

Ref. no.: 76-04077

Dossier: 02-6-40040

PUBLIKATIE

Bakgedrag in relatie tot zetpatroon
en scherfdikte

door

J.H. van der Velden

Datum : 10 mei 1976

C. J. I. - TNO

EX. NR.

11

INHOUD

	blz.
1. INLEIDING	4
2. TEMPERATUURVERSCHILLEN IN DE SCHERF VAN EEN PRODUKT	5
3. TEMPERATUURVERSCHILLEN BINNEN EEN CHARGE	7
4. INVLOED VAN NAIJLINGEN OP HET BAKREGIME	8
5. HET OPWARM- EN KOELREGIME	9
6. HET SINTERREGIME	10
7. BESPREKING VAN DE RESULTATEN	16

BIJLAGEN: 2 figuren

BAKGEDRAG IN RELATIE TOT ZETPATROON EN SCHERFDIKTE

door

J.H. van der Velden

Centraal Technisch Instituut TNO - Apeldoorn

SAMENVATTING

Geanalyseerd wordt, in welke mate het zetpatroon van keramische produkten in een oven en de dikte van de keramische scherf van invloed zijn op de specificatie van het temperatuurverloop met de tijd in de opwarm-, sinter- en koelperiode.

In het bijzonder wordt aandacht besteed aan het sinteren van grofkeramische produkten in verschillende soorten stapelingen.

Firing behaviour in dependence on setting pattern
and thickness of the ceramic body

SUMMARY

It is analyzed to which extent the setting pattern of ceramic products in a kiln and the thickness of the ceramic body influence the specification of the temperature curve in the heating up-, soaking- and cooling period.

Special attention is paid to the soaking of heavy clay ware in different types of setting.

1. INLEIDING

In de charge van een periodieke oven, de kamerinzet van een continue kameroven, de lading van een tunnelovenwagen en in andere bakeenheden waarin de produkten groepsgewijs worden gebakken doen zich tijdens het bakproces onvermijdelijk temperatuurverschillen voor.

Het zijn ten dele ruimtelijke temperatuurverschillen die niet door een wijziging van de tijdsduur van de warmtebehandeling kunnen worden beïnvloed.

Deze tijdonafhankelijke verschillen zijn sterk afhankelijk van de constructie en inrichting van de oven. Zij blijven hier buiten beschouwing.

Andersoortig zijn de temperatuurverschillen die in de bakeenheid ontstaan in de richting waarin het warmtetransport door straling en convection plaatsvindt en de temperatuurverschillen die zich voordoen bij het niet stationaire warmtetransport in de scherf van de individuele produkten. Deze zijn wel tijdafhankelijk. Zij ontstaan door naijlingen in het temperatuurverloop van delen van de charge en de scherf.

2. TEMPERATUURVERSCHILLEN IN DE SCHERF VAN HET PRODUKT

De temperatuurverschillen in de scherf van het produkt zijn het gemakkelijkst voor berekening toegankelijk. Een eenvoudig rekenmodel biedt de tweezijdig verwarmde of gekoelde oneindig uitgestrekte planparallele plaat met constante stofeigenschappen. Daarbij wordt dan onder meer aangenomen, dat de vaak meerdimensionale warmtestroming in een produkt veel overeenkomst vertoont met de monodimensionale stroming in de plaat. Het specifiek warmteuitwisselingsoppervlak van het model is:

$$A_s = \frac{1}{r \cdot \rho} \quad [1]$$

Hierin is:

A_s	, specifiek oppervlak van de plaat	(m^2/kg)
r	, halve plaatdikte	(m)
ρ	, volumieke massa van de plaat	(kg/m^3)

Het temperatuurverschil, dat zich in de quasi stationaire toestand tussen het oppervlak en de kern van de plaat bij opwarming of koeling met een constante snelheid instelt, bedraagt:

$$\Delta\theta = p \cdot s = p \cdot \frac{r^2}{2\alpha} \quad [2]$$

Hierin is:

