

**UNIVERSIDADE FEDERAL DE CAMPINA GRANDE
CENTRO DE CIÊNCIAS E TECNOLOGIA
PROGRAMA DE PÓS-GRADUAÇÃO EM CIÊNCIA E
ENGENHARIA DE MATERIAIS**

Mykaell Yan Muniz de Souza

**OBTENÇÃO DE CERÂMICAS POROSAS A PARTIR DE ARGILA *BALL CLAY*,
ALUMINA E TALCO**

Campina Grande – PB

2018

Mykaell Yan Muniz de Souza

**OBTENÇÃO DE CERÂMICAS POROSAS A PARTIR DE ARGILA *BALL CLAY*,
ALUMINA E TALCO**

Dissertação apresentada ao Programa de Pós-Graduação em Ciência e Engenharia de Materiais como requisito parcial à obtenção do título de **Mestre em Ciência e Engenharia de Materiais**.

Orientador: Prof. Dr. Helio de Lucena Lira

Co-orientador: Prof^a. Dr^a. Lisiane Navarro de Lima Santana

Agência Financiadora: CAPES

Campina Grande – PB

2018

FICHA CATALOGRÁFICA ELABORADA PELA BIBLIOTECA CENTRAL DA UFCG

S729o	<p>Souza, Mykaell Yan Muniz de.</p> <p>Obtenção de cerâmicas porosas a partir de argila <i>Ball Clay</i>, alumina e talco / Mykaell Yan Muniz de Souza. - Campina Grande, 2018. 95 f. : il. color.</p> <p>Dissertação (Mestrado em Ciência e Engenharia de Materiais) - Universidade Federal de Campina Grande, Centro de Ciências e Tecnologia, 2018. "Orientação: Prof. Dr. Helio de Lucena Lira. _ `Coorientador: Prof. Dr^a. Lisiane Navarro de Lima Santana".</p> <p>1. Argilas. 2. Sinterização. 3. Cordierita. 4. Cerâmica Porosa. 5. Membranas. I. Lira, Helio de Lucena. II. Santana, Lisiane Navarro de Lima. III. Universidade Federal de Campina Grande, Campina Grande (PB). IV. Título.</p> <p>CDU 624.131.22(043)</p>
-------	--

VITAE

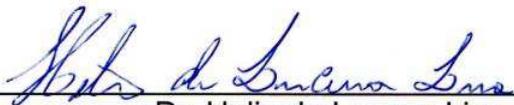
Químico Industrial pela UEPB (2014)

MYKAELL YAN MUNIZ DE SOUZA

**OBTENÇÃO DE CERÂMICAS POROSAS A PARTIR DE AGILA BALL CLAY,
ALUMINA E TALCO**

Dissertação apresentada ao Programa de Pós-Graduação em Ciência e Engenharia de Materiais como requisito parcial à obtenção do título de **Mestre em Ciência e Engenharia de Materiais**.

Aprovado em: 19/02/2018



Dr. Helio de Lucena Lira
Orientador

PPG-CEMat/UAEMa/UFCG



Dr.ª Lisiane Navarro de Lima Santana
Orientadora

PPG-CEMat/UAEMa/UFCG



Dr.ª Ester Pires de Almeida
Examinadora Externa

UAEMA/PNPD/CAPES/UFCG



Dr.ª Maria Aparecida Ribeiro Bonifácio
Examinadora Externa

UAEMA/PNPD/CAPES/UFCG



Dr. Romualdo Rodrigues Menezes
Examinador Interno

PPG-CEMat/UAEMa/UFCG

AGRADECIMENTOS

Primeiramente, à Deus, por ter concedido saúde, bençãos, sabedoria e força para continuar minha caminhada em busca de novas realizações, conquistas e sonhos.

À minha família, pelo amor, incentivo, apoio e por ter investido na minha educação.

Aos meus orientadores Dr. Helio de Lucena Lira e Dr.^a Lisiane Navarro de Lima Santana por acreditarem no meu potencial, e por toda a sabedoria e ensinamentos a mim transmitidos que irão contribuir bastante no meu desenvolvimento intelectual e acadêmico.

Aos Professores Dr. Romualdo Rodrigues Menezes, e as pesquisadoras Dr.^a Ester Pires de Almeida Barbosa e Dr.^a Maria Aparecida Ribeiro Bonifácio por terem aceitado o convite de ser a banca da minha dissertação de mestrado e por todas as sugestões que irão contribuir de forma positiva no meu trabalho.

À Universidade Federal de Campina Grande pela oportunidade oferecida de cursar uma pós graduação.

Ao Laboratório de Tecnologia dos Materiais por uso de suas instalações para o desenvolvimento desta pesquisa.

À CAPES e CNPq pelo apoio financeiro e incentivo à pesquisa científica e tecnológica.

Ao meu amigo Eudes Leonnán por sua parceria, amizade e companherismo nos momentos de conquistas e na correria diária.

Aos meus amigos e colegas de pesquisa que fizeram parte da minha formação e estão próximos de mim fazendo esta vida valer cada segundo.

E a todos que direta ou indiretamente contribuíram de alguma forma para o desenvolvimento deste trabalho.

A todos, meus sinceros agradecimentos.

RESUMO

As cerâmicas porosas têm sido utilizadas como filtros, suporte de membranas, refratários, biomateriais e componentes eletrônicos. Essa diversidade de aplicações está relacionada a um conjunto de propriedades como alto ponto de fusão, alta permeabilidade, baixa densidade, estabilidade química e elevada resistência mecânica. Assim, este trabalho consiste na preparação de cerâmicas porosas a partir da sinterização de misturas contendo argila *ball clay*, alumina, talco e chamote. Foram estudadas duas composições: C1 (argila *ball clay*, alumina e talco) e C2 (argila *ball clay*, alumina, talco e chamote). Inicialmente, a massa cerâmica C1 foi caracterizada por fluorescência de raios X, difração de raios X, análise térmica, tamanho de partículas e plasticidade. Para o desenvolvimento da composição C2, foi produzido um chamote a partir da queima da massa cerâmica C1 à 1175 °C, o qual foi caracterizado por difração de raios X e tamanho de partículas, e estudado nas seguintes percentagens: 10, 20, 30 e 40% em peso. A composição C1 foi conformada por prensagem e extrusão. A queima foi realizada em sete temperaturas: 1025, 1050, 1075, 1100, 1125, 1150 e 1175 °C. Para a composição C2, foi utilizado somente o processo de prensagem. A queima foi realizada em quatro faixas de temperatura: 1025, 1050, 1075 e 1100 °C. Posteriormente, as peças cerâmicas foram analisadas por difração de raios X e microscopia eletrônica de varredura. Foram avaliadas a retração linear, absorção de água, porosidade aparente e resistência mecânica. Ensaio de fluxo com água destilada foram realizados com os tubos da composição C1. Quanto aos resultados, a difração de raios X mostrou a presença de α -cordierita nas amostras C1 sinterizadas à 1175 °C. Essas amostras apresentaram os maiores valores de retração linear e de resistência mecânica. Os maiores valores de absorção de água e porosidade aparente foram encontrados nas amostras sinterizadas entre 1025 e 1100 °C. Já em relação as amostras da composição C2, os resultados indicaram que a adição do chamote favoreceu menor retração e baixos valores de resistência mecânica. As imagens obtidas por microscopia eletrônica de varredura permitiram a análise da evolução dos poros como também a identificação dos cristais hexagonais da fase α -cordierita (indialita). Foi observado um valor máximo de 41,1 L.h/m² após os ensaios de fluxo.

Palavras-chave: Argilas. Sinterização. Cordierita. Cerâmica porosa. Membranas.

Abstract

The porous ceramics have been used as filters, support of membranes, refractories, biomaterials and electronic components. This diversity of applications is related to a set of properties such as melting point, high permeability, low density, chemical stability and high mechanical strength. Thus, this work consists on preparation of porous ceramics from the sintering of mixtures containing *ball clay*, alumina, talc and chamotte. It were studied two compositions: C1 (*ball clay*, alumina and talc) and C2 (*ball clay*, alumina, talc and chamotte). Initially, C1 ceramic mass was characterized by X-ray fluorescence, X-ray diffraction, thermal analysis, particle size and plasticity. For the development of the composition C2, a chamotte was produced from the burning of the ceramic mass C1 at 1175 °C, which was characterized by X-ray diffraction and particle size, and studied in the following percentages: 10, 20, 30 and 40% by weight. The composition C1 was formed by pressing and extrusion. The firing was performed at seven temperatures: 1025, 1050, 1075, 1100, 1125, 1150 and 1175 °C. For the composition C2, only the pressing process was used. The firing was performed in four temperature ranges: 1025, 1050, 1075 and 1100 °C. Subsequently, the ceramic pieces were analyzed by X-ray diffraction and scanning electron microscopy. It were evaluated the linear retraction, water absorption, apparent porosity and mechanical resistance. Flow tests with distilled water were performed with the tubes of composition C1. As for the results, the X-ray diffraction showed the presence of α -cordierite (indialite) in samples sintered at 1175 °C. These samples presented the highest values of linear retraction and mechanical resistance. The highest values of water absorption and apparent porosity were found in sintered samples between 1025 and 1100 °C. Regarding the samples of composition C2, the results indicated that the addition of chamotte favored lower retraction and low values of mechanical resistance. The images obtained by scanning electron microscopy allowed the analysis of pore evolution as well as the identification of the hexagonal crystals of the α -cordierite phase. A maximum value of 41.1 L.h/m² was observed after the flow assays.

Keywords: Clays. Sintering. Cordierite. Porous ceramics. Membranes.

PUBLICAÇÕES

SOUZA, M. Y. M.; LIRA, H. L.; SANTANA, L. N. L. **Síntese de cordierita a partir de argila *ball clay*, alumina e talco.** In: 61° Congresso Brasileiro de Cerâmica (61° CBC). Gramado-RS 2017.

SOUZA, M. Y. M.; LIRA, H. L.; SANTANA, L. N. L. Cerâmica porosa – Incorporação de chamote em massas contendo *ball clay*, alumina e talco. **Revista Eletrônica de Materiais e Processos.** 2018. (Aceito para publicação).

LISTA DE FIGURAS

Figura 1 - Esquema da secção transversal de um sólido poroso.	18
Figura 2 - Técnicas de fabricação de cerâmicas porosas.	22
Figura 3 - Prensagem uniaxial de ação simples.	26
Figura 4 - Prensagem uniaxial de ação dupla	26
Figura 5 - Mecanismos de sinterização por fase sólida.	29
Figura 6 - Etapas da sinterização por fase líquida.	31
Figura 7 - Sistema ternário MgO-Al ₂ O ₃ -SiO ₂	32
Figura 8 - Morfologia das membranas.	39
Figura 9 - Fluxograma de execução das etapas experimentais.	45
Figura 10 - Representação esquemática do sistema de fluxo com escoamento tangencial.	52
Figura 11 – Padrões de difração de raios X das matérias-primas.	55
Figura 12 - Curvas de ATD e ATG da massa cerâmica C1.	58
Figura 13 – Padrões de difração de raios X das amostras C1.	59
Figura 14 – Imagens da cordierita sintetizada à 1175 °C obtidas por microscopia eletrônica de varreduras.	62
Figura 15 - Retração linear das amostras C1 após sinterização.	63
Figura 16 - Absorção de água e porosidade aparente das amostras C1 após sinterização.	64
Figura 17 – Imagens obtidas por microscopia eletrônica de varredura das superfícies de fratura das amostras sinterizadas (a) 1050 °C; (b) 1100 °C; (c) 1150 °C; (d) 1175 °C.	65
Figura 18 - Módulos de ruptura à flexão das amostras C1.	66
Figura 19 – Padrões de difração de raios X do chamote.	67
Figura 20 - Padrões de difração de raios X das amostras (a) C10, (b) C20, (c) C30 e (d) C40.	68
Figura 21 - Imagens obtidas por microscopia eletrônica de varredura das superfícies de fratura das amostras (a) C10 (b) C20 (c) C30 e (d) C40, sinterizadas à 1100 °C.	71
Figura 22 - Módulos de ruptura à flexão das amostras de todas as composições sem chamote (C0) e com chamote (C10, C20, C30 e C40).	72
Figura 23 - Retração linear dos tubos C1 após sinterização.	73
Figura 24 - Absorção de água e porosidade aparente dos tubos C1 após sinterização.	74

Figura 25 – Imagens obtidas por microscopia eletrônica de varredura das secções transversais dos tubos C1 sinterizados à (a) 1025 °C; (b) 1050 °C; (c) 1075 °C; (d) 1100 °C.	75
Figura 26 – Imagens obtidas por microscopia eletrônica de varredura das secções longitudinais dos tubos sinterizados à (a) 1025 °C; (b) 1050 °C; (c) 1075 °C; (d) 1100 °C.	76
Figura 27 - Fluxo de água destilada dos tubos C1 em função da temperatura.	77
Figura 28 - Sequência dos corpos de prova das amostras C1 obtidas por (a) prensagem e (b) extrusão em ordem crescente de temperatura de sinterização.....	78
Figura 29 - Diagrama de fases do sistema ternário da SiO ₂ -Al ₂ O ₃ -MgO.....	92
Figura 30 - Diagrama SiO ₂ -Al ₂ O ₃ -MgO.....	93

LISTA DE TABELAS

Tabela 1 - Composição das misturas (% por peso).....	47
Tabela 2 - Análise química (% em massa) das matérias-primas.....	54
Tabela 3 - Composição química da massa cerâmica C1.	55
Tabela 4 - Distribuição granulométrica e limites de Atterberg da massa cerâmica C1.	57
Tabela 5 - Análise de quantificação de fases cristalinas dos corpos de prova da composição C1. A – alumina; C – cordierita- α ; Cr – cristobalita; E – enstatita; H – hematita; Q – quartzo; S – espinélio; Sa – safirina.....	61
Tabela 6 - Distribuição de partículas do chamote.	67
Tabela 7 - Resultados das propriedades físicas das amostras referentes as composições sem chamote (C0) e com chamote (C10, C20, C30 e C40).	69
Tabela 8 - Dados obtidos a partir dos pontos no diagrama ternário.....	91
Tabela 9 - Valores \pm desvios médios referente as propriedades físicas e mecânicas dos corpos de prova prensados C1.....	94
Tabela 9 - Resultados das propriedades físicas das amostras sinterizadas.	94
Tabela 10 - Valores \pm desvios médios referente as propriedades físicas e mecânicas dos tubos C1.	95

SUMÁRIO

1 INTRODUÇÃO	13
2 REVISÃO BIBLIOGRÁFICA.....	15
2.1 Aspectos Gerais das Cerâmicas Porosas.....	15
2.2 Classificação dos Poros.....	16
2.3 Processos de Obtenção de Cerâmicas Porosas	19
2.3.1 Sinterização Parcial.....	19
2.3.2 Réplica	20
2.3.3 Fase Sacrificial	21
2.3.4 Espuma	21
2.4 Fabricação de Cerâmicas Porosas	23
2.4.1 Processos de Conformação	25
2.4.2 Sinterização	28
2.5 A Cordierita.....	31
2.6 Cerâmicas Porosas de Cordierita	33
2.6.1 Alguns Estudos Envolvendo Cerâmicas Porosas de Cordierita	34
2.7 Membranas.....	38
2.7.1 Aspectos Gerais das Membranas	38
2.7.2 Características Químicas e Estruturais	38
2.7.3 Propriedades de Transporte.....	39
2.8 Membranas Cerâmicas.....	40
2.8.1 Características Gerais.....	40
2.8.2 Tipos de Processos de Separação por Membranas Cerâmicas	41
2.8.3 Configurações de Membranas Cerâmicas	43
2.9 Considerações finais.....	44
3 MATERIAIS E MÉTODOS.....	45
3.1 Materiais.....	45
3.2 Metodologia	45
3.2.1 Caracterização das Matérias-primas.....	46
3.2.2 Formulação, Preparação e Caracterização das Massas Cerâmicas.....	46
3.2.3 Conformação e Sinterização dos Corpos de Prova	47
3.2.4 Caracterização Mineralógica, Física, Mecânica e Microestrutural	49
3.2.5 Análise de Fluxo com Água Destilada dos Tubos	51
4 RESULTADOS E DISCUSSÃO.....	54

4.1 Caracterização Química e Mineralógica das Matérias-primas.....	54
4.2 Caracterização Química, Física e Mineralógica da Massa Cerâmica C1	55
4.3 Caracterização Mineralógica dos Corpos de Prova Prensados da composição 1.....	58
4.4 Propriedades Físicas, Microestruturais e Mecânicas dos Corpos de Prova Prensados.....	63
4.5 Caracterização Física e Mineralógica da Composição 2	67
4.6 Propriedades Físicas, Microestruturais e Mecânicas dos Corpos de Prova Prensados.....	69
4.7 Propriedades Físicas, Microestruturais e Mecânicas dos Corpos de Prova Extrudados da Composição 1	73
4.8 Ensaio de Fluxo dos Tubos da Composição 1	76
4.9 Análise da Mudança de Coloração em Função da Temperatura de Queima dos Corpos de Prova.....	77
5 CONCLUSÕES	79
REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS	82
APÊNDICE	91

1 INTRODUÇÃO

As cerâmicas porosas têm sido amplamente utilizadas como filtros para gases e líquidos, suporte de membranas, blocos refratários, biomateriais e componentes eletrônicos. Essa diversidade de aplicações é consequência de algumas propriedades específicas, tais como: baixa densidade, condutividade térmica e calor específico, estabilidade térmica, alta permeabilidade, resistência mecânica e química (Vakifahmetoglu et al., 2016).

