



## بررسی نقش الیاف آلومینوسیلیکاتی در ریزساختار و خواص مکانیکی کامپوزیت‌های ژئوپلیمری

فصلنامه  
سرامیک ایران

هورشاد مرتضایی سمنانی<sup>۱</sup>، اعظم موسوی کاشی<sup>۲\*</sup>

<sup>۱</sup> دانشجوی دکتری دانشکده فنی و مهندسی، گروه مواد غیرفلزی و حفاظت، دانشگاه علوم و تحقیقات تهران

<sup>۲</sup> استادیار دانشکده فنی و مهندسی، گروه مواد غیرفلزی و حفاظت، دانشگاه علوم و تحقیقات تهران



نویسنده مسئول:

دکتر اعظم موسوی کاشی

نویسنده اول:

هورشاد مرتضایی سمنانی

دانشگاه علوم و تحقیقات تهران

نوع مقاله: پژوهشی

صفحه‌های: ۶۴ تا ۷۰

شاپا چاپی: ۳۳۵۱-۱۷۳۵

شاپا الکترونیکی: ۳۰۹۷-۲۷۸۳

زبان نشریه: فارسی

دسترس پذیر در نشانی:

www.JICERS.ir

تاریخ دریافت:

۱۴۰۱/۱۱/۱۹

تاریخ پذیرش:

۱۴۰۱/۱۲/۲۴

\*a-moosavi@srbiau.ac.ir

DOR: 20.1001.1.17353351.1401.18.0.6.2

**چکیده:** در این پژوهش ترکیب‌های ژئوپلیمری بر پایه متاکائولن و سیلیس آمورف به کمک هیدروکسید پتاسیم تهیه شدند. پس از تعیین ترکیب بهینه با نسبت مولی سیلیس به آلومینا برابر ۵ و مقدار آب برابر ۹ مول، مقدار ۱، ۳، ۵ و ۷ درصد وزنی الیاف آلومینوسیلیکاتی به ترکیب ژئوپلیمر افزوده و استحکام مکانیکی و ریزساختار نمونه‌ها مورد بررسی قرار گرفت. نتایج نشان داد که مقدار استحکام خمشی و فشاری نمونه بهینه در دمای محیط به ترتیب برابر ۵/۸۷ و ۱۹/۰۵ مگاپاسکال است. با افزودن مقدار ۵ درصد وزنی از الیاف آلومینوسیلیکاتی بیشترین مقدار استحکام خمشی و فشاری در دمای محیط به دست آمد. اما با حرارت‌دهی نمونه‌های کامپوزیتی در دمای ۷۰ °C به مدت یک ساعت، مقدار استحکام خمشی و فشاری به ترتیب ۱۰/۳۴ و ۱۷/۸۶ مگاپاسکال شد. کاهش استحکام مکانیکی به تغییر در نحوه اتصال الیاف به زمینه ژئوپلیمری ربط داده شد.

**کلمات کلیدی:** ژئوپلیمر، کامپوزیت، الیاف آلومینوسیلیکاتی، استحکام مکانیکی.

### ۱- مقدمه

ژئوپلیمرها به عنوان دسته‌ای از مواد آلومینوسیلیکاتی آمورف توسط دیویداویتس فرانسوی معرفی شدند [۱]. مواد ژئوپلیمری در مقایسه با مواد مشابه مانند سیمان پرتلند، به هنگام تولید آلودگی زیست‌محیطی کم‌تری تولید می‌کنند و خصوصیات مکانیکی، پایداری حرارتی و مقاومت به اسید بیش‌تری نشان می‌دهند. هر منبع حاوی سیلیس و آلومینا که در محلول قلیایی قابلیت انحلال داشته باشند ترکیب ژئوپلیمری می‌سازد [۲]. ژئوپلیمرهای تهیه شده از متاکائولن در طی حرارت‌دهی تا دمای ۴۰۰ درجه سانتی‌گراد آب آزاد در ساختار خود را از دست می‌دهد، در نتیجه این فرایند در ژئوپلیمرها بدون حضور فاز تقویت‌کننده تقریباً مخرب است. در نمونه‌های ژئوپلیمری حرارت‌دهی شده، میکروترک‌ها با افزایش دما افزایش می‌یابد. نرم‌شدگی، پخت در حضور فاز مایع و آرایش مجدد در دماهای بین ۸۰۰ و ۱۰۰۰ درجه سانتی‌گراد اتفاق می‌افتد. به عبارتی بایندهای ژئوپلیمری بر پایه متاکائولن در دماهای بالا افت قابل توجه خواص مکانیکی و انقباض شدید را تجربه می‌کنند [۳، ۴]. می‌توان گفت که این رفتار ژئوپلیمرهای بر پایه



