

BURSA TEKNİK ÜNİVERSİTESİ ❖ FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

**GÖZENEKLİ MÜLLİT SERAMİKLERİN
ÜRETİMİ VE KARAKTERİZASYONU**

YÜKSEK LİSANS TEZİ

Nigar ÖZEY

İleri Teknolojiler Anabilim Dalı

Malzeme Bilimi ve Mühendisliği Programı

Haziran 2018

BURSA TEKNİK ÜNİVERSİTESİ ❖ FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

**GÖZENEKLİ MÜLLİT SERAMİKLERİN
ÜRETİMİ VE KARAKTERİZASYONU**

YÜKSEK LİSANS TEZİ

**Nigar ÖZEY
(152080303)**

İleri Teknolojiler Anabilim Dalı

Malzeme Bilimi ve Mühendisliği Programı

**Tez Danışmanı: Dr. Öğr. Üyesi Ayşe KALEMTAŞ
Eş Danışman : Dr. Öğr. Üyesi Meryem Türkay AYTEKİN AYDIN**

Haziran 2018

BTÜ, Fen Bilimleri Enstitüsü'nün 152080303 numaralı Yüksek Lisans Öğrencisi Nigar ÖZEY, ilgili yönetmeliklerin belirlediği gerekli tüm şartları yerine getirdikten sonra hazırladığı "GÖZENEKLİ MÜLLİT SERAMİKLERİN ÜRETİMİ VE KARAKTERİZASYONU" başlıklı tezini aşağıda imzaları olan jüri önünde başarı ile sunmuştur.

Tez Danışmanı : **Dr. Öğr. Üyesi Ayşe KALEMTAŞ**
Bursa Teknik Üniversitesi

Eş Danışman : **Dr. Öğr. Üyesi Türkay AYTEKİN AYDIN**
Anadolu Üniversitesi

Jüri Üyeleri : **Dr. Öğr. Üyesi Gülsüm TOPATEŞ**
Ankara Yıldırım Beyazıt Üniversitesi

Dr. Öğr. Üyesi Ertuğrul ERKOÇ
Bursa Teknik Üniversitesi

Savunma Tarihi : 11 Haziran 2018

FBE Müdürü : **Doç. Dr. Murat ERTAŞ**
Bursa Teknik Üniversitesi/...../.....

İNTİHAL BEYANI

Bu tezde görsel, işitsel ve yazılı biçimde sunulan tüm bilgi ve sonuçların akademik ve etik kurallara uyularak tarafımdan elde edildiğini, tez içinde yer alan ancak bu çalışmaya özgü olmayan tüm sonuç ve bilgileri tezde kaynak göstererek belgelediğimi, aksinin ortaya çıkması durumunda her türlü yasal sonucu kabul ettiğimi beyan ederim.

Öğrencinin Adı Soyadı: Nigar ÖZEY

İmzası:

X X X X X



En büyük destekçim olan aileme,

ÖNSÖZ

Araştırmalarımın her aşamasında öneri ve yardımlarını benimle paylaşan, eleştirileri ile bana yön veren ve her konuda desteğini benden esirgemeyen çok değerli hocam Dr. Öğr. Üyesi Ayşe KALEMTAŞ'a en içten teşekkürlerimi sunarım.

Bursa Teknik Üniversitesi metalurji ve malzeme laboratuvarında gerçekleştirdiğim deneysel çalışmalarım süresince yardımlarını benden esirgemeyen çalışma arkadaşım Okan BİLGİÇ'e ve desteğini her zaman hissettiğim, her konuda yanımda olan Ayberk ALTINTAŞ'a teşekkürlerimi sunarım.

Yaşamımın her anında benim yanımda olan, maddi ve manevi her konuda desteklerini benden esirgemeyen çok kıymetli aileme en içten duygularıyla teşekkür ederim.

Haziran 2018

Nigar ÖZEY

İÇİNDEKİLER

Sayfa

ÖNSÖZ	v
İÇİNDEKİLER	vi
KISALTMALAR	vii
SEMBOLLER	viii
ÇİZELGE LİSTESİ.....	ix
ŞEKİL LİSTESİ.....	x
ÖZET	xi
SUMMARY	xii
1. GİRİŞ –	13
1.1 Gözenekli Seramikler.....	14
1.2 Gözenek Özelliklerine Göre Gözenekli Malzemeler	15
1.3 Gözenekli Seramiklerin Üretim Yöntemleri	16
1.4 Kaolenden Müllit Oluşumu.....	18
1.3 Polimerik Sünger Yöntemi.....	20
2. MATERYAL VE YÖNTEM	22
2.1 Kullanılan Hammaddeler	22
2.2 Numune Hazırlama	22
2.3 Fonksiyonel Aşamalı Seramik Malzeme Üretimi	24
2.4 Sinterleme	25
2.5 Karakterizasyon.....	25
3. DENEYSEL SONUÇLAR.....	29
3.1 TG-DTA Analizi Sonuçları	29
3.2 Faz Analizi Sonuçları	30
3.3 Sinterleme Çekmesi Sonuçları	32
3.4 Yoğunluk Analizi Sonuçları	33
3.5 Basma Testi Sonuçları	34
3.6 Mikroyapı Analizi Sonuçları	36
4. SONUÇ VE ÖNERİLER.....	46
4.1 Sonuçlar.....	46
4.2 Öneriler.....	47
KAYNAKLAR	49
ÖZGEÇMİŞ.....	56

KISALTMALAR

A	: Alan
ASTM	: American society for testing and material
°C	: Derece Santigrat
°C/dk	: Derece Santigrat /dakika
cm²	: Santimetre kare
cm³	: Santimetre küp
d	: Partikül Çapı
dk	: Dakika
Dev/dk	: Devir /dakika
DTA	: Diferansiyel Termal Analiz
E	: Elastik Modülü
FAM	: Fonksiyonel Aşamalı Malzeme
Gr	: Gram
GPa	: Gigapaskal
K	: Kelvin
K	: Gerilme Şiddeti Faktörü
cK	: Kritik Gerilme Şiddeti Faktörü
MPa	: Megapaskal
M	: Müllit
Max	: Maksimum
Min	: Minimum
N	: Newton
nm	: Nanometre
µm	: Mikrometre
P	: Uygulanan Yük
PEG	: Polietilenglikol
ppi	: Pores per inches (inç ² başına düşen gözenek sayısı)
s	: Saniye
SEM	: Taramalı Elektron Mikroskobu
TG	: Termogravimetri
XRD	: X ışını kırınımı

SEMBOLLER

%	: Yüzde
b	: Genişlik
d	: Diagonal
h	: Yükseklik
L	: Uzunluk
t	: Zaman
T	: Sıcaklık
wa	: Kuru numune ağırlığı
wb	: Asılı numune ağırlığı
wc	: Yaş numune ağırlığı
ρ	: Yoğunluk
σ	: Eğilme Mukavemeti

ÇİZELGE LİSTESİ

Sayfa

Çizelge 2.1 : CC31 Kaolen'nin kimyasal bileşimi. 22



ŞEKİL LİSTESİ

Sayfa

Şekil 1.1 : Gözenekli seramiklerin gözenek özelliklerine göre sınıflandırılması.....	15
Şekil 1.2 : Gözenekli seramiklerin üretim yöntemleri.....	17
Şekil 1.3 : 1600°C'de 1 saatte sinterlenerek üretilen müllit seramik numunesi	19
Şekil 1.4 : Polimerik sünger yönteminin uygulama basamakları	21
Şekil 2.1 : Kullanılan polimerik sünger ve çamur emdirildikten sonra kurutulmuş gözenekli seramik numuneler temsili görseli.....	23
Şekil 2.2 : Fonksiyonel aşamalı müllit numunesi temsili görseli	25
Şekil 2.3 : Basma testi numunesi	26
Şekil 2.4 : Küçülme davranışı incelemelerinde kullanılan numuneler	27
Şekil 2.5 : Yoğunluk ölçümünde kullanılan numuneler	28
Şekil 3.1 : Poliüretan süngerin TG-DTA analiz sonuçları	29
Şekil 3.2 : CC31 kaolinin TG-DTA analiz sonuçları	30
Şekil 3.3 : CC31 kaolinin XRD analiz sonuçları	31
Şekil 3.4 : Sinterlenmiş gözenekli numunelerin XRD analizi sonucu.....	32
Şekil 3.5 : Sinterlenmiş gözenekli numunelerin sinterleme çekmesi sonuçları.....	33
Şekil 3.6 : Sinterlenmiş gözenekli numunelerin yoğunluk ölçümü sonuçları	34
Şekil 3.7 : Sinterlenmiş gözenekli numunelerin basma mukavemeti sonuçları	35
Şekil 3.8 : Sinterlenmiş numunelerin basma mukavemeti-bağıl yoğunluk ilişkisi ...	36
Şekil 3.9 : 1300 °C'de 1 saat sinterlenmiş gözenekli müllit numunesi SEM analizi (a) 1kX ve (b) 2 kX.....	37
Şekil 3.10 :1400°C'de 1 saat sinterlenmiş müllit numunesi SEM analizi (a) 1kX, (b) 5 kX ve (c) 20 kX	39
Şekil 3.11 : 1400°C'de 3 saat sinterlenmiş müllit numunesi SEM analizi (a) 10kX, (b) 20 kX ve (c) 50 kX.....	40
Şekil 3.12 : 1500°C'de 1 saat sinterlenmiş müllit numunesi SEM analizi (a) 5 kX, (b) 10 kX ve (c) 15 kX	42
Şekil 3.13 : 1500°C'de 1 saat sinterlenmiş müllit numunenin SEM analizi (a) 5 kX, (b) 10 kX	43
Şekil 3.14 : 1600°C'de 1 saat sinterlenmiş müllit numunesi SEM analizi (a) 1 kX, (b) 5 kX ve (c) 10 kX	45

GÖZENEKLİ MÜLLİT SERAMİKLERİN ÜRETİMİ VE KARAKTERİZASYONU

ÖZET

Bu tez çalışması kapsamında gözenek boyutu ve dağılımı kontrol edilebilen makro gözenekli, iğnemsî tane morfolojisine sahip müllit ($3\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 2\text{SiO}_2$) seramiklerin polimerik sünger yöntemiyle üretimi ve karakterizasyonu gerçekleştirilmiştir. Gözenekli müllit seramiklerin üretiminde ekonomikliği, müllit oluşumu için nispeten düşük oluşum sıcaklığı sağlaması ve oldukça iyi bir mikroyapı eldesine olanak tanınması gibi önemli avantajları nedeniyle CC31 kaolen kullanılmıştır. Kaolen seramik malzemelerin üretiminde yüzyıllardır kullanılmakta olan ve nispeten saf bir kil olup yüksek sıcaklıklarda sinterlendiğinde müllit fazını oluşturmaktadır. Bu çalışmada müllit esaslı gözenekli seramik malzemelerin üretiminde ekonomik oluşu ve kolay uygulanabilir olması dolayısıyla polimerik sünger yöntemi tercih edilmiştir. Hedeflenen uygulama alanına bağlı olarak gözenekli malzemedeki beklenen gözenek miktarı, gözenek boyutu ve dağılımı değişiklik göstermektedir. Bu tez çalışmasında tek tip gözenek boyutuna sahip müllit seramiklerinin üretimi yanısıra fonksiyonel aşamalı malzeme tasarımına sahip gözenekli müllit seramikleri de üretilmiştir. Çalışmada polimerik sünger yöntemi için tercih edilen sünger türü poliüretandır. Nispeten düşük sıcaklıklarda yapıdan kolayca uzaklaştırılabilmesi sebebiyle poliüretan sünger tercih edilmiştir. Sünger yapıların termal davranışları TG-DTA analizi yapılarak incelenmiştir. Kaolenden müllit üretim sürecinde özellikle sinterleme sıcaklığı, süresi ve hızının müllit morfoloji gelişimi üzerindeki etkileri gözenekli seramik numunelerin 1300-1600°C aralığında sinterlenmesi ile çalışılmıştır. Sinterlenmiş numunelerin faz bileşimleri XRD analizi yapılarak incelenmiştir. Müllit fazının oluştuğu gözlenen gözenekli seramik bünyelerin mikroyapı incelemeleri SEM analizi yapılarak incelenmiştir. Gözenekli müllit seramiklerin üretim koşullarına bağlı olarak küçülme davranışı, yoğunluk ve basma mukavemeti belirlenmiştir.

Anahtar kelimeler: Gözenekli Seramik, Kaolen, Müllit, FAM

PRODUCTION AND CHARACTERIZATION OF POROUS MULLITE CERAMICS

SUMMARY

In this thesis study, production and characterization of mullite ($3\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 2\text{SiO}_2$) ceramics with macroporous, needle-like morphology capable of controlling pore size and distribution were carried out by polymeric sponge method. CC31 kaolin has been used because of its economic advantages in producing porous mullite ceramics, its relatively low formation temperature for mullite formation, and its significant advantages such as allowing a very good microstructure. Kaolen is a relatively pure clay that has been used for centuries in the production of ceramic materials and forms mullite phase when sintered at high temperatures. In this study, polymeric sponge method is preferred because it is economical to produce mullite based porous ceramic materials and easily applicable. Depending on the desired application area, the amount of pores, pore size and distribution expected from the porous material are changing. In this thesis, porous mullite ceramics with uniform pore size and porous mullite ceramics with functional graded material design were produced. A preferred type of sponge polyurethane foam for the polymeric sponge process. Polyurethane foam is preferred in the current study because it can be easily removed from the structure at relatively low temperatures. Thermal behaviors of polymeric sponge was investigated by TG-DTA analysis. The effect of sintering temperature, time and rate on the development of mullite morphology in kaolin mullite production process was studied by sintering porous ceramic samples at 1300-1600°C. The phase compositions of the sintered samples were analyzed by XRD analysis. Microstructure studies of mullite ceramics were carried out by SEM analysis. The shrinkage behavior, density and compressive strength of porous mullite ceramics were determined depending on the production conditions.

Keywords: Porous Ceramics, Kaolen, Mullite, FGM

1. GİRİŞ

Teknolojideki gelişmeler ile birlikte malzeme biliminde birçok özelliği tek bünyede barındıran malzemelere ihtiyaç artmaktadır. Gözenek boyutu ve dağılımı kontrol edilebilen gözenekli malzemeler, yoğun malzemelere kıyasla kullanıcıya çeşitli avantajlar sağlayan birçok özelliği bünyesinde bulundurmaktadır. Yoğun malzemeler ile karşılaştırıldıklarında çok daha farklı ve özel davranışlar sergiledikleri görülmektedir [1]. Bu nedenle günümüzde gözenekli malzemelere pek çok uygulamada sıklıkla yer verilmektedir [2-11]. Yüksek oranda gözenek barındıran seramik malzemelerde, geçirgenlik, yüzey alanı gibi özelliklerin değerleri artarken, yoğunluk, ısıl iletim gibi özelliklerin değerleri azalmaktadır. Yapıda oluşan yüksek gözenek miktarı malzemenin hafiflik özelliğini ön plana çıkarmaktadır. Bu özellikleri sebebiyle gözenekli seramik malzemeler filtrasyon (dizel emisyon, eriyik metal, toz, kurum, gaz, su, vb.), ısıl izolasyon, ısı değiştiriciler, elektrodlar, sensörler, membranlar, gaz beki, biyomedikal uygulamalar, katalizör, katalizör destekleri, piezoelektrik seramikler, radyant brulörler, sandviç yapılar için hafif çekirdekler ve kompozit üretiminde altlık olarak kullanım gibi çok çeşitli uygulama alanlarında, geniş bir kullanım potansiyeline sahip, önemli bir malzeme grubudur [12-16]. Gözenekli seramiklerin, metal ve polimer malzemelere kıyasla yüksek sıcaklık dayanımına sahip olmaları ayrıca korozyon ve aşınma dirençlerinin de yüksek olması yüksek sıcaklık uygulamalarında ve yüksek aşınma direncine ihtiyaç duyulan uygulamalarda tercih edilmelerine sebep olmaktadır. Müllit; $3Al_2O_3 \cdot 2SiO_2$ bileşiminde, düşük ısıl genleşme, yüksek ısıl şok direnci, yüksek sürünme direnci, düşük ısıl iletkenlik, iyi kimyasal duyarlılık ve oksidasyon direnci gibi üstün özellikleri nedeniyle seramik malzemeler arasında büyük ilgi gören ve bir çok farklı uygulama için tercih edilen bir malzemedir [17]. Bu sebeple çalışmada müllit seramikleri tercih edilmiştir.

Tez çalışmasının amacı; gözenek boyutu ve dağılımı kontrol edilebilen makro gözenekli, iğnemsiz tane morfolojisine sahip müllit seramiklerin polimerik sünger yöntemiyle üretimi ve karakterizasyonudur.

1.1 Gözenekli Seramikler

Günümüzde gözenekli malzemelerin kullanımı, sağladıkları avantajlar sebebiyle gün geçtikçe yaygınlaşmaktadır. Gözenekli seramik, metal ve polimer malzemeler kontrol edilebilir gözenek miktarına ve boyutuna sahip olduğunda yoğun malzemelere kıyasla kullanım alanına göre büyük avantajlar sağlamaktadır. Bu sebeple gözenekli malzemeler günümüzde birçok uygulama alanında sıklıkla tercih edilmektedir [2-11].

Metalik ve polimerik malzemelerde gözeneklilik çeşitli avantajları nedeniyle tercih edilirken kırılma yapıya sahip olduklarından dolayı seramik malzemeler için gözenek, uzun yıllar boyunca malzemedeki hasara neden olabilen bir hata olarak görülmüş fakat son yıllarda özellikle enerji ve çevre uygulamaları için ihtiyaç duyulan bir özellik haline gelmiştir. Seramik malzemelere gözenek kazandırılmasıyla; yüzey alanı, özgül mukavemet ve geçirgenlik gibi özelliklerin değerleri artarken, düşük yoğunluk, ısı iletim, ısı kütlesi ve dielektrik sabiti değerlerine ulaşılmaktadır. Bu özellikleri sayesinde gözenekli seramikler, metal veya polimer malzemelerin kullanılmadığı yüksek sıcaklık dayanımına, kontrol edilebilir elektriksel özelliklere, yüksek korozyon ve aşınma direncine ihtiyaç duyulan uygulamalarda kullanılmaktadır [45,46].

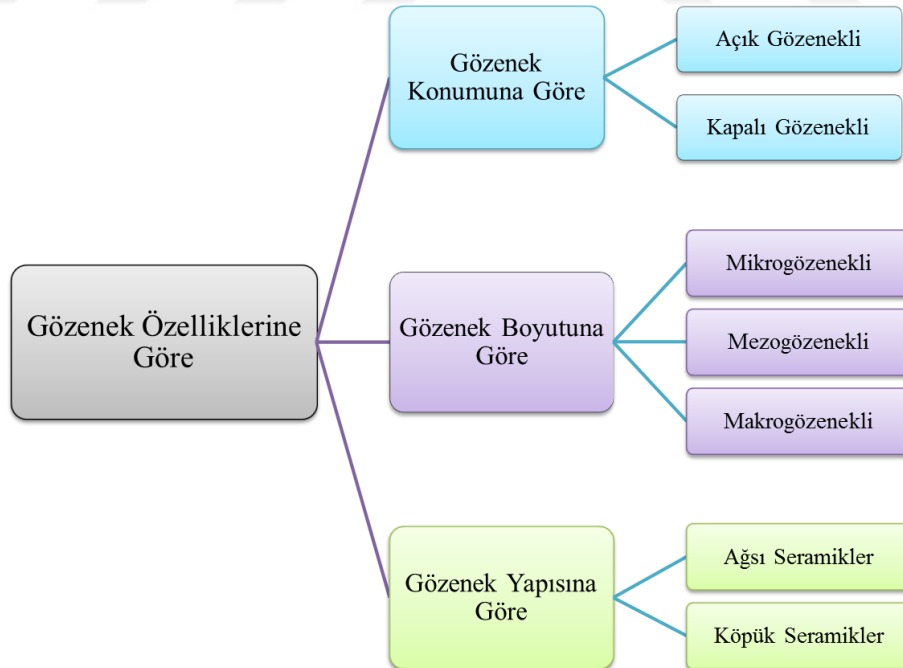
Gözenekli seramik malzemelerde düşük yoğunluk, dielektrik sabiti ve ısı iletkenlik ile birlikte yüksek geçirgenlik, ısı şok dayanımı özellikleri gözlenmektedir. Bu özellikleri sebebiyle gözenekli seramikler metal ve polimerik malzemelerin kullanılmadığı yüksek sıcaklık uygulamalarında kullanılmaktadır.

