

**ĐẠI HỌC QUỐC GIA HÀ NỘI
TRƯỜNG ĐẠI HỌC KHOA HỌC TỰ NHIÊN**

TRẦN NGỌC TUYỀN

**NGHIÊN CỨU TỔNG HỢP GỐM CORDIERITE
VÀ COMPOSITE MULLITE-CORDIERITE
TỪ CAO LẠNH A LƯỚI - THỪA THIÊN HUẾ**

**Chuyên ngành: Hoá Vô cơ
Mã số: 62 44 25 01**

TÓM TẮT LUẬN ÁN TIẾN SĨ HOÁ HỌC

HÀ NỘI - 2007

Công trình được hoàn thành tại:

**Bộ môn Hoá Vô cơ, Khoa Hoá học
Trường Đại học Khoa học Tự nhiên
Đại học Quốc gia Hà Nội**

Người hướng dẫn khoa học:

- 1. GS. TS. Phan Văn Tường**
- 2. PGS. TS. Ngô Sĩ Lương**

Phản biện: **GS. TSKH. La Văn Bình**
Trường Đại học Bách khoa Hà Nội

Phản biện: **GS. TS. Nguyễn Trọng Uyển**
Trường Đại học Khoa học Tự nhiên Hà Nội

Phản biện: **PGS. TS. Lê Bá Thuận**
Viện Công nghệ Xạ Hiếm

Luận án sẽ được bảo vệ trước Hội đồng cấp nhà nước chấm luận án Tiến sĩ, họp tại: **Phòng Hội thảo Khoa Hoá học, Trường ĐHKH Tự nhiên, ĐHQG Hà Nội (19 Lê Thánh Tông, Hà Nội)**
vào hồi: **09 giờ 00 ngày 13 tháng 01 năm 2007**

Có thể tìm hiểu luận án tại:

- Thư viện Quốc gia Việt Nam
- Trung tâm Thông tin - Thư viện, Đại học Quốc gia Hà Nội

CÁC CÔNG TRÌNH ĐÃ CÔNG BỐ LIÊN QUAN ĐẾN LUẬN ÁN

- [1]. Phan Văn Tường, Trần Ngọc Tuyên (2000), "Nghiên cứu tổng hợp Mullite từ cao lanh A Lưới", *Tuyển tập các công trình khoa học*, Hội nghị Khoa học lần thứ II, Trường Đại học Khoa học Tự nhiên - Đại học Quốc gia Hà Nội, tr. 51-56.
- [2]. Phan Văn Tường, Trần Ngọc Tuyên, Lê Đình Quý Sơn, Nguyễn Ngọc Thịnh (2004), "Tổng hợp cordierit từ cao lanh và magie hydroxit", *Tạp chí Hoá học*, T. 42 (3), tr. 345-347.
- [3]. Phan Văn Tường, Ngô Sĩ Lương, Trần Ngọc Tuyên, Phan Thị Hoàng Oanh (2005), "Preparation of low temperature cordierite ceramics by co-precipitation process and its electronic properties", *The 2nd International Symposium on Advanced Materials in Asia-Pacific Rim [ISAMAP'05]*, Hanoi, tr. 124-126.
- [4]. Phan Văn Tường, Ngô Sĩ Lương, Trần Ngọc Tuyên, Phan Thị Hoàng Oanh (2005), "Tổng hợp và khảo sát một số tính chất của gốm cordierit", *Tạp chí Hoá học*, T. 43 (5), tr. 554-558.
- [5]. Phan Văn Tường, Ngô Sĩ Lương, Trần Ngọc Tuyên, Phan Thị Hoàng Oanh (2005), "Tổng hợp precursor cordierite từ cao lanh A Lưới bằng phương pháp đồng kết tủa", *Tạp chí Hoá học*, T. 43 (6), tr. 715-719.
- [6]. Trần Ngọc Tuyên, Phan Văn Tường, Ngô Sĩ Lương (2006), "Tổng hợp mullite và composite mullite-cordierite từ cao lanh A Lưới Thừa Thiên Huế", *Tạp chí Hoá học*, T. 44 (5), tr. 585-591.
- [7]. Trần Ngọc Tuyên, Phan Văn Tường, Ngô Sĩ Lương (2006), "Tổng hợp cordierite bằng phương pháp đồng kết tủa có sự hỗ trợ của phương pháp cơ hoá", *Tạp chí Khoa học Đại học Huế, Chuyên san Khoa học Tự nhiên*, (34). (đã được nhận đăng)
- [8]. Trần Ngọc Tuyên, Phan Văn Tường, Ngô Sĩ Lương (2006), "Xác định thành phần khoáng, hoá và khảo sát một số tính chất của cao lanh Bốt Đỏ, A Lưới, Thừa Thiên Huế", *Tạp chí Khoa học Đại học Huế, Chuyên san Khoa học Tự nhiên*, (34). (đã được nhận đăng)

GIỚI THIỆU LUẬN ÁN

1. Lý do chọn đề tài

Gốm cordierite ($2\text{MgO} \cdot 2\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 5\text{SiO}_2$) có nhiều tính chất quý như hệ số giãn nở nhiệt rất bé, có độ bền nhiệt cao, chịu được sốc nhiệt, có hằng số điện môi và tổn hao điện môi rất bé trong vùng tần số cao. Vì thế, cordierite được sử dụng trong nhiều lĩnh vực: làm vật liệu chịu lửa bền nhiệt mullite-cordierite trong công nghiệp gốm sứ; làm sứ cách điện cao thế; làm vật liệu nền (substrate), vật liệu bao bọc (packing materials) nhằm thay thế vật liệu Al_2O_3 truyền thống trong công nghiệp điện tử. Đặc biệt, cordierite được dùng làm chất mang xúc tác dạng tổ ong (honeycomb cordierite) để xử lý khí thải động cơ.

Do có vai trò to lớn như vậy nên việc nghiên cứu tổng hợp cordierite là một yêu cầu bức thiết và đang được các nhà khoa học rất quan tâm. Các phương pháp tổng hợp cordierite chủ yếu hiện nay là:

- Phương pháp gốm truyền thống đi từ các oxit MgO , Al_2O_3 và SiO_2 .
- Phương pháp sol-gel đi từ các alkoxide: $\text{Si}(\text{OC}_2\text{H}_5)_4$, $\text{Al}(\text{OC}_4\text{H}_9)_3$...
- Phương pháp đi từ nguyên liệu aluminosilicate tự nhiên. Theo hướng này, đa số các công trình nghiên cứu trên thế giới đều đi từ cao lanh có hàm lượng Al_2O_3 cao - loại cao lanh không dễ có trong tự nhiên.

Đề tài này nhằm mục đích nghiên cứu tổng hợp gốm cordierite từ cao lanh A lưới - loại cao lanh có hàm lượng Al_2O_3 thấp, bằng cách bổ sung đồng thời MgO và Al_2O_3 vào cao lanh A Lưới theo phương pháp phân tán rắn-lỏng; khảo sát các điều kiện thích hợp để tổng hợp gốm cordierite ở nhiệt độ nung thiêu kết thấp, có chất lượng đạt yêu cầu kỹ thuật. Từ gốm cordierite thu được, nghiên cứu tổng hợp composite mullite - cordierite vừa có độ chịu lửa cao, vừa có hệ số giãn nở nhiệt bé, sử dụng làm vật liệu chịu lửa bền nhiệt trong công nghiệp gốm sứ.

2. Nội dung nghiên cứu

- Xác định thành phần khoáng, thành phần hoá, cấp hạt và các tính chất sau khi nung của cao lanh A Lưới.
- Khảo sát các điều kiện để tổng hợp gốm cordierite và mullite ở nhiệt độ nung thấp, có chất lượng đạt yêu cầu kỹ thuật từ cao lanh A Lưới.
- Từ gốm cordierite và mullite, nghiên cứu tổng composite mullite-cordierite có chất lượng đạt yêu cầu làm vật liệu chịu lửa bền nhiệt.

