



KAOLİN ESASLI JEOPOLİMER ÖZELLİKLERİNE ISIL İŞLEMİN ETKİSİ

**2024
YÜKSEK LİSANS TEZİ
METALURJİ VE MALZEME MÜHENDİSLİĞİ**

Miraç ASAR

**Tez Danışmanı
Dr. Öğr. Üyesi Süleyman YAŞIN**

**KAOLİN ESASLI JEOPOLİMER ÖZELLİKLERİNE ISIL İŞLEMİN
ETKİSİ**

Miraç ASAR

**Tez Danışmanı
Dr. Öğr. Üyesi Süleyman YAŞIN**

**T.C.
Karabük Üniversitesi
Lisansüstü Eğitim Enstitüsü
Metalurji ve Malzeme Mühendisliği Anabilim Dalında
Yüksek Lisans Tezi
Olarak Hazırlanmıştır**

**KARABÜK
Ağustos 2024**

Miraç ASAR tarafından hazırlanan “KAOLİN ESASLI JEOPOLİMER ÖZELLİKLERİNE ISIL İŞLEMİN ETKİSİ” başlıklı bu tezin Yüksek Lisans Tezi olarak uygun olduğunu onaylarım.

Dr. Öğr. Üyesi Süleyman YAŞIN
Tez Danışmanı, Metalurji ve Malzeme Mühendisliği Anabilim Dalı

Bu çalışma jürimiz tarafından Oy Birliği ile Metalurji ve Malzeme Mühendisliği Anabilim Dalında Yüksek Lisans tezi olarak kabul edilmiştir. 19/08/2024

Unvan, Adı SOYADI (Kurumu) İmzası

Başkan: Prof. Dr. Yunus TÜREN (NEÜ)

Üye : Prof. Dr. Hayrettin AHLATCI (KBÜ)

Üye : Dr. Öğr. Üyesi Süleyman YAŞIN (KBÜ)

KBÜ Lisansüstü Eğitim Enstitüsü Yönetim Kurulu, bu tez ile, Yüksek Lisans derecesini onamıştır.

Doç. Dr. Zeynep ÖZCAN
Lisansüstü Eğitim Enstitüsü Müdürü



“Bu tezdeki tüm bilgilerin akademik kurallara ve etik ilkelere uygun olarak elde edildiğini ve sunulduğunu; ayrıca bu kuralların ve ilkelerin gerektirdiği şekilde, bu çalışmadan kaynaklanmayan bütün atıfları yaptığımı beyan ederim.”

Miraç ASAR

ÖZET

Yüksek Lisans Tezi

KAOLİN ESASLI JEOPOLİMER ÖZELLİKLERİNE ISIL İŞLEMİN ETKİSİ

Miraç ASAR

Karabük Üniversitesi

Lisansüstü Eğitim Enstitüsü

Metalurji ve Malzeme Mühendisliği Anabilim Dalı

Tez Danışmanı:

Dr. Öğr. Üyesi Süleyman YAŞIN

Ağustos 2024, 81 sayfa

Bu çalışmada silika ve alümina dolgularını içeren kaolin esaslı jeopolimer özelliklerine ısıtılmanın etkisini araştırmak amaçlanmıştır. Bu amaçla, NaOH peletleri su ile karıştırılıp ardından yüksek saflıktaki kaolin ve dolgu tozları ile karıştırılarak numuneler şekillendirilmiştir. Dolgu olarak ince silis ve ince alümina tozları kullanılmıştır. Şekillenen numuneler 75°C sıcaklıkta 8 saat süre ile buharlaşmaya kapalı kaplar içerisinde kür edilmiş ve takiben 8 saat süre ile aynı sıcaklıkta buharlaşmaya açık olarak kurutulmuştur. Kurutulan numuneler ısıtılma fırınlarında 250°C-1150°C sıcaklıkları arasında ısıtılma maruz bırakılmıştır. Hazırlanan jeopolimer karışımlarının bazıları farklı Na/Al molar oranlarına (0,4 ve 0,8) sahip olacak şekilde üretilmiştir. Numuneler üzerinde basma dayanımı, yoğunluk, su emme, açık-kapalı gözenek, pH testi, termal küçülme, TGA, XRD, FTIR ve SEM analizleri yapılmıştır.

Isıl işlem görmeyen kür edilmiş numunelerde kaolin hidrosodalit yapısına jeopolimerleşme nedeni ile kısmen dönüşmüştür. Numunelerde artan Na/Al molar oranı ile kaolin hidrosodalit dönüşüm oranı artmıştır. Numuneler yüksek sıcaklıklarda yapılan ısıtma işlemi neticesinde nefelin, dolgu fazı ve varsa camsı fazdan oluşan bir faz yapısı göstermiştir. Çalışma sonucunda numunelerin sinterlenme davranışlarının takviye edilen tozlar ile önemli oranda etkilendiği görülmüştür. Silika dolgusu numunelerde daha yüksek oranda camsı faz oluşumunu desteklerken, alümina dolgusu camsı faz oluşumunu yüksek sıcaklıklara geciktirmiştir. Silika dolgulu numunelerde 1150°C sıcaklıkta yapılan ısıtma işlemi neticesinde açık gözeneklilik tamamen kaybolurken mikroyapıda da gözlenen kapalı gözeneklilik artmıştır. Alümina dolgulu numunede ise aynı sıcaklıkta daha yüksek açık gözeneklilik tespit edilmiştir. Alümina dolgusu silika dolgusuna nispeten numunelerde termal boyutsal kararlılığı daha fazla geliştirmiştir. Na/Al molar oranı 0,8 olan numunelerin basma dayanımları artan ısıtma işlem sıcaklığı ile 950°C sıcaklığa dek yükselmiştir. Na/Al molar oranı 0,4 olan silika dolgulu numunede çalışmada elde edilen en yüksek basma dayanımı değeri 1050°C sıcaklıktaki ısıtma işlemi neticesinde ~196 MPa olarak kaydedilmiştir.

Anahtar Sözcükler : Kaolin, Jeopolimer, Isıtma İşlem

Bilim Kodu : 91526

ABSTRACT

M. Sc. Thesis

EFFECT OF HEAT TREATMENT ON KAOLIN BASED GEOPOLYMER PROPERTIES

Miraç ASAR

**Karabük University
Institute of Graduate Programs
Department of Metallurgy and Materials Engineering**

**Thesis Advisor:
Assist. Prof. Dr. Süleyman YAŞIN
August 2024, 81 pages**

This study aims to investigate the effects of thermal treatment on the properties of silica and alumina-filled kaolin-based geopolymer. For this purpose, NaOH pellets were mixed with water, followed by mixing with high-purity kaolin and filler powders to form the samples. Fine silica and alumina powders were used as fillers. The shaped samples were cured in sealed containers at 75°C for 8 hours to prevent evaporation and then dried at the same temperature for another 8 hours in an open environment. The dried samples were subjected to thermal treatment in furnaces at temperatures ranging from 250°C to 1150°C. Some of the prepared geopolymer mixtures were produced with different Na/Al molar ratios (0,4 and 0,8). Compressive strength, density, water absorption, open-closed porosity, pH test, thermal shrinkage, TGA, XRD, FTIR, and SEM analyses were performed on the samples.

In the non-thermally treated cured samples, kaolin partially transformed into hydrosodalite due to geopolymerization. The transformation rate of kaolin to

hydrosodalite increased with the increasing Na/Al molar ratio. The samples showed a phase structure consisting of nepheline, filler phase, and, if present, a glassy phase as a result of thermal treatment at high temperatures. The study found that the sintering behaviors of the samples were significantly affected by the added powders. Silica filler promoted higher glassy phase formation in the samples, while alumina filler delayed the glassy phase formation to higher temperatures. In silica-filled samples, thermal treatment at 1150°C resulted in the complete loss of open porosity and an increase in closed porosity observed in the microstructure. In alumina-filled samples, higher open porosity was detected at the same temperature. Alumina filler relatively improved the thermal dimensional stability of the samples compared to silica filler. The compressive strengths of the samples with a Na/Al molar ratio of 0,8 increased with rising thermal treatment temperature up to 950°C. The highest compressive strength recorded in the study was approximately 196 MPa for the silica filled sample with a Na/Al molar ratio of 0,4 after thermal treatment at 1050°C.

Key Word : Kaolin, Geopolymer, Heat Treatment

Science Code : 91526

TEŞEKKÜR

Bu tez çalışmasının planlanmasında, araştırılmasında, yürütülmesinde ve oluşumunda ilgi ve desteğini esirgemeyen, engin bilgi ve tecrübelerinden yararlandığım, yönlendirme ve bilgilendirmeleriyle çalışmamı bilimsel araştırmalar, çalışmalar ve temeller ışığında şekillendiren sayın hocam Dr. Öğr. Üyesi Süleyman YAŞIN'a sonsuz teşekkürlerimi sunarım.

Sevgili aileme maddi ve manevi hiçbir yardımı esirgemedен yanımda oldukları için tüm kalbimle teşekkür ederim.

Bu çalışma Karabük Üniversitesi Bilimsel Araştırma Projeleri Koordinasyon Birimince desteklenmiştir. Proje Numarası: KBÜBAP-24-YL-009.

İÇİNDEKİLER

Sayfa

KABUL	ii
ÖZET.....	iv
ABSTRACT.....	vi
TEŞEKKÜR.....	viii
İÇİNDEKİLER	ix
ŞEKİLLER DİZİNİ.....	xii
ÇİZELGELER DİZİNİ	xiv
SİMGELER VE KISALTMALAR DİZİNİ	xv
BÖLÜM 1	1
GİRİŞ	1
BÖLÜM 2	4
GELENEKSEL SERAMİKLER VE ÜRETİMİ.....	4
2.1. GELENEKSEL SERAMİK HAMMADDELERİ	4
2.1.1. Killer.....	4
2.1.2. Kuvars	4
2.1.3. Feldspat	4
2.2. GELENEKSEL SERAMİK BÜNYELERİ.....	5
2.2.1. Earthenware.....	5
2.2.2. Stoneware	5
2.2.3. Porselen	5
2.3. GELENEKSEL SERAMİKLERİN ÜRETİMİ	6
2.3.1. Çamur Hazırlama ve Şekillendirme	6
2.3.2. Kurutma.....	6
2.3.3. Pişirme.....	6
2.3.4. Sırlama	7
BÖLÜM 3	8

JEOPOLİMER BİLİMİ VE TEKNOLOJİSİ.....	8
3.1. JEOPOLİMER TANIMI VE İÇ YAPISI.....	8
3.2. JEOPOLİMER TÜRLERİ.....	10
3.3. JEOPOLİMERLERİN UYGULAMALARI	10
 BÖLÜM 4	12
KALSİNE EDİLMEMİŞ KAOLİNİN JEOPOLİMER ÜRETİMİNDE KULLANILMASI	12
4.1. SILIFACE TEKNOLOJİSİ VE ÖNCÜ ÇALIŞMALAR	12
4.2. LTGS TEKNOLOJİSİ İLE ÇEVRE DOSTU YAPI MALZEMELERİN ÜRETİMİ	13
4.3. KAOLİN ESASLI JEOPOLİMER BAĞLAYICILAR İLE İLGİLİ YAPILMIŞ ÇALIŞMALAR	15
4.5. ARKEOLOJİ VE KALSİNE EDİLMEMİŞ KAOLİN ESASLI JEOLİMERLER	22
4.5.1 Mısır Piramitleri.....	22
4.5.2. Bitki Özlerinden Elde Edilen Organik Asitlerle Taş Malzemelerin Ayrıştırılması.....	23
4.5.3. Mısır Fayansları Üzerine Yapılan Araştırmalar	25
4.5.4. LTGS Süreci İle Üretilen Seramikler Üzerine Yapılan Araştırmalar.....	25
 BÖLÜM 5	27
JEOPOLİMERLERİN BİR SERAMİK ÖNCÜSÜ OLARAK KULLANILMASI VE SİNTERLENMESİ	27
 BÖLÜM 6	29
DENEYSEL ÇALIŞMALAR	29
6.1. MALZEME	29
6.2. YÖNTEM.....	30
 BÖLÜM 7	35

	<u>Sayfa</u>
DENEYSEL SONUÇLAR VE TARTIŞMA.....	35
7.1. NUMUNELERİN GÖRÜNÜŞLERİ	35
7.2. BASMA DAYANIMI TESTİ SONUÇLARI	35
7.3. YOĞUNLUK, SU EMME, KAPALI GÖZENEK, AÇIK GÖZENEK, pH DEĞERİ TESTİ SONUÇLARI	39
7.4. TERMAL KÜÇÜLME TESTİ SONUÇLARI.....	48
7.5. TERMO GRAVİMETRİ ANALİZİ SONUÇLARI.....	50
7.6. XRD ANALİZİ SONUÇLARI	52
7.7. FTIR ANALİZ SONUÇLARI.....	60
7.8. SEM ANALİZİ SONUÇLARI.....	64
 BÖLÜM 8	 71
GENEL SONUÇLAR VE ÖNERİLER.....	71
 KAYNAKLAR	 74
 ÖZGEÇMİŞ	 81

ŞEKİLLER DİZİNİ

Sayfa

Şekil 4.1. Kaolinitin jeopolimerleşmesi.	12
Şekil 6.1. Kullanılan hammaddelerin XRD analizleri.	29
Şekil 6.2. Şekillenmiş yaş numune.	31
Şekil 6.3. Kür için kullanılan fırın.	31
Şekil 6.4. Numune üretim akış şeması.	32
Şekil 7.1. Kurutma işlemi sonrasındaki alümina dolgulu (a) ve silika dolgulu (b) numunelerin görünüşleri.	35
Şekil 7.2. Farklı sıcaklıklardaki ve Na/Al=0,8 molar oranına sahip kaolin esaslı silika ve alümina dolgulu numunelerin basma dayanımı değerleri.	37
Şekil 7.3. Farklı sıcaklıklardaki ve farklı Na/Al molar oranına sahip kaolin esaslı silika dolgulu numunelerin basma dayanımı değerleri.	38
Şekil 7.4. Farklı sıcaklıklardaki ve farklı Na/Al molar oranına sahip kaolin esaslı alümina dolgulu numunelerin basma dayanımı değerleri.	39
Şekil 7.5. Farklı sıcaklıklardaki ve Na/Al=0,8 molar oranına sahip kaolin esaslı silika dolgulu numunelerin yoğunluk ve su emme değerleri.	41
Şekil 7.6. Farklı sıcaklıklardaki ve Na/Al=0,8 molar oranına sahip kaolin esaslı alümina dolgulu numunelerin yoğunluk ve su emme değerleri.	42
Şekil 7.7. Farklı sıcaklıklardaki ve Na/Al=0,8 molar oranına sahip kaolin esaslı silika dolgulu numunelerin açık gözenek ve kapalı gözenek değerleri...	43
Şekil 7.8. Farklı sıcaklıklardaki ve Na/Al=0,8 molar oranına sahip kaolin esaslı alümina dolgulu numunelerin açık gözenek ve kapalı gözenek değerleri.	44
Şekil 7.9. Farklı sıcaklıklardaki ve Na/Al=0,8 molar oranına sahip kaolin esaslı silika ve alümina dolgulu numunelerin pH değerleri.	45
Şekil 7.10. Farklı sıcaklıklardaki ve Na/Al=0,4 molar oranına sahip kaolin esaslı silika ve alümina dolgulu numunelerin pH değerleri.	46
Şekil 7.11. Farklı sıcaklıklardaki ve Na/Al=0,8 molar oranına sahip kaolin esaslı silika ve alümina dolgulu numunelerin termal küçülme değerleri.	49
Şekil 7.12. 1050°C sıcaklıkta ve farklı Na/Al molar oranına sahip kaolin esaslı silika ve alümina dolgulu numunelerin termal küçülme değerleri.	50
Şekil 7.13. Numunelere ait TG eğrileri (a) kaolin, (b) silika dolgulu (Na/Al=0,4) numune, (c) silika dolgulu (Na/Al=0,8) numune, (d) alümina dolgulu (Na/Al=0,4) numune, (e) alümina dolgulu (Na/Al=0,8) numune.	51

Şekil 7.14. Farklı sıcaklıklarda ısıtılma maruz bırakılan kaolin esaslı silika dolgulu numunelerin XRD paternleri.....	54
Şekil 7.15. Farklı sıcaklıklarda ısıtılma maruz bırakılan kaolin esaslı alümina dolgulu numunelerin XRD paternleri.....	55
Şekil 7.16. Farklı sıcaklıklardaki ve farklı Na/Al molar oranlarında üretilen kaolin esaslı silika dolgulu numunelerin XRD paternleri.	56
Şekil 7.17. Farklı sıcaklıklardaki ve farklı Na/Al molar oranlarında üretilen kaolin esaslı alümina dolgulu numunelerin XRD paternleri.	57
Şekil 7.18. 75°C sıcaklıkta üretilen kaolin esaslı alümina ve silika dolgulu (Na/Al=0,8) numunelerin XRD paternleri.	58
Şekil 7.19. 75°C sıcaklıkta üretilen kaolin esaslı alümina ve silika dolgulu (Na/Al=0,4) numunelerin XRD paternleri.	59
Şekil 7.20. 1150°C sıcaklıkta ve Na/Al (0,8) molar oranında üretilen kaolin esaslı alümina ve silika dolgulu numunelerin XRD paternleri.	60
Şekil 7.21. Farklı sıcaklıklarda ısıtılma maruz bırakılan kaolin esaslı silika dolgulu numunelerin FTIR paternleri.....	61
Şekil 7.22. Farklı sıcaklıklarda ısıtılma maruz bırakılan kaolin esaslı alümina dolgulu numunelerin FTIR paternleri.	63
Şekil 7.23. Farklı sıcaklıklardaki ve farklı Na/Al molar oranlarında üretilen kaolin esaslı silika (a) ve alümina (b) dolgulu numunelerin FTIR paternleri. ...	64
Şekil 7.24. 75°C sıcaklıktaki Na/Al molar oranı 0,4 olan silika dolgulu numunenin SEM görüntüsü.....	65
Şekil 7.25. Silika dolgulu Na/Al oranı 0,8 olan numunelerin farklı sıcaklıklardaki SEM görüntüleri; a)75°C, b)250°C, c)500°C, d)650°C, e)750°C, f)850°C, g)950°C, h)1050°C, ı)1150°C.....	66
Şekil 7.26. Alümina dolgulu Na/Al oranı 0,8 olan numunelerin farklı sıcaklıklardaki SEM görüntüleri; a)75°C, b)250°C, c)500°C, d)650°C, e)750°C, f)850°C, g)950°C, h)1050°C, ı)1150°C.....	67
Şekil 7.27. Farklı Na/Al oranına sahip 75°C sıcaklıkta ısıtılma gören numunelere ait SEM görüntüleri; a) Na/Al oranı 0,4 olan silika dolgulu numune, b) Na/Al oranı 0,8 olan silika dolgulu numune, c) Na/Al oranı 0,4 olan alümina dolgulu numune, d) Na/Al oranı 0,8 olan alümina dolgulu numune.	68
Şekil 7.28. Farklı Na/Al oranına sahip 1050°C sıcaklıkta ısıtılma gören numunelere ait SEM görüntüleri; a) Na/Al oranı 0,4 olan silika dolgulu numune, b) Na/Al oranı 0,8 olan silika dolgulu numune, c) Na/Al oranı 0,4 olan alümina dolgulu numune, d) Na/Al oranı 0,8 olan alümina dolgulu numune.	69

ÇİZELGELER DİZİNİ

Sayfa

Çizelge 6.1. Kullanılan tozların kimyasal analizi.	29
Çizelge 6.2. Üretilen numuneler ve yapılan testler.	34
Çizelge 7.1. 1050°C sıcaklığında ve farklı Na/Al molar oranına sahip kaolin esaslı silika ve alümina dolgulu numunelerin yoğunluk, su emme, pH değeri ve gözenek değerleri.....	48
Çizelge 7.2. TG analizi ile farklı sıcaklık aralıklarında ve farklı Na/Al molar oranlı kaolin esaslı silika ve alümina dolgulu numunelerin yüzdece kütle kayıpları.....	52

SİMGELER VE KISALTMALAR DİZİNİ

SİMGELER

°	: Derece
°C	: Derece Santigrat

KISALTMALAR

MPa	: Mega Paskal
GPa	: Giga Paskal
LTGS	: Low Temperature Geopolymer Setting (Düşük Sıcaklık Jeopolimer Sertleşmesi)
XRD	: X – Ray Diffraction (X Işınları Kırınımı)
FTIR	: Fourier Transform Infrared (Fourier Dönüşüm Kızılötesi)
SEM	: Scanning Electron Microscopy (Taramalı Elektron Mikroskobu)
TG	: Termo Gravimetre

BÖLÜM 1

GİRİŞ

Geleneksel seramik sınıfında olan pişmiş kile dayalı tuğla, kiremit, karo, vitrifiye gibi ürünler uzun ömürlü yapı malzemeleri sunabilmesi nedeni ile yüksek hacimlerde tüketilmektedir. Bu ürünler kil, kuvars ve feldspat gibi yaygın olan hammaddeler kullanılarak üretilebilmektedir (Arcasoy, 1983). Üretim teknolojileri şekillendirme sonrasında kontrollü bir kurutma prosesini ve pişirme prosesini gerektirmektedir. Vitrifikasyon dereceleri ile bağıntılı olan ve genellikle $\sim 1000^{\circ}\text{C}$ üzerinde pişirme sıcaklıklarına ihtiyaçları vardır. Bununla birlikte pişirme süreci termal şokları engellemek için yavaş ısıtma-soğutmayı ve uzun sinterlenmeyi gerektirmektedir. Bu süreçler yüksek yakıt tüketimi, yüksek maliyet ve yüksek CO_2 salınımına neden olmaktadır. Bir diğer önemli malzeme grubunu portland çimentosu tepkimelerine dayanan ürünler oluşturmaktadır. Portland çimentosu ile hem yerinde dökme beton hem de kaplama malzemeleri, kiremitler, tuğlalar, terrazzo, GFRC (cam elyaf takviyeli beton) gibi kil esaslı seramik ürünlere alternatif prekast ürünler yüksek miktarda üretilmektedir. Portland çimentosunun üretiminde yüksek sıcaklıklara ihtiyaç duyulmasının yanında kalsiyum karbonatın üretim esnasında parçalanması nedeni ile yüksek CO_2 salınımı olmaktadır (Davidovits, 2008a).

Gerek kil esaslı gerekse çimento esaslı geleneksel seramik ürünlerin yüksek sıcaklık gerektiren üretimlerine alternatif olarak Joseph Davidovits tarafından jeopolimerleşme tepkimelerine dayanan farklı bir yaklaşım geliştirilmiştir. Bu teknikte düşük sıcaklıklarda çeşitli doğal, sentetik ya da endüstriyel atık olan alümina silikat kaynaklarının alkali çözeltiler ile kısmi çözünmesi ve takiben kondansasyon tepkimeleri ile mukavemet kazanması adımları vardır. Tepkimelerde NaOH ve KOH kafes yapısına hapsolür. Tepkimeler tamamlandığında jeopolimer kafes yapısı oluşur. Mineral kaynaklar ile inorganik polimer sınıfına girebilen son ürünleri oda sıcaklığına yakın sıcaklıklarda üretmek, geleneksel kil esaslı sinterlemeye dayanan seramik

üretimlerine ve portland çimentosu üretimlerine çevreci bir alternatif oluşturmuştur (Davidovits, 2008a).

Jeopolimerler üzerine yapılan çalışmalarda kaolinin 750°C sıcaklık civarında kalsine edilmesi durumunda elde edilen metakaolinin tepkimelerde oldukça reaktif olduğu görülmüştür. Metakaolinin bu yüksek reaktivitesi nedeni ile jeopolimerler çoğunlukla metakaolin esaslı formülasyonlar ile geliştirilmektedir (Davidovits, 2008a; Davidovits vd, 2019). Kaolinin doğrudan jeopolimer üretiminde kullanımı üzerine de bazı araştırmalar yapılmış ve ürünler geliştirilebilmiştir. Kalsinasyon sürecini içermeyen bu tekniklerde hem daha çevre dostu hem de daha düşük maliyetli ürünler üretilmiştir (Davidovits, 2008a; Boutterin vd, 2003; Davidovits, 2002).

Kalsine edilmemiş kaolin esaslı jeopolimerlerin özelliklerinin ısıtma işlemi ile geliştirilebileceği LTGS teknolojilerinden bilinmektedir (Davidovits, 2008a; Boutterin vd, 2003). Bununla birlikte çeşitli tipteki jeopolimerlerin sinterlenerek seramikleştirilebildiği literatürde rapor edilmiştir (Hsieh vd, 2021; He vd, 2013a). Kalsine edilmemiş kaolin esaslı jeopolimerlerin üretildikten sonra sıcaklığa maruz kalması durumunda ortaya çıkacak ürün ya da özelliklerin önemli sonuçları vardır ve bunlar henüz net olarak bilinmemektedir. Kaolin esaslı jeopolimer kullanım esnasında yüksek sıcaklığa servis şartlarında maruz kalır ise nasıl davranacağı bilinmemektedir, bu bilgi düşük sıcaklıkta refrakterik tuğla üretim teknolojisi için önem taşımaktadır. Kaolin esaslı jeopolimerin programlı bir ısıtma işlemi ile özelliklerinin geliştirilip geliştirilemeyeceği ve bu gelişimin ne ölçüde olacağı bilinmemektedir. Kaolin esaslı jeopolimerin yüksek sıcaklıklarda sinterlenerek seramikleştirilmesi sonucu ortaya çıkabilecek seramik ürünler ve özellikleri bilinmemektedir. Jeopolimerler seramikleştirildiğinde düşük sıcaklıkta gerçekleşen jeopolimerleşme şekillendirmeyi sağlamakta ve mukavemetli ön şekillendirilmiş ürünler oluşturmaktadır. Jeopolimerleşme seramik eldesinde şekillendirmeyi sağlamakla beraber, ortaya çıkan şekillendirilmiş jeopolimer ürün, özgün atomik dizilimi ile aynı zamanda yeni bir sentetik seramik başlangıç malzemesi olarak da ele alınmaktadır. Bu çalışmada kaolin esaslı hidrosodalit tipi olarak adlandırılan alümina ve silika tozu dolgu jeopolimerler üretilmiş, takiben üretilen jeopolimerlere ısıtma işlemi uygulanmış ve numuneler sistematik olarak karakterize edilmiştir, böylece hem numunelerin termal davranışı

hem de ısıt ıřlem ve seramikleřtirmenin etkileri ortaya ıkarılmıřtır. Almina ve silika dolgularının ayrı ayrı incelenmesindeki ama, bu dolguları almina silikat sistemindeki birbirinden farklı etkileri nedeni ile; silika dolgulu numunelerin geleneksel seramiklerin dřk sıcaklıklarda retilabilirlięi hususunda veri saęlaması, almina dolgulu numunelerin ise refrakterik malzemelerin dřk sıcaklıklarda retilabilirlięi hususunda veri saęlamasıdır.



BÖLÜM 2

GELENEKSEL SERAMİKLER VE ÜRETİMİ

2.1. GELENEKSEL SERAMİK HAMMADDELERİ

Geleneksel seramik hammaddeleri, doğal mineral kaynaklarından elde edilen ve seramik ürünlerin üretiminde kullanılan temel bileşenlerdir. Bu hammaddeler arasında kil, kuvars ve feldspat gibi mineraller bulunur.

2.1.1. Killer

Kil, su ile karıştırılınca plastikleşen ve kurduğunda veya pişirildiğinde sertleşen, ince taneli minerallerden oluşan doğal bir malzemedir. Seramikte kullanılan başlıca kil türleri kaolinit, montmorillonit ve illittir. Kaolinit, açık rengi, düşük plastikliği ve refrakterliği ile bilinir ve tabakalı silikat yapısına sahiptir. Montmorillonit, bentonit kili içinde bulunur, yüksek şişme kapasitesine sahiptir ve yüksek plastikliği ile kullanılır. İllit, genişlemeyen bir kil türüdür ve yaygın olarak kullanılır.

2.1.2. Kuvars

Kuvars (SiO_2), yer kabuğunda en bol bulunan minerallerden biridir. Seramiklerde kuvars, seramik gövdesine kurutma ve pişme esnasında boyutsal kararlılık sağlamak için kullanılır. Yüksek erime noktasına sahiptir ve kimyasal olarak inerttir.

2.1.3. Feldspat

Sodyum, potasyum ve kalsiyum açısından zengindirler ve seramiklerin camsı fazının oluşumuna katkıda bulunurlar. Ergitici özelliğe sahiptir. Feldspat, seramik gövdenin camsı fazının oluşumuna yardımcı olur, bu da son ürünün mukavemetini, dayanıklılığını ve kimyasal direncini artırır.

Kil, kuvars ve feldspat geleneksel seramik teknolojisinde temel bileşenlerdir. Her bir malzeme, birbirini tamamlayan fonksiyonları ile earthenware, stoneware ve porselen bünyelerin elde edilmesinde rol oynar.

2.2. GELENEKSEL SERAMİK BÜNYELERİ

Geleneksel seramik malzemeler, tarih boyunca çeşitli kültürlerde ev eşyaları, sanatsal objeler ve yapı malzemeleri olarak kullanılmıştır. Bu malzemeler, kil ve diğer mineral bileşenlerinin belirli sıcaklıklarda pişirilmesiyle elde edilir.

2.2.1. Earthenware

Earthenware, en eski ve en yaygın kullanılan seramik türlerinden biridir. Genellikle 1000-1150°C arasında pişirilir. Özellikleri şunlardır; yüksek gözeneklilik oranına sahiptir, pişirme sonrasında genellikle kırmızımsı veya kahverengi bir renk alır (toprak tonları), ancak kullanılan kilin türüne bağlı olarak farklı renklerde olabilir, Günlük mutfak eşyaları, süs eşyaları ve bazı inşaat malzemeleri olarak kullanılır. Earthenware yapısı yüksek oranda açık gözeneklilik içerir.

2.2.2. Stoneware

Stoneware, daha yüksek sıcaklıklarda (1200-1300°C) pişirilir ve daha dayanıklı bir yapı oluşturur. Özellikleri şunlardır; düşük gözeneklilik oranına sahiptir, doğal renkleri gri, kahverengi veya beyaz olabilir, su geçirmez ve dayanıklıdır bu nedenle mutfak eşyaları, banyo gereçleri ve sanatsal seramikler için kullanılır. Üretiminde sıvı faz yüksek miktarda olduğundan gözenekliliği düşüktür.

2.2.3. Porselen

Porselen, en yüksek sıcaklıklarda (1300-1400°C) pişirilen geleneksel seramik türüdür ince yapısı ve yüksek pişirme sıcaklıkları kaynaklı vitrifikasyon nedeniyle yarı şeffaf olabilir, sert ve dayanıklıdır. Sofra takımları, dekoratif objeler, laboratuvar

malzemeleri ve diřçilikte kullanılır. Porselen beyaz renkte ve nispeten yüksek sıvı faz içeren sinterleme ile gözeneksiz olarak üretilen bir seramik bünyedir.

2.3. GELENEKSEL SERAMİKLERİN ÜRETİMİ

Geleneksel seramik üretimi, tarih boyunca gelişmiş ve modern teknolojiyle zenginleştirilmiş bir süreçtir. Bu süreç, dört temel aşamadan oluşur: şekillendirme, kurutma, pişirme ve sırlama.

2.3.1. Çamur Hazırlama ve Şekillendirme

Çamur hazırlama süreci hammaddelerin kazanılması ile başlayan, bilyalı değirmende öğütme ve takiben filter press ve spray dry gibi cihazlar ile susuzlaştırma basamağı ile tamamlanan ve şekillendirmeye hazır çamurun ortaya çıktığı süreçtir. Şekillendirme, seramik hamurunun istenilen forma getirilmesi aşamasıdır. Bu aşama, çeşitli yöntemler kullanılarak gerçekleştirilebilir: Bu yöntemler; elle şekillendirme, ekstrüzyon ve otomatik tornalar gibi cihazlar ile plastik şekillendirme, yüksek basınçlı kuru presle şekillendirme ve poroz kalıplara slip döküm ile şekillendirme.

2.3.2. Kurutma

Kurutma, şekillendirilmiş seramik parçalarının pişirme öncesinde içerdikleri suyun buharlaştırılması sürecidir. Endüstride kontrollü olarak kurutma cihazlarında gerçekleşen bir süreçtir.

