فصلنامه سرامیک ایران

بررسی و مقایسه فازهای آلومینات کلسیم تهیه‌شده با سه روش سل ژل (با EDTA)، سل ژل (بدون EDTA) و روش سنتز حالت جامد

آرمینه امینی حصاری[1]، محمدجواد طبسی[2]

[1] کارشناس ارشد مهندسی مواد گرایش سرامیک، دانشکده فنی مهندسی، دانشگاه آزاد اسلامی واحد علوم و تحقیقات، تهران، ایران

[2] کارشناس ارشد مهندسی مواد گرایش حفاظت و خوردگی، دانشکده مواد، دانشگاه صنعتی مالک اشتر، تهران، ایران

چکیده: *در این پژوهش به بررسی فازهای کلسیم- آلومینات که با سه روش مختلف سنتز حالت جامد و روش سل ژل (با و بدون EDTA) ساخته شده‌اند می‌پردازیم. هدف از این پژوهش مقایسه این سه روش از نظر دستیابی به خلوص بالاتر، فاز مطلوب و پیچیدگی تولید محصول نهایی است. با مقایسه نتایج دریافتیم که روش سل- ژل مشکل‌سازتر از سنتز حالت جامد است. فازهای آماده شده عبارتند از: (CA)، $(C_{12}A_7)$، (C_3A) و (CA_2). در روش سل ژل دو حالت متفاوت و نوآورانه با EDTA را بررسی کرده‌ایم. نتایج با توجه به خلوص به دست‌آمده از فازهای تهیه شده و اثر افزودن EDTA نشان داد که به طور کلی افزودن EDTA باعث دستیابی به خلوص بهتر می‌شود برای تعیین درصد فازهای کلسیم- آلومینات تهیه شده، از آنالیز کمی پراش اشعه ایکس استفاده شد. فاز CA_2 در هر سه روش تهیه، با اولین پخت به خلوص ۱۰۰٪ رسیده است.*

کلمات کلیدی: *کلسیم آلومینات، سنتز حالت جامد، سل ژل، EDTA، آنالیز کمی پراش اشعه ایکس.*

نویسنده مسئول:
مهندس آرمینه امینی حصاری
دانشکده فنی مهندسی، دانشگاه آزاد اسلامی واحد علوم و تحقیقات
تهران
armineamini@gmail.com

نوع مقاله: پژوهشی
صفحه‌های: ۲۵ تا ۳۵
شاپا چاپی: ۳۳۵۱-۱۷۳۵
شاپا الکترونیکی: ۳۰۹۷-۲۷۸۳
زبان نشریه: فارسی
دسترس‌پذیر در نشانی: www.JICERS.ir
تاریخ دریافت: ۱۴۰۱/۰۱/۱۸
تاریخ پذیرش: ۱۴۰۱/۰۳/۰۹
DOR: 20.1001.1.17353351.1400.17.4.4.1

۱- مقدمه

فازهای کلسیم- آلومینات موادی هستند که در درجه اول به عنوان بخشی از سیمان مهم هستند و مهم‌ترین آن‌ها برای سیمان آلومینیمی است که در آن بیش‌ترین حضور را دارند. برای اینکه بتوان تک تک فازهای کلسیم- آلومینات به ویژه هیدراتاسیون آن ها را مطالعه کرد، باید روشی مناسب برای تهیه آن‌ها پیدا کرد [۱]. اولین بار در سال ۲۰۰۱ سیمان دیرگداز حاوی اسپینل تهیه کردند که برای ساخت این نوع سیمان، مخلوط مناسبی از دولومیت خام (به عنوان منبعی برای اکسید کلسیم و اکسید منیزیم) و اکسید آلومینیم استفاده شد. نتایج نشان داد که مهم‌ترین فازهای تشکیل دهنده سیمان های آلومینایی حاوی اسپینل شامل CA, CA_2 است [۲]. مونوکلسیم آلومینات (CA) آزادانه در طبیعت وجود ندارد و جزء اصلی سیمان‌های آلومینیمی است و باعث

[Downloaded from jicers.ir on 2026-10-08]

[DOR: 20.1001.1.17353351.1400.17.4.4.1]

ایجاد مقاومت اولیه می‌شود. واکنش فاز CA_2 با آب کندتر از CA یا $C_{12}A_7$ است و کمک کم‌تری به استحکام سیمان می‌کند. فاز CA_2 به دلیل خواص حرارتی خوب، به ویژه انبساط حرارتی کم، به عنوان بخشی از سیمان حائز اهمیت است [۳-۶]. برخلاف CA، $C_{12}A_7$ و CA_2، C_3A در سیمان‌های آلومینیمی وجود ندارد، اما بخش مهمی از سیمان پرتلند است. از بین تمام فازهای کلسیم- آلومینات، C_3A واکنش‌پذیرترین ماده است. همچنین واکنش‌پذیرترین جزء در سیمان پرتلند است [۷-۹]. در تلاش برای یافتن ساده‌ترین و کارآمدترین راه برای آماده‌سازی فازهای کلسیم- آلومینات، چندین روش مختلف پیشنهاد شده است. بهترین روش آماده‌سازی را نمی‌توان بدون ابهام تعیین کرد، زیرا هر روشی برای تهیه تمام فازهای کلسیم- آلومینات پایدار مناسب نیست. هنگام استفاده از اکثر روش‌ها، مراحل نامطلوب رخ می‌دهد و بنابراین معمولاً لازم است بخشی از فرآیند آماده‌سازی تکرار شود که منجر به یک روش زمان‌بر می‌شود [۱۰]. روش سنتز حالت جامد قدیمی‌ترین روش شناخته شده برای تهیه فازهای کلسیم- آلومینات است و در حال حاضر نیز پرکاربردترین روش است. روش سل ژل روشی جدیدتر برای سنتز فازهای کلسیم-آلومینات در مقایسه با روش سنتز حالت جامد می‌باشد. از این روش علاوه بر تهیه فازهای کلسیم- آلومینات، در عمل برای تهیه تعدادی از محصولات مانند غشاهای سرامیکی، پوشش‌های محافظ و یا نانوذرات استفاده می شود [۱۱]. فرآیند سل ژل در سال ۱۹۶۷، توسط پچینی برای فلزاتی که واکنش آبکافت مناسبی در این فرآیند ندارند، بهینه شد. بعداً، این فرایند برای سنتز آزمایشگاهی مواد چند جزئی پراکنده ریز در مواد اکسیدی استفاده شد. در این روش محلولی حاوی اسید، یون‌های فلزی و الکل پلی هیدریک حرارت داده می شود که در نتیجه تبدیل به اسید و پلی‌استر پلی‌ال می شوند. پیش ماده ای که به این ترتیب تهیه می‌شود، پخته می‌شود و فازهای کلسیم- آلومینیم تشکیل می‌شوند. دمای پخت پیش‌ساز پلیمری حدود ۱۰۰۰ درجه سانتی‌گراد است. نیترات‌های این فلزات یا هیدرات‌های آن‌ها به عنوان منبع کاتیون‌های کلسیم و آلومینیم استفاده می‌شود [۱۲-۱۴].در این پژوهش، تهیه فازهای کلسیم- آلومینات (CA، $C_{12}A_7$، C_3A و CA_2) به سه روش سنتز حالت جامد و روش سل ژل (با و بدون EDTA) با هم مقایسه شده است.

