

Jeopolimer esaslı gözenekli hafif yapı malzemelerinin geliştirilmesi

Tuna AYDIN^{*1}, Zuhtu Onur PEHLİVANLI²,

¹ Kırıkkale Üniversitesi, Metalurji ve Malzeme Mühendisliği Bölümü, Kırıkkale

² Kırıkkale Üniversitesi, Metalurji ve Malzeme Mühendisliği Bölümü, Kırıkkale

Makale Gönderme Tarihi: 01.09.2016

Makale Kabul Tarihi: 29.11.2016

Öz

Ülkemizde yapı-inşaat sektöründe yapı malzemesi olarak çoğunlukla bims, gazbeton ve tuğla tercih edilmektedir. Bu üç yapı malzemesi arasında mekanik özellikler açısından en iyi olan tuğla olmasına rağmen ısıl iletkenlik katsayısı diğer malzemelere kıyasla çok yüksektir bu yüzden de kullanımı giderek azalmaktadır. Bims ve gaz beton yeni kuşak yapı malzemesi grubunda yer almaktadırlar ve mekanik mukavemet değerleri tuğla kadar yüksek olmamasına rağmen ısıl iletkenlikleri çok daha düşük olması nedeni ile giderek daha fazla tercih edilmektedirler. Bu çalışmada termik santral uçucu külleri kullanarak elde edilen jeopolimerler replikasyon yöntemi ile şekillendirilerek, ısıl iletkenlik katsayısı düşük alternatif bir hafif yapı malzemesi geliştirilmesi üzerine çalışılmıştır. Bu geliştirilen bu hafif malzeme ile hem ısıl iletkenliği diğer malzemelerden daha düşük hem de mekanik mukavemet değerleri daha yüksek alternatif bir hafif yapı malzemesi geliştirilmesi amaçlanmıştır.

Anahtar Kelimeler: Jeopolimer; ısıl iletkenlik; porozite; yapı malzemesi;

*Yazışmaların yapılacağı yazar: Tuna Aydın, tunaaydin@kku.edu.tr; Tel: (318) 357 42 42 (1287)

üzerine olan etkisi incelenmiştir. Kullanılan hammaddelerin kimyasal analizleri XRF (Rigaku ZSX Pirumus, Anadolu Üniversitesi) cihazı ile incelenmiştir. Mineralojik faz analizleri ise XRD cihazında (Panalytical Empyrean, Bülent Ecevit Üniversitesi) 2 theta difraksiyon açısı ile 5-55° desen aralığında gerçekleştirilmiştir. Mikroyapı ve EDX analizleri ise taramalı elektron mikroskobu (Quanta 450 Field Emission Gun

(FEG), Bülent Ecevit Üniversitesi) ile yapılmıştır. Numunelerin ısı iletkenlik katsayıları TS EN 1946-1 de açıklanan yöntem ile kararlı hal ısı akış koşullarında ısı akış metre (Lasercomp Heat Flow Meters Fox 50, Kırıkkale Üniversitesi) yöntemi ile belirlenmiştir. Basma dayanımları Instron 500 (Kırıkkale Üniversitesi) marka çok amaçlı test cihazı ile tespit edilmiştir.

Uygulama ve Başarımlar

Kimyasal analiz

Jeopolimer eldesinde kullanılan uçucu kül, metakaolen ve kuvars hammaddelerine ait kimyasal analiz sonuçları Tablo 1 de verilmiştir.

