

การสังเคราะห์และการเตรียมแกรนูลของวัสดุเชิงประกอบคอร์เดียไรต์-มุลไลต์



นางสาวกรรณิการ์ เดชรักษา

จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

CHULALONGKORN UNIVERSITY

บทคัดย่อและแฟ้มข้อมูลฉบับเต็มของวิทยานิพนธ์ตั้งแต่ปีการศึกษา 2554 ที่ให้บริการในคลังปัญญาจุฬาฯ (CUIR)

เป็นแฟ้มข้อมูลของนิสิตเจ้าของวิทยานิพนธ์ ที่ส่งผ่านทางบัณฑิตวิทยาลัย

The abstract and full text of theses from the academic year 2011 in Chulalongkorn University Intellectual Repository (CUIR) are the thesis authors' files submitted through the University Graduate School.

วิทยานิพนธ์นี้เป็นส่วนหนึ่งของการศึกษาตามหลักสูตรปริญญาวิทยาศาสตรมหาบัณฑิต

สาขาวิชาเทคโนโลยีเซรามิก ภาควิชาวัสดุศาสตร์

คณะวิทยาศาสตร์ จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

ปีการศึกษา 2558

ลิขสิทธิ์ของจุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

SYNTHESIS AND GRANULE PREPARATION OF CORDIERITE-MULLITE COMPOSITE

Miss Kannigar Dateraksa



A Thesis Submitted in Partial Fulfillment of the Requirements  
for the Degree of Master of Science Program in Ceramic Technology

Department of Materials Science

Faculty of Science

Chulalongkorn University

Academic Year 2015

Copyright of Chulalongkorn University

หัวข้อวิทยานิพนธ์	การสังเคราะห์และการเตรียมแกรนูลของวัสดุเชิงประกอบ คอร์เดียไรต์-มุลไลต์
โดย	นางสาวกรรณิการ์ เดชรักษา
สาขาวิชา	เทคโนโลยีเซรามิก
อาจารย์ที่ปรึกษาวิทยานิพนธ์หลัก	อาจารย์ ดร. สุจาริณี สิ้นไชย
อาจารย์ที่ปรึกษาวิทยานิพนธ์ร่วม	ดร. ภาวดี อังค์วัฒน์

---

คณะวิทยาศาสตร์ จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย อนุมัติให้หัวข้อวิทยานิพนธ์ฉบับนี้เป็นส่วนหนึ่ง  
ของการศึกษาตามหลักสูตรปริญญาวิทยาศาสตรบัณฑิต

.....คณบดีคณะวิทยาศาสตร์  
(รองศาสตราจารย์ ดร. พลกฤษณ์ แสงวงนิช)

คณะกรรมการสอบวิทยานิพนธ์

.....ประธานกรรมการ  
(รองศาสตราจารย์ ดร. นิตานาถ ไตรผล)

.....อาจารย์ที่ปรึกษาวิทยานิพนธ์หลัก  
(อาจารย์ ดร. สุจาริณี สิ้นไชย)

.....อาจารย์ที่ปรึกษาวิทยานิพนธ์ร่วม  
(ดร. ภาวดี อังค์วัฒน์)

.....กรรมการ  
(ผู้ช่วยศาสตราจารย์ ดร. ธนากร วาสนาเพียรพงศ์)

.....กรรมการภายนอกมหาวิทยาลัย  
(ดร. ดวงเดือน อางองค์)

กรรมวิธีการ เดชรักษา : การสังเคราะห์และการเตรียมแกรนูลของวัสดุเชิงประกอบคอร์เดียไรต์-มุลไลต์ (SYNTHESIS AND GRANULE PREPARATION OF CORDIERITE-MULLITE COMPOSITE) อ.ที่ปรึกษาวิทยานิพนธ์หลัก: อาจารย์ ดร. สุจาริณี สินไชย, อ.ที่ปรึกษาวิทยานิพนธ์ร่วม: ดร. ภาวดี อังค์วัฒนะ, 106 หน้า.

ในงานวิจัยนี้ มุ่งผลิตวัสดุเชิงประกอบคอร์เดียไรต์-มุลไลต์ที่มีความแข็งแรงที่อุณหภูมิสูงโดยใช้แอนดาลูไซต์เป็นวัตถุดิบ ขั้นตอนการทดลองประกอบด้วยการปรับเปลี่ยนอัตราส่วนของวัตถุดิบ ได้แก่ แอนดาลูไซต์ อะลูมินา ซิลิกา และแมกนีเซียมออกไซด์ ตามปริมาณสารสัมพันธ์เพื่อให้เกิดอัตราส่วนโดยน้ำหนักของเฟสคอร์เดียไรต์ต่อมุลไลต์ในช่วง 20:80 ถึง 80:20 จากนั้นนำส่วนผสมทั้ง 7 สูตรมาเตรียมเป็นสเลอรีเพื่อผลิตแกรนูลด้วยวิธีพ่นฝอยอบแห้ง นำแกรนูลที่ได้มาขึ้นรูปด้วยวิธีอัด โดยใช้แรงดัน 30 MPa และทำการเผาผนึกในช่วงอุณหภูมิ 1300 ถึง 1500°C เวลาขึ้นไฟ 2 ชั่วโมง จากการศึกษาพบว่า สเลอรีที่มีสัดส่วนของแข็งสูง (50 %โดยน้ำหนัก) ส่งผลให้แกรนูลมีรูปร่างกลมตันซึ่งช่วยพัฒนาการไหลตัวระหว่างขึ้นรูป เมื่อเพิ่มอุณหภูมิในห้องร้อนจาก 170 เป็น 210°C พบว่าแกรนูลมีขนาดโดยเฉลี่ยโตขึ้น และการเพิ่มอัตราการไหลร้อนทำให้แกรนูลที่ได้มีขนาดเล็กลง แกรนูลที่ผลิตได้จากงานวิจัยนี้มีขนาดอยู่ในช่วง 10-80 ไมครอน โดยแกรนูลขนาด 25 ไมครอนมีปริมาณสูงสุด จากการตรวจสอบองค์ประกอบเฟสพบว่าวัสดุเชิงประกอบคอร์เดียไรต์-มุลไลต์บริสุทธิ์สามารถผลิตได้จากการเผาผนึกชิ้นงานทุกสูตรที่อุณหภูมิ 1450°C โครงสร้างจุลภาคประกอบด้วยเกรนของคอร์เดียไรต์ผลึกมุลไลต์รูปร่างเข็มที่สานตัวเป็นร่างแห และมีขนาดโตขึ้นเมื่ออุณหภูมิเผาผนึกเพิ่มขึ้น รวมทั้งเฟสเนื้อแก้วซึ่งมีปริมาณมากขึ้นเมื่ออุณหภูมิเผาผนึกและปริมาณคอร์เดียไรต์สูงขึ้น จากการทดสอบความแข็งแรงที่อุณหภูมิสูงพบว่าทุกสูตรที่ทำการศึกษาในงานวิจัยนี้มีความเหมาะสมต่อการนำมาผลิตเป็นวัสดุทนไฟชนิดคอร์เดียไรต์-มุลไลต์ โดยสูตรที่เตรียมจากอะลูมินา 10.92 % แอนดาลูไซต์ 87.46 % และแมกนีเซียมออกไซด์ 2.76 %โดยน้ำหนัก มีความต้านแรงดัดสูงสุด 54.7 MPa เหมาะสมสำหรับการใช้งานรับแรงที่อุณหภูมิสูง ในขณะที่สูตรที่เตรียมจากแอนดาลูไซต์ 75.12 % ซิลิกา 16.20 % และแมกนีเซียมออกไซด์ 9.65 %โดยน้ำหนัก สามารถต้านทานการทดสอบการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิอย่างฉับพลันที่ 1200°C จำนวน 25 รอบได้ดีที่สุด มีอัตราการสูญเสียความต้านแรงดัดต่ำที่สุด ชิ้นงานสูตรนี้มีสัมประสิทธิ์การขยายตัวทางความร้อนต่ำ  $3.18 \times 10^{-6} / ^\circ\text{C}$  ปริมาณรูพรุนเปิด 29 % ความต้านแรงดัด 36.3 MPa และไม่พบรอยแตกร้าวหลังการทดสอบ

ภาควิชา	วัสดุศาสตร์	ลายมือชื่อนิสิต .....
สาขาวิชา	เทคโนโลยีเซรามิก	ลายมือชื่อ อ.ที่ปรึกษาหลัก .....
ปีการศึกษา	2558	ลายมือชื่อ อ.ที่ปรึกษาร่วม .....

# # 5771910823 : MAJOR CERAMIC TECHNOLOGY

KEYWORDS: GRANULE PREPARATION / CORDIERITE MULLITE COMPOSITE / THERMAL SHOCK RESISTANCE

KANNIGAR DATERAKSA: SYNTHESIS AND GRANULE PREPARATION OF CORDIERITE-MULLITE COMPOSITE. ADVISOR: SUJARINEE SINCHAI, Ph.D., CO-ADVISOR: PAVADEE AUNGKAVATTANA, Ph.D., 106 pp.

This research is focused on the production of high thermal strength cordierite-mullite composite using andalusite as one of starting materials. Various ratios of andalusite, alumina, silica and magnesia were formulated in order to obtain stoichiometric cordierite-mullite composites in which the cordierite to mullite weight ratio ranged from 20:80 to 80:20. All batches were mixed in ball mill and granulated by spray drying method. Dense granules were uniaxially pressed under pressure of 30 MPa and sintered in air at elevated temperatures from 1300 to 1500°C with soaking time of 2 hr. It was found that preparation of the slurry with high solid content of 50 wt% resulted in the formation of spherical and dense granules. The granule size increased with the spray drying temperature but with reduction of the flow rate. Diameter of the obtained granules ranged from 10 to 80 micron where the granule size of 25 micron gained the highest amount. At the sintering temperature of 1450°C, pure cordierite-mullite composites were produced. The microstructure composed of small cordierite gains in the network of acicular mullite crystals. Growth of the mullite crystal and higher amount of glassy phase were observed at the higher sintering temperature. The glassy phase also increased with the cordierite content. From the thermal tests, all 7 compositions showed qualified properties those suitable for the refractory applications. Composition CR20:ML80 showed the highest bending strength of 54.7 MPa while composition CR70:ML30 gained the highest thermal shock resistance, lowest strength loss, thermal expansion coefficient of  $3.18 \times 10^{-6} / ^\circ\text{C}$ , porosity of 29 % and bending strength of 36.3 MPa with no crack found after the tests.

Department: Materials Science Student's Signature .....

Field of Study: Ceramic Technology Advisor's Signature .....

Academic Year: 2015 Co-Advisor's Signature .....

## กิตติกรรมประกาศ

วิทยานิพนธ์นี้สำเร็จลุล่วงได้ดี เนื่องจากได้รับการสนับสนุน และให้ความช่วยเหลือ ทั้งด้านวิชาการและการดำเนินการวิจัยจากบุคคลและหน่วยงานต่าง ๆ ที่เกี่ยวข้องดังต่อไปนี้

อาจารย์ ดร.สุจาริณี สิ้นไชย อาจารย์ที่ปรึกษาวิทยานิพนธ์ ที่ให้คำปรึกษา ให้ทั้งกำลังใจ และกำลังใจในการดำเนินการวิจัย คอยชี้แนะหาแนวทางแก้ไขต่าง ๆ อบรมสั่งสอนและให้ความรู้แก่ผู้วิจัยเพื่อให้เป็นนักวิจัยที่ดีในภายภาคหน้า และขอขอบคุณ ดร.ภาวดี อังค์วัฒนะ อาจารย์ที่ปรึกษาร่วม ที่ให้กำลังใจ คำปรึกษา แนะนำชี้แนะต่างๆ ท่านทั้งสองได้มอบโอกาสที่ดีให้แก่ผู้วิจัยตลอดระยะเวลาที่ผ่านมา ขอขอบคุณ ผู้ช่วยศาสตราจารย์ ดร.ธนากร วาสนาเพียรพงศ์ สำหรับชี้แนะและตรวจทานคำศัพท์บัญญัติต่างๆ ให้มีความถูกต้องสมบูรณ์

ขอขอบคุณ คณะกรรมการสอบวิทยานิพนธ์ทุกท่าน สำหรับเสียสละเวลาตรวจแก้ไขข้อบกพร่องของรูปเล่มวิทยานิพนธ์ และให้คำแนะนำต่างๆ ทำให้วิทยานิพนธ์เล่มนี้มีความถูกต้องและสมบูรณ์มากขึ้น

ขอขอบคุณ ทุนสนับสนุนจาก สถาบันบัณฑิตวิทยาศาสตร์และเทคโนโลยีไทย (TGIST) สำนักงานพัฒนาวิทยาศาสตร์และเทคโนโลยีแห่งชาติ สัญญารับทุนเลขที่ TG-33-09-58-012M

ขอขอบคุณ ทุนอุดหนุนวิจัยโครงการทุนวิจัยคลัสเตอร์ จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย ทุนอุดหนุนวิจัยศูนย์เทคโนโลยีโลหะและวัสดุแห่งชาติ ภายใต้รหัสโครงการ P1550118 และบริษัท ภัทรา รีแพกทอรี่ จำกัด ในการอนุเคราะห์สนับสนุนวัสดุดิบและชิ้นงานสำหรับงานวิจัย

ขอขอบคุณ นายวิรพงษ์ ครอบนม เจ้าหน้าที่ปฏิบัติการ XRD นางสาววิภรณ์ กรองทอง เจ้าหน้าที่ปฏิบัติการ SEM นางสาวพรชนก ลาวิตา สำหรับช่วยเหลือการทดสอบสมบัติทางความร้อน นางสาวณัฐกานต์ โกษาจันทร์ ช่วยแนะนำและแก้ปัญหาระบบสำหรับวิทยานิพนธ์ นางสาวชนมณีภา ชังใจ นางสาวใจพิสุทธิ์ สุวรรณชื่น นางสาวอุมาพร เสนวิรัช นางสาวกันทิมา เหมรา และนายอดิสร แซ่ลี สำหรับช่วยเหลือในทุกๆ ด้าน ตลอดจนเพื่อนร่วมรุ่นทุกคนและผู้เกี่ยวข้องที่ไม่ได้กล่าวไว้ ณ มาในที่นี้

สุดท้ายนี้ขอกราบขอบพระคุณ คุณพ่อ คุณแม่ น้องสาว ครอบครัวเดชรักษา และนายจักรกฤษณ์ กราพันธ์ ที่คอยอบรมสั่งสอน ช่วยเหลือทุกด้าน ให้กำลังใจทุกครั้งที่ประสบปัญหา ทำให้สามารถแก้ไขปัญหาและดำเนินชีวิตได้อย่างเข้มแข็ง จนทำให้งานวิจัยครั้งนี้สำเร็จได้ด้วยดี

## สารบัญ

	หน้า
บทคัดย่อภาษาไทย.....	ง
บทคัดย่อภาษาอังกฤษ.....	จ
กิตติกรรมประกาศ.....	ฉ
สารบัญ.....	ช
สารบัญรูปภาพ.....	1
สารบัญตาราง.....	1
บทที่ 1 บทนำ.....	1
1.1 ความเป็นมาและมูลเหตุจูงใจ.....	1
1.2 วัตถุประสงค์ของโครงการ.....	2
1.3 เป้าหมายของโครงการ.....	2
บทที่ 2 วรรณกรรมที่เกี่ยวข้อง.....	3
2.1 คอร์เตียไรต์.....	3
2.1.1 โครงสร้างผลึกคอร์เตียไรต์.....	3
2.1.2 การสังเคราะห์คอร์เตียไรต์.....	4
2.1.3 สมบัติคอร์เตียไรต์และการนำไปประยุกต์ใช้งาน.....	7
2.2 มุลไลต์.....	7
2.2.1 โครงสร้างผลึกมุลไลต์.....	7
2.2.2 การสังเคราะห์มุลไลต์.....	8
2.2.2.1 ไฮดรอกไซด์มุลไลต์.....	9
2.2.2.2 แอนไฮดรอกไซด์มุลไลต์.....	10
2.2.2.2.1 แอนดาลูไซต์.....	12
2.2.3 สมบัติของมุลไลต์และการนำไปประยุกต์ใช้งาน.....	16

2.3	วัสดุเชิงประกอบคอร์เดียไรต์-มุลไลต์.....	18
2.3.1	การสังเคราะห์ .....	18
2.3.2	สมบัติของวัสดุเชิงประกอบคอร์เดียไรต์-มุลไลต์และการประยุกต์ใช้งาน.....	21
2.4	การขึ้นรูปชิ้นงานเซรามิก .....	22
2.5	การพ่นฝอยอบแห้ง .....	23
2.5.1	หลักการเตรียมแกรนูลด้วยวิธีพ่นฝอยอบแห้ง .....	23
2.5.2	ขั้นตอนการพ่นฝอยอบแห้ง.....	24
2.5.3	กลไกการระเหยของของหยดของเหลว .....	27
2.5.4	ปัจจัยที่มีผลต่อขนาดและลักษณะของแกรนูล.....	28
2.6	ความแข็งแรงที่อุณหภูมิสูง .....	31
2.6.1	สมบัติของวัสดุ.....	31
2.6.1.1	ความแข็งแรง .....	31
2.6.1.2	ความทนไฟ .....	32
2.6.1.3	การขยายตัวทางความร้อน .....	32
2.6.1.4	การนำความร้อน .....	33
2.6.1.5	การเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิอย่างฉับพลัน .....	34
2.6.2	การทดสอบความแข็งแรงที่อุณหภูมิสูง .....	36
2.6.2.1	การรับแรงที่อุณหภูมิสูง (refractoriness under load) .....	36
2.6.2.2	ความต้านแรงดัดที่อุณหภูมิสูง (hot modulus of rupture) .....	37
2.6.2.3	การเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิอย่างฉับพลัน .....	37
บทที่ 3	วิธีการดำเนินวิจัย.....	38
3.1	วัตถุประสงค์และสารเคมีที่ใช้ในงานวิจัย .....	38
3.2	การเตรียมและการสังเคราะห์วัสดุเชิงประกอบคอร์เดียไรต์-มุลไลต์.....	39



3.2.1 อัตราส่วนผสมคอร์เตียไรต์-มุลไลต์.....	39
3.2.2 การเตรียมสเลอรี.....	40
3.2.3 การเตรียมแกรนูลด้วยวิธีการพ่นฝอยอบแห้ง.....	40
3.2.4 การขึ้นรูปชิ้นงานและการเผาผนึกชิ้นงานคอร์เตียไรต์-มุลไลต์.....	41
3.3 แผนผังการทดลอง.....	42
3.4. ลักษณะเฉพาะของผงวัสดุดิบ.....	43
3.4.1 ปฏิกริยาและการสลายตัวเมื่อได้รับความร้อน.....	43
3.4.2 การกระจายขนาดการกระจายอนุภาค.....	43
3.4.3 องค์ประกอบเฟส.....	43
3.4.4 การตรวจสอบองค์ประกอบทางเคมี.....	43
3.4.5 โครงสร้างจุลภาค.....	44
3.5 การตรวจสอบลักษณะเฉพาะของสเลอรี.....	44
3.5.1 ความหนืดของสเลอรี.....	44
3.5.2 อัตราการไหลของสเลอรี.....	44
3.5.3 การหาปริมาณของแข็ง.....	45
3.6 การตรวจสอบลักษณะเฉพาะของแกรนูล.....	45
3.6.1 ความหนาแน่นหลังเคาะ.....	45
3.6.2 การกระจายขนาดแกรนูล.....	45
3.6.3 โครงสร้างภายในของแกรนูล.....	46
3.7 การตรวจสอบสมบัติชิ้นงานคอร์เตียไรต์-มุลไลต์หลังเผาผนึก.....	46
3.7.1. ความหนาแน่นของชิ้นงาน.....	46
3.7.2 ความต้านแรงดัด.....	47
3.7.3 สัมประสิทธิ์การขยายตัวทางความร้อน.....	48

3.7.4 ความต้านทานต่อการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิอย่างฉับพลัน .....	48
บทที่ 4 วิเคราะห์และสรุปผลการทดลอง .....	49
4.1 การตรวจสอบสมบัติของวัสดุเริ่มต้น .....	49
4.1.1 การกระจายขนาดอนุภาคของผงวัสดุดิบ .....	49
4.1.2 องค์ประกอบทางเคมี .....	50
4.1.3 องค์ประกอบเฟสของวัสดุดิบ .....	51
4.1.4 โครงสร้างจุลภาคของวัสดุดิบ .....	53
4.1.5 ปฏิกริยาเมื่อได้รับความร้อน .....	53
4.2 พฤติกรรมการไหลและสมบัติของสเลอรี .....	54
4.2.1 พฤติกรรมการไหลของสเลอรี .....	54
4.2.2 สมบัติของสเลอรี .....	56
4.3 การศึกษาอิทธิพลของสภาวะการอบแห้งแบบพ่นฝอยที่มีต่อลักษณะของแกรนูล .....	58
4.3.1 อิทธิพลของอุณหภูมิ .....	58
4.3.2 โครงสร้างจุลภาคของแกรนูล .....	62
4.4 สมบัติของคอร์เดียไรต์-มุลไลต์หลังเผาผนึก .....	65
4.4.1 ศึกษาพฤติกรรมการเผาผนึกของชิ้นงานคอร์เดียไรต์-มุลไลต์ .....	65
4.4.2 ความหนาแน่นและรูพรุนเปิด .....	66
4.4.3 ความต้านแรงดัดของชิ้นงาน .....	68
4.4.4 องค์ประกอบเฟสของชิ้นงานหลังเผา .....	69
4.4.5 โครงสร้างจุลภาคของชิ้นงานหลังเผา .....	77
4.5 การศึกษาความสามารถในการทนทานต่อการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิอย่างฉับพลัน .....	85
4.5.1 สัมประสิทธิ์การขยายตัวทางความร้อน .....	85
4.5.2 ความต้านทานต่อการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิอย่างฉับพลัน .....	86

4.5.3 ความต้านแรงคัตของชิ้นงานหลังทดสอบความต้านทานต่อการเปลี่ยนแปลง อุณหภูมิอย่างฉับพลัน .....	87
4.5.4 องค์ประกอบเฟสของชิ้นงานหลังทดสอบความต้านทานต่อการเปลี่ยนแปลง อุณหภูมิฉับพลัน.....	88
4.5.5 โครงสร้างจุลภาคของชิ้นงานหลังการทดสอบความต้านทานต่อการเปลี่ยนแปลง อุณหภูมิอย่างฉับพลัน .....	90
4.6 การเปรียบเทียบผลิตภัณฑ์จากงานวิจัยกับวัสดุทนไฟทางการค้า.....	92
บทที่ 5     สรุปผลการวิจัย .....	94
รายการอ้างอิง .....	97
ประวัติผู้เขียนวิทยานิพนธ์ .....	106



## สารบัญรูปภาพ

รูปที่ 2.1 โครงสร้างผลึกคอร์เดียไรต์.....	3
รูปที่ 2.2 แผนภาพเฟสของ MgO-Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -SiO <sub>2</sub> .....	4
รูปที่ 2.3 ปฏิกิริยาระหว่างวัตถุดิบแมกนีเซียมคาร์บอเนต อะลูมินา และพรินท์.....	5
รูปที่ 2.4 ปฏิกิริยาระหว่างวัตถุดิบระหว่างทัลคัมและดิน .....	5
รูปที่ 2.5 โครงสร้างมุลไลต์ (a) โครงสร้างโดยรวม (b) การเคลื่อนที่ของอะตอมเนื่องจากช่องว่างของออกซิเจน.....	8
รูปที่ 2.6 แผนภาพเฟส Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -SiO <sub>2</sub> .....	9
รูปที่ 2.7 ผลึกมุลไลต์.....	10
รูปที่ 2.8 โครงสร้างผลึกของแร่อะลูมิโนซิลิเกต (a) แอนดาลูไซต์ (b) ซิลลิมาไนต์ (c) ไคยาไนต์ .....	11
รูปที่ 2.9 โครงสร้างผลึกแอนดาลูไซต์บนระนาบ (001).....	12
รูปที่ 2.10 ภาพจำลองของชิ้นงาน สำหรับศึกษาการโตของผลึกมุลไลต์.....	13
รูปที่ 2.11 ภาพรอยต่อผลึกแอนดาลูไซต์และมุลไลต์ในระนาบ [100] <sub>A</sub>   [010] <sub>M</sub> .....	13
รูปที่ 2.12 การเปลี่ยนแปลงของเปอร์เซ็นต์โดยน้ำหนักของมุลไลต์และซิลิกาเมื่ออุณหภูมิเพิ่มขึ้น....	14
รูปที่ 2.13 องค์ประกอบเฟสของแอนดาลูไซต์ที่มีการเติม MgO 1.5 %โดยน้ำหนัก (a) 1300°C (b) 1400°C (c) 1500°C และ (d) 1600°C (A: andalusite, M: mullite).....	15
รูปที่ 2.14 อัตราการเกิดเฟสมุลไลต์เมื่อใช้วัตถุดิบแอนดาลูไซต์ที่มีขนาด 5 55 200 และ1500 ไมครอน อุณหภูมิเผาพูนิก 1300°C.....	16
รูปที่ 2.15 การประยุกต์ใช้งานมุลไลต์ (a) เกลียวข้อต่อทนความร้อนและสารเคมี (b) แผ่นกันความร้อนในระบบการเผาไหม้เครื่องยนต์ของเครื่องบิน (c) สายพานลำเลียงในเตาเผา (d) ชิ้นส่วนยานพาหนะ .....	18
รูปที่ 2.16 สะพานของไหล (viscous bridges) พบในโครงสร้างของวัสดุเชิงประกอบคอร์เดียไรต์-มุลไลต์.....	19
รูปที่ 2.17 การประยุกต์ใช้งานวัสดุเชิงประกอบคอร์เดียไรต์-มุลไลต์.....	22
รูปที่ 2.18 แผนภาพการเปลี่ยนจากสเลอรีเป็นแกรนูลโดยเทคนิคพ่นฝอยอบแห้ง .....	23

รูปที่ 2.19 เครื่อง spray dryer รุ่น Mini Spray Dryer B-290 จากบริษัท Buchi.....	24
รูปที่ 2.20 ทิศทางการสัมผัสอากาศร้อนของละอองฝอยแบบไหลผ่านทางเดียวกัน.....	25
รูปที่ 2.21 ทิศทางการสัมผัสอากาศร้อนของละอองฝอยแบบไหลผ่านสวนทางกัน.....	26
รูปที่ 2.22 ทิศทางการสัมผัสอากาศร้อนของละอองฝอยแบบไหลผ่านแบบผสม .....	26
รูปที่ 2.23 ระยะเวลาแห้งตัวของแกรนูลระหว่างการพ่นฝอยอบแห้ง .....	27
รูปที่ 2.24 แผนภาพจำลองการแห้งตัวของหยดของเหลวระหว่างการพ่นฝอยอบแห้ง และการเปลี่ยนแปลงทางสัณฐานวิทยา .....	28
รูปที่ 2.25 ภาพจำลองลักษณะของแกรนูลที่ได้จากกระบวนการพ่นแห้ง .....	28
รูปที่ 2.26 ภาพจำลองและโครงสร้างของแกรนูลที่ได้จากการพ่นฝอยอบแห้งในกรณี (a) แกรนูลดัน (b) แกรนูลกลวง .....	29
รูปที่ 2.27 โครงสร้างจุลภาคและการกระจายตัวขนาดแกรนูล (a-b) สเตอริโอมีสตีลส์ส่วนของแข็ง.....	31
รูปที่ 2.28 ความสัมพันธ์ระหว่างสัมประสิทธิ์การขยายตัวทางความร้อนกับอุณหภูมิของวัสดุชนิดต่างๆ.....	33
รูปที่ 2.29 ค่าความเค้นของวัสดุจากบริเวณผิวสู่ภายในเนื้อวัสดุ (a=กรณีวัสดุมีการเย็นตัวอย่างรวดเร็ว b=วัสดุได้รับความร้อนอย่างรวดเร็ว) เมื่อกำหนด $t_a$ คือ อุณหภูมิเฉลี่ย $t_c$ คืออุณหภูมิตรงกลาง $t_s$ คืออุณหภูมิที่ผิว $t_i$ คืออุณหภูมิภายใน.....	34
รูปที่ 2.30 ผลทดสอบการรับแรงที่อุณหภูมิสูง ภายใต้แรงกด 0.2 นิวตันต่อตารางมิลลิเมตร ที่อุณหภูมิสูงของวัสดุต่างๆ (1) fireclay brick 45% $Al_2O_3$ (2) corundum-containing brick 65% $Al_2O_3$ (3) andalusite brick (4) corundum brick 99% $Al_2O_3$ (5) magnesia-spinel brick contains $SiO_2$ (6) low-iron magnesia brick, $C_2S$ bond (7) magnesia brick with high iron content (8) silica brick.....	36
รูปที่ 2.31 วิธีทดสอบความต้านแรงดัดที่อุณหภูมิสูงตามมาตรฐาน ASTM C-583.....	37
รูปที่ 3.1 ชิ้นงานดิบก่อนเผา.....	41
รูปที่ 3.2 ชิ้นงานหลังเผาผนึก .....	41
รูปที่ 3.3 แผนผังแสดงขั้นตอนการดำเนินงานวิจัย.....	42
รูปที่ 3.4 การทดสอบความต้านแรงดัดแบบ 3-point bending.....	47

รูปที่ 4.1 การกระจายขนาดอนุภาคของวัสดุดิบที่ใช้ในงานวิจัย .....	49
รูปที่ 4.2 องค์ประกอบเฟสของวัสดุดิบ (ก) อะลูมินา (ข) แอนดาไลต์ (ค) แมกนีเซียมออกไซด์ และ (ง) ซิลิกา .....	52
รูปที่ 4.3 โครงสร้างจุลภาคของวัสดุดิบ (ก) อะลูมินา (ข) แอนดาไลต์ (ค) แมกนีเซียมออกไซด์ และ (ง) ซิลิกา .....	53
รูปที่ 4.4 ปฏิกริยาเมื่อได้รับความร้อนของแอนดาไลต์.....	54
รูปที่ 4.5 โครงสร้างสารช่วยกระจายตัวชนิดเกลือแอมโมเนียมของพอลิอะคลีเลท .....	55
รูปที่ 4.6 ความสัมพันธ์ระหว่างอัตราการเผือกกับความหนืดของสเลอรี ที่เติมสารกระจายตัว 0 0.5 1 1.5 และ 2.5 %โดยน้ำหนัก.....	55
รูปที่ 4.7 ความสัมพันธ์ระหว่างปริมาณสารช่วยกระจายตัวกับความหนืดของสเลอรีสูตร CR70:ML30 ที่ความเค้นเฉือน 180 รอบต่อนาที.....	56
รูปที่ 4.8 การกระจาย ขนาดอนุภาคของสเลอรี.....	57
รูปที่ 4.9 โครงสร้างจุลภาคของแกรนูลสูตร CR70:ML30 กำหนดอัตราการให้ลมร้อน 30 ลูกบาศก์เมตรต่อ ชั่วโมง อัตราการไหลของสเลอรี 30 มิลลิลิตรต่อนาที อุณหภูมิการพ่นฝอย อบแห้ง 170 190 และ 210 °C ตรวจสอบด้วยเทคนิค (ก) SEM (ข) ใช้แสงส่องผ่านแกรนูลที่เตรียมโดยวิธี liquid immersion .....	59
รูปที่ 4.10 การกระจายขนาดแกรนูลสูตร CR70:ML30 ที่อุณหภูมิการพ่นฝอยอบแห้ง 170 190 และ 210 °C.....	61
รูปที่ 4.11 โครงสร้างจุลภาคของแกรนูล (ก-ข) CR20:ML80 (ค-ง) CR30:ML70 (จ-ฉ) CR40:ML60 (ช-ซ) CR50:ML50 (ณ-ญ) CR60:ML40 (ฎ-ฏ) CR70:ML30 และ (ฑ-ฐ) CR80:ML20.....	64
รูปที่ 4.12 ภาพภาคตัดขวางของแกรนูลสูตร (ก) CR20:ML80 (ข) CR40:ML60 (ค) CR60:ML40 .	65
รูปที่ 4.13 การขยายตัวเมื่อได้รับความร้อนของชิ้นงานสูตร CR20:ML80 ถึง CR80:ML20.....	66
รูปที่ 4.14 ความหนาแน่นสัมพัทธ์ของชิ้นงานสูตร CR20:ML80 ถึง CR80:ML20 หลังเผาผนึกที่ อุณหภูมิ 1300 1400 1450 และ 1500 °C เวลายืนไฟ 2 ชั่วโมง.....	67
รูปที่ 4.15 รูปพรุนเปิดของชิ้นงานสูตร CR20:ML80 ถึง CR80:ML20 หลังเผาผนึกที่อุณหภูมิ 1300 1400 1450 °C และ 1500 °C เวลายืนไฟ 2 ชั่วโมง.....	68

รูปที่ 4.16 ความต้านแรงคัตของชิ้นงานสูตร CR20:ML80 ถึง CR80:ML20 หลังการเผาผนึกที่อุณหภูมิ 1300 1400 1450 และ 1500°C เวลาขึ้นไฟ 2 ชั่วโมง.....	69
รูปที่ 4.17 องค์ประกอบเฟสของชิ้นงานสูตร CR20:ML80 ถึง CR80:ML20 เผาผนึกที่อุณหภูมิ 1300°C เวลาขึ้นไฟ 2 ชั่วโมง.....	71
รูปที่ 4.18 องค์ประกอบเฟสของชิ้นงานสูตร CR20:ML80 ถึง CR80:ML20 เผาผนึกที่อุณหภูมิ 1400°C เวลาขึ้นไฟ 2 ชั่วโมง.....	72
รูปที่ 4.19 องค์ประกอบเฟสของชิ้นงานสูตร CR20:ML80 ถึง CR80:ML20 เผาผนึกที่อุณหภูมิ 1450°C เวลาขึ้นไฟ 2 ชั่วโมง.....	73
รูปที่ 4.20 องค์ประกอบเฟสของชิ้นงานสูตร CR20:ML80 ถึง CR70:ML30 เผาผนึกที่อุณหภูมิ 1500°C เวลาขึ้นไฟ 2 ชั่วโมง.....	74
รูปที่ 4.21 โครงสร้างจุลภาคของชิ้นงาน CR20:ML80 ถึง CR80:ML20 เผาผนึกที่อุณหภูมิ 1300°C.....	78
รูปที่ 4.22 โครงสร้างจุลภาคและองค์ประกอบทางเคมี ตรวจสอบด้วยเทคนิค energy dispersive x-ray analysis (EDX) ของชิ้นงานสูตร CR60:ML40 เผาผนึกที่อุณหภูมิ 1300°C.....	79
รูปที่ 4.23 โครงสร้างจุลภาคของชิ้นงานสูตร CR20:ML80 ถึง CR80:ML20 เผาผนึกที่อุณหภูมิ 1400°C.....	80
รูปที่ 4.24 โครงสร้างจุลภาคและองค์ประกอบทางเคมี ตรวจสอบด้วยเทคนิค energy dispersive x-ray analysis (EDX) ของชิ้นงานสูตร CR60:ML40 เผาผนึกที่อุณหภูมิ 1400°C.....	81
รูปที่ 4.25 โครงสร้างจุลภาคของชิ้นงานสูตร CR20:ML80 ถึง CR80:ML20 เผาผนึกที่อุณหภูมิ 1450°C.....	83
รูปที่ 4.26 โครงสร้างจุลภาคและองค์ประกอบทางเคมี ตรวจสอบด้วยเทคนิค energy dispersive x-ray analysis (EDX) ของชิ้นงานสูตร CR60:ML40 เผาผนึกที่อุณหภูมิ 1450°C.....	83
รูปที่ 4.27 โครงสร้างจุลภาคของชิ้นงานสูตร CR20:ML80 ถึง CR70:ML30 เผาผนึกที่อุณหภูมิ 1500°C.....	84
รูปที่ 4.28 สัมประสิทธิ์การขยายตัวทางความร้อน ณ ช่วงอุณหภูมิ 30-1200°C ของชิ้นงานสูตร CR20:ML80 ถึง CR80:ML20 หลังเผาผนึกที่อุณหภูมิ 1450°C.....	85

รูปที่ 4.29 ชิ้นงานสูตร CR20:ML80 หลังการทดสอบความต้านทานต่อการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิ อย่าง ฉับพลัน รอบที่ 25 .....	87
รูปที่ 4.30 ความต้านแรงดัดของชิ้นงานสูตร CR20:ML80 ถึง CR80:ML20 ก่อนและหลังการ ทดสอบ ความต้านทานต่อการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิอย่างฉับพลัน.....	88
รูปที่ 4.31 องค์ประกอบเฟสของชิ้นงานสูตร CR20:ML80 ถึง CR80:ML20 หลังการทดสอบ ความต้านทานต่อการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิอย่างฉับพลันของชิ้นงาน (อุณหภูมิการทดสอบ 1200°C จำนวน 25 รอบ).....	89
รูปที่ 4.32 โครงสร้างจุลภาค (กำลังขยาย 1500 2000 และ 3500 เท่า) ชิ้นงานสูตร CR70:ML30 หลังการทดสอบการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิอย่างฉับพลัน (อุณหภูมิ 1200°C จำนวน 25 รอบ).....	91
รูปที่ 4.33 โครงสร้างจุลภาคของชิ้นงานสูตร CR40:ML60 หลังการทดสอบการเปลี่ยนแปลง อุณหภูมิอย่างฉับพลัน (กัดผิวหน้าด้วยกรดไฮโดรฟลูออริกก่อนนำมาตรวจสอบ).....	91
รูปที่ 4.34 โครงสร้างจุลภาคของชิ้นงานสูตร CR80:ML20 หลังการทดสอบการเปลี่ยนแปลง อุณหภูมิอย่าง ฉับพลัน (กัดผิวหน้าด้วยกรดไฮโดรฟลูออริกก่อนนำมาตรวจสอบ).....	92
รูปที่ 4.35 ความต้านแรงดัดของชิ้นงานสูตร CR20:ML80 ถึง CR80:ML20 เปรียบเทียบกับวัสดุ ทนไฟทางการค้า ก่อนและหลังทดสอบความต้านทานต่อการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิอย่างฉับพลัน ....	93



## สารบัญตาราง

ตารางที่ 2.1 สมบัติทั่วไปของคอร์เดียไรต์.....	7
ตารางที่ 2.2 ลักษณะเฉพาะของแร่ โคยาไนท์ แอนดาลูไซต์ ซิลลิมาไนต์ และมุลไลต์ .....	11
ตารางที่ 2.3 สมบัติทั่วไปของมุลไลต์ .....	17
ตารางที่ 2.4 สมบัติทางกล และทางความร้อนของมุลไลต์และเซรามิกชนิดอื่นๆ.....	17
ตารางที่ 2.5 สมบัติทั่วไปของวัสดุเชิงประกอบคอร์เดียไรต์-มุลไลต์.....	21
ตารางที่ 2.6 ตัวแปรที่มีผลต่อความต้านทานต่อการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิฉับพลัน .....	35
ตารางที่ 3.1 แสดงวัตถุดิบและสารเคมีที่ใช้ในงานวิจัย.....	38
ตารางที่ 3.2 สูตรส่วนผสมของออกไซด์ที่ใช้ศึกษาในงานวิจัยนี้.....	39
ตารางที่ 3.3 สูตรส่วนผสมของวัตถุดิบที่ใช้ศึกษาในงานวิจัยนี้.....	40
ตารางที่ 4.1 สรุปการกระจายขนาดอนุภาคของวัตถุดิบ .....	50
ตารางที่ 4.2 องค์ประกอบทางเคมีของวัตถุดิบเริ่มต้น.....	50
ตารางที่ 4.3 สรุปการกระจายขนาดอนุภาคของสเลอรี.....	57
ตารางที่ 4.4 เปอร์เซ็นต์สัดส่วนของแข็ง การไหลตัวและความถ่วงจำเพาะของสเลอรี.....	58
ตารางที่ 4.5 ความหนาแน่นหลังเคาะ (tapped density) และความหนาแน่นหลังเติมผง (filled density) ของแกรนูโลสูตร CR70:ML30.....	61
ตารางที่ 4.6 แสดงองค์ประกอบเฟสเชิงปริมาณของชิ้นงาน เผาฉีกที่อุณหภูมิ 1300°C.....	75
ตารางที่ 4.7 แสดงองค์ประกอบเฟสเชิงปริมาณของชิ้นงาน เผาฉีกที่อุณหภูมิ 1400°C.....	76
ตารางที่ 4.8 แสดงองค์ประกอบเฟสเชิงปริมาณของชิ้นงาน เผาฉีกที่อุณหภูมิ 1450°C.....	76
ตารางที่ 4.9 สัมประสิทธิ์การขยายตัวทางความร้อนของชิ้นงาน CR20:ML80 ถึง CR80:ML20.....	86
ตารางที่ 4.10 องค์ประกอบเฟสเชิงปริมาณของชิ้นงานก่อนและหลังทดสอบความต้านทานต่อการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิฉับพลัน.....	90

# บทที่ 1

## บทนำ

### 1.1 ความเป็นมาและมูลเหตุจูงใจ

อุตสาหกรรมเซรามิก จัดได้ว่าเป็นอุตสาหกรรมหนึ่งที่มีความสำคัญต่อระบบเศรษฐกิจไทยมีอัตราเติบโตอย่างต่อเนื่อง ได้แก่อุตสาหกรรมการผลิตกระเบื้องปูพื้น-บุผนัง สุขภัณฑ์ เครื่องใช้บนโต๊ะอาหาร และอิฐทนไฟ เป็นต้น มีการส่งออกผลิตภัณฑ์ไปต่างประเทศอย่างต่อเนื่องมีมูลค่าหลายล้านบาทต่อปี สร้างรายได้ให้กับประเทศนับเป็นมูลค่ามหาศาล ซึ่งอุตสาหกรรมเหล่านี้ล้วนจำเป็นต้องใช้วัสดุทนไฟที่สามารถทนอุณหภูมิสูง มีความแข็งแรง ทนต่อการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิอย่างฉับพลันเป็นอุปกรณ์ที่สำคัญในการผลิตเป็นผลิตภัณฑ์เซรามิกให้มีคุณภาพ วัสดุทนไฟดังกล่าว เช่น รถเตา แผ่นรองเตา ขาตั้ง ถ้วยเผาสาร ชิ้นส่วนต่างๆ นอกจากนี้จะเป็นอุปกรณ์ชิ้นส่วนที่สำคัญสำหรับอุตสาหกรรมเซรามิกแล้วยังเป็นชิ้นส่วนในอุตสาหกรรมโลหะที่มีการใช้งานที่อุณหภูมิสูง วัสดุทนไฟที่มีความสามารถในการทนไฟสูง ทนต่อการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิฉับพลันได้ดีส่วนใหญ่จะมีราคาแพงนำเข้าจากต่างประเทศทั้งสิ้น หากประเทศไทยสามารถวิจัยและพัฒนาวัสดุทนไฟที่มีคุณภาพสูง ผลิตจากวัตถุดิบภายในประเทศ จะช่วยลดการนำเข้าสามารถลดรายจ่ายเป็นมูลค่าหลายล้านบาท

วัสดุเชิงประกอบคอร์เดียไรต์-มุลไลต์ มีการนำไปประยุกต์ใช้งานที่หลากหลาย ได้แก่ วัสดุทนไฟอุปกรณ์ในเตาเผา รถเตา แผ่นรองเตา รางส่งน้ำโลหะอลูมิเนียม เบ้าหลอมโลหะ และอุปกรณ์เก็บความร้อนจากแสงอาทิตย์ เป็นต้น เนื่องจากเป็นวัสดุเชิงประกอบที่มีสมบัติเด่น อันเนื่องมาจากความทนทานที่อุณหภูมิสูงของมุลไลต์และการขยายตัวเนื่องจากความร้อนต่ำของคอร์เดียไรต์ ทำให้ได้วัสดุเชิงประกอบที่มีความแข็งแรงที่อุณหภูมิสูง รับแรงได้ดีที่อุณหภูมิการใช้งานสูงกว่า  $1000^{\circ}\text{C}$  การสังเคราะห์วัสดุเชิงประกอบคอร์เดียไรต์-มุลไลต์ สามารถทำได้หลายวิธี เช่น การผสมกันโดยตรงระหว่างผงคอร์เดียไรต์กับมุลไลต์บริสุทธิ์ หรือใช้แร่จากแหล่งวัตถุดิบธรรมชาติ เช่น ดิน ซึ่งมักจะมีสิ่งเจือปน ได้แก่ เหล็กออกไซด์ โซเดียมออกไซด์และ โพแทสเซียมออกไซด์ในปริมาณมาก สิ่งเจือปนเหล่านี้ส่งผลให้ความหนาแน่น ความทนไฟความแข็งแรงของผลิตภัณฑ์ลดลงที่อุณหภูมิการใช้งานสูงกว่า  $1500^{\circ}\text{C}$  ดังนั้นการเลือกใช้วัตถุดิบมาผลิตเป็นวัสดุทนไฟที่มีคุณภาพควรมีสิ่งเจือปนต่ำ การนำอะลูมินา ซิลิกา แมกนีเซียมออกไซด์ และแอนดาลูไซต์ มาใช้เป็นวัตถุดิบจึงเป็นทางเลือกที่น่าสนใจ แอนดาลูไซต์มีสมบัติความทนไฟสูง รับแรงกดอัดได้ดี มีความต้านทานต่อความเค้นได้สูง เกิดการเปลี่ยนแปลงปริมาตรต่ำระหว่างเปลี่ยนเฟสเป็นมุลไลต์และมีอัตราการเปลี่ยนเฟสเป็นมุลไลต์สูง (80 %)

กระบวนการผลิตแกรนูลดัวยวิธีการพ่นฝอยอบแห้ง อาศัยหลักการการพ่นของผสมเหลวให้มีลักษณะเป็นหยดเข้าไปในห้องร้อน ภายใต้การควบคุมสภาวะที่เหมาะสม เพื่อให้ได้แกรนูลที่มีลักษณะกลม มีการไหลตัวที่ดี ส่งผลต่อความหนาแน่นและความสม่ำเสมอในการจัดเรียงอนุภาคระหว่างกระบวนการขึ้นรูปจะช่วยพัฒนาความหนาแน่นของชิ้นงานและการกระจายตัวโดยสม่ำเสมอของรูพรุน ส่งผลให้ผลิตภัณฑ์หลังการเผาผนึกมีสมบัติความแข็งแรงสูง และชิ้นงานมีการนำความร้อนที่สม่ำเสมอ

งานวิจัยนี้มีวัตถุประสงค์เพื่อที่จะผลิตวัสดุเชิงประกอบคอร์เดียไรต์-มุลไลต์ที่มีความแข็งแรงที่อุณหภูมิสูง จากวัตถุดิบอะลูมินา ซิลิกา แมกนีเซียมออกไซด์ และแอนดราลูไซต์ ทำการควบคุมอัตราส่วนของเฟสคอร์เดียไรต์-มุลไลต์ที่เกิดขึ้น โดยการปรับเปลี่ยนอัตราส่วนของวัตถุดิบตามปริมาณสารสัมพันธ์เพื่อให้เกิดเฟสคอร์เดียไรต์ต่อมุลไลต์ในช่วง 20:80 ถึง 80:20 %โดยน้ำหนัก ศึกษาสภาวะการเตรียมแกรนูลดัวยวิธีการพ่นฝอยอบแห้ง ภายใต้การควบคุมบรรยากาศและการไหลเวียนอากาศที่เหมาะสมเพื่อให้ได้แกรนูลที่มีลักษณะกลม มีการไหลตัวที่ดี มีความหนาแน่นในการจัดเรียงตัวสูง ศึกษาปัจจัยที่เกี่ยวข้อง เช่น อุณหภูมิ และอัตราการไหลของสเลอรี่ ก่อนนำไปอัดขึ้นรูปด้วยความดันทิศทางเดียว ศึกษาอุณหภูมิในการเผาผนึกที่มีผลต่อการเกิดเฟสร่วมวัสดุเชิงประกอบคอร์เดียไรต์-มุลไลต์ โดยอุณหภูมิที่ทำการศึกษาอยู่ในช่วง 1300 ถึง 1500°C เวลายืนไฟ 2 ชั่วโมง ตรวจสอบสมบัติของชิ้นงานก่อนเผาและหลังเผา เช่น ความหนาแน่น ความพรุนตัว ความแข็งแรง สมบัติเชิงกล การขยายตัวเนื่องจากความร้อน การเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิอย่างฉับพลัน การเปลี่ยนแปลงเฟส และโครงสร้างจุลภาค เพื่อให้ได้วัสดุเชิงประกอบคอร์เดียไรต์-มุลไลต์ที่มีสมบัติทนอุณหภูมิสูงควบคู่ไปกับสมบัติเชิงกลที่ดี

## 1.2 วัตถุประสงค์ของโครงการ

1. เพื่อศึกษาอิทธิพลของอัตราส่วนวัตถุดิบ อะลูมินา ซิลิกา แมกนีเซียมออกไซด์ และแอนดราลูไซต์ที่มีผลต่ออัตราส่วนของเฟสคอร์เดียไรต์ต่อมุลไลต์ที่เกิดขึ้น ณ ช่วงอุณหภูมิการเผา 1300-1500°C
2. เพื่อหาสภาวะที่เหมาะสมในการเตรียมแกรนูลดัวยวิธีการพ่นแห้ง ของสารแขวนลอยจากวัตถุดิบในข้อ 1 พร้อมทั้งศึกษาพฤติกรรมทางตัวของแกรนูลระหว่างกระบวนการพ่นฝอยอบแห้ง
3. เพื่อผลิตวัสดุเชิงประกอบคอร์เดียไรต์-มุลไลต์ ที่มีความแข็งแรงที่อุณหภูมิสูง

## 1.3 เป้าหมายของโครงการ

ได้วัสดุเชิงประกอบคอร์เดียไรต์-มุลไลต์ที่มีความแข็งแรงที่อุณหภูมิสูง

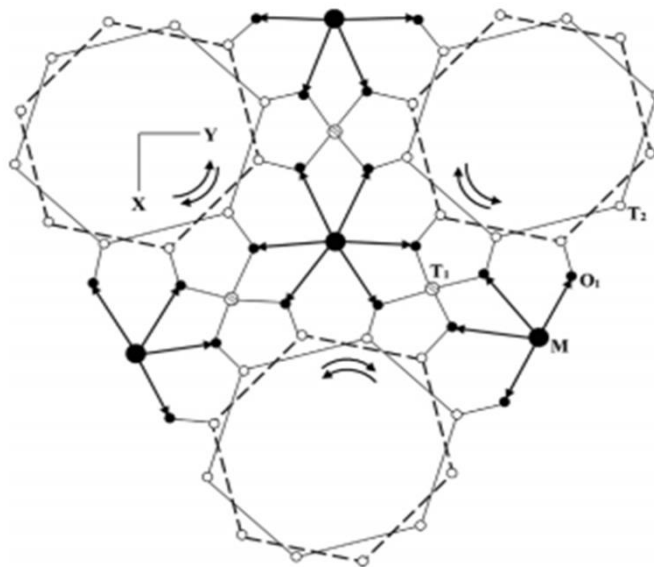
## บทที่ 2

### วรรณกรรมที่เกี่ยวข้อง

#### 2.1 คอร์ดีไรต์

##### 2.1.1 โครงสร้างผลึกคอร์ดีไรต์

คอร์ดีไรต์ (cordierite) เป็นชื่อที่ตั้งตามชื่อของนักธรณีวิทยาชาวฝรั่งเศส Pierre Louis Antoine Cordier (1777-1861) เป็นสารประกอบของแมกนีเซียมอะลูมิเนียมซิลิเกต มีสูตรเคมี  $2\text{MgO} \cdot 2\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 5\text{SiO}_2$  ประกอบด้วย MgO 13.7 %  $\text{Al}_2\text{O}_3$  34.9 % และ  $\text{SiO}_2$  51.4 % มีแลตทิซพารามิเตอร์ด้าน  $a = 17.079$   $b = 9.730$  และ  $c = 9.356$  อังสตรอม คอร์ดีไรต์เกิดขึ้นในสภาพที่เป็นผลึกมี 3 รูปแบบคือ (1)  $\alpha$ -cordierite หรือ indialite มีโครงสร้างผลึกเฮกซะโกนอล เสถียรที่อุณหภูมิระหว่าง  $1450^\circ\text{C}$ - $1460^\circ\text{C}$  (space group P6/mcc) (2)  $\beta$ -cordierite มีโครงสร้างผลึกออร์โธโรมบิก (space group Cccm) เสถียรที่อุณหภูมิต่ำกว่า  $1450^\circ\text{C}$  และ (3)  $\mu$ -cordierite กึ่งเสถียร (meta stable)<sup>[1]</sup>



