فصلنامه سرامیک ایران

بررسی نقش ذرات شاموت در ریزساختار و خواص مکانیکی کامپوزیت‌های ژئوپلیمری

فرید ذاکر شبیری[۱]، اعظم موسوی کاشی[۲]

[۱] دانش‌آموخته گروه مواد غیرفلزی و حفاظت، دانشکده فنی و مهندسی، واحد علوم و تحقیقات، دانشگاه آزاد اسلامی، تهران، ایران

[۲] استادیار گروه مواد غیرفلزی و حفاظت، دانشکده فنی و مهندسی، واحد علوم و تحقیقات، دانشگاه آزاد اسلامی، تهران، ایران

نویسنده اول:
فرید ذاکر شبیری
نویسنده مسئول:
دکتر اعظم موسوی کاشی
دانشگاه آزاد اسلامی واحد علوم و تحقیقات
* a-moosavi@srbiau.ac.ir

نوع مقاله: پژوهشی
صفحه‌های: ۳۰ تا ۳۵
شاپا چاپی: ۳۳۵۱-۱۷۳۵
شاپا الکترونیکی: ۳۰۹۷-۲۷۸۳
زبان نشریه: فارسی
دسترس‌پذیر در نشانی:
www.JICERS.ir
تاریخ دریافت:
۱۴۰۳/۰۲/۲۲
تاریخ پذیرش:
۱۴۰۳/۰۴/۱۶
DOR: 20.1001.1.17353351.1403.19.0.1.8

چکیده: *در این پژوهش ریزساختار و خواص مکانیکی ژئوپلیمر با ترکیب $0{,}75\ K_2O.Al_2O_3.xSiO_2.9H_2O$ بر پایه متاکائولن و ترکیب قلیایی سیلیکات پتاسیم پس از گیرش نهایی (به مدت ۲۸ روز) در دمای اتاق مورد بررسی قرار گرفت. نسبت‌های مولی مختلف ۳/۷۵، ۳/۵۰، ۳/۲۵، ۳=$x=\frac{SiO_2}{Al_2O_3}$ برای تعیین ترکیب بهینه ژئوپلیمر بررسی و ترکیب بهینه با نسبت مولی سیلیس به آلومینا برابر با ۳/۲۵ با استحکام خمشی برابر با ۰/۲۵±۱۱/۲۴ مگاپاسکال به‌دست آمد. مقدار ۴۵ درصد وزنی ذرات شاموت با دانه‌بندی کوچک‌تر از ۰/۶ میلی‌متر به‌عنوان تقویت‌کننده به ترکیب ژئوپلیمر بهینه افزوده و استحکام مکانیکی و ریزساختار نمونه‌ها مورد بررسی قرار گرفت. افزودن ذرات شاموت در شکل ظاهری نمونه‌های ژئوپلیمری و کاهش درصد انقباض خشک نمونه‌ها پس از گیرش، تاثیر قابل توجهی داشت. مقدار استحکام خمشی نمونه کامپوزیتی برابر با ۱/۰۷±۲۰/۱۵ مگاپاسکال محاسبه شد. این افزایش استحکام مکانیکی می‌تواند به دلیل نقش ذرات شاموت در جلوگیری از اشاعه ترک در ساختار کامپوزیت باشد.*

کلمات کلیدی: *ژئوپلیمر، کامپوزیت، شاموت، استحکام مکانیکی، ریزساختار.*

۱- مقدمه

ژئوپلیمرها به‌عنوان دسته‌ای از مواد آلومینوسیلیکاتی آمورف توسط دیویدوویتس فرانسوی معرفی شدند. ژئوپلیمرها در دمای کم‌تر از ۱۰۰°C تهیه می‌شوند، آن‌ها پلیمرهای غیرآلی از آلومینوسیلیکات ها هستند که با ترکیبات قلیایی فعالسازی می‌شوند، به‌طوری که مواد اولیه آلومینیومی و سیلیکونی آن‌ها در محلول قلیایی حل می‌شود [۱].