Gözenekli seramiklerin uygulama alanları gözenek konumuna, yapısına ve boyutuna göre değişmektedir.

1.2 Gözenek Özelliklerine Göre Gözenekli Malzemeler

Malzemelerde gözenek özellikleri; gözenek boyutu, yapısı ve konumuna göre değişmektedir. Şekil 1.1’de gözenekli malzemeler gözenek özelliklerine göre sınıflandırılmıştır. Gözenekli malzemeler konumlarına göre açık ve kapalı olmak üzere ikiye ayrılmaktadır. Gözenek boyutuna bakıldığında gözenekli malzemeler mikrogözenekli, mezogözenekli ve makrogözenekli olmak üzere üç başlık altında incelenmektedir. Gözenek büyüklüğü 2 nm’den küçük gözenek boyutuna sahip seramikler mikro, gözenek boyutu 2-50 nm olan seramikler mezo ve 50 nm’den büyük boyutta gözenek içeren seramikler makrogözenekli seramikler olarak adlandırılmaktadır. Yapılan araştırmalarda mezo ve makro gözenekli seramikler üzerinde daha yoğun çalışmaların olduğu gözlenmiştir [40,41].

Gözenek yapısı ele alındığında ise ağısı ve köpük seramikler olmak üzere iki başlık olarak ele alınmaktadır. Ağısı seramiklerde boşluklar birbiriyle bağlantılı olup seramik duvar ağı ile çevrelenmiştir. Köpük seramiklerde ise; gözenekler kapalı konumdadır ve birbirleriyle bağlantıları bulunmamaktadır. Ağısı seramikler yüksek geçirgenliğe sahipken köpük seramiklerin geçirgenlik özellikleri zayıftır [42-44].



Şekil 1.1 : Gözenekli seramiklerin gözenek özelliklerine göre sınıflandırılması

1.3 Gözenekli Seramiklerin Üretimi

Gözenekli seramik malzemelerin özelliklerinin daha iyi bir şekilde kontrol edilebilmesi, ekonomik bir şekilde ve seri üretime uygun olarak üretilebilmesi için yeni gözenekli seramik malzeme üretim yöntemleri geliştirilmeye ve mevcut yöntemleri daha da iyi hale getirilmeye yönelik çok sayıda çalışma yapılmaktadır [18,26]. Yapılan bu çalışmalar ile gözenekli malzemelere olan ilgi yeni üretim yöntemleri ve yeni uygulama alanlarındaki gelişmelere paralel olarak her geçen gün artmaktadır. Kontrollü mikroyapıya sahip gözenekli seramik üretimi için yeni yöntemler denenmekte ve bu konudaki çalışmalara devam edilmektedir [21-26]. Gözenekli seramikler yüksek sıcaklık, kimyasal dayanım ve yüksek yapısal homojenlik gibi ilgi çekici özelliklerinden dolayı, filtre malzemesi, katalizör destek malzemesi ve membran formunda da kullanılmaktadır. Filtre uygulamaları için açık gözenekli seramik üretimi yapılmalıdır. Açık gözenekli seramiklerin üretiminde en sık tercih edilen yöntem ise polimerik sünger yöntemi olarak bilinen yöntemdir [39]. Bu yöntem 1960'larda kullanılmaya başlanmış olup günümüze kadar yoğun olarak kullanılmakta olan ve özellikle döküm filtresi ve benzeri uygulamalara yönelik gözenekli seramik üretiminde en fazla tercih edilen yöntemdir [36].

Polimerik sünger yönteminde başlangıç seramik tozlarıyla hazırlanan çamur polimerik süngere emdirilir, fazla çamur yapıdan uzaklaştırıldıktan sonra bağlayıcı giderme işlemi yapılarak sünger ve kullanılan diğer organik malzemeler yapıdan uzaklaştırılır. Ardın da sinterleme işlemi gerçekleştirilerek makro gözenekliliğe sahip seramik bünyeler elde edilir. Gözenek boyutu kullanılan yöntemle göre çeşitlilik göstermektedir. Örneğin, sol-jel yöntemi ile üretilen açık gözenekli seramikler nanometre boyutunda gözenekliliğe sahip iken, polimerik sünger yöntemiyle üretilen açık gözenekli seramikler ise milimetre mertebesinde gözenekliliğe sahiptir [27,29]. Gözenek yapısına göre incelediğimizde, gözenekli seramikler “ağsı seramikler” ve “köpük seramikler” diye iki grup altında toplanabilir. Kısaca, ağsı seramikler, seramik matris ile çevrilmiş ve birbirine kenetlenmiş bir gözenekli yapıya sahip iken köpük seramikler sürekli bir seramik matris içinde dağılmış kapalı gözeneklerden meydana gelmektedir. Söz konusu yapıların geçirgenlikleri farklı olup, ağsı türde yüksek, köpüksülerde ise düşüktür. Geçirgenlikteki bu farklılık hücre yapılarının açık veya kapalı olmasından kaynaklanmaktadır [30]. Gözenekli ve ağ yapıları malzemeler düşük ağırlık, yüksek yüzey alanı ve düşük ısıl iletkenlik gibi dikkat çekici

özelliklere sahiptir. Ağsı yapıdaki gözenekli malzemelerin en yaygın uygulama alanları döküm filtreleri, dizel motor eksoz filtresi, katalizör destek malzemesi ve endüstriyel sıcak gaz filtresidir. Hem ağsı hem de köpük seramikler hafif plaka malzemesi, yalıtım malzemesi, sıcaklıktan koruma malzemesi ve gaz yakma odasının duvar malzemesi gibi farklı uygulama alanlarında kullanılmaktadır.

Müllit ($3Al_2O_3 \cdot 2SiO_2$) seramikleri yoğun ve gözenekli yapıda olmak üzere hem geleneksel hem de ileri teknoloji uygulamalarında yaygın olarak kullanılmaktadır. Gözenekli müllit seramikleri döküm filtreleri, ısı izolasyon ürünleri, sıcak gaz filtrasyonu ve refrakter uygulamaları gibi çok çeşitli uygulama alanlarında kullanılmaktadır. Bu tez çalışmasının amacı kaolen hammaddesi kullanılarak ekonomik, makro gözenekli, iğnemsiz tane morfolojisine sahip müllit seramiklerin polimerik sünger yöntemiyle üretilmesidir.

Hedeflenen uygulama alanına bağlı olarak gözenekli malzemeden beklenen gözenek miktarı, gözenek boyut ve dağılımı değişiklik göstermektedir. Söz konusu uygulama alanının gerektirdiği ihtiyaçlar göz önünde bulundurularak gözenekli müllit seramiklerin hangi üretim yöntemi ile gerçekleştirileceği belirlenmektedir. Gözenekli malzemelerin üretiminde kullanılmakta olan yöntemler Şekil 1.2’de verilmiştir.



Şekil 1.2 : Gözenekli seramiklerin üretim yöntemleri

İstenen performansa sahip köpük seramik üretimi için; polimer altlık seçimi, seramik çamur hazırlama ve daldırma, kurutma, organiklerin yapıdan uzaklaştırılması ve seramik yapının sinterlenmesi aşamalarını kapsayan ısı işlemler gibi pek çok süreç aşamalarının optimize edilmesi gerekmektedir.

Bu tez çalışmasında gözenekli seramik üretim yöntemlerinden polimerik sünger yöntemi kullanılmıştır. Polimerik sünger yöntemiyle üretilen seramik malzemelerde gözenek miktarı oldukça yüksektir (~%70-95) [11]. Polimerik sünger yönteminin uygulanmasında poliüretan (PU), polivinil klorid (PVC), polystiren (PS) ve selüloz

gibi çeşitli sünger türleri açık gözenekli seramik malzeme üretimi için uygundur bu tez çalışmasında tercih edilen sünger türü poliüretandır.

Polimerik sünger yönteminde nihai seramik malzemenin sinterlenmesi için gereken sıcaklığın altındaki sıcaklıklarda, gözenek oluşturucu yapı olarak kullanılan süngerin yanıp seramik yapıdan uzaklaşması gerekmektedir. Poliüretan süngerin tercih edilmesinin nedeni ise nispeten düşük sıcaklıklarda yapıdan kolayca uzaklaştırılabilmesidir. Polimerik sünger yöntemiyle polimerik gözenekli yapının üzerine kaplanacak seramik çamur; seramik partiküller, su ve çeşitli reolojik katkı maddelerinden oluşmaktadır. Seramik partiküller uygulama alanına ve nihai ürünün arzu edilen özelliklerde olmasına yönelik seçilirler. Örneğin, sıvı metal filtrasyonunda kullanılacak bir seramik filtre üretimi için yüksek sıcaklıklara ve sıvı metalin kimyasal etkilerine karşı dayanıklı müllit gibi seramik malzemeler seçilir.

Yapılan literatür taramalarında polimerik sünger yöntemi ile üretilen gözenekli seramiklere örnek olarak; kordiyerit, müllit, silisyum karbür, alümina, zirkonya ve bazı kompozit sistemler; SiC-alümina, alümina-zirkonya, alümina-müllit, müllit-zirkonya verilebilir [46-56].

1.4 Kaolenden Müllit Oluşumu

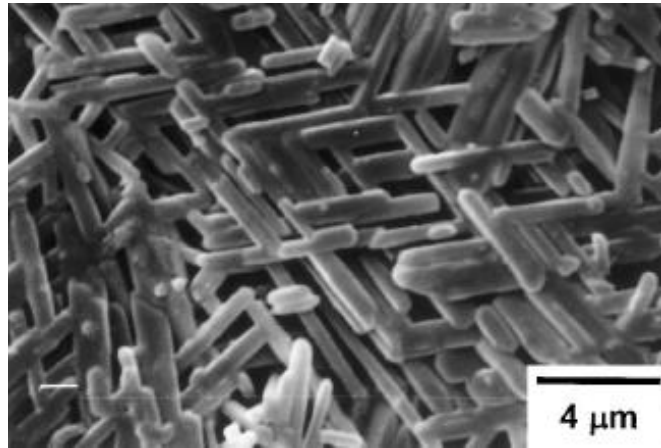
Kaolen seramik malzemelerin üretiminde yüzyıllardır kullanılmakta olan ve nispeten saf bir kildir [31]. Kaolen yüksek sıcaklıklarda sinterlendiğinde elde edilen ana faz müllittir [31-33]. Müllit yüksek sıcaklıklarda oldukça kararlı bir fazdır. Isıl genişlemesi ve dielektrik kaybı düşüktür. Isıl ve elektriksel izolasyon malzemelerinin üretiminde yaygın bir kullanıma sahiptir. Müllit latisinde Si^{+4} ve Al^{+3} iyonlarının difüzyon hızları oldukça düşüktür. Dolayısıyla da reaksiyon ile müllit oluşumunun kinetiği önemli ölçüde kullanılan başlangıç malzemelerine bağlıdır. Al_2O_3 ve SiO_2 kullanarak müllit üretilirken $1650^{\circ}C$ 'nin üzerinde sıcaklıklara çıkılması gerekmektedir. $\gamma-Al_2O_3$ tozlarının yüzeyine amorf SiO_2 kaplandığında müllit oluşum sıcaklığı $1300^{\circ}C$ 'ye kadar düşebilmektedir. Sol-jel gibi alüminyum, silisyum ve oksijenin atomik mertebede karıştırıldığı bir yöntemde ise müllit oluşum sıcaklığı $1150^{\circ}C$ civarına kadar düşebilmektedir. Bu yöntemler göz önünde bulundurulduğunda kaolenden müllit eldesi oldukça ekonomik bir yöntem olması dolayısıyla önemli bir potansiyele sahiptir. Kaolen kullanımının getirdiği ekonomikliğin yanı sıra kaolenin müllit oluşumu için nispeten düşük oluşum sıcaklığı sağlaması ve oldukça iyi bir mikroyapı eldesine olanak tanınması da diğer

önemli avantajlarıdır. Kaolenden müllit elde edildiği sıcaklık sol-jel ile müllit elde edilme sıcaklığına yakın bir sıcaklıktır. Bununla birlikte kaolenden müllit eldesi sırasında yapıda fazla miktarda sıvı faz bulunması nedeniyle müllit taneleri çubuksu formda oluşmaktadır [33]. Şekil 1.3'te 1600°C'de 1 saatte sinterlenerek üretilen müllit seramiğine ait SEM görüntüsü verilmiştir.

Kaolenden müllit elde edilmesi sürecinde yapıda çeşitli reaksiyonlar meydana gelmektedir. Kaolinit ısıtılınca meydana gelen kristalleşmelere bağlı olarak elde edilen eğrilerden güçlü endotermik pik 550°C civarında, güçlü ekzotermik pik ise yaklaşık 950°C'dedir. Metakaolinin çok az miktarda müllite, spinel ve serbest silika yapıya dönüşmesi yaklaşık 950°C civarındadır. Metakaolenin ısıtma sonucunda alüminyum silisyum spinel ve ilave SiO₂'ye ayrıştığı ileri sürülmüştür [57]. Müllit kaolinitten yaklaşık 1050°C'nin üzerindeki sıcaklıklarda oluşur. Kaolinitten müllit oluşumu reaksiyonları aşağıda gösterilmiştir [34].



Sistemde sıvı fazın varlığı durumunda çubuksu müllit tanelerinin oluşumu da kolaylaşmaktadır.

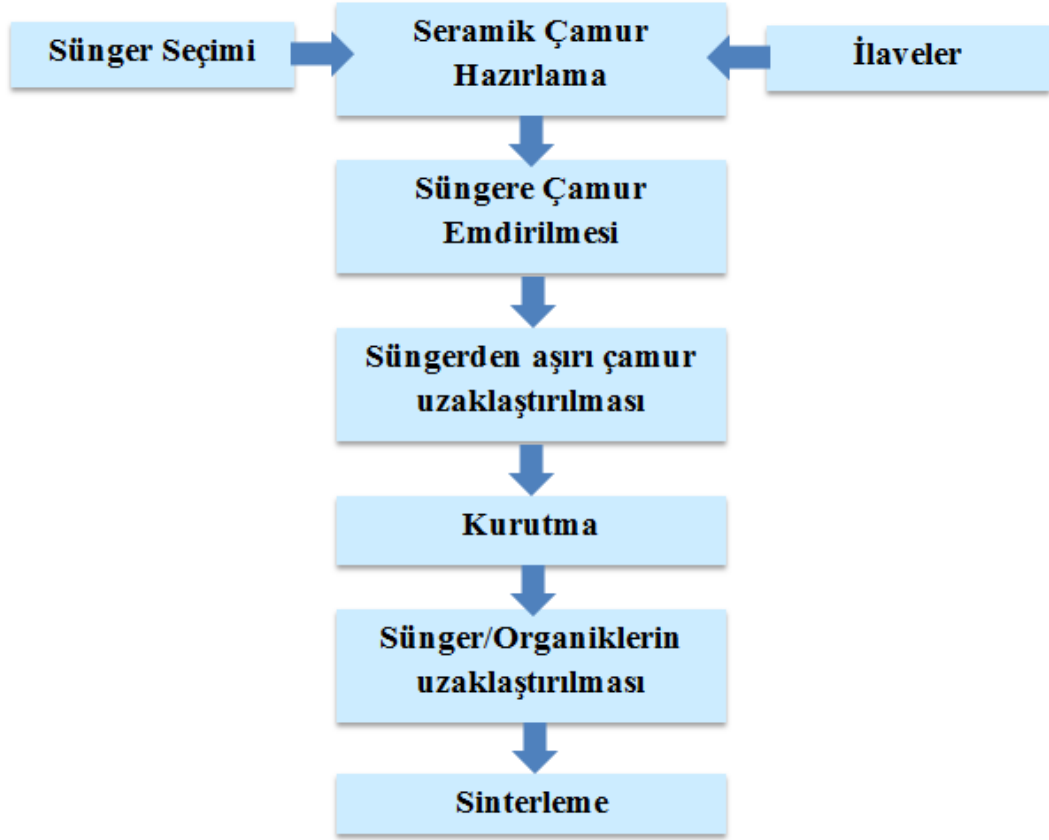


Şekil 1.3 : 1600°C'de 1 saatte sinterlenerek üretilen müllit seramiğine ait SEM görüntüsü (Camsı faz dağlamayla uzaklaştırılmış) [33].

1.5 Polimerik Sünger Yöntemi

Polimerik sünger yöntemi yüksek oranda gözeneklilik içeren müllit seramiklerinin üretilmesinde sıklıkla tercih edilen bir yöntemdir. Açık gözenekli malzeme üretiminde en verimli sonuç alınan yöntemlerden biridir.

Polimerik sünger yöntemi ilk olarak Schwartzwalder ve arkadaşları tarafından 1963 yılında bilim dünyasına sunulmuştur [36]. Şekil 1.4'de polimerik sünger yönteminin basamaklarını gösteren genel bir akış şeması verilmektedir. Bu teknikte polimerik süngere bir seramik çamuru emdirildikten sonra organiklerin yanmasını ve seramik yapının sinterlenmesini sağlamak amacıyla bir ısı işlem uygulanır. İstenen performansa sahip köpük ürünün elde edilebilmesi için pek çok basamağın özenle gerçekleştirilmesi gerekir: Kullanılacak polimerik malzemenin seçimi, seramik çamurun hazırlanması çamur emdirme işlemi, kurutma, organiklerin uzaklaştırılması ve seramik yapının sinterlenmesi basamaklarını içeren ısı işlem süreci [36,37]. Çok çeşitli açık, yarı kapalı ve kapalı hücreli sünger malzemelerinin kullanılması mümkündür. Seçilen sünger malzemesinin gözenek boyutu pişirme sonrası meydana gelen çekme ile beraber seramik yapının gözenek boyutunu belirler. Sünger malzemesinin düşük sıcaklıklarda zararlı yan ürünler oluşturmaksızın buharlaşması istenir. Bununla birlikte süngerin kolayca yumuşaması ve yanması, yapıda önemli oranda kalıntı gerilme oluşturmaması ve sinterlenmemiş ağ yapısında şekil bozukluklarına yol açmaması istenir. Önemli diğer özellikler ise esneklik, su sevmezlik ve homojen bir şekilde kaplanabilme şeklinde sıralanabilir. Bu özellikleri sağlayan çok sayıda sünger malzemesi mevcuttur. Örneğin, poliüretan, selüloz, polivinil klorür, polistrin, lateks. Bazı durumlarda piroliz yöntemiyle seramik köpüklerin üretiminde süngerimsi polimerlerin (örneğin, polisilanlar, polikarbosilanlar) de kullanılabildiği bilinmektedir. Piroliz edilen bu gözenekli ağsı yapılara daha sonra kompozit köpük üretmek için seramik çamur emdirilmektedir [38,39].



Şekil 1.4 : Polimerik sünger yönteminin uygulama basamakları

Polimerik sünger yönteminde hedeflenen uygulama alanına uygun gözenek boyut ve dağılımına sahip polimerik süngerler seçilir. Bu yöntemde belirlenen bileşime sahip seramik çamur hazırlanıp polimerik sünger malzemesi bu çamurla doyurulur. Daha sonra fazla çamur süngerden uzaklaştırılıp, kurutma ve sinterleme çalışmaları gerçekleştirilerek istenen gözenek boyut ve dağılımına sahip nihai ürün elde edilmektedir. Yapılan literatür taramalarında polimerik sünger yöntemi kullanılarak silisyum karbür (SiC), alümina (Al_2O_3) ve müllit gibi farklı seramik malzemeler ile ya da örneğin SiC- Al_2O_3 , SiC-müllit, SiC-zirkonya gibi kompozit malzeme olacak şekilde üretimin mümkün olduğu gözlenmiştir [50-56].