$\Delta\theta$, temperatuurverschil tussen oppervlak en kern	(K)
p	, opwarm- of koelsnelheid	(K/s)
s	, naijling	(s)
r	, halve plaatdikte	(m)
α	, temperatuurvereffeningscoëfficiënt	(m^2/s)

De naijling s is derhalve omgekeerd evenredig met het kwadraat van het specifiek oppervlak en onafhankelijk van de opwarm- of koelsnelheid. Dit specifiek oppervlak wordt bij gestapelde produkten mede door de rangschikingswijze bepaald. De naijling kan voor elk op een bepaalde wijze gerangschikt produkt door middel van een bakproef vastgesteld worden.

De bakcurve, die het verloop van de oppervlaktetemperatuur van de plaat met de tijd weergeeft, kan men eenvoudigheidshalve opgebouwd denken uit rechte lijnstukken.

Wanneer de opwarm- of koelsnelheid wordt vergroot of verkleind zal zich een ander temperatuurprofiel in de plaat ontwikkelen met een nieuwe evenwichtswaarde voor het temperatuurverschil tussen oppervlak en kern. Theoretisch wordt de nieuwe evenwichtswaarde pas na oneindig lange tijd bereikt.

Stelt men echter dat die nieuwe evenwichtswaarde tot op $\sqrt{\quad}$ Kelvin moet worden benaderd, dan bedraagt de hiervoor nodige aanpassingstijd, gerekend van het tijdstip dat de oorspronkelijke opwarm- of koelsnelheid werd gewijzigd:

$$t = - 1,9 s \cdot \log \left(\frac{\sqrt{\quad}}{\Delta p \cdot s} \right) \quad [3]$$

Hierin is:

- t , aanpassingstijd (s)
- s , naijling (s)
- $\sqrt{\quad}$, resterende afwijking van de kern-
temperatuur behorende bij de
nieuwe evenwichtswaarde van het
temperatuurverschil (K)
- Δp , positief opwarm- of koelsnelheids-
verschil tussen twee opeenvolgende
stadia (K/s)

Deze eenvoudige redelijk nauwkeurige formule werd aanvankelijk opgesteld aan de hand van uitkomsten verkregen met behulp van de methode der differentieberekening en werd later bovendien langs analytische weg afgeleid.

Vorenstaande formules maken het bij een gegeven verloop van de oppervlakte-temperatuur mogelijk, het te verwachten verloop van de kerntemperatuur globaal te berekenen.

3. TEMPERATUURVERSCHILLEN BINNEN EEN CHARGE

De naijlingen in het temperatuurverloop binnen een charge als geheel, zijn door het grotere aantal parameters in het algemeen moeilijker door berekening vast te stellen.

Factoren van belang zijn onder meer, de doorstroombaarheid van de charge, het specifiek oppervlak van de charge, de afmetingen van de charge in de hoofdrichting van het warmtetransport, het debiet aan ovengassen, de omspoeling van de charge, het stralingsaandeel in de warmteoverdracht en de daarbij optredende schaduweffecten, alsmede variërende invloeden van de natuurlijke convectie in de ovenruimte.

Vaak is men aangewezen op directe metingen of schattingen.

4. INVLOED VAN NAIJLINGEN OP HET BAKREGIME

De naijlingen verscherpen de voorwaarden waaraan het bakregime moet voldoen.

Voorkomen dient te worden, dat de spanningen die ontstaan door niet synchroon verlopende volumeveranderingen in de scherf tot schade aanleiding geven.

Ook moet er voor worden gezorgd, dat de gewenste toestandsveranderingen zich in alle delen van de scherf en de charge in gelijke mate kunnen voltrekken en dat deze niet worden geblokkeerd of voortijdig worden beëindigd.

Naarmate de naijlingen kleiner zijn kunnen de produkten in korter tijd worden gebakken. Op grond van het voorgaande speelt de rangschikking van het produkt daarbij een belangrijke rol. Voor wat betreft de naijling in de scherf van produkten is vooral het specifiek oppervlak van een ladingelement van belang. Dit blijkt in de praktijk voor produkten van eenzelfde soort sterk te variëren.