2.3.3. Pişirme

Pişirme, seramik parçalarının yüksek sıcaklıklarda fırınlanmasıdır. Bu süreç, seramiğin nihai dayanıklılığını ve şeklini kazanmasını sağlar. Pişirme sürecinde tozların birbirine bağlandığı sinterleme gerçekleşir. Sinterleme esnasında üretim sıcaklığı ve bileşim ile bağlantılı olarak sıvı fazlar meydana gelebilir. Pişirme sıcaklıkları ve bileşim ikilisi son ürünlerin gözeneklilik, su emme, mekanik dayanım gibi özelliklerini tayin eden iki önemli parametredir.

2.3.4. Sırlama

Sırlama, seramik parçalarının yüzeyine cam benzeri bir kaplama uygulama sürecidir. Bu aşama, estetik ve fonksiyonel özellikler kazandırır. Sır hazırlama, sır uygulama, sırlı pişirme ve sırlı kontrol aşamalarını içeren bir süreçtir.



BÖLÜM 3

JEOPLİMER BİLİMİ VE TEKNOLOJİSİ

3.1. JEOPOLİMER TANIMI VE İÇ YAPISI

1950'lerde Ukrayna ve Rusya'da Victor Glukhovsky ve ardından Pavel Krivenko, yüksek binaların inşasında kullanılmak üzere kalsiyum silikat hidrat (CSH) ve alümina-silikat fazları içeren alkaliyle aktifleştirilen sistemler geliştirmişlerdir. Glukhovsky, bazı volkanik kayaların zeolitlere dönüşümünün jeolojik sürecinin, düşük sıcaklık ve basınç koşullarında tortul kayaçların oluşumu sırasında gerçekleştiğini gözlemlemiştir. Bu sürecin çimentolu sistemlerde modellenip gerçekleştirilebileceğini öne sürmüştür. Glukhovsky, çimentolu sistemlerde alkanin alümina-silikat minerallerinin yönlendirilmiş sentezi ile, zeolitlerin yapısal ve özellik bakımından geniş bir yelpazede değişiklik gösterebildiğini belirlemiştir. Yapay taşların yüksek dayanıklılığı sağlayabilecek potansiyele sahip olduğu öngörülmüştür. İlk olarak "toprak silikatları" olarak adlandırılan bu alkanin alümina-silikat çimento esaslı sistemler, yapı malzemeleri alanında devrim niteliğinde bir yenilik olarak kabul edilmiştir (Glukhovsky, 1959, 1965, 1989; Krivenko vd, 2007).

1972 yılında Davidovits, doğal olarak oluşan alümina-silikatlardan düşük sıcaklık ve kısa sürelerde sentezlenen üç boyutlu alümina-silikat yapılar için "jeopolimerler" terimini kullanmıştır (Davidovits, 1988a).

Jeopolimerler, genellikle 1950'lerde Ukrayna'da Glukhovsky tarafından geliştirilen alkaliyle aktive edilen çimentolarla karıştırılmaktadır (Glukhovsky, 1994). Glukhovsky, büyük ölçüde yüksek kalsiyum içeriğine sahip alkaliyle aktive edilmiş cürufurlarla çalışırken, Davidovits kalsine kil bazlı, kalsiyum içermeyen sistemlerin kullanımına öncülük etmiştir. Bu alanlardaki araştırmalarda, 'düşük sıcaklıklı alüminasilikat cam' (Rahier vd, 1996), 'alkali ile aktive edilmiş çimento' (Palomo vd, 2003) ve 'hidroseramik' (Siemer, 2002) gibi çeşitli terminolojilerle tanımlanmış

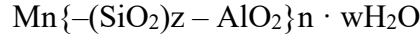
olmasına rağmen, 'jeopolimer' terimi bu teknoloji için yaygın olarak kabul edilen isim olmuştur. Genellikle jeopolimerik sistemler yüksek reaktif alümina içermektedir.

Davidovits'e göre, jeopolimerik bağlayıcılar, zeolitlerin amorf analoglarıdır ve benzer hidrotermal sentez koşullarını gerektirirler. Bununla birlikte, jeopolimerlerin reaksiyon süreleri önemli ölçüde daha hızlıdır ve bu, yüksek kristalli ve düzenli zeolitik yapılara kıyasla, amorf ila yarı kristalli matrislerin oluşumuna yol açmaktadır (Davidovits, 1994).

Jeopolimerler, inorganik çerçeveleri nedeniyle doğası gereği yangına dayanıklıdır ve geleneksel çimentolardan çok daha üstün termal stabilite sergiledikleri gösterilmiştir (Barbosa vd, 2003). Ayrıca, jeopolimerlerin portland çimentosuna (PC) kıyasla üstün mekanik özelliklere sahip oldukları da kanıtlanmıştır (Palomo vd, 1992; Xu vd, 2000; Kriven vd, 2003). Ancak, diğer teknolojilerle karşılaştırıldığında, jeopolimerlerin bileşimi, işlenmesi, mikroyapısı ve özellikleri arasındaki ilişkilerin anlaşılmasına yönelik araştırmaların kapsamı hala sınırlıdır. Bu alan, jeopolimerlerin potansiyelinin tam olarak değerlendirilebilmesi ve endüstriyel uygulamalarının optimize edilebilmesi için daha fazla çalışma gerektirmektedir.

Jeopolimer mikroyapısına ilişkin ilk çalışmalar, yüksek fırın cürufu ve uçucu kül gibi çok bileşenli malzemelerden sentezlenen sistemlerde reaksiyona girmemiş parçacıkların tanımlanmasına ve bağlayıcının kimyasal bileşiminin belirlenmesine odaklanmıştır (Yip vd, 2003; Lee vd, 2002; Xu vd, 2002). Ayrıca, jeopolimerlerin mikro gözenekli bir yapıya sahip olduğu ve karakteristik gözenek boyutunun, alkali katyonun doğasına veya aktivasyonda kullanılan katyon karışımına bağlı olarak belirlendiği gösterilmiştir (Kriven vd, 2004).

Sialat ağı, tüm oksijen atomlarını paylaşarak dönüşümlü olarak bağlanan SiO_4 ve AlO_4 tetrahedradan oluşur. Al^{3+} 'nin negatif yükünü dengelemek için çerçeve boşluklarında Na^+ , K^+ ve Ca^{++} gibi pozitif iyonların bulunması gerekmektedir. Poli(sialatlar), oksijenle 4'lü koordinasyon içinde Si^{4+} ve Al^{3+} içeren zincir ve halka polimerleridir ve aşağıdaki ampirik formülle ifade edilmiştir.



Buradaki “z” Si/Al oranını (1, 2 veya 3), “M” K⁺ veya Na⁺ gibi tek değerlikli bir katyonları ve “n” polikondensasyon derecesini ifade etmektedir. (Davidovits, 1988b).

3.2. JEOPOLİMER TÜRLERİ

Jeopolimer üretimi için endüstriyel atıklar, doğal mineraller veya bunların karışımları temel başlangıç malzemeleridir. (Wu vd, 2019). Maliyete ve istenen nihai özelliklere bağlı olarak, jeopolimer oluşturmak için kullanılabilir çok çeşitli ham maddeler bulunmaktadır; örneğin, metakaolin (Lahoti vd, 2018), kırmızı çamur (Krivenko vd, 2017), endüstriyel atık küller (Pan vd, 2018; Fan vd, 2018; Novais vd, 2018) vb. Bu nedenle jeopolimerler türlerinde kullanılan hammadde ile ilintili olarak genellikle kaolin esaslı, metakaolin esaslı, cüruf takviyeli metakaolin esaslı, uçucu kül esaslı ve silis dumanı esaslı olarak isimlendirilmektedir (Davidovits, 2008a).

3.3. JEOPOLİMERLERİN UYGULAMALARI

Jeopolimer bilimi birçok alanda araştırmalar yapmaktadır ve bunlardan bazıları şunlardır; jeoloji, mineraloji, kolloid bilimi, fiziksel-kimya ve modern mühendislik. (Wu vd, 2019). Özellikle inşaatta, jeopolimer beton (Zhang vd, 2018), ısı yalıtımı (Zhang vd, 2015) harçlar, kaplamalar (Moser vd, 2013), kaldırım, tuğla (Davidovits, 1991), 3D baskı için macunlar (Zhang vd, 2018), restorasyon malzemesi (Duan vd, 2016), ve birçok alanda kullanılmaktadır.

Bu geniş uygulama yelpazesi, yüksek sıcaklık direnci (Davidovits, 1991), asitlere ve tuzlu su çözeltilerine karşı yüksek direnç (Duxson vd, 2007), dayanıklılık (Davidovits, 1991), düşük büzülme ve termal iletkenlik (Duxson vd, 2007), yüksek sıkıştırma mukavemeti gibi jeopolimer özellikleriyle ilgilidir.

Jeopolimer alanında birçok çalışma ve uygulama gerçekleştirilmiştir. Örneğin, jeopolimer kompozit malzemelerin otomobil parçaları üretiminde kullanılması, uçak ve kabin üreticileri tarafından yeni malzemelerin benimsenmesi için yapılan

alışmalar, altyapı ve bina uygulamalarında jeopolimer teknolojisinin kullanımı gibi birçok alanda ilerlemeler kaydedilmiştir. Ayrıca, jeopolimer yüksek dayanımlı çimento gibi inovasyonlar yapılmış ve bu malzemelerin inşaat, mimari ve mühendislik uygulamalarında geniş kapsamlı etkileri olmuştur. Jeopolimerlerin farklı tipleriyle gerçekleştirilen bazı başarılı uygulamalar da Davidovits'in yayınlarında listelenmiştir. (Davidovits, 2002).

Jeopolimer alanında yapılan bu çalışmalar, malzeme bilimi ve mühendisliği alanında önemli bir ilerleme sağlamış ve çeşitli endüstrilerde kullanım potansiyeline sahip yeni malzemelerin geliştirilmesine katkıda bulunmuştur.



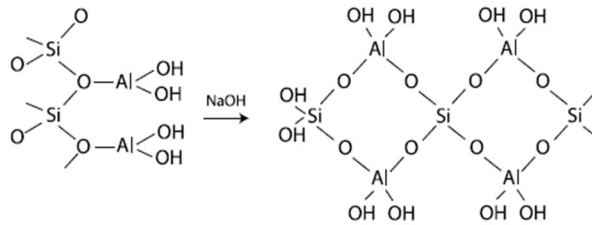
BÖLÜM 4

KALSİNE EDİLMEMİŞ KAOLİNİN JEOPOLİMER ÜRETİMİNDE KULLANILMASI

4.1. SILIFACE TEKNOLOJİSİ VE ÖNCÜ ÇALIŞMALAR

Joseph Davidovits, 1970-73 yılları arasında Fransa'da yaygın olarak kullanılan organik plastiklerin de dahil olduğu çeşitli felaket yangınları nedeniyle, yanıcı olmayan ve yanmaz plastik malzemeler üzerine araştırmalar yapmaya yönelmiştir. Bu amaçla, 1972 yılında bugün "CORDI-GÉOPOLYMÈRE" olarak bilinen özel bir araştırma şirketi kurmuştur. Yeni inorganik polimer malzemeler geliştirme arayışında, bazı organik plastiklerin ve ayrıca ısıya dayanıklı mineral feldspatoidlerin ve zeolitlerin sentezinin basit hidrotermal koşullar tarafından yönetildiği gerçeği onun dikkatini çekmiştir (Davidovits, 2008a).

Davidovits, kaolinitin 100-150°C'de NaOH ile reaksiyona girerek hidratlı sodalit veya hidroksisodalit polikondensasyona uğradığını gözlemlemiştir (Şekil 4.1). Bu gözlemlerden yola çıkarak, jeosenteze dayalı bir teknoloji geliştirmiştir (Davidovits, 2008a).



Şekil 4.1. Kaolinitin jeopolimerleşmesi (Davidovits, 2008a).

İlk uygulamaları, 1973-1976 yılları arasında geliştirilen iki jeopolimer kaplama ile kaplanmış ahşap malzemeden oluşan ve tüm panelin tek aşamalı bir süreçte üretildiği yangına dayanıklı sunta paneller gibi yapı ürünlerinden oluşmuştur. Joseph

Davidovits, bu uygulamaya "Siliface Prosesi" adını vermiştir. Bu proses, kısa sürede yüksek mukavemet ve suya dayanıklılık gösteren bir kaplama yöntemi olarak dikkat çekmiştir (Davidovits, 2008a).

4.2. LTGS TEKNOLOJİSİ İLE ÇEVRE DOSTU YAPI MALZEMELERİN ÜRETİMİ

LTGS (Low Temperature Geopolymeric Setting), düşük sıcaklıkta gerçekleşen jeopolimerik bir bağlama sürecidir. Bu süreçte, malzeme doğal olarak oluşan bağlayıcı maddelerle reaksiyona girerek aglomere olur ve sertleşir. LTGS, toprak, kil ve benzeri doğal malzemelerin mekanik özelliklerini artırmak için kullanılan bir yöntemdir. Bu süreçte, malzeme üzerine çimento, kireç veya asfalt gibi bağlayıcılar eklenmez; bunun yerine, malzeme içindeki mineral bileşenlerin birbirleriyle reaksiyona girmesi sağlanarak sertleşme gerçekleşir. LTGS, malzemenin biyoklimatik özelliklerini korurken aynı zamanda mekanik dayanıklılığını artırmaktadır (Boutterin vd, 2003).

LTGS sürecinde kaolinit, kil minerallerinin ana bileşenlerinden biri olarak önemli bir rol oynamaktadır. Kaolinit, NaOH ile reaksiyona girerek suya dayanıklı, üç boyutlu ve mekanik dirence sahip bir bileşik oluşturur (Boutterin vd, 2003). LTGS teknolojisinde jeopolimerik bağların oluşturulması için kullanılan alkali oksitlerin (NaOH ve KOH gibi) oranı, genellikle jeopolimerik reaktiflerin bileşimine bağlı olarak değişir (Boutterin vd, 2003).

Düşük sıcaklıklı jeopolimerik priz (LTGS) mekanizması, toprak malzemesinin kohezyonunu sağlamak için tamamen farklı bir prensip kullanır. Bağlayıcı eklemek yerine, mineral bileşenlerin etkileşime girip ağ yapısı oluşturmasını ve priz almasını sağlayan katalizörler (NaOH) kullanılır. Bağlayıcıyı yerinde üreten sodyum hidroksitle tepkimeye giren kaolin malzemesinin kendisidir. Bu süreç, 900°C-1100°C'de gerçekleşen seramik pişirme işlemine benzer, ancak LTGS'de priz alma oda sıcaklığında (25°C) başlayabilmektedir (Boutterin vd, 2003). Bu yenilikçi yöntem, toprak malzemelerinin düşük sıcaklıklarda ısıtılarak uygulanarak sanki yüksek sıcaklıklarda pişmiş ürünler gibi kullanılmasına olanak sağlamaktadır.

Lee vd. (2021), yüksek sıcaklıkta sinterleme yöntemi ve düşük sıcaklıkta jeopolimerik priz (LTGS) süreci ile yapı tuğlası üretmek için sondaj çamuru (DC) kullanımının uygulanabilirliğini araştırmıştır. Yapı tuğlaları, geleneksel yüksek sıcaklıkta sinterleme işlemi ve LTGS işlemleriyle üretilmiştir. Sinterleme işlemi için numuneler, 60°C'de 8 saat ve 100°C'de 24 saat kurutulduktan sonra 600°C ile 1000°C arasındaki sıcaklıklarda tuğla fırınında sinterlenmiştir. LTGS işlemi için, sondaj çamuru (DC) işleminin jeopolimerizasyonu için aktive edici bir madde olarak sodyum silikat ve sodyum hidroksit kullanılmıştır. Şekillendirilen tuğlalar oda sıcaklığında 48 saat kurutulduktan sonra 60°C'de 8 saat ve 100°C'de 24 saat fırında kurutulmuştur. Tuğlalar kuruduktan sonra 300°C, 400°C ve 500°C'de 2 saat süreyle ısıtılmasına tabi tutulmuştur. Yapılan testler sonucunda, sinterleme sıcaklıkları 600°C'den 1000°C'ye arttıkça, sinterlenmiş tuğlaların basınç ve eğilme mukavemetinin sırasıyla 2,3 MPa'dan 85,4 MPa'ya ve 1,6 MPa'dan 22,3 MPa'ya arttığı gözlemlenmiştir. LTGS sıcaklıkları için ise 300°C'den 500°C'ye çıktıkça, tuğlanın basınç ve eğilme mukavemetinin sırasıyla 42,3 MPa'dan 72,8 MPa'ya ve 12,8 MPa'dan 17,7 MPa'ya yükseldiği görülmüştür. Bununla birlikte, LTGS işlemiyle yapılan yapı tuğlalarının, yüksek sıcaklıkta sinterleme işlemiyle yapılanlara göre daha kaliteli ve daha uygun maliyetli olduğu görülmüştür.

Haiquan vd. (2016), basit prosesli, düşük üretim maliyetli, enerji tasarrufu sağlayan ve çevreyi koruyan bir jeopolimer kimyasal olarak bağlanmış seramik duvar karosu üretmek üzerine odaklanmıştır. Numune üretimi için %60 ila %75 cürufur ve uçucu kül gibi atıklar, %19 ila %38 sıvı aktivatör, %1 ila %3 katkı maddesi ve %1 ila %3 oranında kompozit sıvı katkı maddesi kullanılmıştır. Hazırlanan numuneler, ilk olarak 4 ila 16 saat boyunca oda sıcaklığında kürlenmiş, daha sonra 4 ila 16 saat boyunca 60°C ila 100°C sıcaklıkta tutulmuş ve son olarak 4 ila 16 saat boyunca 120°C ila 250°C sıcaklıkta kürlenme işlemine tabi tutulmuştur. Elde edilen duvar ve yer karolarının performans göstergeleri incelendiğinde, termal stabilitesinin 200°C ila 20°C arasında çatlama gözlemlenmemiş, eğilme mukavemetinin ise 58,82 MPa olduğu ve deformasyon oranının %2 olduğu belirlenmiştir. Jeopolimer ile kimyasal olarak bağlanmış bu duvar ve yer karolarının, geleneksel ateşlenmiş tuğlalara ve yanmamış levhalara göre üstün performansa sahip olduğu gözlemlenmiştir.

Michel vd. (1983), seramik hamuruna siliko-alüminat esaslı bir jeopolimer katkısı ekleyerek, seramik ürünlerin dekore edilmesi ve emayelenmesi için gerekli olan pişirim süresini ve sıcaklığını azaltmayı hedeflemiştir. Jeopolimerik bağlayıcılar, düşük sıcaklıkta seramik üretmek amacıyla değil, asıl seramik pişiriminden önce, ürüne dekorasyon ve sırlama aşamasına ekipman yardımıyla zarar görmeden dayanması için yeterli mekanik ve fiziksel özellikler kazandırmayı amaçlamıştır. Bu sayede kaolinin NaOH ile tepkimesini içeren süreç çift pişirim yerine doğrudan tek pişirimle karo üretmeye imkan sağlamaktadır. Bu sayede, enerji tasarrufu, üretim verimliliği ve ürün kalitesi artırılmıştır.

4.3. KAOLİN ESASLI JEOPOLİMER BAĞLAYICILAR İLE İLGİLİ YAPILMIŞ ÇALIŞMALAR

Panagiotopoulou vd. (2007), tarafından gerçekleştirilen bu çalışmada, altı farklı alüminasilikat endüstriyel mineralin ve yan ürünlerin (kaolin, metakaolin, uçucu kül, doğal puzolan, zeolit ve yüksek fırın cürufu) alkali çözeltiler (NaOH ve KOH) içerisindeki liç davranışları detaylı bir şekilde incelenmiştir. Deneylerde kullanılan alkali çözelti konsantrasyonları 2,5 M, 5 M ve 10 M olup, çözünme süreleri ise 5, 10 ve 24 saat olarak belirlenmiştir. Alümina-silikatların çözülme kabiliyetleri açısından metakaolin > zeolit > cüruf > uçucu kül > doğal puzolan > kaolin şeklinde bir sıralama elde edilmiştir. Çalışmanın sonuçları, Al ve Si'nin farklı alkali çözeltiler içindeki çözünme performanslarının değişkenlik gösterdiğini ortaya koymaktadır. Özellikle yüksek reaktif malzemeler söz konusu olduğunda, NaOH çözeltisindeki çözünmenin KOH çözeltisine göre daha yüksek olduğu saptanmıştır. Bu bulgular, alüminasilikat bazlı malzemelerin alkali aktivasyon süreçlerinde NaOH'nin KOH'ye kıyasla daha etkili bir çözündürme ajanı olarak kullanılabileceğini göstermektedir.

Esaifan vd. (2015), aktifleştirici olarak NaOH çözeltisi kullanarak işlenmemiş kaolinitin alkali aktivasyonu üzerine odaklanmıştır. Çalışmada, kaolinitik kilin yanında referans olarak standart kaolinit kullanılmış ve stabilite ile dayanıklılık farkını değerlendirmek amacıyla dolgu maddesi olarak silika kumu eklenmiştir. Hazırlanan numuneler 80°C'de 24 saat süreyle kürlenmiştir. Kürlenme işlemi sonrasında numuneler, her biri üç numuneden oluşan üç gruba ayrılmıştır. Elde edilen optimum

dayanım, kuru numuneler için 48 MPa, suya batırıldıktan sonra ıslak numuneler için 22 MPa ve alternatif kurutma ve ıslatma döngülerinden sonra numuneler için 20 MPa'dır. Hem standart kaolinit hem de kaolinitik kilin alkali aktivasyonu için yapılan XRD analizleri, kaolinitin tamamen hidrosodalite dönüştüğünü göstermiştir. Sentezlenen hidrosodalitin, dolgu maddeleri için etkili bir bağlayıcı malzeme olarak görev yapabileceği gözlemlenmiştir.

Marsh vd. (2018), hidrosodalitlerin sentezi için düşük sıcaklıkta, hidrotermal olmayan ve ekstrüzyon işlemiyle uyumlu bir prosedürü ortaya koymuştur. Bu çalışmada, alüminasilikat kaynağı olarak kaolin ve aktivatör çözelti olarak NaOH kullanılmıştır. Hazırlanan numuneler, hava atmosferinde 80°C'de 24 saat boyunca kalıplarında kürlenmiştir. XRD analiz sonuçlarına göre, düzensiz bir fazın oluşumuna dair herhangi bir kanıt bulunmamıştır; bu nedenle, numunelerde bulunan tüm fazların ya hidrosodalit ya da kaolinit öncülündeki kristal yapılar olduğu görülmüştür. Bu çalışma hidrosodalitlerin düşük sıcaklıklarda ve hidrotermal olmayan koşullarda verimli bir şekilde sentezlenebileceğini ve bu yöntemin ekstrüzyon işlemiyle uyumlu olduğunu ortaya koymaktadır.

Boyacı vd. (2018), seramik üretiminde kullanılan beş farklı kaolinin jeopolimer üretiminde Al_2O_3 ve SiO_2 kaynağı olarak kullanılabilirliğini araştırmıştır. Çalışmada, öğütülen kaolin-NaOH karışımları su ile birleştirilip preslenmiştir. Hazırlanan numunelere, farklı sıcaklıklarda (40, 80 ve 120°C) 24 saat süreyle etüv kür işlemi uygulanmıştır. Kütleme işlemi sonrasında sertleşen jeopolimerlere test analizleri yapılmış ve hazırlanan jeopolimer örneklerinin kür sıcaklığına bağlı basınç dayanım değerleri incelenmiştir. Analizler sonucunda, en yüksek basınç dayanım değerinin 80°C kür sıcaklığında yaklaşık 53 MPa olarak belirlendiği tespit edilmiştir. Bu bulgular, belirli sıcaklık koşullarının jeopolimerlerin mekanik özellikleri üzerinde önemli bir etkiye sahip olduğunu göstermektedir.

Carr vd. (2017), kaolin ve NaOH ikili sistemine dayanan yapı malzemeleri geliştirmiştir. Kullanılan malzemeler, doğal alüminasilikat mineralleri (%15-35 ağırlıkça), agregalar (%50-75 ağırlıkça), sodyum silikat ve sodyum hidroksit alkali aktivatörleri (%3-5 ağırlıkça) ve düşük kalıplama nemi (%5-10 ağırlıkça) olarak

ayarlanmıştır. Bu çalışma neticesinde üretim sürecinin de optimizasyonu ile yerkabuğunda yaygın olarak bulunan kaolin kaynakları kullanılarak sürdürülebilir alternatif yapı tuğlaları üretilmiştir.

Augustin vd. (2017), fren balataları gibi sürtünme elemanları için uygun bir kaolin esaslı jeopolimere dayanan inorganik bağlayıcı elde etmenin fizibilitesi doğrulanmıştır. Bu amaçla iki farklı sentez deneyi gerçekleştirilmiştir. İlk deneyde, kaolin ve NaOH hidrotermal sentez yoluyla karıştırılıp preslenmiş ve ardından 150°C'de 90 dakika fırında tutulmuştur. İkinci deneyde ise, metakaolin ve NaOH+Na₂SiO₃ çözelti içinde karıştırılıp preslendikten sonra kapalı bir kapta 40°C'de 7 gün boyunca kürlenmiştir. Her iki hazırlanan numunenin jeopolimerizasyon sürecini başarıyla tamamladığı gözlemlenmiştir. Ayrıca, karışıma toplam hacme göre %9 oranında organik bağlayıcı (fenolik reçine) ilave edilerek, jeopolimerik bağlayıcının performansı değerlendirilmiştir. Sonuçlar, jeopolimer ve organik bağlayıcı içeren karışımın 450°C'ye ısıtıldığında çevreye gözlemlenebilir duman, buhar veya organik parçacık salınımı yapmadığını göstermiştir. Bu buluşun yöntemleriyle elde edilen sürtünme malzemesi, otomobiller, kamyonlar, demiryolu vagonları ve çeşitli endüstriyel makineler için disk pedleri, çeneler ve balatalar gibi uygulamalarda veya debriyaj disklerinde kullanılabilirliğini kanıtlamıştır. Bu çalışma, sürtünme malzemelerinde jeopolimer teknolojisinin potansiyelini ortaya koyarak, bu alanda çevresel ve performans açısından önemli avantajlar sağlamaktadır.

Heah vd. (2011) kür sıcaklığı ve süresinin kaolin bazlı jeopolimerlerin özellikleri üzerindeki etkisi kapsamlı bir şekilde incelenmiştir. Kaolin tozu ve alkali aktivatörü, katı/sıvı (S/L) oranı 1,0 olacak şekilde hazırlanmıştır. NaOH çözeltisi, Na₂SiO₃/NaOH oranı 0,32 olacak şekilde sıvı alkali aktivatör olarak kullanılmıştır. Hazırlanan numuneler, farklı kürleme sıcaklıklarında (oda sıcaklığı, 40°C, 60°C, 80°C, 100°C) 3 gün boyunca kürlenmiştir. Elde edilen sonuçlar, kür koşullarının kaolin bazlı jeopolimerlerin mekanik özellikleri üzerinde önemli bir etkiye sahip olduğunu göstermiştir. Genel olarak, ortam sıcaklığında kürleme mümkün olmazken, sıcaklık artışı dayanım gelişimini desteklemiştir. Kürleme süresinin uzaması, jeopolimerizasyon sürecini iyileştirerek daha yüksek mukavemet kazanımına yol açmıştır. Bununla birlikte, uzun süre boyunca daha yüksek sıcaklıkta kürleme,

reaksiyonu bozarak mikro boşlukların oluşmasına ve suyun kısmi buharlaşmasına neden olmuş, bu da numunelerin bozulmasına yol açmıştır. Özellikle, 60°C’de 3 gün boyunca kürlenene numunelerin diğer numunelere göre daha fazla jeopolimerik jelle sahip olduğu ve daha yoğun hale geldiği gözlemlenmiştir. Bu bulgular, kürlenme sıcaklığı ve süresinin jeopolimer malzemelerinin performansını optimize etmek için kritik parametreler olduğunu ortaya koymaktadır.

Kamarudin vd. (2011), sodyum hidroksit (NaOH) molaritesinin (6-14M) kaolin çimento hamurunun basınç dayanımı üzerindeki etkisi analiz edilmiştir. Hazırlanan numuneler, 80°C’de 1-3 gün boyunca kürlenmiştir. Elde edilen sonuçlar, NaOH konsantrasyonunun basınç dayanımı üzerinde belirgin bir etkisi olduğunu göstermiştir. Özellikle, 12 M NaOH çözeltisi ile aktive edilen numunenin, 3 günlük kürlenme süresi sonunda 5,75 MPa basınç dayanımına ulaştığı belirlenmiştir.

Head vd. (2012), katı/sıvı (S/L) ve $\text{Na}_2\text{SiO}_3/\text{NaOH}$ oranlarının kaolin bazlı jeopolimerlerin özellikleri üzerindeki etkisi araştırılmıştır. Alkali aktivatörlerin hazırlanmasında, $\text{SiO}_2/\text{Na}_2\text{O}$ molar oranı 3,19 ile 3,67 arasında değişen sodyum silikat ve sodyum hidroksit karışımları kullanılmıştır. Kaolin ve alkali aktivatör, S/L oranları 0,60 ile 1,20 arasında ($\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Na}_2\text{O}$ molar oranı 0,63 ile 1,27 arasında) olacak şekilde karıştırılmıştır. Hazırlanan numuneler, 80°C’de 24 saat boyunca kürlenme işlemine tabi tutulmuştur. Çalışma sonucunda, kaolin jeopolimer karışımlarının işlenebilirliğinin $\text{Na}_2\text{SiO}_3/\text{NaOH}$ oranlarının artmasıyla azaldığı gözlemlenmiştir. En yüksek basma dayanımı, $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Na}_2\text{O}$ ve $\text{SiO}_2/\text{Na}_2\text{O}$ oranlarının sırasıyla 1,09 ve 3,58 olduğu durumda, 6,05 MPa olarak elde edilmiştir.

Naghsh vd. (2017), yeni bir füzyon yöntemi kullanılarak kaolin bazlı bir jeopolimerin sentezi ve etkili su yumuşatmada uygulanmasında kullanımını amaçlamıştır. Çalışmada, jeopolimer sentezi iki aşamalı bir süreçle gerçekleştirilmiştir. İlk aşamada, kaolin ve sodyum hidroksitin yüksek sıcaklıklarda füzyonu yapılmıştır. İkinci aşamada ise, elde edilen füzyon ürünü damıtılmış su ile yıkanarak hidrasyon ve dealkalizasyon işlemlerine tabi tutulmuştur. Bu yöntemde, kaolinin metakaoline dönüştürülmesine gerek duyulmamıştır. Bu yöntemle gerçekleştirilen jeopolimer sentezi, jeopolimer

hazırlama süresini yaklaşık 14 saate düşürmekte ve yüksek değişim kapasitesine sahip bir adsorban elde edilmesini sağlamaktadır.

Hounsı vd. (2013), ham kaolinin mekanik aktivasyonunun, elde edilen jeopolimerlerin kür profiline bağlı olarak nihai basınç dayanımına olan etkisi incelenmiştir. Jeopolimerlerin sentezinde alüminasilikat kaynağı olarak ham kaolin kullanılmıştır. Aktivasyon amacıyla, 8M NaOH çözeltisi ile sodyum silikatın hacim oranı (sodyum silikat/NaOH çözeltisi) 0,25 olacak şekilde ayarlanmıştır. Hazırlanan numuneler, farklı kürleme sıcaklıklarında (40°C, 70°C ve 100°C) ve farklı kürlenme sürelerinde (24 saat, 48 saat ve 72 saat) test edilmiştir. Her kürleme koşulunu takiben, numuneler oda sıcaklığında belirli yaşlanma sürelerine (2, 7, 14 veya 28 gün) tabi tutularak karakterize edilmiştir. Elde edilen veriler, ham kaolin üzerinde mekanik aktivasyon gerçekleştirildiğinde, yeterince yüksek basınç dayanımına ulaşmak için gerekli olan yeterli miktarda konsolide fazın (camsı ve kristal fazlar) oluşumunu sağlayan en iyi kürleme profilinin, numunelerin 24 saat boyunca 100°C’de kürlenmesi olduğunu ortaya koymuştur.

Okoye vd. (2015), uçucu kül ve kaolin gibi atık maddelerin alkali hidroksitler/sodyum silikat ile reaksiyona girerek jeopolimer yeşil beton üretimi incelemiştir. Maksimum dayanım elde etmek amacıyla NaOH/KOH konsantrasyonu 14M olarak belirlenmiştir. Jeopolimer karışımının işlenebilirliğini artırmak için tüm karışımlarda süperakışkanlaştırıcılar (naftalin sülfonat, melamin-formaldehit ve polikarboksilat ester bazlı süperakışkanlaştırıcılar) kullanılmıştır. Hazırlanan numuneler, kalıptan çıkarıldıktan sonra 100°C’de 72 saat kürlenmek üzere fırına yerleştirilmiştir. Kür işlemi tamamlandıktan sonra numuneler, oda sıcaklığında 3 ila 28 gün boyunca basınç dayanım değerlerinin ölçülmesi amacıyla bekletilmiştir. En iyi sonuç, 28. gün sonunda yaklaşık 45 MPa olarak gözlemlenmiştir. Ağırlıkça %1,0 oranında kullanılan naftalin bazlı süperakışkanlaştırıcı, en yüksek mukavemeti sağlarken, süperakışkanlaştırıcıların daha yüksek dozlarında dayanımın azaldığı tespit edilmiştir.