3. Phương pháp nghiên cứu

- Thành phần hoá học được xác định theo TCVN 7131:2002.
- Thành phần pha được xác định bằng phương pháp nhiễu xạ tia X (XRD) trên thiết bị D8 Advance BRUCKER (Đức).
- Thành phần cấp hạt được xác định bằng phương pháp tán xạ laser trên thiết bị LS Particle Size Analyzer 3.00.40 (Mỹ).
- Các quá trình chuyển hoá xảy ra khi nung được xác định bằng phương pháp phân tích nhiệt (TG-DTA) trên thiết bị Labsys TG/DSC SETARAM (Pháp).
- Vi cấu trúc được quan sát bằng hiển vi điện tử quét (SEM) trên thiết bị JSM Jeol 5410LV (Nhật Bản).
- Hệ số giãn nở nhiệt được đo trên thiết bị Dilatometer L75/N1 (hãng LINSEIS, Đức).
- Độ chịu lửa được xác định theo TCVN 6530 : 1999
- Hằng số điện môi và tổn hao điện môi (ϵ và tg δ) được xác định bằng thiết bị phân tích trở kháng Hioki 3532 LCR (Nhật Bản).

4. Những đóng góp của luận án

- a. Lần đầu tiên ở Việt Nam, đã xây dựng được quy trình tổng hợp gốm cordierite từ nguyên liệu cao lanh A Lưới ở nhiệt độ nung thiêu kết 1200°C , thấp hơn khoảng 100°C so với công bố của các tác giả

khác trên thế giới tổng hợp theo phương pháp gốm truyền thống. Sản phẩm gốm cordierite thu được có thành phần pha tinh thể là đơn pha α -cordierite, có các tính chất như hệ số giãn nở nhiệt (α), hằng số điện môi (ϵ), góc tổn hao điện môi ($\tan \delta$), độ hút nước, khối lượng thể tích đạt yêu cầu kỹ thuật, tương đương với gốm cordierite do công ty Ferro-Ceramic Grinding Inc. (Mỹ) sản xuất.

b. Bằng phương pháp phân tán rắn-lỏng, đã nghiên cứu tổng hợp thành công gốm mullite có nhiệt độ nung thấp (1500°C) từ nguyên liệu cao lanh A Lưới. Sản phẩm gốm mullite thu được có các tính chất như độ chịu lửa, hệ số giãn nở nhiệt, độ hút nước, khối lượng thể tích... đạt yêu cầu kỹ thuật của vật liệu chịu lửa cao cấp.

c. Từ sản phẩm gốm cordierite và mullite tổng hợp từ cao lanh A Lưới, đã nghiên cứu tổng hợp thành công composite mullite-cordierite có thành phần pha tinh thể thuần túy gồm α -cordierite và mullite. Đã xác định được tương quan tuyến tính giữa các tính chất độ chịu lửa, hệ số giãn nở nhiệt và thành phần phối liệu composite. Từ đó, có thể tổng hợp được vật liệu chịu lửa bền nhiệt composite mullite-cordierite có độ chịu lửa và hệ số giãn nở nhiệt phù hợp với các yêu cầu sử dụng khác nhau.

5. Bố cục của luận án

Luận án gồm 138 trang với 54 hình và 20 bảng, trong đó:

- Phần mở đầu: 03 trang
- Chương 1. Tổng quan lý thuyết: 37 trang
- Chương 2. Nội dung và phương pháp nghiên cứu: 15 trang
- Chương 3. Kết quả nghiên cứu và bàn luận: 62 trang
- Phần kết luận: 02 trang
- Tài liệu tham khảo: 10 trang với 92 tài liệu
- Phần phụ lục: 44 phụ lục

KẾT QUẢ NGHIÊN CỨU

1. Xác định thành phần hoá học, thành phần khoáng, cấp hạt và khảo sát một số tính chất của cao lanh A Lưới

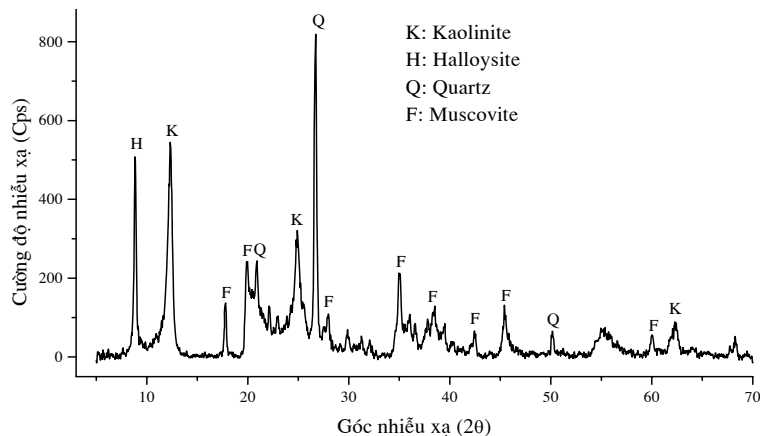
Bảng 3.1. Thành phần hóa học của cao lanh A Lưới

KH mẫu	Thành phần (%) khối lượng							
	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	CaO	MgO	K ₂ O	Na ₂ O	MKN
AL1	67,52	21,06	0,58	0,18	0,21	3,15	0,22	5,47
AL2	68,05	20,46	0,62	0,17	0,25	3,22	0,18	5,83
AL3	67,86	20,81	0,56	0,21	0,24	3,18	0,21	5,34
TB ± S	67,81	20,78	0,59	0,19	0,23	3,18	0,20	5,55
	± 0,27	± 0,30	± 0,03	± 0,02	± 0,02	± 0,04	± 0,02	± 0,25
CLAL1	51,93	31,96	0,22	0,22	0,28	2,65	0,16	12,42
CLAL2	52,14	31,43	0,24	0,22	0,28	2,54	0,17	12,42
CLAL3	53,09	31,28	0,28	0,19	0,29	2,60	0,18	11,92
TB ± S	52,39	31,56	0,25	0,21	0,28	2,60	0,17	12,25
	± 0,62	± 0,36	± 0,03	± 0,02	± 0,01	± 0,06	± 0,01	± 0,29

Kết quả phân tích thành phần hoá học của cao lanh A Lưới trước và sau khi tuyển lọc ở bảng 3.1 cho thấy:

- Các mẫu cao lanh A Lưới nguyên khai AL1, AL2 và AL3 có thành phần hoá học khá đồng nhất, chứng tỏ chất lượng cao lanh trong cùng một vỉa khá ổn định.
- Do hàm lượng Fe₂O₃ rất thấp, nên cao lanh A Lưới có độ trắng rất cao, có giá trị sử dụng trong lĩnh vực gốm sứ cao cấp, sản xuất men và chất màu...
- Các mẫu cao lanh sau khi tuyển lọc đã loại bỏ được một lượng khá lớn SiO₂, (khoảng 15 ÷ 16%), hàm lượng Al₂O₃ được làm giàu đáng kể (tăng lên khoảng 11%), tổng hàm lượng oxit kim loại kiềm giảm xuống so với cao lanh nguyên khai. Vì thế, để nâng cao giá trị sử dụng, cao lanh A Lưới cần được xử lý qua giai đoạn tuyển lọc.

Thành phần khoáng của cao lanh A Lưới (hình 3.1) chủ yếu gồm: kaolinite ($\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 2\text{SiO}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$), halloysite ($\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 2\text{SiO}_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$), quartz ($\alpha\text{-SiO}_2$) và muscovite ($\text{K}_2\text{O} \cdot 3\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 6\text{SiO}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$). Đây là loại cao lanh có nguồn gốc phong hoá tại chỗ, còn lẫn nhiều đá gốc chưa phong hoá (muscovite), nên hàm lượng oxit kim loại kiềm cao.



Hình 3.1. Giải đồ XRD của cao lanh A Lưới sau lọc

Kết quả phân tích thành phần cấp hạt của cao lanh A Lưới sau lọc ở bảng 3.2 cho thấy: đây là loại cao lanh có cấp hạt tương đối thô, độ dẻo thấp. Vì thế, khi sử dụng trong công nghiệp gốm sứ cần phối trộn với cao lanh có độ dẻo cao để thuận lợi trong việc tạo hình sản phẩm.

