

Beata BACKIEL-BRZOZOWSKA*
Politechnika Białostocka

WPLYW WYBRANYCH PARAMETRÓW TECHNOLOGICZNYCH NA WYTRZYMAŁOŚĆ I NASIĄKLIWOŚĆ CERAMIKI ŚCIENNEJ

Streszczenie. W pracy przedstawiono dwa modele eksperymentalno – statystyczne o charakterze multiplikatywnym. Modele te pozwalają na przeprowadzenie ilościowej oceny wpływu dodatku piasku (jego ilości i składu granulometrycznego), we wzajemnym oddziaływaniu z parametrami wypalania (maksymalną temperaturą oraz czasem przetrzymywania w tej temperaturze), na wytrzymałość na ściskanie i nasiąkliwość tworzyw ceramicznych. Modele zbudowano na podstawie danych uzyskanych w wyniku realizacji eksperymentu opartego na specjalnie skomponowanym planie.

INFLUENCE OF CHOSEN TECHNOLOGICAL PARAMETERS ON COMPRESSIVE STRENGTH AND WATER ABSORBABILITY OF WALL CERAMICS

Summary. Two experimental- statistical models of multiplicative character are presented in this work. These models allow to evaluate quantitatively the influence of quartz sand in ceramic mix (amount and graining) interacting with parameters of burning upon compressive strength and water absorbability of wall ceramics. Presented models were built on basis of experimental data obtained during performance of especially composed experimental design.

1. Wstęp

Wartości głównych cech technicznych wyrobów ceramicznych zależą od składu surowca oraz parametrów procesu wypalania. Opis ilościowy tych zależności umożliwiłyby rozwiązywanie zagadnień związanych z produkcją wyrobów o pożądanych właściwościach. W badaniach technologicznych celowe jest przedstawienie rozpatrywanych związków w postaci modeli wielomianowych, których współczynniki wyznacza się na podstawie wyników doświadczalnych uzyskanych po przeprowadzeniu specjalnie zaplanowanych eksperymentów.

* Opiekun naukowy: Prof. dr hab. inż. Michał Bołtryk.

2. Charakterystyka obiektu badawczego

Badanie eksperymentalne przeprowadzono w warunkach laboratoryjnych na próbkach w postaci sześcianu o długości krawędzi 50 mm, formowanych na mokro z masy plastycznej. Masa składała się z iltu plastycznego pochodzącego z Przedsiębiorstwa Ceramiki Budowlanej „Lewkowo” z Lewkowa Starego oraz miejscowego piasku rzecznego. Il należy do klasy glin łatwo topliwych, o temperaturze topnienia około 1200°C oraz przedziale spiekania 50-60°C. Skład granulometryczny surowca cechuje duża ilość najdrobniejszych frakcji (55% ziaren mniejszych niż 2 μ , 88% ziaren mniejszych niż 10 μ). Głównym minerałem ilastym jest illit (hydrołyszczyk), któremu towarzyszą minerały grupy chlorytowej i montmorylonitowej lub zmieszane warstwowo minerały (ilit – montmorylonit). Skład chemiczny iltu w postaci procentowego udziału masowego tlenków przedstawia się następująco: SiO₂ – 46-48%; Al₂O₃ – 14-17%; Fe₂O₃ + FeO – 6,1-7,4%; CaO – 9-10%; MgO – 3,6-4,1%; K₂O + Na₂O – 3,8-4,6%. Utrata masy przy prażeniu osiąga 13,1%. Ilość wolnego kwarcu (SiO₂) wynosi około 10%.