Gözenekli müllit seramiklerin polimerik sünger yöntemiyle üretilmesi gözenek boyut ve dağılımının kontrollü olduğu yapıların üretilmesinde kolaylık sağlamaktadır.

2. MATERYAL VE YÖNTEM

2.1 Kullanılan Hammaddeler

Müllit sentezi için Esan'dan temin edilen CC31 kaolen ($\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 2\text{SiO}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$) kullanılmıştır. Kullanılan CC31 kaolenine ait kimyasal içerik Çizelge 2.1'de sunulmaktadır.

Çizelge 2.1 : CC31 kaolenin kimyasal bileşimi.

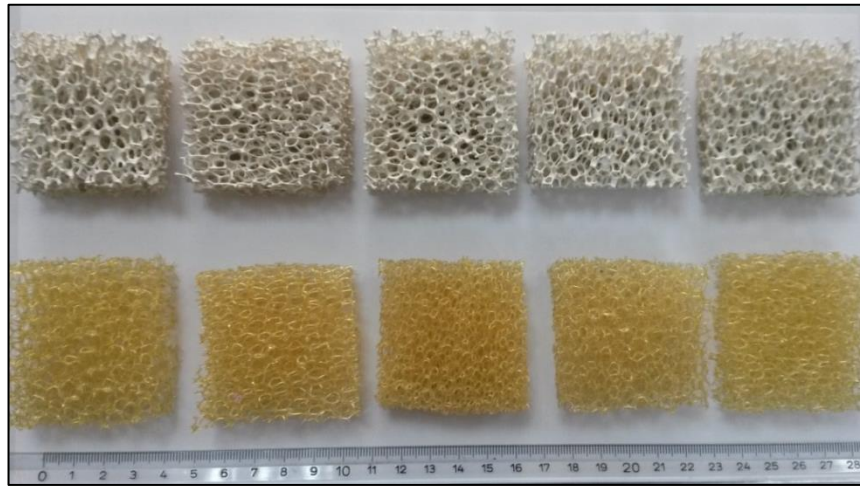
Seramik Malzeme	ağ. %
SiO_2	50,7
Al_2O_3	35,4
K_2O	2,5
Fe_2O_3	0,6
MgO	0,5
Na_2O	0,5
CaO	0,3
Diğer	9,5

2.2 Numune Hazırlama

Yüksek gözeneklilik içeren müllit seramik malzemelerin üretiminde polimerik sünger yöntemi tercih edilmiştir. Bu teknikte polimerik süngere bir seramik çamuru emdirildikten sonra şekillendirmek için kullanılan organiklerin yanmasını ve seramik yapının sinterlenmesini sağlamak amacıyla bağlayıcı giderme ve sinterleme ısı işlemleri uygulanır.

Polimerik sünger yönteminde hedeflenen gözenek boyut ve dağılımına sahip polimerik süngerler seçilmiştir. Bu yöntemde belirlenen bileşime sahip seramik çamur hazırlanıp, polimerik sünger malzemesi bu çamurla doyurulur. Daha sonra fazla çamur süngerden uzaklaştırılarak, kurutma ve sinterleme çalışmaları gerçekleştirilir. Böylece istenen gözenek boyut ve dağılımına sahip nihai seramik

ürünler elde edilmektedir. Gözenekli müllit seramiklerinin üretilmesi ile ilgili olarak polimerik sünger yönteminde en önemli parametrelerden biri hazırlanan seramik çamurun seçilen poliüretan süngere emdirilmesi işlemidir. Bu aşamada hazırlanan seramik çamurun reolojik özellikleri büyük önem arz etmektedir. Çalışma esnasında en iyi reolojik özellikleri gösteren seramik çamurun eldesi için çeşitli katı oranlarında çalışmalar yapılmıştır. İlk olarak %60 katı oranına sahip seramik çamur hazırlanmış ve poliüretan süngerlere emdirilmiştir. İlk yapılan denemelerde dağıtıcı olarak Darvan 7 kullanılmış fakat istenen reolojik özelliklere sahip ve katı içeriği %65 olan seramik çamur Darvan 7 kullanılarak hazırlanamamıştır. Bu sebeple yapılan literatür taramalarında benzer çalışmalarda sıklıkla tercih edildiği gözlenen Dolapix-CE64 dağıtıcı olarak kullanılmıştır. Kullanılacak Dolapix miktarını belirlemek amacıyla %0,6 – 0,8 – 1 oranlarında farklı denemeler yapılmıştır. En iyi sonuç %65 katı oranına sahip %0,8 Dolapix CE-64 içeriği ile elde edildiği gözlenmiştir. Belirlenen bileşimler Fritsch-Pulverisette 6 marka eksenel değirmende 400 devir/dk hızla, 45 dakika süreyle karıştırılarak istenen reolojik özelliklere sahip seramik çamurları hazırlanmıştır. Homojen olarak hazırlanan çamur farklı gözenek boyut ve dağılımına sahip poliüretan süngerlere emdirilmiştir. Emdirme işleminin tamamlanmasının ardından hazırlanan numuneler 24 saat oda sıcaklığında kurutulmuştur. Numune hazırlamada kullanılan polimerik sünger ve çamur emdirildikten sonra elde edilen numunelere ait temsili görsel Şekil 2.1’de sunulmaktadır.

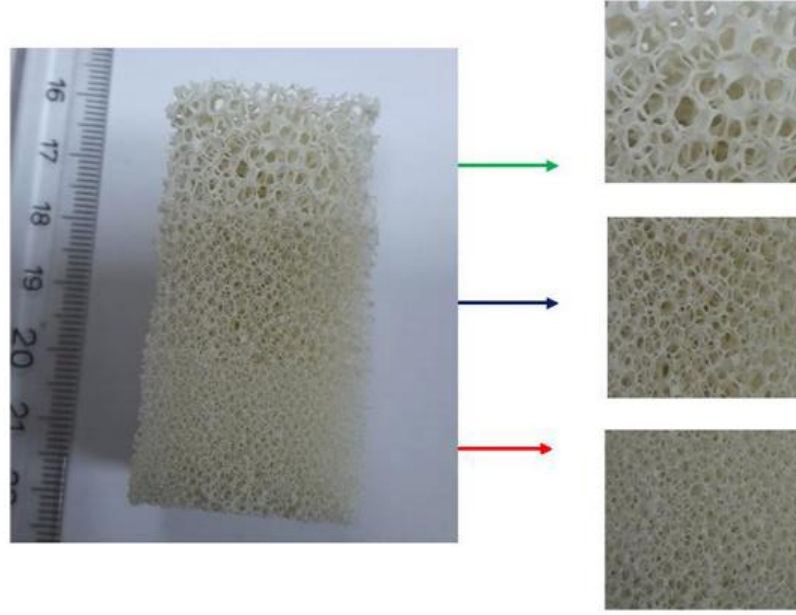


Şekil 2.1 : Kullanılan polimerik sünger ve çamur emdirildikten sonra kurutulmuş olan gözenekli seramik numunelere ait temsili görsel.

2.3 Fonksiyonel Aşamalı Seramik Malzemelerin Üretimi

Fonksiyonel aşamalı malzemeler (FAM) kavramı ilk kez 1980'lerin ortalarında kullanılmaya başlanmıştır [58]. Malzemeler biyolojik, kimyasal, geometrik ve fiziksel açıdan derecelendirilebilir. Bu derecelendirme çeşitleri malzeme boyunca birbirinden bağımsız katmanlar veya devamlı olarak yapılabilmektedir. Farklı fonksiyonları aynı anda bünyesinde bulundurabilme özelliğinden dolayı fonksiyonel aşamalı malzemelere duyulan ihtiyaç her geçen gün önemini arttırmaktadır. Fonksiyonel aşamalı malzemeler ilk olarak Japonya'da ısı bariyer kaplama malzemesi (TBC) olarak havacılık endüstrisinde kullanılmak üzere tasarlanmıştır. İlerleyen zamanlarda ise sağladıkları avantajlar nedeniyle FAM tasarımları farklı malzemelerde kullanılarak uygulama alanları genişletilmiştir. Makine parçaları, kesici takımlar, implantlar, enerji dönüşüm sistemleri, yarıiletkenler fonksiyonel aşamalı malzeme teknolojisinin kullanıldığı başlıca alanlardır [59-62]. Son yıllarda fonksiyonel aşamalı malzemeler üzerine yapılan çalışmalar daha çok malzemenin mekanik özelliklerini geliştirmeye yönelik çalışmalardır.

Seramik malzemelerde de fonksiyonel aşamalı olarak gözenekli malzeme üretimi yapılabilmektedir. Bu tez çalışmasında FAM üretimi için kullanılan yöntem polimerik sünger yöntemidir. Polimerik sünger yönteminde hedeflenen uygulama alanına uygun gözenek boyut ve dağılımına sahip polimerik süngerler seçilir. Farklı gözenek ve boyut dağılımına sahip olarak seçilen süngerlerin fiziksel veya kimyasal olarak farklı teknikler ile birleştirilmesi mümkündür. Böylece çamur emdirme öncesinde istenen fonksiyonel aşamalı bir yapı tasarlamak mümkündür. Bu tez çalışmasında farklı gözenek boyutlarına sahip süngerler fiziksel olarak birleştirilmiştir. Ardından da hazırlanan seramik çamur ile doyurularak FAM yapısına sahip gözenekli seramik bünyeler hazırlanmıştır. Numuneler oda sıcaklığında 24 saat kurutulduktan sonra bağlayıcı giderme ve sinterleme işlemleri gerçekleştirilmiştir. Yapılan literatür taramalarında gözenekli müllit seramiklerin polimerik sünger yöntemiyle fonksiyonel aşamalı olarak üretimine rastlanmamış olup bu çalışma literatürde ilk defa tarafımızca yapılmıştır, elde edilen bulgular yayınlanmıştır [63].



Şekil 2.2 : Fonksiyonel aşamalı müllit numunesi temsili görseli [63].

2.4 Sinterleme

Kaolenden müllit üretim sürecinde üç temel değişkenin özellikle morfoloji gelişimi üzerinde oldukça etkili olduğu gerçekleştirilmiş olan literatür çalışmaları ile belirlenmiştir. Bu değişkenler; sinterleme sıcaklığı, süresi ve hızıdır. Bu tez çalışması kapsamında 1300, 1400, 1500 ve 1600°C olmak üzere dört farklı sıcaklık; 1, 3 ve 5 saat olmak üzere 3 farklı sürede sinterleme çalışmaları gerçekleştirilmiştir. Isıtma ve soğutma hızı olarak ise 3 ve 5°C/dk olmak üzere iki farklı hız tercih edilmiştir.

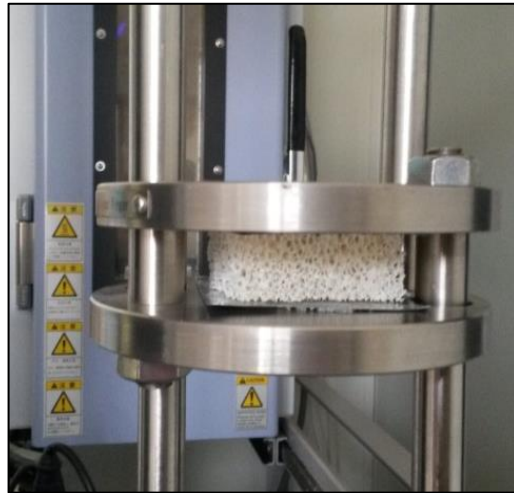
2.5 Karakterizasyon

Bu çalışma kapsamında gerçekleştirilen deneylerde Ürosan firmasından temin edilen 10, 20 ve 30 ppi polimerik sünger malzemeleri kullanılmıştır. Kullanılan sünger malzemelerinin çamur ile doyurulduktan sonra yapıdan uzaklaştırılması için uygulanacak olan ısıl işlem prosedürünü belirlemek üzere TG-DTA analizi gerçekleştirilmiştir. TG-DTA analizleri 700°C sıcaklığa kadar, 10°C/dk ısıtma hızında gerçekleştirilmiştir. Kaolenden müllit sentezinde reaksiyon sıcaklıklarının belirlenmesi amacıyla ise 10°C/dk ısıtma hızı ile 1400°C'ye kadar TG-DTA analizleri gerçekleştirilmiştir.

CC31 kaolen kullanılarak hazırlanan ve 1300-1600°C aralığında sinterlenen numunelerin faz bileşimleri XRD analizi ile belirlenmiştir. XRD analizleri Bruker marka D8 model X ışını kırınım cihazı ile yapılmıştır. X ışını kaynağı olarak Cu ($\lambda=1,5406 \text{ \AA}$) kullanılmıştır. Kalitatif faz tayini yapılacak olan numuneler önce halkalı kırıcıda toz haline getirilip, ardından da kuru halde 63 μm 'lik eleklerle elenerek hazırlanmıştır. Hazırlanan toz numunelerin XRD ölçümlerinde çekim hızı 1°/dk olarak seçilmiştir.

Müllit fazının oluştuğu gözenekli seramik bünyelerin mikroyapı incelemeleri Zeiss Supra 50 VP model taramalı elektron mikroskobu ile gerçekleştirilmiştir. Yapıda oluşan müllit fazının morfolojisini belirlemek üzere kırık yüzey SEM incelemeleri yapılmıştır. Kırık yüzeyi incelenecek olan numuneler altın paladyum (Au-Pd) alaşımıyla kaplandıktan sonra mikroskopta incelenmiştir.

Basma mukavemeti testleri Bursa Teknik Üniversitesi Lif ve Polimer Mühendisliği Bölümü bünyesinde bulunan Shimadzu marka mekanik test cihazı (10kN) kullanılarak gerçekleştirilmiştir. Basma mukavemeti testinde basma kuvveti 0,5 mm/dk hızda uygulanmıştır. Basma mukavemeti testi, 5 cm x 5 cm x 2 cm boyutlarında hazırlanan numuneler ile gerçekleştirilmiştir. Ölçümlerde daha sağlıklı sonuç alabilmek ve ölçüm sonuçlarının tekrarlanabilirliğini göstermek adına her numune grubu için 10'ar adet numune ile ölçüm yapılmıştır. Kullanılan deney düzeneği ve numunelerin yerleşimi ile ilgili temsili görüntü Şekil 2.3'de verilmiştir.



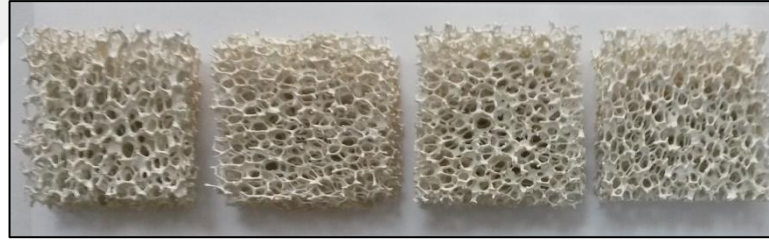
Şekil 2.3 : Basma testi deney düzeneği

Hazırlanan numunelerin sinterleme çekmesinin belirlenmesi amacıyla çalışmada kullanılan üç farklı gözenek boyut ve dağılımına sahip her numune grubu için 5 cm x 5 cm x 2 cm (uzunluk x genişlik x yükseklik) boyutlarında 10'ar adet numune hazırlanmıştır. Sinterleme çekmesi incelemelerinde kullanılan numunelere ilişkin görsel Şekil 2.4'de verilmiştir.

Hazırlanan numunelerde % küçülme hesaplarının gerçekleştirilebilmesi için uzunluk (L), genişlik (b), yükseklik (h) ve diagonal (d) olarak her boyut sinterleme öncesi ve sinterleme sonrası kumpas ile ölçülerek numunelerdeki % çekme miktarları hesaplanmıştır. Sinterleme çekmeleri aşağıda sunulan formül [1] yardımıyla belirlenmiştir.

$$\% \text{ Sinterleme çekmesi} = \left[\frac{(\text{İlk Uzunluk} - \text{Son Uzunluk})}{\text{İlk Uzunluk}} \times 100 \right] \quad [1]$$

Küçülmelerin üç boyutta da meydana geldiği için diagonal olarak alınan ölçüm sonuçları % küçülme miktarı olarak verilmiştir.



Şekil 2.4 : Sinterleme çekmesi incelemelerinde kullanılan numunelere ait temsili görsel

Üretilen gözenekli seramik malzemelerin yığınsal yoğunluğunun tespiti için Arşimet prensibinden yararlanılmıştır. Numunelerin kuru ağırlıkları 0,001 gram hassasiyetle terazide ölçüldükten sonra, saf su içerisinde 4 saat kaynatılıp, daha sonra asılı ve yağ ağırlıkları belirlenmiştir. Yığınsal yoğunluk (eşitlik) ve % açık gözenek (eşitlik) hesaplamaları aşağıda verilen [2] ve [3] bağıntıları kullanılarak gerçekleştirilmiştir. Yoğunluk ölçümünde kullanılan numunelere ait temsili görsel Şekil 2.5'de verilmiştir.

$$\text{Yığınsal Yoğunluk} = \frac{W_a}{W_c - W_b} \quad [2]$$

$$\% \text{ Açık gözenek miktarı} = \frac{W_c - W_a}{W_c - W_b} \quad [3]$$

W_a = Kuru numune ağırlığı

W_b = Asılı numune ağırlığı

W_c = Yaş numune ağırlığı

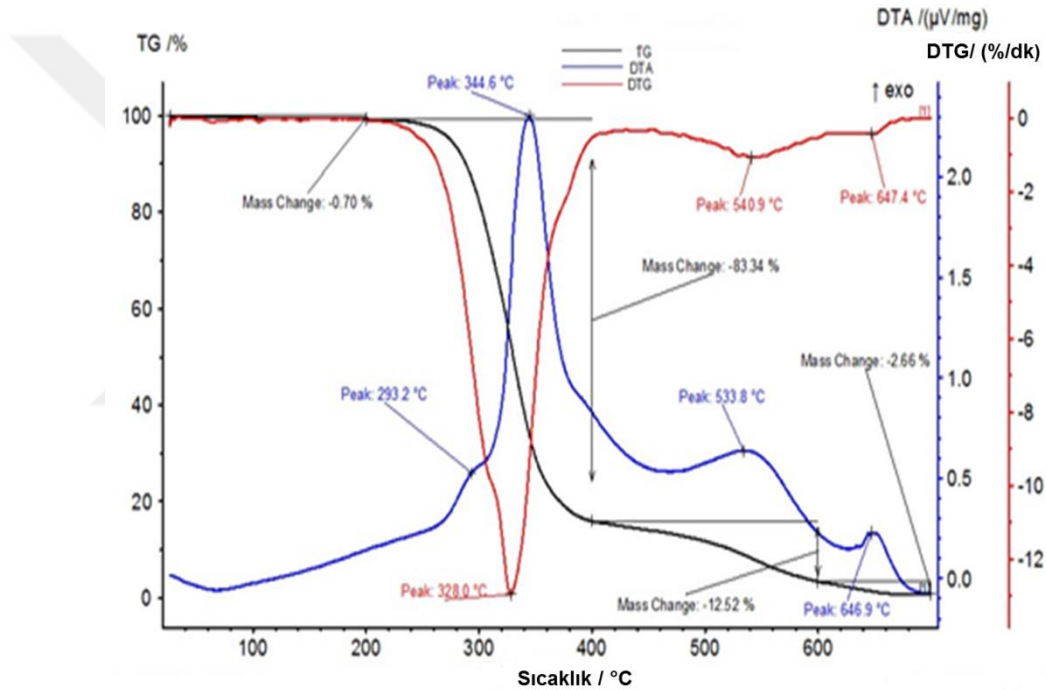


Şekil 2.5 : Yoğunluk ölçümünde kullanılan numunelere ait temsili görsel

3. DENEYSEL SONUÇLAR

3.1 TG-DTA Analizi Sonuçları

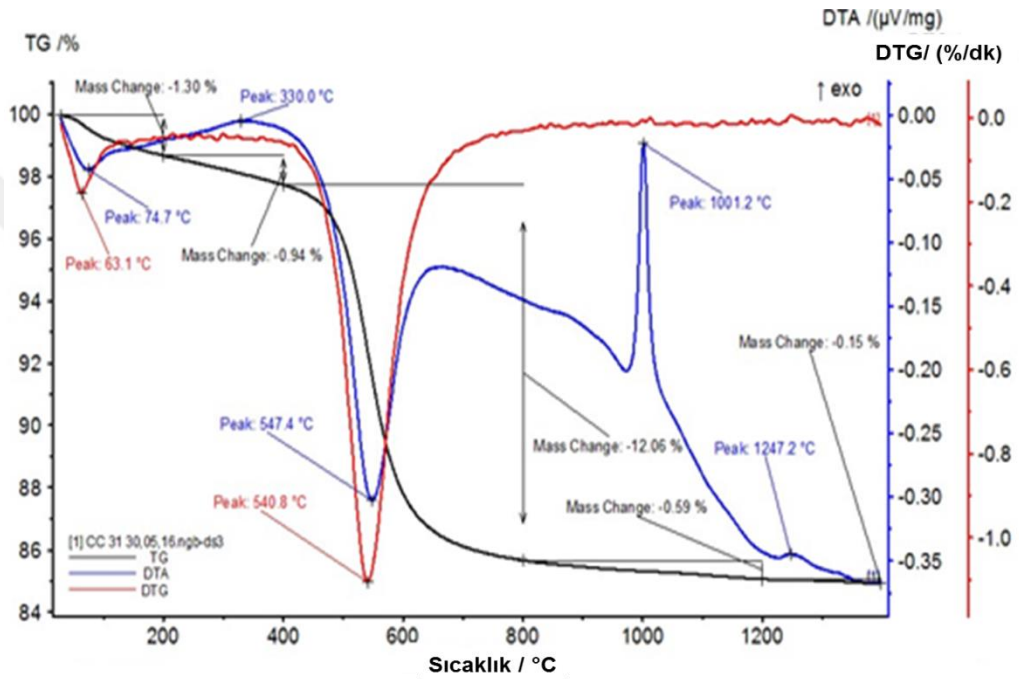
Deneysel çalışmalarda kullanılan süngere ait TG-DTA analiz sonucu Şekil 3.1’de sunulmaktadır. Görüldüğü üzere ~650°C’de sünger tamamen yanmaktadır.



