şartlarında hazırladığı alümina-silika aerojel çalışmasında 3351 cm^{-1} dalga boyunda -OH adsorbsiyon piki, Al-O ve Si-O titreşimleri ise yalnızca 1200-400 cm^{-1} bölgesinde ortaya çıkmıştır. 1069 cm^{-1} 'deki belirgin zirve, Si-O-Si titreşiminin karakteristiğidir; bu da absorpsiyon bandının daha yüksek ve daha alçak tarafında görünen omuzlar, böhmit ve silikanın çapraz yoğunlaşması yoluyla Al-O-Si bağlarının varlığını göstermektedir. SiO_2 , böhmitteki AlO_6 'yı AlO_4 polihedron'a zorlamaktadır. 730-760 cm^{-1} bölgesinde Al-O₄, 620-630 cm^{-1} bölgesinde ise AlO_6 polyhedron pikleri görülmektedir [114].

Yu ve arkadaşlarının TEOS ve alüminyum klorür heksahidrat başlangıç malzemeleri, HNO_3 asit katalizörü ve etanol kullanarak alümina-silika aerojel sentezlemiş oldukları çalışmada, kalsinasyon sıcaklığı 1000 °C'yi aştığında müllit fazı 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. Silika birikiminin alümina-silika aerojel bileşimi üzerindeki etkileri FTIR spektrumları ile 400 ile 2025 cm^{-1} arasında analiz edilmiştir. Saf Al_2O_3 aerojeldeki 880, 785, 619 ve 487 ve 1164 cm^{-1} 'deki zirveler sırasıyla böhmitin Al-O ve Al-O-H bağlarının titreşimlerini temsil etmektedir. Saf SiO_2 aerojeldeki 1085, 800 ve 465 cm^{-1} 'deki tepe noktaları Si-O-Si'nin asimetric gerilmesini, simetric gerilmesini ve bükülmesini temsil ederken, 1640 ve 960 cm^{-1} 'deki tepeler Si-OH'nin gerilme titreşimini temsil etmektedir. Alümina-silika aerojel (ASA) ve silika birikimli alümina-silika aerojel (Si-ASA) numuneleri için, 950-1250 cm^{-1} arasında olan geniş güçlü absorpsiyon zirvesi, Si-O ve Si-O-Si'nin asimetric

gerilme titreşimlerine atanan 1145 ve 1085 cm^{-1} 'deki zirvelerden gelen katkılara atanır. Si-O-Al bağları 1039 cm^{-1} 'de ve Si-CH₃ bağları ise 1204 cm^{-1} 'deki zirvelerde 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 [120].

Ghica ve arkadaşları, Kevlar® hamuruyla güçlendirilmiş alümina-silika aerojel sentezi için silika öncülleri olarak TEOS ve viniltrimetoksisilan (VTMS) ve kompozitlerin sililasyonu için heksametildisilazan (HMDZ) kullanmışlardır. Aerojellere alümina fazının dahil edilmesi, Si'nin küçük bir kısmının (%15 mol'e kadar) Al ile değiştirilmesiyle alüminyum klorür (AlCl₃) veya alüminyum trisek-butoksit (ATSB) öncülleri aracılığıyla gerçekleştirilmiştir. Silika ağının tipik gerilme titreşim bantları, yani 756 cm^{-1} (simetrik) ve 1061 cm^{-1} (antisimetrik), tüm spektrumlarda açıkça gözlenmektedir. VTMS'nin varlığı vinil grubunun tipik bantlarının ortaya çıkmasıyla doğrulanmıştır: =C-H grupları için 1410 cm^{-1} 'de deformasyon ve 3070 cm^{-1} 'de gerilme bantları görülmüştür. HMDZ ile yüzey modifikasyonunun sebep olduğu, -CH₃ gruplarının simetrik ve asimetrik gerilmesine bağlı olarak 2888, 2957, 1250 cm^{-1} ve 850 cm^{-1} 'de bulunan Si-CH₃ ile ilgili titreşim bantlarının varlığı ile gösterilmektedir. Sırasıyla -C=O ve -NH- gruplarının gerilme titreşimine karşılık gelen 1640 cm^{-1} ve 3400 cm^{-1} 'de bantları, matriste liflerin varlığını göstermektedir. Si-O-Si bantlarının yüksek yoğunluğu nedeniyle genellikle 1033 cm^{-1} 'de görülen tipik Si-O-Al bağ bandının varlığını gözlemlenmek zordur. Al-O titreşim bandı ise ~800 cm^{-1} civarında meydana gelmiştir. Amin katalizörüne karşılık gelen, N-H grubunun gerilmesi sırasıyla 1500 ve 3500 cm^{-1} ve C-H gerilmesi 2800 cm^{-1} 'de gözlemlenmiştir. Isıl işlemde sonra, -CH₃ grubunun bozunması ve sonucunda hidrofobiklik kaybı nedeniyle adsorbe edilen suyun -OH bağlarına karşılık gelen ~3500 cm^{-1} 'deki bantta önemli bir artış görülmüştür [59].

Yang ve arkadaşları, yapmış oldukları çalışmada kitosan polisakkaritinin polimerizasyonu ve kovalent etkileşimine dayalı olarak alümina jelini moleküler düzeyde değiştirmek için kitosan/inorganik tuzlarını sol-jel yöntemi ile birleştirmişlerdir. Monolitik kitosan/alümina-silika (CAS) kompozit aerojel, tetraetoksisilan ile bir yüzey modifikasyonu yapılarak atmosferik basınçta kurutma

(APD) işlemi yoluyla üretilmiştir. Aerojelin morfolojisi ve nano yapısının, sol-jel işlemi sırasında asetik asit miktarının değiştirilmesiyle kolaylıkla ayarlanabileceği bulunmuştur. Kurutulmuş CTS/Al₂O₃ aerojeli (CA), Al₂O₃-SiO₂ aerojeli (AS), CTS/Al₂O₃-SiO₂ aerojeli (CAS) ve 500 °C, 950 °C ve 1200 °C'de 2 saat kalsine edilmiş CAS numunelerinin FTIR spektrumlarına bakıldığında tüm örneklerde 3444 cm⁻¹'deki geniş tepe, -OH'nin gerilme titreşimine atanmıştır. CA numunesinin spektrumu, amid I'in 1633 cm⁻¹'deki karakteristik absorpsiyon bandını göstermektedir. 1070 cm⁻¹'de C-N'nin karakteristik bandı ve 1073 cm⁻¹'de Al-O-H pikleri görülmüştür. Yaklaşık 600 ve 797 cm⁻¹'de görünen bantlar, böhmitteki Al-O titreşimine atfedilmektedir. TEOS'un yüzey modifikasyonundan kaynaklanan Si-OH bağları 961 cm⁻¹'deki zirveyle kanıtlanmıştır, ancak numune 500 °C'de ısı işleme tabi tutulduktan sonra kaybolduğu görülmüştür. CA dışındaki numunelerin tüm FTIR spektrumlarında, 1073 cm⁻¹'de Si-O-Al ve 457 cm⁻¹'de Si-O-Si pikleri görülmektedir [23].

Peng ve arkadaşlarının yaptığı bir çalışmada alümina-silika aerojeller, çözücü değişimi olmadan kolay bir sol-jel yöntemiyle sentezlenmiştir. ASB, EtOH ve H₂O kuvvetli bir şekilde oda sıcaklığında karıştırılarak karışım 60°C'de bir su banyosunda 1 saat tutulmuş ve sonra alümina solünün elde edilmesi için oda sıcaklığına soğutulmuştur. HNO₃ çözeltisini (EtOH içinde 0,1 M) elde etmek için nitrik asit EtOH ile karıştırılmış, TEOS, HNO₃ çözeltisi içinde çözülüp ve ardından alümina çözeltisine ilave edilmiştir. AN, DMK içinde çözüldüğünde, alümina-silika solunu oluşturmak için TEOS içeren alümina soluna ilave edilmiştir. Hem kurutulmuş AA hem de ASA81 örnekleri için 3445 ve 1634 cm⁻¹'de bulunan pikler -OH gruplarının titreşimine atfedilir. 2970, 2926, 2903 ve 1445 cm⁻¹'deki pikler C-H bağlarına karşılık gelmektedir. 1387, 1164, 1122 ve 1076 cm⁻¹ ve 880, 785, 619 ve 487 cm⁻¹'deki zirveler, böhmitin Al-O-H ve Al-O bağlarının titreşimlerini sırasıyla temsil etmektedir. C-H, AlO-H ve Al-O bağlarına karşılık gelen bu pikler, 800°C'de ısı işlem sonrasında, artık organik maddelerin ayrışması ve aerojellerin faz dönüşümü nedeniyle kaybolmaktadır. Kurutulmuş ASA81 örneğinin 1036 cm⁻¹'indeki bant, Al-O-Si bağlarına atfedilebilir. 1200°C ve 1300°C'de ısıtılan AA numunelerinde 587, 591, 491 ve 448 cm⁻¹'de ortaya çıkan bantlar α-Al₂O₃'ün AlO₆'sını temsil etmektedir. ASA81 numuneleri için, 1188, 755 ve 579 cm⁻¹'deki birkaç pik, 1200°C'de büyümeye başladığı ve 1300°C'de güçlendiği; müllitin Al-O bağlarına atfedilmektedir [51].

Zhu ve arkadaşlarının yaptığı bir çalışmada madencilik atığı olan kömür gangını hammadde olarak kullanarak atmosferik şartlarda kurutmayla $\text{SiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ aerojel üretmişlerdir. Çalışmada kömür gangından hazırlanan $\text{SiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ aerojelinin spesifik yüzey alanının, $\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ veya Al izopropoksit ve süperkritik kurutma koşuluna sahip tetraetoksisilan gibi nispeten pahalı hammaddelerden hazırlananlarla karşılaştırılabilir olabileceğini görülmektedir. Adsorpsiyon testleri, $\text{SiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ aerojelinin organik çözücüler üzerinde iyi adsorbe edilebilirliğe sahip olduğunu göstermiştir. 3480cm^{-1} civarındaki zirve, havadaki H_2O 'nun fiziksel emiliminden kaynaklanan $-\text{OH}$ 'nin asimetri germe titreşimine atfedilir. Sırasıyla 2960cm^{-1} ve 1260cm^{-1} 'deki zirveler C-H'nin gerilme ve bükülme titreşiminden kaynaklanmaktadır. Hidrofobiklik, $\text{SiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ aerojeline bağlı $-\text{CH}_3$ grubundan kaynaklanmaktadır. H-O-H'nin dönme titreşimi nedeniyle 1640 cm^{-1} 'de soğurma piki ortaya çıkmış, 1095cm^{-1} ve $\sim 460\text{ cm}^{-1}$ 'deki pikler Si-O-Si bağının, 846cm^{-1} 'deki zirvenin ise Al-O bağının titreşiminden kaynaklandığına atfedilir. Si-OH'nin 960cm^{-1} 'e yakın düşük yoğunluklu absorpsiyon zirvesi, $\text{SiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ aerojelinin nispeten homojen olduğunu göstermektedir [54].

Yao ve arkadaşları yaptıkları bir çalışmada öncül olarak sodyum silikat ve alüminyum klorür kullanarak sol-jel ve atmosfer basıncında kurutma yoluyla yüksek ısıya dayanıklı alümina-silika aerojel üretmişlerdir. Başlangıç maddesindeki Al/Si molar oranının, kalsinasyon sıcaklığının ve değiştirici tipinin alümina-silika aerojellerin kristallliği, morfolojisi ve gözenek yapısı üzerindeki etkileri araştırılmıştır. Üretilen aerojelde Al-O-Si bağlarının bükülme titreşimine karşılık gelen 563 cm^{-1} 'lik bir absorpsiyon zirvesi gözlenmiştir, bu da alüminyum atomlarının SiO_2 kafesine başarılı bir şekilde dahil olduğunu göstermektedir. $-\text{OH}$ bağ pikleri 1620 ve 950 cm^{-1} 'de, CH_3 bağ pikleri 1400 cm^{-1} ve 1250 cm^{-1} 'de, 1100 cm^{-1} 'de Si-O-Si, 800 cm^{-1} 'de O-Si-O ve 450 cm^{-1} 'de Si-O bağ pikleri görülmüştür. Kalsinasyon sıcaklığının artmasıyla Si-O bağlarından gelen pik giderek artmakta, metil gruplarından ve Al-O-Si bağlarından gelen pikler azalmakta, hidroksil gruplarından gelen pik ise sırasıyla önce artmakta, sonra azalmaktadır. $1000\text{ }^\circ\text{C}$ 'de kalsine edilen numune için Al-O-Si bağlarından elde edilen pikin, $600\text{ }^\circ\text{C}$ ve $800\text{ }^\circ\text{C}$ 'dekilerden biraz daha düşük olduğu görülmüştür [4].

Sivri ve arkadaşları alümina katkılı silika aerojel bazlı katalizörlerin, polilaktik asitin (PLA) bozunmasındaki performanslarını araştırmak için farklı alümina ilavelerinde (ağ. %2,5-15) sol-jel yöntemi kullanılarak üretilen silika aerojele emdirilmesiyle

sentezlemişlerdir. Kalsine edilmemiş silika aerojelde 548 cm^{-1} , 798 cm^{-1} ve 955 cm^{-1} 'deki pikler Si-O gerilme titreşimi ile, 691 cm^{-1} , 757 cm^{-1} ve 811 cm^{-1} 'deki zirveler ise Si-O-Si gerilmesiyle ilişkilidir. TMCS modifikasyonuna bağlı olarak 2963 cm^{-1} 'de C-H gerilmesi, 845 ve 1256 cm^{-1} 'deki zirveler ise Si-C gerilmesine karşılık gelmektedir. 1066 cm^{-1} civarındaki keskin tepe ve 1168 cm^{-1} civarındaki pik Si-O-Si gerilmesine aittir. Kalsine edilmiş silika aerojelde, 2963 cm^{-1} 'deki C-H gerilme zirvesinin ve 845 cm^{-1} ve 1256 cm^{-1} 'deki Si-C gerilme zirvesinin yoğunlukları, kalsinasyon işlemiyle karbon bileşiklerinin uzaklaştırılması sebebiyle azaldığı görülmüştür. 811 cm^{-1} 'deki pikin yoğunluğunun artmasının nedeni Si-O-Si yapısını daha kararlı hale getirmek için Si-CH₃ bağlarının Si-OH'ye dönüşmesi olabilir. Kalsine edilmemiş aerjel esas olarak hidrofobik bir karaktere sahiptir. Aerojelin hidrofobikliği yapıdaki polar olmayan gruplardan kaynaklanmaktadır; ancak kalsinasyonla hidrofilik karakter daha belirgin hale gelmektedir [79].

Liu ve arkadaşlarının yaptıkları bir çalışmada ultra düşük termal iletkenliğe ve $1200\text{ }^{\circ}\text{C}$ 'den yüksek sıcaklıklarda mükemmel termal stabiliteye sahip yalıtım malzemesi olmaya aday, matris olarak farklı alümina/silika molar oranlarına (3:2, 3:1 ve 3:0) sahip elektrospun nanolifler kullanılarak jel döküm ve dondurarak kurutma yöntemleriyle müllit bazlı nano lifli aerjeller üretilmiştir. Asspun fiberlerin, Al-O-Al ve Si-O-Si bağ piklerine atanan sırasıyla 813 cm^{-1} ve 1090 cm^{-1} 'deki zirveleri gözlemlenmiştir. Al-O-Si bağının ortaya çıkması, kullanılan öncül maddenin iki fazlı sol olduğunu göstermektedir. Ayrıca sıcaklık $1300\text{ }^{\circ}\text{C}$ 'ye yükseldiğinde Si-O-Al bağına atanan 1180 cm^{-1} 'deki pikler gözlemlendiği için müllit kristalleşme sıcaklığının yaklaşık $1300\text{ }^{\circ}\text{C}$ olduğu düşünülmüştür [84].

Wu ve arkadaşları yaptıkları çalışmada ucuz inorganik tuz kullanarak farklı alümina/silika (Al/Si) molar oranlarına sahip Al₂O₃-SiO₂ kompozit aerjeli sol-jel yöntemi ile sentezlemişlerdir. Çalışmada farklı Al/Si molar oranlarının ve kalsinasyon sıcaklıklarının Al₂O₃-SiO₂ kompozit aerjellerin mikroyapıları ve özellikleri üzerindeki etkileri araştırılmıştır. Kompozit aerjellerin FTIR karakteristik pikleri, Al/Si molar oranlarının artmasıyla saf Al₂O₃ aerjeline yaklaşmaktadır. Bazı su moleküllerinin varlığı 3445 cm^{-1} ve 1637 cm^{-1} 'deki bantlarda görülmektedir. Az miktarda organik kalıntının varlığı, hidrokarbonun C-H titreşiminden kaynaklanan 2981 cm^{-1} , 2930 cm^{-1} , 2853 cm^{-1} , 1465 cm^{-1} ve 1402 cm^{-1} 'deki tipik IR bantlarıyla kanıtlanmaktadır. 1069 cm^{-1} 'deki bant, böhmitin vs Al-O-H modlarına atfedilirken,

3092 cm^{-1} 'deki bant, böhmitin vas Al-O-H gerilme titreşimine atanmıştır. 778 cm^{-1} , 632 cm^{-1} , 887 cm^{-1} ve 486 cm^{-1} 'deki bantlar, böhmitin Al-O moduna atfedilir. Bömite karşılık gelen 1069 cm^{-1} ve 632 cm^{-1} bantlarının, ortamında Si varlığından kaynaklanan Al/Si molar oranlarının azalmasıyla daha düşük dalga boylarına doğru kaymıştır. Yaklaşık 1169 cm^{-1} ve 738 cm^{-1} 'de ortaya çıkan pikler, Si-O-Al bandının varlığını göstermektedir ve bu, daha sonraki reaksiyonda müllit oluşumu için elverişlidir [46]. Gerçekleştirilen FTIR analizleri ile bu çalışmadaki değerlerin yakınlık gösterdiği tespit edilmiştir. Literatürde incelenen alümina-silika, silika ve alümina aerojel çalışmalarından elde edilen farklı fonksiyonel gruplara ait piklerin gerçekleştiği dalga boyları sırasıyla Tablo 4.4, Tablo 4.5 ve Tablo 4.6'da özetlenerek sunulmuştur.

Tablo 4.3. Alümina-silika esaslı aerojel literatür çalışmalarından elde edilen FTIR dalga boyları (cm^{-1}).

Kod	-OH	Al-O	Si-O	Si-O-Si	Si-O-Al	Al-O-H	Al-O-Al	C-H
[114]	3351	~1200 ~400 ~880	~1200 ~400	~1069	-	-	-	~3078
[120]	-	~785 ~619 ~487 ~1164	~1145 ~1085	~1085 ~800 ~465	~1039	-	-	-
[59]	3500	800	-	-	~1033	-	-	~2800
[23]	3444	~600 ~797 ~880	-	~457	~1073	~1073	-	-
[51]	3445	~828 ~827 ~785	-	-	~1036	~1164 ~1122 ~1076	-	~2970 ~2926 ~2903
[54]	~3480 ~1640 ~1620 ~950	~846	-	~1095 ~460	-	-	-	~2960 ~1260
[4]	~1400 ~1250 ~850	-	~450	~1100	~563	-	-	~750
[79]	-	-	~548 ~798 ~955	~691 ~757 ~811 ~1066 ~1168	-	-	-	~2963
[84]	~3500 ~2900	-	-	~1090	~1180	-	~813	-
		~778						~2981
[46]	-	~632 ~887 ~486	-	-	~1169 ~738	~1069 ~3092	-	~2930 ~2853 ~1465 ~1402

Tablo 4.4. Silika esaslı aerojel literatür çalışmalarından elde edilen FTIR dalga boyları (cm^{-1}).

Kodlar	-OH	Si-O-Si (Asimetrik)	Si-O-Si (Simetrik)	Si-C	C-H
[159]	~1600	~1100	-	~840	~1450
[160]	~1600	~1100	~800	~850	~1400 ~2950
[28]	~1600 ~3500	~1100	-	~840 ~1260	~1450 ~2980
[3]	~3450 ~1630	~1000 ~1078	~758 ~460	-	-
[33]	~1628 ~3450	~1092	~760	~854 ~1258	-
[161]	~1650	~1060	~470	~850	-
[162]	~3360 ~1639	~1091	~803 ~539	-	-

Tablo 4.5. Alümina esaslı aerojel literatür çalışmalarından elde edilen FTIR dalga boyları (cm^{-1}).

Kodlar	O-H	Al-O	Al-O-H	Al-O-Al	C-H
[163]	~3400 ~3645	~608	~3319 ~3082	-	~2972 ~1114
[8]	-	~650 ~750	~1050	-	~2850 ~2950
[24]	~3424 ~1639	~559 ~667	-	~1020	~2976 ~1412
[164]	~3480 ~1650	~800 ~559	-	~1020	~2966 ~2896
[25]	~3680 ~3730	-	~616 ~1050	-	-
[165]	~3404 ~3089	~621 ~479	-	-	-

Hurwitz ve arkadaşlarının yaptıkları çalışmada ısıya maruz kalan alümina-silika aerojellerin gözenek yapısının korunmasında faz değişimlerinin etkisi araştırılmış; FTIR spektrumunda 3430 cm^{-1} 'de -OH pikinin oluşumu gözlenmiştir. 1074 ve 780 cm^{-1} 'deki pikler böhmite ait pikleri temsil ederken; 450 cm^{-1} 'deki pik oktahedral alüminanın α -alüminaya dönüşmesinden kaynaklanmaktadır. Üretilen alümina-silika aerojelin yapısında 1110 cm^{-1} 'de tetrahedral Si-O piki, 1190 cm^{-1} 'de Si-O bağı, 561 cm^{-1} 'deki ise $\theta\text{-Al}_2\text{O}_3$ varlığı görülmektedir [166].

Tüm benzer literatür incelemeleri sonucunda, bu sonuçlarla tezdeki veriler karşılaştırıldığında mevcut tezdeki verilerin literatür sonuçlarıyla paralel olduğu, hedeflenen bağ yapılarının oluşturulduğu ve yüksek verimlilikte bir üretimin gerçekleştiği tespit edilmiştir. Dolayısıyla kullanılan çeşitli hammaddelerden (eloksal atık, şamot tuğla harcı, perlit, zeolit, vollastonit ve diatomit) alümina-silika esaslı aerojel bağ yapısının sağlandığını göstermektedir.

