การพัฒนากระเบื้องและเคลือบเซรามิกจากกากแร่สังกะสี

นางสาว ลักษณา กรีฑาเวทย์

วิทยานิพนธ์นี้เป็นส่วนหนึ่งของการศึกษาตามหลักสูตรปริญญาวิทยาศาสตรมหาบัณฑิต
สาขาวิชาเทคโนโลยีเซรามิก ภาควิชาวัสดุศาสตร์
คณะวิทยาศาสตร์ จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย
ปีการศึกษา 2548

ISBN 974-17-4321-1

ลิขสิทธิ์ของจุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

I 25198312

DEVELOPMENT OF TILES AND CERAMIC GLAZE FROM HYDROMETALLURGICAL ZINC WASTE

Miss Laksana Kreethawate

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 2005

ISBN 974-17-4321-1

481991

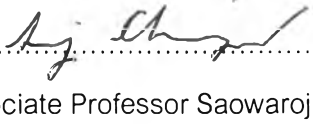
The Title	Development of tiles and ceramic glaze from hydrometallurgical zinc waste
By	Miss Laksana Kreethawate
Field of study	Ceramic Technology
Thesis Advisor	Sirithan Jiemsirilers, Ph.D.
Thesis Co-advisor	Parjaree Thavorniti, Ph.D.

Accepted by the Faculty of Science, Chulalongkorn University in Partial Fulfillment of the Requirements for the Master's Degree

.....Dean of the Faculty of Science

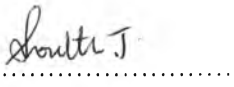
(Professor Piamsak Menasveta, Ph.D.)

THESIS COMMITTEE



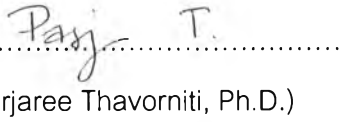
.....Chairman

(Associate Professor Saowaroj Chuayjuljit)



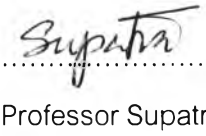
.....Thesis Advisor

(Sirithan Jiemsirilers, Ph.D.)



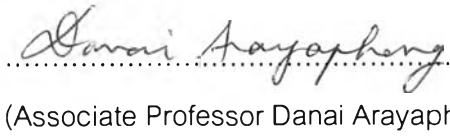
.....Thesis Co-advisor

(Parjaree Thavorniti, Ph.D.)



.....Member

(Associate Professor Supatra Jinawath, Ph.D.)



.....Member

(Associate Professor Danai Arayaphong)

ลักษณา กรีฑาเวทย์ : การพัฒนากระเบื้องและเคลือบเซรามิกจากกากแร่สังกะสี (DEVELOPMENT OF TILES AND CERAMIC GLAZE FROM HYDROMETALLURGICAL ZINC WASTE)
อ. ที่ปรึกษา : ดร.ศิริธันว์ เจียมศิริเลิศ, อ.ที่ปรึกษาร่วม : ดร.ปาจรีย์ ถาวรนิติ, 60 หน้า.
ISBN 974-17-4321-1.