۲- فعالیت‌های تجربی

۲-۱- مواد

مواد شیمیایی مورد استفاده برای تهیه فازهای کلسیم- آلومینیم در جدول ۱ قابل مشاهده است.

جدول ۱: مواد شیمیایی استفاده شده

	ماده	ترکیب شیمیایی	M [g·mol^{-1}]
سنتز حالت جامد	اکسید کلسیم	CaO	۵۶/۰۸
	آلومینا	Al_2O_3	۱۰۱/۹۶
سل ژل	کلسیم نیترات تتراهیدرات	$Ca(NO_3)_2\ 4H_2O$	۲۳۶/۱۵
	آلومینیم نیترات نوناهیدرات	$Al(NO_3)_3\ 9H_2O$	۳۷۵/۱۳
	اسید سیتریک مونوهیدرات	$C_6H_8O_7\ H_2O$	۲۱۰/۱۴
	EDTA	$C_{10}H_{16}N_2O_8$	۲۹۲/۲۴
	آمونیاک، محلول آبی ٪۲۹-۲۵	NH_3	۱۷/۰۳

۲-۲-تهیه به روش سنتز حالت جامد

مواد اولیه ابتدا وزن شد و با نسبت مشخص مخلوط شدند. برای تهیه فازها وزن مورد نیاز و آماده‌سازی شده با توجه به نسبت مولی Al_2O_3 به CaO محاسبه و در جدول ۲ مشاهده می‌شوند. نسبت مولی Al_2O_3 به CaO برای تهیه CA 1:1 است، و برای سایر فازها ۳: ۱ (C_3A)، 1:2 (CA_2) و ۱۲: ۷ ($C_{12}A_7$) می‌باشد. ۲۰/۰۰ گرم Al_2O_3 برای تهیه CA محاسبه شد. برای سایر فازها مقدار به گونه ای محاسبه شد که همیشه همان مقدار تهیه شده است. روش محاسبه برای تمام فازهای یکی است. محاسبه برای CA:

[Downloaded from jicers.ir on 2026-10-08]

[DOR: 20.1001.1.17353351.1400.17.4.4.1]

$n(Al_2O_3) = \frac{m(Al_2O_3)}{M(Al_2O_3)} \rightarrow \frac{۰/۲۰\ g}{۹۶/۱۰۱ g.mol^{-1}} = ۰/۱۹۶۲\ mol$

$m(CaO) = n(Al_2O_3).\ M(CaO) \rightarrow ۰/۱۹۶۲\ mol \times ۵۶/۰۸\ mol^{-1} = ۱۱/۰۰\ g$

جدول ۲: وزن مواد شیمیایی برای روش سنتز حالت جامد

فاز	Al_2O_3 (g)	CaO (g)	CaO + Al_2O_3 (g)
CA	۲۰/۰۰	۱۱/۰۰	۳۱/۰۰
C_3A	۱۱/۷۰	۱۹/۳۰	۳۱/۰۰
CA_2	۲۴/۳۱	۶/۶۹	۳۱/۰۰
$C_{12}A_7$	۱۵/۹۶	۱۵/۰۴	۳۱/۰۰

مخلوط همگن حاصل از CaO و Al_2O_3 در یک کوره دما بالا پخته شد. دمای پخت با استفاده از نمودار فازی سیستم CaO- Al_2O_3 تعیین و در جدول ۳ نشان داده شده است. پخت به مدت ۸ ساعت به طول انجامید، سرعت گرمایش ۱۰ درجه سانتی گراد بر دقیقه و سرعت خنک شدن ۵ درجه سانتی‌گراد بر دقیقه تنظیم شد.

جدول ۳: دمای پخت فازهای کلسیم- آلومینات

فاز	t [°C]
CA	۱۴۵۰
C_3A	۱۴۵۰
CA_2	۱۶۰۰
$C_{12}A_7$	۱۴۰۰

فازهای آماده شده با آسیاب ارتعاشی آسیاب شدند. خلوص آن‌ها با تجزیه و تحلیل پراش اشعه ایکس تعیین شد. اگر خلوص فاز خیلی کم بود، پخت بیش‌تر در شرایط مشابه انجام شده است.

