سنتز فاز مولایت و اثر تراکم اولیه بر خواص فیزیکی آن با روش گرمادهی به‌کمک ماکروویو

محمدحسن صرافی*، تورج عبادزاده و اسماعیل صلاحی

پژوهشگاه مواد و انرژی

تاریخ ثبت اولیه: ۱۳۸۸/۲/۶، **تاریخ دریافت نسخهٔ اصلاح‌شده:** ۱۳۸۸/۴/۸، **تاریخ پذیرش قطعی:** ۱۳۸۷/۸/۲۸

چکیده در این مقاله، از رس ایرانی و آلومینا برای سنتز فاز مولایت استفاده شد و اثر تراکم اولیه بر رفتار تف‌جوشی آن به‌روش گرمادهی به‌کمک ماکروویو بررسی شد. درطی آزمایش‌های انجام‌شده، تغییرات فازی و ویژگی‌های فیزیکی پس از پخت در نمونه‌های بالک براساس تغییرات دما، زمان پخت و نیروی پرس اعمالی ارزیابی شدند. نتایج نشان می‌دهند که تشکیل فاز مولایت بعداز ۲۰ دقیقه گرمادهی کامل می‌شود و در این مدت، چگالی ۲/۲۳(gr/cm^3) و تخلخل ۲۹/۷ درصد حجمی و انقباض پس‌از پخت ۵/۵ درصد است. افزایش فشار شکل‌دهی از ۱ به ۴ تن، موجب افزایش چگالی به ۲/۳۱ (gr/cm^3) می‌شود و درصد تخلخل و انقباض به ۲۶/۱ و ۴/۳ درصد کاهش می‌یابد. افزایش نیروی پرس نیز باعث بالارفتن تراکم و یکنواخت‌ترشدن ریزساختار بدنهٔ مولایت می‌شود.

کلمات کلیدی فاز مولایت، تراکم اولیه، خواص فیزیکی، ماکروویو.

M.H. sarrafi, T. Ebadzadeh and E. Salahi

Materials and Energy Research Center

Abstract In the present article, Iranian clay and alumina was used as the starting materials to synthesis mullite phase by microwave heating process. Phase investigations and physical characteristics of sintered samples at different heating temperatures and times, and forming forces were determined. XRD results showed that mullitization was completed after heating for 20 minutes. Density, porosity and shrinkage of sintered samples were measured to be 2.23 g/cm^3, 29.7% and 5.5%, respectively. The increase of forming force from 1 to 4 ton increased the density of sintered samples to 2.31 g/cm^3 and decreased porosity and shrinkage to 26.1% and 4.3%, respectively. By increasing the forming force, the microstructure of sintered samples became more homogeneous.

Keywords Microwave Sintering , Mullite, Iranian Clay, Mullitization, Compaction.

* **عهده‌دار مکاتبات**

نشانی: کرج، مشکین دشت، پژوهشگاه مواد و انرژی.

تلفن: ۰۲۶۱_۶۲۸۴۸۰۰۴۰، **دورنگار:** ۰۲۶۱_۶۲۸۴۸۰۰۴۲، **پیام‌نگار:** m-sarrafi@merc.ac.ir

۱_ مقدمه

مولایت با فرمول $3Al_2O_3.2SiO_2$ تنها ترکیب پایدار در سیستم دوجزئی SiO_2-Al_2O_3 به‌شمار می‌رود که در طبیعت در محیط معمولی تشکیل می‌شود و به ندرت به‌صورت مادهٔ معدنی قابل استخراج یافت می‌شود. اما معادن کائولن و بوکسیت که از مواد اولیه متداول در سنتز مولایت هستند، به‌وفور در مناطق مختلف زمین تشکیل و اغلب به‌شکل معادن روباز استخراج می‌شوند [۱]. مولایت به‌علت داشتن خواص فیزیکی و شیمیایی مطلوب، در صنایع مختلف به‌ویژه در صنعت تولید دیرگدازهای سرامیکی به‌کار می‌رود [۲].

بررسی‌ها نشان داده است، گرمای ایجاد شده با انرژی ماکروویو توان بالایی برای سنتز یکنواخت و سریع مواد سرامیکی دارد. برخلاف انرژی امواج فروسرخ که در ابتدای فرآیند پخت ازطریق سطح جسم جذب و درصورت هادی بودن ماده به‌تدریج به عمق آن نفوذ می‌کند، انرژی امواج ماکروویو از آغاز تابش به‌طور مستقیم از درون ماده جذب می‌شود. علت این امر ضریب یا تانژانت اتلاف[1] مواد سرامیکی است که با ازدیاد دما افزایش می‌یابد و شرایط اتلاف حرارتی را فراهم می‌کند. درحالت کلی و درمورد مواد سرامیکی نیز اتلاف حرارتی تابعی از ویژگی‌های دی‌الکتریک مادهٔ تشکیل‌دهنده است. به‌علاوه وضعیت مادهٔ سرامیکی ازنظر اندازهٔ ذرات ، تخلخل و چگالی در جذب امواج ماکروویو موثر است [۳].