งานวิจัยนี้มุ่งเน้นการนำกากแร่สังกะสีมาใช้ในการผลิตกระเบื้องและเคลือบเซรามิก เพื่อตรึงธาตุที่เป็นอันตรายจากของเสียนี้ ส่วนผสมของกระเบื้องเตรียมได้จากการผสมกากแร่สังกะสีกับเนื้อกระเบื้องดั้งเดิม หลังจากนั้นทำการขึ้นรูปชิ้นงานด้วยการอัดแบบแห้งและนำชิ้นงานที่ได้ไปเผาที่อุณหภูมิ 1100 ถึง 1150 องศาเซลเซียส จากการศึกษาชิ้นงานดังกล่าวพบว่า สมบัติต่างๆขึ้นกับอุณหภูมิการเผา พบว่าภาวะการเผาที่เหมาะสมของชิ้นงาน T4 T5 T6 T7 และ T8 คือเผา ณ อุณหภูมิ 1150 1125 1125 1100 และ 1100 องศาเซลเซียสตามลำดับ ชิ้นงานมีเปอร์เซ็นต์การดูดซึมน้ำเข้าใกล้ศูนย์ ความแข็งแรงอยู่ในช่วง 61.6 ถึง 107.26 เมกะปาสคาล ซึ่งมีค่าความแข็งแรงเป็นสองเท่าของชิ้นงานที่ไม่มีส่วนผสมของกากแร่สังกะสี (30 เมกะปาสคาล)เป็นอย่างน้อย ชิ้นงานเหล่านี้ผ่านการทดสอบทางเคมีและการรั่วไหลของตะกั่วด้วยวิธี TCLP1311 ซึ่งชิ้นงานส่วนมากผ่านมาตรฐานการทดสอบสำหรับกระเบื้องปูพื้น นอกจากนี้ชิ้นงานดังกล่าวยังมีความทนทานการขัดสีดีกว่าค่ามาตรฐาน ในส่วนของเคลือบเซรามิกได้เตรียมขึ้นโดยเติมกากแร่สังกะสีเป็นสีสเตนสำหรับเคลือบและผลิตเป็นฟริตสำหรับเคลือบกระเบื้องปูพื้น จากผลการศึกษาพบว่าสีของเคลือบเปลี่ยนแปลงน้อยมาก และฟริตจากกากแร่สังกะสีสามารถใช้เคลือบกระเบื้องปูพื้นได้ ในงานนี้สรุปได้ว่าควรจะนำเอากากแร่สังกะสีมาใช้เป็นวัตถุดิบในส่วนผสมเนื้อกระเบื้อง เนื่องจากสามารถนำกากแร่สังกะสีไปใช้ได้ในปริมาณมาก (ถึง 70% โดยน้ำหนัก) และกระเบื้องที่ได้ยังคงมีสมบัติที่ดี นอกจากนี้การกำจัดกากแร่สังกะสีด้วยวิธีการนี้ยังเป็นวิธีที่ใช้ต้นทุนต่ำเมื่อเปรียบเทียบกับวิธีการหลอม และเป็นวิธีที่สามารถใช้ได้ในสายการผลิตกระเบื้องปกติ

ภาควิชา.....วัสดุศาสตร์..... ลายมือชื่อนิสิต.....ลักษณา กรีฑาเวทย์.....
สาขาวิชา.....เทคโนโลยีเซรามิก..... ลายมือชื่ออาจารย์ที่ปรึกษา.....
ปีการศึกษา.....2548..... ลายมือชื่ออาจารย์ทีปรึกษาร่วม.....

4572644623 : MAJOR CERAMIC TECHNOLOGY

KEY WORD: TILES / GLAZE / ZINC WASTE / STRENGTH / TCLP

LAKSANA KREETHAWATE : DEVELOPMENT OF TILES AND CERAMIC GLAZE FROM HYDROMETALLURGICAL ZINC WASTE. THESIS ADVISOR : SIRITHAN JIEMSIRILERS, Ph.D., THESIS COADVISOR : PARJAREE THAVORNITI, Ph.D. 60 pp. ISBN 974-17-4321-1.