Şekil 3.1 : Poliüretan süngerin TG-DTA analiz sonuçları

Müllit sentezinde kullanılan CC31 kaolinin ısıl davranışı TG-DTA ile incelenmiş olup elde edilen analiz sonucu Şekil 3.2’de verilmiştir. Gözlemlenen ilk endotermik pik (~75°C) nemin uzaklaşmasına, ikinci endotermik pik (~547°C) ise kaolinin dehidrasyonuna karşılık gelmektedir. Müllit fazının oluşumunu gösteren ekzotermik pik ~1001°C’de gözlemlenmiştir. Chakraborty ve Ghosh [64], müllit oluşumu sıcaklığını 980°C olarak, Chen ve arkadaşları [65] ise bu sıcaklığı ~1007°C olarak belirlemiştir.

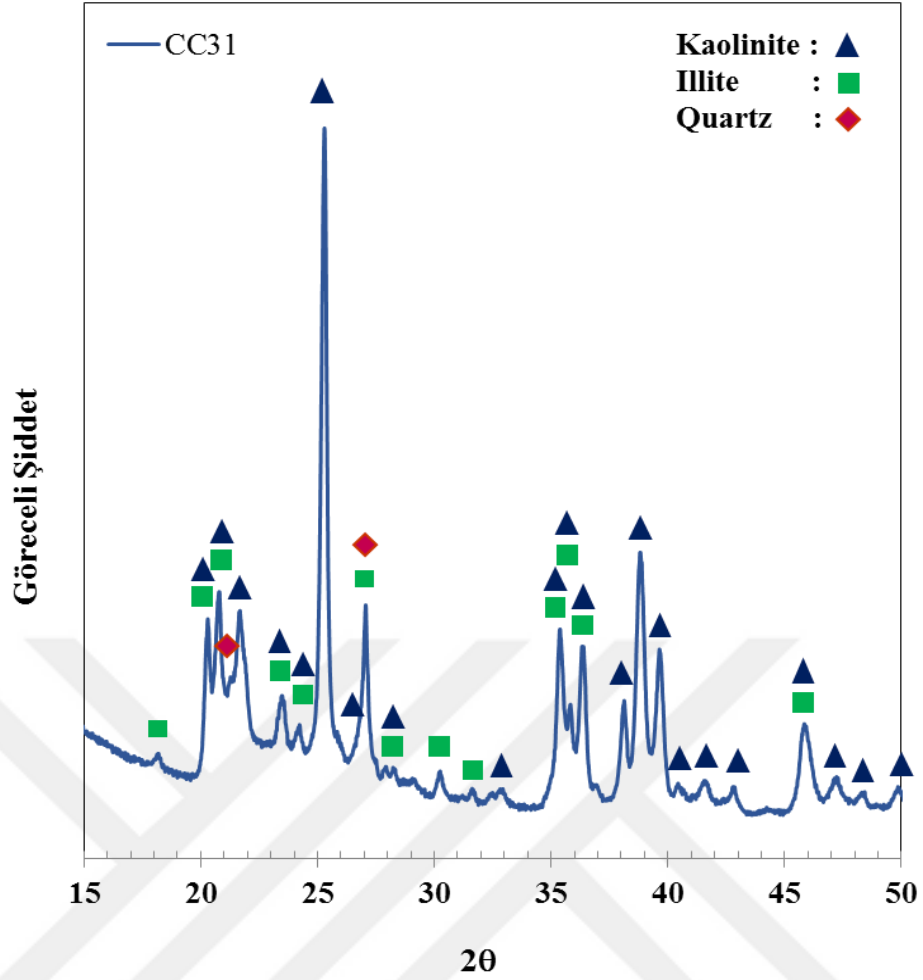
Kaolin-müllit reaksiyon serileri pek çok araştırmacı tarafından incelenmiş ve reaksiyon sıcaklıklarının ısıtma hızı, kaolinin kaynağı, safsızlık içeriği ve tane boyutu gibi bazı parametrelere bağlı olarak değiştiği gözlemlenmiştir [66-83]. Kaolinin tane boyutunun azalmasına bağlı olarak reaksiyon sıcaklıkları da düşmektedir. Kaolin, doğal bir hammadde olup bulunduğu yer ve oluşum koşullarına bağlı olarak safsızlık içeriği önemli oranda değişebilmektedir. Safsızlık olarak demir içeren bileşikler, serbest silika, killer ve çeşitli alkaliler kaolenin yapısında bulunabilmektedir. Safsızlık içeriğinin, müllit oluşumunun meydana geldiği sıvı fazın bileşimi ve viskozitesi üzerinde kayda değer etkileri vardır.



Şekil 3.2 : CC31 kaolenin TG-DTA analiz sonuçları

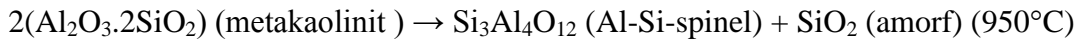
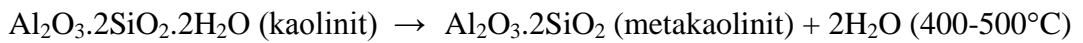
3.2 Faz Analizi Sonuçları

CC31 kaolenin XRD analiz sonucu (Şekil 3.3), yapıda kaolinit mineralinin yanısıra safsızlık olarak serbest kuvars ve illit fazlarının bulunduğu belirlenmiştir. Stokiyometrik kaolen içerisinde $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ 'ün ağırlık oranı yaklaşık olarak 1,179'dur. Bu tez çalışmasında kullanılan kaolenin kimyasal bileşimi kullanılarak bir hesaplama yapıldığında bu oranın yaklaşık olarak 1,432 olduğu belirlenmiştir. CC31 içerisindeki $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ oranı stokiyometrik kaolenin içerisindeki ağırlıkça orana göre oldukça yüksektir. Bu sonuç çalışmada kullanılan CC31 kaolen içinde serbest kuvars varlığına bağlı olarak ortaya çıkmaktadır. CC31 içerisinde safsızlık olarak yer alan illit fazı nedeniyle ise yapıda %2,4 oranında K_2O bulunmaktadır.

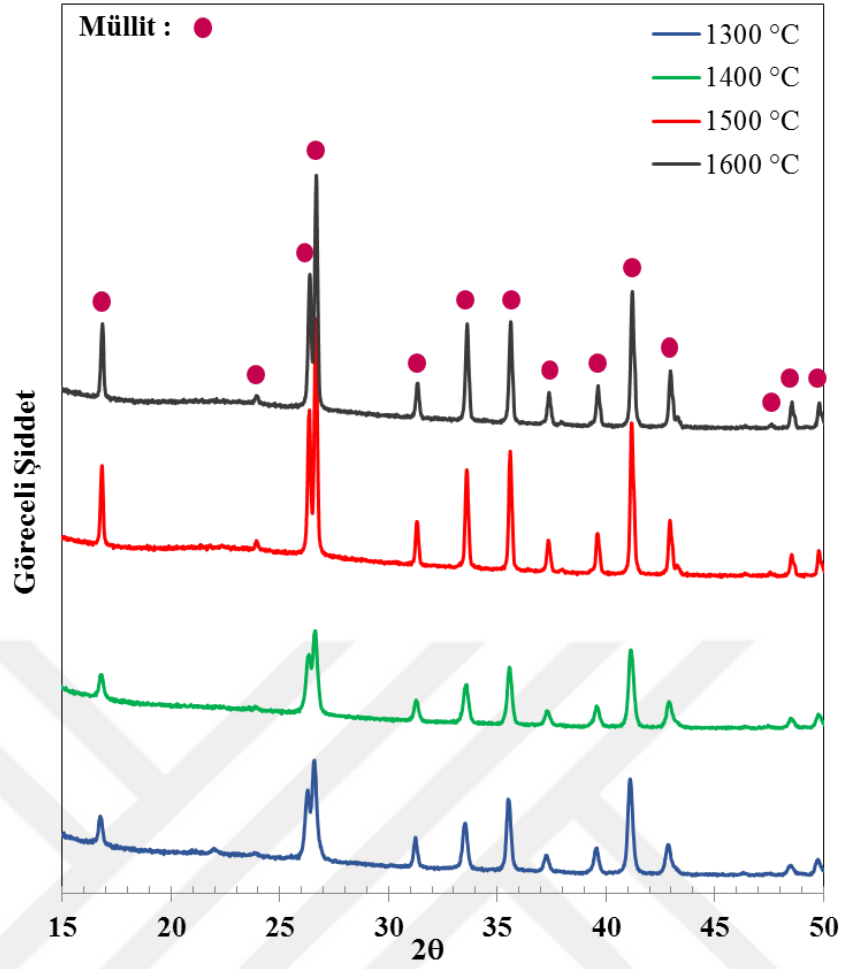


Şekil 3.3 : CC31 kaolenin XRD analiz sonucu

Müllit fazının tüm sinterleme koşullarında oluştuğu gerçekleştirilen XRD analizleriyle (Şekil 3.4) belirlenmiştir. Kaolinden müllit faz oluşumu aşağıda verilen reaksiyonlar ile gerçekleşmektedir:



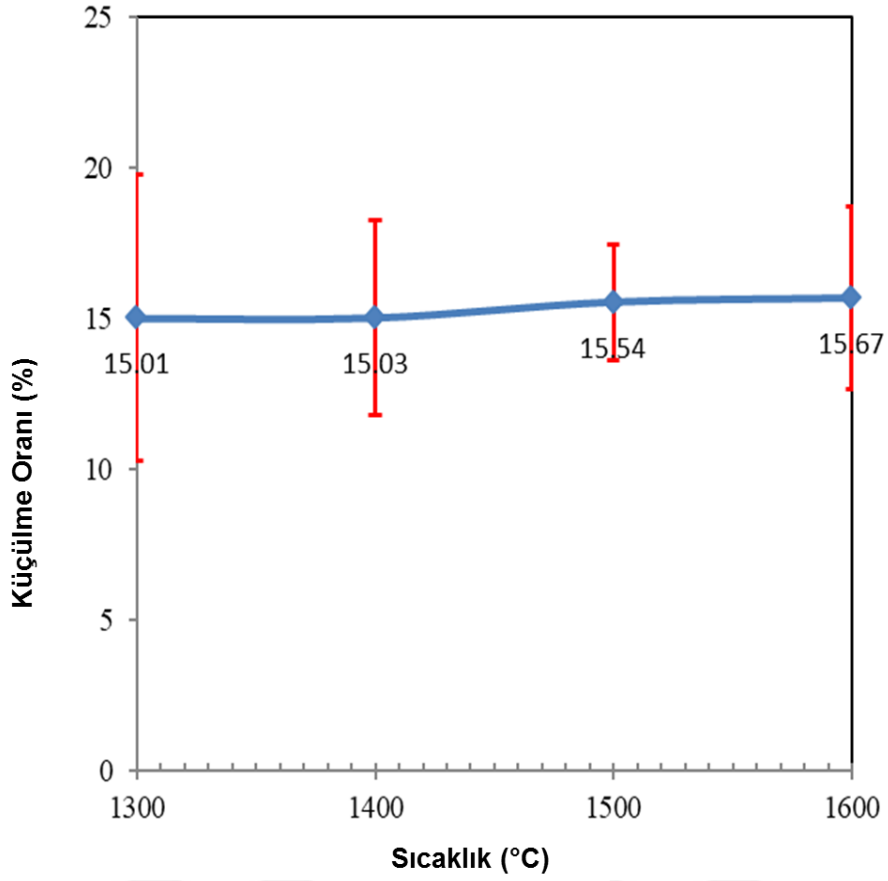
Kaolinit ısıtılınca meydana gelen kristalleşmelere bağlı olarak elde edilen eğrilerden güçlü endotermik pik 550°C civarında, güçlü ekzotermik pik ise yaklaşık 950°C'dedir. Metakaolinin çok az miktarda müllite, spinel ve serbest silika yapıya dönüşmesi yaklaşık 950°C civarında gerçekleşmektedir. Kaolinitten müllit oluşumu yaklaşık 1050°C'nin üzerindeki sıcaklıklarda gerçekleşmektedir.



Şekil 3.4 : Sinterlenmiş gözenekli numunelerin XRD analizi sonucu

3.3 Sinterleme Çekmesi Sonuçları

Sinterleme işlemi sırasında gözenekli seramik numunenin boyutlarında meydana gelen sinterleme çekmesi miktarı, numunelerin sinterleme işlemi öncesi ve sinterleme işlemi sonrası boyutlarının ölçülmesiyle hesaplanmıştır. Hazırlanan numunelerin 1300-1600°C’de sinterlenmesi sonucunda meydana gelen çekmelerin birbirine oldukça yakın olduğu ve ortalama sinterleme çekmesi değerinin ~% 15 olduğu belirlenmiştir. Şekil 3.5’de elde edilen ortalama sinterleme çekmeleri sunulmaktadır. Sinterleme sıcaklığı arttıkça görünür gözenek miktarı düşmekte ve yığınsal yoğunluk artmaktadır. Dolayısıyla hacimce ve çapça küçülme oranı da artmaktadır. Yapılan çalışmada, Şekil 3.5’de elde edilen ortalama sinterleme çekmeleri düşük miktarda da olsa sinterleme sıcaklığı arttıkça sinterleme çekmesinin arttığını göstermektedir.

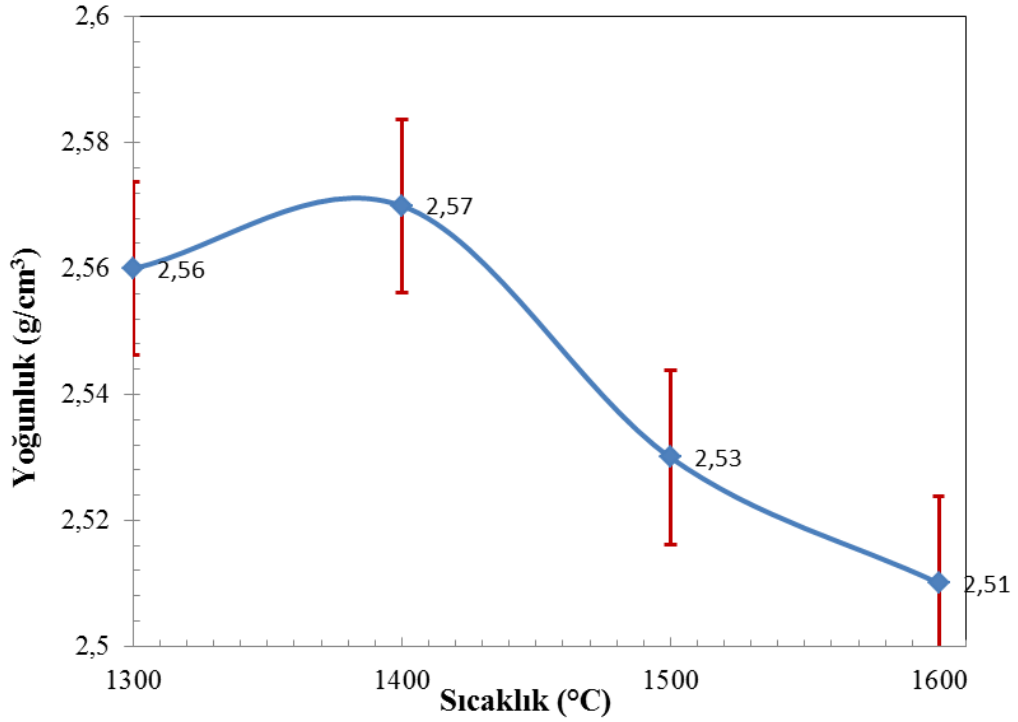


Şekil 3.5 : Sinterlenmiş gözenekli numunelerin sinterleme çekmesi sonuçları

Küçülme olayının doğrusal değil hacimsel olarak 3 boyutta gerçekleştiği dikkate alınarak doğru bir değerlendirme yapabilmek için sinterlenmiş gözenekli numunelerin diogonal olarak alınan ölçümler % küçülme olarak verilmiştir.

3.4 Yoğunluk Analizi Sonuçları

Literatür tarandığında müllit seramiğinin teorik yoğunluğunun $3,16 \text{ gr/cm}^3$ olduğu belirlenmiştir. Bu tez kapsamında üretilen numunelerin yoğunluk değerleri Şekil 3.6'da sunulmaktadır. Yoğunluk sonuçları irdelendiğinde, farklı koşullarda üretilen numunelerin gerçek yoğunluklarının $2,56\text{--}2,54 \text{ gr/cm}^3$ aralığında değiştiği tespit edilmiştir.



Şekil 3.6 : Sinterlenmiş gözenekli numunelerin yoğunluk ölçümü sonuçları

3.5 Basma Test Sonuçları

Polimerik sünger yöntemiyle hazırlanan, 1300-1600°C aralığında sinterlenen numunelere ait basma mukavemeti test sonuçları Şekil 3.7’de verilmiştir. Basma mukavemeti değerleri 0,18-0,24 MPa aralığında tespit edilmiştir. Artan sinterleme sıcaklığına bağlı olarak basma mukavemetinde az da olsa bir artış meydana geldiği gözlemlenmiştir.