Voor metselbakstenen worden bijvoorbeeld zowel compacte bladen als open stapelingen toegepast. Borden worden in stapels, doch ook in één laag naast elkaar gebakken. Poeders ondergaan de warmtebehandeling los gestort in vuurvaste bakken of bijvoorbeeld in een fluïde bed. De variaties resulteren in soms sterk verschillende baktijden.

5. HET OPWARM- EN KOELREGIME

Aan de hand van experimenteel onderzoek aan metselbakstenen werd de grootte van de invloed van het specifiek oppervlak op het bakregime geanalyseerd. Massieve waalformatvormlingen werden in twee verschillende zetpatronen in een oxiderende atmosfeer aan een aantal bakproeven op laboratoriumschaal onderworpen. Gekozen werden groeperingen met equivalente halve plaatdikten van 0,105 en 0,050 m, overeenkomende met specifieke oppervlakken van afgerond $6 \cdot 10^{-3}$ en $12,5 \cdot 10^{-3} \text{ m}^2/\text{kg}$.

De vormlingen werden bij elke proef in gelijke mate gesinterd. Voor de vaststelling van de toelaatbare opwarm- en koelsnelheden in een aantal markante temperatuurtrajekten en voor de keuze van de grenzen van die trajekten werden voor beide groeperingen dezelfde procedures toegepast.

De nog juist zonder aantasting van de produktkwaliteit realiseerbare opwarm- en koeltijden zijn in tabel 1 weergegeven.

specifiek oppervlak ca.	$10^{-3} \text{ m}^2/\text{kg}$	6	12,5
kritieke opwarmtijd	h	39	15
kritieke koeltijd	h	34	17

Tabel 1. Invloed van het specifiek oppervlak op het opwarm- en koelregime.

De gevonden verschillen in opwarmtijd en koeltijd worden niet alleen veroorzaakt door verschillen in maximaal toelaatbare opwarm- en koelsnelheden, doch ook door verschuivingen in de grenzen van de opeenvolgende temperatuurtrajekten.

Naarmate de naijling van het temperatuurverloop in de scherf groter is, dienen de grenzen van de temperatuurtrajekten, die met een relatief geringe opwarm- of koelsnelheid moeten worden doorlopen, ter voorkoming van schade, namelijk wijder uiteen te liggen. De betreffende grenzen worden arbitrair onder gebruikmaking van de formules 2 en 3 vastgesteld.

6. HET SINTERREGIME

Ook tijdens de sintering is het specifiek oppervlak van produkten in oven-charges van invloed op de specificatie van het regime. Deze invloed kan voor bouwkeramiek worden aangetoond aan de hand van de met een dilatometer te bepalen relatie tussen sintercontractie, sintertemperatuur en sintertijd.

Door experimenteel onderzoek werd gevonden dat het sintergedrag van de meest gebruikte Nederlandse kleisoorten onder bepaalde voorwaarden kan worden beschreven met de formule:

$$q \cdot \log (Z_m + \Omega) = U + V \cdot \sqrt{} + \log (t_a + t_o) \quad [4]$$

Hierin is:

Z_m , de gemeten lineaire sintercontractie (%)

Ω , een correctie van Z_m (%)

$\sqrt{}$, de baktemperatuur, weergegeven als positieve of negatieve afwijking van een referentietemperatuur (K)

t_a , de aanhoudtijd bij de baktemperatuur (h)

t_o , de equivalente aanhoudtijd voor de sintering tijdens de nadering van de baktemperatuur (h)

q , een constante

U , een constante

V , een constante

De lineaire sintercontractie Z_m wordt gemeten ten opzichte van de arbitrair gekozen top in de dilatometercurve en uitgedrukt in procenten van het geheel droge proefobject in ongebakken toestand bij 20°C. In hoofdzaak als gevolg van verschillen in het dilatatiegedrag van ongebakken en gebakken klei wijkt Z_m af van de lineaire bakrimp die het niet belaste proefobject na het bakproces blijkt te hebben ondergaan.

$$Z_m = a + c \quad [5]$$

waarin:

a , de lineaire bakkrimp (%)

c , een correctie (%)

De correctie c is enigermate afhankelijk van de bakkrimp, doch mag voor een beperkt sintertrajekt constant verondersteld worden.