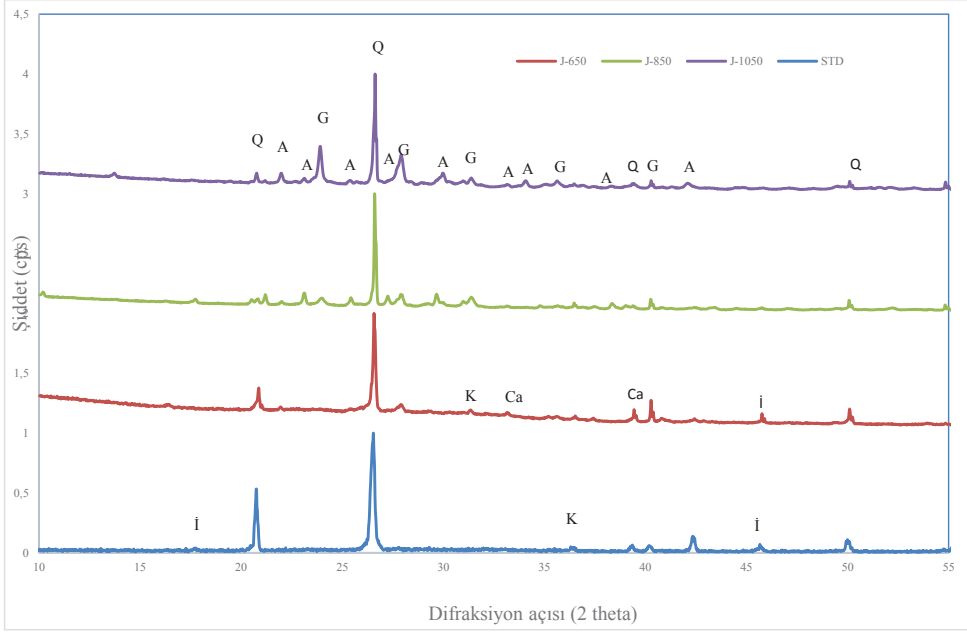
Tablo 1. Uçucu kül, metakaolen ve kuvars hammaddelerine ait kimyasal analiz sonuçları

	Al ₂ O ₃	SiO ₂	Na ₂ O	K ₂ O	Fe ₂ O ₃	CaO	TiO ₂	SO ₃	MgO	P ₂ O ₅	Kızdırma Kaybı
Uçucu kül	22.8	34.9	0.39	1.2	5.34	27.3	0.64	3.4	1.75	0.1	3.0
Kuvars	0.73	97.6	0.01	-	0.18	0.10	0.03	-	-	-	0.4
Metakaolen	40.23	56.17	0.24	0.51	0.85	0.19	0.55	-	0.16	-	1.10

Faz analizleri

Jeopolimer bünyelere yapılan faz analizleri sonuçları Şekil 1 de verilmiştir. Standart jeopolimer numunesi (ısıtılmış işlem görmemiş) ve 650°C'ye kadar ısıtılmış J-650 numunesi kuvars, kireçtaşı, kalsit ve illitik bir alümina-silikat içermektedir. Uygulanan ısıtma rejimi neticesinde sıcaklık artışı ile beraber Jeopolimer bünyelerde yeni fazların oluştuğu tespit edilmiştir. J-850, J-1050 bünyelerinde quartz, anortit ve gehlenit fazlarının oluştuğu görülmektedir. Özellikle uçucu külden gelen (Tablo1) CaO içeriğinin mineralojik yapı üzerinde önemli bir etkisi olmuştur. 700°C'nin üzerinde karbonat içeriklerinin (Kalsit ve Kireçtaşı) parçalanması ile CaO oluşmaktadır.

Gehlenit fazı 800 °C de oluşur. Sıcaklık artışı ile 900 °C ve üzerinde ise Şekil 1 de görüldüğü üzere birincil anortit (CaO.Al₂O₃.2SiO₂) fazları oluşmaktadır (Vodova vd, 2006; Cultrone vd, 2004). Anortit oluşumu için kalsiyum oksit kaynakları (Kalsit ve kireçtaşı v.b.) ve alümina ve silika kaynakları (metakaolen, kil, kaolen, kuvars v.b) gereklidir (Taskiran vd, 2005). Bu çalışmada uçucu külden gelen kireçtaşı ve kalsit ile beraber kullanılan metakaolen ve kuvars anortit ve gehlenit oluşumunu sağlamıştır. Xrd analizinde görüldüğü üzere kuvars piklerindeki azalma ile anortit ve gehlenit piklerindeki artış bunu desteklemektedir. İlk olarak metakaolen (Al₂O₃.2SiO₂) ve CaO den gehlenit oluşur. Daha sonra ise gehlenit, metakaolen ve kuvarstan anortit oluşmaktadır (Sousa vd, 2005).