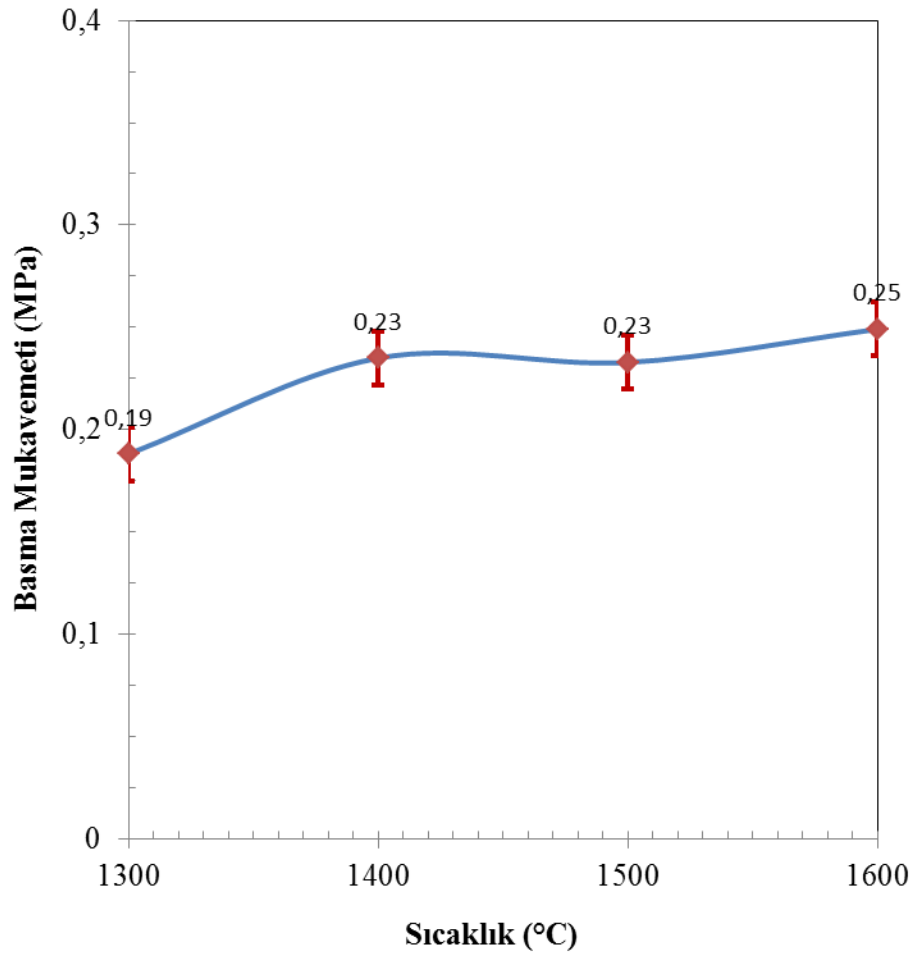
Literatürde, Gibson ve Ashby tarafından geliştirilen formüle;

$$\sigma_{cf} = C_1 \cdot \sigma_{fs} \cdot (pf/ps)^{3/2} \quad [4]$$

Köpük seramiklerin basma mukavemeti (σ_{cf}); birim hücre geometrik faktörüne (C_1), hücre duvarı (strut) mukavemetine (σ_{fs}), yığınsal yoğunluğa (pf) ve hücre duvarı (strut) yoğunluğuna (ps) bağlı olarak değiştiği ifade edilmiştir [84]. Formüle göre köpük malzemelerin basma mukavemetinin bağıl yoğunluğun (pf/ps) üssel kuvveti ile doğru orantılı olarak değiştiği görülmektedir. Polimerik sünger tekniğinin kullanılmasıyla elde edilen seramik numunelerin basma mukavemetlerinin incelenmesi ile ilgili yayınlanan bir çalışmada basma mukavemet değerinin 0,1 ile 3 MPa arasında değiştiği tespit edilmiştir [85].

Literatürde incelenen başka bir çalışmada 10 ppi ile 25 ppi gözenek yapısına sahip gözenekli seramik malzemede basma mukavemet değerleri sırasıyla 0,32 ve 0,79

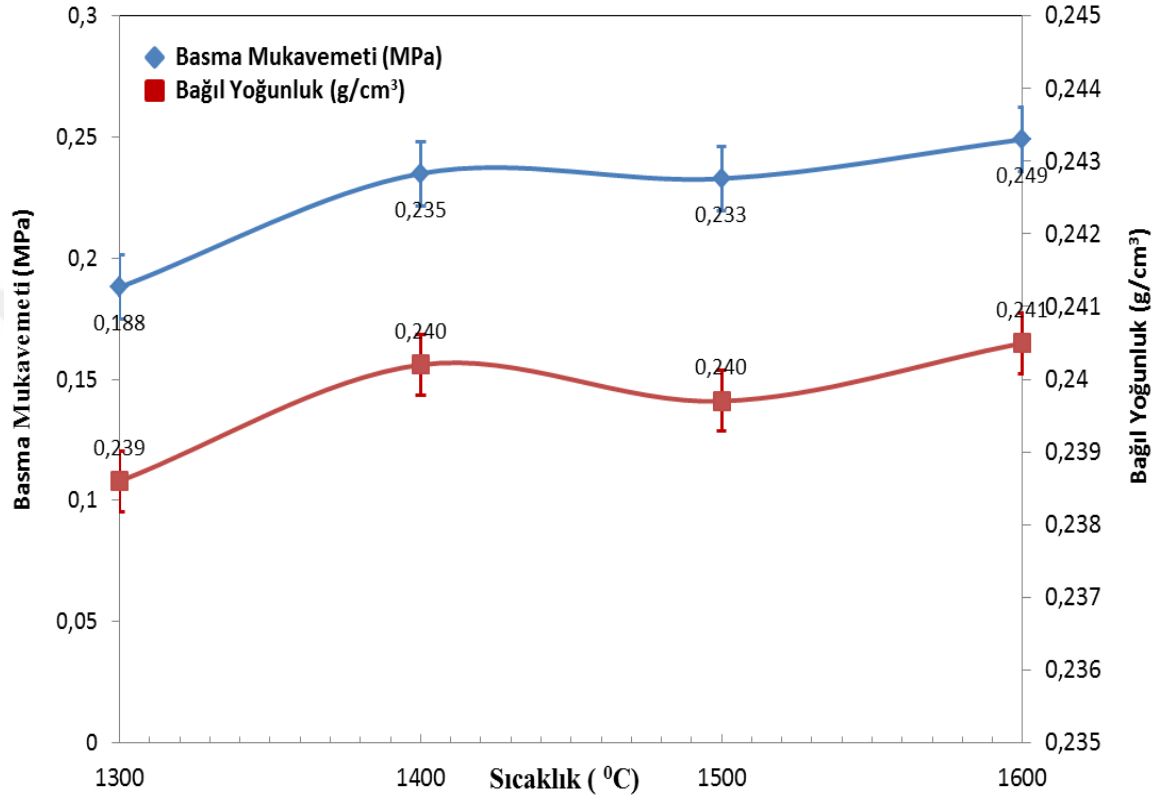
MPa olarak bulunmuştur. Gözenekli seramik yapıların basma mukavemeti ile ilgili çalışmalar değerlendirildiğinde basma mukavemeti değerinin 0,1 ile 3 MPa aralığında olduğu gözlenmiştir [85]. Gözenekli seramiklerdeki gözenek boyut ve miktarı arttıkça basma mukavemeti değerlerinin yüksek çıkması beklenmemektedir. Bu yüksek lisans tez çalışmasında 10-20-30 ppi gözenek yapısına sahip polimerik süngerler kullanarak, polimerik sünger yöntemi ile gözenekli müllit seramikleri üretilmiştir. Üretilen gözenekli müllit seramiklerinin basma mukavemeti değerleri 0,18-0,24 MPa aralığında tespit edilmiştir. Elde edilen sonuçların literatürdeki çalışmalar ile uygunluk gösterdiği bulgusuna ulaşılmıştır [85-87].



Şekil 3.7 : Sinterlenmiş gözenekli numunelerin basma mukavemeti test sonuçları

Farklı bir çalışmada, bu tez çalışmasında gözenekli seramik üretmek için kullanılan polimerik sünger yöntemi kullanılarak alümina, silisyum karbür ve kuvars hammaddeleri ile %76 katı oranında çalışılmış ve hazırlanan müllit esaslı solüsyondan 20 ppi yoğunluktaki poliüretan süngerler ile şekillendirilmiş numuneler 1070–1670°C sıcaklıklarda sinterlenmiştir. Bu çalışmada 20 ppi poliüretan süngerler

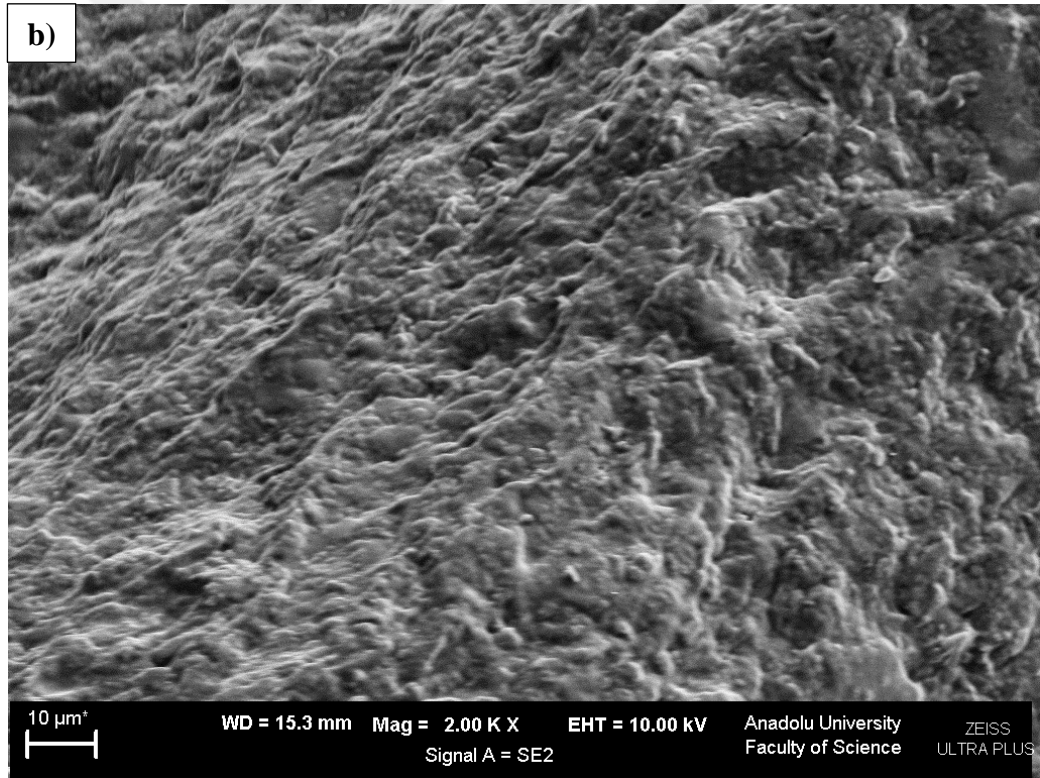
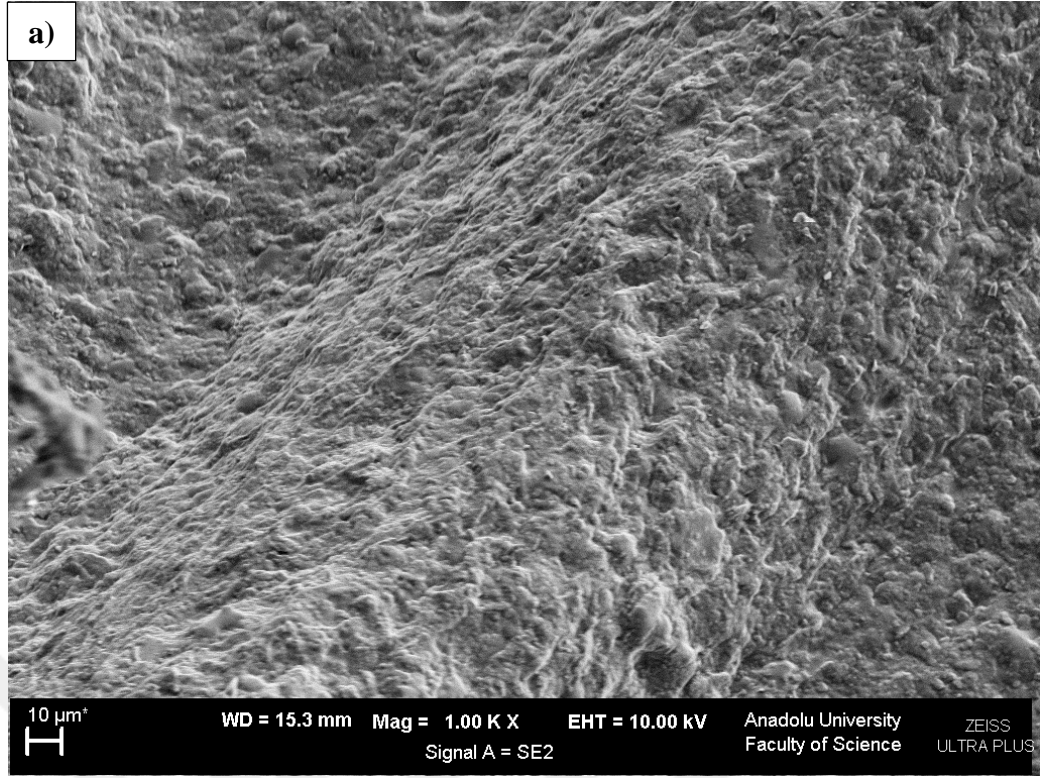
ile hazırlanan müllit numunelerin yığımsal yoğunluğu $0,21 \text{ g/cm}^3$ ve basma mukavemeti $0,429 \text{ MPa}$ olarak verilmiştir [88]. Deneysel olarak elde edilen basma mukavemeti sonuçlarının formülde verilen bağıntıdaki gibi bağıl yoğunluk ile orantılı değişim göstermesi gözenekli seramik numunelerinde basma mukavemetlerinin önemli derecede bağıl yoğunluğa bağlı olduğunu göstermiştir. Basma mukavemeti ve bağıl yoğunluk arasındaki ilişki Şekil 3.8’de sunulmaktadır.



Şekil 3.8 : Sinterlenmiş numunelerin basma mukavemeti-bağıl yoğunluk ilişkisi

3.6 Mikroyapı Analizi Sonuçları

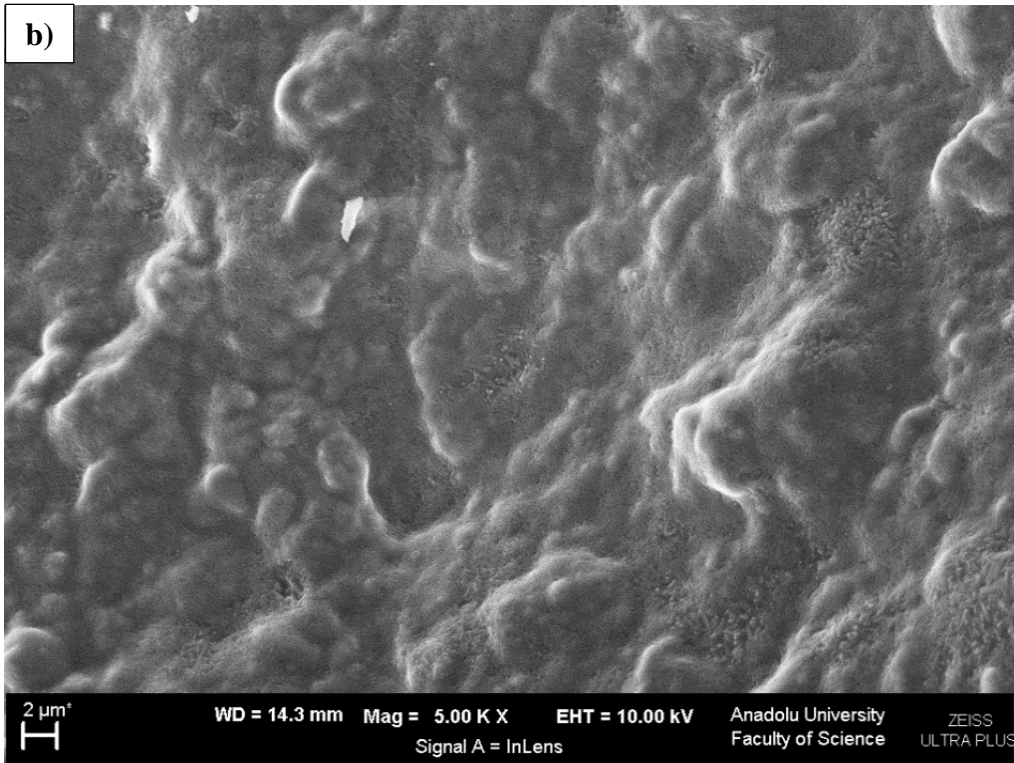
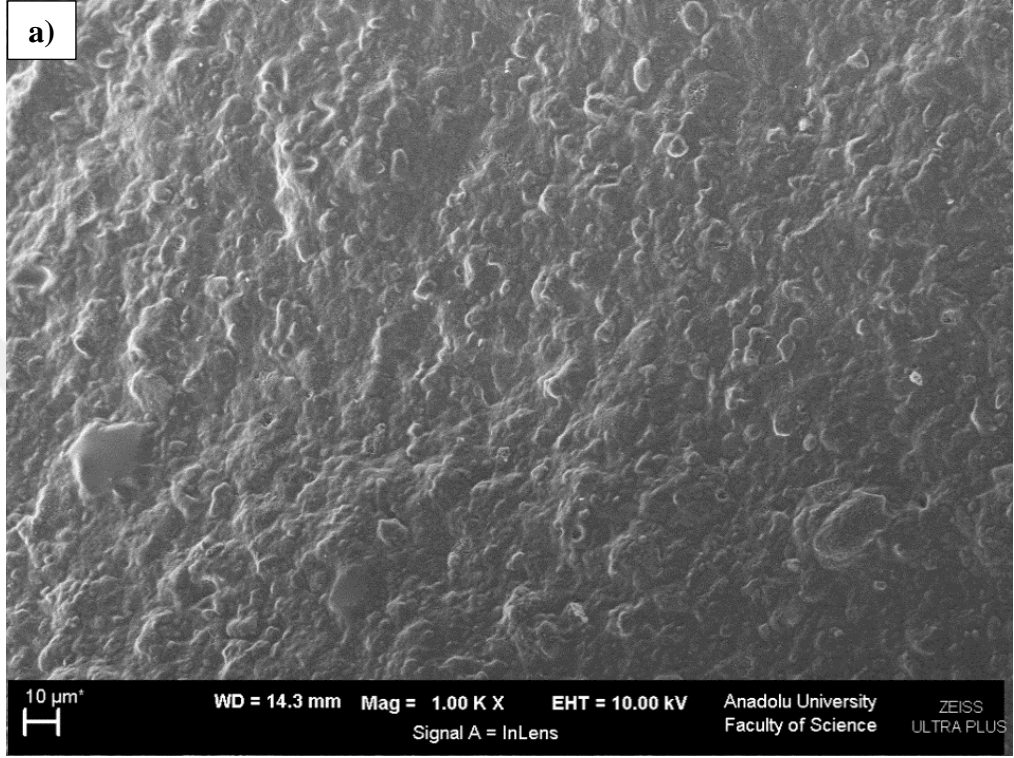
Gözenekli müllit örneklerinin kırık yüzeylerinin elektron mikroskobu ile incelenmesi sonucunda müllit tanelerinin mikroyapısal gelişiminin önemli ölçüde sinterleme sıcaklığı ve süresine bağlı olduğu gözlenmiştir. Hazırlanan gözenekli bünyelerin 1 saat boyunca 1300°C 'de sinterlenmesi sonucunda, eşeksenli müllit tane morfolojisi oluşumu gözlenmiştir. Şekil 3.9’da 1300°C 'de 1 saat sinterlenmiş müllit numunelerinin SEM analizi sonuçları verilmiştir.