Voor $\sqrt{\quad}$ geldt:

$$\sqrt{\quad} = \theta - \theta_0 \quad [6]$$

Hierin is:

θ , de baktemperatuur (K)

θ_0 , de referentietemperatuur (K)

Voor θ_0 werd 1323 K gekozen, overeenkomend met 1050°C.

Met de equivalente aanhoudtijd t_0 wordt de sintering in rekening gebracht, die optreedt tijdens de nadering van de baktemperatuur met een eindige snelheid. Het is de sintertijd die bij een temperatuur $\sqrt{\quad}$ eenzelfde contractie oplevert als een nadering van $\sqrt{\quad}$ met een constante opwarmsnelheid p (K/h).

De getalwaarde volgt uit:

$$t_0 = \frac{0,4343}{p \cdot \sqrt{\quad}} \quad [7]$$

Voor een gegeven klei, een gegeven atmosfeer en een gegeven schadevrije warmtebehandeling voorafgaand aan de sintering zijn q, Ω , U en V in een beperkt sintertrajekt constant. Bij de onderzochte kleien bleek die constantheid te gelden in een temperatuurgebied van 50 à 80 K hetgeen voor de meeste toepassingen voldoende groot is.

De gevonden relatie geldt alleen voor die fasen van het sinterproces, waarin de dilatometercurve een vloeiend convex verloop bezit en de sintercontractie kleiner is dan 6%. Dit laatste is bij bouwkeramiek in het algemeen het geval.

De formule is strikt genomen alleen van toepassing op processen waarbij de contractie in alle delen van de scherf van het produkt op elk tijdstip gelijk is.

Dit is tengevolge van de naijlingen van het temperatuurverloop in de scherf meestal niet het geval.

Voorlopig moet worden aangenomen, dat de formule bij een goed geleid industrieel sinterproces, waarbij die naijlingen ter waarborging van de produktkwaliteit bewust worden beperkt, bruikbaar blijft.

In figuur 1 is de relatie tussen de sintercontractie $z = (Z_m + \Omega)$ en de sintertijdsduur $t = (t_a + t_o)$ bij verschillende baktemperaturen grafisch weergegeven voor een Nederlandse rivierklei.

Het sinterdiagram is een dubbellogaritmisch rechthoekig coördinatensysteem, waarin op de verticale as de sintercontractie z van 0,1% tot 10% is aangegeven en op de horizontale as de sintertijd t van 0,1 uur tot 50 uren is uitgezet.

Sinterprocessen bij constante temperatuur worden door evenwijdig lopende rechte isothermen weergegeven. De sintering tijdens een opwarming met een constante snelheid verloopt langs lijnen loodrecht op de t -as.

De equivalente aanhoudtijd is voor opwarmingssnelheden van 1, 2, 5, 10, 20, 50 en 100 K/h aan de boven- en onderzijde van het diagram aangegeven.

Het verloop van de streeplijn geeft een sinterproces weer bij een opwarming met een snelheid van 20°C per uur, een baktemperatuur van 1070°C en een aanhoudtijd bij die temperatuur van 30 uren. Het proces levert een sintercontractie op van 2,0%. Voor $\Omega = 0$ en $c = 0,8$, bedraagt de lineaire bakrimp dan $2,0 - 0,8 = 1,2\%$.

Sinterprocessen met een niet lineair verloop van de temperatuur met de tijd kunnen grafisch worden weergegeven, door een verdeling van de temperatuurcurve in kleine tijdsintervallen van constante temperatuur.