اگرچه درخصوص سنتز مولایت به‌روش‌های کلاسیک و در شرایط متعارف و با کوره‌های الکتریکی تاکنون کارهای تحقیقاتی زیادی صورت گرفته و مقالات زیادی منتشر شده است، ولی درمورد سنتز این دیرگداز با انرژی ماکروویو تحقیقات انجام شده محدودتر است. باید توجه کرد که، سنتز مولایت به‌کمک امواج ماکروویو از جنبه‌های مختلف تحقیقاتی اهمیت دارد؛ برای مثال در تحقیق پنرسلرام[2] [۴]، مولایت حاصل از سنتز کائولینیت و آلومینا ازنظر ساختاری مورد توجه قرار گرفته و تبدیل Al-اکتائدر به Al-ترائدر در شبکهٔ مولایت بررسی شده است و در مقالهٔ دیگر، ژانگ[3] و همکارانش [۵]، ارتباط بین خاصیت نفوذپذیری الکتریکی امواج ماکروویو و ترکیب مولایت را بررسی کرده‌اند.

۲_ نحوهٔ انجام آزمایش

۲_۱_ مواد اولیه و آماده‌سازی

ماده اولیه برای سنتز مولایت کائولن ایرانی (معدن زنوز) و آلفا-آلومینای ژاپنی با مشخصات ترکیبی جدول ۱ است.

ابتدا مقادیر معینی از پودر کائولن و آلومینا، توزین شد و پس از آمیخته‌شدن، به بشری محتوی ۱۰۰ میلی‌لیترآب مقطر انتقال یافت. سپس بشر محتوی دوغاب برروی گرم‌کن الکتریکی مجهز

جدول ۱. ترکیب شیمیایی مواد اولیه استفاده‌شده در سنتز مولایت به‌کمک گرمادهی ماکروویو.

اکسید+ ماده اولیه	Al_2O_3%	SiO_2%	Fe_2O_3%	TiO_2%	CaO%	MgO%	K_2O%	Na_2O%	L.O.I
کائولن	۳۹/۲۲	۴۸/۴۶	۰/۲	۰/۲	۰/۵	۰/۳	۱/۱	–	۹/۹
آلومینا	۹۸/۷	۷/۰۷	۰/۰۳۵	۰/۰۱۵	۰/۰۴	–	–	۰/۴۳	۰/۷

1. Loss Tangent.
2. Pannerselram.
3. Zhang.

به هم‌زن مغناطیسی قرارگرفت. در مرحله بعد، اعمال گرما به دوغاب همراه‌با چرخش آن تا خشک‌شدن کامل محتوی بشر ادامه یافت. پس‌از تهیه پودر اولیه ، از یک قالب فولادی به قطر ۱۰ میلیمتر و پرس هیدرولیک دستی برای تهیه نمونه‌های بالک استفاده شد. دراین مرحله مقدار ۰/۳ گرم پودر داخل قالب فولادی ریخته شد و تحت نیروی پرس اعمالی ۱ تا ۴ تن، نمونه های خام تهیه شدند.

۲_۲_ عملیات حرارتی

برای سنتز مولایت از یک سیستم ماکروویو خانگی با توان ۹۰۰ وات استفاده شد. همچنین از یک محفظهٔ کاربید سیلیکون برای جذب امواج ماکروویو، استفاده شد. هنگام انجام عملیات گرمادهی، این محفظه در داخل عایق آلومینایی قرار گرفت. برای کنترل دمای ماکروویو، از یک ترموکوپل ۱۳٪Rh استفاده شد که ازطریق بدنهٔ محفظه ماکروویو در داخل کوره و نزدیک به جا نمونه ای تعبیه شد. عملیات حرارتی در محیط معمولی صورت گرفت.

۲_۳_ بررسی های فازی و ریز ساختاری

بررسی های فازی و ریزساختاری به ترتیب با دستگاه پراش پرتو ایکس(XRD)مدل SimensD-500، و میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM) مدل Cambridge Stereo Scan 360 انجام شد.