Şekil 1. Jeopolimer bünyelerine ait XRD grafikleri, Q: kuvars, A:anortit, G:gehlenit, İ:illitlik alümina silikat, Ca: kalsit ve K: kireçtaşı

Teknolojik özellikler

Jeopolimer bünyelerine ait teknolojik özellikler Tablo 1 de verilmiştir. Standart bünnyeye kıyasla bakıldığında replikasyon yöntemi ile süngere emdirilerek şekillendirmesi yapılan "J" kodlu bünyelerde süngerin 600 °C de bünnyeden uzaklaşması ile yapıda oluşan yüksek miktardaki gözeneklilik ortaya çıkmıştır. Bu gözeneklilik sonucunda da yığın yoğunluklarda ve basma mukavemetlerinde azalma olmuştur. Kırıkkale Üniversitesi Makine Mühendisliği Bölümü laboratuvarında 0.5 mm/dakika yükleme hızı ile

yapılan basma mukavemeti değerleri incelendiğinde de görüldüğü üzere sıcaklık artışı ile "j" serisi bünyelerde kendi içlerinde mukavemet artışı meydana gelmiştir. Mukavemet artışındaki ana neden yoğunluğun artması bununla beraber gözenek miktarındaki azalma olmakla beraber en önemli neden XRD analizinden de tespit edildiği üzere anortit ve gehlenit gibi mukavemet artışına neden olan fazların oluşmasıdır. Kristal faz miktarındaki artış mukavemet artırıcı yönde etki yapmaktadır (M. U. Taskiran vd, 2005)

Tablo 2. Teknolojik özellikler

	Su emme (%)	Yığın yoğunluğu gr/cm ³	Gözeneklilik			Basma dayanımı (N/mm ²)
			Açık porozite (%)	Kapalı porozite (%)	Toplam porozite (%)	
STD	17.20	1.6264	27.97	8.25	36.22	14.864
J-650	40.58	1.3411	54.43	0.27	54.69	8.756
J-850	37.29	1.3868	51.71	1.90	53.62	10.756
J-1050	36.86	1.3937	51.37	2.02	53.39	11.869

Isıl iletkenlik

Köpük yapısındaki jeopolimerlerin ısı iletkenlikleri gözenek yapıları ile ilişkilidir. Gözenek boyutu, şekli, hacmi ve sayısının kontrolü ile termal iletkenlik değerlerinde önemli miktarda düşüş sağlanabilir (Azimi vd, 2016). Tablo 3 de numunelere ait ısı iletkenlik sonuçları verilmiştir. Tablo 2 de açık gözeneklilik ve yığın yoğunluk değerlerinden de görüldüğü üzere standart bünyeye kıyasla, replikasyon (kopyalama) yöntemi ile köpük haline getirilmiş J-650, J-850 ve J-1050 numunelerinde açık gözeneklilikteki artış sonucunda ısı iletkenlik değerlerinde önemli miktarda azalma tespit edilmiştir. Ancak ısı iletkenlik değeri açısından içlerinde en uygun olan bünye J-650 bünyesidir. Pişirim sıcaklığındaki artışa bağlı olarak gözeneklerin birbirine yaklaşması ve gözenek boyutlarında ve miktarındaki düşüş neticesinde (yoğunluk artışı) ısı iletkenlik değerlerini arttırmıştır (Koç vd, 2014). Tablo 4 de hali hazırda piyasada kullanılmakta olan diğer malzemelere ait ısı iletkenlik değerleri verilmiştir. Bu malzemelere kıyasla jeopolimer esaslı köpük malzemenin çok daha düşük ısı iletkenlik değerine sahip olduğu tespit edilmiştir.