متاکائولن، کاربردهایی که نیاز به پایداری حجمی بالا دارند را محدود می‌کند. اما با افزودن پرکننده‌های مناسب به ژئوپلیمرها، تنش‌های ناشی از انقباض کاهش و چقرمگی کامپوزیت افزایش می‌یابد. با افزودن فاز تقویت‌کننده فرایند خروج آب به دلیل پل زدن ترک‌ها و همچنین ایجاد مسیرهایی برای خروج آب، غیر مخرب می‌شود [۴-۶]. در نتیجه ژئوپلیمرها به عنوان بایندر با روش تهیه ساده و اتصال به فاز تقویت‌کننده برای تهیه کامپوزیت‌ها مناسب هستند. رفتار اتصالی مناسب آن‌ها به فاز تقویت‌کننده موجب انتقال حداکثری بار به تقویت‌کننده و افزایش استحکام می‌شود. کامپوزیت‌های ژئوپلیمری برای بسیاری از کاربردها مثل ساخت قطعه‌های مقاوم به آتش و حرارت، دیرگذاها، عایق‌های حرارتی و ساخت مکان‌هایی که در معرض خطر احتراق هستند، مانند محفظه‌های نگهداری مهمات جنگی و مکان‌های نگهداری ضایعات سمی و رادیواکتیو مورد نیاز می‌باشند [۱]، [۲]. بررسی‌های بسیاری روی ساخت کامپوزیت‌های ژئوپلیمری انجام شده است اما بررسی‌های انجام شده روی کامپوزیت‌های الیافی بسیار محدودتر است. الیاف کربنی، شیشه‌ای، سیلیکون کارباید و الیاف طبیعی بسیاری به عنوان فاز تقویت‌کننده در ساخت ژئوپلیمرهای الیافی استفاده شده‌اند [۶، ۷]. الیاف سبب بهبود خواص استحکامی و چقرمگی می‌شود، اما به لحاظ هزینه و روش تولید نقص‌هایی از جمله اکسیداسیون کربن، عدم تحمل دمایی بالا در شیشه و جذب آب در بدنه حاوی الیاف طبیعی وجود دارد. در کامپوزیت‌های تقویت شده با الیاف سرامیکی افزایش چقرمگی و بهبود استحکام مکانیکی وابسته به سازوکارهایی جهت جلوگیری از شکل‌گیری ترک، پخش میکرو ترک‌ها، تغییر جهت ترک، جدایش و خروج الیاف است [۸، ۹].

در این پژوهش از الیاف آلومینوسیلیکاتی برای تقویت زمینه ژئوپلیمری بر پایه متاکائولن استفاده شده است. ریزساختار و خواص مکانیکی کامپوزیت‌های ساخته شده در دمای محیط و پس از حرارت‌دهی در دمای ۷۰۰ درجه سانتی‌گراد مورد بررسی قرار گرفته‌اند.