خصوصیات ساختاری و خواص ژئوپلیمرها با تغییر نسبت مولی Si به Al، نوع و غلظت کاتیون فلزی، درصد آب و شرایط گیرش تغییر می‌کند [۲]. قرارگیری آلومینیوم سه‌ظرفیتی به جای سیلیکون چهارظرفیتی در واحدهای ساختاری چهاروجهی، موجب کمبود یک بار الکتریکی می‌شود که توازن بار الکتریکی توسط کاتیون‌های فلزی قلیایی معمولا سدیم و پتاسیم برقرار می‌شود [۳]. در سال‌های اخیر، ژئوپلیمرها و کامپوزیت‌های آن‌ها به علت خصوصیات منحصربه‌فرد خود مانند تهیه در دمای پایین، فرایند تهیه مقرون‌به‌صرفه و ساده، مقاومت عالی در برابر خوردگی و حرارت و همچنین ماهیت بی‌ضرر بودن برای طبیعت، توجه‌های بسیاری

در زمینه ساخت و ساز، متالورژی و غیرفعالسازی عناصر سمی به‌دست آورده‌اند [۴-۶]. ترکیبات بر پایه ژئوپلیمرها می‌توانند به مواد سرامیکی با خصوصیات مکانیکی و حرارتی قابل کنترل پس از پخت یا پس از نگهداری در دمای بالا تبدیل شوند [۶، ۷]. این امر ارائه ژئوپلیمرها و کامپوزیت‌های آن‌ها را به‌عنوان مواد اولیه امیدوارکننده برای تهیه سرامیک‌های دما بالا با پتاسیل کاربردی در هوا فضا، قطعات مقاوم به حرارت، و مواد دفن‌کننده معرفی می‌کند. تلاش برای توانمند ساختن و پیشرفت ژئوپلیمرها و کامپوزیت‌های آن‌ها در مقوله ساز و کار ژئوپلیمریزاسیون، ارزیابی ریزساختار، تهیه، مشخصات و پتاسیل‌های کاربردی با سرعت زیادی در حال رشد و پیشرفت است. در مورد تهیه کامپوزیت‌های زمینه ژئوپلیمری با ذرات شاموت به‌عنوان تقویت‌کننده، Musil و Kriven [۶] گزارش کرده‌اند که با افزودن ۲۵ درصد وزنی شاموت، استحکام خمشی به حدود ۱۳ مگاپاسکال می‌رسد. Kohout و Koutník [۸] اثر افزودنی‌های مختلفی را در افزایش استحکام زمینه ژئوپلیمری بررسی کردند و به این نتیجه رسیدند که حضور شاموت باعث افزایش استحکام کامپوزیت هم قبل از حرارت‌دهی و هم پس از حرارت‌دهی در دماهای بالا می‌شود.

در این پژوهش هدف اصلی استفاده از مواد جانبی (فرعی) حاصل از کارخانه‌های صنعتی داخلی در تهیه ژئوپلیمر بوده است. بنابراین از سیلیس آمورف (سیلیکا فیوم) به‌عنوان محصول جانبی صنایع تولید فروآلیاژسیلیکون داخلی برای تامین سیلیس آمورف، استفاده شد. تهیه محلول سیلیکات قلیایی با ترکیب مناسب برای فعالسازی متاکائولن و رسیدن به ترکیب ژئوپلیمری بهینه انجام شده و در ادامه کار استفاده از قطعه‌های شاموتی شکسته شده و ضایعاتی کارخانه‌های داخلی تولیدکننده آجرهای نسوز به‌عنوان فاز تقویت‌کننده در زمینه ژئوپلیمری بررسی شد.

۲- مواد و روش تحقیق

برای تهیه زمینه ژئوپلیمری از فرمول $0.75\ K_2O.Al_2O_3.x\ SiO_2.9\ H_2O$ که در آن ۳/۷۵، ۳/۵، ۳/۲۵، ۳ =x و مواد اولیه شامل متاکائولن، سیلیکافیوم و هیدروکسید پتاسیم استفاده شد، در جدول ۱ آنالیز مواد اولیه دیده می‌شود. لازم به ذکر است که آنالیزها توسط شرکت تهیه‌کننده مواد اولیه ارائه شده است.