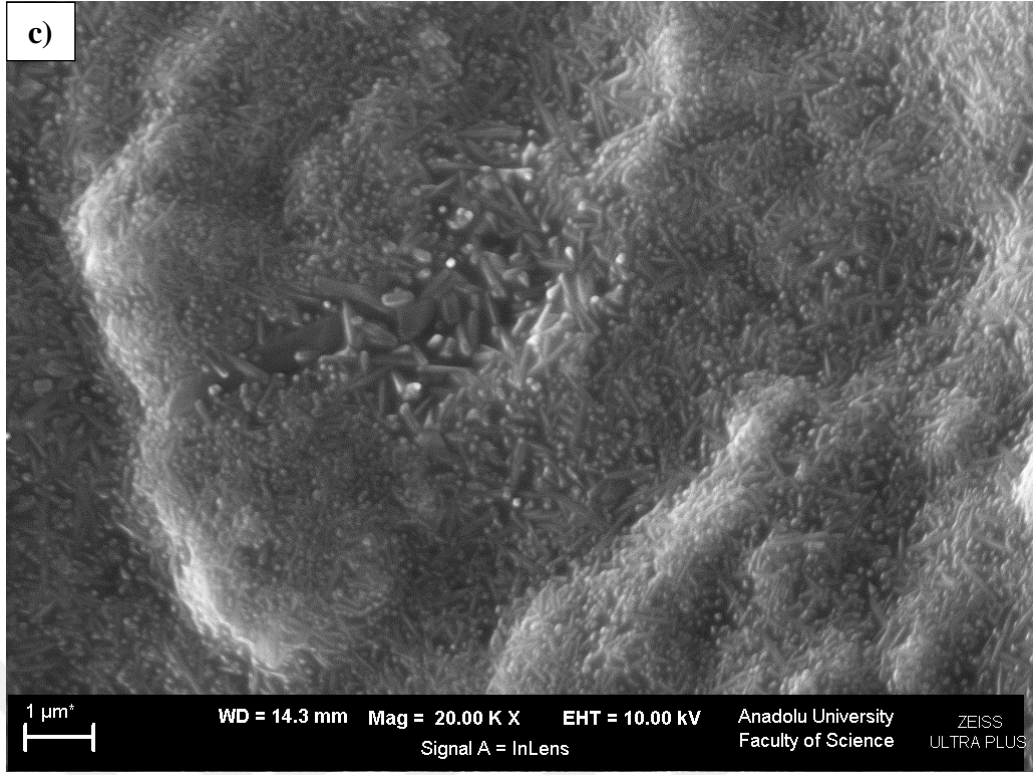


Şekil 3.9 : 1300 °C’de 1 saat sinterlenmiş gözenekli müllit numunesi SEM analizi (a) 1 kX ve (b) 2 kX

Sinterleme sıcaklığı 1400°C’ye yükseltildiğinde ise aynı sinterleme süresinde iğnemsiz tane morfolojisine sahip müllit oluşumunun gerçekleştiği belirlenmiştir.

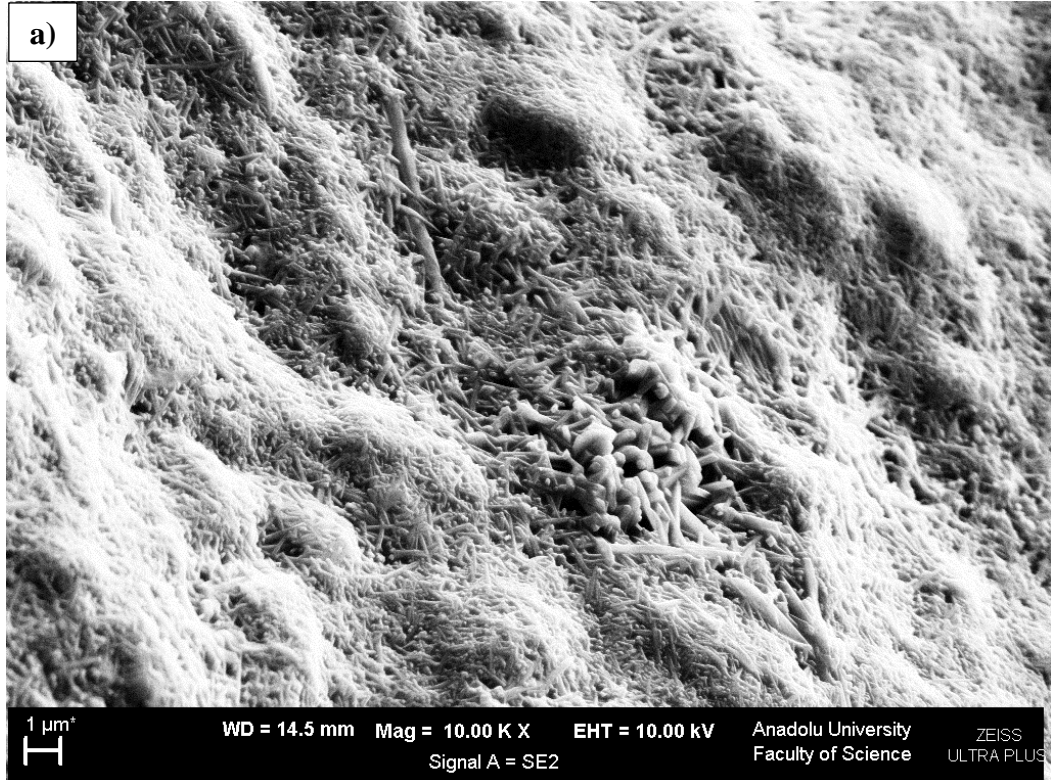
Söz konusu sinterleme sıcaklığında sinterleme süresinin 1 saatten 3 saate artırılması daha yüksek aspekt oranına sahip iğnemi tane morfolojisinin gelişmesini sağlamıştır. Sinterleme sıcaklığındaki artışın iğnemi tane morfolojisine sahip müllit gelişimine belirgin bir oranda katkıda bulunduğu gözlenmiştir. Şekil 3.10'da 1400°C'de 1 saat sinterlenmiş müllit numunesi SEM analizi sonuçları verilmiştir.

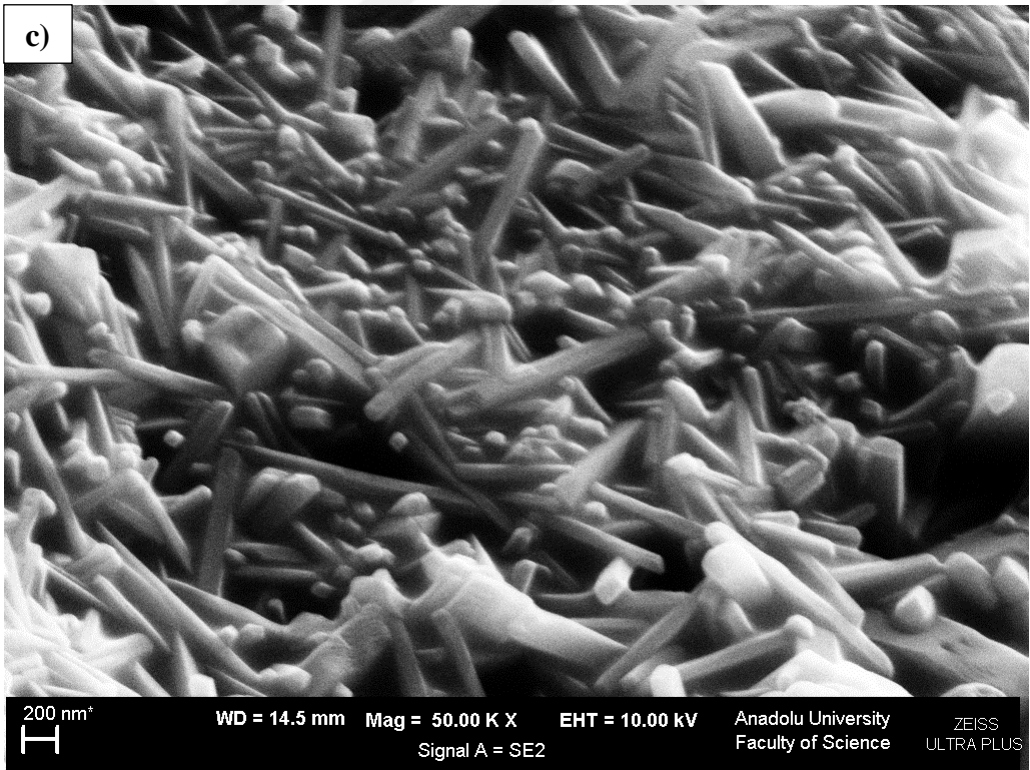
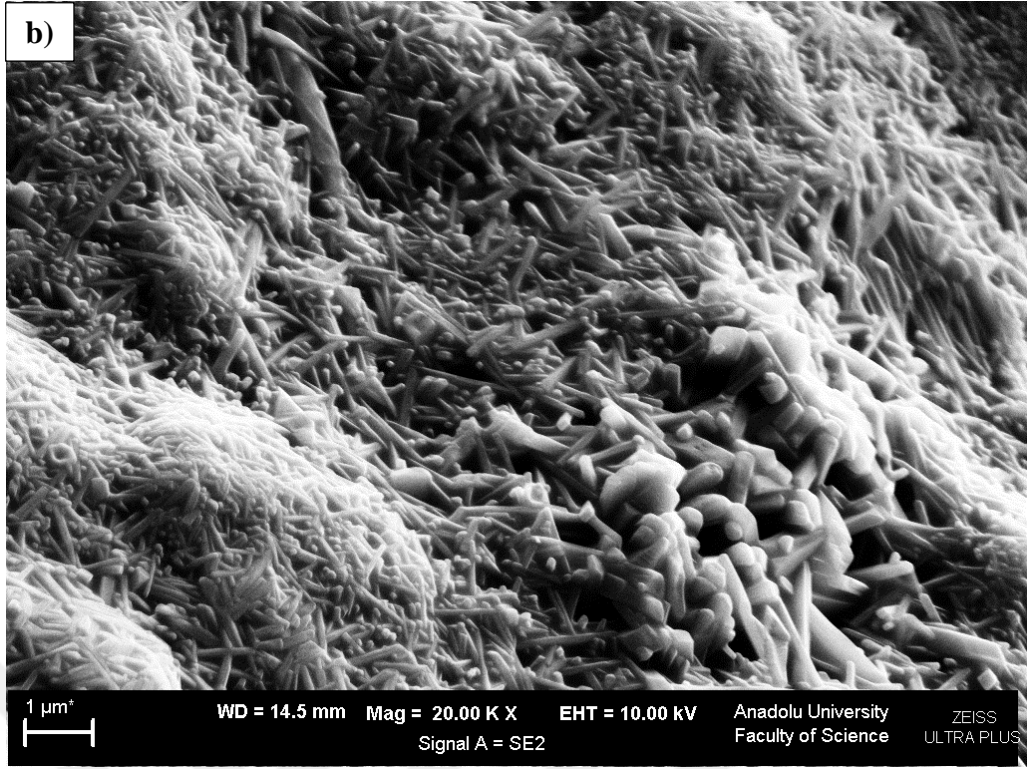




Şekil 3.10 : 1400°C’de 1 saat sinterlenmiş müllit numunesi SEM analizi (a) 1kX, (b) 5 kX ve (c) 20 kX

Numunelerde sözkonusu sinterleme sıcaklığında (1400 °C) sinterleme süresinin mikroyapıya etkisi incelenmiştir. Şekil 3.11’de 1400°C’de 3 saat sinterlenmiş müllit numunesi SEM analizi sonuçları verilmiştir

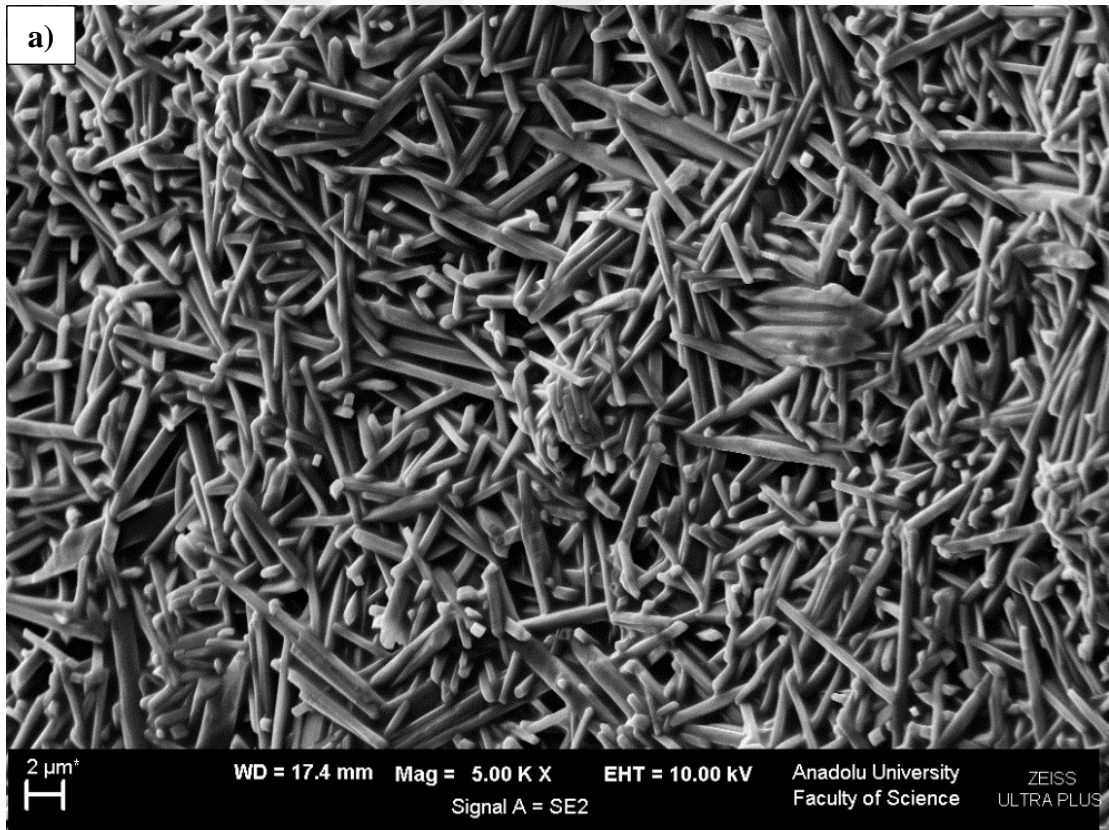


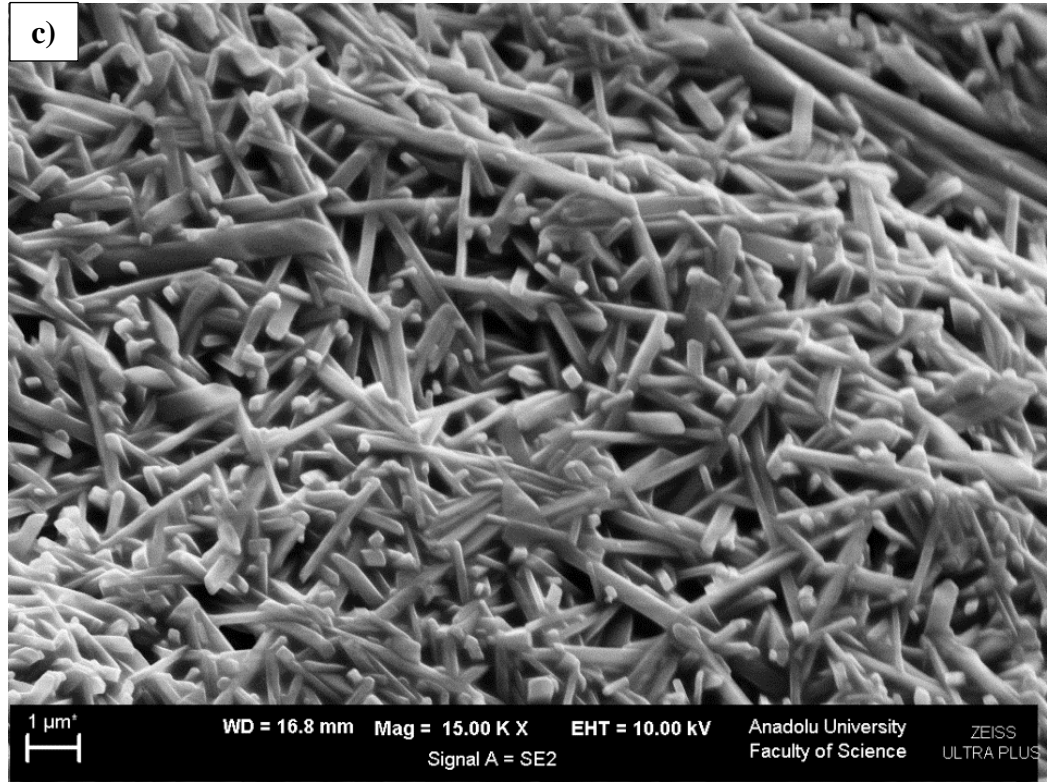
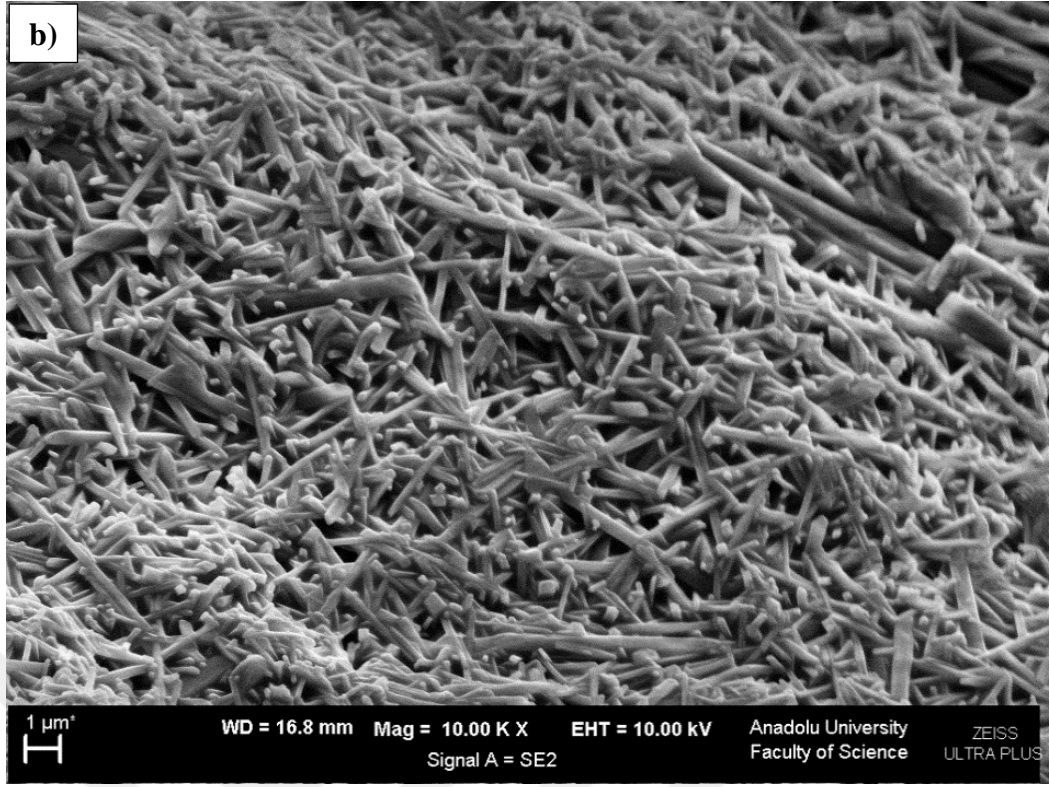


Şekil 3.11 : 1400°C’de 3 saat sinterlenmiş müllit numunesi SEM analizi (a) 10kX, (b) 20 kX ve (c) 50 kX

Müllit tane boyutu, morfolojisi, aspekt oranı ve bileşimi, başlangıç malzemelerinin türüne, safsızlık tür ve miktarlarına ayrıca uygulanan ısıl işlem koşullarına (sıcaklık, süre, ısıtma hızı vb) bağlıdır.