Met hetzelfde rekenmodel, dat bij de beschouwing van de opwarming en de koeling werd gebruikt, kan thans ook voor de sinterperiode worden nagegaan, wat de gevolgen zijn van tijdafhankelijke temperatuurverschillen in de scherf.

Figuur 2 geeft hiervan een voorbeeld.

Het betreft de sintering van een model met een halve dikte $r = 0,105$ m, een specifiek oppervlak van afgerond $6 \cdot 10^{-3} \text{ m}^2/\text{kg}$ en een temperatuurvereffeningscoëfficiënt van $380 \cdot 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$. De baktemperatuur bedraagt 1073°C en wordt 18,4 h aangehouden. De naderingssnelheid bedraagt aan het oppervlak 6,3 K/h. Verondersteld wordt, dat de nadering onder quasi stationaire omstandigheden plaatsvindt. Met deze gegevens kan ook het temperatuurverloop in de kern van het model worden berekend.

Aan de hand van het sinterdiagram of door berekeningen kunnen vervolgens het verloop van de sintercontractie aan het oppervlak en het verloop van de sintercontractie in de kern worden bepaald.

De figuur geeft de contractie aan het oppervlak en het verschil in contractie tussen oppervlak en kern in afhankelijkheid van de tijd weer. Aan het einde van het sinterproces blijkt de contractie aan het oppervlak 1,8% te zijn. De getalwaarde van de totale contractie is in sterke mate bepalend voor de eigenschappen van het produkt. Het resterende contractieverschil bedraagt 0,34% en kan als maatstaf voor de doorbakbaarheid gelden.

De piekwaarde van het contractieverschil, hier 0,52% is eveneens van technologische betekenis. Een te grote piekwaarde kan leiden tot instabiliteit van produktenstapelingen en kan oppervlaktescheuren doen ontstaan.

Men kan vorenstaande berekeningen ook opzetten voor een model met bijvoorbeeld een halve dikte $r = 0,05$ m en een specifiek oppervlak van $12,5 \cdot 10^{-3} \text{ m}^2/\text{kg}$ en daarbij zorgen, dat de sinterresultaten vergelijkbaar blijven, door de totale contractie alsmede de piek- en restwaarde van het verschil gelijk te kiezen.

In tabel 2 zijn de resultaten van een dergelijke berekening samengevat.

specifiek oppervlak	A_s	$10^{-3} \text{ m}^2/\text{kg}$	6	12,5
naderingssnelheid	p	K/h	6,3	25
begin sintering (0,1%)	θ	$^{\circ}\text{C}$	1037	1052
baktemperatuur	θ	$^{\circ}\text{C}$	1073	1090
totale sintertijd	τ	h	24,2	5,3
aanhoudtijd	τ	h	18,4	3,8

tabel 2: Invloed van het specifiek oppervlak op het sinterregime.

De gevonden sintertijdsduur kan alleen dan op technische schaal worden toegepast wanneer aan enige extra voorwaarden wordt voldaan.

In de eerste plaats dient het ontwikkelde sinterregime, bij de warmteoverdracht door straling en convectie binnen de gegeven opbouw en afmetingen van de beschouwde charge, geen aanleiding te geven tot dermate grote naijlingen van het temperatuurverloop in de charge, dat een te grote spreiding in bakkrimp ontstaat. De contrôle en eventueel noodzakelijke aanpassing van het sinterregime aan deze eis kan aan de hand van een gelijksoortige procedure geschieden als voor het effect van het warmtetransport in de ladingelementen zelf werd ontwikkeld.

In bakeenheden opgebouwd uit produkten met een geringe scherfdikte kunnen de mogelijkheden van warmteoverdracht door straling en convectie in de charge als geheel zelfs volledig bepalend zijn voor de sintertijdsduur en is het warmtetransport in de produkten zelf in dit opzicht niet relevant.