Tablo 3. Isıl iletkenlik

	Isıl iletkenlik değeri W/m.K
STD	0.3412
J-650	0.1196
J-850	0.1433
J-1050	0.2669

Tablo 4. Bazı yapı malzemelerine ait Isıl iletkenlik değerleri (EN 1745)

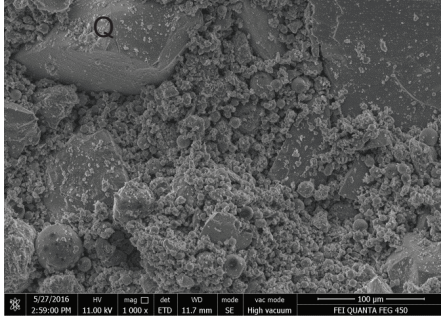
	Yoğunluk kg/m ³	Isıl iletkenlik değeri W/m.K
Gaz beton	1000	0.24-0.26
Bims	1100	0.30-0.32
Tuğla	1600	0.42-0.45

Mukavemet değerlerinin artması için daha yüksek sıcaklıklarda pişirim gerekmektedir. Bu durum yoğunluk artışına bağlı olarak ısı iletkenliklerin de artmasına neden olmaktadır. Ancak 650 °C gibi düşük bir sıcaklıkta ısı işlem görmüş J-650 numunesinden elde edilen en düşük basma mukavemeti değeri (8.756 N/mm²) bile gaz beton, bims ve tuğla ürünlerinden standartlarda istenen en alt limitleri zaten sağlamaktadır.

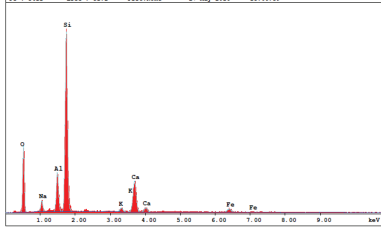
Mikroyapı analizi (SEM-EDX)

Şekil 2, 4, 6 ve 8 standart ve replikasyon yöntemi ile elde edilmiş numunelere ait mikroyapı görüntülerini göstermektedir. Şekil 3, 4, 5 ve 6 numunelere ait EDX sonuçlarını göstermektedir. Jeopolimer malzemelerde mikroyapı termal iletkenlik özelliklerini etkilemektedir. Burada en önemli nokta jel fazının bağlanma miktarıdır (Duxson vd, 2006). Şekil 2 standart bünyeye ait mikroyapı görüntüsünde jel yapısı içinde gömülü olarak kuvars kristalleri görülmektedir. Geniş

alan EDX analizi sonucu Şekil 3’de verilmiştir. EDX analizi sonucunda tespit edilen Na^+ iyonları uçucu kül ve NaOH den, Ca^{+2} iyonları kalsit ve Kireçtaşından, Al^{+3} ve Si^{+2} iyonları ise metakaolenden gelmektedir.



Şekil 2. Standart bünyeye ait SEM görüntüsü

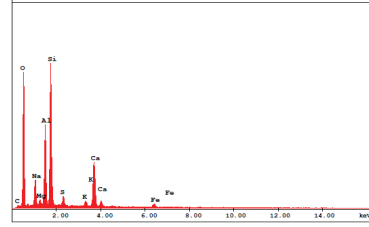


Şekil 3. Standart bünyeye ait EDX analizi

Şekil 4’de J-650 bünyesine ait mikroyapı görüntüsü verilmiştir. Standart bünyeye benzer şekilde jel yapısı içinde gömülü olarak kuvars kristalleri görülmektedir. J-650 bünyesine ait geniş alan EDX analizi sonucu Şekil 5’de verilmiştir. EDX analizi sonucunda tespit edilen Na^+ iyonları uçucu kül ve NaOH den, Ca^{+2} iyonları kalsit ve Kireçtaşından, Al^{+3} ve Si^{+2} iyonları ise metakaolenden gelmektedir.