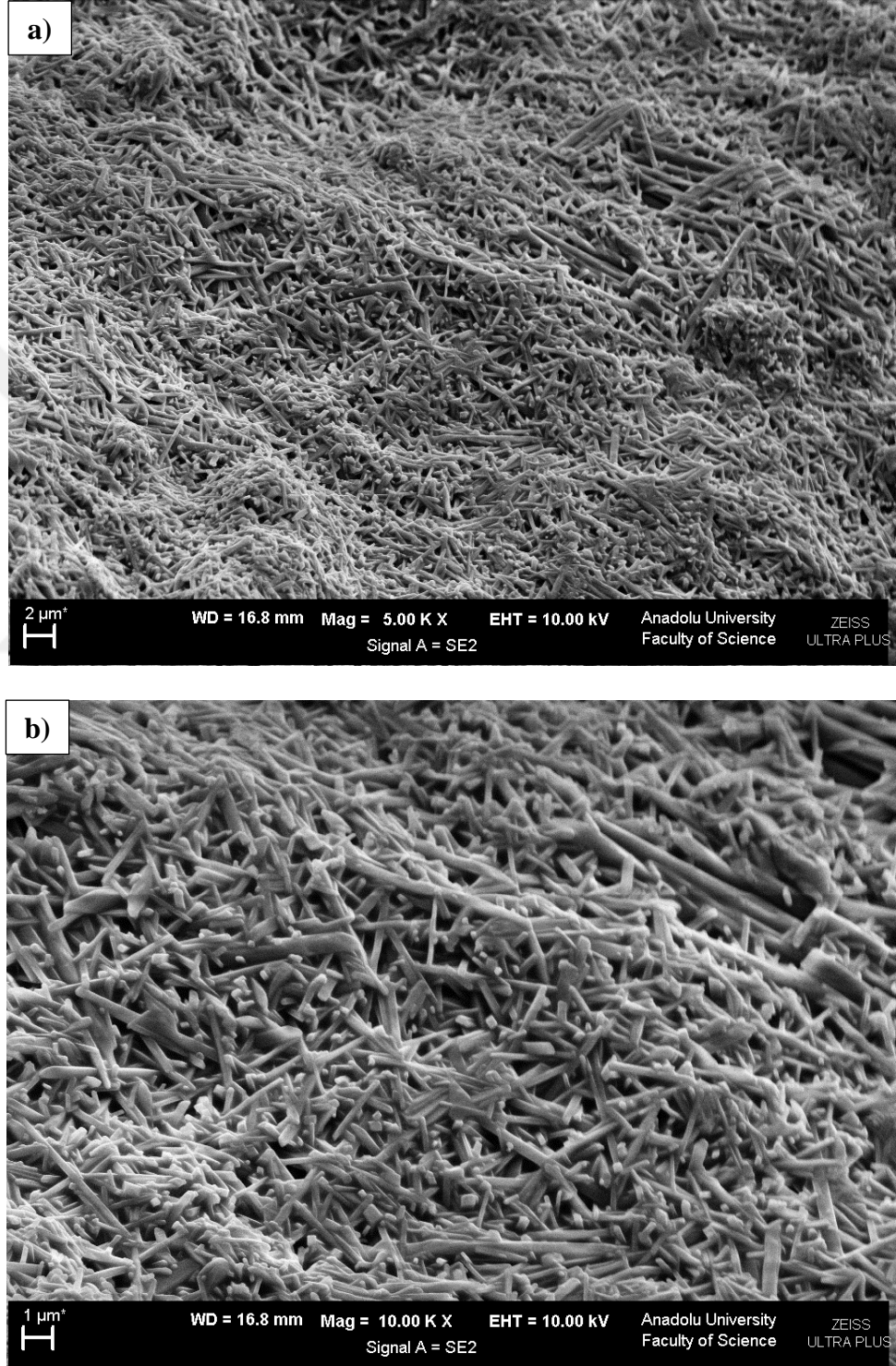
Serbest SiO₂ içeriğinin yanı sıra, CC31 kaolin K₂O, Fe₂O₃, MgO ve Na₂O ve CaO safsızlıkları içermektedir. Yüksek sıcaklıklarda sinterleme işlemi sırasında, bu oksitlerin yapıda camsı bir faz oluşturması muhtemeldir. Mikroyapı incelemeleri, müllit kristallerinin amorf bir camsı faza gömüldüğünü göstermektedir. Yüksek miktarda camsı fazın varlığı sistemde difüzyonu kolaylaştırarak daha yüksek aspekte oranına sahip iğnemi müllit tanelerinin gelişmesini teşvik etmektedir. Ayrıca artan sinterleme sıcaklığı veya süresine bağlı olarak sistemde oluşan sıvı fazın viskozitesi düşeceği için bu sıvı faz içerisinde kütle taşınımı çok daha kolay ve hızlı bir şekilde gerçekleşebilecektir. Bu nedenle sinterleme süresi veya sıcaklığı arttığında camsı fazın müllit tane morfolojisinin gelişimine etkisinin daha belirgin olduğu belirlenmiştir. Şekil 3.12'de 1500 °C'de 1 saat sinterlenmiş müllit numunesi SEM analizi sonuçları verilmiştir. Yapılan analiz sonuçlarına göre sinterleme sıcaklığı arttığında camsı fazın müllit tane morfolojisinin gelişimine etkisinin çok daha belirgin olduğu gözlenmiştir.





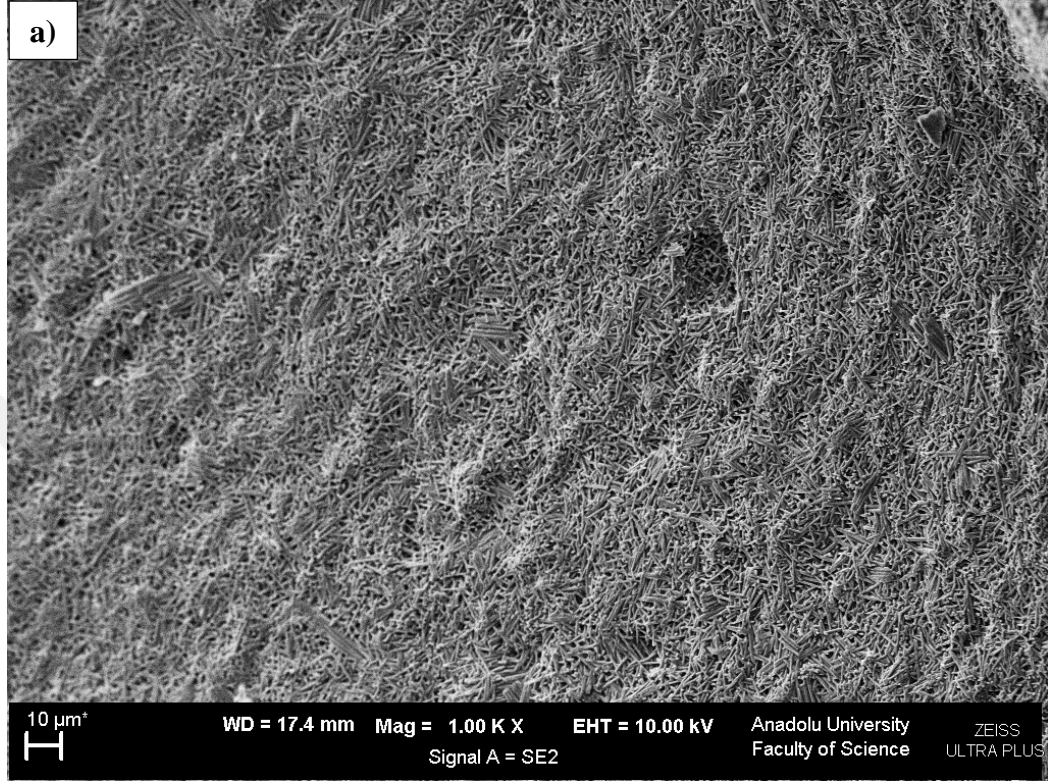
Şekil 3.12 : 1500°C’de 1 saat sinterlenmiş müllit numunesi SEM analizi (a) 5 kX, (b) 10 kX ve (c) 15 kX

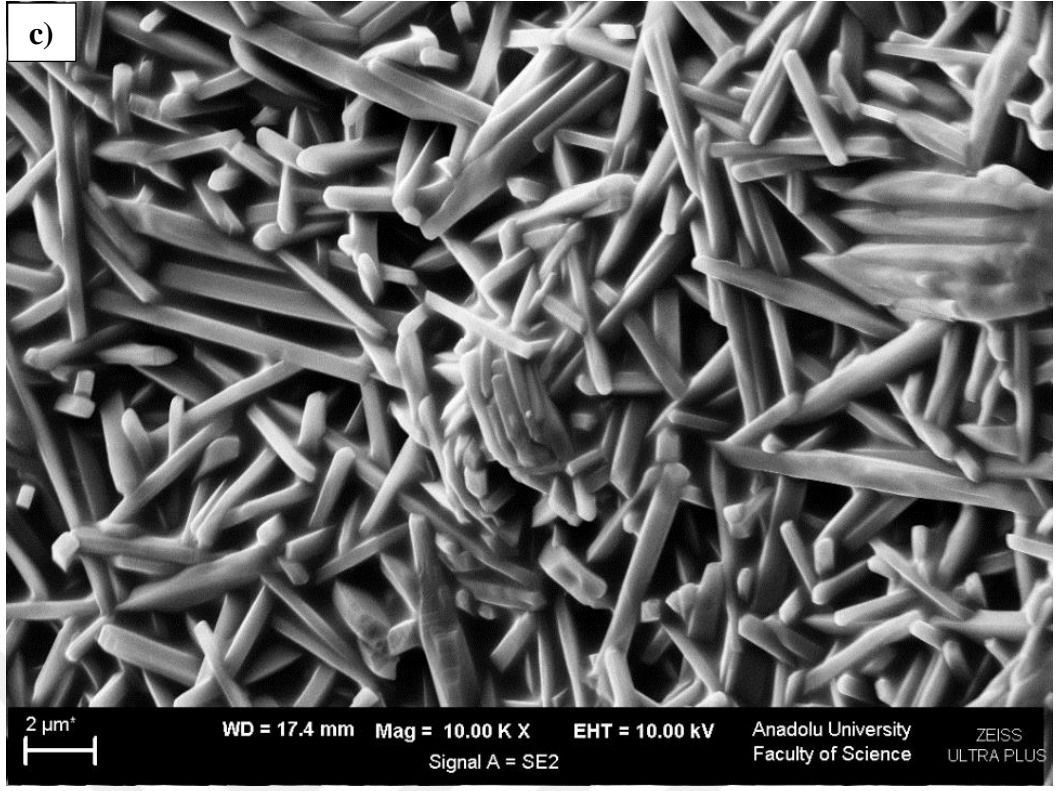
1500 °C’de 1 saat sinterlenmiş müllit numunesine ait farklı büyütmelerde SEM analizi sonuçları incelendiğinde analiz sonuçlarında ilgili sinterleme sıcaklığında iğnemi müllit tanelerinin geliştiği gözlenmiştir. Müllit tane oluşumlarında herhangi bir yönelme gözlemlenmemiştir. Yapıda oluşan iğnemi müllit taneleri Şekil 3.13’de belirgin bir şekilde görülmektedir.



Şekil 3.13 : 1500°C’de 1 saat sinterlenmiş müllit numunenin SEM analizi (a) 5 kX, (b) 10 kX

1600 °C'de 1 saat sinterlenmiş müllit numunesi SEM analizi sonuçları Şekil 3.14'de verilmiştir. Yapılan analiz sonuçlarına göre sinterleme sıcaklığı arttığında camsı fazın müllit tane morfolojisinin gelişimine etkisinin daha belirgin olduğu ve iğnemi müllit tanelerinin belirgin bir şekilde oluştuğu gözlenmiştir.





Şekil 3.14 1600°C’de 1 saat sinterlenmiş müllit numunesi SEM analizi (a) 1 kX, (b) 5 kX ve (c) 10 kX

4. SONUÇLAR VE ÖNERİLER

4.1 Sonuçlar

Ekonomikliği, müllit oluşumu için nispeten düşük oluşum sıcaklığı sağlaması ve oldukça iyi bir mikroyapı eldesine olanak tanınması avantajları nedeniyle çalışmada müllit eldesi için CC31 kaolen kullanılmıştır. Müllit sentezinde kullanılan CC31 kaolinin ısı davranışı TG-DTA ile incelenmiş olup müllit fazının oluşumunu gösteren ekzotermik pik $\sim 1001^{\circ}\text{C}$ 'de gözlemlenmiştir.

Kaolenden müllit üretim sürecinde özellikle sinterleme sıcaklığı, süresi ve hızı morfoloji gelişimi üzerinde oldukça etkilidir. Bu değişkenlerin morfoloji gelişimine katkısını inceleyebilmek için kaolenden müllit üretim sürecinde 1300, 1400, 1500 ve 1600°C olmak üzere dört farklı sıcaklık; 1, 3 ve 5 saat olmak üzere 3 farklı sürede sinterleme çalışmaları gerçekleştirilmiştir. Isıtma ve soğutma hızı olarak ise 3 ve $5^{\circ}\text{C}/\text{dk}$ olmak üzere iki farklı hız tercih edilmiştir.

Hazırlanan gözenekli bünyelerin 1 saat boyunca 1300°C 'de sinterlenmesi sonucunda, eşeksenli müllit tane morfolojisi oluşumu gözlenmiştir. Sinterleme sıcaklığı 1400°C 'ye yükseltildiğinde ise aynı sinterleme süresinde iğnemsiz tane morfolojisine sahip müllit oluşumunun gerçekleştiği belirlenmiştir. Sinterleme sıcaklığı 1500 ve 1600°C 'lere arttırılarak, artan sinterleme sıcaklığına bağlı olarak sistemde oluşan sıvı fazın viskozitesi düşeceği için bu sıvı faz içerisinde kütle taşınımı çok daha kolay ve hızlı bir şekilde gerçekleşecektir. Bu nedenle sinterleme sıcaklığı arttığında camı fazın müllit tane morfolojisinin gelişimine etkisinin daha belirgin olduğu sonucuna varılmıştır.

Hazırlanan numunelerin $1300-1600^{\circ}\text{C}$ 'de sinterlenmesi sonucunda meydana gelen çekmelerin birbirine oldukça yakın olduğu ve ortalama sinterleme çekmesi değerinin % 15 olduğu belirlenmiştir.

Literatür tarandığında müllit seramiğinin teorik yoğunluğunun $3,16 \text{ gr}/\text{cm}^3$ olduğu belirlenmiştir. Bu tez kapsamında üretilen numunelerin yoğunluk sonuçları

irdelendiğinde, farklı koşullarda üretilen numunelerin gerçek yoğunluklarının 2,56–2,54 gr/cm³ aralığında değiştiği tespit edilmiştir.

Yapılan çalışmada basma mukavemeti değerleri 0,18-0,24 MPa aralığında tespit edilmiştir. Artan sinterleme sıcaklığına bağlı olarak basma mukavetinde az da olsa bir artış meydana geldiği gözlemlenmiştir.

Bu çalışmada müllit esaslı gözenekli seramik malzemelerin üretiminde ekonomik oluşu ve kolay uygulanabilir olması gibi nedenlerden dolayı polimerik sünger yöntemi tercih edilmiştir. Bu tez çalışmasında tek tip gözenek boyutuna sahip müllit seramiklerin üretimi yanısıra FAM yapısına sahip malzemeler de üretilmiştir. Üç farklı gözenek boyutlarına sahip süngerler fiziksel olarak birleştirilmiş, ardından da hazırlanan seramik çamur ile doyurularak FAM yapısına sahip gözenekli seramik bünyeler hazırlanmıştır. Yapılan literatür taramalarında gözenekli müllit seramiklerin polimerik sünger yöntemiyle fonksiyonel aşamalı olarak üretimine rastlanmamış olup bu çalışma literatürde ilk defa tarafımızca yapılmıştır, elde edilen bulgular yayınlanmıştır.

Gözenekli seramik malzemelerde, yapıda oluşan yüksek gözenek miktarı malzemenin hafiflik özelliğini ön plana çıkarmaktadır. Bu özellikleri sebebiyle gözenekli seramik malzemeler filtrasyon (dizel emisyon, eriyik metal, toz, kurum, gaz, su, vb.), ısı izolasyonu, membranlar, kompozit üretiminde altlık olarak kullanım gibi çok çeşitli uygulama alanlarında, geniş bir kullanım potansiyeline sahip, önemli bir malzeme grubudur. Gözenekli müllit seramikleri de filtrasyon uygulama alanında kullanılabilir özelliktedir. Polimerik sünger yöntemi kullanılarak FAM yapısına sahip gözenekli müllit seramikleri döküm filtresi olarak kullanılabilir.

4.2 Öneriler

Bu tez çalışmasında gözenekli seramik üretim yöntemi olarak polimerik sünger yöntemi çalışılmıştır. Gözenekli seramik üretiminde kullanılan yöntem büyük önem arz etmektedir. Polimerik sünger yöntemiyle üretilen gözenekli seramiklerin mekanik özelliklerinin daha iyi olabilmesi süngerin yüzey özelliklerine bağlıdır. Polimerik sünger yöntemi ile açık gözenekli seramik üretimi hedeflendiğinde istenen iskelet yapısını oluşturabilmek için iyi yüzey kalitesine sahip polimerik süngerler seçilmelidir. Bu çalışmada yerli süngerler kullanılmıştır. Ancak çamurun yerli sünger yüzeylerine

yeterince iyi bir şekilde yapışmadığı ve istenen duvar kalınlığının elde edilemediği görülmüştür. Kaolenden müllit oluşumunda, müllit fazın sentezinde hammadde tercihinde kullanılan seramik tozların safsızlık oranları dikkate alınarak seçim yapılmamıştır.

Farklı kalınlıklarda süngerler temin edilerek farklı uygulama alanları belirlenerek, ihtiyaçları karşılayacak gözenek boyutlarına sahip yeni FAM tasarımları yapılabilir. Ayrıca bu malzemelerin mekaniz özellikleri incelenip monolitik gözenekli müllite kıyasla özelliklerindeki değişimler incelenebilir.

Üretilen FAM'lar özellikle filtrasyon uygulamalarına yönelik olarak test edilerek ticari uygulamalara dönüştürülme potansiyelleri irdelenebilir.

Kullanılan CC31'de bir miktar serbest kuvars olduğu tespit edilmiştir. Dışardan alümina ilavesi yapılarak sinterleme sürecinde serbest kuvars ve alüminanın reaksiyonuyla müllit elde edilerek stokiyometrik müllit üretimi gerçekleştirilebilir.

KAYNAKLAR

- [1] **Kumar, B.M. & Kim, Y.W.** (2010). Processing of polysiloxane-derived porous ceramics: A review, *Science and Technology of Advanced Materials*, 11, 044303.
- [2] **Bose, S. & Tarafder, S.** (2012). Calcium phosphate ceramic systems in growth factor and drug delivery for bone tissue engineering: a review, *Acta Biomaterialia*, 8(4), 1401-1421.
- [3] **Dittmann, J. Koos, E. & Willenbacher, N.** (2013). Ceramic capillary suspensions: Novel processing route for macroporous ceramic materials, *Journal of the American Ceramic Society*, 96(2), 391-397.
- [4] **Eom, J.H. Kim, Y.W. & Raju, S.** (2013). Processing and properties of macroporous silicon carbide ceramics: A review, *Journal of Asian Ceramic Societies*, 1(3), 220-242.
- [5] **Galán-Arboledas, R. J. Cotes, T. Martínez, C. & Bueno, S.** (2016). Influence of waste addition on the porosity of clay-based ceramic membranes, *Desalination and Water Treatment*, 57(6), 2633-2639.
- [6] **Gregorová, E. Pabst, W. Uhlířová, T. Nečina, V. Veselý, M. Sedlářová, I.** (2016). Processing, microstructure and elastic properties of mullite-based ceramic foams prepared by direct foaming with wheat flour, *Journal of the European Ceramic Society*, 36(1), 109-120.
- [7] **Hammel, E. Ighodaro, O.-R. & Okoli, O.** (2014). Processing and properties of advanced porous ceramics: an application based review, *Ceramics International*, 40(10), 15351-15370.
- [8] **Kalemtas, A. Topates, G. Özcoban, H. Mandal, H. Kara, F. & Janssen, R.** (2013). Mechanical characterization of highly porous β -Si₃N₄ ceramics fabricated via partial sintering & starch addition, *Journal of the European Ceramic Society*, 33(9), 1507-1515.
- [9] **Loh, Q.L. & Choong, C.** (2013). Three-dimensional scaffolds for tissue Engineering applications: role of porosity and pore size, *Tissue Engineering Part B: Reviews*, 19(6), 485-502.
- [10] **Novais, R. M. Seabra, M. & Labrincha, J.** (2014). Ceramic tiles with controlled porosity and low thermal conductivity by using pore-forming agents, *Ceramics International*, 40(8), 11637-11648.