Bảng 3.2. Thành phần cấp hạt của cao lanh A Lưới sau lọc

Cỡ hạt (μm)	< 1	1 ÷ 5	5 ÷ 10	10 ÷ 20	20 ÷ 30	> 30
Hàm lượng (%)	8,3	28,5	20,4	24,3	10,8	7,6

Kết quả khảo sát một số tính chất của cao lanh A Lưới sau khi nung ở các nhiệt độ khác nhau cho thấy: đây là loại cao lanh có nhiệt độ thiêu kết cao ($> 1300^\circ\text{C}$), là nguyên liệu thích hợp để sản xuất gốm sứ cao cấp như sứ vệ sinh, sứ cách điện, chất màu, men khó chảy...

2. Tổng hợp gốm cordierite từ cao lanh A Lưới

2.1. Chuẩn bị precursor cordierite

- Ảnh hưởng tỷ lệ mol $\text{NH}_3/\text{Mg}^{2+}$ đến % số mol Mg^{2+} kết tủa:

Để xác định tỷ lệ mol $\text{NH}_3/\text{Mg}^{2+}$ thích hợp, tiến hành kết tủa Mg^{2+} bằng dung dịch NH_3 , rồi xác định lượng Mg^{2+} còn lại trong dịch lọc, từ đó tính được % số mol Mg^{2+} kết tủa.

Bảng 3.5. Ảnh hưởng của tỷ lệ mol $\text{NH}_3/\text{Mg}^{2+}$ đến % số mol Mg^{2+} kết tủa

Ký hiệu mẫu	Tỷ lệ mol $\text{NH}_3/\text{Mg}^{2+}$	V_{MgSO_4} (ml)	V_{NH_3} (ml)	V tổng (ml)	% $n_{\text{Mg}^{2+}}$ kết tủa
A1	2	10	1,6	100	76,25
A2	3	10	2,3	100	81,88
A3	4	10	3,1	100	85,63
A4	5	10	3,9	100	89,38
A5	6	10	4,7	100	90,00

Kết quả ở bảng 3.5 cho thấy: khi tỷ lệ mol $\text{NH}_3/\text{Mg}^{2+} \geq 5$ thì % số mol Mg^{2+} kết tủa hầu như không tăng. Do đó, tỷ lệ mol $\text{NH}_3/\text{Mg}^{2+}$ thích hợp bằng 5.

- Ảnh hưởng tỷ lệ mol $\text{NH}_3/\text{Al}^{3+}$ đến % số mol Al^{3+} kết tủa:

Tương tự, để xác định tỷ lệ mol $\text{NH}_3/\text{Mg}^{2+}$ thích hợp, tiến hành kết tủa Al^{3+} bằng dung dịch NH_3 , rồi xác định lượng Al^{3+} còn lại trong dịch lọc, từ đó tính được % số mol Al^{3+} kết tủa.

Bảng 3.6. Ảnh hưởng của tỷ lệ mol $\text{NH}_3/\text{Al}^{3+}$ đến % số mol Al^{3+} kết tủa

Ký hiệu mẫu	Tỷ lệ mol $\text{NH}_3/\text{Al}^{3+}$	$V_{\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3}$ (ml)	V_{NH_3} (ml)	V tổng (ml)	% $n_{\text{Al}^{3+}}$ kết tủa
B1	3,0	10	2,3	100	100
B2	3,5	10	2,7	100	100
B3	4,0	10	3,1	100	100
B4	4,5	10	3,5	100	100
B5	5,0	10	3,9	100	100

Kết quả ở bảng 3.6 cho thấy: khi tăng tỷ lệ mol $\text{NH}_3/\text{Al}^{3+}$ từ 3,0 đến 5,0 thì toàn bộ lượng Al^{3+} đã kết tủa hoàn toàn. Do đó, tỷ lệ mol $\text{NH}_3/\text{Al}^{3+}$ thích hợp bằng 3.

- Quan hệ giữa tỷ lệ mol MgO/SiO_2 và $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{SiO}_2$ trong hỗn hợp đầu và trong kết tủa:

Precursor cordierite được điều chế theo phương pháp phân tán rắn-lỏng: phân tán pha rắn (cao lanh A Lưới) vào pha lỏng (dung dịch hỗn hợp MgSO_4 và $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3$), rồi tiến hành kết tủa Mg^{2+} và Al^{3+} trong huyền phù cao lanh bằng dung dịch NH_3 . Các kết quả nghiên cứu ở trên cho thấy: khi kết tủa bằng dung dịch NH_3 với lượng thích hợp, toàn bộ lượng Al^{3+} sẽ kết tủa hoàn toàn, trong khi Mg^{2+} chỉ kết tủa một phần. Do vậy, để điều chỉnh được các tỷ lệ mol MgO/SiO_2 và $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{SiO}_2$ trong kết tủa, cần khảo sát mối quan hệ giữa các tỷ lệ mol MgO/SiO_2 và $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{SiO}_2$ trong hỗn hợp rắn-lỏng ban đầu và trong kết tủa. Các mẫu khảo sát được chuẩn bị bao gồm cao lanh A Lưới, dung dịch MgSO_4 và $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3$ sao cho tỷ lệ mol $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{SiO}_2$ trong các mẫu đều bằng 0,4, tỷ lệ mol MgO/SiO_2 tăng dần từ 0,4 đến 0,8. Kết tủa Mg^{2+} và Al^{3+} dưới dạng $\text{Al}(\text{OH})_3$ và $\text{Mg}(\text{OH})_2$ bằng dung dịch NH_3 , số mol NH_3 thêm vào bằng $3a + 5b$ (a, b lần lượt là số mol của Al^{3+} và Mg^{2+} trong dung dịch).

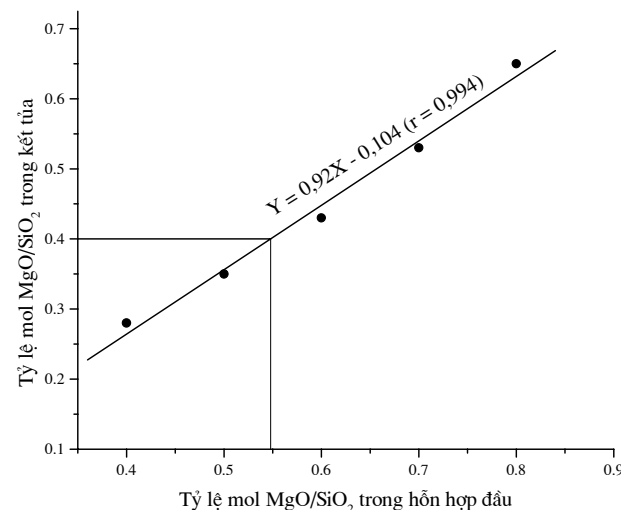
Bảng 3.7. Tỷ lệ mol MgO/SiO_2 và $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{SiO}_2$ trong hỗn hợp đầu và trong kết tủa

Kí hiệu mẫu	C1	C2	C3	C4	C5
Tỷ lệ mol MgO/SiO_2 ban đầu	0,4	0,5	0,6	0,7	0,8
Tỷ lệ mol $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{SiO}_2$ ban đầu	0,4	0,4	0,4	0,4	0,4
Tỷ lệ mol MgO/SiO_2 trong kết tủa	0,28	0,35	0,43	0,53	0,65
Tỷ lệ mol $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{SiO}_2$ trong kết tủa	0,4	0,4	0,4	0,4	0,4

Kết quả thí nghiệm ở bảng 3.7 cho thấy:

- Do tỷ lệ mol $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{SiO}_2$ trong hỗn hợp đầu và trong kết tủa đều như nhau, nên để điều chế được precursor có tỷ lệ mol $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{SiO}_2$ bằng 0,4 thì cần chuẩn bị hỗn hợp rắn - lỏng ban đầu có tỷ lệ mol $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{SiO}_2$ bằng 0,4.

- Giữa tỷ lệ mol MgO/SiO_2 trong hỗn hợp đầu (X) và trong kết tủa (Y) có tương quan tuyến tính theo phương trình: $Y = 0,92X - 0,104$ ($r = 0,994$). Từ phương trình này, để điều chế precursor có tỷ lệ mol MgO/SiO_2 bằng 0,4 cần phải chuẩn bị hỗn hợp rắn-lỏng ban đầu có tỷ lệ mol MgO/SiO_2 bằng 0,548.