4.2.3. BET analizi

BET cihazı, fiziksel adsorpsiyon yöntemini kullanarak düşük basınç ve yüksek çözünürlükte katı veya toz numunelerin yüzey ölçümlerini, mikro, mezo ve makro gözenek boyutlarını ve gözenek boyutu dağılımlarını elde edebilmektedir. Cihaz, numunenin düzlemini tek bir molekül tabakasıyla kaplayabilmek için gereken gaz miktarını belirleyerek, BET teorisinden hareket ederek yüzey alanını tespit etmektedir. Bu çalışma kapsamında çeşitli alümina ve silika kaynakları olarak tercih edilen doğal hammadde ve atıklarla sentezlenen alümina-silika esaslı aerojel tozlarına BET tayinleri yapılmış ve bu tozların yüzey alan, gözenek hacmi, çapı, partikül boyut değerleri ve adsorpsiyon izoterm eğrileri tespit edilmiştir.

Üretimi yapılmış alümina-silika esaslı aerojel tozlarının BET yüzey alanı sonuçları Tablo 4.6'da, BET gözenek hacim verileri Tablo 4.7'de, gözenek boyutu değerleri Tablo 4.8'de, doğal alümina ve silika başlangıç malzemelerinden sentezlenen aerojel tozlarının BET nanopartikül boyut sonuçları Tablo 4.9'da verilmiştir. Tablo 4.6'de verilen BET analiz verilerinden görüldüğü üzere, en yüksek BET yüzey alanı değeri 248,35 m²/g ile N2 kodlu 3 M derişim ve 100 ml hacminde baz/asit çözeltileri kullanılarak şamot tuğlası ve perlit öncüllerinden üretilen alümina-silika aerojel tozuna aitken, en düşük değer 13,36 m²/g ile yine aynı üretim parametreleriyle fakat farklı öncüllerle (şamot tuğlası ve diatomit) üretilen N4 kodlu alümina-silika aerojel tozuna aittir. Langmuir yüzey alanına bakıldığında, N2 kodundaki toz 383,66 m²/g değeri ile en fazla, N4 kodundaki toz 20,77 m²/g değeriyle en az değere sahip olmuştur. BJH adsorpsiyon yüzey alan değerlerinde en fazla değer N2 kodundaki alümina-silika aerojel tozuna ait olup; en düşük değer şamot tuğlası-diatomitten üretilen N9 kodlu numuneye aittir. Dolayısıyla üç farklı yüzey alanı değerlendirmesinde de en yüksek yüzey alanı değerinin N2 kodlu şamot tuğlası perlit öncülünden üretilen alümina-silika esaslı aerojel tozuna ait olduğu söylenebilmektedir. En düşük yüzey alanı ise (BET ve Langmuir için) N4 koduna sahip aerojel tozunda görülmesine karşın BJH yüzey alanında N9 kodlu aerojel tozunun en düşük yüzey alanına sahip olduğu görülmüştür ancak yaklaşık olarak yakın değerlere sahip oldukları görülmüştür (BJH yüzey alanı için N4 7,36 m²/g iken N9 5,43 m²/g'dır).

Tablo 4.6’da görüldüğü üzere BET yüzey alanı değerleri 13,36-248,35 m²/g arasında, Langmuir yüzey alanına ait değerler 20,77-383,66 m²/g arasında ve BJH yüzey alanı değerleri 5,43-133,33 m²/g arasında değişmektedir.

Tablo 4.6. Alümina-silika esaslı aerojel tozlarının BET yüzey alanı sonuçları.

(m ² /g)	Numuneler									
	N1	N2	N3	N4	N5	N7	N8	N9	N10	N11
BET yüzey alan	91,2	248,3	138,2	13,4	27,5	65,1	212	14,9	95,8	71,3
Langmuir yüzey alan	142,5	383,6	215,7	20,8	43,9	108,1	319,3	22,2	159,4	114,3
BJH adsorpsiyon kümülatif yüzey alan	51,7	133,3	77,68	7,4	17,3	45,9	83,9	5,4	67,8	47,3

Tablo 4.7’de verilmiş olan adsorpsiyon toplam gözenek hacmi sonuçlarının 0,006-0,122 cm³/g aralığında değişmekte olduğu görülmüştür. En yüksek adsorpsiyon toplam gözenek hacmi değeri N2 kodundaki numunede görülürken, en az değer N4 kodu verilen tozda görülmektedir. Dolayısıyla en yüksek yüzey alanı değerine sahip olan N2 kodu en yüksek gözenek hacmine sahipken, en düşük yüzey alanına sahip olan N4 kodlu numune en küçük gözenek hacmine sahiptir. BJH adsorpsiyon kümülatif gözenek hacmi değerlerinin sonuçları da bu sonuçlara paralel olup en düşük gözenek hacmi (0,0034 cm³/g) N4 kodlu numunede görülürken, en yüksek gözenek hacmi (0,069 cm³/g) N2 kodlu aerojel tozunda görülmektedir.

Tablo 4.8’de en yüksek ortalama gözenek çapının 20,01 Å olduğu (~2 nm) ve N8 kodlu eloksal atık-diatomit tozlarından elde edildiği, en düşük gözenek çapının ise 18,78 Å (~1,88 nm) olup N10 kodlu eloksal atık-zeolitten elde edildiği görülmektedir. BJH gözenek genişliği değerlerinde ise en yüksek değer N8 kodlu aerojel tozundan elde edildiği ve değer 20,97 Å (~2,1 nm) olduğu, en düşük değer N11 kodlu aerojel tozundan elde edildiği ve 20,5 Å (~2,05 nm) değerine sahip olduğu görülmüştür.

Tablo 4.7. Alümina-silika esaslı aerojel tozlarının BET gözenek hacmi sonuçları.

	Numuneler									
	N1	N2	N3	N4	N5	N7	N8	N9	N10	N11
Adsorpsiyon toplam gözenek hacmi (cm ³ /g)	0,04	0,12	0,07	0,006	0,013	0,031	0,106	0,007	0,045	0,034
BJH adsorpsiyon kümülatif gözenek hacmi (cm ³ /g)	0,03	0,07	0,04	0,003	0,009	0,024	0,044	0,003	0,035	0,024

Tablo 4.8. Alümina-silika esaslı aerojel tozlarının BET gözenek boyutu sonuçları.

	Numuneler									
	N1	N2	N3	N4	N5	N7	N8	N9	N10	N11
Adsorpsiyon ort. gözenek çapı (Å)	19,5	19,6	19,5	19,2	19,2	18,9	20,0	19,7	18,8	19,2
BJH adsorpsiyon ort. gözenek genişliği (Å)	20,6	20,8	20,7	20,6	20,6	20,5	21	20,5	20,6	20,5

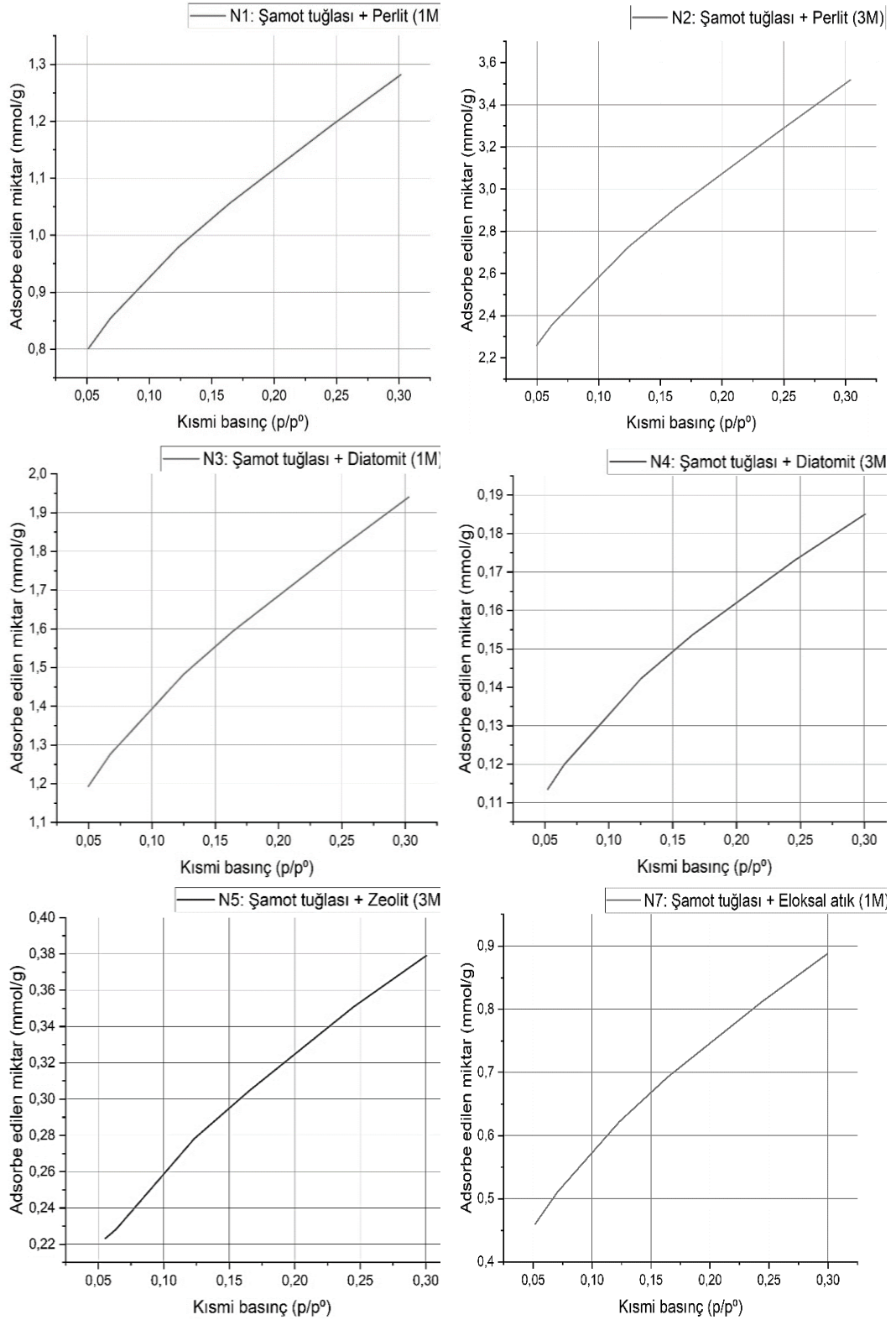
BET nanopartikül boyutu sonuçlarının (Tablo 4.9) 241,6-4492 Å değerleri arasında değiştiği tespit edilmiştir. Nanopartikül boyut sonuçlarına bakıldığında en fazla değer N4 kodundaki toza ait olup; en düşük değer ise N2 koduna sahip toza aittir. N2 kodlu aerojel tozunun (şamot tuğlası ve perlitten üretilen) en yüksek yüzey alanı değerine sahip olduğu Tablo 4.6'da ve en yüksek gözenek hacmi değerine sahip olduğu Tablo 4.7'de belirtilmiş olup Tablo 4.9'daki sonuçlara göre aynı zamanda en yüksek ortalama partikül boyutuna da sahip olduğu söylenmektedir. N4 kodlu aerojel tozu için de tam tersi durum geçerlidir. Tablo 4.9'da sentezlenen alümina-silika aerojel tozlarının BET nanopartikül boyutu ve gözenek boyutlarına bağlı olarak gözeneklilik sonuçları verilmiş olup; aerojel tozlarının genel olarak mikro gözenekli bir yapıya sahip olduğu görülmüştür.

Tablo 4.9. Üretilen alümina-silika esaslı aerojel tozlarının BET nanopartikül boyutu, gözenek çapı ve gözeneklilik verileri.

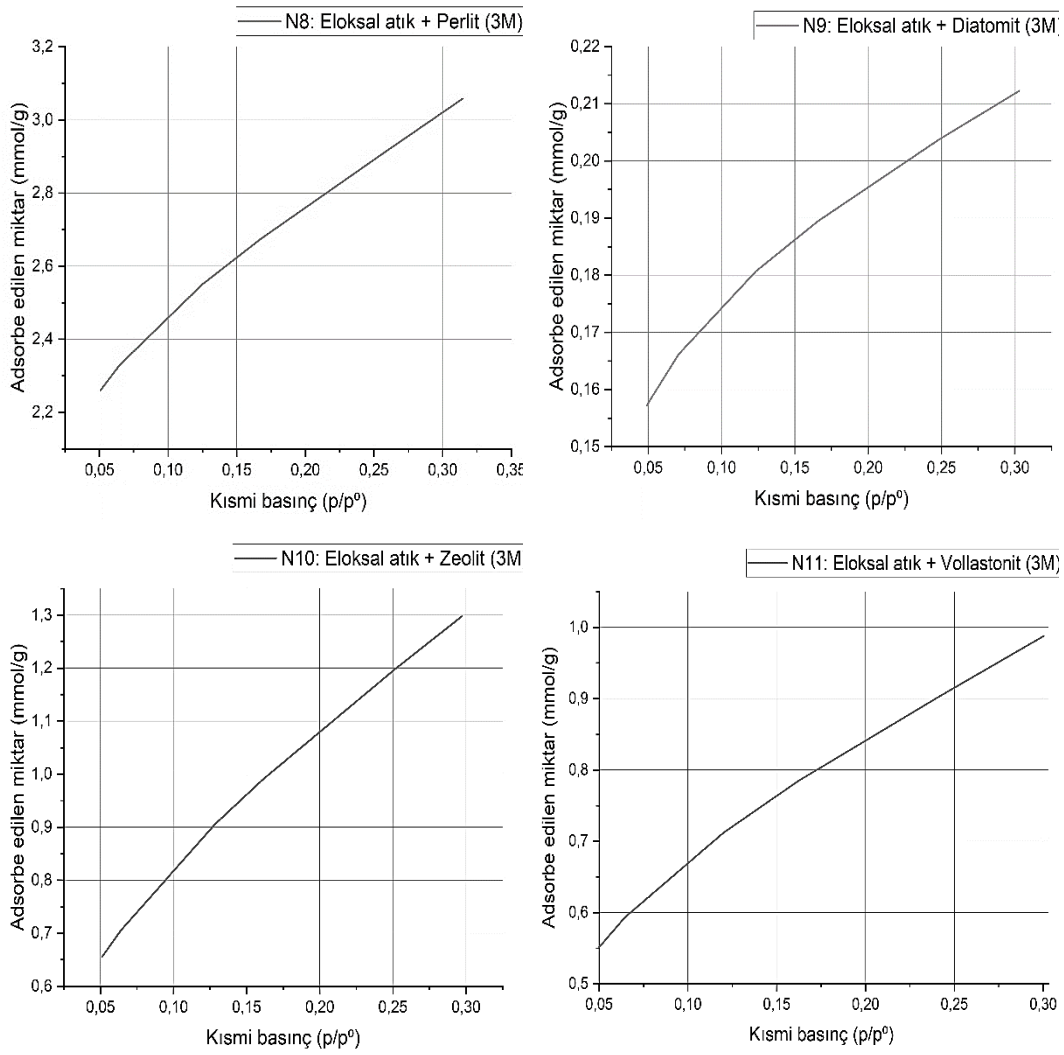
	Numuneler									
	N1	N2	N3	N4	N5	N7	N8	N9	N10	N11
Ort. partikül boyutu (Å)	657,7	241,6	434,2	4492	2185	921,9	283	4024	625,9	841,7
Ort. gözenek çapı (Å)	19,49	19,65	19,47	19,21	19,15	18,92	20,01	19,74	18,78	19,22
nm	1,95	1,96	1,95	1,92	1,91	1,89	2	1,97	1,87	1,92
Gözenek	Mikro	Mikro	Mikro	Mikro	Mikro	Mikro	Mezo	Mikro	Mikro	Mikro

Silika ve alümina başlangıç kaynakları olarak doğal hammadde ve atık malzemelerden elde edilen alümina-silika aerojel tozlarına ait adsorbe edilen miktar (mmol/g)'a karşılık kısmi basınç (p/p^0) adsorpsiyon izoterm grafikleri BET analizi ile elde edilen verilere göre çizilmiştir. Şekil 4.16'da grafikler verilmiş olup, adsorpsiyon eğrilerinde kısmi basınçla adsorbe edilen miktar artmaktadır. Wang ve arkadaşlarının yaptığı çalışmada da silika aerjellerin adsorpsiyon-desorpsiyon izoterm grafiklerinde, kısmi basınç ile adsorbe edilen miktarın arttığı görülmüştür [37].

Perlit ve şamottan üretilen N1 kodlu aerojel tozunun ortalama gözenek çapı 19,487 Å (~1,95 nm), BJH adsorpsiyon ortalama gözenek genişliği 20,629 Å, BET yüzey alanı 91,23 m²/g ve ortalama partikül boyutu 657,7 Å'dur. Perlit ve şamottan üretilen N2 kodlu aerojel tozunda ortalama gözenek çapı 19,648 Å (~1,96 nm), BJH adsorpsiyon ortalama gözenek genişliği 20,759 Å, BET yüzey alanı 248,35 m²/g, ortalama partikül boyutu 241,6 Å'dur. Şamot tuğlası ve diatomitten üretilen N3 kodlu aerojel tozunun ortalama gözenek çapı 19,467 Å, BJH adsorpsiyon ortalama gözenek genişliği 20,703 Å, BET yüzey alanı 138,2 m²/g ve ortalama partikül boyutu 434,2 Å'dür.



Şekil 4.16. Üretilen alümina-silika esaslı aerojel tozlarının adsorpsiyon izoterm eğrileri.



Şekil 4.16. (Devamı) Üretilen alümina-silika esaslı aerojel tozlarının adsorpsiyon izoterm eğrileri.

Şamot tuğlası-diatomitten üretilen N4 kodlu aerojel tozunun ortalama gözenek çapı 19,214 Å, BJH ortalama gözenek genişliği 20,574 Å, BET yüzey alanı 13,36 m²/g, ortalama partikül boyutu 4492 Å'dür. Şamot tuğlası ve zeolitten üretilen N5 kodlu aerojel tozunda ise adsorpsiyon ortalama gözenek çapı 19,146, BJH adsorpsiyon ortalama gözenek genişliği 20,562 Å, BET yüzey alanı 27,46 m²/g ve partikül boyutu 2185 Å'dür. Elokسال ve şamot tuğla harcından üretilen N7 kodlu aerojel tozunun ortalama gözenek çapı 18,924 Å (~1,89 nm), BJH ortalama gözenek genişliği 20,525 Å, BET yüzey alanı 65,08 m²/g ve ortalama partikül boyutu 921,9 Å'dur. Elokسال ve perlit öncüllerinden elde edilen N8 kodlu alümina-silika aerojel tozunun ortalama gözenek çapının 20,009 Å (~2 nm), BET yüzey alanının 211,98 m²/g ve ortalama partikül boyutunun 283 Å, BJH ortalama gözenek genişliğinin 20,968 Å bulunmuştur. Elokسال atık ve diatomitten elde edilen N9 kodlu alümina-silika aerojel için ortalama

gözenek çapı 19,740 Å (~1,97 nm), BJH ortalama gözenek genişliği 20,536 Å olup mikro gözenekli aerjel tozu üretimi sağlanmış, BET yüzey alanı 14,91 m²/g ve ort. partikül boyutu 4024 Å ölçülmüştür. Eloksal ve zeolitten üretilen N10 kodlu aerjel tozunun ortalama gözenek çapı 18,783 Å (~1,87 nm), BJH ortalama gözenek genişliği 20,629 Å, BET yüzey alanı 95,85 m²/g ve ort. partikül boyutu 625,9 Å bulunmuştur. Eloksal ve vollastonitten üretilen N11 kodlu aerjel tozunda ise ortalama gözenek çapı 19,218 Å (~1,92 nm), ortalama gözenek genişliği 20,492 Å, BET yüzey alanı 71,28 m²/g ve ort. partikül boyutu 841,7 Å'dür. N8 kodlu aerjel tozunun mezo, diğer numunelerin ise mikro gözenekli olduğu anlaşılmıştır.

Wang ve arkadaşları atmosferik basınçta kurutma yöntemi ile ürettikleri silika esaslı aerjeller için BET yüzey alanı değerleri 500-1000 m²/g aralığındayken, ortalama por boyutu 8 ila 20 nm arasında değişiklik göstermektedir. Silika aerjellerin adsorpsiyon-desorpsiyon izoterm grafiklerinde, adsorbe edilen miktarın kısmi basınç ile doğru orantılı olarak artışta olduğu görülmüştür [37]. Cheng ve arkadaşları TMCS sililasyon ajanı ile ürettikleri silika aerjellerin BET analizinde yüzey alanı değerinin 700 m²/g olduğu ve ortalama gözenek çapının 18 nm olduğu belirlenmiştir [161]. Gao ve arkadaşlarının ürettikleri silika aerjellerin BET analizinde yüzey alanı 700-780 m²/g aralığında değişirken, gözenek çapları ortalama 14 nm olup; mezo gözenekli ve yüksek gözenekli aerjeller oldukları tespit edilmiştir [33]. Huang ve diğerlerinin silika kaynağı olarak su camı kullandıkları silika aerjellerin spesifik BET yüzey alanı değerleri 400-600 m²/g aralığında, ortalama por çapları ise 15 nm tespit edilmiştir [59]. Hurwitz ve arkadaşlarının yaptığı çalışmada saf alümina aerjel için 425 m²/g'lik başlangıç BET yüzey alanı görülürken, üretilen alümina-silika aerjel için ise 379 m²/g'lik daha düşük yüzey alanı görülmüştür. 18 dakikalık 1000 °C'de kalsinasyon işlemi sonrasında alümina aerjelin yüzey alanı hızlıca düşmüştür [166]. Yu ve arkadaşlarının süperkritik kurutma ile sentezledikleri ağırlıkça %40 ila ağırlıkça %55 aralığında lif içeriğine sahip Al₂O₃-SiO₂ ve fiber takviyeli Al₂O₃-SiO₂ aerjellerin BET analizi ile, fiber takviyeli alümina-silika aerjelin spesifik BET yüzey alanı değerleri 305,29 m²/g, ortalama gözenek boyutu Al₂O₃-SiO₂ aerjelleri için 25,14 nm ve fiber takviyeli Al₂O₃-SiO₂ aerjelleri için 27,45 nm'dir. Fiberle güçlendirilmiş Al₂O₃-SiO₂ aerjellerin gözenek boyutu, oda sıcaklığında havadaki moleküllerin ortalama serbest yolundan (69 nm) daha küçüktür [167]. Peng ve arkadaşlarının ASB, EtOH, TEOS and H₂O kullanarak sentezlemiş oldukları silika aerjellerin spesifik

BET yüzey alanı değerleri 800°C (575,5 m²/g), 1000°C (443,2 m²/g), ve 1200°C (120,6 m²/g) arasında değişirken, ortalama gözenek çapı 15 nm olarak belirtilmiştir. Alümina-silika aerojelleri, yüksek sıcaklıklarda yüksek yüzey alanına sahiptir ve 1100°C'nin altında zayıf bir kristallığe sahiptir [51]. Hu ve arkadaşlarının farklı derişimlerdeki HCl ile ürettikleri silika aerojeller, gözenek yapısı ve gözenek dağılımı nitrojen sorpsiyon testleri ile incelendiğinde; 4 mol/L HCl çözeltisi ile yapılan silika aerojelin spesifik yüzey alanı 465,03 m²/g ve toplam gözenek hacmi 2,70 cm³/g olduğu görülmüştür [3].

