

## THE SYNTHESIS OF TIALITE – MULLITE CERAMIC MATERIALS WITH FELDSPAR

MELINESCU ALINA<sup>1\*</sup>, EFTIMIE MIHAI<sup>1</sup>, DUMITRESCU OVIDIU<sup>1</sup>, ANTON CORNEL<sup>2</sup>

<sup>1</sup>*Faculté de Chimie Appliquée et Science des Matériaux, Université Politehnica de Bucarest, Rue Polizu No.1-7, Bucarest, 011061, Roumanie*

<sup>2</sup>*Centre National de Recherche (IMT), Bucarest, Roumanie*

**Abstract:** For this research three compositions were studied with the following raw materials: corundum, rutile, kaolin and feldspar. The samples were sintered using a conventional ceramic technology with a thermal treatment between 1300 and 1500°C. The mullite was the first compound formed, but tialite appeared around 1350°C. At 1500°C were identified, by X-ray diffraction, only the mineralogical equilibrium compounds: the tialite and mullite. The apparent density measured on the samples heat treated at 1500°C presented values between 69-74% of the theoretical density.

**Keywords :** tialite, mullite, feldspar, sintering, RX, scanning microscopy

### 1. INTRODUCTION

Le titanate d'aluminium ( $Al_2TiO_5$ ) est un matériau céramique qui a fait l'objet de nombreuses études en raison de ses propriétés particulières comme par exemple sa haute refractarité, son coefficient de dilatation thermique moyen relativement faible et sa bonne résistance au choc thermique. Cependant, ce composé est instable thermodynamiquement et donc il faut le transformer en une solution solide qui est plus stable que le produit pur [1-2]. La formation du titanate d'aluminium, par réactions en phase solide, est difficile à réaliser à cause de la très grande inertie chimique de l'oxyde d'aluminium. Aussi, l'aptitude au frittage du mélange des matières premières conduisant à la synthèse du titanate d'aluminium est très faible parce que sa formation s'accompagne d'une augmentation du volume. Le mullite ( $Al_6Si_2O_{13}$ ) étant un composé avec un faible coefficient de dilatation thermique, son incorporation dans la structure d' $Al_2TiO_5$  a pour effet d'augmenter la résistance mécanique, tout en inhibant la croissance des grains [3-4].

### 2. PROTOCOLE EXPÉRIMENTAL

La composition minéralogique des trois formulations étudiées est présentée dans le tableau 1. Les matières premières utilisées sont des poudres d'oxydes commerciaux de synthèse ( $Al_2O_3$ ,  $TiO_2$ ) et des matières premières naturelles (kaolin, feldspath). Les proportions de kaolin et de feldspath introduites ont été choisies de telle sorte que la quantité de silice soit suffisamment élevée pour assurer la formation d'un maximum de mullite. Les mélanges de poudres ont été pesés et homogénéisés en voie aqueuse (eau ajoutée à hauteur de 50% massiques par rapport à la masse sèche du mélange). Les suspensions obtenues ont été séchées à l'étuve (120°C) et les poudres obtenues ont subi un pressage uniaxial à 100 MPa (éprouvettes de diamètre 20 mm et de hauteur 5 mm).

---

\*Corresponding author e-mail: [alina.melinescu@gmail.com](mailto:alina.melinescu@gmail.com)

Les échantillons obtenus après pressage ont été traités thermiquement à 1300, 1400 et 1500 °C, avec un pallier de 2 h à la température maximale de frittage.

La composition minéralogique réelle a été déterminée par diffraction des Rayons-X en utilisant un diffractomètre Shimadzu 6000. La microstructure des échantillons réalisés a été observée par microscopie électronique à balayage avec l'appareil Hitachi 2500N. Les propriétés physiques après frittage ont été déterminées par les mesures suivantes : masse volumique et taux de porosité par la méthode de la poussée d'Archimède (sous imprégnation d'eau) et distribution de la taille des pores par porosimétrie à mercure.