## ۲- مواد و فعالیت‌های تجربی

برای تهیه زمینه ژئوپلیمری از متاکائولن (متاسم-هندی) به عنوان منبع آلومینوسیلیکاتی و برای تهیه محلول قلیایی از هیدروکسید پتاسیم (۹۸ درصد-چینی)، آب و میکروسلیس آمورف (شرکت صنعت سیمان ایران با خلوص ۹۹٪) استفاده شد. فاز افزودنی هم الیاف کوتاه از جنس آلومینوسیلیکاتی (شرکت لویانگ چین) است. آنالیز شیمیایی الیاف آلومینوسیلیکاتی استفاده شده در جدول ۱ دیده می‌شود.

جدول ۱: آنالیز و شکل الیاف آلومینوسیلیکاتی

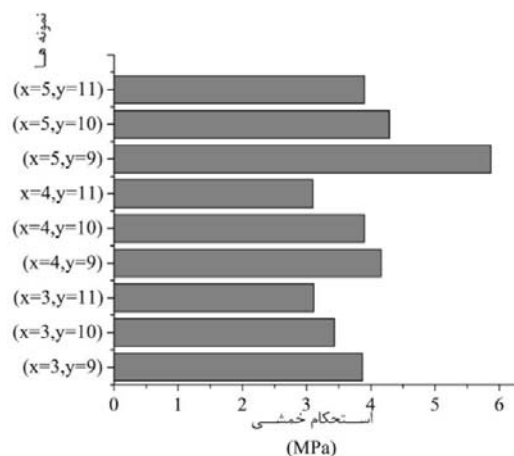
تحمل دمایی (°C)	رنگ	درصد غیرالیافی	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	SiO <sub>2</sub>
۱۲۶۰	سفید	≤۱۲	۴۳≤	۵۴≤

برای تهیه زمینه ژئوپلیمری در کامپوزیت‌ها از فرمول  $K_2O \cdot Al_2O_3 \cdot x SiO_2 \cdot yH_2O$  که در آن  $x = 3, 4, 5, 6$  و  $y = 9, 10, 11$  استفاده شد. برای تهیه محلول سیلیکات قلیایی با نسبت  $KOH/SiO_2 = 0/25$  پس از انحلال هیدروکسید پتاسیم در آب، سیلیس آمورف به ترکیب اضافه شد. پس از آن متاکائولن به محلول قلیایی افزوده و مدت یک ساعت با سرعت ۶۰۰ rpm همزده شد تا این که دوغابی همگن به دست آمد. برای ساخت بدنه‌های بدون افزودنی، پس از آن که دوغاب آماده شد، آن را داخل قالب پلاستیکی ریخته به مدت ۱۵ دقیقه ویبره شد تا حباب‌های آن به طور کامل خارج شود، پس از این مرحله قالب حاوی دوغاب به مدت ۲۴ ساعت در محیطی کامل بسته (کیسه پلاستیکی) در دمای اتاق پروراند و پس از آن به مدت ۲۴ ساعت در دمای ۸۰ درجه سانتی‌گراد قرار گرفت. محیط پروراندن باید کاملاً پوشیده باشد تا بخار آب از آن خارج نشود و پروسه گیرش ژئوپلیمر تکمیل شود. در بدنه‌های تقویت شده با الیاف، ابتدا برای جدا شدن الیاف فله‌ای از یکدیگر، الیاف در داخل آب به مدت ۱۵ دقیقه اولتراسونیک، سپس در خشک‌کن خشک و به دوغاب ژئوپلیمری افزوده شدند. برای مخلوط کردن این الیاف باید دقت شود که پره هم‌زن کاملاً گرد و مناسب باشد تا الیاف خرد نشود. پس از آن که الیاف به خوبی در دوغاب مخلوط و پخش شدند، در داخل قالب ریخته و حباب‌زدایی، پروراند، خشک و سپس حرارت‌دهی انجام شد. درصد الیاف افزوده شده به دوغاب برابر ۱، ۳، ۵ و ۷٪ وزنی در نظر گرفته شد. جهت انجام آزمون فشاری طبق استاندارد ASTM C133-97، نمونه‌های مکعبی  $5\text{ cm} \times 5\text{ cm} \times 5\text{ cm}$  و برای