Wu ve arkadaşlarının ucuz inorganik tuz kullanarak farklı alümina/silika (Al/Si) molar oranlarına sahip Al₂O₃-SiO₂ esaslı sentezledikleri kompozit aerojelin spesifik BET yüzey alanı Al/Si molar oranı 8 olan numunenin spesifik yüzey alanı 1200 °C'de 166 m²/g kadar yüksektir; bu şimdiye kadar bildirilenlerden daha yüksektir. AS=2 olan numunenin diğer numunelerle karşılaştırıldığında nanopartiküllerin birbirine çok yakın bir şekilde bitişik olduğu ve dolayısıyla çapları yaklaşık 20-30 nm aralığında olan en küçük nanogözeneklere sahip olduğu bulunmuştur. AS=3 olan numunede bazı büyük gözenekler vardır ve AS=4 olan numunede aglomerasyonlar ortaya çıkmıştır; bu da yüksek sıcaklıklarda geniş spesifik yüzey alanları için uygun değildir. Öte yandan AS=8 olan numune, çapları yaklaşık 30-40 nm aralığında bir homojen gözenek yapısı sergilemiştir [46].

Ramaswamy ve arkadaşlarının üretmiş oldukları alümina-silika aerojeller için jelleşmenin pH 3'te gerçekleştirildiği ve %0 alümina içeriğine sahip numunenin yüzey alanı 794 m²/g, pH 5'te jelleşmenin gerçekleştirildiği numunenin ise 736 m²/g olmuştur. Alümina içeriği arttıkça yüzey alanında düşüş, pH azaldıkça (5'ten 3'e) daha yüksek yüzey alanı görülmüştür. Gözenek çapları ortalama 60 Å olup; alümina içeriğinden bağımsız artış ve azalışlar gözlenmesine karşın, düşük pH'ta jelleşmesi halinde daha düşük olduğu görülmüştür [56].

Hu ve arkadaşlarının kaolen doğal hammaddesini kullanarak ürettikleri alümina-silika esaslı aerjel çalışmasında 4 mol/L HCl çözeltisi ile yapılan aerjeldeki gözenekler, 6 mol/L HCl konsantrasyonu ile yapılan aerjeldeki gözeneklerden çok daha ince olduğu ve 6 mol/L HCl ile yapılan aerjelde ciddi topaklanma meydana geldiği görülmüştür. 3 mol/L HCl konsantrasyonunda 370,17 m²/g yüzey alanına 4 mol/L'de 465,03 m²/g ve 6 mol/L'de 429,88 m²/g yüzey alanı değerine sahip olduğu görülmüştür [3].

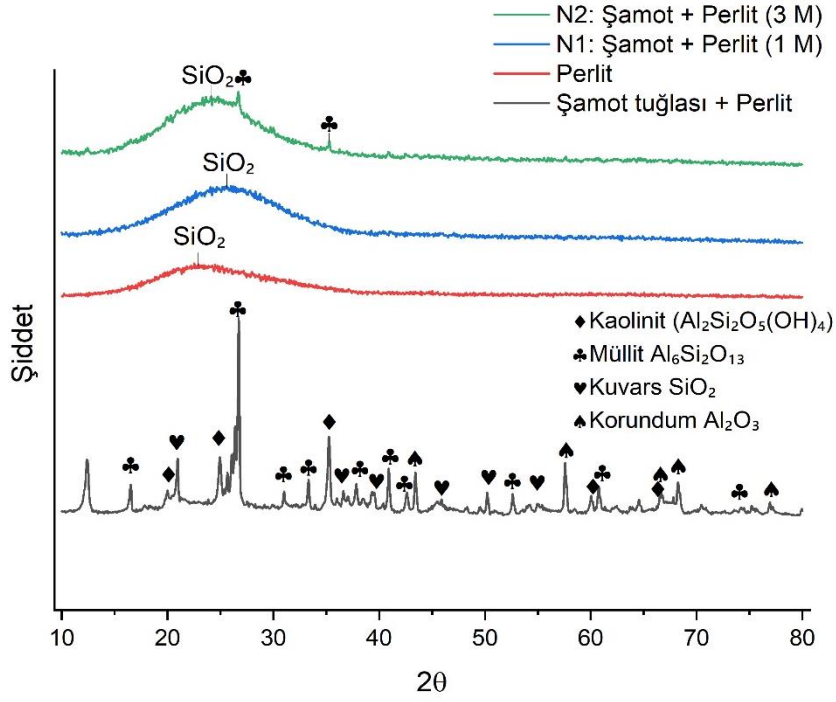
Dong ve arkadaşlarının yaptıkları bir çalışmada, silika aerjel numunesinin yüzey alanı $757 \text{ m}^2/\text{g}$, Si/Al atomik oranı 1,5 olan ve etanol süperkritik sıvı kurutma tekniği ile sentezlenen Al-Si₂'nin $733 \text{ m}^2/\text{g}$, oranı 1,22 olan ve alkolat karışımının hidrolizi ve ardından etanol süperkritik akışkan kurutma kullanılarak sentezlenen Al-Si₃'ün $237 \text{ m}^2/\text{g}$ 'dir [115]. Ji ve arkadaşlarının yaptıkları çalışmada Si/Al oranı 0,5 iken $233,12 \text{ m}^2/\text{g}$, 1 iken $481,79 \text{ m}^2/\text{g}$, 3 iken $447,78 \text{ m}^2/\text{g}$ olup, gözenek boyutlarının sırasıyla yaklaşık 10 nm, 18 nm ve 32 nm'dir [110].

4.2.4. XRD (faz) analizi

X-ışını kırınımı yöntemi, malzeme içindeki kristal yapıya bağlı olarak değişen atom düzlemlerine iletilen X-ışınının kırılmasıyla elde edilen karakteristik ışınların algılanması olarak tanımlanmaktadır. XRD analizinde $\lambda=1,54056 \text{ nm}$ dalga boyunda CuK α radyasyonu kullanılmıştır. Tarama hızı $2^\circ/\text{dk}$, açısı ise 2θ , $10-80^\circ$ arasındadır. Alümina kaynakları olarak şamot tuğla harcı ve eloksal atık, silika kaynağı olarak ise perlit, diatomit, zeolit ve vollastonit kullanılarak sentezlenen numunelerin faz yapılarını incelemek için XRD analizi uygulanmıştır.

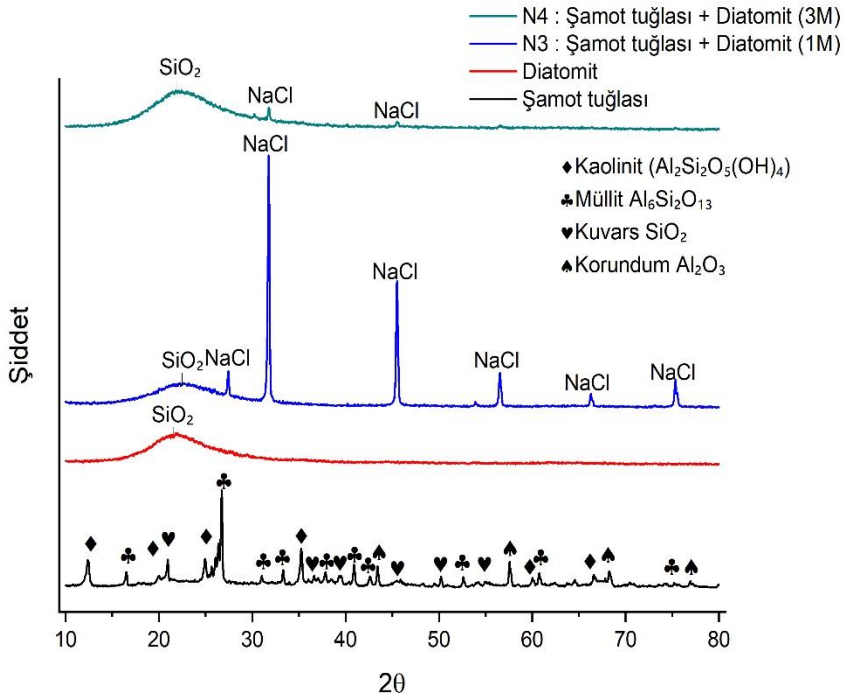
Şamot tuğla harcı ve perlit başlangıç malzemeleri ve bunların kullanılmasıyla üretilen sırasıyla 1M ve 3M baz-asit molaritesine sahip N1 ve N2 kodlarındaki alümina-silika esaslı aerjel numunelerinin XRD paterni Şekil 4.17'de verilmiştir.

Şamot tuğla harcı ve perlitten üretilen N1 ve N2 kodlu aerjel tozlarına ait XRD grafiğinde $2\theta=20-30^\circ$ aralığındaki geniş pik ile amorf silika varlığının görülmesinin yanında, N2'de $2\theta=26,28^\circ$ ve $35,3^\circ$ 'de kompozitte müllit fazının da oluştuğu görülmektedir. N1 1M 250 ml hacminde üretilirken, N2 3M 100 ml hacminde üretilmiştir ve başarılı müllit oluşumu sağlanan 3M baz-asit derişimi ile moleküler etkileşimlerin, çözünen madde miktarının ve reaksiyon hızının artması sebebiyle üretim verimi için daha uygun olduğu görülmektedir. Müllit fazının şiddeti kalsinasyon sağlanarak ve müllit oluşumu için gerekli sıcaklıklara (yaklaşık 1300°C) çıkılarak arttırılabilir. Üretimi yapılan alümina-silika aerjel tozlarının yapılarında NaCl pikleri gözlenmemiş olup, saf suyla yıkamanın yeterli yapıldığı ve yapıdan başarıyla giderilmiş olduğu söylenebilir.



Şekil 4.17. N1 ve N2 kodlu aerogel tozunun XRD analizi.

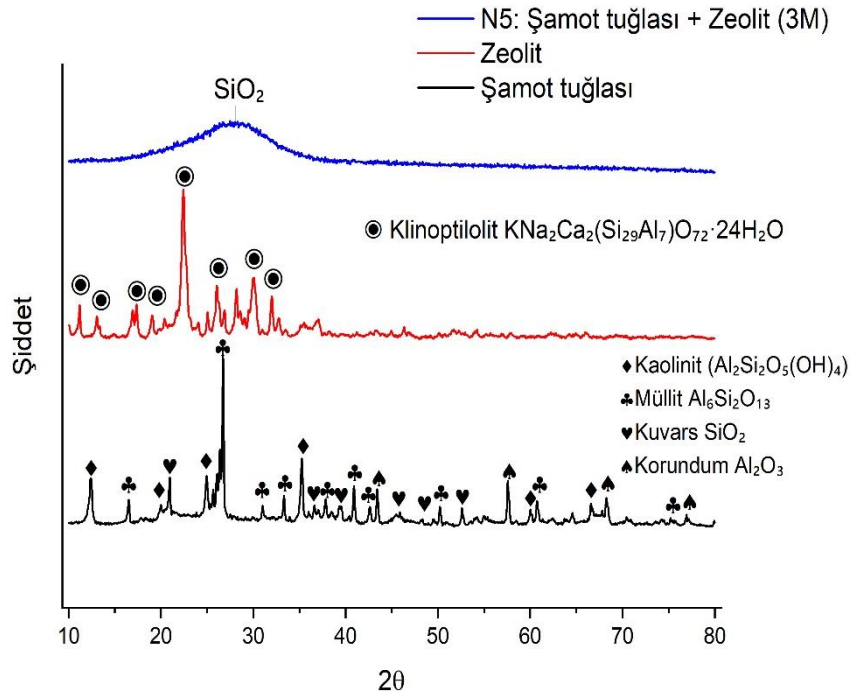
Şamot tuğla harcı ve diatomit başlangıç malzemeleri ve bunların kullanılmasıyla üretilen sırasıyla 1M ve 3M baz-asit molaritesine sahip N3 ve N4 kodlarındaki alümina-silika esaslı aerogel tozlarına ait XRD paterni Şekil 4.18’de verilmiştir.



Şekil 4.18. N3 ve N4 kodlu aerogel tozlarının XRD analizi.

Şamot tuğla harcı ve diatomitten üretilen N3 ve N4 kodlu aerojel tozlarına ait XRD grafiğinde $2\theta=20^{\circ}$ - 30° arasında görülen geniş bir pikle amorf silika varlığının görülmesinin yanında, N3’de $2\theta=27,44^{\circ}$, $31,76^{\circ}$, $45,5^{\circ}$, $56,52^{\circ}$, $66,28^{\circ}$ ve $75,34^{\circ}$ ’de N4’te ise $2\theta=31,78^{\circ}$ ve $45,56^{\circ}$ ’de NaCl pikleri görülmüştür. 1M 250 ml hacminde üretilen N1’de jel miktarının fazla olması sebebiyle saf su ile yıkama sayısının tüm jel hacminin tuzdan arındırılmasında N2’ye göre yetersiz kaldığı görülmüş olup bu sonuç Şekil 4.4’teki EDS sonuçlarıyla da doğrulanmış olup sırasıyla Na ağı. yüzde oranları %6,05 ve %4,44’tür. N4 kodlu aerojel tozunun yapısında da NaCl pikleri gözlenmiştir ancak N3’e göre yapıdan daha çok giderildiği görülmüştür. Her iki üretimde de saf su ile yıkama işleminin yeterli düzeyde yapılması halinde yapıdan daha fazla giderilebileceği söylenebilir. Yapıda NaCl oranının bulunması aerojel tozlarının yoğunluklarını da etkilemiş olup Tablo 4.11’de görüldüğü üzere N3’ün yoğunluğu $0,407 \text{ g/cm}^3$ olup, N4’ün yoğunluğu $0,176 \text{ g/cm}^3$ ’dür. 2. yıkama sonrasında yoğunlukların düştüğü görülmüştür.

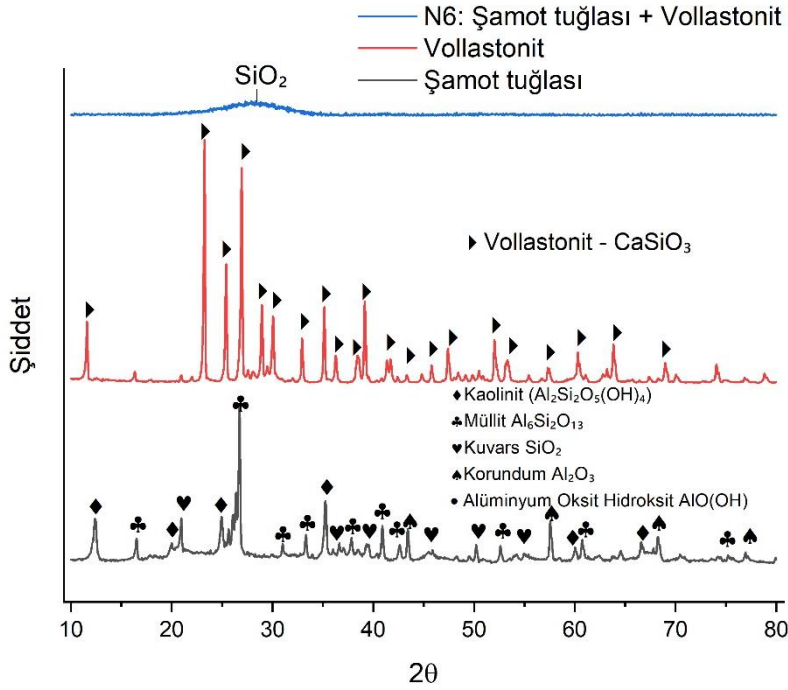
Şamot tuğla harcı ve zeolit başlangıç malzemeleri ve bunların kullanılmasıyla üretilen 3M baz-asit molaritesine sahip N5 kodu verilen alümina-silika esaslı aerojel tozlarına ait XRD paterni Şekil 4.19’da verilmektedir.



Şekil 4.19. N5 kodlu aerojel tozlarının XRD analizi.

Şekil 4.19'daki XRD analiziyle şamot tuğlası ve zeolitten üretilen N5 kodlu aerojel tozunun amorf bir yapıya sahip olması 20-40° arasındaki geniş pikin varlığı ile görülmektedir.

Şamot tuğla harcı ve vollastonit başlangıç malzemeleri ve bunların kullanılmasıyla üretilen sırasıyla 1M ve 3M baz-asit molaritesine sahip N6 kodunda olan alümina-silika esaslı aerojel tozlarına ait XRD paterni Şekil 4.20'de verilmiştir.

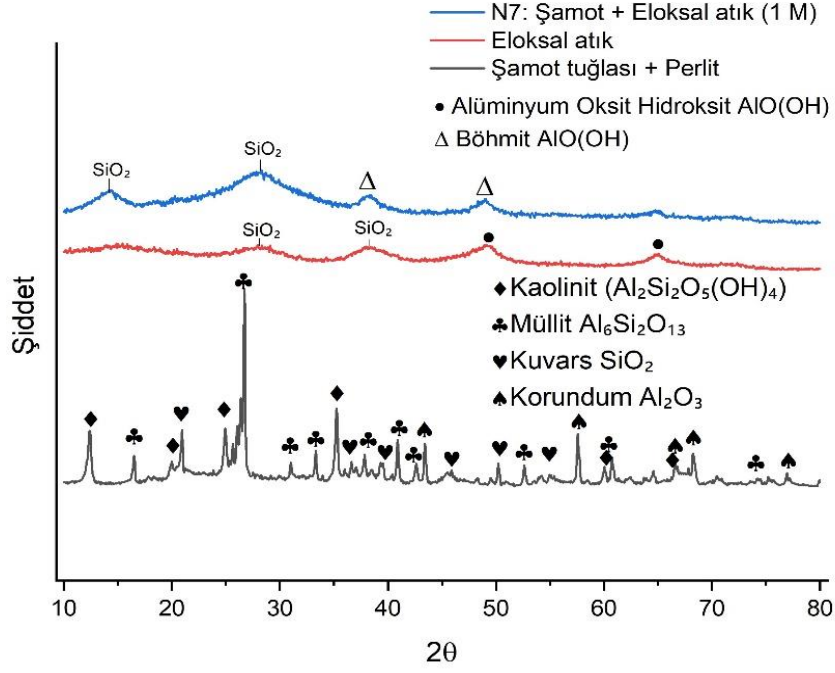


Şekil 4.20. N6 kodlu aerojel tozlarının XRD analizi.

Şamot tuğlası ve vollastonit öncüllerinden üretilen N6 kodlu aerojel tozunda amorf yapının göstergesi 20-40° aralığında SiO₂ pik varlığına rastlanmaktadır.

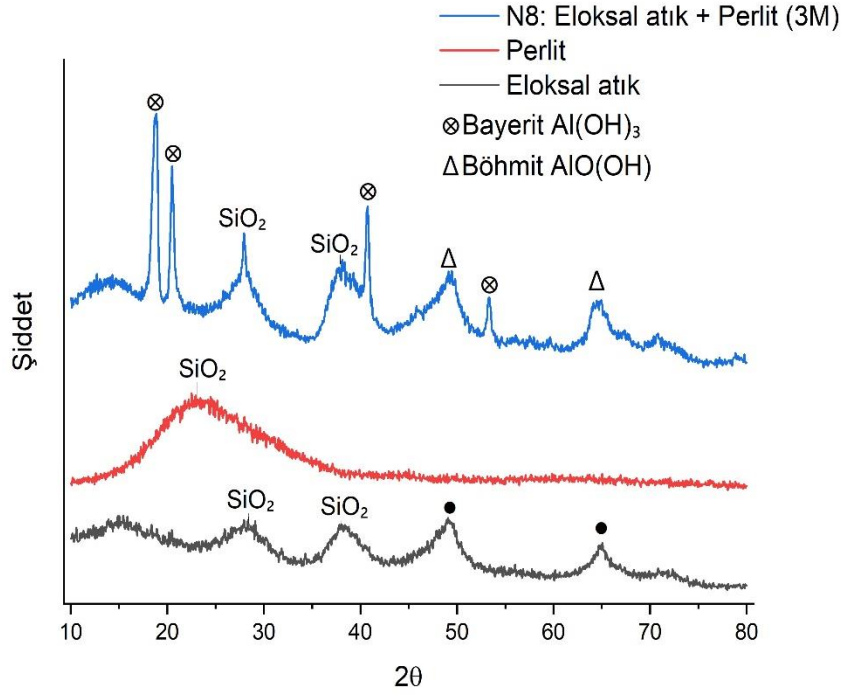
Şamot tuğlası ve eloksal atık başlangıç malzemeleri ve bunların kullanılmasıyla üretilen 1M baz-asit molaritesine sahip N7 kodundaki alümina-silika esaslı aerojel tozlarına ait XRD paterni Şekil 4.21'de verilmiştir.

Şamot tuğlası ve eloksal atıktan üretilen N7 kodlu aerojel tozunda 10-20° ve 20-40° aralığında amorf yapı göstergesi SiO₂ pikleri görülmüş olup; 38,32° ve 49°'de böhmite pikleri gözlemlenmiştir.



Şekil 4.21. N7 kodlu aerojel tozunun XRD analizi.

