การสังเคราะห์คอร์เดียไรต์จากตะกรันหลอมอะลูมิเนียม
A synthesis of cordierite from aluminium slag

ปราณี จันทร์ลา[1]*, วรรณา ต.แสงจันทร์ [1], ศันศนีย์ รักไทยเจริญชีพ[1]
Pranee Junlar[1]*, Wanna T.saengechantara[1], Sansanee Rugthaicharoencheep[1]

บทคัดย่อ

งานวิจัยนี้เป็นการสังเคราะห์คอร์เดียไรต์จากตะกรันหลอมอะลูมิเนียม สำหรับใช้ทำอุปกรณ์ในเตาเผา (kiln furniture) โดยมีส่วนผสมของตะกรันอะลูมิเนียม ดินขาว ดินดำ ทัลค์ และควอรตซ์ เผาที่อุณหภูมิ 1250, 1280 และ 1300 องศาเซลเซียส ศึกษาสมบัติของคอร์เดียไรต์ที่สังเคราะห์ได้ โดยวิเคราะห์ส่วนประกอบทางแร่วิทยาด้วยเครื่องเอกซเรย์ดิฟแฟรกโตมิเตอร์ (XRD) ทดสอบสมบัติทางกายภาพ ความแข็งแรง (Modulus of rupture) และค่าสัมประสิทธิ์การขยายตัวเมื่อร้อน (Coefficient of thermal expansion) ผลจาก XRD พบเฟสหลัก คอร์เดียไรต์ปริมาณสูงสุด ในเนื้อคอร์เดียไรต์ที่สังเคราะห์หลังเผาที่อุณหภูมิ 1300 องศาเซลเซียส มีการหดตัว (Shrinkage) ร้อยละ 8.1-9.9 การดูดซึมน้ำ (Water absorption) ร้อยละ 13.8-16.8 ความหนาแน่น (Bulk density) 1.80-1.88 กรัมต่อลูกบาศก์เซนติเมตร มีค่าความแข็งแรง ระหว่าง 20.7-22.7 เมกะพาสคาล และค่าสัมประสิทธิ์ การขยายตัวเมื่อร้อน ระหว่าง 3.199 -3.694 x10^{-6}ต่อองศาเซลเซียส จากนั้นได้คัดเลือกสูตรที่มีการเกิดเฟสคอร์เดียไรต์สูงสุด และความแข็งแรงสูงสุดทดลองทำผลิตภัณฑ์ต้นแบบขาตั้งรูปตัววี ที่มีความสูง 5 เซนติเมตร ขึ้นรูปด้วยวิธีหล่อแบบ

Abstract

This research focused on the synthesis of cordierite from aluminum slag to produce kiln furniture. The compositions based on an industrial Al-rich sludge, kaolin, ball clay, talc, and quartz at sintering temperatures of 1250, 1280, and 1300 °C. The properties of synthesized cordierite, namely phase compositions by means of X-ray diffraction (XRD), physical properties, strength (Modulus of Rupture), and thermal expansion coefficient were evaluated. The XRD analysis confirmed that the major phase of sample synthesized at 1300 °C was cordierite. The sample had firing shrinkage between 8.1-9.9%, water absorption in the range of 13.8-16.8%, density (Bulk density) between 1.80-1.88 g/cm^3, strength between 20.7-22.7 MPa, and thermal expansion coefficient in the range of 3.199—3.694 x 10^{-6}/ °C. In addition, the composition with the highest cordierite phase and strength were selected to form a V-shape, 5 cm high kiln furniture prototype using a slip casting method.lease the fragrance.

คำสำคัญ : ตะกรันหลอมอะลูมิเนียม, คอร์เดียไรต์, วัสดุทนไฟ
Keywords : Aluminium slag, Cordierite, Refractory

[1]กรมวิทยาศาสตรบริการ
*Corresponding author E-mail address : pranee@dss.go.th

1. บทนำ (Introduction)

อุตสาหกรรมการหลอมอะลูมิเนียมในประเทศไทยมีทั้งที่เป็นอุตสาหกรรมขนาดใหญ่ ขนาดกลางและขนาดย่อม (SMEs) มีตะกรันอะลูมิเนียมซึ่งเป็นกากอุตสาหกรรมมากกว่า 50 ตันต่อเดือน (1) ซึ่งโรงงานขนาดใหญ่จะส่งกากอุตสาหกรรมเหล่านี้ให้กับบริษัทที่ให้บริการกำจัดกากของเสียอุตสาหกรรม ในขณะที่โรงงาน SMEs ซึ่งส่วนใหญ่ตั้งอยู่ในจังหวัดสมุทรสาคร มีกากอุตสาหกรรมประมาณ 10 ตันต่อเดือน ไม่ได้ส่งบริษัทที่ให้บริการ เพราะมีค่าใช้จ่ายและยังไม่มีวิธีกำจัด นอกจากนำมาถมที่ ส่งผลต่อสภาพแวดล้อม จากการวิเคราะห์องค์ประกอบทางเคมีของตะกรันอะลูมิเนียม พบว่าองค์ประกอบหลัก คือ อะลูมินา (Al2O3) ถึงร้อยละ 77 จึงน่าจะนำไปใช้แทนวัตถุดิบอะลูมินา (2) เพื่อใช้ในการทำวัสดุทนไฟ แทนที่จะต้องนำเข้าจากต่างประเทศ