Durante a última década, grandes esforços vêm sendo realizados direcionados às pesquisas em processamento de cerâmicas porosas resultando em materiais com estrutura de poros controlada e propriedades aprimoradas (Ohji e Fukushima, 2012). No entanto, há ainda a necessidade de inovação nesta área, e pesquisas estão sendo feitas buscando novas composições e rotas de processamento, que permitam produzir cerâmicas porosas com diferentes morfologias e características (Vakifahmetoglu et al., 2016).

No campo das cerâmicas porosas, destacam-se as membranas cerâmicas que têm despertado o interesse de pesquisadores em virtude de suas propriedades únicas como resistência mecânica elevada, resistência a líquidos e gases corrosivos, e resistência a ambientes com elevada temperatura, além de apresentar baixo consumo de energia, facilidade de processamento e arranjos compactos (Armoa e Jr, 2011; Chaves et al., 2013; Das et al., 2016; Dong et al., 2006a; Nath, 2017; Rosa et al., 2006).

Diversos materiais cerâmicos são utilizados como matérias-primas para a fabricação de membranas cerâmicas, dentre eles o carbetto de silício, alumina, óxido de zircônio, óxido de titânio, sílica e compósitos de óxidos, porém esses materiais são de alto custo de fabricação (Jedidi et al., 2009; Silva et al., 2015b).

Portanto, buscando minimizar esses custos, pesquisas vêm destacando o uso de matérias-primas naturais na fabricação de cerâmicas porosas para serem utilizadas como membranas (Belibi Belibi et al., 2015; Bose e Das, 2013; Boudaira et al., 2016; Silva e Lira, 2006). Estas matérias-primas estão disponíveis em grande abundância na crosta terrestre e requerem o uso de temperaturas de sinterização menores em relação aos óxidos metálicos puros (Lorente-Ayza et al., 2015; Silva et al., 2015a). A região nordeste do Brasil dispõe desses recursos naturais que se

apresentam como opções economicamente viáveis devido ao baixo custo e a facilidade de processamento.

As formulações contendo argilas, talco e alumina podem apresentar composições químicas adequadas para a produção de cerâmicas porosas, além de promover a formação de minerais de grande interesse tecnológico após a queima. Dentre estes minerais, destaca-se a cordierita, um aluminossilicato de magnésio que apresenta algumas propriedades como baixo coeficiente de expansão térmica, baixa constante dielétrica, alta estabilidade mecânica, inércia química, alta refratariedade e resistência mecânica elevada (Ghitulica et al., 2007; Goren et al., 2006a). Este material vem despertando o interesse de vários pesquisadores em diversas aplicações industriais como suporte catalítico (Al-Harbi et al., 2015; Khabas et al., 2003), componentes eletrônicos (Labrincha et al., 2006; Njoya et al., 2016; Zhang et al., 2016), refratários (Acimovic et al., 2003; Zhang et al., 2011), isolantes térmicos (Naga et al., 2017) e membranas (Misrar et al., 2017; Silva e Lira, 2006).

Na literatura há estudos publicados sobre a fabricação de cordierita a partir da sinterização de misturas contendo argilas, talco e alumina. Estes materiais são adequados para produzir cordierita em virtude da presença dos óxidos necessários para a formação deste mineral que são SiO_2 , Al_2O_3 e MgO (García et al., 2010; Gökçe et al., 2011; Li et al., 2014; Njoya et al., 2016; Silva e Lira, 2006; Zhang et al., 2011).

Nesse sentido, é importante realizar novos estudos enfatizando o uso de matérias-primas naturais afim de investigar a potencialidade desses materiais na fabricação de cerâmicas porosas de alto desempenho mecânico, elevada refratariedade e estabilidade química.

Dentro deste contexto, buscando contribuir tanto nos aspectos científicos e tecnológicos, o objetivo do presente trabalho é produzir cerâmicas porosas a partir da sinterização de misturas contendo argila *ball clay*, alumina e talco, utilizando os processos de prensagem e extrusão.

2 REVISÃO BIBLIOGRÁFICA

2.1 Aspectos Gerais das Cerâmicas Porosas

As cerâmicas pertencem a um grupo de materiais caracterizados por ligações interatômicas fortes de caráter iônico ou covalente, característica estas que ditam suas excelentes propriedades, como elevada resistência a altas temperaturas e ambientes corrosivos, estabilidade química e excelente desempenho mecânico (William D. Callister, 2002).

A maioria das aplicações estruturais de materiais cerâmicos exigem a eliminação dos poros, já que estes atuam como defeitos para fratura e degradam a confiabilidade do material. Portanto, engenheiros e pesquisadores buscam sintetizar materiais de alta densidade para obter excelente desempenho mecânico (Ohji e Fukushima, 2012).

Embora, a maioria das aplicações tecnológicas envolvem cerâmicas densas, um número cada vez maior de aplicações que exigem cerâmicas porosas estão surgindo, especialmente para ambientes com elevadas temperaturas, sujeitos à desgaste extensivos e meios corrosivos (Studart et al., 2006). Tais aplicações incluem isolantes, filtros, membranas, blocos refratários, biomateriais e componentes eletrônicos (Hammel et al., 2014; Vakifahmetoglu et al., 2016).

As vantagens relacionadas ao uso das cerâmicas porosas se devem em princípio a um conjunto de propriedades específicas como alto ponto de fusão, baixo coeficiente de expansão térmica, baixa condutividade, alta permeabilidade, elevada área superficial, baixa densidade, elevada resistência mecânica e baixa constante dielétrica (Studart et al., 2006).

É importante mencionar que essas propriedades estão fortemente relacionadas a composição do material e os parâmetros estruturais como porosidade total, distribuição, tamanho e morfologia dos poros, conectividade, tortuosidade, área superficial específica e o efeito destes nas propriedades mecânicas (Barg et al., 2008; Nishihora et al., 2017). De fato, as diversas aplicações em que as cerâmicas porosas estão inseridas dependem desta relação.

Por exemplo, na fabricação de materiais isolantes é importante ter um grande número de poros fechados ou isolados. Esses poros possuem em seu interior ar ou

gases de baixa condutividade que constitui o poder isolante do material, e assim contribuem para a redução da condução de calor através do material, já que a redução da condutividade do material depende da fração volumétrica total de poros, bem como de seu formato. Entretanto, os poros presentes em um material dificilmente se acham completamente isolados uns dos outros, havendo conexões entre eles (Vivaldini et al., 2014).

Em materiais refratários, os principais requisitos exigidos são estabilidade em elevadas temperaturas e baixa condutividade térmica, características estas que podem ser governadas pelas características estruturais e morfológicas dos poros. Assim como nos materiais isolantes, nos materiais refratários, a condutividade térmica é significativamente afetada pela porosidade, tamanho, espessura e forma dos poros. A elevada porosidade nesses materiais pode acentuar sua capacidade de isolamento, no entanto, o desempenho mecânico pode ser reduzido (Hammel et al., 2014).

Em casos que envolve processos de separação, como nos filtros e membranas, a presença de poros abertos é primordial, já que estes poros determinam as propriedades de permeabilidade (Liu e Chen, 2014). Em especial, nas membranas cerâmicas, o tamanho do poro e a distribuição são os principais requisitos para a sua aplicação. Logo, a morfologia porosa da membrana define sua capacidade seletiva (Habert et al., 2006).

Na verdade, as estratégias de processamento bem controladas e diversificadas são essenciais para a produção de materiais cerâmicos de elevada porosidade com as propriedades desejadas no produto final (Vakifahmetoglu et al., 2016).

2.2 Classificação dos Poros

A classificação dos poros é um dos requisitos básicos mais importantes para a compreensão dos sólidos porosos, principalmente quando se trata em destinar esses materiais as suas devidas aplicações. Isto porque materiais que possuem poros com tamanhos e geometrias diferentes, reagem de maneiras diferentes sob condições distintas (Zdravkov et al., 2007).

Portanto, a geometria e o tamanho dos poros são alguns dos parâmetros mais importantes nas aplicações práticas dos materiais porosos. Nesse sentido, a União Internacional de Química Pura e Aplicada (1994), propôs uma forma de classificação geral dos poros em relação a geometria e o tamanho:

Geometria

Qualquer material sólido que contém cavidades, canais, interstícios podem ser considerados como poros, porém, em um contexto particular, uma definição mais restrita pode ser apropriada. Assim, ao descrever um sólido poroso, deve-se ter cuidado na escolha da terminologia, a fim de evitar a ambiguidade, já que cada poro se apresenta de uma forma diferente e provavelmente irá resultar em características distintas.

Na Figura 1, é possível analisar os tipos de poros presentes em um sólido poroso de acordo com sua disponibilidade para um líquido externo. Seguindo este ponto de vista, uma primeira categoria de poros são aqueles totalmente isolados de seus vizinhos, como na região (a), que são descritos como poros fechados. Eles influenciam propriedades macroscópicas como densidade aparente, resistência mecânica e condutividade térmica, mas são inativos em processos como fluxo de fluido e adsorção de gases.

Por outro lado, os poros que possuem um canal contínuo de comunicação com a superfície externa do sólido, como (b), (c), (d), (e) e (f), são descritos como abertos. Alguns podem ser abertos apenas em uma extremidade como (b) e (f), estes sendo descritos como poros “cegos”, ou seja, apresentam uma única saída. Outros podem apresentar aberturas em duas extremidades (através de poros), como em torno de (e). Os poros também podem ser classificados de acordo com a sua forma: podem ser cilíndricos abertos (c) ou “cego” (f), em forma oval com uma única saída (b) e em forma de fenda (d). Diferentemente da porosidade, existe a rugosidade, a qual está representada em torno de (g), e muitas vezes pode ser confundida com poros. Portanto, para fazer essa distinção, uma convenção simples e conveniente de que uma superfície rugosa não é porosa, é considerar se as irregularidades da superfície são mais profundas do que largas.

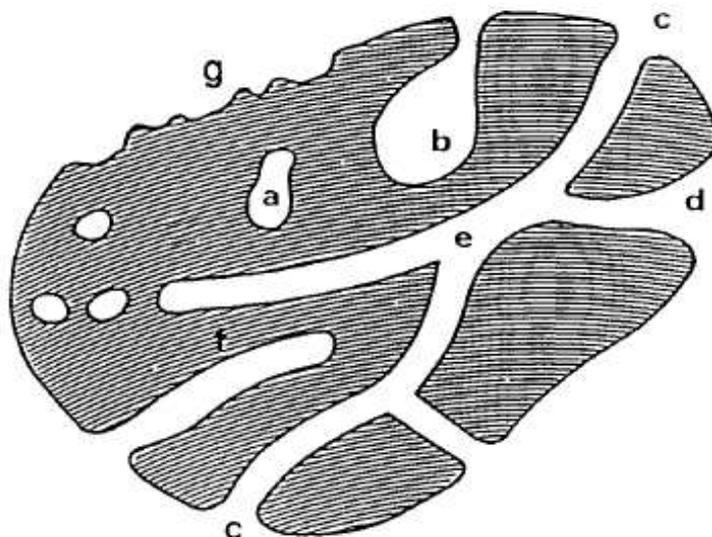


Figura 1 - Esquema da secção transversal de um sólido poroso (IUPAC, 1994).

Tamanho

Geralmente, os sólidos porosos são divididos em três classes:

- Microporosos: poros com tamanho menor que 2 nm;
- Mesoporosos: poros na faixa entre 2 e 50 nm de diâmetro;
- Macroporosos: poros mais largos com diâmetros maiores que 50 nm;

É importante mencionar que esta classificação abrange vários tipos de materiais. Entretanto, quando se trata de cerâmicas porosas voltadas à tecnologia de membranas, foco deste trabalho, o tamanho do poro dita o tipo de processo de separação, direcionando o material à sua devida aplicação.

Segundo Ohji e Fukushima (2012), esses processos podem ser classificados de acordo com o tamanho do poro em:

- Microfiltração: poros situados na faixa entre 0,1 e 10 μm ;
- Ultrafiltração: tamanhos entre 1 e 100 nm;
- Nanofiltração: poros entre 1 e 2 nm;
- Osmose inversa: menor que 1 nm;

Portanto, fica claro que esta classificação é de extrema importância na tecnologia de membranas, já que o mecanismo de separação geralmente é definido pelo tamanho do poro. Por exemplo, na filtração e microfiltração, a separação é feita mediante o peneiramento, ou seja, as partículas a serem separadas geralmente são maiores que os poros da membrana. Dessa forma, estas são retidas na superfície da membrana. Já na ultrafiltração, nanofiltração e osmose inversa, nos quais os poros são menores, a separação se dá através da afinidade entre as partículas e o solvente com os materiais porosos.

2.3 Processos de Obtenção de Cerâmicas Porosas

Os processos de fabricação de cerâmicas porosas foram sujeitos a muitas considerações para acomodar e satisfazer uma ampla gama de demandas de propriedades para aplicações específicas. Os parâmetros relativos à estrutura dos poros, como o tamanho, a forma, a distribuição e a conectividade, são características que resultam na funcionalidade da cerâmica porosa (Hammel et al., 2014).

Nesse sentido, existem alguns métodos que permitem produzir cerâmicas porosas com estrutura de poros controlada, os quais interferem diretamente no desempenho desses materiais. Esses métodos são classificados em quatro categorias: sinterização parcial, réplica, fase sacrificial e método da espuma. Estas técnicas estão apresentadas na Figura 2, os quais serão abordados de forma breve nesse tópico.

2.3.1 Sinterização Parcial

É o método mais convencional e frequentemente empregado para fabricar cerâmicas porosas. Nesse método, um pó é compactado e submetido a aquecimento até certas temperaturas antes da completa densificação do corpo cerâmico. As partículas do pó compactado são ligados uns aos outros devido aos processos de difusão ou evaporação-condensação influenciadas pelo tratamento térmico, e uma estrutura porosa homogênea se forma após a sinterização. O tamanho do poro, assim como a porosidade são controladas a partir do tamanho das

partículas das matérias-primas e pelo grau de sinterização (Eom et al., 2013; Ohji e Fukushima, 2012).

A sinterização é muitas vezes referida como uma etapa para a densificação, devido a combinação de temperatura e tempo que leva à diminuição da porosidade no corpo cerâmico. Normalmente, a temperatura aplicada durante a sinterização parcial corresponde a valores de cerca de 60 a 80% da temperatura de fusão do material (Nishihora et al., 2017). Esta técnica permite a produção de cerâmicas porosas de baixa porosidade (< 60%) com poros distribuídos uniformemente por toda a microestrutura (Studart et al., 2006).

A maior vantagem relacionada a este método é o uso de matérias-primas naturais como as argilas, e principalmente a queima em baixas temperaturas de processamento (Benhammou et al., 2016). Portanto, é uma técnica de baixo custo e bem efetiva no sentido de produzir cerâmicas porosas com porosidade e resistência mecânica.

Esta técnica foi utilizada no desenvolvimento deste trabalho e será abordada mais extensivamente na Seção 2.5.3.

2.3.2 Réplica

Neste método, uma esponja polimérica, geralmente poliuretano, é impregnada em uma suspensão cerâmica até o preenchimento dos poros internos, sendo que após a secagem, mediante um tratamento térmico, que visa à queima, para eliminação do material orgânico (esponja) e a sinterização do material cerâmico, resulta em um material com porosidade aberta e microestrutura semelhante à esponja precursora (Huanca e Nunes, 2016).

Este método é voltado para a produção de cerâmicas macroporosas de alto volume de porosidade que apresente poros largos ou canais interconectados. Geralmente, o método da réplica permite a produção de materiais cerâmicos com porosidade maior que 90% com poros que variam de 100 µm a vários milímetros. O principal problema é a baixa resistência mecânica em virtude da quebra e formação de trincas durante a pirólise (Ohji e Fukushima, 2012).