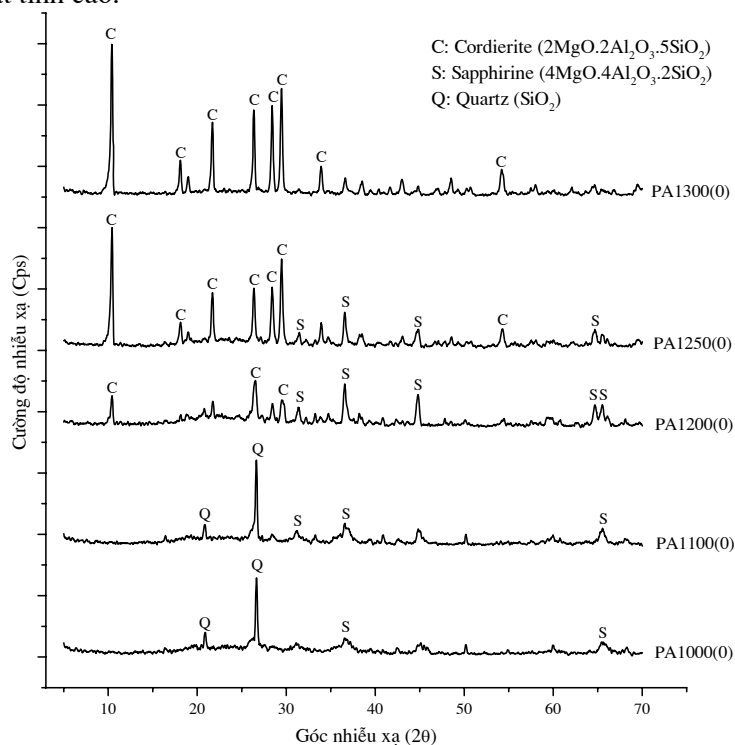


Hình 3.8. Sự phụ thuộc giữa tỷ lệ mol MgO/SiO_2 trong hỗn hợp đầu và trong kết tủa

Để kiểm tra, chúng tôi phân tán cao lanh A Lưới vào dung dịch chứa Al^{3+} và Mg^{2+} sao cho hỗn hợp đầu có tỷ lệ mol MgO/SiO_2 bằng 0,548 và tỷ lệ mol $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{SiO}_2$ bằng 0,4; kết tủa Al^{3+} và Mg^{2+} bằng dung dịch NH_3 . Precursor cordierite được lọc, rửa sạch, sấy khô (ký hiệu là PA). Kết quả phân tích cho thấy thành phần hoá học của precursor PA ứng với tỷ lệ hợp thức của gốm cordierite.

2.2. Ảnh hưởng của nhiệt độ nung đến quá trình tạo pha cordierite

Thực nghiệm cho thấy rằng khi chất phản ứng có hoạt tính cao thì phản ứng giữa các pha rắn xảy ra càng thuận lợi. Vì thế, để làm giảm nhiệt độ tạo pha cordierite, precursor PA sau khi sấy khô, được hoạt hoá bằng cách nung sơ bộ ở 600°C để phân huỷ các khoáng aluminosilicate có trong cao lanh và các pha kết tủa $Mg(OH)_2$, $Al(OH)_3$ tạo thành metakaolinite và các oxit MgO , Al_2O_3 mới sinh có hoạt tính cao.



Hình 3.12. Giải đồ XRD các mẫu PA nung ở các nhiệt độ khác nhau

Sau khi hoạt hoá, mẫu được ép viên với lực nén 500 kG/cm², sau đó được nung lần lượt ở các nhiệt độ 1000°C, 1100°C, 1200°C, 1250°C và 1300°C trong thời gian 3 giờ. Thành phần pha của mẫu sau

khi nung được xác định bằng phương pháp XRD (hình 3.12). Ngay tại nhiệt độ nung 1000°C đã xuất hiện pha sapphirine (S) theo phản ứng:



Pha cordierite (C) xuất hiện khi nhiệt độ nung đạt 1200°C. Khi tăng dần nhiệt độ nung đến 1300°C, cường độ pic nhiễu xạ của cordierite tăng mạnh, ngược lại của sapphirine và quartz giảm nhanh, chứng tỏ:



Ở 1300°C, thành phần pha tinh thể của gốm là đơn pha α -cordierite.

Như vậy, việc chuẩn bị phối liệu cordierite theo phương pháp phân tán rắn-lỏng đi từ nguyên liệu cao lanh A Lưới và precursor được hoạt hoá nhiệt trước khi nung đã làm giảm nhiệt độ tạo pha cordierite xuống hơn 100°C so với phương pháp gốm truyền thống như một số tác giả trên thế giới đã công bố (thông thường nhiệt độ nung thiêu kết khoảng 1400°C).

2.3. Ảnh hưởng của quá trình nghiền đến nhiệt độ tạo pha cordierite

Trong phản ứng pha rắn, cấp hạt phối liệu có ảnh hưởng quyết định đến tốc độ phản ứng. Để làm giảm cấp hạt, precursor PA sau khi hoạt hoá nhiệt ở 600°C, được nghiền bi ướt bằng máy nghiền hành tinh với tốc độ 180 vòng/phút, thời gian nghiền từ 60 ÷ 180 phút.

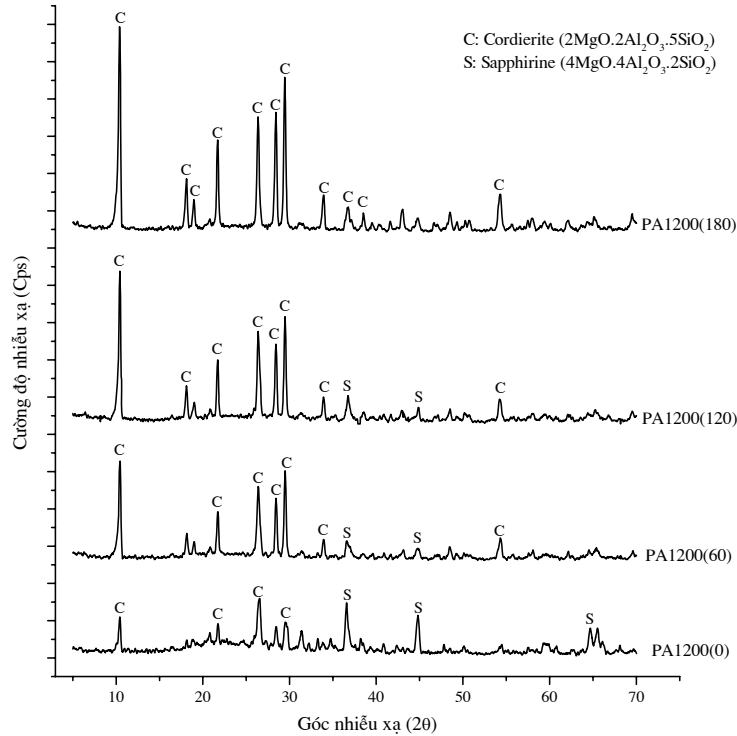
Bảng 3.9. Thành phần cấp hạt của các mẫu PA trước và sau khi nghiền

Ký hiệu mẫu	Hàm lượng (%)					
	$\Phi < 1$ (μm)	$\Phi = 1 \div 5$ (μm)	$\Phi = 5 \div 10$ (μm)	$\Phi = 10 \div 20$ (μm)	$\Phi = 20 \div 30$ (μm)	$\Phi > 30$ (μm)
PA(0)	6,1	22,5	18,2	26,1	13,3	13,8
PA(60)	8,4	39,5	25,0	19,4	4,3	3,4
PA(120)	8,8	43,4	26,2	15,6	2,9	3,1
PA(180)	9,3	45,7	26,2	13,4	2,6	2,8

Kết quả xác định cấp hạt của precursor PA trước và sau khi nghiền ở bảng 3.9 cho thấy: khi tăng dần thời gian nghiền từ 0 (mẫu

không nghiền) đến 120 phút, lượng hạt có đường kính < 5 μm tăng từ 28% lên đến 52%; khi tăng thời gian nghiền đến 180 phút lượng hạt chiếm ưu thế trong mẫu (có đường kính từ 1 ÷ 5 μm) chiếm đến 55%.