คอร์เดียไรต์ เป็นสารประกอบซิลิเกต มีสูตรทางเคมีคือ $MgO.Al_2O_3.5SiO_2$ จัดเป็นวัสดุทนไฟ มีค่าสัมประสิทธิ์การขยายตัวเมื่อร้อนต่ำระหว่าง 1.5-4.0 10^{-6}/C (3) มีสมบัติทนต่อการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิอย่างฉับพลันได้ดี จึงนิยมนำไปใช้งานในสภาวะที่ต้องมีการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิอยู่เสมอ เช่น อุปกรณ์ในเตาเผา (kiln furniture) ตัวกรองไอเสียในรถยนต์ (catalytic converter) และแผงวงจรไฟฟ้า เป็นต้น (4)

คอร์เดียไรต์สามารถสังเคราะห์ได้จากวัตถุดิบที่มีส่วนประกอบของแมกนีเซียออกไซด์ (MgO) อะลูมินา (Al_2O_3) และ ซิลิกา(SiO_2) เป็นองค์ประกอบ เช่น แมกนีไซต์ ($MgCO_3$) ทัลค์ ($32MgO.SiO_2.H_2O$) ดิน ($Al_2O_3.2SiO_2.2H_2O$) และอะลูมินา (Al2O3) โดยต้องเผาที่อุณหภูมิสูงกว่า 1400 องศาเซลเซียส เพื่อให้เกิดเป็นคอร์เดียไรต์ แต่หากมีการปรับเปลี่ยนอัตราส่วนของวัตถุดิบธรรมชาติ เช่น ดินขาว ดินดำ ทัลค์ และอะลูมินา ก็จะสามารถสังเคราะห์คอร์เดียไรต์ที่อุณหภูมิประมาณ 1200-1300 องศาเซลเซียสได้ เนื่องจากในวัตถุดิบธรรมชาติมักมีสิ่งเจือปนซึ่งช่วยให้เกิดปฏิกิริยาได้ง่ายขึ้น (5)

งานวิจัยนี้มุ่งเน้นการสังเคราะห์คอร์เดียไรต์จากส่วนผสมของดินขาว ดินดำ ทัลค์ และตะกรันอะลูมิเนียม สำหรับใช้ทำอุปกรณ์ในเตาเผา เพื่อเป็นแนวทางในการนำวัสดุเหลือทิ้งจากอุตสาหกรรมไปใช้ประโยชน์ ทำให้สามารถช่วยลดปัญหาสิ่งแวดล้อมได้อีกทางหนึ่ง (6, 7)

2. วิธีการวิจัย (Experimental)

2.1 การทดลองสังเคราะห์เนื้อคอร์เดียไรต์

คัดเลือกวัตถุดิบที่นำมาใช้ กำหนดส่วนผสมที่ใช้ในการทดลอง บดส่วนผสมให้ละเอียดในหม้อบดขึ้นรูปชิ้นทดสอบ เผาที่อุณหภูมิ 1250, 1280 และ 1300 องศาเซลเซียส ทดสอบสมบัติทางกายภาพ ส่วนประกอบทางแร่วิทยา ความแข็งแรง และค่าสัมประสิทธิ์การขยายตัวเมื่อร้อน จากนั้นคัดเลือกสูตรเนื้อคอร์เดียไรต์ เพื่อนำมาทดลองทำเป็นผลิตภัณฑ์ต้นแบบ

2.1.1 วัตถุดิบที่ใช้

- ตะกรันอะลูมิเนียม (Aluminium slag) จ.สมุทรสาคร
- ดินขาว (Kaolin) ชนิด Cerafast จากบริษัทอินดัสเตรียลมินเนอรัลดิเวลลอปเมนต์ จำกัด
- ดินดำ (Ball clay) ชนิด Ceragobe จากบริษัทอินดัสเตรียลมินเนอรัลดิเวลลอปเมนต์ จำกัด
- ควอรตซ์ (Quartz) ชนิด Cerasil จากบริษัทอินดัสเตรียลมินเนอรัลดิเวลลอปเมนต์ จำกัด
- ทัลค์ (Talc) ชนิด special จากบริษัทเซอร์นิคอินเตอร์เนชั่นแนล จำกัด องค์ประกอบทางเคมีของวัตถุดิบที่ใช้ในการทดลอง แสดงใน ตารางที่ 1

Table 1 Chemical composition of raw materials used in the experiment

Composition (%)	Aluminium slag (calcined)	Talc	Ball clay	Kaolin	Quartz
Al_2O_3	77.14	0.6	31.3	37.3	0.18
SiO_2	8.75	62.7	49.8	47.2	99.22
Fe_2O_3	6.67	0.1	1.2	1.0	0.1
MgO	1.81	32.3	0.1	0.06	0.1
CaO	1.41	1.9	0.4	0.1	0.1
Na_2O	0.72	0.5	0.5	0.4	0.03
K_2O	1.18	0.1	1.6	1.7	0.07
TiO_2	0.61	-	0.7	-	0.05
MnO_2	0.23	0.002	0.03	0.06	-
L.O.I.	-	1.6	13.7	13.0	0.3

2.1.2 ส่วนผสมเนื้อดิน

คอร์เดียไรต์มีสูตรเคมี $2MgO.2Al_2O_3.5SiO_2$ จากเฟสไดอะแกรมดังแสดงในภาพที่ 1 มีช่วงค่าออกไซด์ที่สามารถทำให้เกิดคอร์เดียไรต์ได้คือ MgO 9-17 %, Al_2O_3 30-38 % และ SiO_2 47-55 % (8) การทดลองครั้งนี้ได้แปรผันส่วนผสมตามแผนผังการผสมรูปสามเหลี่ยมโดยเลือก 5 จุด (A-E) ดังภาพที่ 2 เพื่อให้ได้คอร์เดียไรต์ที่มีส่วนผสมดังตารางที่ 2 และสูตรวัตถุดิบที่ใช้ในการทดลองแสดงในตารางที่ 3