2.3.3 Fase Sacrificial

As cerâmicas porosas podem ser obtidas a partir de misturas de quantidades de agentes porogênicos com um pó cerâmico, evaporando-os ou queimando-os antes ou durante a sinterização, resultando em uma estrutura porosa. Geralmente, esses agentes formadores de poros (fase sacrificial) mais frequentemente utilizados são polímeros, fibras orgânicas, amido de batata, grafite, carvão vegetal, ácido salicílico, parafina líquida, etc. Neste método, a porosidade é controlada pela quantidade de agentes porogênicos. A forma e o tamanho dos poros também são afetados pela forma e tamanho dos agentes formadores de poros, respectivamente (Ohji e Fukushima, 2012).

Com esta técnica é possível alcançar tamanhos de poros de 1 a 700 nm e porosidade de 20 a 90%. As microestruturas obtidas por esta técnica refletem diretamente o padrão da fase sacrificial (Barg et al., 2008).

2.3.4 Espuma

As cerâmicas porosas são produzidas a partir da incorporação de ar em uma suspensão ou meio líquido, que é posteriormente configurado para manter a estrutura de bolhas do ar criado. Na maioria dos casos, as espumas consolidadas são posteriormente sinterizadas em elevadas temperaturas para obter cerâmicas porosas de alta resistência mecânica. A porosidade total da cerâmica é diretamente proporcional a quantidade de gás incorporada na suspensão ou meio líquido durante o processo de formação da espuma (Stuart et al., 2006).

Através dessa técnica podem ser obtidas porosidade elevada de até 97%. Este método é de baixo custo e apresenta alta flexibilidade em termos de composição química e ajuste da microestrutura final. Os principais aspectos são os mecanismos de estabilização e consolidação. No entanto, as espumas são sistemas termodinamicamente instáveis em que processos como a drenagem da fase líquida e a formação de bolhas de gás levam à degradação e a destruição final da espuma (Barg et al., 2008).

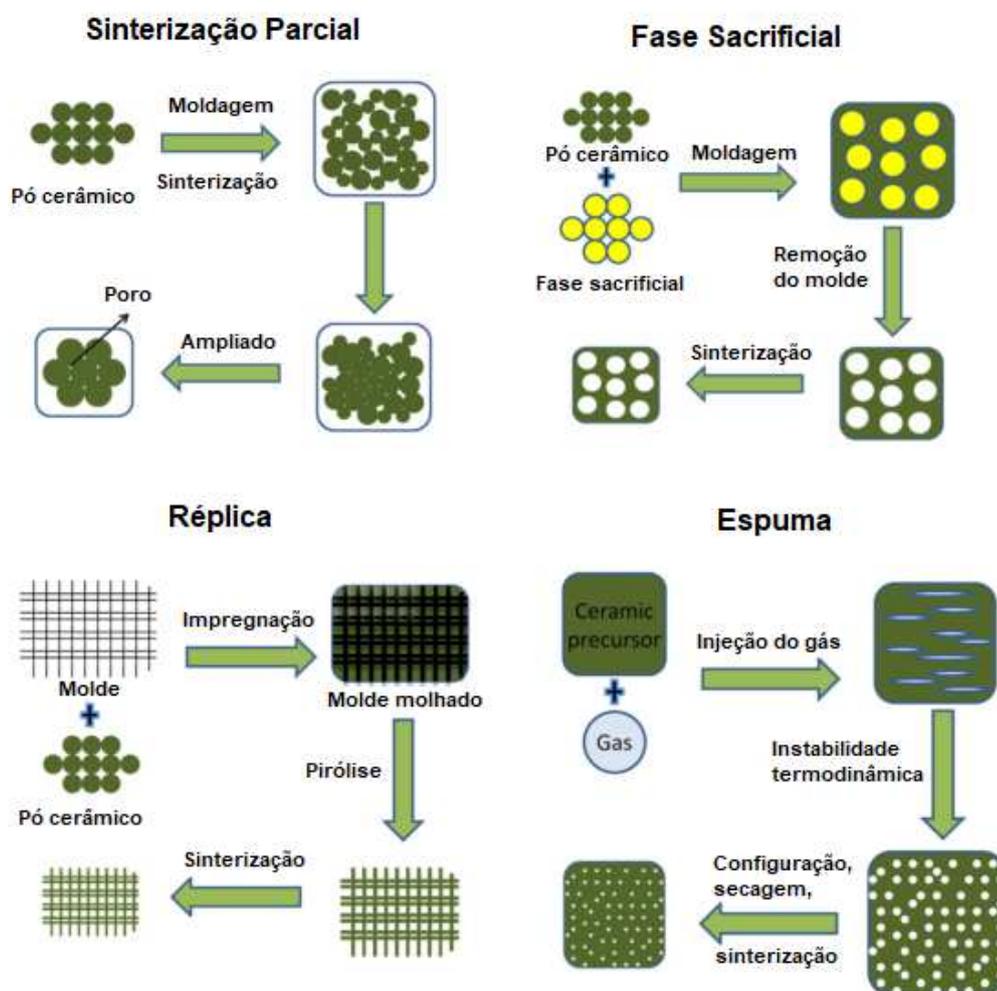


Figura 2 - Técnicas de fabricação de cerâmicas porosas (Adaptado de Eom et al, 2013).

À exceção da sinterização parcial, estes métodos podem exigir o uso de precursores caros como solventes orgânicos e outras substâncias porogênicas. Portanto, na tecnologia de separação por membranas, a sinterização de pós cerâmicos seguida de processos de conformação mais simples, como a prensagem ou a extrusão pode se apresentar uma opção economicamente viável (Lorente-Ayza et al., 2015).

Atualmente, o principal foco de preocupação no desenvolvimento destas membranas é otimizar os custos de produção, encontrando matérias-primas naturais a preços mais competitivos, além de processos de produção mais eficientes, como a extrusão (Silva e Lira, 2006).

2.4 Fabricação de Cerâmicas Porosas

Neste tópico, serão abordados as matérias-primas utilizadas para o desenvolvimento deste trabalho que foram essencialmente argila e alumina.

Várias matérias-primas podem ser utilizadas na fabricação de cerâmicas porosas, dentre estas:

Argila *Ball Clay*

As argilas são materiais naturais que vêm despertando o interesse de cientistas na área das cerâmicas porosas, pois são materiais de baixo custo encontrados facilmente na natureza e necessitam de baixas temperaturas de sinterização quando comparadas com os óxidos metálicos puros (Lorente-Ayza et al., 2015).

As *ball clays* são usadas em cerâmica branca onde conferem elevada plasticidade e resistência mecânica à “massa cerâmica”, isto é, uma mistura de caulim, *ball clays*, feldspato e quartzo em partes aproximadamente iguais. São compostas essencialmente por caulinita lamelar, de perfil hexagonal, muito fina, isto é, a espessura das placas hexagonais; com teores variáveis de ilita, mica, quartzo e montmorilonita, e também teores apreciáveis de matéria orgânica. São geralmente de granulometria mais fina, tendo geralmente mais de 70% em massa de partículas de diâmetro equivalente inferior a 2 μ m, e são geralmente tomadas como padrões de elevada plasticidade e de resistência mecânica a cru (Santos, 1989).

Essas argilas, como já destacado, são constituídas por caulinitas secundárias e matéria orgânica, sendo muito plásticas e quando submetidas a elevadas temperaturas queimam com cores brancas, podendo ser utilizadas na fabricação de cerâmica branca e materiais refratários (Cartaxo et al., 2016), como também na fabricação de cerâmicas porosas (Almandoz et al., 2004; Das et al., 2016; Silva e Lira, 2006).

Óxido de Alumínio

O óxido de alumínio ou alumina (Al_2O_3) ocorre na natureza como componente de muitas rochas e minerais, e também como óxido ou hidróxidos. O mineral corundum ou alumina- α ocorre na natureza disseminados em rochas (calcários e dolomitos metamórficos, gnaisses e nas zonas de contato entre rochas magmáticas e rochas carbonatadas) na forma de cristais hexagonais de cores cinza, verde, avermelhada ou amarela. Apresenta dureza 9 na escala de Mohs (na escala de Ridgway-Ballard-Bailey, em que o diamante tem dureza, 15, corundum tem 12) e uma massa específica de $3,98 \text{ g/cm}^3$ (Santos, 1989). Tais propriedades tornam possível o emprego da alumina na confecção de materiais abrasivos, refratários, catalisadores e cerâmicos (Constantino et al., 2002).

Geralmente, este óxido é preparado e extraído do minério bauxita pelo processo Bayer. A alumina produzida por esse processo apresenta elevada pureza (99,5 % Al_2O_3) e um alto custo de fabricação. É utilizado industrialmente como material abrasivo e refratário devido ao elevado ponto de fusão ou amolecimento ($2040 \text{ }^\circ\text{C}$), à elevada resistência à corrosão química, à abrasão em várias temperaturas e pela constância de volume em diversas temperaturas (Santos, 1989).

Além disso, a alumina é adicionado em formulações que visam corrigir o teor de Al_2O_3 na fabricação de cerâmicas porosas de cordierita que é de aproximadamente 14%, principalmente quando os precursores ou matérias-primas são argilas que apresentam elevados teores de SiO_2 .

Talco

É um filossilicato de magnésio hidratado $3\text{Mg}_4\text{SiO}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$ pertencente ao grupo dos argilominerais de estrutura 2:1, ou seja constituídos de duas folhas tetraédricas formados por átomos de silício e oxigênio (siloxano) envolvendo uma folha octaédrica formada por magnésio e hidroxila (brucita). É utilizado em cosméticos, como cargas em plástico, na indústria automobilística, usos farmacêuticos e principalmente em cerâmica e papel (Coelho e Santos, 2007a, 2007b).

O talco apresenta uma grande potencialidade na fabricação de cerâmicas porosas de cordierita em virtude do alto teor de MgO necessário para a obtenção

deste mineral que é de aproximadamente 35%. Alguns estudos enfatizam o uso do talco em suas formulações para obtenção de cerâmicas de cordierita (Benhammou et al., 2016; Gökçe et al., 2011; Njoya et al., 2016).

2.4.1 Processos de Conformação

A etapa de conformação é de extrema importância e essencial no processamento de cerâmicas porosas, uma vez que as características finais desses materiais, em termos de conformidade, estrutura e propriedades, são alcançadas. Dessa forma, é necessário entender os tipos de processos de conformação que se deve utilizar para que o objetivo seja alcançado (Freitas et al., 2009). Existem dois tipos de conformação: prensagem e extrusão.

Prensagem

A prensagem é a operação de conformação baseada na compactação de um pó granulado contido no interior de uma matriz rígida ou de um molde flexível, através da aplicação de pressão. A operação compreende três etapas ou fases: preenchimento da cavidade do molde, compactação da massa e extração da peça cerâmica (Albaro, 2001; Amorós, 2000).

Existe a prensagem uniaxial que pode ser subdividida em duas categorias: prensagem uniaxial de ação simples (Figura 3) e dupla (Figura 4).

Ação Simples

A compactação do pó se realiza em uma matriz rígida, por aplicação de pressão na direção axial, através de punções rígidos. A pressão é aplicada através do punção superior (a), que é introduzido na cavidade que contém a massa, formada pela matriz e pelo punção inferior, os quais permanecem imóveis nesta etapa (b). Uma vez compactada, o punção superior é retirado (c) e o deslizamento do punção inferior permite a extração da peça do molde. Essa técnica está apresentada na Figura 3.

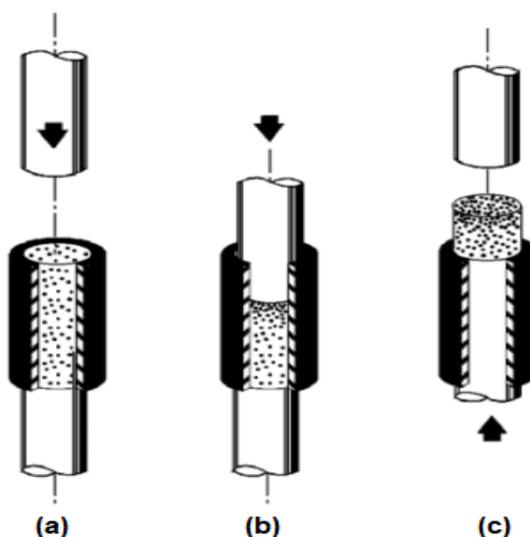


Figura 3 - Prensagem uniaxial de ação simples (Amorós, 2001).

Ação Dupla

Nestes casos, tanto o punção superior como o inferior exercem pressão (a) sobre a massa contida no molde. Uma vez finalizada a aplicação da carga (b), a retirada do punção superior e o movimento ascendente do punção inferior permitem a extração da peça (c). É empregada quando a espessura da peça é muito grande para o emprego da técnica de ação simples.

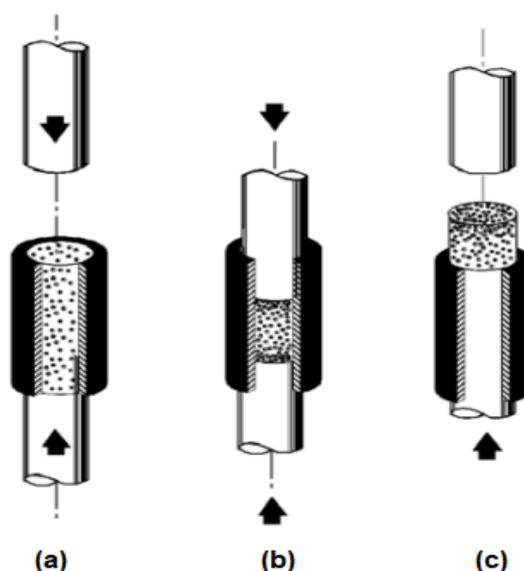


Figura 4 - Prensagem uniaxial de ação dupla (Amorós, 2001)

Extrusão

Na extrusão, uma mistura de pós na forma de uma massa plástica com teor de umidade e plasticidade adequada para extrusão, é compactada, moldada e forçada no interior de uma extrusora. A massa é homogeneizada junto com outros aditivos com auxílio de um parafuso sem fim que exerce pressão suficiente para transportar a mistura homogênea até a bolquilha. Na liberação da peça a partir da extrusora, a matriz deve gerar a secção transversal necessária para permitir o fluxo uniforme em toda a secção transversal e garantir uma superfície lisa (Rahaman, 2007).

Os principais fatores que afetam o rendimento do processo e a qualidade dos produtos finais nesse processo são (Wieck e Duailibi, 2013):

- Composição e preparação das massas cerâmicas: geralmente as misturas são compostas por uma ou mais tipos de argilas. A proporção desses materiais determinam as condições de plasticidade do material a ser extrudado. Argilas com composições mineralógicas diferentes apresentam plasticidades diferentes, mesmo apresentando o mesmo teor de água. Após a determinação da proporção dos componentes, é preciso garantir que a massa cerâmica, assim como as demais variáveis de preparação e o teor de umidade sofra a menor variação possível.
- Plasticidade: essa propriedade é considerada como a capacidade de uma determinada argila ou massa, deforma-se sob a ação de uma força externa, mantendo a deformação após a remoção da força aplicada. O teor de água e matéria orgânica adicionado influencia o nível de plasticidade alcançado, sendo específico para cada argila. É evidente que a adição de água tem um limite, para cada argila, o qual é definido como “Limite de Liquidez”. A quantidade de água a ser adicionada depende do tipo de argila utilizado, das peças a serem produzidas e do equipamento utilizado.
- Moldes (bolquilhas): são os componentes responsáveis pela conformação final dos produtos. Assim como os embudos, devem ser dimensionados para cada tipo de produto, levando-se em consideração a massa, a umidade de extrusão e o equipamento utilizado.

- Tipo de extrusora: a extrusora é o equipamento responsável pelo transporte, compactação e extrusão da massa cerâmica, durante este processo o fluxo deve ser o mais constante possível para garantir a qualidade dos produtos. Portanto, é necessária atenção às condições da extrusora como: rugosidade e desgaste da hélice, rugosidade da camisa, corta barros e o vácuo.

A extrusão é uma técnica de conformação produtiva. É aplicada para produção em grande escala, mas também pode ser feita em escala laboratorial. Peças como tijolos e telhas, materiais refratários, porcelanas elétricas, substratos magnéticos e elétricos, tubos cerâmicos, membranas tubulares, assim como, substratos para membranas tubulares podem ser produzidos por extrusão (Silva, 2009).

A maioria das membranas comerciais são produzidas por prensagem e principalmente por extrusão, no entanto, a extrusão se destaca porque se apresenta mais adequada para configurações simples, como o formato tubular (Lorente-Ayza et al., 2015).