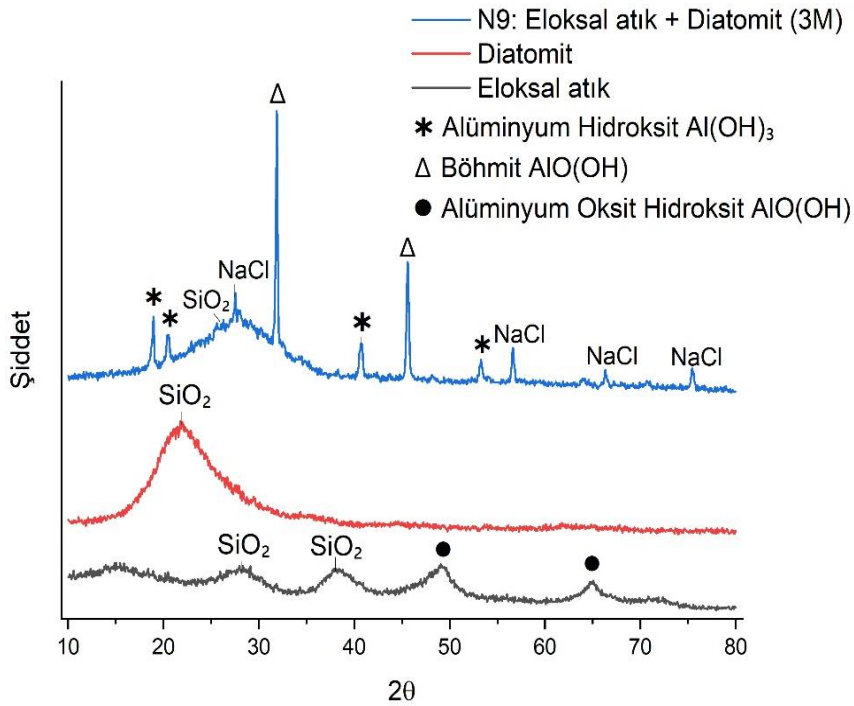
Eloksal atık ve perlit başlangıç malzemeleri ve bunların kullanılmasıyla üretilen sırasıyla 1M ve 3M baz-asit molaritesine sahip N1 ve N2 kodlarındaki alümina-silika esaslı aerojel tozuna ait XRD paterni Şekil 4.22’de verilmiştir.



Şekil 4.22. N8 kodlu aerojel tozunun XRD analizi.

Eloksal atık ve perlitten üretilen N8 kodlu alümina-silika aerojel tozunun XRD grafiğinde (Şekil 4.22) numunenin $2\theta=18,86^\circ$, $20,5^\circ$, $40,74^\circ$ ve $53,36^\circ$ 'de bayerit, $2\theta=49,1^\circ$ ve $64,94^\circ$ 'de böhmit bileşenlerini ve $2\theta=27,96^\circ$ ve 38° 'de amorf SiO_2 piki içerdiği görülmektedir. Bu durum üretilen aerojel tozunun Al bileşiklerini yüksek oranda içerdiğini göstermekte olup; Şekil 4.4'teki EDS analizlerinde de doğrulandığı üzere üretilen aerojel tozunda %45,59 Al içeriği bulunmaktadır.

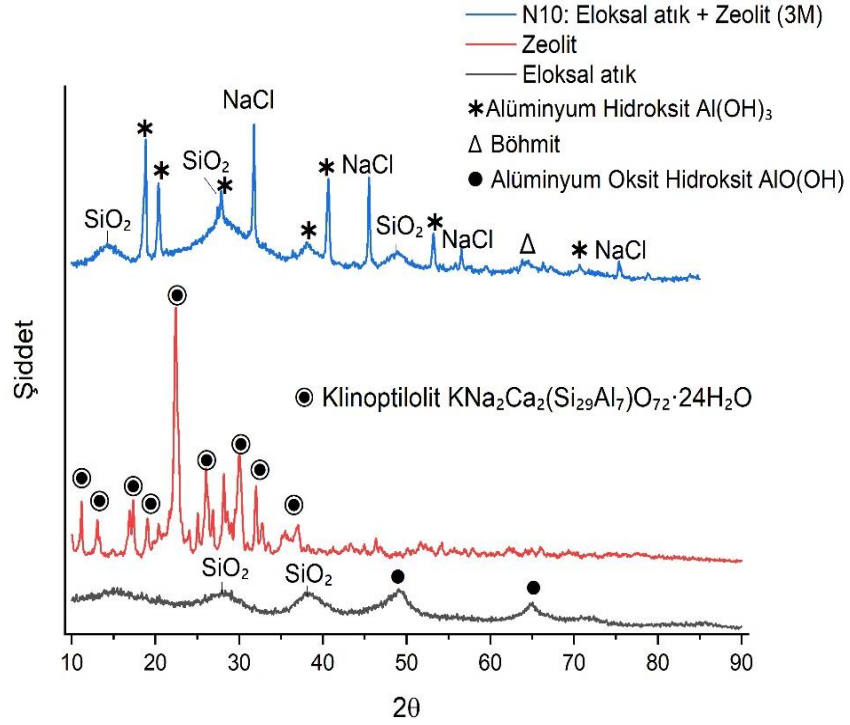
Eloksal atık ve diatomit başlangıç malzemeleri ve bunların kullanılmasıyla üretilen 3M baz-asit molaritesine sahip N9 kodunda olan alümina-silika esaslı aerojel tozuna ait XRD paterni Şekil 4.23'de gösterilmiştir.



Şekil 4.23. N9 kodlu aerojel tozunun XRD analizi.

Eloksal atık ve diatomitten üretilen N9 kodlu alümina-silika aerojel tozunun XRD grafiğinde (Şekil 4.23) numunenin $2\theta=18,94^\circ$, $20,4^\circ$ ve $53,28^\circ$ 'de alüminyum hidroksit, $2\theta=31,86^\circ$, $40,72^\circ$ ve $45,6^\circ$ 'de böhmit, $2\theta=27,54^\circ$, $56,64^\circ$, $66,32^\circ$ ve $75,4^\circ$ 'de NaCl bileşenlerini içerdiği ve 20° - 40° arasında ortalama yaklaşık $2\theta=27,54^\circ$ 'de geniş amorf SiO_2 piki içerdiği görülmektedir. Bu durum üretilen aerojel tozunun Al ve Si bileşiklerini birlikte içermekte olup; Şekil 4.4'teki EDS analizlerinde de doğrulandığı üzere üretilen aerojel tozunda ağırlık %12,95 Al ve %26,48 Si içeriği bulunmaktadır.

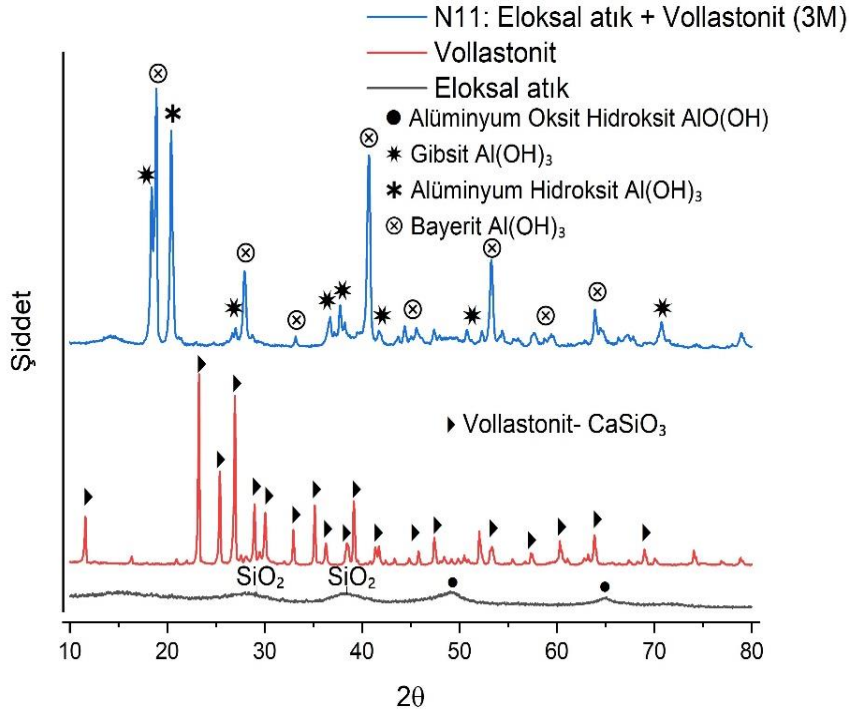
Eloksal atık ve zeolit başlangıç malzemeleri ve bunların kullanılmasıyla üretilen sırasıyla 1M ve 3M baz-asit molaritesine sahip N10 kodundaki alümina-silika esaslı aerojel tozuna ait XRD paterni Şekil 4.24'te sunulmuştur.



Şekil 4.24. N10 kodlu aerojel tozunun XRD analizi.

N10 kodlu aerojel tozunda 10°-20° ve 20°-40° aralığında amorf SiO₂ varlığı görülmüş olup yapıda ayrıca 18,84°, 20,36°, 27,86° 38,06°, 30,66°, 53,20° ve 70,64°'lerde alüminyum hidroksit Al(OH)₃ pikleri ve 63,82°'de böhmite piki görülmüştür. Yapıda sol çözeltisinde kullanılan NaOH kaynaklı kalan tuzun varlığı 27,4°, 31,76°, 45,52°, 56,54° ve 75,36°'de NaCl pikleri olarak görülmüştür.

Eloksal atık ve vollastonit başlangıç malzemeleri ve bunların kullanılmasıyla üretilen 3M baz-asit molaritesine sahip N11 koduna sahip alümina-silika esaslı aerojel tozuna ait XRD paterni Şekil 4.25'te sunulmuştur.



Şekil 4.25. N11 kodlu aerojel tozunun XRD analizi.

N11 kodlu aerojel tozunda $18,4^\circ$, $26,7^\circ$ ve $37,8^\circ$ 'de gibsit, $20,4^\circ$, $53,26^\circ$ ve $63,9^\circ$ 'de alüminyum hidroksit ve $18,9^\circ$, $27,9^\circ$, $33,2^\circ$ ve $40,7^\circ$ 'de bayerit fazlarının varlığı görülmüştür. Alüminyum bileşiklerinin fazla olması durumu Şekil 4.4'teki EDS analizleri ile de doğrulandığı üzere yapıdaki Al oranının (ağ. %44,17) yüksek olmasından kaynaklanmaktadır.

Saraç, perlit, kuvars, pomza zeolit, pencere camı hammaddelerinden ürettiği silika aerojel tozlarında $22-23^\circ$ civarlarında amorf yapının varlığını, 31 ve 45° 'lerde ise NaCl piklerinin varlığını gözlemlemiştir [150].

Wu ve arkadaşlarının uçucu külden türetilen TiO_2 ve $SiO_2-Al_2O_3$ aerojelden oluşan üçlü bir kompoziti basit bir sol-jel yöntemiyle hazırladılar. $SiO_2-Al_2O_3$ aerojelinin XRD deseni, amorf SiO_2 'ye atfedilebilen $15^\circ-30^\circ$ aralığında geniş, zayıf bir tepe noktası gösterdi. Kurutulmuş numuneler için, Al/Si molar oranlarının artmasıyla birlikte, geniş kırınım zirveleri 15° , 28° , 38° , 49° , 56° , 65° ve 72° 'de olup, psödoböhmite (AlO) karşılık gelmektedir. Amorf bir morfoloji yerine çok kristalli böhmit olarak bulunur. Al/Si molar oranı 1 olduğunda monofazik bir jel oluştururken, mol oranı 1'den büyük olduğunda difazik jel oluşmuştur. Daha büyük bir Al/Si molar oranıyla müllitleşme sürecinin engellendiği görülmüştür. Farklı sıcaklıklarda ısı işleme tabi tutulmuş saf Al_2O_3 aerojelinin XRD desenleri, aynı zamanda alümina

kaynağı olarak $\text{AlCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ kullanılarak PO yönteminden türetilmiştir. Isıl işlem sıcaklığının artmasıyla Al_2O_3 aerogelinin böhmit $\rightarrow \gamma\text{-Al}_2\text{O}_3 \rightarrow \theta\text{-Al}_2\text{O}_3 \rightarrow \alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ dizisini takip etmiştir. AS=8 numunesi için $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 'ün 1300 °C'ye kadar yüksek sıcaklıklarda stabil olarak mevcut olması nedeniyle ısıl işlem sırasında $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ faz geçişinin engellendiğini göstermektedir. $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ faz geçişi (altıgen sıkı paket yapı), Al_2O_3 'ün ısı yalıtım performansını azaltan diğer Al_2O_3 kristal formlarıyla (spinel yapı) karşılaştırıldığında hacim büzülmesine ve sinterlenmeye neden olduğundan, bu olay homojen nanoyapılar ve düşük ısı iletkenliği için uygundur [46].

Liu ve arkadaşlarının yaptığı süperkritik kurutucu ile kurutulmuş müllit elyafla güçlendirilmiş alümina aerjel çalışmasında Müllit liflerinin eklenmesi nedeniyle müllit fazında net ve keskin kırınım pikleri gözlemlenebilir. 49,9° ve 64,7°deki geniş kırınım zirveleri, böhmit (200) ve (002) kristal düzlemlerine atfedilmiştir[37].

Wu ve arkadaşlarının uçucu kül ve trona ore kullandıkları bir çalışmada uçucu kül başlangıç maddesinde SiO_2 ve müllit fazları gözlenmiştir [60]. Ren ve arkadaşlarının kompozit aerjel ($\text{Fe}_2\text{O}_3\text{-Al}_2\text{O}_3$) ürettikleri çalışmada, ısıl işlem olmadan organik solvent süblimasyon kurutma sonrası saf alümina aerjelde ve kompozit aerjelde böhmit fazları görülmüştür [25].

Song ve arkadaşları atmosferik şartlarda kurutma ile ısı yalıtımlı kompozit malzemeyi silika aerjel ve müllit elyaf kullanarak yapmışlardır. Kompozit malzemenin silika jel içeriği %60 olup X-ışını kırınım spektrumunda müllit kristal kırınım zirvesi ~26° ve 34,36°de görülmüştür [116].

Jia ve arkadaşları tarafından yapılan $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ aerogelinin vakum emdirme yöntemiyle matris görevi gören alümina çerçevelerle birleştirilmesiyle hazırlanan kompozitlerde, alümina çerçeve, birbirine kenetlenmiş altıgen alümina plakalardan oluşuyordu. Alümina çerçevesinin XRD modelinde bir korundum fazı ($\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$) tespit edildi. $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ aerogelinin XRD modelindeki yaklaşık 15°-30°deki genişleme zirvesi, SiO_2 'nin amorf durumuna atfedilmiştir. Aerjel tozlarının XRD analizlerinde amorf ve kristalin pikler gözlenmiş olup; bu farklılık sebebi toz boyutlarının nano düzeyde olması kaynaklı 2°/dk olan çekim hızının yetersiz olmasına bağlanmıştır [119].

Koçer tarafından yapılan bir tez çalışmasında alüminyum eloksal atıktan üretilen aerjel tozunun XRD paterninde 37,4 ve 50°'lerde Al_2O_3 pikleri, 65,75° ve 90°

civarlarında da NaCl pikleri görülmüştür. Yapıdaki NaCl fazlarının, jelleşme safhasında kullanılan NaOH ve HCl sebebiyle olduğu belirtilmektedir. 4 hafta yaşlandırılan numune kristalin yapıda iken, 3 hafta yaşlandırılan numune amorf yapıda olmuştur. İkincil alüminyum cürufundan sentezlenen alümina aerojel tozlarının kristalin yapıya sahip olduğu görülmüştür. 4 hafta süresince yaşlandırma işlemine tabi tutulan numunede Al₂O₃ ve NaCl pikleri, 3 hafta yaşlandırmaya tabi tutulan numunede ise sadece Al₂O₃ piki görülmüştür [14]. Hu ve arkadaşlarının kaolen kullanılarak ürettikleri hidrofobik silika aerojellerin 20° ile 27,5° arasında amorf pik vermiş olduğu görülmüştür. Geniş tepe noktası aerojelin küçük ve oldukça dağılmış parçacıklar içerdiğini göstermektedir [3].

Ghica ve arkadaşları, jelleştirme maddesinin ve yıkama koşullarının alümina-silika aerojellerin yapısının kristalliği üzerindeki etkisini XRD ile incelenmişlerdir. NH₄OH veya EDA ve etanol-heptan veya su-etanol-heptan ile yıkamayla elde edilen numunelerin XRD desenleri tüm durumlarda, amorf SiO₂'nin tipik özelliği olan 23° (2θ) civarında geniş bir tepe ortaya çıkarmıştır. ~10°'de (2θ) görünen zirve, bir alüminyum hidroksit türüne atfedilmiştir. NH₄OH veya EDA ile jelleştirilen ve suyla yıkanmayan aerojeller için 32°, 40°, 47°, 53°, 58°, 69°, 73°, 78°, 82° ve 92°'de çeşitli kırınım tepe noktaları (2θ) NH₄OH katalizörü durumunda ve 25°, 26°, 27°, 30°, 34°, 35°, 36°, 37°, 38°, 42°, 43°, 44°, 48°'de, EDA katalizörü için 51°, 54°, 56°, 58° ve 62° (2θ) de gözlenmiştir; bu, ağda kristal fazların varlığını gösterir; bunlar, amonyum klorüre ve bazı etilendiamin tuzlarına karşılık gelmektedir ve su ile yıkama ile bu pikler kaybolmuştur. Isıl işlemde sonra 10°'de (2θ) pikin yoğunluğundaki artış muhtemelen böhmit benzeri türlerin oluşumundan kaynaklanmaktadır [59].

Jiang ve arkadaşları süper kritik kurutma yöntemi kullanarak ürettikleri alümina-silika aerojellerin termal ve yapısal stabilitelere asetoasetat kimyasalının etkisini çalışmışlardır. Kurutma sonrası tüm numunelerde AlO(OH) pikleri olup; kurutma ve 1200°C termal işlem sonrasındaki XRD paternlerinde etil asetoasetatın kullanılmadığı numune haricindeki numunelerin hepsinde böhmit fazının olmadığı ve θ-Al₂O₃ fazlarının olduğu tespit edilmiştir. Etil asetoasetat tercih edilmeyen alümina aerojel numunesinde ise 2θ=27,45 ve 55°'lerde α-Al₂O₃ fazı tespit edilmiştir [164].

Chen ve diğerlerinin Al₂O₃-SiO₂ esaslı aerojel sentezledikleri çalışmada, öncül malzemeler olarak alüminyum klorür heksahidrat (AlCl₃·6H₂O) ve tetraetoksilan (TEOS) kullanılarak sol jel işlemi ve etanol süperkritik kurutma teknolojisi yoluyla

hazırlanmıştır. Üretilen Al₂O₃-SiO₂ aerojelin XRD spektrumlarında, oda sıcaklığında polikristalin böhmit (γ -AlOOH) fazı tespit edilmiştir [114]. Hurwitz ve arkadaşlarının yaptığı alümina-silika aerjel çalışmasında ısıya tabi tutulan aerjellerin gözenek formlarının korunmasında faz değişimlerinin etkisi araştırılmış olup, sentezlenen alümina ve alümina-silika aerjel tozları süper kritik kurutucu ile kurutulma işleminden sonra 600, 1000, 1100, 1200 ve 1300°C sıcaklıklarda 18 dakika bekletilmiştir. Üretilen alümina aerjellerin 27, 37 ve 47°'lerde γ -böhmit ve 20=25, 35, 37, 42, 52 ve 57°'lerde α -Al₂O₃ pikleri verdiği görülmüştür [165]. Tablo 4.10'da çalışma kapsamında üretilen alümina-silika aerjel tozlarının XRD analizi sonuçları verilmektedir.

Tablo 4.10. Üretilen alümina-silika esaslı aerjel tozlarının XRD analiz sonuçları.

Kod	SiO ₂	NaCl	Müllit	Böhmit	Gibsit	Bayerit	Al(OH) ₃
N1	27°	-	-	-	-	-	-
N2	27,7°	-	26,29° 35,3°	-	-	-	-
N3	24°	27,44° 31,8° 45,5° 56,52° 66,28° 75,34°	-	-	-	-	-
N4	22°	31,78° 45,56° 56,57°	-	-	-	-	-
N5	27,5°	-	-	-	-	-	-
N6	27,5	-	-	-	-	-	-
N7	15° 28°	-	-	38,32° 49°	-	-	-
N8	27,96° 38°	-	-	49,1° 64,94°	-	18,86° 20,5° 40,74° 53,36°	-
N9	27,54	27,54 56,64 66,32 75,4 27,40° 31,8° 45,5°	-	31,86 40,72 45,6	-	-	18,94 20,4 53,28
N10	-	56,5° 75,4°	-	63,8°	-	-	18,8° 20,4° 27,9° 38,1° 40,7° 53,2° 70,6°
N11	-	-	-	-	18,4° 26,7° 37,8	18,9° 27,9° 33,2° 40,7°	20,4° 53,26° 63,9°

Shen ve diğerlerinin atmosferik basınçta kurutma kullanarak ürettikleri silika aerojellerin XRD analizlerinde, amorf yapı 22°'lerde gözlenirken; 32 ve 46°'lerde NaCl pikleri gözlenmiştir. Gözlenen tuz piklerinin TMCS kimyasalıyla modifikasyonu sırasında yapıya katıldığı ve saf su ile yıkama işleminin yetersiz olmasıyla yapıdan giderilemediği gözlemlenmiştir [60]. Zhou ve diğerleri SiCl₄ başlangıç malzemesiyle sentezledikleri silika aerjel tozlarında 23,2°'lerde net bir amorf silika yapısı gözlemlenmiştir [168]. Chargui ve arkadaşlarının kaolin-alüminyum cüruf karışımlarının ısıtma sırasındaki yapısal dönüşümlerini inceledikleri çalışmada ham alüminyum cürufunun, gipsit ve böhmit varlığı nedeniyle küresel olarak amorf olduğu görülmüştür [169]. Hu ve arkadaşlarının çalışmasında X-ışını kırınım spektrumlarında, elde edilen tüm aerjeller 20° ve 27,5° arasında geniş bir pik vermiş olup amorf oldukları görülmüştür. Geniş pik, aerjelin küçük ve oldukça dağılmış parçacıklar içerdiğini göstermektedir [3].