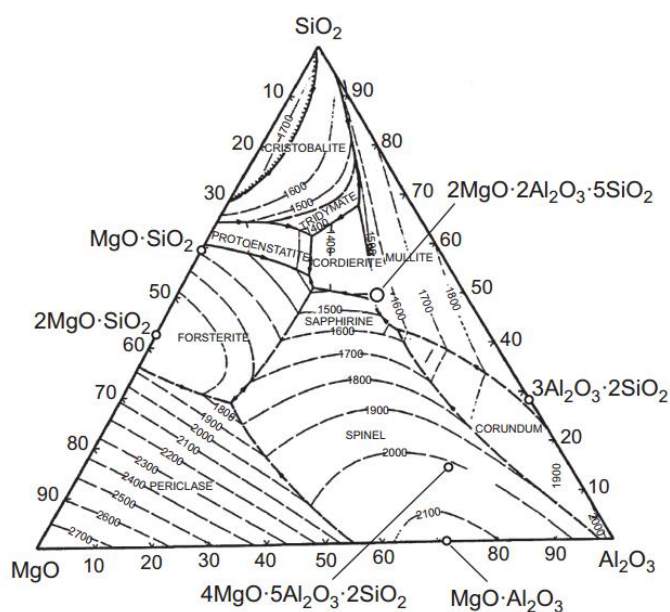
รูปที่ 2.1 โครงสร้างผลึกคอร์ดีไรต์<sup>[2]</sup>

รูปที่ 2.1 แสดงโครงสร้างผลึกของคอร์ดีไรต์ โดยที่  $T_1$  คือวงแหวนแคตไอออนเตตระฮีดรอน  $T_2$  คือแคตไอออนเตตระฮีดรอลเชื่อมวงแหวนทั้งหก  $O_1$  คือออกซิเจนอะตอม และ M คือแคตไอออน โครงสร้างของคอร์ดีไรต์เฮกซะโกนอลประกอบด้วย การเชื่อมต่อที่มุมของ  $(\text{Si}/\text{Al})\text{O}_4$  เตตระฮีดรอน และ  $\text{MgO}_6$  ออกเตตระฮีดรอน<sup>[3]</sup> ซึ่งมีการจัดเรียงชั้นดังนี้ ชั้นเตตระฮีดรอน (pure tetrahedral) ของ

$(\text{Si}/\text{Al})\text{O}_4$  จะฟอร์มเป็นวงแหวนเฮกซะโกนอล และชั้นเตตระฮีดรอนของ  $(\text{Si}/\text{Al})\text{O}_4$  จะผสมด้วยกันกับ ออกเตตระฮีดรอนของ  $\text{MgO}_6$  ซึ่งชั้นโครงสร้างรูปแบบนี้จะเกิดช่องว่างขนาดใหญ่ที่มีขนาด 5.6 อังสตรอม ขนานกับแกน C<sup>[4]</sup>

### 2.1.2 การสังเคราะห์คอร์เดียไรต์

คอร์เดียไรต์ที่เกิดเป็นแร่ในธรรมชาตินั้นพบได้น้อยมาก ลักษณะโครงสร้างผลึก (polymorphism) และปริมาณสารสัมพันธ์ (stoichiometry) ของคอร์เดียไรต์ค่อนข้างซับซ้อน ผลึกของคอร์เดียไรต์ที่อุณหภูมิสูงจะมีโครงสร้างเฮกซะโกนอล อุณหภูมิต่ำกว่า  $1450^\circ\text{C}$  สามารถเปลี่ยนเป็นเฟส  $\beta$  หรือ  $\mu$  ดังนั้นคอร์เดียไรต์เซรามิกที่มีส่วนประกอบ stoichiometric การควบคุมการเกิดเฟส stoichiometric cordierite ( $2\text{MgO}\cdot 2\text{Al}_2\text{O}_3\cdot 5\text{SiO}_2$ ) ค่อนข้างยาก เนื่องจากคอร์เดียไรต์มีจุดหลอมเหลวที่อุณหภูมิ  $1460^\circ\text{C}$  และมีช่วงอุณหภูมิการเผาผนึกแคบ (narrow firing range) อยู่ในช่วง  $1345\text{--}1460^\circ\text{C}$  นอกจากนี้สิ่งเจือปนในวัตถุดิบมีความไวต่อช่วงอุณหภูมิอุณหภูมิการเผาผนึก ทำให้เกิดเป็นเนื้อแก้วส่งผลต่อสมบัติสมบัติทางความร้อนของชิ้นงาน

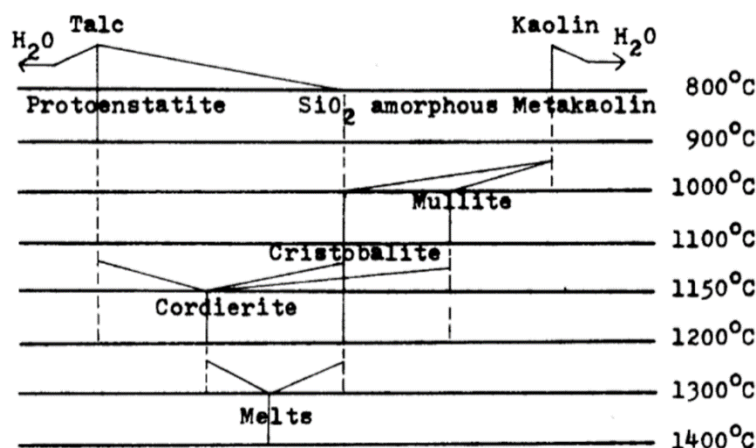


รูปที่ 2.2 แผนภาพเฟสของ  $\text{MgO}\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ <sup>[5]</sup>

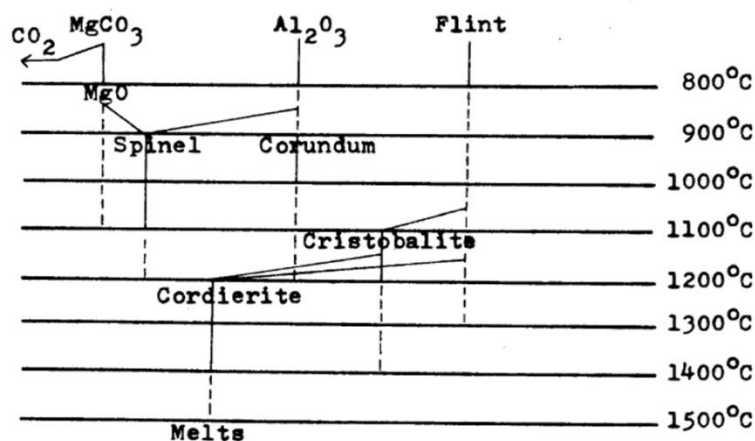
(โดยที่ (O) คือ stoichiometric composition of cordierite)

คอร์เดียไรต์สามารถสังเคราะห์ได้จากวัตถุดิบที่มีแมกนีเซียมออกไซด์ ( $\text{MgO}$ ) อะลูมินา ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) และ ซิลิกา ( $\text{SiO}_2$ ) เป็นองค์ประกอบตามแผนภาพเฟสของ  $\text{MgO}\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$  วัตถุดิบดังกล่าว เช่น อะลูมินา ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) ดิน ( $\text{Al}_2\text{O}_3\cdot 2\text{SiO}_2\cdot 2\text{H}_2\text{O}$ ) ทัลคัล ( $3\text{MgO}\cdot 4\text{SiO}_2\cdot \text{H}_2\text{O}$ ) และ ควอตซ์ ( $\text{SiO}_2$ ) เป็นต้น<sup>[6,7,8]</sup> การสังเคราะห์คอร์เดียไรต์สามารถทำได้หลายวิธี เช่น วิธีการเกิดปฏิกิริยาใน

สภาวะของแข็ง (solid state sintering)<sup>[9]</sup> วิธีโซเจล (sol gel method)<sup>[10]</sup> วิธีพ่นพลาสมา (plasma spraying)<sup>[11]</sup> เป็นต้น การสังเคราะห์คอร์เดียไรต์ด้วยวิธีโซเจลจะได้คอร์เดียไรต์ที่มีความบริสุทธิ์สูงแต่มีราคาแพง วิธีการเกิดปฏิกิริยาในสภาวะของแข็งเป็นวิธีแบบดั้งเดิม (conventional) และได้รับความนิยมมากที่สุดเนื่องจากใช้ทุนต่ำและสามารถผลิตปริมาณมากได้ งานวิจัยนี้จึงพิจารณาเลือกใช้กระบวนการดังกล่าว ที่ผ่านมามีหลายงานวิจัยที่ทำการศึกษาการสังเคราะห์คอร์เดียไรต์ด้วยวิธีการเกิดปฏิกิริยาในสภาวะของแข็งจากวัตถุดิบหลายชนิด เช่น การทำปฏิกิริยากันระหว่างแมกนีเซียมคาร์บอเนต อะลูมินา และฟรินท์ หรือระหว่างทัลคัมและดิน ดังรูปที่ 2.3 และ 2.4



รูปที่ 2.3 ปฏิกิริยาระหว่างวัตถุดิบแมกนีเซียมคาร์บอเนต อะลูมินา และฟรินท์<sup>[12]</sup>

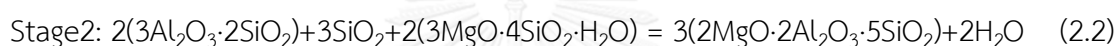


รูปที่ 2.4 ปฏิกิริยาระหว่างวัตถุดิบระหว่างทัลคัมและดิน<sup>[12]</sup>

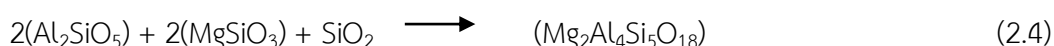
นอกจากนี้ งานวิจัยของ Bejjouji และคณะ<sup>[13]</sup> ศึกษาการสังเคราะห์คอร์เดียไรต์จากดินชนิด maroccan-stevensite ซึ่งเป็นวัตถุดิบที่ให้แมกนีเซียมออกไซด์และซิลิกา ผสมกับแอนดาลูไซต์ ซึ่งเป็นวัตถุดิบที่ให้อะลูมินาและซิลิกา ทำการคำนวณสัดส่วนตามปริมาณสัมพัทธ์เพื่อให้ได้คอร์เดียไรต์ โดยใช้ดิน 43.7 %โดยน้ำหนัก และแอนดาลูไซต์ 56.3 %โดยน้ำหนัก เผาผนึกที่อุณหภูมิ

1150 1250 และ 1350°C ยืนไฟเป็นเวลา 2 ชั่วโมง พบว่าชิ้นงานหลังเผาประกอบด้วยคอร์เดียไรต์ และแอนดราลูไซต์เป็นเฟสหลัก และพบเอนสตาไทต์ (enstatite) มุลไลต์ และคริสโตบาไลต์ เป็นเฟสรองเมื่อเผาผนึกที่อุณหภูมิ 1150°C และ 1250°C เมื่อเพิ่มอุณหภูมิการเผาผนึกเป็น 1350°C จะพบคอร์เดียไรต์เพียงเฟสเดียว ชิ้นงานที่ได้มีความหนาแน่น 2.4 กรัมต่อลูกบาศก์เซนติเมตร รุพุนเปิด 23.5 เปอร์เซ็นต์ พื้นที่ผิวจำเพาะ 63 ลูกบาศก์เมตร และสัมประสิทธิ์การขยายตัวทางความร้อน ณ ช่วงอุณหภูมิ 25-1300°C มีค่า  $5.3 \times 10^{-6} / ^\circ\text{C}$

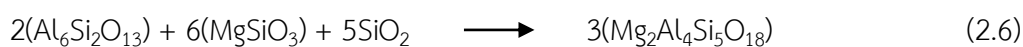
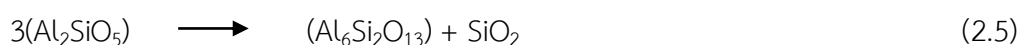
Avvakumov และคณะ<sup>[14]</sup> สังเคราะห์คอร์เดียไรต์จากทัลคัม ( $3\text{MgO} \cdot 4\text{SiO}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$ ) และแร่ในกลุ่มแร่ซิลลิมาไนท์ ( $\text{Al}_2\text{SiO}_5$ ) ชนิดโคยาไนต์ ปฏิกิริยาการเกิดคอร์เดียไรต์สามารถอธิบายได้ดังสมการ (2.1) และ (2.2) โดยในช่วงแรกโคยาไนต์จะเปลี่ยนเฟสเป็นมุลไลต์ หลังจากนั้นจะทำปฏิกิริยากับทัลคัมและซิลิกา



Benhammou และคณะ<sup>[15]</sup> สังเคราะห์คอร์เดียไรต์จากแอนดราลูไซต์และทัลคัม โดยวิธีการเกิดปฏิกิริยาในสถานะของแข็ง ศึกษาผลของอุณหภูมิการเผาผนึกช่วงอุณหภูมิ 1300 ถึง 1350°C เวลาเย็นไฟ 2 ชั่วโมง ที่ส่งผลต่อเฟสและสมบัติทางกล ของชิ้นงานหลังเผาพบว่าที่อุณหภูมิการเผาผนึก 1300°C จะพบแอนดราลูไซต์เป็นเฟสหลัก และพบคอร์เดียไรต์ และโพโรโทเอนสตาไทต์ ( $\text{MgSiO}_3$ ) เป็นเฟสรอง โพโรโทเอนสตาไทต์เกิดจากการสลายตัวทางความร้อนของทัลคัม และเฟสคอร์เดียไรต์ที่พบในช่วงอุณหภูมิดังกล่าว เกิดจากปฏิกิริยาระหว่างแอนดราลูไซต์ โพโรโทเอนสตาไทต์ และซิลิกา ดังสมการ (2.3) และ (2.4)



เมื่อเพิ่มอุณหภูมิการเผาผนึกเป็น 1350°C พบว่าคอร์เดียไรต์มีปริมาณเพิ่มขึ้นในขณะที่แอนดราลูไซต์ลดลง และไม่พบโพโรโทเอนสตาไทต์ที่อุณหภูมิดังกล่าว งานวิจัยนี้รายงานว่าเฟสคอร์เดียไรต์ที่พบในช่วงอุณหภูมิการเผาผนึก 1350°C เกิดจากการสลายตัวของแอนดราลูไซต์ เป็นมุลไลต์และซิลิกา ดังสมการที่ (2.5) จากนั้นเฟสรวมทั้งสอง ทำปฏิกิริยากับโพโรโทเอนสตาไทต์เกิดเป็นคอร์เดียไรต์ ดังสมการ (2.6)



นอกจากนี้ยังพบว่าค่าความต้านแรงดัดและความทนแรงดึงของชิ้นงานสูงชิ้นเป็น  $32 \pm 4.2$  MPa และ  $18.3 \pm 3.6$  MPa เมื่อเผาผนึกที่อุณหภูมิ 1350°C

### 2.1.3 สมบัติคอร์เดียไรต์และการนำไปประยุกต์ใช้งาน

คอร์เดียไรต์มีสมบัติโดดเด่นคือสามารถทนต่อการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิอย่างฉับพลันได้ดี เนื่องจากมีสัมประสิทธิ์การขยายตัวทางความร้อนต่ำ อยู่ในช่วง  $1.4 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$  ถึง  $2.6 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$  มีสภาพต้านทานไฟฟ้าสูง เป็นฉนวนไฟฟ้า ทนทานต่อการกัดกร่อนและสารเคมี (พิจารณาตาราง 2.1 แสดงสมบัติของคอร์เดียไรต์) ด้วยสมบัติเด่นดังที่ได้กล่าวมานี้ทำให้คอร์เดียไรต์สามารถนำไปประยุกต์ใช้งานหลากหลาย ได้แก่ เป็นวัสดุทนไฟ อุปกรณ์เคลือบแผ่นวงจรอิเล็กทรอนิกส์ ใส้กรอง เซรามิกในการแยกของแข็งออกจากของเหลว อุปกรณ์เตาเผา วัสดุฉนวนกันความร้อน และเซรามิก รังผึ้งสำหรับใช้ในแคทาลิติกคอนเวอร์เตอร์<sup>[16,17]</sup> เป็นต้น

ตารางที่ 2.1 สมบัติทั่วไปของคอร์เดียไรต์<sup>[18]</sup>

สมบัติ	ค่า
ความหนาแน่น (Density, $\text{g}/\text{cm}^3$ )	2.0–2.53
จุดหลอมตัว (Melting point, $^{\circ}\text{C}$ )	1460
ความต้านแรงดัด (Flexural strength, MPa)	120–245
มอดุลัสของยัง (Young's modulus, GPa)	139–150
การนำความร้อน (Thermal conductivity, $\text{W}/\text{m}\cdot\text{K}$ )	1.25-1.67
สัมประสิทธิ์การขยายตัวทางความร้อน ทดสอบที่อุณหภูมิ 25 ถึง $1000^{\circ}\text{C}$ (Thermal expansion coefficient, $\times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ )	1.4–2.6

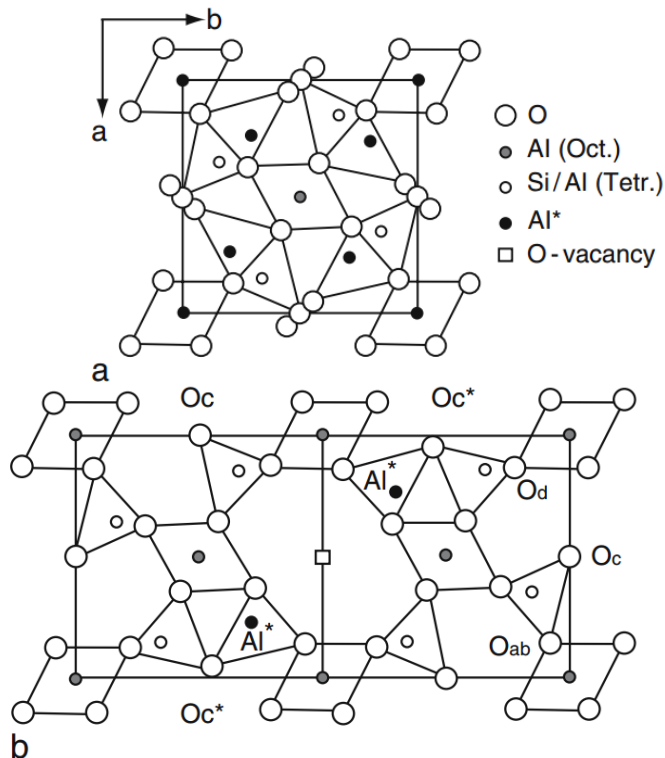
## 2.2 มุลไลต์

### 2.2.1 โครงสร้างผลึกมูลไลต์

มูลไลต์มีสูตรโครงสร้าง  $\text{Al}_{4+2x}\text{Si}_{2-2x}\text{O}_{10-x}$  โดย  $x$  คือจำนวนช่องว่างเตตระฮีดรอนของออกซิเจนต่อหนึ่งยูนิตเซลล์ ในโครงสร้างของมูลไลต์อะตอมของอะลูมินาและซิลิกาสามารถอาศัยในตำแหน่งเตตระฮีดรอนที่ว่างอยู่ในโครงสร้าง ทำให้มูลไลต์มีโครงสร้างที่หลากหลาย เช่น เมื่อ  $x=0.25$  (อะลูมินา 71.8 %โดยน้ำหนัก) จะมีโครงสร้าง  $3\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 2\text{SiO}_2$ :3-2 mullite และ  $x=0.40$  (อะลูมินา 77.2 %โดยน้ำหนัก) จะมีโครงสร้าง  $2\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot \text{SiO}_2$ :2-1 mullite<sup>[19]</sup> เป็นต้น Jaaski และคณะ<sup>[20]</sup> ได้ศึกษาโครงสร้างของมูลไลต์โดยกล้องจุลทรรศน์แบบกำลังขยายสูงและใช้หลักการกระเจิงของอิเล็กตรอน พบว่ามูลไลต์มีโครงสร้างออร์โธโรมบิก (orthorhombic) มีแลตทิซพารามิเตอร์  $a = 0.7540$   $b = 0.7680$  และ  $c = 0.2885$  นาโนเมตร โดยที่ด้านข้างประกอบด้วย  $\text{AlO}_6$  ที่ต่อกันตามแนวแกน และ  $(\text{Si,Al})\text{O}_4$  สานไขว้กันในชั้นเตตระฮีดรอน ช่องว่างขนาดใหญ่ในโครงสร้างมูลไลต์



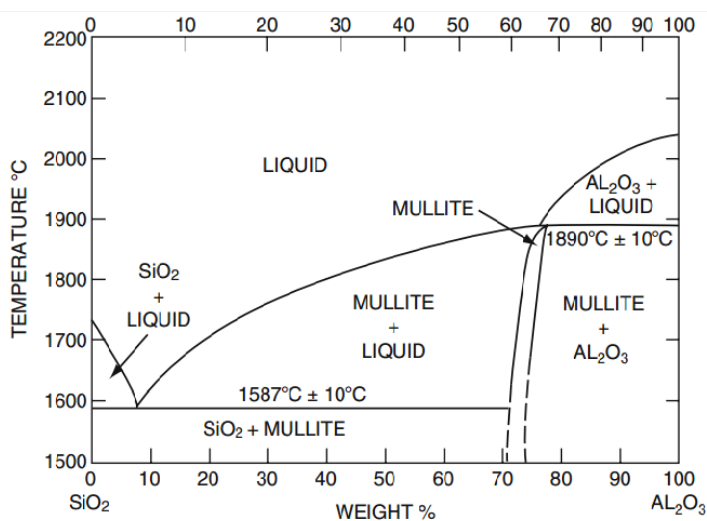
คือตำแหน่งว่างของออกซิเจน (oxygen vacancy) ซึ่งช่วยให้การเคลื่อนตัวของอะลูมิเนียมอะตอม ( $Al^*$ ) ที่อยู่ติดกันเกิดขึ้นได้ง่าย แสดงดังรูปที่ 2.5



รูปที่ 2.5 โครงสร้างมุลไลต์ (a) โครงสร้างโดยรวม (b) การเคลื่อนที่ของอะตอมเนื่องจากช่องว่างของออกซิเจน<sup>[21]</sup>

### 2.2.2 การสังเคราะห์มุลไลต์

มุลไลต์สามารถสังเคราะห์ได้จากวัตถุดิบตั้งต้นที่มีองค์ประกอบทางเคมีเป็น อะลูมินา ( $Al_2O_3$ ) และซิลิกา ( $SiO_2$ ) ตามแผนภาพเฟส  $Al_2O_3-SiO_2$  (รูปที่ 2.6) การสังเคราะห์มุลไลต์สามารถทำได้หลายวิธี โดยอาจแบ่งได้เป็น 3 วิธี คือการเผาผนึก (sintered mullite) การหลอม (fused mullite) และการสังเคราะห์ทางเคมี (chemical mullite)<sup>[22]</sup>

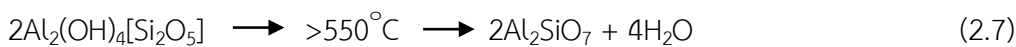


รูปที่ 2.6 แผนภาพเฟส  $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$  [23]

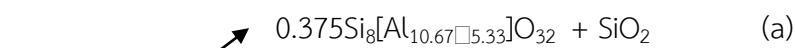
การสังเคราะห์มุลไลต์ด้วยวิธีเผาผนึกเป็นกระบวนการแบบดั้งเดิม ใช้แร่ธรรมชาติเป็นวัตถุดิบ ในการสังเคราะห์ ได้แก่ เคโอลิไนต์ (kaolinite) ฮาลลอยไซต์ (halloysite) โคยานินท์ (kayanite) แอนดาลูไซต์ (andalusite) ซิลลิมาไนต์ (sillimanite) เป็นต้น สามารถจำแนกแร่ที่ใช้ในการสังเคราะห์มุลไลต์ออกเป็น 2 กลุ่ม ดังนี้

### 2.2.2.1 ไฮดรอกไซด์อะลูมิเนียมซิลิเกต

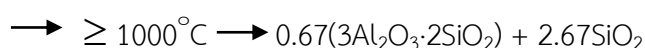
การสังเคราะห์ระบบนี้มักใช้เคโอลิไนต์ ( $2\text{SiO}_2 \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ ) เป็นวัตถุดิบหลัก เมื่อนำเคโอลิไนต์มาให้ความร้อนจนเกิดปฏิกิริยาเป็นมุลไลต์ดังสมการ (2.7) ผลึกของมุลไลต์หลายลักษณะ ทั้งรูปเข็ม แท่ง ขึ้นกับองค์ประกอบภายใน เวลา และอุณหภูมิในการเกิดปฏิกิริยา ดังรูปที่ 2.7



Kaolinite metakaolinite

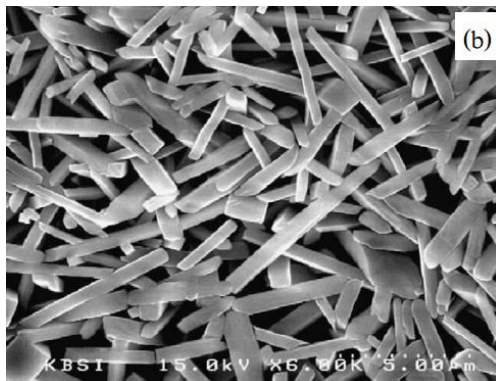


spinel phase amorphous silica



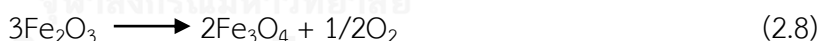
3/2-mullite amorphous silica

เมื่อ □ คือช่องว่างในโครงสร้างผลึก และ (a) กับ (b) เป็นชนิดของสปีเนลที่ขึ้นอยู่กับองค์ประกอบทางเคมีของสารตั้งต้น



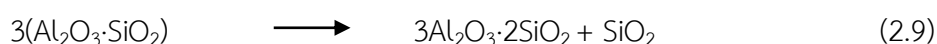
รูปที่ 2.7 ผลึกมุลไลต์<sup>[24]</sup>

แร่เคโอลิไนต์ส่วนใหญ่จะมีแอลคาไลน์เอิร์ท และสิ่งเจือปนอื่น เช่น เหล็กออกไซด์ ( $\text{Fe}_2\text{O}_3$ ) โซเดียมออกไซด์ โพแทสเซียมออกไซด์ในปริมาณสูง ส่งผลต่อความหนาแน่นและความแข็งแรงของผลิตภัณฑ์ ทำให้ความทนไฟลดลงที่อุณหภูมิการใช้งานสูงกว่า  $1500^\circ\text{C}$  เนื่องจากที่อุณหภูมิดังกล่าว เหล็กออกไซด์จะแตกตัวเป็น  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  และออกซิเจน เกิดเป็นรูพรุนในชิ้นงาน<sup>[25]</sup> ดังสมการ (2.8) และซิลิกาอิสระ (free silica) ที่อยู่ในรูปเฟสเนื้อแก้ว (glassy phase) หากมีปริมาณมากจะส่งผลให้ความทนไฟลดลง จากงานวิจัยที่ผ่านมาพบว่าการสังเคราะห์มุลไลต์จากดินจะได้มุลไลต์ประมาณ 64 %<sup>[26]</sup> การเติมตัวเร่งปฏิกิริยาชนิดแคลเซียมออกไซด์ โพแทสเซียมออกไซด์ และไทเทเนียมออกไซด์ ลงในส่วนผสมอะลูมินาและซิลิกาจะช่วยกระตุ้นการเปลี่ยนโครงสร้างจากเคโอลิไนต์เป็นมุลไลต์



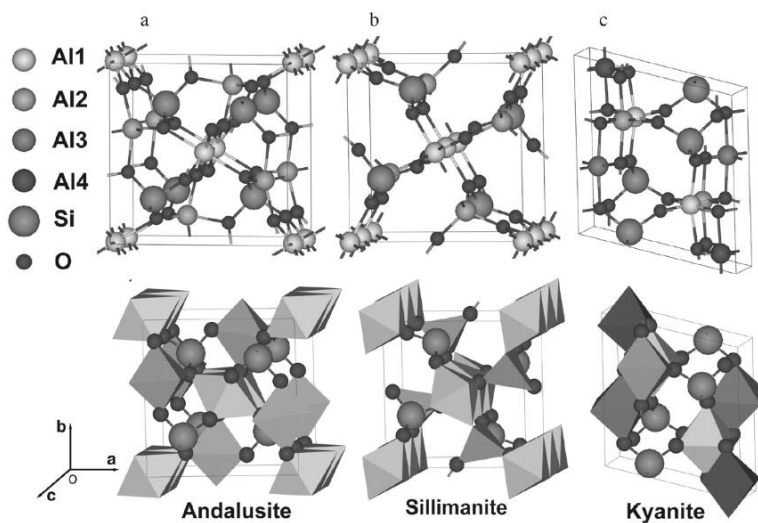
### 2.2.2.2 แอนไฮดรอะลูมินซิลิเกต

การสังเคราะห์มุลไลต์จากแร่ในกลุ่มอะลูมินซิลิเกต เช่น แอนดาลูไซต์ ไคยาไนท์ และซิลลิมาไนต์ แร่ทั้ง 3 ชนิดนี้ มีสูตรเคมีเหมือนกันคือ  $\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot \text{SiO}_2$  แต่มีรูปร่างผลึกที่แตกต่างกันและสามารถเปลี่ยนเฟสเป็นมุลไลต์ที่อุณหภูมิสูง โดยอัตราส่วนโดยโมลของอะลูมินาต่อซิลิกาจะเปลี่ยนจาก 3:1 เป็น 3:2 ภายใต้บรรยากาศออกซิเดชัน ดังสมการ (2.9) รูปที่ 2.8 และตารางที่ 2.2 แสดงโครงสร้างผลึกและอุณหภูมิการเกิดเฟสมุลไลต์ของแร่ไคยาไนท์ แอนดาลูไซต์ และซิลลิมาไนต์



kyanite, andalusite, silimanite

3/2mullite amorphous, cristobalite



รูปที่ 2.8 โครงสร้างผลึกของแร่อะลูมิโนซิลิเกต (a) แอนดาลูไซต์ (b) ซิลลิมาไนต์ (c) ไคยาไนต์<sup>[27]</sup>

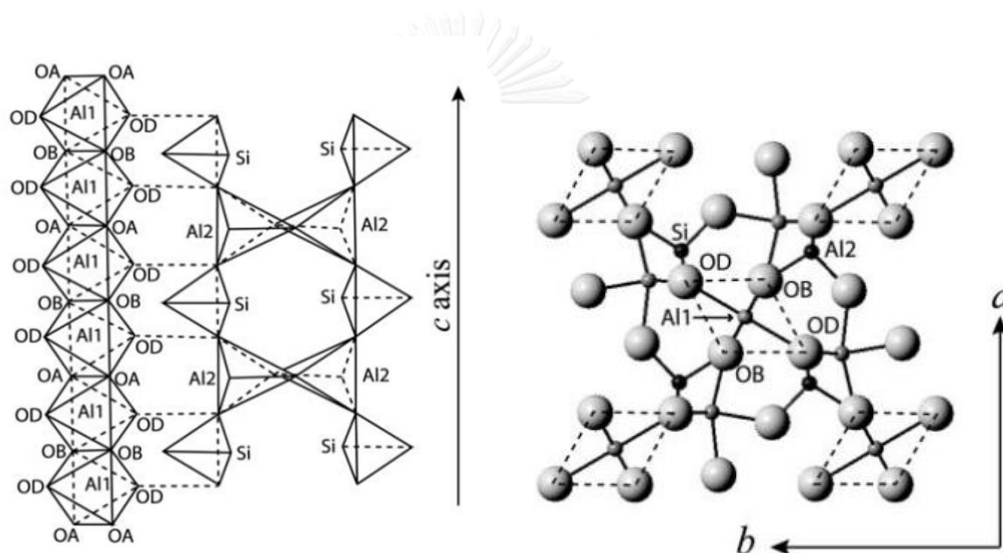
ตารางที่ 2.2 ลักษณะเฉพาะของแร่ ไคยาไนท์ แอนดาลูไซต์ ซิลลิมาไนต์ และมุลไลต์<sup>[26,28,29]</sup>

Temperature (°C)	Kyanite	Andalusite	Silimanite	Mullite
Crystalline system	Triclinic	Orthorhombic	Orthorhombic	Orthorhombic
Unit cell (nm)				
a	0.712	0.779	0.748	0.754
b	0.785	0.790	0.767	0.769
c	0.557	0.555	0.577	0.289
Density (g/cm <sup>3</sup> )	3.5-3.67	3.1-3.12	3.2-3.3	3.1-3.3
Beginning of transformation to mullite (°C)	1150	1250	1300	-
Completion of transformation to mullite (°C)	1300	1500	1700	-
Width of transformation interval to mullite (°C)	150	250	400	-
Volume changes (%)	+15	+4	+8	-
Silica form	crystoballite	amorphous	amorphous	-

เมื่อพิจารณาตารางที่ 2.2 จะเห็นว่าแอนดาลูไซต์เป็นวัสดุที่น่าสนใจเนื่องจากมีความหนาแน่นใกล้เคียงกับมุลไลต์ และเมื่อเปลี่ยนเฟสเป็นมุลไลต์มีการเปลี่ยนแปลงปริมาตรเพียงเล็กน้อย

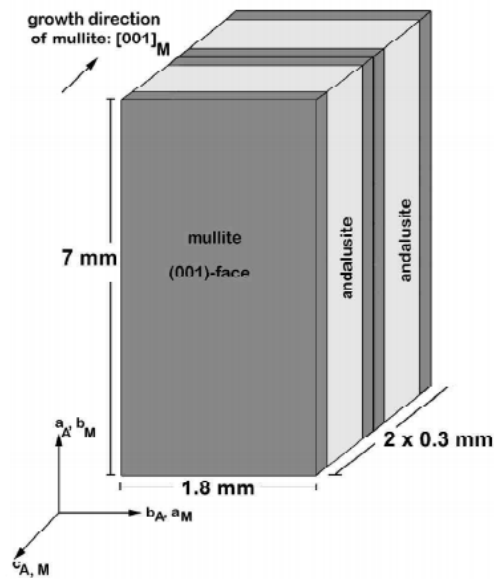
### 2.2.2.2.1 แอนดาลูไซต์

แอนดาลูไซต์มีสูตรทางเคมี  $\text{Al}_2\text{SiO}_5$  ประกอบด้วย  $\text{Al}_2\text{O}_3$  63.2% และ  $\text{SiO}_2$  36.8% มีโครงสร้างผลึกออร์โธรมบิก (orthorhombic) อยู่ใน  $Pn\bar{m}$  space group (no. 58) โดยมีแลตทิซพารามิเตอร์  $a = 7.7980$   $b = 7.931$  และ  $c = 5.5566$  อังสตรอม ผลึกของทั้งแอนดาลูไซต์และมุลไลต์มีการใช้ขอบร่วมกัน (edge-sharing) ของ  $\text{AlO}_6$  ออกตระฮีดรอนซึ่งต่อกันตามแนวแกน (รูปที่ 2.9) ในกรณีของแอนดาลูไซต์ออกตระฮีดรอนของ  $\text{AlO}_6$  จะเชื่อมโยงกับสายโซ่คู่ที่ประกอบด้วย  $\text{SiO}_4$  เตตระฮีดรอนและสามเหลี่ยมพีระมิดคู่ (trigonal bipyramids)<sup>[30,31]</sup>

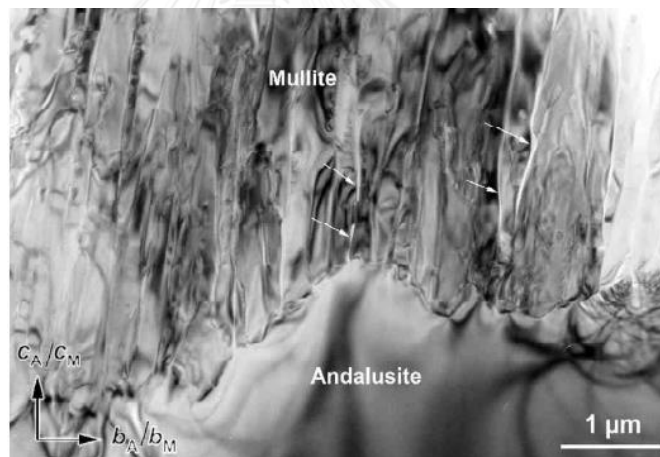


รูปที่ 2.9 โครงสร้างผลึกแอนดาลูไซต์บนระนาบ (001)<sup>[31]</sup>

กลไกการเปลี่ยนเฟสจากแอนดาลูไซต์เป็นมุลไลต์ และซิลิกา ที่อุณหภูมิสูง มีการศึกษาโดย Pannhorst และ Schneider<sup>[32]</sup> โดยศึกษาการเลี้ยวเบนของรังสีเอกซ์เรย์ พบว่าการเปลี่ยนเฟสแอนดาลูไซต์ไปยังมุลไลต์มีการจัดเรียงตัวตามความสัมพันธ์  $[100]_A || [010]_M, [010]_A || [100]_M, [001]_A || [001]_M$  นอกจากนี้ Hulmans และคณะ<sup>[30]</sup> ได้จำลองกลไกการเปลี่ยนเฟสจากแอนดาลูไซต์เป็นมุลไลต์ และซิลิกา ในทิศทาง  $(001)_A$  แสดงการจำลองในรูปที่ 2.10 เฝ้านึกที่อุณหภูมิ 1500 ถึง 1600°C ผลการตรวจสอบโครงสร้างจุลภาคด้วยเทคนิค TEM (ดังรูปที่ 2.11) พบว่าการโตของผลึกมุลไลต์จะเริ่มมีการโตบริเวณรอยต่อที่ผิวของแอนดาลูไซต์ และทิศทางการโตจะขนานไปตามแกน C มีขนาดผลึกยาว 250 ถึง 300 นาโนเมตร ลักษณะคล้ายแท่งหรือแผ่น นอกจากนั้นพบว่าซิลิกาที่เกิดขึ้นในระหว่างการเปลี่ยนเฟส จะเกิดขึ้นบริเวณตำแหน่งระหว่างผลึกมุลไลต์ สามารถมองเห็นความแตกต่างของความคมชัดของผลึก

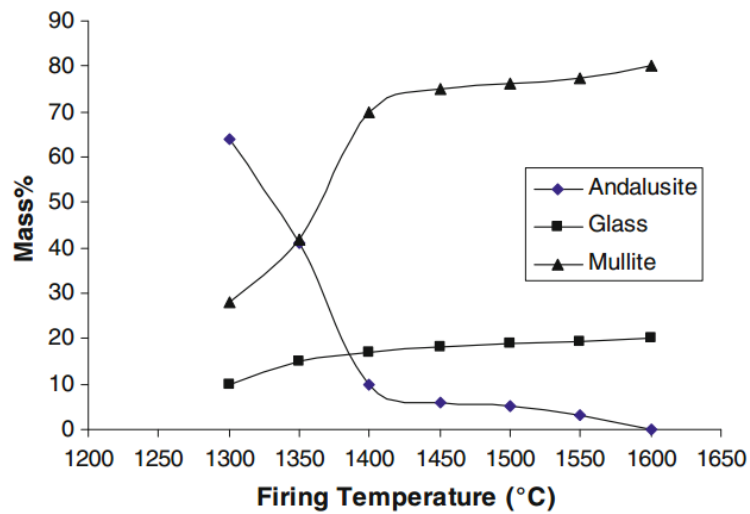


รูปที่ 2.10 ภาพจำลองของชิ้นงาน สำหรับศึกษาการโตของผลึกมุลไลต์<sup>[30]</sup>



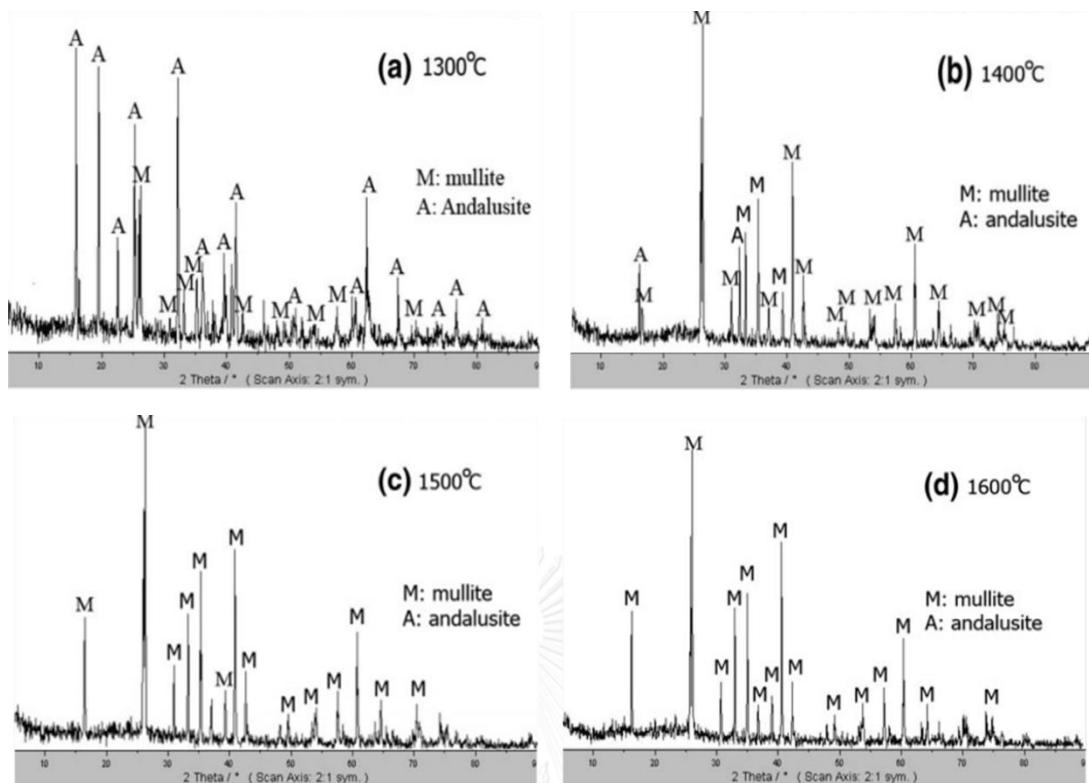
รูปที่ 2.11 ภาพรอยต่อผลึกแอนดาลูไซต์และมุลไลต์ในระนาบ  $[100]_A || [010]_M$ <sup>[30]</sup>

แอนดาลูไซต์เป็นวัสดุที่ที่น่าสนใจมีสมบัติโดดเด่นคือ มีความทนไฟสูง นำความร้อนต่ำ ทนทานต่อความเค้นได้ดี ต้านทานต่อแรงกดอัดที่อุณหภูมิสูง ทนต่อการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิฉับพลัน เมื่อได้รับความร้อนแอนดาลูไซต์จะเปลี่ยนเฟสเป็นมุลไลต์ ประมาณ 80% และซิลิกา 20%<sup>[33,34]</sup> การเปลี่ยนเฟสเริ่มที่อุณหภูมิ 1250°C-1300°C อัตราการเปลี่ยนเฟสเป็นมุลไลต์เพิ่มสูงขึ้นเมื่ออุณหภูมิสูงขึ้นและการเปลี่ยนเฟสจะเกิดโดยสมบูรณ์ที่อุณหภูมิ 1500 °C นอกจากนี้อัตราการเปลี่ยนเฟสยังขึ้นอยู่กับขนาดของอนุภาค สารเจือปน<sup>[34,35]</sup> เป็นต้น



รูปที่ 2.12 การเปลี่ยนแปลงของเปอร์เซ็นต์โดยน้ำหนักของมุลไลต์และซิลิกาเมื่ออุณหภูมิเพิ่มขึ้น<sup>[35]</sup>

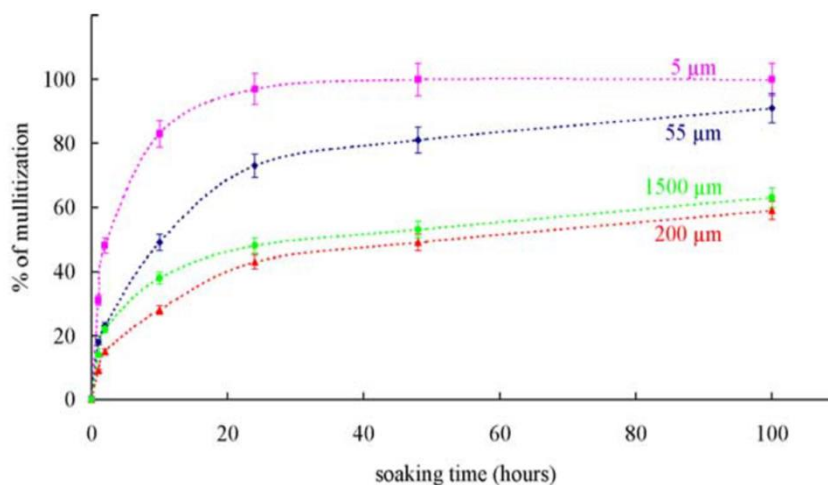
Pooladvand และคณะ<sup>[35]</sup> ศึกษาผลของสารเติมแต่ง (additive) ชนิดแมกนีเซียมออกไซด์และแคลเซียมออกไซด์ที่ส่งผลต่อการเปลี่ยนเฟสจากแอนดาลูไซต์เป็นมุลไลต์ งานวิจัยนี้ใช้วัตถุดิบแอนดาลูไซต์ที่มีขนาดอนุภาค 55 ไมครอน แมกนีเซียมไนเตรด แคลเซียมคลอไรด์ เตรียมโดยวิธีตกตะกอน โดยใช้แอมโมเนียมเป็นสารช่วยตกตะกอน เผาผนึกที่อุณหภูมิ 1300 1400 1500 และ 1600 °C เวลายืนไฟ 2 ชั่วโมง พบว่าการเติมแมกนีเซียมออกไซด์และแคลเซียมออกไซด์ช่วยการเปลี่ยนเฟสเป็นมุลไลต์เกิดขึ้นได้ที่อุณหภูมิต่ำจากเดิมประมาณ 100°C ทั้งนี้อาจเป็นเพราะแมกนีเซียมออกไซด์ที่เติมเข้าไปจะไปช่วยลดอุณหภูมิการเกิดและเพิ่มปริมาณเฟสของเหลว ทำให้ของเหลวในระบบมีความหนืดลดลงซึ่งช่วยส่งเสริมอัตราการแพร่ เมื่อพิจารณาองค์ประกอบเฟสของชิ้นงานที่มีการเติม MgO 1.5 %โดยน้ำหนัก ไม่พบเฟสแอนดาลูไซต์ที่อุณหภูมิ 1500°C ในขณะที่ชิ้นงานที่ไม่มีสารเติมแต่ง ที่อุณหภูมิต่ำกว่ายังคงพบแอนดาลูไซต์หลงเหลือจากกระบวนการการปฏิกิริยาเปลี่ยนเฟสเป็นมุลไลต์ (รูปที่ 2.13)



รูปที่ 2.13 องค์ประกอบเฟสของแอนดาลูไซต์ที่มีการเติม MgO 1.5 %โดยน้ำหนัก (a) 1300°C (b) 1400°C (c) 1500°C และ (d) 1600°C (A: andalusite, M: mullite)

Bouchetou และคณะ<sup>[34]</sup> ศึกษาอิทธิพลของสิ่งเจือปนและขนาดอนุภาคต่อการเกิดมุลไลต์ จากงานวิจัยแสดงให้เห็นว่าสิ่งเจือปน เช่น เหล็กออกไซด์และอัลคาไลน์ จะช่วยเพิ่มเฟสของเหลวและลดความหนืด โดยสิ่งเจือปนส่วนใหญ่จะอยู่บริเวณผิวเกรนแอนดาลูไซต์ การเกิดเฟสของเหลวจะช่วยส่งเสริมการแพร่ของสปีชีส์ต่างๆในระบบและเร่งกระบวนการเกิดมุลไลต์ (mullization) ผ่านกลไกการละลายและการตกตะกอน (dissolution-precipitation mechanism) นอกจากนี้กระบวนการเกิดมุลไลต์ยังขึ้นกับขนาดอนุภาค และองค์ประกอบทางเคมีของแอนดาลูไซต์ เป็นต้น จากผลการศึกษาขนาดอนุภาคของแอนดาลูไซต์ต่อกลไกการเกิดมุลไลต์ (รูปที่ 2.14) ซึ่งแสดงองค์ประกอบเฟสที่อุณหภูมิ 1350°C พบว่าเมื่อใช้แอนดาลูไซต์ที่มีขนาดอนุภาค 5 ไมครอนเป็นวัตถุดิบ จะมีอัตราการเกิดมุลไลต์ได้เร็วกว่าแอนดาลูไซต์ที่มีขนาดอนุภาค 55 200 และ 1500 ไมครอน ตามลำดับ





รูปที่ 2.14 อัตราการเกิดเฟสมูลไลต์เมื่อใช้วัตถุดิบแอนดาลูไซต์ที่มีขนาด 5 55 200 และ 1500 ไมครอน อุณหภูมิเผาผนึก 1300°C

จากที่ได้กล่าวมาข้างต้นจะเห็นว่าแอนดาลูไซต์เป็นวัตถุดิบที่น่าสนใจนำมาใช้เป็นวัตถุดิบในการผลิตวัสดุมูลไลต์ โดยในปัจจุบันมีการนำแอนดาลูไซต์มาใช้งานอย่างกว้างขวางในอุตสาหกรรมโลหะและอุตสาหกรรมเซรามิก โดยเฉพาะอย่างยิ่งการใช้งานที่อุณหภูมิสูง ได้แก่ รถเตาประหยัดพลังงาน แผ่นรองเตา ขาดังเตา อุปกรณ์เก็บความร้อนจากแสงอาทิตย์ (solar thermal storage) แผ่นโซลาเซลล์<sup>[36,37]</sup> เป็นต้น