برای به‌دست آوردن فرمول بهینه با توجه به مواد اولیه موجود، تغییرات مولی $\frac{SiO_2}{Al_2O_3}$ که موثرترین پارامتر است مورد بررسی قرار گرفت. بررسی نسبت های مولی $\frac{SiO_2}{Al_2O_3}$، تنظیم مقدار آب و درصد بهینه ترکیبات قلیایی در تهیه زمینه ژئوپلیمری و بهترین درصد و روش اختلاط ذرات تقویت‌کننده به دوغاب ژئوپلیمری، در کیفیت نهایی محصول تاثیر بسیاری دارد [۹]. ابتدا محلول سیلیکات قلیایی با مخلوط کردن سیلیکافیوم و هیدروکسید پتاسیم تهیه شد، به این ترتیب که میزان آب مورد نظر را توزین کرده و به آن هیدروکسید پتاسیم با نسبت مولی $K_2O:Al_2O_3=$ ۰/۷۵ افزوده و در نهایت سیلیکافیوم اضافه شد. پس از آن که محلول قلیایی کاملا همزده و آماده شد، متاکائولن به آن افزوده و مدت یک ساعت مخلوط شدند تا دوغاب یکنواختی به‌دست آمد. برای تهیه بدنه‌های ژئوپلیمری، دوغاب آماده‌شده در داخل قالب پلاستیکی با ابعاد ۱۵×۱۵×۶۰ mm^3 ریخته و سپس به مدت ۱۵ دقیقه توسط دستگاه، تحت عملیات لرزش قرار گرفتند تا حباب‌های آن به‌طور کامل خارج شد. بدین ترتیب نمونه‌های استحکام خمشی حاصل و به مدت ۲۴ ساعت در دمای اتاق پرورانده شدند، پس از آن به مدت ۲۴ ساعت در دمای ۸۰ درجه سانتی‌گراد خشک شدند. محیط پروراندن باید کاملا پوشیده باشد تا بخار آب از آن خارج نشود.

برای تهیه بدنه‌های کامپوزیتی، ۴۵ درصد وزنی فاز جامد در ترکیب زمینه ژئوپلیمری، ذرات شاموت توزین و به ترکیب ژئوپلیمری بهینه اضافه و مشابه قسمت قبل شکل‌دهی و خواص مکانیکی آن‌ها بعد از ۲۸ روز از گیرش نهایی مورد بررسی قرار گرفت. جهت بررسی دقیق نمونه‌های تهیه شده از آزمون اشعه X (XRD, Siemens D500) و تصاویر میکروسکوپی الکترونی روبشی (FE-SEM, MIRA3 TESCAN, Czech) استفاده شد تا فازهای کریستالی و ریزساختار مورد بحث و بررسی قرار گیرد. همچنین استحکام خمشی نمونه‌ها (۳ نقطه‌ای) به کمک دستگاه استحکام‌سنجی ۳ نقطه‌ای طبق استاندارد ASTM C78 برای ۵ نمونه از هر ترکیب اندازه‌گیری و میانگین گزارش شد.

جدول ۱: آنالیز شیمیایی مواد اولیه (درصد وزنی)

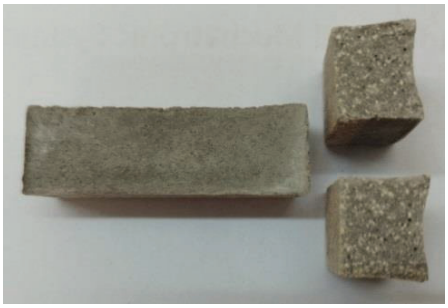
مواد اولیه	متاکائولن	سیلیکافیوم	شاموت
SiO_2	۵۳	۹۶/۴	۵۲/۱۹
Al_2O_3	۴۵	۱/۳۲	۴۲/۱۳
CaO	۰/۰۹	۰/۴۹	۰/۹۱
Fe_2O_3	۱	۰/۸۷	۲/۲۹
TiO_2	۰/۶۵	-	۲/۱۷
MgO	۰/۰۳	۰/۹۷	-
K_2O	۰/۰۳	۱/۰۱	۰/۳۱
Na_2O	۰/۱	۰/۳۱	-
C	-	۰/۳	-
Si	-	۰/۵	-