4.2.5. Aerojel tozlarının yoğunluklarının belirlenmesi

Üretilen alümina-silika esaslı aerjel tozlarının yoğunlukları belirli hacimde (6,62 cm³) bir kap kullanılarak belirlenmiştir. Yoğunlukları belirlenecek tozlar ayrı ayrı kaba yerleştirilmiş ve öncesinde dara alınarak hassas terazide tozların ağırlıkları ölçülmüştür. Tartımların sonuçlarından elde edilen verilerle yoğunluk formülü kullanılarak tüm tozlar için yoğunluk hesabı yapılmıştır. Gerçek kütle, tozun kaplamış olduğu hacme oranlanmasıyla görünür yoğunluk elde edilmektedir. Tozların boşluklar barındırması sebebiyle görünür yoğunluk, kütle yoğunluğundan daha yüksek olmaktadır. Toz şekli, boyutu ve porozitenin artması gibi etkenler görünür yoğunluğu etkilemektedir. Şamot tuğla harcı-perlitten üretilen N1 kodlu numunenin yoğunluğu 0,2647 g/cm³, N2 kodlu numunenin yoğunluğu ise 0,2565 g/cm³'tür. Şamot tuğla harcı-diatomitten üretilen N3 ve N4 kodlarına sahip tozların yoğunlukları sırasıyla 0,407 g/cm³ ve 0,176 g/cm³'tür. Şamot tuğla harcı-zeolitten üretilen N5 kodlu numunelerin yoğunluğu 0,2536 g/cm³ iken, şamot tuğlası vollastonitten üretilen N6 koduna sahip numunenin yoğunluğu 0,283 g/cm³'tür. Şamot tuğlası-eloksal atıktan üretilen N7 kodundaki tozun yoğunluğu 0,3565 g/cm³'tür. Elokسال atık-perlitten üretilen N8 kodlu 0,4869 g/cm³, elokسال atık-diatomitten üretilen N9 kodlu 0,3646 g/cm³, elokسال atık-zeolitten üretilen N10 kodlu 0,2465 g/cm³ ve elokسال atık-vollastonitten üretilen N11 kodlu numunenin yoğunluğu 0,825 g/cm³'tür. En düşük yoğunluklu numune (N4) 0,176 g/cm³ olup en yüksek yoğunluğa sahip numune 0,825

g/cm³ değere sahiptir ve bu durum; düşük yoğunluklu numunenin Si oranının yüksek (ağ. %48,65) ve sodyum oranı (ağ. %4,44) en düşük olması sebebine bağlanmaktadır. N3'e kıyasla N4'ün Si oranı ağ. %51,1 olmasına karşın Şekil 4.4'ten görüldüğü üzere N4'ün Na oranı daha düşük ve Şekil 4.27'deki XRD sonuçlarına bakıldığında N3'e göre tuz piklerinin daha az şiddette ve miktarda olduğu görülmüştür. Dolayısıyla alüminyumun yoğunluğunun silisyuma göre daha yüksek olması sebebiyle Si oranının fazla olduğu numunenin yoğunluğunun düşük çıkması beklenen bir şeydir. N11 kodlu aerjel tozunun yoğunluğunun yüksek olması ise bileşimindeki Al miktarının (Şekil 4.4) ağ. %44,17 ile en yüksek değere sahip numune olmasından ve Şekil 4.34'teki XRD sonuçlarında gibsit, bayerit ve alüminyum hidroksit ihtiva etmesinden kaynaklıdır. Aerojellerin kritik özelliklerinden biri yoğunluk değerlerinin başka malzemelere kıyasla daha düşük olmasıdır. Bu sebeple üretilen tozların yoğunluk değerlerinin düşük çıkması istenmektedir. Farklı başlangıç öncülleri ile elde edilen alümina-silika aerjellerin yoğunlukları Tablo 4.11'de gösterilmektedir.

Tablo 4.11. Üretilen alümina-silika esaslı aerjel tozlarının yoğunlukları.

Numune Kodu	Yoğunluk (g/cm ³)	2. Yıkama (g/cm ³)
N1	0,2647	-
N2	0,2565	0,214
N3	0,407	0,34
N4	0,176	0,14
N5	0,2536	-
N6	0,283	-
N7	0,3565	-
N8	0,4869	-
N9	0,3646	0,32
N10	0,2465	0,20
N11	0,825	-

Hava kabarcıklarının boyutları eşit olmaması sebebiyle jelleşme sırasında kolayca kırılarak kuru aerjelin yoğunluğunu artırabilirler [3]. Dolayısıyla oluşan hava

kabarcıkları aerojel yoğunluğu üzerinde etkili bir parametredir. Pahalı ve sentetik hammadde kaynakları kullanılarak sentezlenen ve kimyasal modifikasyonla jel yapıları desteklenen alümina-silika aerojellere göre, mevcut çalışmada atık ve doğal hammadde kaynakları kullanılarak 0,176-0,825 g/cm³ aralığında ve ortalama olarak ~0,35 g/cm³ yoğunluk değerlerinin elde edilmesi literatür ile uyumlu ve başarılı olarak değerlendirilmiştir. Aerojel tozlarının 2.yıkama sonrası yoğunluk değerleri sodyum oranının azaltılması ile düşmüştür.

Komarneni ve arkadaşlarının yaptığı çalışmada, TMOS-böhmit türevi aerojellerin yoğunlukları, böhmit içeriğinin %0,01 mol'den (0,53 g/cm³) %0,1 mol'e (0,58 g cm⁻³) artmasıyla %9 artmıştır. Numuneler 1000 °C'de ısıtılma tabi tutulduğunda ise 0,60 g/cm³ olmaktadır [50].

Huang ve arkadaşlarının atmosferik şartlarda kurutma yöntemiyle TMMOS ile modifikasyon yapılan hidrofobik yapıdaki alümina aerojel sentezi üzerine çalışmışlardır. ASB, Al öncülü olarak kullanılmıştır. Alümina aerogelin gözenek boyutu ortalama 2,15 nm, yoğunluk değeri ise 0,17 g/cm³ olarak tespit edilmiştir [24].

Koçer'in yaptığı bir çalışmada alümina eloksal atıktan üretilen aerojel tozunun yoğunluk değerinin 0,266 g/cm³, ikincil alüminyum cürufu kullanımıyla sentezlenen tozların yoğunluklarının sırası ile 0,947 g/cm³ ve 0,997 g/cm³, şamot tuğla harcından üretilen tozların yoğunlukları 0,412 ve 0,312 g/cm³, seydişehir alüminası değerlendirilerek sentezlenen numunelerin yoğunlukları 0,409 ve 0,283 g/cm³ ve atık pota tozu kullanılarak üretilen numunelerin yoğunluk değerlerinin ise 0,230 g/cm³ ve 0,225 g/cm³ olduğu görülmüştür [14].

Hrubesh ve diğerlerinin monolitik alümina aerojel sentezledikleri bir makalede, ASB kullanılmış olup; süper kritik kurutucu ile kurutulan alümina aerogelin yoğunluğunun 0,037 g/cm³ olduğu görülmüştür [20]. Carroll ve arkadaşlarının AIP kullanarak süper kritik kurutma yöntemiyle sentezledikleri alümina aerojellerin yoğunluklarının 0,025-0,079 g/cm³ arasında değiştiği görülmüştür [103]. Xu ve arkadaşlarının alümina aerojel sentezi için atmosferik kurutma şartları ve başlangıç öncülü Al(NO₃)₃(H₂O)₉ tercih edilmiş olup; TEOS/alkol oranının etkisi incelenmiştir. Üretilen aerojel numunesinin yoğunluğu 0,35 g/cm³ olarak tespit edilmiştir [107].

Ji ve arkadaşlarının sol-jel yöntemi kullanarak alüminayla zenginleştirilmiş bir Al₂O₃-SiO₂ aerogeli ürettikleri çalışmada öncül olarak ucuz bir inorganik alüminyum tuzu

$\text{Al}(\text{H}_2\text{O})_9(\text{NO}_3)_3$ ve çerçeve takviye maddesi olarak tetraetoksisilan (TEOS) kullanılmıştır. Si/Al mol oranı 0 olan numunenin yoğunluğu 1,3 iken 0,5 olanın 0,3, 1 olanın 0,35 ve 3 olanın 0,5 g/cm^3 olmuştur [110]

Liu ve arkadaşlarının matris olarak farklı alümina/silika molar oranlarına (3:2, 3:1 ve 3:0) sahip elektrospun nanolifler kullanılarak yaptıkları çalışmada jel döküm ve dondurarak kurutma yöntemleriyle müllit bazlı nano lifli aerjelleri üretilmiştir. Al/Si mol oranı 3:2 olan numunenin yoğunluğu 47,67 mg/cm^3 iken 3:1 olanın 48,89, 3:0 olanın 47,16 mg/cm^3 olmuştur [84].

Ma ve arkadaşlarının yaptığı çalışmada, TEOS-VTES-böhmit sistemi için 1000 °C'ye kadar yoğunlukta neredeyse hiç değişiklik gözlenmezken; 1200 °C'de ~2 kat artış görülmüştür. Genel olarak alüminyum içeriğinin artmasıyla ve sıcaklığın artmasıyla kütle yoğunluk değerlerinde bir artış gözlenmiştir [118].

Himmel ve ark. $0.7\text{SiO}_2-0.3\text{Al}_2\text{O}_3$ aerjelleri 900 °C'ye kadar ısıtıldığında %25'lik doğrusal bir büzülme gözlemlenmiştir. Bu nedenle, daha yüksek miktarda alümina fazının eklenmesinin, yüksek kütle yoğunluğundan dolayı, daha düşük doğrusal büzülmeye yol açtığı görülmektedir [49].

4.2.6. Termal iletkenlik analizi

Sentezlenen alümina-silika esaslı aerjel tozlarının termal iletkenlik değerlerinin incelenmesi üretim verimliliği için önemli bir parametredir. Alümina-silika aerjellerin termal yalıtkanlık özelliği oldukça iyi olup ve bu çalışmayla hammadde ve atıklardan sentezlenen katma değeri daha yüksek yalıtım malzemeleri olarak kullanılabilir alümina-silika esaslı kompozit aerjel elde edilmeye çalışılmaktadır. Aerjeller, yapılarındaki hava içeren gözenekler sebebiyle oldukça iyi yalıtkan özelliğe sahip malzemelerdendir. Dolayısıyla gözeneklerinin nano boyutlarda ve fazla sayıda oluşu, havaya kıyasla daha düşük termal iletkenlik katsayılarında olmalarına sebep olmaktadır. Termal iletkenlik analizinin yapılabilmesi için belli miktarda toz gerekmektedir olup ölçülecek tozların bir kaba konulması gerekmektedir. Kaba yerleştirilmesinden sonra 3,189 mm yarıçaplı TPS sensörü (birkaç eşmerkezli daireye sarılmış ve her iki tarafı da iyi kimyasal dirence sahip ince bir polimerle kaplanmış bir şerit) test edilecek numune malzemenin iki parçası arasına yerleştirilir Bu sensör Eşmerkezli daireler çift sarmal şeklinde yapılmıştır, böylece akım bir uçtan diğer uca iletilebilir. Bu sensör hem numunenin sıcaklığını arttırmak için bir ısı kaynağı hem de

zamana bağılı sıcaklık artışını kaydetmek için bir “direnç termometresi” görevi de görmektedir [153]. Ortam sıcaklığı ölçülerek uygun veriler bilgisayara girilmektedir. Ölçüm süresi 20 sn olarak ayarlanarak bu süre boyunca 200 direnç veri noktası alınır ve malzemenin üzerine sensörlerin temas ettirilmesiyle sağlanan enerjiyle ilişkili olarak malzemedeki sıcaklık değişimi ölçülür; sıcaklık ve zaman arasında ilişki kurulur ve böylelikle termal iletkenlik katsayısı hesaplanmaktadır. Deneyleerde, sensörün başlangıçtaki termal kütle etkisi nedeniyle, genellikle ilk birkaç saniye boyunca kaydedilen verileri göz ardı etmek gerekir. Alümina ve silika öncülü olarak değerlendirilen atık ve hammaddelerden sol-jel tekniğiyle ve atmosferik koşullarda kurutularak üretilen alümina-silika esaslı aerojel tozlarının termal iletkenlik katsayıları Tablo 4.12’de görülmektedir.

Tablo 4.12. Sentezlenen alümina-silika esaslı aerojel tozlarının termal iletkenlik katsayıları.

Numune Kodu	Termal İletkenlik Katsayısı (W/mK)	
	1.yıkama	2.yıkama
N2	0,0929	0,0697
N3	0,0920	0,0694
N4	0,0608	0,0580
N9	0,0950	0,0778
N10	0,0723	0,0602

25°C’de yapılan termal iletkenlik analizlerinde şamot tuğlası ve diatomitten üretilen N4 kodundaki toza ait termal iletkenlik katsayısı 0,0608 W/mK olarak ölçülmüş olup üretilen numuneler arasında en başarılı termal iletkenlik katsayısına ve bölüm 4.2.5’te görülen en düşük yoğunluğa (0,176 g/cm³) sahip olduğu bu sayede ısı yalıtımında potansiyel bir yalıtım malzemesi olarak kullanılabileceği söylenebilmektedir. Şamot tuğlasının çözeltiliye alınmadan önceki termal iletkenlik katsayısı 0,1874 W/mK, diatomitin ise 0,0687 W/mK olarak ölçülmüş olup kompozit aerojel tozunda şamot tuğlasına göre 2,7 kat gerileme görülmüş ve iki değerden de daha düşük bir değer elde edilmiştir. Yakın bir değer eloksal atık ve zeolitten üretilen N10 kodlu aerojel tozunda gözlenmiş olup 0,0723 W/mK değeri ölçülmüş olup tüm numuneler arasında en düşük 2. yoğunluk değeri (0,2465 g/cm³) N10 kodlu aerojel tozunda görülmüştür. Alüminyum eloksal atığının termal iletkenlik katsayı değerinin 0,8 W/mK, zeolitin ise

0,1188 W/mK olduğu görülmüş ve üretim akış şemasına uygun yapılan üretim sonrasında elde edilen toz; eloksal atığın termal iletkenlik değerine göre yaklaşık 11 kat, zeolite göre ise yaklaşık 1,6 kat gerilediği belirlenmiştir. Şamot tuğlasının başlangıçtaki termal iletkenliği 0,1874 W/mK ölçülmüş olup; N2 kodlu aerojel tozunun termal iletkenliği eloksal atığa göre yaklaşık 2 kat gerilemiş olup 0,0929 W/mK bulunmuştur. Benzer şekilde N3 kodlu aerojel tozunun termal iletkenliğinin 0,0920 olduğu görülmüştür. Elokسال atık ve diatomitten üretilen N9 kodlu aerojel tozunda termal iletkenliğin diğerlerine göre yüksek çıkmış olup bu durum aerojel tozunun yoğunluğu ($0,3646 \text{ g/cm}^3$) ve Şekil 4.4'te görüldüğü üzere üretilen numunelerdeki en yüksek Na (ağ. %12,88) oranına sahip olmasıyla da ilişkilendirilebilir.

Numunelere 2. yıkama işleminin yapılması ve etüvde kurutulmasının ardından yapılan termal iletkenlikler N2, N3, N4, N9 ve N10 için sırasıyla 0,0697, 0,0694, 0,058, 0,0778 ve 0,0602 W/mK olmuştur. Yıkama işleminden sonra tüm numunelerin termal iletkenlik katsayılarında ciddi miktarda düşüş görülmüştür. Liu ve arkadaşları yaptıkları çalışmada [84] numunenin büzülme faktörünün numunenin gözenekliliğinin azalmasına neden olacağı için termal iletkenliğin de yükselişine sebep olacağını belirtmişlerdir. Şekil 4.2'deki makro görüntülerden de görüleceği üzere en fazla büzülmeye sahip N3 kodlu numunenin termal iletkenliğinin başlangıçta yüksek oluşu yapısındaki tuzların yanında bünyenin büzülme ve çatlaması sebebine de bağlanabilir. Üretim sonucu toz miktarının yetersizliği sebebiyle N1, N5-N8 ve N11'den termal iletkenlik değerleri elde edilememiştir. Elde edilen bu değerlerin literatürdeki çalışmalarla kıyaslandığında başarılı sayılabilecek bir ölçütte olduğu görülmektedir.

Wu ve arkadaşlarının inorganik tuz kullanarak farklı alümina/silika (Al/Si) molar oranlarına sahip $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ kompozit aerojellerin sentezini yaptıkları bir çalışmada, müllit elyaf mat takviyeli aerojel kompozitlerin oda sıcaklığındaki termal iletkenlikleri, sırasıyla 2,3 ve 8 Al/Si molar oranıyla 0,023, 0,029 ve 0,025 $\text{W}\cdot\text{m}^{-1} \text{K}^{-1}$ şeklinde bulunmuştur [46].

Yu ve diğerlerinin yüksek termal stabiliteye ve mekanik özelliklere sahip SiO_2 biriktirilmiş $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ kompozit aerojel sentezini araştırdıkları bir çalışmada alüminyum klorür heksahidrat ($\text{AlCl}_3\cdot 6\text{H}_2\text{O}$) ve TEOS başlangıç malzemesi olarak kullanılmıştır. Zirkonya fibrofelt/alümina-silika aerojel, zirkonya fibrofelt/silika katkılı alümina-silika aerojel, kuvars fibrofelt/alümina silika aerojel ve kuvars

fibrofelt/silika katkılı alümina-silika aerogel'in termal iletkenliği oda sıcaklığında sırasıyla 0,0275, 0,0277, 0,0291 ve 0,0295 W/m·K'dir. 800 ve 1000 °C ısıtım işlem sonrasında ZF/Si-ASA ve QF/Si-ASA'nın ısıtım iletkenlikleri ZF/ASA ve QF/ASA'ya göre daha düşük olmuştur [120].

Ghica ve arkadaşlarının yaptıkları kevlar hamuruyla güçlendirilmiş alümina-silika aerogel kompozit üretimi çalışmasında silika öncülleri olarak TEOS ve VTMS, alümina öncülleri olarak ATSB ve AlCl₃, kompozitlerin sililasyonu için ise HMDZ kullanılmıştır. Çalışmada AlCl₃ içeriğinin artmasıyla birlikte gözenekliliğin azalmasına bağlı olarak ısıtım iletkenlik değerlerinin de artmış olduğu görüldü. En düşük termal iletkenlik değeri alüminyum bulunmadığında elde edilmiş olup 28,2 mW/mK (0,0282W/mK)'dir. VTMS öncülünün eklenmesi saf silika sistemi için termal iletkenlik değerlerini 32,9 mWm⁻¹ K⁻¹'e (0,0239 W/mK) kadar artırırken, %5 mol içeren alümina-silika sistemlerinde 31,9'dan 28,2 mWm⁻¹ K⁻¹'e düşüş elde edilmiştir. Etilendiamin ile elde edilen alümina-silika aerojeller, NH₄OH ile elde edilenlere kıyasla daha yüksek termal iletkenlik değerleri sergilemiştir. Isıtım işlem sonrası, termal iletkenlik değerlerinin 54 mWm⁻¹ K⁻¹'e (0,054 W/mK) kadar arttığı görülmüştür. Isıtım işleminden sonra ısıtım iletkenliğinin artması büyük olasılıkla gözenek boyutlarındaki artıştan ve yapısal birimlerin büyümesinden kaynaklanmaktadır, çünkü büzülmedeki artışı, bu numuneler ile karşılaştırıldığında kütle yoğunluğundaki bir artış takip etmemektedir [59].

Liu ve arkadaşlarının bir çalışmasında, matris olarak farklı alümina/silika molar oranlarına (3:2, 3:1 ve 3:0) sahip elektrospun nanolifler kullanılarak jel döküm ve dondurarak kurutma yöntemleriyle müllit bazlı nano lifli aerojeller üretilmiştir. Tüm müllit bazlı nano lifli aerojeller benzer çok düzeyli gözenek yapısı gösterdiği görülmüş olup; 0,5-10 µm boyutundaki küçük gözenekler nano liflerin üst üste binmesiyle oluşmuş ve aerogelin temel gözenekli yapısını oluştururken, 10-100 µm boyutundaki büyük gözenekler ise buz kristalinin süblimleşmesiyle oluşmuştur. Bu çok düzeyli gözenek yapısı, sinterleme sıcaklığı 1400 °C kadar yüksek olmasına rağmen, müllit bazlı nano lifli aerojellerin ultra düşük yoğunluk (34,64–48,89 mg/cm³) ve düşük termal iletkenlik (0,03274–0,04317 W/mK) göstermesini sağlamıştır. Numunenin termal iletkenliği bir Hot Disk TPS2500s cihazı ile ölçülmüştür. Müllit bazlı nano lifli aerojeller, oda sıcaklığındaki termal iletkenlik esas olarak katı içeriğin (seramik lifleri) ve gaz içeriğinin (gözenekler) iletimi ile belirlenmiştir. Gaz fazının ısıtım iletkenliği katı

fazıncından çok daha düşük olduğundan, numunenin gaz içeriği (gözeneklilik) numunenin ısı iletkenliğini etkileyen ana faktör olmuştur. Sinterleme sıcaklığı 1000 °C'den 1400 °C'ye arttırıldığında numunenin büzülmesi numunenin gözenekliliğinin azalmasına neden olduğu için ısı iletkenlik artmıştır. Müllit bazlı nano lifli aerojelin termal iletkenliğinin, esas olarak yüksek sıcaklıkta gazın artan termal radyasyonuna bağılı olarak test sıcaklığının artmasıyla arttığı görülmüştür. Test sıcaklığı 1000 °C'ye yükseldiğinde aerojelin termal iletkenliği oldukça düşüktü (yaklaşık 0,07341 W/mK). 1400 °C'de sinterlemeden sonra 3:1 alümina/silika molar oranına sahip eğrilmiş fiberler kullanılarak üretilen müllit bazlı fiberli aerojelin, ultra düşük yoğunluk (47,41 mg/cm³) sergilediği görülmüştür. Yüksek silika içeriğine sahip müllit bazlı kompozit, düşük bir termal iletkenlik gösterirken, yüksek alümina içeriğine sahip olan, mükemmel bir yüksek sıcaklık stabilitesi ve yüksek mukavemet sergilemiştir. Kullanılan elektrospun nanoliflerin alümina/silika mol oranının artmasıyla aerojeldeki alümina içeriği artmıştır. Numune, geleneksel seramik elyaf tuğlanın yerine farklı termal koruma sistemlerinde yüksek sıcaklık yalıtım malzemeleri olarak kullanılabilir; bu, çeşitli endüstriyel fırınların ve hipersonik araçların termal koruma sisteminin ağırlığını ve hacmini önemli ölçüde azaltabilir [84].

Hrubesh ve arkadaşlarının yüksek gözenekli alümina aerojelleri ürettikleri bir çalışmada, alümina aerojellerin termal iletkenlikleri 30, 400 ve 800 °C'lerde sırasıyla; 0,029, 0,058 ve 0,098 W/mK olarak tespit edilmiştir. Bu sonuçlar silika aerojellerle karşılaştırıldığında silika aerojellerin yüksek yüzey alanlarına rağmen daha düşük değerlerde oldukları gözlemlenmiştir [20].

Yang ve arkadaşları, kitosan polisakaritinin polimerizasyonu ve kovalent etkileşimine dayalı olarak kitosan/inorganik tuzları ile sol-jel stratejisi kullanarak monolitik kitosan/alümina-silika (CAS) kompozit aerojel sentezlemişlerdir. HAc içeriği 0,3 mL, 0,6 mL, 0,9 mL ve 1,2 mL olan örnekler sırasıyla CAS0,3, CAS0,6, CAS0,9 ve CAS1,2 olarak adlandırılmıştır. Kitosan kaynaklı Al₂O₃-SiO₂ aerojelleri, 500 °C'de 2 saatlik ısı ışıleme süresinden sonra, sırasıyla 0,3 mL HAc içeriğinde 0,116 W/m·K, 0,6 ve 0,9 mL miktarlarında 0,117 W/m.K olacak şekilde farklı HAc içeriklerinde benzer termal iletkenlik gösterdiği görülmüştür [23].