آزمون خمشی سه نقطه‌ای از نمونه‌های خمشی، مکعب مستطیلی با ابعاد  $6 \text{ cm} \times 2 \text{ cm} \times 2 \text{ cm}$  استفاده شد. لازم به ذکر است برای هر ترکیب ۵ نمونه تهیه و میانگین استحکام فشاری و خمشی آن‌ها در تحقیق استفاده شده است. برای بررسی فازی از پراشگر اشعه ایکس (XRD) (Siemens D500)، و برای بررسی ریزساختاری از میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM) (FE-SEM, MIRA3 TESCAN, Czech Republic) استفاده شد.

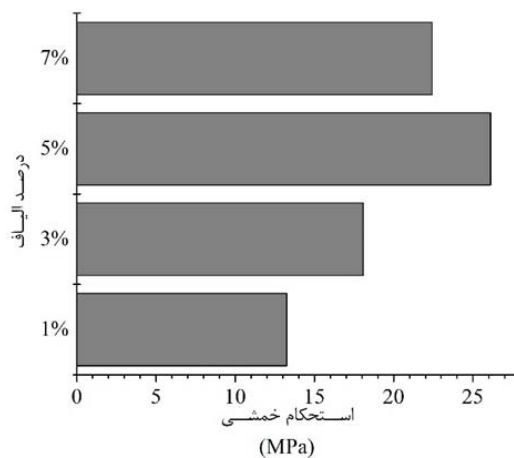
### ۳- نتایج و بحث

برای تهیه نمونه‌های کامپوزیتی با خواص مطلوب، ابتدا باید زمینه ژئوپلیمری مناسب با خواص بهینه انتخاب شود. طبق فرمول قسمت ۲ پارامترهای مختلف از جمله نسبت سیلیس به آلومینا و مقدار آب در تهیه دوغاب‌های ژئوپلیمری بررسی شدند، در نهایت با بررسی استحکام مکانیکی نمونه‌ها و مقایسه آن‌ها با یکدیگر نمونه بهینه انتخاب شد. در شکل ۱ این مقایسه را می‌توان مشاهده نمود.



شکل ۱: میانگین استحکام خمشی نمونه‌های ژئوپلیمری در دمای محیط.

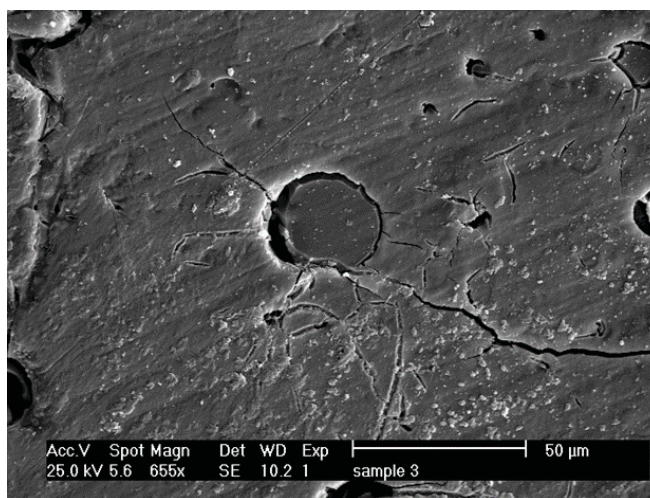
نمونه ژئوپلیمری با نسبت مولی  $\text{SiO}_2$  به  $\text{Al}_2\text{O}_3$  برابر ۵ و ۹ مول آب در دمای محیط بالاترین استحکام خمشی و فشاری به ترتیب ۵/۸۷ و ۱۹/۰۵ مگاپاسکال را نشان داد. پس این نمونه به عنوان نمونه بهینه برای ادامه فرایند مورد بررسی قرار گرفت. پس از تعیین نمونه ژئوپلیمری بهینه، درصد‌های مختلف الیاف به دوغاب اضافه و ریخته‌گری نمونه‌های کامپوزیتی انجام شد. با توجه به شکل ۲ نمونه حاوی ۵٪ وزنی الیاف آلومینوسیلیکاتی دارای بیش‌ترین استحکام خمشی نسبت به سایر نمونه‌ها است.