۲-۳- تهیه به روش سل ژل بدون افزودن EDTA

برای تهیه فازهای کلسیم– آلومینات به روش سل ژل ابتدا مقدار مورد نیاز کلسیم نیترات تتراهیدرات، آلومینیم نیترات نوناهیدرات و اسید سیتریک مونوهیدرات محاسبه شد و در جدول ۴ نشان داده شده است. نسبت مولی اسید سیتریک و مجموع تمام کاتیون‌ها در فاز نهایی با نسبت ۱: ۱ مطابقت دارد. برای تهیه ۱۰ گرم محصول محاسبه شد. روش محاسبه برای تمام فازهای یکی است. محاسبه برای CA_2:

$n(CA_2) = \frac{m(CA_2)}{M(CA_2)} \rightarrow \frac{۰/۱۰\ g}{۰/۲۶۰\ g.mol^{-1}} = ۰/۰۳۸۴۶ mol$

$m[(CaNO_3)_2.\ 4H_2O] = n(CA_2).\ M[(CaNO_3)_2.\ 4H_2O] \rightarrow ۰/۰۳۸۴۶\ mol \times ۲۳۶/۱۵\ mol^{-1} = ۹/۰۸\ g$

$m[Al\ (NO_3)_3.9H_2O] = 4.n(CA_2).M[Al\ (NO_3)_3.9H_2O] \rightarrow ۴ \times ۰/۰۳۸۴۶ mol \times ۳۷۵/۱۳\ mol^{-1} = ۵۷/۷۱\ g$

$m\ (C_6H_8O_7.\ H_2O) = 5.n(CA_2).\ M\ (C_6H_8O_7.\ H_2O) \rightarrow ۵ \times ۰/۰۳۸۴۶ mol \times ۲۱۰/۱۴\ mol^{-1} = ۴۰/۴۱\ g$

مواد شیمیایی وزن شده با ۱۰۰ سانتی‌متر مکعب آب در یک بشر با استفاده از همزن مغناطیسی حل شد. پس از انحلال، محلول به مدت ۱۵ دقیقه دیگر هم‌زده شد و یون‌های Ca^{2+} و Al^{3+} با اسید سیتریک کیلیت شدند [۷] محلول به دو ظرف تبخیر منتقل شد و حلال اضافی با استفاده از صفحه داغ تبخیر شد. به محض تشکیل ژل زرد رنگ که اکسیدهای نیتروژن از آن شروع به آزاد شدن کرد، تبخیر متوقف شد. ژل در فر به مدت ۲۴ ساعت در دمای ۲۰۰ درجه سانتی‌گراد قرار گرفت تا خشک شد. پیش‌ماده به دست آمده با استفاده از آسیاب ارتعاشی به پودر تبدیل شد و در یک بوته پلاتین در یک کوره پخته شد. پخت در دمای ۴۰۰ درجه سانتی

[Downloaded from jicers.ir on 2026-10-08]

[DOR: 20.1001.1.17353351.1400.17.4.4.1]

گراد به مدت ۲ ساعت انجام شد. سپس پیش‌ماده با آسیاب همگن شده و دوباره در کوره پخته شد. پخت دوم در دمای ۹۰۰ درجه سانتی‌گراد به مدت ۳ ساعت انجام شد. رمپ گرمایش ۵ درجه سانتی‌گراد بر دقیقه تنظیم شد. محصول به دست آمده به پودر ریز آسیاب شد و ترکیب فاز آن با تجزیه و تحلیل پراش اشعه ایکس تعیین شد.

وزن مواد شیمیایی برای روش سل ژل

فاز	$Ca(NO_3)_2{\cdot}4H_2O$	$Al(NO_3)_3\ 9H_2O$	$C_6H_8O_7\ H_2O$
CA	۱۴/۹۴ g	۴۷/۴۷ g	۳۸/۸۹ g
C_3A	۲۶/۲۲ g	۲۷/۷۷ g	۳۸/۸۹ g
CA_2	۹/۰۸ g	۵۷/۷۱ g	۴۰/۴۱ g
$C_{12}A_7$	۲۰/۴۴ g	۳۷/۸۷ g	۳۹/۴۰ g

۲-۴- تهیه به روش سل ژل با افزودن EDTA

ابتدا مقدار محاسبه شده EDTA در ۱۰۰ سانتی‌متر مکعب آب حل شد. از آنجایی که EDTA فقط در محیط قلیایی حل می‌شود، محلول آبی آمونیاک (۲۹-۲۵٪) اضافه می‌شود تا PH> 8 به دست آید. مقدار موردنظر PH با استفاده از کاغذ نشانگر PH بررسی شد. پس از انحلال تمام EDTA، محلول با اسید سیتریک محلول، نیترات کلسیم و نیترات آلومینیم مخلوط شد که مقدار آن مانند مورد قبلی بود. پس از مخلوط کردن همه مواد، PH مجدداً به بیش‌تر از ۸ رسید. محلول به یک ظرف تبخیر منتقل شد و در یک صفحه داغ تبخیر شد. اگر بلورهای جامد EDTA در محلول ظاهر میشدند، رسوب با افزودن مقدار کمی محلول آبی آمونیاک مهار شد. بقیه مراحل مانند تهیه روش سل ژل بدون EDTA بود. پس از خشک شدن، پیش ماده سیاه بود، بر خلاف پیش ماده تهیه شده بدون افزودن EDTA، که زرد بود. فازهای C_3A و $C_{12}A_7$ دو بار پخت شدند، زیرا پس از پخت اول خلوص پایینی داشتند. مقدار مورد نیاز EDTA محاسبه شد و در جدول ۵ آورده شده است، وزن سایر مواد شیمیایی نیز مانند جدول ۴ بود. مقدار مورد نیاز EDTA به گونه‌ای محاسبه شد که نسبت مولی اسید سیتریک به EDTA، 1:2 باشد.