2.4.2 Sinterização

A maioria dos materiais cerâmicos devem ser sinterizados para produzir uma microestrutura com propriedades desejáveis. O uso difundido do processo de sinterização tem conduzido a uma variedade de enfoques. Um dos enfoques para desenvolver e entender a sinterização, é conectar as mudanças no comportamento durante a sinterização às variáveis de controles e processos. Alguns parâmetros são importantes na sinterização como a morfologia apresentada durante a mudança, a evolução do tamanho dos poros, o crescimento do grãos e a densificação como função do tempo e temperatura. Além disso, fatores como o empescoamento, mudança na área superficial, retração, energia superficial, área de contato e principalmente difusividade das partículas, devem ser levadas em consideração nesse processo (Rahaman, 2007). De uma forma mais ampla, a sinterização pode ser classificada em duas modalidades:

Sinterização por Fase Sólida

A sinterização em estado sólido de materiais policristalinos ocorre por difusão de átomos (ou íons) ao longo de caminhos que definem o mecanismo de sinterização. É importante mencionar que o material é transportado a partir de regiões de elevado potencial químico (a fonte do material) para regiões de menor potencial químico (as regiões dos pescoços). Existem ao menos seis diferentes tipos de mecanismos de sinterização em materiais policristalinos (Rahaman, 2007). Esses mecanismos estão representados na Figura 5.

Todos esses mecanismos conduzem a união e o crescimento dos pescoços entre as partículas, de modo que a força do pó compactado aumenta durante a sinterização. No entanto, apenas alguns mecanismos conduzem a retração ou densificação, e comumente é feita uma distinção entre os mecanismos de densificação e não densificação. A difusão superficial, difusão da rede das superfícies das partículas para o pescoço, e o transporte de vapor (mecanismos 1, 2 e 3) conduzem ao empescoçamento sem densificação e são considerados mecanismos de não densificação. A difusão no contorno de grão e a difusão da rede a partir do contorno de grão para o poro (mecanismos 4 e 5) são os mecanismos de densificação mais importantes em cerâmicas policristalinas. A difusão a partir do movimento de deslocamento (mecanismo 6) também leva ao empescoçamento seguido de densificação, mas é comumente observado na sinterização de pós metálicos.

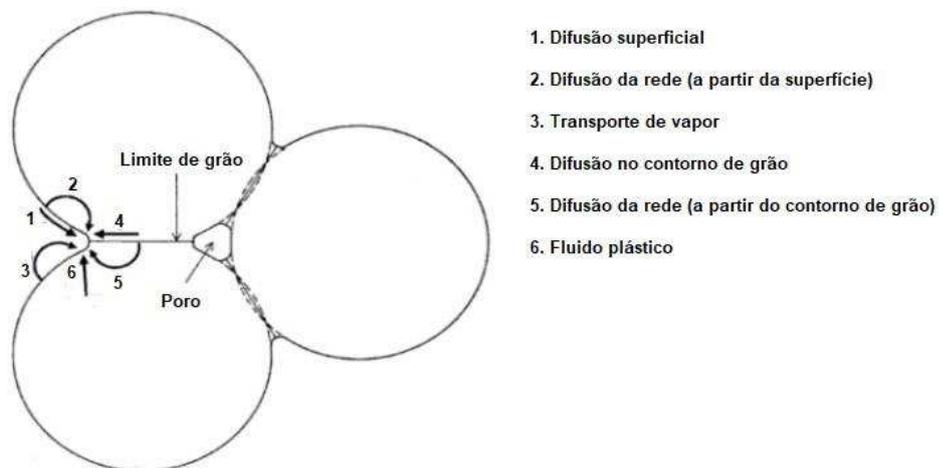


Figura 5 - Mecanismos de sinterização por fase sólida (Adaptado de Rahaman, 2006).

Sinterização por Fase Líquida

A sinterização por fase líquida acontece devido à formação de líquido na estrutura. Este líquido pode ser causado pela fusão de um dos componentes do sistema ou pode ser o resultado de uma reação entre, pelo menos, dois dos componentes do sistema. A ocorrência deste líquido tem papel decisivo na determinação dos mecanismos de sinterização e do aspecto final da estrutura sinterizada. A sinterização com fase líquida é um modo bastante atraente de consolidação de materiais dificilmente sinterizáveis por fase sólida e para a obtenção de materiais compósitos (Brito et al., 2007).

Segundo Rahaman (2006), nesse tipo de sinterização, a fase líquida formada se espalha pela superfície do sólido separando as partículas por uma ponte de líquido. As fricções entre as partículas são reduzidas, se rearrajando mais facilmente sob a pressão compressiva exercida pelo líquido. A sinterização por fase líquida é geralmente considerada como o procedimento que ocorre em três estágios e está representada na Figura 6.

Rearranjo e Redistribuição da Fase Líquida

Com o aumento da temperatura, uma limitada sinterização em estado sólido pode ocorrer em alguns sistemas priorizando a formação de fase líquida. Com a formação de mais fase líquida, a pressão exercida pode ser significativamente suficiente para causar um fluxo rápido de líquido e promover o rearranjo das partículas enquanto a viscosidade do sistema for baixa. A pressão exercida irá favorecer o fluxo de líquido das regiões com poros largos para as regiões com poros menores, e conseqüentemente para o interior do sólido. Dessa forma, levando a coalescência dos poros maiores em detrimento do fechamento dos poros menores.

Fenômeno de Solução-precipitação

Na medida em que a densificação pelo rearranjo diminui, os efeitos dependentes da solubilidade sólida no líquido e a difusividade no líquido dominam, dando origem a segunda etapa chamada de precipitação-solução. O sólido dissolve-

se nas interfaces sólido-líquido com maior potencial químico, difundindo através do líquido e precipitando sobre as partículas em outros locais de menor potencial químico.

Densificação Final

O estágio final da sinterização é controlado pelo processo de densificação do sólido. O processo é bastante lento em virtude da maior distância de difusão na estrutura grosseira e no esqueleto rígido no contato entre os grãos sólidos. Nesse processo, os poros residuais se tornam maiores caso contenham gases presos no interior, levando ao inchamento da peça cerâmica. O líquido pode ser liberado das regiões mais eficientemente empacotadas e pode fluir para o interior de poros isolados, levando a densificação ou a expulsão parcial do líquido da partícula.

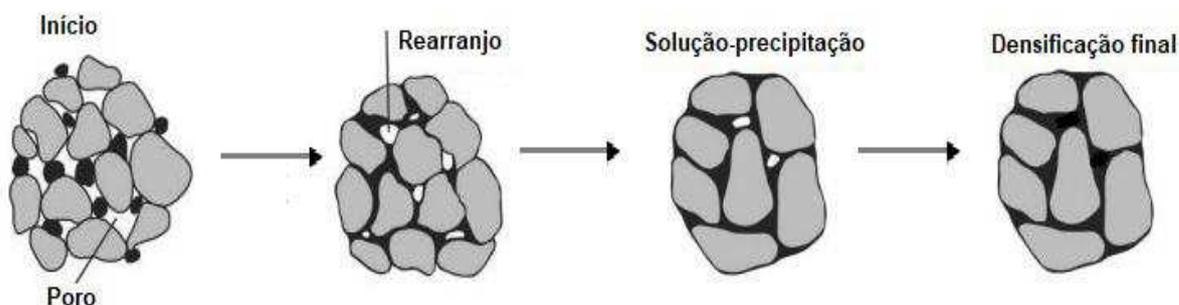


Figura 6 - Etapas da sinterização por fase líquida (Adaptado de Rahaman, 2006).

2.5 A Cordierita

Durante a sinterização de um material cerâmico, existem reações que definem a microestrutura e as propriedades finais do material favorecida pelas transformações de fases mineralógicas e formação de fase líquida (Oikonomopoulos et al., 2015; Souza et al., 2013).

De uma forma geral, a sinterização possui papel importante na formação de novas fases mineralógicas a partir da decomposição ou reorganização das estruturas dos argilominerais, modificando as propriedades físicas das peças

cerâmicas (Santos et al., 2017) como densidade, retração linear, porosidade aparente, absorção de água e principalmente resistência mecânica.

Argilas são materiais complexos em termos de composição química, e a sinterização destes materiais favorece a formação de novas fases cristalinas de grande interesse tecnológico. Dentre estes, destaca-se a cordierita.

A cordierita é um aluminossilicato que apresenta algumas propriedades como baixo coeficiente de expansão térmica, baixa constante dielétrica, alta estabilidade mecânica, inércia química, alta refrateriedade e resistência mecânica elevada (Ghitulica et al., 2007; González-Velasco et al., 2005; Goren et al., 2006a).

É uma das fases de silicato de alumínio e magnésio mais importantes do sistema ternário $\text{MgO-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ (Nath et al., 2014), existindo em conjunto com outras fases como mullita, safirina, protoenstatite, espinélio, forsterita e tridimita, como mostrado na Figura 7.

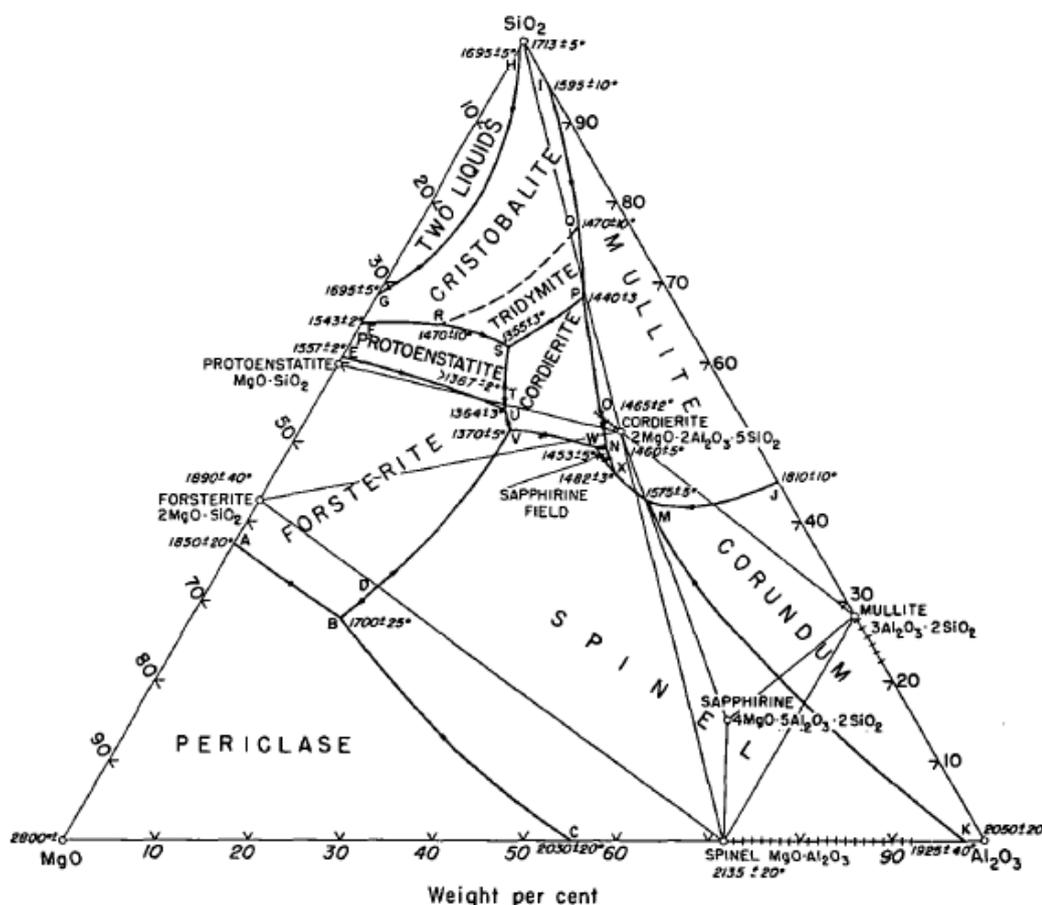


Figura 7 - Sistema ternário $\text{MgO-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ (Schreyer e Schairer, 1961)

É um mineral que apresenta três formas polimórficas naturais: a fase α -cordierita (indialita) possui simetria hexagonal e sua cristalização ocorre entre 1000-1300 °C; a fase β -cordierita é ortorrômbica e cristaliza-se abaixo de 950 °C; e a fase metastável μ -cordierita que é obtida somente sob condições especiais abaixo de 925 °C (Miyashiro et al., 1955). Especificamente, indialita é o nome utilizado para designar a fase α -cordierita sintética que apresenta rede pseudo-hexagonal devido as impurezas não eliminadas durante o processo de sinterização, assim como ocorre nas cordieritas comerciais (González-Velasco et al., 2005).

Misturas contendo argila *ball clay*, alumina e talco, apresentam composições químicas adequadas para a obtenção de cordierita. Na literatura há estudos publicados sobre a fabricação de cordierita a partir da sinterização de misturas contendo argilas e talco, adicionado de alumina pura (García et al., 2010; Gökçe et al., 2011; Li et al., 2014; Njoya et al., 2016; Silva e Lira, 2006; Zhang et al., 2011). Estes materiais são adequados para produzir cordierita em virtude da presença dos óxidos necessários para a formação deste mineral que são SiO₂, Al₂O₃ e MgO.

2.6 Cerâmicas Porosas de Cordierita

As cerâmicas porosas de cordierita têm recebido grande atenção como materiais estruturais, suportes catalíticos, isolantes térmicos, entre outros. Para essas aplicações, a combinação de porosidade elevada e baixo peso dos componentes são exigidos em conjunto com estabilidade mecânica até temperaturas elevadas, os quais podem provaler em uso (Gass et al., 2015).

Cerâmicas de cordierita estão sendo obtidas a partir de rotas sintéticas, dentre elas estão a técnica sol-gel (Menchi e Scian, 2005), recristalização vítrea (Hwang e Wu, 2001), método Pechinni (Nadafan et al., 2015), co-precipitação (Awano et al., 1992) e a sinterização em fase líquida (Jean e Gupta, 1992). No entanto, esses métodos requerem a utilização de precursores caros ou em alguns casos, altas temperaturas de processamento (Kuscer et al., 2017).

Portanto, na tentativa de reduzir os custos de produção, a sinterização em estado sólido se apresenta como uma opção interessante devido a simplicidade de processo e a utilização de matérias-primas naturais para a obtenção de cordierita (Benhammou et al., 2016).

2.6.1 Algumas Estudos Envolvendo Cerâmicas Porosas de Cordierita

Na literatura há alguns estudos publicados sobre a fabricação e obtenção de cerâmicas porosas de cordierita a partir de matérias-primas naturais, utilizando o processo de sinterização, avaliando a possibilidade dos materiais obtidos em algumas aplicações, como:

Suportes Catalíticos:

Khabas et al (2003) e colaboradores produziram suportes catalíticos de cordierita a partir da sinterização de formulações contendo argilas, alumina e magnésia. Os suportes catalíticos foram produzidos experimentalmente utilizando-se temperaturas de 1250, 1300 e 1350 °C. Os produtos na forma de blocos passaram a ser produzidos e comercializado em uma base piloto no G. K. Boreskov Institute of Catalysis.

Em estudos realizados por Al-Harbi et al (2015), estruturas porosas do tipo “honeycomb” de cordierita foram fabricadas a partir da sinterização de misturas contendo caulinita e magnesita em temperaturas próximas de 1300 °C. As peças produzidas são compostas de 121 células com área de 1 mm² e parede com espessura de 300 µm, os quais refletem em uma área frontal de 54% e uma relação área da superfície/volume de 21,5 cm⁻¹. Segundo esses pesquisadores, a área frontal total e a área da superfície da parede/relação do volume do conversor são os parâmetros que indicam a qualidade do conversor catalítico. Adicionalmente, as peças apresentaram elevada porosidade e coeficiente de expansão térmica em torno de $2,1 \times 10^{-6} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$, se apresentando próximo ao da cordierita natural. Ainda, foi observado resistência ao choque térmico em torno de 350 °C. Os resultados obtidos indicaram a potencialidade deste material como suporte catalítico na filtração de gases automotivos.

Refratários:

Em estudos realizados por Acimovic et al. (2003), foi possível a produção de cerâmicas de cordierita a partir de composições contendo matérias-primas de baixo

custo como caulim, talco, feldspato e sepiolita. As formulações estudadas apresentaram coeficientes de expansão térmica de $2,7 \times 10^{-6}$ e $2,65 \times 10^{-6} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$. As cerâmicas obtidas apresentaram potencial para serem aplicadas como refratários.