Tableau 1. Composition minéralogique théorique des échantillons préparés

No. échantillon	Composition minéralogique théorique, %massique		
	Al <sub>2</sub> TiO <sub>5</sub>	Al <sub>6</sub> Si <sub>2</sub> O <sub>13</sub>	(K,Na) <sub>2</sub> Al <sub>2</sub> Si <sub>6</sub> O <sub>16</sub>
1	76.00	19.00	5.00
2	47.50	47.50	5.00
3	45.00	45.00	10.00

### 3. RÉSULTATS ET DISCUSSION

#### 3.1 Diffraction des rayons X (DRX)

Dans tous les échantillons préparés, les phases minéralogiques détectées sont présentées dans les figures 1–3. Dans le cas de l'échantillon 1, traité à 1300 °C, ont été identifiées les phases spécifiques contenues dans les matières premières, corindon et rutile. Le titanate d'aluminium et la mullite commencent se former à 1400 °C, où on retrouve aussi les pics des matières premières, mais à 1500 °C dans l'échantillon 1 on trouve seulement les composés minéralogiques d'équilibre : le titanate d'aluminium et le mullite. Sur la figure 2, la mullite est le premier composé formé à 1300 °C avec des pics du corindon et du rutile. À 1500 °C l'analyse de diffraction RX présente seulement deux composés cristallins : Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>·TiO<sub>2</sub> et la mullite. Dans la figure 3 est présentée l'analyse RX de l'échantillon 3 qui, contrairement à l'échantillon 2, contient 10% feldspath. Ici, on observe que la formation du mullite commence à 1300 °C mais les raies d'Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>·TiO<sub>2</sub> apparaissent à partir des températures situées entre 1350 °C et 1400 °C.

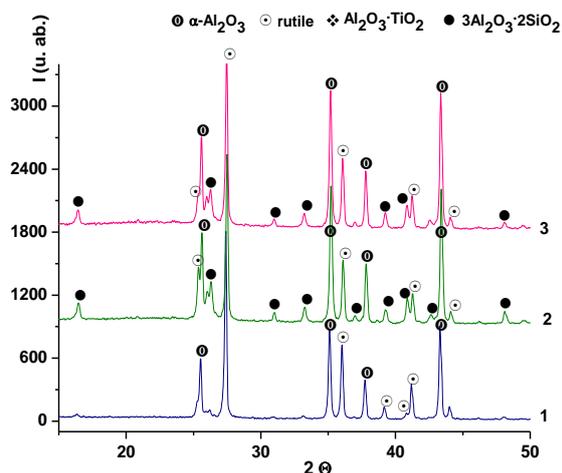


Fig. 1. Diagramme de diffraction RX pour les échantillons 1-3 traités thermiquement à 1300°C

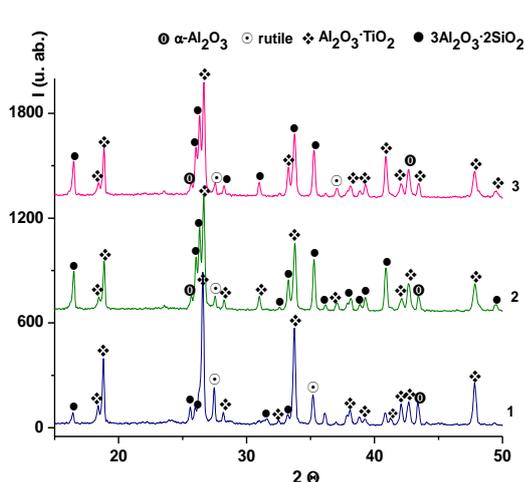


Fig. 2. Diagramme de diffraction RX pour les échantillons 1-3 traités thermiquement à 1400°C

On peut en conclure que le feldspath fondu favorise la formation du mullite qui commence à 1300 °C : en effet, l'apport de silice par l'intermédiaire d'un flux visqueux lors de la décomposition de cette matière première réagit avec le corindon ce qui conduit à une métastructure soluble dans la phase liquide formée au sein de laquelle la mullite se forme.