جدول ۵: مقدار EDTA

فاز	mEDTA [g]
CA	۲۷/۷۴
C_3A	۲۷/۰۴
CA_2	۲۸/۱۰
$C_{12}A_7$	۲۷/۴۰

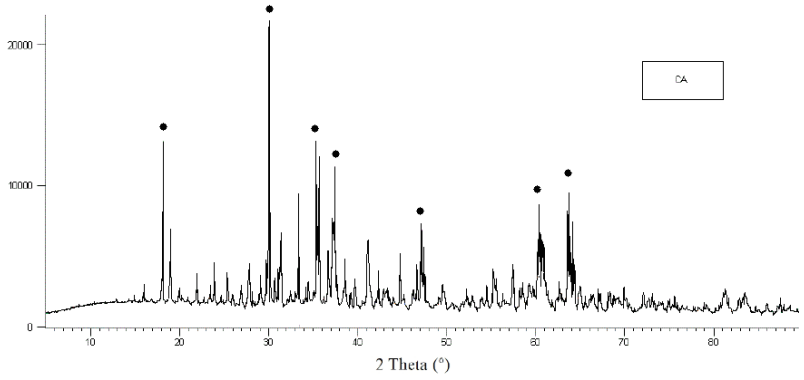
۳- نتایج و بحث

۳-۱-XRD روش سنتز حالت جامد

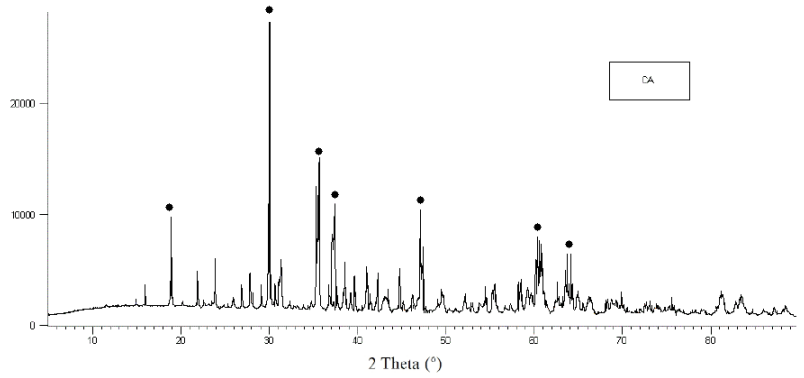
بعد از گرفتن طیف پراش اشعه X از نمونه (شکل ۱- الف) دیده شد که در نمونه علاوه بر فاز غالب CA (۷۸٪) مقادیر نسبتا زیادی از فازهای مقادیر نسبتاً زیادی از فازهای $C_{12}A_7$ (۱۴٪) و CA_2 (۵٪) وجود دارد. همچنین حاوی ۲٪ ، فاز CA_6 بود. درصد فازها نیز با انالیز کمی XRD مشخص شد. همچنین فازهایی که با رفرنس مطابقت داشت مشخص شده است. نمونه به دلیل خلوص پایین فاز مورد نظر، نمونه برای بار دوم پخت شد. پس از ۸ ساعت پخت دوباره (شکل ۱- ب)، محتوای فاز CA به ۹۹٪ افزایش یافت. فازهای C12A7 و CA6 به طور کامل از نمونه حذف شدند و محتوای فاز CA_2 به ۱٪ کاهش یافت. در شکل ۲ میبینیم که در حین تهیه فاز C_3A با روش سنتز حالت جامد، خلوص ۱۰۰٪ پس از اولین پخت به دست آمد. تمامی پیک‌ها با مرجع یکی است و فازهای نامطلوب نداریم. در شکل ۳ خلوص فاز CA_2 پس از اولین پخت ۱۰۰٪ بود. تمامی پیک‌ها با مرجع یکی است.

[Downloaded from jicers.ir on 2026-10-08]

[DOR: 20.1001.1.17353351.1400.17.4.4.1]

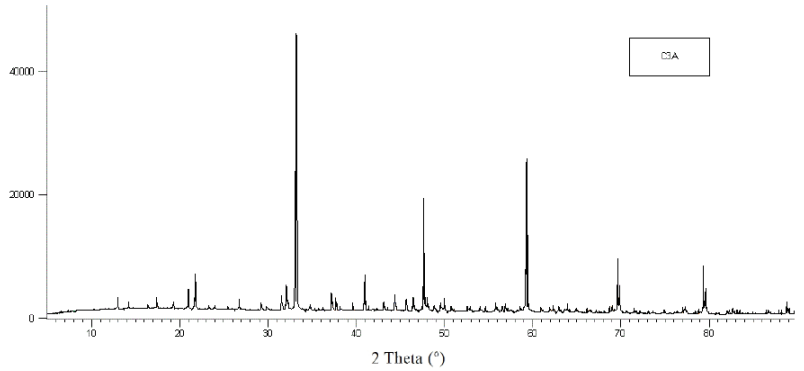


(الف)

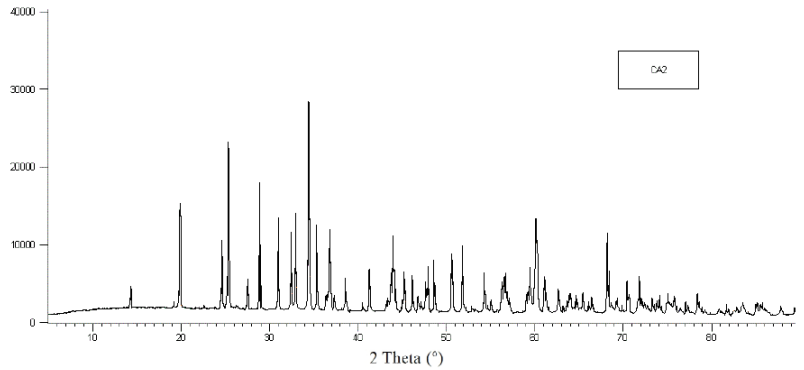


(ب)

شکل۱: (الف) تجزیه و تحلیل CA (پخت اول). (ب) تجزیه و تحلیل CA (پخت دوم).



شکل۲: تجزیه و تحلیل C_3A (پخت اول).

