



T.C.

**ÇANAKKALE ONSEKİZ MART ÜNİVERSİTESİ
LİSANSÜSTÜ EĞİTİM ENSTİTÜSÜ**

MALZEME BİLİMİ VE MÜHENDİSLİĞİ ANABİLİM DALI

**PERİKLAS VE ZEOLİT KATKILI KUVARS ESASLI SERAMİK
MEMBRANLARIN MEKANİK VE MİKROYAPISAL
DAVRANIŞLARI**

YÜKSEK LİSANS TEZİ

TUĞÇE GÜÇ

Tez Danışmanı

DR. ÖĞR. ÜYESİ SERKAN ABALI

ÇANAKKALE – 2025



T.C.

ÇANAKKALE ONSEKİZ MART ÜNİVERSİTESİ
LİSANSÜSTÜ EĞİTİM ENSTİTÜSÜ

MALZEME BİLİMİ VE MÜHENDİSLİĞİ ANABİLİM DALI

**PERİKLAS VE ZEOLİT KATKILI KUVERS ESASLI SERAMİK
MEMBRANLARIN MEKANİK VE MİKROYAPISAL DAVRANIŞLARI**

YÜKSEK LİSANS TEZİ

TUĞÇE GÜÇ

Tez Danışmanı

DR. ÖĞR. ÜYESİ SERKAN ABALI

Bu çalışma, ÇOMÜ Bilimsel Araştırma Projeleri Komisyonu Başkanlığı tarafından
desteklenmiştir.

Proje No: FYL-2024-4754

ÇANAKKALE – 2025



T.C.
ÇANAKKALE ONSEKİZ MART ÜNİVERSİTESİ
LİSANSÜSTÜ EĞİTİM ENSTİTÜSÜ



Tuççe GÜÇ tarafından Dr. Öğr. Üyesi Serkan ABALI yönetiminde hazırlanan ve **10/03/2025** tarihinde aşağıdaki jüri karşısında sunulan “**Periklas ve Zeolit Katkılı Kuvars Esaslı Seramik Membranların Mekanik ve Mikroyapısal Davranışları**” başlıklı çalışma, Çanakkale Onsekiz Mart Üniversitesi Lisansüstü Eğitim Enstitüsü **Malzeme Bilimi ve Mühendisliği Anabilim Dalı**’nda **YÜKSEK LİSANS TEZİ** olarak oy birliği ile kabul edilmiştir.

Jüri Üyeleri

İmza

Dr. Öğr. Üyesi Serkan ABALI
(Danışman)

Doç. Dr. Gökhan ÖZER

Dr. Öğr. Üyesi Elif KABAKCI

.....

.....

.....

Tez No : 10721626

Tez Savunma Tarihi : 26/05/2025

Prof. Dr. Melis ULU DOĞRU
Enstitü Müdürü

.../.../2025

ETİK BEYAN

Çanakkale Onsekiz Mart Üniversitesi Lisansüstü Eğitim Enstitüsü Tez Yazım Kuralları'na uygun olarak hazırladığım bu tez çalışmada; tez içinde sunduğum verileri, bilgileri ve dokümanları akademik ve etik kurallar çerçevesinde elde ettiğimi, tüm bilgi, belge, değerlendirme ve sonuçları bilimsel etik ve ahlak kurallarına uygun olarak sunduğumu, tez çalışmada yararlandığım eserlerin tümüne uygun atıfta bulunarak kaynak gösterdiğimi, kullanılan verilerde herhangi bir değişiklik yapmadığımı, bu tezde sunduğum çalışmanın özgün olduğunu, bildirir, aksi bir durumda aleyhime doğabilecek tüm hak kayıplarını kabullendiğimi taahhüt ve beyan ederim.

Tuğçe GÜÇ

26/05/2025

TEŞEKKÜR

Bu tezin gerçekleştirilmesinde, çalışmam boyunca benden bir an olsun yardımlarını esirgemeyen saygı değer danışman hocam Dr. Öğr. Üyesi Serkan ABALI'ya, Kaleseramik Ar-Ge'deki deneylerin yapılmasında yardımcı olan Tekniker Uğur Kurt'a ve hayatımın her evresinde bana destek olan değerli aileme sonsuz teşekkürlerimi sunarım. Bu çalışmanın yapılmasında FYL-2024-4754 proje numarası ile destek olan ÇOMÜ, Bilimsel Araştırma Projeleri Komisyonu Başkanlığı'na teşekkür ederim.

Tuğçe GÜÇ

Çanakkale, Mayıs 2025

ÖZET

PERİKLAS VE ZEOLİT KATKILI KUVAR S ESASLI SERAMİK MAMBRANLARIN MEKANİK VE MİKROYAPISAL DAVRANIŞLARI

Tuğçe GÜÇ

Çanakkale Onsekiz Mart Üniversitesi

Lisansüstü Eğitim Enstitüsü

Malzeme Bilimi ve Mühendisliği Anabilim Dalı Yüksek Lisans Tezi

Danışman: Dr. Öğr. Üyesi Serkan ABALI

26/05/2025, 45

Günümüzde membran üretiminde ekonomik olan geleneksel seramik hammaddeler üzerine olan çalışmalar yoğunlaşmıştır. Bu çalışma ile farklı tane boyutlarındaki kuvars hammaddesine zeolit ve periklas ilavesi ile kuvarsın kristobalite dönüşümü üzerindeki mikroyapısal etkileri, kristobalit elde edilirken aynı zamanda malzeme gözenek miktarı ve dağılımında ne tür değişiklikler meydana geldiği araştırılmıştır. Bu amaçla kuvars (ağırlıkça % 60)-zeolit (ağırlıkça % 20)-periklas (ağırlıkça % 20) karışım tozlarından elde edilen yapılar ayrı ayrı bilyalı değirmende 6 saat yaş olarak öğütüldükten sonra kurutulup daha sonra -125+75, -75+45, -45+20 ve -20 µm tane boyutlarına ayrılmış her bir seramik tozu 100 MPa basınç ile şekillendirildikten sonra 1100, 1150 ve 1200°C' sıcaklıklarda sinterlenerek mineralojik analizleri, mikroyapısal gelişimleri, gözenek boyut dağılımları, özgül yüzey alanı ve mekanik davranışları araştırılmıştır. Gözenekli seramiklerde tane boyutunun ve sinterleme sıcaklığının kompozisyondan bağımsız olarak kristobalit fazının oluşumuna etkisi ve gözenek karakterizasyonu incelenmiştir.

Anahtar Kelimeler: Kuvars, Zeolit, Periklas, Seramik Membran, Tane Boyutu, Sinterleme

ABSTRACT

MECHANICAL AND MICROSTRUCTURAL BEHAVIORS OF PERICLASE AND ZEOLITE DOPED QUARTZ BASED CERAMIC MEMBRANES

Tuğçe GÜÇ

Çanakkale Onsekiz Mart University

School of Graduate Studies

Master of Science Thesis in Materials Science and Engineering

Advisor: Asst. Prof. Dr. Serkan ABALI

26/05/2025, 45

Currently, studies on traditional ceramic raw materials that are economical for membrane production have been concentrated. In this study, the microstructural effects on the transformation of quartz to cristobalite by adding zeolite and periclase to quartz raw materials of different grain sizes, and the changes that occur in the amount and distribution of material pores while obtaining cristobalite were investigated. For this purpose, the structures obtained from quartz (60% by weight)-zeolite (20% by weight)-periclase (20% by weight) mixture powders were individually wet-milled in a ball mill for 6 h, dried, and then cut into grain sizes of -125+75, -75+45, -45+20 and -20 μm . After each separated ceramic powder was shaped at 100 MPa pressure, it was sintered at temperatures of 1100, 1150, and 1200 °C, and its mineralogical analysis, microstructural development, pore size distribution, specific surface area, and mechanical behavior were investigated. The effect of grain size and sintering temperature on the formation of the cristobalite phase in porous ceramics, independent of composition and pore characterization, was examined.

Keywords: Quartz, Zeolite, Periclase, Ceramic Membrane, Grain Size, Sintering

İÇİNDEKİLER

Sayfa No

JÜRİ ONAY SAYFASI.....	i
ETİK BEYAN.....	ii
TEŞEKKÜR.....	iii
ÖZET	iv
ABSTRACT	v
İÇİNDEKİLER	vi
SİMGELER ve KISALTMALAR.....	viii
TABLolar DİZİNİ.....	ix
ŞEKİLLER DİZİNİ.....	x

BİRİNCİ BÖLÜM

GİRİŞ

1.1. Seramik Membranların Üretim Yöntemleri	2
1.1.1. Seramik Membranların Presleme Yöntemi ile Şekillendirilmesi	2
1.1.2 Seramik Membranlarda Isıl İşlem	3
Sinterleme Sıcaklığı	4
1.2. Kullanılan Hammaddelerin Özellikleri	4
1.2.1. Kuvars Hammaddesi	4
1.2.2. Zeolit Hammaddesi	5
1.2.3. Periklas Hammaddesi	5
1.3. Seramik Membranların Uygulama Alanları	6

İKİNCİ BÖLÜM

KURAMSAL ÇERÇEVE/ÖNCEKİ ÇALIŞMALAR

2.1. Düşük Maliyetli Seramik Membranlar	8
---	---

ÜÇÜNCÜ BÖLÜM

ARAŞTIRMA YÖNTEMİ/MATERYAL YÖNTEM

13

3.1. Hammadde Hazırlama	13
3.2 Numune Karakterizasyonu	19
DÖRDÜNCÜ BÖLÜM	
ARAŞTIRMA BULGULARI	
4.1. Tane Boyut Dağılımı	21
4.2. Mineralojik ve Kantitatif Analizler	22
4.3. Mikroyapısal Görüntüleme ve Kimyasal Analiz	25
4.4. BET Adsorbsiyon İzoterm Grafikleri	29
4.5. BET-BJH Gözenek Boyut Dağılımı	31
4.6. Mekaniksel Davranış	34
BEŞİNCİ BÖLÜM	
SONUÇ ve ÖNERİLER	
KAYNAKÇA	37
ÖZGEÇMİŞ	I

SİMGELER VE KISALTMALAR

%	Yüzde oranı
μm	Mikronmetre
$^{\circ}\text{C}$	Santigrad derece
MPa	Mega paskal
XRD	X-Işını Kırınımı
mm	Milimetre
nm	Nanometre
Å	Angstrom
L	Litre
sa	Saat
m	metre
EDX	Enerji Dağıtıcı X-Işını
BET	Brunauer–Emmett–Teller
BJH	Barrett–Joyner–Halenda
SEM	Taramalı Elektron Mikroskobu
P/P_0	Relatif basınç
JCPDS	Uluslararası Difraksiyon Verileri Merkezi
IUPAC	Uluslararası Temel ve Uygulamalı Kimya Birliği
N	Newton
mm^2	Milimetre kare
gr	Gram
cm^3	Santimetre küp

TABLÖLAR DİZİNİ

Tablo No	Tablo Adı	Sayfa No
Tablo 1	Presleme ile şekillendirilen kil ve/veya kaolen esaslı membranların özellikleri	9
Tablo 2	Periklas hammaddesinin kimyasal analizi	13
Tablo 3	Farklı sıcaklıklarda sinterlenen ve farklı tane boyutundaki numunnelerin kantitatif analizleri	25



ŞEKİLLER DİZİNİ

Şekil No	Şekil Adı	Sayfa No
Şekil 1	Seramik membranların endüstriyel uygulamaları	7
Şekil 2	Tartım işlemlerinin tamalandığı hassas terazi	14
Şekil 3	Hammaddelerin uniform dağılımı için karıştırma	14
Şekil 4	Dört farklı tane açıklı çamurun elde edildiği sınıflandırma	15
Şekil 5	Tane boyut dağılımı analizlerinin yapıldığı cihaz	16
Şekil 6	Farklı tane açıklıklarına sahip etüvde kurutulan numuneler	16
Şekil 7	Kurutulan tozların öğütme süreci	17
Şekil 8	Şekillendirme süreci	17
Şekil 9	Pres çıkışı farklı elek açıklıklarından geçirilmiş çamurdan üretilen numuneler	18
Şekil 10	Sinterleme işlemlerinin gerçekleştirildiği fırın	18
Şekil 11	Eğilme mukavemeti testlerinin yapıldığı cihaz	19
Şekil 12	Mukavemet testinden çıkan 12 adet numune	19
Şekil 13	Farklı elek açıklıklarından elenmiş numunelerin tane boyut dağılımları	21
Şekil 14	1100 °C'de sinterlenen farklı elek açıklıklarındaki numunelerin XRD analizleri	22
Şekil 15	1150 °C'de sinterlenen farklı elek açıklıklarındaki numunelerin XRD analizleri	23
Şekil 16	1200 °C'de sinterlenen farklı elek açıklıklarındaki numunelerin XRD analizleri	23
Şekil 17	1100 °C'de sinterlenen numunelerin SEM görüntüleri a) -20 µm, b) -45+20 µm, c)-75+45 µm, d) -125+75 µm elek açıklıklı çamurdan hazırlanan numuneler	25
Şekil 18	1150 °C'de sinterlenen numunelerin SEM görüntüleri a) -20 µm, b) -45+20 µm, c)-75+45 µm, d) -125+75 µm elek açıklıklı çamurdan hazırlanan numuneler	26

Şekil 19	1200 °C'de sinterlenen numunelerin SEM görüntüleri a) -20 µm, b) -45+20 µm, c)-75+45 µm, d) -125+75 µm elek açıklıklı çamurdan hazırlanan numuneler	26
Şekil 20	1100 °C'de sinterlenen numunelerin EDX grafikleri a) -20 µm, b) -45+20 µm, c)-75+45 µm, d) -125+75 µm elek açıklıklı çamurdan hazırlanan numuneler	28
Şekil 21	1150 °C'de sinterlenen numunelerin EDX grafikleri a) -20 µm, b) -45+20 µm, c)-75+45 µm, d) -125+75 µm elek açıklıklı çamurdan hazırlanan numuneler	28
Şekil 22	1200 °C'de sinterlenen numunelerin EDX grafikleri a) -20 µm, b) -45+20 µm, c)-75+45 µm, d) -125+75 µm elek açıklıklı çamurdan hazırlanan numuneler	29
Şekil 23	1100 °C'de sinterlenen farklı elek açıklıklarındaki numunelerin adsorpsiyon izoterm eğrileri	29
Şekil 24	1150 °C'de sinterlenen farklı elek açıklıklarındaki numunelerin adsorpsiyon izoterm eğrileri	30
Şekil 25	1200 °C'de sinterlenen farklı elek açıklıklarındaki numunelerin adsorpsiyon izoterm eğrileri	30
Şekil 26	1100 °C'de sinterlenen farklı elek açıklıklarındaki numunelerin gözenek boyut dağılımları	32
Şekil 27	1150 °C'de sinterlenen farklı elek açıklıklarındaki numunelerin gözenek boyut dağılımları	32
Şekil 28	1200 °C'de sinterlenen farklı elek açıklıklarındaki numunelerin gözenek boyut dağılımları	33
Şekil 29	1100, 1150 ve 1200 °C 'de sinterlenen farklı elek açıklıklarındaki numunelerin eğilme mukavemetleri	34

BİRİNCİ BÖLÜM

GİRİŞ

Membran teknolojileri, içme suyu ve atık sudan kirleticilerin giderilmesine kadar geniş uygulamalara sahiptir. Son yıllarda seramik membranlar, geleneksel polimerik membranlara göre avantajlı özellikleri nedeniyle atık su arıtımında ve içme suyu arıtımında hızlı bir ilerleme kaydetmiştir. Seramik membranların yararlı özellikleri arasında kirlenme direnci, yüksek geçirgenlik, iyi geri kazanılabilirlik, kimyasal kararlılık ve uzun ömür bulunur ve bunlar hem üretim yöntemlerindeki hem de nanoteknolojideki son yeniliklerle uygulama bulmuştur. Bu nedenle, seramik membranlar su arıtımında potansiyel uygulamalar için büyük bir avantaj taşımaktadır (Li vd., 2020).

Son yüzyıldaki hızlı sanayileşme ve nüfus patlaması, artan su kıtlığı ve daha düşük su kalitesiyle doğal çevre üzerinde muazzam bir baskı oluşturdu. Son yıllarda, basınçla çalışan membran teknolojileri su arıtımı, deniz suyu ve atık su geri kazanımı için en umut verici yaklaşımlar haline geldi. Membran teknolojileri, geleneksel su arıtma teknolojilerine kıyasla daha düşük termal girdi, daha küçük karbon ayak izi, daha düşük kimyasal çamur atığı ve daha yüksek giderim verimliliği avantajlarına sahiptir (Li vd., 2020).

Seramik membranlar için temel araştırmalara ve endüstriyel uygulamalara olan ilginin artmasına rağmen, mevcut seramik membranların daha geniş ve daha büyük ölçekli uygulamaları, polimerik membranlara kıyasla yüksek sermaye maliyeti ve benzer verimlilik nedeniyle büyük ölçüde sınırlıdır. Seramik membran uygulamaları için bu iki teknik zorluk göz önüne alındığında, düşük maliyetli membranların geliştirilmesi, yeni işleme/üretim teknikleri ve çeşitli umut verici performans artırıcı bağlantı teknikleri gibi maliyeti düşürme ve verimliliği artırmaya yönelik çeşitli stratejiler akademik topluluklar içinde giderek daha fazla odak noktası haline gelmektedir (Dong vd., 2022).