Các mẫu PA sau khi nghiền, được sấy khô ở 105°C, ép viên và nung ở các nhiệt độ 1100°C, 1200°C và 1250°C trong thời gian 3 giờ.



Hình 3.16. Giảm độ XRD của các mẫu PA sau khi nghiền ở các thời gian khác nhau và nung ở 1200°C

Kết quả phân tích thành phần pha (hình 3.16) cho thấy: đối với các mẫu nung ở 1200°C, khi tăng thời gian nghiền thì cường độ pic nhiễu xạ đặc trưng của cordierite tăng lên mãnh liệt. Thành phần pha tinh thể của mẫu PA1200(180) hoàn toàn đơn pha α-cordierite, tương

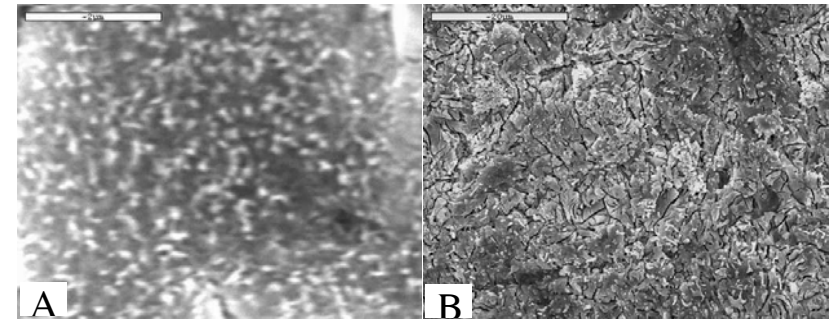
đương với mẫu PA1300(0). Như vậy, kết hợp với ưu điểm của việc chuẩn bị precursor cordierite bằng phương pháp phân tán rắn-lỏng và hoạt hoá nhiệt phối liệu, quá trình nghiền có tác dụng làm giảm cấp hạt, làm tăng mức độ phân bố đồng đều của các cấu tử đã làm giảm đáng kể nhiệt độ tạo pha cordierite. Mẫu sau khi nghiền 180 phút, nung 1200°C trong 3 giờ đã có thành phần pha tinh thể là đơn pha α-cordierite. Trong khi đó, theo phương pháp gốm truyền thống mà một số tác giả trên thế giới đã công bố, để thu được cordierite đơn pha thì nhiệt độ nung phải > 1300°C.

2.4. Xác định một số tính chất của gốm cordierite

- Hệ số giãn nở nhiệt:

Hệ số giãn nở nhiệt trung bình (α) của mẫu PA1200(180) trong khoảng nhiệt độ từ 25 ÷ 1000°C bằng $2,65 \cdot 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$. Kết quả thu được tương đương với α của gốm cordierite kỹ thuật do công ty Ferro-Ceramic Grinding Inc. (Mỹ) sản xuất.

- Vi cấu trúc của gốm cordierite:



Hình 3.22. Ảnh SEM của mẫu PA1200(180) sau khi mài nhẵn bề mặt (hình A) và sau khi xử lý bề mặt bằng HF (hình B)

Vi cấu trúc của gốm cordierite (hình 3.22) gồm những hạt có kích thước khá đồng đều, không có sự phát triển kích thước bất thường của hạt cũng như các lỗ trống xốp. Điều này chứng tỏ gốm

thieu kết tốt và có độ chắc đặc cao. Kết quả thu được phù hợp với gốm cordierite nung thieu kết ở 1300°C theo công bố của Y. Kobayashi và cộng sự.

- *Hằng số điện môi và góc tổn thất điện môi*

Trong khoảng tần số từ 1KHz ÷ 1MHz, hằng số điện môi (ϵ) của mẫu PA1200(180) dao động trong khoảng 7,5 ÷ 7,8 và góc tổn thất điện môi (tg δ) bằng 0,024. Kết quả thu được phù hợp với công bố của M. Majumder và cộng sự. Gốm cordierite thu được đạt yêu cầu tiêu chuẩn kỹ thuật để làm vật liệu cách điện.

- *Khối lượng thể tích, độ co, độ hút nước của gốm cordierite thieu kết:*

Để đánh giá mức độ thieu kết của gốm cordierite, chúng tôi tiến hành xác định các thông số: độ co, khối lượng thể tích, độ hút nước của các mẫu nghiền ở các thời gian khác nhau, nung ở 1200°C.

Bảng 3.10. Độ co, độ hút nước, khối lượng thể tích của gốm cordierite

Ký hiệu mẫu	Độ co (%)	Độ hút nước (%)	Khối lượng thể tích (g/cm ³)
PA1200(0)	9,6	6,24	2,32
PA1200(60)	12,8	3,76	2,48
PA1200(120)	15,3	1,45	2,51
PA1200(180)	16,1	0,28	2,56

Kết quả ở bảng 3.10 cho thấy: mẫu PA1200(180) có mức độ thieu kết rất tốt, khối lượng thể tích và độ hút nước đáp ứng được yêu cầu của gốm cordierite kỹ thuật.

Từ các kết quả thu được ở trên, chúng tôi đề xuất một quy trình mới tổng hợp gốm cordierite ở nhiệt độ thấp từ cao lanh A Lưới:

Bước 1: Precursor cordierite được chuẩn bị theo phương pháp phân tán rắn - lỏng: phân tán cao lanh A Lưới vào dung dịch chứa MgSO₄ và Al₂(SO₄)₃, sao cho hỗn hợp đầu có tỷ lệ mol Al₂O₃/SiO₂ và MgO/SiO₂ tương ứng bằng 0,4 và 0,586. Kết tủa Al³⁺ và Mg²⁺ trong

dung dịch bằng NH₃ với lượng NH₃ đưa vào bằng 3a + 5b (a, b lần lượt là số mol của Al³⁺ và Mg²⁺ trong dung dịch).

Bước 2: Sau khi để già hoá 24 giờ, precursor được rửa sạch, sấy khô và hoạt hoá nhiệt ở 600°C trong 3 giờ. Tiếp theo, precursor được nghiền bi ướt bằng máy nghiền hành tinh trong thời gian 3 giờ, tốc độ 180 vòng/phút.

Bước 3: Precursor sau khi nghiền được sấy khô, ép viên và nung thieu kết ở 1200°C trong 3 giờ với tốc độ nâng nhiệt 10°C/phút.

Sản phẩm gốm cordierite thu được có thành phần pha tinh thể là đơn pha α -cordierite và có các tính chất quan trọng như hệ số giãn nở nhiệt, độ chịu lửa, hằng số điện môi, góc tổn thất điện môi, khối lượng thể tích, độ hút nước tương đương với các kết quả đã công bố của các tác giả khác trên thế giới khi điều chế cordierite theo phương pháp gốm truyền thống với nhiệt độ nung > 1300°C. Vật liệu gốm cordierite thu được có thể dùng làm vật liệu chịu lửa bền nhiệt, vật liệu cách điện, chất mang xúc tác...

3. Tổng hợp composite mullite - cordierite

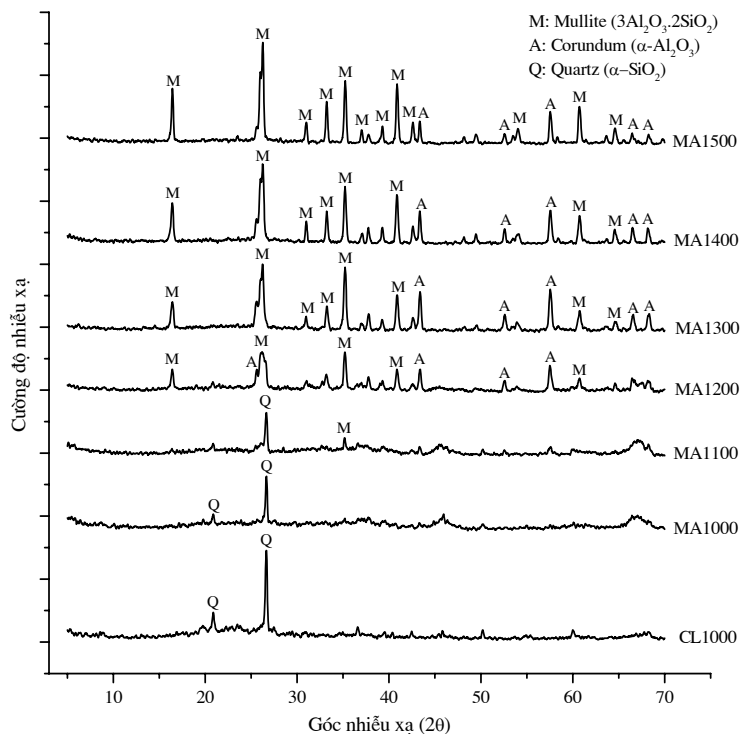
3.1. Tổng hợp gốm mullite từ cao lanh A Lưới