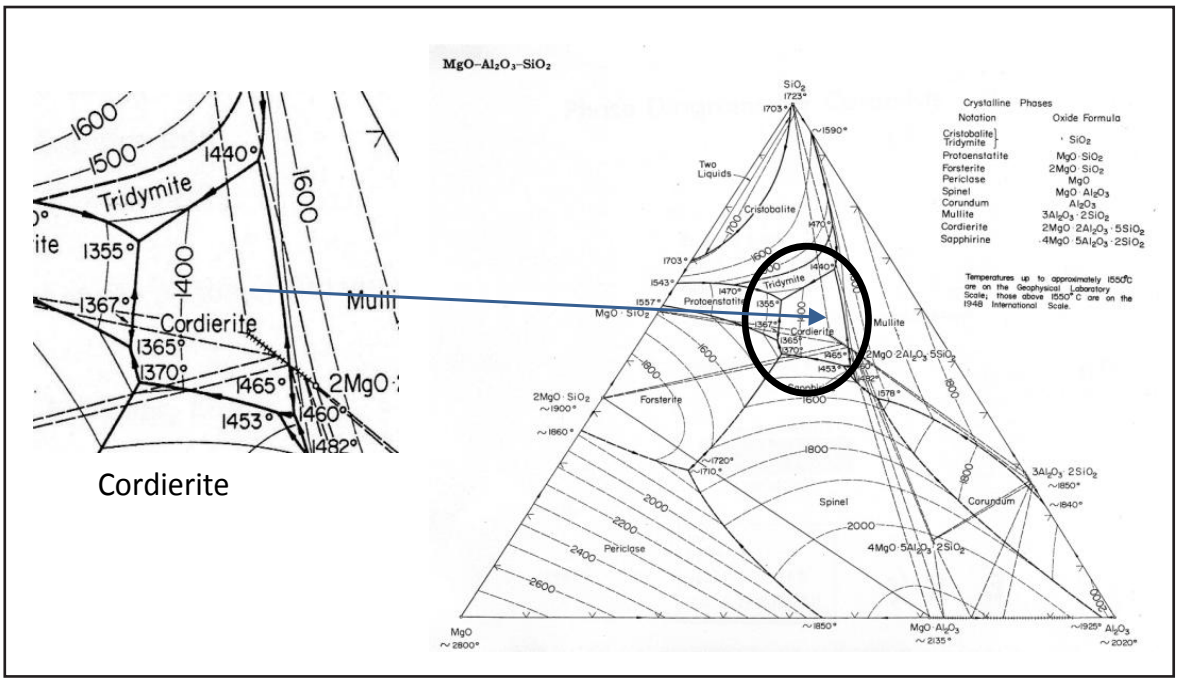

Figure 1 Phase diagram of MgO - Al2O3 - SiO2 system

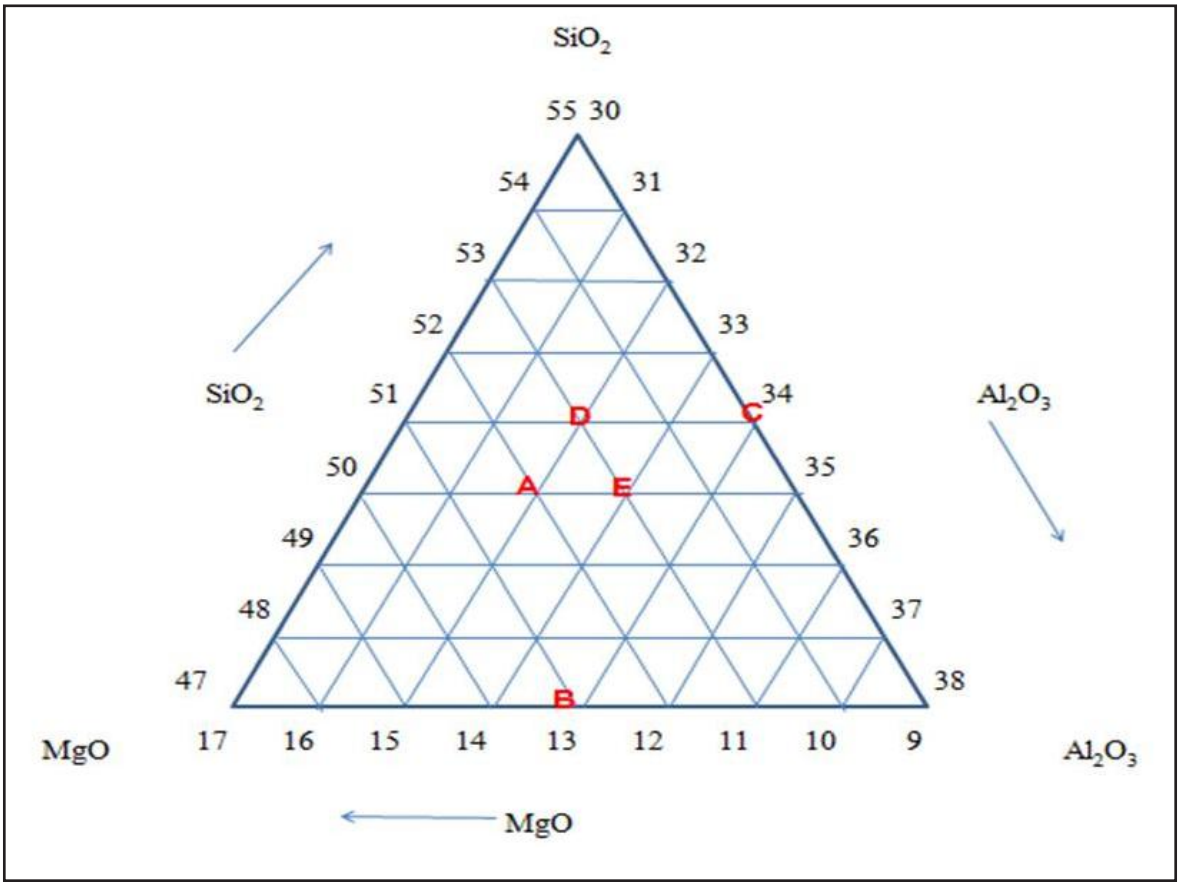

Figure 2 Triaxial table used to determine the formula

Table 2 Oxide compositions for cordierite body formulas

จุด	MgO	Al_2O_3	SiO_2
A	12	32	50
B	13	34	47
C	9	34	51
D	11	32	51
E	11	33	50

2.1.3 การเตรียมเนื้อคอร์เดียไรต์และชิ้นทดสอบ

ชั่งสูตรวัตถุดิบ ดังในตารางที่ 3 รวม 5 สูตร โดยแต่ละสูตร นำส่วนผสมบดในหม้อบดให้ละเอียดด้วยวิธีบดเปียก ใช้เวลาในการบด 24 ชั่วโมง นำไปผ่านตะแกรง 100 เมช และอบแห้งที่อุณหภูมิ 110 องศาเซลเซียส จากนั้นทำเป็นผงเม็ดแกรนูล ผ่านตะแกรง 50 และ 70 เมช แล้วนำไปอัดขึ้นรูปชิ้นทดสอบในแบบพิมพ์โลหะขนาด 30×60×10 คิวบิกมิลลิเมตร ด้วยเครื่องอัดไฮดรอลิก โดยใช้แรงอัด 140 กิโลกรัมต่อตารางเซนติเมตร เป็นเวลา 20 วินาที และนำไปเผาในเตาไฟฟ้าที่อุณหภูมิ 1250, 1280 และ 1300 องศาเซลเซียส โดยใช้อัตราเร่ง 150 องศาเซลเซียสต่อชั่วโมง ยืนไฟที่อุณหภูมิสูงสุด 120 นาที

Table 3 Raw material compositions used in the experiment.

Sample	Talc	Kaolin	Ball clay	Aluminium slag (calcined)	Quartz
AS_1.2_A	35.4	10.7	21.2	22.9	9.8
AS_1.2_B	34.3	13.2	26.2	23.9	2.4
AS_1.2_C	23.6	13.8	27.5	23.2	12.0
AS_1.2_D	29.5	11.6	23.0	24.0	11.9
AS_1.2_E	32.4	11.6	23.0	23.9	9.1

2.1.4 การทดสอบเนื้อคอร์เดียไรต์

นำชิ้นทดสอบที่เผาอุณหภูมิ 1250, 1280 และ 1300 องศาเซลเซียส ไปวิเคราะห์ทดสอบสมบัติต่างๆ ดังนี้