Jaya vd. (2016), sinterleme sıcaklığının kaolin jeopolimer seramiğinin fiziksel ve mekanik özellikleri ile karakteristikleri üzerindeki etkilerini kapsamlı bir şekilde incelemiştir. Kullanılan kaolinin alkalin aktivatöre oranı 1,0 ve Na₂SiO₃/NaOH oranı

0,24 olarak belirlenmiştir. Kaolin esaslı jeopolimer üretiminde çeşitli sodyum hidroksit konsantrasyonları (6-12M) kullanılarak numuneler hazırlanmış ve bu numuneler 80°C'de 24 saat kürlenmiştir. Kür işlemini takiben, numuneler 900°C, 1000°C, 1100°C ve 1200°C'de 3 saat boyunca sinterlenmiştir. Elde edilen sonuçlar, 1200°C'de sinterlenen numunelerin 86 MPa'lık maksimum eğilme mukavemetine ulaştığını göstermiştir. En yüksek dayanıma sahip numunelerin mikroyapısal analizi, yüksek sıcaklığın konsolidasyonu artırarak oldukça düzgün bir mikro yapıya olanak sağladığını ortaya koymuştur.

Ramasamy vd. (2016), kaolin/sıvı oranının kaolin jeopolimerlerinin performansı üzerindeki etkisini araştırmıştır. Bu çalışmanın odak noktası, kaolin/alkali sıvı oranının sertlik ve eğilme dayanımı ile ilişkisini incelemek olmuştur. Bu amaçla, katı/sıvı oranı 0,7 ile 1,1 arasında değişen kaolin jeopolimer macunları hazırlanmıştır. Hazırlanan jeopolimer macunlar, boyalı ahşap altlık üzerine kaplanmış ve kürlenme süresi 72 saat olarak belirlenmiştir. Sonuçlar, S/L (Katı/Sıvı) değeri 0,7 olan kaolin jeopolimer kaplı ahşap alt tabakanın en yüksek sertlik değerine (15,3 Hv) sahip olduğunu göstermiştir. Bu durum, kaolin içindeki alüminasilikatların çözünmesini artıran iyi işlenebilirlik ile açıklanmıştır. Ayrıca, S/L (Katı/Sıvı) oranı arttıkça sertlik değerinin kademeli olarak azaldığı gözlemlenmiştir. S/L (Katı/Sıvı) oranı 0,6'nın altında olan jeopolimer macunlarında ise, sertleşme aşamasında ciddi çatlaklar meydana gelmesi nedeniyle başarısızlık gözlemlenmiştir.

Shamala vd. (2019), kaolin kaplamalı kereste ağacının eğilme dayanımına ilişkin özellikler incelenmiştir. Malzeme hazırlamada kullanılan kaolin, alkali aktivatör çözeltisi ($\text{Na}_2\text{SiO}_3/\text{NaOH}$) ile karıştırılmıştır. $\text{Na}_2\text{SiO}_3/\text{NaOH}$ oranı 0,35, 0,40, 0,45, 0,50 ve 0,55 arasında değişen oranlarda ayarlanmıştır. Hazırlanan kaolin jeopolimer macunu kereste ve ahşap yüzeylere kaplanarak oda sıcaklığında bekletilmiştir. Kaplanan numuneler, 60°C'de 4 saat süreyle kürlenmiş ve daha sonra oda sıcaklığında 7 gün bekletildikten sonra test edilmiştir. Test sonuçlarına göre, katı/sıvı oranı 0,7 (yaklaşık 94,73 MPa), sodyum silikat/sodyum klorür oranı 0,40 (yaklaşık 98,05 MPa) ve NaOH molaritesi 8M olan (yaklaşık 98,05 MPa) numunelerin eğilme mukavemeti açısından en uygun ve potansiyel karışım tasarımı formülasyonunu gösterdiği tespit edilmiştir.

Tiffo vd. (2020), kaolin bazlı jeopolimerlerin sentezinde amorf alüminyum hidroksit ve alüminyum oksî-hidroksit ikamelerinin etkileri incelenmiştir. Alkalî aktive edici çözelti olarak sodyum hidroksit ve sodyum silikat kullanılmıştır. Hazırlanan numuneler, 60°C'de 7 gün boyunca kürlendikten sonra yüksek sıcaklıklarda (300-1200°C) ısıtılma tabî tutulmuştur. Belirli yüzdelerde ikame olarak kullanılan amorf alüminyum hidroksit ve alüminyum oksî-hidroksitin, ısıtılmış kaolin bazlı jeopolimerlerin termal olarak kararlı ve yüksek basınç dayanımına sahip olmasına başarılı bir şekilde katkıda bulunduđu gözlemlenmiştir.

Ramli vd. (2022), kaolin bazlı bir jeopolimerin çeşitli sinterleme sıcaklıklarında mikro yapısını ve yoğunluğunu araştırmıştır. Jeopolimer numuneleri oluşturmak için kaolin, ortam sıcaklığında alkalî aktivatör çözeltisi (NaOH ve Na₂SiO₃) ile aktive edilmiştir. Daha sonra, kaolin bazlı jeopolimer 14 gün kürlenmiş ve ardından elektrikle ısıtılan bir fırında 10°C/dk ısıtma hızında 900°C, 1000°C ve 1100°C'de 2 saat süreyle sinterlenmiştir. Sinterlenmemiş ve sinterlenmiş numunelerin tüm sıcaklıklardaki yoğunlukları zaman arttıkça azalmıştır. Sinterlenmemiş numuneler ~1610 kg/cm³ ile en yüksek yoğunluğa sahipken, 1100°C'de sinterlenen numuneler ~1203 kg/cm³ ile en düşük yoğunluğa sahipti. Mikroyapısal analizler, 1100°C'de sinterlemenin, malzemenin sinterlenmemiş muadiline göre daha büyük gözenek boyutlarıyla sonuçlandığını göstermiştir.

Demir vd. (2022), tarafından yürütölen bu çalışmada, kalsine edilmemiş kaolinlerle sodyum silikat çözeltilerinin kısa sürede dayanıklı bir jeopolimerik bağlayıcı sunabilmesine olanak sağlayan teknik incelenmiştir. Hazırlanan numunelere 260°C'deki veya yüksek sıcaklıklardaki deformasyonu önlemek amacıyla iki aşamalı ısıtılma uygulanmıştır. İlk aşamada kalıptan çıkarılan numuneler, önceden 240°C'ye ısıtılmış fırında 30 dakika süreyle bekletilmiştir. İkinci aşamada, numuneler 240°C'den hedeflenen sıcaklıklara 20°C/dakika ısıtma hızıyla 30 dakika daha ısıtılma tabî tutulmuştur. Uygulanan bu işlemlerden sonra elde edilen verilere göre en yüksek basma dayanımı 300°C'de kürlenmiş numunelerde 23,4 MPa olarak elde edilmiştir.

Derouiche vd. (2021), kaolinin mekanik aktivasyonunun fosfat bazlı jeopolimerlerin mekanik özellikleri ve mikroyapısı üzerindeki etkileri incelenmiş ve bu özellikler

termal olarak işlenmiş kaolinden elde edilen malzemelerin özellikleriyle kıyaslanmıştır. Numunelere uygulanan deneyler sonucunda, termal işlenmiş (TA) numunenin 7 günlük beklemeden sonraki basma dayanımının 2,85 MPa olduğu, 28 günlük beklemeden sonra ise 4,9 MPa'ya yükseldiği gözlemlenmiştir. Mekanik işlenmiş (MA) numunesinde ise, 7 günlük beklemeden sonraki basma dayanımının 3,44 MPa olduğu, 28 günlük beklemeden sonra ise 5,5 MPa'ya yükseldiği tespit edilmiştir.

4.5. ARKEOLOJİ VE KALSİNE EDİLMEMİŞ KAOLİN ESASLI JEOLİMERLER

Kalsine edilmemiş kaolinlerin arkeolojik çalışmalarda birçok yapıda izlerine rastlanmıştır. Bu çalışmalardan bazıları sunulmuştur.

4.5.1 Mısır Piramitleri

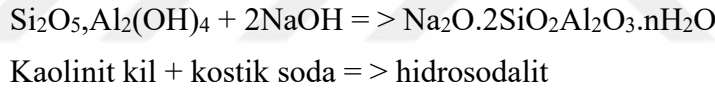
Joseph Davidovits, Mısır piramitlerinin inşasıyla ilgili yeni ve alternatif bir teori geliştirmiştir. Bu teoriye göre piramitler, devasa taş bloklar kullanılarak değil, yeniden aglomere edilmiş taş (beton benzeri işlem görmüş ve kalıplanmış doğal kireçtaşı) kullanılarak inşa edilmiştir. Davidovits'in 1988 yılında yayınladığı bu teori, sonraki yıllarda çeşitli kitaplarda güncellenerek sunulmuştur. Teori, bilimsel analizlere, arkeolojik unsurlara, hiyeroglif metinlere ve tarihi verilere dayanmaktadır ve Mısır piramitlerinin inşasıyla ilgili geniş bir perspektif sunmaktadır. Bu teori, piramitlerin inşası konusunda geleneksel teorilere alternatif bir açıklama getirmektedir (Davidovits, 2008b).

Firavunların Mısır'ını anlatan freskler, dini, bilimsel, teknik bilgilerin yanı sıra el sanatları endüstrisi, tarım, tıp ve astronomi gibi konularda kapsamlı bilgiler içermektedir. Hiyeroglif metinler aracılığıyla antik Mısır hakkında detaylı bilgilere ulaşabilmekte ve Firavunların dönemlerine dair önemli ipuçları elde edilebilmektedir (Davidovits, 2008b).

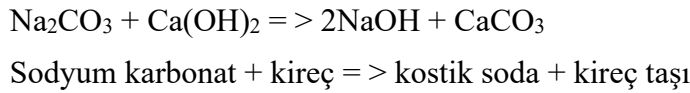
Alman jeokimyacı D.D. Klemm'in çalışmaları, piramit bloklarının büyük çoğunluğunun Giza Platosu'nun altındaki yumuşak ve killi kireçtaşı tabakasından geldiğini göstermektedir. Mısırlılar, yontma taşlar için uygun olmayan bu yumuşak ve ufalanmış kireçtaşı kullanmışlardır. Bu kireçtaşı, jeolojik yapıştırıcı üretmek ve jeosentezi sağlamak için gereken reaktif jeopolimerik bileşenleri doğal olarak içermektedir. Bu malzeme, piramitlerin inşasında kullanılan sentetik taşların temel bileşenidir (Davidovits, 2008b).

Jeosentez, kaolinit kilinin kostik soda ile reaksiyona girmesiyle gerçekleşmektedir. Bu reaksiyon sonucunda hidrosodalit adı verilen bir mineral oluşmaktadır. Kostik soda üretmek için sodyum karbonat ve kireç (bitki özlerinden elde edilir) reaksiyona girmektedir. Ayrıca, bu kimyasal reaksiyon saf kireçtaşı ve hidratlı feldspat oluşturmaktadır. Bu süreç, sentetik taşların doğal taşlara dönüştürülmesinde kullanılan bir jeosentez (jeopolimer) yöntemidir (Davidovits, 2008b).

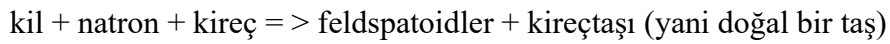
1. Kimyasal reaksiyon (1):



2. Kimyasal reaksiyon (2):



3. Yeniden aglomere edilmiş taş bağlayıcı kimyasal formülünün özeti:



4.5.2. Bitki Özlerinden Elde Edilen Organik Asitlerle Taş Malzemelerin Ayrıştırılması

İnka öncesi Huanka uygarlığının taş objeler üretme becerisi, Tihuanaco uygarlığından etkilenmiştir. Huanka geleneğindeki bazı büyücüler, taş nesneleri yaparken alet kullanmamış ve taş malzemenin bitki özleriyle kimyasal olarak çözüldüğünü göstermişlerdir. Başlangıçta taş malzemesi, organik bitki özleri tarafından çözülüp,

sertleşeceği bir kalıba dökülmüştür. Bu teknikle elde edilen taş objelerin kalıplama izleri taşıdığı ve jeopolimerlerin zeolitik ya da feldspatoidik tipte olabileceği belirtilmiştir (Davidovits vd, 1982).

Jeopolimerik reaksiyonun organo-mineral kompleksleri (bitkiler) aracılığıyla gerçekleştiği ve bu komplekslerin doğal siliko-alüminatlar üzerinde güçlü çözme etkisine sahip olduğu vurgulanmıştır. Davidovits ve arkadaşları, Huanka uygarlığının taş objelerin üretimindeki benzersiz jeopolimerik sentez yöntemini bu çalışmayla açıklamışlardır (Davidovits vd, 1982).

Bu araştırma, Huanka uygarlığının taş objeler üretiminde alet kullanmadan, bitki özlerinin kimyasal etkisiyle taş malzemeyi çözerek kalıplama yoluyla nesneler oluşturduğunu ortaya koymaktadır. Bu jeopolimerik süreç, organik ve mineral bileşenlerin etkileşimiyle meydana gelmekte olup, elde edilen taş objelerin kalıplama izleri taşıması, bu yöntemin karakteristik bir özelliğidir. Huanka uygarlığının bu benzersiz teknikle, taş objeler üretiminde ileri düzeyde bir kimyasal bilgiye sahip olduğunu göstermektedir (Davidovits vd, 1982).

Davidovits ve arkadaşları, Huanka uygarlığının taş objeler üretiminde bitki özlerinden elde edilen organik asitleri kullanarak taş malzemelerin ayrıştırılması üzerine odaklanmışlardır. Bu çalışmada, Kolomb öncesi anıtlardaki büyük taşların yapay olduğu ve bazı kayaların ayrıştırılmasıyla elde edilen bir bağlayıcı ile aglomere edildiği hipotezi sunulmuştur. Kalsiyum karbonatın (CaCO_3) bitki özleri ile işlenmesi, hidroklorik ve formik asitlerin yanı sıra çeşitli karboksilik asitlerin kullanılmasıyla kimyasal olarak işlenmesinin fizibilitesi incelenmiştir (Davidovits vd, 1982).

Kalsiyum karbonat (CaCO_3) içeren kayaların çözünmesi veya ayrışması üzerine yapılan deneysel çalışmalar, bitki özlerinden elde edilen karboksilik asitlerin (asetik, oksalik, sitrik asit) kalsiyum karbonat üzerindeki çözünme etkisinin hidroklorik ve formik asitlere göre daha fazla olduğunu ortaya koymuştur. Bu bulgular, bitki özlerinden elde edilen organik asitlerin taş malzemelerin ayrıştırılmasında etkili bir alternatif olabileceğini göstermektedir (Davidovits vd, 1982).

4.5.3. Mısır Fayansları Üzerine Yapılan Araştırmalar

Davidovits ve arkadaşları, Antik Mısır döneminde üretilen fayansların renk oluşumu ve üretim teknikleri üzerine araştırmalarda bulunmuşlardır. Özellikle Djoser'in mavi Mısır fayanslarının üretiminde kullanılan turkuaz mavisi sırn özelliklerini ve bileşimini anlamak için önemli ipuçları sunmuşlardır. Bu fayansların renk çeşitliliği ve üretim süreçleri, antik seramik sanatının karmaşıklığını ve ustalığını yansıtmaktadır. Djoser'in fayanslarında turkuaz mavisi sırn yanı sıra gri, siyah, yeşil ve bej gibi renklere de rastlanması, farklı bileşenlerin kullanımını ve üretim tekniklerinin çeşitliliğini göstermektedir (Davidovits vd, 2004).

Djoser'in mavi Mısır fayanslarının üretiminde kullanılan turkuaz mavisi sırn düşük sıcaklıklarda (örneğin 250°C) kendiliğinden sırlama işlemiyle elde edildiği tespit edilmiştir. Bu sırn içeriğinde alüminyum-bakır fosfat minerali olan turkuazın (mafkat) kullanıldığı düşünülmektedir. Kendiliğinden sırlama işlemi sırasında çözünebilir elementlerin çiçeklenmesi ve suyun varlığı da dikkat çekici bulgular arasındadır. Mikroskopik ve mikro kimyasal analizler, fayansların sır tabakalarının SiO₂, CuO ve su (ağırlıkça %13) ile az miktarda alkali tuzlar, demir, fosfor ve klor içerdiğini ortaya koymuştur. Bu bulgular, sırların düşük sıcaklıklarda kendiliğinden sırlama işlemine tabi tutulduğunu ve suyun sırların bileşiminde önemli bir rol oynadığını göstermektedir (Davidovits vd, 2004).

4.5.4. LTGS Süreci İle Üretilen Seramikler Üzerine Yapılan Araştırmalar

Frédéric Davidovits, Alessandro Naso ve Joseph Davidovits tarafından yürütülen çalışmada, Etrüsk seramiklerinin VII-VIII. yüzyıl öncesindeki üretim sürecinde LTGS (Low Temperature Geopolymeric Setting) tekniğinin kullanımı incelenmiştir. Bu çalışma, antik seramiklerin üretiminde yeni bir perspektif sunarak, geleneksel yöntemlere alternatif bir çözüm getirmekte ve arkeolojik araştırmalara önemli katkılar sağlamaktadır. Bu teknik sayesinde, düşük sıcaklıklarda (50-500°C) ve basit bir odun ateşinde Etrüsk Bucchero Nero ve Impasto Marrone gibi seramiklerin üretilebileceği gösterilmiştir. Araştırmanın sonuçları, LTGS tekniğinin antik seramiklerin üretimindeki potansiyelini ve bu teknikle elde edilen seramiklerin özelliklerini

vurgulamaktadır. Özellikle, düşük sıcaklıklarda organo-mineral komplekslerin göç etmesiyle siyah veya koyu renkli yüzey kaplamalarının oluşturulabileceği belirtilmektedir (Davidovits vd, 1999).



BÖLÜM 5

JEOPOLİMERLERİN BİR SERAMİK ÖNCÜSÜ OLARAK KULLANILMASI VE SİNERLENMESİ

Jeopolimer malzemeler bileşim olarak alkali oksit, alümina ve silika bileşenlerinden oluştuğu için ısıtıldıklarında seramikleşerek bileşimleri ile bağlantılı çeşitli seramik ürünler sunma potansiyeline sahiptir. Bu süreçte jeopolimer bağlayıcının jeopolimer tepkimeleri ile oluşturduğu bağlar, tepkimeler için geleneksel toz hammadde karışımlarına göre avantajlar sağlamaktadır. Bu durum çeşitli geleneksel seramiklerin hem oda sıcaklığında basit yöntemler ile işlenebilir ve dayanıklı ön şekillendirmesine imkan sağlamakta hem de daha düşük sıcaklıklarda sinterlenmesine olanak sağlamaktadır.

Kuenzel vd. (2013), ağırlığının %50'sini silika kumu içeren Na bazlı metakaolin esaslı jeopolimer harçların 1200°C'ye kadar yüksek sıcaklıklara maruz kaldıktan sonraki özelliklerini ve mikro yapılarını araştırmıştır. Hazırlanan numuneler, daha sonra 77 gün boyunca oda sıcaklığında kürlenmiştir. Ancak, kürlenmiş numuneler yüksek su içeriğine sahip olduğundan, ısıtılma işleminden önce 35°C'de 24 saat kurutulmuştur. 1000°C'de sinterlenen numuneler, nispeten yüksek basınç dayanımı (~275 MPa) ve yüksek vickers sertliği (~350 HV) olan nefelin/kuvars kristal faz yapısına sahip seramiklere dönüşmüştür. Ancak, 1000°C'nin üzerindeki sıcaklıklarda basınç dayanımının düştüğü ve amorf bir fazın yeniden ortaya çıktığı gözlemlenmiştir.

He vd. (2013a), jeopolimer öncüllerini ısıtarak lösit seramiklerinin mikro yapısı, bütünselliği ve mekanik özellikleri üzerindeki etkilerini araştırmışlardır. K-Metakaolin esaslı jeopolimer numunesi, 800°C'de 120 dakika kalsine edildikten sonra önemli miktarda lösit oluşturmuştur. Numunelere yapılan testler sonucunda, lösit seramiğinin bükülme mukavemeti, young modülü ve vickers sertliği sırasıyla; 70,0 MPa, 65,0 GPa ve 7,39 GPa olarak belirlenmiştir. Bu büyük artış, jeopolimer öncülünün sinterlenmesi ve kristalleşmesi ile ilişkilendirilmiştir. Sonuç olarak, basit

işleme prosedürleri ve düşük maliyeti ile birlikte dental uygulamalarda önemli bir ürün geliştirilmiştir.

He vd. (2013b), sentetik metakaolin kullanılarak CsOH (sezyum hidroksit) bazlı jeopolimerden pollusit seramikler hazırlanmış ve bu seramiklerin termal genleşme davranışları incelenmiştir. Hazırlanan numune, 1000°C'ye kadar ısıtıldığında amorf yapısını korumuş ve daha yüksek sıcaklıklara çıktığında (1200°C'de 2 saat ısıtıldığında) önemli miktarda pollusit kristalitleri oluşmuştur. Pollusit seramiğin, 25-1200°C sıcaklık aralığında $2,8 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ genleşme katsayısına sahip olduğu gözlemlenmiştir. Jeopolimer öncülerinden elde edilen pollusit seramiklerin, seramik matris kompozitler, termal şoka dayanıklı kalıplar ve filtreler gibi potansiyel malzemeler olabileceği belirtilmiştir.

Gao ve arkadaşları (2024), farklı Si/Al oranlarına sahip sodyum bazlı jeopolimer kullanarak seramikleri sinterleme yoluyla üretmiştir. Başlangıç maddesi olarak kaolin ve silika tozları, NaOH çözeltisi ile birleştirilmiştir. Presleme ile şekillendirilen numuneler 80°C'de kür edilmiş ve ardından sinterlenmiştir. Çalışma sonucunda, küresel sodalit yapılarının sinterleme ile camsı nefelin yapısına dönüştüğü gözlemlenmiştir.

BÖLÜM 6

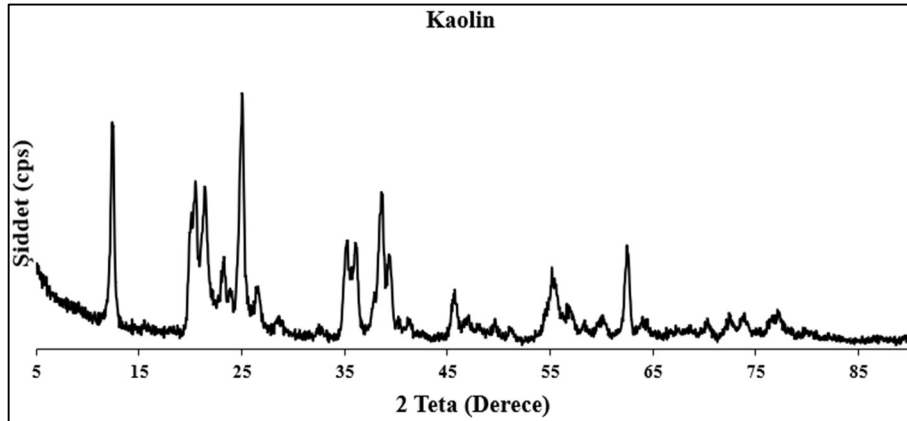
DENEYSEL ÇALIŞMALAR

6.1. MALZEME

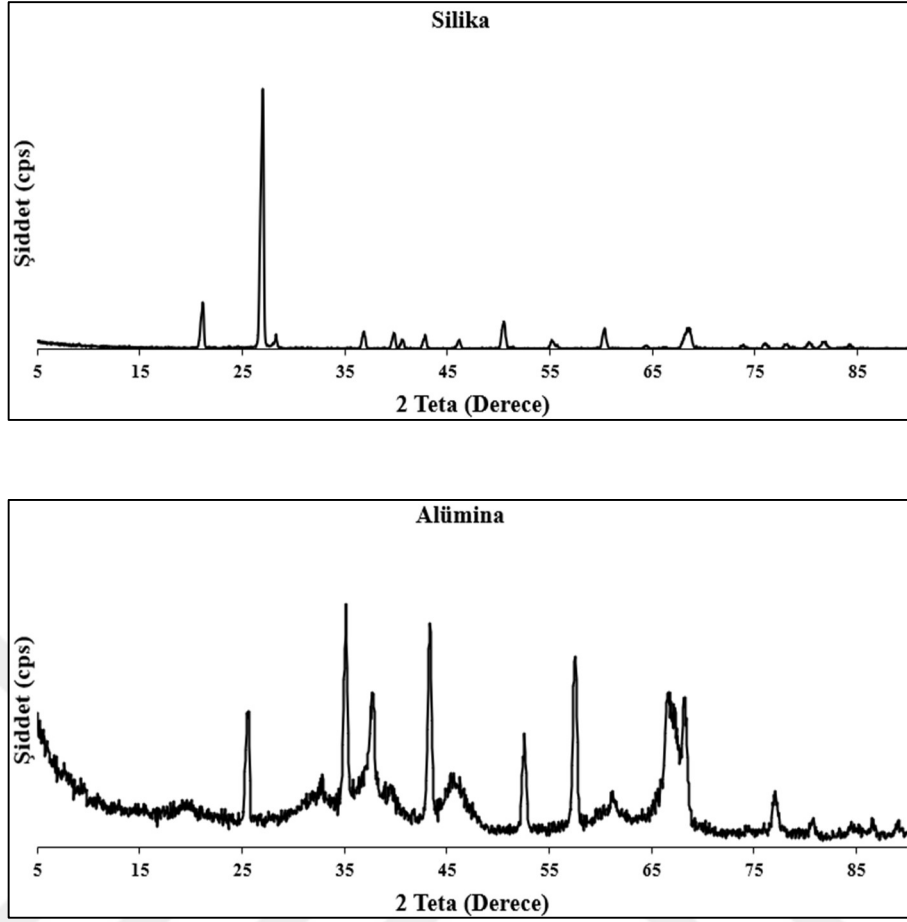
Çalışmada yüksek saflıkta kaolin kullanılmıştır. Çalışmada dolgu olarak silika ($d_{90}=41\ \mu\text{m}$) ve alümina tozları ($d_{90}=20\ \mu\text{m}$) kullanılmıştır. Kullanılan hammaddelerin kimyasal analizi çizelge 6.1’de faz analizi ise şekil 6.1’de verilmiştir. Kullanılan kaolin, alümina ve silika tozlarının XRD paterninde monofaz bir yapı olarak sadece ilgili toza ait XRD pikleri gözlenmiştir. Çalışmada Merck marka yüksek saflıktaki NaOH katı peletleri kullanılmıştır.

Çizelge 6.1. Kullanılan tozların kimyasal analizi.

	SiO ₂	Al ₂ O ₃	K ₂ O	Na ₂ O	CaO	Fe ₂ O ₃
Kaolin	46,1	36,9	1,07	-	0,03	1,6
Alümina	0,23	99,74	-	-	-	-
Silika	97,08	2,51	0,19	-	0,09	0,10



Şekil 6.1. Kullanılan hammaddelerin XRD analizleri.



Şekil 6.1. (devam ediyor).

6.2. YÖNTEM

Çalışmada dolgu olarak alümina tozu içeren ve silika tozu içeren malzeme olmak üzere iki ayrı numune serisi üretilmiştir. Bu amaçla; NaOH ve su karıştırılarak aktivatör çözeltiler hazırlanmıştır. Çözelti 1 saat dinlendirmeye takiben kullanılmıştır. Kaolin ve ince seramik dolgu tozları (silika ve alümina) kütleli olarak 1:1 oranında katı olarak mikser ile homojen bir karışım elde edilene kadar karıştırılmıştır. Aktivatör çözelti katı toz karışımı ile $\text{Na}_2\text{O}/\text{Al}_2\text{O}_3$ molar oranları 0,8 ve 0,4 olacak şekilde karıştırılarak, iki farklı $\text{Na}_2\text{O}/\text{Al}_2\text{O}_3$ molar oranında plastik şekil alabilir çamurlar hazırlanmıştır. Karışımlar çelik kalıplarda 15 mm çapında silindirler olarak şekillendirilmiştir. Kalıptan çıkan örnek bir numunenin fotoğrafı Şekil 6.2’de verilmiştir.



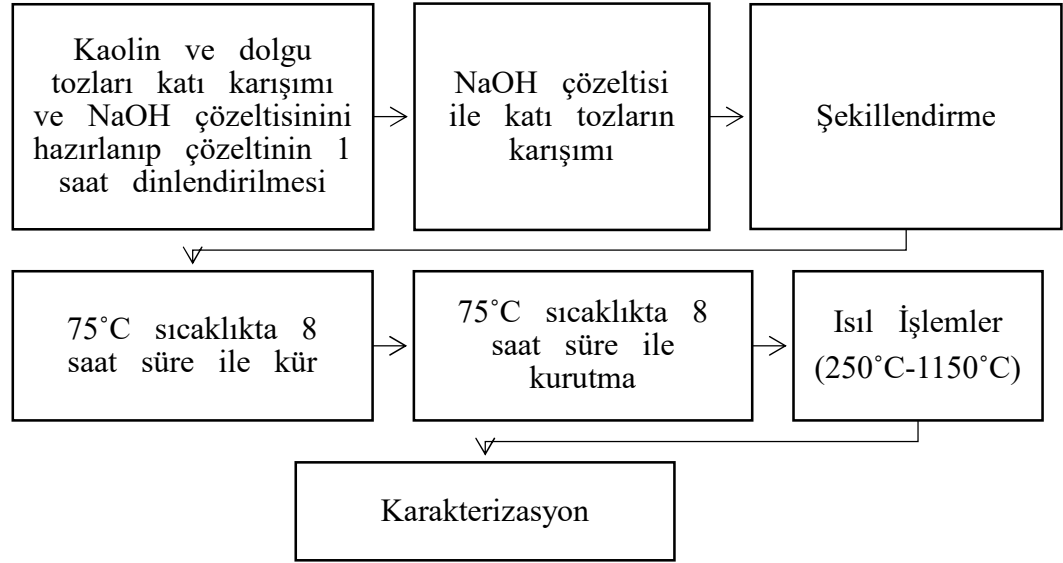
Şekil 6.2. Şekillenmiş yaş numune.

Numuneler 75°C sıcaklıkta 8 saat süre ile buharlaşmaya kapalı kaplar içerisinde kür edilmiştir ve takiben 8 saat süre ile aynı sıcaklıkta buharlaşmaya açık olarak kurutulmuştur. Numunelerin kür edildiği ve kurutulduğu etüv fırının resmi Şekil 6.3'te verilmiştir.

Kurutulan numuneler ısıtıl işlem fırınlarında 3°C/dak. hız ile 250°C, 500°C, 650°C, 750°C, 850°C, 950°C, 1050°C ve 1150°C sıcaklıklarına ısıtılarak bu sıcaklıklarda 3 saat süre ile ısıtıl işleme maruz bırakılmıştır. Takiben numuneler oda sıcaklığına fırın içerisinde soğutulmuştur. Numunelerin üretim akış şeması Şekil 6.4'te verilmiştir.



Şekil 6.3. Kür için kullanılan fırın.



Şekil 6.4. Numune üretim akış şeması.

Numunelerin ısıtıl işlem öncesi ve sonrası ağırlıkları ve boyları kaydedilerek aşağıdaki eşitliğe göre %kütle kaybı (eşitlik 6.1) ve %küçülme (eşitlik 6.2) değerleri hesaplanmıştır. Eşitlikteki M_i ısıtıl işlem öncesi ağırlık M_s ısıtıl işlem sonrası ağırlıktır. B_i ısıtıl işlem öncesi boy B_s ise ısıtıl işlem sonrası boydur.

$$1. \quad \% \text{ Kütle Kaybı} = ((M_i - M_s) / M_i) * 100 \quad (6.1)$$

$$2. \quad \% \text{ Küçülme} = ((B_i - B_s) / B_i) * 100 \quad (6.2)$$

Çalışmada numunelere 1mm/dak hızla basma dayanımı testi yapılmış numunelerden elde edilen en yüksek değer basma dayanımı olarak kaydedilmiştir. Basma dayanımı için üç adet numunede ölçüm yapılmış ve ortalama değer kaydedilmiştir. Basma dayanımı testi ZWICK/ROELL Z600 markalı 600 kN kapasiteli cihazda yapılmıştır.