۳- تحلیل نتایج و بحث

نمونه ژئوپلیمری با نسبت مولی SiO_2 به Al_2O_3 برابر ۳/۲۵ در دمای محیط بالاترین استحکام خمشی برابر ۱۱/۲۴±۰/۲۵ مگاپاسکال را نشان داد. این نمونه به‌عنوان نمونه بهینه برای ادامه فرایند مورد بررسی قرار گرفت. در جدول ۲ استحکام خمشی نمونه‌های ژئوپلیمری مختلف دیده می‌شود. همان‌طور که قبلا اشاره شد برای تهیه نمونه کامپوزیتی، ۴۵ درصد وزنی فاز جامد در ترکیب ژئوپلیمر، شاموت توزین و به ترکیب ژئوپلیمر بهینه اضافه و ریخته‌گری نمونه‌های کامپوزیتی انجام شد. شکل ۱ تصویر نمونه کامپوزیتی دارای ۴۵ درصد وزنی شاموت و سطح مقطع شکست آن را بعد از انجام آزمون استحکام خمشی نشان می‌دهد.

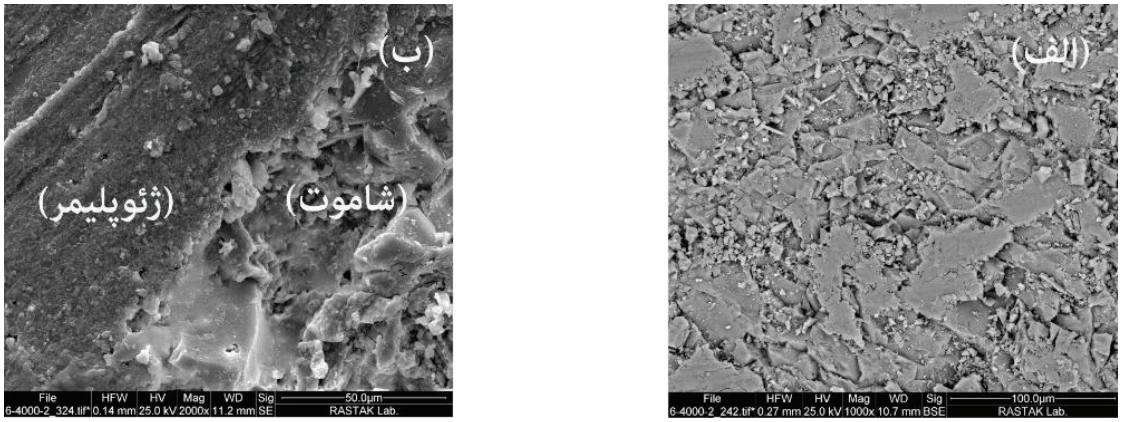
جدول ۲: استحکام خمشی (مگاپاسکال) نمونه‌های ژئوپلیمری با نسبت مولی $\frac{SiO_2}{Al_2O_3}$ مختلف

نمونه	۳	۳/۲۵	۳/۵۰	۳/۷۵
استحکام خمشی	۸/۶۷±۰/۱۹	۱۱/۲۴±۰/۲۵	۱۰/۳۹±۰/۳۱	۹/۵۶±۰/۵۶



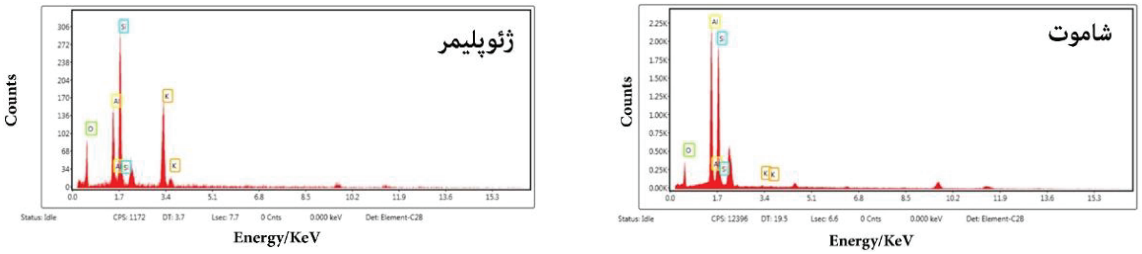
شکل ۱: تصویر نمونه کامپوزیتی و سطح مقطع شکست آن با ۴۵ درصد وزنی شاموت