Seramik membranların üretiminde en sık kullanılan malzemeler arasında alümina (Al_2O_3), zirkonya (ZrO_2), titanya (TiO_2), silisyum karbür (SiC), cam (SiO_2) veya bu metal oksitlerin bir kombinasyonu ve nonoksitler (karbürler, nitrürler, borürler ve silisitler) ve

oksitler ile nonoksitlerin kombinasyonlarının kompozitleri ve diğer kil mineralleri (örneğin kaolin, mullit, dolomit, vb.) gibi diğer uygun malzemeler yer almaktadır. Aslında, maliyet fayda açısından zorluk, membran filtrasyon performansının optimizasyonu olmaya devam etmektedir. Bu nedenle, gözenekli seramik membranlar, polimerik membranlara kıyasla çok sayıda iyi bilinen avantajları nedeniyle birçok endüstriyel süreçte yaygın olarak kullanılmıştır (Issaoui ve Limousy, 2019 ; Benito vd., 2005 ; Fung ve Wang, 2013 ; Das and Maiti, 1998). Bu nedenle, ticari olarak üretilen birçok seramik membran, kordierit (Issaoui ve Limousy, 2019 ; Benito vd., 2005 , Dong vd., 2007) titanyum dioksit, zirkonyum (Issaoui ve Limousy, 2019 ; Wang vd., 2006 ; Bouzerara vd., 2012) ve silisyum karbür (Issaoui ve Limousy, 2019 ; Zhou vd., 2011) gibi pahalı bileşiklerden yapılmıştır. Son zamanlarda, membranların maliyetini düşürmek için araştırmacılar, doğal kil (Issaoui ve Limousy, 2019 ; Belibi vd., 2015), apatit tozu (Issaoui ve Limousy, 2019 ; Sahoo vd., 2016), dolomit, kaolin, boksit (Issaoui ve Limousy, 2019 ; Bouzerara vd., 2006 ; Boudaira vd., 2009 ; Bose ve Das, 2013 ; Issaoui ve Limousy, 2015 ; Zhiwen vd., 2016) ve mineral kömür uçucu külü (Issaoui ve Limousy, 2019 ; Zhaoling vd., 2016 ; Jedidi vd., 2009) gibi ucuz hammaddeler kullanarak seramik membranların üretimine odaklanmışlardır.

1.1. Seramik Membranların Üretim Yöntemleri

Seramik membranların üretimi dört önemli adımı içerir. Bunlar; uygun hammaddelerin seçimi, homojen bir karışım elde etmek ve hamur hazırlama durumunda yoğurmak için hammaddelerin kırma, eleme, karıştırma vb. gibi mekanik yollarla işlenmesi, istenilen geometriye sahip yaş membran elde etmek için membranın uygun üretim yöntemiyle şekillendirilmesi ve son olarak yüksek derecede kararlı bir seramik membran elde etmek için yaş membranın termal işlemi (Rani ve Kumar, 2021).

1.1.1. Seramik Membranların Presleme Yöntemi ile Şekillendirilmesi

Presleme yöntemi, temel düzeyde düz seramik membranların imalatında yaygın olarak kullanılır. Toz presleme yöntemi, eksenel ve izostatik presleme yöntemleri olarak sınıflandırılabilir. Eksenel presleme (tek eksenli/çift eksenli) yine kuru ve ıslak presleme

olarak kategorize edilebilir. Islak presleme, sıvı ekleme açısından kuru preslemeden farklıdır ve yeşil kompaktın daha kolay işlenmesini sağlar. İzostatik presleme yönteminde, daha düzgün ve mükemmel şekilli bir kompakt elde etmek için çok yönlü basınç uygulanır. Ancak, tek eksenli presleme yöntemi maliyet açısından etkilidir ve yüksek hacimli üretim için tercih edilir (Rani ve Kumar, 2021 ; Monash vd., 2013). Bu yöntemde, hammaddeler homojen bir karışım elde etmek için uygun şekilde katkı maddeleri (bağlayıcılar, gözenek oluşturuıcı maddeler, vb.) ile karıştırılır. Daha sonra, elde edilen karışım, istenen şekle sahip düz bir membran elde etmek için bir presleme makinesinin yardımıyla tek eksenli olarak bir kalıba preslenir. Sonuç olarak, yaş membranın mukavemeti artar ve uygulanan tek eksenli basınçla son membranın gözenek boyutu azalır. Son olarak, membranlar kurutulur ve mekanik olarak kararlı ve çatlak içermeyen bir membran elde etmek için uygun sıcaklıklarda sinterlenir (Rani ve Kumar, 2021).

1.1.2. Seramik Membranlarda Isıl İşlem

Seramik membran hazırlamada, şekillendirmenin yanındaki kritik adımlardan biri termal işlemdir. Sinterleme işlemi sırasında membran gözenekli bir yapı ve mekanik mukavemet kazanır. Sıcaklık-zaman çizelgesi, membranın gözenek hacmini, gözenek boyutunu, yapısını ve mekanik mukavemetini büyük ölçüde etkiler. Isıtma ve soğutma hızı önemli bir rol oynar ve termal gerilimleri en aza indirmek için genellikle 5 °C/dakikanın altında tutulur. Sinterleme işlemi genellikle hammaddenin erime noktasının altındaki bir sıcaklıkta gerçekleştirilir. Sinterlemeden önce membran, oda sıcaklığında 24 saat boyunca havada kurutulur. Daha sonra, katkı maddelerini seçici olarak ortadan kaldırmak için belirli döngülerde hava varlığında sinterleme gerçekleştirilir (Rani ve Kumar, 2021). Örneğin, membranı 110–120 °C'de 12 saat kurutmak, membrandan suyu uzaklaştırır (Rani ve Kumar, 2021 ; Das vd., 2016). Kurutma sıcaklığı katkı maddelerinin termal özelliklerine dayanarak, son sinterleme sıcaklığının altındaki belirli sıcaklıklara çekilebilir (Rani ve Kumar, 2021 ; Jedidi vd., 2009 ; Belibi vd., 2015).

Sinterleme Sıcaklığı

Sinterleme sıcaklığı artırıldığında membranın gözenek boyutunun arttığını, gözenekliliğin ve membranın yüzey gözenek yoğunluğunun ise azaldığını doğrulayan literatür çalışmaları mevcuttur (Rani ve Kumar, 2021 ; Vasanth vd., 2011 ; Emani vd., 2014 ; Das vd., 2016 ; Bouzerara vd., 2009 ; Jana vd., 2010). Gözenek boyutundaki artış, daha yüksek sinterleme sıcaklıklarında taneciklerin geliştiğini ve daha küçük gözeneklerin giderildiğini gösterebilir. Yüksek sıcaklıklarda gözeneklilikte azalma, membranın sıkışması ve daha büyük gözenekler oluşturmak için küçük gözeneklerin bir araya gelmesinden kaynaklanır. Bazen, genişleyen gözenek boyutu nedeniyle sinterleme sıcaklığındaki artışla birlikte geçirgenlikte bir artış gözlemlenebilir (Rani ve Kumar, 2021 ; Obada vd., 2017). Kristal boyutu ayrıca sinterleme sıcaklığındaki artışla azalır ve bu da XRD analiziyle doğrulandığı gibi membranın yoğunlaşmasına neden olur (Rani ve Kumar, 2021 ; Vasanth vd., 2011). Yüksek sıcaklıklarda membranın yoğunlaşmasının bir sonucu olarak, çoğu zaman membranın mekanik mukavemeti artar (Rani ve Kumar, 2021 ; Jana vd., 2010 ; Nandi vd., 2008).

1.2. Kullanılan Hammaddelerin Özellikleri

Alümina veya zirkonya gibi malzemelere düşük maliyetli çeşitli alternatifler su filtrasyonunda kullanım için incelenmiştir. Bu düşük maliyetli malzemeler ya doğal minerallerdir (kil, zeolit, kuvars, apatit) ya da endüstriyel üretimden kaynaklanan atıklardır (Abdullayev vd., 2019).

1.2.1. Kuvars Hammaddesi

Doğal kuvars kumları, kristal silisyum dioksitin yoğunluğunun seramik membranların oluşturulması için çekici hale getirdiği, dünya çapında yaygın olarak kullanılan bir hammaddedir. Çok katmanlı seramik membranların doğal kuvars hammaddesinden üretildiği çalışmalar mevcuttur (Sun vd., 2020 ; Şan vd., 2003 ; Ivanets

vd., 2016). Moğolistan'dan kuvars hammaddelerine dayanarak, 50–100 mm gözenek boyutuna, % 26–28 açık gözenekliliğe ve yaklaşık 30 MPa basınç dayanımına sahip gözenekli boru şeklindeki seramik destekler elde edilmiştir. Mikrofiltrasyon katmanları, kırılmış kuvars katkı maddeleriyle kuvars kumunun süspansiyonu kullanılarak tübüler desteklerin dış yüzeyine uygulanmıştır.

1.2.2. Zeolit Hammaddesi

Zeolitler, düzgün, moleküler boyutta gözeneklere (genellikle 0,3–1,3 nm) ve mükemmel termal, mekanik ve kimyasal kararlılığa sahip oldukları için ideal bir membran malzemesidir. Bazı zeolitler ince, polikristalin membranlara sentezlenmiştir (Yu vd., 2011). Diğer yöntemlerle ayrılması zor olan malzemeler; örneğin organik izomerler (Yu vd., 2011 ; Baertsch vd., 1996) ve kaynama noktası yakın karışımlar (Yu vd., 2011 ; Funke vd., 1996) dahil olmak üzere çeşitli karışımlar için mükemmel ayırma performansı gösterirler. Yüksek sıcaklık ve basınç koşulları (Yu vd., 2011 ; Hong vd., 2005) ve kimyasal olarak zorlu koşullar (Kalipcilar vd., 2001) altında yapılan ayırmalar, zeolit membranların potansiyelini ve çok yönlülüğünü göstermiştir.

1.2.3. Periklas Hammaddesi

MgO bazlı filtre sadece üstün bir sürünme direncine sahip olmakla kalmaz, aynı zamanda erimiş çelikteki Al_2O_3 , MgO ve SiO_2 gibi metalik olmayan kapanımlar için daha yüksek bir filtrasyon kapasitesi de sergiler (Peng vd., 2024 ; Ren vd., 2020 ; Yu vd., 2018 ; Ma vd., 2023 ; Peng vd., 2021). Ek olarak, MgO genellikle dönüştürücüler, elektrik ark fırınları ve çelik işleme kepçeleri için bir astar malzemesi olarak kullanılır (Peng vd., 2024). Bu nedenle, MgO bazlı seramik filtreyi üretmek için hammadde olarak MgO kullanmak, filtrenin filtrasyon kapasitesini iyileştirmek için mükemmel bir stratejidir. Bununla birlikte, mevcut MgO bazlı filtrelerin hepsi hammadde olarak yoğun MgO'dan hazırlanır, bu da iskeletin pürüzsüz yüzeyini oluşturur ve MgO bazlı filtrelerin erimiş çelikteki kapanımlar üzerindeki arıtma etkisini sınırlar.

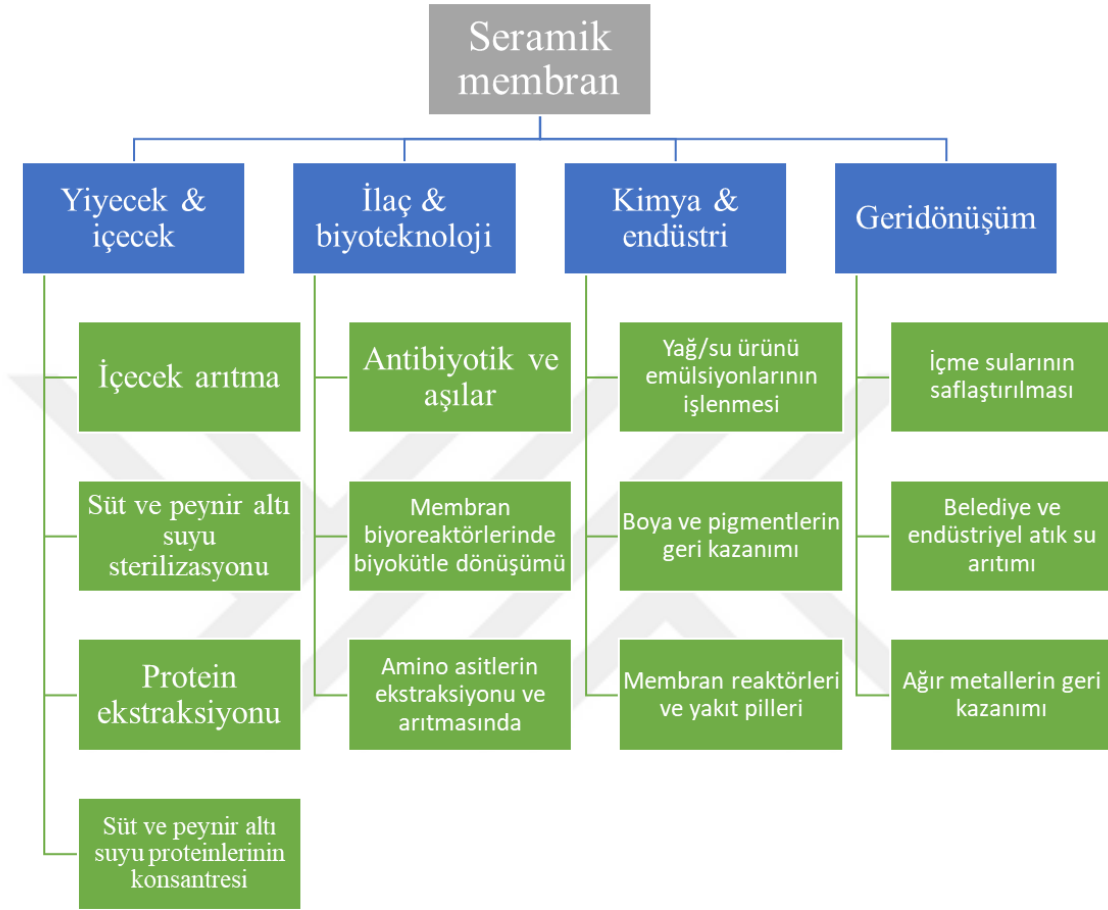
Kompozit membranların mineralojik analizlerinde periklas fazı bulunabilir (Oduro vd., 2025). Periklas, olağanüstü iyi metalürjik cüruf direnci nedeniyle yüksek refrakterli nesneler üretmek için umut vadeden bir malzemedir. Ancak, periklas yüksek bir lineer genişleme katsayısına sahiptir. Bu durum zayıf termal şok direncine ve ayrıca yüksek uçuculuğa yol açar, özellikle indirgeyici koşullar altında ve vakumda ve bu da uygulama sıcaklığını önemli ölçüde azaltır (Leonov vd., 2016 ; Kashcheev vd., 2007). Periklasın üretim teknolojisinin seçimini önemli ölçüde etkileyen bir dezavantajı da hidrasyon kapasitesiyle ilgilidir. Bu, periklasın kayma yöntemiyle gözenekli malzemeler üretmek için sınırlı kullanımını ve bu temaya ayrılan az miktardaki işi açıklar. Ancak bu alanda belirli bir başarı, ince öğütülmüş toz eklenerek iri taneli periklas fraksiyonları için yarı kuru sıkıştırma yönteminin kullanılması ve sinterlemenin etkinleştirilmesiyle sağlanmıştır. Ayrıca periklasa uygun hammadde ilaveleri MgO'nun gözenekli seramik üretimindeki başarısını artırabilir (Leonov vd., 2016).

1.3. Seramik Membranların Uygulama Alanları

Seramik membranların ana endüstriyel uygulamaları Şekil 1'de kısaca gösterilmiştir. Son zamanlarda, ortaya çıkan atıktan türetilen seramik membranlar, yağ-su ayırma (Samadi vd., 2022 ; Jamalludin vd., 2020), tekstil atık su arıtımı (Samadi vd., 2022 ; Ahmad vd., 2021), boya giderimi (Samadi vd., 2022 ; Tolba vd., 2016) ve tabaklama ve süt ürünleri atık su arıtımı (Samadi vd., 2022 ; Hatimi vd., 2020) gibi su arıtma uygulamaları için araştırılmıştır.