### 2.2.3 สมบัติของมูลไลต์และการนำไปประยุกต์ใช้งาน

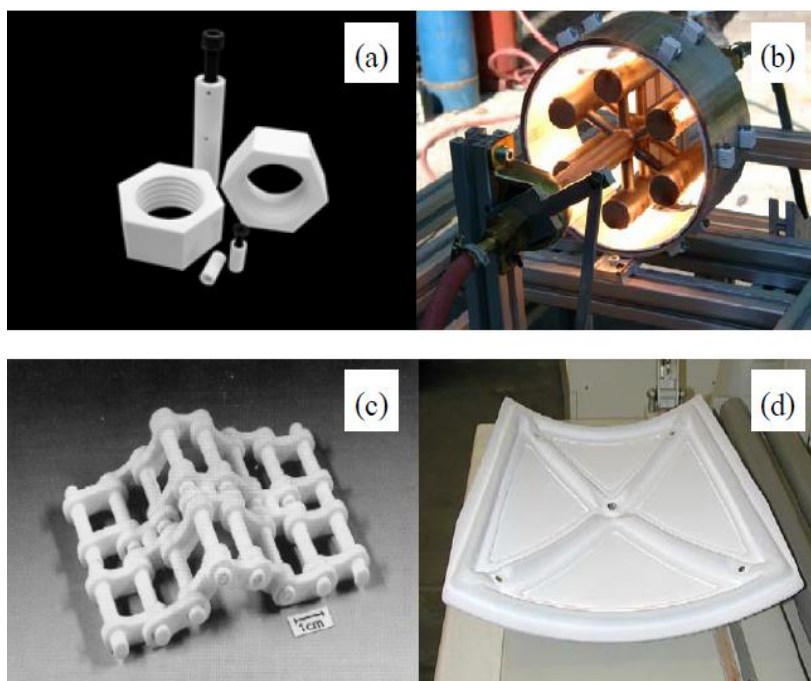
มูลไลต์เป็นวัสดุเซรามิกที่มีจุดหลอมตัวสูง 1810°C มีความหนาแน่น 3.0-3.2 กรัมต่อลูกบาศก์เซนติเมตร สัมประสิทธิ์การขยายตัวทางความร้อนปานกลาง  $5 \times 10^{-6} / ^\circ\text{C}$  ณ ช่วงอุณหภูมิ 20-800°C มีความต้านทานต่อการคืบสูง จึงลดการเสียรูปของชิ้นงานภายใต้แรงกระทำคงที่ มีความแข็งแรงสูงกว่า 360 MPa และทนต่อการกัดกร่อนสูง ดังแสดงในตารางที่ 2.3 และตารางที่ 2.4 ซึ่งเปรียบเทียบสมบัติทางกล ทางความร้อนของมูลไลต์กับเซรามิกชนิดอื่น จากสมบัติเด่นของมูลไลต์ที่ได้กล่าวมานี้ ปัจจุบันได้มีการนำมูลไลต์มาใช้งานอย่างแพร่หลาย ทั้งในอุตสาหกรรมวัสดุทนไฟ งานด้านอิเล็กทรอนิกส์ วัสดุโครงสร้างที่เกี่ยวข้องกับอุณหภูมิสูงเนื่องจากมีค่าคงที่ไดอิเล็กทริกต่ำ โครงสร้างเตาหลอมไฟฟ้า อุปกรณ์ในเตาเผาโลหะเหนียวนำความถี่ต่ำสำหรับในอุตสาหกรรมแก้ว ฐานรองในตัวจัดเก็บหลายชั้น รูปที่ 2.15 แสดงตัวอย่างการประยุกต์ใช้งานของมูลไลต์

ตารางที่ 2.3 สมบัติทั่วไปของมุลไลต์<sup>[22]</sup>

สมบัติ	ค่า
ความหนาแน่น (g/cm <sup>3</sup> )	3.16-3.22
ความแข็งแรง (MPa)	
ที่อุณหภูมิห้อง	150-500
ที่อุณหภูมิ 1200°C	260±15
ที่อุณหภูมิ 1300°C	200±20
ที่อุณหภูมิ 1400°C	120±25
ความเหนียว (MPa·m <sup>1/2</sup> )	1.5-3
มอดูลัสของยัง (GPa)	140-250
สัมประสิทธิ์การขยายตัวทางความร้อน (x10 <sup>-6</sup> /°C)	3.1-4.1
การนำความร้อน (Wm <sup>-1</sup> K <sup>-1</sup> )	
ที่อุณหภูมิ 100°C	6.07
ที่อุณหภูมิ 600°C	4.31
ที่อุณหภูมิ 1000°C	3.98
ที่อุณหภูมิ 1400°C	3.89

ตารางที่ 2.4 สมบัติทางกล และทางความร้อนของมุลไลต์และเซรามิกชนิดอื่นๆ<sup>[38]</sup>

สารประกอบ	Cordierite	Spinel	Alumina	Zirconia	Mullite
สูตรเคมี	2MgO·2Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> ·5SiO <sub>2</sub>	MgO·Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	ZrO <sub>2</sub>	3Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> ·2SiO <sub>2</sub>
จุดหลอมเหลว (°C)	1465	2135	2050	2600	1830
ความหนาแน่น (g/cm <sup>3</sup> )	2.20	3.56	3.96	5.60	3.20
การขยายตัวทางความร้อน (x10 <sup>-6</sup> /°C)	0	9	8	10	4.5
ความแข็งแรง (MPa)	120	180	500	200	200
ความเหนียว (MPa·m <sup>1/2</sup> )	1.5	-	4.5	2.4	2.5



รูปที่ 2.15 การประยุกต์ใช้งานมุลไลต์ (a) เกลียวข้อต่อทนความร้อนและสารเคมี (b) แผ่นกันความร้อนในระบบการเผาไหม้เครื่องยนต์ของเครื่องบิน (c) สายพานลำเลียงในเตาเผา (d) ชิ้นส่วนยานพาหนะ<sup>[38]</sup>

## 2.3 วัสดุเชิงประกอบคอร์เดียไรต์-มุลไลต์

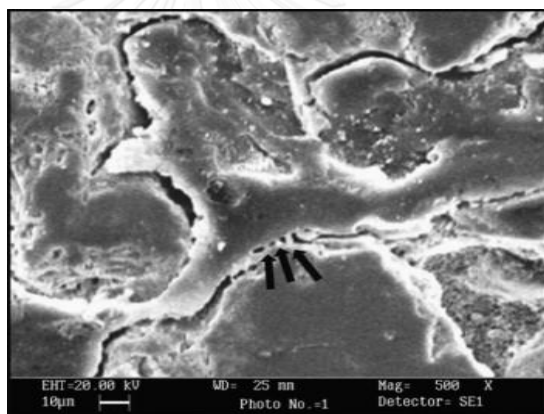
### 2.3.1 การสังเคราะห์

ปัจจุบันมีงานวิจัยมากมายได้ทำการสังเคราะห์วัสดุเชิงประกอบคอร์เดียไรต์-มุลไลต์ จากระบบ  $MgO-Al_2O_3-SiO_2$  โดยใช้ส่วนผสม และอุณหภูมิการสังเคราะห์ที่แตกต่างกัน ส่งผลให้เกิดสารประกอบระหว่างคอร์เดียไรต์-มุลไลต์ที่แตกต่างกัน

Kiattisakophon และคณะ<sup>[39]</sup> ศึกษาการเตรียมวัสดุเชิงประกอบคอร์เดียไรต์-มุลไลต์ สำหรับนำไปประยุกต์ใช้งานเป็นวัสดุที่ทนต่อการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิอย่างฉับพลัน ใช้ผงคอร์เดียไรต์และผงมุลไลต์ทางการค้าเป็นวัตถุดิบ ปรับเปลี่ยนส่วนผสมระหว่างคอร์เดียไรต์ต่อมุลไลต์ ในอัตราส่วน 0:100 10:90 20:80 30:70 40:60 50:50 60:40 70:30 80:20 90:10 100:0 % โดยน้ำหนัก บดผสมด้วยวิธีบดเปียก และใช้สารเชื่อมประสานชนิดโพลีไวนิลแอลกอฮอล์ 0.6 % โดยน้ำหนัก นำสารที่เตรียมได้มาขึ้นรูปด้วยวิธีอัดทิศทางเดียวใช้แรงอัด 1500 กิโลกรัมต่อตารางเซนติเมตร และเผาผนึกที่อุณหภูมิ 1250°C ถึง 1400°C ภายหลังการสอบความสามารถในการทนต่อการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิอย่างฉับพลันของชิ้นงานตามมาตรฐาน ASTM C1171-91 พบว่าส่วนผสมคอร์เดียไรต์ต่อมุลไลต์ที่อัตราส่วน 70:30 % โดยน้ำหนัก เผาผนึกที่อุณหภูมิ 1400°C แสดงสมบัติทางกลและทางความร้อนดีที่สุด มีสมบัติความหนาแน่น 2.58 กรัมต่อลูกบาศก์เซนติเมตร รูพรุน 1 เปอร์เซ็นต์ สัมประสิทธิ์การ

ขยายตัวทางความร้อน  $2.98 \times 10^{-6} / ^\circ\text{C}$  ทนต่อการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิอย่างฉับพลันได้ 9 รอบ โครงสร้างจุลภาคประกอบด้วยผลึกมุลไลต์จัดเรียงตัวเป็นโครงข่ายร่างแห โดยมีผลึกคอร์เดียไรต์กระจายแทรกตัวระหว่างผลึกมุลไลต์

Hayati และคณะ<sup>[40]</sup> ศึกษาความสามารถในการทนต่อการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิอย่างฉับพลันของวัสดุเชิงประกอบคอร์เดียไรต์-มุลไลต์ที่วัดคุณสมบัติประกอบด้วยมุลไลต์ 35 %โดยน้ำหนัก คอร์เดียไรต์ 39 %โดยน้ำหนัก และแอนดาลูไซต์ 26 %โดยน้ำหนัก พบว่าค่ามอดูลัสของยังของชิ้นงานเพิ่มขึ้นจาก 10 เป็น 70 GPa และเปอร์เซ็นต์รูพรุนลดลงจาก 20 เป็น 8 เปอร์เซ็นต์ เมื่ออุณหภูมิการเผาผนึกสูงขึ้นจาก 1300 เป็น 1400 $^{\circ}\text{C}$  คาดว่าสาเหตุมาจากเปลี่ยนเฟสของแอนดาลูไซต์เป็นมุลไลต์และซิลิกา โดยซิลิกาที่เกิดขึ้นจะเข้าไปเติมในช่องว่างของโครงข่ายร่างแหของมุลไลต์ นอกจากนี้ยังพบว่าความสามารถทนการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิอย่างฉับพลันขึ้นอยู่กับปริมาณสะพานของไหล (viscous bridges) ซึ่งทำหน้าที่ยับยั้งการขยายตัวของรอยแตกที่เกิดจากความร้อนสะสมในชิ้นงาน แสดงดังรูปที่ 2.16



รูปที่ 2.16 สะพานของไหล (viscous bridges) พบในโครงสร้างของวัสดุเชิงประกอบคอร์เดียไรต์-มุลไลต์

Wu และคณะ<sup>[36]</sup> ได้รายงานการสังเคราะห์วัสดุเชิงประกอบคอร์เดียไรต์-มุลไลต์จากส่วนผสมของแอนดาลูไซต์ 70 %โดยน้ำหนัก ทัลคัม 13 %โดยน้ำหนัก ดิน 13 %โดยน้ำหนัก และอะลูมินา 4 %โดยน้ำหนัก อัดขึ้นรูปด้วยวิธีอัดกึ่งแห้ง เผาผนึกที่อุณหภูมิ 1400 $^{\circ}\text{C}$  ชิ้นงานที่ได้มีรูพรุน 22.95 เปอร์เซ็นต์ การดูดซึมน้ำ 10.71 เปอร์เซ็นต์ ความหนาแน่น 2.14 กรัมต่อลูกบาศก์เซนติเมตร ความแข็งแรง 92.74 MPa และสัมประสิทธิ์การขยายตัวทางความร้อน  $4.11 \times 10^{-6} / ^\circ\text{C}$  สามารถประยุกต์ใช้เป็นอุปกรณ์เก็บความร้อนจากแสงอาทิตย์ มีความแข็งแรงที่อุณหภูมิการใช้งานสูงกว่า 1100 $^{\circ}\text{C}$  ต้านทานต่อการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิอย่างฉับพลันมากกว่า 30 รอบ จากการตรวจสอบโครงสร้างจุลภาคพบผลึกคอร์เดียไรต์กระจายแทรกในโครงข่ายร่างแหของผลึกมุลไลต์

Albhillil และคณะ<sup>[41]</sup> สังเคราะห์วัสดุเชิงประกอบคอร์เดียไรต์-มุลไลต์ จากแร่ธรรมชาติ ได้แก่ ดิน คิวตซ์ และโดโลไมต์ นำมาผสมในอัตราส่วนตามปริมาณสารสัมพันธ์เพื่อให้เกิดเฟสคอร์เดียไรต์ต่อมุลไลต์ 100:0 80:20 60:40 20:80 0:100 %โดยน้ำหนัก บดผสมให้เนื้อสารมีความสม่ำเสมอด้วยวิธีบดเปียก อัดขึ้นรูปเป็นชิ้นงานขนาดเส้นผ่านศูนย์กลาง 25 เซนติเมตร เผาผนึกที่อุณหภูมิ 1250 ถึง 1500 °C เป็นเวลา 1 ชั่วโมง ทดสอบความสามารถในการทนต่อการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิอย่างฉับพลันของชิ้นงานโดยให้ความร้อนแก่ชิ้นงานที่อุณหภูมิ 1100°C เป็นเวลา 1 ชั่วโมง จากนั้นนำชิ้นงานออกจากเตาและหย่อนลงน้ำที่อุณหภูมิ 2°C โดยทันที ผลการทดสอบพบว่าที่อุณหภูมิการสังเคราะห์ต่างกันจะส่งผลให้เกิดเฟสแตกต่างกัน กล่าวคือที่ส่วนผสมคอร์เดียไรต์ต่อมุลไลต์ 60:40 %โดยน้ำหนัก เผาที่อุณหภูมิ 1350°C จะพบเพียงเฟสคอร์เดียไรต์และมุลไลต์ ไม่พบเฟสอื่น เมื่อทดสอบการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิอย่างฉับพลันพบว่าชิ้นงานสามารถทนการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิอย่างฉับพลันได้ 35 รอบโดยที่ชิ้นงานไม่แตกร้าวเกือบทุกส่วนผสม (100:0 80:20 60:40 20:80 % โดยน้ำหนัก ยกเว้นสูตรที่มีการผสมกันระหว่างคอร์เดียไรต์ต่อมุลไลต์ 0:100 %โดยน้ำหนัก)

Khattab และคณะ<sup>[42]</sup> ทำการศึกษาวัสดุเชิงประกอบคอร์เดียไรต์-มุลไลต์ ที่มีโครงสร้างระดับนาโน-แมคโครเมตร โดยใช้วัตถุดิบ ซิลิกาฟูม ดินดำแคลไซต์ อะลูมินาแคลไซต์ และแมกนีเซียมออกไซด์ นำวัตถุดิบมาผสมในสัดส่วนต่างๆ ตามปริมาณสารสัมพันธ์ระหว่างคอร์เดียไรต์และมุลไลต์ โดยศึกษาสัดส่วนคอร์เดียไรต์ช่วง 50 60 70 80 90 และ 100 %โดยน้ำหนัก บดเปียกเป็นเวลา 2 ชั่วโมง อัดขึ้นรูปชิ้นงานที่ความดัน 100 MPa เผาผนึกที่อุณหภูมิ 1350 1400 และ 1450°C พบว่าสูตรส่วนผสมที่เตรียมมาจากวัตถุดิบเริ่มต้นที่เป็นดิน 53.17 %โดยน้ำหนัก แมกนีเซียมออกไซด์ 9.57 %โดยน้ำหนัก ซิลิกา 16.7 %โดยน้ำหนัก และอะลูมินา 21.55 %โดยน้ำหนัก เผาผนึกที่อุณหภูมิ 1400°C ชิ้นงานหลังเผาพบเฟสคอร์เดียไรต์ 70 และมุลไลต์ 30 %โดยน้ำหนัก ได้วัสดุเชิงประกอบคอร์เดียไรต์-มุลไลต์ที่มีสมบัติทางกลที่ดี ความหนาแน่น 2.10 กรัมต่อลูกบาศก์เซนติเมตร ความแข็งแรง 489 MPa รูพรุน 11.49 เปอร์เซ็นต์ เมื่อตรวจสอบโครงสร้างจุลภาคของชิ้นงานพบผลึกคอร์เดียไรต์และมุลไลต์กระจายตัวอย่างสม่ำเสมอ

Ozel และคณะ<sup>[43]</sup> เปรียบเทียบสมบัติของชิ้นงานคอร์เดียไรต์-มุลไลต์ที่เตรียมจากกระบวนการขึ้นรูป 2 กระบวนการคือการขึ้นรูปแบบแผ่นบาง (tape casting) กับการอัดขึ้นรูป (pressing) พบว่าค่าความหนาแน่นของวัสดุเชิงประกอบคอร์เดียไรต์- มุลไลต์ที่เตรียมได้จาก ดิน อะลูมินา และทัลคัม เผาผนึกอุณหภูมิ 1300°C ของชิ้นงานที่เตรียมได้จากกระบวนการขึ้นรูปแบบบางมีค่า 2.0 กรัมต่อลูกบาศก์เซนติเมตร ในขณะที่กระบวนการขึ้นรูปแบบอัดมีค่า 2.45 กรัมต่อลูกบาศก์เซนติเมตร นอกจากนี้ค่าความหนาแน่น ความแข็งแรงดัดและค่ามอดูลัสของยังของชิ้นงานขึ้นอยู่กับปริมาณมุลไลต์ที่เติมในระบบ ที่อัตราส่วนโดยน้ำหนักของมุลไลต์เป็น 30 ชิ้นงานมีความต้านแรงดัดและค่ามอดูลัสของยังสูงสุด

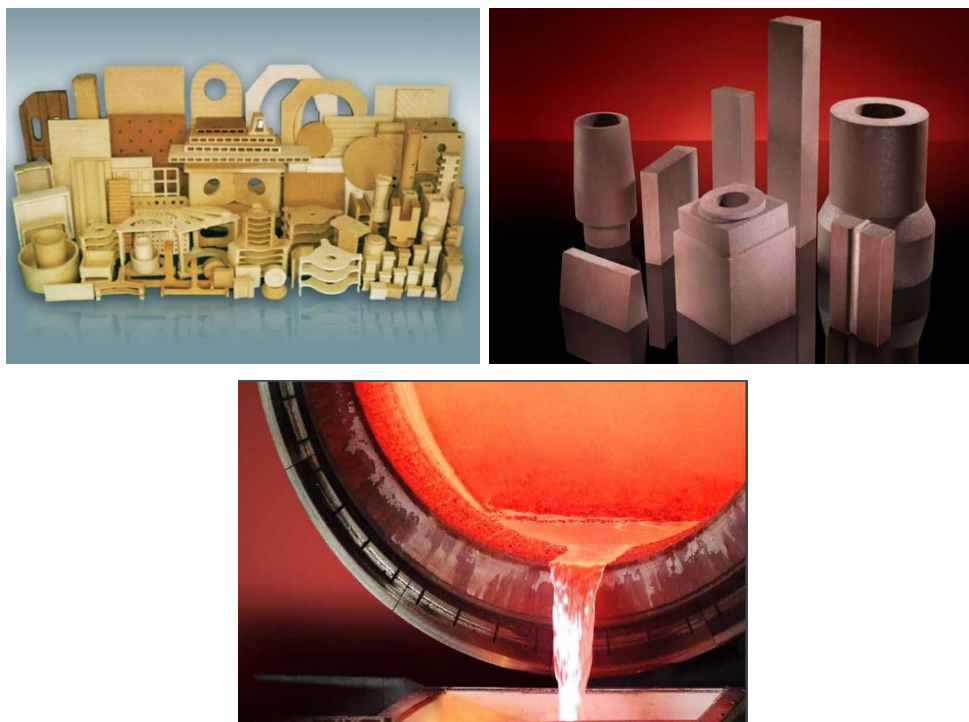
### 2.3.2 สมบัติของวัสดุเชิงประกอบคอร์เดียไรต์-มุลไลต์และการประยุกต์ใช้งาน

วัสดุเชิงประกอบคอร์เดียไรต์-มุลไลต์ เป็นวัสดุเชิงประกอบที่มีสมบัติเด่นด้านการขยายตัว เนื่องจากความร้อนต่ำอยู่ในช่วง  $1-2 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$  มีสมบัติความทนทานที่อุณหภูมิสูงของมุลไลต์และการขยายตัวเนื่องจากความร้อนต่ำของคอร์เดียไรต์ ทำให้ได้วัสดุเชิงประกอบที่มีความทนทานต่อการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิฉับพลัน ความแข็งแรงที่อุณหภูมิสูงโดยไม่เสียสภาพ ทนทานต่อสารเคมี รับแรงได้ดีที่อุณหภูมิการใช้งานสูงกว่า  $1000^{\circ}\text{C}$  ตารางที่ 2.5 แสดงสมบัติของวัสดุเชิงประกอบคอร์เดียไรต์-มุลไลต์

ตารางที่ 2.5 สมบัติทั่วไปของวัสดุเชิงประกอบคอร์เดียไรต์-มุลไลต์<sup>[44]</sup>

สมบัติ		ค่า
องค์ประกอบทางเคมี	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%โดยน้ำหนัก)	35-65
	SiO <sub>2</sub> (%โดยน้ำหนัก)	32-55
	MgO (%โดยน้ำหนัก)	5-8
ความหนาแน่นรวม (g/cm <sup>3</sup> )		≥ 1.75
รูพรุน (%)		≤ 26
ความทนไฟภายใต้แรงกดที่ 0.2 MPa (°C)		≥ 1400
สัมประสิทธิ์การขยายตัวทางความร้อน 20-1200°C ( $\times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ )		≤ 3.5
การใช้งานที่อุณหภูมิสูง (°C)		≤ 1300
การต้านทานต่อการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิอย่างฉับพลัน		ดีมาก

เนื่องจากวัสดุเชิงประกอบคอร์เดียไรต์-มุลไลต์มีสมบัติโดดเด่น จึงมีการนำไปประยุกต์ใช้งานหลากหลายด้าน เช่น รางส่งน้ำโลหะอลูมิเนียม เบ้าหลอมโลหะ ตัวกรองน้ำโลหะ วัสดุฉนวนกันความร้อน โดยเฉพาะอย่างยิ่งการประยุกต์การใช้งานเป็นอุปกรณ์ในเตาเผา รถเตา แผ่นรองเตา ขาตั้ง ซึ่งเรียกรวมกันว่า kiln furniture ดังรูปที่ 2.17 สมบัติของ kiln furniture ที่ดี ต้องทนอุณหภูมิสูงโดยไม่เปลี่ยนรูปร่าง สามารถรับน้ำหนักได้ดีแม้เป็นการรับน้ำหนักที่อุณหภูมิสูง (refractoriness under load) สามารถทนการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิโดยเฉียบพลันได้ดี มีค่าการนำความร้อนต่ำ เนื้อวัสดุไม่ทำปฏิกิริยากับออกซิเจนเกิดแผ่นฟิล์มซิลิกาเคลือบที่ผิวของชิ้นงาน



รูปที่ 2.17 การประยุกต์ใช้งานวัสดุเซรามิกประกอบคอร์เดียไรต์-มุลไลต์<sup>[45,46]</sup>

## 2.4 การขึ้นรูปชิ้นงานเซรามิก

ในการผลิตวัสดุเซรามิกให้มีคุณลักษณะและสมบัติตามที่ต้องการ ต้องอาศัยวัตถุดิบที่มีคุณภาพและกระบวนการผลิต รวมถึงกระบวนการขึ้นรูปที่ได้มาตรฐาน สามารถควบคุมสมบัติของผลิตภัณฑ์ที่ผลิตได้ในแต่ละขั้นตอนได้เป็นอย่างดี กระบวนการขึ้นรูปที่มีประสิทธิภาพจะส่งผลให้ชิ้นงานดิบที่ได้มีความหนาแน่นสูง มีความเป็นเนื้อเดียวกัน และทำให้ผลิตภัณฑ์ที่ได้มีความหนาแน่นสูง ช่วยลดอุณหภูมิที่ใช้ในการเผาผนึกให้ต่ำลง

การขึ้นรูปเซรามิกสำหรับเป็นผลิตภัณฑ์ใช้งานเป็นวัสดุทนไฟนั้นทำได้หลายวิธี ได้แก่

1. การเตรียมแบบเปียกและกำจัดน้ำบางส่วนโดยใช้ filter press สำหรับการขึ้นรูปแบบรีด
2. การเตรียมแบบแห้ง ใช้สำหรับการขึ้นรูปแบบอัด (pressing) เป็นกระบวนการที่ได้รับความนิยมในอุตสาหกรรมมากที่สุด
3. การเตรียมแบบเปียกและทำให้เป็นแกรนูล โดยใช้วิธีการพ่นฝอยอบแห้ง สำหรับการขึ้นรูปแบบอัด

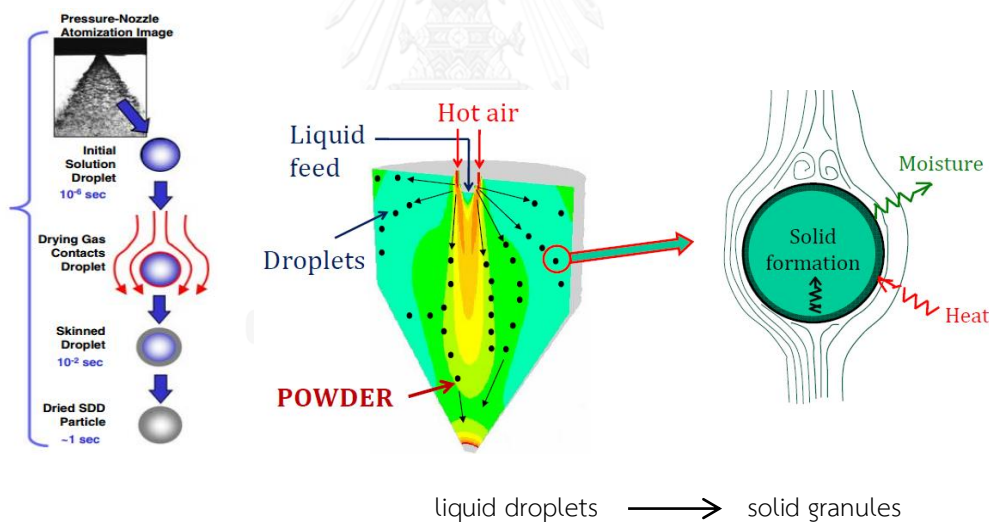
การเตรียมแบบแห้งสำหรับการขึ้นรูปแบบอัด เป็นกระบวนการที่ได้รับความนิยมในอุตสาหกรรมมากที่สุด อย่างไรก็ตาม ผลิตภัณฑ์ที่ได้จากการขึ้นรูปแบบอัด มักมีความหนาแน่นต่ำ สาเหตุหนึ่งที่ทำให้การพัฒนาความหนาแน่นของชิ้นงานระหว่างการเผาเป็นไปได้ลำบากเนื่องมาจากขนาดและรูปร่างของอนุภาคช่วงก่อนนำมาขึ้นรูปไม่ได้ถูกควบคุมส่งผลให้ขนาดรูปร่างและการกระจายของรูพรุนใน

ชั้นงานดิบไม่สม่ำเสมอ การที่เราสามารถปรับขนาด รูปร่างของผงอนุภาคให้อยู่ในรูปแกรนูลที่โดยใช้วิธีการพ่นแห้งควบคู่ไปด้วย การปรับสภาพผงให้อยู่ในรูปแกรนูลที่มีลักษณะกลม ต้น ไหลตัวที่ดีก่อนทำการอัดนั้นจะทำให้การอัดมีประสิทธิภาพเพิ่มขึ้น

## 2.5 การพ่นฝอยอบแห้ง

### 2.5.1 หลักการเตรียมแกรนูลด้วยวิธีพ่นฝอยอบแห้ง

กระบวนการผลิตแกรนูล (granulation) ด้วยวิธีการพ่นฝอยอบแห้ง (spray drying) เป็นเทคนิคที่ใช้กันอย่างแพร่หลายในอุตสาหกรรมที่เกี่ยวข้องกับการอัดผงอนุภาค โดยเฉพาะอุตสาหกรรมการผลิตยาเม็ดและเซรามิกที่ขึ้นรูปด้วยวิธีอัดแห้ง ขั้นตอนเริ่มจากการพ่นของผสมเหลวหรือสารแขวนลอยผ่านหัวพ่นเข้าสู่ห้องร้อนที่มีการควบคุมบรรยากาศและการไหลเวียนอากาศที่เหมาะสมของผสมเหลวหรือสารแขวนลอยดังกล่าวจะมีสภาพเป็นหยดขนาดเล็ก (droplet) เมื่อได้รับความร้อนจะเกิดการระเหยของของเหลวหรือตัวทำละลายอย่างรวดเร็วและเปลี่ยนสภาพจากหยดของเหลวมาเป็นแกรนูลที่มีลักษณะกลม ต้น มีขนาดสม่ำเสมอและมีการไหลตัวที่ดี ดังรูปที่ 2.18 แสดงการเปลี่ยนจากสเลอรีเป็นแกรนูลโดยเทคนิคพ่นฝอยอบแห้ง

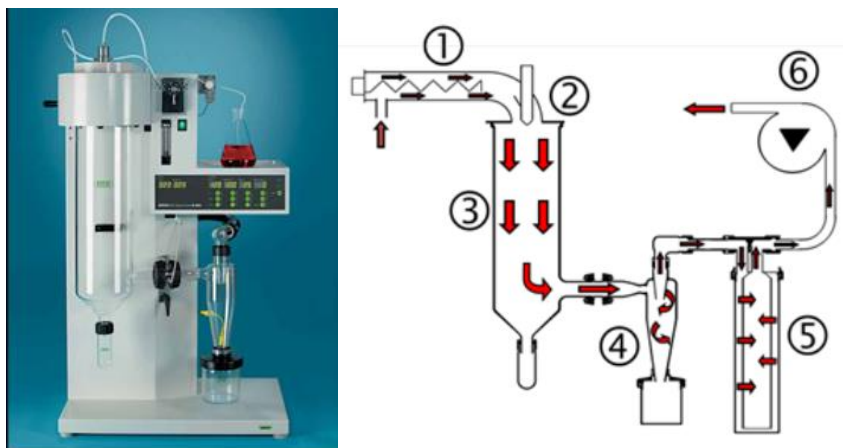


รูปที่ 2.18 แผนภาพการเปลี่ยนจากสเลอรีเป็นแกรนูลโดยเทคนิคพ่นฝอยอบแห้ง<sup>[47,48]</sup>



## 2.5.2 ขั้นตอนการพ่นฝอยอบแห้ง

งานวิจัยนี้ใช้เครื่องพ่นฝอยอบแห้ง (spray dryer) ที่มีในภาควิชาวัสดุศาสตร์ (Mini Spray Dryer B-290, Buchi, Switzerland) รูปที่ 2.19 แสดงส่วนประกอบของเครื่องพ่นฝอยอบแห้ง



รูปที่ 2.19 เครื่อง spray dryer รุ่น Mini Spray Dryer B-290 จากบริษัท Buchi

เครื่องพ่นฝอยอบแห้งประกอบด้วยการทำงานหลายส่วนแต่ละส่วน มีผลต่อลักษณะของแกรนูลที่ได้ ดังนี้

1. heating function คือส่วนที่ให้ความร้อนกับอากาศเข้า เครื่องที่มีในภาควิชาวัสดุศาสตร์สามารถให้ความร้อนได้สูงสุดที่อุณหภูมิ  $220^{\circ}\text{C}$
2. droplet function คือส่วนที่ทำให้สเลอริกระจายตัวเป็นละอองฝอยโดยใช้หัวพ่น (nozzle) เพื่อเพิ่มพื้นที่ผิวสัมผัสกับความร้อน ควบคุมอัตราการไหลไปยังห้องอบแห้ง กำหนดขนาดอนุภาค และลักษณะเฉพาะต่างๆ ของแกรนูล ลักษณะของหัวพ่นที่ใช้ในขั้นตอนนี้มี 3 ชนิด ดังนี้

### 2.1 โรตารีอะตอมไมเซอร์ (rotary atomizers)

ของเหลวที่ป้อนเข้าเครื่องพ่นจะไหลลงบนจานหมุนบริเวณใกล้กับจุดศูนย์กลาง จานหมุนจะเหวี่ยงด้วยความเร็วรอบสูงประมาณ 5,000-10,000 รอบต่อนาที ของเหลวหรือสารแขวนลอยจะถูกเหวี่ยงออกด้านข้างกระจายเป็นละอองมีขนาดโดยเฉลี่ย 20-150 ไมโครเมตร ขนาดของละอองฝอยแปรผันโดยตรงกับอัตราการไหลของของเหลวที่ป้อนเข้าเครื่องและความหนืดของของเหลว และจะแปรผกผันกับอัตราการหมุนและเส้นผ่านศูนย์กลางของจานหมุน

### 2.2 อะตอมไมเซอร์แบบหัวฉีดภายใต้ความดันสูง (pressure nozzles)

ของเหลวจะไหลผ่านหัวพ่นที่มีขนาดอยู่ในช่วง 0.5-3 มิลลิเมตร ภายใต้ความดันสูง ทำให้ของเหลวที่ออกมาจากหัวพ่นกระจายเป็นละอองฝอยโดยไม่ใช้อากาศ อนุภาคที่ได้มีขนาดเฉลี่ย 120-300 ไมโครเมตร โดยขนาดอนุภาคแปรผันโดยตรงกับอัตราการไหลของของเหลวหรือสารแขวนลอยและความหนืด และแปรผกผันกับความดัน

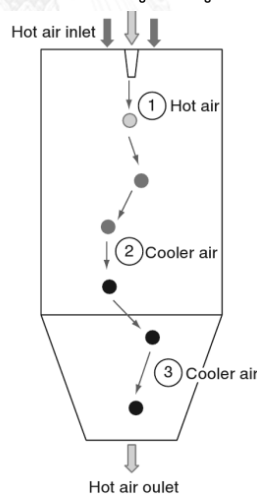
### 2.3 อะตอมไมเซอร์แบบหัวฉีดสวนทาง (two-fluid nozzle atomizer)

ของเหลวและอากาศจะไหลผ่านหัวพ่น ซึ่งจะทำให้สารแขวนลอยกระจายเป็นละอองฝอย เนื่องจากการไหลผ่านของอากาศด้วยความเร็วสูงภายในหัวพ่น การปรับอัตราการไหลของอากาศมีส่วนในการควบคุมการกระจายเป็นละอองของของเหลว วิธีนี้นิยมใช้กับของเหลวหรือสารแขวนลอยที่มีความหนืดสูง

3. drying chamber เป็นห้องอบแห้งที่ทำให้เกิดการสัมผัสแลกเปลี่ยนความร้อนระหว่างละอองฝอยของเหลวกับอากาศร้อน เกิดการระเหยบริเวณผิวของหยดของเหลวอย่างรวดเร็ว ได้เป็นชั้นฟิล์มที่อิมัลชันผิว อากาศแห้งจะแพร่สู่ผิวหน้าของละอองฝอย ซึ่งอยู่ในสถานะอิมัลชัน ช่วงนี้จึงเป็นช่วงที่อัตราการระเหยคงที่ จนกระทั่งผิวของละอองฝอยแห้งเป็นชั้นเปลือกแข็งและหนาขึ้นตามเวลา จากนั้นอัตราการระเหยจะลดลง การสัมผัสระหว่างอากาศร้อนและละอองฝอยในขั้นตอนนี้สามารถเกิดได้หลายทิศทาง โดยสามารถแบ่งรูปแบบตำแหน่งของหัวพ่นกับอากาศร้อนเข้าได้ดังนี้

#### 3.1 การไหลผ่านทางเดียวกัน (co-current flow)

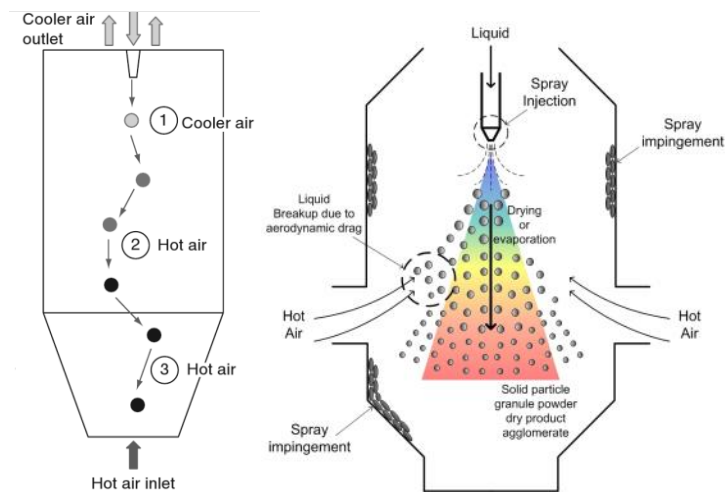
ทิศทางการพ่นฝอยของของเหลวเป็นทิศทางเดียวกันกับการไหลเวียนของอากาศร้อน ละอองฝอยจะสัมผัสกับอากาศร้อนโดยตรงในขณะที่มีความชื้นสูง ดังรูปที่ 2.20



รูปที่ 2.20 ทิศทางการสัมผัสอากาศร้อนของละอองฝอยแบบไหลผ่านทางเดียวกัน<sup>[49]</sup>

#### 3.2 การไหลผ่านสวนทางกัน (counter-current flow)

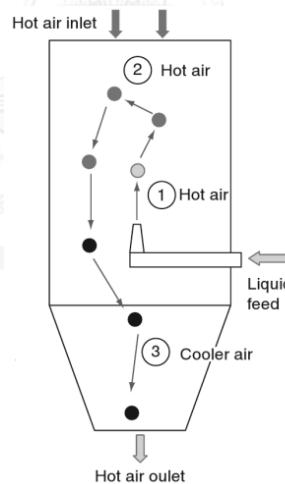
ของเหลวจะถูกพ่นเป็นละอองฝอยในทิศทางตรงกันข้ามกับอากาศร้อน โดยอากาศร้อนมีทิศทางไหลขึ้นจากด้านล่างของห้องอบแห้ง ในขณะที่ละอองฝอยจะตกลงมาจากหัวพ่นด้านบนห้องอบแห้งลงมาสัมผัสกับอากาศร้อน ดังรูปที่ 2.21



รูปที่ 2.21 ทิศทางการสัมผัสอากาศร้อนของละอองฝอยแบบไหลผ่านสวนทางกัน<sup>[47,49]</sup>

### 3.3 การไหลผ่านแบบผสม (mixed flow)

ของเหลวจะถูกพ่นเป็นละอองฝอยขึ้นไปในบริเวณที่มีอุณหภูมิสูงเป็นระยะเวลาสั้นๆ เพื่อกำจัดความชื้นออก จากนั้นละอองฝอยจะตกลงมาในบริเวณที่มีอุณหภูมิต่ำกว่าตามแรงโน้มถ่วงส่งผลให้ละอองฝอยอยู่ในห้องอบนานกว่าแบบอื่น จึงเพิ่มประสิทธิภาพการอบแห้งและเหมาะสมกับสารที่ไม่ไวต่อความร้อน ดังรูป 2.22



รูปที่ 2.22 ทิศทางการสัมผัสอากาศร้อนของละอองฝอยแบบไหลผ่านแบบผสม<sup>[49]</sup>

4. particle collection คือส่วนที่ทำการคัดแยกแกรนูลโดยใช้หลักการหมุนวนของอากาศ โดยทั่วไปนิยมใช้ไซโคลน (cyclone) เป็นตัวกักเก็บ แกรนูลจะตกลงสู่ด้านล่างของไซโคลน ระบบการทำงานส่วนนี้แบ่งออกเป็น 2 รูปแบบ คือ

4.1 ระบบเปิด (open cycle system) ระบบนี้อากาศที่ใช้ในกระบวนการพ่นฝอยอบแห้ง

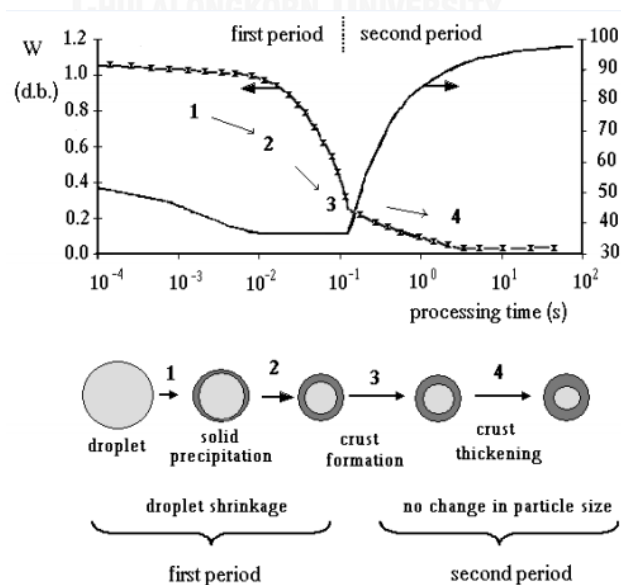
เป็นอากาศจากบรรยากาศภายนอก ซึ่งถูกนำเข้ามาในระบบโดยผ่านตัวกรอง เมื่อกระบวนการฟ่นฝอยอบแห้งเสร็จสิ้น ในอากาศไม่มีผลิตภัณฑ์หลงเหลืออยู่แล้วก็จะถูกปล่อยกลับสู่บรรยากาศ

4.2. ระบบปิด (closed cycle system) ระบบนี้จะใช้ก๊าซ เช่น ไนโตรเจน มาหมุนเวียนอากาศภายในระบบ โดยที่ไม่มีการปล่อยออกสู่สิ่งแวดล้อมหรือเป็นระบบปิด มักใช้กับการทำแห้งสารละลายที่ติดไฟ สารมีพิษและสารที่ไวต่อออกซิเจน

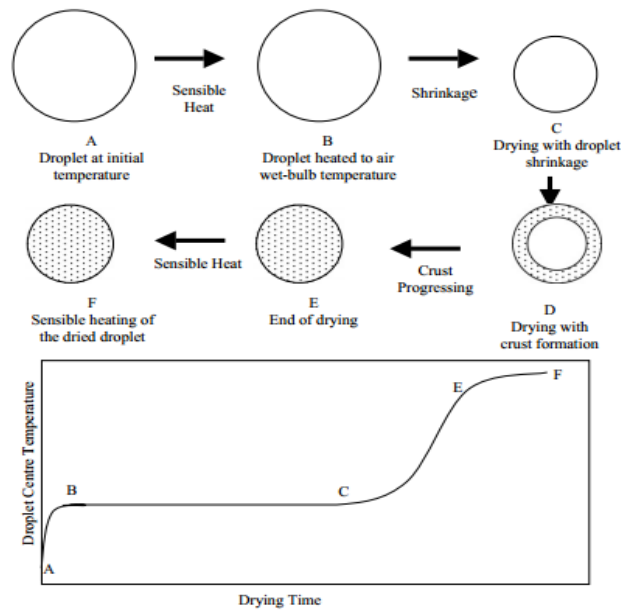
5. outlet filter ส่วนที่กรองแกรนูลที่หลงเหลือจาก particle collection ซึ่งจะผ่านไปยังภาชนะเก็บ อาจเป็นเครื่องขัดถูแบบเปียก (wet scrubber) ถุงกรอง (bag filter) หรือเครื่องตกตะกอนโดยระบบไฟฟ้าสถิต (electrostatic precipitator) ขึ้นกับปริมาณและลักษณะแกรนูล

### 2.5.3 กลไกการระเหยของของหยดของเหลว

เมื่อของผสมเหลวหรือสารแขวนลอยที่มีสภาพเป็นหยดขนาดเล็ก (droplet) เกิดการระเหยที่ผิวอย่างรวดเร็วได้เป็นชั้นฟิล์มที่อิมตัวบนผิว เราสามารถจำแนกกลไกการระเหยของหยดของเหลวในห้องร้อนได้เป็น 2 ระยะ ได้แก่ ระยะแรก : การระเหยบริเวณผิวของหยดของเหลวเกิดขึ้นอย่างรวดเร็วได้เป็นชั้นฟิล์มที่อิมตัวบนผิวของหยดของเหลว ระยะนี้หากความชื้นภายในแกรนูลยังมีเพียงพอต่อการทดแทนการระเหยที่ผิว การระเหยจึงเกิดด้วยอัตราเร็วที่คงที่ จนกระทั่งปริมาณความชื้นลดลงและไม่เพียงพอต่อการทดแทนการระเหยเป็นค่าวิกฤตค่าหนึ่ง จึงเข้าสู่ระยะที่สอง จะเกิดเป็นชั้นเปลือกแข็งที่ผิวแกรนูล อัตราการระเหยในช่วงนี้จะขึ้นกับอัตราการแพร่ของความชื้นผ่านชั้นเปลือกแห้ง โดยอัตราการแพร่จะลดลงอย่างต่อเนื่องเพราะชั้นเปลือกแห้งมีความหนาเพิ่มขึ้นตามเวลา ดังรูปที่ 2.23 และรูปที่ 2.24 แสดงแผนภาพจำลองการแห้งตัวของหยดของเหลวหนึ่งหยด (single droplet) ในระหว่างการฟ่นฝอยอบแห้ง และการเปลี่ยนแปลงทางสัณฐานวิทยา



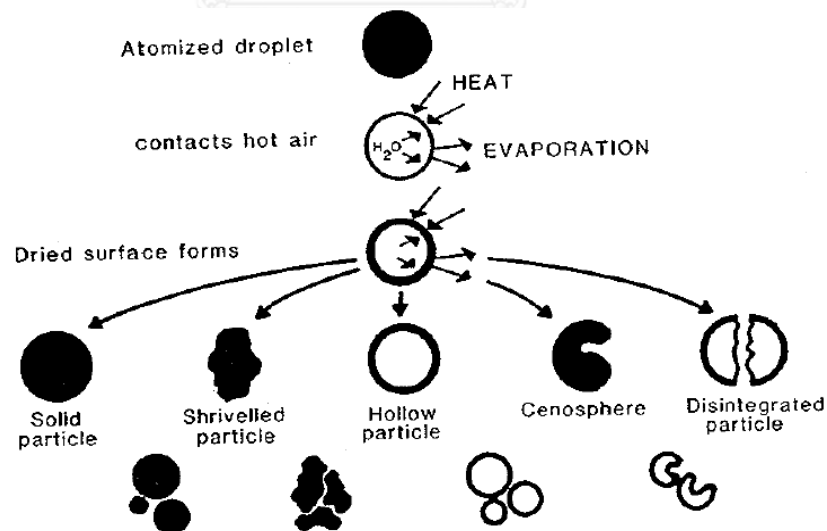
รูปที่ 2.23 ระยะการแห้งตัวของแกรนูลระหว่างการฟ่นฝอยอบแห้ง<sup>[47]</sup>



รูปที่ 2.24 แผนภาพจำลองการแห้งตัวของหยดของเหลวระหว่างการพ่นฝอยอบแห้ง และการเปลี่ยนแปลงทางสัณฐานวิทยา<sup>[50]</sup>

### 2.5.4 ปัจจัยที่มีผลต่อขนาดและลักษณะของแกรนูล

แกรนูลที่ได้จากการพ่นฝอยอบแห้งแต่ละชนิดมีพฤติกรรมที่ไม่เหมือนกัน ได้แก่ แกรนูลมีรูปร่างไม่แน่นอน กลวง ตัน หรือแตกแยกออกจากกัน พิจารณารูปที่ 2.25



รูปที่ 2.25 ภาพจำลองลักษณะของแกรนูลที่ได้จากกระบวนการพ่นแห้ง<sup>[51]</sup>

พฤติกรรมและลักษณะเฉพาะของแกรนูลที่ได้ขึ้นอยู่กับตัวแปรของสภาวะที่ใช้ในการพ่นฝอยอบแห้ง ได้แก่

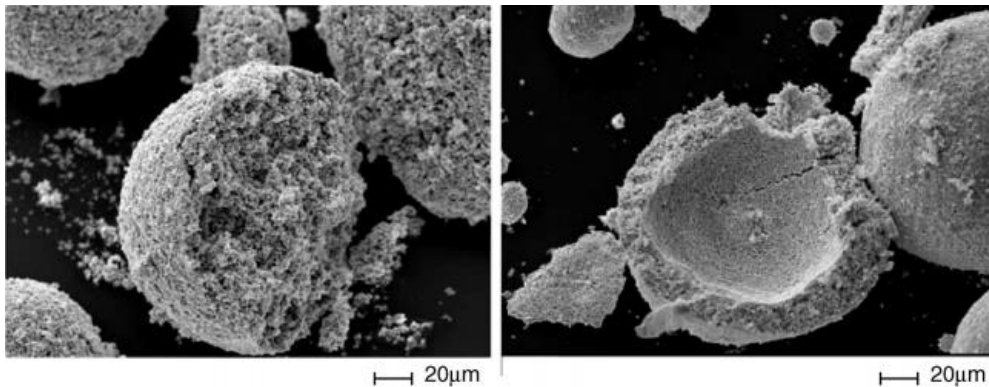
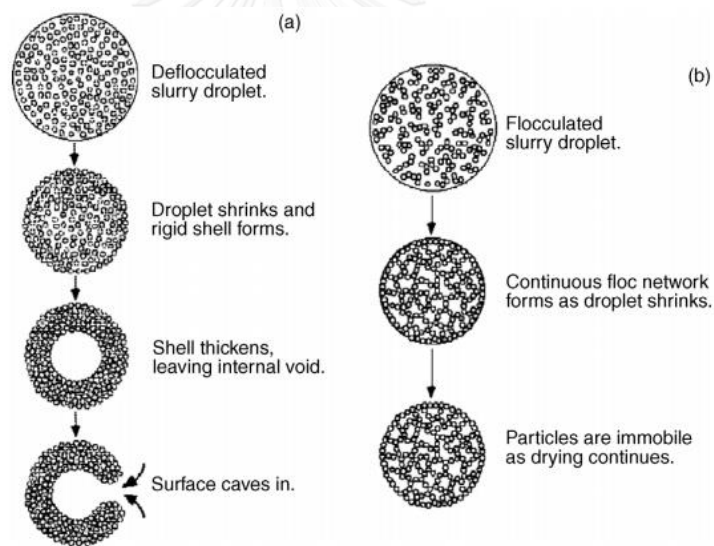
1.1 อัตราการไหลของสเลอรี่ที่ป้อนเข้าเครื่องพ่น: อัตราการป้อนสารหรืออัตราการไหลของสเลอรี่ที่สูง มักทำให้แกรนูลมีขนาดใหญ่ เนื่องจากเวลาที่เม็ดแกรนูลสัมผัสกับอากาศน้อย

1.2 อัตราการไหลของอากาศ: หากอัตราการไหลของอากาศลดลงทำให้เวลาที่ละอองฝอยสัมผัสกับอากาศร้อนในห้องอบแห้งนานขึ้น เป็นผลให้ลดความชื้นได้ดี แกรนูลที่ได้มักมีขนาดเล็ก