2.1.2.1 ทดสอบสมบัติทางกายภาพ ได้แก่ การหดตัว การดูดซึมน้ำ และค่าความหนาแน่น โดยทดสอบตามมาตรฐาน ASTM C 373-88 (Reapproved 2006) ใช้ชิ้นทดสอบรูปสี่เหลี่ยมผืนผ้าขนาด 30×60×10 มิลลิเมตร (กว้าง × ยาว × หนา) เผาแล้วที่อุณหภูมิ 1250, 1280 และ 1300 องศาเซลเซียส

2.1.2.2 ทดสอบค่าความแข็งแรง โดยใช้เครื่องยี่ห้อ Hung Ta รุ่น HT8116 ใช้ชิ้นทดสอบรูปสี่เหลี่ยมผืนผ้าขนาด 30×60×10 มิลลิเมตร (กว้าง X ยาว X หนา) เผาแล้วที่อุณหภูมิ 1250, 1280 และ 1300 องศาเซลเซียส

Table 4 Physical properties and strength of samples firing at temperature 1250, 1280 and 1300 °C

Sample	Firing temp, °C	AS1.2 A	AS1.2 B	AS1.2 C	AS1.2D	AS1.2 E
Shrinkage,%	1250	9.59	10.45	7.98	9.68	9.50
	1280	9.46	9.78	7.93	9.44	9.41
	1300	9.49	9.86	8.09	8.86	9.30
Water absorption, %	1250	16.28	14.36	17.69	15.96	17.13
	1280	16.12	14.07	16.73	15.26	16.53
	1300	16.83	13.81	15.79	15.21	16.24
Bulk density, g/cm^3	1250	1.85	1.92	1.80	1.86	1.82
	1280	1.83	1.88	1.80	1.85	1.82
	1300	1.80	1.88	1.82	1.84	1.81
Modulus of rupture, MPa	1250	22.55	23.53	22.37	21.70	22.51
	1280	21.69	24.66	22.48	24.33	22.91
	1300	20.99	22.70	22.17	21.74	20.73

2.1.2.3 วิเคราะห์ส่วนประกอบทางแร่วิทยา โดยใช้เครื่องเอกซเรย์ดิฟแฟรกโตมิเตอร์ ยี่ห้อ Bruker รุ่น D8-Advance มี Cu เป็นตัวกำเนิดรังสี และ Ni เป็น filter โดยมีค่า 2 θ ตั้งแต่ 5 ถึง 80 องศา ใช้ตัวอย่างที่เผาแล้วที่อุณหภูมิ 1250, 1280 และ 1300 องศาเซลเซียส บดเป็นผงละเอียด ผ่านตะแกรงร่อน 100 เมช