Seramik membranların özel avantajları arasında, solvent filtrasyonu sırasında şişmemeleri; yüksek sıcaklığa ve geri yıkama basıncına dayanma kabiliyeti; ve temizlik maddelerine/oksidanlara karşı dirençli olmaları bulunur (Asif ve Zhang, 2021 ; Samei vd., 2018). Ek olarak, polimerik membranlara kıyasla seramik membranların gelişmiş hidrolik performansı, bunların tam ölçekli uygulamalar için kullanımını çekici hale getirir (Asif ve Zhang, 2021 ; Düppenbecker vd., 2017 ; Zhang vd., 2017). Bu bağlamda, seramik membranların su ve belediye atık su arıtımı gibi hafif çalışma koşullarında uygulanması son on yılda önemli ilgi görmüştür (Asif ve Zhang, 2021 ; Tang vd., 2017 ; Liu vd., 2019 ;

Shirasaki vd., 2009). Seramik membranların avantajlarına rağmen, su ve atık su arıtma pazarı polimerik membranlar tarafından domine edilmektedir.



Şekil 1. Seramik membranların endüstriyel uygulamaları (Samadi vd., 2022)

İKİNCİ BÖLÜM

KURAMSAL ÇERÇEVE/ÖNCEKİ ÇALIŞMALAR

Geçtiğimiz yirmi yılda, membran teknolojisi araştırmalarında önemli ilerlemeler rapor edilmiştir. Mikro filtrasyon ve ultra filtrasyonun kimyasal ve biyokimyasal işlemede kritik teknolojiler olduğu ve daha yüksek akış ve daha düşük işlem maliyetine sahip membranların mevcudiyeti nedeniyle ekonomik olarak rekabetçi kabul edilen çok sayıda uygulama önerilmiştir (Nandi vd., 2008).

2.1. Düşük Maliyetli Seramik Membranlar

Dünya çapında yaygın olarak kullanılan bir hammadde olan doğal kuvars kumları, çoğunlukla kristal silisyum dioksitten oluşur ve bu da onları seramik membranların oluşturulması için çekici hale getirir. Kuvars kumu temelinde seramik membranlar elde etme konusunda geliştirilen teknoloji (Ivanets vd., 2016 ; Rat'ko vd., 2008a ; Rat'ko vd., 2008b ; Azarov vd., 2009), radyal izostatik presleme yöntemi ile gözenekli boru şeklindeki desteğin oluşturulması aşamalarını ve ardından membran katmanlarının dış yüzeyine uygulanmasını içerir.

Zeolit membranlar moleküler düzeyde iyi tanımlanmış gözenek boyutları ve yüksek adsorpsiyon özelliği sergiler ve böylece moleküler eleme etkisi ve adsorpsiyon seçiciliğine dayalı olarak sıvı ve gaz türlerini sürekli bir şekilde ayırabilir (Algieri ve Drioli, 2021 ; Xia vd., 2020).

Periklaz, istisnai derecede iyi metalurjik cüruf direnci nedeniyle yüksek derecede refrakter nesnelerin üretimi için umut vadeden bir malzemedir. Ancak periklaz, düşük termal şok direncine ve ayrıca özellikle indirgeyici koşullar altında ve vakumda yüksek uçuculuğa yol açan yüksek bir lineer termal ge sahiptir ve bu, uygulama sıcaklığını önemli ölçüde azaltır (Leonov vd., 2015 ; Kashcheev vd., 2007). Periklazın üretim teknolojisinin seçimini önemli ölçüde etkileyen bir dezavantajı da hidrasyon kapasitesiyle ilgilidir. Bu, periklazın kayma yöntemi ile gözenekli malzemelerin üretiminde sınırlı kullanımını ve bu temaya

ayrılan az miktardaki çalışmayı açıklar (Leonov vd., 2015). Ancak zeolit ile bu telafi edilebilir ve düşük sıcaklık uygulaması gerçekleştirilebilir.

Aşağıdaki tablo, literatürde kil minerallerinden veya kaolinden geliştirilen ve presleme (Tablo 1) ile oluşturulan bazı düşük maliyetli seramik alt tabakaların temel özelliklerini özetlemektedir: gözenek boyutu, gözeneklilik, su geçirgenliği ve mekanik mukavemet gibi.

Tablo 1.

Presleme ile şekillendirilen kil ve/veya kaolen esaslı membranların özellikleri (Mestre vd., 2019)

Hammadde	Porojen	Maks. sıcaklık (°C)	Por boyutu (µm)	Porozite (%)	Mekanik mukavemet (MPa)
Kaolen	Dolomite(0-15 %)	1000-1300	0.7-24	37-42	6-19
	CaCO ₃ (10-28 %)	1100-1300	5-18	50-55	--
Kaolen; Kuvars	CaCO ₃ (25 %)	900-1000	1-3	20-30	35-46
Kaolen; Alümina	Lignite (20 %)	1100-1200	0.4-1.8	18-41	13-38
Kaolen; Kuvars	CaCO ₃	900	0.7-1.7	35-40	7-11
Kil	Niştasta (5-35 %)	950	0.3-1.7	--	--
Kil; fosfatlar	Niştasta (5-35 %)	950	--	--	--
Kaolin; Clay; Feldspar; Quartz, Pirofilita	CaCO ₃ (17 %)	850-1000	~1	41-46	25-32

Birçok çalışma sadece kompozisyon tasarımı ve membran karakterizasyonuna odaklansa da, diğer birçoğu mikro yapı özellikleri ile filtrasyon performansı arasındaki ilişkiyi vurgulamıştır (Mestre vd., 2019). Bu nedenle, Rawat ve Bulasara esas olarak kaolin ve uçucu kül içeren bir seramik kompozisyonunu optimize ettiler (Mestre vd., 2019 ; Rawat ve Bulasara, 2018). Seçilen membran, gözenek boyutu (0.885 µm), gözeneklilik (% 42,7),

mekanik mukavemet (43.6 MPa) ve kimyasal kararlılığın (asitte, <%3 ağırlık kaybı ve alkalide % 0,02) iyi bir kombinasyonu ile sonuçlandı. Bu membran, humik asidin sudan ayrılmasında başarıyla uygulandı ve yüksek akış geri kazanımı da bildirildi.

Saja ve arkadaşları doğal perlit ve mısır nişastasına dayalı düşük maliyetli seramik mikrofiltrasyon membranları tasarladılar (Mestre vd., 2019 ; Saja vd., 2018). Çalışma sonucunda membranın bazı özellikleri; % 52.1 gözeneklilik, 1.7 µm ortalama gözenek boyutu, 1433 L·sa⁻¹ m⁻² bar⁻¹ su geçirgenliği ve 21.7 MPa mekanik mukavemet. Hem asidik hem de alkali ortamlarda iyi kimyasal direnç de bildirilmiştir. Bu membranla, yazarlar frontal mikrofiltrasyon modu ile tarımsal gıda ve tabaklama atık suları için sırasıyla % 97 ve % 96 bulanıklık tutma elde ettiler.

M. Issaoui ve diğerleri, kaolin, nişasta ve kum içeren toz halindeki bir karışımdan ekstrüzyon yoluyla seramik membranlar için düşük maliyetli boru şeklindeki mikro gözenekli destekler geliştirdiler (Mestre vd., 2019 ; Issaoui vd., 2017). Sonuçlar, % 87 ağırlıkça kaolin + % 10 ağırlıkça nişasta + % 3 ağırlıkça kum içeren bir macundan hazırlanan membran için boru şeklindeki desteklerin, 221 L·sa⁻¹ m⁻² bar⁻¹ geçirgenliğe sahip olarak en iyi performansı gösterdiğini doğruladı. Bu koşullarda, membranın yosun ayırma için uygun olduğu ve suyla kolayca temizlendiği bulundu.

Kaolin-kuvars-kalsiyum karbonat karışımından seramik mikrofiltrasyon membranları Vasanth ve arkadaşları tarafından geliştirildi (Mestre vd., 2019 ; Vasanth vd., 2011). 900 °C’ de sinterlenen membran (% 30 gözeneklilik, 1.3 µm ortalama gözenek boyutu ve 34 MPa eğilme mukavemeti), mikrofiltrasyon uygulamaları için optimum sonuçları verdi.

Emani ve arkadaşları, kaolin, kuvars ve kalsiyum karbonat karışımlarından mikrofiltrasyon membranlarının hazırlanmasını ele aldı (Mestre vd., 2019 ; Emani vd., 2013). Hazırlanan membranlar, % 35.4 ila % 39.4 arasında değişen gözenekliliğe, 0.9 ila 1.85 µm arasında değişen ortalama gözenek boyutuna ve 7.8 ila 11 MPa arasında değişen eğilme mukavemetine sahipti.

Peng ve arkadaşları (Peng vd., 2024) mikro gözenekli MgO kaplaması içeren magnezyum-alüminat spinel seramik filtreleri, hammadde olarak $Mg(OH)_2$ kullanılarak ürettir ve erimiş MgO içeriğinin, erimiş çelikteki Al_2O_3 kapanımları üzerindeki filtrelerin mikro yapıları, mekanik özellikleri ve filtrasyon kapasitesi üzerindeki etkisini karşılaştırmalı olarak incelendiler.

Erimiş MgO parçacık boyutu dağılımını optimize etti ve mikro gözenekli MgO kaplamasındaki sıvı fazın içeriğini artırdı. Mikro gözenekli MgO parçacıkları arasındaki kütle transferini hızlandırdı ve ardından mikro gözenekli MgO parçacıkları arasında boyun bağlantılarının oluşumunu destekledi, böylece filtrenin mekanik özellikleri ve termal şok direnci iyileştirildi.

Doğal zeolitlerden membran üretimi, istenen alüminosilikat fazlarının sağlam dökme malzemelerini elde etmek için öğütme, şekillendirme ve sinterleme adımlarını içerir. Roque-Malherbe ve arkadaşları tarafından yapılan erken bir çalışmada, membranlar için gözenekli destek katmanları üretmek için doğal zeolit kullanılmıştır (Abdullayev vd., 2019 ; Roque-Malherbe vd., 2006).

Daha sonra, öğütülmüş zeolitlerin farklı parçacık boyutları kullanılarak çok katmanlı seramik mikrofiltrasyon membranları üretilmiştir. Elde edilen membranlar 0,3 μm (Abdullayev vd., 2019 ; Hristov vd., 2012) ile 1,1 μm (Abdullayev vd., 2019 ; Dong vd., 2006) arasında gözenek boyutları göstermiştir.

Gözenek oluşturuucu madde olarak nişasta kullanılarak 6 μm kadar büyük gözenekler oluşturulabilir (Abdullayev vd., 2019 ; Zhang vd., 2008). Zeolitlerin sinterleme sıcaklıkları, gözenek oluşturuucu maddeler kullanılmadığı takdirde 1000 °C'de pişirildikten sonra 800–900 °C aralığında nispeten düşüktür ve zeolit yapısında doğal olarak bulunan gözenekler, gözenekliliği ortadan kaldıran sıvı fazlarla doldurulabilir (Abdullayev vd., 2019 ; Hristov vd., 2012). Zeolit bazlı membranların mekanik mukavemeti bugüne kadar kapsamlı bir şekilde incelenmemiştir. Adam ve diğerleri, içi boş elyaf zeolit membranların üç noktalı bir eğme testinde 50 MPa'ya kadar mukavemet gösterdiğini bildirmiştir (Abdullayev vd., 2019

; Adam vd., 2018). Bununla birlikte, bu aynı zamanda diğer içi boş elyaf membranlara kıyasla iyi bir eğilme mukavemetidir, örneğin, kaolin bazlı içi boş elyaf membranlar, zeolit bazlı membranın sinterleme sıcaklığının 1050 °C olduğu 1200–1500 °C'lık bir sinterleme sıcaklığında 15–63 MPa eğilme mukavemetine sahiptir.

Bu araştırmanın amacı kuvarsın mukavemetini, zeolitın gözenekliliği ve MgO içerikli periklasın hem gözenek hem termal şok direnci özellikleri ile birleştirebileceği bir seramik membranın tane boyutu davranışlarını da inceleyerek standartları karşılama kapasitesini araştırmaktır.



ÜÇÜNCÜ BÖLÜM

ARAŞTIRMA YÖNTEMİ/MATERYAL VE YÖNTEM

Bu çalışmada seramik membran üretimi için kuvars zeolit ve periklas hammaddeleri kullanılmış, tane boyutunun ve sinterleme sıcaklığının membranların fiziksel, mineralojik, mikroyapısal özellikleri üzerindeki etkilerini değerlendirmek üzere hammadde hazırlama, mineralojik analiz, gözenek dağılımı, mikroyapısal analizler ve mukavemet testleri süreci takip edilmiştir.

3.1. Hammadde Hazırlama

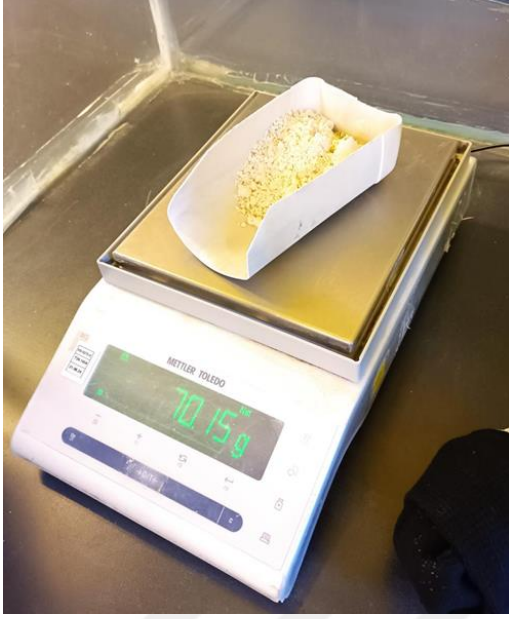
Bu aşamada 2000 gr hammadde üzerinden ağırlıkça % 60 kuvars (1200 gr), % 20 zeolit (400 gr) ve % 20 periklas (400 gr) hammaddesi kullanılmıştır. Tablo 2’de kimyasal analizi (Spectro, Xsort XH003) görülen Periklas MgO esaslı bir hammaddedir.

Tablo 2

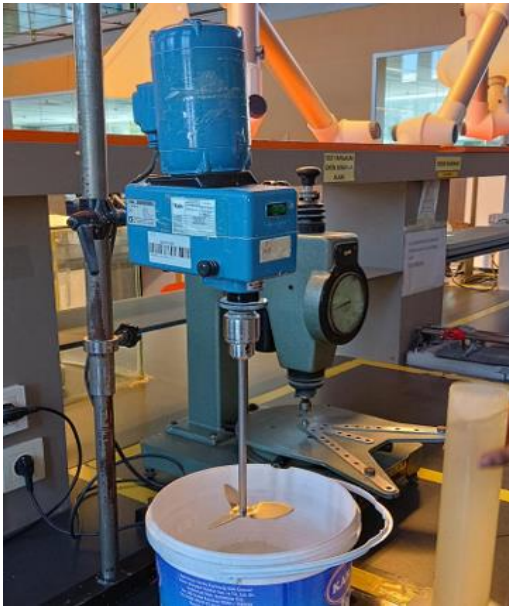
Periklas hammaddesinin kimyasal analizi

Oksitler	% Ağırlık
MgO	81,705
SiO ₂	10,890
SO ₃	0,051
K ₂ O	0,089
CaO	5,548
TiO ₂	0,107
MnO	0,058
Fe ₂ O ₃	1,505
NiO	0,023
CuO	0,001
ZnO	0,001
SrO	0,018
Sb ₂ O ₃	0,002
Konsantrasyon	100,000

Hammaddelerin tartım işlemleri Şekil 2’de görülen hassas terazide (Metler Toledo) gerçekleştirilmiştir. Tartım işleminden sonra hammaddeler bilyalı değirmenden sonra Şekil 3’de görülen mekanik karıştırıcıda (IKA RW 28) 1000 rpm’de 5 dakika boyunca yaşı olarak homojenize edilmiştir.



Şekil 2. Tartım işlemlerinin tamamlandığı hassas terazi



Şekil 3. Hammaddelerin uniform dağılımı için karıştırma

Karıştırma işlemi genellikle seramik karo üretim aşamalarındaki kriterler dikkate alınarak çamurun litre ağırlığı 1450 gr/lt olacak şekilde tamamlanmıştır. Su ilavesi bu değere göre yapılmıştır. Ölçüm işlemi yine hassas terazi ve litre kabı ile tamalanmıştır.

Elde edilen çamur elek sarsıcıda (Retsch AS 200) elek açıklıkları en büyük elek (Retsch) en üstte olacak şekilde sıralanan 125 μm , 75 μm , 45 μm , ve 20 μm eleklerle Şekil 4'deki gibi dökülmüştür. Burada çamur 125 μm altı - 75 μm üstü, 75 μm altı - 45 μm üstü, 45 μm altı - 20 μm üstü ve 20 μm altı tane açıklıklı olacak şekilde dört tür sınıflandırılmıştır.



Şekil 4. Dört farklı tane açıklı çamurun elde edildiği sınıflandırma

Farklı tane açıklıklarındaki sahip her bir çamur numunenin tane boyut dağılımını belirleyebilmek için her birinden yeterli miktarda numune alınarak Şekil 5'de görülen partikül boyut analizöründe (Mastersizer MS 3000) ölçüm yapılmıştır.