1.3 อุณหภูมิอากาศขาเข้า: การเพิ่มอุณหภูมิจะช่วยเพิ่มประสิทธิภาพในการระเหย

1.4 ขนาดหัวพ่น: ขนาดหัวพ่นส่งผลต่อขนาดละอองฝอย

นอกจากนี้ยังขึ้นกับขนาดอนุภาคของวัตถุดิบเริ่มต้น สารเติมแต่ง ได้แก่ ชนิดและปริมาณสารช่วยกระจายตัว ตลอดจนพฤติกรรมการกระจายตัวของสารแขวนลอยหรือสเลอรี่ เป็นต้น ซึ่งตัวแปรต่างๆ เหล่านี้จะส่งผลและมีบทบาทสำคัญต่อลักษณะรูปร่างของแกรนูล รูปที่ 2.26 แสดงภาพจำลองและโครงสร้างของแกรนูลที่มีลักษณะกลมด้านในกลวงและกลมตัน



รูปที่ 2.26 ภาพจำลองและโครงสร้างของแกรนูลที่ได้จากการพ่นฝอยอบแห้งในกรณี (a) แกรนูลตัน (b) แกรนูลกลวง<sup>[52]</sup>

William J. และคณะ<sup>[53]</sup> รายงานว่าแกรนูลที่เตรียมได้จากกระบวนการพ่นฝอยอบแห้งที่ลักษณะรูปร่างทรงกลมแต่กึ่งตรงกลาง อาจเกิดจาก

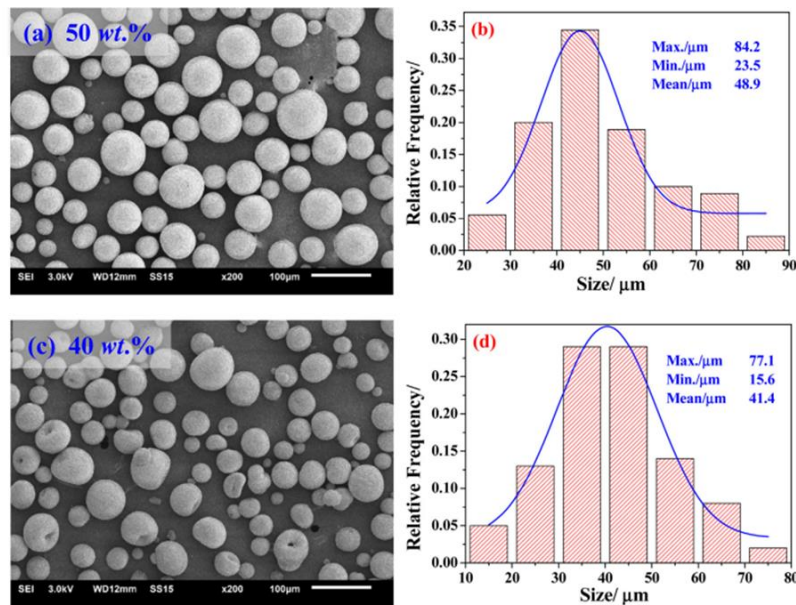
1. แรงดันอากาศภายในของแกรนูล เกิดจากอากาศขยายตัวเกิดเป็นช่องกลวงในแกรนูลเมื่ออุณหภูมิสูงขึ้น
2. ของเหลวหรือความชื้นสัมผัสกับอากาศที่ร้อนภายในห้องอบแห้งแล้วแพร่จากภายนอกเข้าสู่ด้านในของแกรนูล จากนั้นเกิดการระเหยออกไปจากระบบเกิดเป็นช่องว่างขึ้น
3. ส่วนหนึ่งของสารแขวนลอยที่เป็นของแข็งที่ตกค้างภายในหยดของเหลว เมื่อสัมผัสกับอากาศร้อนภายในห้องอบแห้งเกิดการเปลี่ยนแปลงสถานะเป็นของเหลวแล้วระเหยออกจากระบบ
4. ในระบบที่ใช้อากาศอัดป้อนของผสมเหลวหรือสารแขวนลอยผ่านหัวพ่นเข้าไปในห้องอบแห้งอากาศบางส่วนแพร่เข้าไปอยู่ภายในหยด เป็นผลให้แกรนูลที่ได้จากการพ่นฝอยอบแห้งเกิดช่องว่างขึ้น

ปัจจุบันมีงานวิจัยศึกษาพฤติกรรมของแกรนูล ได้แก่

Garcia และคณะ<sup>[54]</sup> เตรียมมุลไลต์แกรนูล และมุลไลต์-เซอร์โคเนียแกรนูล ด้วยวิธีพ่นฝอยอบแห้งและแช่แข็ง (freeze granulation) เพื่อประยุกต์ใช้ในงานพ่นเคลือบโดยอาศัยความร้อน (thermal spray) ใช้ผงมุลไลต์ขนาดอนุภาค 1.3 ไมครอน ซึ่งมีซิลิกาส่วนเกิน (free silica) 1.8 %โดยน้ำหนัก มีสิ่งเจือปนน้อยกว่า 0.2 %โดยน้ำหนัก และผงเซอร์โคเนีย (YSZ) ขนาด 0.3 ไมครอน เตรียมสเลอรี่ที่มีปริมาณสัดส่วนของแข็ง 30 และ 50 %โดยน้ำหนัก ใช้พอลิเอทิลีนไกลคอลเป็นสารช่วยกระจายตัว และพอลิแซ็กคาไรด์ (polysaccharide) เป็นสารเชื่อมประสาน ศึกษาสภาวะที่ใช้ในการพ่นฝอยอบแห้งแบบการไหลผ่านทางเดียวกัน (co-current flow) อุณหภูมิขาเข้า 300°C ถึง 350°C และอุณหภูมิขาออก 100°C ถึง 150°C อัตราการไหลของสเลอรี่ 65 มิลลิลิตรต่อนาที แรงดันลม  $3 \times 10^5$  Pa แกรนูลที่เตรียมได้มีรูปร่างคล้ายโดนัท (donut shape)

Zhang และคณะ<sup>[55]</sup> ศึกษาสภาวะที่ใช้ในการพ่นฝอยอบแห้งที่เหมาะสม โดยกำหนดอุณหภูมิขาเข้า 75°C อุณหภูมิขาออก 60°C อัตราการไหลของสเลอรี่ 30 มิลลิลิตรต่อนาที ปรับเปลี่ยนความเร็วของหัวพ่น 8000 11,000 14,000 รอบต่อนาที เพื่อขึ้นรูปเป็นเซรามิกใส yttrium aluminium garnet (YAG) ผงวัตถุดิบชนิดอะลูมินาและอิตเทรียมออกไซด์ เตรียมเป็นสเลอรี่โดยบดผสมเป็นเวลา 15 ชั่วโมง เติมสารช่วยกระจายตัวชนิด DS005 ปริมาณ 0.25 0.50 0.75 และ 1.0 %โดยน้ำหนัก และสารเชื่อมประสานชนิดโพลีไวนิลนิลบิวทิล (น้ำหนักโมเลกุล 40,000-70,000) ปริมาณ 0.0 1.0 2.0 และ 3.0 %โดยน้ำหนัก พบว่าปริมาณของแข็งสเลอรี่มีอิทธิพลต่อความหนาแน่นและขนาดของแกรนูล เมื่อปริมาณของแข็งเพิ่มขึ้นสเลอรี่จะมีความหนืดสูงขึ้น แกรนูลที่ได้จะมีขนาดใหญ่และมีลักษณะตันแน่น พิจารณารูปที่ 2.27 เปรียบเทียบอิทธิพลของสัดส่วนของแข็งของสเลอรี่ที่ต่อลักษณะของแกรนูล จะเห็นว่าสเลอรี่ที่มีปริมาณสัดส่วนของแข็ง 50 %โดยน้ำหนัก ใช้

ความเร็วของหัวฟัน 8000 รอบต่อนาที แกรนูลที่ได้มีรูปร่างกลมและตัน ขนาดแกรนูลเฉลี่ยประมาณ 48.9 ไมครอน ในขณะที่สเลอรีที่มีปริมาณสัดส่วนของแข็ง 40 %โดยน้ำหนัก แกรนูลที่ได้มีรูปร่างคล้ายโดนนัท สาเหตุเนื่องมาจากการหดตัวของหยดสเลอรีเนื่องมาจากการระเหยในระหว่างการอบแห้งของเหลวส่วนที่ระเหยจะเคลื่อนที่จากภายในสู่ผิวของหยดของเหลว ขณะเดียวกันส่วนที่เป็นของแข็งจะเคลื่อนที่ตาม ในสเลอรีที่มีปริมาณสัดส่วนของแข็ง 40 %โดยน้ำหนัก ผงของแข็งเคลื่อนที่ได้เร็วกว่าและอิสระมากกว่า ส่งเสริมการก่อตัวของชั้นเปลือกแห้งและส่งผลให้แกรนูลกลวง



รูปที่ 2.27 โครงสร้างจุลภาคและการกระจายตัวขนาดแกรนูล (a-b) สเลอรีมีสัดส่วนของแข็ง 50 %โดยน้ำหนัก และ (c-d) สัดส่วนของแข็ง 40 %โดยน้ำหนัก

## 2.6 ความแข็งแรงที่อุณหภูมิสูง

### 2.6.1 สมบัติของวัสดุ

ความแข็งแรงที่อุณหภูมิสูงเป็นสมบัติสำคัญในการใช้งานวัสดุเซรามิก โดยเฉพาะอย่างยิ่ง เมื่อใช้งานเป็นวัสดุทนไฟ วัสดุที่มีความแข็งแรงสามารถใช้งานได้ที่อุณหภูมิสูง จะต้องมียสมบัติดังนี้

#### 2.6.1.1 ความแข็งแรง

ความแข็งแรง คือการวัดความสามารถของวัสดุในการต้านต่อแรงที่มากระทำซึ่งจะทำให้เกิดรอยร้าวเริ่มต้น (crack initiation) และเกิดการแตกหักของวัสดุในที่สุด แรงกระทำอาจเป็นแรงดึง แรงกด หรือแรงเฉือน เป็นต้น โดยทั่วไป วัสดุที่มีความแข็งแรงสูงสามารถรับแรง และทนทานต่อการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิอย่างฉับพลันได้ดี



### 2.6.1.2 ความทนไฟ

ความทนไฟของวัสดุ เป็นความสามารถในการทนทานต่อความร้อนของวัสดุได้โดยไม่เกิดการเปลี่ยนแปลงสมบัติทางกายภาพและทางเคมีอย่างเฉียบพลัน วัสดุที่มีความทนไฟสูงจะสามารถคงประสิทธิภาพการใช้งานได้ที่อุณหภูมิสูงและทนทานต่อการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิอย่างฉับพลันได้เป็นอย่างดี

### 2.6.1.3 การขยายตัวทางความร้อน

โดยปกติ วัสดุเมื่อได้รับความร้อนจะเกิดการขยายตัวและหดตัวเมื่อลดอุณหภูมิ โดยการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิดังกล่าว ส่งผลให้เกิดความเค้นขึ้นในเนื้อวัสดุ สมบัติการขยายตัวทางความร้อนเป็นสมบัติที่ใช้อธิบายการเปลี่ยนแปลงขนาดของชิ้นงานเมื่ออุณหภูมิเพิ่มขึ้นหรือลดลง ดังสมการที่ (2.10)

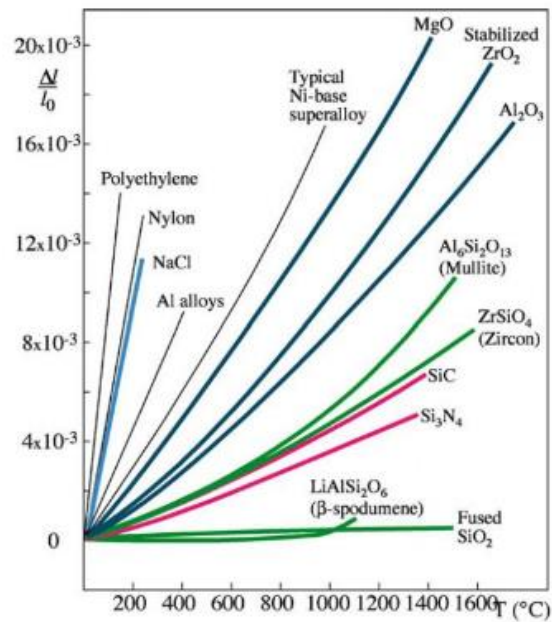
$$\frac{\Delta L}{L_0} = \alpha \Delta T \quad (2.10)$$

$\alpha$  คือ ค่าสัมประสิทธิ์การขยายตัวทางความร้อนของชิ้นงาน

$L_0$  และ  $L$  คือ ความยาวเริ่มต้นและความยาวที่เปลี่ยนไปของชิ้นงานเมื่อเพิ่มอุณหภูมิ

$\Delta T$  คือ อุณหภูมิที่เปลี่ยน

การขยายตัวทางความร้อนของวัสดุขึ้นอยู่กับแรงยึดเกาะ ระหว่างอะตอมที่ต้านการขยายตัว พลังงานความร้อน หากพิจารณาในระดับอะตอมการขยายตัวทางความร้อนเป็นการเพิ่มขึ้นของระยะเฉลี่ยระหว่างอะตอม อะตอมมีการสั่นและใช้พลังงานในการสั่นมากขึ้นเมื่อมีการเพิ่มอุณหภูมิให้กับวัสดุ ส่งผลให้ระยะเฉลี่ยระหว่างอะตอมเพิ่มขึ้นและทำให้วัสดุเกิดการขยายตัว รูปที่ 2.28 แสดงความสัมพันธ์ระหว่างสัมประสิทธิ์การขยายตัวทางความร้อนกับอุณหภูมิ วัสดุที่มีการขยายตัวเนื่องจากความร้อนสูงอาจส่งผลต่อโครงสร้างภายในของวัสดุ เกิดการแตกหักเสียหายได้ ดังนั้นวัสดุที่สามารถต้านทานต่อการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิอย่างฉับพลันได้ดีควรมีค่าสัมประสิทธิ์การขยายตัวทางความร้อนต่ำ



รูปที่ 2.28 ความสัมพันธ์ระหว่างสัมประสิทธิ์การขยายตัวทางความร้อนกับอุณหภูมิของวัสดุชนิดต่างๆ<sup>[56]</sup>

#### 2.6.1.4 การนำความร้อน

การนำความร้อนเป็นปรากฏการณ์ที่ความร้อนเดินทางจากบริเวณที่อุณหภูมิสูงไปยังบริเวณที่อุณหภูมิต่ำภายในวัสดุ เป็นตัวแปรที่แสดงค่าความสามารถของวัสดุในการส่งผ่านความร้อน ดังสมการ (2.11)

$$\frac{dq}{dt} = -kA \frac{dT}{dx} \quad (2.11)$$

$\frac{dq}{dt}$  คือ ปริมาณความร้อนที่ผ่านชิ้นงานต่อเวลา (watts)

$k$  คือ สัมประสิทธิ์การนำความร้อน (w/m.k)

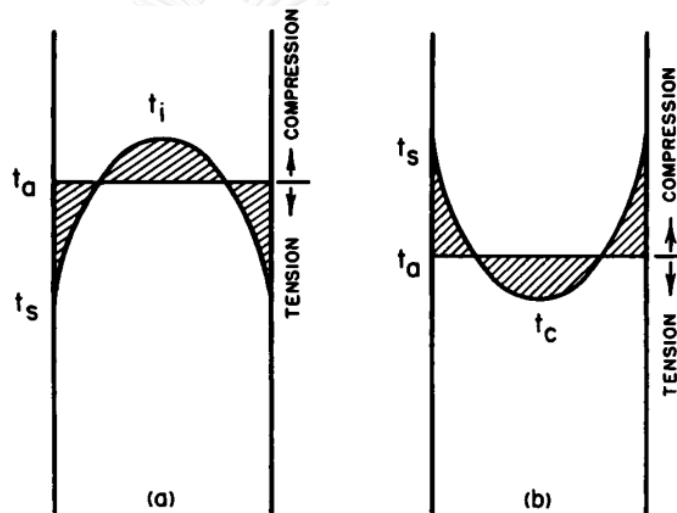
$A$  คือ พื้นที่หน้าตัดของชิ้นงาน

$\frac{dT}{dx}$  คือ ความแตกต่างของอุณหภูมิต่อระยะทาง

การนำความร้อนเป็นสมบัติสำคัญโดยเฉพาะเมื่อวัสดุนั้นมีการใช้งานที่อุณหภูมิสูง วัสดุที่มีการนำความร้อนสูง มีการกระจายส่งผ่านความร้อนได้ดี ทำให้ความแตกต่างอุณหภูมิ ( $\Delta T$ ) ในแต่ละบริเวณของชิ้นงานมีค่าต่ำ ส่งผลให้ความเค้นเนื่องมาจากการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิฉับพลันในชิ้นงานลดต่ำลง นอกจากนี้การนำความร้อนของวัสดุยังขึ้นกับองค์ประกอบทางเคมี อุณหภูมิ และรูพรุน รูพรุนในชิ้นงานมีอิทธิพลสูงต่อการถ่ายเทความร้อนในชิ้นงาน การนำความร้อนจะลดลงอย่างชัดเจนเมื่อรูพรุนภายในวัสดุมีปริมาณเพิ่มขึ้น<sup>[57]</sup>

### 2.6.1.5 การเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิอย่างฉับพลัน

การเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิอย่างฉับพลัน (thermal shock) ของวัสดุ อาจทำให้เกิดความเสียหายในวัสดุได้ โดยความเสียหายจะเกิดเมื่อมีความเค้นสะสมในวัสดุอันเนื่องมาจากความแตกต่างกันของอุณหภูมิในแต่ละส่วนของชิ้นงาน เมื่อเพิ่มอุณหภูมิอย่างรวดเร็ว ผิวของวัสดุจะสัมผัสความร้อนก่อนบริเวณภายใน ทำให้ผิวมีอุณหภูมิสูงกว่า ส่งผลให้การขยายตัวทางความร้อนบริเวณผิวสูงกว่าภายใน เกิดความเค้นแรงอัด (compressive stress) ขึ้นที่ผิวและความเค้นแรงดึง (tensile stress) ขึ้นในเนื้อวัสดุ ในขณะที่หากวัสดุเย็นตัวอย่างรวดเร็ว ทำให้บริเวณผิวเกิดการหดตัวทันทีในขณะที่ภายในเนื้อยังมีอุณหภูมิที่สูงกว่า จึงทำให้เกิดความเค้นแรงดึงที่ผิว และความเค้นแรงอัดภายในเนื้อ แสดงดังรูปที่ 2.29 นอกจากนี้มีรายงานว่าความเค้นที่ผิว (surface stress) และความเค้นกลางชิ้นงาน (center stress) ขึ้นกับรูปร่างและขนาดของชิ้นงานด้วย



รูปที่ 2.29 ค่าความเค้นของวัสดุจากบริเวณผิวสู่ภายในเนื้อวัสดุ (a=กรณีวัสดุมีการเย็นตัวอย่างรวดเร็ว b=วัสดุได้รับความร้อนอย่างรวดเร็ว)<sup>[58]</sup> เมื่อกำหนด  $t_s$  คือ อุณหภูมิเฉลี่ย  $t_c$  คือ อุณหภูมิตรงกลาง  $t_s$  คืออุณหภูมิที่ผิว  $t_i$  คืออุณหภูมิภายใน

ความเค้นที่เกิดกับวัสดุเนื่องจากความร้อน อธิบายได้ตามสมการที่ 2.12

$$\sigma_{th} = \frac{E\alpha\Delta T}{1-\nu} \quad (2.12)$$

โดยที่  $\sigma_{th}$  = ความเค้นจากความร้อน (thermal stress)

$E$  = โมดูลัสของยัง (young's modulus)

$\alpha$  = สัมประสิทธิ์การขยายตัวทางความร้อน

$\Delta T$  = ความแตกต่างของอุณหภูมิ

$\nu$  = อัตราส่วนปัวซอง (passion's ratio)

จากความสัมพันธ์ในสมการที่ 2.12 จะเห็นว่า ความเค้นทางความร้อนของวัสดุเพิ่มขึ้น เมื่อมอดูลัสของยัง สัมประสิทธิ์การขยายตัวเนื่องจากความร้อน และความแตกต่างระหว่างอุณหภูมิเพิ่มขึ้น ทั้งนี้ความแตกต่างของอุณหภูมิลดลงได้โดยการใช้วัสดุที่มีสมบัตินำความร้อนสูง<sup>[56]</sup> Hasselmann<sup>[59]</sup> ได้ศึกษาความสัมพันธ์ระหว่างตัวแปรต่างๆ ที่มีผลต่อพฤติกรรมการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิอย่างฉับพลันโดยอ้างอิงจากสมการที่ 2.12 และความสัมพันธ์อื่นๆ ได้แก่ การถ่ายโอนความร้อน รอยร้าวเริ่มต้นกับการโตของรอยร้าว เป็นต้น และสามารถสรุปเป็นความสัมพันธ์ได้ดังตารางที่ 2.6 โดยใช้สัญลักษณ์  $R$   $R'$   $R''$   $R'''$   $R''''$  และ  $R_{st}$  แสดงค่าความสามารถในการต้านทานความเสียหายในรูปแบบต่างๆ

ตารางที่ 2.6 ตัวแปรที่มีผลต่อความต้านทานต่อการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิฉับพลัน<sup>[56]</sup>

Parameter Designation	Parameter type	Parameter	Physical Interpretation/Heat transfer condition	Typical units ( $^{\circ}\text{C}$ )
$R$	Resistance to fracture initiation	$\frac{\sigma(1-\nu)}{\alpha E}$	Maximum $\Delta T$ allowable for steady heat flow	$^{\circ}\text{C}$
$R'$	Resistance to fracture initiation	$\frac{\sigma(1-\nu)k}{\alpha E}$	Maximum heat flux for steady flow	Cal/cm.sec
$R''$	Resistance to fracture initiation	$\frac{\sigma(1-\nu)\alpha_{TH}}{\alpha E}$	Maximum allowable rate of surface heating	$\text{cm}^2 \cdot ^{\circ}\text{C}/\text{sec}$
$R'''$	Resistance to propagation damage	$\frac{E}{\sigma^2(1-\nu)}$	Minimum in elastic energy at fracture available for crack propagation	(psi) <sup>-1</sup>
$R''''$	Resistance to propagation damage	$\frac{\gamma E}{\sigma^2(1-\nu)}$	Minimum in extent of crack propagation on initiation of thermal stress fracture	cm
$R_{st}$	Resistance to future crack propagation	$\left(\frac{\gamma}{\alpha^2 E}\right)^{\frac{1}{2}}$	Minimum $\Delta T$ allowed for propagating long cracks	$^{\circ}\text{C}/\text{m}^{1/2}$

โดยตัวแปรที่นิยมใช้กันอย่างแพร่หลายคือ  $R$  และ  $R_{sr}$  เมื่อ  $R$  คือความแตกต่างของอุณหภูมิสูงสุดที่วัสดุรับได้โดยไม่เกิดความเสียหาย ภายใต้เงื่อนไขการถ่ายเทความร้อนแบบคงที่ ดังสมการ 2.13

$$R = \frac{\sigma(1-\nu)}{E\alpha} \quad (2.13)$$

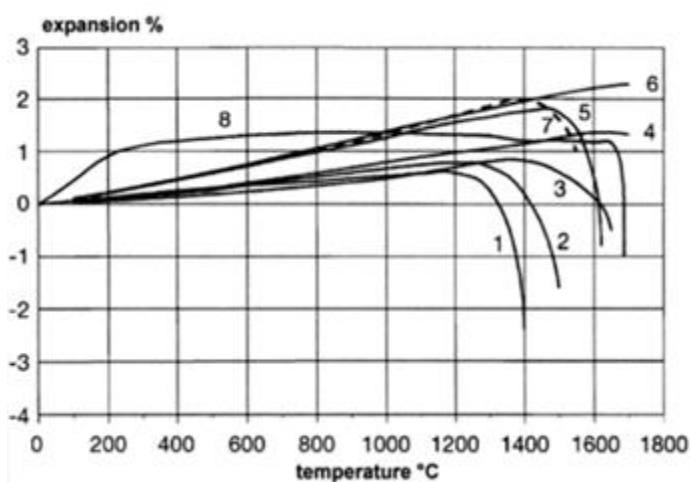
## 2.6.2 การทดสอบความแข็งแรงที่อุณหภูมิสูง

### 2.6.2.1 การรับแรงที่อุณหภูมิสูง (refractoriness under load)

การรับแรงที่อุณหภูมิสูง เป็นความสามารถของวัสดุในการรับแรงที่อุณหภูมิสูง โดยไม่เกิดการอ่อนตัวหรือเปลี่ยนแปลงรูปร่าง (deformation) มาตรฐานการทดสอบโดยทั่วไป มี 2 วิธี

- มาตรฐานอเมริกัน (ASTM C-16) : มาตรฐานนี้เป็นการให้แรงกดกับวัสดุคงที่ 25 psi กับวัสดุที่ต้องการทดสอบ หลังจากแช่แรงไว้ 90 นาที และปล่อยให้เย็นตัว จากนั้นจึงวัดเปอร์เซ็นต์การยุบตัวของชิ้นงาน

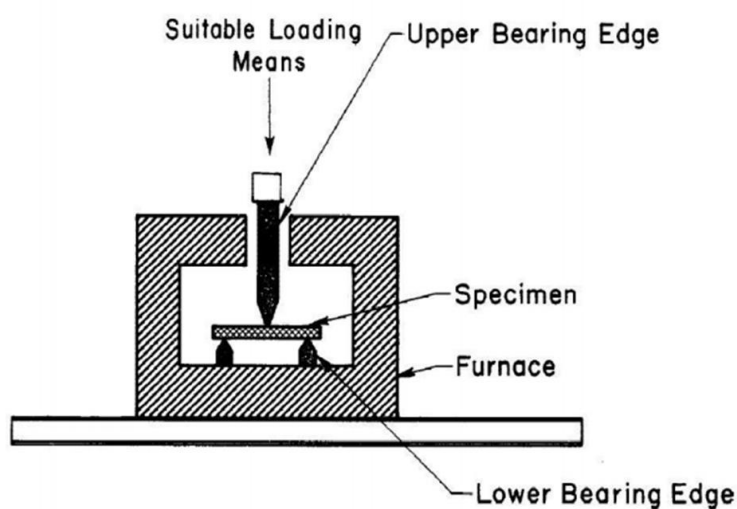
- มาตรฐานเยอรมัน (DIN 51053) : มาตรฐานนี้กำหนดแรงกด 0.2 นิวตันต่อตารางมิลลิเมตร โดยเพิ่มอุณหภูมิขึ้นเรื่อย ๆ จนชิ้นงานตัวอย่างเกิดการยุบตัว รายงานเป็นการเปลี่ยนแปลงรูปร่างที่อุณหภูมิต่างๆ (รูปที่ 2.30) เมื่อพิจารณาอิฐที่ผลิตจากแอนดาลูไซต์พบว่าสามารถรับแรงกดดังกล่าวได้สูงถึงอุณหภูมิ 1400°C



รูปที่ 2.30 ผลทดสอบการรับแรงที่อุณหภูมิสูง ภายใต้แรงกด 0.2 นิวตันต่อตารางมิลลิเมตร ที่อุณหภูมิสูงของวัสดุต่างๆ (1) fireclay brick 45%  $Al_2O_3$  (2) corundum-containing brick 65%  $Al_2O_3$  (3) andalusite brick (4) corundum brick 99%  $Al_2O_3$  (5) magnesia-spinel brick contains  $SiO_2$  (6) low-iron magnesia brick,  $C_2S$  bond (7) magnesia brick with high iron content (8) silica brick<sup>[60]</sup>

### 2.6.2.2 ความต้านแรงดัดที่อุณหภูมิสูง (hot modulus of rupture)

เป็นการวัดค่าแรงดัดสูงสุดที่ให้แก่อชิ้นงานก่อนเกิดการแตกหักที่อุณหภูมิสูง โดยใช้มาตรฐานทดสอบ ASTM C-583 แสดงดังรูปที่ 2.31 โดยให้ความร้อนแก่อชิ้นงานที่อุณหภูมิทดสอบ จากนั้นให้แรงดัดกับชิ้นงานจนชิ้นงานเกิดการแตกร้าว



รูปที่ 2.31 วิธีทดสอบความต้านแรงดัดที่อุณหภูมิสูงตามมาตรฐาน ASTM C-583<sup>[61]</sup>

### 2.6.2.3 การเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิอย่างฉับพลัน

งานวิจัยนี้เลือกวิเคราะห์ความแข็งแรงของชิ้นงานสำหรับการนำไปใช้งานที่อุณหภูมิสูง ด้วยการทดสอบการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิอย่างฉับพลัน ตามมาตรฐาน ASTM C-1171 (ขั้นตอนการทดสอบแสดงในหัวข้อ 3.7.5) วิธีการทดสอบนี้ใช้ในการประเมินการสูญเสียความแข็งแรงของชิ้นงานวัสดุทนไฟ โดยความสูญเสียความแข็งแรง สามารถคำนวณได้จากความแตกต่างของความต้านแรงดัดของชิ้นงานก่อนและหลังจากการให้ความร้อนคิดตามจำนวนรอบ (thermal cycling) ที่อุณหภูมิ 1200°C

## บทที่ 3

### วิธีการดำเนินวิจัย

#### 3.1 วัตถุดิบและสารเคมีที่ใช้ในงานวิจัย

งานวิจัยนี้มุ่งทำการผลิตวัสดุเชิงประกอบคอร์เดียไรต์-มุลไลต์คุณภาพสูง วัตถุดิบที่ใช้ในการทดลองประกอบด้วยผงอะลูมินา ซิลิกา แมกนีเซียมออกไซด์ และแอนดาลูไซต์ รวมถึงสารเคมีอื่น ๆ ได้แสดงรายละเอียดเกี่ยวกับบริษัทผู้ผลิตจำหน่าย ไว้ในตารางที่ 3.1

ตารางที่ 3.1 แสดงวัตถุดิบและสารเคมีที่ใช้ในงานวิจัย

วัตถุดิบ	บริษัทผู้จำหน่าย
ผงอะลูมินา	Nicho Co., Ltd.
ผงซิลิกา	Armarin Co.,Ltd.
ผงแมกนีเซียมออกไซด์	Cernic International Co., Ltd.
ผงแอนดาลูไซต์	Imerys Refractory Minerals Glomel Co., Ltd.
สารช่วยกระจายตัว (ammonium polyacrylate, A-6114)	Toa Gosei Co., Ltd.
โพลีไวนิลแอลกอฮอล์ (PVA : M.W 9,000-10,000)	Nippon Gosei Co., Ltd
โพลีเอธิลีนไกลคอล (PEG : M.W 4,000)	Success Chemical Supply Limited Partnership.
ลูกบดอะลูมินา (ความบริสุทธิ์ 95%)	Pingxiang Chemshun Ceramic Co., Ltd.

### 3.2 การเตรียมและการสังเคราะห์วัสดุเชิงประกอบคอร์เดียไรต์-มุลไลต์

#### 3.2.1 อัตราส่วนผสมคอร์เดียไรต์-มุลไลต์

ในงานวิจัยนี้ได้ทำการทดลองปรับเปลี่ยนอัตราส่วนคอร์เดียไรต์-มุลไลต์ที่เตรียมจากวัตถุดิบ ได้แก่ อะลูมินา แอนดาลูไซต์ แมกนีเซียมออกไซด์ และซิลิกา ตามปริมาณสารสัมพันธ์เพื่อให้เกิดเฟสคอร์เดียไรต์ต่อมุลไลต์ 20:80 30:70 40:60 50:50 60:40 70:30 80:20 %โดยน้ำหนัก ตามลำดับ ปริมาณออกไซด์ที่ต้องการของแต่ละสูตร และส่วนผสมของวัตถุดิบที่ใช้ในการทดลอง แสดงดังตารางที่ 3.2 และ 3.3

ตารางที่ 3.2 สูตรส่วนผสมของออกไซด์ที่ใช้ศึกษาในงานวิจัยนี้

สูตร	เฟสจากการคำนวณ (%โดยน้ำหนัก)		ออกไซด์ (%โดยน้ำหนัก)		
	คอร์เดียไรต์	มุลไลต์	อะลูมินา	ซิลิกา	แมกนีเซียมออกไซด์
CR20:ML80	20	80	64.44	32.80	2.76
CR30:ML70	30	70	60.75	35.11	4.14
CR40:ML60	40	60	57.06	37.43	5.51
CR50:ML50	50	50	53.36	39.74	6.89
CR60:ML40	60	40	49.67	42.06	8.27
CR70:ML30	70	30	45.98	44.37	9.65
CR80:ML20	80	20	42.28	46.69	11.03



ตารางที่ 3.3 สูตรส่วนผสมของวัตถุดิบที่ใช้ศึกษาในงานวิจัยนี้

สูตร	เฟสจากการคำนวณ (%โดยน้ำหนัก)		วัตถุดิบ (%โดยน้ำหนัก)			
	คอร์เดียไรต์	มุลไลต์	อะลูมินา	แอนดาลูไซต์	ซิลิกา	แมกนีเซียมออกไซด์
CR20:ML80	20	80	10.92	87.46	-	2.76
CR30:ML70	30	70	3.45	93.64	-	4.14
CR40:ML60	40	60	-	93.23	2.47	5.51
CR50:ML50	50	50	-	87.19	7.04	6.89
CR60:ML40	60	40	-	81.16	11.62	8.27
CR70:ML30	70	30	-	75.12	16.20	9.65
CR80:ML20	80	20	-	69.09	20.78	11.03

### 3.2.2 การเตรียมสเลอรี

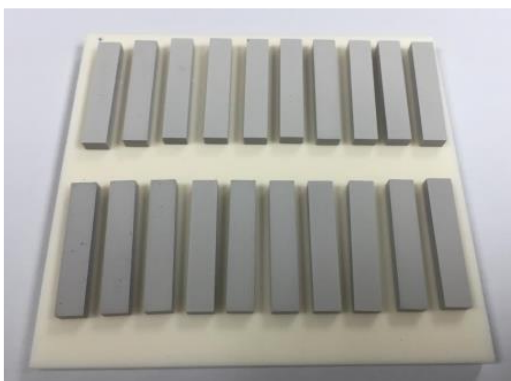
ซึ่งผงวัตถุดิบผงอะลูมินา ซิลิกา แมกนีเซียมออกไซด์ และแอนดาลูไซต์ ตามสัดส่วนในตารางที่ 3.3 และรูปที่ 3.3 แสดงแผนผังแสดงขั้นตอนการดำเนินงานวิจัย การทดลองบดผสมวัตถุดิบในหม้อบดอะลูมินาขนาดความจุ 1000 มิลลิลิตร ด้วยวิธีการบดเปียกโดยใช้น้ำกลั่นเป็นตัวกลาง ในการเตรียมสเลอรีจะเติมพอลิไวนิลแอลกอฮอล์ (M.W. 9,000-10,000) ปริมาณ 2 %โดยน้ำหนักของผงวัตถุดิบ โพลีเอธิลีนไกลคอล (M.W. 4,000) ปริมาณ 2%โดยน้ำหนักของผงวัตถุดิบ และสารช่วยกระจายตัวชนิดเกลือแอมโมเนียมพอลิอะคริเลท (ammonium salt of polyacrylate, A-6114) ปริมาณ 1 %โดยน้ำหนักของผงวัตถุดิบ โดยควบคุมสัดส่วนของแข็งของสเลอรี (solid loading) ให้เท่ากับ 50 %โดยน้ำหนัก ทำการบดผสมเป็นเวลา 24 ชั่วโมง ความเร็วรอบ 300 รอบต่อนาที ใช้ลูกบดอะลูมินาที่มีความบริสุทธิ์ 95 เปอร์เซ็นต์ ขนาดเส้นผ่านศูนย์กลาง 10 มิลลิเมตร จำนวน 1500 กรัม จากนั้นแยกลูกบดอะลูมินาออกจากสเลอรีด้วยตะแกรงขนาด 325 เมช (44 ไมครอน)

### 3.2.3 การเตรียมแกรนูลด้วยวิธีการพ่นฝอยอบแห้ง

นำสเลอรีที่เตรียมในหัวข้อที่ 3.2.2 มาผลิตแกรนูลด้วยวิธีการพ่นฝอยอบแห้ง ด้วยเครื่องพ่นฝอยอบแห้งที่มีในภาควิชาวัสดุศาสตร์ (Mini Spray Dryer B-290, Bushi, Switzerland) ทำการปรับเปลี่ยนอุณหภูมิ 170 190 และ 210 °C และควบคุมอัตราการไหลของสเลอรี 30 มิลลิลิตรต่อนาที อัตราการให้ลมร้อน 30 ลูกบาศก์เมตรต่อชั่วโมง หัวพ่นขนาดเส้นผ่านศูนย์กลาง 2 มิลลิเมตร

### 3.2.4 การขึ้นรูปชิ้นงานและการเผาผนึกชิ้นงานคอร์เดียไรต์-มุลไลต์

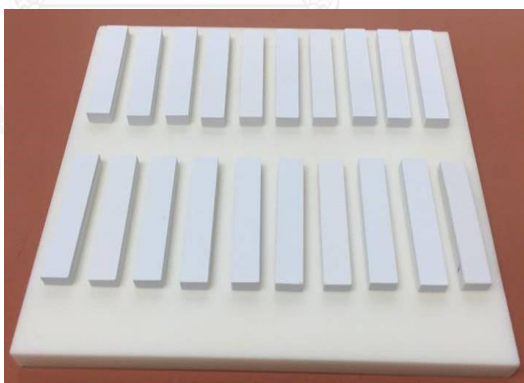
- ขึ้นรูปแกรนูลด้วยการอัดขึ้นแบบทิศทางเดียว (uniaxial pressing) ใช้แม่พิมพ์รูปร่างแท่งสี่เหลี่ยม กว้าง 6 มิลลิเมตร หนา 5 มิลลิเมตร และยาว 40 มิลลิเมตร แรงอัด 30 MPa ชิ้นงานเหล่านี้จะถูกนำไปเผาผนึกในขั้นต่อไป



รูปที่ 3.1 ชิ้นงานดิบก่อนเผา

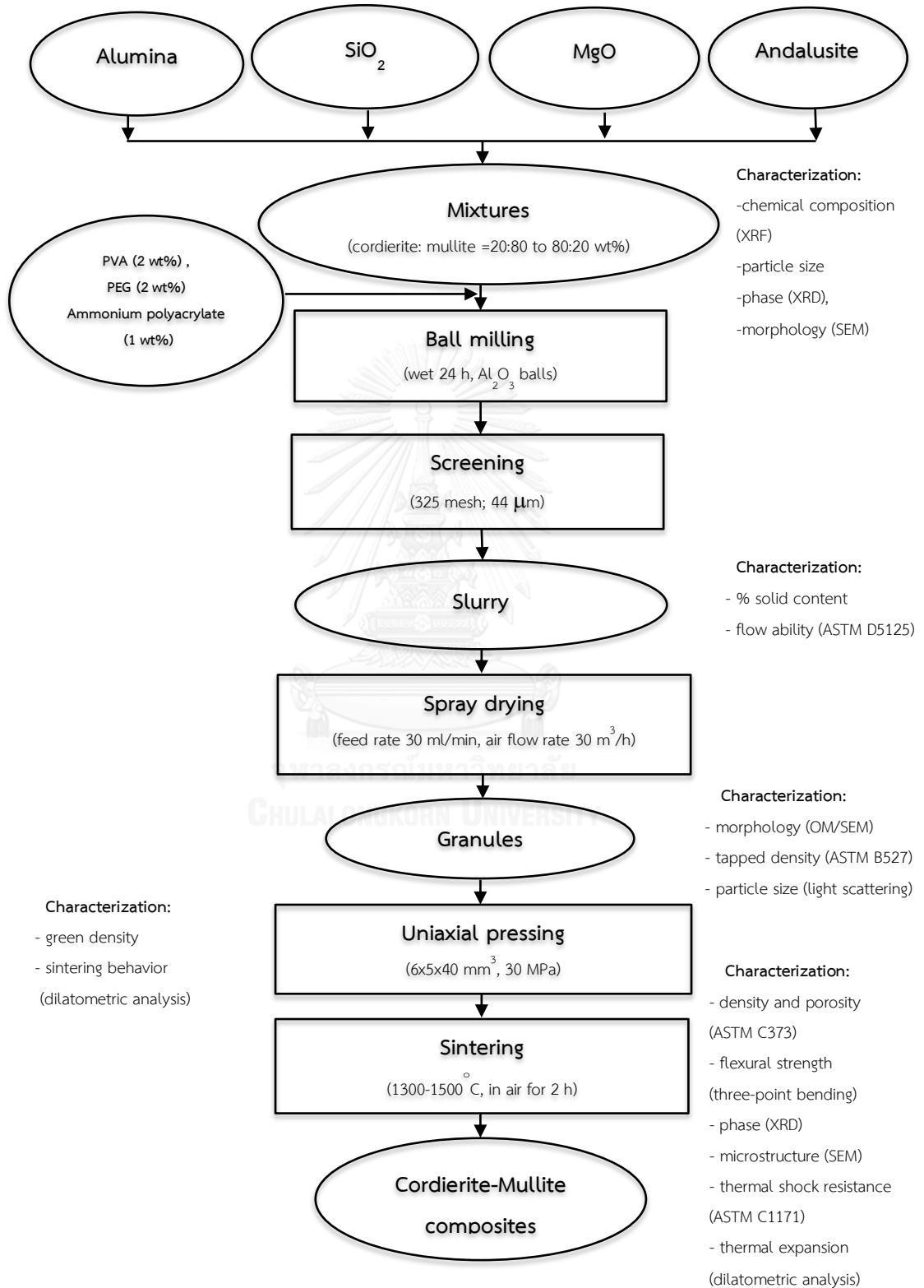
- เตรียมชิ้นงานรูปร่างแท่งสี่เหลี่ยมความยาว 25 มิลลิเมตร เพื่อศึกษาพฤติกรรมของการเผาผนึกชิ้นงานคอร์เดียไรต์-มุลไลต์ด้วยเทคนิค dilatometric analysis

- การเผาผนึกกระทำที่อุณหภูมิ 1300 1400 1450 และ 1500 °C ในอากาศ อัตราการเพิ่มอุณหภูมิ 5 °C/min เวลายืนไฟ 2 ชั่วโมง ปล่อยให้ชิ้นงานเย็นตัวในเตา



รูปที่ 3.2 ชิ้นงานหลังเผาผนึก

## 3.3 แผนผังการทดลอง



รูปที่ 3.3 แผนผังแสดงขั้นตอนการดำเนินงานวิจัย

### 3.4. ลักษณะเฉพาะของผงวัสดุดิบ

#### 3.4.1 ปฏิกริยาและการสลายตัวเมื่อได้รับความร้อน

ตรวจสอบปฏิกริยาทางความร้อนของวัสดุดิบด้วยเทคนิค differential thermal analysis (DTA; Linseis PT 1600, Germany) ขั้นตอนการเตรียมตัวอย่างเริ่มจากอบผงวัสดุดิบให้แห้งที่อุณหภูมิ 100°C จากนั้นใส่ในอะลูมินาครุชิเบิ้ล อุณหภูมิที่ใช้ในการทดสอบ 30°C ถึง 1400°C อัตราการเพิ่มอุณหภูมิ 10°C/min ในบรรยากาศปกติ

#### 3.4.2 การกระจายขนาดการกระจายอนุภาค

การตรวจสอบการกระจายขนาดอนุภาคของผงวัสดุดิบ ใช้เทคนิค laser diffraction (Mastersizer 2000, Malvern, USA) เตรียมตัวอย่างโดยนำผงวัสดุดิบ ได้แก่ อะลูมินา แอนดาไลต์ ซิลิกา แมกนีเซียมออกไซด์ ปริมาณ 0.1 กรัม ลงในน้ำปราศจากไอออนที่ผสมโซเดียมเฮกซะเมตาฟอสเฟต (sodium hexametaphosphate) ความเข้มข้น 0.1% w/v กระจายอนุภาคผงวัสดุดิบด้วยเครื่องอัลตราโซนิก เป็นเวลา 5 นาที ด้วยความเร็ว 2000 รอบต่อนาทีก่อนนำเข้าตรวจสอบการกระจายขนาดอนุภาค

#### 3.4.3 องค์ประกอบเฟส

การตรวจสอบองค์ประกอบเฟสใช้เทคนิคการเลี้ยวเบนของรังสีเอ็กซ์ (XRD; Bruker AXS model D8 Discover, Bruker, Germany) โดยใช้รังสีทดสอบจากกำเนิดแสงเอกซเรย์ของ Cu K $\alpha$  ความยาวคลื่น 1.5406 อังสตรอม การเตรียมตัวอย่างแบบผง ทำได้โดยบดตัวอย่างที่ต้องการทดสอบให้เป็นผงละเอียดในโกร่งอะเกต จากนั้นบรรจุผงที่บดในแผ่นเตรียมตัวอย่าง วิเคราะห์ผลของมุม (2-theta) 5 องศา ถึง 80 องศา อัตราเร็วเชิงมุม 0.010 องศาต่อนาที ความต่างศักย์ 40 กิโลโวลต์ กระแสไฟฟ้า 40 มิลลิแอมแปร์ จากนั้นนำผลกราฟที่ได้มาวิเคราะห์เปรียบเทียบกับการวัดมาตรฐานที่ทำการตรวจวัดโดย Joint Committee on Powder Diffraction Standard (JCPDS) และวิเคราะห์ผลเชิงปริมาณด้วยหลักการ Rietveld Refinement Analysis โดยใช้โปรแกรม TOPAS software (version 2.1, บริษัท Bruker AXS Inc.)