Numunelerin bağ yapısı analizi $400-4000 \text{ cm}^{-1}$ dalga boyları arasında BRUKER marka FT-IR cihazı ile geçirgen modda yapılmıştır.

Numunelerin termal davranışı HITACHI STA 7300 DTA-TG cihazı ile ölçüm yapılarak belirlenmiştir. Bu amaçla DTA-TG analizi sadece ısıtıl işlem görmeyen numunelere ve ham kaoline yapılmıştır. DTA-TG ölçümü $5^\circ\text{C}/\text{dak}$ hızla oda sıcaklığı ve 1000°C sıcaklık aralığında argon atmosferinde yapılmıştır. Her bir ısıtıl işlem

ardından numunelere XRD analizi yapılarak faz gelişimi izlenmiştir. XRD analizleri 5-90⁰ arasında 5°C/dak hızla RIGAKU marka cihazda yapılmıştır.

Numuneler iletken olamadıkları için yüzeyleri öncesinde kaplanmış ve takiben SEM analizleri CARL ZEISS GEMINI marka cihaz ile yapılmıştır. Üretilen numuneler ve bunlar üzerinde yapılacak testler Tablo 6.1.'de detaylı olarak sunulmuştur.

Numuneler katı:su oranı (k/s) 1:10 olarak distile suyun içerisine tamamen batacak şekilde yerleştirilmiştir. Numuneler, 24 saat boyunca suda bekletildikten sonra, bekletildikleri suyun pH ölçümleri yapılmıştır. pH ölçümleri için HANNA HI 83141 markalı pH metre cihazı kullanılmıştır.

Numuneler 24 saat suda bekletildikten sonra suya dayanan numunelerin %su emme değerleri (eşitlik 6.3) ve askıda ağırlıkları alınarak Arşimet metodu ile yoğunlukları (eşitlik 6.4) ve %açık gözeneklilikleri (eşitlik 6.5) hesaplanmıştır. Eşitlikteki Ms suya doymuş ağırlığı, Mi kuru ağırlığı ve Ma askıda ağırlığı temsil etmektedir.

$$3. \quad \% \text{ Su Emme} = ((M_s - M_i) / M_i) * 100 \quad (6.3)$$

$$4. \quad \text{Yoğunluk} = ((M_i / (M_s - M_a)) \quad (6.4)$$

$$5. \quad \text{Açık gözeneklilik} = (M_s - M_i) / (M_s - M_a) * 100 \quad (6.5)$$

Numuneler öğütülüp ince toz haline getirilip piknometre ile (eşitlik 6.6) kullanılarak numunelerin yoğunluk, toplam gözenek ve kapalı gözenek oranları hesaplanmıştır. Eşitlikteki Mp piknometre ağırlığı, Möp piknometre ağırlığı+toz numune ağırlığı, Möps piknometre+toz+su ağırlığı ve Wps piknometre su ile doldurulduğundaki ağırlığı temsil etmektedir.

$$6. \quad \text{Teorik yoğunluk} = ((Möp - M_p) / (Möp + W_{ps}) - (M_p + M_{öps})) \quad (6.6)$$

Çizelge 6.2. Üretilen numuneler ve yapılan testler.

NUMUNE TÜRÜ	ISIL İŞLEM SICAKLIĞI (°C)	XRD	DTA- TG	FTIR	BASMA DAYANIMI	%SU EMME, %GÖZENEKLİLİK, YOĞUNLUK ve pH TESTLERİ	%KÜTLE KAYBI ve % KÜÇÜLME TESTLERİ
Silika Dolgulu Numune (Na/Al=0,4)	75	✓	✓	✓	✓	✓	
Alümina Dolgulu Numune (Na/Al=0,4)	75	✓	✓	✓	✓	✓	
Silika Dolgulu Numune (Na/Al=0,8)	75	✓	✓	✓	✓	✓	
Alümina Dolgulu Numune (Na/Al=0,8)	75	✓	✓	✓	✓	✓	
Silika Dolgulu Numune (Na/Al=0,8)	250	✓		✓	✓	✓	✓
Alümina Dolgulu Numune (Na/Al=0,8)	250	✓		✓	✓	✓	✓
Silika Dolgulu Numune (Na/Al=0,8)	500	✓		✓	✓	✓	✓
Alümina Dolgulu Numune (Na/Al=0,8)	500	✓		✓	✓	✓	✓
Silika Dolgulu Numune (Na/Al=0,8)	650	✓		✓	✓	✓	✓
Alümina Dolgulu Numune (Na/Al=0,8)	650	✓		✓	✓	✓	✓
Silika Dolgulu Numune (Na/Al=0,8)	750	✓		✓	✓	✓	✓
Alümina Dolgulu Numune (Na/Al=0,8)	750	✓		✓	✓	✓	✓
Silika Dolgulu Numune (Na/Al=0,8)	850	✓		✓	✓	✓	✓
Alümina Dolgulu Numune (Na/Al=0,8)	850	✓		✓	✓	✓	✓
Silika Dolgulu Numune (Na/Al=0,8)	950	✓		✓	✓	✓	✓
Alümina Dolgulu Numune (Na/Al=0,8)	950	✓		✓	✓	✓	✓
Silika Dolgulu Numune (Na/Al=0,4)	1050	✓		✓	✓	✓	✓
Alümina Dolgulu Numune (Na/Al=0,4)	1050	✓		✓	✓	✓	✓
Silika Dolgulu Numune (Na/Al=0,8)	1050	✓		✓	✓	✓	✓
Alümina Dolgulu Numune (Na/Al=0,8)	1050	✓		✓	✓	✓	✓
Silika Dolgulu Numune (Na/Al=0,8)	1150	✓		✓	✓	✓	✓
Alümina Dolgulu Numune (Na/Al=0,8)	1150	✓		✓	✓	✓	✓

BÖLÜM 7

DENEYSEL SONUÇLAR VE TARTIŞMA

7.1. NUMUNELERİN GÖRÜNÜŞLERİ

Şekil 7.1’de kurutma işlemi sonrasındaki alümina dolgulu (a) ve silika dolgulu (b) numunelerin görünüşleri verilmiştir. Alümina dolgulu numunelerde kaolinin rengi belirgin iken silika dolgulu numunelerde beyaz bir renk saptanmıştır. Bu numuneler içerisindeki karbonasyona işaret etmektedir. Alümina dolgulu numunelerde ise ham kaoline ait tonlar gözlenmiştir. Hiçbir katkı olmadan üretilen numunelerin de beyaz bir renge sahip olduğu gözlenmiştir. Bu durum alümina tozlarının çiçeklenmeyi diğer bir ifadeyle numunelerde karbonasyonu azalttığına işaret etmektedir.



(a)



(b)

Şekil 7.1. Kurutma işlemi sonrasındaki alümina dolgulu (a) ve silika dolgulu (b) numunelerin görünüşleri.

7.2. BASMA DAYANIMI TESTİ SONUÇLARI

Şekil 7.2’de farklı sıcaklıklardaki ve $Na/Al=0,8$ molar oranına sahip kaolin esaslı silika ve alümina dolgulu numunelerin basma dayanımı değerleri verilmiştir. Hem silika dolgulu hem de alümina dolgulu numunelerde, ısıtılma sıcaklığının artmasıyla basma

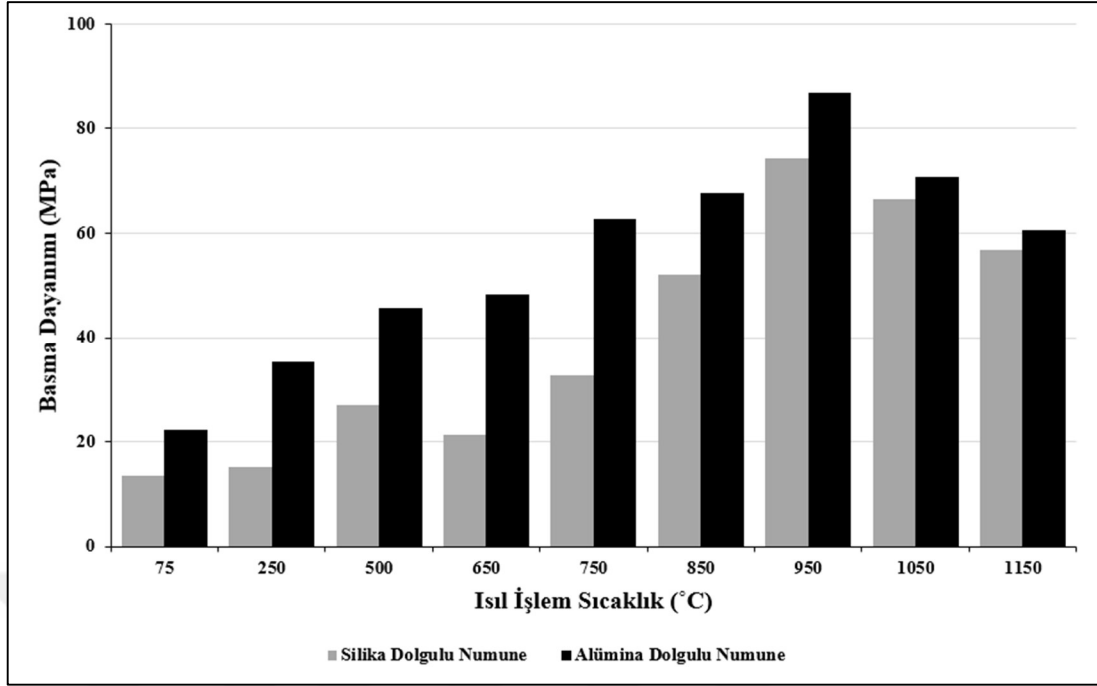
dayanımlarında genel bir artış gözlenmiştir. Artan ısı işlem sıcaklığı ile jeopolimerlerin basma dayanımında artışlar olduğu bilinmektedir (Yaşın vd, 2019).

Silika dolgulu numunelerde en yüksek basma dayanımı 950°C'de 74,3 MPa iken, alümina dolgulu numunelerde en yüksek basma dayanımı yine 950°C'de 86,9 MPa olarak kaydedilmiştir.

Silika dolgulu numunede 650°C sıcaklıkta muhtemelen kuvarsın faz dönüşümü nedeni ile bir dayanım düşüşü görülmüştür. Subaer vd. (2007) 574°C sıcaklık civarında kuvars içeren metakaolin esaslı jeolimerlerde kuvarsta gerçekleşen ani genleşme nedeni ile, bu jeopolimerlerin kullanışlı sıcaklıklarının bu sıcaklığın altında olduğunu öne sürmüştür. Alümina dolgulu numuneler, 1150°C'ye kadar olan sıcaklıklarda silika dolgulu numunelere kıyasla her bir sıcaklık bandında daha yüksek basma dayanımı göstermiştir. Lin vd. (2009) alümina dolgulu metakaolin esaslı jeopolimerlerde 600°C'ye kadar eğme dayanımının kademeli olarak geliştiğini 600 ila 1200°C sıcaklığı arasında ise ani bir artış görüldüğünü rapor etmiştir.

950°C'nin üzerinde her iki numune türünde de basma dayanımında bir düşüş gözlenmiştir, bu da bu sıcaklık aralığının üzerinde malzemelerin mekanik özelliklerinde bozulmalar meydana geldiğini düşündürmektedir. Bu bozulmalar aşırı sıvı faz (camsı faz) oluşumu kaynaklı olabilir. Kuenzel vd. (2013) kuvars dolgulu metakaolin esaslı jeopolimer numunelerde artan ısı işlem sıcaklığıyla eğme dayanımı düşüşünü kuvarsın faz dönüşümlerine bağlamıştır.

Bu veriler, ısı işlem sıcaklığının ve dolgu türünün üretilen numunelerde basma dayanımı üzerinde önemli bir etkisi olduğunu göstermektedir.

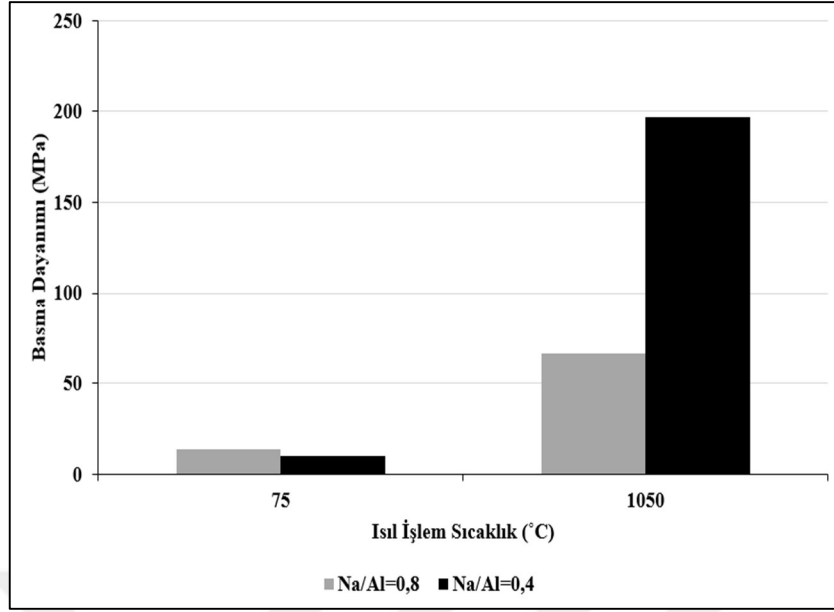


Şekil 7.2. Farklı sıcaklıklardaki ve Na/Al=0,8 molar oranına sahip kaolin esaslı silika ve alümina dolgulu numunelerin basma dayanımı değerleri.

Şekil 7.3'te farklı sıcaklıklardaki ve farklı Na/Al molar oranına sahip kaolin esaslı silika dolgulu numunelerin basma dayanımı değerleri verilmiştir. Düşük sıcaklıkta (75°C) her iki numune türünde de basma dayanımları birbirine yakın değerler göstermektedir.

Yüksek sıcaklıkta (1050°C) her iki numune türünde de basma dayanımlarında belirgin artışlar gözlemlenmektedir. Ancak, Na₂O/Al₂O₃=0,4 oranlı numunelerde bu artış çok daha fazla gerçekleşmiş ve basma dayanımı 196,7 MPa'ya ulaşmıştır.

Na₂O/Al₂O₃ oranının 0,4 olduğu numunede belirgin daha yüksek dayanımın, Na₂O oranının soda, alümina ve silika üçlü sistemindeki yüksek sıcaklıklarda oluşan sıvı faz oranını kontrol etmesi nedeniyle, mekanik özellikler açısından daha uygun miktarda sıvı faz oluşumunu numunede sağlamasından kaynaklandığı düşünülmektedir. Bu durum porselen ve stoneware gibi geleneksel seramik türevi olan sinterlenmiş hidrosodalit tipi jeopolimer esaslı malzemelerde jeopolimer bileşimindeki Na₂O/Al₂O₃ molar oranının sıcaklıkla birlikte geniş bir aralıkta sıvı faz optimizasyonu için kullanışlı bir araç olduğunu göstermektedir.



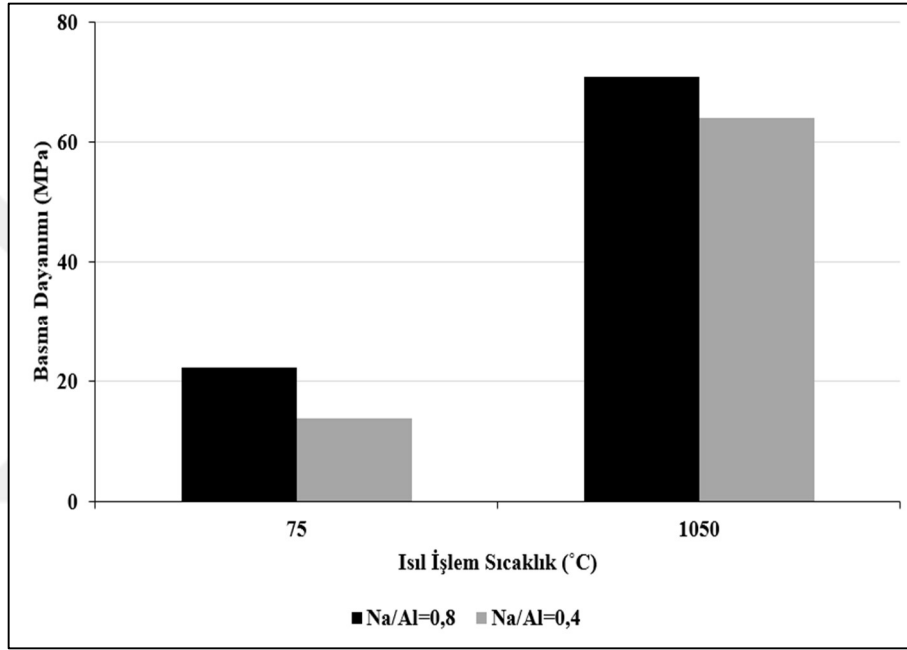
Şekil 7.3. Farklı sıcaklıklardaki ve farklı Na/Al molar oranına sahip kaolin esaslı silika dolgulu numunelerin basma dayanımı değerleri.

Şekil 7.4'te farklı sıcaklıklardaki ve farklı Na/Al molar oranına sahip kaolin esaslı alümina dolgulu numunelerin basma dayanımı değerleri verilmiştir. Düşük sıcaklıkta (75°C) $\text{Na}_2\text{O}/\text{Al}_2\text{O}_3=0,8$ oranlı numuneler, $\text{Na}_2\text{O}/\text{Al}_2\text{O}_3=0,4$ oranlı numunelere göre daha yüksek basma dayanımı göstermiştir. Numunelerde de gözlenen bu eğilim artan Na_2O oranının daha fazla kaolinden jeopolimer dönüşümüne neden olduğuna bir işarettir.

Yüksek sıcaklıkta (1050°C) her iki numune türünde de basma dayanımlarında belirgin artışlar gözlemlenmektedir. Ancak, $\text{Na}_2\text{O}/\text{Al}_2\text{O}_3=0,8$ oranlı numuneler 70,8 MPa ile daha yüksek basma dayanımı sergilemiştir. $\text{Na}_2\text{O}/\text{Al}_2\text{O}_3=0,4$ oranlı numuneler 1050°C'de 63,9 MPa'ya ulaşarak, $\text{Na}_2\text{O}/\text{Al}_2\text{O}_3=0,8$ oranlı numunelere göre daha düşük bir basma dayanımı göstermiştir.

Isıl işlem sıcaklığının artması her iki numune türünde de basma dayanımını artırmaktadır. Ancak, daha yüksek $\text{Na}_2\text{O}/\text{Al}_2\text{O}_3$ oranına sahip alümina dolgulu numuneler, genel olarak daha üstün mekanik performans sergilemiştir. Alümina tozunun metakaolin esaslı jeopolimerlerdeki refrakterik etkisi bilinmektedir (Yaşın vd, 2019). Alüminanın refrakterik etkisi ve Na_2O 'in flaks(eritici) etkisi beraber ele alındığında; alümina dolgulu numunelerin uygulanan ısıtıl işlem sıcaklığında daha

yüksek mekanik özelliklerin elde edilmesi açısından mevcut olandan daha fazla sıvı faza ihtiyaç duyması nedeniyle jeopolimer formülasyonundaki daha yüksek $\text{Na}_2\text{O}/\text{Al}_2\text{O}_3$ oranında daha yüksek basma dayanımı elde edilmiştir. Silika dolgulu numunelerin ise daha düşük toplam Al_2O_3 içerikleri nedeni ile optimum dayanım için mevcut olandan daha az sıvı faza ihtiyaç duyması dolgu tipine göre kaolin esaslı jeopolimer bileşimindeki $\text{Na}_2\text{O}/\text{Al}_2\text{O}_3$ oranının optimize edilebileceğini göstermektedir.



Şekil 7.4. Farklı sıcaklıklardaki ve farklı Na/Al molar oranına sahip kaolin esaslı alümina dolgulu numunelerin basma dayanımı değerleri.

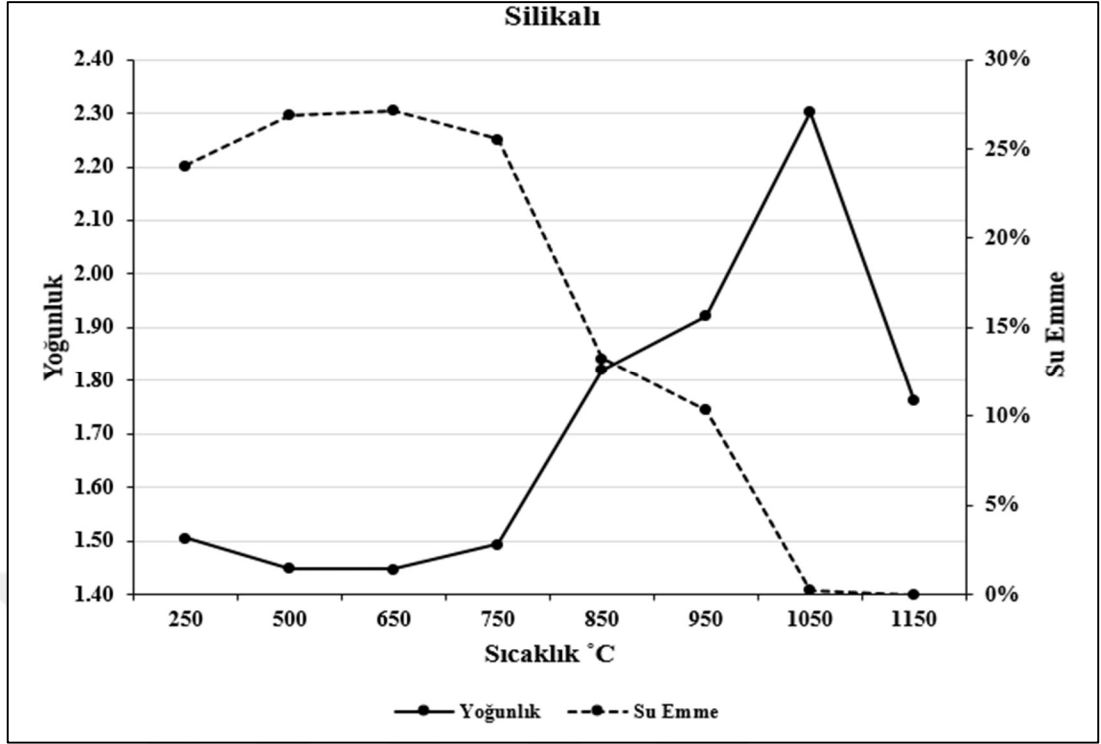
7.3. YOĞUNLUK, SU EMME, KAPALI GÖZENEK, AÇIK GÖZENEK, pH DEĞERİ TESTİ SONUÇLARI

Şekil 7.5'te farklı sıcaklıklardaki ve Na/Al=0,8 molar oranına sahip kaolin esaslı silika dolgulu numunelerin yoğunluk ve su emme değerlerinin artan ısıl işlem sıcaklığı ile değişimleri verilmiştir. Bu veriler, malzemelerin termal davranışı ve su ile etkileşimi hakkında önemli bilgiler sağlamaktadır.

75°C'de üretilen silikalı numune, su emme testinde dağıldığından dolayı analiz verileri alınamamıştır. 250°C'de yoğunluk yaklaşık 1,5 g/cm³ olarak ölçülmüştür. 250-750°C

sıcaklık aralığında, yoğunlukta önce düşüş sonrasında bir artış gözlenmiştir ve 750°C'de yaklaşık 1,4-1,5 g/cm³ seviyelerinde kalmaktadır. Bu durum, jeopolimer matrisinde meydana gelen küçülmeler ve dehidrasyon kaynaklı kütle kayıplarından kaynaklanmaktadır. 850°C'de yoğunlukta önemli bir artış başlamış ve 1050°C'de yaklaşık 2,3 g/cm³'ye ulaşmıştır. Bu artış, jeopolimer matrisinde meydana gelen sinterleme ve kristalizasyon süreçlerinin bir sonucudur. Metakaolin esaslı jeopolimerlerde de benzer davranış gözlenmiştir (Yaşın vd, 2019). 1050°C'deki pik noktadan sonra, yoğunluk 1150°C'de azalmış ve yaklaşık 1,7 g/cm³ olarak ölçülmüştür. Bu azalma, malzemenin yapısal yoğunlaşmasının bir sınırına ulaşıldığını ve muhtemelen bazı yapısal bozulmaların meydana geldiğini göstermektedir.

250°C'de su emme oranı yaklaşık %24 olarak ölçülmüştür (Şekil 7.5). 250-750°C sıcaklık aralığında su emme değerlerin yoğunluk değerleri ile ilişkili olarak önce artmış sonra bir miktar azalmıştır. 750°C sıcaklık sonrasında su emme %25,55 seviyelerinde kalmıştır. Bu durum, numunenin gözeneklilik yapısında önemli bir değişiklik olmadığını göstermektedir. 850°C'de su emme oranı önemli ölçüde azalmış ve 1050°C'de yaklaşık %0,25 seviyesine inmiştir. 1150°C'de su emme oranı %0 olarak ölçülmüştür. Bu, jeopolimer matrisinin sinterleme ile yoğunlaşması ve gözeneklerin kapanması ile suyun numune içine nüfuz edememesiyle açıklanabilir.

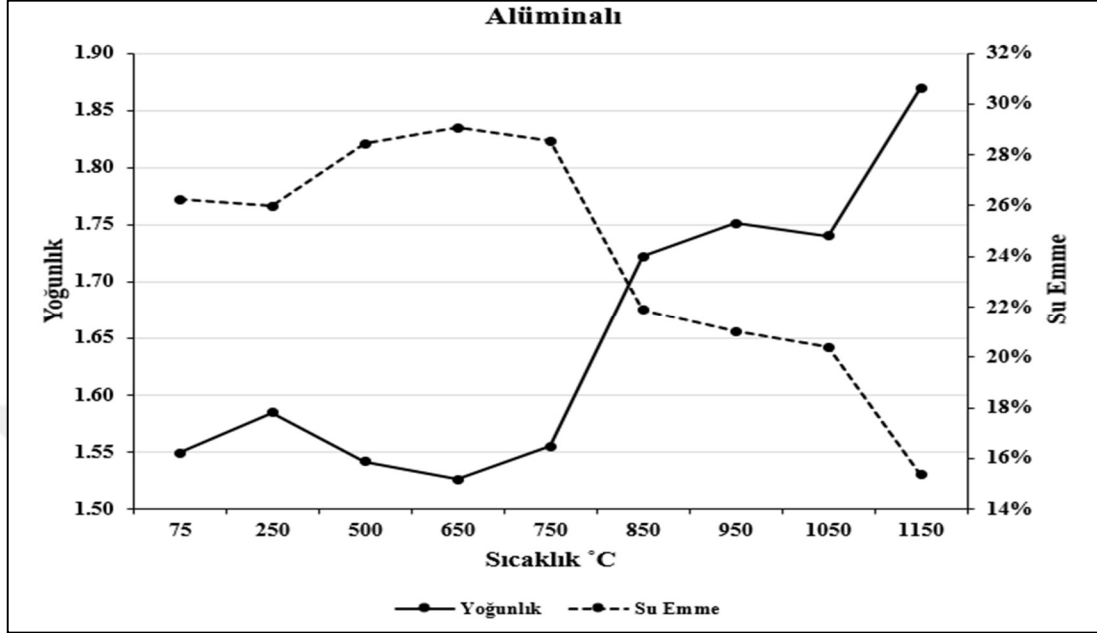


Şekil 7.5. Farklı sıcaklıklardaki ve Na/Al=0,8 molar oranına sahip kaolin esaslı silika dolgulu numunelerin yoğunluk ve su emme değerleri.

Şekil 7.6'da farklı sıcaklıklardaki ve Na/Al=0,8 molar oranına sahip kaolin esaslı alümina dolgulu numunelerin yoğunluk ve su emme değerleri verilmiştir. 75°C'de yoğunluk yaklaşık 1,5 g/cm³ olarak ölçülmüştür. 75-750°C sıcaklık aralığında, yoğunlukta belirgin bir değişiklik gözlenmemekte ve değerler 1,50-1,55 g/cm³ arasında kalmaktadır. Bu durum, numunenin iç yapısında önemli bir değişiklik olmadığını göstermektedir. 850°C'de yoğunluk artmaya başlamış 1150°C'deki ısı işleminden sonra yoğunluk yaklaşık 1,8 g/cm³ olarak ölçülmüştür. Bu, malzemenin yüksek sıcaklıklarda yoğunlaşarak daha da gözeneksiz bir yapıya dönüştüğünü göstermektedir.

75°C'de su emme oranı yaklaşık %26 olarak ölçülmüştür. 75-750°C sıcaklık aralığında su emme değerleri %26-28 arasında değişim göstermektedir. Bu, numunenin gözeneklilik yapısında önemli bir değişiklik olmadığını göstermektedir. 850°C'de su emme oranı önemli ölçüde azalmış ve 1150°C sıcaklığa dek bu azalma devam etmiştir. 1150°C'de su emme oranı ~%15 olarak ölçülmüştür. Bu azalma, jeopolimer matrisinin yoğunlaşması ve gözeneklerin kapanması ile suyun numune içine nüfuz edememesiyle

açıklanabilir. Alümina dolgulu numunenin silikalı numuneye göre daha refrakterik olduğu ve çalışılan aralıkta daha yüksek su emme değerleri gösterdiği anlaşılmıştır.

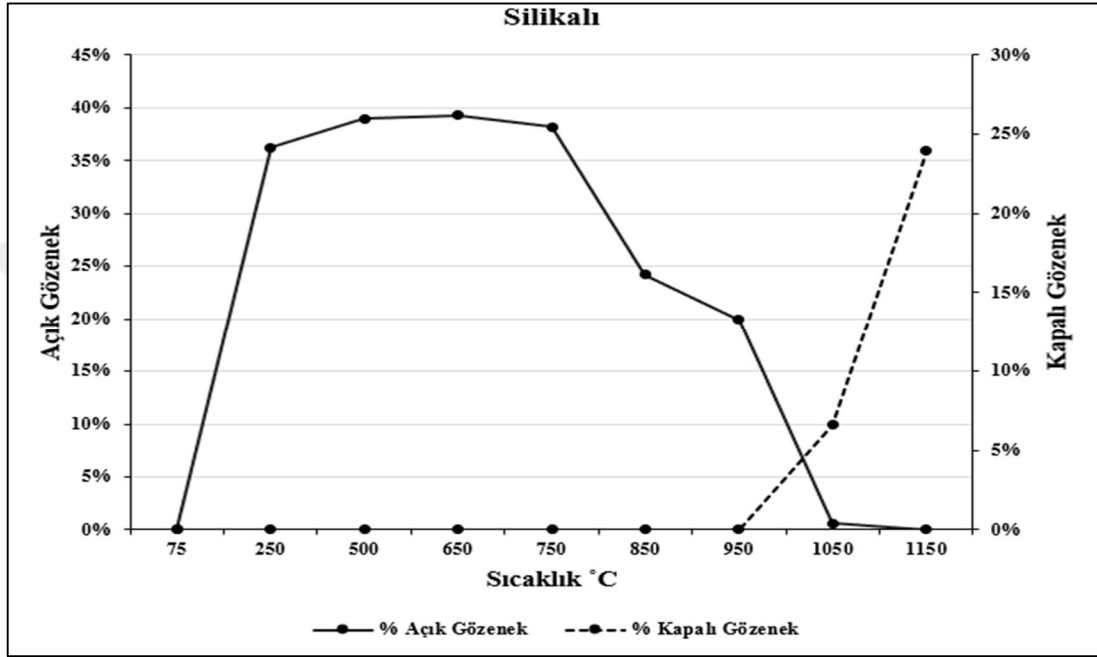


Şekil 7.6. Farklı sıcaklıklardaki ve Na/Al=0,8 molar oranına sahip kaolin esaslı alümina dolgulu numunelerin yoğunluk ve su emme değerleri.

Şekil 7.7’de farklı sıcaklıklardaki ve Na/Al=0,8 molar oranına sahip kaolin esaslı silika dolgulu numunelerin açık gözenek ve kapalı gözenek değerleri verilmiştir. 75°C-750°C sıcaklık aralığındaki açık gözeneklilik, 650°C’de zirve yaparak %39,32 olarak ölçülmüştür. Bu, düşük sıcaklıklarda malzemenin gözenekli bir yapıyı koruduğunu ve jeopolimer yapıda seramikleşmenin henüz başlamadığına işaret etmektedir. 750°C-1050°C sıcaklık aralığındaki açık gözeneklilikte keskin bir düşüş gerçekleşerek 1150°C’de %0’a inmektedir. Bu önemli azalma, sıcaklık arttıkça malzemenin yoğunlaşma sürecine girdiğini göstermektedir. Gözeneklerin çökmesi, sinterleme ve daha bağlı bir jeopolimer ağının oluşumu nedeniyle daha kompakt bir yapıya dönüşümü işaret etmektedir. Buchwald vd. (2009) ince dolgulu farklı tipteki dolgular ile takviye edilmiş jeopolimer numunelerin tümünde 1000°C sıcaklıktaki ısıtma işlemi ile gözenekliliğin belirgin olarak azaldığını rapor etmiştir.