Podczas nagrzewania iltu hydrołyszczykowego, pod koniec procesu dehydratacji, przy niepełnym wypale wtrąceń organicznych w temperaturze około 700°C, pomiędzy płytkami illitu zaczynają pojawiać się drobne plamki fazy ciekłej, co tłumaczy się obecnością jonów potasowych, magnezowych i żelazowych. Przy dalszym nagrzewaniu struktura illitopodobna zachowuje swój charakter do 1000°C, a następnie przy wzroście temperatury do 1100°C pojawia się spinel żelazowy i magnezowy, co powoduje dalsze wytrącanie fazy ciekłej (lub podobnej do ciekłej), prace [1,2]. Wraz ze wzrostem temperatury do 1200°C spinel może znikać i przechodzić w fazę typu mullitu. Powyższy opis przedstawia charakter głównych przekształceń zachodzących w iltach i hydrołyszczykach podczas wypalania.

W celu regulacji cech technicznych iltu wprowadzono dodatek korygujący w postaci piasku kwarcowego o nieznacznej zawartości drobnych cząsteczek marglu (około 0,3%). W piasku znajduje się najwięcej (96%) ziaren o średnicy 0,06-1mm, których kształt zbliżony jest do kulistego. Piasek można sklasyfikować jako średnioziarnisty. Niestety, w literaturze brakuje jednakowych poglądów na temat pożądanych składów granulometrycznych piasków, stosowanych do produkcji ceramiki ściennej. Według Awgustnika [1] wskazane jest zastosowanie piasków średnioziarnistych, o wymiarze ziaren 0,25-0,5 mm, natomiast według Rogowego [3] piasków gruboziarnistych o frakcji 0,5-2mm. Jednocześnie autorzy tych prac twierdzą zgodnie, że piaski pyłaste nie mogą być stosowane do produkcji wyrobów ceramiki budowlanej.

3. Opis planu eksperymentu i modelu matematycznego

Przed wyborem modelu matematycznego ustalono liczbę wielkości niezależnych oraz poziom zmienności badanych czynników. Założono, że proces wypalania będzie scharakteryzowany dwoma czynnikami: X_1 – maksymalną temperaturą, X_2 – czasem przetrzymywania w maksymalnej temperaturze. Zależność cech materiału ceramicznego od parametrów wypalania nie przedstawia się liniowo, dlatego wykorzystano zależność paraboliczną, która lepiej odzwierciedla jej charakter. Czynniki X_1 i X_2 zmieniały się na trzech poziomach (dolnym, środkowym i górnym): 900, 990, 1080°C (X_1); 1, 2, 3 godziny (X_2). Jednocześnie prędkość nagrzewania i studzenia pozostała niezmienna i utrzymywała się na poziomie 3°C/min. Całkowity czas wypalania wynosił 10,8; 12,5; 14,2 godzin. Parametry procesu wypalania zostały dobrane po analizie wyników wcześniej przeprowadzonych badań. Jako trzecią zmienną X_3 przyjęto ilość dodatku piasku w masie ceramicznej równą 5, 15, 25% (wagowo). Skład granulometryczny piasku zadawano frakcjami: drobną Z_1 (do 0,25 mm), średnią Z_2 (0,25-0,5mm) i grubą Z_3 , (0,5-1mm). Przy wariacji czynników granulometrycznych (masowych) Z_1 , Z_2 i Z_3 został spełniony warunek $\sum Z_i = 1$.

Zależność każdej z dwóch badanych cech y_k ($k=1,2$) od czynników technologicznych X_1 , X_2 , i X_3 opisano wielomianem drugiego stopnia:

$$\hat{y}_k = b_0 + b_1x_1 + b_2x_2 + b_3x_3 + b_{12}x_1x_2 + b_{13}x_1x_3 + b_{23}x_2x_3 + b_{11}x_1^2 + b_{22}x_2^2 + b_{33}x_3^2 \quad (1)$$

gdzie:

$$x_1 = \frac{X_1 - 990}{90}; \quad x_2 = X_2 - 2; \quad x_3 = \frac{X_3 - 15}{10}$$

są to kodowane czynniki, mające w planie eksperymentu jednakowe znaczenie poziomów, równe: -1, 0, 1; X_i jest naturalną wartością wielkości wejściowych.