Wu ve arkadaşlarının silika aerojellerin termal stabilitesini arttırmak amacıyla alümina katkılı silika aerojelleri araştırdıkları bir çalışmada Al/(Al+Si) oranı 4 olan numune en düşük termal iletkenliğe (0,0269 W/m·K) sahip olduğu görülmüştür [170].

Yu ve arkadaşlarının yaptığı başka bir çalışmada fiber takviyeli $Al_2O_3-SiO_2$ aerojellerin termal iletkenliği, fiber içeriğine bağlı olarak 0,0403 W/mK ila 0,0545 W/mK aralığında değiştiği görülmüştür [167].

Liu ve arkadaşlarının alümina aerojelin özelliklerini geliştirmek için yaptıkları çalışmada, müllit elyaf/alümina kompozit aerjel elde etmek amacıyla müllit elyaf, alüminyum hidroksit soluna eklenmiştir. Çalışma kapsamında kompozit aerojelin yoğunluğu, mikro yapısı, bükülme mukavemeti ve ısıl iletkenliği araştırılmıştır. Müllit elyafın eklenmesinin aerojelin yoğunluğunu ve bükülme mukavemetini artırdığını, gözenek hacmi ve spesifik yüzey alanını azalttığı ve aynı zamanda ısı yalıtım performansını zayıflatabildiğini görülmüştür. Müllit elyaf miktarının ağırlıkça %0,5'ten %2'ye artırılmasıyla müllit elyaf/alümina kompozit aerojeller tamamen farklı performans özellikleri sergilemiştir. Ağırlıkça %0,5 müllit fiber içeren kompozit aerojelin termal iletkenliği ve bükülme mukavemeti sırasıyla 0,03341 W/(m·K) ve 1,08 MPa'dır bu da ısı yalıtım performansının diğer kompozit aerojellerden üstün olduğunu göstermiştir. Çalışmada farklı miktarlarda müllit lif içeren kompozit aerojellerin 0,02158-0,21758 W/(m·K) arasında düşük termal iletkenlik sergilediği görülmüştür. Müllit lif içeriği arttıkça kompozit aerojellerin termal iletkenliği, müllit lif miktarı arttıkça doğrusal olarak artmıştır. Isı yalıtımı uygulamaları için müllit lif içeriği ne kadar az olursa kompozit aerojelin ısı yalıtım performansının o kadar iyi olacağı ve kompozit aerojellerin ısı transferine yardımcı olacağı görülmüştür [108].

5. GENEL SONUÇ VE ÖNERİLER

5.1. Genel Sonuçlar

İncelenen bu tez çalışması, doğal hammadde kaynakları ve çevreye zararı olan alüminyum eloksal atığın değerlendirilerek, sol-jel tekniğiyle alümina-silika esaslı aerojel tozlarının sentezini ve üretilen bu tozların karakterizasyonlarını içermektedir. Çalışmada alümina-silika esaslı aerojel üretmek için silika kaynakları perlit, diatomit, zeolit ve vollastonit; alümina kaynakları ise şamot tuğla harcı ve eloksal atık olmuştur. Analizlerden elde edilen genel sonuçlar ve yorumlar aşağıdaki gibidir:

1. Mevcut çalışmada farklı alümina ve silika içeren başlangıç malzemeleri (şamot tuğlası, eloksal atık, perlit, diatomit, zeolit ve vollastonit) 2:1 ve 1:1 miktarlarında kullanılarak farklı Al/Si oranlarında ve atmosferik koşullarda kurutmadan sonra farklı miktarlarda elde edilmiş olup, Üretilen tüm aerojel tozları için doğal hammadde kaynakları ve atıklar kullanıldığı için hammadde maliyeti minimuma indirilmiştir. Hammaddeler içerisinde bulunan alümina veya silika yüzdesinin, belirlenen parametrelerle alümina-silika esaslı aerojel toz üretimi için uygun olduğu belirtilebilir. Üretilen alümina-silika esaslı aerojel toz miktarlarının farklı olma sebebi, kullanılan başlangıçtaki malzemelere ve üretimdeki parametrelere (değişkenlere) bağlı değişen çözeltilerin jelleşebilme verimidir.

2. Elde edilen aerojel tozlarının SEM ve FESEM mikroyapı görüntüsünde, tane boyutlarının çok düşmesi beraberinde taneler arası aglomerasyonlara sebep olduğu görülmüştür. Alümina-silika esaslı aerojel tozlarının, homojen dağılımlı, 3 boyutlu bir ağ yapısı sayesinde oldukça düşük yoğunluklu, toz tane boyutunun nano seviyede olduğu, gözenekli ve sünger gibi olan bir mikroyapıya sahip oldukları yapılan analizler sonucunda tespit edilmiştir. N1 kodlu aerojel tozu küçük taneli tozlardan oluşurken, N2 küçük tane boyutlu tozların yanında iri küresel tanelerin de yapıda bulunduğu gözlenmiştir. N3 büyük tane boyutlu ve karma toz tane yapısına sahipken, N4 daha küçük boyutlu tanelerden oluşmaktadır. Burada da tam tersi bir etki görülmüş olup; derişim yükseltildiğinde küçük tane boyutlu, üniform yapıda ve aglomere olmuş taneler görülmüş olup literatürdeki bir çalışmaya benzer olarak düşük derişimdeki baz-

asit katalizörü ile üretilen aerojel tozlarının büyük parçacık boyutuna sahip olduğu çalışma ile uyumludur. N5, N9 ve N10 kodlu numuneler küçük tane boyutuna sahipken diğer numuneler geniş tane boyutu aralığına ve karma tane yapısına sahip olup iri ve küçük taneleri yapıda barındırmaktadır. Yapılan EDS analizlerinde, atmosferik koşullarda kurutulmuş aerojellerden üretilmiş alümina-silika esaslı tozların yapısında Si, Al ve O elementlerinin hakim olduğu görülmektedir. Silika öncülü olarak diatomitin kullanıldığı N3 ve N4 kodlu aerojel tozlarında silika miktarı alümina oranına göre çok yüksek olmuştur. Bunun sebebi diatomit yapısının jelleşme kabiliyetinin daha yüksek olduğundan kaynaklı olduğu düşünülmekte olup diatomit ile üretilen tozlarda (N9 gibi) benzer baskın silika etkisi görülmüştür. Aerojel üretiminde çözelti oluşturma esnasında kullanılan NaOH ve HCl ilavelerinin yapıda bir miktar kaldığı ve yıkamaların artırılması gerektiği EDS analizlerinde görülmektedir. Sonuçlar analiz edildiğinde ve literatür ile kıyaslandığında üretilen tozların beklenen tane boyut aralığında ve gözenekli yapılarda oldukları görülmüştür.

3. FTIR analiziyle Si-O-Si ve Si-O-Al piklerinin, gözenekli yapıdan dolayı meydana gelen su adsorpsiyonu kaynaklı -OH pikleri ve bağlarının gerilmelerinden meydana gelmiş pikler tespit edilmiştir. Üretilen aerojel tozlarının spektrumlarında Si-O-Al bağlarının titreşimiyle sonucu oluşan pikler, yapıda Al-O ve Si-O-Si bağlarının da mevcut oluşunu göstermektedir.

4. XRD tayiniyle alümina-silika esaslı aerojel tozlarının literatürdeki XRD sonuçlarına paralel sonuçlar gösterdiği ve özellikle çalışmalarda en sık rastlanan amorf yapının temsili olan bombeli ve geniş SiO₂ pikleri de görülmüştür. Ayrıca yapı içerisinde baz/asit hacminin artması (N1, N3 ve N7 için) tuz (NaCl) oluşumunu doğrudan etkilediği belirtilebilir ve EDS sonuçları ile de bu oranın yüksek çıktığı görülmüştür. Üretilen alümina-silika esaslı aerojel tozlarının faz analizlerinde amorf yapıyı temsil eden SiO₂ piklerinin yanı sıra yetersiz yıkama işlemlerinden dolayı NaCl, müllit, böhmüt, bayerit, alüminyum hidroksit ve gipsit ihtiva ettiği görülmüştür.

5. Alümina-silika esaslı aerojel tozu sentezinde doğal hammaddeler ve atık malzemeler kullanılarak bu kullanılan malzemelerin bertarafı sağlanarak, çevreye sebep olacakları zarar durumunun büyük bir miktarda önüne geçilebileceği ve birçok benzersiz özelliğe sahip olan aerojellere çevirilebilecekleri ispatlanmıştır.

6. 6 farklı hammadde kullanımı ile sentezlenen alümina-silika esaslı aerojel tozlarına uygulanan analizler doğrultusunda eşsiz özellikleri sebebiyle pek çok sektörde kullanıma sahip olabilecekleri düşünülmektedir. Daha düşük maliyette üretilebilecek olmalarıyla; inşaat, yalıtım, tekstil, uzay ve havacılık gibi pek çok yerde aerojel tercih edilmesinde artma sağlanacak ve buna bağlı olarak da enerji yalıtım maliyetleri de azalacaktır.

7. BET yüzey alan verileri incelendiğinde; değerler 13,36-248,35 m²/g arasında değişmektedir. BET yüzey alanı en yüksek olan 248,35 m²/g değeriyle N2 koduna sahip perlit-şamot tuğlası öncüllerinden üretilen alümina-silika aerojel tozunda, en düşük sonuç 13,36 m²/g ile N4 kodlu şamot tuğlası-diatomit öncüllerinden elde edilen alümina-silika aerojel tozunda görülmüştür. Langmuir yüzey alanı verileri ise 20,77-383,665 m²/g aralığında değişirken, N2 koduna sahip toz 383,665 m²/g olarak en yüksek değerde, N4 koduna sahip toz ise 20,77 m²/g olarak en az yüzey alanı değerinde olduğu görülmüştür. Gözenek çapları 18,783-20,01 Å aralığında olup en yüksek N8 kodlu numunede görülürken, en düşük N10 kodlu numunede, gözenek genişliği 20,492-20,968 Å aralığında olup en yüksek N8 kodlu numunede, en düşük ise N11 kodlu numunede görülmektedir, Ortalama nano partikül boyutu sonuçları 241,598-4492,363 Å aralığında olup; en fazla gözenek boyutu değeri N4 kodundaki şamot tuğlası-diatomitten üretilen tozda ve en düşük değer ise N2 kodundaki şamot tuğlası-perlitten sentezlenen alümina-silika aerojel tozunda görülmüştür. Gözenek hacimlerinin 0,006416-0,12199 cm³/g aralığında olduğu görülmüştür. 0,12199 cm³/g en büyük gözenek hacmi değeri olup; şamot tuğlası-perlit kullanılarak elde edilen N2 koduna sahip numunede görülürken, en düşük gözenek hacmi 0,006416 cm³/g değerinde şamot tuğlası-diatomitten öncülleri kullanılarak elde edilen N4 kodlu numunede görülmüştür. Partikül boyutu verilerinin, FESEM analizlerinde tespit edilenlerle uyduğu ve tozların beklenen nano boyut aralığına sahip olduğu gözlemlenmiştir. Üretilen aerojel tozlarının partikül (tane) boyutları, gözenek genişlikleri ve yüzey alanları literatürdeki değerler ile kıyaslandığında, kabul edilebilir sınırlar arasında olduğu görülmüştür. Yapılan karakterizasyon analizlerinin literatürdekilere benzer sonuçlarda olduğu görülmüştür.

8. Sentezlenen aerojel tozlarının yoğunluğu, silika oranı arttıkça düşmüş olup alümina içeriği fazlaştıkça artmıştır. Ayrıca içerdikleri Na oranı da önemli bir parametre olup yüksek Na içeriği ile yoğunluğun yükseldiği görülmüştür. Termal iletkenlik analizinin

yapılabilmesi için yeterli miktarda toz bulunan aerojel tozlarına (N2,N3,N4,N9 ve N10 için) yapılan ikinci yıkama işlemi sonrasında yoğunluklar da tekrar ölçülmüş ve sodyum miktarının azalmasına bağlı olarak yoğunluk değerlerinde de azalma gözlenmiştir. Farklı doğal hammadde ve atıklar kullanılarak sentezlenen alümina-silika esaslı aerojel tozlarının, termal iletkenlik katsayıları belirlenmiştir. Yoğunluk ve Na oranı az olan aerojel tozlarının termal iletkenlik katsayısının da yüksek olanlara göre daha düşük değerde olduğu görülmüştür. Numunelere yeniden bir yıkama işlemi yapılarak (2. yıkama) termal iletkenlik katsayılarının daha da düştüğü görülmüştür. Bu değerler literatür ile karşılaştırıldığında başarılı sonuçlar elde edildiği tespit edilmiştir.

5.2. Öneriler

Alümina-silika arojeller, geniş yüzey alanı, yüksek poroziteli yapısı, düşük yoğunluğu ve termal iletkenlik katsayısı gibi çeşitli üstün özellikleri sebebiyle birçok alanda kullanım olanağına sahip olup bu alanların genişletilmesi ve sıklığının artması için potansiyel adaylardır. Türkiye’de alümina-silika aerojel sentezinin artırılması ve yaygınlaştırılması ülkenin endüstrisine önemli katkılar sağlayabilir. Bu tez çalışmasında araştırılan doğal hammadde ve atıklardan aerojel tozu sentezlenmesi ile aerojel malzemeler uygun maliyetlere gelebileceğinden yaygın kullanılabilir ve insan hayatına önemli faydalar sağlayabilecektir. Ülkemizde üretim rezervi yüksek olan doğal hammaddelerin ve çeşitli atıkların geri dönüşümünün ve katma değerli ürüne dönüşümünün söz konusu olabilmesi için mevcut çalışmanın geliştirilmesi gerekmektedir. Mevcut tez çalışmasına benzer çalışma yapmayı planlayan araştırmacılar için öneriler aşağıdaki gibidir;

1. Mevcut tez çalışmasında alümina-silika esaslı aerojel tozları başlangıç malzemeleri olarak şamot tuğla harcı, alüminyum eloksal atık, perlit, zeolit, diatomit ve vollastonit kullanılarak alümina ve silikaca zengin sol çözeltileri hazırlanıp birleştirilerek atmosferik koşullarda kurutma uygulanarak sentezlenmiştir. Bu doğal hammadde ve atık kaynaklarının kullanımıyla üretimin hem ekonomik hem de çevre dostu olması sağlanmıştır. Silika ve alümina kaynakları bu çalışmada olduğu gibi çeşitlendirilerek, silika ve alümina oranı daha fazla olan çeşitli atıklar veya doğal hammaddeler de tercih edilebilir.

2. Atmosferik şartlarda yapılan kurutma işlemi, nanoyapı tarafında etkili olan kılcal kuvvetleri azaltarak, mevcut nanoyapının bu kuvvetlere dayanabilme yeteneğini artırma açısından avantaj sağlamaktadır. Bununla beraber tehlikesiz, çevreye zararsız olmasına karşın atmosferik şartlarda sentezlenen aerojel tozlarının yapısında istenmeyen maddeler ve jel yapılarında büzülme tespit edilmiştir. Aerojel üretiminde tercih edilen kurutma yöntemlerinden süper kritik ve dondurarak kurutma koşulları da denenip üretilen tozların özellikleri mevcut çalışma ile karşılaştırılabilir.
3. Yapılan çalışmada NaOH baz çözeltilerinde alümina ve silika tozlarına, ısıtıcı karıştırıcı yardımıyla ayrı ayrı 3 saat kadar 120°C'de çözündürme işlemi yapılmıştır. Alümina ve silika öncüllerinin içindeki çözeltilere geçmesi istenen maddelerin verimini yükseltmek (tozların çözeltilere daha fazla oranda dahil olabilmesi) için farklı sıcaklık, süre ve çözücü kimyasal madde (örn. baz katalizörü olarak NH₄OH, asit katalizörü olarak H₂SO₄) kullanılarak yapıda meydana gelen değişimler izlenebilir.
4. Yüksek molaritede ve hacimde baz ve asit çözeltileri denenerek aerojel toz miktarı artırılabilir.
5. Yaşlandırma işlemi süresince nihai çözelti ağzı kapalı durumda oda sıcaklığında 2 hafta bekletilmiştir. Yaşlanma süresi önemli parametrelerinden biri olduğu için bu süre arttırılarak veya azaltılarak bekleme süresinin jel yapısı ve karakterizasyonundaki etkisi incelenebilir.
6. Sentezlenen alümina-silika esaslı aerojel tozlarına atmosferik koşullarda kurutma işlemi; etüv içerisinde 120°C'de 2 gün bekletilerek yapılmıştır. Etüvde jelin kuruma (tutulma) süresi ve sıcaklığının değişimi üzerine çalışılarak aerojel tozlarının karakteristiklerinde farklılıklar sağlanabilir.
7. Atmosferik şartlarda kurutulan aerojellerden şamot tuğlası ve diatomit öncülleriyle 1 M baz/asit koşuluyla üretilen N3 kodlu numunenin kurutma esnasında diğerlerine göre daha fazla büzüldüğü ve bir miktar çatladığı görülmüştür. Yüksek çözücü hacmi sebebiyle jelin bünyesine daha fazla çözücü alması dolayısıyla yapılan üretim ıslak jeldeki su içeriğinin artmasına sebep olarak kurutma esnasında matrsten daha çok çözücü uzaklaşması gerekeceğinden jel kararsızlığına sebep olup bünyeyi küçülmüştür. Bu durum literatürdeki benzer çalışmalarla da tutarlı olmuştur. Dolayısıyla kurutma sürecindeki parametrelerde değişiklik yapılarak (hacim azaltma, jel

matrisindeki çapraz bağları oluşturmak ve güçlendirmek için çeşitli sisilasyon ajanlarının kullanılması gibi) bu jel kararsızlığı yönetilebilir.

8. Kullanılan yöntemin endüstriyel boyutlara taşınabilmesi için deney parametrelerinin ölçeği yükseltilerek daha büyük boyutlarda denemeler yapılabilir.
9. Bu çalışmada 1 kere saf su değişimi (1 hafta bekletilerek) jel miktarı fazla olan aerojel tozlarında yetersiz görülmüş olup, yıkama miktarı artırılarak yapıdaki tuz kalıntıları uzaklaştırabilir.
10. Alümina veya silika aerojellerin farklı bileşimlerdeki sol çözeltileri farklı bileşimdeki kaynakların sol çözeltileri ile birleştirilip kompozit aerojeller sentezlenebilir ve kimyasal özellikleri hem alümina hem de silika aerojellerle kıyaslanabilir.
11. Sol çözeltilerinin hazırlanması esnasında, başlangıç malzemelerinin çözeltide daha iyi çözünmesini sağlamak için üretim sürecinden önce tozlara daha küçük boyutlarda eleme işlemiyle kararsız duruma gelmeleri sağlanarak reaksiyona katılma eğilimleri artırılabilir.
12. Jelin yaşlandırılması sırasında iskelet yapıyı güçlendirmek ve bağları daha sağlamlaştırmak için etanol kullanılmıştır. İlave olarak farklı modifiye edici kimyasallar (n-heptan, HMDZ, TEOS, TMCS gibi) kullanılarak yüzey modifikasyonu sağlanarak karakterizasyon testleri değerlendirilebilir.
13. Aerojellerin mekanik özellikleri üzerine çalışmalar yapılabilir.
14. Elde edilen aerojel tozlarına mikroyapı, bağ, yoğunluk, faz, yüzey alanı, gözenek hacmi ve boyutu, termal iletkenlik gibi birçok analiz yapılmıştır. Denenen bazı numunelerde yeterli toz elde edilememesi sebebiyle aerojel tozlarından bazılarında tüm analizler yapılamamıştır. Örneğin termal iletkenlik katsayılarının tespit edilemediği numuneler için (N1, N5, N6, N7, N8 ve N11) termal iletkenlik katsayıları ilave olarak tespit edilebilir. Ayrıca TEM cihazıyla da incelenerek sentezlenen aerojel tozlarının mikroyapı görüntüleri detaylı şekilde incelenebilir.
15. Düşük ve yüksek sinterleme sıcaklıklarının etkili olduğu sinterleme mekanizmalarının (difüzyon ve viskoz akış) kinetik çalışmaları yapılabilir.
16. Farklı sinterleme sıcaklıklarının malzemelerinin büzülme ve mekanik davranışları üzerindeki etkisi incelenebilir.