75°C-950°C sıcaklık aralığında kapalı gözeneklilik %0 olarak kalmaktadır, bu da malzeme yapısının henüz kapalı gözenekler oluşturacak kadar yoğun olmadığını

göstermektedir. 950°C-1150°C sıcaklık aralığında kapalı gözeneklilik keskin bir artış göstererek %23,95'e ulaşmaktadır. Bu artış, malzemenin içindeki gazların (hava kabarcığı) yoğun yapı içinde hapsoldüğünü, kapalı gözenekler oluşturduğunu gösterir. Dönüşüm, önemli yoğunlaşma ve kısmi ergimeler nedeni ile oluşabilecek sıvı faz sinterlemeye işaret etmektedir.

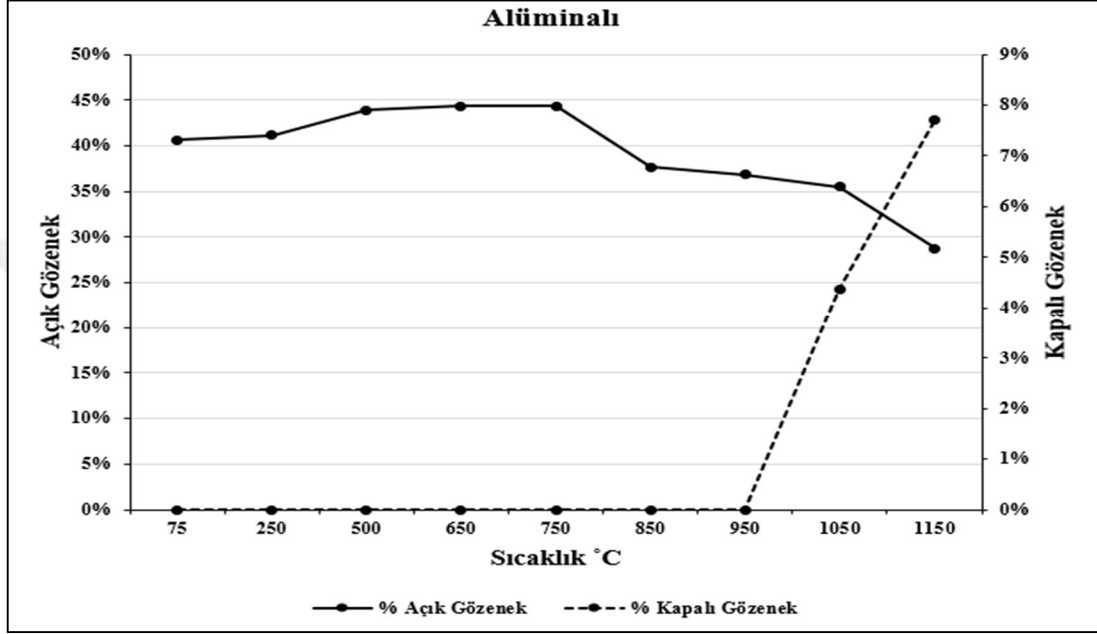


Şekil 7.7. Farklı sıcaklıklardaki ve Na/Al=0,8 molar oranına sahip kaolin esaslı silika dolgulu numunelerin açık gözenek ve kapalı gözenek değerleri.

Şekil 7.8'de farklı sıcaklıklardaki ve Na/Al=0,8 molar oranına sahip kaolin esaslı alümina dolgulu numunelerin açık gözenek ve kapalı gözenek değerleri verilmiştir. Grafikte görüldüğü üzere, açık gözenek oranı 75°C'de %40,65 olarak başlamakta ve 750°C'ye kadar artış göstermektedir. 750°C'de %44,37 ile en yüksek değerine ulaşmaktadır. Bu sıcaklık aralığında gözeneklerin artması, ısıtma işlemi birlikte malzemenin iç yapısının yeniden düzenlenmesi ve suyun buharlaşmasıyla açıklanabilir. 750°C'den itibaren açık gözenek oranında azalma görülmektedir. Bu azalma, malzeme içerisindeki fazların yoğunlaşması ve gözeneklerin kapanmasıyla ilişkilendirilebilir.

Kapalı gözenek oranı, 950°C'ye kadar %0 olarak sabit kalmakta, bu sıcaklıktan itibaren artış göstermektedir. 1050°C'de %4,37 ve 1150°C'de %7,72 ile en yüksek değerine

ulaşmaktadır. Bu artış, yüksek sıcaklıkta malzeme içerisindeki gözeneklerin sıkışması ve kapalı gözeneklerin oluşması sonucu gerçekleşmektedir. Bu durum, alümina dolgulu jeopolimerlerde çalışılan aralıktaki nispeten yüksek sıcaklıkların silika dolgulu numuneler gibi malzeme yoğunluğunu artırıcı etkisine işaret etmektedir ancak bu etki silika dolgulu numuneler kadar belirgin değildir.



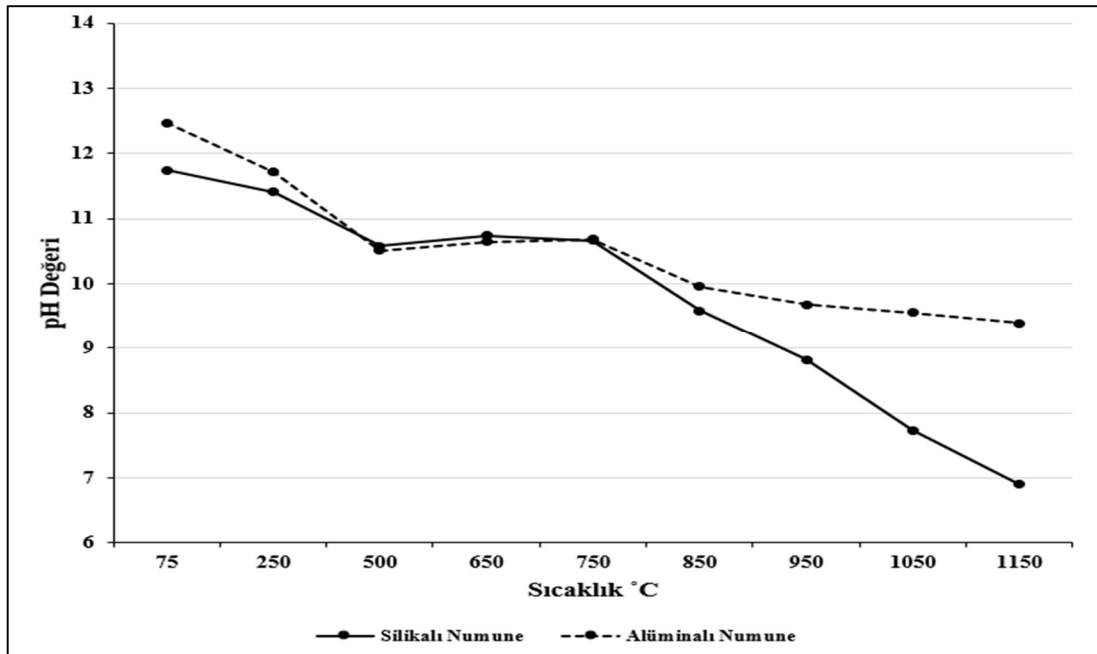
Şekil 7.8. Farklı sıcaklıklardaki ve Na/Al=0,8 molar oranına sahip kaolin esaslı alümina dolgulu numunelerin açık gözenek ve kapalı gözenek değerleri.

Jeopolimer malzemelerin saf su içerisinde bekletildikten sonra saf suda gözlenen pH değişiminin artan ısı işlem sıcaklıkları ile nasıl etkilendiğini anlamak, numunelerin kimyasal stabiliteleri, iyon liçi oranları, jeopolimerden geleneksel seramik benzeri bir malzemeye dönüşüm davranışları (seramikleşmesi) hakkında fikir verdiğinden potansiyel uygulamaları açısından önemlidir. Şekil 7.9'da farklı sıcaklıklardaki ısı işlemler uygulanan ve Na/Al=0,8 molar oranına sahip kaolin esaslı silika ve alümina dolgulu numunelerin pH değerleri verilmiştir. Silika dolgulu jeopolimer numuneler, 75°C ile 250°C arası pH değeri başlangıçta yaklaşık 11,75'ten başlayarak 250°C'de yaklaşık 11,41'e düşmüştür. 250°C ile 500°C arası pH değeri yaklaşık 10,58'e kadar düşmüştür. Bu düşüşün, jeopolimer matrisindeki devam eden dehidrasyon ve dehidroksilasyondan ve karbonasyondan kaynaklandığı düşünülmektedir. 500°C ile 650°C arası pH yaklaşık 10,74 civarında nispeten sabit kalmış, 650°C ile 750°C arası

pH'de hafif bir düşüş gözlenir, bu durum silika ağının yeniden yapılandırılması ve daha stabil silikat bağlarının oluşumu ile açıklanabilir.

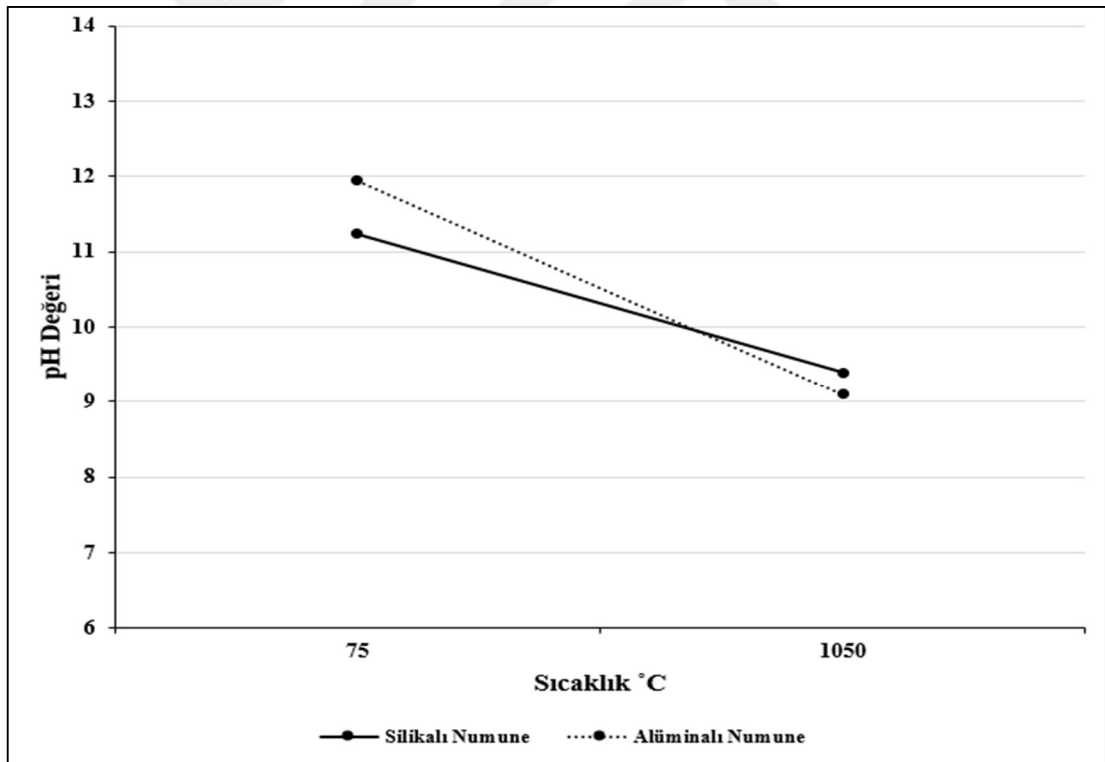
750°C ile 1150°C arası pH, yaklaşık 10,67'den 6,90'a kadar düzenli olarak azalmıştır. Bu önemli düşüş, jeopolimer yapının seramikleştiğini ve yapıda sinterleme kaynaklı belirgin değişimleri göstermektedir. Bu durum numunelerin açık gözenekliliğindeki azalma ve düşük su emme nedeni ile de gerçekleşmiş olabilir. Tüm bu etkenler seramikleşme neticesinde alkali iyon salınımının bittiğine işaret etmektedir.

Alüminalı numunelerde, 75°C ile 250°C arası silika dolgulu numunelere benzer şekilde, pH yaklaşık 12,47'den 11,72'ye düşer. 250°C ile 500°C arası pH değeri yaklaşık 10,51'e kadar daha da düşer ve bu durum devam eden dehidrasyonu ve karbonasyonu yansıtır. 500°C ile 750°C arası pH, yaklaşık 10,65 civarında sabit kalır. Bu sıcaklıklara kadar silika dolgulu numune ile benzer davranış gösteren numune artan sıcaklıklarda farklılaşmaktadır. Bu farklılaşma artan sıcaklık ile pH'ın silika dolgulu numuneler gibi seramikleşme kaynaklı düşmesi ancak silika dolgulu numune kadar yüksek oranda düşmemesidir. Bu alümina dolgulu numunelerin 1150°C sıcaklığında bile açık gözenekler içermesinden kaynaklanabilir.



Şekil 7.9. Farklı sıcaklıklardaki ve Na/Al=0,8 molar oranına sahip kaolin esaslı silika ve alümina dolgulu numunelerin pH değerleri.

Şekil 7.10’da düşük NaOH ilavesinin etkisini görmek için farklı sıcaklıklardaki ve Na/Al=0,4 molar oranına sahip kaolin esaslı silika ve alümina dolgulu numunelerin pH değerleri verilmiştir. Silika dolgulu jeopolimer numuneler 75°C’de pH değeri başlangıçta yaklaşık 11 olarak ölçülmüştür. Bu yüksek pH değeri, silika matrisinde mevcut olan bazik bileşenlerin varlığını göstermektedir. Sıcaklık 1050°C’ye yükseltildiğinde, pH değeri yaklaşık 9’a düşmüştür. Bu önemli düşüş, jeopolimer matrisinde meydana gelen sinterleşme süreçleri ile açıklanabilir. Alümina dolgulu jeopolimer numuneler 75°C’de pH değeri başlangıçta yaklaşık 11,9 olarak ölçülmüştür. Sıcaklık 1050°C’ye yükseltildiğinde, pH değeri yaklaşık 9,10’a düşmüştür. Bu düşüş, alümina dolgulu numunede de sinterleme kaynaklı daha stabil alüminasilikat yapıların oluşumu ile açıklanabilir. Silika dolgulu numuneler düşük sodyum oranlarında, yüksek sıcaklıklarda daha az sıvı faz ürettiğinden alkali iyon salınımları yüksek sodyum içerikli numunelere göre nispeten fazla olmuştur.



Şekil 7.10. Farklı sıcaklıklardaki ve Na/Al=0,4 molar oranına sahip kaolin esaslı silika ve alümina dolgulu numunelerin pH değerleri.

Farklı Na/Al oranının pişirme davranışlarına etkisini göstermek için Çizelge 7.1’de 1050 °C sıcaklıkta ısıtılma işlem sonrasında farklı Na/Al molar oranına sahip kaolin esaslı

silika ve alümina dolgulu numunelerin yoğunluk, su emme, pH değeri, açık gözenek, kapalı gözenek ve toplam gözenek değerleri birlikte verilmiştir.

Silika dolgulu numuneler (hem 0,4 hem de 0,8 molar oranı) alümina dolgulu numunelere göre daha yüksek yoğunluğa sahiptir. Bu, silika dolgusunun ısıtılma işlem sonrasında alümina dolgulu numunelere nispeten daha fazla sinterlenerek daha sıkı ve yoğun bir yapı oluşturduğunu göstermektedir.

Su emme oranı, malzemenin gözenekliliği, su geçirgenliği, suya dayanımı ve donma dayanımı hakkında fikir verir. Silika dolgulu numunelerde su emme oranı oldukça düşük olarak tespit edilmiştir (0,27%-1,61%), bu da bu numunelerin daha az açık gözenekli ve suya karşı daha dirençli olduğunu göstermektedir. Alümina dolgulu numunelerde ise su emme oranı daha yüksektir (18,70%-20,40%), bu da açık gözeneklerinin sinterlenme ile silika dolgulu numuneler kadar azalmamasından kaynaklanmaktadır.

Silika dolgulu numunelerde pH değeri, alümina dolgulu numunelere göre biraz daha düşüktür. En düşük pH değeri, 0,8 molariteye sahip silikalı numunede (Çizelge 7.1) gözlemlenmiştir. Daha düşük pH değeri numuneden suya olan liçin daha az olduğuna ve daha kararlı bir malzeme elde edildiğine işaret etmektedir. Silikalı dolgulu 0,8 Na/Al oranına sahip numunenin düşük su emme ve kapalı gözeneklilik değerlerinin düşük pH değerleri ile ilintili olduğu görülmektedir. Açık gözenek oranı, alümina dolgulu numunelerde oldukça yüksektir (34,17%-35,50%), bu da bu numunelerin daha az oranda pekiştiğini göstermektedir. Silika dolgulu numunelerde açık gözenek oranı oldukça düşüktür (0,62%-3,78%). Kapalı gözenek oranı, silikalı numunelerde daha yüksek olup (4,76%-6,60%), bu da daha fazla sıvı faz sinterleme olduğuna işaret etmektedir. Sıvı faz kapalı gözenek oranının artırmaktadır. Toplam gözenek oranı, alümina dolgulu numunelerde (37,64%-39,87%) silika dolgulu numunelere nispeten daha yüksektir.

Sonuçların geneline bakıldığında alümina dolgusunun refrakterik etkisini her iki Na/Al molar oranı için silika dolgulu numuneler ile kıyaslandığında açıktır. Alümina dolgulu numunelerin sinterlenme davranışı uygulanan ısıtılma işlem sıcaklığında Na/Al molar

oranından belirgin olarak etkilenmemiştir. Silika dolgulu numunelerde ise uygulanan sıcaklıkta alümina dolgulu numunelerden daha yüksek oranda sinterlenme gözlenmiştir. Silika dolgulu numunelerde Na/Al molar oranındaki değişim belirgin farklılıklar ortaya çıkarmıştır. 0,8 Na/Al molar oranında, 0,4 molar oranından daha fazla sıvı faz sinterleme nedeni ile daha düşük açık gözeneklilik, daha düşük su emme ve daha yüksek kapalı gözeneklilik değerleri kaydedilmiştir.

Çizelge 7.1. 1050°C sıcaklığında ve farklı Na/Al molar oranına sahip kaolin esaslı silika ve alümina dolgulu numunelerin yoğunluk, su emme, pH değeri ve gözenek değerleri.

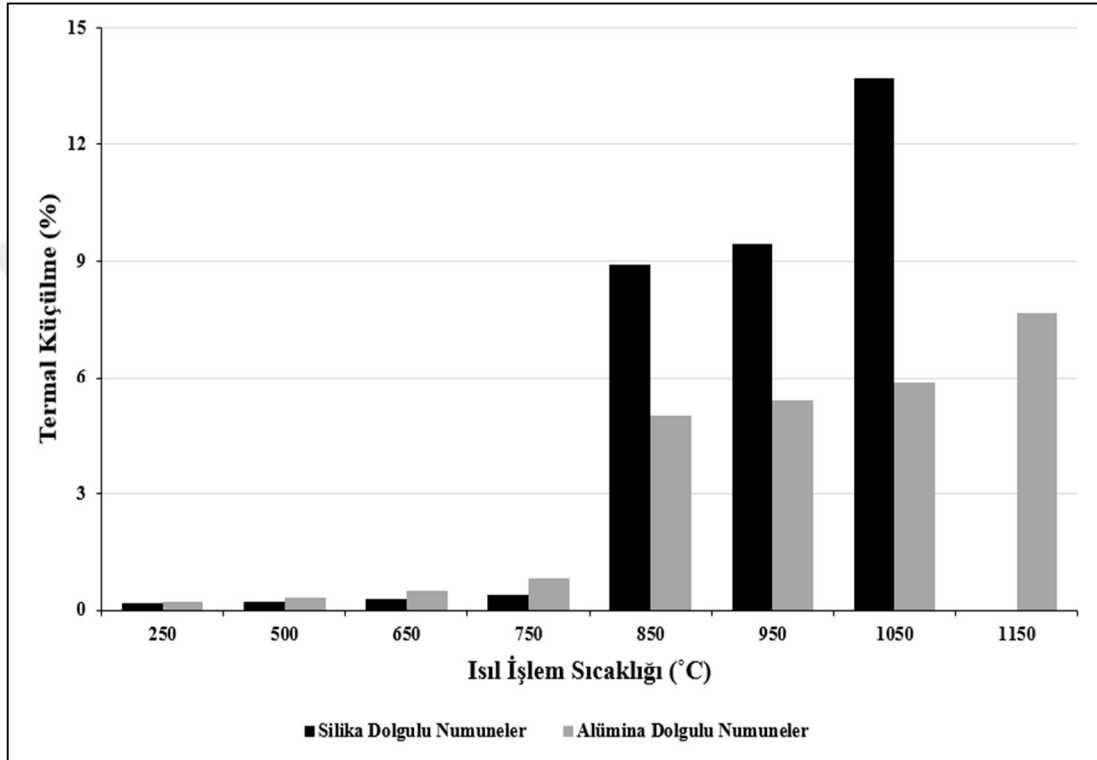
Numuneler	Yoğunluk	Su Emme	pH Değeri	Açık Gözenek	Kapalı Gözenek	Toplam Gözenek
1050°C Silikalı Numune (Na/Al=0.4)	2.347	1.61%	9.40	3.78%	4.76%	8.54%
1050°C Silikalı Numune (Na/Al=0.8)	2.302	0.27%	7.73	0.62%	6.60%	7.22%
1050°C Alüminalı Numune (Na/Al=0.4)	1.828	18.70%	9.10	34.17%	3.47%	37.64%
1050°C Alüminalı Numune (Na/Al=0.8)	1.740	20.40%	9.56	35.50%	4.37%	39.87%

7.4. TERMAL KÜÇÜLME TESTİ SONUÇLARI

Şekil 7.11’de farklı sıcaklıklardaki ve Na/Al=0,8 molar oranına sahip kaolin esaslı silika ve alümina dolgulu numunelerin %termal küçülme değerleri verilmiştir. Düşük sıcaklıklarda (250°C-750°C) hem silika hem de alümina dolgulu numunelerde termal küçülme çok düşük seviyelerde kalmıştır. Daha iri gözeneklerden gerçekleşen fiziksel su çıkışı yüksek küçülmeye neden olmazken daha ince gözeneklerden gerçekleşen zeolitik su çıkışlar küçülmeyi artırmaktadır. (Duxson vd, 2007; Davidovits, 2008a).

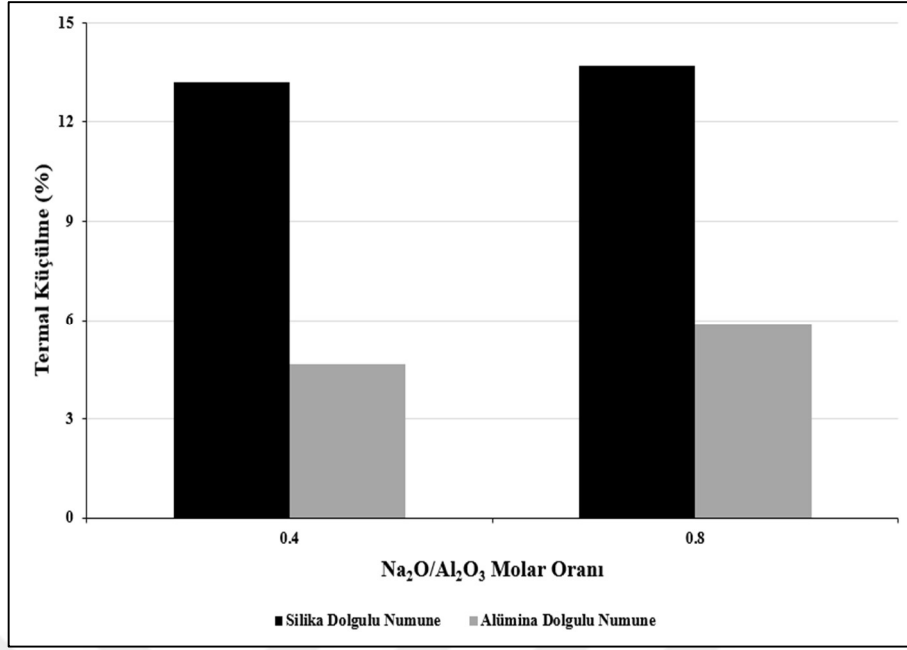
850°C'den itibaren her iki tip dolgulu numune türünde de termal küçülme oranlarında belirgin bir artış gözlemlenmektedir. Silika dolgulu numuneler, 850°C ve 1050°C arasında termal küçülmede alümina dolgulu numunelere göre daha yüksek değerler göstermektedir. Özellikle 1050°C'de silika dolgulu numunelerde %13,69 termal küçülme, alümina dolgulu numunelerde ise %5,5 termal küçülme gözlemlenmiştir. Elimbi vd. (2014) metakaolin esaslı jeopolimeri de 900°C sıcaklığa ısıttıklarında termal küçülmede bir artış tespit etmiştir.

1150°C’de silikalı numunelere uygulanan ısı işlem sonrasında numune kısmi erime gösterdiğinden deformasyon nedeni ile sağlıklı ve güvenilir bir boyut ölçümü yapılamamıştır. Alümina dolgulu numunelerde ise %7.67 termal küçülme gözlemlenmiştir. Elimbi vd. (2014) metakaolin esaslı jeopolimeri de 1000°C sıcaklığa çıkardıklarında numunelerde deformasyon gerçekleştiğini gözlemlemiştir.



Şekil 7.11. Farklı sıcaklıklardaki ve Na/Al=0,8 molar oranına sahip kaolin esaslı silika ve alümina dolgulu numunelerin termal küçülme değerleri.

Şekil 7.12’de 1050°C sıcaklıkta ve farklı Na/Al molar oranına sahip silika ve alümina dolgulu numunelerin %termal küçülme değerleri verilmiştir. Her iki tip dolgulu numunede de $\text{Na}_2\text{O}/\text{Al}_2\text{O}_3$ molar oranı arttıkça termal küçülme artmıştır. Ancak, silika dolgulu numunelere kıyasla alümina dolgulu numunelerin termal küçülme oranları her iki Na_2O oranı için belirgin şekilde daha düşüktür. Bu, alümina dolgulu numunelerin daha yüksek termal kararlılığa sahip olmasının hacimsel kararlılığa olan yansımasıdır. Lin vd. (2009) alfa alümina katkısının metakaolin esaslı jeopolimerde ısı işlem sonrasında termal küçülmeyi azalttığını daha düşük yoğunluklara ve katkısız numuneye göre daha yüksek gözenekliliğe sahip olduğu rapor etmiştir.



Şekil 7.12. 1050°C sıcaklıkta ve farklı Na/Al molar oranına sahip kaolin esaslı silika ve alümina dolgulu numunelerin termal küçülme değerleri.

7.5. TERMO GRAVİMETRİ ANALİZİ SONUÇLARI

Kaolin ve farklı sıcaklıklarda üretilen numunelere ait TG grafikleri Şekil 7.13'te, farklı numunelere ait TG eğrilerinden farklı sıcaklık aralıkları için tespit edilen kütle kayıpları ise Çizelge 7.2'de verilmiştir. Kaolin numunesi (a), 400°C'ye kadar belirgin bir kütle kaybı göstermemiştir. Sıcaklık 400°C'yi geçtikten sonra, 400-600°C sıcaklıkları arasında kaolinitin dehidroksilasyonu nedeni ile belirgin kütle kaybı gözlenmiştir. 600°C'den sonra da numunede belirgin bir kütle değişimi gözlemlenmemiştir. Bu eğri, kaolinin dehidroksilasyon sürecini ve yüksek sıcaklıklarda termal stabilitesini gösterir.

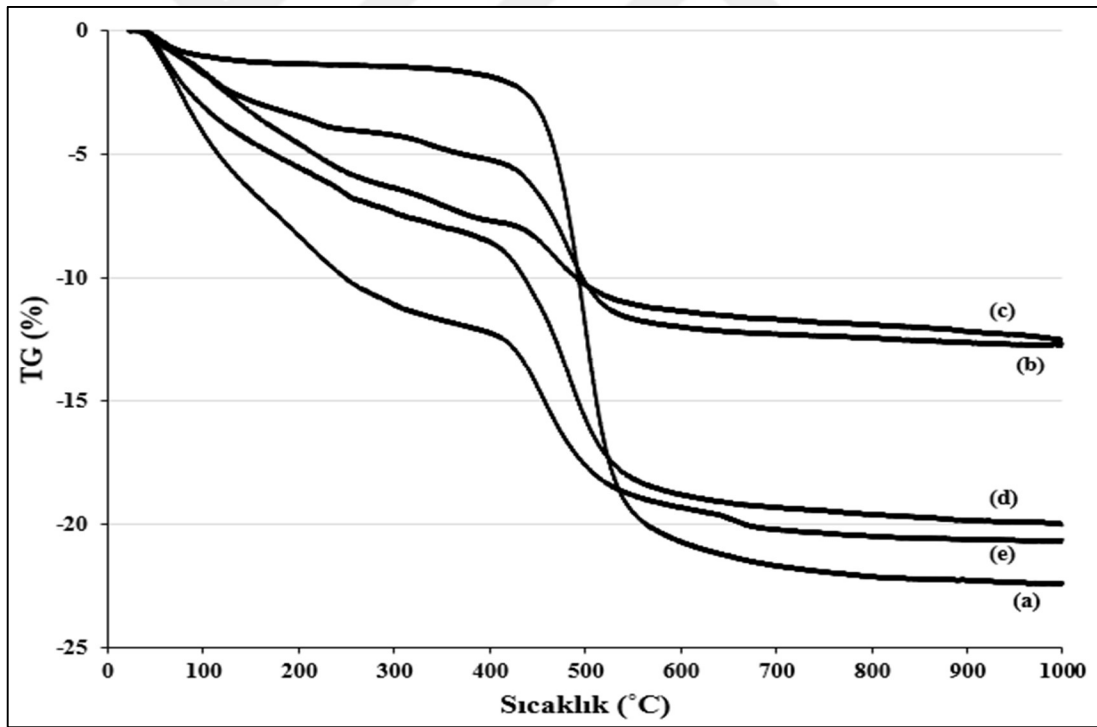
Metakaolin esaslı Na-Jeopolimerde önce fiziksel su çıkışı takiben zeolitik su çıkışı takiben 350-700° arasında gerçekleşen dehidroksilasyon kaynaklı kütle kaybı ve takiben gerçekleşen viskoz sinterleme aşamaları rapor edilmiştir. (Duxson vd, 2007; Davidovits, 2008a).

Silikalı numune (Na/Al=0,4) (b), 25-400°C arası %3,42 kütle kaybı gösterdi. 400-1000°C arasındaki sıcaklıkta ise kütle kaybı %4,86'ya kadar çıktı.

Silikalı numune ($\text{Na}/\text{Al}=0,8$) (c), de benzer şekilde davrandı, 25-400°C arasında %5,61 oranında (b) numunesine kıyasla yüksek kütle kaybı gösterdi. Yüksek sıcaklıklara çıkıldığında ise tam tersi bir şekilde kütle kaybı (b) numunesine göre düşük (%3,24) kalmıştır.

Alümina ($\text{Na}/\text{Al}=0,4$) (d), 25-400°C'ye kadar düşük miktarda kütle kaybı göstermektedir. 400°C'den sonra 1000°C'ye kadar belirgin bir şekilde kütle kaybı başlar ve %5,51 olarak ölçülmüştür. 500°C'den sonra eğri stabil halde bir davranış gösterir.

Alümina ($\text{Na}/\text{Al}=0,8$) (e), numunesi de düşük Na/Al oranlı alüminalı (d) numuneye kıyasla dehidrasyon sıcaklığı aralığındaki daha yüksek dehidroksilasyon aralığında daha düşük kütle kaybı gösterdi (Çizelge 7.2).



Şekil 7.13. Numunelere ait TG eğrileri (a) kaolin, (b) silika dolgulu ($\text{Na}/\text{Al}=0,4$) numune, (c) silika dolgulu ($\text{Na}/\text{Al}=0,8$) numune, (d) alümina dolgulu ($\text{Na}/\text{Al}=0,4$) numune, (e) alümina dolgulu ($\text{Na}/\text{Al}=0,8$) numune.