شکل ۲: استحکام خمشی نمونه‌های کامپوزیتی حاوی درصد‌های مختلف الیاف در دمای محیط.



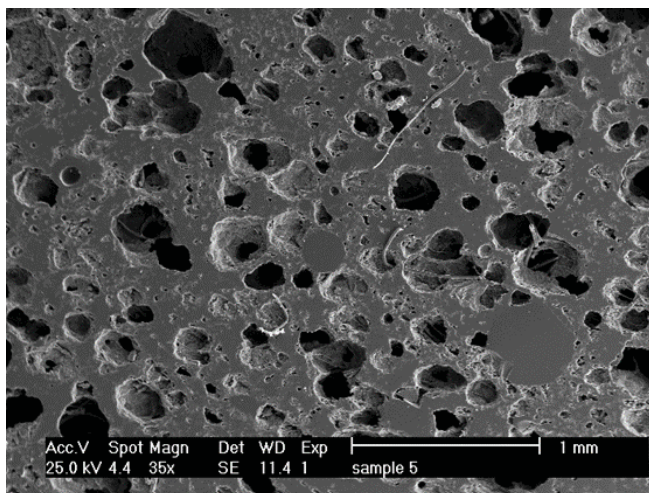
استحکام فشاری نمونه کامپوزیتی با ۵ درصد وزنی الیاف برابر ۴۸/۵۲ مگاپاسکال به دست آمد. همان طور که از شکل ۱ و ۲ قابل مشاهده است افزودن الیاف به زمینه ژئوپلیمری باعث افزایش چشمگیر استحکام مکانیکی می‌شود. Farhan و همکارانش [۱۰] نیز اشاره کرده‌اند که با اضافه کردن الیاف به زمینه و کاهش مقدار ژئوپلیمر، مقدار آب، تخلخل، ترک و پهنای ترک‌ها به طور قابل توجهی کاهش می‌یابد. به عبارتی حضور الیاف تقویت‌کننده به صورت قابل توجهی در کنترل انقباض خشک شدن نمونه‌ها تاثیر دارد. ترک‌ها تنها در زمینه ژئوپلیمری هستند و در صورت برخورد با الیاف حرکت ترک‌ها کند می‌شود [۶]. به دلیل اتصال مناسب بین الیاف و زمینه ژئوپلیمری استحکام خمشی و فشاری این نمونه‌ها افزایش نشان می‌دهد. در دمای محیط استحکام فشاری نمونه ژئوپلیمری ۱۹/۰۵ مگاپاسکال و نمونه کامپوزیتی با ۵ درصد وزنی الیاف برابر ۴۸/۵۲ مگاپاسکال است. علت بهبود خواص بدنه کامپوزیتی در دمای محیط را باید در نقش الیاف جستجو کرد. یکی از مهم‌ترین مکانیزم‌های بهبود خواص مکانیکی بر پایه نوع اتصال الیاف به زمینه است. برای بررسی الیاف و عمل کرد آن‌ها در کامپوزیت بررسی ریزساختاری با SEM انجام گرفت. شکل ۳ ریزساختار بدنه کامپوزیتی را نشان می‌دهد.



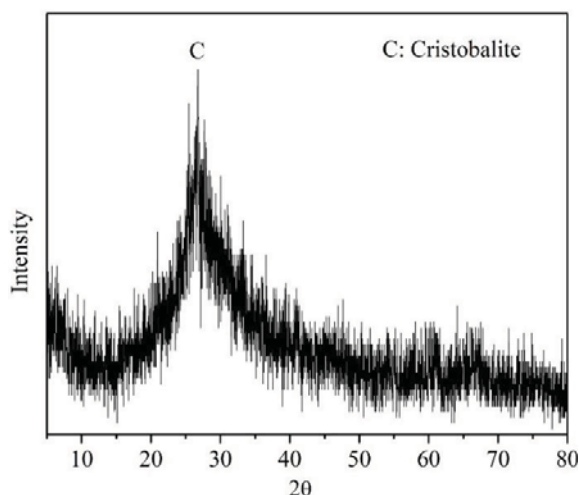
شکل ۳: ریزساختار بدنه کامپوزیتی با ۵ درصد وزنی الیاف در دمای محیط.