- *Chuẩn bị precursor mullite*

Việc tổng hợp mullite bằng phương pháp gốm truyền thống từ Al₂O₃ và SiO₂ đòi hỏi nhiệt độ nung thieu kết rất cao (>1700°C) và phải có mặt chất khoáng hoá. Nhằm làm giảm nhiệt độ tạo pha của mullite, chúng tôi chuẩn bị precursor mullite bằng phương pháp phân tán rắn-lỏng: phân tán cao lanh A Lưới vào dung dịch Al₂(SO₄)₃ sao cho tỷ lệ mol Al₂O₃/SiO₂ của hỗn hợp bằng 1,5. Kết tủa Al³⁺ trong dung dịch bằng NH₃. Precursor mullite được rửa sạch, sấy khô (ký hiệu MA). Kết quả phân tích cho thấy thành phần hoá học của precursor MA ứng với tỷ lệ hợp thức của mullite.

- *Khảo sát quá trình tạo pha mullite:*

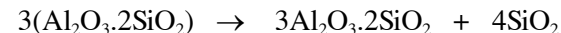
Precursor MA được hoạt hoá nhiệt ở 600°C trong thời gian 3 giờ. Sau đó, để làm giảm kích thước hạt, tăng mức độ phân bố đồng đều của các cấu tử, precursor MA được nghiền bi ướt bằng máy nghiền hành tinh trong 3 giờ với tốc độ 180 vòng/phút. Sau đó, phối liệu được ép viên và nung lần lượt ở các nhiệt độ 1000°C, 1100°C, 1200°C, 1300°C, 1400°C và 1500°C trong thời gian 3 giờ.



Hình 3.27. Giải đồ XRD của mẫu MA nung ở các nhiệt độ khác nhau.

Thành phần pha tinh thể của các mẫu MA sau khi nung ở hình 3.27 cho thấy: ở 1000°C, các pic nhiễu xạ của mullite chưa xuất hiện, kết hợp với giải đồ phân tích nhiệt DTA mẫu MA (tại 1000°C xuất

hiện hiệu ứng toả nhiệt), chứng tỏ có sự chuyển hoá từ dạng metakaolinite kém bền tạo thành mầm tinh thể mullite sơ cấp có kích thước rất bé theo phản ứng:



Mặt khác, các pic nhiễu xạ của Al₂O₃ không xuất hiện chứng tỏ γ-Al₂O₃ mới sinh do sự phân huỷ của AlOOH tồn tại ở dạng vi tinh thể hoặc vô định hình có hoạt tính cao. Khi tăng dần nhiệt độ nung từ 1100°C lên đến 1500°C, cường độ pic nhiễu xạ của SiO₂ giảm nhanh, của mullite tăng nhanh, chứng tỏ dạng γ-Al₂O₃ mới sinh có hoạt tính cao phản ứng với SiO₂ tự do tạo thành mullite thứ cấp:



Các kết quả nghiên cứu trên cho thấy: phương pháp phân tán rắn lỏng có ưu điểm vượt trội so với các phương pháp gốm truyền thống nhờ cải thiện được giai đoạn khuếch tán của phản ứng: ngay ở 1500°C, thành phần pha tinh thể của mẫu chủ yếu là mullite và chỉ chứa một lượng nhỏ corundum (α-Al₂O₃) chưa phản ứng.

- *Xác định một số tính chất cơ lý của gốm mullite:*

Để đánh giá mức độ thiêu kết của gốm mullite, chúng tôi tiến hành xác định các tính chất như độ co, khối lượng thể tích, độ hút nước của các mẫu MA sau khi nung ở các nhiệt độ khác nhau.

Bảng 3.14. Một số tính chất của mullite nung ở các nhiệt độ khác nhau

Tính chất	Ký hiệu mẫu			
	MA1200	MA1300	MA1400	MA1500
Độ co sau nung (%)	4,4	7,3	12,6	15,5
Độ hút nước (%)	20,9	15,2	4,8	1,7
Khối lượng thể tích (g/cm ³)	2,04	2,28	2,54	2,78
Độ chịu lửa (°C)	-	-	-	>1790
Hệ số giãn nở nhiệt (×10 ⁻⁶ /°C)	-	-	-	5,57

Kết quả ở bảng 3.14 cho thấy: Tại 1500°C, khối lượng thể tích, độ hút nước, hệ số giãn nở nhiệt, độ chịu lửa của mẫu MA1500 tương đương với mẫu gốm mullite do Công ty Ferro-Ceramic Grinding Inc. (Mỹ) sản xuất. Như vậy, gốm mullite tổng hợp từ cao lanh A Lưới bằng phương pháp phân tán rắn-lỏng có nhiệt độ tạo pha mullite và nhiệt độ thiêu kết thấp hơn nhiều so với phương pháp gốm truyền thống đi từ các oxit Al₂O₃ và SiO₂ (nhiệt độ thiêu kết > 1700°C). Các tính chất cơ lý quan trọng của nó đều đạt yêu cầu kỹ thuật, có thể sử dụng làm vật liệu chịu lửa cao cấp.

3.2. Tổng hợp composite mullite - cordierite

Gốm mullite có độ chịu lửa rất cao, nhưng lại có hệ số giãn nở nhiệt khá lớn, nên độ bền sốc nhiệt kém. Ngược lại, gốm cordierite có hệ số giãn nở nhiệt rất bé, nên có độ bền nhiệt cao, nhưng lại có độ chịu lửa thấp. Nếu tạo ra được vật liệu tổ hợp (gọi là composite) từ nguyên liệu là mullite và cordierite, sẽ tạo ra loại vật liệu vừa có độ chịu lửa cao, vừa có hệ số giãn nở nhiệt bé, có thể sử dụng làm vật liệu chịu lửa bền nhiệt.

- Thành phần phối liệu của composite mullite-cordierite:

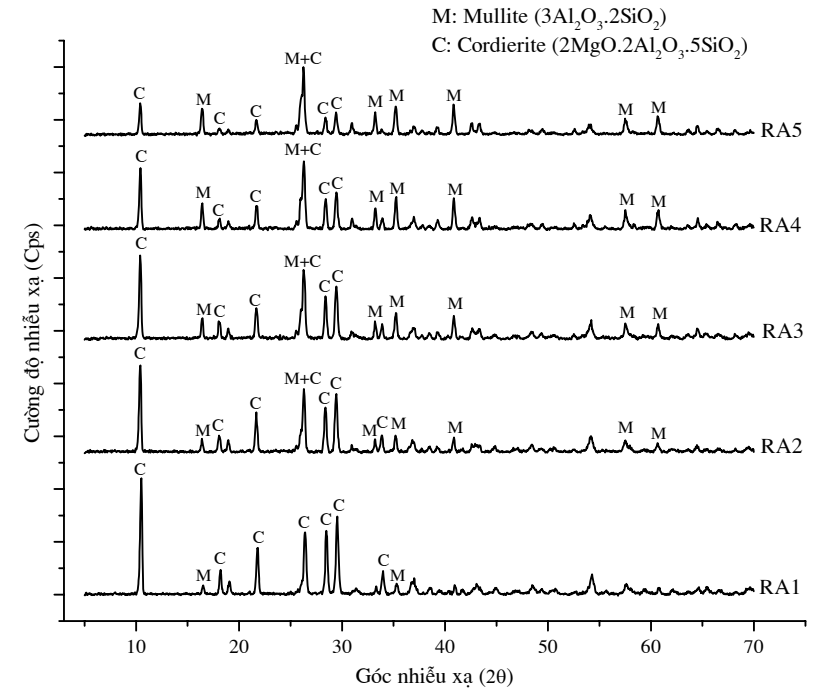
Từ gốm cordierite và mullite tổng hợp từ cao lanh A Lưới, sau khi nghiền mịn qua rây 4900 lỗ/cm², chúng được phối trộn theo các tỷ lệ khác nhau về khối lượng để tạo nên phối liệu composite mullite-cordierite (ký hiệu là RA). Thành phần phối liệu các mẫu RA được trình bày ở bảng 3.15.