Dehidrasyon aşamasında, silikalı ve alüminalı jeopolimer numunelerinin % kütle kaybı, kaoline kıyasla daha yüksektir. Bu durum, jeopolimerlerin zeolitik olarak

isimlendirilen ve tepkimeler neticesinde oluşan gözenekli karakterdeki yapıya hapsolmuş suyun uzaklaşmasından kaynaklanmaktadır (Davidovits, 2008a). (Marsh vd. (2018) de hidrosodalit esaslı jeopolimerde kür edilen numunelerdeki yeni oluşan piklerin hidrosodalite bağlı su ile ilişkili olduğunu rapor etmiştir. Bununla birlikte benzer durum metakaolin esaslı jeopolimerlerde de gözlemlenmektedir. Elimbi vd. (2014) metakaolin esaslı jeopolimerde 750°C sıcaklığa kadar su kaybı tespit etmiştir. Duxson vd. (2007) farklı Si/Al oranına sahip metakaolin esaslı jeopolimerlerde tüm oranlar için 1000°C sıcaklığa kadar kütle kaybı rapor etmiştir.

Artan dehidrasyon oranı yeni oluşan yapı ile ilişkili olduğundan kaolinin hidrosodalite dönüşümü hakkında fikir vermektedir. Artan Na/Al molar oranı numunelerin dehidrasyon miktarını artıran dönüşüm oranından dolayı artırmıştır. Dehidroksilasyon aşamasında, kaolin en yüksek % kütle kaybını (%13,14) gösterirken, jeopolimer numunelerinde bu değer daha düşüktür. Marsh vd. (2018) hidrosodalit esaslı jeopolimerlerde dehidroksilasyon pikinin şiddetinin azalmasının Na/Al molar oranının artmasıyla ilişkili olduğunu rapor etmiştir.

Dehidroksilasyon değerlerinden tepkimeye girmeden kalan kalıntı kaolin hesaplanmıştır. Bu değer mutlak bir değer olmamakla birlikte numunelerin reaktiviteleri arasında kıyas yapmaya imkan vermektedir. Artan Na/Al molar oranı ile kalıntı kaolin oranı azalmıştır.

Çizelge 7.2. TG analizi ile farklı sıcaklık aralıklarında ve farklı Na/Al molar oranlı kaolin esaslı silika ve alümina dolgulu numunelerin yüzde kütle kayıpları.

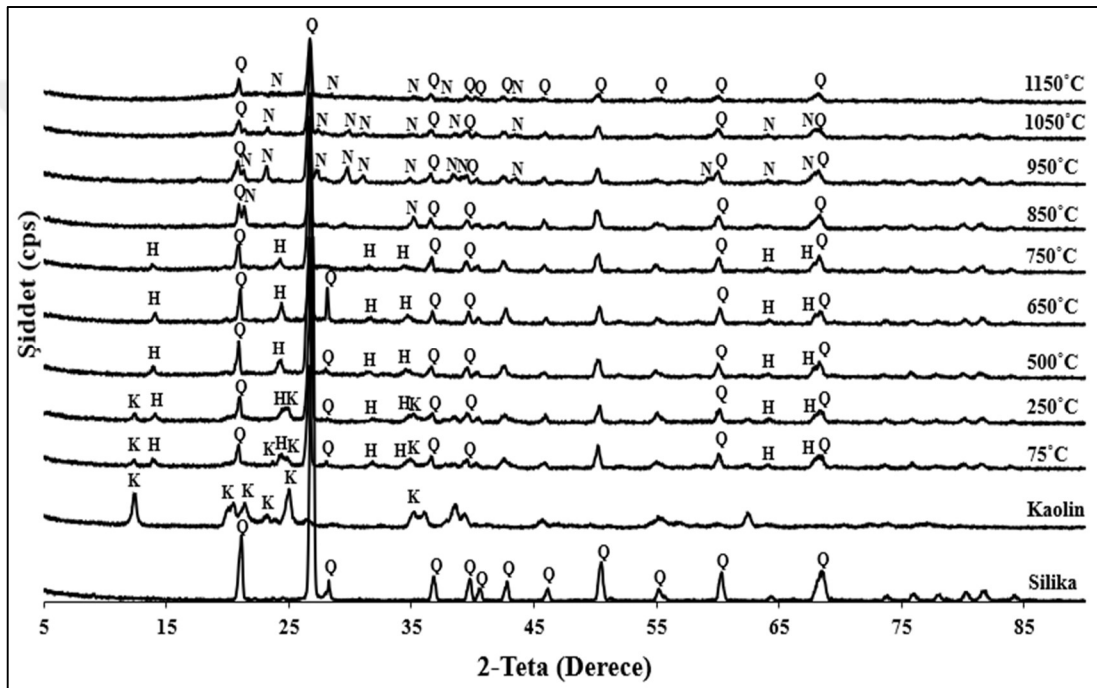
% Kütle Kaybı				
	Dehidrasyon (Oda Sıcaklığı - 400°C)	Dehidroksilasyon (400°C - 1000°C)	Toplam Kayıp	Kalıntı Kaolin
Kaolin	%1,23	%13,14	%14,37	-
Silikalı (Na/Al=0,4)	%3,42	%4,86	%8,28	%36,98
Silikalı (Na/Al=0,8)	%5,16	%3,24	%8,40	%24,65
Alüminalı (Na/Al=0,4)	%4,11	%5,51	%9,62	%41,93
Alüminalı (Na/Al=0,8)	%6,1	%4,23	%10,33	%32,19

7.6. XRD ANALİZİ SONUÇLARI

Şekil 7.14'te farklı sıcaklıklarda ısıtılma maruz bırakılan kaolin esaslı silika dolgu numunelerin XRD paternleri verilmiştir. Silika ve kaolin hammaddeleri saf oldukları için sırası ile monofaz bir yapıda kuvars ve kaolin pikleri tespit edilmiştir. 75°C sıcaklıkta yapılan ısıtılmanın ardından numunelerde kaolin ve kuvars pikleri tespit edilmiştir. İlâveten ~14, ~24, ~31 ve ~35 teta derece açılarında hidrosodalit fazı tespit edilmiştir (Sazali vd, 2021). Numunelerde hidrosodalit piklerinin net bir şekilde tespit edilmesi sodyum silikat içermeyen sistemlerde hidrosodalitin kristalleşmesinin gerçekleştiğini vurgulayan çalışmaları desteklemektedir (Zhang vd, 2009).

Zhang vd. (2009) NaOH ve sodyum silikat alkali sıvı çözeltilerinin metakaolin esaslı jeopolimerlerde kristal faz oluşumları üzerine etkilerini araştırmıştır ve sodyum silikat ilavesinin hidrosodalit kristalleşmesini durdurduğunu rapor etmiştir. Marsh vd. (2018) kaolin ve NaOH tepkimesiyle ürettiği numunelerde de herhangi bir amorf faza rastlanmamış sadece hidrosodalit ve kaolin piklerini tespit etmiştir. Hidrosodalit dönüşümü kaolin piklerinin şiddetini zayıflatmıştır. Bununla birlikte kaolin piklerinin hala mevcut olması numunelerde kaolinden hidrosodalite olan dönüşümün tamamen değil de kısmen gerçekleştiğini göstermektedir. 500°C sıcaklığa dek kaolin pikleri gözlenmeye devam ederken 500°C sıcaklıkta ısıtılma gören numunede kaolin pikleri kaybolmuştur. Bu yapıdaki kaolinin metakaoline dönüşmeye başlamasından kaynaklanıyor olabilir. 750°C sıcaklığa kadar yapılan ısıtılma işlemlerde hidrosodalit pikleri varlığını korumuş ancak 850°C sıcaklık ve üzerinde yapılan ısıtılma işlemler neticesinde hidrosodalit fazına rastlanmamıştır. Elimbi vd. (2014) metakaolin esaslı jeopolimerlerde amorf fazın 700°C sıcaklıktaki ısıtılma işlemi ile kaybolduğunu rapor etmiştir. 850°C sıcaklıkta yapılan ısıtılma işlemi neticesinde nefelin ve kuvars piklerinden oluşan bir faz yapısı tespit edilmiştir. Nefelin kristalleri en yüksek oranda 950°C sıcaklıkta yapılan ısıtılma işlemi neticesinde görülmüştür. Elimbi vd. (2014) metakaolin esaslı jeopolimerde nefelin oluşumunun 900°C sıcaklıktaki ısıtılma işlemi neticesinde görüldüğünü gözlemlemiştir. Artan sıcaklık ile birlikte numunelerde amorflaşma artmış nefelin kristallerinin pikleri zayıflamıştır.

Kuenzel vd. (2013) metakaolin esaslı jeopolimerin 1000°C ısıtma işlemi neticesinde baskın olarak nefelin kristallerinden oluşan bir yapıya büründüğünü artan sıcaklıkla ise bu kristalin fazların kısmen yumuşadığını, eridiğini ve XRD paterninde yeniden amorflaşmanın gözlemlendiğini rapor etmiştir. Bu çalışmadaki silis dolgu kaolin esaslı jeopolimer, metakaolin esaslı jeopolimerin artan sıcaklık ile gösterdiği faz yapısı değişimlerine benzer değişimler göstermiştir. Bu durum silis dolgusunun Na_2O , SiO_2 , Al_2O_3 üçlü oksit karışımını içeren jeopolimer bileşiminde belirgin refrakterik ya da ergitici rolünün olmamasından kaynaklanmaktadır.

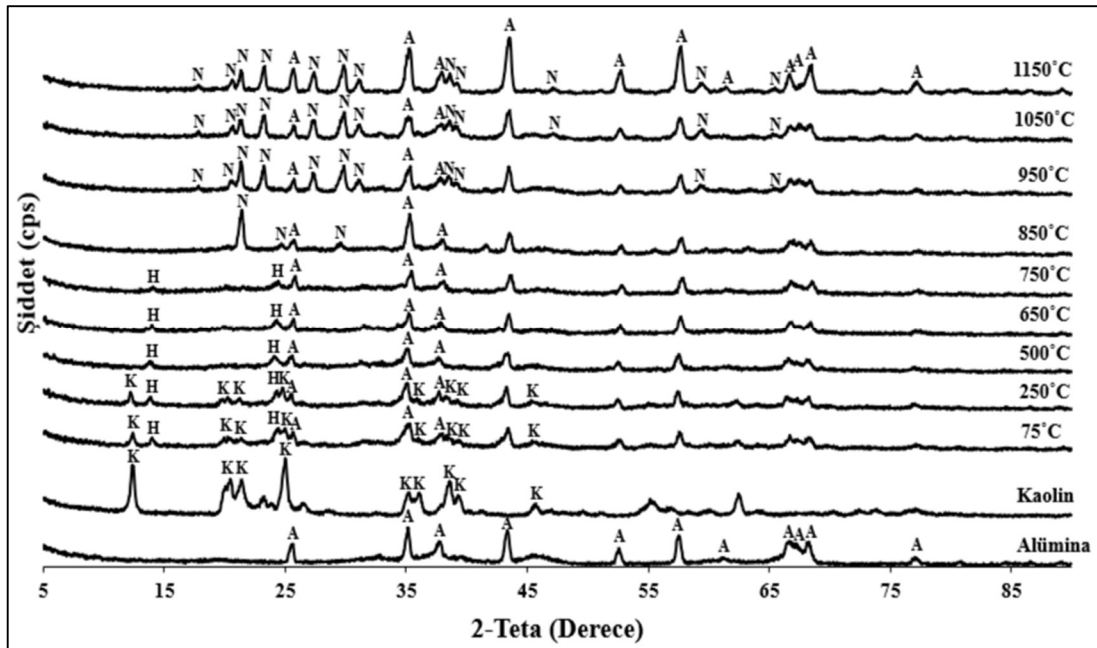


Şekil 7.14. Farklı sıcaklıklarda ısıtma işlemine maruz bırakılan kaolin esaslı silika dolgu numunelerin XRD paternleri.

Şekil 7.15’ee farklı sıcaklıklarda ısıtma işlemine maruz bırakılan kaolin esaslı alümina dolgu numunelerin XRD paternleri verilmiştir. Alümina hammaddesi yüksek saflıkta olduğu için monofaz bir yapıda alümina pikleri tespit edilmiştir. 75°C sıcaklıkta yapılan ısıtma işlemi sonrasında numunelerde kaolin ve alümina piklerine ilaveten hidrosodalit fazı tespit edilmiştir. Hidrosodalit dönüşümü kaolin piklerinin şiddetini zayıflatmıştır. Bununla birlikte kaolin piklerinin hala mevcut olması numunelerde kaolinden hidrosodalite olan dönüşümün silika dolgu numunede olduğu gibi alümina dolgu numunede de kısmen gerçekleştiğini göstermektedir.

500°C sıcaklığa dek kaolin pikleri gözlenmeye devam ederken 500°C sıcaklıkta ısıtıl işlem gören numunede kaolin pikleri kaybolmuştur. Bu yapıdaki kaolinin metakaoline dönüşmeye başlamasından kaynaklanmaktadır. 750°C sıcaklığa kadar yapılan ısıtıl işlemlerde hidrosodalit pikleri kendilerini muhafaza etmiştir ancak 850°C sıcaklık ve üzerinde yapılan ısıtıl işlemler sonucunda hidrosodalit fazı gözlenmemiştir. 850°C sıcaklıkta yapılan ısıtıl işleminden sonra nefelin ve alümina piklerinden oluşan bir faz yapısına rastlanmıştır. Nefelin kristalleri en pik noktada 950°C sıcaklıkta görülmüştür. Artan sıcaklık ile birlikte (1150°C'ye kadar) nefelin pikleri varlığını sürdürmüştür.

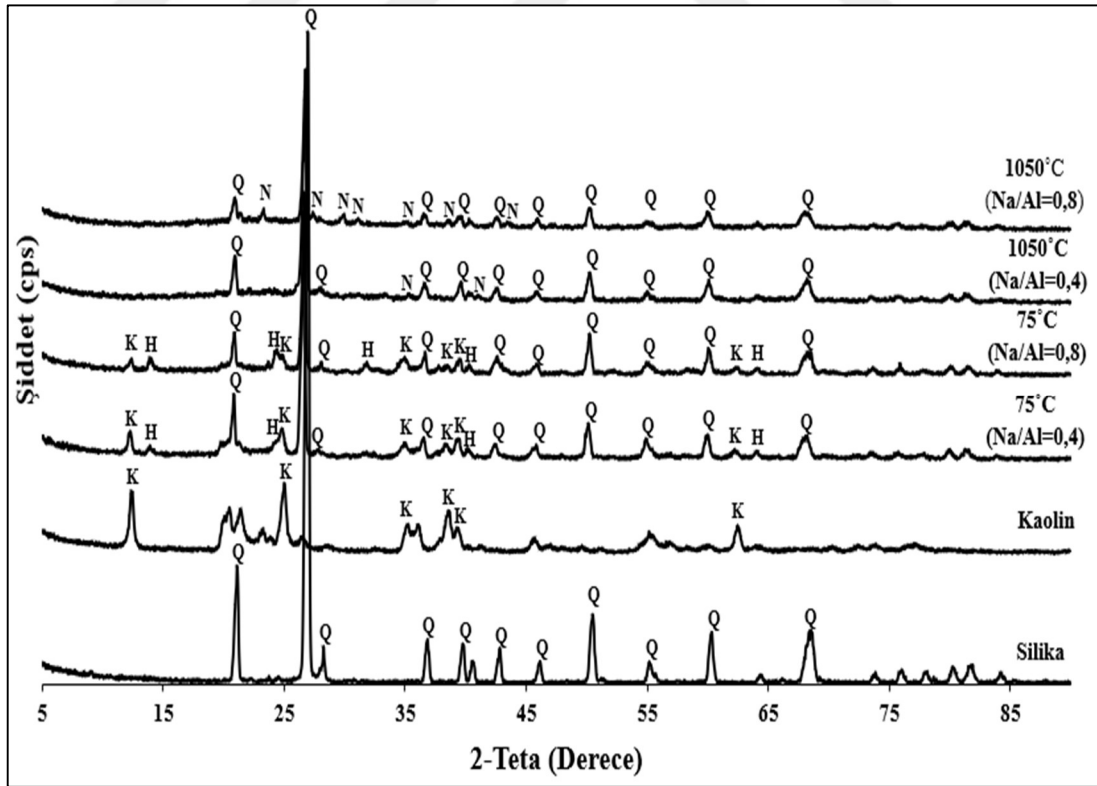
Lin vd. (2009) alümina tozu katkılı potasyum metakaolin jeopolimerleri üretmiştir. Alümina tozu katkısının lösit kristalleşmesini daha yüksek sıcaklıklara ötelediğini rapor etmiştir. Yaşın vd. (2019) metakaolin esaslı ve alümina tozu dolgulu numuneye yapmış olduğu ısıtıl işlemler neticesinde α -alümina fazı ve amorf fazın yanı sıra 750°C'de nefelin kristallerinin oluşmaya başladığı ve 1000°C sıcaklığa maruz bırakılan numunede nefelin kristallerinin piklerinin yoğunlaştığını gözlemlemiştir. Bu çalışmada ise üretilen kaolin esaslı ve alümina tozu dolgulu numunenin nefelin kristalleşmesinin başlangıcını 850°C'de göstermesinin nedeninin bu çalışmadaki bileşimde sodyum silikat çözeltisinin olmamasından kaynaklandığı düşünülmektedir.



Şekil 7.15. Farklı sıcaklıklarda ısıtıl işleme maruz bırakılan kaolin esaslı alümina dolgulu numunelerin XRD paternleri.

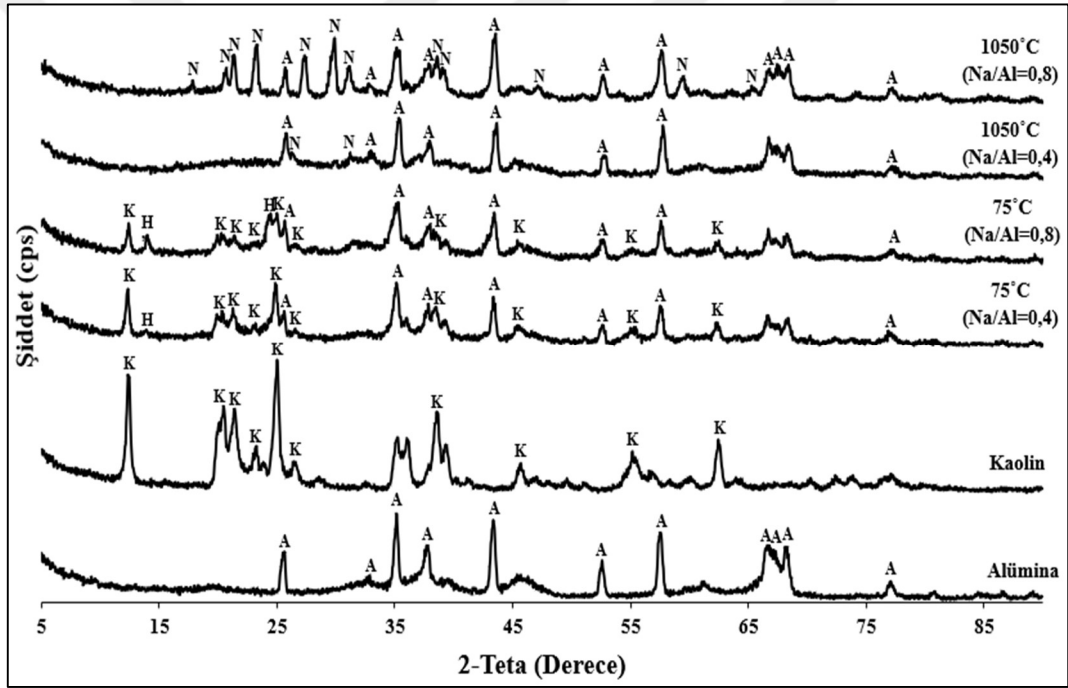
Şekil 7.16’da farklı sıcaklıklardaki ve farklı Na/Al molar oranlarında üretilen kaolin esaslı silika dolgulu numunelerin XRD paternleri verilmiştir. Gözlemlenen farklı molardaki (Na/Al=0,8 ve 0,4) hidrosodalit pik şiddetleri ve sayısında farklılık göstermektedir. 75°C (Na/Al=0,4) olan numune ile 75°C (Na/Al=0,8) numune kıyaslandığında artan sodyum oranı ile ~32° derecede hidrosodalit faz piki oluştuğu görülmektedir. Böylece 0,4’ten 0,8 molar oranına çıkıldığında hidrosodalit faz piklerinin sayısının ve şiddetlerinin arttığı görüldü. Marsh vd. (2018) sonuçlara benzer olarak artan Na/Al molar oranı ile hidrosodalit esaslı jeopolimerde kaolin piklerinin zayıfladığını ve hidrosodalit piklerinin güçlendiğini rapor etmiştir.

Yüksek sıcaklıklarda ısıtılma işlemine tabii tutulan numunelerde ise nefelin fazı görülmektedir. 1050°C’de (Na/Al=0,8) oranına sahip numunede nefelin kristallerinin pik yoğunluğu 1050°C (Na/Al=0,4) olana kıyasla daha fazla olduğu gözlemlendi. Nefelin kristallerinin yoğunluğu sodyum içeriğinin daha fazla olmasından kaynaklanıyor olabilir.



Şekil 7.16. Farklı sıcaklıklardaki ve farklı Na/Al molar oranlarında üretilen kaolin esaslı silika dolgulu numunelerin XRD paternleri.

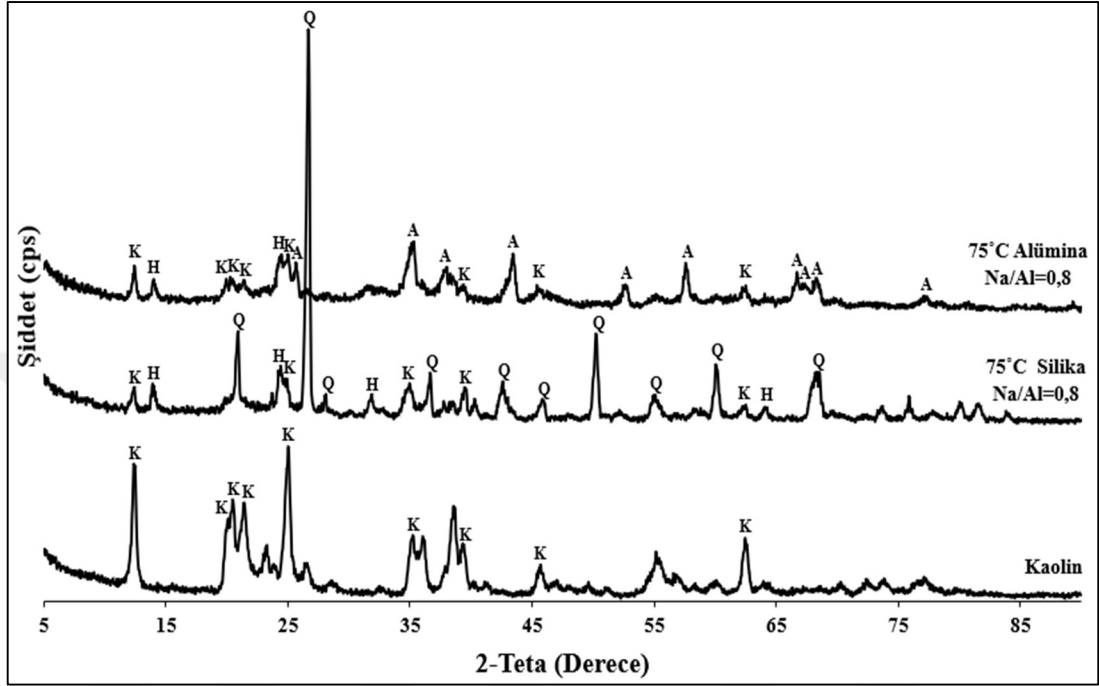
Şekil 7.17’de farklı sıcaklıklardaki ve farklı Na/Al molar oranlarında üretilen kaolin esaslı alümina dolgulu numunelerin XRD paternleri verilmiştir. 75°C’de oluşan hidrosodalit pikleri farklı molar oranlarında değişiklik göstermektedir. 75°C’de molar oranı 0,4 ve 0,8 kıyaslandığında artan sodyum oranıyla hidrosodalit pik şiddetinin arttığı gözlemlendi. 75°C (Na/Al=0,8) sıcaklıkta ve ~24.5°’de gözlemlenen hidrosodalit varlığı molar oranı 0,4 olanda gözlemlenmemiştir. Yüksek sıcaklıklara çıkıldığında (1050°C) ise bu farklılıklar devam etmektedir. Yine farklı molar oranlarına sahip yüksek sıcaklıktaki numunelerde nefelin fazına rastlanmaktadır ve nefelin kristallerinin yoğunluğu 0,8 molar oranına sahip olan numunede daha fazla olarak görülmektedir.



Şekil 7.17. Farklı sıcaklıklardaki ve farklı Na/Al molar oranlarında üretilen kaolin esaslı alümina dolgulu numunelerin XRD paternleri.

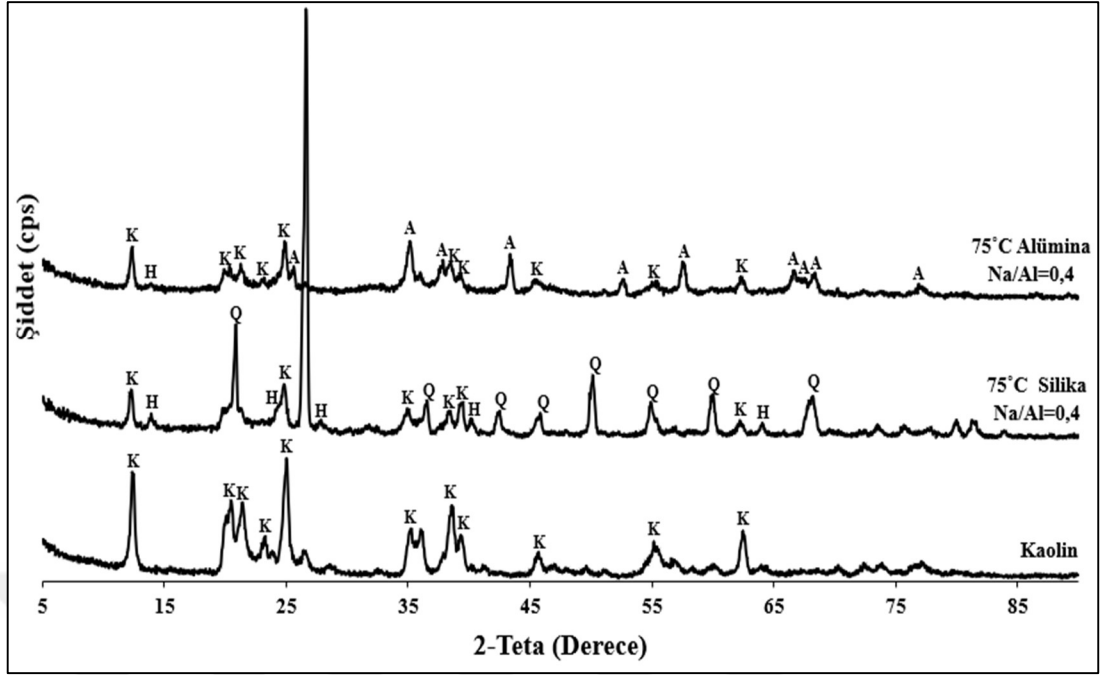
Isıl işlem görmemiş numunelerde alümina ve silika dolguların hidrosodalit dönüşüme herhangi bir etkisinin olup olmadığının anlaşılabilmesi açısından her iki Na/Al molar oranı için Şekil 7.18 ve Şekil 7.19’da XRD paternleri ayrı ayrı karşılaştırılmıştır. Şekil 7.18’te 75°C sıcaklıkta üretilen kaolin esaslı alümina ve silika dolgulu (Na/Al=0,8) numunelerin XRD paternleri verilmiştir. Bununla birlikte grafikten hareketle silika dolgulu numunelerdeki hidrosodalit faz oluşum miktarı ve şiddeti daha fazla olarak

belirlendi. Bu iki farklı dolguya sahip numuneler kıyaslandığında yaklaşık $\sim 31,9^\circ$ ve $\sim 64,25^\circ$ dereceye denk gelen hidrosodalit faz pikleri silika dolgulu numunelerde daha şiddetli olarak görülüp alümina dolgulu numunelerde daha zayıf olarak görülmüştür.



Şekil 7.18. 75°C sıcaklıkta üretilen kaolin esaslı alümina ve silika dolgulu (Na/Al=0,8) numunelerin XRD paternleri.

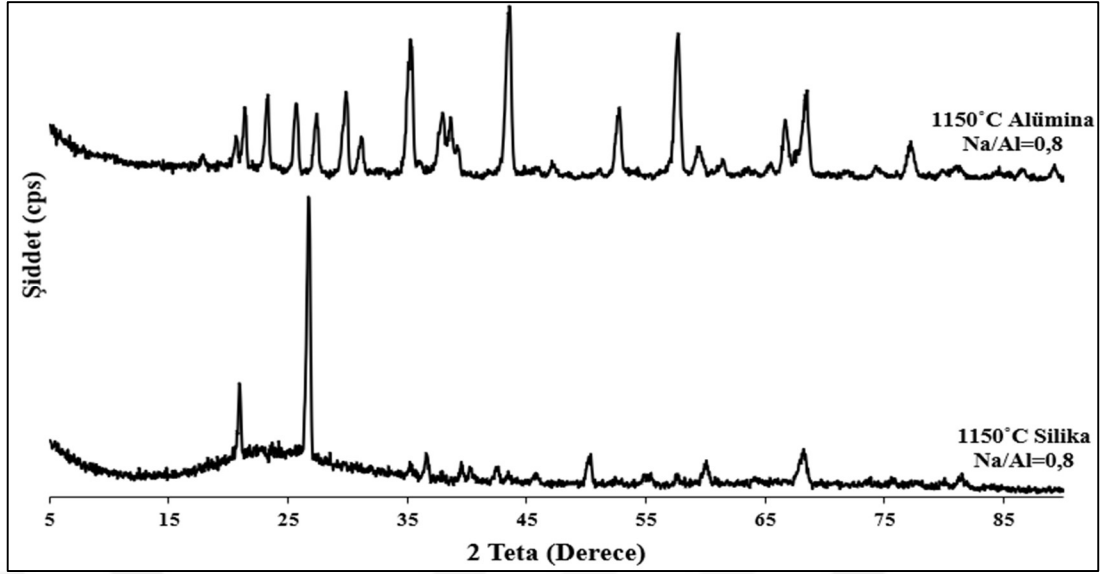
Şekil 7.19’da 75°C sıcaklıkta üretilen kaolin esaslı alümina ve silika dolgulu (Na/Al=0,4) numunelerin XRD paternleri verilmiştir. Önceki grafikten yola çıkarak (Şekil 7.18) görülebileceği gibi sodyum miktarındaki değişim hidrosodalit faz oluşumundaki pik şiddetini etkilemektedir ve grafiğe baktığımızda alümina dolgulu numunelerdeki hidrosodalit faz varlığı sodyum miktarının düşmesiyle birlikte çok az miktarda ve çok az pik şiddetinde olduğu görülmektedir. İki farklı dolgu numunesine sahip bu numuneler kıyaslandığında yaklaşık $\sim 24,5^\circ$, $\sim 27,85^\circ$, $\sim 40,35^\circ$ ve $\sim 64,25^\circ$ derece teta açısına denk gelen hidrosodalit faz pikleri silikalı numunelerde görülüp alümina dolgulu numunelerde ya çok zayıf olarak tespit edilmiş ya da görülmemiştir.



Şekil 7.19. 75°C sıcaklıkta üretilen kaolin esaslı alümina ve silika dolgulu (Na/Al=0,4) numunelerin XRD paternleri.

Silika ve alümina dolgularının özellikle yüksek sıcaklıklardaki faz oluşumlarına olan etkilerini karşılaştırmak için Şekil 7.20’de her iki ayrı dolgulu numunenin 1150°C sıcaklıkta ısıtılma işleminden sonraki XRD paternleri beraberce verilmiştir.

Silika dolgulu 0,8 molar oranına sahip numunelerde 15°-35° arasındaki kambur bir patern oluşumu ile yüksek oranda amorfleşme olduğu görülmüştür. Bu amorfleşme daha düşük ergime noktası nedeni ile meydana gelen yüksek oranda silika içeren sıvı fazların camsı yapıda soğumasından kaynaklanmaktadır. Alümina tozu ilavesi sodyum oksit alümina silikat ikili oksit sisteminde refrakterik etkiye sahip olması nedeni ile sıvı faz oluşumunu yüksek sıcaklıklara ötelemektedir. Alüminanın bir dolgu olarak bu etkisi metakaolin esaslı jeopolimerler üzerine yapılan araştırmalarda da rapor edilmiştir (Yaşın vd, 2019).