Wszystkie współczynniki wielomianu (1) są funkcjami zależnymi od czynników granulometrycznych Z_i , opisanymi wielomianami niepełnego trzeciego stopnia:

$$b_{(0, i, ij, iij)} = \beta_1 Z_1 + \beta_2 Z_2 + \beta_3 Z_3 + \beta_{12} Z_1 Z_2 + \beta_{13} Z_1 Z_3 + \beta_{23} Z_2 Z_3 + \beta_{123} Z_1 Z_2 Z_3, \quad (i, j=1, 2, 3; b_{ij}, i < j) \quad (2)$$

Założono, że model (1), (2) powinien odzwierciedlać wszystkie złożone wzajemne oddziaływania pomiędzy czynnikami granulometrycznymi Z_i i technologicznymi X_i . Autorzy pracy [4] prezentują zastosowanie tego typu modelu do opisu wilgoci sorpcyjnej w cegle ceramicznej i stwardniałej zaprawie cementowej z zawartością trzech typów soli.

Dane doświadczalne, nieodzowne do ustalenia wartości współczynników wielomianu (1), otrzymano po zrealizowaniu eksperymentu opartego na kompozycyjnym i symetrycznym planie, zawierającym 14 prób o różnych kodowanych wartościach wielkości wejściowych X_i [5]. Każdy punkt planu powtórzono siedmiokrotnie przy różnych proporcjach trzech frakcji piasku Z_i . Stosunki te zadawano zgodnie z wybranym planem sympleksowym Scheffe, mającym częste zastosowanie przy planowaniu eksperymentu typu „skład-właściwości” [5]. Zgodnie z tym planem, przy możliwie maksymalnej randomizacji, zrealizowano $N=14 \cdot 7=98$ prób (dla każdej próby po dwie próbki).

4. Prezentacja modeli matematycznych

4.1. Wytrzymałość na ściskanie

Niestety, podczas określania wytrzymałości na ściskanie próbek, ze względu na ograniczenia związane z przygotowaniem kostek ceramicznych, nie wykonano powtórnych prób. Pozostałe próbki (98 kostek) przeznaczono do wykonania badań mrozoodporności tworzyw ceramicznych. W związku z tym nie było możliwości oceny dyspersji błędu eksperymentu $s_{y_1}^2$, która jest nieodzowna do wykonania dalszej statystycznej analizy wyników eksperymentu. Wykorzystano więc wyniki wcześniejszych badań, przeprowadzonych przy innym poziomie wielkości wejściowych o wartościach zawierających się w przedziale zmienności przeprowadzonego eksperymentu. Otrzymano wartość wariancji równą $s_{y_1}^2 = 24,4$ przy 12 stopniach swobody. Odchylenie standardowe wyniosło $\sqrt{s_{y_1}^2} = 4,94$.

Dane doświadczalne analizowano grupami, rozpatrując kolejno wyniki wytrzymałości próbek z masy ceramicznej o identycznym składzie, przygotowanych przy różnych poziomach czynników X_1 , X_2 i X_3 (7 grup). Dla każdej grupy zbudowano równania regresji w postaci wielomianu kwadratowego (1), które następnie poddano analizie i interpretacji. Analiza polegała na ocenie istotności współczynników modelu (kryterium t-Studenta), ocenie adekwatności modelu (kryterium Fishera), sprawdzeniu zdolności modelu do prognozowania (kryterium γ) oraz przeprowadzeniu ostatecznej oceny prawidłowości modelu (metoda Daniela [7] oraz diagram Enskomba-Tiuki). W rezultacie zbudowano 7 modeli regresyjnych typu dwuczynnikowego, które w sposób adekwatny opisały wartości danych eksperymentalnych. Jak wynika z przeprowadzonej analizy statystycznej, czynnik X_2 nie daje istotnych

efektów, co prawdopodobnie jest efektem z przyjęcia w planie eksperymentu zbyt wąskiego przedziału zmienności czasu przetrzymywania próbek w maksymalnej temperaturze.