۲_۴_ بررسی خواص فیزیکی

اندازه‌گیری چگالی بالک، درصد حجمی تخلخل و انقباض پس‌از پخت نمونه‌های بالک با روش استاندارد ASTM C373 انجام شد.

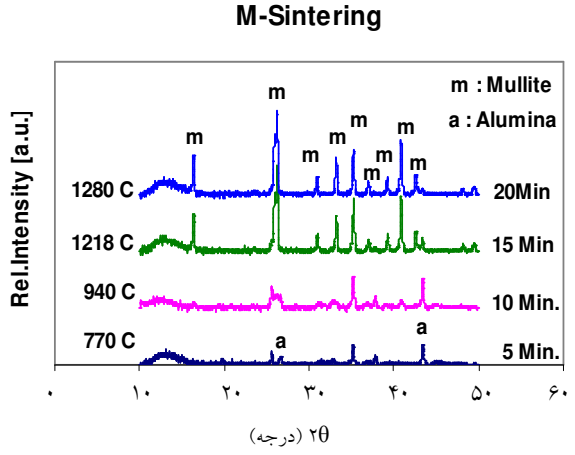
۳_ نتایج و بحث

۳_۱_ تأثیر دما وزمان پخت برروی تشکیل فاز

در شکل ۱ الگوهای پراش پرتوایکس به‌دست‌آمده از نمونه‌های بالک با نیروی پرس ۱ تن آمده است. نمونه‌ها در محدودهٔ زمانی ۵ تا ۲۰ دقیقه، در محدوده دمایی ۷۷۰ تا ۱۲۸۰° C تف‌جوشی شدند. با افزایش دما و زمان پخت، شدت پیک‌های فاز مولایت زیاد شد و تشکیل فاز مولایت به‌سمت کامل‌شدن پیش رفت و از شدت پیک‌های آلومینا کاسته شد.

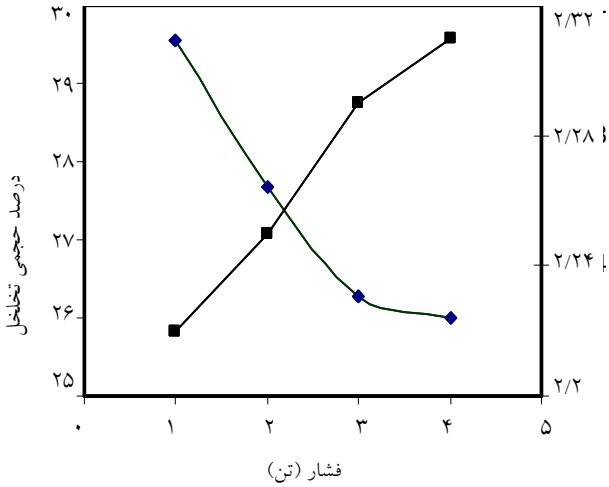
۳_۲_ تأثیر نیروی پرس بر چگالی بالک، تخلخل و انقباض پس‌از پخت

تغییرات چگالی و انقباض پس از پخت با افزایش نیروی پرس ۱ تا ۴ تن پس‌از۲۰ دقیقه ارزیابی شد. افزایش نیروی پرس موجب افزایش چگالی بالک و کاهش درصد تخلخل

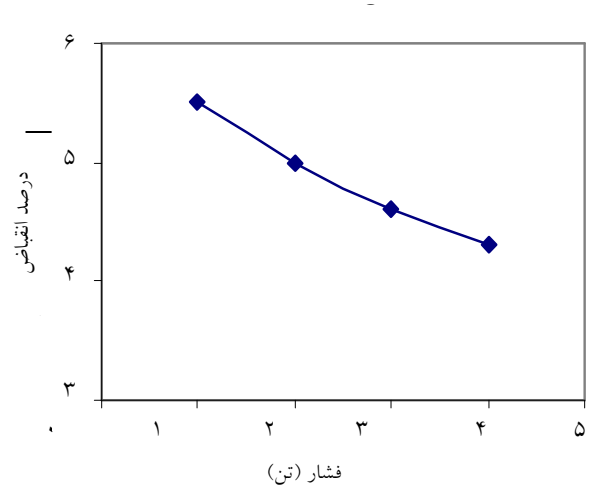


شکل ۱. الگوهای پراش پرتوایکس از نمونه‌های تهیه‌شده با فشار ثابت ۱ تن و تف‌جوشی‌شده در زمان‌های ۵ تا ۲۰ دقیقه (a : آلومینا و m : مولایت).

(شکل ۲) و از درصد انقباض بعداز پخت نیز کاسته شده است (شکل ۳).