با اضافه کردن ذرات شاموت به زمینه ژئوپلیمری و تهیه کامپوزیت، مقدار آب و تخلخل، ترک و پهنای ترک‌ها به‌طور قابل توجه‌ای کاهش می‌یابد [۷، ۱۰]. به عبارتی حضور ذرات تقویت‌کننده به‌صورت قابل توجه‌ای در کنترل انقباض خشک‌شدن نمونه‌ها تاثیر دارد. ترک‌ها تنها در زمینه ژئوپلیمری وجود دارند و در صورت برخورد با ذرات تقویت‌کننده حرکت ترک‌ها کند یا متوقف می‌شود [۱۱]. به دلیل اتصال مناسب بین ذرات شاموت و زمینه ژئوپلیمری، استحکام خمشی این نمونه‌ها تا مقدار ۲۰/۱۵±۱/۰۷ مگاپاسکال افزایش یافت. بنابراین علت بهبود خواص مکانیکی بدنه کامپوزیتی در دمای محیط را باید در نقش ذرات تقویت‌کننده جستجو کرد. برای بررسی عمل‌کرد ذرات شاموت در کامپوزیت، بررسی ریزساختاری با SEM انجام گرفت. شکل ۲الف ریزساختار نمونه کامپوزیتی و شکل ۲ب اتصال شاموت به زمینه ژئوپلیمری را نشان می‌دهد.

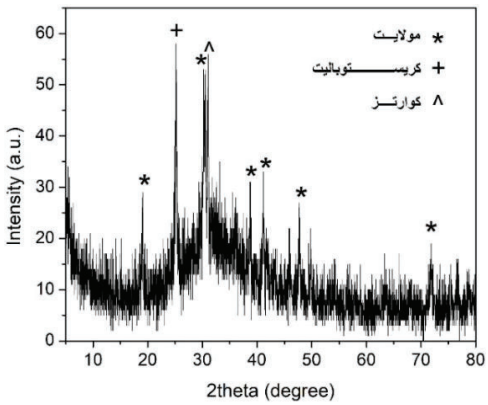


شکل ۲: الف) ریزساختار کامپوزیت و ب) مرز مشترک بین شاموت و زمینه ژئوپلیمری

برای بررسی دقیق‌تر آنالیز عنصری (EDS) نیز انجام شد و نتایج آن در شکل ۳ قابل مشاهده است. در فاز زمینه حضور عناصر سیلیسیم، آلومینیوم، اکسیژن و پتاسیم دیده می‌شود. در فاز تقویت‌کننده درصد پتاسیم کاهش قابل توجهی نشان می‌دهد. با توجه به آنالیز موجود در جدول ۲ در شاموت مصرفی اکسید پتاسیم ناچیز است. برهم‌کنش بین ذرات تقویت‌کننده و ترکیب ژئوپلیمری یکی از نکات مهم در تهیه نمونه‌های کامپوزیتی است. استفاده از ذرات تقویت‌کننده خنثی که با زمینه ژئوپلیمری وارد واکنش شیمیایی نشود می‌تواند استحکام مکانیکی را افزایش دهد. حضور ذرات شاموت به صورت خنثی موجب افزایش استحکام مکانیکی می‌شود. شاموت به‌عنوان ماده‌ای که حرارت‌دیده و دارای پایداری حرارتی است بدون هیچ استحاله‌ای می‌تواند به‌عنوان فاز تقویت‌کننده عمل کند. در بررسی پراش اشعه X (XRD) از نمونه کامپوزیتی فاز آمورف و فازهای کریستالی کوارتز، کریستوبالیت و مولایت دیده شدند. ساختار آمورف ژئوپلیمر به همراه فازهای کریستالی در ترکیب شاموت نشان‌دهنده غیرقابل حل‌بودن ذرات شاموت در ترکیب ژئوپلیمر است.