Een klassiek voorbeeld hiervan biedt de periodieke kameroven met overslaande vlam bij het bakproces van dakpannen. Het relatief geringe gastransport door de oven bij de baktemperatuur, de matige doorstroombaarheid van de charge, de geringe scherfdikte en de aanzienlijke hoogte van de charge veroorzaken grote naijlingen in het temperatuurverloop.

Bij het ontwerpen van nieuwe ovens, zal men de rangschikking van de produkten en het stookstelsel bijvoorkeur zodanig dienen te kiezen, dat extreme invloeden van een van de twee soorten naijlingen op het bakregime worden vermeden.

Een tweede extra voorwaarde waaraan moet worden voldaan is, dat het temperatuurverloop met de tijd ook tegemoet komt aan andere eisen, dan die met betrekking tot de sintering en de daaruit voortvloeiende kwaliteit. Men denke bijvoorbeeld aan de ontleding of binding van stoffen in bouwkeramiek, die niettegenstaande een juiste keuze van het bakkrimpniveau en de doorbakkenheid, na het bakproces tot de vorming van uitslag aanleiding zouden kunnen geven.

Aan de hand van een bakproef van de produkten waarbij het ontwikkelde sinterregime wordt gerealiseerd kan dit aspect worden beoordeeld. Het temperatuurverloop met de tijd kan vervolgens voor zover dit zinvol is aan de extra eisen worden aangepast. In veel gevallen behoeft de sinteringstijd niet te worden verlengd en kan het euvel langs andere weg worden geëlimineerd.

Een derde voorwaarde is, dat de ovenatmosfeer overeenkomt met de atmosfeer waarin de proeven, nodig voor de constructie van het sinterdiagram, werden verricht.

7. BESPREKING VAN DE RESULTATEN

In tabel 3 is de totale kritieke baktijd voor de twee onderzochte groeperingen weergegeven.

rangschikking van waal- formaatmetselbaksteen	steensdikte- bladen	twee aan twee gestapeld
specifiek oppervlak, ca. $10^{-3} \text{ m}^2/\text{kg}$	6	12,5
kritieke baktijd , ca. h	97	37

tabel 3: Invloed van het specifiek oppervlak op de kritieke baktijd.

Er dient te worden opgemerkt, dat bij het geschetste onderzoek naar het kritieke bakregime het accent volledig op het waarborgen van de kwaliteit van het produkt werd gelegd.

De technisch economische realiseerbaarheid van de langs experimentele weg gevonden kritieke opwarm- en koeltijden bleef bijvoorbeeld geheel buiten beschouwing.

Uiteraard wordt bij het ontwerpen van op industriële schaal toe te passen bakregimes ook met dit aspect ter dege rekening gehouden.

Met het verrichte onderzoek wordt aangetoond, dat de invloed van het zetpatroon en de scherfdikte op het bakregime aanzienlijk is.