#### 3.4.4 การตรวจสอบองค์ประกอบทางเคมี

ตรวจสอบองค์ประกอบทางเคมีด้วยเครื่อง x-ray fluorescence spectrometer (XRF; S4 pioneer wavelength dispersive, Bruker AXS, Germany) การเตรียมตัวอย่างทำโดยนำผงไปอัดขึ้นรูปเป็นแท่งกลมที่มีเส้นผ่านศูนย์กลาง 30 มิลลิเมตร ตัวอย่างที่เตรียมได้จะถูกหลอมก่อนนำเข้าตรวจสอบองค์ประกอบทางเคมี

### 3.4.5 โครงสร้างจุลภาค

การเตรียมตัวอย่างสำหรับศึกษาโครงสร้างจุลภาคด้วยเทคนิค scanning electron microscopy (SEM, JSM-5410, JEOL, Japan) การเตรียมตัวอย่างที่เป็นผง เริ่มจากโรยผงตัวอย่างบางๆ ให้ผงกระจายตัวอย่างสม่ำเสมอลงบนแท่นทองเหลืองที่ปิดทับผิวหน้าด้วยแผ่นคาร์บอน จากนั้นนำไปเคลือบทอง (gold sputtering) โดยใช้กระแสไฟ 15 มิลลิแอมแปร์ เป็นเวลา 200 วินาที เพื่อให้เกิดสภาพนำไฟฟ้า

## 3.5 การตรวจสอบลักษณะเฉพาะของสเลอรี

### 3.5.1 ความหนืดของสเลอรี

การวัดความหนืดเป็นวิธีการวัดแรงต้านทานการไหลของสเลอรีเมื่อมีแรงมากระทำ ตรวจสอบค่าความหนืดโดยใช้เครื่อง viscometer (Viscometer DV-II, Brookfields, USA) วัดความหนืดของสเลอรีขั้นตอนทดสอบความหนืดเริ่มจากนำสเลอรีที่ได้ปรับเปลี่ยนปริมาณสารช่วยกระจายตัวชนิดแอมโมเนียมพอลิอะคลีเลท 0.5 1.0 1.5 และ 2.0 % โดยน้ำหนัก ใส่ในกระบอกวัดของเครื่อง Brookfield ที่มีปริมาตร 8 ลูกบาศก์เซนติเมตร ใช้เข็มวัดเบอร์ 21 (SC4-21) ปรับความเร็วรอบตั้งแต่ 5-180 รอบต่อนาที เก็บข้อมูลความหนืดทุกๆ 30 วินาทีต่อความเร็วรอบ การทดสอบทำที่อุณหภูมิ 25°C

### 3.5.2 อัตราการไหลของสเลอรี

การตรวจสอบอัตราการไหลของสเลอรีเป็นไปตามมาตรฐาน ASTM D 5125 ขั้นตอนการตรวจสอบเริ่มจากนำสเลอรีที่มีการเติมสารช่วยกระจายตัวในปริมาณ 0.5 1.0 1.5 และ 2.0 % โดยน้ำหนัก มาใส่กระบอกโลหะปริมาตร 1000 มิลลิลิตร ซึ่งวางอยู่บนขาตั้งระยะความสูง 8 เซนติเมตร จากฐาน โดยปิดรูเปิดด้านล่างของกระบอกโลหะไว้ ทำการทดลองโดยปล่อยรูเปิดให้อิสระปล่อยสเลอรีไหลลงสู่ภาชนะที่รองรับพร้อมกับเริ่มจับเวลาเป็นวินาทีและสิ้นสุดเมื่อสเลอรีสุดท้ายออกจากรูเปิด บันทึกเวลาและนำมาคำนวณดังสมการ (3.1)

$$F = \frac{W}{T} \quad (3.1)$$

$F$  คือ อัตราการไหลตัวของสเลอรี (กรัม/วินาที)

$W$  คือ น้ำหนักของสเลอรี (กรัม)

$T$  คือ เวลาที่ใช้ในการไหลตัว (วินาที)

### 3.5.3 การหาปริมาณของแข็ง

นำสเลอรีที่เตรียมได้ซึ่งน้ำหนักก่อนอบ ( $M_{initial}$ ) ที่อุณหภูมิ 100°C เป็นเวลา 24 ชั่วโมง ภายหลังจากการอบสารมาซึ่งน้ำหนัก ( $M_{dried}$ ) มาซึ่งน้ำหนัก คำนวณเปอร์เซ็นต์ปริมาณของแข็งของสเลอรีดังสมการ (3.2)

$$\text{solid content (\%)} = \frac{M_{dried}}{M_{initial}} \times 100 \quad (3.2)$$

### 3.5.4 การหาความถ่วงจำเพาะของสเลอรี

นำสเลอรีใส่ในกระบอกโลหะปริมาตร 1000 มิลลิเมตร จนเต็มกระบอก จากนั้นชั่งน้ำหนักของ สเลอรีและคำนวณความถ่วงจำเพาะ ดังสมการ (3.3)

$$\text{specific gravity} = \frac{M_{slurry}}{V} \times 100 \quad (3.3)$$

$M_{slurry}$  คือ น้ำหนักของสเลอรี

$V$  คือ ปริมาตรกระบอกตวง

## 3.6 การตรวจสอบลักษณะเฉพาะของแกรนูล

### 3.6.1 ความหนาแน่นหลังเคาะ

นำแกรนูลที่เตรียมได้มาวัดความหนาแน่นหลังเคาะ (tapped density) ตามมาตรฐาน ASTM B527 ซึ่งเป็นการวัดความหนาแน่นในการจัดเรียงตัวของแกรนูลที่เกิดจากการเคาะ ทำให้แกรนูลไหลตัวตามแรงเคาะมาจัดเรียงชิดกันอย่างหนาแน่น การตรวจสอบเริ่มจากเทแกรนูลลงในกระบอกตามปริมาตรที่กำหนด เคาะกระบอก 1,000 ครั้งอย่างต่อเนื่อง ชั่งน้ำหนักแกรนูลและอ่านปริมาตรหลังการเคาะ คำนวณหาค่าความหนาแน่นหลังเคาะ ดังสมการ (3.4)

$$\text{tapped density} = \frac{M_{granule}}{V_{tap}} \quad (3.4)$$

$M_{granule}$  คือ น้ำหนักแกรนูล (กรัม)

$V_{tap}$  คือ ปริมาตรหลังการเคาะ (กรัมต่อลูกบาศก์เซนติเมตร)

### 3.6.2 การกระจายขนาดแกรนูล

ตรวจสอบการกระจายขนาดของแกรนูลที่เตรียมได้ โดยนำภาพโครงสร้างจุลภาคจากการตรวจสอบด้วยเทคนิค SEM มาวิเคราะห์คำนวณหาขนาดเส้นผ่านศูนย์กลางของแกรนูลที่ปรากฏด้วย

โปรแกรม image pro (media cybernetic, Inc. version 5.1 for windows TM) 500 แกรนูลต่อสถานะ

### 3.6.3 โครงสร้างภายในของแกรนูล

การตรวจสอบโครงสร้างภายในของแกรนูล ทำโดยโปรยแกรนูลปริมาณน้อยลงบนแผ่นกระจก หยด methylene iodide แล้วเกลี่ยแกรนูลให้กระจาย ปิดทับด้วยแผ่นกระจก จากนั้นนำไปตรวจโครงสร้างภายใต้กล้องจุลทรรศน์แบบใช้แสงโหมดโพลาไรซ์ (Axiostop, ZEISS, Germany)

## 3.7 การตรวจสอบสมบัติชิ้นงานคอร์เตียไรต์-มูลไลต์หลังเผาผนึก

### 3.7.1. ความหนาแน่นของชิ้นงาน

การตรวจสอบความหนาแน่นของชิ้นงานหลังการเผาผนึกใช้หลักการของอาร์คิมิดีส (Archimedes's method) ตามมาตรฐาน ASTM C373 เริ่มจากอบชิ้นงานที่อุณหภูมิ 100°C เป็นเวลา 3 ชั่วโมง ทิ้งไว้ให้เย็นในตู้ดูดความชื้น ชั่งน้ำหนักชิ้นงาน ( $W_{dry}$ ) จากนั้นต้มชิ้นงานในน้ำกลั่นที่อุณหภูมิ 100°C เป็นเวลา 5 ชั่วโมง แช่ชิ้นงานทิ้งไว้ในน้ำกลั่น 24 ชั่วโมง นำชิ้นงานชั่งน้ำหนักในน้ำ ( $W_{sus}$ ) ซับผิวชิ้นงานพอหมาดแล้วนำไปชั่งน้ำหนัก ( $W_{sat}$ ) โดยทันที นำค่าต่าง ๆ มาคำนวณความหนาแน่นรวม เปอร์เซ็นต์รูพรุนปรากฏ แสดงดังสมการ (3.5) และ (3.6)

ความหนาแน่นรวม ( $\rho_B$ ) ของชิ้นงานซึ่งประกอบด้วยเนื้อสาร รูพรุนเปิด รูพรุนปิด และตำหนิต่าง ๆ

$$\rho_B = \frac{W_{dry}}{W_{sat} - W_{sus}} \quad (3.5)$$

$\rho_B$  คือ ความหนาแน่นรวม (bulk density)

$W_{dry}$  คือ น้ำหนักของชิ้นงานหลังเผาผนึก (dry weight)

$W_{sat}$  คือ น้ำหนักของชิ้นงานที่อิ่มตัวไปด้วยน้ำ (saturated weight)

$W_{sus}$  คือ น้ำหนักของชิ้นงานที่แขวนอยู่ในน้ำ (immersed weight)

รูพรุนปรากฏ ( $A.P$ )

$$A.P = \frac{W_{sat} - W_{dry}}{W_{sat} - W_{sus}} \times 100 \quad (3.6)$$

$A.P$  คือ รูพรุนปรากฏ (apparent porosity,%)

นำความหนาแน่นรวมของวัสดุเชิงประกอบคอร์เดียไรต์-มุลไลต์ที่คำนวณได้ มาเปรียบเทียบกับความหนาแน่นทางทฤษฎีของคอร์เดียไรต์ที่ค่าเท่ากับ 2.6 กรัมต่อลูกบาศก์เซนติเมตร และความหนาแน่นทางทฤษฎีของมุลไลต์มีค่าเท่ากับ 3.12 กรัมต่อลูกบาศก์เซนติเมตร เพื่อหาความหนาแน่นสัมพัทธ์จากสมการ (3.7)

$$D_{relative} = \frac{D}{D_{theoretical}} \times 100 \quad (3.7)$$

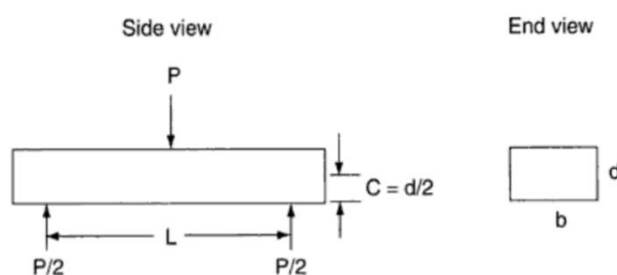
$D_{relative}$  คือ ความหนาแน่นสัมพัทธ์ (relative density)

$D$  คือ ความหนาแน่นรวม (bulk density)

$D_{theoretical}$  คือ ความหนาแน่นของคอร์เดียไรต์และมุลไลต์ทางทฤษฎี (2.6 และ 3.2 กรัมต่อลูกบาศก์เซนติเมตร)

### 3.7.2 ความต้านแรงดัด

การทดสอบความต้านแรงดัดของชิ้นงานทำได้โดยเตรียมชิ้นงานทดสอบขนาด 4x3x40 มิลลิเมตร ลบเหลี่ยมตรงมุมของชิ้นงานเข้าไปประมาณ 0.2 มิลลิเมตร โดยทำมุม 45 องศา เพื่อลดการสะสมของแรงเค้นบริเวณมุม ทดสอบความต้านแรงดัดแบบ 3-point bending (ด้วยเครื่องการสะสมของแรงเค้นบริเวณมุม ทดสอบความต้านแรงดัดแบบ 3-point bending (ด้วยเครื่อง Instron 4502, USA) โดยวางชิ้นงานตามรูปที่ 3.4 กำหนดอัตราความเร็วของหัวกด 0.5 มิลลิเมตรต่อนาที ตามมาตรฐาน ASTM C1161 คำนวณความต้านแรงดัดของชิ้นงานตามสมการ (3.8)



รูปที่ 3.4 การทดสอบความต้านแรงดัดแบบ 3-point bending<sup>[62]</sup>

$$\sigma = \frac{3PL}{2ab^2} \quad (3.8)$$

$\sigma$  คือ ความต้านแรงดัด (MPa)

$P$  คือ แรงกดสูงสุดที่ทำให้ชิ้นงานหัก (N)

$L$  คือ ระยะระหว่างฐานรองรับ (mm)

$a$  คือ ความกว้างชิ้นงาน (mm)

$b$  คือ ความหนาชิ้นงาน (mm)



### 3.7.3 สัมประสิทธิ์การขยายตัวทางความร้อน

สัมประสิทธิ์การขยายตัวทางความร้อนของวัสดุ (thermal expansion coefficient, COE) ของวัสดุ เป็นค่าความยาวของชิ้นงานวัสดุที่เปลี่ยนไป เมื่ออุณหภูมิเปลี่ยน  $1^{\circ}\text{C}$  เทียบกับความยาวก่อนทำการทดสอบ ขั้นตอนการทดสอบเริ่มจากเตรียมชิ้นงาน  $4 \times 3 \times 40$  มิลลิเมตร วิเคราะห์สัมประสิทธิ์การขยายตัวของชิ้นงานเนื่องจากความร้อนด้วยเครื่อง dilatometer (DIL 402C, NETZSCH, Germany) ช่วงอุณหภูมิการทดสอบ  $30\text{-}1200^{\circ}\text{C}$  อัตราการเพิ่มอุณหภูมิ  $10^{\circ}\text{C}/\text{min}$  ตามสมการที่ (3.9)

$$\frac{\Delta L}{L_0} = \alpha \Delta T \quad (3.9)$$

$\alpha$  คือ ค่าสัมประสิทธิ์การขยายตัวของชิ้นงาน

$L_0$  และ  $L$  คือ ความยาวเริ่มต้นและความยาวที่เปลี่ยนไปของชิ้นงานเมื่อเพิ่มอุณหภูมิ

$\Delta T$  คือ อุณหภูมิที่เปลี่ยน

### 3.7.4 ความต้านทานต่อการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิอย่างฉับพลัน

โดยทั่วไปเมื่อวัสดุได้รับความร้อนจะเกิดการขยายตัวและเมื่อเย็นตัวจะเกิดการหดตัว การเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิอย่างรวดเร็วทั้งจากการเพิ่มความร้อนและการเย็นตัวส่งผลให้เกิดการสะสมความเค้นขึ้นภายในชิ้นงาน ในงานวิจัยนี้ได้ทำการทดสอบความต้านทานต่อการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิอย่างฉับพลันของชิ้นงานตามมาตรฐาน ASTM C1171-91 โดยให้ความร้อนที่อุณหภูมิ  $1200^{\circ}\text{C}$  แก่ชิ้นงานเป็นเวลา 10-15 นาที จากนั้นนำชิ้นงานออกจากเตาและทำให้เย็นอย่างรวดเร็วในอากาศอุณหภูมิห้อง (ambient air) เป็นเวลา 10-15 นาที บันทึกข้อมูลเป็นจำนวนรอบที่ชิ้นงานสามารถผ่านการทดสอบก่อนเกิดการแตกหัก ในงานวิจัยนี้กำหนดจำนวนรอบที่ทำการทดสอบ เท่ากับ 25 รอบ

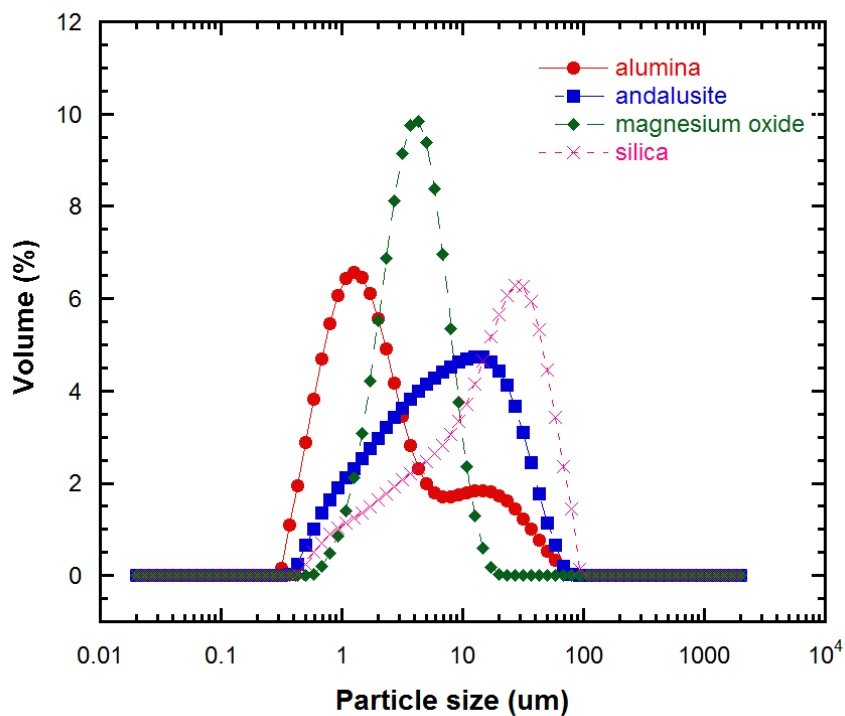
## บทที่ 4

### วิเคราะห์และสรุปผลการทดลอง

#### 4.1 การตรวจสอบสมบัติของวัตถุดิบเริ่มต้น

##### 4.1.1 การกระจายขนาดอนุภาคของผงวัตถุดิบ

ในงานวิจัยนี้ผงแอนดาลูไซต์เริ่มต้นมีขนาดอนุภาคประมาณ 1 มิลลิเมตร จึงต้องนำมาบดลดขนาดด้วยเครื่อง disc grinding mill เป็นเวลา 2 นาที จากนั้นร่อนผ่านตะแกรง 325 เมช เมื่อพิจารณารูปที่ 4.1 ซึ่งแสดงการกระจายขนาดอนุภาคของวัตถุดิบ ได้แก่ อะลูมินา แอนดาลูไซต์ แมกนีเซียมออกไซด์ และซิลิกา พบว่าผงซิลิกา มีขนาดอนุภาคประมาณ 20 ไมครอน ซึ่งมีขนาดใหญ่เมื่อเปรียบเทียบกับขนาดของอะลูมินา แอนดาลูไซต์ และแมกนีเซียมออกไซด์ นอกจากนี้พบว่าอะลูมินามีลักษณะการกระจายขนาดอนุภาคเป็นแบบ bimodal บ่งชี้ถึงการเกิด agglomeration ที่มีขนาดอยู่ในช่วง 10-80 ไมครอน



รูปที่ 4.1 การกระจายขนาดอนุภาคของวัตถุดิบที่ใช้ในงานวิจัย

รูปที่ 4.1 และตารางที่ 4.1 แสดงให้เห็นว่าวัตถุดิบมีการกระจายขนาดอนุภาคอยู่ในช่วง 0.5-100 ไมครอน โดยอะลูมินามีขนาดอนุภาคอยู่ในช่วง 0.58-15.49 ไมครอน มีค่ากลางของขนาดอนุภาค ( $d_{50}$ ) เท่ากับ 5.17 ไมครอน แอนดาลูไซต์มีขนาดอนุภาคอยู่ในช่วง 1.16-26.44 ไมครอน

ค่ากลางของขนาดอนุภาค ( $d_{50}$ ) เท่ากับ 10.76 ไมครอน แมกนีเซียมออกไซด์ มีขนาดอนุภาคอยู่ในช่วง 1.58-7.53 ไมครอน ค่ากลางของขนาดอนุภาค ( $d_{50}$ ) เท่ากับ 3.59 ไมครอน และซิลิกา มีขนาดอนุภาคอยู่ในช่วง 1.95-45.67 ไมครอน ค่ากลางของขนาดอนุภาค ( $d_{50}$ ) เท่ากับ 15.89 ไมครอน

ตารางที่ 4.1 สรุปการกระจายขนาดอนุภาคของวัตถุดิบ

วัตถุดิบ	ขนาดอนุภาค (ไมครอน)		
	$d_{50}$	$d_{10}$	$d_{90}$
อะลูมินา	5.17	0.58	15.49
แอนดาลูไซต์	10.76	1.16	26.44
แมกนีเซียมออกไซด์	3.59	1.58	7.53
ซิลิกา	15.89	1.95	45.67

#### 4.1.2 องค์ประกอบทางเคมี

ผลการตรวจสอบองค์ประกอบทางเคมีของวัตถุดิบ ได้แก่ อะลูมินา แอนดาลูไซต์ แมกนีเซียมออกไซด์ และซิลิกา ด้วยเทคนิคเอกซเรย์ฟลูออเรสเซนซ์ (XRF) แสดงดังตารางที่ 4.2

ตารางที่ 4.2 องค์ประกอบทางเคมีของวัตถุดิบเริ่มต้น

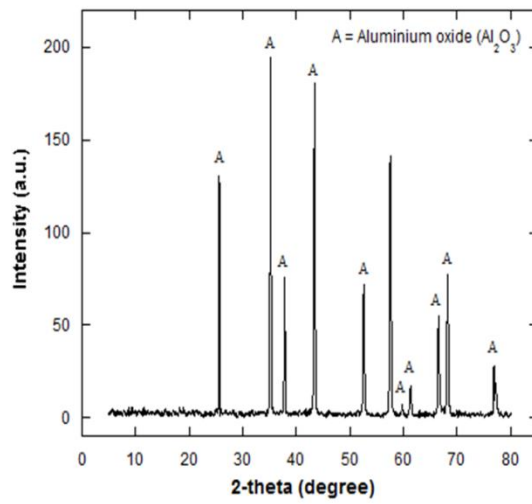
องค์ประกอบทางเคมี (%)	อะลูมินา	แอนดาลูไซต์	แมกนีเซียมออกไซด์	ซิลิกา
$Al_2O_3$	99.63	61.20	0.03	0.9
$SiO_2$	0.05	37.50	0.23	98.51
$TiO_2$	-	0.07	-	0.08
$Fe_2O_3$	0.02	0.47	0.03	0.11
$CaO$	0.02	0.12	0.75	0.02
$MgO$	-	0.06	97.32	0.04
$K_2O$	-	0.17	-	0.22
$Na_2O$	0.26	0.06	-	0.06
$SO_3$	0.01	-	1.42	0.05
$Ga_2O_3$	0.01	-	-	-

จากตารางที่ 4.2 พบว่าผงอะลูมินาที่นำมาใช้ในงานวิจัยนี้มีความบริสุทธิ์ 99.63 เปอร์เซ็นต์ และมีโซเดียมออกไซด์เจือปน 0.26 เปอร์เซ็นต์ ผงแอนดาลูไซต์ประกอบด้วยอะลูมินาและซิลิกา

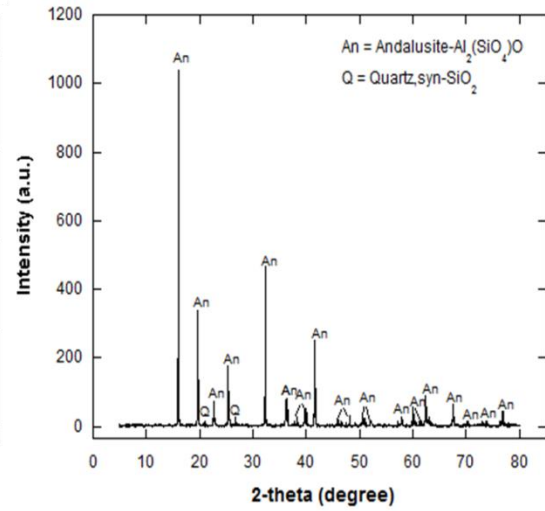
61.20 เปอร์เซ็นต์ และ 37.50 เปอร์เซ็นต์ ตามลำดับ ในขณะที่ผงแมกนีเซียมออกไซด์และซิลิกา มีความบริสุทธิ์ 97.32 เปอร์เซ็นต์ และ 98.51 เปอร์เซ็นต์ ตามลำดับ

#### 4.1.3 องค์ประกอบเฟสของวัสดุดิบ

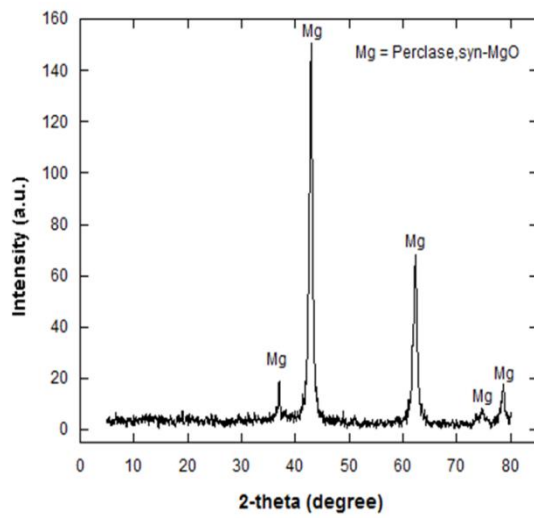
จากการตรวจสอบองค์ประกอบเฟสของวัสดุดิบ ด้วยเครื่อง X-ray diffractometer (XRD) ดังแสดงในรูปที่ 4.2 พบว่าในผงอะลูมินาประกอบด้วยอะลูมินออกไซด์เพียงเฟสเดียว มีโครงสร้างผลึกเป็นแบบรอมโบฮีดรอลตรงกับการ์ดมาตรฐาน JCPDS เลขที่ 01-082-1399 ผงแอนดาลูไซต์มีเฟสแอนดาลูไซต์เป็นเฟสหลัก โครงสร้างผลึกเป็นแบบอโรมบิก ตรงกับการ์ดมาตรฐาน JCPDS เลขที่ 00-039-0376 และพบซิลิกา (ควอตซ์) เป็นเฟสรอง มีโครงสร้างผลึกเป็นแบบเฮกซะโกนอล ตรงกับการ์ดมาตรฐาน JCPDS เลขที่ 00-046-1045 ในผงแมกนีเซียมออกไซด์ประกอบด้วยเพริเคลส (Periclase) เพียงเฟสเดียว มีโครงสร้างผลึกแบบเฟซเซ็นเตอร์คิวบิก ตรงกับการ์ดมาตรฐาน JCPDS เลขที่ 01-077-2179 และในผงซิลิกาพบควอตซ์เพียงเฟสเดียว มีโครงสร้างผลึกเป็นแบบเฮกซะโกนอล ตรงกับการ์ดมาตรฐาน JCPDS เลขที่ 00-046-1045



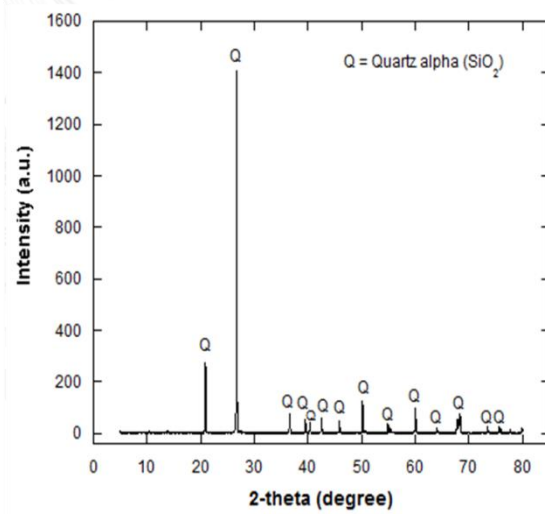
(ก) อะลูมินา



(ข) แอนดาลูไซต์



(ค) แมกนีเซียมออกไซด์

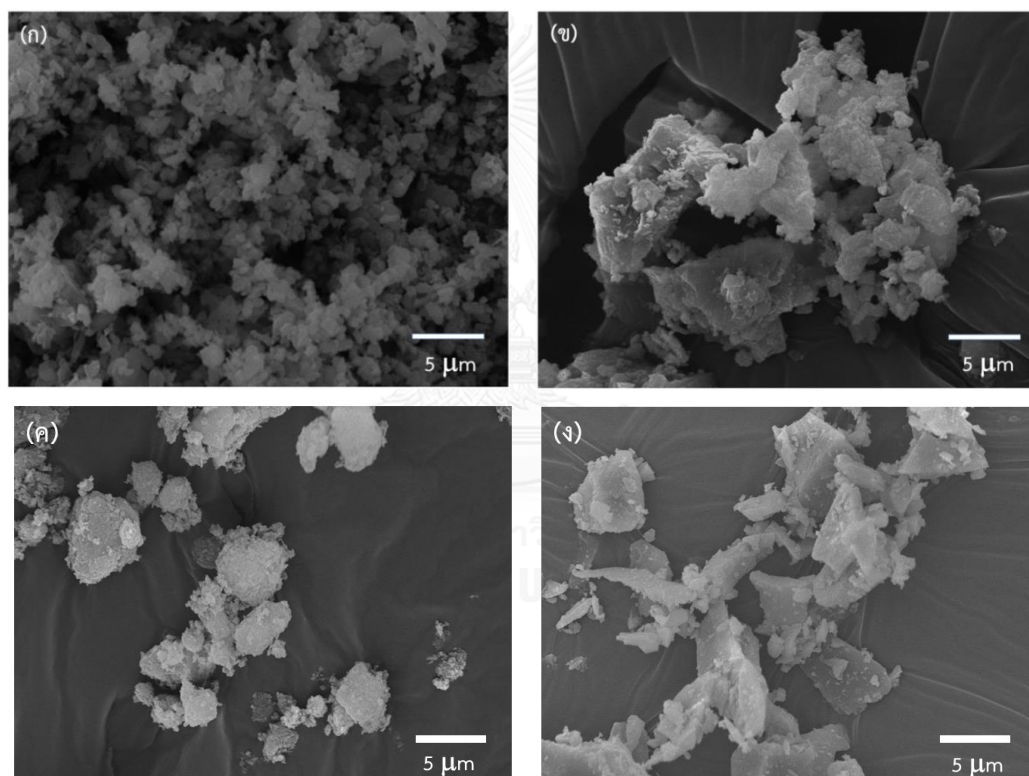


(ง) ซิลิกา

รูปที่ 4.2 องค์ประกอบเฟสของวัตถุดิบ (ก) อะลูมินา (ข) แอนดาลูไซต์ (ค) แมกนีเซียมออกไซด์ และ (ง) ซิลิกา

#### 4.1.4 โครงสร้างจุลภาคของวัสดุดิบ

รูปที่ 4.3 แสดงโครงสร้างจุลภาคของผงอะลูมินา แอนดาไลต์ แมกนีเซียมออกไซด์ และซิลิกา จากรูปที่ 4.3 (ก) พบว่าผงอะลูมินาประกอบด้วยอนุภาคขนาดเล็กกว่า 1 ไมครอน ปะปนอยู่กับอนุภาคที่มีขนาดใหญ่กว่า 10 ไมครอน (ข) ผงแอนดาไลต์ที่ผ่านการบดมีลักษณะเป็นก้อนเหลี่ยมขนาดเล็กใหญ่ปะปนกัน ขนาดอนุภาคเฉลี่ยประมาณ 10 ไมครอน โดยในบางจุดพบก้อนอนุภาคขนาดใหญ่กว่า 20 ไมครอน ปะปนอยู่ (ค) ผงแมกนีเซียมออกไซด์อนุภาคมีลักษณะกลมมนขนาดเล็ก เกาะตัวกันเป็นกลุ่ม (agglomerate) ขนาดอนุภาคโดยเฉลี่ยอยู่ในช่วง 4 ไมครอน (ง) ผงซิลิกามีลักษณะเป็นก้อนเหลี่ยมขนาดใหญ่ประมาณ 15 ไมครอน จะเห็นได้ว่าผลโครงสร้างจุลภาคที่ได้สอดคล้องกับการตรวจสอบการกระจายขนาดอนุภาคด้วยวิธี laser scattering

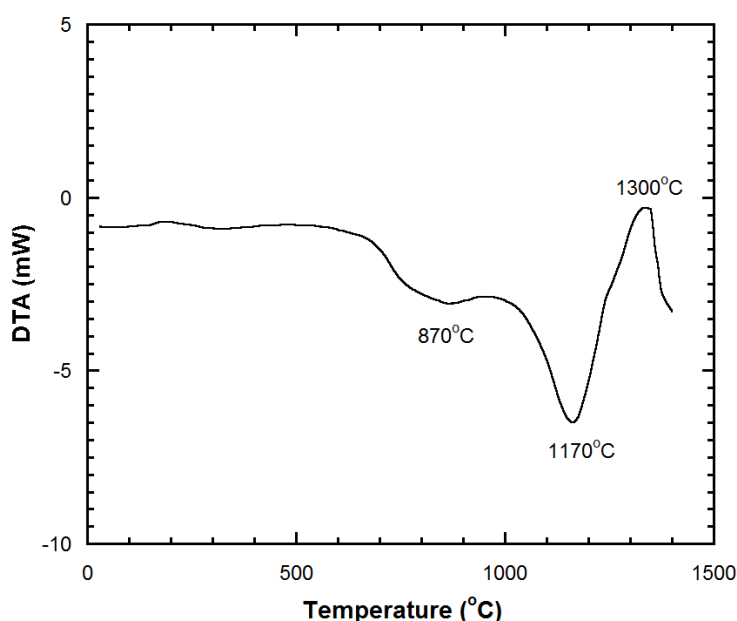


รูปที่ 4.3 โครงสร้างจุลภาคของวัสดุดิบ (ก) อะลูมินา (ข) แอนดาไลต์ (ค) แมกนีเซียมออกไซด์ และ (ง) ซิลิกา

#### 4.1.5 ปฏิกริยาเมื่อได้รับความร้อน

รูปที่ 4.4 แสดงการเกิดปฏิกริยาเมื่อได้รับความร้อนของผงแอนดาไลต์ ณ ช่วงอุณหภูมิ 25-1400°C ด้วยเทคนิค TG-DTA พบว่า แอนดาไลต์เกิดปฏิกริยาดูดความร้อน (endothermic reaction) ในช่วงอุณหภูมิ 870°C ซึ่งแสดงถึงการสลายพันธะของโครงสร้างควอตซ์เป็นทรินิไมต์ และช่วงอุณหภูมิ 1170°C ซึ่งแสดงการสลายพันธะภายในโครงสร้างของแอนดาไลต์ และเกิดปฏิกริยา

คายความร้อน (exothermic reaction) เนื่องจากการก่อโครงสร้างเป็นมุลไลต์ที่อุณหภูมิประมาณ  $1300^{\circ}\text{C}$  ผลการตรวจสอบสอดคล้องกับงานวิจัยของ Benhammou และคณะ<sup>[15]</sup> ซึ่งรายงานการเกิดปฏิกิริยาคายความร้อนในช่วงอุณหภูมิ  $1150^{\circ}\text{C}$  แสดงถึงการสลายพันธะภายในโครงสร้างของ แอนดาลูไซต์ และปฏิกิริยาคายความร้อนแสดงการก่อโครงสร้างเป็นมุลไลต์ที่อุณหภูมิสูงกว่า  $1280^{\circ}\text{C}$



รูปที่ 4.4 ปฏิกิริยาเมื่อได้รับความร้อนของแอนดาลูไซต์

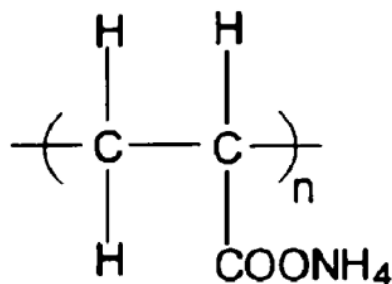
## 4.2 พฤติกรรมการไหลและสมบัติของสเลอรี

ในการศึกษาสถานะการการพ่นฝอยอบแห้งที่เหมาะสม สัดส่วนของแข็งที่สูงและการเตรียมสเลอรีให้ได้ความหนืดต่ำเป็นที่ต้องการในการผลิตแกรนูลโดยทั่วไป การทดลองในส่วนนี้ได้พิจารณาเลือกสเลอรีสูตร CR70:ML30 มาใช้ศึกษาพฤติกรรมการไหลของสเลอรี เนื่องจากพบงานวิจัย<sup>[39,42]</sup> รายงานตรงกันว่าสารสังเคราะห์วัสดุเชิงประกอบคอร์เดียไรต์-มุลไลต์ที่มีอัตราส่วนคอร์เดียไรต์ต่อมุลไลต์ 70:30 %โดยน้ำหนัก แสดงสมบัติทางกลและทางความร้อนดีที่สุดในงานวิจัยนี้ได้เตรียมสเลอรีสูตร CR70:ML30 ที่มีสารเติมสารช่วยกระจายตัว โดยควบคุมสัดส่วนของแข็งในสเลอรี (solid loading) ให้เท่ากับ 50 %โดยน้ำหนัก ผลการศึกษาเป็นดังนี้

### 4.2.1 พฤติกรรมการไหลของสเลอรี

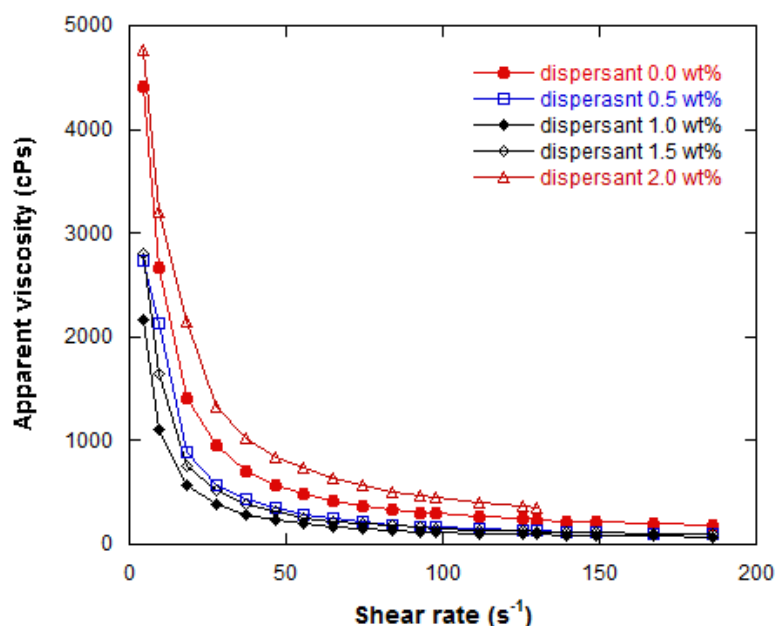
งานวิจัยนี้ใช้สารช่วยกระจายตัวชนิดเกลือแอมโมเนียมของพอลิอะครีเลต (ammonium salts of polyacrylate) ซึ่งจัดเป็นพอลิอิเล็กโทรไลต์ประจุลบ (anionic polyelectrolytes) เนื่องจากสายโซ่ประกอบด้วยหมู่คาร์บอกซิล (-COOH) ประจุลบ โครงสร้างดังแสดงในรูปที่ 4.5 สาร

ช่วยกระจายตัวชนิดนี้สามารถละลายได้ดีในน้ำ โดยประจุลบจากหมู่คาร์บอกซิลจะมีความว่องไวและง่ายต่อการดูดซับประจุบวกที่ผิวของอนุภาค



รูปที่ 4.5 โครงสร้างสารช่วยกระจายตัวชนิดเกลือแอมโมเนียมของพอลิอะครีเลต<sup>[63]</sup>

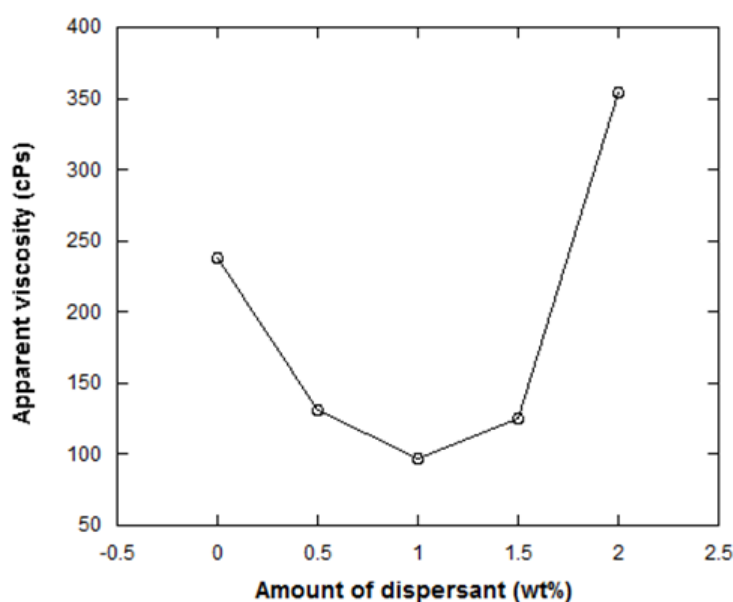
จากการศึกษาพฤติกรรมการไหลของสเลอรีโดยการวัดค่าความหนืดที่อัตราเฉือน (shear rate) ต่าง ๆ เริ่มตั้งแต่ 5-180 รอบต่อนาที (รูปที่ 4.6) พบว่าสเลอรีที่เตรียมได้ ทั้งที่ไม่เติมและเติมสารช่วยกระจายตัวในปริมาณต่างๆ มีพฤติกรรมการไหลตัวแบบซูโดพลาสติก (pseudoplastic) หรือ เซียร์ทินนิง (shear thinning) จะเห็นว่าความหนืดลดลงเมื่ออัตราเฉือนเพิ่มขึ้น และพบว่าการเติมสารช่วยกระจายตัวชนิดเกลือแอมโมเนียมของพอลิอะครีเลต 1 %โดยน้ำหนัก ส่งผลให้ความหนืดมีค่าต่ำสุด หลังจากนั้นความหนืดจะสูงขึ้นเป็นลำดับเมื่อเติมสารช่วยกระจายตัวชนิดเกลือแอมโมเนียมของพอลิอะครีเลตในปริมาณมากขึ้น



รูปที่ 4.6 ความสัมพันธ์ระหว่างอัตราการเฉือนกับความหนืดของสเลอรี ที่เติมสารกระจายตัว 0 0.5 1 1.5 และ 2.5 %โดยน้ำหนัก



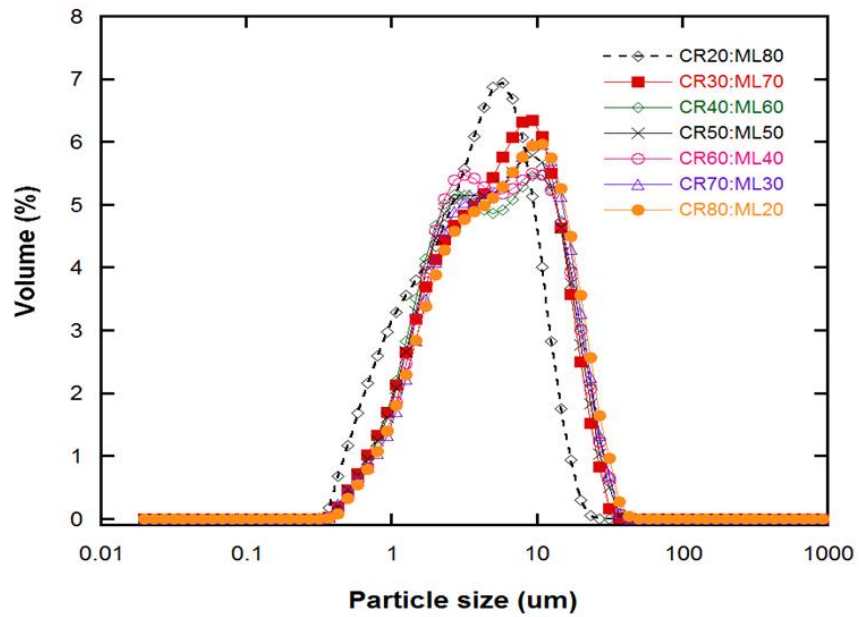
เป็นที่ทราบกันโดยทั่วไปว่า การเติมสารช่วยกระจายตัวให้ได้ผลที่ดีที่สุดใช้ในปริมาณที่สารครอบคลุมผิวอนุภาคพอดี ไม่น้อยหรือมากเกินไป รูปที่ 4.7 แสดงความสัมพันธ์ระหว่างปริมาณสารช่วยกระจายตัวกับความหนืดของสเลอรีสูตร CR70:ML30 พบว่าเมื่อปริมาณสารช่วยกระจายตัวเพิ่มขึ้นสเลอรีจะมีความหนืดลดน้อยลงอย่างต่อเนื่อง เนื่องจากสารช่วยกระจายตัวช่วยในการสลายการจับตัวของอนุภาคเมื่อเพิ่มแรงคั้นให้แก่ระบบ จนกระทั่งที่ปริมาณสารช่วยกระจายตัวเท่ากับ 1 %โดยน้ำหนัก สเลอรีที่สภาวะนี้มีความหนืดต่ำสุดคือประมาณ 97 เซนติพอยต์ แต่เมื่อเติมสารช่วยกระจายตัวเพิ่มขึ้น สเลอรีกลับมามีความหนืดสูงขึ้นอีกครั้ง (over deflocculated) โดยที่ปริมาณสารช่วยกระจายตัวเท่ากับ 2 %โดยน้ำหนัก สเลอรีมีความหนืด 355 เซนติพอยต์



รูปที่ 4.7 ความสัมพันธ์ระหว่างปริมาณสารช่วยกระจายตัวกับความหนืดของสเลอรีสูตร CR70:ML30 ที่ความเค้นเฉือน 180 รอบต่อนาที

#### 4.2.2 สมบัติของสเลอรี

จากผลการทดลองข้างต้นผู้วิจัยจึงได้เลือกใช้สารช่วยกระจายตัวปริมาณ 1 %โดยน้ำหนัก ใช้ในการเตรียมสเลอรีสูตร CR20:ML80 ถึง CR80:ML20 โดยทำการบดผสมแบบเปียกเป็นเวลา 24 ชั่วโมง (รายละเอียดแสดงในหัวข้อ 3.3.2) ผลการตรวจสอบการกระจายขนาดอนุภาคของสเลอรีที่ผ่านการบด แสดงดังรูปที่ 4.8 พบว่าสเลอรีทุกสูตรมีการกระจายขนาดอนุภาคใกล้เคียงกัน ขนาดอนุภาคอยู่ในช่วง 4.11-6.39 ไมครอน แสดงดังตารางที่ 4.3 ส่วนผลการตรวจสอบเปอร์เซ็นต์สัดส่วนของแข็ง การไหลตัว และความถ่วงจำเพาะซึ่งตรวจสอบตามมาตรฐาน ASTM D5125 แสดงดังตารางที่ 4.4



รูปที่ 4.8 การกระจาย ขนาดอนุภาคของสเลอรี

ตารางที่ 4.3 สรุปการกระจายขนาดอนุภาคของสเลอรี

สูตร	ขนาดอนุภาค (ไมครอน)		
	d <sub>50</sub>	d <sub>10</sub>	d <sub>90</sub>
CR20:ML80	4.11	1.00	10.77
CR30:ML30	5.73	1.45	16.29
CR40:ML60	5.39	1.45	17.89
CR50:ML50	5.18	1.45	16.84
CR60:ML40	6.46	1.56	17.49
CR70:ML30	6.07	1.60	18.28
CR80:ML20	6.39	1.61	19.29

พบว่าสเลอรีที่เตรียมได้ทุกสูตรมีเปอร์เซ็นต์สัดส่วนของแข็งอยู่ในช่วง 50-51 %โดยน้ำหนัก มีการไหลตัวอยู่ในช่วง 30-35 วินาที และมีความถ่วงจำเพาะอยู่ในช่วง 1.50-1.52 กรัมต่อลูกบาศก์เซนติเมตร

ตารางที่ 4.4 เปอร์เซนต์สัดส่วนของแข็ง การไหลตัวและความถ่วงจำเพาะของสเลอรี

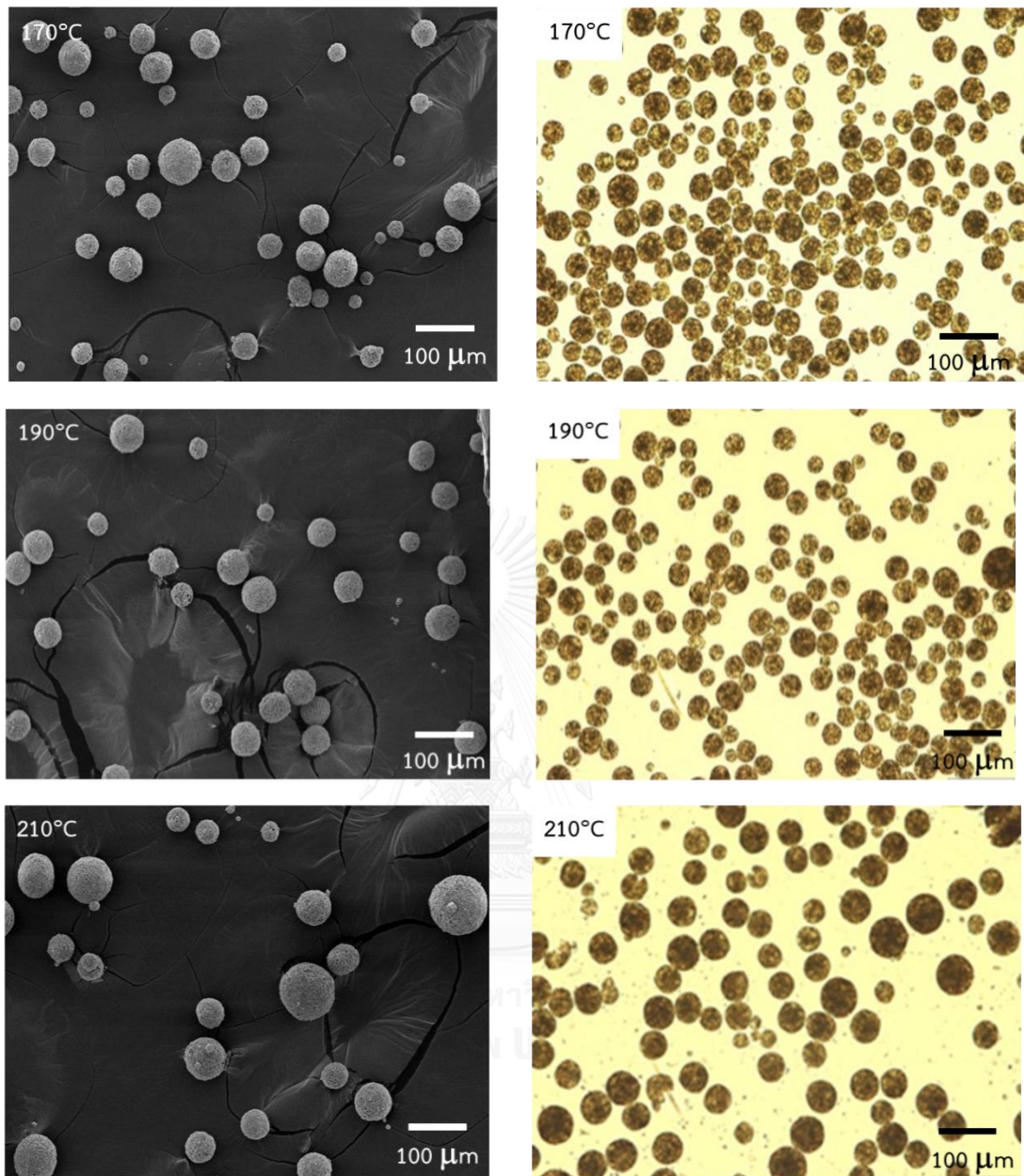
สูตร	สัดส่วนของแข็ง (%)	การไหลตัว* (sec)	ความถ่วงจำเพาะ* (g/cc)
CR20:ML80	50.51	31.5	1.50
CR30:ML70	51.20	33.8	1.52
CR40:ML60	50.62	30.0	1.50
CR50:ML50	50.51	31.3	1.50
CR60:ML40	51.21	34.7	1.52
CR70:ML30	50.62	31.0	1.50
CR80:ML20	50.62	30.0	1.50

\*การไหลตัวและความถ่วงจำเพาะ ตรวจสอบตามมาตรฐาน ASTM D5125

### 4.3 การศึกษาอิทธิพลของสภาวะการอบแห้งแบบพ่นฝอยที่มีต่อลักษณะของแกรนูล

#### 4.3.1 อิทธิพลของอุณหภูมิ

ในการศึกษาสภาวะการพ่นฝอยอบแห้งที่มีผลต่อลักษณะแกรนูลในช่วงแรกได้พิจารณาเลือกใช้สเลอรีสูตร CR70:ML30 เป็นตัวแทนในการศึกษา สเลอรีที่เตรียมได้มีปริมาณของแข็ง 50 %โดยน้ำหนัก และเติมสารช่วยกระจายตัวพอลิอะคลีลิก 1 %โดยน้ำหนัก กำหนดขนาดเส้นผ่านศูนย์กลางของหัวพ่น 2 มิลลิเมตร อัตราการไหลของสเลอรี 30 มิลลิลิตรต่อนาที และอัตราการให้ลมร้อน 30 ลูกบาศก์เมตรต่อชั่วโมง โดยทดลองปรับเปลี่ยนอุณหภูมิ (inlet temperature) เป็น 170 190 และ 210°C พบว่าแกรนูลที่ผลิตได้มีลักษณะกลม ตัน มีขนาดใหญ่เล็กปะปนกัน ผิวเรียบ รูปที่ 4.9 แสดงโครงสร้างจุลภาคของแกรนูลซึ่งตรวจสอบด้วยเทคนิค SEM และโครงสร้างภายในของแกรนูล (internal structure) โดยการใช้แสงส่องผ่านแกรนูลร่วมกับการเตรียมตัวอย่างด้วยวิธี liquid immersion method โดยใช้ methylene iodide ที่มีค่าดัชนีหักเห (refractive index,  $n=589 \text{ nm}$  ที่ 20°C) เท่ากับ 1.74-2.07<sup>[64]</sup> ซึ่งมีค่าใกล้เคียงกับวัสดุที่ใช้ในการเตรียมสเลอรี



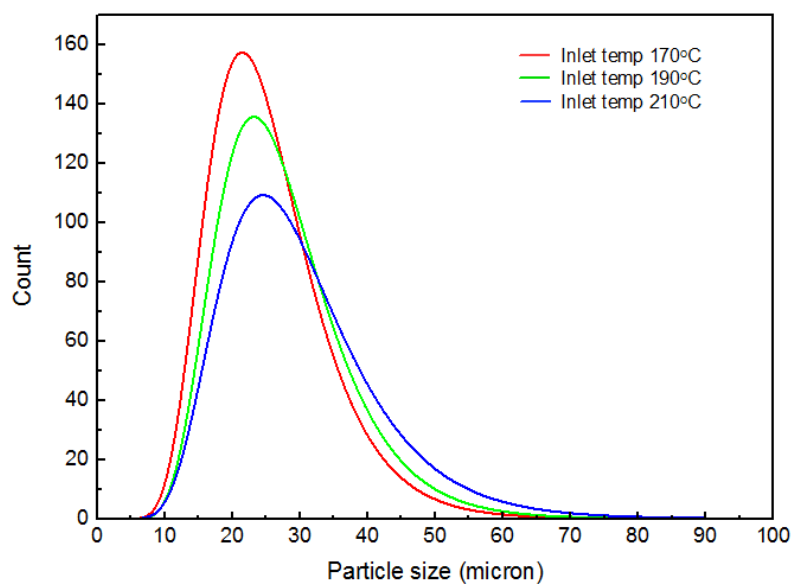
(ก) SEM

(ข) liquid immersion

รูปที่ 4.9 โครงสร้างจุลภาคของแกรนูลสูตร CR70:ML30 กำหนดอัตราการให้ลมร้อน 30 ลูกบาศก์เมตรต่อ ชั่วโมง อัตราการไหลของสเลอรี 30 มิลลิลิตรต่อนาที อุณหภูมิการพ่นฝอยอบแห้ง 170 190 และ 210°C ตรวจสอบด้วยเทคนิค (ก) SEM (ข) ใช้แสงส่องผ่านแกรนูลที่เตรียมโดยวิธี liquid immersion