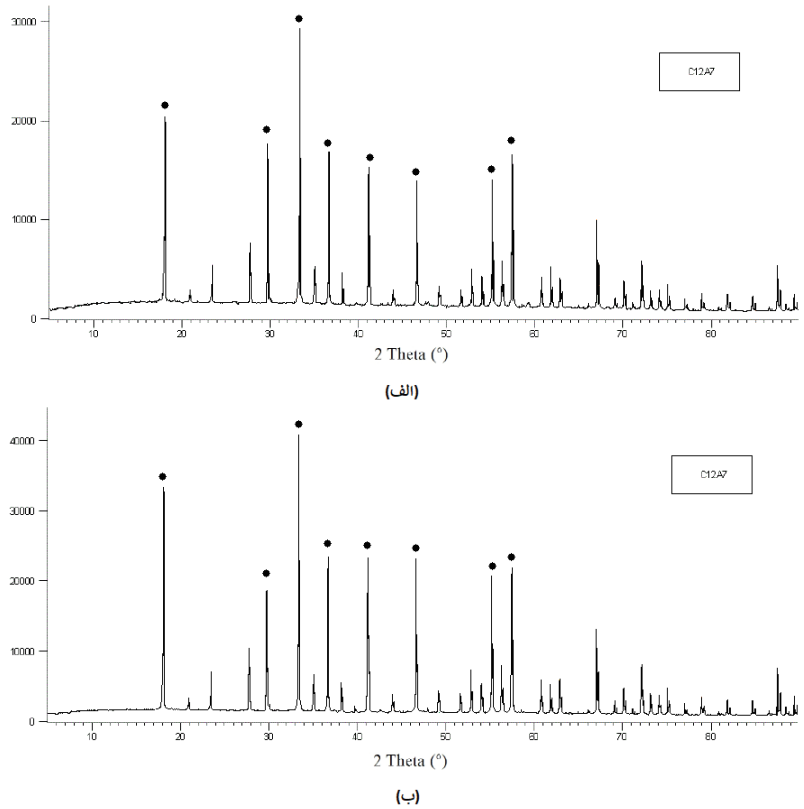


شکل۳: تجزیه و تحلیل CA_2 (پخت اول).

[Downloaded from jicers.ir on 2026-10-08]

[DOR: 20.1001.1.17353351.1400.17.4.4.1]

شکل ۴- الف نشان می‌دهد پس از اولین پخت فاز غالب نمونه، $C_{12}A_7$ (۹۳٪) است. علاوه بر این، نمونه حاوی فازهای C_3A (3%)، CA (۳٪)، و ۱٪ از Al_2O_3 (واکنش نداده) می‌باشد. پس از پخت دوم (شکل ۴- ب)، با انالیز کمی XRD مشخص شد که محتوای فاز $C_{12}A_7$ به ۹۶٪ افزایش یافت. C_3A و Al_2O_3 (واکنش نداده) به طور کامل از نمونه حذف شدند اما محتوای CA به ۴٪ افزایش یافت. پخت سوم انجام شد، اما منجر به کاهش محتوای $C_{12}A_7$ و افزایش محتوای CA شد. به همین دلیل، هیچ پخت بیش‌تری از این نمونه انجام نشد، زیرا این تغییر در تعادل به نفع CA با درصد بیش‌تر بود.



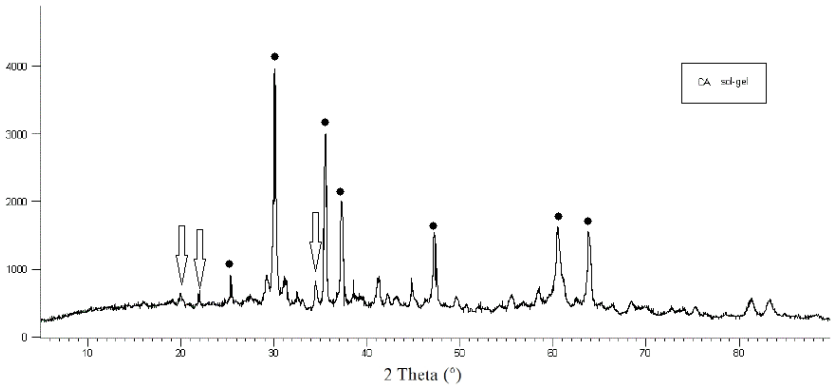
شکل ۴: (الف) تجزیه و تحلیل $C_{12}A_7$ (پخت اول). (ب) تجزیه و تحلیل $C_{12}A_7$ (پخت دوم).

۳-۲- روش سل ژل XRD

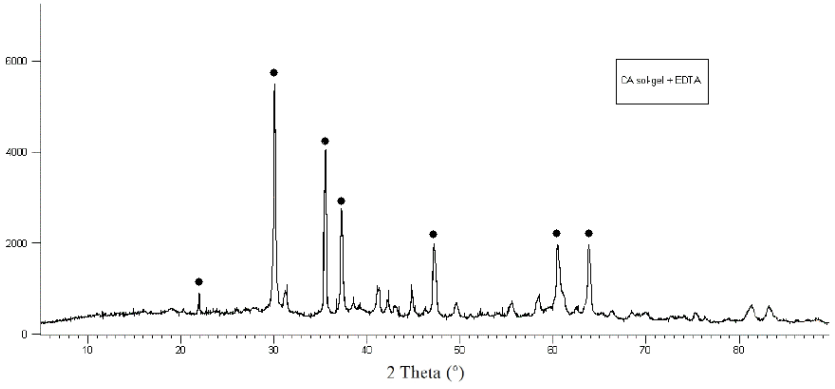
شکل۵- الف آنالیز تهیه CA به روش سل ژل بدون افزودن EDTA را نشان می‌دهد. با انالیز کمی XRD مشخص شد در این روش فاز CA (۹۵٪) و فاز CA_2 (۵٪)است که با علامت فلش مشخص شده است. شکل ۵- ب، نمونه CA تهیه شده به روش سل ژل با افزودن EDTA را نشان می‌دهد. در این روش نمونه فقط حاوی فاز مورد نظر با خلوص ۱۰۰٪ بود و تمامی پیک‌ها با مرجع یکی است. در شکل۶ با انالیز کمی XRD مشخص شد مقدار فاز C_3A تهیه شده به روش سل ژل بدون افزودن EDTA، 69٪ است. همچنین نمونه حاوی $C_{12}A_7$ (۱۸٪) و CaO (۱۴٪) است. شکل ۷- الف نشان می‌دهد که نمونه تهیه شده به روش سل ژل با افزودن EDTA دارای فاز C_3A (۶۹٪) است و نمونه حاوی آهک آزاد (کم‌تر از ۷٪) که با علامت فلش مشخص شده است، مقدار $C_{12}A_7$ بیش‌تر از ۲۳٪ است. شکل ۷- ب پس از پخت دوم را نشان می‌دهد که با انالیز کمی XRD مشخص شد خلوص C_3A به ۷۸٪ افزایش یافته است و محتوای $C_{12}A_7$ به ۱۴٪ کاهش یافته است، اما آهک آزاد، به حدود ۸٪ رسید.