Şekil 5. Tane boyut dağılımı analizlerinin yapıldığı cihaz

Diğer elek üstünde kalan her bir slurry (çamur) neminden uzaklaştırılmak üzere Şekil 6'da görülen etüvde (Heraeus) 105°C'de 18 saat süreyle kurutulmuşlardır. Böylece tozlar garnül halde şekillendirmeye hazır hale getirilmişlerdir.



Şekil 6. Farklı tane açıklıklarına sahip etüvde kurutulan numuneler

Kurutma işleminin ardından 4 adet numune granülüz toz haline getirilmek üzere Şekil 7’de görülen öğütücüde (Retsch RM 100) 5 dakika süre ile öğütülmüşlerdir.



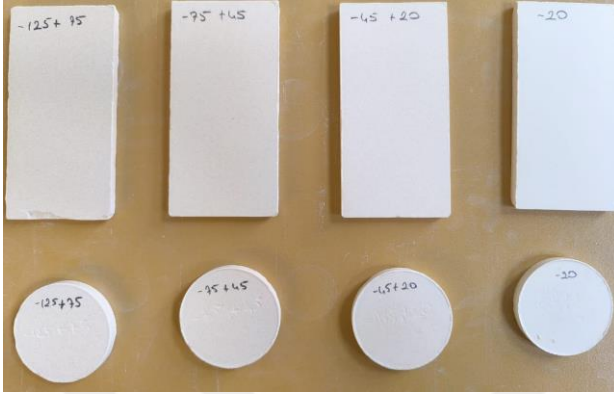
Şekil 7. Kurutulan tozların öğütme süreci

Öğütme işlemi tamamlanan tozlar şekillendirme öncesi rutubet ve tartma işlemlerinden sonra Şekil 8’de görülen pres (Nannetti Mignon SS-E) ile 100 MPa basınç ile şekillendirilmişlerdir.



Şekil 8. Şekillendirme süreci

Şekillendirilen yaşı numunler Şekil 9’da görüldüğü üzere tablet haline getirilmiş ve tekrar nemini atmak üzere 18 saat süre ile 105°C’de kurutma işlemine tabi tutulmuşlardır.



Şekil 9. Pres çıkışı farklı elek açıklıklarından geçirilmiş çamurdan üretilen numuneler

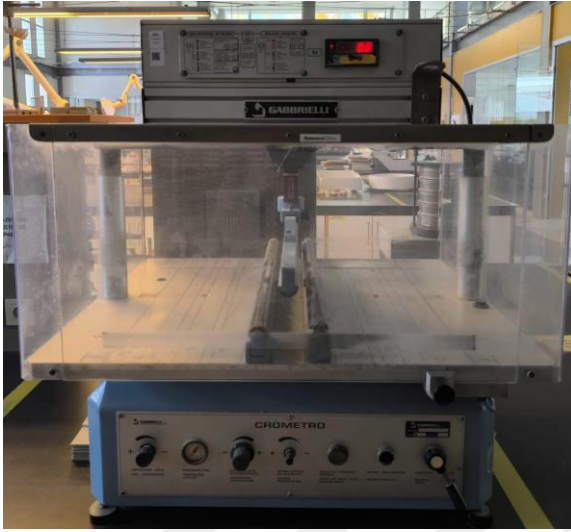
Dört adet numunenin her biri için, 3 farklı sıcaklıkta sinterlenmek üzere üçerden 12 adet şekillendirme yapılmıştır. Şekillendirme ve kurutma işleminden sonra -125+75 μm , -75+45 μm , -45+20 μm ve -20 μm eleklerden elenerek üretilen numunelerin her biri sırasıyla 1100°C, 1150°C ve 1200°C sıcaklıklarda 10°C/dak ısıtma hızı, 5°C/dak soğutma hızı ve sinterleme sıcaklığında 2 saat bekleme süresi ile Şekil 10’da görülen fırında (Carbolite RHF 14/35) ısıtma işlemine tabi tutulmuşlar ve kompakt rijit hale getirilmişlerdir.



Şekil 10. Sinterleme işlemlerinin gerçekleştirildiği fırın

3.2. Numune Karakterizasyonu

Sinterleme işlemi tamamlanan numuneler eğilme mukavemeti testi yapılmak üzere Şekil 11’de görülen mukavemet test cihazında (Gabrielli Crometro CR5/650) işleme tabi tutulmuşlardır. Mukavemet testinden çıkan numuneler Şekil 12’de görülmektedir.



Şekil 11. Eğilme mukavemeti testlerinin yapıldığı cihaz



Şekil 12. Mukavemet testinden çıkan 12 adet numune

Her bir numunenin mineralojik analizi $2\theta = 10 - 80^\circ$ ölçüm aralığında XRD (Panalytical Empyrean) cihazı ile yapılmıştır.

Sıcaklık ve tane boyutu ile malzeme iç yapısındaki değişimleri incelemek amacıyla mikroyapısal incelemeler (Zeiss) yapılmıştır. SEM testi öncesi numuneler Au ile kaplama (Polaron SC7620) işlemine tabi tutulmuşlardır. Bölgesel element analizi için yine bu cihaza bağlı EDX grafikleri elde edilmiştir.

Görüntüleme analizlerinden sonra numunelerin sıcaklık ve tane boyutu etkisiyle gözenek boyut dağılımı ve adsorbsiyon hacimlerindeki değişimleri incelemek için BET cihazı (Micromeritics Gemini) kullanılmıştır. Bu işlem öncesi numunelere degas işlemi yapılmıştır.

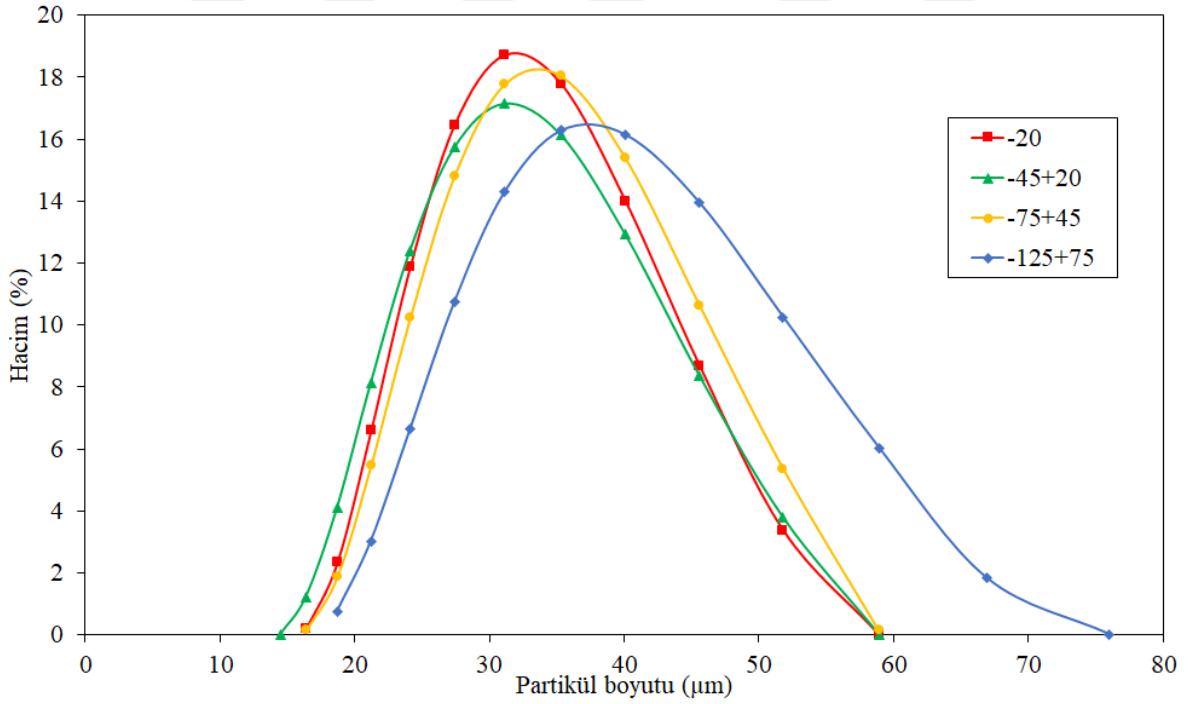
DÖRDÜNCÜ BÖLÜM

ARAŞTIRMA BULGULARI

Bu çalışmada belirli tane boyut aralıklarındaki hammaddelerden hazırlanmış numunelerin farklı sinterleme sıcaklıklarında sinterlenmesi sonucu mukavemet değişimleri, faz yapıları, gözenek ve mikroyapılarındaki değişimler irdelenmiştir. Özellikle kuvars ve zeolit seramik membran uygulamalarında yaygın olarak kullanılmaktadır. Ancak bunlara ilaveten periklas hammaddesinin seramik membranların özelliklerine etkisi ile ilgili yapılan çalışma sayısı fazla değildir.

4.1. Tane Boyut Dağılımı

Dört farklı tane açıklığına sahip numunelerin tane boyut dağılımları Şekil 13’de görülmektedir.

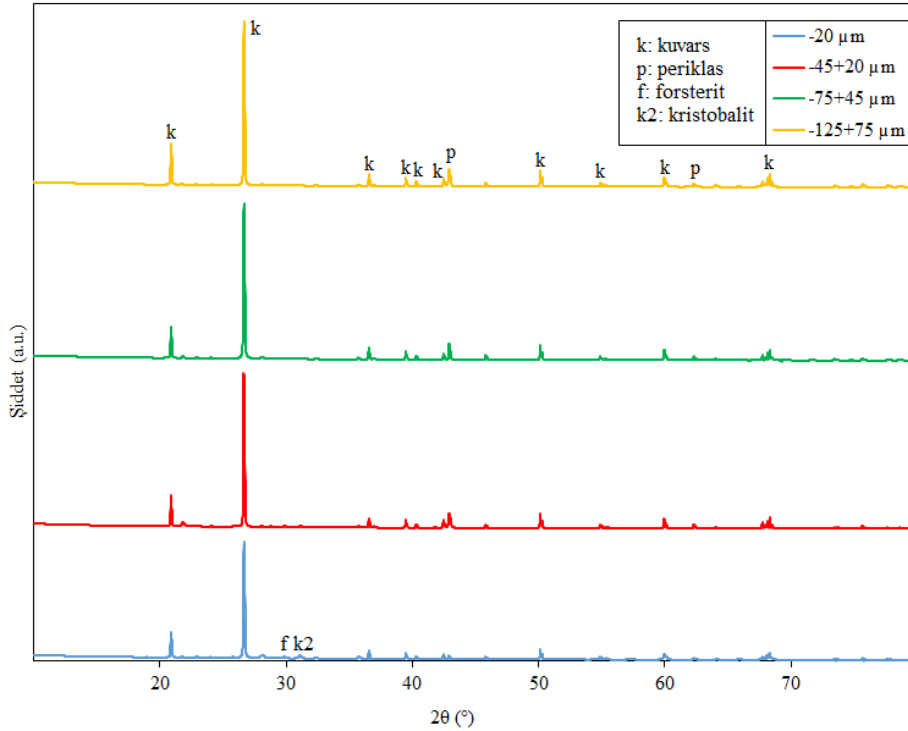


Şekil 13. Farklı elek açıklıklarından elenmiş numunelerin tane boyut dağılımları

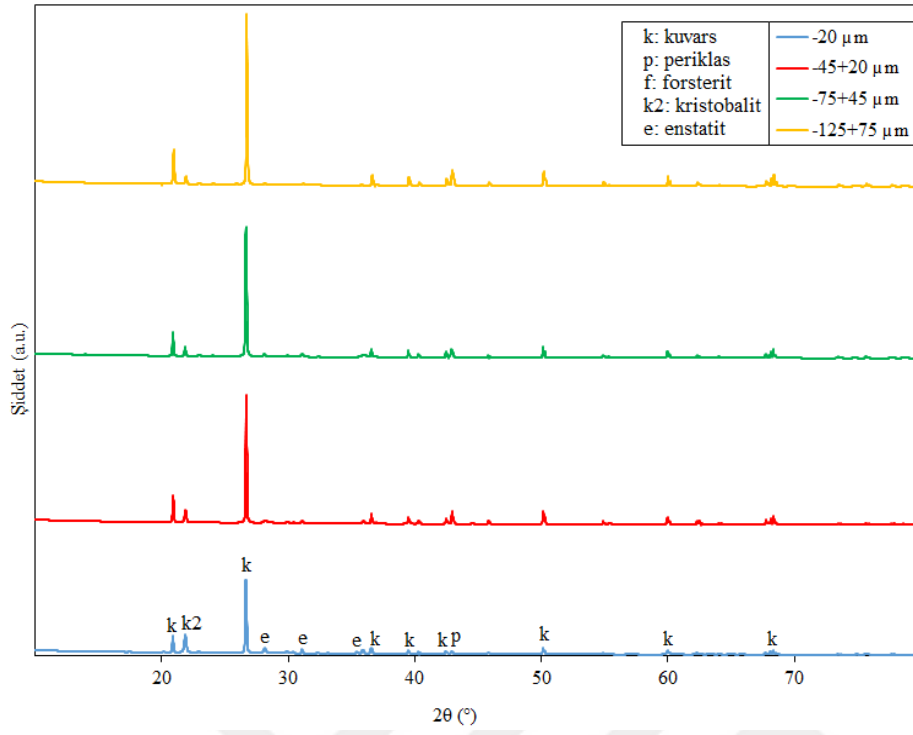
Şekilden de görüldüğü gibi -125+75 μm açıklıklı eleklerden elenmiş çamurun tane boyut dağılımı hariç diğer açıklıklı eleklerden elenmiş çamurların tane boyut dağılımları birbirine oldukça yakındır. Özellikle diğer çamurlar dar bir tane boyut aralığına sahiptir. 20 μm altı elekten elenmiş çamurda % 18.71 ile hacimce en yüksek bulunan partikül tane boyutu 31.1 μm 'dir. Her ne kadar elek açıklığı -20 μm olsa da daha büyük tane boyutlarının varlığı ister istemez topaklanmaya işaret etmekte ancak yine en düşük tane boyutu en düşük açıklıklı elek altında kuralını etkilememektedir. -45+20 μm 'lik elekten elenmiş numunede aynı tane boyutu hacimce en yüksektir (% 17.16). -75+45 μm 'lik elekten elenmiş numunede ise hacimce en yüksek tane boyutu artmaya başlamaktadır (35.3 μm). Özellikle 20 μm altı elekten elenmiş çamurun partikül boyut grafiği incelendiğinde tepe noktası diğerlerine göre en düşük tane boyutunu içermektedir.

4.2. Mineralojik ve Kantitatif Analizler

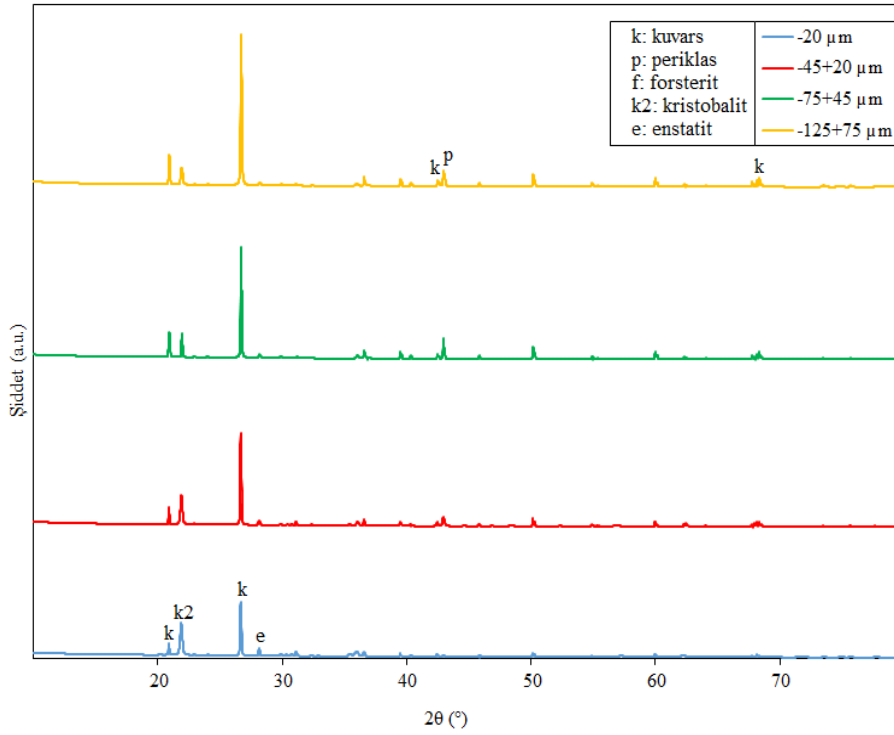
Şekil 14–16'de farklı partikül boyutlarından üretilen ve farklı sıcaklıklarda sinterlenen 12 adet numunenin XRD grafikleri görülmektedir.