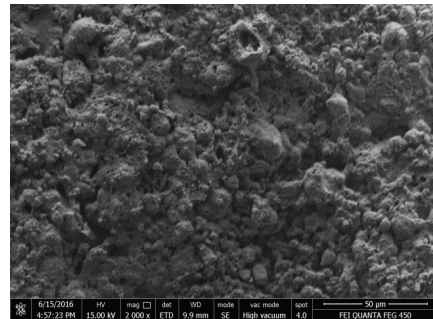


Şekil 4. J-650 bünyesine ait SEM görüntüsü

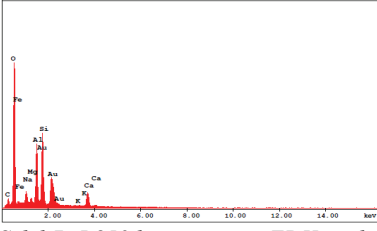


Şekil 5. J-650 bünyesine ait EDX analizi

Şekil 6’da J-850 bünyesine ait mikroyapı görüntüsü verilmiştir. Kuvars kristalleri ile beraber gehlenit fazı da görülmektedir. J-850 bünyesine ait geniş alan EDX analizi sonucu Şekil 7’de verilmiştir. EDX analizi sonucunda tespit edilen Ca^{+2} iyonları kalsit ve Kireçtaşının bozunması sonucu oluşan CaO ve gehlenit fazlarından, Al^{+3} ve Si^{+2} iyonları ise metakaolenden gelmektedir.

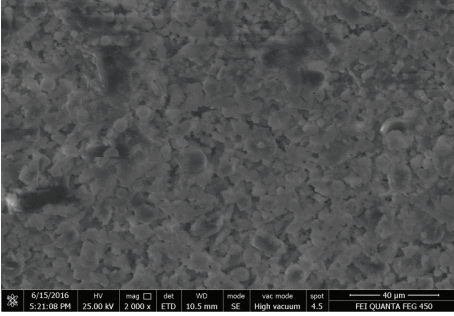


Şekil 6. J-850 bünyesine ait SEM görüntüsü

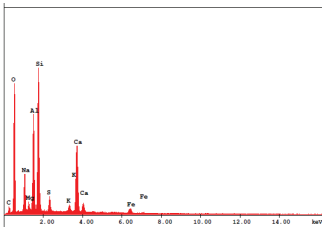


Şekil 7. J-850 bünyesine ait EDX analizi

Şekil 8’de J- 1050 bünyesine ait mikroyapı görüntüsü verilmiştir. Kuvars kristalleri ile beraber anortit fazı da görülmektedir. Gehlenit fazının oluşumundan sonra 900 °C nin üzerinde gehlenit kuvars ve metakaolenden anortit oluşmaya başlamıştır. J- 1050 bünyesine ait geniş alan EDX analizi sonucu Şekil 9’de verilmiştir. EDX analizi sonucunda tespit edilen Ca^{+2} iyonları CaO ve gehlenit fazlarından oluşan anortit, Al^{+3} ve Si^{+2} iyonları ise metakaolenden gelmektedir.



Şekil 8. J-1050 bünyesine ait SEM görüntüsü



Şekil 9. J-1050 bünyesine ait EDX analizi

Sonuçlar ve Tartışma

Bu çalışmada, replikasyon yöntemi ile süngere emdirilerek şekillendirilen jeopolimerlerin belirli sıcaklıklarda sinterlenmesi ile hafif malzeme üretimi araştırılmıştır. Malzemelerin gözenekliliği, su emmesi, yığın yoğunluğu, belirlenmiş, faz oluşumları ve mikroyapıları incelenmiştir.

Replikasyon yöntemi ile üretilen jeopolimer malzemelerin gözeneklilik değerlerinde artış elde edilmiştir. Sinterleme sıcaklığının artması ile de gözeneklilik değerlerinde azalma meydana gelmiştir. Geliştirilen jeopolimer malzemelerin 850 °C ve 1050 °C’ de sinterlenmesi sonucunda kuvars, gehlenit ve anortit gibi fazların oluştuğu tespit edilmiştir.