Bảng 3.15. Thành phần phối liệu của các mẫu RA

Tỷ lệ phối liệu	Kí hiệu mẫu				
	RA1	RA2	RA3	RA4	RA5
% KL mullite	25,0	37,5	50,0	62,5	75,0
% KL cordierite	75,0	62,5	50,0	37,5	25,0

Mẫu phối liệu được phun thêm dung dịch chất kết dính polivinylalcol (PVA) 2% và ép viên với lực nén 500 kG/cm². Mẫu sau khi ép viên được sấy khô ở 105°C và nung thiêu kết ở 1300°C trong thời gian 3 giờ.

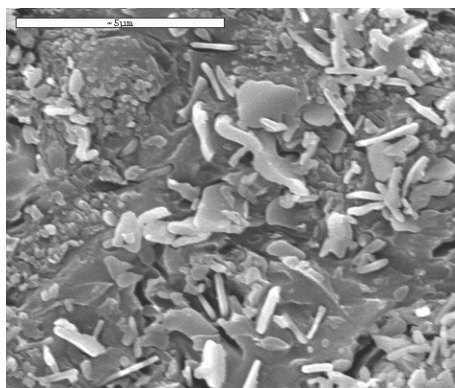
- Thành phần pha của các mẫu RA sau khi nung thiêu kết:



Hình 3.29. Giảm đồ XRD của các mẫu composite RA

Thành phần pha của các mẫu RA sau khi nung thiêu kết ở hình 3.29 cho thấy: các mẫu composite có thành phần pha tinh thể chỉ có thuần túy 2 pha là mullite và α-cordierite. Khi đi từ mẫu RA1 đến RA5, cường độ pic nhiễu xạ của mullite tăng dần, của cordierite giảm dần. Sở dĩ vậy là do hàm lượng mullite tăng dần từ mẫu RA1 đến RA5. Điều đáng chú ý là trong thành phần pha của mẫu MA1500 vẫn còn một lượng α-Al₂O₃ chưa phản ứng, nhưng trên giảm đồ XRD của

các mẫu RA, các pic nhiễu xạ của $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ không xuất hiện. Điều này chứng tỏ trong quá trình nung thiêu kết composite, phản ứng mullite hoá vẫn tiếp tục xảy ra giữa $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ và SiO_2 còn dư. Mặt khác, trong thành phần của gốm cordierite và mullite thiêu kết đều có mặt một lượng nhỏ pha thủy tinh, được hình thành do các oxit tạp có mặt trong nguyên liệu cao lanh ban đầu (K_2O , Na_2O , CaO , Fe_2O_3 ...) và các cấu tử Al_2O_3 , SiO_2 , MgO chưa phản ứng. Pha thủy tinh này làm xuất hiện pha lỏng sớm khi nung thiêu kết composite ở 1300°C và do vậy có tác dụng hoà tan các cấu tử chưa phản ứng (MgO , Al_2O_3 và SiO_2) tạo điều kiện cho chúng khuếch tán một cách dễ dàng hơn để tiếp xúc với nhau, tạo nên sản phẩm theo cơ chế thiêu kết pha lỏng (liquid phase sintering). Đồng thời, pha thủy tinh nóng chảy sẽ lấp kín các lỗ hổng của vật liệu, làm cho sản phẩm chắc đặc hơn. Khi làm nguội, pha thủy tinh nóng chảy sẽ đông đặc lại, có tác dụng liên kết các pha tinh thể mullite và cordierite lại với nhau, tạo ra sự đan xen (tailoring) giữa chúng. Điều này có thể quan sát thấy trên ảnh SEM ở hình 3.30: các tinh thể hình kim rất đặc trưng của mullite phân bố đan xen một cách đồng đều trong composite.



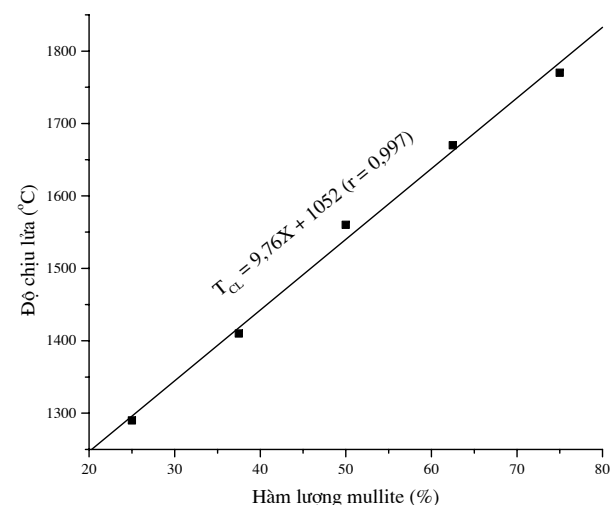
Hình 3.30. Ảnh SEM của mẫu RA3 sau khi xử lý bề mặt bằng HF

- Độ chịu lửa của các mẫu RA:

Bảng 3.16. Độ chịu lửa của các mẫu PA1200, MA1500 và RA

Kí hiệu mẫu	PA1200	RA1	RA2	RA3	RA4	RA5	MA1500
% Mullite	0	25,0	37,5	50,0	62,5	75,0	100
% Cordierite	100	75,0	62,5	50,0	37,5	25,0	0
T_{CL} ($^\circ\text{C}$)	1250	1290	1410	1560	1670	1770	> 1790

Kết quả xác định độ chịu lửa của các mẫu PA1200, MA1500 và các mẫu composite RA ở bảng 3.16 cho thấy: khi hàm lượng mullite trong phối liệu tăng lên (từ mẫu RA1 đến RA5), độ chịu lửa của các mẫu composite tăng dần. Như vậy, giữa hàm lượng mullite trong phối liệu composite (X) và độ chịu lửa của nó (T_{CL}) có tương quan tuyến tính theo phương trình (hình 3.31): $T_{CL} = 9,76X + 1052$ ($r = 0,997$).



Hình 3.31. Quan hệ tuyến tính giữa hàm lượng mullite trong phối liệu composite và độ chịu lửa của các mẫu RA

Phương trình này cho phép tổng hợp được composite mullite-cordierite có độ chịu lửa mong muốn, điều này có ý nghĩa lớn trong thực tế. Mặt khác, việc xác định độ chịu lửa của vật liệu trong thực tế

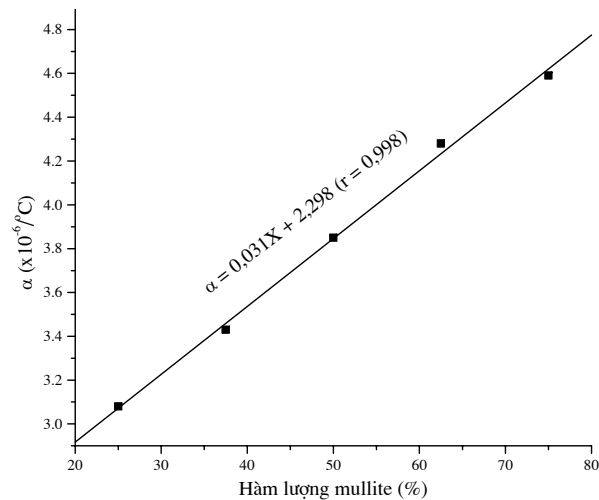
khá khó khăn và tốn kém. Song, bằng cách thay đổi hàm lượng mullite trong phối liệu composite, có thể dự đoán được độ chịu lửa của composite mullite-cordierite tổng hợp được.