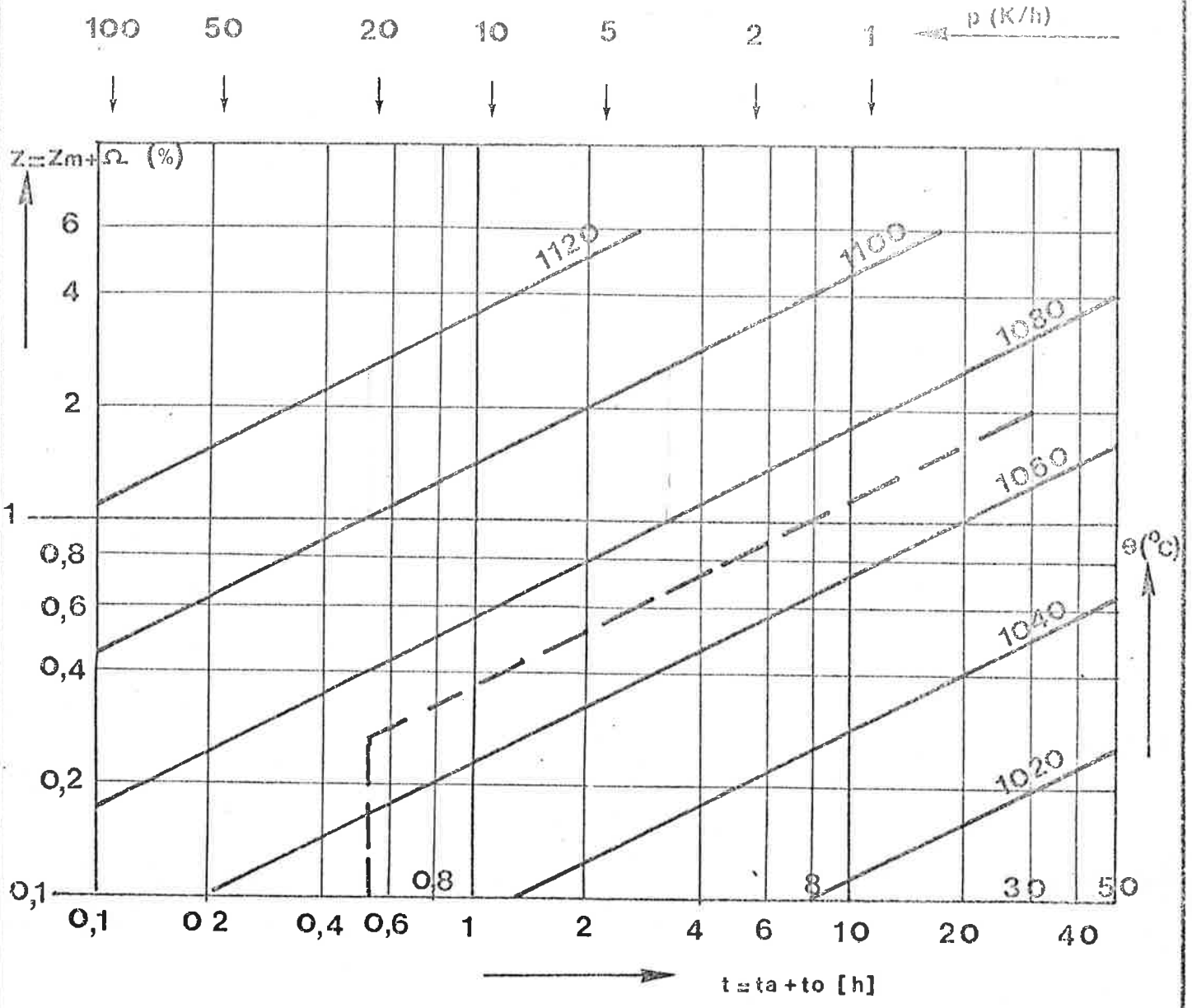
Een aantal oorzaken van deze invloed werden belicht. Het blijkt mogelijk door onderzoek op laboratoriumschaal belangrijke gegevens te verzamelen over het op industriële schaal toe te passen bakregime.

Moge dit artikel er toe bijdragen dat bij de besluitvorming inzake nieuw te bouwen ovens het zetpatroon de aandacht krijgt die het op grond van het vorenstaande verdient.

8. LITERATUUR

J.H. van der Velden, Some aspects of the specification of the vitrification process of products of the heavy-clay industry,
Transaction of the XIIIth International Ceramic Congress. Amsterdam 1974.

ir. P.G.M. Nievergeld, J.H. van der Velden. Speurwerkrapporten van het CTI-TNO inzake baktechniek 1970-1975.