KAYNAKLAR

- [1] Fu, T., Tang, J., Chen, K., & Zhang, F. (2016). Scattering and absorption coefficients of silica-doped alumina aerogels. *Applied optics*, 55(4), 705-711. <https://doi.org/10.1364/AO.55.000705>
- [2] Xie, M., Wu, X., Liu, J., & Zhang, K. (2017). In-situ synthesis and textural evolution of the novel carbonaceous SiC/mullite aerogel via polymer-derived ceramics route. *Ceramics International*, 43(13), 9896-9905. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2017.04.175>.
- [3] Hu, W., Li, M., Chen, W., Zhang, N., Li, B., Wang, M., & Zhao, Z. (2016). Preparation of hydrophobic silica aerogel with kaolin dried at ambient pressure. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 501, 83-91. <https://doi.org/10.1016/j.colsurfa.2016.04.059>
- [4] Yao, J., Gao, X., Wu, Y., Zhao, X., & Li, X. (2022). High-temperature resistant ambient pressure-dried aluminum doped silica aerogel from inorganic silicon and aluminum sources. *Ceramics International*, 48(11), 15006-15016. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2022.02.029>
- [5] Almeida, C. M., Ghica, M. E., & Duraes, L. (2020). An overview on alumina-silica-based aerogels. *Advances in Colloid and Interface Science*, 282, 102189. <https://doi.org/10.1016/j.cis.2020.102189>
- [6] Hebalkar, N., Kollipara, K. S., Ananthan, Y., & Sudha, M. K. (2020). Nanoporous aerogels for defense and aerospace applications. *Handbook of Advanced Ceramics and Composites: Defense, Security, Aerospace and Energy Applications*, 121-163. https://doi.org/10.1007/978-3-030-16347-1_5
- [7] Radha, M. A. (2008). *Atık Sularıda Karbon Aerojel ile Ağır Metal Tutunması* [Yüksek lisans tezi]. Gazi Üniversitesi.
- [8] Öz, D. C., Öz, B., & Kaya, N. (2018). Alümina Aerojellerin Fiziksel Özellikleri Üzerine Yaşlandırma ve Kurutma Süresinin Etkisi. *Balıkesir Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Dergisi*, 20(1), 198-211. <https://doi.org/10.25092/baunfbed.348344>
- [9] Kurt, G. (2023, 3 Eylül). En doğru ısı yalıtım malzemesi nedir?. <https://sehatek.com.tr/blog/en-dogru-isi-yalitim-malzemesi-nedir>
- [10] Özlüsoylu, İ. ve İstek, A. (2019, Nisan 24-28). The effect of hybrid resin usage on thermal conductivity in ecological insulation panel production [Sözlü sunum]. In 4th International Conference on Engineering Technology and Applied Sciences, Kiev, Ukraine.
- [11] Arenas, J. P., & Asdrubali, F. (2018). Eco-materials with noise reduction properties. L.M.T. Martinez (Ed.), *Handbook of Ecomaterials* (pp. 3031-3065). Springer International Publishing

- [12] Aegerter, M. A., Leventis, N., & Koebel, M. M. (Eds.). (2011). *Aerogels Handbook*. Springer Science & Business Media
- [13] Özgül, Ö. L. (2023, 4 Eylül). Aerojel. www.olo.com.tr/tr-TR/aerojel/4/0
- [14] Koçer, Ş. Ş. (2019). *Alümina esaslı hammadde ve atıklardan alümina esaslı aerojel tozu üretimi ve karakterizasyonu* [Doktora tezi]. Sakarya Üniversitesi
- [15] Pixels. (2023, 11 Temmuz). Aerojel synthetic ultralight material fleece blanket. <https://pixels.com/featured/aerogel-synthetic-ultralight-material-science-source.html?product=fleece-blanket&blanketType=blanket-coral-50-60> adresinden 5 Eylül 2023 tarihinde alınmıştır.
- [16] Dume, I. (2023, 10 Eylül). Superinsulating aerogel resists mechanical and thermal shocks. <https://physicsworld.com/a/superinsulating-aerogel-resists-mechanical-and-thermal-shocks/>
- [17] Alibaba (2023, 14 Eylül). Silika aerogel powders and particles. https://www.alibaba.com/product-detail/Silica-Aerogel-Powders-and-Particles_62171834488.html
- [18] Du, A., Zhou, B., Zhang, Z., & Shen, J. (2013). A special material or a new state of matter: a review and reconsideration of the aerogel. *Materials*, 6(3), 941–968. <https://doi.org/10.3390/ma6030941>
- [19] Akimov, Y. K. (2003). Fields of application of aerogels. *Instruments and experimental techniques*, 46(3), 287-299. <https://doi.org/10.1023/A:1024401803057>
- [20] Poco, J. F., Satcher Jr, J. H., & Hrubesh, L. W. (2001). Synthesis Of High Porosity, Monolithic Alumina Aerogels. *Journal Of Non-Crystalline Solids*, 285(1-3), 57-63. [https://doi.org/10.1016/S0022-3093\(01\)00432-X](https://doi.org/10.1016/S0022-3093(01)00432-X)
- [21] Karami, D., Bararpour, S. T., Mahinpey, N. (2022). *Highly active sorbents and oxygen carriers supported by calcined alumina aerogel for low-temperature carbon capture and chemical-looping combustion of methane*. U.S. Patent No. US11376560B2.
- [22] Buğdaycı, A. (2023, 16 Eylül). Dünyanın en hafif malzemesi aerojeller. https://www.slideshare.net/cedric_cedric/aerogel-abdurrahma-budayc/
- [23] Yang, Z., Zhu, D., & Li, H. (2020). A chitosan-assisted co-assembly synthetic route to low-shrinkage Al₂O₃-SiO₂ aerogel via ambient pressure drying. *Microporous and Mesoporous Materials*, 293, 109781. <https://doi.org/10.1016/j.micromeso.2019.109781>
- [24] Wu, L., Huang, Y., Wang, Z., Liu, L., & Xu, H. (2010). Fabrication Of Hydrophobic Alumina Aerogel Monoliths By Surface Modification And Ambient Pressure Drying. *Applied Surface Science*, 256(20), 5973-5977. <https://doi.org/10.1016/j.apsusc.2010.03.104>
- [25] Ren, L., Li, X., & Cui, S. (2016). Synthesis Of Monolithic Fe₂O₃-Al₂O₃ Composite Aerogels Via Organic Solvent Sublimation Drying. *Journal Of Nanomaterials*, 2016, 1-6. <https://doi.org/10.1155/2016/8135043>
- [26] Keysar, S., Shter, G. E., de Hazan, Y., Cohen, Y., & Grader, G. S. (1997). Heat treatment of alumina aerogels. *Chemistry of materials*, 9(11), 2464-2467. <https://doi.org/10.1021/cm970208s>

- [27] Bozođlu, D. (2014). *Aerojel Katkılı Polimer Kompozitlerin Hazırlanışı, Karakterizasyonu ve Dielektrik Özelliklerinin İncelenmesi* [Yüksek lisans tezi]. İstanbul Üniversitesi.
- [28] He, S., Huang, D., Bi, H., Li, Z., Yang, H., & Cheng, X. (2015). Synthesis And Characterization Of Silica Aerogels Dried Under Ambient Pressure Bed On Water Glass. *Journal of Non-Crystalline Solids*, 410, 58-64. <https://doi.org/10.1016/j.jnoncrysol.2014.12.011>
- [29] Yılmaz, Y. (2013). *Farklı Başlangıç Maddeleri Kullanılarak Sol-Jel Yöntemiyle Monolitik Silika Aerojel ve Silika Aerojel Sentezi ve Karakterizasyonu* [Yüksek lisans tezi]. Gazi Üniversitesi.
- [30] Liu, Z. H., Ding, Y. D., Wang, F., & Deng, Z. P. (2016). Thermal Insulation Material Based On SiO₂ Aerogel. *Construction And Building Materials*, 122, 548-555. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2016.06.096>
- [31] Shi, M., Tang, C., Yang, X., Zhou, J., Jia, F., Han, Y., & Li, Z. (2017). Superhydrophobic silica aerogels reinforced with polyacrylonitrile fibers for adsorbing oil from water and oil mixtures. *RSC advances*, 7(7), 4039-4045. <https://doi.org/10.1039/C6RA26831E>
- [32] Güler, D. (2009). *Silis Kumu, Feldspat ve tetraetilortosilikattan sol-jel yöntemi ile silika aerojel sentezi ve karakterizasyonu* [Yüksek lisans tezi]. Gazi Üniversitesi.
- [33] Gao, G. M., Liu, D. R., Zou, H. F., Zou, L. C., & Gan, S. C. (2010). Preparation of silica aerogel from oil shale ash by fluidized bed drying. *Powder Technology*, 197(3), 283-287. <https://doi.org/10.1016/j.powtec.2009.10.005>
- [34] Yu, H., Liang, X., Wang, J., Wang, M., & Yang, S. (2015). Preparation and characterization of hydrophobic silica aerogel sphere products by co-precursor method. *Solid State Sciences*, 48, 155-162. <https://doi.org/10.1016/j.solidstatesciences.2015.08.005>
- [35] Dorcheh, A. S., & Abbasi, M. H. (2008). Silica aerogel; synthesis, properties and characterization. *Journal of materials processing technology*, 199(1-3), 10-26. <https://doi.org/10.1016/j.jmatprotec.2007.10.060>
- [36] Bakis, R., Koyuncu, H., & Demirbas, A. (2006). An investigation of waste foundry sand in asphalt concrete mixtures. *Waste Management & Research*, 24(3), 269-274. <https://doi.org/10.1177/0734242X06064822>
- [37] Liu, L., Wang, X., Zhang, Z., Shi, Y., Zhao, Y., Shen, S., Shen, J. (2022). A facile method for fabricating a monolithic mullite fiber-reinforced alumina aerogel with excellent mechanical and thermal properties. *Gels*, 8(6), 380. <https://doi.org/10.3390/gels8060380>
- [38] Amazon. (2023, 16 Eylül). Silica aerogel block. <https://www.amazon.sg/Silica-Aerogel-Block-2-5cm-x1cm/dp/B07SSW383D>
- [39] Öztürk, B. (2012). *Metal Katkılı Karbon Aerojel Üretimi ve Elektrokimyasal Özelliklerinin İncelenmesi* [Yüksek Lisans Tezi] Gazi Üniversitesi
- [40] Liu, H., Sha, W., Cooper, A. T., & Fan, M. (2009). Preparation and characterization of a novel silica aerogel as adsorbent for toxic organic compounds. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 347(1-3), 38-44. <https://doi.org/10.1016/j.colsurfa.2008.11.033>

- [41] Šauša, O., Iskrova, M., Majernik, V., Krištiak, J., Jesenak, K., & Vargova, M. (2008). Nanopores in silica aerogels. *Acta Physica Polonica A*, 113(5), 1517-1522. <https://doi.org/10.12693/APhysPolA.113.1517>
- [42] Topcu, İ. (2022). Sol-Jel Yöntemi ile Üretilen Silika Tabanlı Hidrofobik Aerojellerin Karakterizasyon Özelliklerinin İncelenmesi. *Avrupa Bilim ve Teknoloji Dergisi*, (45), 1-7. <https://doi.org/10.31590/ejosat.1210106>
- [43] Bozbağ, S.E. (2012). *A Fundamental Study On The Synthesis Of Aerogel Supported Bimetallic Nanoparticles Using Supercritical Deposition* [Yüksek Lisans Tezi] Koç Üniversitesi.
- [44] Rutiser C., Komarneni S., Roy R. (1994). Composite aerogels of silica and minerals of different morphologies. *Materials Letters*, 19(5-6), 221-224. [https://doi.org/10.1016/0167-577X\(94\)90160-0](https://doi.org/10.1016/0167-577X(94)90160-0).
- [45] Aravind, P. R., Mukundan, P., Pillai, P. K., & Warriar, K. G. K. (2006). Mesoporous silica–alumina aerogels with high thermal pore stability through hybrid sol–gel route followed by subcritical drying. *Microporous and mesoporous materials*, 96(1-3), 14-20. <https://doi.org/10.1016/j.micromeso.2006.06.014>
- [46] Wu, X., Shao, G., Shen, X., Cui, S., & Wang, L. (2016). Novel Al₂O₃–SiO₂ composite aerogels with high specific surface area at elevated temperatures with different alumina/silica molar ratios prepared by a non-alkoxide sol–gel method. *Rsc Advances*, 6(7), 5611-5620. <https://doi.org/10.1039/C5RA19764C>
- [47] Ling, X., Li, B., Li, M., Hu, W., & Chen, W. (2018). Thermal stability of Al-modified silica aerogels through epoxide-assisted sol–gel route followed by ambient pressure drying. *Journal of Sol-Gel Science and Technology*, 87, 83-94. <https://doi.org/10.1007/s10971-018-4707-x>
- [48] Saliger, R., Heinrich, T., Gleissner, T., & Fricke, J. (1995). Sintering behaviour of alumina-modified silica aerogels. *Journal of non-crystalline solids*, 186, 113-117. [https://doi.org/10.1016/0022-3093\(95\)00080-1](https://doi.org/10.1016/0022-3093(95)00080-1)
- [49] He, F., He, X. D., & Li, Y. (2007). Synthesis and Structural Characterization of SiO₂-Al₂O₃ Xerogels. *Key Engineering Materials*, 336, 2286-2289. <https://doi.org/10.4028/www.scientific.net/KEM.336-338.2286>
- [50] Komarneni, S., Roy, R., Selvaraj, U., Malla, P. B., & Breval, E. (1993). Nanocomposite aerogels: the SiO₂–Al₂O₃ system. *Journal of materials research*, 8(12), 3163-3167. <https://doi.org/10.1557/JMR.1993.3163>
- [51] Peng, F., Jiang, Y., Feng, J., Li, L., Cai, H., & Feng, J. (2020). A facile method to fabricate monolithic alumina–silica aerogels with high surface areas and good mechanical properties. *Journal of the European Ceramic Society*, 40(6), 2480-2488. <https://doi.org/10.1016/j.jeurceramsoc.2020.01.058>
- [52] Yang, J., Wang, Q., Wang, T., & Liang, Y. (2017). Facile one-step precursor-to-aerogel synthesis of silica-doped alumina aerogels with high specific surface area at elevated temperatures. *Journal of Porous Materials*, 24, 889-897. <https://doi.org/10.1007/s10934-016-0328-3>

- [53] Pinto, I., Silvestre, J. D., de Brito, J., & Júlio, M. F. (2020). Environmental impact of the subcritical production of silica aerogels. *Journal of Cleaner Production*, 252, 119696. <https://doi.org/10.1016/j.jclepro.2019.119696>
- [54] Zhu, J., Guo, S., & Li, X. (2015). Facile preparation of a SiO₂-Al₂O₃ aerogel using coal gangue as a raw material via an ambient pressure drying method and its application in organic solvent adsorption. *RSC Advances*, 5(125), 103656-103661. <https://doi.org/10.1039/C5RA20392A>
- [55] Li, J., Lei, Y., Xu, D., Liu, F., Li, J., Sun, A., & Xu, G. (2017). Improved mechanical and thermal insulation properties of monolithic attapulgite nanofiber/silica aerogel composites dried at ambient pressure. *Journal of Sol-Gel Science and Technology*, 82, 702-711. <https://doi.org/10.1007/s10971-017-4359-2>
- [56] Aravind, P. R., Shajesh, P., Smitha, S., Mukundan, P., & Warriar, K. G. (2008). Nonsupercritically Dried Silica-Alumina Aerogels—Effect of Gelation pH. *Journal of the American Ceramic Society*, 91(4), 1326-1328. <https://doi.org/10.1111/j.1551-2916.2007.02252.x>
- [57] Li, H., Chen, Y., Wang, P., Xu, B., Ma, Y., Wen, W., Fang, D. (2018). Porous carbon-bonded carbon fiber composites impregnated with SiO₂-Al₂O₃ aerogel with enhanced thermal insulation and mechanical properties. *Ceramics International*, 44(3), 3484-3487. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2017.11.064>
- [58] Hu, P., Sun, Y., Gao, B., Gong, M., Luo, B., & Fan, J. (2022). Novel monolithic yttria-alumina aerogel with low thermal conductivity made from inorganic precursors. *Ceramics International*, 48(13), 18699-18703. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2022.03.143>
- [59] Ghica, M. E., Almeida, C. M., Rebelo, L. S., Cathoud-Pinheiro, G. C., Costa, B. F., Durães, L. (2022). Novel Kevlar® pulp-reinforced alumina-silica aerogel composites for thermal insulation at high temperature. *Journal of Sol-Gel Science and Technology*, 101(1), 87-102. <https://doi.org/10.1007/s10971-021-05692-x>
- [60] Wu, X., Fan, M., Mclaughlin, J. F., Shen, X., & Tan, G. (2018). A novel low-cost method of silica aerogel fabrication using fly ash and trona ore with ambient pressure drying technique. *Powder Technology*, 323, 310-322. <https://doi.org/10.1016/j.powtec.2017.10.022>
- [61] Balkabak. D. (2009). Karbon Aerojel Üretimi ve Karakterizasyonu [Yüksek lisans tezi]. Gazi Üniversitesi.
- [62] Saquing, C. D., Kang, D., Aindow, M., & Erkey, C. (2005). Investigation of the supercritical deposition of platinum nanoparticles into carbon aerogels. *Microporous and Mesoporous Materials*, 80(1-3), 11-23. <https://doi.org/10.1016/j.micromeso.2004.11.019>
- [63] Xu, F., Xu, J., Xu, H., Lu, Y., Yang, H., Tang, Z., & Wu, D. (2017). Fabrication of novel powdery carbon aerogels with high surface areas for superior energy storage. *Energy storage materials*, 7, 8-16. <https://doi.org/10.1016/j.ensm.2016.11.002>

- [64] Seraji, M. M., Ghafoorian, N. S., Bahramian, A. R., & Alahbakhsh, A. (2015). Preparation and characterization of C/SiO₂/SiC aerogels based on novolac/silica hybrid hyperporous materials. *Journal of Non-Crystalline Solids*, 425, 146-152. <https://doi.org/10.1016/j.jnoncrysol.2015.06.011>
- [65] Pierre, A. C., Pajonk, G. M. (2002). Chemistry of aerogels and their applications. *Chemical reviews*, 102(11), 4243-4266. <https://doi.org/10.1021/cr0101306>
- [66] NASA (2016, 17 Ekim). Polymer cross-linked aerogels (X-aerogels). <https://technology.nasa.gov/patent/LEW-TOPS-20> adresinden 2 Ekim 2023 tarihinde alınmıştır.
- [67] Gelgez (2023, 06 Ekim). Dünyanın en hafif maddesi aerojel nedir? Aerojel nerelerde kullanılıyor?. <https://www.gelgez.net/dunyanin-en-hafif-maddesi-aerojel-nedir-aerojel-nerelerde-kullaniliyor>
- [68] Gronstal, A. (2023, 10 Ekim). GEMS-like objects in stardust samples. <https://astrobiology.nasa.gov/news/gems-like-objects-in-stardust-samples>
- [69] Jelle, B. P., Baetens, R., & Gustavsen, A. (2015). Aerogel Insulation for Building Applications. *The Sol-Gel Handbook*, 1385–1412. doi:10.1002/9783527670819.ch45
- [70] Thapliyal, P. C., & Singh, K. (2014). Aerogels as promising thermal insulating materials: An overview. *J. Mater*, 2014(10). <https://doi.org/10.1155/2014/127049>
- [71] Brunner, S., Koebel, M., ve Wernery, J. (2015, Eylül 9-11). High performance thermal insulation-examples from the Swiss built environment [Sözlü sunum]. Proceedings of International Conference CISBAT 2015 Future Buildings and Districts Sustainability from Nano to Urban Scale, Lausanne, Switzerland.
- [72] Buratti, C., Moretti, E., Belloni, E., & Agosti, F. (2014). Development of innovative aerogel based plasters: preliminary thermal and acoustic performance evaluation. *Sustainability*, 6(9), 5839-5852. <https://doi.org/10.3390/su6095839>
- [73] Beguin, B., Garbowski, E., & Primet, M. (1991). Stabilization of alumina toward thermal sintering by silicon addition. *Journal of catalysis*, 127(2), 595-604. [https://doi.org/10.1016/0021-9517\(91\)90185-7](https://doi.org/10.1016/0021-9517(91)90185-7)
- [74] Horiuchi, T., Osaki, T., Sugiyama, T., Masuda, H., Horio, M., Suzuki, K., Sago, T. (1994). High surface area alumina aerogel at elevated temperatures. *Journal of the Chemical Society, Faraday Transactions*, 90(17), 2573-2578. <https://doi.org/10.1039/FT9949002573>
- [75] Horiuchi, T., Chen, L., Osaki, T., Sugiyama, T., Suzuki, K., Mori, T. (1999). A novel alumina catalyst support with high thermal stability derived from silica-modified alumina aerogel. *Catalysis letters*, 58, 89-92. <https://doi.org/10.1023/A:1019069631852>
- [76] Mizushima, Y., Hori, M. (1995). Alumina-silica aerogel catalysts prepared by two supercritical drying methods for methane combustion. *Journal of materials science*, 30(6), 1551-1555. <https://doi.org/10.1007/BF00375263>

- [77] Wijaya, Y. P., Suh, D. J., Jae, J. (2015). Production of renewable p-xylene from 2, 5-dimethylfuran via Diels–Alder cycloaddition and dehydrative aromatization reactions over silica– alumina aerogel catalysts. *Catalysis Communications*, 70, 12-16. <https://doi.org/10.1016/j.catcom.2015.07.008>
- [78] Obali, Z., Sezgi, N. A., & Doğu, T. (2008). Performance of acidic MCM-like aluminosilicate catalysts in pyrolysis of polypropylene. *Chemical Engineering Communications*, 196(1-2), 116-130.
- [79] Sivri, S., Dilek, C., & Sezgi, N. A. (2018). Synthesis and characterization of aluminum containing silica aerogel catalysts for degradation of PLA. *International Journal of Chemical Reactor Engineering*, 17(5), 20180163. <https://doi.org/10.1515/ijcre-2018-0163>
- [80] Chen, H., Ginzburg, V. V., Yang, J., Yang, Y., Liu, W., Huang, Y., Chen, B. (2016). Thermal conductivity of polymer-based composites: Fundamentals and applications. *Progress in Polymer Science*, 59, 41-85. <https://doi.org/10.1016/j.progpolymsci.2016.03.001>
- [81] Koebel, M., Rigacci, A., Achard, P. (2012). Aerogel-based thermal superinsulation: an overview. *Journal of sol-gel science and technology*, 63, 315-339. <https://doi.org/10.1007/s10971-012-2792-9>
- [82] Linhares, T., de Amorim, M. T. P., & Durães, L. (2019). Silica aerogel composites with embedded fibres: a review on their preparation, properties and applications. *Journal of Materials Chemistry A*, 7(40), 22768-22802. <https://doi.org/10.1039/C9TA04811A>
- [83] Wang, J., Kuhn, J., Lu, X. (1995). Monolithic silica aerogel insulation doped with TiO₂ powder and ceramic fibers. *Journal of non-crystalline solids*, 186, 296-300. [https://doi.org/10.1016/0022-3093\(95\)00068-2](https://doi.org/10.1016/0022-3093(95)00068-2)
- [84] Liu, R., Dong, X., Xie, S., Jia, T., Xue, Y., Liu, J., Guo, A. (2019). Ultralight, thermal insulating, and high-temperature-resistant mullite-based nanofiber aerogels. *Chemical Engineering Journal*, 360, 464-472. <https://doi.org/10.1016/j.cej.2018.12.018>
- [85] Peng, F., Jiang, Y., Feng, J., Cai, H., Feng, J., & Li, L. (2021). Thermally insulating, fiber-reinforced alumina–silica aerogel composites with ultra-low shrinkage up to 1500 C. *Chemical Engineering Journal*, 411, 128402. <https://doi.org/10.1016/j.cej.2021.128402>
- [86] Medina, M., Tapia, J., Pacheco, S., Espinosa, M., & Rodriguez, R. (2010). Adsorption of lead ions in aqueous solution using silica–alumina nanoparticles. *Journal of non-crystalline solids*, 356(6-8), 383-387. <https://doi.org/10.1016/j.jnoncrysol.2009.11.032>
- [87] Chatterjee, A., Basu, J. K., & Jana, A. K. (2019). Alumina-silica nano-sorbent from plant fly ash and scrap aluminium foil in removing nickel through adsorption. *Powder Technology*, 354, 792-803. <https://doi.org/10.1016/j.powtec.2019.06.035>
- [88] Knez, Ž., & Novak, Z. (2001). Adsorption of water vapor on silica, alumina, and their mixed oxide aerogels. *Journal of Chemical & Engineering Data*, 46(4), 858-860. <https://doi.org/10.1021/je000201i>