จากรูปที่ 4.9 จะเห็นว่าแกรนูลที่เตรียมได้มีลักษณะกลม ตัน ผิวเรียบ การที่แกรนูลมีลักษณะกลมตันเนื่องจากสเลอริมีปริมาณสัดส่วนของแข็งสูง เมื่อเข้าสู่กระบวนการพ่นฝอยอบแห้งของเหลว (droplet) จะพัฒนาความหนาแน่นเพิ่มสูงขึ้นขณะที่น้ำระเหยออกจากระบบโดยอนุภาคไม่เกิดการเคลื่อนที่หรือเคลื่อนที่ต่ำ แกรนูลที่ได้จึงเกิดจากการเคลื่อนตัวของน้ำและสารเชื่อมประสานซึ่งทำหน้าที่เชื่อมให้อนุภาคติดกัน<sup>[65]</sup> ซึ่งลักษณะแกรนูลที่เตรียมได้นี้สอดคล้องกับหลายงานวิจัย ยกตัวอย่างเช่นงานวิจัยของ Zhanga และคณะ<sup>[55]</sup> ได้ทำการเปรียบเทียบปริมาณสัดส่วนของแข็งของสเลอริที่มีผลต่อพฤติกรรมของแกรนูล พบว่าในสเลอริที่มีสัดส่วนของแข็ง 50 %โดยน้ำหนัก แกรนูลที่ได้มีรูปร่างกลมตัน (solid shape) ขนาดอนุภาคเฉลี่ย 48.9 ไมครอน ในขณะที่แกรนูลที่ได้จากสเลอริที่มีสัดส่วนของแข็ง 40 %โดยน้ำหนัก มีลักษณะกลวง (hallow shape) งานวิจัยของ Choudhary<sup>[65]</sup> ได้ศึกษาพฤติกรรมของแกรนูลอะลูมินา พบว่าสัดส่วนของแข็งและอัตราการไหลของสเลอริส่งผลชัดเจนต่อรูปร่าง ผิว และขนาดของแกรนูล สเลอริที่มีสัดส่วนของแข็ง 40 %โดยน้ำหนัก จะมีลักษณะกลมตัน เนื่องจากสเลอริมีความหนืดสูงซึ่งทำให้แรงดึงผิวของระบบระหว่างกระบวนการพ่นฝอยอบแห้งเปลี่ยนไป

เมื่อพิจารณาอิทธิพลของอุณหภูมิที่มีต่อการกระจายขนาดของแกรนูลสูตร CR70:ML30 โดยทำการศึกษาที่อุณหภูมิ 170 190 และ 210°C กำหนดอัตราการให้ลมร้อน 30 ลูกบาศก์เมตรต่อชั่วโมง อัตราการไหลของสเลอริ 30 มิลลิลิตรต่ออนาที เมื่อพิจารณารูปที่ 4.10 พบว่าแกรนูลขนาด 25 ไมครอนมีปริมาณมากที่สุดที่อุณหภูมิการพ่นฝอยอบแห้ง 170°C นอกจากนั้นพบว่า การเพิ่มขึ้นของอุณหภูมิส่งผลให้แกรนูลมีขนาดใหญ่ขึ้น ทั้งนี้อาจเนื่องมาจากการเพิ่มขึ้นของอุณหภูมิส่งเสริมให้การระเหยของน้ำและการแข็งตัวของผิวแกรนูลเกิดในอัตราที่เร็วขึ้น ป้องกันไม่ให้เกิดการหดตัวในระหว่างการอบแห้งซึ่งส่งผลให้อนุภาคมีขนาดใหญ่<sup>[66]</sup> นอกจากปัจจัยด้านอุณหภูมิแล้ว ยังมีปัจจัยอื่นที่ส่งผลต่อพฤติกรรมของแกรนูล เช่น อัตราการไหลของสเลอริ อัตราการให้ลมร้อน ในการทดลองนี้ กำหนดอัตราการให้ลมร้อน 30 ลูกบาศก์เมตรต่อชั่วโมง และได้เปรียบเทียบผลกับงานวิจัยของชนมณีภาและคณะ<sup>[67]</sup> ซึ่งเตรียมแกรนูลที่มีขนาดประมาณ 10 ไมครอน เมื่อกำหนดอัตราการให้ลมร้อน 35 ลูกบาศก์เมตรต่อชั่วโมง อัตราการไหลของสเลอริเท่ากันคือ 30 มิลลิลิตรต่ออนาที และอุณหภูมิ 170°C ซึ่งสามารถอธิบายได้ว่าเมื่ออัตราการให้ลมร้อนสูงขึ้น ทำให้หยดของเหลวอยู่ในห้องอบแห้งเป็นระยะเวลาสั้นขึ้น ส่งผลให้หยดของเหลวสัมผัสอากาศร้อนนานขึ้น แกรนูลที่ได้จึงมีขนาดเล็กลง



รูปที่ 4.10 การกระจายขนาดแกรนูลสูตร CR70:ML30 ที่อุณหภูมิการพ่นฝอยอบแห้ง 170 190 และ 210°C

ตารางที่ 4.5 ความหนาแน่นหลังเคาะ (tapped density) และความหนาแน่นหลังเติมผง (filled density) ของแกรนูลสูตร CR70:ML30

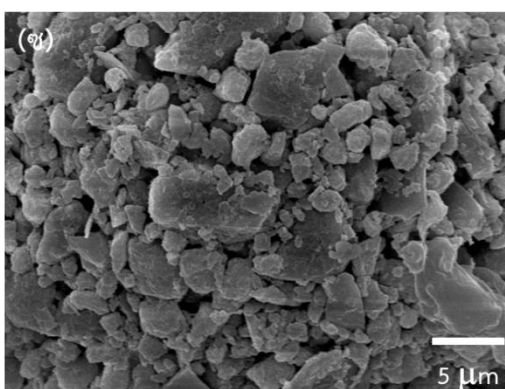
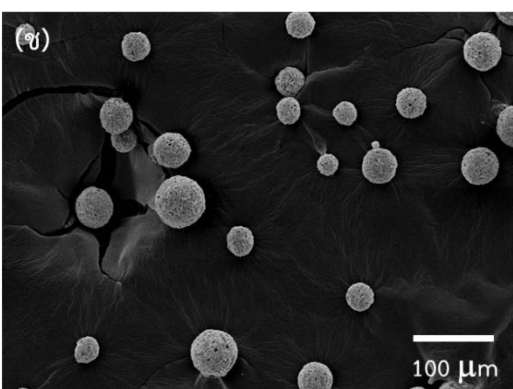
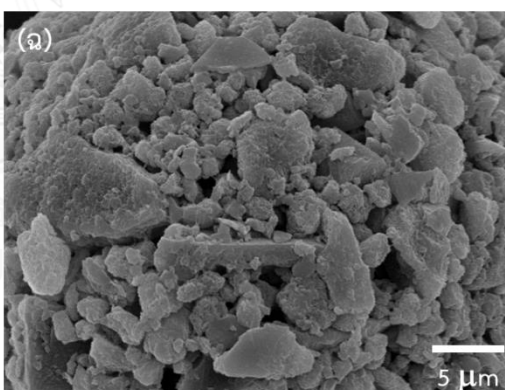
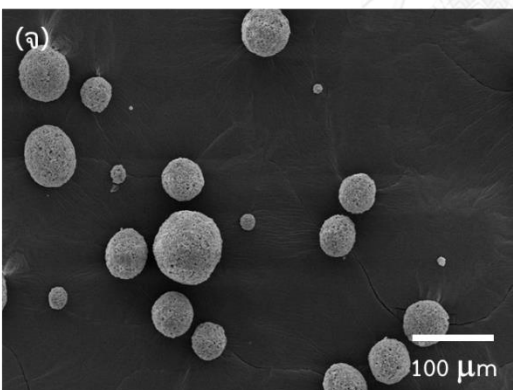
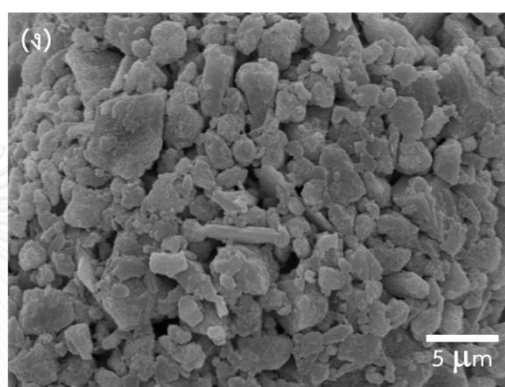
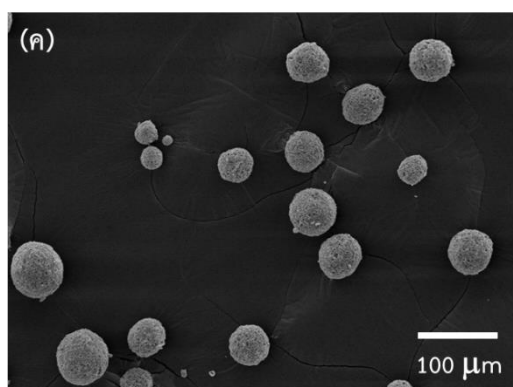
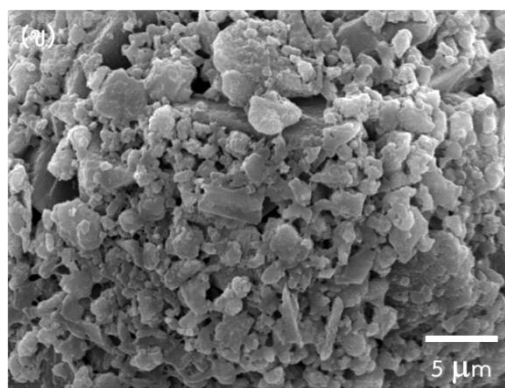
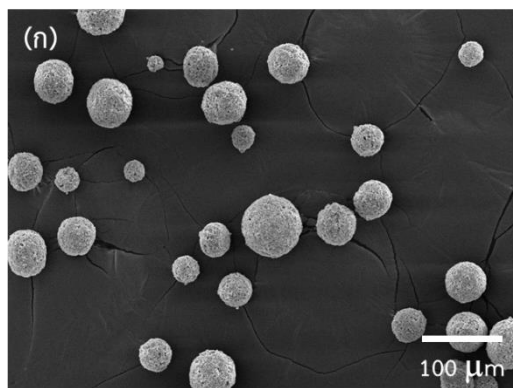
อุณหภูมิพ่นฝอยอบแห้ง (°C)	ความหนาแน่นหลังเคาะ* (g/cm <sup>3</sup> )	ความหนาแน่นหลังเติมผง (g/cm <sup>3</sup> )
170°C	0.86 ± 0.011	0.80 ± 0.011
190°C	0.79 ± 0.012	0.72 ± 0.010
210°C	0.72 ± 0.011	0.70 ± 0.009

\*ความหนาแน่นหลังเคาะ ตรวจสอบตามมาตรฐาน ASTM B527

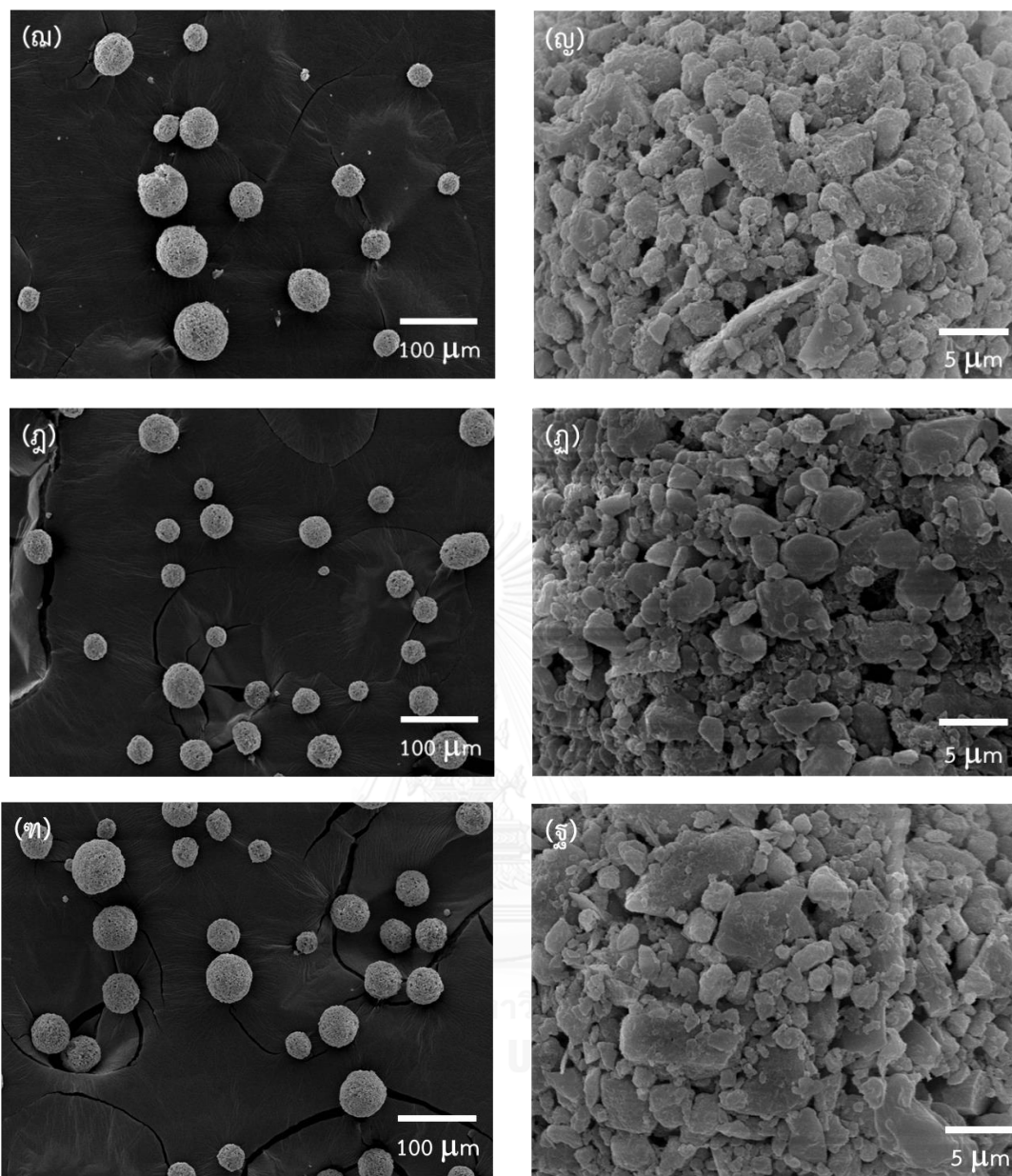
การเตรียมอนุภาคให้มีรูปร่างกลม สม่ำเสมอ ส่งผลต่อความสามารถในการจัดเรียงตัวของอนุภาคระหว่างกระบวนการอัดขึ้นรูป<sup>[68]</sup> จากการทดลองวัดความหนาแน่นหลังเคาะ (tapped density) และความหนาแน่นหลังเติมผง (filled density) สูตร CR70:ML30 ที่อุณหภูมิการพ่นฝอยอบแห้ง 170 190 และ 210°C (ตารางที่ 4.5) พบว่าแกรนูลมีความสามารถในการความหนาแน่นหลังเคาะและความหนาแน่นหลังเติมผงใกล้เคียงกันคือ 0.86 0.79 และ 0.72 กรัมต่อลูกบาศก์เซนติเมตร และ 0.80 0.72 และ 0.70 กรัมต่อลูกบาศก์เซนติเมตร ตามลำดับ จะเห็นได้ว่าที่อุณหภูมิการพ่นฝอยอบแห้ง 170°C มีความหนาแน่นในการแพคตัวของแกรนูลสูงกว่าที่อุณหภูมิ 190 และ 210°C ดังนั้นในการทดลองขั้นต่อไปผู้วิจัยจึงพิจารณาเลือกใช้อุณหภูมิการพ่นฝอยอบแห้ง 170°C

### 4.3.2 โครงสร้างจุลภาคของแกรนูล

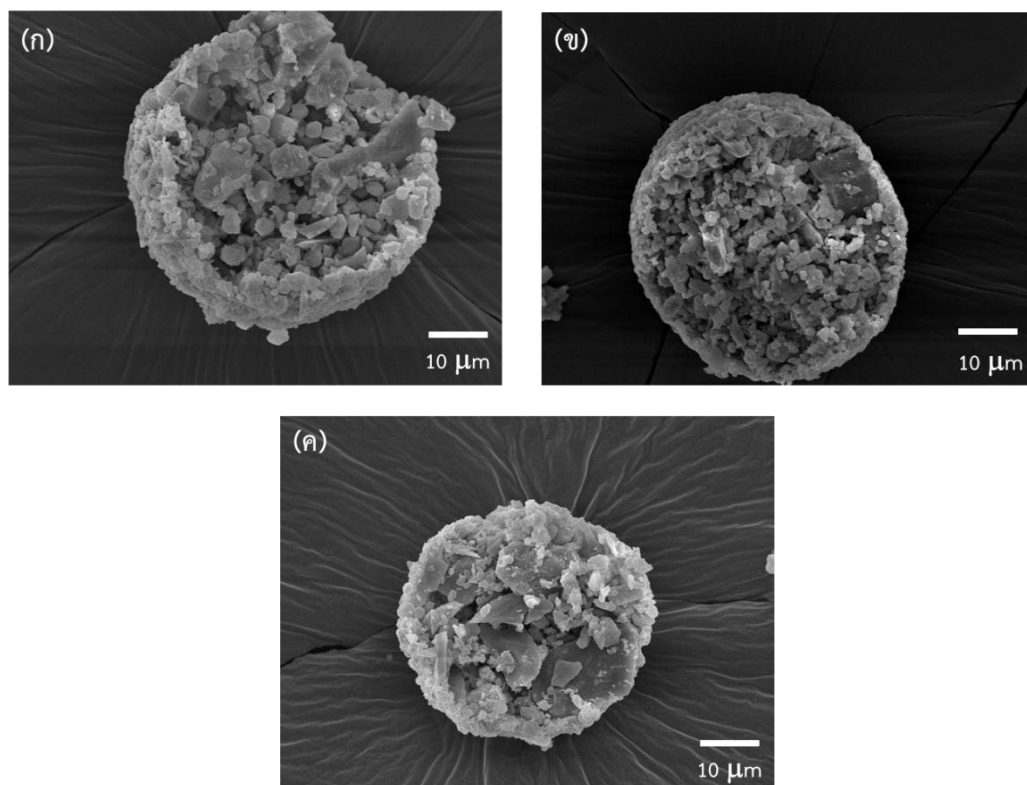
โครงสร้างจุลภาคและโครงสร้างภาคตัดขวางของแกรนูลสูตร CR20:ML80 CR30:ML70 CR40:ML60 CR50:ML50 CR60:ML40 CR70:ML30 และ CR80:ML20 รูปที่ 4.11 และรูปที่ 4.12 ในระหว่างที่สเลอรีผ่านหัวพ่นเข้าสู่ห้องร้อน และสภาพเป็นหยดขนาดเล็ก เมื่อได้รับความร้อนจะเกิดการระเหยของของเหลวหรือตัวทำละลายอย่างรวดเร็วและเปลี่ยนสภาพจากหยดของเหลวมาเป็นแกรนูลที่มีลักษณะกลมตัน มีขนาดสม่ำเสมอและมีการไหลตัวที่ดี กลไกการระเหยของหยดของเหลวในห้องร้อนสามารถจำแนกได้เป็น 2 ระยะ ได้แก่ ระยะแรกซึ่งการระเหยบริเวณผิวของหยดของเหลวเกิดขึ้นอย่างรวดเร็ว ได้เป็นชั้นฟิล์มที่อ้อมตัวบนผิวของหยดของเหลว ระยะนี้ความชื้นภายในแกรนูลยังมีเพียงพอต่อการทดแทนการระเหยที่ผิว การระเหยจึงดำเนินไปด้วยอัตราเร็วที่คงที่ จนกระทั่งปริมาณความชื้นลดลงและไม่เพียงพอต่อการทดแทนการระเหยเป็นค่าวิกฤติค่าหนึ่ง จึงเข้าสู่ระยะที่สอง จะเกิดเป็นชั้นเปลือกแข็งหุ้มแกรนูลและอัตราการระเหยในช่วงนี้จะขึ้นกับอัตราการแพร่ของ ความชื้นผ่านชั้นเปลือกแห้ง โดยอัตราการแพร่นี้จะลดลงอย่างต่อเนื่องเพราะชั้นเปลือกแห้งมีความหนาเพิ่มขึ้นตามเวลา จากผลการตรวจสอบโครงสร้างจุลภาคของแกรนูลทั้ง 7 สูตร พบว่าแกรนูลมีลักษณะกลม ผิวเรียบ อาจเนื่องมาจากขนาดอนุภาคของสเลอรีที่ผ่านการบด 24 ชั่วโมงมีขนาดเล็ก ( $d_{50} = 4-6$  ไมครอน) นอกจากนี้การหดตัวของหยดของเหลวอย่างช้าๆ จะนำไปสู่การกระจายตัวอย่างสม่ำเสมอของอนุภาคและได้แกรนูลที่แน่นที่ปราศจากการก่อตัวของชั้นเปลือกแห้ง







รูปที่ 4.11 โครงสร้างจุลภาคของแกรนูล (ก-ข) CR20:ML80 (ค-ง) CR30:ML70 (จ-ฉ) CR40:ML60 (ช-ซ) CR50:ML50 (ณ-ญ) CR60:ML40 (ฎ-ฏ) CR70:ML30 และ (ฑ-ฐ) CR80:ML20

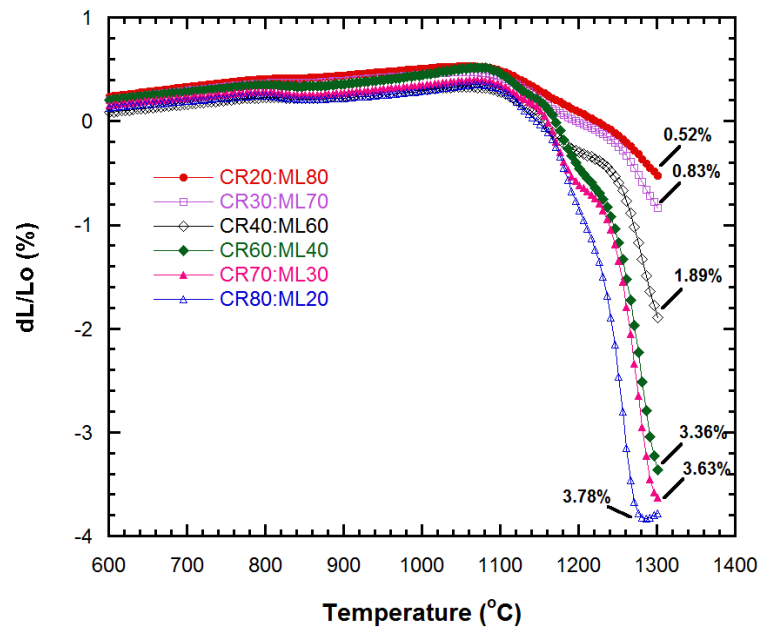


รูปที่ 4.12 ภาพภาคตัดขวางของแกรนูลสูตร (ก) CR20:ML80 (ข) CR40:ML60 (ค) CR60:ML40

#### 4.4 สมบัติของคอร์เตียไรต์-มุลไลต์หลังเผาผนึก

##### 4.4.1 ศึกษาพฤติกรรมการเผาผนึกของชิ้นงานคอร์เตียไรต์-มุลไลต์

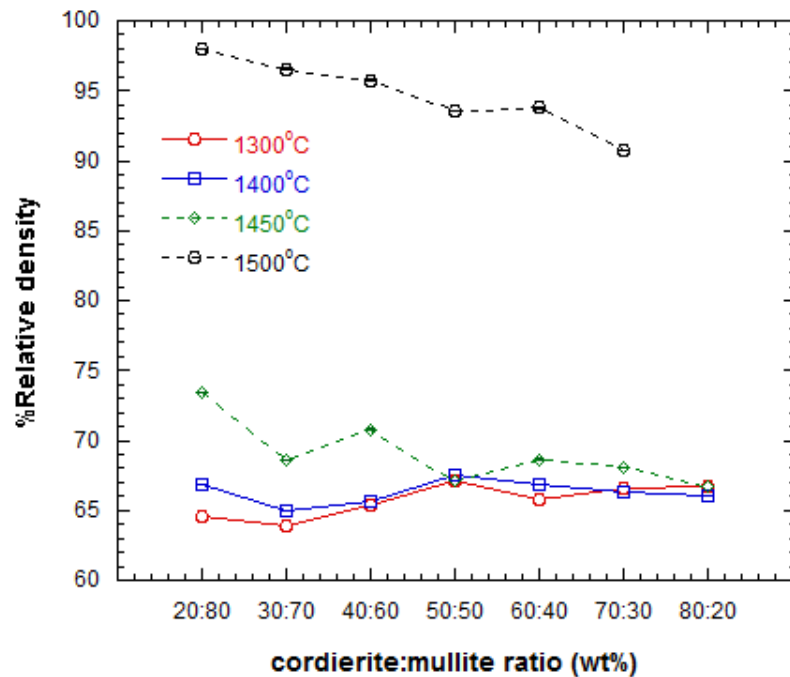
ชิ้นงานดิบสูตร CR20:ML80 ถึง CR80:ML20 ถูกนำมาศึกษาความสามารถในการเผาผนึก (sinterability) ด้วยเทคนิค dilatometer เริ่มจากการขึ้นรูปชิ้นงานแท่งสี่เหลี่ยม ขนาดกว้าง 6 มิลลิเมตร หนา 4 มิลลิเมตร และยาว 35 มิลลิเมตร ช่วงอุณหภูมิทดสอบ 30-1300°C อัตราการเพิ่มอุณหภูมิ 10°C/min จากรูปที่ 4.13 พบว่าชิ้นงานสูตร CR20:ML80 CR30:ML70 CR40:ML60 CR60:ML40 CR70:ML30 และ CR80:ML20 เริ่มเกิดการหดตัวที่อุณหภูมิประมาณ 1226 1200 1175 1170 1160 และ 1150°C ตามลำดับ ชิ้นงาน CR80:ML20 เริ่มเกิดการหดตัวที่อุณหภูมิต่ำสุด (0.028 เปอร์เซ็นต์) และที่อุณหภูมิ 1300°C ชิ้นงานมีการหดตัวสูงสุด 3.78 เปอร์เซ็นต์ เนื่องจากส่วนผสมมีปริมาณซิลิกาสูง ในขณะที่ชิ้นงานสูตร CR20:ML80 CR30:ML70 CR40:ML60 CR60:ML40 และ CR70:ML30 เริ่มมีการหดตัวที่อุณหภูมิสูงกว่า และที่อุณหภูมิ 1300°C ชิ้นงานมีการหดตัว 0.52 0.83 1.89 3.36 และ 3.63 เปอร์เซ็นต์ ตามลำดับ เนื่องจากปริมาณอะลูมินาที่อยู่ในส่วนผสมซึ่งมีจุดหลอมตัวสูงกว่าซิลิกา



รูปที่ 4.13 การขยายตัวเมื่อได้รับความร้อนของชิ้นงานสูตร CR20:ML80 ถึง CR80:ML20

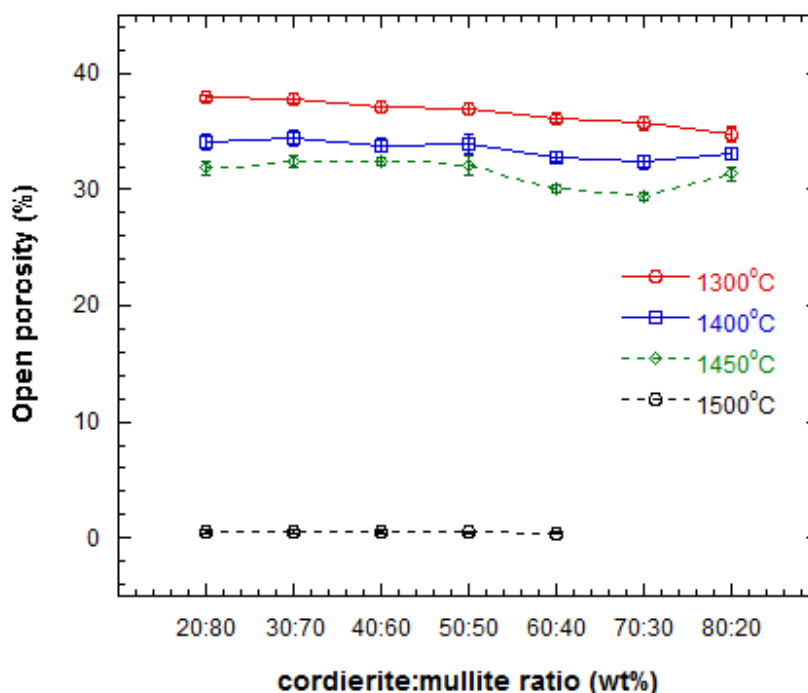
#### 4.4.2 ความหนาแน่นและรูพรุนเปิด

ความหนาแน่นของชิ้นงานสูตร CR20:ML80 ถึง CR80:ML20 หลังการเผาผนึกที่อุณหภูมิ 1300 1400 1450 และ 1500°C เวลายืนไฟ 2 ชั่วโมง แสดงดังรูปที่ 4.14 ที่ช่วงอุณหภูมิการเผาผนึก 1300°C ถึง 1500°C ชิ้นงานทุกสูตรมีความหนาแน่นหลังเผาเพิ่มขึ้นเมื่ออุณหภูมิในการเผาผนึกสูงขึ้น โดยในแต่ละสูตรมีความหนาแน่นเพิ่มขึ้นเล็กน้อยเมื่อเพิ่มอุณหภูมิการเผาผนึก จาก 1300°C เป็น 1400°C (อยู่ในช่วง 63-68 เปอร์เซ็นต์) ชิ้นงานเผาผนึกที่อุณหภูมิ 1450°C มีความหนาแน่นสูงกว่าที่อุณหภูมิ 1300 และ 1400°C ค่อนข้างชัดเจน และพบว่าเมื่อเผาผนึกที่อุณหภูมิ 1500°C ชิ้นงานทุกสูตรมีความหนาแน่นสูงกว่า 90 เปอร์เซ็นต์ นอกจากนี้ยังพบว่าชิ้นงานสูตร CR80:ML20 เกิดการหลอมตัวที่อุณหภูมิดังกล่าวเนื่องจากชิ้นงานมีปริมาณคอร์เดียไรต์สูงกว่าสูตรอื่น



รูปที่ 4.14 ความหนาแน่นสัมพัทธ์ของชิ้นงานสูตร CR20:ML80 ถึง CR80:ML20 หลังเผาผนึกที่อุณหภูมิ 1300 1400 1450 และ 1500°C เวลาเย็นไฟ 2 ชั่วโมง

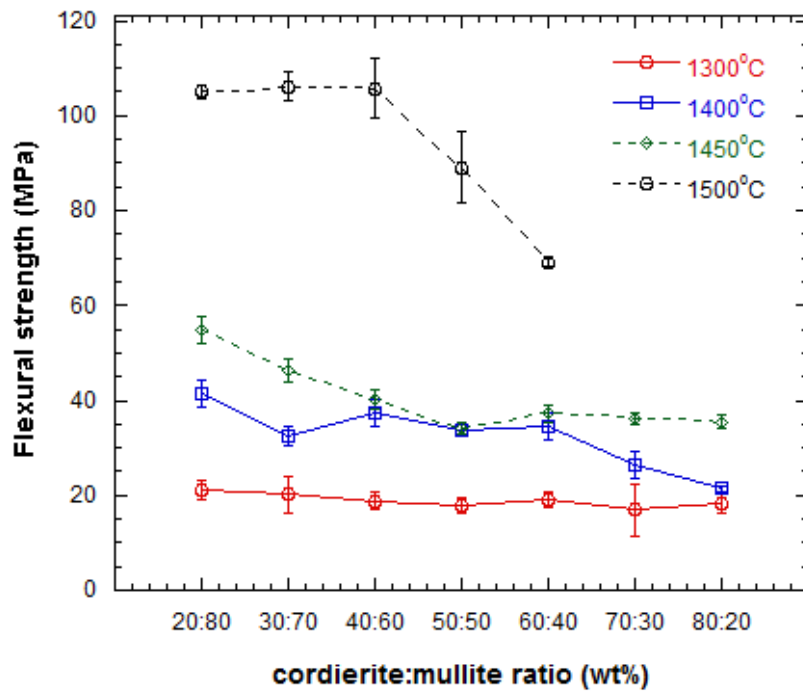
รูปที่ 4.15 แสดงรูปพรุนเปิดของชิ้นงานสูตร CR20:ML80 ถึง CR80:ML20 หลังเผาผนึกที่อุณหภูมิ 1300 1400 1450 และ 1500°C เวลาเย็นไฟ 2 ชั่วโมง พบว่ารูปพรุนเปิดของชิ้นงานทุกสูตรลดลงเมื่ออุณหภูมิในการเผาผนึกสูงขึ้น ชิ้นงานเผาผนึกที่อุณหภูมิ 1300°C มีรูปพรุนสูงสุด 34-37 เปอร์เซ็นต์ ที่อุณหภูมิดังกล่าวชิ้นงานมีรูปพรุนลดลงเมื่อปริมาณคอร์เดียไรต์ในชิ้นงานหลังเผาสูงขึ้น อาจเนื่องมาจากการเพิ่มขึ้นของเฟสของเหลวทำให้เกรนคอร์เดียไรต์เริ่มต่อกัน ชิ้นงานเผาผนึกที่อุณหภูมิ 1450°C มีรูปพรุนลดลงอยู่ในช่วง 29-32 เปอร์เซ็นต์ เมื่อเปรียบเทียบกับชิ้นงานเผาผนึกที่อุณหภูมิ 1300 และ 1400°C อาจเนื่องจากเกิดเฟสของเหลวมากขึ้นเนื่องจากคอร์เดียไรต์หลอมและไหลเข้าไปในรูปพรุนส่งผลให้ปริมาณรูปพรุนในชิ้นงานลดลง จะเห็นว่าชิ้นงานเผาผนึกที่อุณหภูมิ 1500°C มีรูปพรุนต่ำอย่างเห็นชัด (0.3-0.6 เปอร์เซ็นต์) เนื่องจากอุณหภูมิดังกล่าวเกินจุดหลอมตัวของคอร์เดียไรต์ (1460°C) ณ ช่วงอุณหภูมิดังกล่าวคอร์เดียไรต์จะเปลี่ยนเฟสเป็นมุลไลต์และเฟสของเหลว



รูปที่ 4.15 รูพรุนเปิดของชิ้นงานสูตร CR20:ML80 ถึง CR80:ML20 หลังเผาที่อุณหภูมิ 1300 1400 1450 °C และ 1500 °C เวลายืนไฟ 2 ชั่วโมง

#### 4.4.3 ความต้านแรงดัดของชิ้นงาน

ความต้านแรงดัดของชิ้นงานสูตร CR20:ML80 ถึง CR80:ML20 เผาที่อุณหภูมิ 1300 1400 1450 และ 1500 °C เวลายืนไฟ 2 ชั่วโมง แสดงดังรูปที่ 4.16 พบว่าค่าความต้านแรงดัดของชิ้นงานมีแนวโน้มสูงขึ้นเมื่อเพิ่มอุณหภูมิการเผา ที่อุณหภูมิการเผา 1500 °C ชิ้นงานทุกสูตรมีค่าความแข็งแรงสูงสุด ผลการทดลองแสดงให้เห็นว่าปริมาณแอนดราลูไซด์ที่เพิ่มขึ้นในส่วนผสมก่อให้เกิดเฟสมุลไลต์ปริมาณมากในชิ้นงานหลังเผา ซึ่งส่งผลต่อค่าความแข็งแรง ผลการทดลองในส่วนนี้สอดคล้องกับงานวิจัยของ Yan W. และคณะ<sup>[69]</sup> ซึ่งทำการขึ้นรูปวัสดุทนไฟคอร์เดียไรต์-มุลไลต์ที่มีน้ำหนักเบาและมีสมบัติทางกลสูง พบว่าเมื่อปริมาณมุลไลต์เป็น 46 %โดยน้ำหนัก จะทำให้ชิ้นงานมีความแข็งแรงอัด 138.1 MPa มีความต้านแรงดัด 20.5 MPa และเมื่อเพิ่มปริมาณมุลไลต์เป็น 88 %โดยน้ำหนัก ส่งผลให้ชิ้นงานมีความแข็งแรงอัด 170 MPa และมีความต้านแรงดัด 22.5 MPa และงานวิจัยของ Ozel และคณะ<sup>[43]</sup> ทำการขึ้นรูปวัสดุเชิงประกอบคอร์เดียไรต์ที่มีมุลไลต์ 0 10 20 และ 30 %โดยน้ำหนัก พบว่าความต้านแรงดัดเพิ่มขึ้นจาก 52 เป็น 93 MPa แปรผันโดยตรงกับปริมาณมุลไลต์ที่เพิ่มขึ้น



รูปที่ 4.16 ความต้านแรงดัดของชิ้นงานสูตร CR20:ML80 ถึง CR80:ML20 หลังการเผาผนึกที่อุณหภูมิ 1300 1400 1450 และ 1500°C เวลายืนไฟ 2 ชั่วโมง

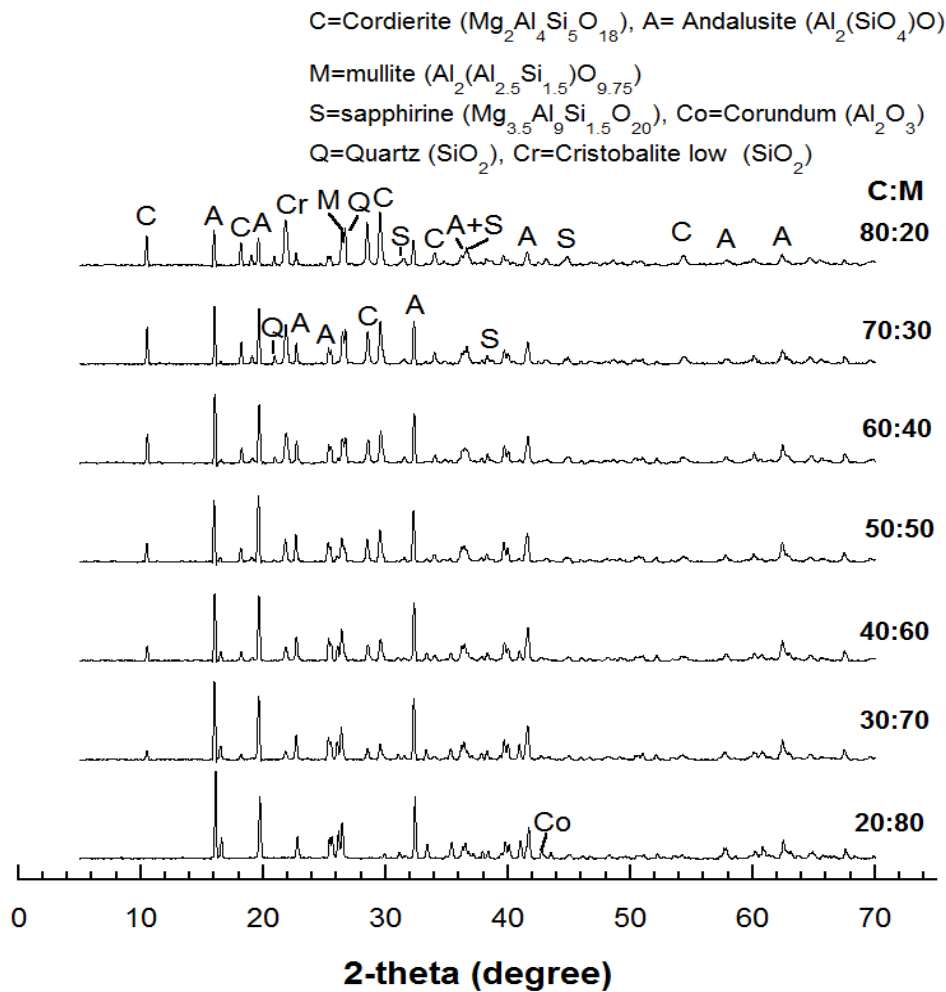
#### 4.4.4 องค์ประกอบเฟสของชิ้นงานหลังเผา

รูปที่ 4.17-4.20 แสดงผลการวิเคราะห์เฟสในชิ้นงาน CR20:ML80 ถึง CR80:ML20 เผาผนึกที่อุณหภูมิ 1300 1400 1450 และ 1500°C จากรูปที่ 4.17 ซึ่งแสดงเฟสของชิ้นงานเผาผนึกอุณหภูมิ 1300°C พบว่าในชิ้นงานทุกสูตรแอนดราลูไซต์บางส่วนเริ่มเปลี่ยนเฟสเป็นมุลไลต์ (ตำแหน่งพีคหลักของเฟสมุลไลต์  $2\theta = 25.985$  และ  $26.296$  องศา มีโครงสร้างผลึกเป็นแบบอโรโรมบิก ตรงกับการวัดมาตรฐาน JCPDS เลขที่ 01-082-0037) การเปลี่ยนแปลงเฟสดังกล่าวส่งผลให้มีเฟสซิลิกาหลงเหลือในระบบ An Y. และคณะ<sup>[70]</sup> ได้แสดงปฏิกิริยาการเปลี่ยนแปลงของแอนดราลูไซต์ไปเป็นมุลไลต์และซิลิกาที่อุณหภูมิสูง ดังนี้ (4.1)



จากรูปที่ 4.17 พบว่า ณ ช่วงอุณหภูมิ 1300°C อัตราการเกิดเฟสมุลไลต์เป็นไปอย่างช้า โดยชิ้นงานทุกสูตรยังคงมีเฟสแอนดราลูไซต์ ซึ่งเป็นวัฏดุติบเริ่มต้นหลงเหลืออยู่ (ตำแหน่งตำแหน่งพีคหลัก  $2\theta = 15.959$   $19.576$  และ  $32.244$  องศา ลักษณะโครงสร้างผลึกเป็นแบบอโรโรมบิก ตรงกับการวัดมาตรฐาน JCPDS เลขที่ 00-039-0376) กลไกการเปลี่ยนเฟสจากแอนดราลูไซต์เป็นมุลไลต์สามารถแบ่งออกเป็น 2 ขั้นตอน (1) ที่อุณหภูมิต่ำกว่าอุณหภูมิ 1400°C การเกิดเฟสมุลไลต์และซิลิกาจะเกิด

ในบริเวณขอบเกรน (grain boundaries) แนวแตกเรียบ (cleavage planes) หรือตำหนิบริเวณแลตทิซ เป็นต้น มุสไลต์ที่เกิดขึ้นในช่วงอุณหภูมินี้จะมีสถานะเป็นของแข็ง (2) ที่อุณหภูมิสูงกว่า  $1400^{\circ}\text{C}$  ตามทฤษฎีแล้วการเปลี่ยนเฟสจากแอนดาลูไซต์เป็นมุสไลต์ในสภาวะของเหลวเกิดขึ้นที่อุณหภูมิ  $1590^{\circ}\text{C}$  ซึ่งเป็นจุดยูเทคติกในระบบเฟส  $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$  อัตราการเปลี่ยนเฟสของแอนดาลูไซต์เป็นมุสไลต์ขึ้นอยู่กับขนาดของอนุภาคและสารเจือปน แต่โดยทั่วไปพบว่าแอนดาลูไซต์เริ่มเปลี่ยนเฟสเป็นมุสไลต์ที่อุณหภูมิ  $1250^{\circ}\text{C}$  อัตราการเปลี่ยนเฟสเพิ่มสูงขึ้นเมื่ออุณหภูมิสูงขึ้น และการเปลี่ยนเฟสเกิดโดยสมบูรณ์ที่อุณหภูมิ  $1500^{\circ}\text{C}$  <sup>[35,71]</sup> อย่างไรก็ตามในช่วงอุณหภูมิการเผาผนึก  $1300^{\circ}\text{C}$  พบเฟสคอร์เดียไรต์ (ตำแหน่งพีคหลัก  $2\theta=10.431$   $26.362$   $28.420$   $29.459$  องศา) ในระบบ คอร์เดียไรต์สามารถเกิดขึ้นจากปฏิกิริยาของแข็ง (solid state reaction) ระหว่างแมกนีเซียมออกไซด์ อะลูมินา และซิลิกา กลไกการเกิดคอร์เดียไรต์ค่อนข้างซับซ้อน เกี่ยวข้องกับการเกิดเฟสร่วมและเฟสเมตาสเตเบิล เมื่อพิจารณาจากเฟสไดอะแกรม  $\text{MgO-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$  (ดังรูป 2.2) จะเห็นว่าปรากฏเฟสดังกล่าวช่วงอุณหภูมิแคบ ดังนั้นเมื่ออุณหภูมิหรือระยะเวลาในการเผาไม่เพียงพอหรืออัตราส่วนสารเชิงสัมพันธ์ผิดไปจากเดิมเพียงเล็กน้อย การเกิดเป็นคอร์เดียไรต์บริสุทธิ์จะเป็นไปได้ยาก นอกจากนี้พบว่าใน ณ ช่วงอุณหภูมิดังกล่าวพบเฟสร่วมเป็นเฟสแซฟไฟริน ( $4\text{MgO}\cdot 5\text{Al}_2\text{O}_3\cdot 2\text{SiO}_2$ ) อาจเกิดจากการทำปฏิกิริยาระหว่างคริสโตบาไลต์และสปิเนลที่ไม่สมบูรณ์ (nonstoichiometric) ที่มีปริมาณของอะลูมินาส่วนเกิน <sup>[72]</sup> และยังคงพบเฟสควอตซ์ คริสโตบาไลต์ และอะลูมินาหลงเหลือจากการทำปฏิกิริยา ณ ช่วงอุณหภูมิดังกล่าว

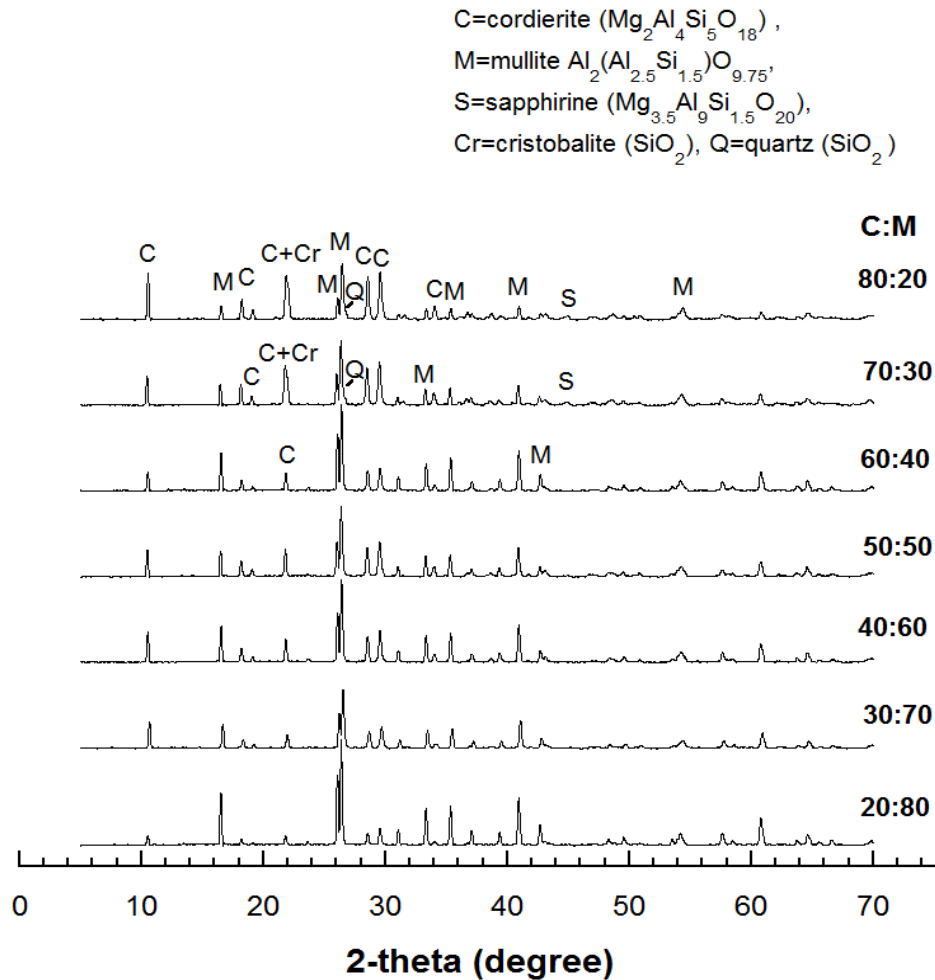


รูปที่ 4.17 องค์ประกอบเฟสของชิ้นงานสูตร CR20:ML80 ถึง CR80:ML20 เผาผนึกที่อุณหภูมิ  $1300^{\circ}C$  เวลายืนไฟ 2 ชั่วโมง

รูปที่ 4.18 แสดงองค์ประกอบเฟสของชิ้นงานสูตร CR20:ML80 ถึง CR80:ML20 ที่อุณหภูมิเผาผนึก  $1400^{\circ}C$  พบคอร์เดียไรต์และมุลไลต์เป็นเฟสหลักในชิ้นงานทุกสูตร ไม่พบเฟสแอนดาลูไซต์ซึ่งแสดงถึงการเปลี่ยนเฟสเป็นมุลไลต์โดยสมบูรณ์ ความสูงของพีคแซฟฟิริน คริสโตบาไลท์และควอตซ์ลดลง ในขณะที่พีคของคอร์เดียไรต์และมุลไลต์สูงขึ้น อย่างไรก็ตามยังคงพบแซฟฟิริน คริสโตบาไลท์และควอตซ์เป็นเฟสรอง ในชิ้นงานหลังเผาสูตร CR70:ML30 และCR80:ML20 การพบคอร์เดียไรต์และมุลไลต์เป็นเฟสหลักที่  $1400^{\circ}C$  อาจเป็นผลมาจากขนาดอนุภาควัตถุดิบเริ่มต้นที่ใช้ในการทดลอง อนุภาคที่มีขนาดเล็กจะมีพื้นที่ผิวสูง ส่งผลให้อัตราการเกิดปฏิกิริยาเร็วขึ้น Albilil A. A. และคณะ<sup>[73]</sup> พบเฟสของคริสโตบาไลท์เช่นเดียวกันกับงานวิจัยนี้ ในชิ้นงานคอร์เดียไรต์-มุลไลต์เผาผนึกอุณหภูมิ  $1400^{\circ}C$  การเกิดเฟสดังกล่าวเป็นผลมาจากอัตราเกิดปฏิกิริยาของแข็ง อันเนื่องมาจากความละเอียด