Wartości jednakowych czynników wszystkich rodzin modeli dwuczynnikowych aproksymowano wielomianami (2) i otrzymano końcowy model służący do wyznaczania wartości wytrzymałości na ściskanie:

$$\begin{aligned} \hat{y}_1 = & 40,44Z_1 + 27,42Z_2 + 23Z_3 - 47,44Z_1Z_2 - 19,14Z_1Z_3 + 20,66Z_2Z_3 + 329,8Z_1Z_2Z_3 - \\ & - (10,39Z_1 + 5,67Z_2 + 4,44Z_3 - 12,2Z_1Z_2 - 15,5Z_1Z_3 - 3,58Z_2Z_3 + 51,6Z_1Z_2Z_3)x_1 + \\ & + (3,99Z_1 - 1,14Z_2Z_1 + 23,14Z_1Z_3 + 9,96Z_2Z_3 - 48,4Z_1Z_2Z_3)x_3 + \\ & + (6,3Z_1 + 3,21Z_2 + 4,77Z_3 - 3,46Z_1Z_2 - 3,66Z_1Z_3 - 15,96Z_2Z_3 + 182Z_1Z_2Z_3)x_1x_3 + \\ & + (7,97Z_1 + 2,5Z_2 + 2,64Z_3 + 14,32Z_1Z_2 - 23,82Z_1Z_3 - 23Z_2Z_3 + 45,1Z_1Z_2Z_3)x_1^2 - \\ & - (11,23Z_1 - 0,8Z_2 - 31,1Z_1Z_2 - 16,66Z_1Z_3 + 11,76Z_2Z_3 + 266,7Z_1Z_2Z_3)x_3^2 \end{aligned} \quad (3)$$

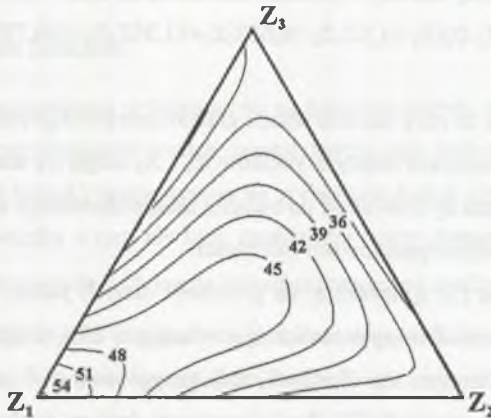
Z modelu (3) wynika, że przy zmianie składu granulometrycznego piasku wprowadzanego do masy ceramicznej, wszystkie efekty czynników X_1 i X_3 mogą się znacząco zmieniać. Do takiego wniosku nie można by było dojść po badaniu skomplikowanego procesu wypalania za pomocą tradycyjnych, jednoczynnikowych zależności.

Adekwatność modelu (3) sprawdzono na podstawie danych jednej próby zrealizowanej poza planem eksperymentu. Z masy ceramicznej zawierającej 25% dodatku piasku o składzie granulometrycznym zbliżonym do $Z_1=Z_2=Z_3=1/3$ przygotowano 7 próbek. Maksymalna temperatura wypalania wynosiła 930°C. Średnia wytrzymałość na ściskanie próbek uzyskała wartość $\bar{y}_1 = 32,6\text{MPa}$. Po podstawieniu wartości Z_i oraz kodowanych czynników ($x_1=-0,67$ oraz $x_3=1$) do równania (3) otrzymano $\hat{y}_1=29,8\text{MPa}$. W sensie statystycznym zbieżność obliczonej wartości wytrzymałości z wartością doświadczalną nie budzi wątpliwości.