- [89] Alnajjar, M., Hethnawi, A., Nafie, G., Hassan, A., Vitale, G., & Nassar, N. N. (2019). Silica-alumina composite as an effective adsorbent for the removal of metformin from water. *Journal of Environmental Chemical Engineering*, 7(3), 102994. <https://doi.org/10.1016/j.jece.2019.102994>
- [90] Bokov, D., Turki Jalil, A., Chupradit, S., Suksatan, W., Javed Ansari, M., Shewael, I. H., & Kianfar, E. (2021). Nanomaterial by sol-gel method: synthesis and application. *Advances in Materials Science and Engineering*, 2021, 1-21. <https://doi.org/10.1155/2021/5102014>
- [91] Anderson, A. M., & Carroll, M. K. (2011). Hydrophobic silica aerogels: review of synthesis, properties and applications. In: M. Aegerter, N. Leventis, M. Koebel (Eds.), *Aerogels Handbook* (pp. 47-77). Springer
- [92] Sarawade, P. B., Kim, J. K., Hilonga, A., & Kim, H. T. (2010). 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(5), 911-918. <https://doi.org/10.1016/j.solidstatesciences.2010.01.032>
- [93] Çimen, A. E. (2021). *Döküm Kumu Ve Atık Döküm Kumundan Silika Esaslı Aerojel Üretimi Ve Karakterizasyonu* [Yüksek lisans tezi]. Sakarya Üniversitesi.
- [94] El Rassy, H., Buisson, P., Bouali, B., Perrard, A., Pierre, A. C. (2003). Surface characterization of silica aerogels with different proportions of hydrophobic groups, dried by the CO₂ supercritical method. *Langmuir*, 19(2), 358-363. <https://doi.org/10.1021/la020637r>
- [95] Hubei Co-Formula Material Tech Co., Ltd. (2023, 15 Eylül). Fonksiyonel silanlar. <https://tr.cfmats.com>
- [96] Tang, Q., & Wang, T. (2005). Preparation of silica aerogel from rice hull ash by supercritical carbon dioxide drying. *The Journal of supercritical fluids*, 35(1), 91-94. <https://doi.org/10.1016/j.supflu.2004.12.003>
- [97] Uslu, İ. (2023, 20 Kasım). Tek bileşenli sistemler. <https://www.slideshare.net/iuslu/tek-bileenli-sistemler>
- [98] Toygun, Ş., Köneçoğlu, G., & Kalpaklı, Y. (2013). General principles of sol-gel. *Sigma Journal of Engineering and Natural Sciences*, 31(4), 456-476.
- [99] Yu, H., Jiang, Y., Lu, Y., Li, X., Zhao, H., Ji, Y., & Wang, M. (2019). Quartz fiber reinforced Al₂O₃-SiO₂ aerogel composite with highly thermal stability by ambient pressure drying. *Journal of Non-Crystalline Solids*, 505, 79-86. <https://doi.org/10.1016/j.jnoncrysol.2018.10.039>
- [100] Danial, W. H., Abdul Majid, Z., Mohd Muhid, M. N., Bakar, M. B., Ramli, Z., & Triwahyono, S. (2015). Preparation of cellulose nanocrystal aerogel from wastepaper through freeze-drying technique. *Advanced Materials Research*, 1125, 296-300. <https://doi.org/10.4028/www.scientific.net/AMR.1125.296>
- [101] Simón-Herrero, C., Caminero-Huertas, S., Romero, A., Valverde, J. L., & Sánchez-Silva, L. (2016). Effects of freeze-drying conditions on aerogel properties. *Journal of Materials Science*, 51, 8977-8985. <https://doi.org/10.1007/s10853-016-0148-5>

- [102] Kramer, T., Kremer, D. M., Pikal, M. J., Petre, W. J., Shalaev, E. Y., & Gatlin, L. A. (2009). A procedure to optimize scale-up for the primary drying phase of lyophilization. *Journal of pharmaceutical sciences*, 98(1), 307-318. <https://doi.org/10.1002/jps.21430>
- [103] Bono, M. S., Anderson, A. M., & Carroll, M. K. (2010). Alumina Aerogels Prepared Via Rapid Supercritical Extraction. *Journal Of Sol-Gel Science And Technology*, 53(2), 216-226. <https://doi.org/10.1007/s10971-009-2080-5>
- [104] Esposito, S. (2019). “Traditional” sol-gel chemistry as a powerful tool for the preparation of supported metal and metal oxide catalysts. *Materials*, 12(4), 668. <https://doi.org/10.3390/ma12040668>
- [105] Dehghanhadikolaei, A., Ansary, J., & Ghoreishi, R. (2018). Sol-gel process applications: A mini-review. *Proc. Nat. Res. Soc*, 2(1), 02008-02029. <https://doi.org/10.11605/j.pnrs.201802008>
- [106] Woignier, T., Phalippou, J., Despetis, F., & Calas-Etienne, S. (2018). Aerogel processing. in: L. Klein, M. Aparicio, A. Jitianu (Eds.), *Handbook of Sol-Gel Science and Technology: Processing, Characterization and Applications* (pp. 985-1011). Springer
- [107] Gan, L., Xu, Z., Feng, Y., & Chen, L. (2005). Synthesis of alumina aerogels by ambient drying method and control of their structures. *Journal of Porous Materials*, 12, 317-321.
- [108] Liu, X., Hu, X., Jiang, L., He, J., & Lu, C. (2022). Facile synthesis of mullite fiber/alumina composite aerogel with enhanced bending strength and controllable thermal insulation performance. *Journal of Sol-Gel Science and Technology*, 104(2), 311-318.
- [109] Li, L., Wang, X., & Li, M. (2022). A novel process to fabricate ultralight, intact mullite ($3\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 2\text{SiO}_2$) aerogel bulk. *Materials Letters*, 324, 132603. <https://doi.org/10.1016/j.matlet.2022.132603>
- [110] Ji, X., Zhou, Q., Qiu, G., Peng, B., Guo, M., & Zhang, M. (2017). Synthesis of an alumina enriched $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ aerogel: Reinforcement and ambient pressure drying. *Journal of Non-Crystalline Solids*, 471, 160-168. <https://doi.org/10.1016/j.jnoncrysol.2017.05.038>
- [111] Mondal, B. K., Guha, F., & Abser, M. N. (2023). Sol-gel derived Ti-doped mesoporous silica–alumina: an efficient catalyst to recover energy sources from environmental hazard waste plastics. *Journal of Thermal Analysis and Calorimetry*, 148(12), 5257-5270. <https://doi.org/10.1007/s10973-023-12059-7>
- [112] Aripin, H., Mitsudo, S., Prima, E. S., Sudiana, I. N., Kikuchi, H., Sano, S., & Sabchevski, S. (2015). Crystalline mullite formation from mixtures of alumina and a novel material—Silica xerogel converted from sago waste ash. *Ceramics international*, 41(5), 6488-6497. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2015.01.092>
- [113] Wang, H. L., Qi, H. P., Wei, X. N., Liu, X. Y., & Jiang, W. F. (2016). Photocatalytic activity of TiO_2 supported $\text{SiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ aerogels prepared from industrial fly ash. *Chinese Journal of Catalysis*, 37(11), 2025-2033. [https://doi.org/10.1016/S1872-2067\(16\)62546-9](https://doi.org/10.1016/S1872-2067(16)62546-9)

- [114] Chen, H., Sui, X., Zhou, C., Wang, C., & Liu, F. (2016). Preparation and characterization of monolithic Al₂O₃-SiO₂ aerogel. *Journal of the Ceramic Society of Japan*, 124(4), 442-447.
- [115] Dong, J. X., Hu, Z. S., & Chen, G. X. (1999). Preparation and tribology of aerogel silica and alumina-silica as lubricant oil additives. *Lubrication Science*, 11(3), 285-295. <https://doi.org/10.1002/ls.3010110306>
- [116] Song, Z., & Zhao, H. (2018). Preparation and characterization of mullite-silica aerogel composite material. *Open Journal of Organic Polymer Materials*, 8(4), 43-52.
- [117] Yi, Z., Zhang, X., Yan, L., Huyan, X., Zhang, T., Liu, S., ... & Hou, F. (2022). Super-insulated, flexible, and high resilient mullite fiber reinforced silica aerogel composites by interfacial modification with nanoscale mullite whisker. *Composites Part B: Engineering*, 230, 109549. <https://doi.org/10.1016/j.compositesb.2021.109549>
- [118] Ma, J., Ye, F., Yang, C., Ding, J., Lin, S., Zhang, B., & Liu, Q. (2017). Heat-resistant, strong alumina-modified silica aerogel fabricated by impregnating silicon oxycarbide aerogel with boehmite sol. *Materials & Design*, 131, 226-231. <https://doi.org/10.1016/j.matdes.2017.06.036>
- [119] Jia, H., Liu, S., Mao, Z., & Wang, D. (2021). Preparation and properties of the Al₂O₃-SiO₂ aerogel/alumina framework composite. *Ceramics International*, 47(1), 1466-1471. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2020.08.206>
- [120] Yu, H., Tong, Z., Yue, S., Li, X., Su, D., & Ji, H. (2021). Effect of SiO₂ deposition on thermal stability of Al₂O₃-SiO₂ aerogel. *Journal of the European Ceramic Society*, 41(1), 580-589.
- [121] Dindar oğlu, S. (2023, 10 Kasım). Şamot harcı (Şamot nedir?). <http://ozintas.blogspot.com/2017/08/samot-harc-samot-nedir.html>
- [122] Kösematoğlu, A. Ateşe Mukavim Malzeme ve Sanayide Kullanma Yerleri. *Bilimsel Madencilik Dergisi*, 1(4), 241-246.
- [123] Arı, K., Erdinç, M., & Haktanır, T. (2004). Kalsiyum Alüminatlı Çimentonun Refrakter Olarak Kullanılması
- [124] Kösematoğlu, A. Yurdumuzdaki Şamot Ateş Tuğlası Ham Madde Yatakları. *Bilimsel Madencilik Dergisi*, 1(2), 98-109
- [125] Koroğlu, Ç. (2007). *Ağaçlı-Bolluca (İstanbul) yöresi seramik killerinin malzeme özelliklerinin araştırılması* [Yüksek lisans tezi] İstanbul Teknik Üniversitesi.
- [126] Doğusan Boru Sanayi ve Ticaret A.Ş. (2023, 15 Kasım). Perlit. www.dogusanas.com.tr/perlit.pdf
- [127] Altinkum. (2023, 1 Aralık). Perlit. www.altinkumdokum.com/en/productdetail/other/perlite/43
- [128] Özbey, G. ve Atamer, N. (1987, Mayıs 11-15). Kizelgur (diatomit) hakkında bazı bilgiler [Sözlü sunum]. 10. Türkiye Madencilik Bilimsel Teknik Kongresi, Ankara, Türkiye.

- [129] Marbleport. (2023, 4 Aralık). Diatomit. www.marbleport.com/dogal-kaynaklar/38/diatomit
- [130] Doskar. (2023, 7 Aralık). Diatomit. <https://doskar.co/diatomit/>
- [131] Taş, B., & Çetin, M. (2012). Biyolojik orijinli tek doğal mineral: diatomit. *Tübvav Bilim Dergisi*, 5(2), 28-46.
- [132] Gökkonca, E. K. (2010). *Diatomit katkılı harçların bazı mekanik ve fiziksel özelliklerinin değişiminin incelenmesi* [Yüksek lisans tezi] Pamukkale Üniversitesi.
- [133] Bentli, İ. (2010). Kütahya-Alayunt diatomit cevherindeki safsızlıkların hidrosiklon ve kalsinasyonla giderilmesi. *Madencilik Dergisi*, 49(3), 13-21.
- [134] Alse kimya mineral. (2023, 8 Aralık). Zeolit. <https://alsekimyamineral.com/b/zeolit-52.html/>
- [135] Sashkina, K. A., Gurikov, P. A., Ayupov, A. B., Smirnova, I., & Parkhomchuk, E. V. (2018). Zeolite/silica aerogel composite monoliths and microspheres. *Microporous and mesoporous materials*, 263, 106-112. <https://doi.org/10.1016/j.micromeso.2017.12.010>
- [136] Maden Tetkik ve Arama Genel Müdürlüğü. (2023, 10 Aralık). Wollastonit. <https://mta.gov.tr/v3.0/bilgi-merkezi/wollastonit/>
- [137] Epa çevre. (2023, 15 Aralık). Alüminyum eloksal tesislerinde kimyasal ve atıksu geri kazanımının önemi. <https://epacevre.com.tr/blog/aluminyum-eloksal-tesislerinde-kimyasal-ve-atıksu-geri-kazanımının-onemi/179/>
- [138] Saydaş Plastik. (2023, 20 Aralık). Alüminyum atık geri kazanımı. <https://saydasplastik.com.tr/aluminyum-atik-geri-kazanimi>
- [139] Bursa Teknik Üniversitesi. (2023, 22 Aralık). Taramalı elektron mikroskobu ile numunelerin karakterizasyonu. www.depo.btu.edu.tr/dosyalar/metalurji/Dosyalar/TARAMALI%20ELKTRO N%20M% C4% B0KROSKOBU% 20% C4% B0LE% 20NUMUNELER% C4% B0N% 20KARAKTER% C4% B0ZASYONU-EDS.docx.
- [140] Karakaş, Z. S. (2023, 25 Aralık). Mineral tanıma yöntemleri. www.kursatozcan.com/ders_notlari/mineraloji/zs_karatas_mineral_tanima_yontemleri.pdf
- [141] ESOGÜ. (2024, 02 Ocak). Alan Emisyonlu Taramalı Elektron Mikroskobu (FE-SEM). <https://arum.ogu.edu.tr/Sayfa/Index/80/alan-emisyonlu-taramali-elektron-mikroskobu-fe-sem>
- [142] Photometrics. (2024, 04 Ocak). Field Emission Scanning Electron Microscopy (FESEM). <https://photometrics.net/field-emmission-scanning-electron-microscopy-fesem>
- [143] ODTÜ. (2024, 07 Ocak). X-ışını difraktometresi. <https://merlab.metu.edu.tr/tr/x-isini-difraktometresi>
- [144] Rigaku. (2024, 09 Ocak). Bragg's law. <https://rigaku.com/techniques/x-ray-diffraction-xrd>

- [145] Ono, D., Bamba, T., Oku, Y., Yonetani, T., & Fukusaki, E. (2011). Application of Fourier transform near-infrared spectroscopy to optimization of green tea steaming process conditions. *Journal of bioscience and bioengineering*, 112(3), 247-251.
- [146] Büyüksırt, T., & Kuleaşan, H. (2015). Fourier Dönüşümlü Kizilötesi (FTIR) Spektroskopisi ve Gıda Analizlerinde Kullanımı. *The Journal of Food*, 39(4), 235-241.
- [147] ODTÜ. (2024, 12 Ocak). Termal iletkenlik analiz cihazı (TİC). <https://merlab.metu.edu.tr/tr/termal-iletkenlik-analiz-cihazı-tic>
- [148] Kimyasal teorik bilgiler ve deneyler. (2024, 14 Ocak). IR(Kırmızı ötesi) spektroskopisi. <https://kimyasaldeneyler.blogspot.com/2013/05/ir-krmz-otesi-spektroskopisi.html>
- [149] Lin, S. Y., & Wang, S. L. (2012). Advances in simultaneous DSC–FTIR microspectroscopy for rapid solid-state chemical stability studies: some dipeptide drugs as examples. *Advanced Drug Delivery Reviews*, 64(5), 461-478.
- [150] Saraç, N. (2018). Silika esaslı doğal hammadde ve atıklardan aerojel toz üretimi ve karakterizasyonu [Yüksek Lisans Tezi] Sakarya Üniversitesi.
- [151] Tosun, N. (2005). Mezogözenekli katıların adsorplama özelliklerinin incelenmesi [Yüksek lisans tezi] Ankara Üniversitesi.
- [152] Zhang, H., Li, Y., & Tao, W. (2017). Effect of radiative heat transfer on determining thermal conductivity of semi-transparent materials using transient plane source method. *Applied Thermal Engineering*, 114, 337-345. <https://doi.org/10.1016/j.applthermaleng.2016.11.208>
- [153] Al-Ajlan, S. A. (2006). Measurements of thermal properties of insulation materials by using transient plane source technique. *Applied thermal engineering*, 26(17-18), 2184-2191. <https://doi.org/10.1016/j.applthermaleng.2006.04.006>
- [154] Matter, F., Luna, A. L., & Niederberger, M. (2020). From colloidal dispersions to aerogels: How to master nanoparticle gelation. *Nano Today*, 30, 100827. <https://doi.org/10.1016/j.nantod.2019.100827>
- [155] Montes, S., & Maleki, H. (2020). Aerogels and their applications. In *colloidal metal oxide nanoparticles* (pp. 337-399). Elsevier.
- [156] Yılmaz, M., Özdemir, Ö., Mermer, N., & Pişkin, M. (2015). The Effect of Acid Concentration on the Synthesis of Hydrophobic Silica Based Aerogels. *Celal Bayar University Journal of Science*, 11(3).
- [157] Shalygin, A. S., Kozhevnikov, I. V., Gerasimov, E. Y., Andreev, A. S., Lapina, O. B., & Martyanov, O. N. (2017). The impact of Si/Al ratio on properties of aluminosilicate aerogels. *Microporous And Mesoporous Materials*, 251, 105-113. <https://doi.org/10.1016/j.micromeso.2017.05.053>
- [158] Palakurthy, S., & Samudrala, R. K. (2019). In vitro bioactivity and degradation behaviour of β -wollastonite derived from natural waste. *Materials Science and Engineering: C*, 98, 109-117. <https://doi.org/10.1016/j.msec.2018.12.101>

- [159] Gao, G. M., Xu, X. C., Zou, H. F., Ji, G. J., & Gan, S. C. (2010). Microstructural and physical properties of silica aerogels based on oil shale ash. *Powder technology*, 202(1-3), 137-142. <https://doi.org/10.1016/j.powtec.2010.04.028>
- [160] Shewale, P. M., Rao, A. V., & Rao, A. P. (2008). Effect of different trimethyl silylating agents on the hydrophobic and physical properties of silica aerogels. *Applied Surface Science*, 254(21), 6902-6907. <https://doi.org/10.1016/j.apsusc.2008.04.109>
- [161] Cheng, Y., Xia, M., Luo, F., Li, N., Guo, C., & Wei, C. (2016). Effect of surface modification on physical properties of silica aerogels derived from fly ash acid sludge. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 490, 200-206. <https://doi.org/10.1016/j.colsurfa.2015.11.055>
- [162] Shiddiq, M.A, Pudjihastuti, I. (2021). Making Silica Gel by Utilizing Candlenut and Palm Oil Shell Ash. *Eduvest-Journal of Universal Studies*, 1(3), 133-141
- [163] Juhl, S. J., Dunn, N. J., Carroll, M. K., Anderson, A. M., Bruno, B. A., Madero, J. E., & Bono Jr, M. S. (2015). Epoxide-assisted alumina aerogels by rapid supercritical extraction. *Journal of Non-Crystalline Solids*, 426, 141-149. <https://doi.org/10.1016/j.jnoncrysol.2015.06.030>
- [164] Xu, L., Jiang, Y. G., Feng, J. Z., & Feng, J. (2015, May). Influence of Ethyl Acetoacetate on the Structure and Thermal Stability of Alumina Aerogel. In *Materials Science Forum* (Vol. 816, pp. 157-162). Trans Tech Publications Ltd.
- [165] Liu, C., Shih, K., Gao, Y., Li, F., & Wei, L. (2012). Dechlorinating transformation of propachlor through nucleophilic substitution by dithionite on the surface of alumina. *Journal of soils and sediments*, 12, 724-733. <https://doi.org/10.1007/s11368-012-0506-0>
- [166] Hurwitz, F. I., Rogers, R. B., Guo, H., Yu, K., Domanowski, J., Schmid, E., & Fields, M. G. (2017). The role of phase changes in maintaining pore structure on thermal exposure of aluminosilicate aerogels. *MRS Communications*, 7(3), 642-650. <https://doi.org/10.1557/mrc.2017.89>.
- [167] Yu, Y., Peng, K., Fang, J., Zhang, R., Wang, G., & Peng, X. (2018). Mechanical and thermal conductive properties of fiber-reinforced silica-alumina aerogels. *International Journal of Applied Ceramic Technology*, 15(5), 1138-1145. <https://doi.org/10.1111/ijac.12891>
- [168] Zhou, T., Gong, L., Cheng, X., Pan, Y., Li, C., & Zhang, H. (2018). Preparation and characterization of silica aerogels from by-product silicon tetrachloride under ambient pressure drying. *Journal of Non-Crystalline Solids*, 499, 387-393.
- [169] Chargui, F., Hamidouche, M., Belhouchet, H., Jorand, Y., Doufnoune, R., & Fantozzi, G. (2018). Mullite fabrication from natural kaolin and aluminium slag. *boletín de la sociedad española de cerámica y vidrio*, 57(4), 169-177. <https://doi.org/10.1016/j.bsecv.2018.01.001>

- [170] Wu, Y., Wang, X., Liu, L., Zhang, Z., & Shen, J. (2021). Alumina-Doped Silica Aerogels for High-Temperature Thermal Insulation. *Gels*, 7(3), 122. <https://doi.org/10.3390/gels7030122>

ÖZGEÇMİŞ

Ad-Soyad : Özge KILINÇ

ÖĞRENİM DURUMU:

- Lisans** : 2021, Eskişehir Osmangazi Üniversitesi, Mühendislik ve Mimarlık Fakültesi, Kimya Mühendisliği
- Yüksek lisans** : 2024, Sakarya Üniversitesi, Metalurji ve Malzeme Mühendisliği

MESLEKİ DENEYİM:

- 2021-2022 yılları arasında Sadırlar Alliance Tekstil'de mühendis olarak çalıştı.
- 2023-2024 yılları arasında DRC Kauçuk'ta mühendis olarak çalıştı.

TEZDEN TÜRETİLEN ESERLER:

- Kılınç, Ö., Toplan, N. 2024. Şamot Tuğla Harcı, Perlit ve Diatomitten Alümina-Silika Esaslı Kompozit Aerojel Tozu Üretimi, Metal Dünyası Dergisi, 370, 52-57.