- [11] **Mohanta, K. Kumar, A. Parkash, O. & Kumar, D.** (2014). Processing and properties of low cost macroporous alumina ceramics with tailored porosity and pore size fabricated using rice husk and sucrose, *Journal of the European Ceramic Society*, 34(10), 2401-2412.
- [12] **Arslan, G. & Kalemtaş, A.** (2005). Ceramic molten metal filters, *Seramik Turkiye*, 7, 138-142.
- [13] **Guzman, I.Y.** (2003). Certain principles of formation of porous ceramic structures properties and applications (a review), *Glass and Ceramics*, 60(9-10), 280-283.
- [14] **Mujeebu, M. A. Abdullah, M. Bakar, M. A. Mohamad, A. Abdullah, M.** (2009). Applications of porous media combustion technology—a review, *Applied Energy*, 86(9), 1365-1375.
- [15] **Nettleship, I.** (1996). Applications of porous ceramics, *Key Engineering Materials*, 122-124, 305-324.
- [16] **Studart, A. R. Gonzenbach, U. T. Tervoort, E. & Gauckler, L.J.** (2006). Processing routes to macroporous ceramics: a review, *Journal of the American Ceramic Society*, 89(6), 1771-1789.
- [17] **Kara, F.** (1994). *Processing and characterisations of mullite based ceramics* (Doktora Tezi) Cambridge Üniversitesi, İngiltere.
- [18] **Deville, S.** (2008). Freeze-casting of porous ceramics: a review of current achievements and issue, *Advanced Engineering Materials*, 10(3), 155-169.
- [19] **Konegger, T. Patidar, R. & Bordia, R.K.** (2015). A novel processing approach for freestanding porous non-oxide ceramic supports from polycarbosilane and polysilazane precursors, *Journal of the European Ceramic Society*, 35(9), 2679-2683.
- [20] **Lyckfeldt, O. & Ferreira, J.** (1998). Processing of porous ceramics by starch consolidation, *Journal of the European Ceramic Society*, 18(2), 131-140.
- [21] **Naviroj, M. Miller, S. Colombo, P. & Faber, K.** (2015). Directionally aligned macroporous SiOC via freeze casting of preceramic polymers, *Journal of the European Ceramic Society*, 35(8), 2225-2232.
- [22] **Ohji, T. & Fukushima, M.** (2012). Macro-porous ceramics: processing and properties, *International Materials Reviews*, 57(2), 115-131.
- [23] **Okada, K. Isobe, T. Katsumata, K.-I. Kameshima, Y. Nakajima, A. & MacKenzie, K.J.** (2011). Porous ceramics mimicking nature preparation and properties of microstructures with unidirectionally oriented pores, *Science and Technology of Advanced Materials*, 12, 064701.
- [24] **Vitorino, N. Freitas, C. Ribeiro, M. Abrantes, J. & Frade, J.** (2015). Porous hollow tubes processed by extrusion of ceramic emulsions, *Applied Clay Science*, 105, 60- 65.

- [25] **Wan, W. Feng, Y. Yang, J. Xu, S. & Qiu, T.** (2015). Preparation of mesoporous silica ceramics with relatively high strength from industrial wastes by low-toxic aqueous gel-casting, *Journal of the European Ceramic Society*, 35(7), 2163-2170.
- [26] **Wieczinska, P. & Bachonko, M.** (2016). Processing of porous ceramics from highly concentrated suspensions by foaming, in situ polymerization and burn-out of polylactide fibers, *Ceramics International*, 42(13), 15057-15064.
- [27] **Colombo P.** (2002). Ceramic foams fabrications, properties and applications, *Key Engineering materials*, 206(213) 1913-1918.
- [28] **Studart A.R Gozenbach, U.T. Tervoort, E. & Gauckler, L.J.** (2006). Processing routes to macroporous ceramics, *Journal of the American Ceramic society*, 89(6) 1771-1789.
- [29] **Peng, H. X. Fan, Z. & Evans J.R.G** (2000). Factors affecting the microstructure of a fine ceramic foam, *Ceramics International*, 26,887-895.
- [30] **Saggio-Woyansky, J. Scott, C. E. and Minnear, W. P.** (1992). Processing of porous ceramics, *American Ceramic Society Bulletin*, 71(11), 1674-1682.
- [31] **Norton, F.H.** (1978). Fine Ceramics, Technology and Applications, Robert E. Krieger, USA
- [32] **Chen, C.Y. and Tuan, W.H.** (2001). The processing of kaolin powder compact, *Ceramics International*, Vol. 27, 2001, 795-800.
- [33] **Chen, C.Y. Lan, G.S. and Tuan, W.H.** (2000). Microstructural evolution of mullite during the sintering of kaolin powder compacts, *Ceramics International*, vol. 26, 715-720.
- [34] **Chen, Y.F. Wang, M.C. Hon, M.H.** (2004). Phase transformation and growth of mullite in kaolin ceramics, *Journal of the European Ceramic Society* 24 2389-2397.
- [35] **Innocentini, P. Mullens, S.** (2007). Gas permeability of microcellular ceramic foams, *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 46, 3366-3372.
- [36] **Schwartzwalder, K. and Somers, A. V.** (1963). Method of making porous ceramic articles, *U.S. Pat. No. 3 090-094*.
- [37] **Montanaro, L. Jorand, Y. Fantozzi, G. and Negro, A.** (1998). Ceramic foams by powder processing, *Journal of the European Ceramic Society*, 18, 1339-1350.
- [38] **Matthews, A. L.** (1996). Ceramic filters for the cast metal industry, *Key Engineering Materials*, 122-124, 293-304.
- [39] **Twigg, M.V. and Richardson, J.T.** (1995). Preparation and properties of ceramic foam catalyst supports, *Preparation of Catalysts Vi*, 91, 345-359.

- [40] **A. Kelly**, (2006). Why Engineer Porous Materials?, *Phil. Trans. R. Soc. A*, 364, 5-14.
- [41] **Studart, A.R. Gonzenbach, U.T. Tervoort, E. And Gauckler, L.J.** (2006). Processing routes to macroporous ceramics: A review, *Journal of the American Ceramic Society*, 89, 1771-1789.
- [42] **Colombo, P.** (2006). Conventional and novel processing methods for cellular ceramics, *Philosophical Transactions of the Royal Society a-Mathematical Physical and Engineering Sciences*, 364,109-124.
- [43] **Wara, N.M.** (1996). Processing Macroporous Ceramics through Ceramic-Polymer Dispersion Methods, (Doktora Tezi) University of Minnesota, Malzeme Bilimi Mühendisliği Ana Bilim Dalı, ABD.
- [44] **Lyckfeldt, O. and Ferreira, J. M. F.** (1998). Processing of porous ceramics by starch consolidation, *Journal of the European Ceramic Society*,18,131-140.
- [45] **Brenzy, R. ve Green, D.J.** (2006).“Mechanical Behaviour of Cellular Ceramics, Materials Science and Technology” ed. R.W. Kahn, P. Haasen ve Kramer, E.J., vol. 11, Structure and Properties of Ceramics, vol. Ed. M. Swain, Würzburg Germany, VCH Publishers INC, 2006.
- [46] **Studart, A. R. Gonzenbach, U.T. Tervoort, E. and Gauckler, L.J.** (2006). Processing routes to macroporous ceramics: A review, *Journal of the American Ceramic Society*, 89, 1771-1789.
- [47] **Nangrejo, M.R. Bao, X. J. and Edirisinghe, M. J.** (2000). Preparation of silicon carbide-silicon nitride composite foams from pre-ceramic polymers, *Journal of the European Ceramic Society*, 20,1777-1785.
- [48] **Costa Oliveira, F. A. Dias, S. Mascarenhas, J. Ferreira, J. M. F. Olhero, S. and Dias, D.** (2004). Fabrication of cellular cordierite foams, In Materials Science Forum II, 455–456, ed. R. Martins et al. Trans Tech Publications, Switzerland, 177–181.
- [49] **Matos, M. J. Vaz, M. F. Cruz Fernandes, J. and Costa Oliveira, F. A.** (2004). Structure of cellular cordierite foams, In Materials Science Forum II, 455–456, ed. R. Martins et al. Trans Tech Publications, Switzerland,163–167.
- [50] **Costa Oliveira, F. A. Franco, J. Cruz Fernandes, J. and Dias, D.** (2002). Newly Developed cordierite-zircon composites, *British Ceramic Transactions*, 101(1), 14–21.
- [51] **Prabhakaran, K. Gokhale, N.M. Sharma, S.C. Lal, R.** (2005). Novel process for low-density alumina foams, *Journal of the American Ceramic Society*, 88, 2600–2603.
- [52] **Fukushima, M. Nakata, M. Zhou, Y. Ohji, T. Yoshizawa, Y.** (2010). Fabrication and properties of ultra highly porous silicon carbide by the gelation-freezing method, *Journal of the European Ceramic Society*, 30, 2889–2896.

- [53] **Bose, S. Darsell, J. Hosick, H.L Yang, L. Sarkar, D.K. Bandyopadhyay, A.** (1999). Processing of controlled porosity ceramic structures via fused deposition, *Scripta Materialia*, 4, 1009–1014.
- [54] **Liu, Y.F. Liu X.Q. Wei, H. Meng, G.Y.** (2001). Porous mullite ceramics from national clay produced by gelcasting, *Ceramic International*, 27(1):1–7.
- [55] **She, J.H. Ohji, T.** (2003). Fabrication and characterization of highly porous mullite ceramics, *Materials Chemistry and Physics*, 80(3):610–4.
- [56] **Barea, R. Osendi, M. Miranzo, P.** (2005). Fabrication of highly porous mullite materials, *Journal of the American Ceramic Society*, 88(3):777–9.
- [57] **Kınıkoğlu, S.** (1992). Mullit-Zirkonya Kompozitlerinin Reaksiyon Sinterlemesi Yöntemi ile Elde edilmesi ve SrO₂ İlavesinin Etkisi. Yıldız Teknik Üniversitesi, İstanbul.
- [58] **Shiota, I. and Miyamoto, Y.** (1997). Functionally graded materials, Amsterdam: *Elsevier Science B. V.*, 1-14.
- [59] **Kieback, B. Neubrand, A. and Riedel, H.** (2003). Processing techniques for functionally graded materials. *Materials Science and Engineering A*, 362, 81-105.
- [60] **Konez, A. Alagöz, H. Topal, S. ve Gülgeç, M.** (2005). Fonksiyonel derecelendirilmiş malzemelerin üretim teknikleri ve kullanım alanları. *Mühendis ve Makine*, 46(547).
- [61] **Jamaludin, S. N. S. Mustapha, F. Nuruzzaman, D. M. and Basri, S. N.** (2013). A review on the fabrication techniques of functionally graded ceramic-metallic materials in advanced composites. *Scientific Research and Essays*, 8(21), 828-840.
- [62] **Udupa, G. Rao, S. S. and Gangadharan, K. V.** (2014). Functionally graded composite materials: *An overview. Procedia Materials Science*, 5, 1291-1299.
- [63] **Kalemtaş, A. Özey, N. Aytakin Aydın, M.T.** (2018). Processing of layered porous mullite ceramics, *Journal of the Australian Ceramic Society*.
- [64] **Chakraborty, A. Ghosh, D.** (1978). Reexamination of the kaolinite to mullite reaction series, *Journal of the American Ceramic Society*, 61(3–4), 170–173.
- [65] **Chen, Y.F. Wang, M.C. Hon, M.H.** (2004). Phase transformation and growth of mullite in kaolin ceramics, *Journal of the European Ceramic Society*, 24(8), 2389–2397.
- [66] **Chakravorty, A.K. Ghosh, D.K.** (1991). Kaolinite mullite reaction-series the development and significance of a binary aluminosilicate phase. *Journal of the American Ceramic Society*, 74(6), 1401–1406.

- [67] **Srikrishna, K. Thomas, G. Martinez, R. Corral, M.P. Deaza, S. Moya, J.S.** (1990). Kaolinite mullite reaction-series—a TEM study, *Journal of Materials Science*, 25(1b), 607–612.
- [68] **Chen, Y.F. Wang, M.C. Hon, M.H.** (2004). Phase transformation and growth of mullite in kaolin ceramics, *Journal of the European Ceramic Society*, 24(8), 2389–2397.
- [69] **Castelein, O. Soulestin, B. Bonnet, J.P. Blanchart, P.** (2001). The influence of heating rate on the thermal behaviour and mullite formation from a kaolin raw material, *Ceramic International*, 27(5), 517–522.
- [70] **Oyamada, R.** (1981). The mechanism of mullite formation in lowgrade kaolin at low-temperatures, *Denki Kagaku*. 49(5),286–292.
- [71] **Sahraoui, T. Belhouchet, H. Heraiz, M. Brihi, N. Guermat, A.** (2016). The effects of mechanical activation on the sintering of mullite produced from kaolin and aluminum powder, *Ceramic International* 42(10), 12185–12193.
- [72] **Fahad, M. Farid, U. Iqbal, Y.** (2016). Phase and microstructural evolution, and densification behaviour of kaolin powder compacts, *Transactions of the Indian Ceramic Society*, 75(1), 47–52.
- [73] **Zibouche, F. Kerrioudj, H. Mohamed, T.A.** (2012). Structural characterization of mullite formed from heated kaolin of Tamazert deposit (Algeria). *Asian Journal of Chemistry*, 24(3), 1118–1124.
- [74] **Zhou, J.E. Zhang, X.Z. Zhang, J. Wang, Y.Q. Zhao, S.K. Cai, X. E.** (2012). Influence of clay materials on acicular mullite porous ceramic, *Chinese Ceramics Communications II*, 412, 344–347.
- [75] **Wang, H.Y. Li, C.S. Peng, Z.J. Zhang, S.J.** (2011). Characterization and thermal behavior of kaolin, *Journal of Thermal Analysis and Calorimetry*, 105(1), 157–160.
- [76] **Agathopoulos, S. Fernandes, H.R. Tulyaganov, D. Ferreira, J.M. F.** (2004). Preparation of mullite whiskers from kaolinite using CuSO₄ as fluxing agent, *Advanced Materials Science II*, 455-456, 818–821.
- [77] **Kawai, S. Yoshida, M. Hashizume, G.** (1990). Preparation of mullite from kaolin by dry-grinding, *Nippon Seramikkusu Kyokai Gakujutsu*. 98(7), 669–674.
- [78] **Okada, K. Otsuka, N. Somiya, S.** (1991). Review of mullite Synthesis routes in Japan, *American Ceramic Society Bulletin*,70(10), 1633–1640.
- [79] **Perezmaqueda, L.A. Perezrodriguez, J.L. Scheiffele, G.W. Justo, A. Sanchezsoto, P.J.** (1993). Thermal-analysis of ground kaolinite and pyrophyllite, *Journal of Thermal Analysis and Calorimetry*, 39(8–9), 1055–1067.

- [80] **Chakraborty, A.K.** (1992). Supplementary alkali extraction studies of 980-degrees-C heated kaolinite by X-ray-diffraction analysis, *Journal of Materials Science*, 27(8), 2075–2082.
- [81] **Chakraborty, A.K.** (1992). Resolution of thermal peaks of kaolinite in thermomechanical analysis and differential thermal-analysis studies, *Journal of the American Ceramic Society*, 75(7), 2013–2016.
- [82] **Pask, J.A. Tomsia, A.P.** (1991). Formation of mullite from sol-gel mixtures and kaolinite, *Journal of the American Ceramic Society*, 74(10), 2367–2373.
- [83] **Chakraborty, A.K.** (2014). *Phase Transformation of Kaolinite Clay*. Springer, New Delhi.
- [84] **Oliveira, F. A. C. Dias, S. Vaz, M. F. ve Fernandes, J. C.** (2006). Behavior of opencell cordierite foams under compression, *Journal of European Ceramic Society*, 26, 179-186.
- [85] **Zhang, J. Fu, Y. Zeng, X.** (2006). Compressive properties of open-cell ceramic foams, *Transactions of Nonferrous Metals Society of China*, 16(2), 453-456.
- [86] **Altinkök, N. Demir, A. Özsert, I. Fındık, F.** (2007). Compressive Behavior of Al₂O₃-SiC Ceramic Composite Foams Fabricated by Decomposition of Aluminum Sulfate Aqueous Solution, *Journal of Composite Materials*, 41,1361-2007.
- [87] **Nor, M. Hongb, L.C. Ahmadb, Z.A. Akılb, H.M.** (2008). Preparation and characterization of ceramic foam produced via polymeric foam replication method, *Journal of materials processing technology*, 207, 235–239.
- [88] **Negahdari, Z. Solati, M.** (2005). Fabrication of reticulated porous mullite refractories as a molten metal filter. *9th Biennial Worldwide Congress on Refractories*.

ÖZGEÇMİŞ



Ad-Soyad : Nigar ÖZEY
Doğum Tarihi ve Yeri : 08.01.1991 Bursa
E-posta : Nigarozey@gmail.com

ÖĞRENİM DURUMU:

- **Lisans** :
2014, Ankara Üniversitesi, Mühendislik Fakültesi, Fizik Mühendisliği
- **Yüksek Lisans** :
2018, Bursa Teknik Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, İleri Teknolojiler Anabilim Dalı, Malzeme Bilimi ve Mühendisliği
- **Yüksek Lisans** :
2019, Uludağ Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Endüstri Mühendisliği Anabilim Dalı, Mühendislik ve Teknoloji Yönetimi

MESLEKİ DENEYİM VE ÖDÜLLER:

- Ar-Ge Mühendisi / Ermaksan Makina Sanayi ve Ticaret A.Ş
- Test&Validasyon Mühendisi / Orhan Holding, ORAU Orhan Otomotiv A.Ş

TEZDEN TÜRETİLEN ESERLER, SUNUMLAR VE PATENTLER:

- Ayşe KALEMTAŞ, Nigar ÖZEY, Meryem Türkay AYTEKİN AYDIN, 'Processing of layered porous mullite ceramics' Journal of the Australian Ceramic Society 2018
- Nigar ÖZEY, Yasin ALTIN, Ayşe BEDELOĞLU, Onur SARAY, Ayşe KALEMTAŞ 'Production of Mullite-Epoxy Co-Continuous Composites' International Conference on Material Science and Technology in Cappadocia, Nevşehir-TURKEY
- Nigar ÖZEY, Pınar UYAN, Ayşe KALEMTAŞ 'Microstructure Development of Mullite Grains from Porous Kaolin Powder Compacts' 22 st National Electron Microscopy Congress, Istanbul-TURKEY

DİĞER ESERLER, SUNUMLAR VE PATENTLER:

- Nigar ÖZEY, Hüseyin KARABULUT, Mehtap HİDİROĞLU, Bünyamin ÇİÇEK ‘Sert Lehimli Paslanmaz Çelik Egzoz Gazı Geri Dönüş Boru Bağlantılarının Mekanik Özelliklerinin İncelenmesi’ Uluslararası Otomotiv Teknolojileri Kongresi OTEKON 2018, Bursa-TÜRKİYE
- Ayşe KALEMTAŞ, Nigar ÖZEY ‘Fabrication of Porous SiC Based Ceramics in Air Atmosphere’ 18th International Metallurgy & Materials Congress, İstanbul-TURKEY
- Ayşe KALEMTAŞ, Nigar ÖZEY ‘Production of Porous SiC Based Ceramics Via Starch Consolidation Technique’ International Conference on Material Science and Technology in Cappadocia, Nevşehir-TURKEY
- Ayşe KALEMTAŞ, Gülsüm TOPATEŞ, Nigar ÖZEY, Okan BİLGİÇ ‘Gözenekli SiC-Si₃N₄ Kompozitler’ Putech & Composites, Eylül 2015
- Gülsüm TOPATEŞ, Türkay AYDIN, Okan BİLGİÇ, Nigar ÖZEY, Ayşe KALEMTAŞ ‘Ağ Yapılı Kompozit Malzemelerin Üretiminde Kullanılmak Üzere Gözenekli Si₃N₄ Seramiklerin Üretimi’ Putech & Composites