شکل ۸- الف نشان می‌دهد که تهیه CA_2 به روش سل ژل و بدون افزودن EDTA، خلوص ۱۰۰٪ بدست آمد. تمامی پیک‌ها با مرجع یکی است. شکل ۸- ب نشان‌دهنده این است که نمونه CA_2 تهیه شده به روش سل ژل با افزودن EDTA به همان خلوص (۱۰۰٪) رسیده است. تمامی پیک‌ها با مرجع یکی است.

[Downloaded from jicers.ir on 2026-10-08]
[DOR: 20.1001.1.17353351.1400.17.4.4.1]

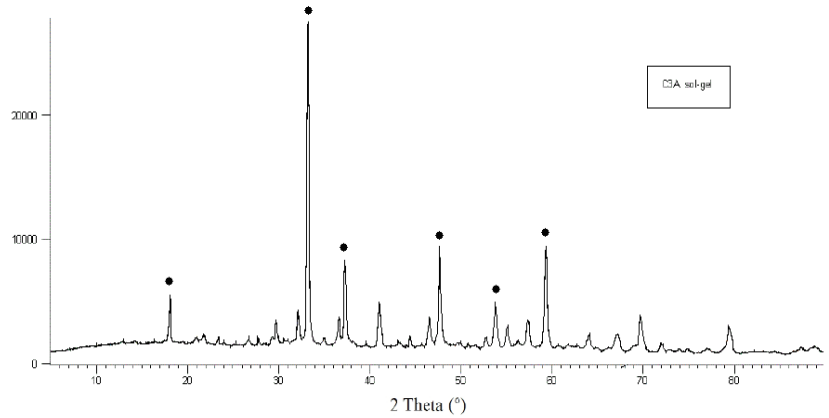


(الف)



(ب)

شکل ۵: (الف) پراش آنالیز نمونه CA تهیه شده به روش سل ژل بدون EDTA. (ب) پراش آنالیز نمونه CA تهیه شده به روش سل ژل با افزودن EDTA

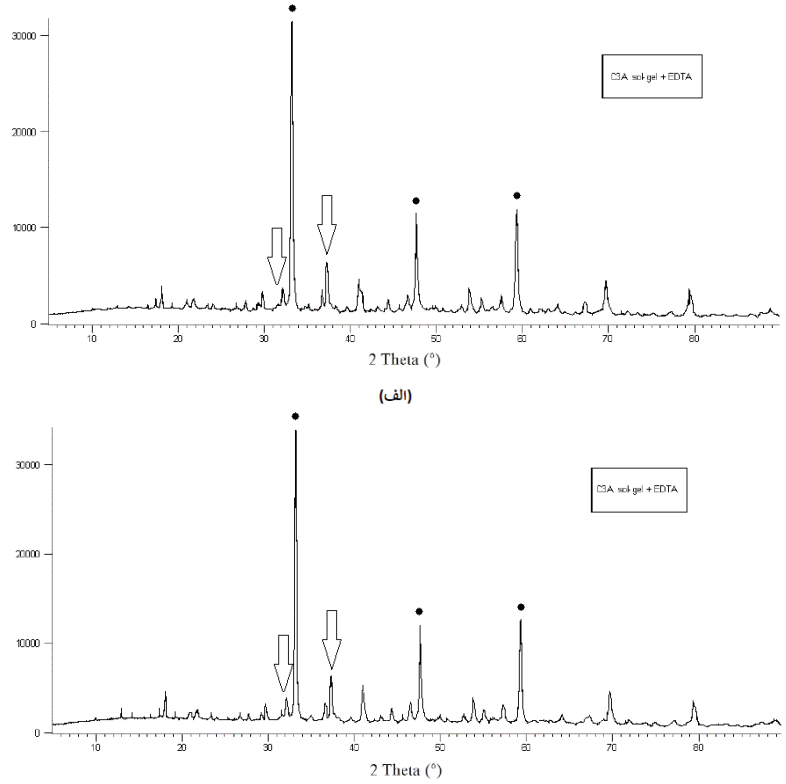


شکل ۶: پراش نمونه C_3A تهیه‌شده به روش سل ژل بدون افزودن EDTA

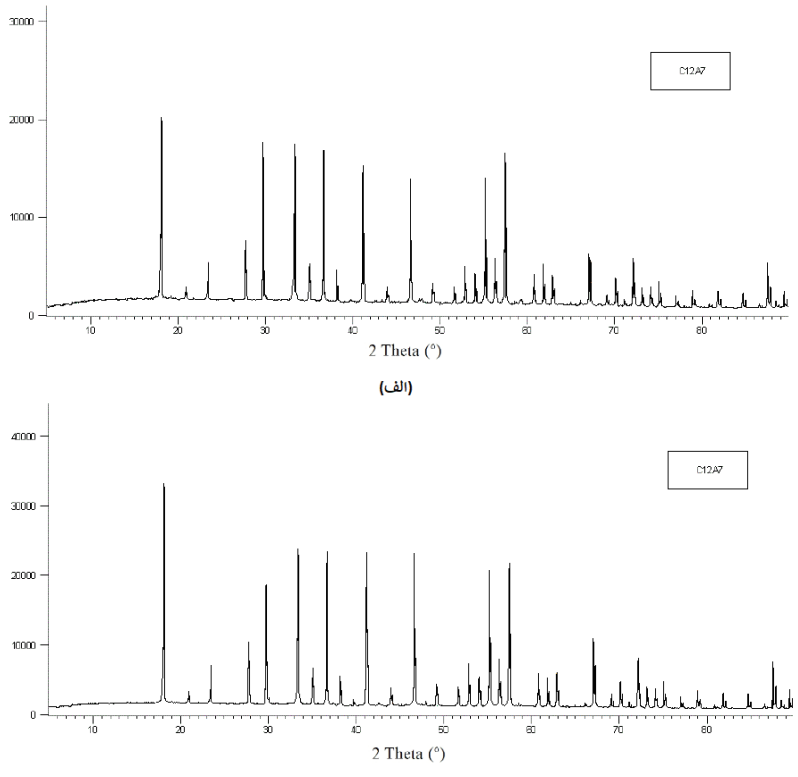
شکل ۹ آنالیز، $C_{12}A_7$ به روش سل ژل و بدون افزودن EDTA را نشان می‌دهد که محتوای فاز $C_{12}A_7$ (۱٪) است. فاز غالب فاز CA با ۶۵٪ است و پس از آن C_3A (۲۵٪) و C_5A_3 (۹٪). فاز C_5A_3 که با قرمز مشخص شده است یک فاز معمولی کلسیم- آلومینیم نیست و در هیچ نمونه دیگری شناسایی نشده است. برای دستیابی به نتایج بهتر، تغییر نسبت مولی مواد اولیه ضروری است. شکل ۱۰- الف نشان می‌دهد که نمونه $C_{12}A_7$ به روش سل ژل با افزودن EDTA است دارای فاز $C_{12}A_7$ به مقدار ۷۰٪ است. نمونه همچنین حاوی فازهای CA (26%)، $CaCO_3$ (۲٪) و C_3A (۲٪) بود. شکل ۱۰- ب آنالیز پخت دوم نمونه $C_{12}A_7$ تهیه شده به روش سل- ژل با افزودن EDTA را نشان می‌دهد که محتوای فاز مورد نظر به ۸۹٪ افزایش یافته است.