2.1.2.4 ทดสอบสัมประสิทธิ์การขยายตัวเมื่อร้อน โดยใช้เครื่องไดลาโตมิเตอร์ (Dilatometer) ยี่ห้อ Netzsch รุ่น DIL 402 ใช้ชิ้นทดสอบที่เผาแล้วที่อุณหภูมิ 1300 องศาเซลเซียส ขนาด 0.5×40×0.5 มิลลิเมตร (กว้าง × ยาว × หนา)

2.2 การทดลองทำผลิตภัณฑ์ต้นแบบ

คัดเลือกสูตรเนื้อคอร์เดียไรต์ที่มีคอร์เดียไรต์เกิดมากที่สุดโดยดูจากผลวิเคราะห์ส่วนประกอบทางแร่วิทยา ไปทดลองทำผลิตภัณฑ์ขาตั้ง รูปตัววี ขนาดสูง 5 เซนติเมตร ขึ้นรูปด้วยวิธีหล่อแบบ เผาที่อุณหภูมิ 1300 องศาเซลเซียส ยืนไฟ 2 ชั่วโมง

3. ผลและวิจารณ์ (Results and Discussion)

3.1 การสังเคราะห์เนื้อดินคอร์เดียไรต์ จากส่วนผสมของตะกรันอะลูมิเนียม ดินขาว ดินดำ ทัลค์ และควอรตซ์ เผาที่อุณหภูมิ 1250, 1280 และ 1300 องศาเซลเซียส ผลการทดสอบสมบัติทางกายภาพ ค่าความแข็งแรง ค่าสัมประสิทธิ์การขยายตัวทางความร้อน แสดงในตารางที่ 4,5 และ ภาพที่ 3 ตามลำดับ ส่วนประกอบทางแร่วิทยาแสดงใน ภาพที่ 4, 5 และ 6 ตามลำดับ พบว่า มี 4 สูตร (AS1.2 A, B, C และ E) มีค่าดูดซึมน้ำ การหดตัว และความหนาแน่นลดลง เมื่ออุณหภูมิการเผาสูงขึ้น ยกเว้นสูตร AS1.2 C มีการหดตัวเพิ่มขึ้นเมื่อเผาที่อุณหภูมิสูงขึ้น ผลวิเคราะห์ส่วนประกอบทางแร่วิทยา พบว่าทุกสูตรเกิดเฟสคอร์เดียไรต์เพิ่มมากขึ้น และเกิดเฟสคริสโตบาไลท์ลดลง เมื่ออุณหภูมิการเผาสูงขึ้น โดยเมื่อเผาที่อุณหภูมิ 1300 องศาเซลเซียส จะไม่พบเฟสคริสโตบาไลท์ สูตร AS1.2 B และ AS1.2 C มีค่าสัมประสิทธิ์การขยายตัวเมื่อร้อนเท่ากับ 3.199 และ

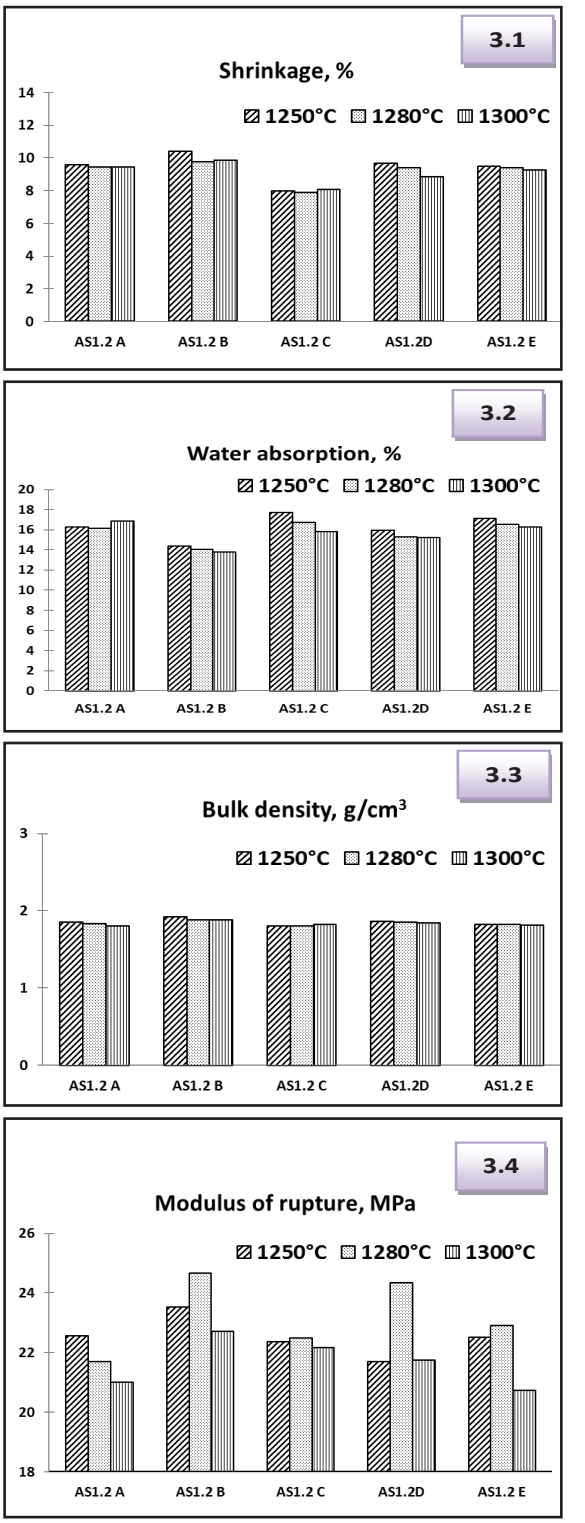

Figure 3 Bar graphs comparison of physical properties and strength of samples after firing at temperature 1250 , 1280, 1300 ˚C