Replikasyon yöntemi ile üretilen jeopolimerlerin sinterlenmesi sonucunda standart jeopolimere kıyasla daha gözenekli malzemelerin üretimi gerçekleştirilmiştir. Gözenek miktarındaki bu artış ısı iletkenlik değerlerinde önemli derecede azalma sağlamıştır. Isıl iletkenlik değerleri açısından en düşük iletkenliğe sahip bünye J-650 bünyesidir. Sinterleme sıcaklığının artması yoğunlaşmanın da artmasını sağlayarak gözenek miktarında azalmaya neden olmuştur. Bu durum ısı iletkenlik değerlerinde bir miktar artışa sebep olmuştur.

Bu çalışma özellikle alternatif yapı malzemesi geliştirilmesine yönelik çok önemli katkılar sağlamıştır. Replikasyon yönetimi jeopolimerlerin ısı iletkenliğinin düşürülmesi için önemli katkılar sağlamakla beraber farklı yöntemlerinde kullanılması ile ısı iletkenlikteki azalmanın daha da düşürülebileceğini göstermiştir. Bu çalışmanın devamına yönelik olarak köpük oluşumuna destek verecek yardımcı malzemeler (hidrojen per oksit ve Alüminyum tozu gibi) kullanımı ile hafif jeopolimer malzemelerin geliştirilmesi çalışmaları devam etmektedir.

Standartlarda 0.065 W/m K ısı iletkenlik deęerinin üstündeki ürünler yapı malzemesi olarak sınıflandırılırken, 0.065 W/m K'nin altında ısı iletkenlik deęerine sahip malzemeler yalıtım malzemesi olarak sınıflandırılmıştır. Ürünün hali hazırda bu aşamada da piyasada ısı iletkenlik deęeri 0.065 W/m K nin üstünde olduğundan dolayı gaz beton, bims ve tuęla gibi yapı malzemesi olarak yer bulabileceęi düşünülmektedir. Yapılmakta olan geliştirme çalışmaları neticesinde mukavemet ve ısı özelliklerinin geliştirilmesi hedeflenmektedir ve ürünün ısı iletkenlik deęerinin 0.065 W/m K nin altına indirilmesi sağlanarak EPS gibi yalıtım malzemesi sınıfında da yer bulabilmesi çalışmaları devam etmektedir.

Kaynaklar

- Azimi E.A., Abdullah M.M.A.B., Ming L.Y., Yong H.C., Hussin, Aziz I.H., (2016) Processing and properties of geopolymers as thermal insulating materials: a review, *Rev. Adv. Mater. Sci.* **44**, 273-285
- Bakharev T., (2006). Geopolymeric materials prepared using class F fly ash and elevated temperature curing, *Cem. and Conc. Research*, **36**, 1134-1147
- Cultrone G., Sebastian, E., Elert K., Torre M.J. de la, Cazalla O., Rodriguez-Navarro C., (2004). Influence of mineralogy and firing temperature on the porosity of bricks, *J. Eur. Ceram. Soc* **24** 547-564.
- Duxson P., Lukey G.C., Van Deventer J.S.J. (2006). Thermal conductivity of metakaolin geopolymers used as a first approximation for determining gel interconnectivity,, *Ind. Eng. Chem. Res.*, **45**, 7781-7788
- Güler G., Güler E., İpekoęlu Ü., Mordoęan H., (2005). Uçucu küllerin özellikleri ve kullanım alanları, Türkiye 19. Uluslararası Madencilik Kongresi ve Fuarı, IMCET2005.
- Koç M., Zeybek M.S., (2014). Kalsit ilaveli jeopolimer malzemeleri sinterlemenin gözeneklilięe etkileri C.B.Ü. Fen Bilimleri Dergisi ISSN 1305-1385 C.B.U. Journal Of Science, **10.1**, 25– 31
- Komnitas K., Zaharaki D., (2007). Geopolymerization: a review and prospects for the minerals industry", *Mineral Engineering*, **20**, 1261-1277
- Sousa S.J.G., Holanda J.N.F., (2005). Sintering behavior of porous wall tile bodies during fast single-firing process, *Mat. Res.* **8**, 197-200
- Taskiran M.U., Demirkol N., Capoglu A., (2005). A new porcelainised stoneware material based on anorthite, *Journal of the European Ceramic Society* **25**, 293–300
- Topçu İ.B., Toprak M.U., (2009). Alkalilerle aktive edilen taban küllü hafif harç üretimi, Eskişehir Osmangazi Üniversitesi Mühendislik Mimarlık Fakültesi Dergisi Cilt: XXII, Sayı:2
- Van Jaarsveld J.G.S., Van Deventer J.S.J. and Lorenzen L. (1997). The potential use of geopolymeric materials to immobilise toxic metals: part 1. Theory and applications *Minerals Engineering*, **10**, No. 7, 659-669
- Vodova L. Sokolar R., Hroudova J., (2014). The Effect of aO Addition on Mechanical Properties of Ceramic Tiles, *International Journal of Civil, Environmental, Structural, Construction and Architectural Engineering* **8**, 6, 717-720
- Xu H., Van Deventer J.S.J., (2000). The geopolymerisation of alumino-silicate minerals, *Int. J. Miner. Process.*, **59**, 247–266