Şekil 14. 1100 °C'de sinterlenen farklı elek açıklıklarındaki numunelerin XRD analizleri



Şekil 15. 1150 °C'de sinterlenen farklı elek açıklıklarındaki numunelerin XRD analizleri



Şekil 16. 1200 °C'de sinterlenen farklı elek açıklıklarındaki numunelerin XRD analizleri

1100 °C’de sinterlenen numuneler incelendiğinde kuvars baskın faz olmakla birlikte düşük miktarda periklas fazının olduğu, -20 µm açıklıklı elek altından hazırlanan numunede çok düşük miktarda forsterit ve kristobalit fazlarının varlığı tespit edilmiştir. Forsterit (JCPDS No. 34-0189) fazı özellikle antibakteriyel aktivitesi nedeniyle (Gorea vd., 2020) membran üretiminde faydalı olabilecek bir fazdır. Kristobalit fazı yeterli kristalleşme ve dayanım açısından seramik membranlarda arzu edilir. 1150 °C, her ne kadar kristobalit fazının ortaya çıkışı için düşük bir sıcaklık olsa da düşük tane boyutu bu fazın ortaya çıkışında etkili olmuştur. Düşük tane boyutunun kristobalit fazını artırdığı bilinmektedir (Pagliari vd., 2013). Sıcaklık 1150 °C’ye çıkartıldığında tane boyutu düşük olan çamurdan hazırlanan numunede daha fazla olmak üzere tüm numunelerde kristobalit fazının ortaya çıkışını göstermektedir. Bu sıcaklıkta bu oranda kristobalit fazının ortaya çıkışı nadirdir. Genellikle bu oranda kristobalit fazı kuvars ve zeolit hammaddelerini içeren çalışmalarda 1200 °C’de görülmektedir (Zeren ve Abalı, 2025 ; Şan vd., 2003). Kuvars ve zeolitin yanında periklas hammaddesi daha düşük sıcaklıkta kristobalit fazının ortaya çıkışını sağlamış olabilir. Çünkü MgO bir flaklaştırıcıdır ve kristobalitin daha düşük sıcaklıklarda reaktivitesini sağlama ihtimali yüksektir. Zeolitin olmadığı çalışmada MgO’nun kuvarsın kristobalit reaksiyonuna 1200 °C’de yardımcı olduğu rapor edilmiştir (Song vd., 2025). Bu çalışmadaki mineralojik analiz sonuçları zeolitle birlikte MgO’nun, kristobalitin ortaya çıkış sıcaklığını 50 °C daha düşürdüğünü göstermektedir. 1150 °C’de sinterlenen numunelerde tane boyutunun düşmesi kuvars fazının da bariz bir şekilde azalmasına neden olmaktadır. Özellikle bu düşük tane boyutunda etkilidir ve kristallenmenin bu sıcaklıkta başladığına işaret eder. Kuvars fazı kristobalite dönüşmeye başlamıştır. Periklas fazı özellikle 20 µm altı numunesinde azalmaktadır. Bu da MgO nun reaksiyona girerek kristobalite dönüşüm sürecine katkı verdiğini göstermektedir. Özellikle en düşük tane boyutlu numunede enstatit (JCPDS No. 11-0273) fazının varlığı söz konusudur. Bu ise MgO’nun SiO₂ ile reaksiyonunu kanıtlamaktadır. Düşük tane boyutu bu reaksiyon için etkili olmaktadır. 1200 °C’de sinterlenen numunelerde 1150 °C’deki değişimler daha bariz bir şekilde ortaya çıkmıştır. Özellikle 20 µm altı numunesinde olmak üzere kristobalit pik şiddeti daha da artmakta kuvars miktarı azalmaktadır. 20 µm altı numunesinde periklas fazı yok iken diğer numunelerde varlığını sürdürmektedir. Bu da kristobalit bu numunede ne için daha fazla reaktivite olduğunu göstermektedir. Enstatit fazının pik şiddeti de düşük tane boyutunda daha belirgindir. Zeolitinde sıcaklık artışı ile kuvarsın kristobalite dönüşümünde etkisi vardır (Şan vd., 2003). Düşük tane boyutu bu etkiyi atırmaktadır.

Tablo 3’de tüm numuneler ait kantitatif analiz sonuçları görülmektedir. Özellikle kristallenmenin bir göstergesi olan kristobalit ve enstatit fazları, ince tane boyutundan yüksek miktarda barındıran numunenin (-20 μm kodlu) 1150 °C’de sinterlenmeye başlaması ile görülmektedir.

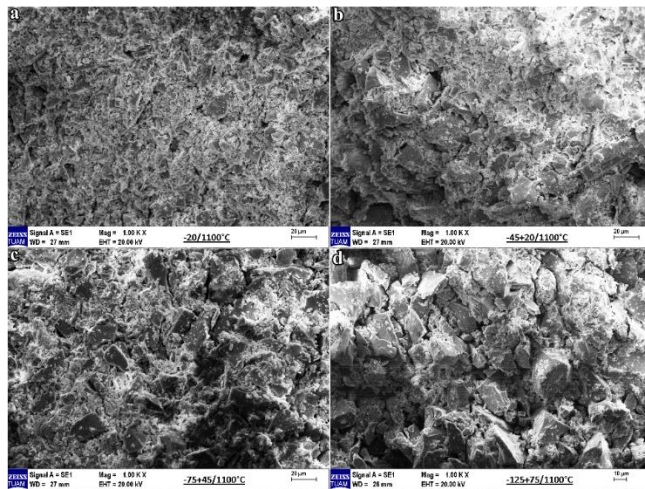
Tablo3

Farklı sıcaklıklarda sinterlenen ve farklı tane boyutundaki numunnelerin kantitatif analizleri

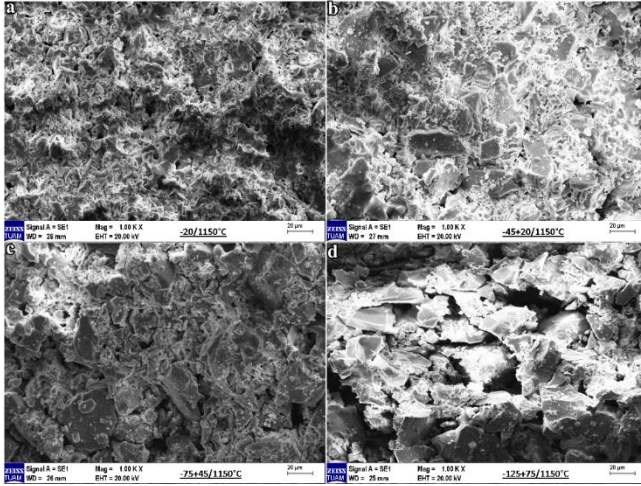
Numune		-20 μm			-45+20 μm			-75+45 μm			-125+75 μm		
Sıcaklık (°C)		1100	1150	1200	1100	1150	1200	1100	1150	1200	1100	1150	1200
Mineral (% Ağırlık)	Kuvars	77.2	48.7	31.2	82.6	72.2	46.7	80	72.3	62.2	83	78	68.9
	Periklas	6.7	2.2		15.5	13.7	8.4	15.1	11.2	16.7	14.8	15.4	15.5
	Forsterit	15.5	9.9	4.8		3.7	5.6	4.1	6.7	3.7	1.9	2.6	3.1
	Kristobalit	0.6	14.9	23.5	1.9	10.3	20.5	0.9	9.8	17.5	0.4	4	12.6
	Enstatit		24.4	40.5			18.8						

4.3. Mikroyapısal Görüntüleme ve Kimyasal Analiz

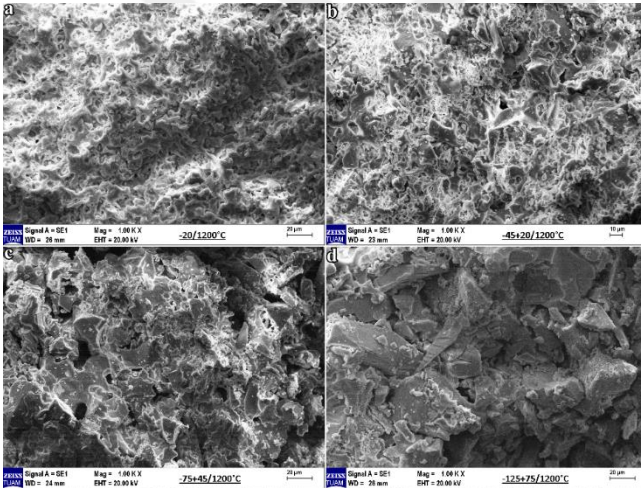
Farklı tane boyutundan ve farklı sıcaklıklarda üretilen numunelerin elektron mikroskop görüntüleri Şekil 17-19’de görülmektedir.



Şekil 17. 1100 °C’de sinterlenen numunelerin SEM görüntüleri a) -20 μm , b) -45+20 μm , c) -75+45 μm , d) -125+75 μm elek açıklıklı çamurdan hazırlanan numuneler



Şekil 18. 1150 °C'de sinterlenen numunelerin SEM görüntüleri a) -20 µm, b) -45+20 µm, c)-75+45 µm, d) -125+75 µm elek açıklıklı çamurdan hazırlanan numuneler

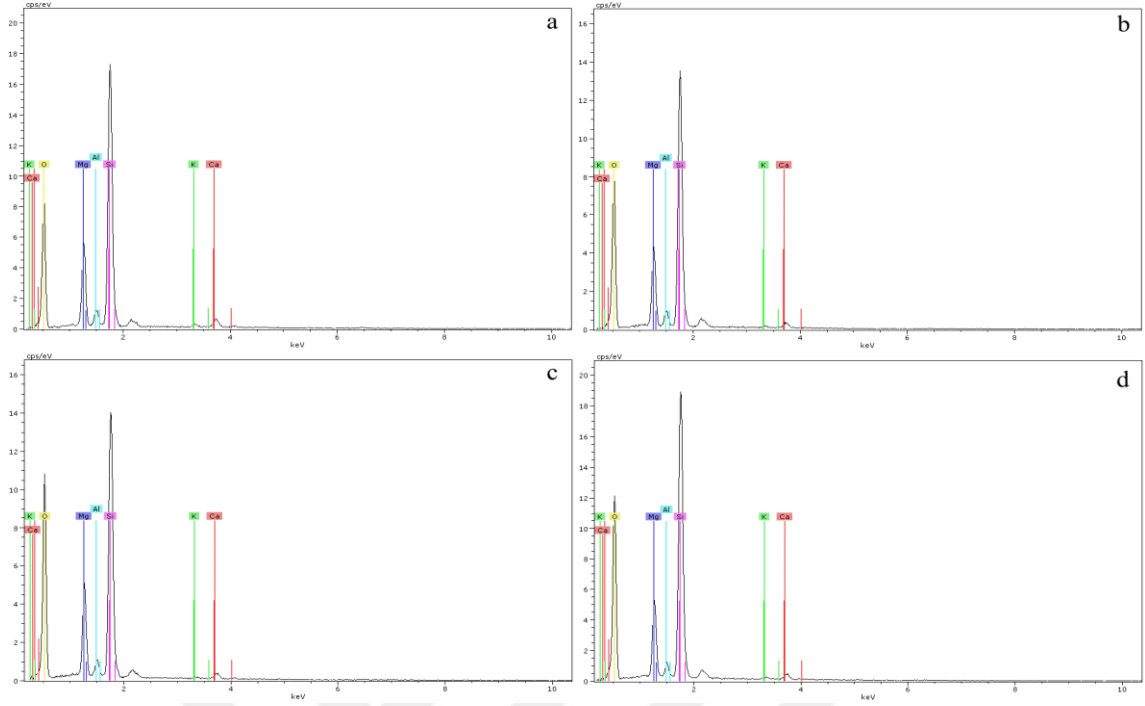


Şekil 19. 1200 °C'de sinterlenen numunelerin SEM görüntüleri a) -20 µm, b) -45+20 µm, c)-75+45 µm, d) -125+75 µm elek açıklıklı çamurdan hazırlanan numuneler

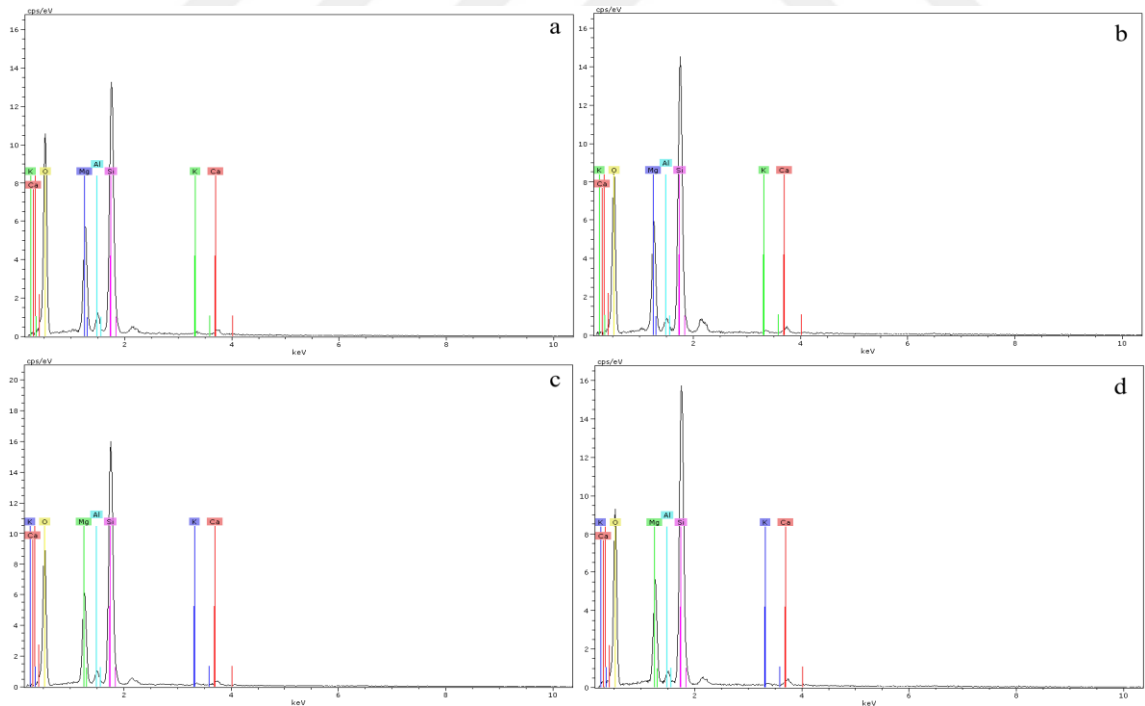
Şekil 17’de de görüldüğü gibi 1100 °C’de sinterlenen numunelerde kristalleşme henüz tam olarak gerçekleşmemiştir. Bununla birlikte -20 µm numunesinde tüm fazların birbiri içinde daha homojen bir dağılımda iç içe geçmiş hali görülmektedir. Bunda kuvars fazının düşük de olsa bir miktar kristallşerek kristobalit fazına dönüşmesinin etkisi de mevcuttur. Hiçbir numunede çatlak olmadığı anlaşılmaktadır. Ayrıca -20 µm numunesinin gözenek dağılımının oldukça homojen olduğu görülebilmektedir. Ancak bu sıcaklıkta yeterli derecede flakslasma da henüz yoktur. Şekil 16’da 1150 °C’de sinterlenen numunelerde kristalleşme artık belirginleşmeye başlamıştır. -20 µm numunesi başta olmak üzere gözenekler daha belirgin hale gelmiş, camsı kristal fazlar mineralojik analiz sonuçları ile

uyumlu olacak şekilde kendini göstermeye başlamıştır. Bu sıcaklıkta tane boyutu arttıkça kristalleşme azalmakta ve daha az gözenek yapısı ve kaba tane boyutları ortaya çıkmaktadır. Flakslastırıcı olarak MgO'nun kullanılmadığı çalışmalarda (Zeren ve Abalı, 2025 ; Şan vd., 2003) ancak 1200°C'de ortaya çıkan bu yeterli amorf, kristal faz içeren ve homojen gözenek dağılımlı yapı düşük taneli hammadde (-20 µm) etkisi ile de 1150 °C'de sağlanmaktadır. Şekil 16'da -20 µm'li numune hariç yeterince kristalleşmemiş kaba tane varlıkları görülmektedir. Dolayısıyla MgO flakslastırıcı ve düşük sıcaklık (1150 °C) yeterli homojenitede kristal ve gözenekli morfoloji için tek başlarına etkisizdir. Küçük tane boyutlu yapının flakslastırıcı ve sıcaklık parametrelerini de yanına alarak etkili morfolojiyi sağladığı görülebilir. Şekil 19'da da görüldüğü gibi partikül boyutu en küçük olan numunede homojen partikül ve gözenek dağılımı ile kristalleşme kendini daha belirgin şekilde gösterir hale gelmiştir. Kristobalit fazı mineralojik analizlerden de görüldüğü gibi 1200 °C'de tüm numunelerde olsa da tanelerin birbiri içine geçtiği uniform yapı tane boyutu en düşük olan numunede görülmektedir. Tane boyutu arttıkça gözenek açıklıkları arsta da homojen gözenek yapısı azalmaktadır. Membran uygulamalarında özellikle homojen gözenek dağılımı arzu edilen bir husustur. MgO'nun flakslastırıcı etkisini maksimum göstermesi için tane boyutunun mümkün olan en düşük seviyede olması gerektiği hem Şekil 18a hemde Şekil 15'den anlaşılmaktadır. Şekil 19b'de 1200 °C'de de iyi bir kristallenme vardır. Bu morfoloji Şekil 18a'da daha düşük tane boyutu ile daha düşük sıcaklıkta sağlanabilmektedir. 1150°C sıcaklık membran yapısı açısından kristalleşme için özellikle en düşük tane boyutunda yeterlidir. Çünkü en düşük tane boyutu 1200 °C'de sinterlendiğinde kristal faz keskin köşeli yapısını kaybederek ergime başlangıcına geçtiği görülmektedir. Bu yapı mukavemet kaybına neden olabilir.