3.1 Shrinkage,% 3.2 Water absorption,% 3.3 Bulk density, g/cm^3 and 3.4 Modulus of rupture, MPa

Table 5 Thermal expansion coefficient of samples firing at temperature 1300 ˚C

Sample	Firing temp, °C	Coefficient of thermal expansion (30-1000 °C), x 10^{-6}/°C)
AS_1.2_A	1300	3.694
AS_1.2_B		3.199
AS_1.2_C		3.155
AS_1.2_D		3.617
AS_1.2_E		3.354

3.155 x 10-6 ต่อองศาเซลเซียส ตามลำดับ น้อยกว่าสูตรอื่นที่เหลือซึ่งสัมพันธ์กับผลการวิเคราะห์ส่วนประกอบทางแร่วิทยาที่พบว่า สูตร AS1.2 B และ AS1.2 C เกิดเฟสคอร์เดียไรต์มากกว่าสูตรอื่น

ทดลองทำผลิตภัณฑ์ต้นแบบโดยคัดเลือกสูตร AS1.2 B ซึ่งเกิดเฟสคอร์เดียไรต์สูงสุด และมีค่าความหนาแน่นสูงสุดที่ 1.88 กรัมต่อลูกบาศก์เซนติเมตร ค่าการดูดซึมน้ำต่ำสุดที่ร้อยละ 13.81 มีค่าความแข็งแรงสูงสุดที่ 22.70 เมกะพาสคาล และมีค่าสัมประสิทธิ์การขยายตัวเมื่อร้อนต่ำที่ 3.199 x 10^{-6}ต่อองศาเซลเซียส

3.2 ผลการทดลองทำผลิตภัณฑ์ต้นแบบ คัดเลือกสูตร AS_1.2_B ที่มีส่วนผสมของตะกรันอะลูมิเนียมร้อยละ 23.9 ดินขาวร้อยละ 13.2 ดินดำร้อยละ 26.2 ทัลค์ร้อยละ 34.3 และ ควอตซ์ร้อยละ 2.4 บดผสมด้วยวิธีบดเปียก ขึ้นรูปด้วยวิธีหล่อแบบเป็นขาตั้งรูปตัววีสูง 5 เซนติเมตร ภาพที่ 7 พบว่าเนื้อดินสูตร AS_1.2_B สามารถขึ้นรูปด้วยวิธีการหล่อแบบได้ และผลิตภัณฑ์ต้นแบบหลังเผาสามารถคงรูปได้ไม่บิดเบี้ยว