Zhang et al (2011) obtiveram cerâmicas porosas de cordierita com elevada porosidade que variaram de 30 a 50%, e um bom desempenho mecânico com módulos de ruptura à flexão variando de 12 a 23 Mpa, além de coeficientes de expansão térmica que variaram de $2,90\text{-}3,02 \times 10^{-6} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$. Segundo esses pesquisadores, às excelentes propriedades obtidas com esses gradientes porosos, no que se refere a resistência mecânica e ao choque térmico, a ausência de rachaduras e a baixa retração, pode indicar esses materiais a futuras aplicações em diversas áreas, incluindo filtros, suportes catalíticos e refratários, especialmente em condições de elevada temperatura.

Rao e Manohar (2016), fabricaram cerâmicas porosas de cordierita com base em misturas contendo caulim, alumina e talco. A sinterização ocorreu numa faixa de temperaturas entre 1050 e 1350 $^\circ\text{C}$. Foi observado que as peças cerâmicas apresentaram excelente desempenho mecânico quando submetidos a tensões mecânicas em condições de elevada temperatura. Os resultados indicaram a possibilidade de uso em materiais refratários.

Componentes Eletrônicos:

Labrincha et al. (2006) avaliaram a potencialidade de um lodo de alumínio gerado por indústrias de anodização na produção de cerâmicas de cordierita. O resíduo foi incorporado junto com diatomita e talco, e sinterizado em temperaturas entre 1300 e 1380 $^\circ\text{C}$. Esses pesquisadores estudaram o comportamento elétrico com as mudanças microestruturais e a evolução cristalina das amostras. As composições estudadas permitiram a obtenção de cordierita a partir de 1300 $^\circ\text{C}$. As mudanças microestruturais ocorreram de forma que foi possível a formação de alguns poros isolados. A presença desses poros influenciaram diretamente nas propriedades elétricas das peças cerâmicas. As medidas de resistividade se apresentaram entre $1,10 \times 10^5$ e $5,12 \times 10^4 \text{ } \Omega\text{cm}$. Esses autores conseguiram obter resultados similares aos produtos comerciais, confirmando assim a potencialidade desse material na produção de materiais elétricos.

Em estudos realizado por Njoya et al (2016), foi possível a fabricação de cerâmicas porosas de cordierita a partir de composições contendo caulim, bauxita e talco. As misturas foram sinterizadas entre 1200 e 1400 °C e avaliadas quanto as características físicas, mecânicas e microestruturais. As amostras com maior teor de talco e sinterizadas à 1300 °C apresentaram o melhor desempenho mecânico e elétrico. Foi observado uma resistência mecânica máxima de 30 MPa, constantes dielétricas entre 20,26 e 2,80 na temperatura ambiente e perda dielétrica entre 0,1316 e 0,002. Esses materiais foram considerados promissores para aplicações eletrônicas.

Compósitos de cordierita-mulita-alumina produzidas através da sinterização de misturas contendo alumina, talco, quartzo, caulinita e feldspato foram estudados por Zhang et al. (2016). Esses pesquisadores avaliaram as propriedades mecânicas e elétricas desse compósito. As cerâmicas obtidas e sinterizadas entre 950 e 1500 °C, apresentaram baixo coeficiente de expansão térmica ($3,2-4,2 \times 10^{-6} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$), elevado valores de resistência mecânica (90-120 MPa) e de módulos de Young (100 GPa), e resistência ao choque térmico em torno de 350 °C. Além disso, as propriedades dielétricas avaliadas se apresentaram estáveis em altas temperaturas com baixos fatores de perdas dielétricas (0,02-0,04). Dessa forma, as cerâmicas apresentaram grande potencial para futuras aplicações em componentes eletrônicos, como circuitos integrados densos ou materiais dielétricos.

Membranas:

Alguns estudos publicados estão indicando a cordierita como um novo precursor na produção de membranas de baixo custo obtidas a partir da sinterização de matérias-primas naturais e conformadas por processos mais eficientes como a extrusão (Silva e Lira, 2006).

Dong et al. (2006) prepararam membranas assimétricas microporosas de cordierita de baixo custo obtidas por sinterização de cinzas residuais e carbonato de magnésio. O diâmetro médio dos poros se apresentaram entre 3,6 – 6,4 μm e foi observado que o tamanho do poro aumenta com a elevação da temperatura de sinterização (1050 – 1200 °C). Porém a porosidade aparente reduz bastante nessa faixa de temperatura para aproximadamente 37%. Quanto a aplicação, verificaram

que o fluxo de nitrogênio foi elevado e proporcional a temperatura de sinterização, apresentando em média $(7,52 - 9,82) \times 10^4 \text{ m}^3 \text{ m}^{-2} \text{ h}^{-1} \text{ MPa}^{-1}$. Esse elevado fluxo permite que essas membranas sejam aplicadas em processos de separação como na pre-purificação de gás quente contido em tubulações.

Silva e Lira (2006) prepararam membranas tubulares de cordierita a partir da sinterização de matérias-primas naturais como argila, talco e chamote, estudando o efeito de quatro faixas de temperatura de sinterização (1150, 1200, 1250 e 1280°C) nas características das membranas. Identificaram a presença de cordierita nas quatro faixas de temperatura, assim como aumento no diâmetro médio dos poros (1,4 a 4,1 μm) e diminuição na porosidade (28,7 a 24,3 %) com o aumento da temperatura. O fluxo médio das membranas foi maior nas sinterizadas a 1280°C, apresentando 587 Kg/h.m² seguido de 1250 °C, 1200 °C e 1150 °C que apresentaram 378, 143 e 68 Kg/h.m², respectivamente. Esses pesquisadores observaram que o fluxo foi mais influenciado pelo tamanho do poro do que pela porosidade. Os resultados se apresentaram promissores para futuras aplicações em processos de separação.

Estudos realizados por Misrar et al. (2017) foi possível a obtenção de membranas cerâmicas de cordierita utilizando como precursores argilas e aditivos orgânicos. As membranas obtidas apresentaram resultados satisfatórios de fluxo com água destilada. Esses autores observaram que as três membranas estudadas apresentaram valores de fluxo de aproximadamente 70, 90 e 120 L.h/m² após 60 minutos de ensaio. Além disso, o fluxo foi diretamente influenciado pela pressão transmembrana, alcançando máximos de aproximadamente de 140, 150 e 160 L.h/m² em pressões de 1, 2 e 3 bar, respectivamente. As membranas desses pesquisadores se apresentaram promissoras para futuros testes de separação.

2.7 Membranas

A partir deste tópico, será abordado um texto específico referente as membranas, foco deste trabalho.

2.7.1 Aspectos Gerais das Membranas

Mulder (1996) definiu membrana como uma barreira semipermeável (permeável seletiva) entre duas fases, no qual o termo “seletivo” é inerente a um processo de separação por membranas. São materiais novos apresentando-se com camadas espessas ou finas, com estrutura homogênea (simétricas) ou heterogênea (assimétricas), que realizam transporte ativo ou passivo. Podem ser de natureza biológica, sintética, neutra ou carregada eletronicamente (Mulder, 1996).

Dependendo das propriedades químicas e/ou físicas apresentadas por estes componentes, os mesmos podem passar pela membrana constituindo o que é chamado de permeado, ou ficam acumulados (retidos). A capacidade de retenção da membrana está principalmente relacionada ao tamanho dos poros que podem variar de 0,1 nm a 5000 nm. Materiais poliméricos e inorgânicos, são usados para produzir membranas, o quais podem apresentar estruturas homogêneas ou heterogêneas de diferentes porosidades e composições. Os processos de separação por membranas provam eficiência e simplicidade de operação, alta seletividade e permeabilidade para o transporte de componentes específicos (Basile e Nunes, 2011).

2.7.2 Características Químicas e Estruturais

Em termos de composição química, as membranas podem ser classificadas em orgânicas, sintetizadas a partir de materiais poliméricos, ou ainda, em membranas inorgânicas feitas a partir de materiais metálicos ou cerâmicos como argilas.

Observando a Figura 8, as membranas podem ser divididas em dois grupos: densas e porosas. As membranas densas possibilitam o transporte dos componentes por dissolução e difusão através do material, enquanto as membranas porosas permitem o transporte do permeado preferencialmente por um fluido que preenche os poros da membrana. Ainda são subdivididas em assimétricas

(anisotrópicas) e simétricas (isotrópicas). As membranas assimétricas apresentam variações na densidade ao longo da secção transversal, enquanto as membranas simétricas possuem tamanho de poros monodispersos ao longo da secção transversal (Habert et al., 2006).

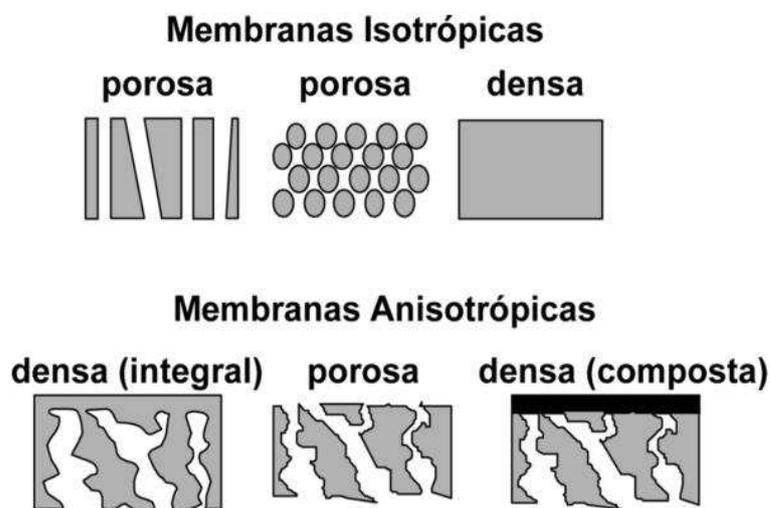


Figura 8 - Morfologia das membranas (Habert et al., 2006).

2.7.3 Propriedades de Transporte

Para que ocorra o transporte de uma espécie através de uma membrana é necessário a existência de uma força motriz agindo sobre a mesma. Os processos comerciais de separação com membrana utilizam como força motriz o gradiente de potencial químico e/ou o gradiente de potencial elétrico. Em função da morfologia da membrana e do tipo de força motriz empregada, o transporte das diferentes espécies através da membrana pode ocorrer tanto pelo mecanismo de convecção, como pelo mecanismo de difusão. A morfologia da membrana define, também, os princípios em que se baseiam a sua capacidade seletiva (Habert et al., 2006).

Os processos de separação por membranas podem ser operados de duas maneiras de acordo com a direção da corrente de alimentação. Na filtração convencional, o fluido atravessa a membrana e o material retido fica depositado nas paredes da membrana. No entanto, este método causa entupimento dos poros da membrana devido a incrustações do material retido, diminuindo assim a capacidade de filtração. Já no fluxo tangencial, um fluido de característica turbulenta e constante

passa pela membrana prevenindo o acúmulo de material nas paredes. As membranas utilizadas nesse processo são geralmente tubulares com a camada ativa na parede interna da membrana. O fluido atravessa as paredes do tubo em elevados gradientes de pressão fornecendo a força motriz para o processo de filtração e a velocidade suficiente para gerar as condições de turbulência do fluido. Nesse tipo de corrente, o fluido passa paralelamente a superfície da membrana e o permeado atravessa as paredes da membrana no sentido perpendicular. É uma maneira excelente para filtrar líquidos com altas concentrações de materiais filtráveis (Basile e Nunes, 2011).

2.8 Membranas Cerâmicas

2.8.1 Características Gerais

Membranas cerâmicas são produzidas a partir de uma classe de materiais inorgânicos e são usualmente preparadas pelas técnicas de sinterização ou sol-gel (Mulder, 1996). Destacam-se em relação as poliméricas porque apresentam vantagens como boa estabilidade térmica, mecânica, química e biológica, além de trabalharem sem a adição de agentes químicos e apresentarem arranjos compactos (Chaves et al., 2013; Das et al., 2016; Lima et al., 2011). No entanto, apresentam a desvantagem de serem de alto custo de fabricação, principalmente quando são obtidas a partir de materiais sintéticos, como titânia, alumina, zircônia, sílica e compósitos de óxidos (Armoa e Jr, 2011; Das et al., 2016; Nath, 2017; Silva et al., 2015c).

A fabricação de membranas cerâmicas tem se destacado nos últimos anos e sua utilização vem se tornando uma importante técnica de separação por serem obtidas a partir de matérias-primas naturais como as argilas, já que estes materiais possuem potencial de aplicação na obtenção de membranas (Chaves et al., 2013), logo isto se torna uma vantagem devido ao baixo custo de fabricação.

2.8.2 Tipos de Processos de Separação por Membranas Cerâmicas

Vários tipos de processos de separação por membranas cerâmicas como microfiltração, ultrafiltração e nanofiltração são extensivamente estudados devido suas excelentes resistências mecânicas, resistência química, estabilidade térmica e vida longa útil de funcionamento (Dong et al., 2007).

Microfiltração

A microfiltração é o processo de separação com membranas mais próximo da filtração clássica. Utiliza membranas porosas com poros na faixa entre 0,1 e 10 μm (100 e 10.000 nm), sendo, portanto indicado para a retenção de materiais em suspensão e emulsão. Como as membranas de microfiltração são relativamente abertas, as pressões empregadas como força motriz para o transporte são pequenas, dificilmente ultrapassando 3 bar. Na microfiltração, o solvente e todo o material solúvel permeia a membrana. Apenas o material em suspensão é retido. O tamanho dos poros e sua distribuição são dois fatores importantes que irão determinar quais moléculas ou partículas serão retidas pela membrana e quais poderão passar através de seus poros, já que o mecanismo de separação dessas membranas é baseada no tamanho das partículas (Habert et al., 2006).

Membranas de microfiltração possuem faixa de diâmetro de poros maiores que 100 nm, permitindo o uso delas para remover partículas concentradas ou microrganismos, como por exemplo na indústria de laticínios, removendo bactérias e concentrando proteínas do leite; no tratamento de águas e efluentes; em separação de óleo residuais ou purificação de óleos usados; nas áreas alimentícias e bebidas voltadas na clarificação de sucos de frutas, vinhos, e atuando também na remoção de bactérias e microrganismos em processos de fermentação; na biotecnologia, separando bactérias e plasma; e em processos petroquímicos, removendo precipitados de sólidos e metais pesados (Tsuru, 2001).

Microfiltração representa uma alternativa viável aos processos convencionais para o tratamento ou reciclo da água e efluentes. É uma aplicação que está crescendo principalmente conectada a regulações progressivamente mais exigentes, tanto em relação à segurança ambiental quanto a qualidade da água para

consumo. É também largamente aplicada no setor da agroindústria e na biotecnologia (Figoli et al., 2015).

Ultrafiltração

A ultrafiltração é um processo de separação por membranas utilizado quando se deseja purificar e fracionar soluções contendo macromoléculas. As membranas de ultrafiltração apresentam poros na faixa entre 1 e 100 nm, portanto mais fechadas do que as membranas de microfiltração. Soluções contendo solutos numa ampla faixa de massa molar (10^3 – 10^6 Dalton) podem ser tratadas por este processo. Como os poros das membranas de ultrafiltração são menores, uma força motriz maior é necessária para obter fluxos permeados elevados o suficiente para que o processo possa ser utilizado industrialmente. Por este motivo as diferenças de pressão através da membrana variam na faixa de 2 a 10 bar (Habert et al., 2006).

Pode ser utilizado para clarificar e separar soluções de contaminantes com alto peso molecular. É tipicamente utilizado para separar proteínas, em dessalinização ou concentração de solutos. São ideais para remoção ou trocas de açúcares, solventes não aquosos, remoção de materiais de médio peso molecular. A ultrafiltração não difere da microfiltração, nanofiltração e pervaoração, exceto em termos do tamanho de moléculas a serem retidas (Basile e Nunes, 2011).

Nanofiltração

Para a nanofiltração, o material a ser retido deve apresentar tamanho molecular na faixa entre 1 e 2 nm, situando-se entre o limite superior da ultrafiltração e o limite inferior da osmose inversa. Trata-se, portanto, de um processo que utiliza uma membrana “fechada” de ultrafiltração ou uma membrana “aberta” de osmose inversa. Estas membranas são “mais abertas” e, portanto, com baixa rejeição a sais, mas com fluxo permeado elevado. A nanofiltração pode ser operada em pressões mais baixas e vem sendo utilizada num número crescente de aplicações (Habert et al., 2006).

Em conceito de operação, nanofiltração se assemelha a técnica de osmose reversa, porém as membranas utilizadas nesse processo de separação são levemente permeáveis e exige uma menor pressão. Outra diferença é o grau de remoção de íons monovalentes, como os íons cloretos. Osmose reversa remove 98 – 99% de íons monovalentes a uma pressão de 200 psi (aproximadamente 14 bar). Já a remoção de íons monovalentes por membranas de nanofiltração varia entre 50 e 90% dependendo do material e da elaboração da membrana. Por esta razão, existe disponível uma variedade de membranas de nanofiltração. Cada tipo é particularmente adequado para uma certa aplicação e pode não ser aceito em uma diferente aplicação (Nath, 2017).