Wykorzystując równania regresji zbudowane dla poszczególnych grup, wchodzące w skład modelu (3), znaleziono dla każdego składu ziarnowego piasku optymalne warunki przygotowania tworzyw. Przykładowo, dla najdrobniejszej frakcji piasku ustalono, że maksymalną wartość wytrzymałości można uzyskać przy temperaturze wypalania równej 900°C oraz ilości piasku około 12,5%. Po podstawieniu wartości $x_1=-1$ i $x_3=-0,25$ do równania (3) otrzymano:

$$\hat{y}_{1(\text{opt})} = 58,7Z_1 + 36,4Z_2 + 31,3Z_3 - 44,0Z_1Z_2 - 64,1Z_1Z_3 - 13,1Z_2Z_3 + 467,5Z_1Z_2Z_3 \quad (4)$$

Równanie (4) pozwala na obliczenie największej wartości wytrzymałości na ściskanie (optimum warunkowe) dla konkretnego składu ziarnowego piasku. Obliczenia zilustrowano na diagramie trójkomponentnym przedstawiającym obraz geometryczny zależności (4) w postaci izolinii wytrzymałości na ściskanie (rys. 1). Jak wynika z rysunku 1, największą wytrzymałość osiągną tworzywa ceramiczne z dodatkiem piasku w postaci najdrobniejszej frakcji (ilość frakcji Z_1 będzie dążyć do 1, a ilość frakcji Z_2 i Z_3 dąży do 0). Na diagramie można wydzielić obszar, w którego wnętrzu wartość wytrzymałości na ściskanie jest nie mniejsza niż potrzebna, lub rozwiązywać zagadnienia, polegające na znalezieniu kompromisu pomiędzy wytrzymałością a innymi cechami charakteryzującymi wyroby ceramiki budowlanej.



Rys. 1. Izolinie wytrzymałości na ściskanie próbek na diagramie trójkomponentnym składu ziarnowego piasku dla warunków optymalnych

Fig. 1. Isolines of compressive strength on tricomponent diagram of grain-size distribution of sand for optimum conditions

4.2. Nasiąkliwość

Podczas badania nasiąkliwości każdą z 98 prób w planie eksperymentu powtórzono dwukrotnie, co pozwoliło na przeprowadzenie ocen dyspersji błędów eksperymentu. Jednorodność tych dyspersji została potwierdzona za pomocą G-kryterium na poziomie istotności $\alpha=0,05$. W rezultacie otrzymano dostatecznie pewną (niezawodną) ocenę dyspersji błędu eksperymentu $s_{72u}^2 = 1,337$ o 98 stopniach swobody.

Po przeprowadzeniu analizy (analogicznej do analizy wytrzymałości) zbudowano model prognozowania nasiąkliwości w rozpatrywanym obszarze przestrzeni czynnikowej:

$$\begin{aligned} \hat{y}_2 = & 12,8Z_1 + 13,2Z_2 + 13,5Z_3 + 6,4Z_1Z_2 - 0,6Z_1Z_3 + 1Z_2Z_3 + 58,8 Z_1Z_2Z_3 - 4,12x_1 + \\ & + (0,24Z_1 + 0,58Z_2 + 1,02Z_3 + 1,36Z_1Z_2 + 1,52Z_1Z_3 - 47,1Z_1Z_2Z_3) x_1x_3 - \\ & - (2Z_1 + 2,1Z_2 + 2,1Z_3 + 5,4Z_1Z_2 - 2,2Z_1Z_3 - 0,4Z_2Z_3 + 60 Z_1Z_2Z_3) x_1^2 \end{aligned} \quad (5)$$

Dostateczna dokładność aproksymacji średnich wartości prób tego modelu została potwierdzona przy ocenie adekwatności modeli dwuczynnikowych, posiadających efekty liniowe i kwadratowe czynnika x_1 , a także efekt wzajemnego oddziaływania x_1 i x_3 . Ostatni efekt może o 30% zmienić wartość liniowego efektu czynnika x_1 . Pozostaje stwierdzić, że zależność nasiąkliwości od czynników x_1 i x_3 ma w pełni tradycyjny charakter. Przy zmianie składu ziarnowego piasku efekty czynników x_1 i x_3 (z wyłączeniem liniowych efektów czynnika x_1), mogą ulegać znacznym zmianom.