Şekil 7.20. 1150°C sıcaklıkta ve Na/Al (0,8) molar oranında üretilen kaolin esaslı alümina ve silika dolgulu numunelerin XRD paternleri.

7.7. FTIR ANALİZ SONUÇLARI

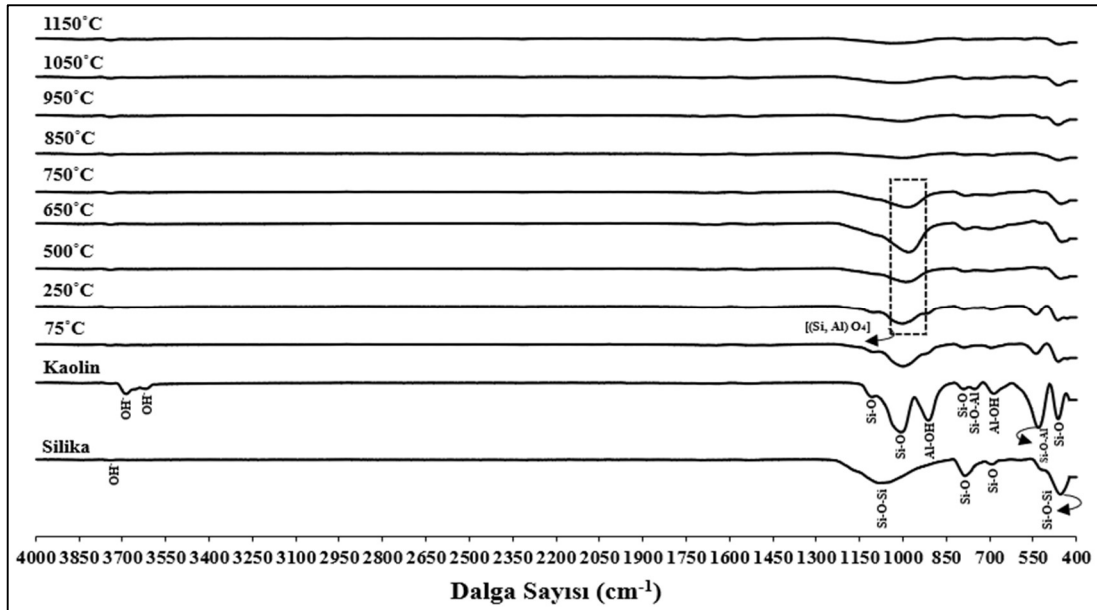
Şekil 7.21’de farklı sıcaklıklarda ısı işleme maruz bırakılan kaolin esaslı silika dolgulu numunelerin FTIR paternleri verilmiştir. Silikanın FTIR spektrumunda, yaklaşık 3750 cm^{-1} civarında bir zirve gözlemlenmiştir, bu zirve H-O-H bağlarından oluşan piklere karşılık gelmektedir (Nasir vd, 2020). Bu zirve, adsorbe edilmiş su nedeniyle yüzey hidroksil gruplarının varlığını göstermektedir. Yaklaşık 1046 cm^{-1} ’deki güçlü, geniş bir bant, Si-O-Si asimetrik gerilme titreşimlerine atfedilir (Yue vd, 2018). Yaklaşık 778 cm^{-1} civarındaki bir zirve, Si-O simetrik gerilme titreşimlerine karşılık gelir (Liu vd, 2015). Si-O-Si’nin bükülme titreşimleri yaklaşık 448 cm^{-1} ’de meydana gelir (Yue vd, 2018).

Kaolinin FTIR spektrumu birkaç karakteristik zirve göstermektedir. 3682 cm^{-1} ve 3621 cm^{-1} civarındaki güçlü bir bant, O-H moleküllerinden kaynaklanmaktadır (Liew vd, 2012). 1032 cm^{-1} civarındaki zirve, Si-O titreşimlerine atfedilmektedir (Tironi vd, 2012). Yaklaşık 912 cm^{-1} ve 799 cm^{-1} civarındaki zirveler, sırasıyla Al-OH titreşimleri (Tironi vd, 2012) ve Si-O titreşimleri (Liew vd, 2012) ile ilişkilidir. 538 cm^{-1} civarındaki bant, Si-O-Al titreşimlerinden (Liew vd, 2012) kaynaklanmaktadır.

Üretilen numunelerde 75°C'den 250°C'ye kadar olan ısıt işlemlerde, spektrumlar 3750 cm^{-1} civarındaki OH gerilme titreşimlerini gösterir, bu da su ve hidroksil gruplarının varlığını işaret eder (Nasir vd, 2020). Spektrumlar 1032 cm^{-1} civarındaki geniş zirve Si-O gerilme titreşimlerine atfedilmektedir (Tironi vd, 2012). Bu pik kaolinin yapısının değişmesi neticesinde meydana gelmiş ve kaolinin hidrosodalite dönüşümünün en belirgin değişim olarak paternde gözlenmiştir. 799 cm^{-1} ve 690 cm^{-1} civarındaki zirveler sırasıyla Si-O (Liew vd, 2012) ve Al-OH (Tironi vd, 2012) titreşimlerine karşılık gelmektedir.

Sıcaklık arttıkça 500°C'de, O-H titreşimlerini gösteren piklerin yoğunluğu azalmakta, bu da yüzey ve yapısal su kaybını göstermektedir. Elimbi vd. (2014) metakaolin esaslı jeopolimer numunelerin FTIR spektrumunda artan ısıt işlem sıcaklığı ile suya işaret eden bağlara (H-O-H, O-H) ait piklerin azaldığını rapor etmiştir. 690 cm^{-1} civarındaki zirveler hala mevcuttur ancak yoğunlukları azalmıştır, bu da bu bant Al-OH bağlarını temsil ettiği için kısmi dehidroksilasyonu göstermektedir.

650°C'den 750°C'ye bu orta sıcaklıklarda, spektrumlar önemli değişiklikler göstermektedir. 990 cm^{-1} zirvesi değişimler göstermiştir, bu bant Si-O bağlarını temsil ettiğinden, bu değişim kuvarsın faz dönüşümünden kaynaklanmış olabilir.

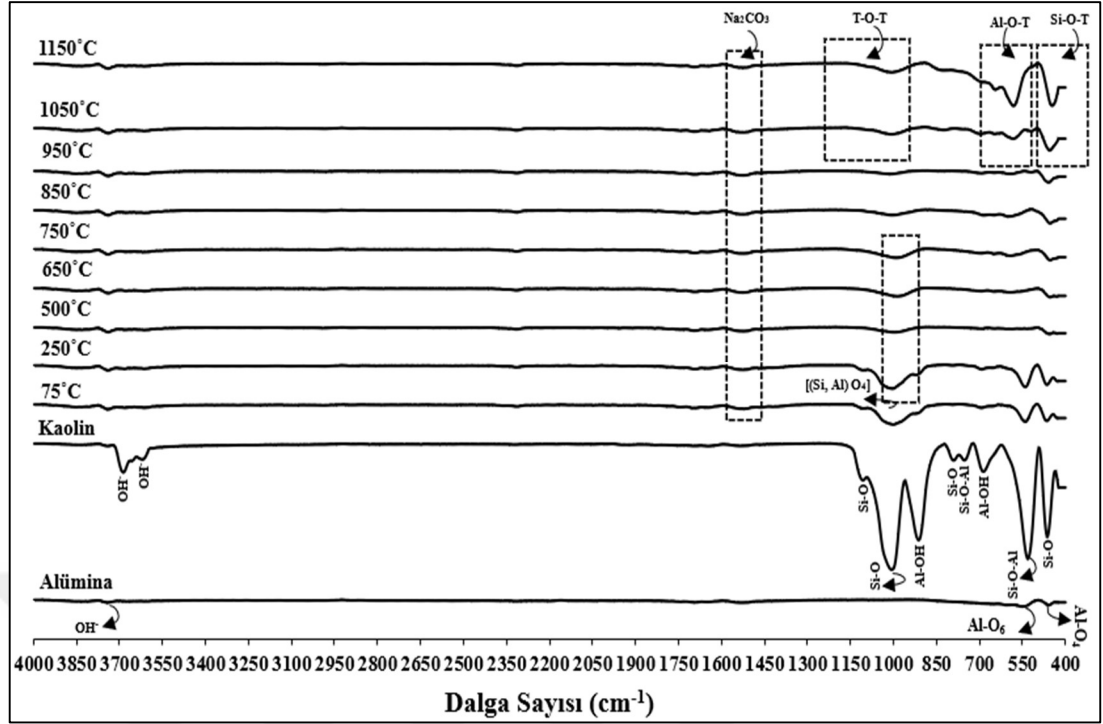


Şekil 7.21. Farklı sıcaklıklarda ısıt işleme maruz bırakılan kaolin esaslı silika dolgulu numunelerin FTIR paternleri.

Şekil 7.22’de farklı sıcaklıklarda ısıtılma maruz bırakılan kaolin esaslı alümina dolgulu numunelerin FTIR patenleri verilmiştir. Alüminanın FTIR spektrumunda, 3750 cm^{-1} civarında bir zirvesi gözlemlenmiştir, bu zirve O-H bağlarının titreşimlerine karşılık gelmektedir (Bezerra vd, 2024). Bu zirve, muhtemelen adsorbe edilmiş su molekülleri nedeniyle alümina yüzeyinde bulunan hidroksil gruplarını göstermektedir. Spektrumda başka belirgin zirveler ise 536 cm^{-1} ve 458 cm^{-1} civarında bantlar Al-O bağlarına işaret etmektedir, psödobohemit yapısına atfedilir (Ren vd, 2004; Zu vd, 2011).

Numunelerde 75°C 'den 250°C 'ye dek düşük sıcaklıklarda, hidroksil gruplarının (OH) yoğunluğu biraz azalmaktadır, bu da ısıtılma su kaybını göstermektedir. 75°C sıcaklıkta üretilen numunede Al-OH ve Si-O titreşim bantları hala belirgin olup, kaolinit yapısının kısmen korunduğunu göstermektedir. 650°C sıcaklıktaki ısıtılma işleminden sonra $[(\text{Si}, \text{Al})\text{O}_4]$ titreşimlerinin yoğunluğu artmış olup, kaolinit yapısının daha fazla dönüşüm geçirdiğine işaret etmektedir. Yaklaşık 1400 cm^{-1} civarındaki pikler Na_2CO_3 (sodyum karbonat) oluşumundan kaynaklanmaktadır (Barbosa vd, 2000).

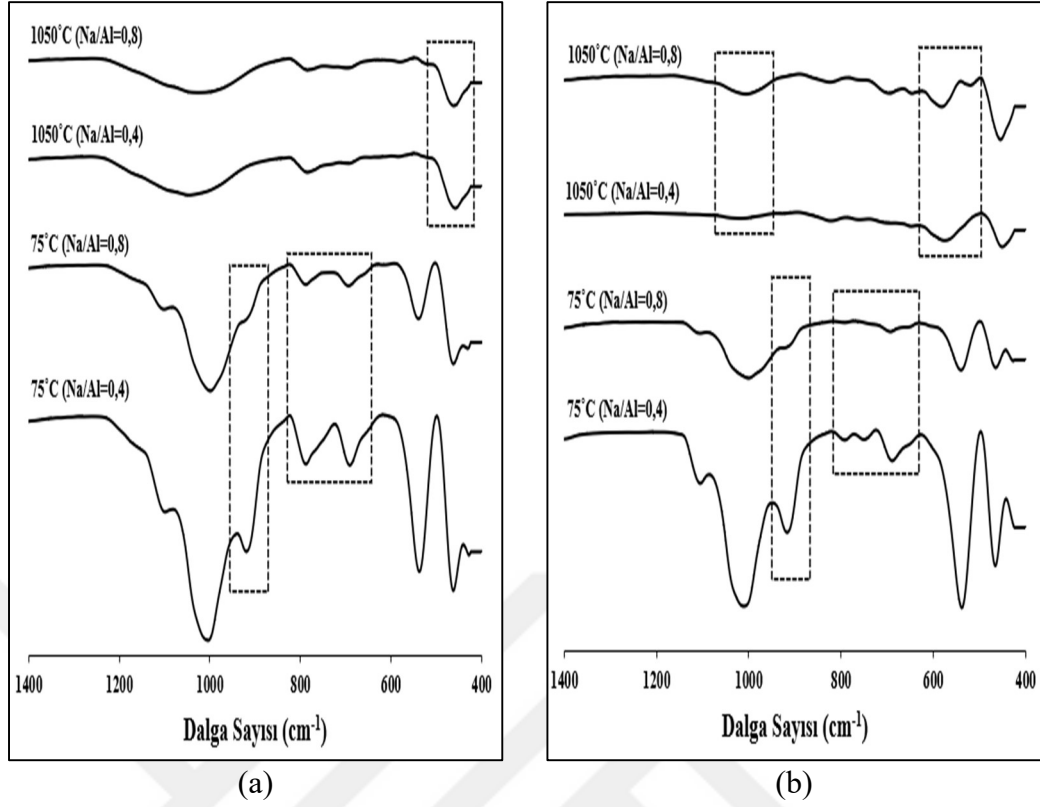
1050°C ve 1150°C 'de, FTIR spektrumunda Al-O-T ve Si-O-T (T=Al ya da Si) bağlarını ifade eden pikler güçlenmiştir. Bu pikler yüksek sıcaklıklarda kararlı alümina silikat kristallerini oluşumuna işaret etmektedir. Nefelin kristalleşmesinin bir göstergesi olan piklerin silika dolgulu numunelerde alümina dolgulu numuneler kadar belirgin gözlenememesinin silika dolgulu numunedeki yüksek amorf camsı fazdan kaynaklandığı düşünülmektedir.



Şekil 7.22. Farklı sıcaklıklarda ısıtılma maruz bırakılan kaolin esaslı alümina dolgulu numunelerin FTIR paternleri.

Şekil 7.23'te farklı sıcaklıklardaki ve farklı Na/Al molar oranlarında üretilen kaolin esaslı silika (a) ve alümina (b) dolgulu numunelerin FTIR paternleri verilmiştir. 75°C'de Na/Al=0,4 ve Na/Al=0,8 oranlarında üretilen silika dolgulu (a) numunelerde, 900-1200 cm^{-1} bölgesindeki dönüşümler kaolinin hidrosodalite dönüşümüne işaret etmektedir. Artan Na/Al molar oranı hidrosodalit dönüşümünü artırmıştır. Bu nedenle her iki dolgulu numunede de 900-1200 cm^{-1} arasında kaolin kaynaklı yapıya işaret eden piklerin azaldığı görülmüştür. Benzer olarak Marsh vd. (2018) hidrosodalit esaslı jeopolimerde artan Na/Al oranı ile FTIR spektrumlarındaki kaolinit bantlarının şiddetinin azaldığını hidrosodalit bantlarının baskınlaştığını rapor etmiştir.

1050°C'de ise, alümina dolgulu numunelerde (şekil 7.23 b) 500-600 cm^{-1} arasında nefelin piklerine işaret eden bağların oluşumu görülmüştür. Silika dolgulu numunede bu bağlar gözlenmemiştir, bunun sebebi silika dolgulu numunedeki camsı amorf fazların oluşumu olabilir.



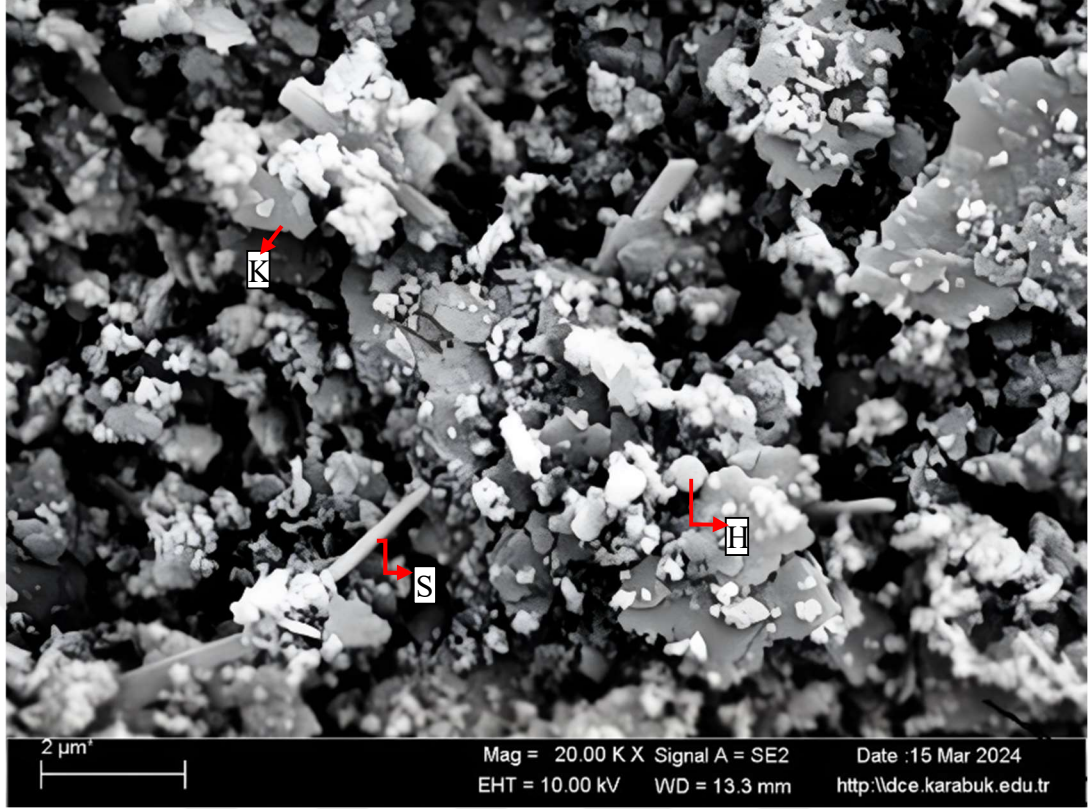
Şekil 7.23. Farklı sıcaklıklardaki ve farklı Na/Al molar oranlarında üretilen kaolin esaslı silika (a) ve alümina (b) dolgulu numunelerin FTIR paternleri.

7.8. SEM ANALİZİ SONUÇLARI

Şekil 7.24'te 75°C sıcaklıktaki Na/Al molar oranı 0,4 olan silika dolgulu numunenin SEM görüntüsü verilmiştir. Numune mikroyapılarında plaka şeklinde olan yapılar tepkimeye girmeden kalan kaolin kristalleridir. Hidrosodalit yapılar literatürde küresel olarak rapor edilmiştir (Marsh vd, 2018; Gao vd, 2024). Sodyum karbonat kristalleri ise çubuksu yapılar olarak gözlenmektedir.

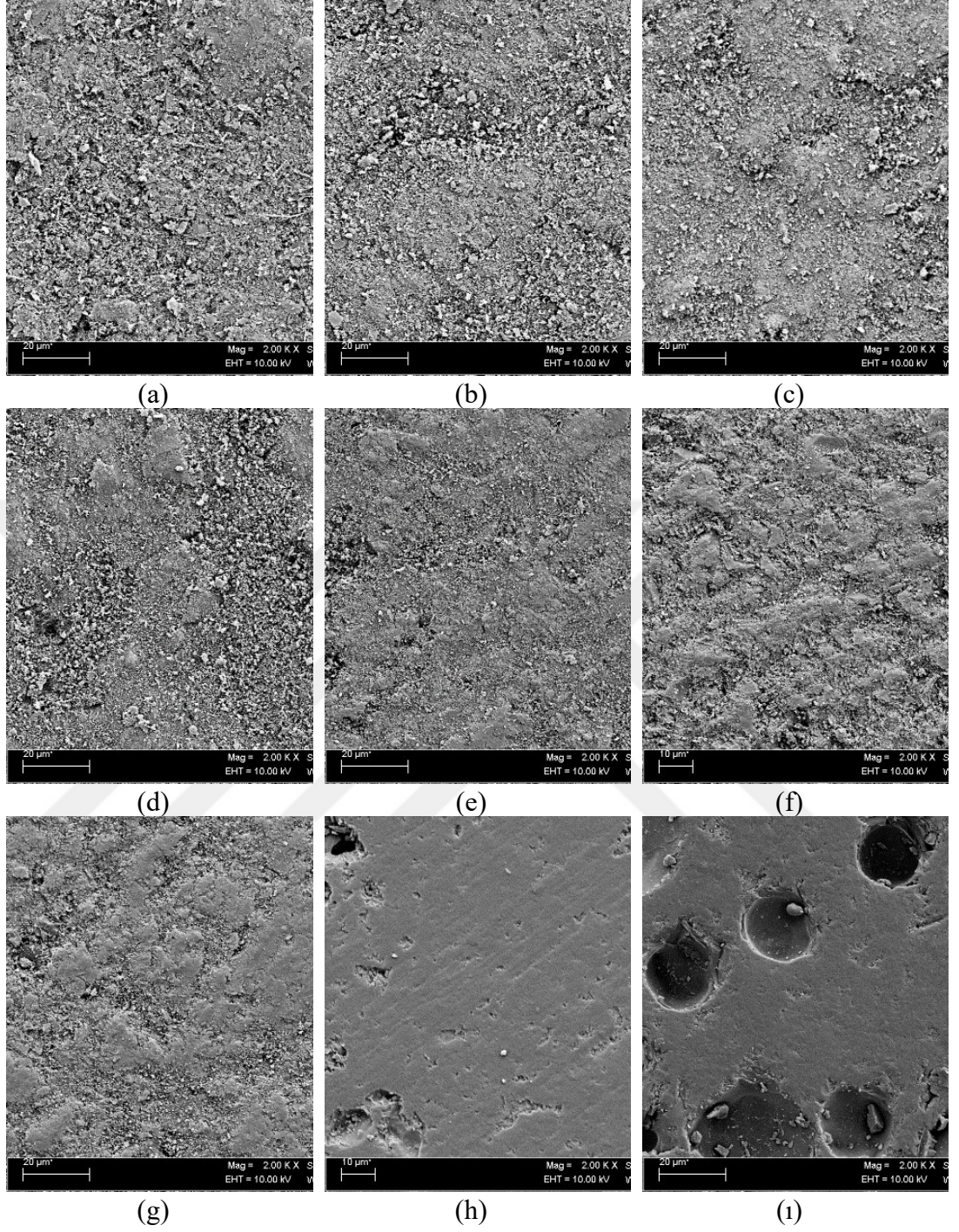
Marsh vd. (2018) kaolin ve NaOH tepkimesine dayanan hidrosodalit esaslı dolgusuz olarak üretilen jeopolimerde kaolin kristallerinin kristal yapısı nedeni ile plakalı 2 boyutlu morfolojide, hidrosodalitin ise küresel 3 boyutlu bir morfolojide bulunduğunu rapor etmiştir.

Marsh vd. (2018) hidrosodalit kristallerinin büyük ve düzenli şekillerde olmamasının, hidrotermal şartların olmamasına ve kısa kür süresine bağlamıştır.



Şekil 7.24. 75°C sıcaklıktaki Na/Al molar oranı 0,4 olan silika dolgulu numunenin SEM görüntüsü.

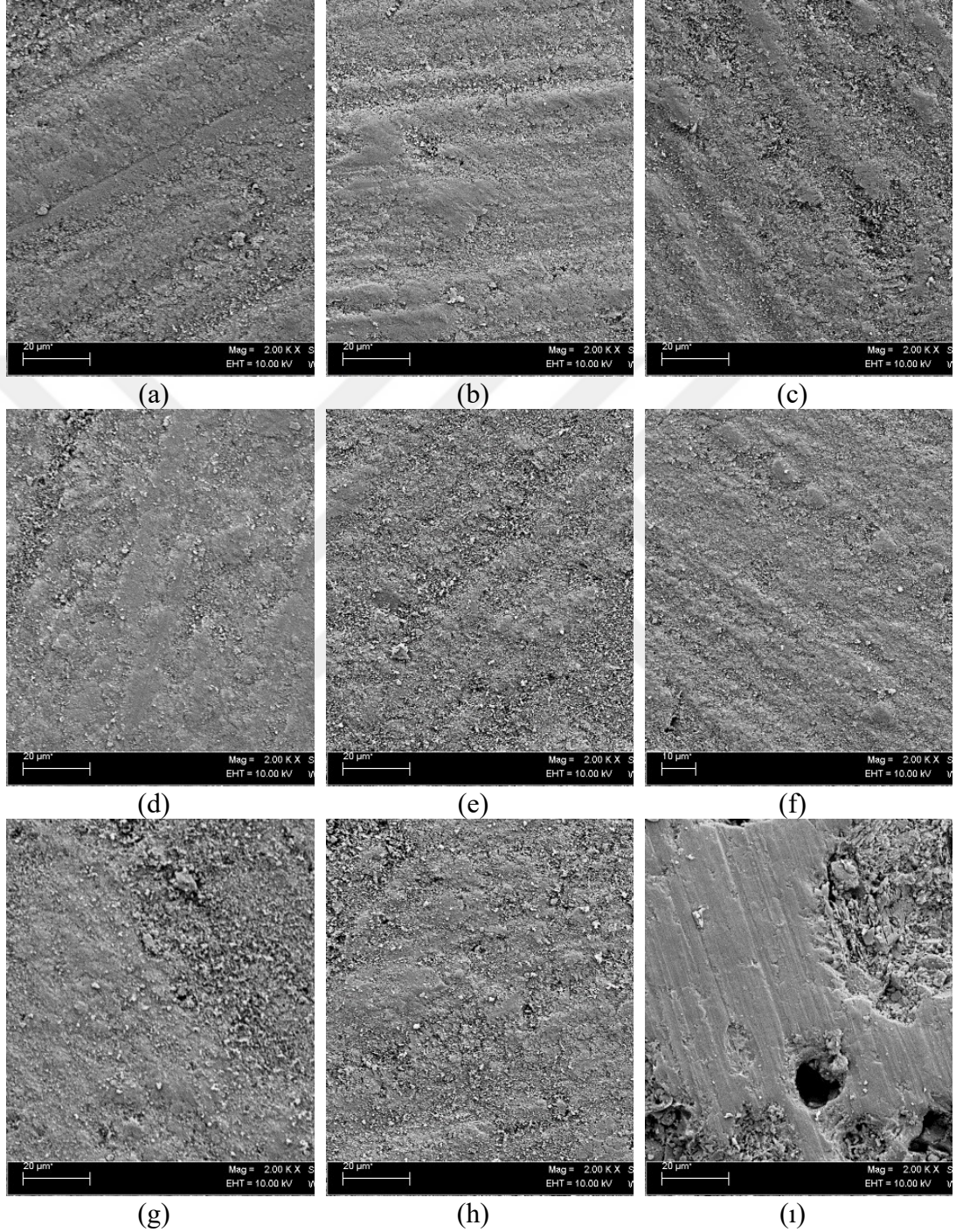
Silika dolgulu Na/Al oranı 0,8 olan numunelerin farklı sıcaklıklardaki SEM görüntüleri Şekil 7.25’te verilmiştir. Artan ısı işlem sıcaklığı ile birlikte numunelerin mikroyapılarında 850°C sıcaklığa kadar belirgin bir değişim gözlenmemiştir. 850°C sıcaklıkta mikroyapıda sinterleme kaynaklı seramikleşmenin başladığı görülmektedir. 1050°C sıcaklığa ulaşıldığında mikroyapı belirgin olarak değişmiş ve sıvı faz sinterlemeye işaret eden gözeneklerin oluşumu görülmüştür. 1150°C sıcaklıkta ise devam eden sıvı faz sinterleme nedeni ile kapalı gözeneklerin daha fazla büyüdüğü açıkça görülmüştür.



Şekil 7.25. Silika dolgulu Na/Al oranı 0,8 olan numunelerin farklı sıcaklıklardaki SEM görüntüleri; a)75°C, b)250°C, c)500°C, d)650°C, e)750°C, f)850°C, g)950°C, h)1050°C, ı)1150°C.

Alümina dolgulu Na/Al oranı 0,8 olan numunelerin farklı sıcaklıklara maruz kaldıktan sonraki SEM görüntüleri Şekil 7.26’da verilmiştir. Artan ısıtıl işlem sıcaklığı ile birlikte

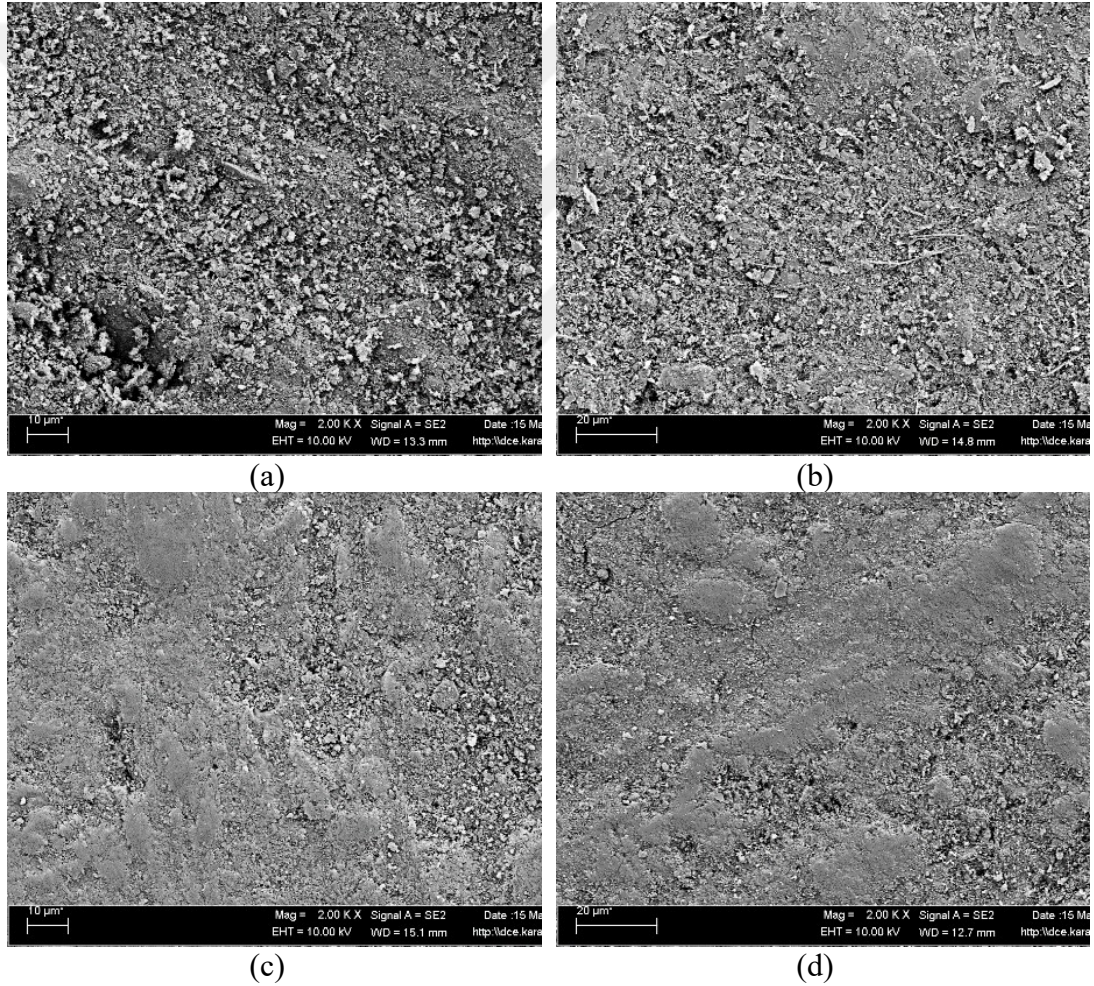
numunelerin mikroyapılarında 1050°C sıcaklığa kadar belirgin bir değişim gözlenmemiştir.



Şekil 7.26. Alümina dolgulu Na/Al oranı 0,8 olan numunelerin farklı sıcaklıklardaki SEM görüntüleri; a)75°C, b)250°C, c)500°C, d)650°C, e)750°C, f)850°C, g)950°C, h)1050°C, ı)1150°C.

1150°C sıcaklığa ulaşıldığında sıvı faz sinterlemenin yeni başladığı kısmi kapalı gözenek oluşumunda anlaşılmaktadır. Lin vd. (2009) 1000°C sıcaklıkta yapılan ısıtma işlem sonrasında numunelerin kırılma yüzeylerinin mikro yapısını incelediğinde artan gözenekliliğin alfa alümina katkısı ile arttığını rapor etmiştir.