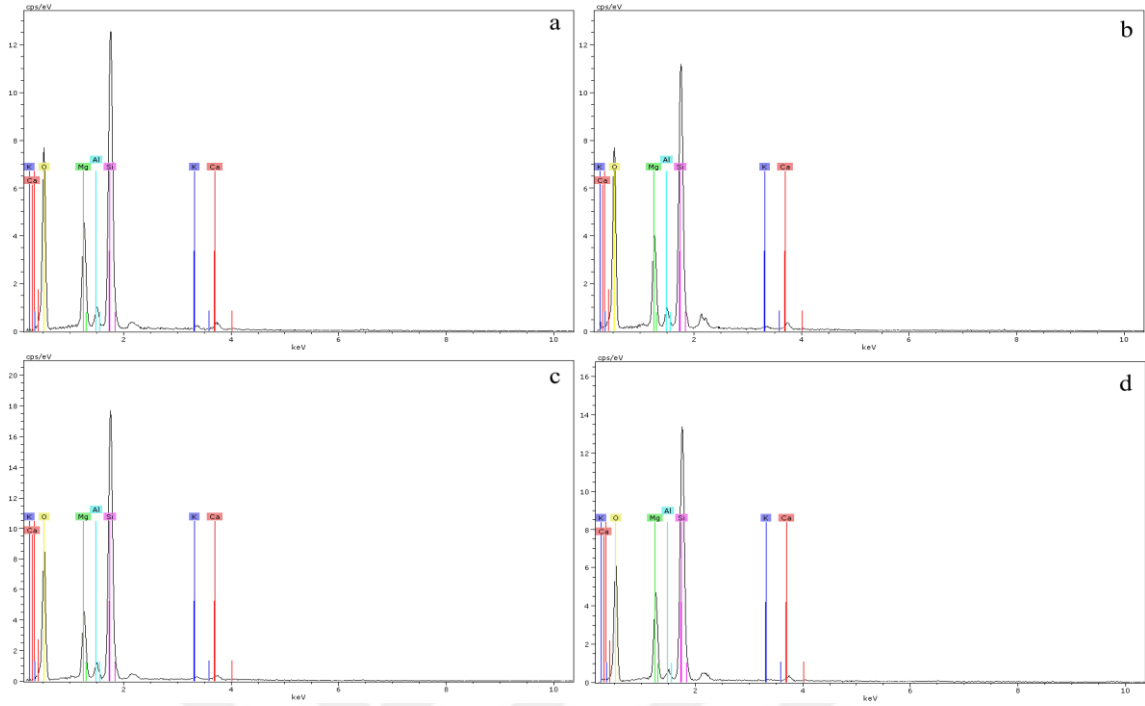
Şekil 20-22'de elektron mikroskobuna bağlı elemental analiz sonuçları görülmektedir. Tüm numuneler K, Ca, O, Mg, Al, Si, elementlerini içermektedirler. XRD analizleri sonucu ortaya çıkan mineraller kuvars (SiO₂), periklas (MgO), forsterit (Mg₂SiO₄), kristobalit (SiO₂) ve enstatitdir (MgSiO₃). Bu mineraller bünyelerinde eser miktarda Al, K ve Ca elementlerini barındırmaktadır.



Şekil 20. 1100 °C'de sinterlenen numunelerin EDX grafikleri a) -20 µm, b) -45+20 µm, c)-75+45 µm, d) -125+75 µm elek açıklıklı çamurdan hazırlanan numuneler



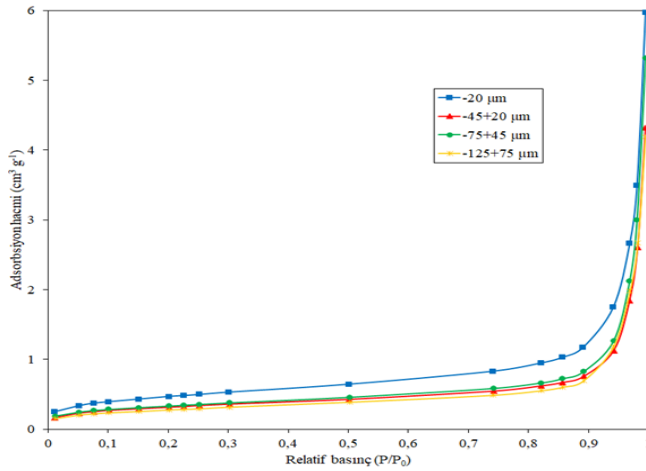
Şekil 21. 1150 °C'de sinterlenen numunelerin EDX grafikleri a) -20 µm, b) -45+20 µm, c)-75+45 µm, d) -125+75 µm elek açıklıklı çamurdan hazırlanan numuneler



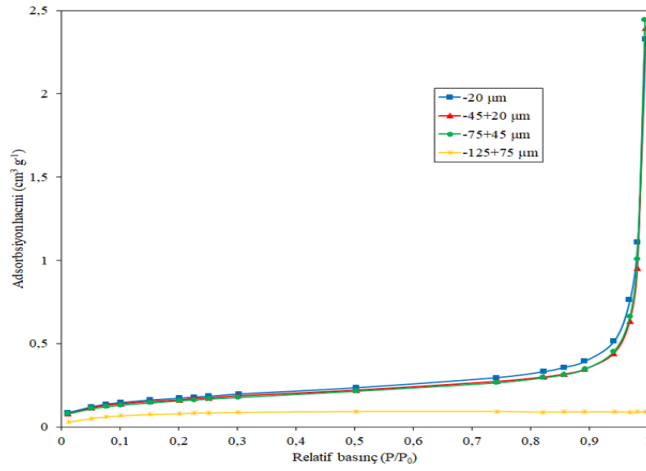
Şekil 22. 1200 °C'de sinterlenen numunelerin EDX grafikleri a) -20 µm, b) -45+20 µm, c)-75+45 µm, d) -125+75 µm elek açıklıklı çamurdan hazırlanan numuneler

4.4. BET Adsorbsiyon İzoterm Grafikleri

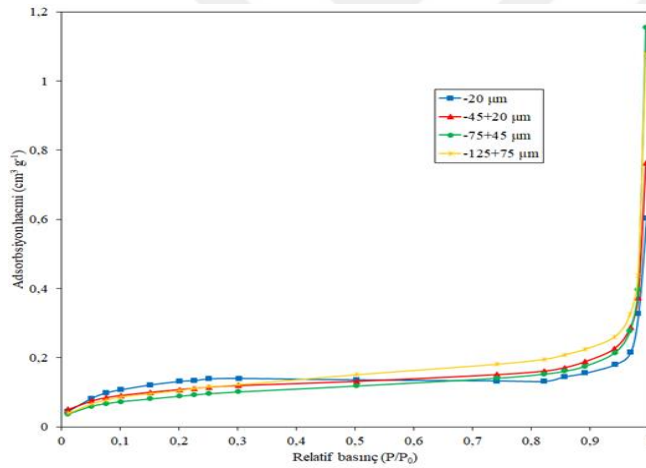
Şekil 23-25'de dört farklı tane açıklığındaki çamurdan hazırlanan numunelerin farklı sıcaklıklarda sinterlenmesi sonucu ortaya çıkan adsorbsiyon izoterm eğrileri görülmektedir.



Şekil 23. 1100 °C'de sinterlenen farklı elek açıklıklarındaki numunelerin adsorpsiyon izoterm eğrileri



Şekil 24. 1150 °C'de sinterlenen farklı elek açıklıklarındaki numunelerin adsorpsiyon izoterm eğrileri



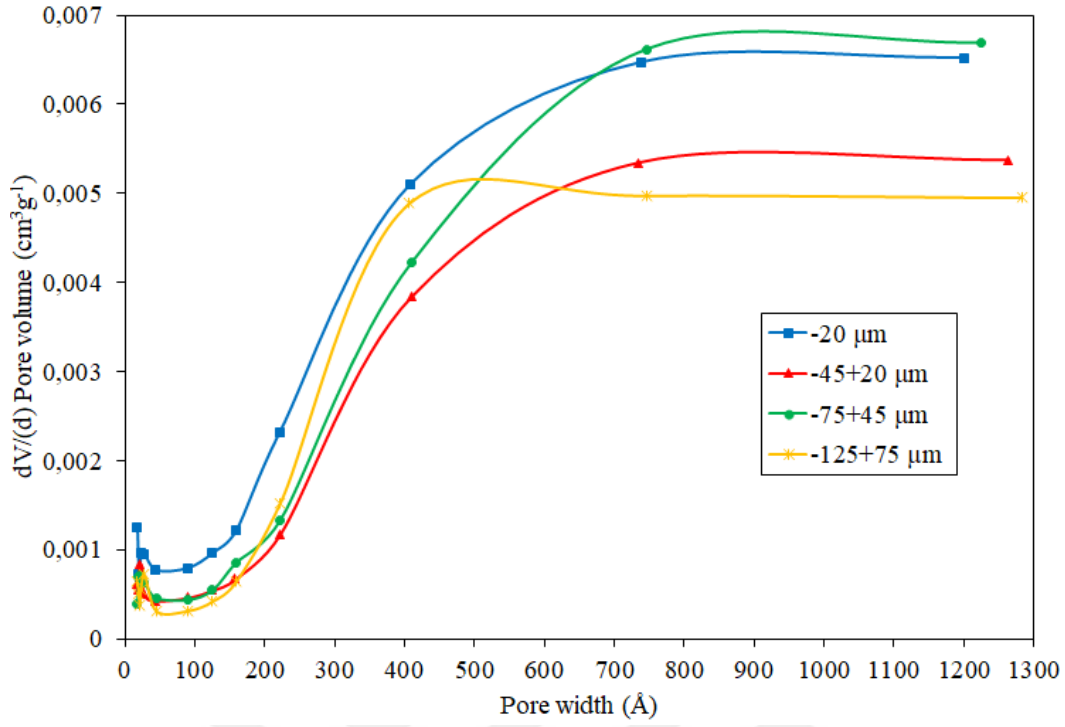
Şekil 25. 1200 °C'de sinterlenen farklı elek açıklıklarındaki numunelerin adsorpsiyon izoterm eğrileri

Tüm örneklerin düşük basınçlarda düşük, yüksek basınçlarda yüksek adsorbsiyon hacmi gösteren makrogözenek içeren tip III izotermine olduğu (Sing vd., 1985) 1100 °C'de sinterlenen numunelerde, en düşük açıklıklı elekten elenerek hazırlanan numune hariç diğerlerinin adsorbsiyon izoterm eğrileri benzerdir. Düşük tane boyutlu numune diğerlerine göre hem düşük hem de yüksek basınçlarda adsorbsiyon hacmi daha yüksektir. Ancak mineralojik analiz sonuçları ve mikroyapı görüntülerinden de anlaşılacağı üzere bu sıcaklıkta amorf ve kristal faz üretimi henüz tam olarak gerçekleşmediğinden gazın ilerleyebileceği boşluk miktarı oldukça fazladır. Bu nedenle düşük tane boyutlu numune

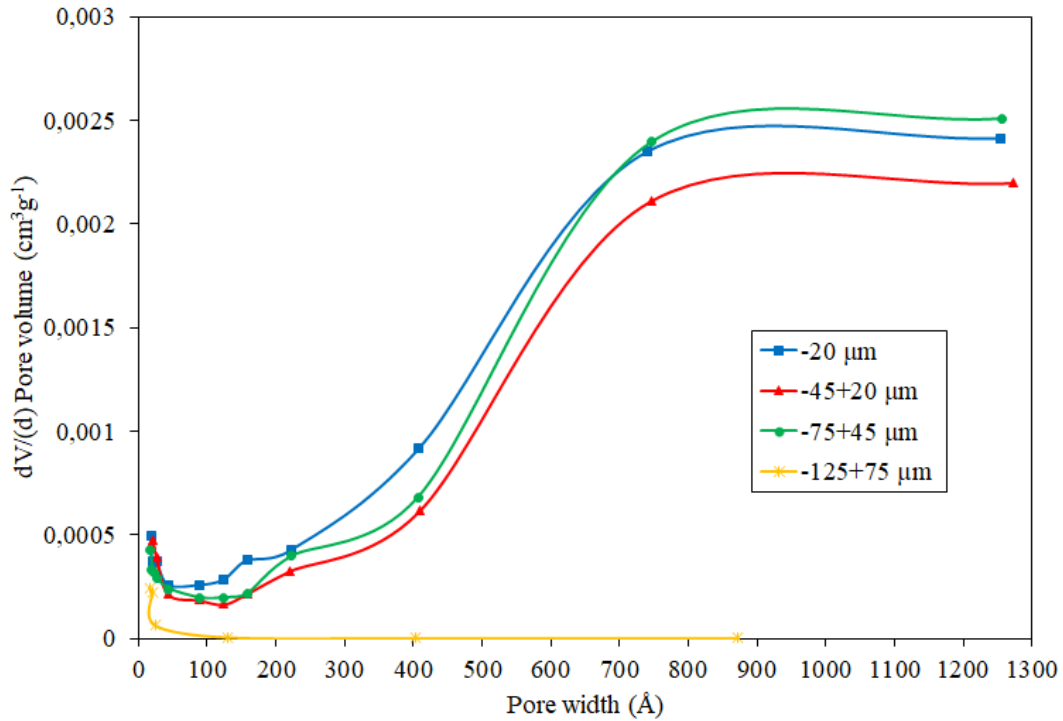
daha fazla olmak üzere tüm numunelerin adsorbsiyon hacmi yüksektir. Yeterli sıcaklık yoğunlaşmasının olduğu fazlarda düşük tane boyutu yoğunluğun artmasına gözenek açıklığının azalmasına neden olur. Ancak kristalleşmenin yeterli olmadığı bu sıcaklıkta (1100 °C) tane boyutunun azalmasının boşluğu artırdığı görülmektedir. Tabi burada membranlar için gözenek oranının ve açıklığının fazla olması değil gözeneklerin uniform dağılması ve mukavemeti azaltmaması da önemlidir. Şekil 24’de 1150 °C’ de sinterlenen numunelerin adsorbsiyon izoterm eğrileri incelendiğinde bu sefer en yüksek tane açıklıklı elekten geçen çamurdan hazırlanarak sinterlenen numune dışında diğer tane boyutlu numunelerin izoterm eğrileri birbirine benzerdir. Bu sıcaklıkta 1100°C sıcaklığa göre adsorbsiyon hacmi değerleri düşüktür çünkü kristalleşme ve yoğunlaşma başlamıştır. En düşük tane boyutuna sahip numunenin (-20 µm kodlu), yüksek basınçlarda adsorbsiyon hacmi, -45+20 µm ve -75+45 µm kodlu numunelere benzer olsa, onlara göre biraz daha yüksek gözenek hacmine sahip olduğu görülmektedir. En yüksek tane boyutlu numunede (-125+75 µm kodlu) ise kristalleşmenin başlaması (1150°C) ile adsorbsiyon hacmi çok düşmüştür. Böylece iri partiküllerin kristallenmenin başlangıcında gözenek oluşumuna olumsuz etkisi olduğu görülmektedir. Ancak Şekil 25’de de görüldüğü gibi sinterleme sıcaklığı 1200°C’ye çıktığında kaba tane boyutlu numunede (-125+75 µm kodlu) yaklaşık $0.5 \frac{P}{P_0}$ ’dan yüksek basınçlarda adsorbsiyon hacmi diğer numunelere göre daha yüksek olurken aksine en düşük tane boyutlu numunede özellikle $0.7 \frac{P}{P_0}$ ’dan sonra en düşük seviyede devam etmektedir. Kristalleşmenin en yüksek olduğu bu sıcaklıkta düşük tane boyutu yoğunluğa katkı vermekte ve gözenek hacmini düşürmektedir. Kristalleşmenin daha ileri seviyesinde (1200°C) iri partikül adsorbsiyon hacmini artırmaktadır.