[Downloaded from jicers.ir on 2026-10-08]

[DOR: 20.1001.1.17353351.1400.17.4.4.1]

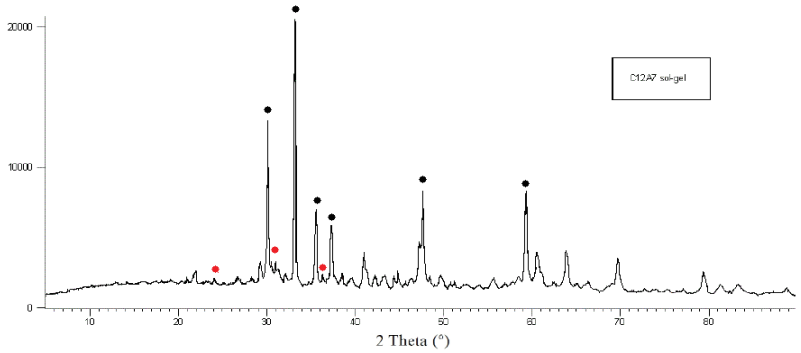


شکل ۷: (الف) پراش نمونه C_3A تهیه‌شده به روش سل ژل با افزودن EDTA (پخت اول). (ب) پراش نمونه C_3A تهیه‌شده به روش سل ژل با افزودن EDTA (پخت دوم)

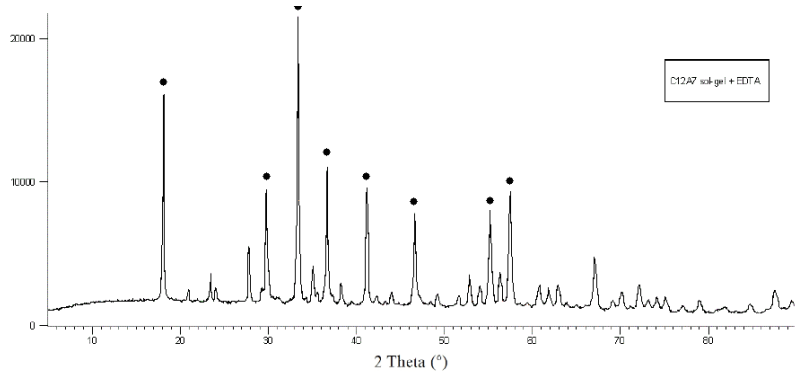


شکل ۸: (الف) پراش نمونه CA_2 تهیه شده به روش سل ژل بدون افزودن EDTA (پخت اول) (ب) پراش نمونه CA_2 تهیه شده به روش سل ژل با افزودن EDTA (پخت اول)

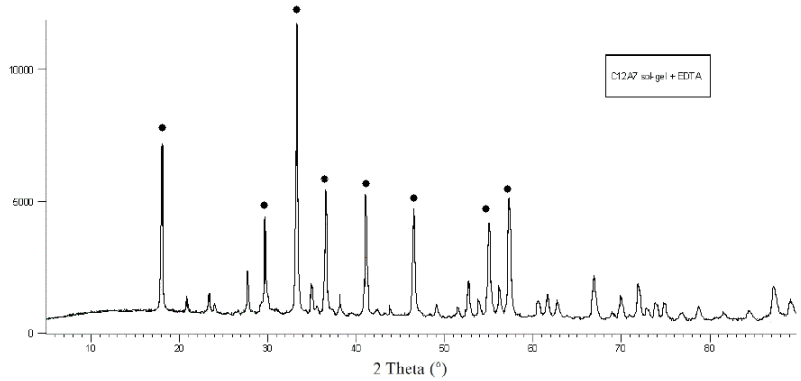
[Downloaded from jicers.ir on 2026-10-08]
[DOR: 20.1001.1.17353351.1400.17.4.4.1]



شکل ۹: پراش نمونه $C_{12}A_7$ تهیه شده به روش سل ژل بدون افزودن EDTA



(الف)



(ب)

شکل ۱۰: (الف) پراش نمونه $C_{12}A_7$ تهیه شده به روش سل ژل با افزودن EDTA (پخت اول) (ب) پراش نمونه $C_{12}A_7$ تهیه شده به روش سل ژل با افزودن EDTA (پخت دوم)

۴- نتیجه‌گیری

روش سل- ژل مشکل‌سازتر از سنتز حالت جامد است، فرآیند آماده‌سازی روش سل ژل که نیاز به تنظیم و کنترل pH دارد باعث پیچیده‌تر شدن مراحل کاری می‌شود. این روش فقط برای آماده‌سازی فازهای CA و CA_2 مناسب است وبرای فازهای $C_{12}A_7$ و C_3A مناسب نیست. مشکل این روش، مانند روش سنتز حالت جامد، تشکیل فازهای نامطلوب بود. با افزودن EDTA ثابت شد که مشکل خلوص پایین برای فازهای $C_{12}A_7$ و C_3A تنها به دلیل کمپلکس ضعیف یون‌های Ca^{2+} و Al^{3+} در پیش‌ساز نیست. اگرچه افزودن EDTA خلوص فاز $C_{12}A_7$ را افزایش داد، نمونه همچنان حاوی مقدار قابل توجهی از فازهای نامطلوب بود. خلوص فاز C_3A با افزودن EDTA تحت تأثیر قرار نگرفت. افزودن EDTA بیش‌ترین کاربرد را در تهیه CA دارد، جایی که امکان تشکیل فاز مورد نظر با خلوص بالا را فراهم می کند. فاز CA_2 در هر دو روش تهیه، با اولین پخت به خلوص ۱۰۰٪ رسیده است. که مطلوب‌ترین