2.8.3 Configurações de Membranas Cerâmicas

Para aplicações práticas, as membranas podem ser produzidos nos seguintes formatos (Basile e Nunes, 2011; Nath, 2017):

- Planar (formato de placa): se assemelha a uma série de placas colocadas uma sobre as outras. O módulo para este tipo de membrana possui variações e o mais comum consiste numa camada fina que envolve os dois lados da membrana.
- Tubular: o fluido passa pelo núcleo da membrana e o permeado gerado sai no sentido radial, atravessando as paredes do tubo. Em alguns módulos nesse formato, o fluido é forçado para fora da membrana. Possui algumas vantagens como: podem ser operados com um simples pre-tratamento do fluido; são de limpeza fácil; o tamanho do módulo é pequeno; e a contaminação da membrana pode ser minimizada com altas taxas de fluido.
- Espiral: estes consistem em várias camadas da membranas e do material suporte enrolados envolta do tubo. Esta configuração permite aumento da área de contato superficial e possui menor custo. No entanto, é mais sensível a poluição.
- Fibras ocas: os módulos contém vários pequenos tubos ou fibras com diâmetros que variam de 0,6 – 2 mm. O fluido passa através dos núcleos

abertos e então o permeado é coletado ao redor desses tubos. A filtração pode ser realizada de dentro pra fora, e vice versa.

2.9 Considerações finais

Diante do exposto acima, os estudos envolvendo a produção de materiais cerâmicos porosos assumiram uma posição na ciência que gera novas perguntas e respostas, as quais servem de incentivo a comunidade acadêmica e científica na busca por inovações na área de síntese e processamento de novos materiais cerâmicos.

Hoje, existe um número crescente de pesquisas relacionadas a síntese de novos materiais porosos em virtude das propriedades específicas da própria cerâmica aliada a presença de poros, pois o que era considerado desvantagem em uma aplicação, passou a se tornar uma vantagem em outra tarefa. A presença de poros em materiais se tornou um aliado aos pesquisadores na formulação de novos materiais com propriedades únicas.

Dentre esses materiais, vêm se destacando as membranas cerâmicas, as quais estão sendo inseridas em uma série de aplicações, alcançando um patamar tecnológico amplo. Além disso, a produção através de materiais de baixo custo como as argilas têm possibilitado novas pesquisas em virtude do baixo custo proporcionado.

A produção de cerâmicas porosas de baixo custo têm atraído a atenção de pesquisadores e estudiosos que buscam formular novos materiais que atendam as demandas de aplicação. A utilização de argilas na produção de materiais de grande interesse tecnológico pode ainda proporcionar inovação tecnológica nessa área, gerando mais conhecimento a respeito da potencialidade dessas matérias-primas naturais, como também em relação as suas características químicas e físicas.

3 MATERIAIS E MÉTODOS

Neste tópico será descrito todo o procedimento experimental utilizado para o desenvolvimento deste trabalho, desde a descrição das matérias primas, formulação das massas cerâmicas, conformação, caracterização dos corpos de prova e ensaios de fluxo com água destilada.

3.1 Materiais

Para o desenvolvimento deste trabalho foram utilizadas as seguintes matérias-primas: argila *ball clay* e talco, fornecidas pela indústria Armil do estado da Paraíba, e alumina cedida pela Treibacher Schleifmittel Brasil.

3.2 Metodologia

A execução do trabalho seguiu a sequência apresentada na Figura 9.

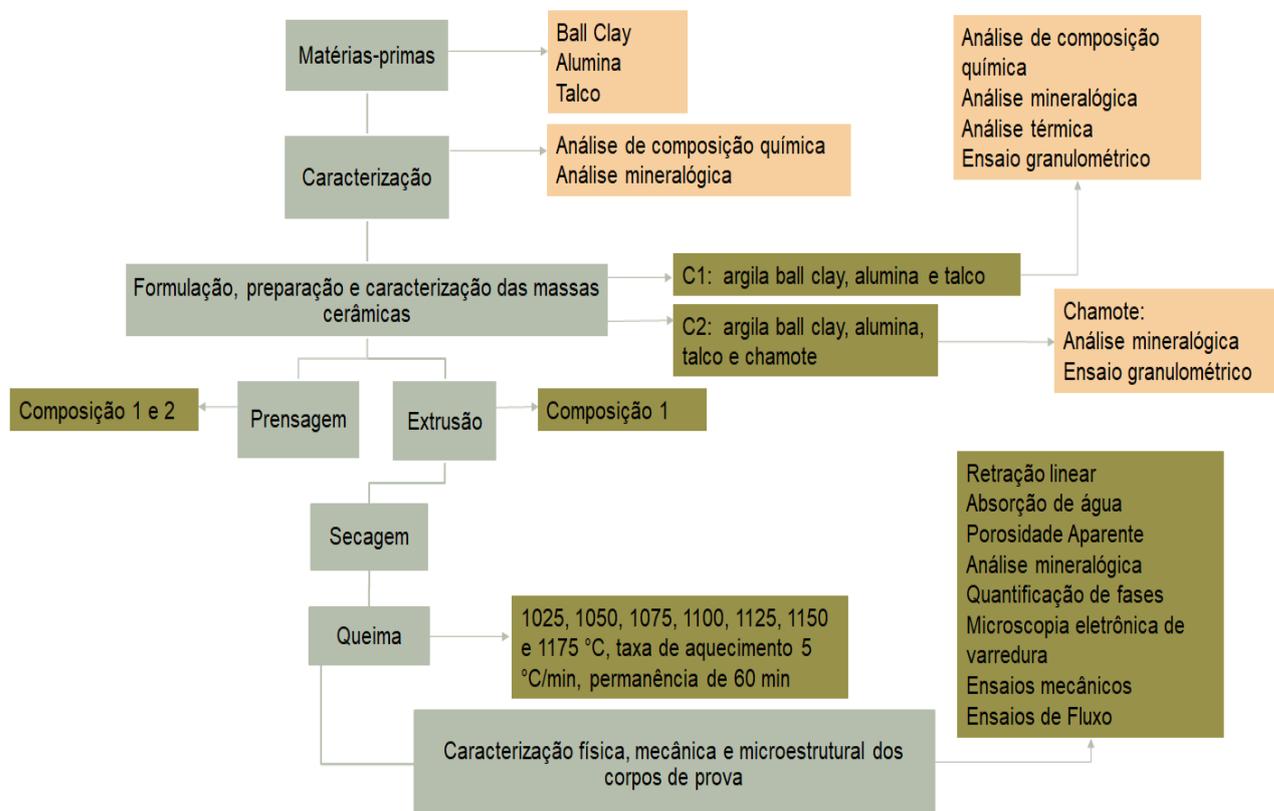


Figura 9 - Fluxograma de execução das etapas experimentais.

O trabalho experimental foi realizado em Laboratórios pertencentes à Unidade acadêmica de Engenharia de Materiais.

3.2.1 Caracterização das Matérias-primas

As amostras das matérias-primas foram devidamente peneiradas em peneira ABNT n° 200 (abertura 0,074 mm) e submetidas as seguintes análises: composição química por fluorescência de raios X em equipamento Shimadzu EDX-720 à vácuo; e composição mineralógica em difratômetro de raios X (Standard, modelo XRD 6000 Shimadzu) nas seguintes condições de operação: tensão de 40 KV, corrente de 30 mA, radiação $K\alpha$ do cobre, faixa de varredura 2θ (5° - 60°) com velocidade do goniômetro de $2^\circ/\text{min}$ e campo de amostragem de $0,02$ graus;

3.2.2 Formulação, Preparação e Caracterização das Massas Cerâmicas

Para o desenvolvimento deste trabalho foram formuladas duas composições, denominadas de C1 e C2:

Composição 1 (Argila *Ball Clay*, Alumina e Talco)

Com base na análise química por fluorescência de raios X das matérias-primas e no diagrama ternário SiO_2 - Al_2O_3 - MgO foi realizado o cálculo da composição química da massa cerâmica C1 correspondendo a estequiometria da cordierita ($2\text{MgO} \cdot 2\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 5\text{SiO}_2$). Os percentuais estabelecidos foram: 23% de argila *ball clay*, 19% de alumina e 58% de talco. Os cálculos realizados na formulação estão apresentados no APÊNDICE.

Após estabelecidos os percentuais, a massa cerâmica C1 com aproximadamente 8% de umidade foi homogeneizada em misturador a 300 RPM por 24h, beneficiada em peneira ABNT n° 200 (abertura 0,074 mm) e submetidas a análise de composição química e mineralógica, as quais foram realizadas utilizando-se os mesmos equipamentos e condições descritos no item 3.2.1. Ainda, a massa cerâmica foi analisada quanto ao tamanho das partículas por via úmida em granulômetro a laser da marca Cilas, modelo 1064; e quanto ao seu comportamento

térmico em Analisador Térmico da marca Shimadzu, modelo DTG-60H com taxa de aquecimento de 10 °C/min.

Composição 2 (Argila *Ball Clay*, Alumina, Talco e Chamote)

Esta composição foi desenvolvida a partir de estudos realizados com a composição 1.

Inicialmente, foi produzido o chamote a partir da queima da massa cerâmica da composição 1 contendo 23% de argila *ball clay*, 19% de alumina e 58% de talco. A sinterização foi realizada em forno mufla (FLYER, modelo FE50RPN) à 1175 °C, taxa de aquecimento de 5 °C/min e permanência na temperatura máxima por 60 minutos. O material resultante foi beneficiado em peneira ABNT n° 200 (abertura 0,074 mm) e submetido à análise de tamanho de partículas e mineralógica por difração de raios X, utilizando utilizando-se os mesmos equipamentos e condições descritos no item 3.2.1.

Em seguida, o chamote foi adicionado na própria massa cerâmica C1 nas seguintes percentagens: 10, 20, 30 e 40%. As composições estão representadas na Tabela 1.

Tabela 1 - Composição das misturas (% por peso)

Componentes	Composições (%)				
	C0 ^a	C10	C20	C30	C40
Massa pura C1	100	90	80	70	60
Chamote	0	10	20	30	40

C0^a: Massa cerâmica sem chamote e representativa de C1.

3.2.3 Conformação e Sinterização dos Corpos de Prova

As massas cerâmicas com teor de umidade de aproximadamente 8% devidamente homogeneizadas em misturador a 300 RPM por 24h e beneficiadas em peneira ABNT n° 80 (abertura 0,177 mm) foram submetidas aos seguintes processos de conformação:

Processo de Prensagem

Composição 1 (Argila Ball Caly, Alumina e Talco)

Os corpos de prova foram obtidos pelo processo de prensagem, em prensa da marca SERVITECH a uma pressão de 20 MPa em molde com dimensões de 50mm x 15mm x 5mm. Os corpos de prova conformados foram secos em estufa à 110°C por 24h e sinterizadas em forno mufla da marca FLYER, modelo FE50RPN, à 1025, 1050, 1075, 1100, 1125, 1150 e 1175 °C, taxa de aquecimento de 5 °C/min, permanecendo na temperatura máxima por 60 minutos.

Composição 2 (Argila Ball Caly, Alumina, Talco e Chamote)

Os corpos de prova foram obtidos pelo processo de prensagem, em prensa da marca SERVITECH a uma pressão de 20 MPa em molde com dimensões de 50mm x 15mm x 5mm. Os corpos de prova conformados foram secos em estufa à 110°C por 24h e sinterizadas em forno mufla da marca FLYER, modelo FE50RPN, à 1025, 1050, 1075 e 1100 °C, taxa de aquecimento de 5 °C/min, permanecendo na temperatura máxima por 60 minutos. Não foram utilizadas temperaturas acima de 1100 °C para esta composição em virtude da proximidade da temperatura de obtenção do chamote. Aliás, o objetivo era avaliar a porosidade e as propriedades mecânicas nessas quatro faixas de temperatura.

Processo de Extrusão

Esse procedimento foi realizado somente com a composição C1. Não foi realizado extrusão com as composições contendo chamote, pois não foi possível a sinterização de grandes quantidades de chamote para realizar essa conformação. A massa cerâmica C1 com teor de umidade de aproximadamente 27% foi submetida ao processo de extrusão em extrusora à vácuo (modelo 3 FAS fabricado pela empresa SEW do Brasil Ltda). Os corpos de prova foram conformados em formato tubular. Após a conformação, foram submetidos a pré-secagem a temperatura ambiente por 3 dias e uma segunda secagem controlada em estufa à 110°C por 24h.

Posteriormente, foram sinterizados em forno elétrico (FLYER, modelo FE50RPN) nas seguintes temperaturas: 1025, 1050, 1075, 1100, 1125, 1150 e 1175 °C, taxa de aquecimento de 5°C/min, permanecendo na temperatura máxima por 60 minutos.

3.2.4 Caracterização Mineralógica, Física, Mecânica e Microestrutural

A composição mineralógica dos corpos de prova prensados e extrudados foram determinadas utilizando-se os mesmos equipamentos e condições descritos no item 3.2.1.

Foram determinadas as seguintes propriedades: retração linear de queima, percentual de água absorvida, porosidade aparente e tensão de ruptura à flexão. Também foi analisado a morfologia após o tratamento térmico.

Retração Linear de Queima

Para a determinação da retração linear de queima dos corpos de prova utilizou-se seguinte equação:

$$R_q = \left(\frac{C_1 - C_2}{C_2} \right) 100 \quad (1)$$

Onde:

R_q = Retração linear de queima (%);

C_1 = Comprimento (mm) dos corpos de prova após secagem à 110 °C;

C_2 = Comprimento (mm) dos corpos de prova após queima;

Teor de Água Absorvida

Os corpos de prova foram mergulhados em água por 24h, a percentagem de água absorvida foi determinada a partir da seguinte equação:

$$A_{\text{água}} = \left(\frac{P_u - P_s}{P_s} \right) 100 \quad (2)$$

Onde:

$A_{\text{água}}$ = teor de água absorvida (%)

P_u = peso úmido (g)

P_s = peso seco (g);

Porosidade Aparente

Com os mesmos corpos de prova submersos, é possível determinar a porosidade aparente. Nesse caso, realiza-se a pesagem por imersão de cada corpo de prova, baseando-se no princípio de Arquimedes. Logo, a porosidade aparente foi encontrada a partir da seguinte equação:

$$PA = \left(\frac{P_u - P_s}{P_u - P_i} \right) 100 \quad (3)$$

Onde:

PA = porosidade aparente (%);

P_u = peso úmido (g);

P_s = peso seco (g);

P_i = peso imerso (g);

Tensão de Ruptura à Flexão

Este ensaio foi realizado em equipamento Shimadzu, modelo Autograph AGX-50KN em três pontos com carga máxima de 50 KN e velocidade de carga de 0,5 mm/min, emitindo resposta em N. Para o cálculo da tensão máxima de resistência, utilizou-se a seguinte equação:

$$T = \frac{3PD}{2L(E)^2} \quad (4)$$

Onde:

T = Tensão de ruptura à flexão (MPa);

P = Força (Kgf/cm²);

D = distância entre os apoios (cm);

E = espessura do corpos de prova após queima (cm);

L = largura do corpo de prova (cm);

Morfologia dos Corpos de Prova

Para a análise microestrutural e da superfície de fratura dos corpos de prova, foi utilizado um microscópio eletrônico de varredura (Shimadzu, modelo 5SX MCB-550).

3.2.5 Análise de Fluxo com Água Destilada dos Tubos

Nessa etapa, foi utilizado um sistema desenvolvido por Silva (2009), o qual está apresentado na Figura 10. Este se encontra instalado no Laboratório de Membranas da Unidade Acadêmica de Engenharia de Materiais da Universidade Federal de Campina Grande.

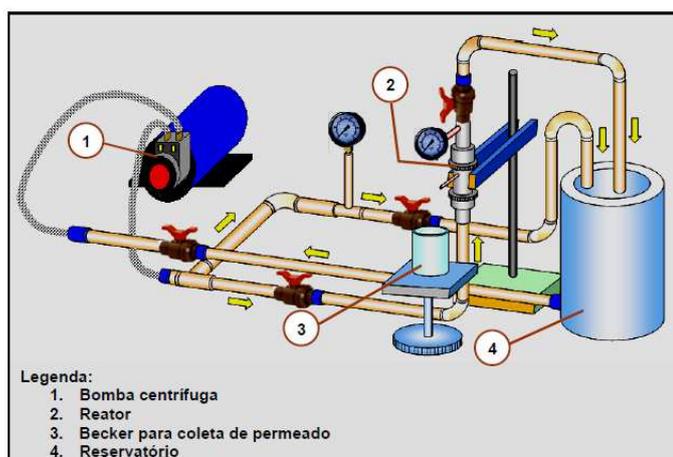


Figura 10 - Representação esquemática do sistema de fluxo com escoamento tangencial (Silva, 2009).