با توجه به شکل ۳، به نظر می‌رسد که اتصال الیاف به زمینه ژئوپلیمری به صورت مکانیکی است. اگر در بدنه‌های کامپوزیتی در فصل مشترک الیاف و بدنه اتصال شیمیایی برقرار شود احتمال پل‌زدن یا خروج الیاف کم می‌شود، باند ضعیف در فصل مشترک خروج الیاف را بهبود می‌بخشد [۶، ۱۰]. یکی از علل کاهش استحکام مکانیکی در دماهای بالاتر تغییر شیوه اتصال الیاف به بدنه است، در شکل ۴ ریزساختار بدنه کامپوزیتی پخت شده در دمای ۷۰۰ درجه سانتی‌گراد قابل مشاهده است. مشخص است که با افزایش دما فصل مشترک بین الیاف و زمینه شروع به برقراری اتصال شیمیایی می‌کند، یعنی اتصال آن از گیرش مکانیکی به اتصال شیمیایی تبدیل می‌شود، در نتیجه فرآیند مثبتی که از طریق مکانیزم خروج الیاف و جلوگیری از رشد و اشاعه ترک اتفاق می‌افتاد دیگر رخ نمی‌دهد. هنگامی که بدنه به سمت یک‌پارچگی و از بین رفتن فواصل سطح اتصال می‌رود استحکام مکانیکی کاهش می‌یابد. مقدار استحکام خمشی و فشاری نمونه کامپوزیتی پس از حرارت‌دهی به ترتیب به ۱۰/۳۴ و ۱۷/۸۶ مگاپاسکال رسید که نشان‌دهنده افت استحکام مکانیکی با دما است.

در بررسی پراش اشعه X از نمونه ژئوپلیمری و کامپوزیتی دیده شد که به دلیل آمورف بودن الیاف و حضور ذرات غیرالیافی که در جدول ۱ به آن اشاره شده است، ساختار بدنه در دمای محیط آمورف است. البته مقدار کمی فاز کریستالی کریستوبالیت در ترکیب مشاهده می‌شود. با حرارت‌دهی در دمای ۷۰۰ درجه سانتی‌گراد همچنان فاز غالب در بدنه فاز آمورف است، کریستاله شدن و حضور فاز بلوری در این دما مشاهده نشد. در شکل ۵ تصویر پراش اشعه X نمونه کامپوزیتی دارای ۵ درصد وزنی الیاف در دمای ۷۰۰ درجه سانتی‌گراد دیده می‌شود.



شکل ۴: ریزساختار بدنه کامپوزیتی با ۵ درصد وزنی الیاف در دمای ۷۰۰°C



شکل ۵: تصویر پراش اشعه X نمونه کامپوزیتی با ۵ درصد الیاف در دمای ۷۰۰°C

#### ۴- نتیجه‌گیری

طبق پژوهش انجام شده بیش‌ترین استحکام مکانیکی در نمونه‌های بدون افزودنی با نسبت سیلیس به آلومینا برابر ۵ و مقدار آب برابر با ۹ مول حاصل شد. نقش الیاف در تهیه کامپوزیت‌های ژئوپلیمری در دمای محیط بسیار مهم و تاثیرگذار است. با افزودن ۵ درصد وزنی الیاف آلومینوسیلیکاتی به نمونه بهینه، مقدار استحکام خمشی و فشاری به ترتیب ۲۶/۱۲ و ۴۸/۵۲ مگاپاسکال به دست آمد. با حرارت‌دهی تا دمای ۷۰۰ درجه سانتی‌گراد، استحکام مکانیکی نمونه کامپوزیتی کاهش نشان داد که دلیل آن تغییر در نحوه اتصال الیاف به زمینه ژئوپلیمری است.