4.5. BET-BJH Gözenek Boyut Dağılımı

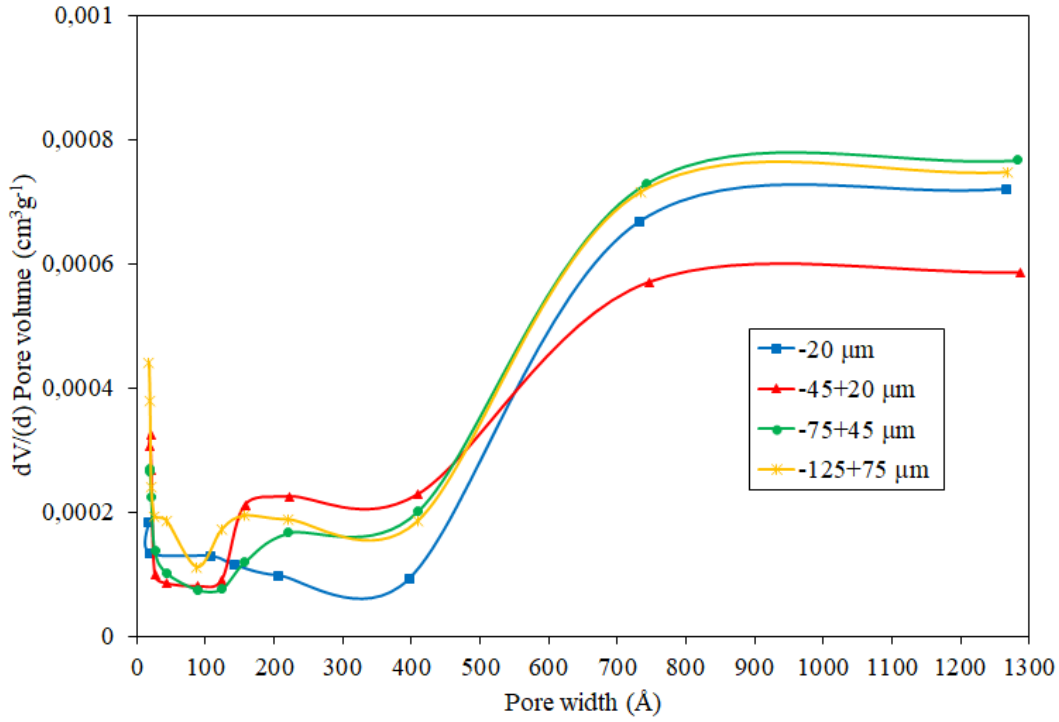
Şekil 26-28’de sırasıyla farklı tane boyutundaki numunelerin 1100, 1150 ve 1200 °C sıcaklıkta sinterlenen gözenek boyut dağılımları görülmektedir.



Şekil 26. 1100 °C'de sinterlenen farklı elek açıklıklarındaki numunelerin gözenek boyut dağılımları



Şekil 27. 1150 °C'de sinterlenen farklı elek açıklıklarındaki numunelerin gözenek boyut dağılımları



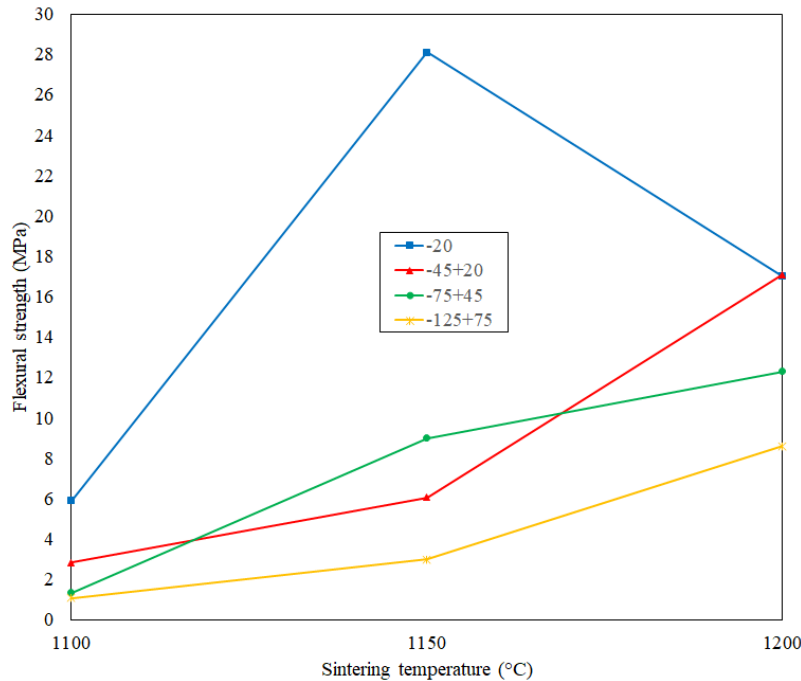
Şekil 28. 1200 °C'de sinterlenen farklı elek açıklıklarındaki numunelerin gözenek boyut dağılımları

Gözenek boyut dağılımı grafiklerinden de görüldüğü gibi sıcaklık arttıkça gözenek hacmi değerleri azalmaktadır. Bu da daha küçük boyutlu gözeneklerin varlığına işaret eden bir durumdur. Ancak seramik membranlarda gözenek boyutundan ziyade uniform bir gözenek boyut dağılımı arzu edilir. 1100 °C sıcaklıkta sinterlenen numunelerde dar boyut aralığı gösteren adsorbsiyon bölgesindeki tepe noktası yaklaşık 100 Å'luk por boyutuna işaret etmekte ve dağılım yaklaşık 20–200 Å aralıkta bir por boyut dağılıma işaret etmektedir. Özellikle tane boyutu en düşük olan -20 µm kodlu numune en dar aralıkta seyretmekte bu da birbirine yakın por boyutlarının düşük sıcaklıkta düşük tane boyutlu numunede daha fazla olduğunu göstermektedir. Bu numunenin dar aralıkta gözenek hacminin yüksek olması uniform por boyut dağılımına sahip gözeneklerden daha fazla olduğunun bir göstergesidir. Sıcaklık 1150 °C'ye çıktığında her numune için dar aralıkta seyreden gözenek hacmi azalsa da sıcaklığın artması ile bu normal bir durumdur. Düşük tane boyutlu numunede bu dar aralık güncelliğini korumakta iken diğer numunelerde uniform por boyut dağılımında çok olmasa da azalmalar görülmektedir. Özellikle -125+45 µm numunesi homojen por boyut dağılımından tamamen yoksundur. Bu durum Şekil 24'deki adsorbsiyon hacmi değeri ile de uyumludur. Şekil 18d'deki SEM görüntüsünde de inhomojen bir gözenek dağılımı görülmektedir. 1200 °C'de sinterlenen numunelerde gözenek hacminin daha da

azaldığı görülmektedir. Ancak bu sıcaklıktaki numunelerde en düşük tane boyutlu numune hariç her tane boyutu için iki tepeli (bimodal) bir por boyut dağılımı oluşmuştur. Burada tepe noktaları yaklaşık 100 Å gözenek boyutuna gelen birinci tepelerde en dar por boyut dağılımına sahip olan numune düşük sıcaklıkların aksine tane boyutu en yüksek olan numuneye (-125+75 µm kodlu) aittir. En düşük tane boyutuna sahip numunede ise dar por boyut dağılımını daha yüksek açıklıklı gözeneğe sahip yaklaşık 200–400 Å aralığında göstermiştir. Yani hammaddenin tane boyutu küçüldükçe yüksek sıcaklıkta daha geniş açıklıklı uniform bir por boyut dağılımı sağlanabilir. Normalde sıcaklık, gözenek açıklığını azaltan bir unsurdur. Ancak tane boyutunun küçülmesi 1200 °C sıcaklıkta homojen gözenek dağılımının düşük por hacminde yani düşük miktarda da olsa daha geniş boyutlu gözeneklerle sağlanmasına yardımcı olmuştur.

4.6. Mekaniksel Davranış

Şekil 29’da sırasıyla farklı tane boyutundaki numunelerin 1100, 1150 ve 1200 °C sıcaklıkta sinterlenen eğilme mukavemetleri görülmektedir.



Şekil 29. 1100, 1150 ve 1200 °C 'de sinterlenen farklı elek açıklıklarındaki numunelerin eğilme mukavemetleri

Şekilden de görüldüğü gibi tane boyutu en düşük olan numunenin 1100 °C sinterleme sıcaklığında eğilme mukavemeti 5.90 MPa ile en yüksektir. Tane boyutu en yüksek olan numunenin aynı sıcaklıkta eğilme mukavemeti 1.07 MPa ile en düşüktür. Dolayısıyla en düşük sinterleme sıcaklığında tane boyutu azaldıkça eğilme mukavemeti artmaktadır. Sinterleme sıcaklığı 1150 °C'ye çıkarıldığında ince tane boyutunu çok barındıran numunenin eğilme mukavemetinde büyük bir artış gerçekleşmiştir. Diğer tane boyutundaki numunelerin de eğilme mukavemetinde artış vardır ancak bu artış -20 µm elek açıklığından geçerek hazırlanan en düşük tane boyutlu numune kadar değildir. Ayrıca bu sıcaklıkta bir üst boyuttaki -45+20 µm açıklıklı elekten geçen numunede eğilme mukavemetinin daha fazla kaba boyut içeren (Şekil 12) -75+45 µm açıklıklı elekten geçen numuneden daha fazla olması beklenir ancak -45+20 µm açıklıklı elekten geçen numunede eğilme mukavemeti daha düşüktür. Bu durumda kristallenmenin gerçekleştiği 1150 °C sıcaklıkta tane boyutu ile eğilme mukavemeti arasındaki ilişki orantısız değildir ve sadece en ince tane boyutunu içeren numunede eğilme mukavemeti en yüksektir. Sinterleme sıcaklığı 1200 °C'ye çıkarıldığında en ince tane boyutlu numunenin eğilme mukavemetinde azalış görülmekte diğer numunelerde ise artış görülmektedir. -20 µm açıklıklı elekten geçen numunenin eğilme mukavemeti ile bir üst boyuttaki -45+20 µm açıklıklı elekten geçen numunenin eğilme mukavemetleri sırasıyla 17.0 ve 17.1 MPa olmaktadır. Elektron mikroskop görüntülerinde de görüldüğü gibi 1200 °C'de en ince tane boyutuna sahip numune keskin köşeli kristal yapısını kaybetmektedir, ayrıca bu sıcaklıkta en düşük tane boyutlu numunede uniform gözenek dağılımının 1150 °C'deki en ince tane boyutlu numuneye göre daha geniş aralıkta ve daha büyük gözenek boyutunda seyretmesi mukavemetinin düşmesine de neden olan diğer bir etkidir. Bu nedenle uniform gözenekli yeterli mukavemete sahip düşük tane boyutlu seramik yapı 1150 °C gibi daha düşük bir sıcaklıkta elde edilebilir. Bununla birlikte sıcaklık 1200 °C'ye çıktığında en düşük tane boyutlu numunede (-20 µm kodlu) ani mukavemet kaybı varken diğer boyutlarda sıcaklığın artması ile mukavemet artmaktadır. Gözenek boyut dağılımları grafikleri bu hususu açıklamaktadır. Yani diğer tane boyutlarında sıcaklık artışı ile daha uniform bir gözenek dağılımı mukavemete katkı vermiştir. Burada deneylerin bize verdiği mesaj ince tane boyutlu numune de sıcaklığın belli limitlerin üstüne çıkması sonucu mukavemetin düşmesi yönündedir. Belki de sıcaklık 1300 °C'ye çıksa bu mukavemet kaybının sürmesi beklenebilirdi.

BEŞİNCİ BÖLÜM

SONUÇ VE ÖNERİLER

Bu çalışmada hammadde kompozisyonlarını değiştirmeden kuvars zeolit ve periklas hammaddelerini kullanarak farklı tane boyutlarından hazırlanan seramik membranların, sıcaklığında etkisi ile mineralojik, mikroyapısal, fiziksel ve mekanik özellikleri değerlendirilmiştir.

Kristobalit fazı gözenekli membranların dayanımı açısından istenen, özellikle mümkün oldukça düşük sıcaklıkta ortaya çıkması arzu edilen bir fazdır. Kuvars zeolit hammaddelerinin kullanımı sonucu yeterli kristobalit fazı 1200 °C sıcaklıkta elde edilebilir. Ancak bu çalışmada MgO hammaddesinin ergitici görevi görmesi sonucu mineralojik ve mikroyapısal analiz sonuçları ile birlikte değerlendirildiğinde 1150° C sıcaklıkta kristobalit oluşumu görülmüştür. Normal şartlarda zeolitin göstereceği katalizör görevini aynı zamanda MgO'nun da gösterdiği ortadadır. Bunun yanında periklas hammaddesinin kullanımı forsterit ve enstatit fazlarının ortaya çıkışını sağlamıştır. Bunun yanında tane boyutunun düşmesi (-20 µm kodlu) kristal fazlarının (kristobalit, enstatit, forsterit) oluşumuna 1150 °C sıcaklıkta katkı sağlamıştır.

Mikroyapısal analizlerde en düşük tane boyutlu ve 1150 °C'de sinterlenen yapı düzgün kristal yapıya sahiptir. Sıcaklık arttıkça (1200 °C) tane boyutu düşük olsa da keskin köşeli kristal yapısı azalmaktadır. 1150 °C'de sinterlenen en düşük tane boyutlu membran yüksek basınçlarda iyi bir adsorbsiyon hacmine sahiptir. Bu da yeterli gözenek açıklığına işaret etmektedir. Özellikle bu gözenek açıklığına rağmen eğilme mukavemetinin yüksek olması avantajlı bir durumdur. Aynı tane boyutlu numune için sinterleme sıcaklığı 1200 °C'ye çıktığında adsorbsiyon hacmi düşmektedir. Üstelik bu düşme 1200 °C'sinterlenen diğer tane boyutlu numunelerin adsorbsiyon hacimlerinin altına da inmektedir. En düşük tane boyutlu ve 1150 °C'de sinterlene yapı yüksek basınç hacminde üniform bir gözenek boyut dağılımına sahiptir. Aynı numune 1200 °C'de daha geniş bir aralıkta daha az üniform bir gözenek dağılımı göstermektedir ki bu da elektron mikroskop görüntüleri ile eş güdümlü bir şekilde eğilme mukavemeti değerlerine yansımaktadır.

KAYNAKÇA

- Abdullayev, A., Bekheet, M., Hanaor, D., ve Gurlo, A. (2019). “Materials and applications for low-cost ceramic membranes”. *Membranes*, 9(9), 105.
- Li, C., Sun, W., Lu, Z., Ao, X., ve Li, S. (2020). “Ceramic nanocomposite membranes and membrane fouling: A Review”. *Water Research*, 175, 115674.
- Dong, Y., Wu, H., Yang, F., ve Gray, S. (2022). “Cost and efficiency perspectives of ceramic membranes for water treatment”. *Water Research*, 220, 118629.
- Issaoui, M., ve Limousy, L. (2018). “Low-cost ceramic membranes: Synthesis, classifications, and applications”. *Comptes Rendus Chimie*, 22(2–3), 175–187.
- Benito, J. M., Conesa, A., Rubio, F., ve Rodríguez, M. A. (2005). “Preparation and characterization of tubular ceramic membranes for treatment of oil emulsions”. *Journal of the European Ceramic Society*, 25(11), 1895–1903.
- Elaine Fung, Y.-L., ve Wang, H. (2013). “Investigation of reinforcement of porous alumina by nickel aluminate spinel for its use as ceramic membrane”. *Journal of Membrane Science*, 444, 252–258.
- Das, N., ve Maiti, H. S. (1998). “Formatation of pore structure in tape-cast alumina membranes – effects of binder content and firing temperature”. *Journal of Membrane Science*, 140(2), 205–212.
- Dong, Y., Feng, X., Dong, D., Wang, S., Yang, J., Gao, J., Liu, X., ve Meng, G. (2007). “Elaboration and chemical corrosion resistance of tubular macro-porous cordierite ceramic membrane supports”. *Journal of Membrane Science*, 304(1–2), 65–75.
- Wang, Y. H., Tian, T. F., Liu, X. Q., ve Meng, G. Y. (2006). “Titania membrane preparation with chemical stability for very hash environments applications”. *Journal of Membrane Science*, 280(1–2), 261–269.
- Bouzerara, F., Harabi, A., Ghouil, B., Medjemem, N., Boudaira, B., ve Condom, S. (2012). “Synthesis and characterization of multilayer ceramic membranes”. *Procedia Engineering*, 33, 78-84.