- Hệ số giãn nở nhiệt của các mẫu RA:

Bảng 3.17. Hệ số giãn nở nhiệt trung bình của các mẫu RA

Kí hiệu mẫu	PA1200	RA1	RA2	RA3	RA4	RA5	MA1500
% KL mullite	0	25,0	37,5	50,0	62,5	75,0	100
α ($\times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$)	2,76	3,08	3,43	3,85	4,28	4,59	5,57

Kết quả xác định hệ số giãn nở nhiệt của các mẫu PA1200, MA1500 và các mẫu composite RA trong khoảng nhiệt độ từ $25 \div 1000^{\circ}\text{C}$ ở bảng 3.18 cho thấy: khi hàm lượng mullite trong phối liệu tăng lên (từ mẫu RA1 đến RA5), hệ số giãn nở nhiệt của chúng cũng tăng dần. Giữa hàm lượng mullite trong phối liệu composite (X) và hệ số giãn nở nhiệt của chúng (α) có tương quan tuyến tính theo phương trình (hình 3.31): $\alpha = 0,031X + 2,298$ ($r = 0,998$).



Hình 3.34. Quan hệ tuyến tính giữa hàm lượng mullite trong phối liệu composite và hệ số giãn nở nhiệt của các mẫu RA

Phương trình này cho phép tổng hợp được composite mullite-cordierite có hệ số giãn nở nhiệt phù hợp với yêu cầu sử dụng.

Như vậy, thông qua việc thay đổi thành phần phối liệu của vật liệu composite mullite-cordierite, có thể điều chỉnh được hệ số giãn nở nhiệt và độ chịu lửa của vật liệu một cách thích hợp với yêu cầu sử dụng. Chẳng hạn, đối với loại vật liệu bền nhiệt làm tấm kê, giá đỡ trong lò nung nhanh gốm sứ (đòi hỏi hệ số giãn nở nhiệt khoảng $4,2 \cdot 10^{-6}/\text{K}$), dựa vào phương trình $\alpha = 0,031X + 2,298$, tính được hàm lượng mullite cần đưa vào phối liệu là 61%, thay hàm lượng này vào phương trình $T_{\text{CL}} = 9,76X + 1052$, có thể xác định được độ chịu lửa của vật liệu composite MC tạo ra là 1650°C . Với nhiệt độ đó, composite mullite-cordierite tạo ra hoàn toàn đạt yêu cầu của vật liệu chịu lửa dùng trong công nghiệp gốm sứ.

KẾT LUẬN

Qua kết quả nghiên cứu tổng hợp gốm cordierite và composite mullite-cordierite từ cao lanh A Lưới bằng phương pháp phân tán rắn - lỏng, chúng tôi đi đến các kết luận quan trọng:

- Việc nghiên cứu chi tiết về thành phần khoáng, thành phần hoá, cấp hạt, hình thái học và một số tính chất sau khi nung của cao lanh A Lưới sau lọc, đã xác định được: thành phần khoáng sét của cao lanh A Lưới là kaolinite và halloysite với hàm lượng đạt tới 60%, khoáng phi sét chủ yếu là muscovite; hàm lượng SiO_2 giảm đáng kể ($< 52\%$), lượng Al_2O_3 khá cao ($> 31\%$), tổng lượng oxit kim loại kiềm (K_2O và Na_2O) khá cao, khoảng 2,8%; đặc biệt, hàm lượng Fe_2O_3 rất bé, dao động trong khoảng $0,2 \div 0,3\%$. Với các đặc điểm đó, cao lanh A Lưới là loại cao lanh có chất lượng tốt, độ trắng tự nhiên rất cao, nhiệt độ thiêu kết cao, có thể sử dụng

để làm nguyên liệu tổng hợp gồm cordierite và mullite. Các kết quả nghiên cứu đó đã góp phần cung cấp cơ sở khoa học cho những nghiên cứu khai thác và sử dụng hợp lý nguồn tài nguyên này trong các lĩnh vực khác nhau: sản xuất gốm sứ cao cấp, tổng hợp gốm kỹ thuật, sứ cách điện, sản xuất men và chất màu...

2. Qua nghiên cứu mối quan hệ giữa tỷ lệ mol Al_2O_3/SiO_2 và MgO/SiO_2 trong hỗn hợp rắn-lỏng ban đầu và trong kết tủa, đã xác định được tương quan tuyến tính giữa tỷ lệ mol MgO/SiO_2 trong hỗn hợp đầu (X) và trong kết tủa (Y) tuân theo phương trình: $Y = 0,92X - 0,104$ ($r = 0,994$). Từ đó, đã tìm được các điều kiện thích hợp để điều chế precursor đúng tỷ lệ hợp thức cordierite bằng phương pháp phân tán rắn-lỏng từ cao lanh A Lưới có hàm lượng Al_2O_3 thấp. Tỷ lệ mol Al_2O_3/SiO_2 và MgO/SiO_2 trong hỗn hợp rắn-lỏng ban đầu tương ứng là 0,4 và 0,548. Lượng NH_3 cần thiết để kết tủa Al^{3+} và Mg^{2+} dưới dạng $Al(OH)_3$ và $Mg(OH)_2$ là $3a + 5b$ (a, b tương ứng là số mol của Al^{3+} và Mg^{2+} trong dung dịch).
3. Qua nghiên cứu ảnh hưởng của các yếu tố như chế độ nghiền, chế độ nung đến quá trình tạo pha cordierite, đã tìm được điều kiện thích hợp để tổng hợp gốm cordierite có nhiệt độ thiêu kết thấp hơn khoảng $100^\circ C$ so kết quả nghiên cứu tổng hợp cordierite của một số tác giả khác trên thế giới theo phương pháp gốm truyền thống. Lần đầu tiên ở Việt Nam, đã xây dựng được quy trình tổng hợp gốm cordierite từ cao lanh A Lưới bằng phương pháp phân tán rắn-lỏng, gồm các bước:
 - Phân tán cao lanh A Lưới vào dung dịch chứa Al^{3+} và Mg^{2+} rồi tiến hành kết tủa Al^{3+} và Mg^{2+} dưới dạng $Al(OH)_3$ và $Mg(OH)_2$ bằng dung dịch NH_3 . Sau khi để già hoá trong 24 giờ, precursor cordierite được lọc, rửa sạch và sấy khô ở $105^\circ C$.

- Hoạt hoá precursor bằng cách xử lý nhiệt ở $600^\circ C$ trong 3 giờ rồi nghiền bi ướt bằng máy nghiền hành tinh trong 3 giờ với tốc độ 180 vòng/phút.
- Phối liệu sau khi nghiền được ép viên với lực nén 500 kG/cm^2 và nung thiêu kết ở $1200^\circ C$ trong 3 giờ.

Gốm cordierite thu được có các tính chất (hệ số giãn nở nhiệt, khối lượng thể tích, độ hút nước, độ chịu lửa, hàng số điện môi, tổn hao điện môi) tương đương với gốm cordierite do công ty Ferro-Ceramic Grinding Inc. (Mỹ) sản xuất.

4. Bằng phương pháp phân tán rắn-lỏng, đã tổng hợp thành công gốm mullite thiêu kết ở nhiệt độ nung thấp ($1500^\circ C$) từ cao lanh A Lưới, thấp hơn khoảng $200^\circ C$ so với phương pháp gốm truyền thống. Sản phẩm thu được có độ chịu lửa, hệ số giãn nở nhiệt, khối lượng thể tích, độ hút nước đạt yêu cầu kỹ thuật của vật liệu chịu lửa cao cấp.
5. Từ gốm cordierite và mullite điều chế từ cao lanh A Lưới, đã nghiên cứu tổng hợp thành công composite mullite-cordierite có thành phần pha tinh thể thuần túy gồm α -cordierite và mullite. Trên cơ sở thiết lập được tương quan tuyến tính giữa hệ số giãn nở nhiệt (α), độ chịu lửa (T_{CL}) của composite và hàm lượng mullite (X) trong phối liệu:

$$T_{CL} = 9,76X + 1052 \quad (r = 0,997)$$

$$\alpha = 0,031X + 2,298 \quad (r = 0,998),$$

có thể tạo ra được composite mullite-cordierite có độ chịu lửa và hệ số giãn nở nhiệt mong muốn, đáp ứng yêu cầu làm vật liệu chịu lửa bền nhiệt cho các mục đích sử dụng khác nhau.