شکل ۲. تغییرات چگالی بالک و درصد حجمی تخلخل پس‌از پخت در دمای ۱۲۸۰°C با افزایش نیروی پرس در مدت گرمادهی ۲۰ دقیقه.

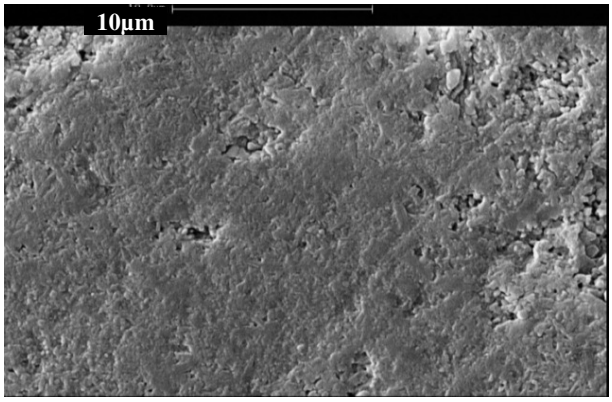


شکل ۳. تغییرات درصد انقباض پس‌از پخت در دمای ۱۲۸۰ درجه سانتی گراد با افزایش نیروی پرس.

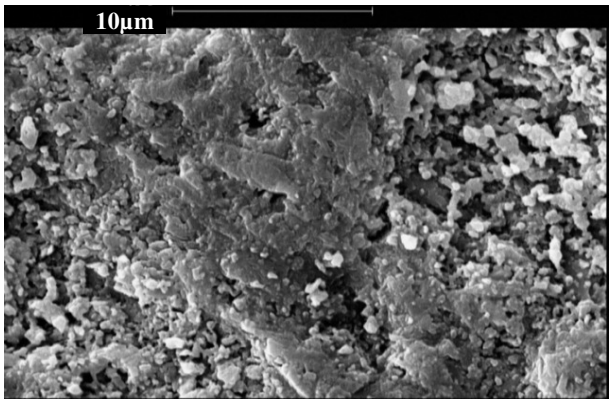
۳_۳_ تأثیر افزایش نیروی پرس برروی تغییرات ساختاری

در این آزمایش از سطح دو نمونه بالک که به‌ترتیب با نیروی پرس ۱ و ۴ تن تهیه شده و در دمای ثابت ۱۲۸۰°C و ۲۰ دقیقه گرمادهی، سینتر شده بودند، تصویر SEM تهیه شد.

همان‌طورکه از مقایسه تصاویر تف‌جوشی (شکل ۴)



(الف)



(ب)

شکل ۴. تصویرهای SEM ریزساختار بدنه مولایت با بزرگنمایی ۴۰۰۰ برابر. تصویر الف نمونه تهیه‌شده با نیروی پرس ۱ تن و تصویر ب نمونه تهیه‌شده با نیروی پرس ۴ تن. دمای تف‌جوشی نمونه‌ها ۱۲۸۰ درجه سانتی گراد و مدت حرارت‌دهی ۲۰ دقیقه است.

مشهود است ، افزایش نیروی پرس موجب بالارفتن تراکم و ریزتر و یکنواخت‌ترشدن بافت بدنهٔ مولایت شده است.

۴ـ نتیجه‌گیری

افزایش نیروی پرس باعث افزایش چگالی و کاهش تخلخل و انقباض بعداز پخت نمونه ها شد و ریزساختار حاصل از آن متراکم تر و یکنواخت تر از ریزساختار نمونهٔ فشرده‌شده با نیروی پرس کمتر شد.

مراجع

1. Manning, D.A.C., Introduction to Industrial Minerals, Chapman and Hall, London, ISBN-10: 0412555506 (1995) 190-194.
2. Schneider, H., Okada, K. and Pask, J.A., Mullite and Mullite Ceramics, John Wiley and Sons, ISBN-10: 0471942499 (1994).
3. Sutton, W.H., "Microwave Processing of Ceramic Materials", ***Ceram. Bull***., Vol. 68 No. 2 (1989) 376-386.
4. Pannerselram, M. and Rao, K.J. "Novel Microwave Method For Sintering of Mullite From Kaolinite", ***Chem. Mater***., Vol. 15 Issue 11 (2003) 2243-2252.
5. Zhang, F.K., Luo, F., Zhu, D.M. and Zhou, W.C., "Preparation, Microwave Properties of Mullite and Their Effects on Microwave Absorbing Materials", ***Astronautica Sinica***, Vol. 26 No. 2 (2005) 250-253.