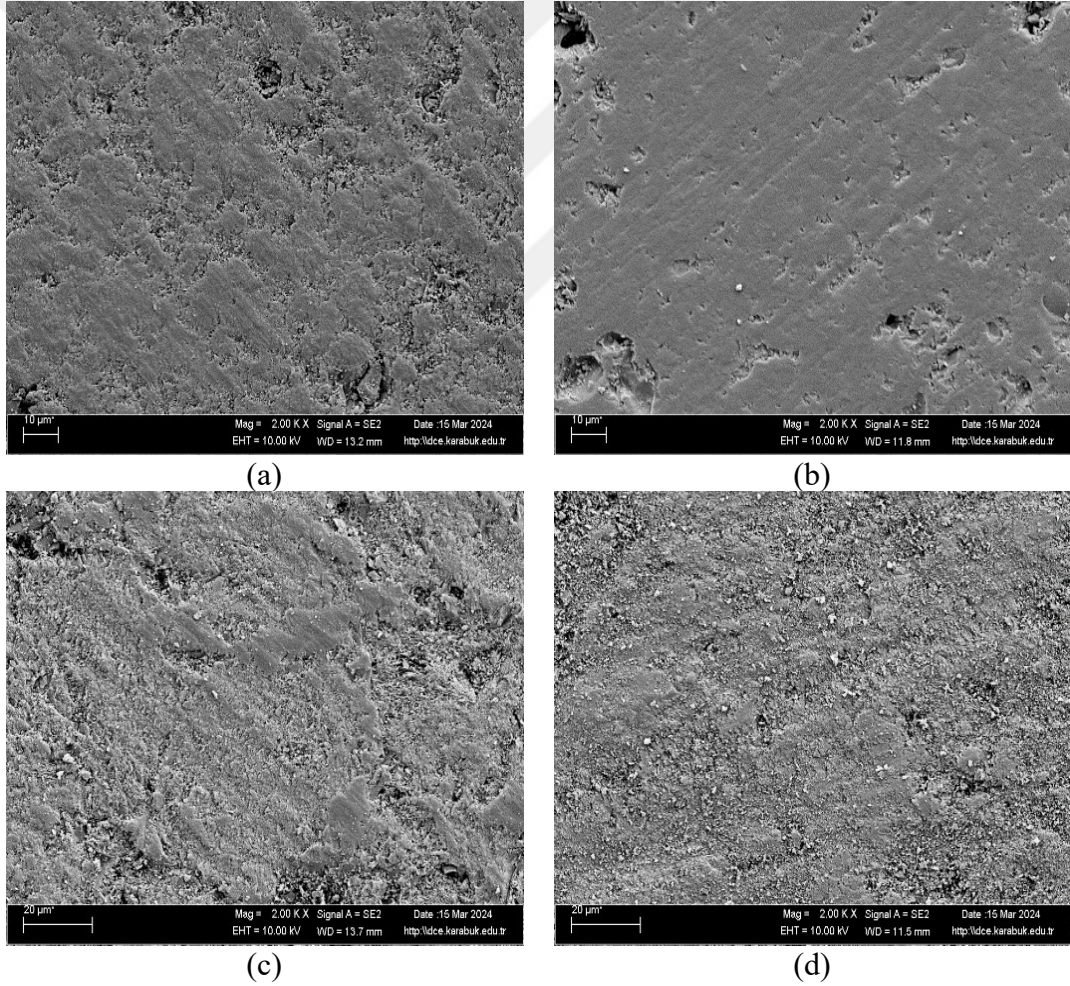
Şekil 7.27’de farklı Na/Al oranına ve farklı dolgulara sahip 75°C sıcaklıkta ısıtma işlemi gören numunelere ait SEM görüntüleri verilmiştir. Alümina dolgulu numunelerin silika dolgulu numunelere göre her iki Na/Al molar oranı için daha kompakt bir mikroyapıya sahip olduğu görülmüştür (Şekil 7.27 c-d).



Şekil 7.27. Farklı Na/Al oranına sahip 75°C sıcaklıkta ısıtma işlemi gören numunelere ait SEM görüntüleri; a) Na/Al oranı 0,4 olan silika dolgulu numune, b) Na/Al oranı 0,8 olan silika dolgulu numune, c) Na/Al oranı 0,4 olan alümina dolgulu numune, d) Na/Al oranı 0,8 olan alümina dolgulu numune.

Na/Al oranı 0,8 olan silika dolgulu numune mikroyapısında sodyum karbonat kristalleri iğnemsî olarak gözlenmiştir (şekil 7.27 b). Azalan Na/Al molar oranı ile silika dolgulu numunede bu yapıları belirgin olarak azaldığı görülmüştür (şekil 7.27 a). Alümina dolgulu numunelerde ise sodyum karbonat iğnemsî yapıları her iki Na/Al molar oranı için gözlenmemiştir. Bu durumun silika dolgulu numunelerin alümina dolgulu numunelerden farklı olarak beyaz renkte olmasına neden olduğu düşünülmektedir.

Şekil 7.28’de farklı Na/Al oranına sahip 1050°C sıcaklıkta ısıl işlem gören numunelere ait SEM görüntüleri verilmiştir.



Şekil 7.28. Farklı Na/Al oranına sahip 1050°C sıcaklıkta ısıl işlem gören numunelere ait SEM görüntüleri; a) Na/Al oranı 0,4 olan silika dolgulu numune, b) Na/Al oranı 0,8 olan silika dolgulu numune, c) Na/Al oranı 0,4 olan alümina dolgulu numune, d) Na/Al oranı 0,8 olan alümina dolgulu numune.

1050°C sıcaklıkta ısıtıl işlem gören ve Na/Al oranı 0,8 olan silika dolgulu numunenin sıvı faz sinterleme nedeni ile kapalı gözenekler içeren yoğun bir mikroyapıya sahip olduğu görülmüştür (Şekil 7.28 b). Azalan sodyum oranı ile numune mikroyapısındaki kapalı gözenek oranı azalmıştır (şekil 7.28 a). Alümina dolgulu numunelerde her iki sodyum oranı için belirgin bir kapalı gözenek oluşumu gözlenmemiştir. Bu duruma alümina dolgusunun jeopolimerlerdeki refrakterik etkisi nedeni ile yüksek sıcaklıklara ötelenen sıvı faz oluşumdan kaynaklandığı düşünülmektedir.



BÖLÜM 8

GENEL SONUÇLAR VE ÖNERİLER

Bu çalışmada kalsine edilmemiş kaolin kullanılarak hidrosodalit tipi jeopolimerler alümina ve silika tozu dolguları ile üretilmiş ve üretilen numunelerin artan sıcaklık ile beraber davranışları sistematik olarak incelenmiştir. Bu çalışma farklı tipte dolgular içeren kaolin tipi jeopolimerin termal davranışlarındaki farklılıkları ve jeopolimer reçinesindeki $\text{Na}_2\text{O}/\text{Al}_2\text{O}_3$ molar oranındaki farklılıkların bu sürece olan etkilerini ortaya çıkarmayı amaçlamıştır. Çalışma neticesinde aşağıdaki bulgulara ulaşılmıştır.

1. 0,8 Na/Al molar oranına sahip jeopolimerlerde numune basma dayanımları 950°C sıcaklığa kadar yükselmiştir.
2. Alümina dolgulu numuneler silika dolgulu numunelerden nispeten daha yüksek dayanım değerlerine ulaşmıştır. Ancak 0,4 Na/Al oranına sahip silika dolgulu numune muhtemelen sıvı faz miktarı optimizasyonu nedeni ile 1050°C ısıtıl işlem sonrasında çalışmada ulaşılan en yüksek basma dayanımı değerlerini sağlamıştır.
3. Silika dolgulu numunelerde artan sıcaklık ile seramikleşme ve sıvı faz oluşumu nedeni ile %1 altında su emme değerlerine yapılan ısıtıl işlemler ile ulaşılabilmiştir. Alümina dolgulu numunede alüminanın refrakterik etkisi hem yoğunluk artışını azaltmış hem de yüksek su emme değerine sahip numuneler sunmuştur.
4. Tüm numunelerin artan ısıtıl işlem sıcaklığı ile alkali salınımları azalmış ve düşük pH değerleri tespit edilmiştir. Silika dolgulu numuneler artan sıcaklık ile daha düşük sodyum liçleri nedeni ile düşük pH değerleri sağlarken alüminalı numuneler silikalı numuneler kadar sodyum liçi azaltımı hususunda etkili olamamıştır.

5. Silika dolgulu numuneler artan sıcaklık ile belirgin olarak artan termal küçülme göstermişlerdir. Alümina dolgulu numuneler ise boyutsal olarak daha kararlı numuneler olmuştur. Artan sodyum içeriği numunelerin boyutsal termal küçülmelerinde artışa neden olmuştur.
6. Numunelerde kaolinden farklı olarak zeolitik su çıkışı tespit edilmiştir. Kaolin-Hidrosodalit dönüşümünün artan sodyum oranı ile arttığı 400-1000°C sıcaklık aralığındaki artan sodyum oranı ile azalan dehidroksilasyon kaynaklı su çıkışından tespit edilmiştir.
7. Kaolinin uygulanan süreç neticesinde kısmen hidrosodalit fazına dönüştüğü XRD analizinden görülmüştür. Bu dönüşümün oranı TG testi sonuçları ile hesaplanmıştır. Artan sıcaklık ile birlikte numunelerdeki hidrosodalit yapısı nefelin fazı içeren seramikleşmiş bir yapıya evrilmiştir. Faz gelişiminde alümina ve silis dolgulu numunelerdeki temel farklılaşma silis dolgulu numunelerde gözlenen daha yüksek orandaki camsı faz oluşumu olmuştur.
8. FTIR analizleri hidrosodalit dönüşümünü kaolinin Si-O ve Al-OH bağlarındaki değişim ile tespit etmiştir. Numuneler bağ yapılarını nefelin kristalleşme başlangıcına dek korumuştur.
9. Numunelerin SEM analizlerinde tepkimeye girmeden kalan kalıntı kaolinler, hidrosodalit ve sodyum karbonat kristalleri tespit edilmiştir. Alümina dolgulu numunelerde sıvı faz ve kapalı gözenek oluşumunun silika dolgulu numunelerde daha düşük olduğu mikroyapılardan görülmüş ve gözeneklilik ölçümlerinde hesaplanmıştır. Bununla birlikte alümina dolgusu numune mikroyapılarında karbonatlaşmayı azaltmıştır. Azalan Na/Al oranının silika dolgulu numunelerdeki aşırı sıvı faz ve kapalı gözenek oluşumunu bastırdığı görülmüştür. Numunelerin açık ve kapalı gözeneklilik ölçümleri SEM analizleri ile örtüşmüştür. Silika dolgulu numunelerde 1150°C ısıtılma işlem sonrasında alümina dolgulu numunelere göre oldukça fazla kapalı gözenek hesaplanmıştır. Alümina dolgulu numunelerde açık gözeneklilik 1150°C

sıcaklığında bile korunurken, silika dolgulu numunelerde bu sıcaklıkta açık gözenekler kapalı gözeneğe dönüşmüştür.

Çalışma neticesinde kaolin esaslı jeopolimer ile hidrosodalit tipi oda sıcaklığı uygulamaları için kullanılabilir niteliklere sahip farklı dolgular içeren iki bağlayıcı geliştirilmiştir. Oda sıcaklığında benzer özelliklere sahip olan bağlayıcıların artan sıcaklıkla beraber davranışları farklılıklar göstermiştir. Kaolin esaslı jeopolimere yapılabilecek silika dolgusu ile geleneksel seramik yapılara nispeten düşük sıcaklıklarda porselen benzeri bir yapıya dönüşebilen kompozisyon elde edilmiştir. Alümina dolgulu numunenin ise 1000°C civarındaki refrakterik uygulamalar için avantajlara sahip olduğu görülmüştür. Gerek refrakterik uygulamalar gerekse geleneksel seramik üretiminde bu bağlayıcının kullanılması durumunda bağlayıcı reçetesindeki $\text{Na}_2\text{O}/\text{Al}_2\text{O}_3$ molar oranının yüksek sıcaklıklardaki sıvı faz oranını değiştirerek kapalı gözenek oluşumu, termal boyutsal kararlılık, su emme ve mekanik özellikleri etkilediği ortaya çıkarılmıştır. Sonuç olarak bu iki farklı termal karakterdeki çevre dostu bağlayıcı için, reçetelerindeki $\text{Na}_2\text{O}/\text{Al}_2\text{O}_3$ molar oranının, ürün özelliklerini servis şartlarını göz önüne alarak optimize etmek için etkili bir araç olduğu anlaşılmıştır. Bundan sonraki yapılacak çalışmalarda üretilen bağlayıcılar ve daha iri agregalarla elde edilebilecek çevre dostu kompozit yapıların performanslarının ölçülmesi önerilmektedir.

KAYNAKLAR

Arcasoy, A., “Seramik Teknolojileri”, *Marmara Üniversitesi Güzel Sanatlar Fakültesi Seramik Anasanat Dalı Yayınları*, İstanbul, 1-277 (1983).

Augustin, S., “Friction material, in particular for the manufacturing of a brake pad, and associated preparation methods”, *US Patent*, 10156276B2 (2017).

Barbosa, V.F.F. and Kenneth, J.D.M., “Thermal behaviour of inorganic geopolymers and composites derived from sodium polysialate”, *Materials Research Bulletin*, 38 (2): 319-331 (2003).

Barbosa, V.F.F., MacKenzie, K.J.D. and Thaumaturgo, C., “Synthesis and characterisation of materials based on inorganic polymers of alumina and silica: sodium polysialate polymers”, *International Journal of Inorganic Materials*, 2 (4): 309-317 (2000).

Bezerra, B.P., Morelli, M.R. and Luz, A.P., “Design, characterization, and incorporation of geopolymer binders in refractory ceramic compositions”, *International Journal of Applied Ceramic Technology*, 21 (1): 565-580 (2024).

Boutterin, C. and Davidovits, J., “Geopolymeric Cross-Linking (LTGS) and Building Materials”, *Cordi-Geopolimere*, 88(1): 79-88 (2003).

Boyacı, Ö., Uz, V., Toprak, M.U. ve Çoşkun, N.D., “Kaolenlerin Jeopolimer Üretiminde Kullanılabilirliği”, *II. Uluslararası Bilimsel Çalışmalarda Yenilikçi Yaklaşımlar Sempozyumu*, Samsun, 772-778 (2018).

Carr, E., “Alkali-Activated Natural Aluminosilicate Materials for Compressed Masonry Products, and Associated Processes and Systems” *US Patent*, 2017057872A1 (2017).

Davidovits, F., Naso, A. and Davidovits, J., “The making of etruscan ceramic (bucchero nero) in VII-VIII century b.c.”, *Géopolymère’99 Proceedings*, France, 297-314 (1999).

Davidovits, J., "Soft mineralurgy and geopolymers", *Proceedings of the 1st International Conference on Geopolymer '88*, Compiègne, 19-23 (1988a).

Davidovits, J., “30 Years of Successes and Failures in Geopolymer Applications. Market Trends and Potential Breakthroughs.” *Geopolymer 2002 Conference*, Melbourne, 1-16 (2002).

Davidovits, J., “Geopolymer Chemistry & Applications 2nd ed.”, *Institut Geopolymere*, France, 0-587 (2008a).

Davidovits, J., “Geopolymer chemistry and properties”, *In Proceedings of the 1st International Conference on Geopolymer*, Compiègne, 25-48 (1988b).

Davidovits, J., “Geopolymers: Inorganic Polymeric New Materials”, *Journal of Thermal Analysis and Calorimetry*, 37 (8): 1633-1656 (1991).

Davidovits, J., “Geopolymers: inorganic polymeric new materials”, *Journal of Thermal Analysis and calorimetry*, 16: 91-139 (1994).

Davidovits, J., “They Built the Pyramids”, *Geopolymer Institute*, Fransa, 0-288 (2008b).

Davidovits, J., and Davidovits, R., “Why djoser’s blue Egyptian faience tiles are not blue? manufacturing Djoser’s faience tiles at temperature as low as 250°C?”, *IX. International Congress of Egyptologists*, France, 1-7 (2004).

Davidovits, J., Bonett, A. and Mariotte, A.M., “Making Cements with Plant Extracts”, *Proceedings of the 22nd Symposium on Archaeometry*, Bradford, 205-212 (1982).

Davidovits, R., Pelegris, C., and Davidovits, J., “Standardized ethod in Testing Commercial Metakaolins for Geopolymer Formulations”, *Technical Paper #26-MK-testing*, (2019).

Demir S. and Yasin S., “Geopolymerisation of un-calcined kaolin by the novel heat curing method”, *Journal of Ceramic Processing Research*, 23 (1): 41-47 (2022).

Derouiche R. and Baklouti S., “Phosphoric acid based geopolymerization: Effect of the mechanochemical and the thermal activation of the kaolin”, *Ceramics International*, 47 (10): 13446-13456 (2021).

Duan, P., Yan, C. and Luo, W., “A novel waterproof, fast setting and high early strength repair material derived from metakaolin geopolymer”, *Construction and Building Materials*, 124: 69-73 (2016).

Duxson, P., Provis, L. J., Lukey, C. G. and van Deventer, J. S. J., “The role of inorganic polymer technology in the development of ‘green concrete’”, *Cement and Concrete Research*, 37 (12): 1590-1597 (2007).

Elimbi, A., Tchakoute, H.K., Kondoh, M. and Manga, J. D., “Thermal behavior and characteristics of fired geopolymers produced from local Cameroonian metakaolin”, *Ceramics International*, 40 (3): 4515-4520 (2014).

Esaifan, M., Rahier, H., Barhoum, A., Khoury, H., Hourani, M., and Wastiels, J., “Development of Inorganic Polymer by Alkali-Activation of Untreated Kaolinitic Clay: Reaction Stoichiometry, Strength and Dimensional Stability”, *Construction and Building Materials*, 9:251-259 (2015).

Fan, F. H., Liu, Z., Xu, G. J., Peng, H. and Cai, C. S., “Mechanical and thermal properties of fly ash based geopolymers”, *Construction and Building Materials*, 160: 66-81 (2018).

Gao, B., Li, Y., Son, H., Jang, S., Lee, H-S. and Bae, C-J., “Phase transition and thermal stability of ceramics from Na-based geopolymers”, *Int J Appl Ceram Technol.*, 21: 2288–301 (2024).

Glukhovskiy, V. D., "Soil silicates", *Gosstroyizdat*, Kiev, 154 (1959).

Glukhovskiy, V. D., “Ancient, modern and future concretes”, *Proceedings of the first international conference on alkaline cements and concretes*, Kiev, 1-8 (1994).

Glukhovskiy, V. D., “Soil silicates, Their Properties, Technology and Manufacturing and Fields Application”, Doct Tech Sc. Degree thesis, *Civil Engineering Institute*, Kiev, (1965).

Glukhovskiy, V.D., “Some Aspects of Admixtures and Industrial By-Products on the Durability of Concrete”, *Proceedings of the 2nd International Seminar*, Gothenburg, 53-62 (1989).

Haiquan, H, “Geopolymer chemically-bonded ceramic tile and preparation method thereof”, *CN Patent*, 105236933A (2016).

He, P. and Jia, D., “Low-temperature sintered pollucite ceramic from geopolymer precursor using synthetic metakaolin”, *Journal of Materials Science*, 48: 1812-1818 (2013b).

He, P., Jia, D. and Wang, S., “Microstructure and integrity of leucite ceramic derived from potassium-based geopolymer precursor”, *Journal of the European Ceramic Society*, 33 (4): 689-698 (2013a).

Heah, C.Y., Kamarudin, H., Mustafa Al Bakri, A.M., Binhussain, M., Lugman, M., Nizar, I.K., Ruzaidi, C.M., and Liew, Y.M., “Effect of Curing Profile on Kaolin-Based Geopolymers”, *International Conference on Physics Science and Technology*, (22): 305-311 (2011).

Heah, C.Y., Kamarudin, H., Mustafa Al Bakri, A.M., Binhussain, M., Lugman, M., Nizar, I.K., Ruzaidi, C.M., and Liew, Y.M., “Study on Solids-to-Liquid and Alkaline Activator Ratios on Kaolin-Based Geopolymers”, *Construction and Building Materials*, (35): 912-922 (2012).

Heah, C.Y., Kamarudin, H., Mustafa Al Bakri, A.M., Binhussain, M., Lugman, M., Nizar, I.K., Ruzaidi, C.M., and Liew, Y.M., “Kaolin-Based Geopolymers with Various NaOH Concentrations”, *International Journal of Minerals, Metallurgy and Materials*, 20 (3): 313-322 (2013).

Hounsfi, D., Lecomte-Nana, L., Djétéli, G., and Blanchart, P., “Kaolin-Based Geopolymers: Effect of Mechanical Activation and Curing Process”, *Construction and Building Materials*, 42: 105-113 (2013).

Hsieh Y-C., Lee W-H. and Liao P-H., “Using Geopolymer Technology on Synthesizing Leucite Ceramics”, *Polymers*, 13 (21): 3621 (2021).

Jaya, N.A., Mustafa Al Bakri, A.M., Ghazali, C.M.R., Binhussain, M., Hussin, K., and Ahmad, R., “Characterization and Microstructure of Kaolin-Based Ceramic Using Geopolymerization”, *Key Engineering Materials*, (700): 3-11 (2016).

Kamarudin, H., Heah, C.Y., Mustafa Al Bakri, A.M., Binhussain, M., Ruzaidi, C.M., Lugman, M., Heah, C.Y., and Liew, Y.M., “Preliminary Study on Effect of NaOH Concentration on Early Age Compressive Strength of Kaolin-Based Green Cement”, *International Conference on Chemistry and Chemical Process*, Singapore, 18-24 (2011).

Kriven, W. M., and Bell, J. L., “Effect of alkali choice on geopolymer properties”, *Ceramic Engineering and Science Proceedings*, 25 (4): 99-104 (2004).

Kriven, W. M., Jonathon, L. B. and Gordon, M., "Microstructure and microchemistry of fully-reacted geopolymers and geopolymer matrix composites", *Ceramic Transactions*, 153 (1994): 227-250 (2003).

Krivenko, P., Kovalchuk, O., Pasko, A., Croymans, T., Hutt, M., Lutter, G., Vandevenne, N., Schreurs, S. and Schroyers, W., “Development of alkali activated cements and concrete mixture design with high volumes of red mud”, *Construction and Building Materials*, 151: 819-826 (2017).

Krivenko, P.V. and Kovalchuk, G.Y., “Directed synthesis of alkaline aluminosilicate minerals in a geocement matrix”, *Journal of Materials Science*, 42: 2944-2952 (2007).

Kuenzel, C., Grover, L. M., Vandeperre, L., Boccaccini, A. R. and Cheeseman, C. R., “Production of nepheline/quartz ceramics from geopolymer mortars”, *Journal of The European Ceramic Society*, 33: 251-258 (2013).

Lahoti, M., Wong, K. K., Yang, E. H. and Tan, K. H., “Effects of Si/Al molar ratio on strength endurance and volume stability of metakaolin geopolymers subject to elevated temperature”, *Ceramics International*, 44 (5): 5726-5734 (2018).

Lee, W.H., Hsieh, Y.C., Wang, H.W., Ding, Y.C. and Cheng, T.W., “Fabrication of Low-Temperature Sintering Building Bricks Using Drilling Cutting and Geopolymeric Technology”, *Materials*, 14 (20): 5940 (2021).

Lee, W.K.W. and van Deventer, J.S.J., “Structural reorganisation of class F fly ash in alkaline silicate solutions”, *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 211 (1): 49-66 (2002).

Liew, Y.M., Kamarudin, H., Mustafa Al Bakri, A.M., Luqman, M., Khairul Nizar I., Ruzaidi, C.M. and Heah, C.Y., "Processing and characterization of calcined kaolin cement powder", *Construction and Building Materials*, 30: 794-802 (2012).

Lin, T.S., Jia, D.C., He, P.G. and Wang, M.R., "Thermo-mechanical and Microstructural Characterization of Geopolymers with α -Al₂O₃ Particle Filler", *Int J Thermophys* 30, 1568-1577 (2009).

Liu, W., Wang, X., Liu, W., Wei, D., Wang, B. and Shen, Y., "Synergistic Adsorption of N-dodecyl Ethylenediamine Along with Polyethylene Glycol (PEG) on Quartz", *International Journal of Electrochemical Science*, 10 (11): 9310-9323 (2015).

Naghsh, M. and Shams, K. "Synthesis of a kaolin-based geopolymer using a novel fusion method and its application in effective water softening", *Applied Clay Science*, 146: 238-245 (2017).

Marsh, A., Heath, A., Patureau, P., Evernden, M. and Walker, P., "A mild conditions synthesis route to produce hydrosodalite from kaolinite, compatible with extrusion processing", *Microporous and Mesoporous Materials*, 264: 125-132 (2018).

Michel, D, "Method For Manufacturing Decorated, Enamelled Ceramic By Monofiring, With Geopolymer Silico-Aluminates", *WO Patent*, 8303093A1 (1983).

Moser, R.D., Allison, P.G., Williams, B.A., Weiss, C.A., Diaz, A.J., Gore, E.R. and Malone, P.G., "Improvement in the geopolymer-to-steel bond using a reactive vitreous enamel coating", *Construction and Building Materials*, 49: 62-69 (2013).

Nasir, M., Johari, M.A.M., Maslehuddin, M., Yusuf, M.O. and Al-Harthi, M.A., "Influence of heat curing period and temperature on the strength of silico-manganese fume-blast furnace slag-based alkali-activated mortar", *Construction and Building Materials*, 251: 118961 (2020).

Novais, R. M., Ascensao, G., Ferreira, N., Seabra, M. P. and Labrincha, J. A., "Influence of water and aluminium powder content on the properties of waste-containing geopolymer foams", *Ceramics International*, 44 (6): 6242-6249 (2018).

Okoye, N., Durgaprasad, J., and Singh, B., "Fly Ash/Kaolin Based Geopolymer Green Concretes and Their Mechanical Properties", *Data in Brief*, 5: 739-744 (2015).

Palomo, A. and Glasser, "F.P. Chemically-Bonded Cementitious Material Based on Metakaolin", *British Ceramic Transactions*, 91: 107-112 (1992).

Palomo, A. and J.I. López dela Fuente, "Alkali-activated cementitious materials: Alternative matrices for the immobilisation of hazardous wastes: Part I. Stabilisation of boron", *Cement and Concrete Research*, 33 (2): 281-288 (2003).

Pan, Z., Tao, Z., Cao, Y. F., Wuhner, R. and Murphy, T., "Compressive strength and microstructure of alkali-activated fly ash/slag binders at high temperature", *Cement & Concrete Composites*, 86: 9-18 (2018).

Panagiotopoulou, Ch., Kontori, E., Perraki, Th., and Kakali, G., "Dissolution of Aluminosilicate Minerals and By-Products in Alkaline Media", *Journal of Materials Science*, 42(9): 2967-2973 (2007).

Rahier, H., Van Mele, B., Biesemans, M. and et al., "Low-temperature synthesized aluminosilicate glasses", *Journal Of Materials Science*, 31: 71-79 (1996).

Ramasamy, S., Hussin, K., Abdullah, B., Ghazali, R., Binhussain, M., and Sandu, V., "Interrelationship of Kaolin, Alkaline Liquid Ratio and Strength of Kaolin Geopolymer", *IOP Conference Series: Materials Science and Engineering*, 133 (012004): 1-8 (2016).

Ramli, M.I.I., Salleh, M.A.A.M., Abdullah, M.M.A.B., Aziz, I.H., Ying, T.C., Shahedan, N.F., Kockelmann, W., Fedrigo, A., Sandu, A.V., Vizureanu, P. and et al., "The Influence of Sintering Temperature on the Pore Structure of an Alkali-Activated Kaolin-Based Geopolymer Ceramic", *Materials*, 15 (7): 2667 (2022).

Ren, T. Y., Yuan, Z. Y., and Su, B. L., "Microwave-assisted preparation of hierarchical mesoporous-macroporous boehmite AlOOH and $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ ", *Langmuir*, 20 (4): 1531-1534 (2004).

Sazali, N., Harun, Z., Azhar, H.F., Bahri, S.S., Ahmad, R.P., Hussin@Isa, R. and Misdan, N., "The effect of various molarity sodium hydroxide (NaOH) on the hydrosodalite formation from synthesis of Johor Kaolin, Malaysia by hydrothermal method", *Materials Today: Proceedings*, 46 (5): 2045-2051 (2021).

Siemer, D.D., "Hydroceramics, a "new" cementitious waste form material for U.S. defense-type reprocessing waste", *Mat Res Innovat*, 6: 96-104 (2002).

Silva, P. D., Sagoe-Crenstil, K. and Sirivivatnanon, V., "Kinetics of geopolymerization: Role of Al_2O_3 and SiO_2 ", *Cement and Concrete Research*, 37 (4): 512-518 (2007).

Stevenson, M., and K. Sagoe-Crentsil., "Relationship between composition, structure and strength of inorganic polymers: part 1—metakaolin-derived inorganic polymers." *Journal of Materials Science*, 40 (8): 2023-2036 (2005).

Tiffo, E., Mbah, B., Belibi, B., Djobo, Y., and Elimbi, A., "Physical and Mechanical Properties of Unheated and Heated Kaolin Based-Geopolymers With Partial Replacement of Aluminium Hydroxide", *Materials Chemistry and Physics*, 239 (122103): 1-10 (2020).

Tironi, A., Trezza, M.A., Irassar, E.F. and Scian, A.N., "Thermal Treatment of Kaolin: Effect on the Pozzolanic Activity", *Procedia Materials Science*, 1: 343-350 (2012).

Wu, Y., Lu, B., Bai, T., Wang, H., Du, F., Zhang, Y., Cai, L., Jiang, C. and Wang, W., "Geopolymer, green alkali activated cementitious material: Synthesis, applications and challenges", *Construction and Building Materials*, 224: 930-949 (2019).

Wu, Y., Lu, B., Bai, T., Wang, H., Du, F., Zhang, Y. and et al., “Geopolymer, green alkali activated cementitious material: Synthesis, applications and challenges”, *Construction and Building Materials*, 224: 930-949 (2019).

Xu, H., and Van Deventer, J.S.J., “The geopolymerisation of alumino-silicate minerals”, *International Journal of Mineral Processing*, 59 (3): 247-266 (2000).

Xu, H. and Van Deventer, J.S.J., “Microstructural characterisation of geopolymers synthesised from kaolinite/stilbite mixtures using XRD, MAS-NMR, SEM/EDX, TEM/EDX, and HREM”, *Cement and Concrete Research*, 32 (11): 1705-1716 (2002).

Yaşın, S. and Ahlatcı, H. “Thermal investigation of fine alumina powder reinforced Na-metakaolin-based geopolymer binder for refractory applications”, *J Aust Ceram Soc.*, 55, 587–593 (2019).

Yip, C. K., and J. S. J. Van Deventer, "Microanalysis of calcium silicate hydrate gel formed within a geopolymeric binder", *Journal of Materials Science*, 38: 3851-3860 (2003).

Yue, C., Liu, J., Zhang, H., Dai, L., Wei, B. and Chang Q., “Increasing the hydrophobicity of filter medium particles for oily water treatment using coupling agents”, *Heliyon*, 4 (9): e00809 (2018).

Zhang, B., Mackenzie, K.J.D., and Brown, I.W.M., “Crystalline Phase Formation in Metakaolinite Geopolymers Activated with NaOH and Sodium Silicate”, *Journal of Material Science*, (44): 4668-4676 (2009).

Zhang, D., Wang, D., Lin, X. and Zhang, T., “The study of the structure rebuilding and yield stress of 3D printing geopolymer pastes”, *Construction and Building Materials*, 184: 575-580 (2018).

Zhang, Z., Wang, K., Mo, B., Li, X. and Cui, X., “Preparation and characterization of a reflective and heat insulative coating based on geopolymers”, *Energy and Buildings*, 87: 220-225 (2015).

Zu, G., Shen, J., Wei, X., Ni, X., Zhang, Z., Wang, J., and Liu, G., “Preparation and characterization of monolithic alumina aerogels”, *Journal of non-crystalline solids*, 357 (15): 2903-2906 (2011).

ÖZGEÇMİŞ

Miraç ASAR, lise eğitimini Karabük Fevzi Çakmak Anadolu Lisesi'nde tamamladı. 2014 yılında Karabük Üniversitesi Mühendislik Fakültesi Metalurji ve Malzeme Mühendisliği Bölümü'nde eğitimine başladı ve 2019 yılında onur belgesi ile mezun oldu. 2022 yılında Karabük Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Metalurji ve Malzeme Mühendisliği Anabilim Dalı'nda Yüksek Lisans Öğrenimine başladı.