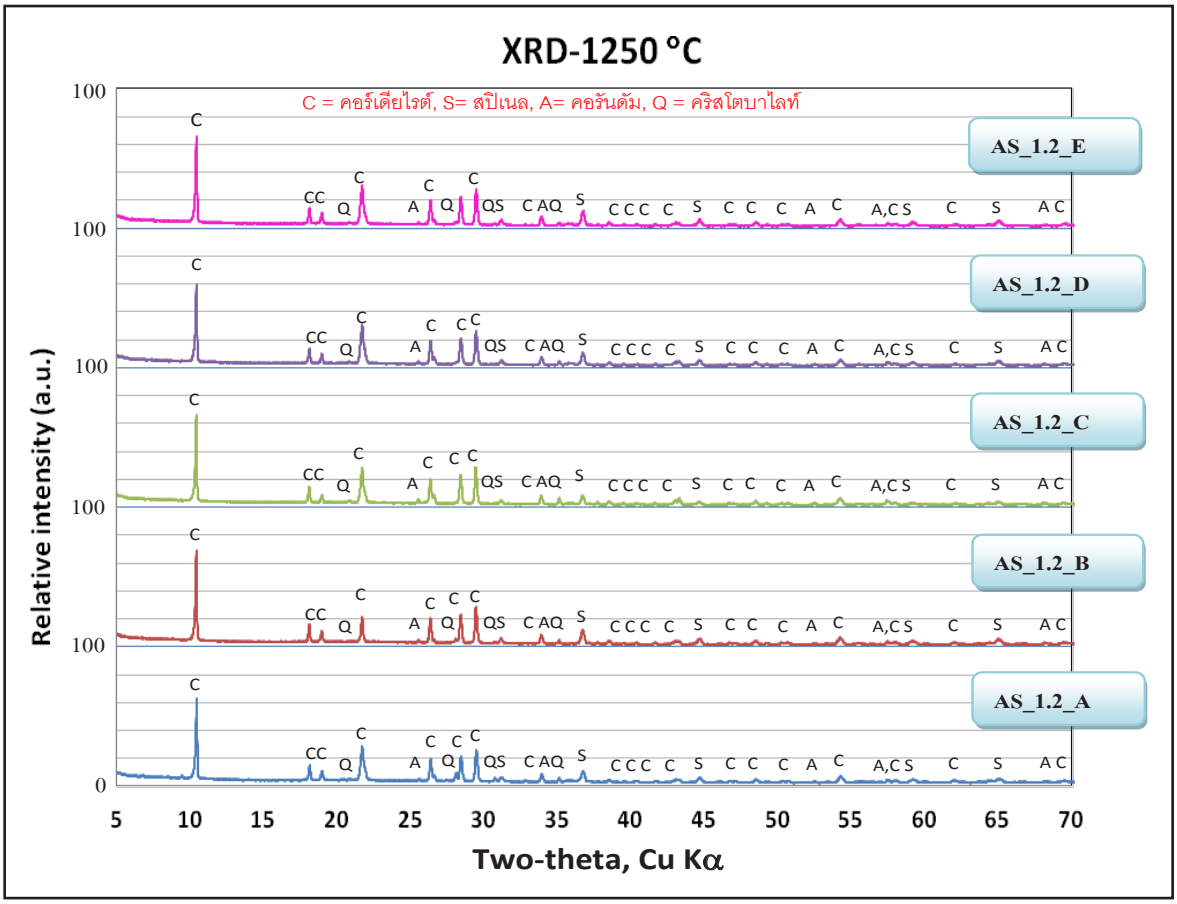

Figure 4 XRD patterns of sample AS_1.2_A - E firing at temperature 1250 ˚C

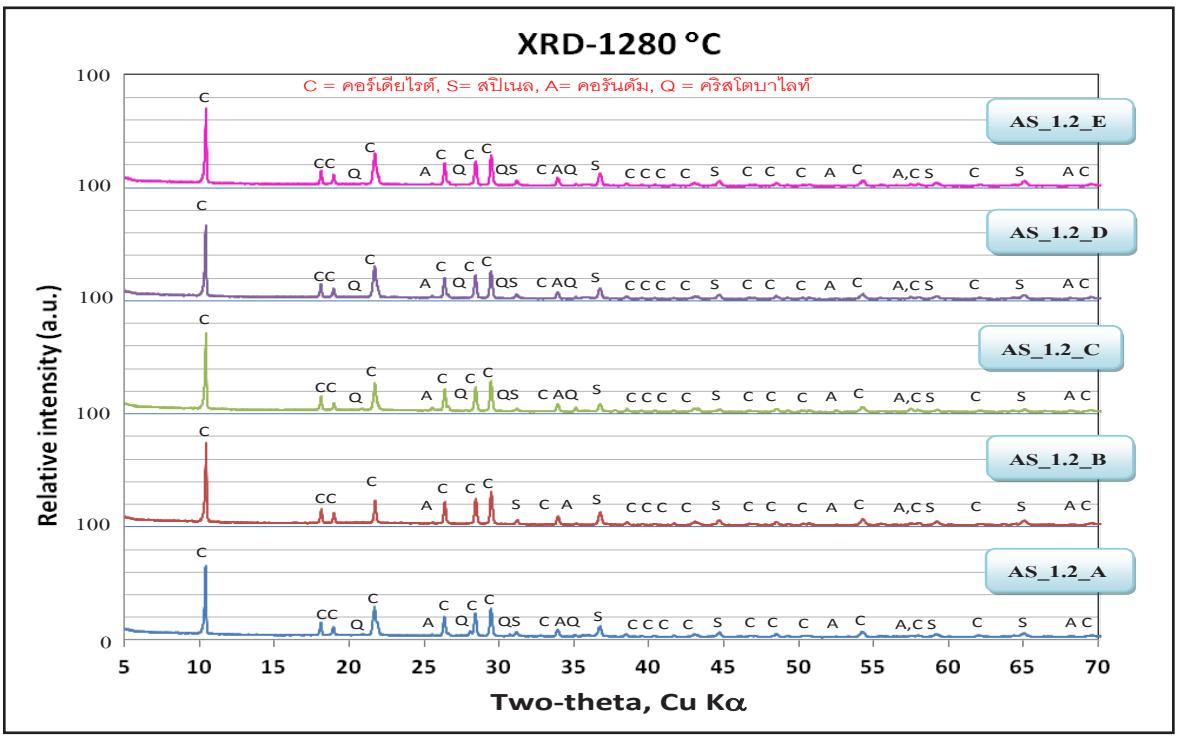

Figure 5 XRD patterns of sample AS_1.2_A - E firing at temperature 1280 ˚C

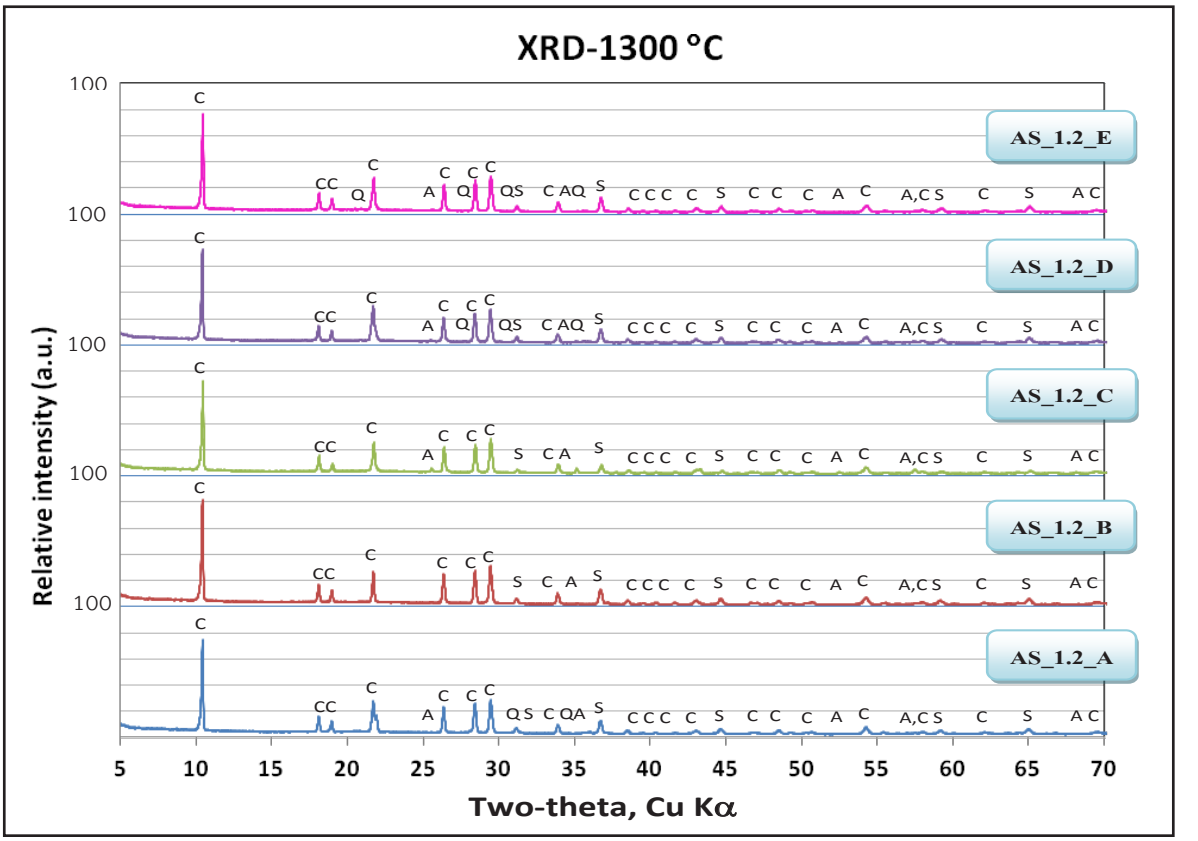

Figure 6 XRD patterns of sample AS_1.2_A - E firing at temperature 1300 ˚C

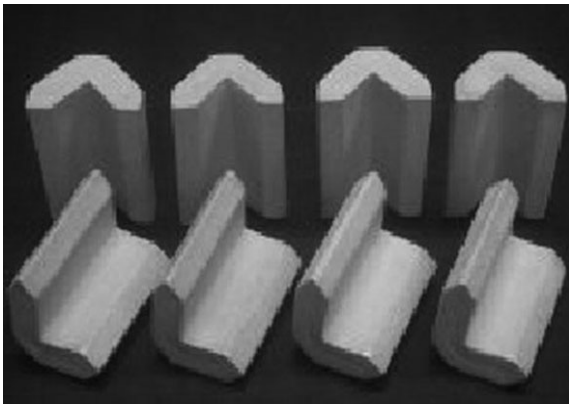

Figure 7 V-shape prototypes from AS_1.2_B at firing temperature of 1300 ˚C

4. สรุป (Conclusion)

ตะกรันจากอุตสาหกรรมการหลอมอะลูมิเนียมสามารถใช้แทนอะลูมินา นำมาสังเคราะห์เนื้อดินคอร์เดียไรต์ทำเป็นผลิตภัณฑ์สำหรับใช้ในอุปกรณ์ในเตาเผาได้ โดยมีส่วนผสมของตะกรันอะลูมิเนียมร้อยละ 23.9 ดินขาวร้อยละ 13.2 ดินดำร้อยละ 26.2 ทัลค์ร้อยละ 34.3 และ ควอตซ์ร้อยละ 2.4 สามารถนำไปขึ้นรูปเป็นผลิตภัณฑ์ เผาที่อุณหภูมิ1300 องศาเซลเซียส

5. กิตติกรรมประกาศ (Acknowledgement)

ขอขอบคุณผู้บังคับบัญชาและเจ้าหน้าที่สำนักเทคโนโลยีชุมชนทุกท่านที่ช่วยสนับสนุน การทำกิจกรรมวิจัย ขอขอบคุณ ศูนย์เชี่ยวชาญแก้ว โครงการฟิสิกส์และวิศวกรรม ที่ให้ความอนุเคราะห์การทดสอบองค์ประกอบเคมีของวัตถุดิบ และการทดสอบค่าสัมประสิทธิ์การขยายตัวเมื่อร้อน

6. เอกสารอ้างอิง (References)