Esse sistema de fluxo consiste em uma bancada contendo os seguintes componentes:

- 1 - Bomba centrífuga da marca Procon;
- 2 - Reator de aço inoxidável com vedação de anéis em “o’ring”;
- 3 - Bécker para coleta do permeado;
- 4 - Reservatório de alumínio com capacidade máxima de 20 litros;

Além destes, no sistema existem os seguintes acessórios:

- Dois manômetros com escala que variam de 0 a 14 bar;
- Válvulas para controle da vazão;
- Uma balança digital com precisão de $\pm 0,01g$;
- Cronômetro digital para medir o tempo de coleta do permeado;

Para a realização das medidas de fluxo, foram escolhidas três tubos de cada faixa de temperatura de sinterização. Cada tubo ficou imerso em água destilada por 24 horas para manter o fluxo estável antes do ensaio. As análises foram realizadas mediante o procedimento descrito em Silva (2009).

Basicamente, os testes de fluxo foram realizados com água destilada, utilizando pressão de 1 bar. O permeado foi coletado em um bécker de 100 ml no

intervalo de 3 minutos. Este procedimento de coleta foi mantido obedecendo aos mesmos intervalos de tempo, ou seja, 3 minutos, até que o peso do sistema bécker/água permeada se mantivessem constante, demonstrando que a partir deste momento, o fluxo permaneceu praticamente estabilizado e tomado como referência para os cálculos. Os valores de fluxo foram determinados após 30 minutos de ensaio.

Para o cálculo do fluxo permeado, foi necessário a determinação da área interna da membrana, a qual foi calculada a partir da seguinte equação:

$$A = \pi DL \quad (5)$$

Onde:

A = área interna do tubo (m²);

D = diâmetro interno do tubo (m);

L = comprimento útil do tubo (m);

Os valores de fluxo com água destilada foram calculados utilizando a seguinte equação:

$$J = \frac{V}{t A} \quad (6)$$

Onde:

J = Fluxo de água permeado (L.h/m²);

V = Volume de permeado (L);

t = tempo de coleta (h);

A = área interna da membrana (m²);

4 RESULTADOS E DISCUSSÃO

Neste tópico será descrito todos os resultados experimentais obtidos neste trabalho, referentes as propriedades físicas, químicas, mecânicas e microestruturais.

4.1 Caracterização Química e Mineralógica das Matérias-primas

A composição química das matérias-primas utilizadas estão representadas na Tabela 2.

A argila *ball clay* contém em sua composição elevados teores de SiO_2 e Al_2O_3 . Além destes, foram identificados Fe_2O_3 e CaO que provavelmente estão associados às argilas como materiais acessórios ou impurezas. Essa argila apresenta composição química similar às estudadas por outros pesquisadores (Menezes et al., 2003; Silva e Lira, 2006).

A alumina apresenta um alto teor de Al_2O_3 , enfatizando o seu elevado grau de pureza (99,2% de pureza).

No talco foi observado elevados teores de SiO_2 e MgO , como também quantidades significantes de Al_2O_3 . No entanto, assim como na *ball clay*, também foi identificado a presença de Fe_2O_3 e CaO que possivelmente estão presentes como impurezas. Enfatiza-se o uso do talco para compensar a deficiência do teor de MgO necessário para obtenção da cordierita.

Tabela 2 - Análise química (% em massa) das matérias-primas.

Constituinte (%)	Argila Ball Clay	Alumina	Talco
Óxido de Silício (SiO_2)	57,9	0,3	55,1
Óxido de Alumínio (Al_2O_3)	30,0	99,2	12,3
Óxido de Magnésio (MgO)	1,9	-	20,5
Óxido de Ferro (Fe_2O_3)	3,3	-	7,8
Óxido de Cálcio (CaO)	4,7	0,2	2,6
Óxido de Potássio (K_2O)	-	-	0,5
Outros óxidos	2,2	0,3	1,2

(-): ausente.

A Figura 11 apresenta os padrões de difração de raios X das matérias-primas. Pode-se observar a presença dos seguintes argilominerais: montmorilonita ($\text{NaO} \cdot 3\text{Al}_4\text{Si}_6\text{O}_{15}(\text{OH})_6 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$) (JCPDS 13-0135), caulinita ($\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 2\text{SiO}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$) (JCPDS 29-1490) e talco ($3\text{Mg}_4\text{SiO}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$) (JCPDS 83-1768), provenientes da argila *ball clay* e do talco, respectivamente. Foi observado presença de quartzo (JCPDS 46-1045) que possivelmente estar na forma de sílica livre ou combinada aos argilominerais. A presença de calcita (CaCO_3) (JCPDS 89-1305) está relacionada ao teor de CaO aparece em virtude da presença de carbonatos, como também pode indicar a presença de minerais do grupo esmectita. Verifica-se também os picos característicos da fase alumina- α (corundum) (Al_2O_3) (JCPDS 10-0173), enfatizando o uso deste com elevado grau de pureza.

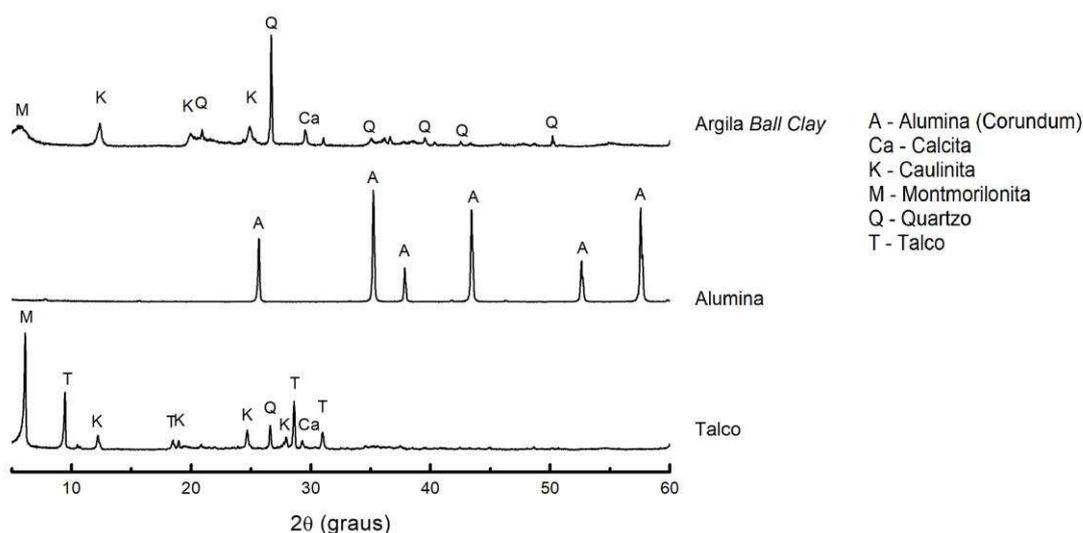


Figura 11 – Padrões de difração de raios X das matérias-primas.

4.2 Caracterização Química, Física e Mineralógica da Massa Cerâmica C1

A composição química da massa cerâmica está representada na Tabela 3.

Tabela 3 - Composição química da massa cerâmica C1.

Óxidos (%) em peso)	SiO ₂	Al ₂ O ₃	MgO	Fe ₂ O ₃	CaO	K ₂ O	Outros
	43,3	32,5	12,5	7,3	3,0	0,5	0,9

Verifica-se que estão presentes na mistura os três óxidos mais importantes na síntese de cordierita ($2\text{MgO}\cdot 2\text{Al}_2\text{O}_3\cdot 5\text{SiO}_2$). Estes óxidos estão presentes em quantidades próximas da composição teórica da cordierita que contém 13,8% MgO, 34,8% de Al_2O_3 e 51,4% de SiO_2 .

Pode-se observar também a presença de outros óxidos como Fe_2O_3 e CaO que podem atuar como fundentes, favorecendo a formação de fase líquida durante o processo de sinterização (Jiang et al., 2017; Souza et al., 2013; Zhao et al., 2014). Os óxidos fundentes podem contribuir para a formação de eutéticos de baixo ponto de fusão (Maestrelli et al., 2013), influenciando na formação de fases cristalinas em temperaturas mais baixas. Em particular, o Fe_2O_3 pode promover a cristalização de fases no sistema ternário SiO_2 - Al_2O_3 -MgO, proporcionando mudanças na energia de ativação e no mecanismo de cristalização da cordierita (Wang, 2010).

O CaO e MgO encontrados podem indicar que a mistura é rica em carbonatos (Baccour et al., 2009), como também estar relacionado a presença de minerais do grupo esmectita (Santos, 1989). Estes óxidos podem atuar como modificadores de rede diminuindo a refratariedade das argilas (Souza et al., 2013). A composição química desta massa cerâmica foi similar aos obtidos por (Njoya et al., 2016).

O resultado da análise granulométrica e dos parâmetros de plasticidade da massa cerâmica estão apresentados na Tabela 4. Para a distribuição granulométrica, foi observado diâmetro médio de partículas de 11,0 μm , um alto teor de partículas com tamanhos na faixa entre 2 e 20 μm , como também uma fração significativa de partículas com tamanhos abaixo de 2 μm . Esse elevado teor de finos (abaixo de 20 μm) favorecerá a cinética das reações em função da maior área e energia superficial. Essa distribuição se apresentou similar a composição granulométrica da massa cerâmica utilizada por (Silva e Lira, 2006). A distribuição granulométrica interfere significativamente sobre a plasticidade, empacotamento do sistema e no processamento do material (Santos et al., 2017).

Em se tratando de plasticidade, no que se refere aos limites de Atterberg, a massa cerâmica apresentou índice de plasticidade de 26,9%. De acordo com a literatura, este valor se encontra dentro dos intervalos observados para massas cerâmicas altamente plásticas por apresentar índice de plasticidade acima de 15% (Carreiro et al., 2016; Macedo et al., 2008; Medeiros et al., 2017; Menezes et al., 2003; Santos et al., 2017).

Tabela 4 - Distribuição granulométrica e limites de Atterberg da massa cerâmica C1.

Tamanho D _m ^a (µm)	Fração granulométrica (%)			Limites de Atterberg (%)		
	< 2 µm	>2 µm e < 20 µm	>20 µm	L.L. ^b	L.P. ^c	I.P. ^d
11,0	16,0	66,0	18,0	52,0	24,1	26,9

^aD_m – Diâmetro médio; ^bL.L. – Limite de liquidez; ^cL.P. – Limite de plasticidade; ^dI.P. – Índice de plasticidade.

As curvas de análise térmica da massa cerâmica C1 estão apresentadas na Figura 12. Pode-se observar os primeiros picos endotérmicos em 94,3 °C e 200,5 °C, que estão associados a eliminação de água livre e ligada quimicamente entre as lamelas dos argilominerais, respectivamente; verifica-se uma banda exotérmica entre 225 e 455 °C, indicando uma possível queima de matéria orgânica; picos endotérmicos a 490,1 e 671,5 °C que provavelmente estão indicando o processo de desidroxilação dos materiais argilosos; outros eventos térmicos também foram observados: pico endotérmico em 973,1 °C que pode estar associado a decomposição do talco e formação de enstaita, e pico exotérmico em 994,2 °C que pode ser atribuído a cristalização de espinélio. Segundo Goren et al (2006b) e Njoya et al. (2016), a reação de decomposição do talco pode ocorrer entre 900 e 975 °C. O último pico exotérmico identificado em 994,2 °C pode ser atribuído a cristalização da fase espinélio (Dong et al., 2006b), ou provavelmente está indicando a cristalização da fase safirina.

De acordo com a curva TG, foi observado quatro estágios de perda em massa. A primeira perda observada foi de 3,6%, indicando eliminação de água; a segunda etapa foi de 1,20% e ocorreu entre 225 e 455 °C, a qual pode estar relacionada a combustão da matéria orgânica; a terceira etapa foi representada por uma perda acentuada de 4,3% ocorrendo entre 455 e 690 °C que corresponde a liberação dos grupos hidroxilas das estruturas dos argilominerais; a última perda em torno de 2,1% foi observada acima de 700 °C e pode estar associada a decomposição dos carbonatos. Observa-se que, a partir de 1000 °C a curva não apresenta variações, indicando que não houve perda significativa. A massa cerâmica apresentou uma perda total de 11,2%.

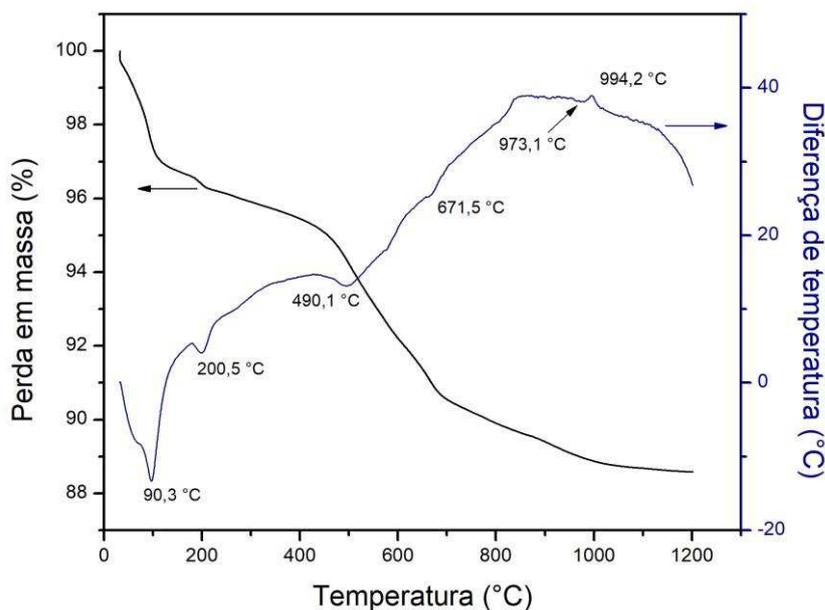


Figura 12 - Curvas de ATD e ATG da massa cerâmica C1.

4.3 Caracterização Mineralógica dos Corpos de Prova Prensados da composição 1

A Figura 13 apresenta os padrões de difração de raios X das amostras sinterizadas. Observa-se a mudança nas fases mineralógicas com o processo de sinterização.

À 1025 °C, as fases identificadas foram: alumina (Al_2O_3) (JCPDS 10-0173), cristobalita (SiO_2) (JCPDS 82-0512), enstatite (MgSiO_3) (JCPDS 86-0430), hematita (Fe_2O_3) (JCPDS 89-8104), quartzo (SiO_2) (JCPDS 46-1045) e safirina ($4\text{MgO} \cdot 5\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 2\text{SiO}_2$) (JCPDS 86-2245).

A decomposição do talco favoreceu a cristalização da fase enstatita e a sílica amorfa gerada durante esses tratamentos térmicos deu origem a cristobalita. Dependendo da composição química da mistura, alguns autores associam essa reação ocorrendo entre 800 – 1000 °C (Benhammou et al., 2016; Goren et al., 2006a, 2006b; Njoya et al., 2016). A safirina pode ser resultado da reação entre o MgO e Al_2O_3 com a sílica amorfa. Foi observado também a presença da fase hematita que estar relacionada ao teor de ferro presente na massa.