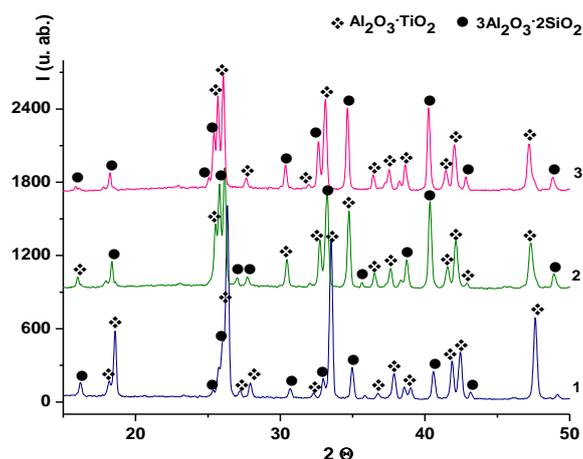
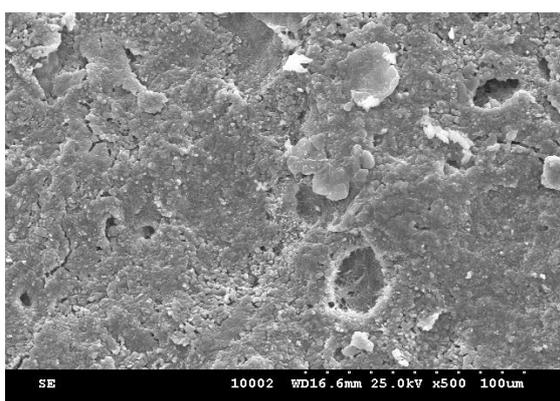


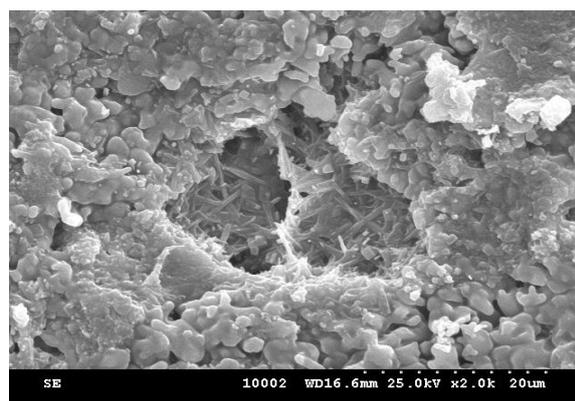
Fig. 3. Diagramme de diffraction RX pour les échantillons 1-3 traités thermiquement à 1500°C

### 3.2 Microscopie électronique à balayage (MEB)

La microstructure de l'échantillon 2 avec 5% de feldspath traité thermiquement à 1400°C, a été observée par microscopie électronique à balayage (MEB) et les micrographies sont présentées dans les figures 4 a et 4 b. On observe une microstructure fine et homogène avec une taille moyenne de grains située entre 1 et 4 µm. Les grains présentant une forme aciculaire sont typiques de la mullite qui résulte de la recristallisation dans la phase liquide et la forme plutôt tabulaire peut être attribuée en grande majorité aux grains de titanate d'aluminium.



a. Grandissement × 500



b. Grandissement × 2000

Fig 4. Images MEB pour l'échantillon 2 traité à 1400°C

### 3.3 Comportement au traitement thermique. Distribution de la taille des pores

Le retrait au frittage, la masse volumique apparente et la porosité totale ont été déterminées sur tous les échantillons traités thermiquement à 1500°C (méthode Archimède) et ils sont présentés dans le tableau 2. Les données obtenues présentent de faibles valeurs de masse volumique apparente approximativement de l'ordre de 69 – 74% de la densité théorique. Ce phénomène peut être expliqué par la croissance en volume des grains au cours de la formation du titanate d'aluminium et par sa faible aptitude au frittage.