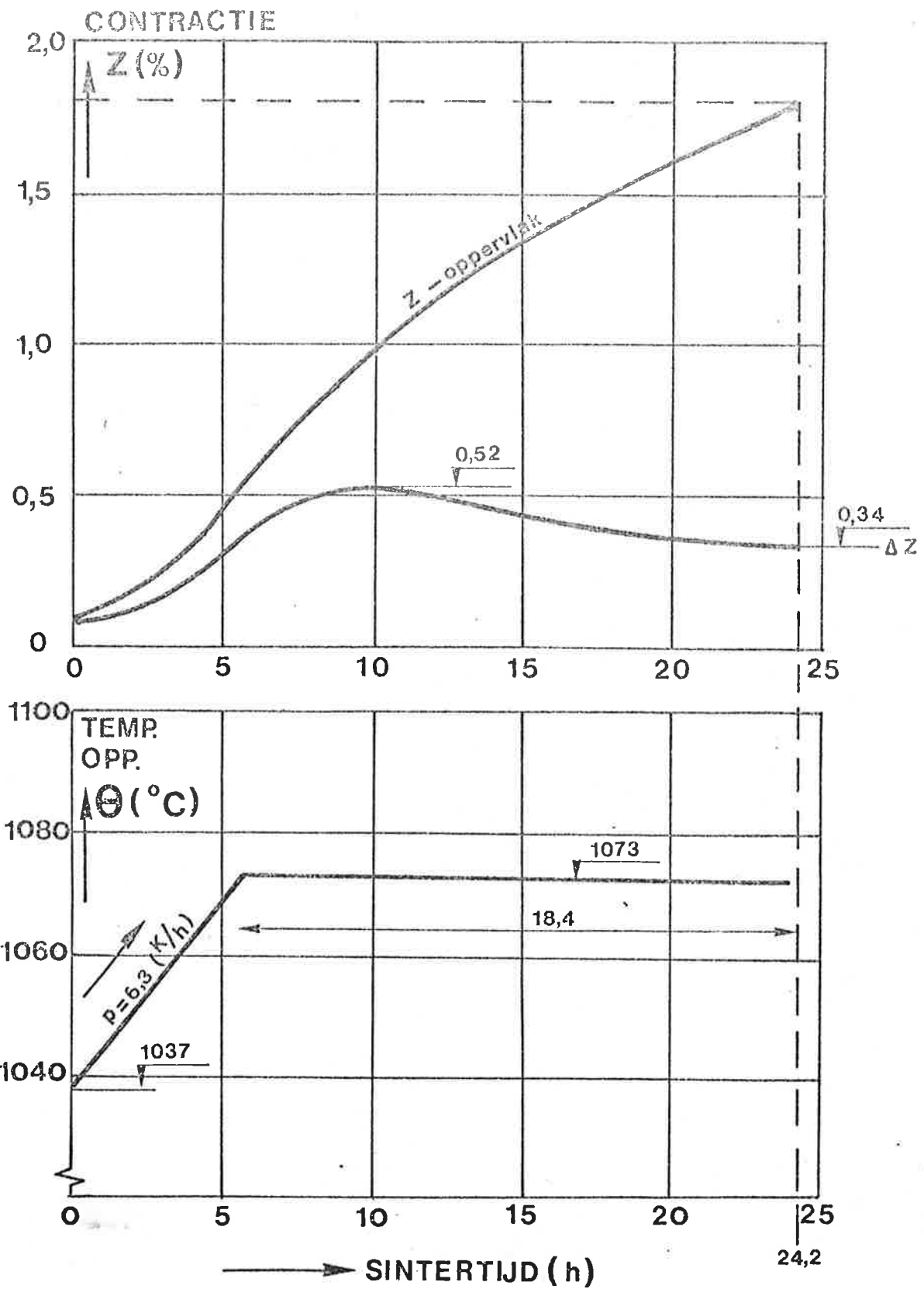
$$q \cdot \log Z = U + V \cdot \delta + \log t$$

$U = -1,7$ $V = 0,04$ $q = 2,0$ $\Omega = 0$ $C = 0,8$

SINTERDIAGRAM

CTI - TNO
werkgr. grofkeramiek

fig: 1



CONTRACTIEVERSCHILLEN TUSSEN OPPERVLAK EN KERN VAN EEN SCHERF MET $r = 0,105$ m

CTI - TNO
werkgr. grofkeramiek

fig:2