(1) โครงการอุตสาหกรรมหลอมหล่อเศษ และตะกรันอะลูมิเนียม. (ออนไลน์) อ้างถึงวันที่ 10 เมษายน 2556 เข้าถึงได้จาก http://www2.diw.go.th/I_Standard/Web/pane_files/Industry27.asp 2556

(2) E. Alvarez-Ayuso, Approaches for the treatment of waste streams of the aluminium anodising industry, Journal of Hazardous Materials. 2009, 164, 409-414.

(3) A.Eppler Richard and R.Eppler Douglas, Glazes and Glass Coating, the American ceramic society, Westerville, USA, 1998. 25-29.

(4) Low thermal expansion modified coedierite, US. Patent 4,403,017, Sep 6, 1983.

(5) F.Singer and Sonia S. Singer, Industrial Ceramics, Chapman and Hall, London, 1979. 482-487.

(6) M.J. Ribeiroa and J.A.Labrincha, Properties of sintered mullite and cordierite pressed bodies manufactured using Al-rich anodizing sludge, Ceramics International, 2008, 34(3), 593-597.

(7) M.J. Ribeiro, D.U.Tulyaganov, J.M.Ferreira, J.A.Labrincha, Recycling of Al-rich industrial sludge in refractory ceramic pressed bodies, Ceramics International, 2002 , 28(3), 319-326.

(8) E.M. Levin, C.R. Robbins and H.F. McMurdie, Phase Diagrams for Ceramists, The American ceramic society, Ohio, USA, 1964. 246.