Development of porous lightweight geopolymer construction materials

Extended abstract

Autoclaved aerated concrete, pumice blocks and clay-bricks are mainly preferred as construction materials in our country. Although clay-brick has superior mechanical properties among these three construction material, its thermal conductivity coefficient is higher. Aerated concrete and pumice blocks are new generation construction materials and their mechanical properties lower than clay-bricks. However, thermal conductivity coefficients of these materials are much lower than clay-bricks. Therefore, they are increasingly more preferred. In this study, fly ash from power plant was used for geopolymer production. Geopolymers were shaped using replication method. Therefore, an alternative construction material with lower thermal conductivity was investigated. Investigated geopolymers were subjected to three different temperatures (650, 850 and 1050°C). The effects of sintering temperatures on geopolymerization and thermal conductivity were investigated.

In this study, Fly ash was supplied from Soma powerplant, in Manisa. NaOH was used for alcali activation. Metakolin was used for supporting geopolymerization and was supplied from Kaolin Endüstriyel Mineraller Co., in Istanbul. Metakalolin was also used as a source of Alumina-Silicate. Kuvars was supplied from Refsan Co., in Kutahya. Specimens were obtained by coating on polymer sponge by the dipping technique (replication method). Replication method provides increase in water absorption and porosity. Because sponge removed from body at 650°C. The increase in porosity with removing of sponge ensures decrease in thermal conductivity of investigated geopolymers (J-650, J-850 and J-1050) compared to standard geopolymer body. However, increases in sintering temperatures have negatively effect on thermal conductivity. As the sintering temperature increase, thermal conductivity increases, due to increased densification. Densification resulted in decrease in porosity of investigated bodies. Increase in sintering temperature was also responsible for new phase formations such as gehlenite and anorthite. New phases, gehlenite and anorthite, ensure an increase in mechanical strength. Microstructural analyses were conducted by scanning electron microscope and energy-dispersive X-ray spectroscopy (SEM-EDX).

According to SEM and EDX figures of J-650, Quartz crystals embedded in a gel structure. Na⁺ was obtained from flyash and NaOH, Ca⁺² was obtained from calcite and limestone, Al⁺³ and Si⁻² were obtained from metakaolin. SEM and EDX figures of J-850 and J-1050 show quartz, gehlenite and anorthite crystals embedded in a gel structure. Ca⁺² was obtained from gehlenite and anorthite. Gehlenite and anorthite was formed by decomposition of calcite and limestone.

Therefore, this study shows that replication method for lightweight geopolymer construction materials is suitable. Alternative studies on foaming of geopolymers are important to decrease thermal conductivity of geopolymers. Studies are ongoing on the alternative materials (H₂O₂ and Aluminium powder) which will support the formation of foam.

Keywords: Geopolymer, thermal conductivity, porosity, construction materials.