Tableau 2. Propriétés des matériaux céramiques(échantillons traités thermiquement à 1500°C)

No. échantillon	Retrait au frittage %	Masse volumique apparente g·cm <sup>-3</sup>	Porosité apparente %
1	11.76	2.45	26.75
2	10.76	2.43	19.78
3	10.24	2.39	23.59

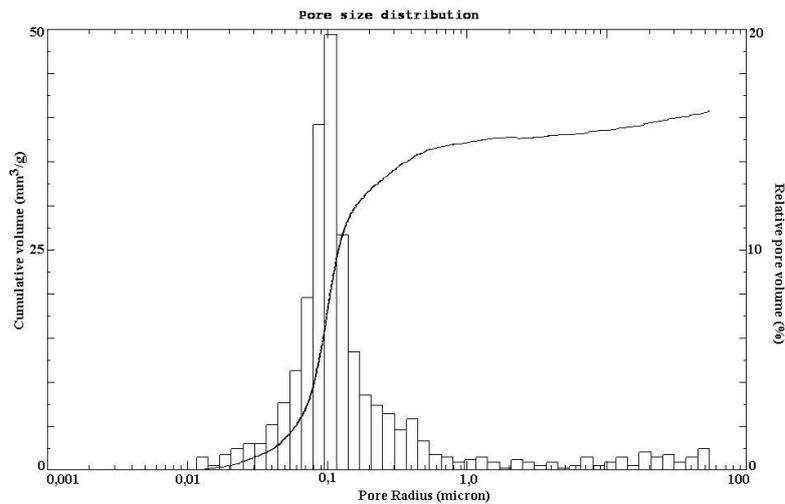


Fig.5. Distribution de la taille des pores pour l'échantillon 2 (porosimétrie à mercure)

La distribution des pores mesurée à l'aide d'un porosimètre à mercure pour l'échantillon 2 présentant le taux de porosité le plus réduit est présentée sur la figure 5. La dimension des pores se situe dans un intervalle étroit. La dimension moyenne des pores est d'environ 0,1 $\mu$ m et la surface totale des pores est de 0,88 m<sup>2</sup>/g.

#### 4. CONCLUSIONS

Trois échantillons de matières premières alumino-silicatées ont été synthétisés avec une proportion titanate d'aluminium/mullite variable dans les matériaux finaux. La composition minéralogique réelle déterminée par diffraction RX montre que la mullite est le premier composé formé à 1300°C. À 1500°C, l'ensemble des échantillons contient seulement de la mullite et du titanate avec peu d'impuretés. La microstructure est fine et homogène, avec deux morphologies de grains, tabulaires et aciculaires. Les mesures concernant la distribution en taille des pores ont montré qu'elle se situe dans un intervalle étroit et avec un diamètre moyen d'environ très faible 0,1 $\mu$ m.

#### RÉFÉRENCES

- [1] A.Tsetsekou, A comparison study of tialite ceramics doped with various oxide materials and tialite-mullite composites: microstructural, thermal and mechanical properties, *Journal of the European Ceramic Society*, vol 25, 2005, p. 335-348.
- [2] P. Oikonomou, Ch. Dedeloudis, C.J. Stournaras and Ch. Ftikos, Stabilized tialite-mullite composites with low thermal expansion and high strength for catalytic converters, *Journal of the European Ceramic Society*, vol 27, 2007, p. 3475-3483.
- [3] V.N. Antsiferov, S.E.Porozova and E.V.Matygullina, Influence of Mechanochemical Activation of a Charge on Properties of Mullite-tialite Materials, *Science of Sintering*, vol. 36, 2004, p. 21-26.
- [4] M. Takahashi, M. Fukuda, M. Fukuda, H. Fukuda and T. Yoko, Preparation, Structure and Properties of Thermally and Mechanically Improved Aluminium Titanate Ceramics Doped with Alkali Feldspar, *J. Am. Ceram. Soc.*, vol. 85 no.12, 2002, p. 3025-3030.