The possibility of using hydrometallurgical zinc waste as raw material for preparing ceramic tiles and glaze was investigated in order to immobilize hazardous elements present in this waste. The compositions of tiles were prepared by mixing hydrometallurgical zinc waste with traditional tile body. The specimens were made by dry-pressing and then fired at temperatures range from 1100-1150°C. It was observed that properties strongly depended on firing temperature. The appropriate firing conditions of specimens T4 (1150°C), T5 (1125°C), T6 (1125°C), T7 (1100°C) and T8 (1100°C) resulted in 0% water absorption and bending strength range from 61.6-107.26 MPa which at least twice of the strength of specimen without zinc waste addition (30 MPa). All of these specimens passed chemical and lead leaching test by using TCLP1311 method. Moreover, most of specimens showed abrasive resistance lower than that of the standard. Ceramic glaze was prepared by adding zinc waste as color stain in glaze composition and using zinc waste to produce frit for floor tile glaze. The results demonstrated that the color of glaze slightly changed and frit from zinc waste could be used in floor tile glaze. In conclusion, it could recommended to immobilized hazardous element by using this waste as raw material for tile production because it can consumes highly amount of zinc waste (upto 70 wt%) and provide a good properties for this application. In addition, this is a low cost process compares to vitrification process and it is very practical with a normal tile production line.

Department.....Materials Science.....Student's signature.....

Field of study....Ceramic Technology.....Advisor's signature.....

Academic year..2005.....Co-advisor's signature.....

ACKNOWLEDGEMENTS

I would like to thank my advisors, Dr. Sirithan Jiemsirilers, Dr. Parjaree Thavorniti and Dr. Sitthisuntorn Supotina for their help and guidance. I am very grateful to Thailand Graduate Institute Technology (TGIST), National Science and Development Agency (NSTDA) of Thailand for a financial support. I would like to thank National Metal and Materials Technology Center (MTEC) for supporting analytical equipment. I would like to thank Thai Ceramic Co., Ltd. for abrasive resistance testing and supporting raw materials, Padeang Industry Public Co., Ltd. for raw material support. Furthermore, I would like to thank my friends in Ceramic Technology Program at Chulalongkorn University for their friendship and supports. Finally, I am very grateful to my family for their love, encouragement and understanding.

CONTENTS

Page

Abstract (Thai).....iv

Abstract (English).....v

Acknowledgements.....vi

Contents.....vii

List of Tables.....x

List of Figures.....xi

Chapter I Introduction.....1

1.1 Introduction.....1

1.2 The objectives of research.....2

Chapter II Literature Reviews.....3

2.1 Hydrometallurgical zinc production and waste from production.....3

2.2 Quality control and standards of tiles.....4

2.1.2 Mosaic tiles.....4

2.1.2 Wall and floor tiles.....4

2.3 Ceramic stains.....6

2.3.1 Body stain.....7

2.3.2 Glaze stain.....7

2.3.3 Basic colorant materials.....8

2.4 Literature review of waste utilization 9

Chapter III Experimental procedures.....12

3.1 Raw materials.....12

3.2 Characterization of zinc waste.....13

3.3 Experimental procedure.....13

3.3.1 Preparation of tile bodies.....13

3.3.2 Preparation of glaze for stoneware.....15

3.3.3 Preparation of glaze for floor tiles.....17

3.3.4 Preparation of frit from zinc waste.....18

3.3.5 Preparation of glaze based on frit from zinc waste for floor tile.....20

3.4 Characterization of tile bodies and glazes.....21

Page

3.4.1 Characterization of tile bodies.....21
3.4.1.1 Physical properties.....21
3.4.1.2 Microstructure.....22
3.4.1.3 Phase formation analysis.....22
3.4.1.4 Bending strength.....22
3.4.1.5 Abrasive resistance.....23
3.4.1.6 Chemical resistance.....23
3.4.1.7 Toxic leaching.....24
3.4.2 Characterization of glaze.....25
3.4.2.1 Characterization of glaze using zinc waste as color stain.....25
3.4.2.2 Characterization of glaze base on frit from zinc waste.....25
Chapter IV Results and discussions.....28
4.1 Characterization of zinc waste.....28
4.1.1 Phase analysis.....28
4.1.2 Chemical composition.....28
4.1.3 Particle size distribution.....29
4.2 Characterization of tile bodies and glazes.....30
4.2.1 Characterization of tile bodies.....30
4.2.1.1 Physical properties.....30
4.2.1.2 Microstructure.....36
4.2.1.2 Phase formation analysis.....36
4.2.1.4 Bending strength.....41
4.2.1.5 Abrasive resistance.....42
4.2.1.6 Chemical resistance.....43
4.2.1.7 Toxic leaching.....43
4.2.2 Characterization of glaze.....44
4.2.2.1 Characterization of glaze using zinc waste as color stain.....44