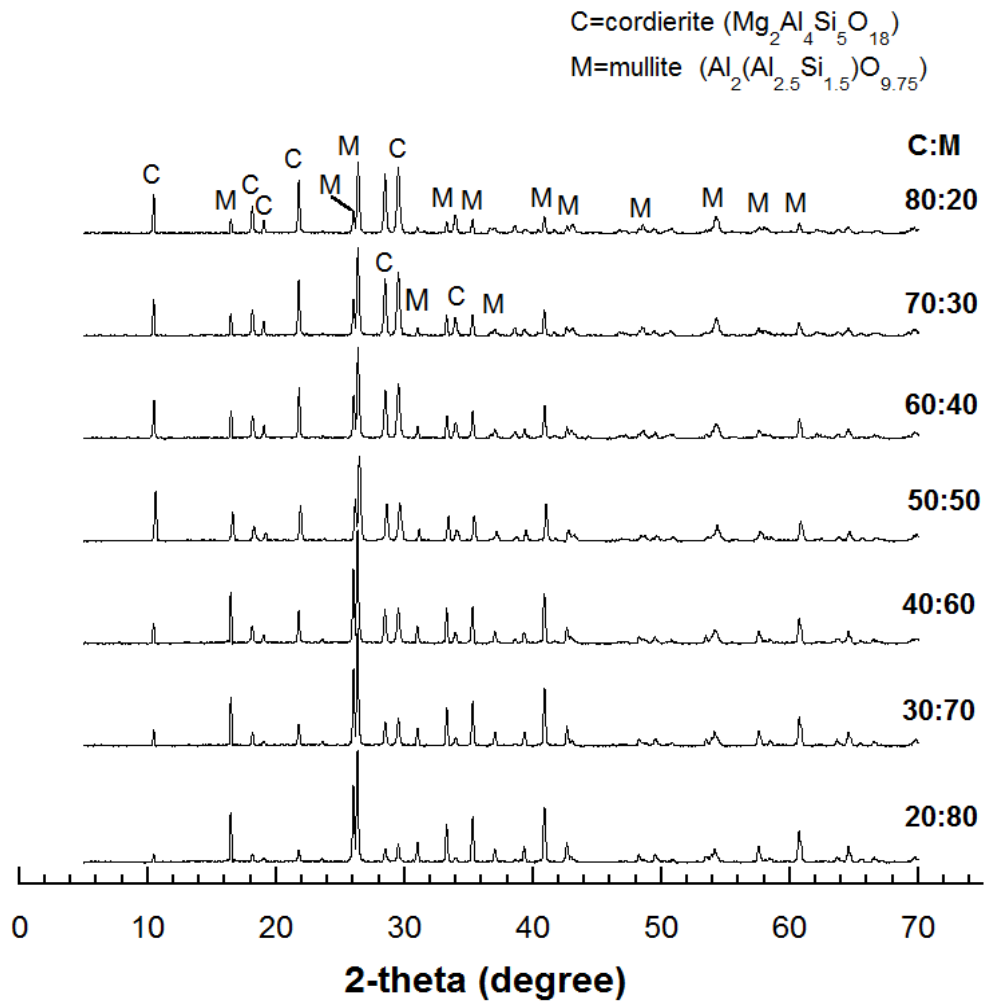


ของขนาดอนุภาค รวมถึงการกระจายขนาดอนุภาค ความไม่สม่ำเสมอและการเกิดปฏิกิริยาของควอตซ์



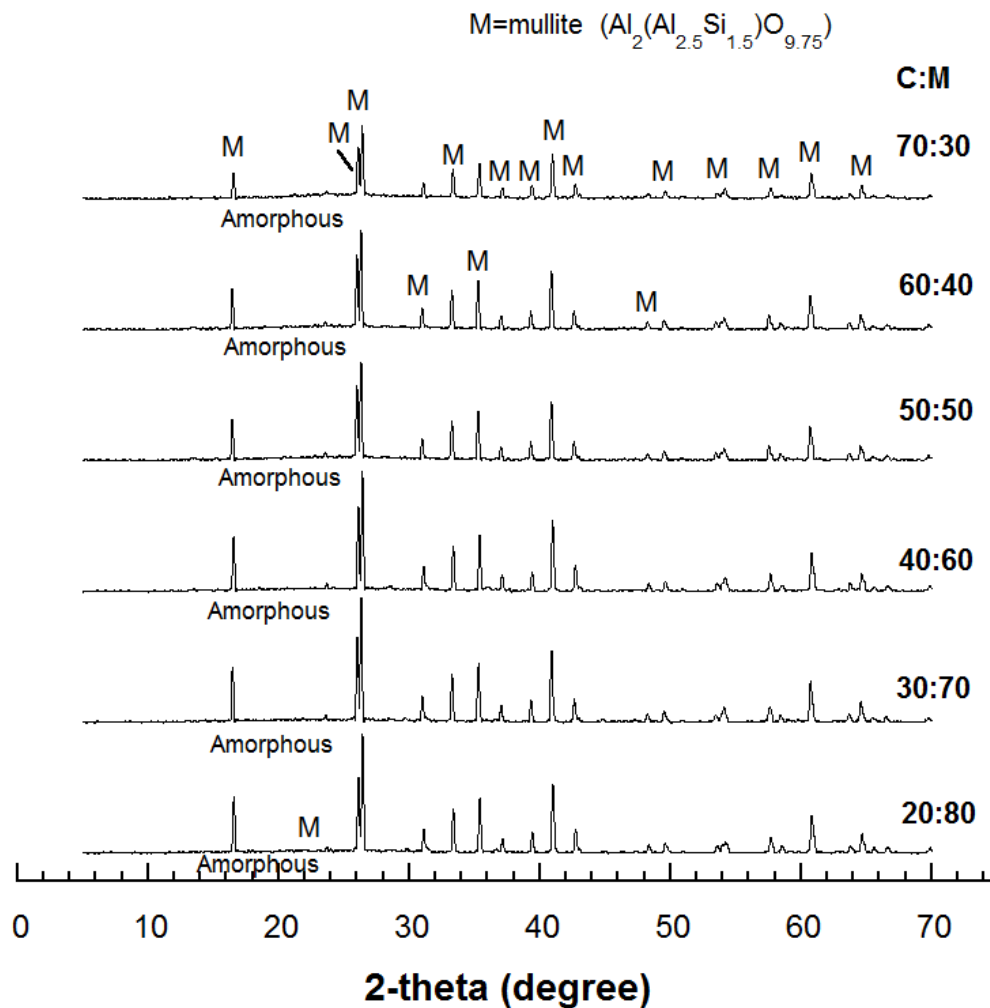
รูปที่ 4.18 องค์ประกอบเฟสของชิ้นงานสูตร CR20:ML80 ถึง CR80:ML20 เผาผนึกที่อุณหภูมิ 1400°C เวลายืนไฟ 2 ชั่วโมง

รูปที่ 4.19 แสดงองค์ประกอบเฟสของชิ้นงานสูตร CR20:ML80 ถึง CR80:ML20 เผาผนึกที่อุณหภูมิ 1450°C เวลายืนไฟ 2 ชั่วโมง พบเพียงเฟสคอร์เดียไรต์และมุลไลต์ในทุกชิ้นงาน อัตราส่วนของพีคหลักสอดคล้องกับการคำนวณเฟสคอร์เดียไรต์และมุลไลต์ที่ต้องการตามตารางที่ 3.3 ผลการวิเคราะห์เชิงปริมาณโดยใช้ Rietveld Refinement Analysis ด้วยโปรแกรม TOPAS software (version 2.1) แสดงดังตารางที่ 4.6-4.9



รูปที่ 4.19 องค์ประกอบเฟสของชิ้นงานสูตร CR20:ML80 ถึง CR80:ML20 เผาผนึกที่อุณหภูมิ 1450°C เวลาขึ้นไฟ 2 ชั่วโมง

องค์ประกอบเฟสของชิ้นงานสูตร CR20:ML80 ถึง CR70:ML30 เผาผนึกอุณหภูมิ 1500°C แสดงในรูปที่ 4.20 ชิ้นงานทุกสูตรพบเฟสมุลไลต์เป็นเฟสหลัก ในขณะที่เฟสคอร์เดียไรต์มีความเข้มข้นที่ลดลง และพบเฟสอสัณฐาน (amorphous phase) ช่วง  $2\theta=9-30$  องศา ในชิ้นงานทุกสูตร นอกจากนี้ยังพบเฟสฟอร์สเตอไรต์ (forsterite) ปริมาณเล็กน้อยในทุกชิ้นงาน (ตำแหน่งพีกสูงสุด  $2\theta = 36.32$  องศา) อาจเนื่องมาจากคอร์เดียไรต์มีจุดหลอมตัวที่อุณหภูมิประมาณ 1460°C ณ ช่วงอุณหภูมิดังกล่าวคอร์เดียไรต์แตกตัวเป็นมุลไลต์และเนื้อแก้ว (glassy phase) และเกิดฟอร์สเตอไรต์ ( $2MgO \cdot SiO_2$ ) เป็นเฟสร่วม<sup>[12,74]</sup> การที่คอร์เดียไรต์บางส่วนแตกตัวไม่เพียงจะส่งผลให้เกิดเฟสมุลไลต์ซึ่งมีความแข็งแรงสูงยังเกิดการเชื่อมต่อนของเนื้อแก้วระหว่างผลึก ส่งผลให้ความต้านแรงดัดของชิ้นงานเพิ่มสูงขึ้น สอดคล้องกับการทดสอบความแข็งแรงของชิ้นงาน แสดงดังรูปที่ 4.16



รูปที่ 4.20 องค์ประกอบเฟสของชิ้นงานสูตร CR20:ML80 ถึง CR70:ML30 เเผาที่อุณหภูมิ 1500°C เวลาขึ้นไฟ 2 ชั่วโมง

ตารางที่ 4.6-4.8 แสดงผลวิเคราะห์เชิงปริมาณโดยใช้ Rietveld Refinement Analysis ของชิ้นงานสูตร CR20:ML80 ถึง CR80:ML20 เเผาที่อุณหภูมิ 1300 1400 และ 1450°C เวลาขึ้นไฟ 2 ชั่วโมง พบว่าชิ้นงานหลังเผาที่อุณหภูมิ 1300 และ 1400°C ปรากฏเฟสแซฟไฟร์ริน คริสโตบาไลต์ ควอตซ์ และอะลูมินา หลงเหลือจากการเกิดปฏิกิริยา ในขณะที่ชิ้นงานหลังเผาอุณหภูมิ 1450°C ปรากฏเพียงเฟสคอร์เดียไรต์และมุลไลต์ โดยปริมาณที่ตรวจพบมีแนวโน้มสอดคล้องกับการคำนวณ เมื่อเปรียบเทียบผลการคำนวณกับค่าที่วัดได้จริง พบว่าปริมาณคอร์เดียไรต์ที่ได้จากการตรวจสอบโดยใช้ Rietveld Refinement Analysis น้อยกว่าค่าที่ได้จากการคำนวณเพียงเล็กน้อย ในขณะที่มุลไลต์มีปริมาณมากกว่าค่าที่ได้จากการคำนวณ อาจเนื่องมาจากการเติมแมกนีเซียมออกไซด์ในส่วนผสม ซึ่งมีผลในการเพิ่มอัตราการเกิดปฏิกิริยาจากแอนดราลูไซต์ไปเป็นมุลไลต์ โดยแมกนีเซียมออกไซด์ทำหน้าที่ลดอุณหภูมิการหลอมในกระบวนการเผาไหม้ ทำให้เฟสของเหลวมี

ปริมาณเพิ่มขึ้นและมีความหนืดลดลง จึงเพิ่มอัตราการแพร่ในช่วงอุณหภูมิ 1400-1500°C ที่อุณหภูมิดังกล่าวแมกนีเซียมออกไซด์จะละลายเข้าไปในโครงสร้างของแอนดลูไซต์และกลายเป็นโครงสร้างที่มีตำหนิซึ่งสามารถเพิ่มอัตราการแพร่ระหว่างกระบวนการเผาผนึก<sup>[35,75]</sup>

ตารางที่ 4.6 แสดงองค์ประกอบเฟสเชิงปริมาณของชิ้นงาน เเผาผนึกที่อุณหภูมิ 1300°C

สูตร	องค์ประกอบเฟสเชิงปริมาณของชิ้นงาน (%โดยน้ำหนัก)						
	Cordierite	Mullite	Andalusite	Sapphirine	Corundum	Quartz	Cristobalite
CR20: ML80	-	34.69	50.29	9.52	5.50	-	-
CR30: ML70	12.91	24.92	53.25	8.91	-	-	-
CR40: ML60	23.11	20.80	46.285	8.96	-	0.83	-
CR50: ML50	30.33	5.69	47.97	12.46	-	2.06	1.49
CR60: ML40	30.97	4.94	40.86	16.13	-	4.14	2.68
CR70: ML30	47.01	1.74	30.65	13.54	-	4.94	2.11
CR80: ML20	46.59	0.90	20.51	20.22	-	6.00	5.77

ตารางที่ 4.7 แสดงองค์ประกอบเฟสเชิงปริมาณของชิ้นงาน เผาผืนที่อุณหภูมิ 1400°C

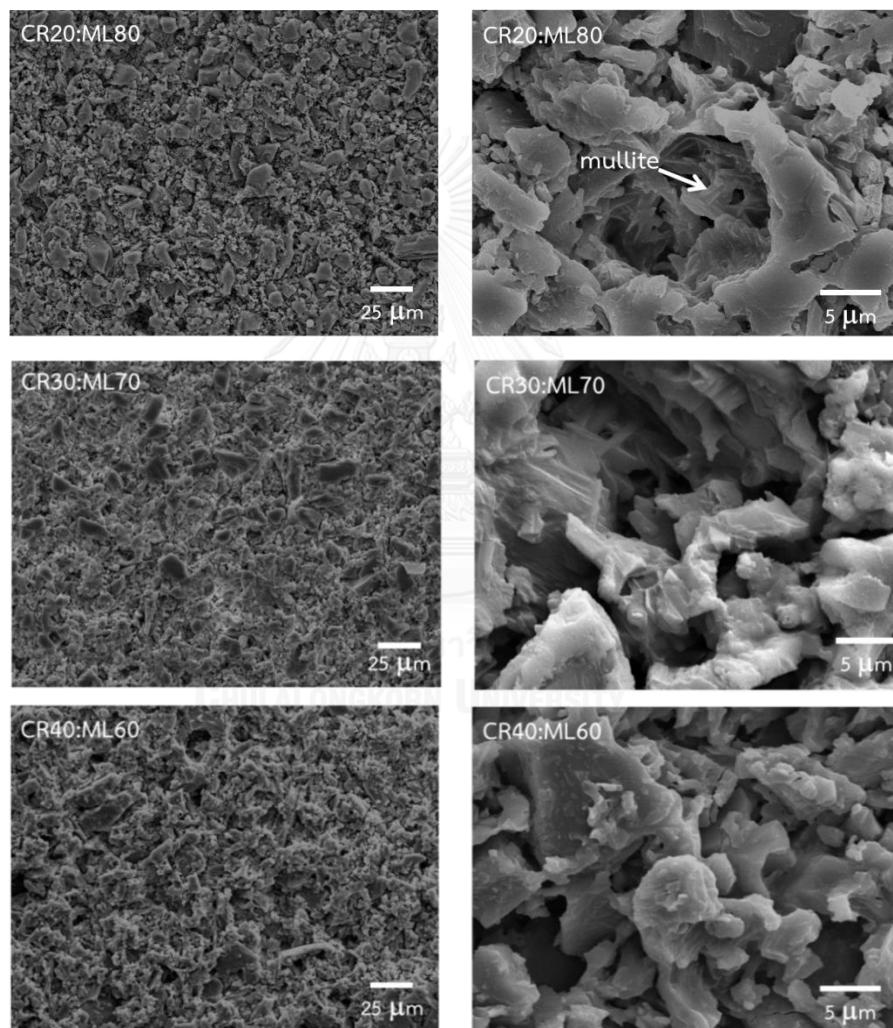
สูตร	องค์ประกอบเฟสเชิงปริมาณของชิ้นงาน (%โดยน้ำหนัก)						
	Cordierite	Mullite	Andalusite	Sapphirine	Corundum	Quartz	Cristobalite
CR20: ML80	19.21	80.79	-	-	-	-	-
CR30: ML70	29.81	70.18	-	-	-	-	-
CR40: ML60	34.17	65.83	-	-	-	-	-
CR50: ML50	44.24	55.76	-	-	-	-	-
CR60: ML40	52.38	47.62	-	-	-	-	-
CR70: ML30	54.91	32.35	-	6.64	-	1.07	5.03
CR80: ML20	59.97	24.66	-	8.05	-	1.13	6.19

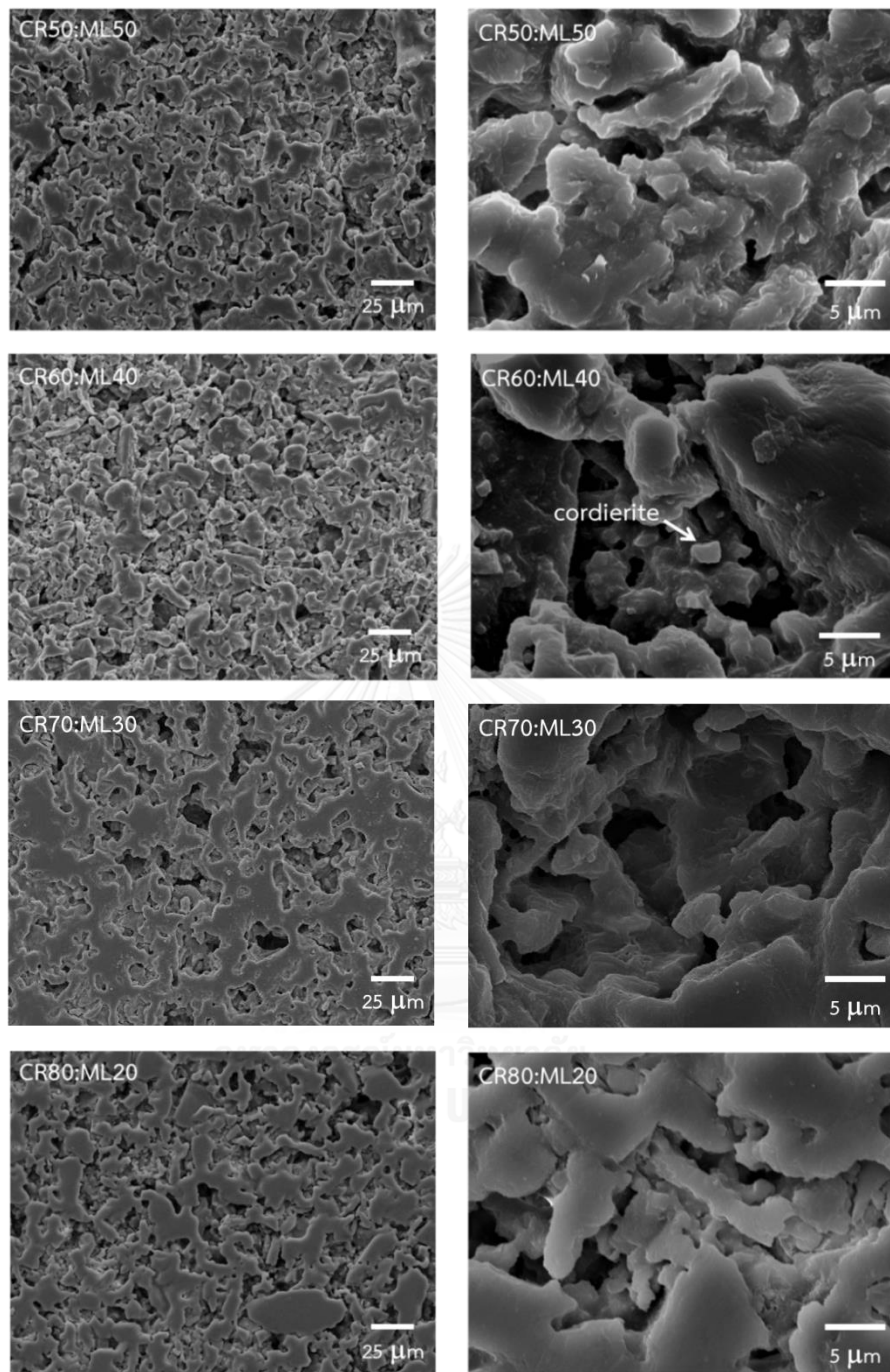
ตารางที่ 4.8 แสดงองค์ประกอบเฟสเชิงปริมาณของชิ้นงาน เผาผืนที่อุณหภูมิ 1450°C

สูตร	องค์ประกอบเฟสเชิงปริมาณของชิ้นงาน (%โดยน้ำหนัก)						
	Cordierite	Mullite	Andalusite	Sapphirine	Corundum	Quartz	Cristobalite
CR20: ML80	16.10	83.90	-	-	-	-	-
CR30: ML70	23.79	76.21	-	-	-	-	-
CR40: ML60	32.63	67.36	-	-	-	-	-
CR50: ML50	42.04	57.95	-	-	-	-	-
CR60: ML40	47.21	52.79	-	-	-	-	-
CR70: ML30	61.34	38.66	-	-	-	-	-
CR80: ML20	75.55	24.45	-	-	-	-	-

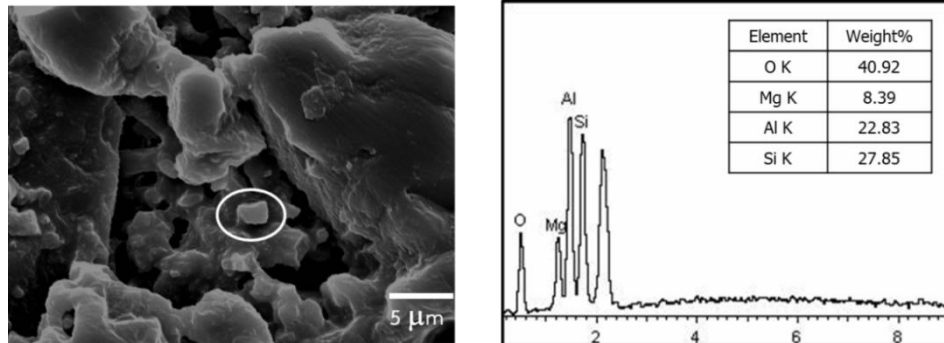
#### 4.4.5 โครงสร้างจุลภาคของชิ้นงานหลังเผา

รูปที่ 4.21 แสดงโครงสร้างจุลภาคของชิ้นงานสูตร CR20:ML80 ถึง CR80:ML20 เฝาผนึกที่อุณหภูมิ 1300°C จะเห็นว่า ณ ช่วงอุณหภูมิดังกล่าวโครงสร้างยังมีความพรุนตัว เกรนของมุลไลต์ซึ่งมีขนาดเล็กเริ่มसानตัวเป็นร่างแห พบอนุภาคเริ่มเชื่อมต่อกันในชิ้นงานสูตร CR50:ML50 ถึง CR80:ML20 จากการตรวจสอบองค์ประกอบทางเคมีด้วย EDX (รูปที่ 4.22) ในชิ้นงานสูตร CR60:ML40 พบธาตุออกซิเจน 40.92 % แมกนีเซียมออกไซด์ 8.39 % อะลูมิเนียม 22.83 % และซิลิคอน 27.85 % โดยน้ำหนัก ซึ่งเป็นองค์ประกอบของคอร์เตียไรต์



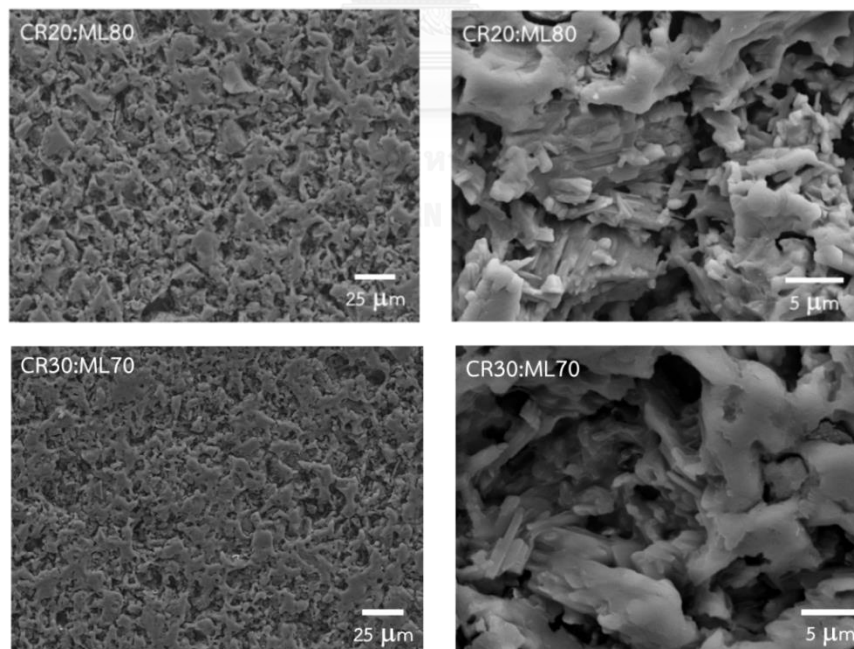


รูปที่ 4.21 โครงสร้างจุลภาคของชิ้นงาน CR20:ML80 ถึง CR80:ML20 เผาผนึกที่อุณหภูมิ 1300°C

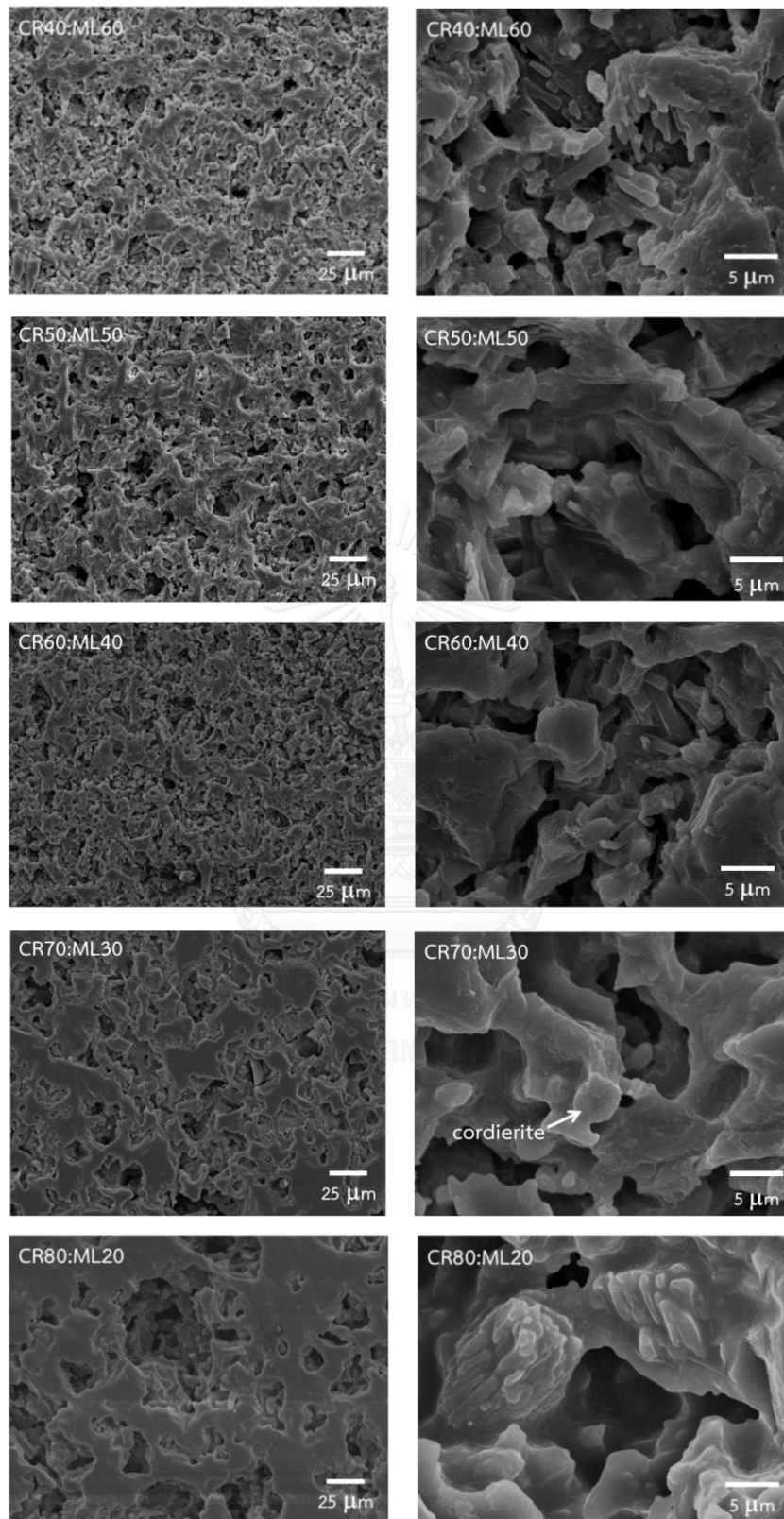


รูปที่ 4.22 โครงสร้างจุลภาคและองค์ประกอบทางเคมี ตรวจสอบด้วยเทคนิค energy dispersive x-ray analysis (EDX) ของชิ้นงานสูตร CR60:ML40 เผาผนึกที่อุณหภูมิ 1300°C

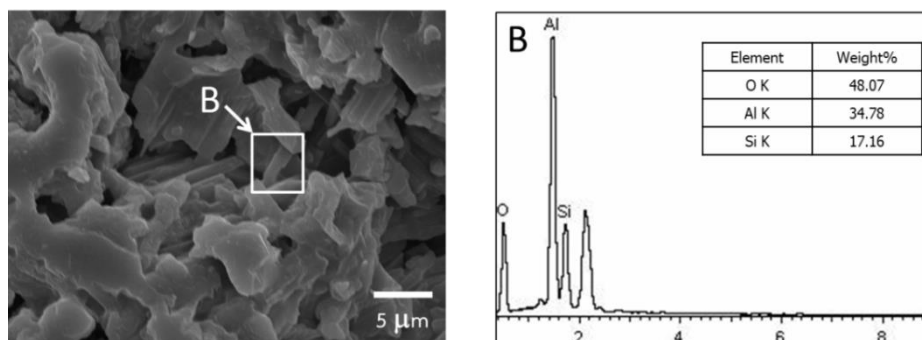
รูปที่ 4.23 แสดงโครงสร้างจุลภาคของชิ้นงานสูตร CR20:ML80 ถึง CR80:ML20 เผาผนึกที่อุณหภูมิ 1400°C พบว่าในชิ้นงานทุกสูตรเกรนมุลไลต์มีขนาดโตขึ้นเมื่อเทียบกับชิ้นงานเผาที่อุณหภูมิ 1300°C เกรนคอร์เดียไรต์เชื่อมต่อกันมากขึ้น ณ ช่วงอุณหภูมิดังกล่าวชิ้นงานยังคงมีความพรุนตัว และพบว่าสูตร CR80:ML20 โครงสร้างมีรูพรุนขนาดใหญ่เมื่อเทียบกับชิ้นงานสูตรอื่น จากการตรวจสอบองค์ประกอบทางเคมีด้วย EDX (รูปที่ 4.24) ของชิ้นงานสูตร CR60:ML40 พิจารณาที่จุด B ซึ่งเป็นผลึกรูปร่างแท่งเข็ม พบธาตุออกซิเจน 48.07 % อะลูมิเนียม 34.78 % และซิลิคอน 17.16 % โดยน้ำหนัก แสดงองค์ประกอบของมุลไลต์





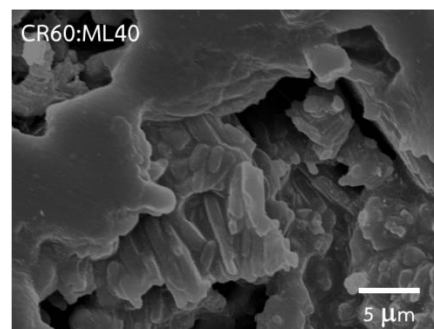
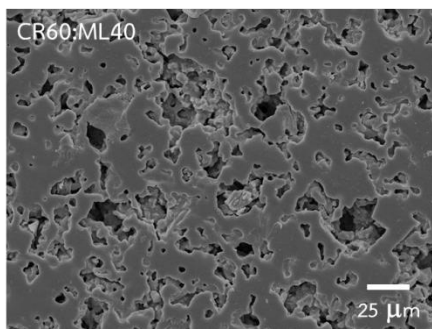
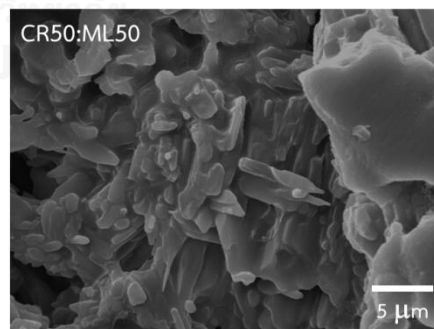
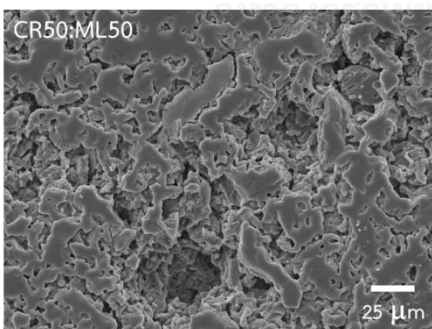
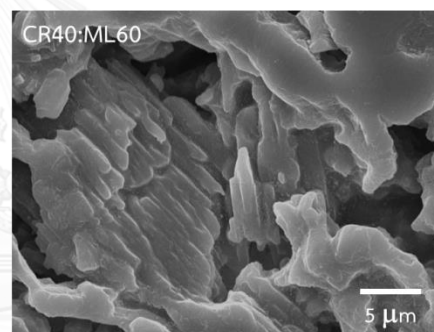
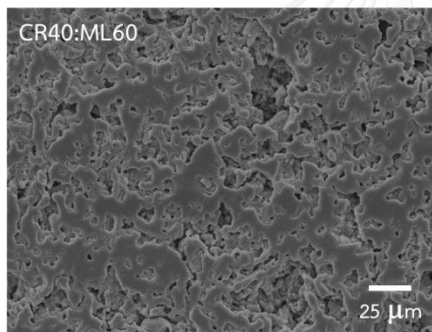
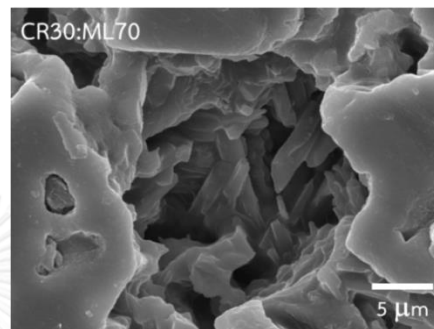
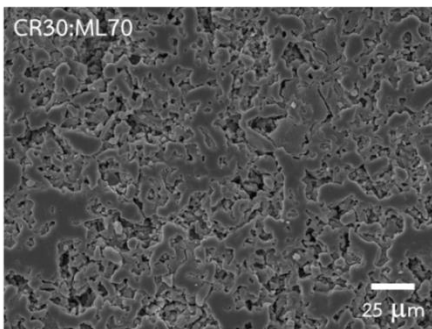
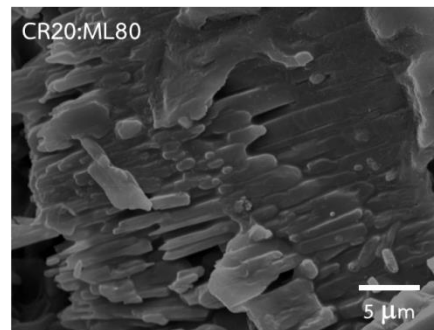
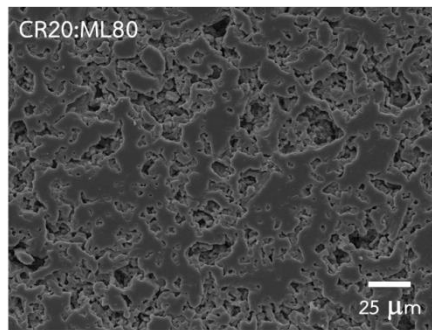


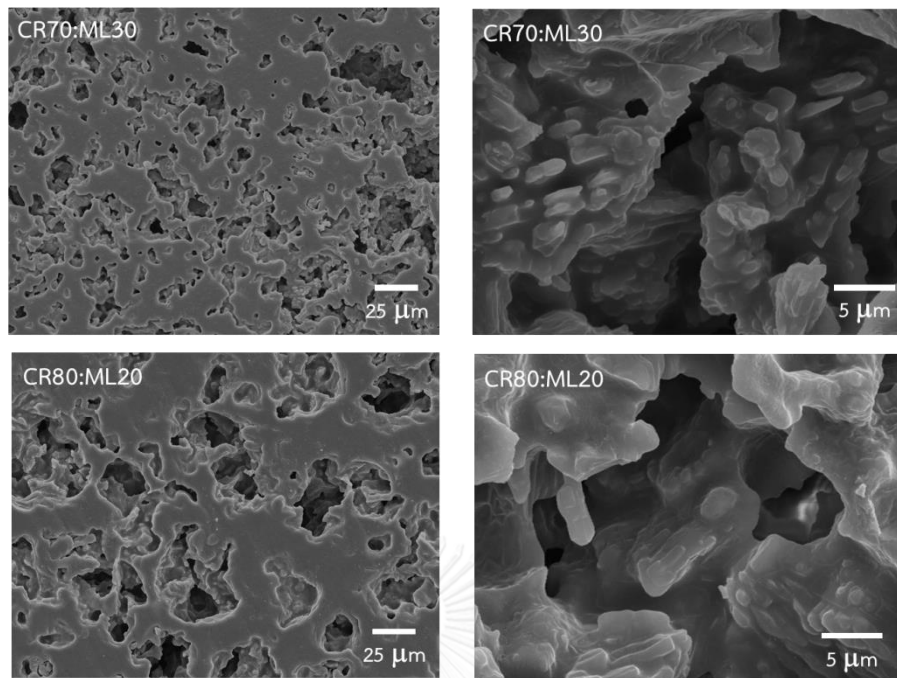
รูปที่ 4.23 โครงสร้างจุลภาคของชิ้นงานสูตร CR20:ML80 ถึง CR80:ML20 เผาขึ้นที่อุณหภูมิ 1400°C



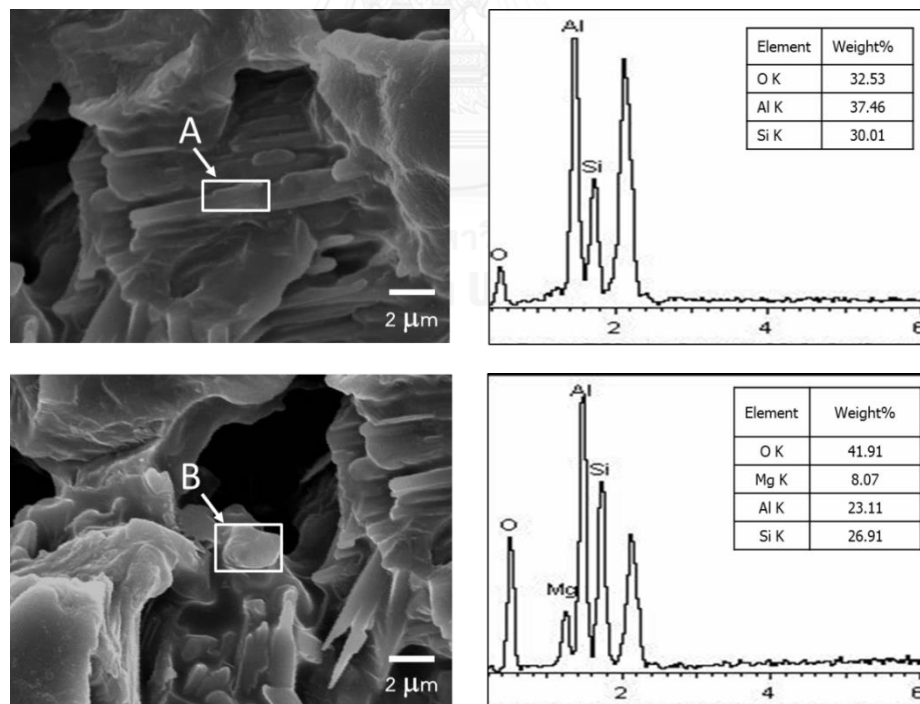
รูปที่ 4.24 โครงสร้างจุลภาคและองค์ประกอบทางเคมี ตรวจสอบด้วยเทคนิค energy dispersive x-ray analysis (EDX) ของชิ้นงานสูตร CR60:ML40 เผาผนึกที่อุณหภูมิ 1400°C

รูปที่ 4.25 แสดงโครงสร้างจุลภาคของชิ้นงานสูตร CR20:ML80 ถึง CR80:ML20 เผาผนึกที่อุณหภูมิ 1450°C พบผลึกมุลไลต์ขนาดโตและยาวขึ้น มีความยาวมากกว่า 5 ไมครอนกระจายอยู่ในโครงสร้าง การเกิดมุลไลต์ (mullization) จะเริ่มที่ตำแหน่งพื้นผิวของแอนดราลูไซต์บนระนาบ (001)<sub>A</sub> และมีทิศทางการขยายไปตามแกน  $C_{A,M}^{[30]}$  (พิจารณารูปที่ 4.24 ชิ้นงานสูตร CR20:ML80) การโตของผลึกมุลไลต์จนสานกันเป็นตาข่ายภายในโครงสร้างจะช่วยเพิ่มความหนาแน่นและความแข็งแรงให้แก่ชิ้นงาน จากการตรวจสอบองค์ประกอบทางเคมีด้วย EDX (รูปที่ 4.26) ของชิ้นงานสูตร CR60:ML40 พิจารณาที่จุด A ซึ่งเป็นผลึกรูปร่างแท่งเข็ม พบธาตุออกซิเจน 48.07 % อะลูมิเนียม 34.78 % และซิลิคอน 17.16 % โดยน้ำหนัก แสดงองค์ประกอบของมุลไลต์ และที่จุด B พบธาตุออกซิเจน 41.91 % แมกนีเซียมออกไซด์ 8.07 % 24.11 % อะลูมิเนียม 23.11 % และซิลิคอน 26.91 % โดยน้ำหนัก ซึ่งเป็นองค์ประกอบของคอร์เตียไรต์ นอกจากนั้นจะเห็นว่า ในชิ้นงานสูตร CR80:ML20 โครงสร้างมีปริมาณเนื้อแก้วสูง พบรูพรุนขนาดใหญ่ อาจมาจากการที่คอร์เตียไรต์หลอมตัว สอดคล้องกับการตรวจสอบความแข็งแรงของชิ้นงานหลังเผา เฟสเนื้อแก้วที่กระจายอยู่ในโครงสร้างในปริมาณมากเกินไปจะส่งผลให้ชิ้นงานหลังเผามีความแข็งแรงลดลง



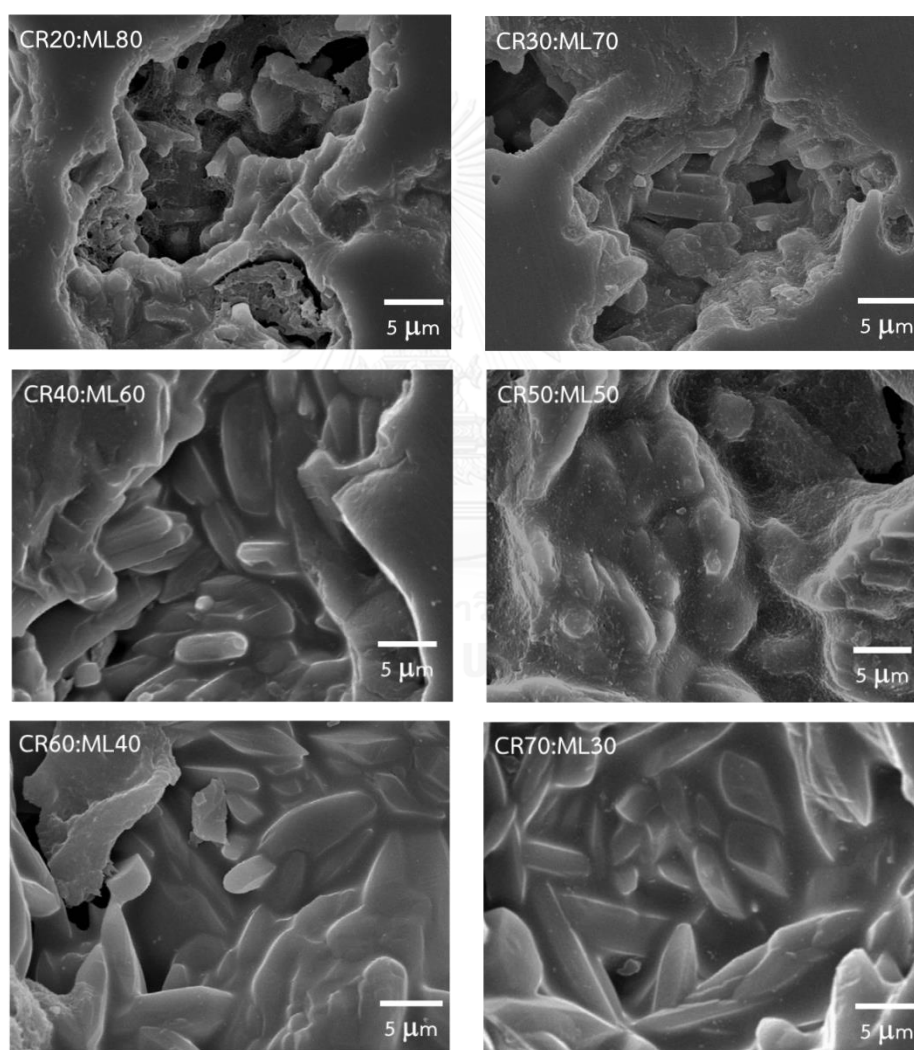


รูปที่ 4.25 โครงสร้างจุลภาคของชั้นงานสูตร CR20:ML80 ถึง CR80:ML20 เผาฉนิกที่อุณหภูมิ 1450°C



รูปที่ 4.26 โครงสร้างจุลภาคและองค์ประกอบทางเคมี ตรวจสอบด้วยเทคนิค energy dispersive x-ray analysis (EDX) ของชั้นงานสูตร CR60:ML40 เผาฉนิกที่อุณหภูมิ 1450°C

รูปที่ 4.27 แสดงโครงสร้างจุลภาคของชิ้นงานสูตร CR20:ML80 ถึง CR70:ML30 เผาผนึกที่อุณหภูมิ 1500°C พบว่าผลึกมุลไลต์มีขนาดโตกว่าที่พบที่อุณหภูมิ 1300 1400 และ 1450°C กระจายอยู่ทั่วบริเวณ ชิ้นงานมีรูพรุนขนาดเล็กลง นอกจากนี้ยังพบเฟสเนื้อแก้วปริมาณมากเชื่อมประสานเกรนต่างๆ อยู่ทั่วบริเวณ ปริมาณเฟสเนื้อแก้วที่มากขึ้นนี้แปรผันตรงกับปริมาณคอร์เตียไรต์ ในส่วนผสม จะเห็นว่าผลึกโครงสร้างจุลภาคของชิ้นงานสอดคล้องกับผลการตรวจสอบ XRD ในรูปที่ 4.20 ซึ่งพบมุลไลต์เป็นเฟสหลักและพบเฟสอสัณฐาน ฟออสเตอไรต์ และคอร์เตียไรต์ปริมาณน้อยเป็นเฟสรอง เนื่องจากคอร์เตียไรต์มีจุดหลอมตัวที่อุณหภูมิประมาณ 1460°C ณ ช่วงอุณหภูมิดังกล่าว คอร์เตียไรต์จะเปลี่ยนเฟสเป็นมุลไลต์และของเหลว

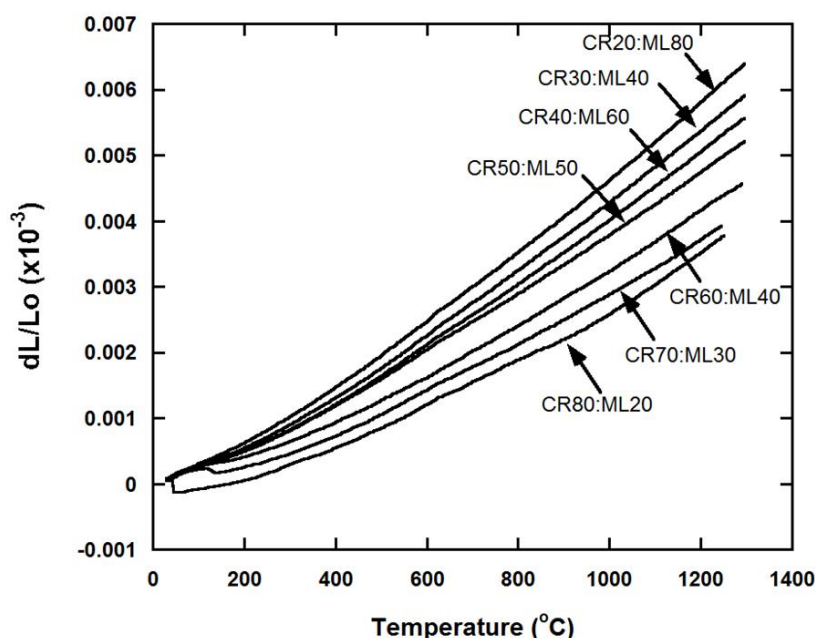


รูปที่ 4.27 โครงสร้างจุลภาคของชิ้นงานสูตร CR20:ML80 ถึง CR70:ML30 เผาผนึกที่อุณหภูมิ 1500°C

## 4.5 การศึกษาความสามารถในการทนทานต่อการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิอย่างฉับพลัน

### 4.5.1 สัมประสิทธิ์การขยายตัวทางความร้อน

จากผลการทดลองข้างต้น นักวิจัยได้พิจารณาคัดเลือกสูตร CR20:ML80 ถึง CR80:ML20 ซึ่งผ่านการเผาผนึกที่อุณหภูมิ 1450°C มาทำการศึกษาสัมประสิทธิ์การขยายตัวทางความร้อนช่วงอุณหภูมิ 30-1200°C เนื่องจากเป็นอุณหภูมิที่เกิดเฟสคอร์เดียไรต์และมุลไลต์ ผลการตรวจสอบแสดงดังรูปที่ 4.28 และตารางที่ 4.9 พบว่าค่าสัมประสิทธิ์การขยายตัวทางความร้อนของชิ้นงานคอร์เดียไรต์-มุลไลต์ลดลงเมื่อสัดส่วนของคอร์เดียไรต์เพิ่มขึ้น โดยชิ้นงาน CR80:ML20 ซึ่งมีสัดส่วนของคอร์เดียไรต์มากที่สุด มีค่าสัมประสิทธิ์การขยายตัวทางความร้อนต่ำสุด ( $2.98 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$  ที่อุณหภูมิ 1000°C และ  $3.01 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$  ที่อุณหภูมิ 1200°C) เนื่องจากคอร์เดียไรต์บริสุทธิ์มีสัมประสิทธิ์การขยายตัวทางความร้อนต่ำกว่า ( $2.2 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ ) สัมประสิทธิ์การขยายตัวทางความร้อนของมุลไลต์บริสุทธิ์ ( $6 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ ) สัมประสิทธิ์การขยายตัวทางความร้อนที่ตรวจสอบได้จากงานวิจัยนี้มีค่าใกล้เคียงกับงานวิจัยของ Kiattisaksophon และคณะ<sup>[39]</sup> ซึ่งเตรียมวัสดุเชิงประกอบคอร์เดียไรต์-มุลไลต์ สำหรับใช้เป็นวัสดุที่ทนต่อการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิฉับพลัน โดยใช้ผงคอร์เดียไรต์และผงมุลไลต์ทางการค้าที่อัตราส่วนผสมคอร์เดียไรต์ต่อมุลไลต์ 70:30 % โดยน้ำหนัก เป็นสารตั้งต้น วัสดุเชิงประกอบนี้มีสัมประสิทธิ์การขยายตัวเนื่องจากความร้อน  $2.98 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$  ทดสอบที่อุณหภูมิ 1000°C สามารถทนต่อการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิฉับพลันได้ 9 รอบ



รูปที่ 4.28 สัมประสิทธิ์การขยายตัวทางความร้อน ณ ช่วงอุณหภูมิ 30-1200°C ของชิ้นงานสูตร CR20:ML80 ถึง CR80:ML20 หลังเผาผนึกที่อุณหภูมิ 1450°C