[Downloaded from jicers.ir on 2026-10-08]
[DOR: 20.1001.1.17353351.1400.17.4.4.1]

فاز برای تهیه در هر دو روش است. در روش سنتز حالت جامد حداکثر میزان خلوص فاز $C_{12}A_7$ با روش سنتز حالت جامد ۹۶٪ خواهد بود. فازهای C_3A و CA_2 با اولین پخت به خلوص ۱۰۰٪ رسیده است. به طور کلی در هر دو روش با پخت دوباره افزایش خلوص را شاهد بودیم بجز فاز $C_{12}A_7$ که روش سنتز حالت جامد باعث کاهش فاز مورد نظر شد. به طور کلی افزودنی EDTA باعث دستیابی به خلوص بهتر می‌شود.

مراجع

[1] Koplík J, Tomala L. Hydration of calcium aluminate phases at different temperatures. InAdvanced Materials Research 2012 (pp. 24-27).

[2] Khalil NM, El-Hemaly SA, Girgis LG. Aluminous cements containing magnesium aluminate spinel from Egyptian dolomite. Ceramics International. 2001 Jan 1; 27(8):865-73.

[3] Barnes P, Bensted J. Structure and performance of cements. CRC Press; 2002 Nov 1.

[4] Odler C. 27" Oil well cements" from" Special Inorganic Cements".

[5] Ball MC, Marsh CM, Simmons RE, Sutherland I, Symons MC. Surface composition of anhydrous monocalcium aluminate, $CaAl_2O_4$. Journal of materials science. 1988 Apr; 23(4):1431-5.

[6] Kumar S, Bandopadhyay A, Alex TC, Kumar R. Influence of mechanical activation on the synthesis and hydraulic activity of calcium dialuminate. Ceramics International. 2006 Jan 1; 32(5):555-60.

[7] Chandradass J, Bae DS, Kim KH. Synthesis of calcium hexaaluminate (CaAl12O19) via reverse micelle process. Journal of non-crystalline solids. 2009 Nov 15; 355(48-49):2429-32.

[8] Tchamba AB, Sofack JC, Yongue R, Melo UC. Formulation of calcium dialuminate ($CaO\ 2Al_2O_3$) refractory cement from local bauxite. Journal of Asian Ceramic Societies. 2015 Jun 1; 3(2):164-72.

[9] Klaus SR, Neubauer J, Goetz-Neunhoeffer F. How to increase the hydration degree of CA—The influence of CA particle fineness. Cement and Concrete Research. 2015 Jan 1; 67:11.

[10] Kalinichev AG, Kirkpatrick RJ. Molecular dynamics modeling of chloride binding to the surfaces of calcium hydroxide, hydrated calcium aluminate, and calcium silicate phases. Chemistry of Materials. 2002 Aug 19; 14(8):3539-49.

[11] Pati RK, Panda AB, Pramanik P. Preparation of nanocrystalline calcium aluminate powders. Journal of Materials Synthesis and Processing. 2002 Jul; 10(4):157-61.

[12] Huízar-Félix AM, Hernández T, De la Parra S, Ibarra J, Kharisov B. Sol–gel based Pechini method synthesis and characterization of $Sm_{1-x}Ca_xFeO_3$ perovskite $0.1 \leq x \leq 0.5$. Powder technology. 2012 Oct 1; 229:290-3.

[13] Pati RK, Panda AB, Pramanik P. Preparation of nanocrystalline calcium aluminate powders. Journal of Materials Synthesis and Processing. 2002 Jul; 10(4):157-61.

[14] Gaki A, Chrysafi R, Kakali G. Chemical synthesis of hydraulic calcium aluminate compounds using the Pechini technique. Journal of the European Ceramic Society. 2007 Jan 1; 27(2-3):1781-4.

[Downloaded from jicers.ir on 2026-10-08]

[DOR: 20.1001.1.17353351.1400.17.4.4.1]

Investigation and Comparison of Calcium Aluminate Phases Obtained by Three Methods of Sol-Gel (with EDTA), Sol-Gel (without EDTA) and Solid-Phase Synthesis

Armineh Amini Hesari[1*], Mohammad Javad Tabasi[2]

[1] M.Sc. in Ceramic Materials Engineering, Faculty of Engineering, Islamic Azad University, Science and Research Branch, Tehran, Iran

[2] M.Sc. in Corrosion Materials Engineering, Faculty of Material, Malek Ashtar University of Technology, Tehran, Iran

* arminehamini@gmail.com

Abstract: In this study, we investigate calcium aluminate phases that were prepared by three different solid phase synthesis methods and a sol-gel method (with and without EDTA). The purpose of this study is to compare these three methods in terms of achieving higher purity, optimal phase and complexity in the production of the final product. Comparing the results, we found that the sol-gel method is more problematic than the solid-state synthesis. The phases prepared are: (CA), ($C_{12}A_7$), (C_3A) and (CA_2). In the sol-gel method, we have explored two different innovative regimens with EDTA. The results on the purity of the resulting phases and the effect of adding EDTA showed that, in general, the addition of EDTA leads to better purity. Quantitative x-ray diffraction analysis was used to determine the percentage of prepared calcium aluminate phases. The CA_2 phase achieved 100% purity in the first preparation method in all three ways.

Keywords: Calcium aluminate, solid state synthesis, sol-gel, EDTA, Quantitative x-ray diffraction analysis.

[Downloaded from jicers.ir on 2026-10-08]

[DOR: 20.1001.1.17353351.1400.17.4.4.1]