Page

4.2.2.2 Characterization of glaze base on frit from zinc waste...46

Chapter V Conclusions.....48

Chapter VI Future works.....49

References.....50

Appendices.....54

Appendix A Linear shrinkage, Bulk density, water absorption and apparent porosity of Specimens.....55

Appendix B Bending strength of Specimens 58

Biography.....60

LIST OF TABLES

Page

Table 2.1 Chemical composition of jarosite , goethite and hematite.....4

Table 2.2 Physical quality control and standard of wall and floor tiles.....5

Table 2.3 Basic colorant materials.....8

Table 3.1 Batch composition of tile bodies.....14

Table 3.2 Chemical compositions of tile bodies.....15

Table 3.3 Batch compositions of glossy glaze.....16

Table 3.4 Chemical compositions of glossy glaze.....16

Table 3.5 Batch compositions of for matt glaze.....17

Table 3.6 Chemical compositions of matt glaze.....17

Table 3.7 Batch composition of glaze for floor tiles.....18

Table 3.8 Batch composition of engobe for floor tiles.....18

Table 3.9 Calculation of suitable percent oxide of zinc waste as raw material.....19

Table 3.10 Chemical composition of frit.....19

Table 3.11 Raw materials used for frit melting.....20

Table 3.12 Raw materials used as glaze base on frit from zinc waste for floor tile.....21

Table 4.1 Chemical compositions of zinc waste.....29

Table 4.2 Deep abrasive of specimens.....42

Table 4.3 Chemical resistance of specimens.....43

Table 4.4 Pb leaching of specimens.....44

Table 4.5 The color and surface appearance of specimens.....47

Table 4.6 Chemical resistance of glaze base on frit from zinc waste.....47

LIST OF FIGTURES

Page

Fig 2.1 Hydrometallurgical zinc production process.....3

Fig 3.1 Definition of the chord.....23

Fig 3.2 The agitator of toxicity characteristic leaching procedure (TCLP).....24

Fig 3.3 Flow chart of toxicity characteristic leaching procedure (TCLP).....25

Fig 3.4 Flow chart of the experiment.....27

Fig 4.1 XRD pattern of zinc waste.....28

Fig 4.2 Particle size distribution of zinc waste.....29

Fig 4.3 Specimens after firing at various temperature.....31

Fig 4.4 Percent linear shrinkage of specimens.....32

Fig 4.5 Bulk density of specimens.....33

Fig 4.6 Percent water absorption of specimens.....34

Fig 4.7 Percent apparent porosity of specimens.....35

Fig 4.8 Microstructure of cross-section of specimens T6, T7 and T8 fired at 1100°C and 1125°C.....36

Fig 4.9 XRD pattern of specimens fired at 1125°C.....37

Fig 4.10 XRD pattern of specimens T6, T7 and T8 fired at 1100°C.....38

Fig 4.11 XRD pattern of specimens T6 fired at 1100°C and 1125°C.....39

Fig 4.12 XRD pattern of specimens T7 fired at 1100°C and 1125°C.....39

Fig 4.13 XRD pattern of specimens T8 fired at 1100°C and 1125°C.....40

Fig 4.14 XRD pattern of specimens T4 fired at 1150°C.....40

Fig 4.15 Three point bending strength of specimens.....41

Fig 4.16 glossy glaze.....45

Fig 4.17 matt glaze.....45

Fig 4.18 glaze stain for floor tiles.....46

Fig 4.19 Image of frits.....46

Fig 4.20 The image of glazes base on frits from zinc waste for floor tiles.....46