ตารางที่ 4.9 สัมประสิทธิ์การขยายตัวทางความร้อนของชิ้นงาน CR20:ML80 ถึง CR80:ML20  
ณ ช่วงอุณหภูมิ 30-1000°C และ 30-1200°C

สูตร	สัมประสิทธิ์การขยายตัวทางความร้อน ช่วงอุณหภูมิ 30-1000°C ( $\times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ )	สัมประสิทธิ์การขยายตัวทางความร้อน ช่วงอุณหภูมิ 30-1200°C ( $\times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ )
CR20:ML80	4.77	4.97
CR30:ML70	4.42	4.60
CR40:ML60	4.14	4.32
CR50:ML50	3.91	4.06
CR60:ML40	3.34	3.56
CR70:ML30	2.98	3.18
CR80:ML20	2.67	3.01

#### 4.5.2 ความต้านทานต่อการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิอย่างฉับพลัน

ความสามารถในการต้านทานต่อการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิอย่างฉับพลันของวัสดุขึ้นอยู่กับหลายปัจจัย ในทางทฤษฎี ความต้านทานต่อการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิอย่างฉับพลันแปรผันโดยตรงกับความแข็งแรง ( $\sigma$ ) และการนำความร้อนของวัสดุ (K) และแปรผกผันกับค่าสัมประสิทธิ์การขยายตัวทางความร้อน ( $\alpha$ ) และโมดูลัสความยืดหยุ่น (E)<sup>[76]</sup> นอกจากนี้ตัวแปรที่กล่าวมาข้างต้นแล้วยังมีปัจจัยด้านโครงสร้าง อัตราส่วนปัวซอง (Poisson's ratio) และองค์ประกอบเฟส เป็นต้น<sup>[77]</sup>

ในการทดสอบความต้านทานต่อการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิอย่างฉับพลันของชิ้นงานสูตร CR20:ML80 ถึง CR80:ML20 เฝ้านิกที่อุณหภูมิ 1450°C ตามมาตรฐาน ASTM C1171-91 เริ่มจากการให้ความร้อนชิ้นงานที่อุณหภูมิ 1200°C เป็นเวลา 15 นาที จากนั้นนำชิ้นงานออกจากเตาและทำให้เย็นอย่างรวดเร็วในอากาศอุณหภูมิห้อง (ambient air) เป็นเวลา 15 นาที ทำซ้ำเป็นจำนวน 25 รอบ โดยทั่วไป จำนวนรอบที่ใช้ทดสอบความสามารถในการต้านทานต่อการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิอย่างฉับพลันสำหรับการตรวจสอบชิ้นงานเซรามิกเพื่อใช้งานเป็นวัสดุทนไฟนั้นมีความหลากหลายขึ้นอยู่กับวัสดุและอุณหภูมิการตรวจสอบ อย่างไรก็ตามพบว่ามีหลายงานวิจัยได้ทำการทดสอบที่จำนวน 8 รอบถึง 30 รอบ<sup>[78]</sup> จากผลการสังเกตด้วยสายตาพบว่าชิ้นงานทุกสูตรไม่มีรอยแตกร้าวเมื่อทดสอบความสามารถในการต้านทานต่อการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิฉับพลันในรอบที่ 25 ดังรูปที่ 4.29 แสดงตัวอย่างชิ้นงาน CR20:ML80 เมื่อนำออกจากเตาเผาที่อุณหภูมิ 1200°C หลังการทดสอบรอบที่ 25



รูปที่ 4.29 ชิ้นงานสูตร CR20:ML80 หลังการทดสอบความต้านทานต่อการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิอย่างฉับพลัน รอบที่ 25

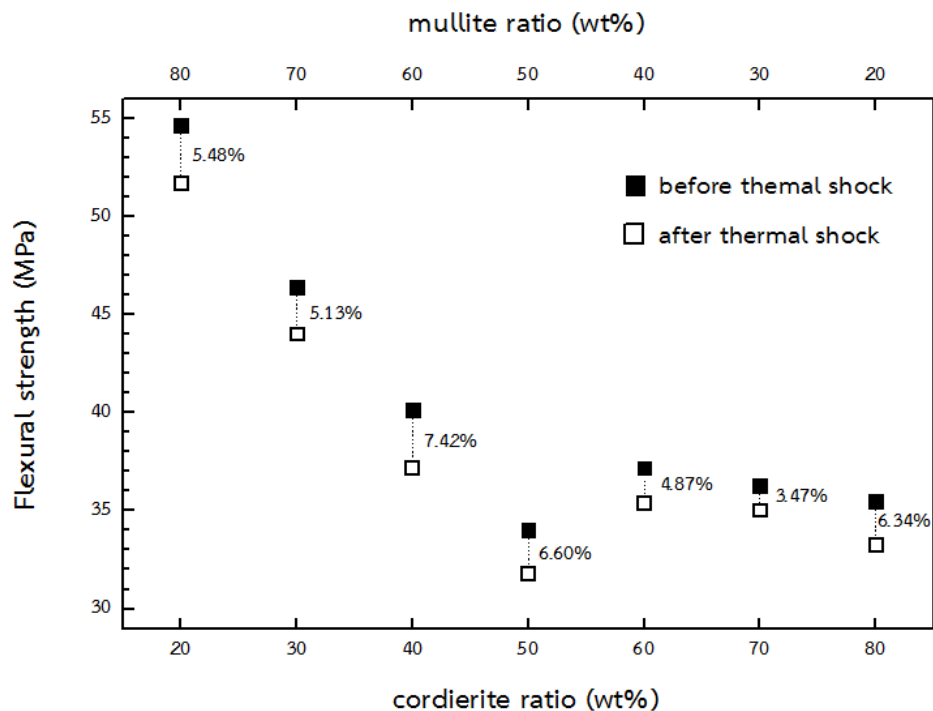
#### 4.5.3 ความต้านแรงดัดของชิ้นงานหลังทดสอบความต้านทานต่อการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิอย่างฉับพลัน

อัตราการสูญเสียความต้านแรงดัด (loss rate of flexural strength) ใช้เพื่อประเมินความต้านทานต่อการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิอย่างฉับพลันของวัสดุ คือค่าความแข็งแรงที่เปลี่ยนไปหลังการทดสอบความต้านทานต่อการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิอย่างฉับพลันต่อความแข็งแรงก่อนการทดสอบการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิอย่างฉับพลัน<sup>[69]</sup> จากผลการทดสอบความต้านแรงดัดของชิ้นงานหลังการทดสอบการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิอย่างฉับพลันที่ 1200°C จำนวน 25 รอบของชิ้นงานสูตร CR20:ML80 ถึง CR80:ML20 พิจารณารูปที่ 4.30 พบว่าชิ้นงานทุกสูตรมีความต้านแรงดัดลดลงเมื่อหลังจากทดสอบการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิอย่างฉับพลัน เนื่องจากความเค้นสะสมที่เกิดจากการขยายตัวทางความร้อนที่ไม่เท่ากันของคอร์เดียไรต์และมุลไลต์ ส่งผลให้ชิ้นงานมีความแข็งแรงลดลง จากผลการลองพบว่าชิ้นงานสูตร CR70:ML30 มีค่าความต้านแรงดัดลดลงต่ำที่สุด (3.47 %) อาจเนื่องจากชิ้นงานมีสัมประสิทธิ์การขยายตัวทางความร้อนต่ำ และมุลไลต์ที่เกิดขึ้นในชิ้นงานหลังเผา มีปริมาณเพียงพอ (หรือมีสัดส่วนเหมาะสมกับคอร์เดียไรต์) ช่วยส่งเสริมสมบัติความแข็งแรงเมื่ออยู่ร่วมกับคอร์เดียไรต์ ส่งผลให้ชิ้นงานสามารถทนต่อความเค้นทางความร้อน (thermal stress) ได้สูงเมื่อเปรียบเทียบกับชิ้นงานสูตรอื่นๆ ในขณะที่ชิ้นงานสูตร CR20:ML80 CR30:ML70 CR40:ML60 CR50:ML50 CR60:ML40 และ CR80:ML20 มีค่าความต้านแรงดัดลดลง 5.48 5.13 7.42 6.60 4.87 และ 6.34 % ตามลำดับ จากทฤษฎีความเสียหายจากการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิฉับพลัน ดังสมการ (4.2)



$$\Delta T_c \propto (\lambda^2 G / \alpha E)^{1/2} \quad (4.2)$$

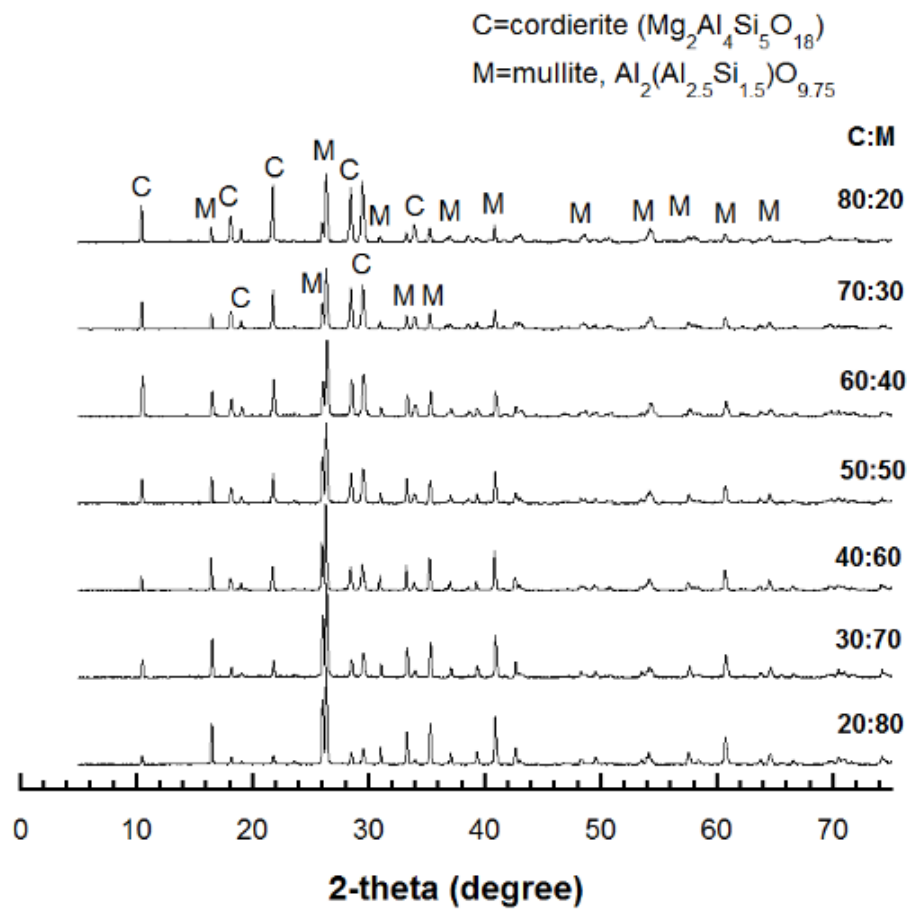
เมื่อ  $\alpha, \lambda, E$  และ  $G$  คือ สัมประสิทธิ์การขยายตัวทางความร้อน การนำความร้อน โมดูลัสของยัง และพลังงานที่ทำให้วัสดุแตก (fracture energy) ตามลำดับ พลังงานที่ใช้ในการทำให้วัสดุเกิดการแตกหักเสียหายเนื่องจากความเค้นทางความร้อนขึ้นอยู่กับความแข็งแรงของวัสดุ ดังนั้นเพื่อให้ได้ค่าการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิสูงสุดที่วัสดุสามารถรับได้โดยไม่เกิดการแตกหักเสียหาย ( $\Delta T_c$ ) วัสดุจะต้องมีความแข็งแรงสูงและมีการขยายตัวทางความร้อนต่ำ



รูปที่ 4.30 ความต้านแรงดัดของชิ้นงานสูตร CR20:ML80 ถึง CR80:ML20 ก่อนและหลัง การทดสอบความต้านทานต่อการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิอย่างฉับพลัน

#### 4.5.4 องค์ประกอบเฟสของชิ้นงานหลังทดสอบความต้านทานต่อการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิฉับพลัน

รูปที่ 4.31 แสดงองค์ประกอบเฟสหลังทดสอบความต้านทานต่อการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิอย่างฉับพลันของชิ้นงานสูตร CR20:ML80 ถึง CR80:ML20 จากการตรวจสอบชิ้นงานยังคงพบเพียงเฟสคอร์เดียไรต์และมุลไลต์ในชิ้นงานทุกสูตรหลังจากผ่านการทดสอบจำนวน 25 รอบ



รูปที่ 4.31 องค์ประกอบเฟสของชิ้นงานสูตร CR20:ML80 ถึง CR80:ML20 หลังการทดสอบ ความต้านทานต่อการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิอย่างฉับพลันของชิ้นงาน (อุณหภูมิการทดสอบ  $1200^{\circ}\text{C}$  จำนวน 25 รอบ)

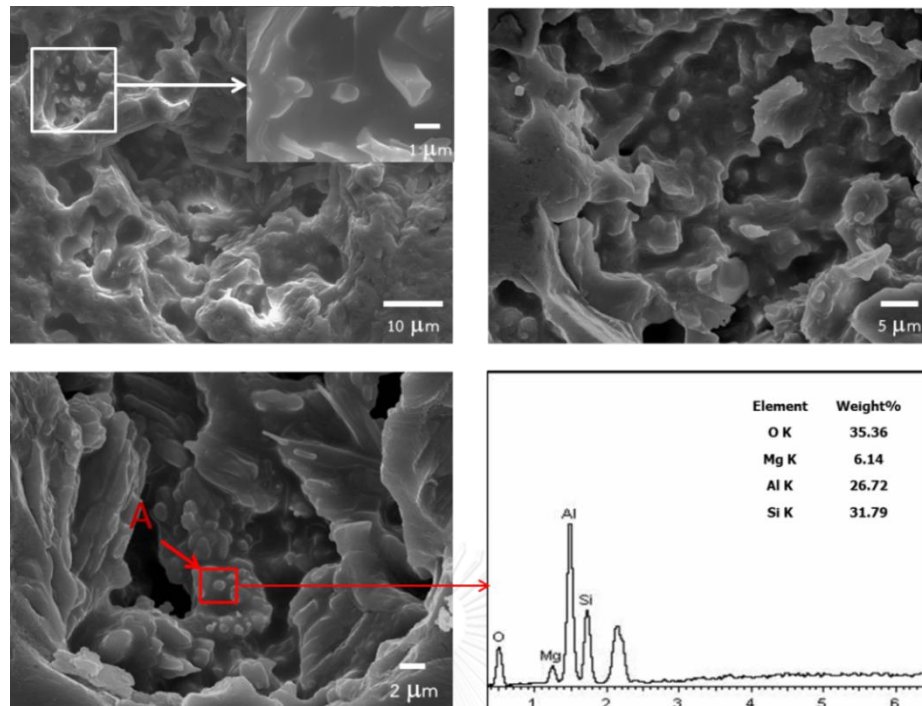
เมื่อพิจารณาตารางที่ 4.10 ซึ่งแสดงองค์ประกอบเชิงปริมาณของชิ้นงานก่อนและหลังทดสอบ ความต้านทานต่อการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิอย่างฉับพลัน พบว่าองค์ประกอบเฟสเชิงปริมาณของ คอร์ดีเอไรต์และมุลไลต์ในชิ้นงานก่อนและหลังทดสอบความต้านทานต่อการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิ อย่างฉับพลันมีปริมาณที่ใกล้เคียงกัน

ตารางที่ 4.10 องค์ประกอบเฟสเชิงปริมาณของชิ้นงานก่อนและหลังทดสอบความต้านทานต่อการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิฉับพลัน

ชิ้นงาน	องค์ประกอบเฟสปริมาณของชิ้นงาน ก่อนทดสอบ		องค์ประกอบเฟสปริมาณของชิ้นงาน หลังทดสอบ 25 รอบ	
	คอร์เตียไรต์	มุลไลต์	คอร์เตียไรต์	มุลไลต์
CR20:ML80	16.10	83.90	15.47	84.53
CR30:ML70	23.79	76.21	23.02	76.97
CR40:ML60	32.63	67.37	34.45	65.55
CR50:ML50	42.04	57.95	44.03	55.97
CR60:ML40	47.21	52.79	50.66	49.33
CR70:ML30	61.34	38.66	68.61	31.38
CR80:ML20	75.55	24.45	72.13	27.87

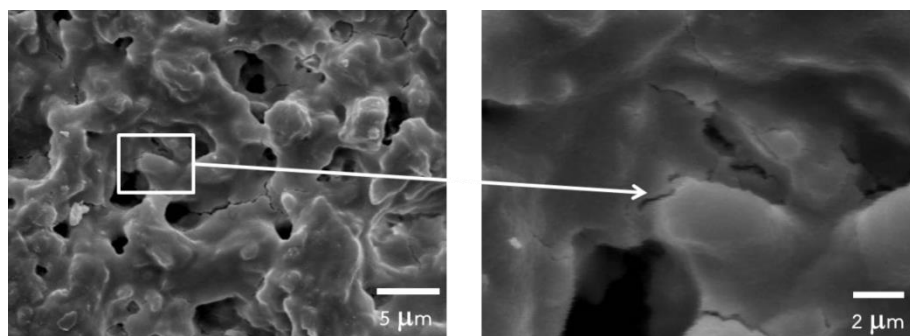
#### 4.5.5 โครงสร้างจุลภาคของชิ้นงานหลังการทดสอบความต้านทานต่อการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิอย่างฉับพลัน

รูปที่ 4.32 แสดงโครงสร้างจุลภาคของชิ้นงานสูตร CR70:ML30 หลังการทดสอบความสามารถในการต้านทานต่อการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิอย่างฉับพลัน ที่อุณหภูมิ 1200 °C จำนวน 25 รอบ ผลึกมีความต่อเนื่อง ไม่พบรอยแตกร้าว จากการตรวจสอบองค์ประกอบทางเคมีด้วย EDX พบธาตุออกซิเจน 35.36 % แมกนีเซียมออกไซด์ 6.14 % อะลูมิเนียม 26.72 % และซิลิคอน 31.79 % โดยน้ำหนัก ซึ่งจัดว่าเป็นองค์ประกอบของคอร์เตียไรต์

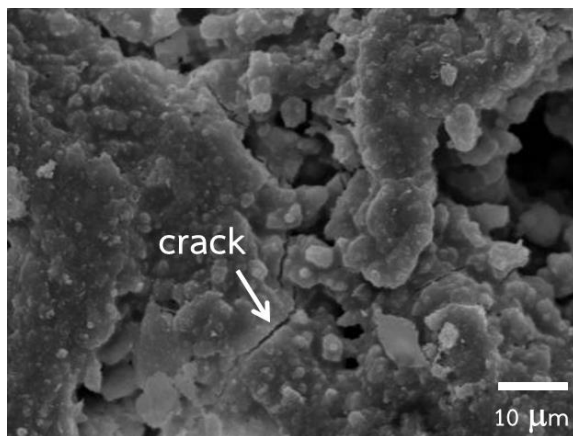


รูปที่ 4.32 โครงสร้างจุลภาค (กำลังขยาย 1500 2000 และ 3500 เท่า) ชิ้นงานสูตร CR70:ML30 หลังการทดสอบการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิอย่างฉับพลัน (อุณหภูมิ 1200°C จำนวน 25 รอบ)

รูปที่ 4.33-4.34 แสดงตัวอย่างโครงสร้างจุลภาคของชิ้นงานสูตร CR40:ML60 และ CR80:ML20 โดยทำการกัดผิวหน้าชิ้นงานหลังจากทดสอบการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิฉับพลันด้วยกรดไฮโดรฟลูออริกก่อนตรวจสอบ พบรอยแตกร้าวในชิ้นงานที่เกิดจากความเค้นสะสมเนื่องจากความร้อน ลักษณะของรอยแตกร้าวขยายไปตามขอบเกรน ผลการตรวจสอบนี้สอดคล้องกับผลการตรวจสอบความต้านแรงดัดของชิ้นงานหลังการทดสอบการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิอย่างฉับพลันซึ่งพบว่าชิ้นงานดังกล่าวมีความแข็งแรงลดลง นอกจากนี้รอยแตกลักษณะดังกล่าวยังพบในชิ้นงาน CR20:ML80 CR30:ML70 CR50:ML50 และ CR60:ML40



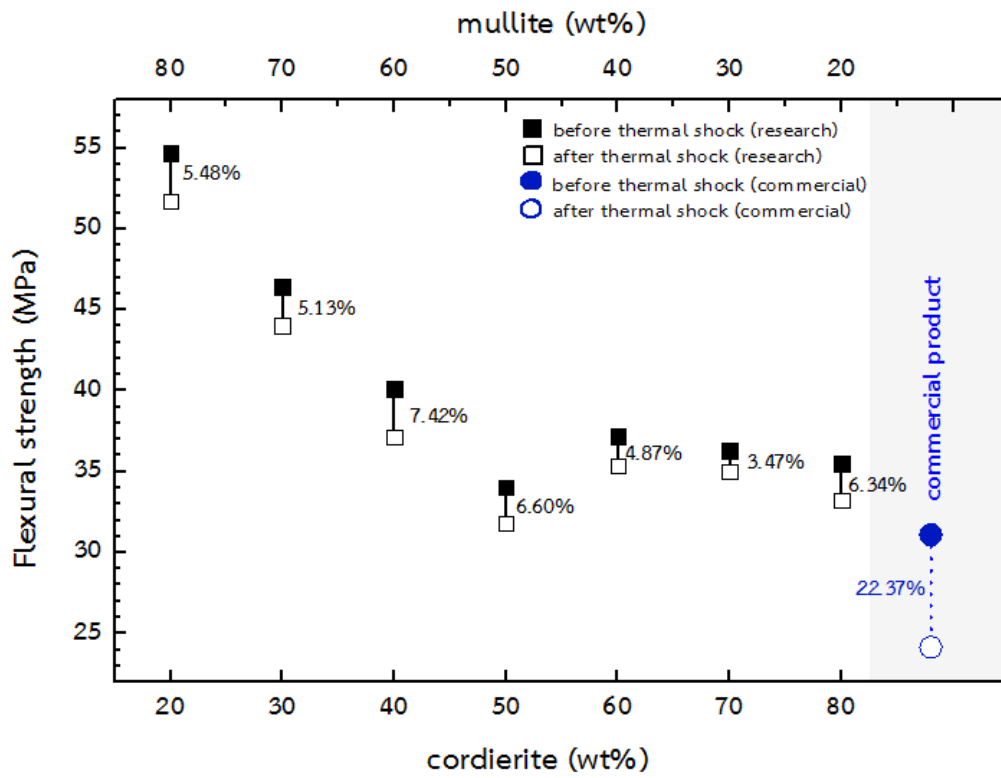
รูปที่ 4.33 โครงสร้างจุลภาคของชิ้นงานสูตร CR40:ML60 หลังการทดสอบการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิอย่างฉับพลัน (กัดผิวหน้าด้วยกรดไฮโดรฟลูออริกก่อนนำมาตรวจสอบ)



รูปที่ 4.34 โครงสร้างจุลภาคของชิ้นงานสูตร CR80:ML20 หลังการทดสอบการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิอย่างฉับพลัน (กัดผิวหน้าด้วยกรดไฮโดรฟลูออริกก่อนนำมาตรวจสอบ)

#### 4.6 การเปรียบเทียบผลิตภัณฑ์จากงานวิจัยกับวัสดุทนไฟทางการค้า

เมื่อเปรียบเทียบชิ้นงานสูตร CR70:ML30 ที่ผลิตได้ในงานวิจัยนี้กับผลิตภัณฑ์วัสดุทนไฟทางการค้า พบว่าชิ้นงานที่ผลิตได้จากงานวิจัยมีความต้านแรงดัดสูงกว่าชิ้นงานวัสดุทนไฟทางการค้าประมาณ 14 % รูปที่ 4.35 แสดงผลการทดสอบความต้านแรงดัดหลังการทดสอบการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิอย่างฉับพลันที่ 1200°C จำนวน 25 รอบของชิ้นงานสูตร CR20:ML80 ถึง CR80:ML20 เปรียบเทียบกับวัสดุทนไฟทางการค้า พบว่าวัสดุทนไฟทางการค้ามีค่าอัตราการสูญเสียความต้านแรงดัดลดลง 22.37 % สูงกว่าชิ้นงานที่ผลิตได้จากการวิจัย ผลการทดลองแสดงให้เห็นว่าชิ้นงานทุกสูตรที่เตรียมได้จากงานวิจัยสามารถนำไปผลิตเป็นวัสดุทนไฟที่มีความแข็งแรงที่อุณหภูมิสูง



รูปที่ 4.35 ความต้านแรงดัดของชิ้นงานสูตร CR20:ML80 ถึง CR80:ML20 เปรียบเทียบกับวัสดุทนไฟทางการค้า ก่อนและหลังทดสอบความต้านทานต่อการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิอย่างฉับพลัน

## บทที่ 5

### สรุปผลการวิจัย

ในงานวิจัยนี้ ได้ทำการสังเคราะห์และเตรียมแกรนูลเพื่อผลิตวัสดุเชิงประกอบคอร์เดียไรต์-มุลไลต์ โดยมีความสนใจเบื้องต้นในการนำผลิตภัณฑ์ที่ได้ไปประยุกต์ใช้เป็นวัสดุทนไฟ กรอบการศึกษาวิจัยประกอบด้วย การปรับเปลี่ยนอัตราส่วนของวัตถุดิบ ได้แก่ แอนดาลูไซต์ อะลูมินา ซิลิกา และแมกนีเซียมออกไซด์ ตามปริมาณสารสัมพันธ์เพื่อให้เกิดอัตราส่วนโดยน้ำหนักของเฟสคอร์เดียไรต์ต่อมุลไลต์ในช่วง 20:80 ถึง 80:20 และทำการเผาผนึกในช่วงอุณหภูมิ 1300 ถึง 1500°C ในการนี้ ได้ทำการศึกษาหาสภาวะที่เหมาะสมในการเตรียมแกรนูลด้วยวิธีการพ่นฝอยอบแห้งเพื่อพัฒนาความหนาแน่นของชิ้นงานดิบ และศึกษาอิทธิพลของอัตราส่วนวัตถุดิบที่มีผลต่อลักษณะและสมบัติของวัสดุเชิงประกอบที่ผลิตได้ จากการรวบรวมและวิเคราะห์ผลการทดลองสามารถสรุปเป็นหัวข้อต่างๆ ดังต่อไปนี้

1. สเลอร์ที่ใช้ศึกษาในงานวิจัยนี้มีสัดส่วนของแข็ง 50 %โดยน้ำหนัก มีพฤติกรรมแบบซูโดพลาสติกหรือเชียร์ทินนิง นั่นคือมีความหนืดลดลงเมื่ออัตราเฉือนเพิ่มขึ้น การเติมสารช่วยกระจายตัวชนิดเกลือแอมโมเนียมของพอลิอะคลีเลท 1 %โดยน้ำหนัก ช่วยให้สลอร์มีการกระจายตัวของอนุภาคดีขึ้นและมีความหนืดต่ำสุด

2. ในการเตรียมแกรนูลด้วยวิธีพ่นฝอยอบแห้งนั้น พบว่าสลอร์ที่มีสัดส่วนของแข็งสูง (50 %โดยน้ำหนัก) ส่งผลให้แกรนูลมีรูปร่างกลมและตัน เมื่อเพิ่มอุณหภูมิในห้องร้อนจาก 170°C เป็น 210°C แกรนูลมีขนาดเฉลี่ยโตขึ้น การเพิ่มอัตราการให้ลมร้อนจะทำให้หยดของเหลวอยู่ในห้องอบแห้งและสัมผัสอากาศร้อนเป็นเวลานานขึ้น ส่งผลให้แกรนูลมีขนาดเล็กลง ในงานวิจัยนี้แกรนูลที่ผลิตได้มีขนาดอยู่ในช่วง 10-80 ไมครอน โดยแกรนูลขนาด 25 ไมครอน มีปริมาณมากที่สุด ชิ้นงานดิบที่ขึ้นรูปด้วยการอัดแกรนูลที่เตรียมที่อุณหภูมิการพ่นฝอยอบแห้ง 170°C มีความหนาแน่น 2.0 กรัมต่อลูกบาศก์เซนติเมตร สูงกว่าความหนาแน่นของชิ้นงานดิบจากผงที่ไม่ได้เตรียมแกรนูล 20 เปอร์เซ็นต์

3. จากการวิเคราะห์องค์ประกอบเฟสของชิ้นงานหลังเผาผนึก พบว่าการเปลี่ยนแปลงเฟสของชิ้นงานทุกสูตรมีแนวโน้มไปในทิศทางเดียวกัน วัสดุเชิงประกอบคอร์เดียไรต์-มุลไลต์บริสุทธิ์สามารถผลิตได้จากการเผาผนึกชิ้นงานทุกสูตรที่อุณหภูมิ 1450°C เวลาเย็นไฟ 2 ชั่วโมง เมื่อทำการเผาผนึกที่อุณหภูมิต่ำ (1300-1400°C) การเปลี่ยนเฟสเป็นคอร์เดียไรต์และมุลไลต์ยังไม่สมบูรณ์ พบเฟสร่วม ได้แก่ แซฟไฟริน ควอตซ์ คริสโตบาไลต์ และอะลูมินา ในขณะที่เมื่อทำการเผาผนึกที่อุณหภูมิสูง (1500°C) พบฟอร์สเตอไรต์เป็นเฟสร่วม

4. โครงสร้างจุลภาคของวัสดุเชิงประกอบคอร์เดียไรต์-มุลไลต์ที่สังเคราะห์ได้ ประกอบด้วย เกรนของคอร์เดียไรต์ ผลึกมุลไลต์รูปร่างเข็มที่สานตัวเป็นร่างแห และมีขนาดโตขึ้นเมื่ออุณหภูมิเผาผนึกเพิ่มขึ้น รวมทั้งเฟสเนื้อแก้วซึ่งมีปริมาณมากขึ้นเมื่ออุณหภูมิเผาผนึกและปริมาณคอร์เดียไรต์สูงขึ้น

5. จากการพิจารณาวิเคราะห์เปรียบเทียบผลการทดลองที่ได้ดำเนินการมาทั้งหมด พบว่า ชิ้นงานทุกสูตรในงานวิจัยนี้มีความเหมาะสมต่อการนำมาผลิตเป็นวัสดุทนไฟชนิดคอร์เดียไรต์-มุลไลต์ที่มีความแข็งแรงที่อุณหภูมิสูงและต้านทานต่อการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิอย่างฉับพลัน โดยสองสูตรที่มีผลการทดสอบที่โดดเด่น ได้แก่

5.1 ชิ้นงานสูตร CR20:ML80 (เตรียมจากอะลูมินา 10.92 % แอนดาลูไซต์ 87.46 % และแมกนีเซียมออกไซด์ 2.76 %โดยน้ำหนัก) เผาผนึกที่อุณหภูมิ 1450°C เวลายืนไฟ 2 ชั่วโมง มีค่าความต้านแรงดัดสูงสุด 54.70 MPa มีรูพรุนเปิด 28 % เหมาะสมสำหรับการประยุกต์ใช้งานรับแรงที่อุณหภูมิสูง

5.2 ชิ้นงานสูตร CR70:ML30 (เตรียมจากแอนดาลูไซต์ 75.12 % ซิลิกา 16.20 % และแมกนีเซียมออกไซด์ 9.65 %โดยน้ำหนัก) เผาผนึกที่อุณหภูมิ 1450°C เวลายืนไฟ 2 ชั่วโมง มีความพรุนตัว 29 % ความต้านแรงดัด 36.3 MPa สามารถต้านทานต่อการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิอย่างฉับพลันอุณหภูมิ 1200°C จำนวน 25 รอบได้ดีที่สุดเมื่อเทียบกับชิ้นงานสูตรอื่น และไม่พบรอยแตกร้าวในชิ้นงานภายหลังการทดสอบ เนื่องจากมีสัมประสิทธิ์การขยายตัวทางความร้อนต่ำ  $3.18 \times 10^{-6} / ^\circ\text{C}$  และมีอัตราการสูญเสียความต้านแรงดัดต่ำที่สุด (3.47 %) ชิ้นงานสูตร CR70:ML30 เหมาะสมสำหรับประยุกต์ใช้งานที่มีการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิอย่างฉับพลัน



**ข้อเสนอแนะสำหรับงานวิจัยในอนาคต**

1. ศึกษาสมบัติการนำความร้อน (thermal conductivity) ของทุกสูตรชิ้นงานเผาอบผนังอุณหภูมิ  $1450^{\circ}\text{C}$  เวลายืนไฟ 2 ชั่วโมง
2. ตรวจสอบองค์ประกอบเชิงปริมาณเฟสออสซิลฐานของชิ้นงานก่อนและหลังการทดสอบการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิฉับพลัน เพื่อมาประกอบยืนยันผลการทดลอง



## รายการอ้างอิง

- [1] Karkhanavala, M. and Hummel, F. The polymorphism of cordierite. Journal of the American Ceramic Society 36(12) (1953): 389-392.
- [2] Wang, W., Shi, Z., Wang, X. and Fan, W. The phase transformation and thermal expansion properties of cordierite ceramics prepared using drift sands to replace pure quartz. Ceramics International 42(3) (2016): 4477-4485.
- [3] Ikawa, H., Otagiri, T., Imai, O., Suzuki, M., Urabe, K. and Udagawa, S. Crystal structures and mechanism of thermal expansion of high cordierite and its solid solutions. Journal of the American Ceramic Society 69(6) (1986): 492-498.
- [4] Vepa, S. S. V. and Umarji, A. M. Effect of substitution of Ca on thermal expansion of cordierite ( $Mg_2Al_4Si_5O_{18}$ ). Journal of the American Ceramic Society 76(7) (1993): 1873-1876.
- [5] Valášková, M. Clays, clay minerals and cordierite ceramics-a review. Ceramics-Silikáty 59(4) (2015): 331-340.
- [6] Goren, R., Ozgur, C. and Gocmez, H. The preparation of cordierite from talc, fly ash, fused silica and alumina mixtures. Ceramics international 32(1) (2006): 53-56.
- [7] Albhilil, A., Palou, M., Kozánková, J. and Boháč, M. Thermal and Microstructure Stability of Cordierite–Mullite Ceramics Prepared from Natural Raw Materials-Part II. Arab J Sci Eng 40(1) (2015): 151-161.
- [8] Kobayashi, Y., Sumi, K. and Kato, E. Preparation of dense cordierite ceramics from magnesium compounds and kaolinite without additives. Ceramics International 26(7) (2000): 739-743.
- [9] Ghitulica, C., Andronescu, E., Nicola, O., Dicea, A. and Birsan, M. Preparation and characterization of cordierite powders. Journal of the European Ceramic Society 27(2) (2007): 711-713.

- [10] Kumta, P., Hackenberg, R., McMichael, P. and Johnson, W. Solution sol-gel synthesis and phase evolution studies of cordierite xerogels, aerogels and thin films. Materials Letters 20(5) (1994): 355-362.
- [11] Rohan, P., Neufuss, K., Matejcek, J., Dubsky, J., Prchlik, L. and Holzgartner, C. Thermal and mechanical properties of cordierite, mullite and steatite produced by plasma spraying. Ceramics international 30(4) (2004): 597-603.
- [12] Zirczy, G. N. Kinetics of cordierite formation. In Partial Fulfillment t of the Requirements for the Degree Master of Science in Ceramic Engineering, Georgia Institute of Technology. 1972.
- [13] Bejjaoui, R., Benhammou, A., Nibou, L., Tanouti, B., Bonnet, J.P., Yaacoubi, A., and Ammar, A. Synthesis and characterization of cordierite ceramic from Moroccan stevensite and andalusite. Applied Clay Science 49(3) (2010): 336-340.
- [14] Avvakumov, E., Lepezin, G., Gusev, A. and Vinokourova, O. Role of acid-base interactions in synthesis of cordierite from talc and sillimanite group minerals. Science of Sintering 45(3) (2013): 273-279.
- [15] Benhammou, A., El Hafiane, Y., Abourriche, A., Abouliatim, Y., Nibou, L., Yaacoubi, A. and Tanouti, B. Influence of sintering temperature on the microstructural and mechanical properties of cordierite synthesized from andalusite and talc. Materials Letters 172 (2016): 198-201.
- [16] Williams, J. L. Monolith structures, materials, properties and uses. Catalysis Today 69(1-4) (2001): 3-9.
- [17] Dong, Y., Zhou, J. E., Lin, B., Wang, Y., Wang, S., Miao, L. and Meng, G. Reaction-sintered porous mineral-based mullite ceramic membrane supports made from recycled materials. Journal of hazardous materials 172(1) (2009): 180-186.

- [18] Chowdhury, A., Maitra, S., Das, S., Sen, A., Samanta, G. K. and Datta, P. Synthesis, properties and applications of cordierite ceramics, Part 1. Interceram 56(1) (2007): 18-22.
- [19] Frsconn, R. X. Crystal structure of Al-rich mullite. American Mineralogist 79 (1994): 983-990.
- [20] Ylä-Jääski, J. and Nissen, H.-U. Investigation of superstructures in mullite by high resolution electron microscopy and electron diffraction. Physics and Chemistry of Minerals 10(2) (1983): 47-54.
- [21] Duval, D. J., Risbud, S. H. and Shackelford, J. F. Mullite. Ceramic and Glass Materials (2008): 27-39.
- [22] Anggono, J. Mullite ceramics: its properties structure and synthesis. Journal Teknik Mesin 7(1) (2005): pp. 1-10.
- [23] Klug, F. J., Prochazka, S. and Doremus, R. H. Alumina-Silica Phase Diagram in the Mollite Region. Journal of the American Ceramic Society 70(10) (1987): 750-759.
- [24] Kim, B., Cho, Y., Yoon, S., Stevens, R. and Park, H. Mullite whiskers derived from kaolin. Ceramics International 35(2) (2009): 579-583.
- [25] Chen, C., Lan, G. and Tuan, W. Preparation of mullite by the reaction sintering of kaolinite and alumina. Journal of the European Ceramic Society 20(14) (2000): 2519-2525.
- [26] Mazel, F., Gonon, M. and Fantozzi, G. Manufacture of mullite substrates from andalusite for the development of thin film solar cells. Journal of the European Ceramic Society 22(4) (2002): 453-461.
- [27] Aryal, S., Rulis, P. and Ching, W. Density functional calculations of the electronic structure and optical properties of aluminosilicate polymorphs ( $\text{Al}_2\text{SiO}_5$ ). American Mineralogist 93(1) (2008): 114-123.

- [28] Namiranian, A. and Kalantar, M. Mullite synthesis and formation from kyanite concentrates in different conditions of heat treatment and particle size. Iranian Journal of Materials Science & Engineering 8(3) (2011)
- [29] Bradt, R. C. The Sillimanite Minerals: Andalusite, Kyanite, and Sillimanite. Ceramic and Glass Materials (2008): 41-48.
- [30] Hülsmans, A., Schmücker, M., Mader, W. and Schneider, H. The transformation of andalusite to mullite and silica: Part I. Transformation mechanism in [001] A direction. American Mineralogist 85(7) (2000): 980-986.
- [31] Burt, J. B., Ross, N. L., Angel, R. J. and Koch, M. Equations of state and structures of andalusite to 9.8 GPa and sillimanite to 8.5 GPa. American Mineralogist 91(2-3) (2006): 319-326.
- [32] Pannhorst, W. and Schneider, H. The high-temperature transformation of andalusite ( $\text{Al}_2\text{SiO}_5$ ) into 3/2-mullite ( $3\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot \text{SiO}_2$ ) and vitreous silica ( $\text{SiO}_2$ ). Mineralogical Magazine 4(2) (1978): 195-198.
- [33] Peretz, I. and Bradt, R. (1987). Andalusite derived mullite-matrix refractories. Mullite and Mullite Matrix Composites. Proc. Int. Conf. on Mullite Tokyo, 9-10 November 1987.
- [34] Bouchetou, M.-L., Ildefonse, J.-P., Poirier, J. and Daniellou, P. Mullite grown from fired andalusite grains: the role of impurities and of the high temperature liquid phase on the kinetics of mullitization and consequences on thermal shocks resistance. Ceramics international 31(7) (2005): 999-1005.
- [35] Pooladvand, H., Baghshahi, S., Mirhadi, B., Souri, A. and Arabi, H. Effect of MgO and CaO on transformation of andalusite to mullite. Journal of materials engineering and performance 21(8) (2012): 1637-1644.
- [36] Wu, J., Leng, G., Xu, X., Li, K., Lao, X., and Zhou, C. In-situ synthesis of a cordierite-andalusite composite for solar thermal storage. Solar Energy Materials and Solar Cells 108 (2013): 9-16.

- [37] Dubreuil, P., Filari, E. and Sobolev, V. Use of andalusite refractories in ferrous metallurgy. Refractories and industrial ceramics 40(5-6) (1999): 252-259.
- [38] Schneider, H., Schreuer, J. and Hildmann, B. Structure and properties of mullite—a review. Journal of the European Ceramic Society 28(2) (2008): 329-344.
- [39] Kiattisaksophon, P. and Thiansem, S. The preparation of cordierite-mullite composite for thermal shock resistance material. Chiang Mai Journal of Science 35(1) (2008): 6-10.
- [40] Hayati, E. Z., Moradi, O. M. and Kakroudi, M. G. Investigation the effect of sintering temperature on Young's modulus evaluation and thermal shock behavior of a cordierite-mullite based composite. Materials & Design 45 (2013): 571-575.
- [41] Albilil, A. A., Palou, M. and Kozánková, J. Characterization of cordierite-mullite ceramics prepared from natural raw materials. Acta Chimica Slovaca 6(1) (2013): 1-7.
- [42] Khattab, R., El-Rafei, A. and Zawrah, M. In situ formation of sintered cordierite–mullite nano–micro composites by utilizing of waste silica fume. Materials Research Bulletin 47(9) (2012): 2662-2667.
- [43] Ozel, E. and Kurama, S. Effect of the processing on the production of cordierite-mullite composite. Ceramics International 36(3) (2010): 1033-1039.
- [44] Cordierite-Mullite application [online]. Available from: <http://www.amic.biz/fsproduct/kilnfurniture.html>. [2015, 3 Jan]
- [45] Cordierite-Mullite application [online]. Available from: <http://www.teknotherm.com.tr/cordierite-mullite-and-sic-furnace-materials>. [2015, 15 Jan]
- [46] Cordierite-Mullite application [online]. Available from: <http://steuler-kch.steuler.com/sites/default/files/dateien/non-ferrous-metallurgy-steuler-kch-en.pdf>. [2015, 15 Jan]

- [47] Woo, M. W., Mujumdar, A. S. and Daud, W. R. W. Spray Drying Technology. Published in Singapore: 2010.
- [48] Dobry, D. E., Settell, D. M., Baumann, J. M., Ray, R. J., Graham, L. J. and Beyerinck, R. A. A model-based methodology for spray-drying process development. Journal of pharmaceutical innovation 4(3) (2009): 133-142.
- [49] Bhesh Bhandari, N. B., Min Zhang, Pierre Schuck. Handbook of Food Powders: Processes and Properties. Woodhead Publishing Limited, 2013.
- [50] Wulsten, E. C. Determination of droplet surface temperature and drying kinetics of protein solutions using an ultrasonic levitator. Shaker, 2009.
- [51] Masters, K. Spray Drying Handbook. Denmark : Longman Scientific & Technical, 1991.
- [52] Ralf Riedel, I.-W. C. Ceramics Science and Technology. Synthesis and Processing.
- [53] Walker, W. J., Reed, J. S. and Verma, S. K. Influence of Slurry Parameters on the Characteristics of Spray-Dried Granules. Journal of the American Ceramic Society 82(7) (1999): 1711-1719.
- [54] Garcia, E., Mesquita-Guimarães, J., Miranzo, P. and Osendi, M. Porous mullite and mullite-ZrO<sub>2</sub> granules for thermal spraying applications. Surface and Coatings Technology 205(17) (2011): 4304-4311.
- [55] Zhang, L., Yang, H., Qiao, X., Zhou, T., Wang, Z. and Zang, Q. Systematic optimization of spray drying for YAG transparent ceramics. Journal of the European Ceramic Society 35(8) (2015): 2391-2401.
- [56] Richerson, d. W. Modern ceramic engineering: properties, processing, and use in design. Marcel Dekker, 1992.
- [57] O'Driscoll, M. and Harries-Rees, K. Introduction refractories (1993):
- [58] Kingery, W. D. Factors affecting thermal stress resistance of ceramic materials. Journal of the American Ceramic Society 38(1) (1955): 3-15.

- [59] DP, H. Thermal Stress Resistance Parameters for Brittle Refractory Ceramics-a compendium. American Ceramic Society Bulletin 49(12) (1970): 1033.
- [60] Routschka, G. Refractory Materials: Pocket Manual; Design, Properties, Testing. Vulkan-Verlag GmbH, 2008.
- [61] Schacht, C. Refractories handbook. CRC Press, 2004.
- [62] Richerson, D., Richerson, D. W. and Lee, W. E. Modern ceramic engineering: properties, processing, and use in design. CRC press, 2005.
- [63] Idzkowska, A., Sato, K., Sakka, Y. and Szafran, M. Deflocculation and stabilization of  $Ti_3SiC_2$  ceramic powder in gelcasting process. Journal of the Ceramic Society of Japan 123 (1443) (2015): 1010-1017.
- [64] Niskanen, I., Hibino, K. and Rätty, J. Immersion liquid techniques in solid particle characterization: A review. Talanta 149 (2016): 225-236.
- [65] Choudhary, A., Ramavath, P., Biswas, P., Ravi, N. and Johnson, R. Experimental investigation on flowability and compaction behavior of spray granulated submicron alumina granules. ISRN Ceramics 2013 (2013)
- [66] Wang, W., Dufour, C. and Zhou, W. Impacts of spray-drying conditions on the physicochemical properties of soy sauce powders using maltodextrin as auxiliary drying carrier. CyTA-Journal of Food 13(4) (2015): 548-555.
- [67] ชนมนิภา ชั่งใจ, ใจพิสุทธิ์ สุวรรณชื่น. อิทธิพลของตัวแปรในกระบวนการเตรียมสลิปและการทำแห้งแบบพ่นฝอยที่มีต่อลักษณะเฉพาะของแกรนูลแมกนีเซียมอะลูมินตสปิเนล. ภาควิชาวัสดุศาสตร์ คณะวิทยาศาสตร์ จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย 2557.
- [68] Rahaman, M. N. Ceramic processing. Wiley Online Library, 2006.
- [69] Yan, W., Chen, J., Li, N., Han, B. and Wei, Y. Lightweight cordierite–mullite refractories with low coefficients of thermal conductivity and high mechanical properties. Bulletin of Materials Science 38(2) (2015): 409-415.
- [70] An, Y., Chen, J., Zhou, H. and Liu, G. Microstructure and thermal cycle resistance of plasma sprayed mullite coatings made from secondary



- mullitized natural andalusite powder. Surface and Coatings Technology 205(7) (2010): 1897-1903.
- [71] Schneider, H. and Majdič, A. Kinetics and mechanism of the solid-state high-temperature transformation of andalusite ( $\text{Al}_2\text{SiO}_5$ ) into 3:2-mullite ( $3\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 2\text{SiO}_2$ ) and silica ( $\text{SiO}_2$ ). Ceramurgia International 5(1) (1979): 31-36.
- [72] McCauley, R. A. Corrosion of Ceramic Materials, Third Edition. 2013.
- [73] Albhilil, A. A., Kozánková, J. and Palou, M. Thermal and microstructure stability of cordierite-mullite ceramics prepared from natural raw materials. Arab J Sci Eng 39(1) (2014): 67-73.
- [74] Gonzalez-Velasco, J., Gutierrez-Ortiz, M., Ferret, R., Aranzabal, A. and Botas, J. Synthesis of cordierite monolithic honeycomb by solid state reaction of precursor oxides. Journal of materials Science 34(9) (1999):
- [75] Pooladvand, H., Mirhadi, B., Baghshahi, S., Souri, A. and Arzani, K. Effects of alumina and zirconia addition on transformation of andalusite to mullite. Advances in Applied Ceramics 108(7) (2009): 389-395.
- [76] William, F. S. Principle of Materials Science and Engineering.
- [77] Lu, T. and Fleck, N. The thermal shock resistance of solids. Acta materialia 46(13) (1998): 4755-4768.
- [78] Chlup, Z., Boccaccini, D. N., Leonelli, C., Romagnoli, M. and Boccaccini, A. R. Fracture behaviour of refractory ceramics after cyclic thermal shock. Ceramics Silikaty 50(4) (2006): 245.



ภาคผนวก

จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย  
CHULALONGKORN UNIVERSITY

### ประวัติผู้เขียนวิทยานิพนธ์

นางสาวกรรณิการ์ เดชรักษา เกิดวันที่ 15 กันยายน พ.ศ. 2520 ที่จังหวัด นครศรีธรรมราช สำเร็จการศึกษาระดับปริญญาตรี หลักสูตรวิศวกรรมศาสตรบัณฑิต สาขา วิศวกรรมเซรามิก มหาวิทยาลัยเทคโนโลยีสุรนารี พ.ศ. 2542 เข้าทำงานเป็นผู้ช่วยวิจัย และ นักวิจัย สังกัดศูนย์เทคโนโลยีโลหะและวัสดุแห่งชาติ (MTEC) สำนักงานพัฒนาวิทยาศาสตร์และเทคโนโลยีแห่งชาติ กระทรวงวิทยาศาสตร์และเทคโนโลยี พ.ศ. 2542-2557 และเข้าศึกษาต่อใน หลักสูตรวิทยาศาสตรมหาบัณฑิต สาขาวิชาเทคโนโลยีเซรามิก คณะวิทยาศาสตร์ จุฬาลงกรณ์ มหาวิทยาลัยและสำเร็จการศึกษาในปีการศึกษา 2558

การนำเสนอผลงานวิชาการระดับนานาชาติแบบ Poster presentation เรื่อง "Synthesis of cordierite-mullite composites from natural andalusite" ในการประชุม วิชาการ The 7th Research Symposium on Petrochemical and Materials Technology and The 22nd PPC Symposium on Petroleum, Petrochemicals, and Polymers. วันที่ 24 พฤษภาคม พ.ศ. 2559 จัดโดย วิทยาลัยปิโตรเลียมและปิโตรเคมี จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย ณ อาคารเฉลิมราชกุมารี 60 พรรษา จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย และได้รับการตีพิมพ์ผลงานใน รูปแบบ Proceeding

รางวัล Silver Poster Presentation Award Session Smart and Advanced Materials เรื่อง "Synthesis of cordierite-mullite composites from natural andalusite" ในงานประชุมทางวิชาการ The 7th Research Symposium on Petrochemical and Materials Technology and The 22nd PPC Symposium on Petroleum, Petrochemicals, and Polymers. วันที่ 24 พฤษภาคม พ.ศ. 2559 จัดโดย วิทยาลัยปิโตรเลียม และปิโตรเคมี จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย ณ อาคารเฉลิมราชกุมารี 60 พรรษา จุฬาลงกรณ์ มหาวิทยาลัย