Do przeprowadzenia oceny zdolności prognozującej modelu (5) wykorzystano dane próby zrealizowanej poza planem eksperymentu. Średnia wartość rodziny powtórnych prób wyniosła $\bar{y}_2 = 15,7\%$. Próby te wykonano przy następujących warunkach: $x_1 = -2/3$ (930°C), $x_3 = 1$ (25% piasku), $Z_1 = Z_2 = Z_3 = 1/3$. Po podstawieniu tych wartości do równania (5) uzyskano $\hat{y}_2 = 16,4\%$. Reszty modelu $e = 0,7$ (wartości obliczonej i eksperymentalnej) okazały się znacznie mniejsze od odchylenia standardowego $s_{\bar{y}_{2u}} = 1,156$, co jeszcze raz potwierdza poprawność modelu (5) oraz jego przydatność do obliczeń prognozujących.

W zagadnieniach technologicznych obliczenia prognozujące mogą mieć zastosowanie przy wyborze warunków optymalnych z punktu widzenia wytrzymałości na ściskanie wyrobów. Na przykład, dla ceramiki ściennej istnieje potrzeba ustalenia, czy przy pożądanej wytrzymałości na ściskanie nasiąkliwość wyrobów nie spada poniżej wartości progowej.

5. Podsumowanie

Wykonane badanie wykazało, że znaczny wpływ na wytrzymałość i nasiąkliwość ceramiki ściennej mają nie tylko parametry wypalania oraz ilość dodatku piasku, ale również jego skład granulometryczny. Zbudowane modele eksperymentalno-statystyczne dostatecznie dokładnie opisują wyniki bardzo skomplikowanych wzajemnych oddziaływań rozpatrywanych czynników i pozwalają na rozwiązywanie różnorodnych zagadnień inżynierskich.

LITERATURA

1. Awgustnik A. I.: Ceramika. Arkady, Warszawa 1980.
2. Pavlov V. F.: Fiziko-chimičeskie osnovy obžiga izdelij stroitel'noj keramiki. Strojizdat, Moskwa 1977.
3. Rogovoj M. I.: Tiejchnolgija iskusstvennyh poristyh zapolnitelej i keramiki. Strojizdat, Moskwa 1974.
4. Nikitin V., Guriev V., Łapko A.: Modelowanie procesów w produkcji i eksploatacji warstwowych konstrukcji budowlanych. Wydawnictwo PB, Białystok 1999.
5. Voznesenskij V. A., Vyrovoj V. N., Kerš V., Ja., Ljašenko T. V.: Sovremennye metody optymalizacii kompozicionnyh materialov Budivel'nik, Kijów 1983.
6. Nalimov V. V.(redaktor): Tablicy planov eksperimenta dlja faktornych i polinomial'nych modelej, Mijetallurgija, Moskwa 1982.
7. Deniel K.: Primenenie statistiki v promyšlennom éksperimente, Mir, Moskwa 1979.

Recenzent: Prof. dr hab. inż. Jerzy Dyczek

Abstract

Procedure of formulating two experimental-statistical models of high level of complexity is discussed in this work. Their multiplicative form has been developed. These models allow to determinate the amount and grain size of sand and they also allow to determinate parameters of thermal treatment of ceramic mix for which required values of compressive strength and water absorbability are obtained.

Original combined experimental design has been chosen to evaluate parameters of these models. Evaluation of experimental error, which is necessary to evaluate adequacy of models and statistical significance of input parameters (coefficients), is discussed in this paper.

As a results of experiment the known effects of temperature and components, and the effects not described in literature have been obtained as well. Among these unknown, combined effects of grain size of wakening admixture, its amount in ceramic mix and burning temperature upon considered features should be mentioned.