- Zhou, Y., Fukushima, M., Miyazaki, H., Yoshizawa, Y., Hirao, K., Iwamoto, Y., ve Sato, K. (2011). "Preparation and characterization of tubular porous silicon carbide membrane supports". *Journal of Membrane Science*, 369(1–2), 112–118.
- Belibi Belibi, P., Nguemtchouin, M. M. G., Rivallin, M., Ndi Nsami, J., Sieliechi, J., Cerneaux, S., Ngassoum, M. B., ve Cretin, M. (2015). "Microfiltration ceramic membranes from local Cameroonian clay applicable to water treatment". *Ceramics International*, 41(2), 2752–2759.
- Sahoo, G. C., Halder, R., Jedidi, I., Oun, A., Nasri, H., Roychoudhury, P., Majumdar, S., Bandyopadhyay, S., ve Ben Amar, R. (2016). "Preparation and characterization of microfiltration apatite membrane over low cost clay-alumina support for decolorization of Dye Solution". *Desalination and Water Treatment*, 57(57), 27700–27709.
- Bouzerara, F., Harabi, A., Achour, S., ve Larbot, A. (2006). "Porous ceramic supports for membranes prepared from kaolin and dolomite mixtures". *Journal of the European Ceramic Society*, 26(9), 1663–1671.
- Boudaira, B., Harabia, A., Bouzerara, F., ve Condom, S. (2009). "Preparation and characterization of microfiltration membranes and their supports using kaolin (DD2) and CaCO_3 ". *Desalination and Water Treatment*, 9(1–3), 142–148.
- Bose, S., ve Das, C. (2013). "Preparation and characterization of low cost tubular ceramic support membranes using sawdust as a pore-former". *Materials Letters*, 110, 152–155.
- Issaoui, M., Limousy, L., Lebeau, B., Bouaziz, J., ve Fourati, M. (2016). "Design and characterization of flat membrane supports elaborated from kaolin and aluminum powders". *Comptes Rendus. Chimie*, 19(4), 496–504.
- Zhu, Z., Wei, Z., Sun, W., Hou, J., He, B., ve Dong, Y. (2016). "Cost-effective utilization of mineral-based raw materials for preparation of porous mullite ceramic membranes via in-situ reaction method". *Applied Clay Science*, 120, 135–141.
- Wei, Z., Hou, J., ve Zhu, Z. (2016). "High-aluminum fly ash recycling for fabrication of cost-effective ceramic membrane supports". *Journal of Alloys and Compounds*, 683, 474–480.

- Jedidi, I., Saïdi, S., Khemakhem, S., Larbot, A., Elloumi-Ammar, N., Fourati, A., Charfi, A., Salah, A. B., ve Amar, R. B. (2009). “Elaboration of new ceramic microfiltration membranes from mineral coal fly ash applied to waste water treatment”. *Journal of Hazardous Materials*, 172(1), 152–158.
- Sandhya Rani, S. L., ve Kumar, R. V. (2021). “Insights on applications of low-cost ceramic membranes in wastewater treatment: A mini-review”. *Case Studies in Chemical and Environmental Engineering*, 4, 100149.
- Monash, P., Pugazhenth, G., ve Saravanan, P. (2013). “Various fabrication methods of porous ceramic supports for membrane applications”. *Reviews in Chemical Engineering*, 29(5).
- Das, B., Chakrabarty, B., ve Barkakati, P. (2016). “Preparation and characterization of novel ceramic membranes for micro-filtration applications”. *Ceramics International*, 42(13), 14326–14333.
- Vasanth, D., Uppaluri, R., ve Pugazhenth, G. (2011). “Influence of sintering temperature on the properties of porous ceramic support prepared by uniaxial dry compaction method using low-cost raw materials for membrane applications”. *Separation Science and Technology*, 46(8), 1241–1249.
- Emani, S., Uppaluri, R., ve Purkait, M. K. (2014). “Microfiltration of oil–water emulsions using low cost ceramic membranes prepared with the uniaxial dry compaction method”. *Ceramics International*, 40(1), 1155–1164.
- Bouzerara, F., Harabi, A., ve Condom, S. (2009). “Porous ceramic membranes prepared from kaolin”. *Desalination and Water Treatment*, 12(1–3), 415–419.
- Jana, S., Purkait, M. K., ve Mohanty, K. (2010). “Preparation and characterization of low-cost ceramic microfiltration membranes for the removal of chromate from aqueous solutions”. *Applied Clay Science*, 47(3–4), 317–324.
- Obada, D. O., Dodoo-Arhin, D., Dauda, M., Anafi, F. O., Ahmed, A. S., ve Ajayi, O. A. (2017). “Physico-mechanical and gas permeability characteristics of kaolin based ceramic membranes prepared with a new pore-forming agent”. *Applied Clay Science*, 150, 175–183.

- Nandi, B. K., Uppaluri, R., ve Purkait, M. K. (2008). "Preparation and characterization of low cost ceramic membranes for micro-filtration applications". *Applied Clay Science*, 42(1–2), 102–110.
- Sun, L., Wang, Z., ve Gao, B. (2020). "Ceramic membranes originated from cost-effective and abundant natural minerals and industrial wastes for broad applications – a review". *Desalination and Water Treatment*, 201, 121–138.
- Şan, O., Abalı, S., ve Hoştan. (2003). "Fabrication of microporous ceramics from ceramic powders of quartz–natural zeolite mixtures". *Ceramics International*, 29(8), 927–931.
- Ivanets, A. I., Azarova, Agabekov, V. E., Azarov, S. M., Batsukh, Ch., Batsuren, D., Prozorovich, V. G., ve Rat'ko, A. A. (2016). "Effect of phase composition of natural quartz raw material on characterization of microfiltration ceramic membranes". *Ceramics International*, 42(15), 16571–16578.
- Yu, M., Noble, R. D., ve Falconer, J. L. (2011). "Zeolite membranes: Microstructure characterization and permeation mechanisms". *Accounts of Chemical Research*, 44(11), 1196–1206.
- Baertsch, C. D., Funke, H. H., Falconer, J. L., ve Noble, R. D. (1996). "Permeation of aromatic hydrocarbon vapors through Silicalite–zeolite membranes". *The Journal of Physical Chemistry*, 100(18), 7676–7679.
- Funke, H. H., Argo, A. M., Baertsch, C. D., Falconer, J. L., ve Noble, R. D. (1996). "Separation of close-boiling hydrocarbons with silicalite zeolite membranes". *Journal of the Chemical Society, Faraday Transactions*, 92(13), 2499.
- Hong, M., Falconer, J. L., ve Noble, R. D. (2005). "Modification of zeolite membranes for H₂ separation by catalytic cracking of Methyldiethoxysilane". *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 44(11), 4035–4041.
- Kalipcilar, H., Falconer, J. L., ve Noble, R. D. (2001). "Preparation of B-ZSM-5 membranes on a monolith support". *Journal of Membrane Science*, 194(1), 141–144.
- Peng, W., Chen, Z., Yan, W., Chen, J., Li, G., ve Li, N. (2024). "Periclase-magnesium aluminate spinel ceramics filter with excellent purification efficiency on molten steel

- prepared from $\text{mg}(\text{oh})_2$: Effect of fused mgo content”. *Journal of the European Ceramic Society*, 44(15), 116772.
- Ren, X., Ma, B., Li, S., Li, H., Liu, G., Yang, W., Qian, F., Zhao, S., ve Yu, J. (2020). “Comparison study of slag corrosion resistance of $\text{MgO-MgAl}_2\text{O}_4$, MgO-CaO and MgO-C refractories under Electromagnetic Field”. *Journal of Iron and Steel Research International*, 28(1), 38–45.
- Yu, C., Ding, J., Deng, C., Zhu, H., ve Peng, N. (2018). “The effects of sintering temperature on the morphology and physical properties of in situ Si_3N_4 bonded MgO-C refractory”. *Ceramics International*, 44(1), 1104–1109.
- Ma, B., Zan, W., Liu, K., Mu, X., Deng, C., ve Huang, A. (2023). “Preparation and properties of porous mgo based ceramics from magnesite tailings and fused Magnesia”. *Ceramics International*, 49(11), 19072–19082.
- Peng, W., Chen, Z., Yan, W., Schafföner, S., Li, G., Li, Y., ve Jia, C. (2021). “Advanced lightweight periclase-magnesium aluminate spinel refractories with high mechanical properties and high corrosion resistance”. *Construction and Building Materials*, 291, 123388.
- Peng, W., Chen, Z., Yan, W., Chen, J., Li, G., ve Li, N. (2024a). “Periclase-magnesium aluminate spinel ceramics filter with excellent purification efficiency on molten steel prepared from $\text{Mg}(\text{OH})_2$: Effect of fused MgO content”. *Journal of the European Ceramic Society*, 44(15), 116772.
- Oduro, A. A., Biney, S. A., Nortey, E. S., Kangmenna, A., Forkuo, R. B., ve Agorku, E. S. (2025). “Polyvinyl alcohol embedded activated clay/hydroxyapatite membranes for fouling control during the removal of an organic dye in water”. *Journal of Applied Polymer Science*, 142(14).
- Leonov, V. G., Afonina, G. A., ve Demkin, V. N. (2016). “Preparation of porous periclase ceramic”. *Refractories and Industrial Ceramics*, 56(5), 486–489.
- Kashcheev, I. D., Strelov, K. K., ve Mamykin, P. S. (2007). “Refractory chemical technology. *Intermet Inzhiniring, Moscow*.

- Samadi, A., Gao, L., Kong, L., Orooji, Y., ve Zhao, S. (2022). “Waste-derived low-cost ceramic membranes for water treatment: Opportunities, challenges and future directions”. *Resources, Conservation and Recycling*, 185, 106497.
- Jamalludin, M. R., Hubadillah, S. K., Harun, Z., Othman, M. H., Yunus, M. Z., Ismail, A. F., ve Salleh, W. N. (2020). “Facile fabrication of superhydrophobic and superoleophilic green ceramic hollow fiber membrane derived from waste sugarcane bagasse ash for oil/water separation”. *Arabian Journal of Chemistry*, 13(1), 3558–3570.
- Ahmad, B., Dilshad, M. R., Haider, B., Anwar, M. M., Ali, H., Gilani, S. M., Ahmad, H. B., ve Farooq, M. (2021). “Synthesis of novel fly ash based geo-polymeric membranes for the treatment of textile waste water”. *International Journal of Environmental Science and Technology*, 19(7), 6117–6126.
- Tolba, G. M. K., Bastaweesy, A. M., Ashour, E. A., Abdelmoez, W., Khalil, K. A., ve Barakat, N. A. M. (2016). “Effective and highly recyclable ceramic membrane based on amorphous nanosilica for dye removal from the aqueous solutions”. *Arabian Journal of Chemistry*, 9(2), 287–296.
- Hatimi, B., Mouldar, J., Loudiki, A., Hafdi, H., Joudi, M., Daoudi, E. M., Nasrellah, H., Lançar, I.-T., El Mhammedi, M. A., ve Bakasse, M. (2020). “Low cost Pyrrhotite Ash/clay-based inorganic membrane for industrial wastewaters treatment”. *Journal of Environmental Chemical Engineering*, 8(1), 103646.
- Asif, M. B., ve Zhang, Z. (2021). “Ceramic membrane technology for water and wastewater treatment: A critical review of performance, full-scale applications, membrane fouling and prospects”. *Chemical Engineering Journal*, 418, 129481.
- Samaei, S. M., Gato-Trinidad, S., ve Altaee, A. (2018). “The application of pressure-driven ceramic membrane technology for the treatment of Industrial Wastewaters – A Review”. *Separation and Purification Technology*, 200, 198–220.
- Düppenbecker, B., Engelhart, M., ve Cornel, P. (2017). “Fouling mitigation in anaerobic membrane bioreactor using fluidized glass beads: Evaluation Fitness for purpose of ceramic membranes”. *Journal of Membrane Science*, 537, 69–82.

- Zhang, W., Liu, X., Wang, D., ve Jin, Y. (2017). “Effects of bamboo charcoal on fouling and microbial diversity in a flat-sheet ceramic membrane bioreactor”. *Bioresource Technology*, 243, 1020–1026.
- Tang, S., Zhang, Z., Liu, J., ve Zhang, X. (2017). “Double-win effects of in-situ ozonation on improved filterability of mixed liquor and ceramic UF membrane fouling mitigation in wastewater treatment”? *Journal of Membrane Science*, 533, 112–120.
- Liu, J., He, K., Zhang, J., Li, C., ve Zhang, Z. (2019). “Coupling Ferrate pretreatment and in-situ ozonation/ceramic membrane filtration for wastewater reclamation: Water quality and membrane fouling”. *Journal of Membrane Science*, 590, 117310.
- Shirasaki, N., Matsushita, T., Matsui, Y., Kobuke, M., ve Ohno, K. (2009). “Comparison of removal performance of two surrogates for pathogenic waterborne viruses, bacteriophage Q β and MS2, in a coagulation–ceramic microfiltration system”. *Journal of Membrane Science*, 326(2), 564–571.
- Rat’ko, A. I., Ivanets, A. I., Azarova, T. A., ve Azarov, S. M. (2008a). “Structure and properties of the crystalline-silicon-dioxide-based macroporous ceramics”. *Protection of Metals*, 44(2), 202–207.
- Rat’ko, A. I., Ivanets, A. I., ve Azarov, S. M. (2008b). “Effect of additives on the pore structure of ceramics based on crystalline SiO $_2$ ”. *Inorganic Materials*, 44(7), 778–784.
- Azarov, S. M., Petushik, E. E., ve Azarova, T. A. (2009). “Porous aluminosilicate ceramic”. *Kovcheg, Minsk*, 258.
- Algieri, C., ve Drioli, E. (2021). “Zeolite membranes: Synthesis and applications”. *Separation and Purification Technology*, 278, 119295.
- Xia, Y., Zhang, M., Tsang, D. C., Geng, N., Lu, D., Zhu, L., Igalavithana, A. D., Dissanayake, P. D., Rinklebe, J., Yang, X., ve Ok, Y. S. (2020). “Recent advances in control technologies for non-point source pollution with nitrogen and phosphorous from agricultural runoff: Current practices and future prospects”. *Applied Biological Chemistry*, 63(1).

- Mestre, S., Gozalbo, A., Lorente-Ayza, M. M., ve Sánchez, E. (2019). “Low-cost ceramic membranes: A research opportunity for industrial application”. *Journal of the European Ceramic Society*, 39(12), 3392–3407.
- Rawat, M., ve Bulasara, V. K. (2018). “Synthesis and characterization of low-cost ceramic membranes from fly ash and kaolin for humic acid separation”. *Korean Journal of Chemical Engineering*, 35(3), 725–733.
- Saja, S., Bouazizi, A., Achiou, B., Ouammou, M., Albizane, A., Bennazha, J., ve Younssi, S. A. (2018). “Elaboration and characterization of low-cost ceramic membrane made from natural Moroccan perlite for treatment of industrial wastewater”. *Journal of Environmental Chemical Engineering*, 6(1), 451–458.
- Issaoui, M., Limousy, L., Lebeau, B., Bouaziz, J., ve Fourati, M. (2017). “Manufacture and optimization of low-cost tubular ceramic supports for membrane filtration: Application to algal solution concentration”. *Environmental Science and Pollution Research*, 24(11), 9914–9926.
- Emani, S., Uppaluri, R., ve Purkait, M. K. (2013). “Preparation and characterization of low cost ceramic membranes for mosambi juice clarification”. *Desalination*, 317, 32–40.
- Roque-Malherbe, R., del Valle, W., Marquez, F., Duconge, J., ve Goosen, M. F. (2006). “Synthesis and characterization of zeolite based porous ceramic membranes”. *Separation Science and Technology*, 41(1), 73–96.
- Hristov, P., Yoleva, A., Djambazov, S., Chukovska, I., ve Dimitrov, D. (2012). “Preparation and characterization of porous ceramic membranes for micro-filtration from natural zeolite”. *Journal of the University of Chemical Technology and Metallurgy*, 47(4), 476-480.
- Dong, Y., Chen, S., Zhang, X., Yang, J., Liu, X., ve Meng, G. (2006). “Fabrication and characterization of low cost tubular mineral-based ceramic membranes for micro-filtration from natural zeolite”. *Journal of Membrane Science*, 281(1-2), 592-599.
- Zhang, X., Meng, G., ve Liu, X. (2007). “Preparation and characterization of tubular porous ceramics from natural zeolite”. *Journal of Porous Materials*, 15(1), 101–106.
- Adam, M. R., Salleh, N. M., Othman, M. H., Matsuura, T., Ali, M. H., Puteh, M. H., Ismail, A. F., Rahman, M. A., ve Jaafar, J. (2018). “The adsorptive removal of chromium

- (VI) in aqueous solution by novel natural zeolite based hollow fibre ceramic membrane”. *Journal of Environmental Management*, 224, 252–262.
- Gorea, M., Naghiu, M.-A., Avram, A., Petean, I., Mocanu, A., ve Tomoaia-Cotisel, M. (2020). “Novel porous forsterite ceramics biocompatibility and bioactivity evaluation”. *Revista de Chimie*, 71(2), 343–351.
- Pagliari, L., Dapiaggi, M., Pavese, A., ve Francescon, F. (2013). “A kinetic study of the quartz–cristobalite phase transition”. *Journal of the European Ceramic Society*, 33(15–16), 3403–3410.
- Zeren, N., Abalı, S., (2025), “Effect of synthesis conditions on cristobalite crystallization in low-cost ceramic membranes”. *Journal of Ceramic Processing Research*, Accepted.
- Song, H., Xuan, W., Zhou, X., Chen, P., Wang, B., Yang, Z., Tu, T., ve Ren, Z. (2025). “Effect of MgO on phase transformation and microstructural properties of silica-based ceramic cores”. *Ceramics International*. In Press, Corrected Proof.
- Sing, K. S. (1985). “Reporting physisorption data for gas/solid systems with special reference to the determination of surface area and porosity (recommendations 1984)”. *Pure and Applied Chemistry*, 57(4), 603–619.