#### مراجع

- [1]. J. Davidovits, Geopolymers and geopolymeric materials, J. Therm. Anal., 1989, 35, 429-441.
- [2]. P. Duxson, A. Fernández-Jiménez, J. L. Provis, G. C. Lukey, A. Palomo, J. S. J. van Deventer, "Geopolymer technology: the current state of the art", J. Mat. Sci., 2007, 42, 2917-2933.
- [3]. P. He, D. Jia, M. Wang, Y. Zhou, "Thermal evolution and crystallization kinetics of potassium-based geopolymer", J. Ceram. Int., 2011, 37, 59-63.
- [4]. S. S. Musil, W. M. Kriven, In situ mechanical properties of chamotte particulate reinforced, potassium geopolymer, J. Am. Ceram. Soc., 2014, 97, 907-915.
- [5]. B. Coppola, C. Tardivat, S. Richaud, J. M. Tulliani, L. Montanaro, P. Palmero, Alkali-activated refractory





- wastes exposed to high temperatures: development and characterization, J. Eur. Ceram. Soc., 2020, 40, 3314-3326.
- [6]. N. Ranjbar, M. Zhang, "Fiber-reinforced geopolymer composites: A review", J. Cem. Concr. Compos, 2020, 107, 103498.
- [7]. S. Tamburini, M. Natali, E. Garbin, M. Panizza, M. Favaro, M. Valluzzi, "Geopolymer matrix for fibre reinforced composites aimed at strengthening masonry structures", J. Constr. Build Mater., 2017, 141, 542-552.
- [8]. S.A. Bernal, J. Bejarano, C. Garzón, R. Mejía de Gutiérrez, S. Delvasto, E. D. Rodríguez, "Performance of refractory aluminosilicate particle/fiber-reinforced geopolymer composites", j. Compos., 2012, 43, 1919-1928.
- [9]. J. Yuan, P. He, D. Jia, S. Yan, D. Cai, L. Xu, Z. Yang, X. Duan, S. Wang, Y. Zhou, "SiC fiber reinforced geopolymer composites, part 1: Short SiC fiber", J. Ceram. Int., 2016, 42, 5345-5352.
- [10]. K. Z. Farhan, M. A. M. Johari, R. Demirboga, "Impact of fiber reinforcements on properties of geopolymer composites: A review", J. Build. Eng., 2021, 44, 102628.



# Investigation the Role of Aluminosilicate Fibers in the Microstructure and Mechanical Properties of Geopolymer Composites

H. Mortezaei Semnani, A. Moosavi\*

Department of Materials Engineering, Science and Research Branch, Islamic Azad University, Tehran, Iran

\* a-moosavi@srbiau.ac.ir

**Abstract:** In this research, metakaolin-based geopolymers reinforced with aluminosilicate fibers were investigated at room temperature and after exposure to 700°C. Geopolymers were synthesized from metakaolin, micro silica and potassium hydroxide. The different molar ratios of silica to alumina and water content were studied. 1, 3, 5 and 7 weight percent of aluminosilicate fibers were added to the geopolymer composition. The mechanical strength and microstructure of the samples were studied. The results showed that the flexural and compressive strength values of the optimal sample at ambient temperature are equal to 5.87 and 19.05 MPa, respectively. By adding 5 wt% aluminosilicate fibers, the maximum of flexural and compressive strength values were obtained. However, by heating the composite samples at 700°C, flexural and compressive strength values were 10.34 and 17.86 Mpa, respectively. Decrease in the mechanical strength at 700°C is due to the strong chemical connection between aluminosilicate fibers and geopolymer binder during the heat treatment.

**Keywords:** Geopolymer, Composite, Aluminosilicate fibers, Mechanical strength.