شکل ۳: آنالیز عنصری (EDS) از ژئوپلیمر و شاموت در شکل ۲ (ب)



شکل ۴: طیف پراش اشعه X نمونه کامپوزیتی

۴- نتیجه‌گیری

تهیه ژئوپلیمر با استفاده از سیلیکافیوم و متاکائولن در حضور پتاسیم نشان داد که در نسبت سیلیس به آلومینا برابر با ۳/۲۵ استحکام خمشی افزایش پیدا می‌کند. حضور ذرات شاموت در زمینه ژئوپلیمری بدون واکنش شیمیایی موجب تقویت ریزساختار و افزایش استحکام مکانیکی تا مقدار ۱/۰۷±۲۰/۱۵ مگاپاسکال شد. انجام آنالیز (EDS) نشان داد که ذرات شاموت بدون انجام واکنش شیمیایی به‌عنوان تقویت‌کننده عمل می‌کنند. اتصال بین ذرات ریز شاموت با سطح ویژه زیاد و زمینه ژئوپلیمری موجب تغییر مسیر رشد ترک و یا کند شدن آن و در نتیجه افزایش استحکام مکانیکی می‌شود.

تعارض منافع

هیچ‌گونه تعارض منافع توسط نویسندگان بیان نشده است.

مراجع

[1]. J. Davidovits, "Geopolymers: Ceramic-like inorganic polymers", J. Ceram. Sci. Technol., 2017, 8 [3] 335-350.

[2]. S. Riahi, A. Nemati, A. R. Khodabandeh, S. Baghshahi, "The effect of mixing molar ratios and sand particles on microstructure and mechanical properties of metakaolin-based geopolymers", Mater. Chem. Phys., 2020, 240 122223.

[3]. C. Kuenzel, L. Li, L. Vandeperre, A. R. Boccaccini, C. R. Cheeseman, "Influence of sand on the mechanical properties of metakaolin geopolymers", Constr. Build. Mater., 2014, 66 442-446.

[4]. P. Cong, Y. Cheng, "Advances in geopolymer materials: a comprehensive review. J. Traffic Transp. Eng. (Engl. Ed.), 2021, 8 283-314.

[5]. Y. Wu, B. Lu, T. Bai, H. Wang, F. Du, Y. Zhang, L. Cai, C. Jiang, W. Wang, "Geopolymer, green alkali activated cementitious material: synthesis, applications and challenges", Constr. Build. Mater., 2019, 224 930-949.

[6]. S. S. Musil, W.M. Kriven, "In situ mechanical properties of chamotte particulate reinforced, potassium geopolymer", J. Am. Ceram. Soc., 2014, 97 907-915.

[7]. 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.

[8]. J. Kohout, P. Koutník, "Effect of filler type on the thermomechanical properties of metakaolinite-based geopolymer composites", Mater., 2020, 13 2395.

[9]. A. Moosavi, S. Asadi, H. J. Shoraki, "Microstructure and mechanical properties of tabular alumina composites with geopolymer binder at elevated temperatures", Ceram. Int., 2019, 45 9092–9098.

[10]. Q. Wan, F. Rao, S. Song, D. F. Cholico-Gonzalez, N. L. Ortiz, "Combination formation in the reinforcement of metakaolin geopolymers with quartz sand", Cem. Concr. Compos., 2017, 80 115-122.

[11]. 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. Part B, 2012, 43 1919-1928.

Influence of Chamotte Particles on the Microstructural and Mechanical Properties of Geopolymer Composites

Farid Zaker Shobeiri, Azam Moosavi*

[1] **Department of Materials Engineering, Science and Research, Branch, Islamic Azad University, Tehran, Iran**

* a-moosavi@srbiau.ac.ir

Abstract: In this research, the microstructural and mechanical characteristics of metakaolin-based geopolymer 0.75 $K_2O.Al_2O_3.x\ SiO_2.9\ H_2O$ with potassium silicate solution was investigated 28 days after the final curing. In order to explore the optimal composition, different molar ratios of silica to aluminum oxide (3, 3.25, 3.50, and 3.75) was considered. The mechanical test showed that the molar ratio of SiO_2:Al_2O_3= 3.25 resulted in the highest flexural strength of 11.24±0.25 MPa. The incorporation of 45 wt% chamotte particles (with grain size lower than 0.6 mm) as a reinforcement within the matrix of geopolymer caused more volume stability after final curing and increased the flexural strength to 20.15±1.07 MPa. The improvement in mechanical strength of the geopolymer composite can be due to the prevention of crack propagation by chamotte particles.

Keywords: Geopolymer, Composite, Chamotte, Mechanical strength, Microstru.