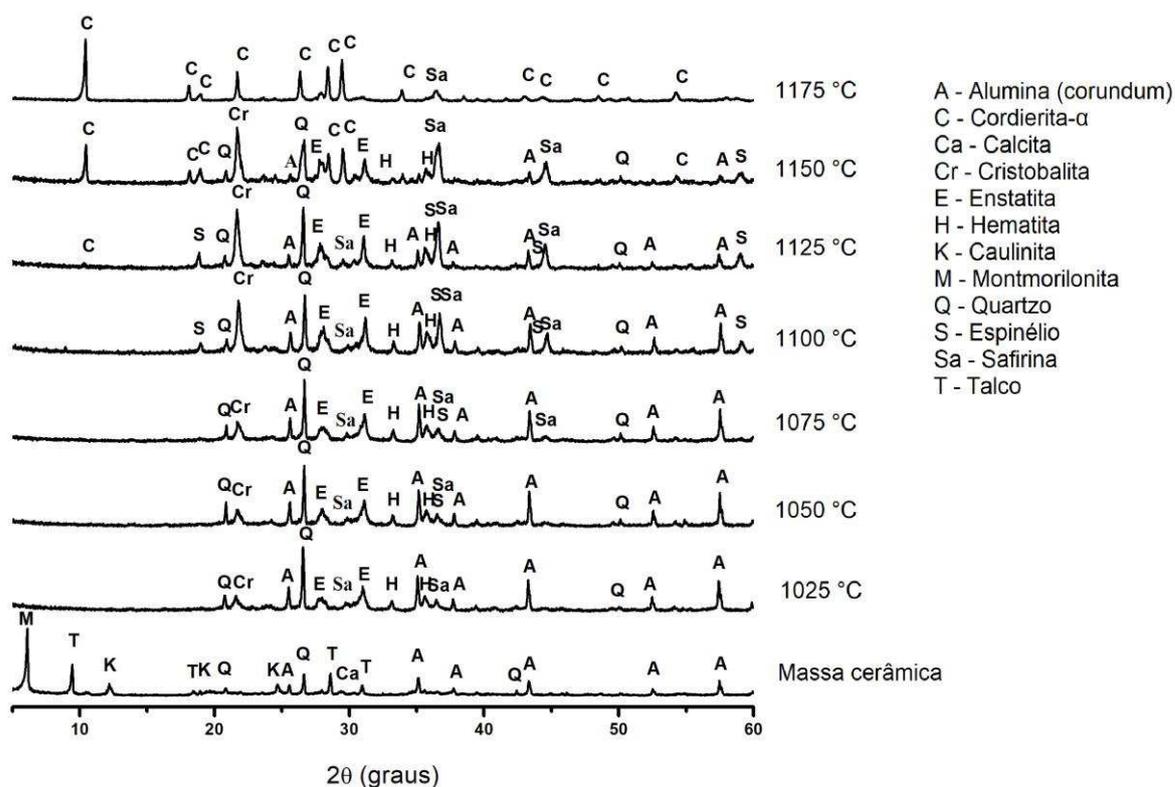


Figura 13 – Padr es de difrac o de raios X das amostras C1.

  1050  C, surge a fase espin lio ($MgAl_2O_4$) (JCPDS 77-0435) como resultado da intera o dos  ons de Al^{3+} e Mg^{3+} dispersos na fase l quida (Majumder et al., 2004), rea o esta que pode ocorrer em temperaturas pr ximas a 960  C (Al-Harbi et al., 2015), corroborando com os dados da an lise t rmica.

Quando a temperatura aumenta de 1075 para 1100  C, pode-se observar que n o houve forma o de novas fases, no entanto os picos das fases ficam mais intensos, indicando maior grau de cristalinidade.

A partir de 1125  C, foi observado o primeiro pico referente a fase α -cordierita (indialita) ($Mg_2Al_4Si_5O_{18}$) (JCPDS 83-2067) que se torna mais intenso com o progresso da sinteriza o. Segundo Al-Harbi et al. (2015), a cristaliza o dessa fase se deve principalmente a rea o direta entre o espin lio e a s lica amorfa. Esses autores tamb m identificaram a nuclea o da fase α -cordierita em torno de 1125  C a partir da sinteriza o de uma massa cer mica contendo caulinita e magnesita.

Analisando esses padr es de DRX, foi observado que   1150  C ocorreu um aumento pronunciado nos picos de α -cordierita e redu o nos picos de espin lio.

Esses resultados parecem indicar uma possível decomposição do espinélio para favorecer a cristalização da fase α -cordierita.

Nessa faixa de temperatura também foi observado menor intensidade dos picos de hematita indicando uma possível decomposição térmica, ou provavelmente os íons de ferro podem estar migrando para a estrutura cristalina da α -cordierita formando uma solução sólida (Wang, 2010). A fase α -cordierita (α - $\text{Mg}_2\text{Al}_4\text{Si}_5\text{O}_{18}$) não é fixa e pode ocorrer substituição parcial ou total dos íons de Mg^{2+} por íons de Fe^{2+} resultando em uma estrutura ($\text{Fe}_2\text{Al}_4\text{Si}_5\text{O}_{18}$) similar conhecida como cordierita de ferro (Miyashiro et al., 1955). Devido ao tamanho de raio semelhante ao do íon Mg^{2+} e a sua alta mobilidade, os íons de Fe^{2+} substituem os íons de Mg^{2+} de suas posições promovendo a formação de um novo centro de cristalização, assim ativando a síntese de cordierita (Khabas et al., 2003). A influência do ferro no mecanismo de cristalização dessa fase tem sido continuamente estudada por outros pesquisadores (García et al., 2010; Liu et al., 2016; Wang et al., 2011).

À 1175 °C, a fase α -cordierita aparece em conjunto com safirina. A presença da safirina em menor intensidade parece indicar que a reação caminha para uma possível cristalização completa da fase α -cordierita (Li et al., 2014). Além disso, nessa faixa de temperatura, houve total dissolução da alumina.

Comparando com dados encontrados na literatura, estudos realizados por Ogiwara et al (2010) permitiram a obtenção da fase α -cordierita em torno de 1170 °C em conjunto com safirina e cristobalita. Entretanto, esses pesquisadores utilizaram a técnica sol-gel e precursores sintéticos, tornando o processo de obtenção relativamente mais caro. No presente trabalho foi destacado o uso da sinterização em estado sólido que permite a obtenção de cordierita a partir de materiais de baixo custo, como argila e talco.

Njoya et al (2016) conseguiram produzir cerâmicas de cordierita com composição química próxima às utilizadas neste trabalho. Entretanto foram utilizadas temperaturas mais elevadas, especificamente em torno de 1300 °C. Correlacionando as composições químicas, a massa cerâmica estudada no presente trabalho apresenta uma maior quantidade de óxidos fundentes, destacando-se o teor de Fe_2O_3 , como apresentado na análise de composição química. Este óxido pode promover a cristalização da cordierita a partir de mudanças na energia de ativação da fase α -cordierita no sistema $\text{MgO-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ (Wang, 2010).

Na literatura há diversos estudos (Al-Harbi et al., 2015; Gökçe et al., 2011; Goren et al., 2006b; Li et al., 2014, 2015; Liu et al., 2016; Nath et al., 2014), nos quais foram possível obter a fase α -cordierita em temperaturas próximas de 1200 °C a partir da queima de matérias-primas naturais.

A Tabela 5 apresenta os percentuais de cada fase e o grau de cristalinidade das amostras em cada temperatura.

Inicialmente, à 1025 °C foram observados as fases alumina (41,5%), cristobalita (1,1%), enstatita (8,8%), hematita (3,0%), quartzo (22,4%) e safirina (19,0%). O aumento da temperatura para 1100 °C promoveu o aumento no teor das fases cristobalita (8,2%), enstatita (19,0%) e espinélio (2,9%), possivelmente devido redução na quantidade de quartzo (15,8%) e alumina (32,5%). A nucleação da fase cordierita- α inicia-se à 1125 °C (0,8%) e intensifica à 1175 °C em virtude da decomposição das fases secundárias e dissolução da alumina. O teor de cordierita encontrado nessa faixa de temperatura foi de 51,0%.

Tabela 5 - Análise de quantificação de fases cristalinas dos corpos de prova da composição C1. A – alumina; C – cordierita- α ; Cr – cristobalita; E – enstatita; H – hematita; Q – quartzo; S – espinélio; Sa – safirina.

Temperatura (°C)	A	C	Cr	E	H	Q	S	Sa	Cristalinidade (%)
1025	41,5	-	1,1	8,8	3,0	22,4	-	19,0	95,8
1050	41,6	-	1,5	9,4	3,4	18,0	2,1	16,8	92,8
1075	37,4	-	2,9	15,0	3,6	20,8	1,2	14,6	95,5
1100	32,5	-	8,2	19,0	3,4	15,8	2,9	12,0	93,8
1125	11,8	0,8	6,6	12,7	0,4	11,8	1,6	46,4	92,1
1150	6,6	7,2	5,4	25,6	0,8	6,5	-	38,6	90,7
1175	-	51,0	-	-	-	-	-	41,8	92,8

(-) ausente.

A Figura 14 apresenta morfologia da cordierita das amostras sinterizadas à 1175 °C. É possível observar a morfologia desse mineral que se apresenta como cristais prismáticos em formato de placas hexagonais. Segundo dados encontrados na literatura (Ohsato et al., 2015), essa morfologia é característica da indialita, umas

das formas polimórficas estáveis da cordierita. Esse aspecto também foi observado por outros pesquisadores (Almeida et al., 2017; Torres e Alarcón, 2005).

Essas imagens também mostram a presença de cristais prismáticos de cordierita no formato de pequenos tubos que crescem a partir da fase vítrea. Na literatura (Liu et al., 2016; Naga et al., 2017) há estudos que reportam essa mesma morfologia.

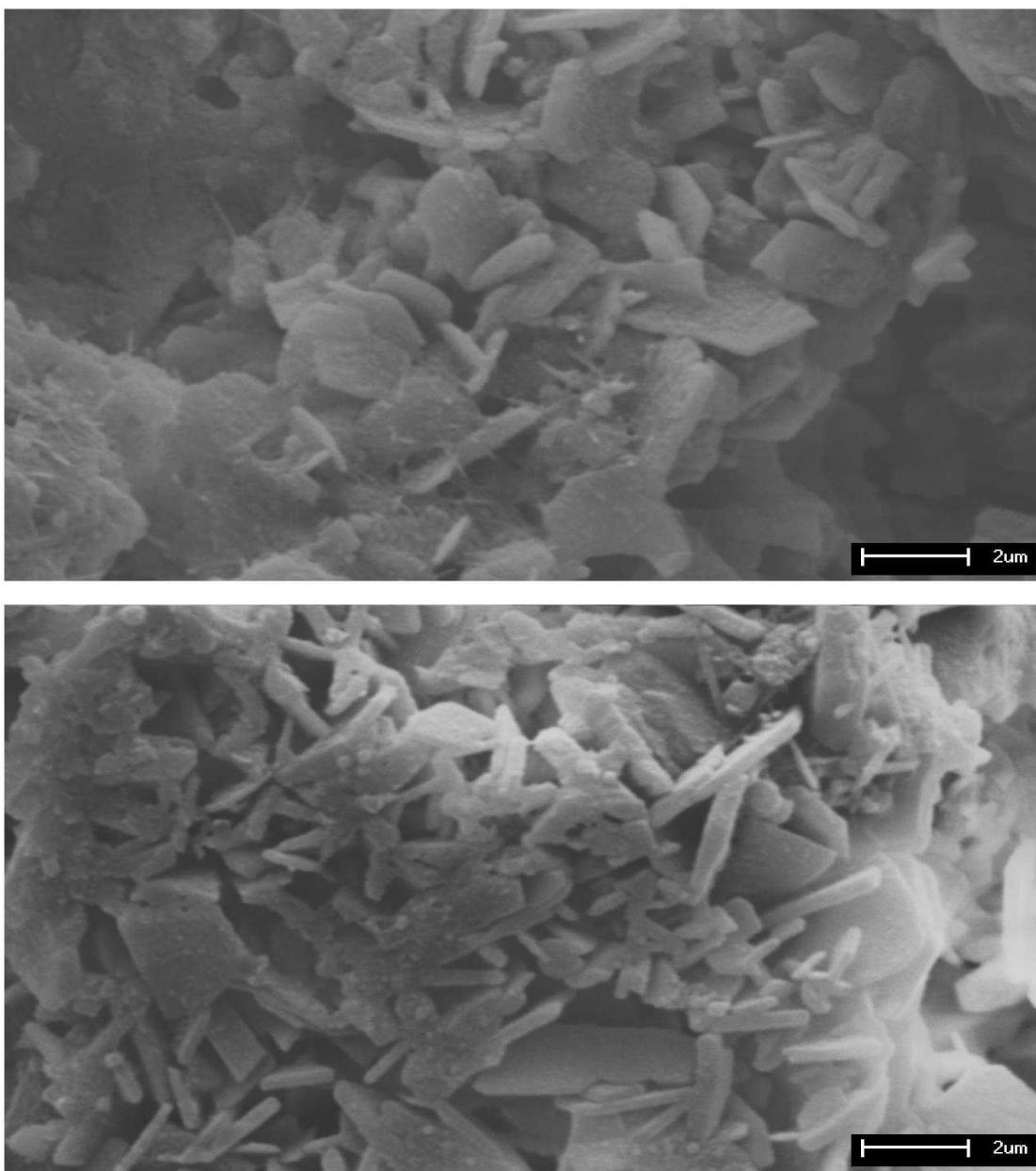


Figura 14 – Imagens da cordierita sintetizada à 1175 °C obtidas por microscopia eletrônica de varreduras.

4.4 Propriedades Físicas, Microestruturais e Mecânicas dos Corpos de Prova Prensados

Todos os resultados experimentais referentes as propriedades físicas e mecânicas estão apresentados em APÊNDICE, neste tópico estarão os valores médios das mesmas.

A Figura 15 apresenta os valores médios referentes a retração linear em função da temperatura. Os valores de retração linear pós queima variaram de 1,5 a 2,8% se apresentando crescentes com o aumento da temperatura. A retração das peças cerâmicas está associada ao processo de densificação proporcionada pelo maior empacotamento entre as partículas em virtude da maior área de contato. Além disso, a formação de fase líquida favorecida pela presença de óxidos fundentes podem ter contribuído na retração. Analisando esses resultados, observa-se que houve um aumento pronunciado na retração entre 1075 e 1100 °C. Este comportamento pode estar associado às transformações de fases nessa faixa de temperatura como observado nos padrões de difração de raios X.

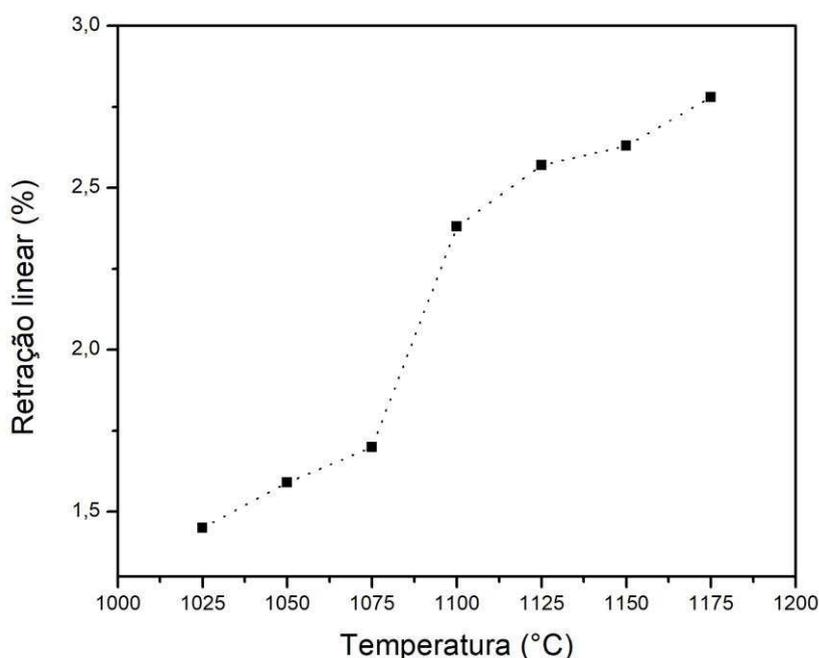


Figura 15 - Retração linear das amostras C1 após sinterização.

A Figura 16 apresenta os valores de porosidade aparente e absorção de água em função da temperatura de sinterização. Os maiores valores de absorção de água

e porosidade aparente foram encontrados nas amostras sinterizadas à 1025 °C, apresentando-se em média 23,6 e 41,7% e permaneceram diminuindo até 1150 °C, observando-se 8,1 e 17,6%, respectivamente. Isto ocorre devido a formação de fase líquida que preenche os poros (Santos et al., 2017). Analisando esses resultados, pode-se observar uma redução acentuada entre 1075 e 1100 °C, comportamento este que segue de acordo com a retração linear, sendo isto relacionado às transformações de fases.

Entretanto, à 1175 °C houve um leve aumento na porosidade aparente e consequentemente na absorção de água, observando-se os valores de 21,9 e 11,5%, respectivamente. Alguns pesquisadores (Liu et al., 2016) reportaram este mesmo comportamento em cerâmicas porosas de cordierita. Esses autores associaram este fenômeno com a pressão do O₂ gerado após a redução do Fe₂O₃ que possivelmente promoveu a formação de poros largos em virtude da coalescência dos poros menores. Provavelmente, esse comportamento pode ser atribuído a decomposição da hematita por volta de 1150 °C, como mostrado na análise mineralógica. Por ser um composto de ferro, o mesmo possivelmente sofreu redução durante a sinterização e liberou gases que contribuíram para a formação e coalescência dos poros.

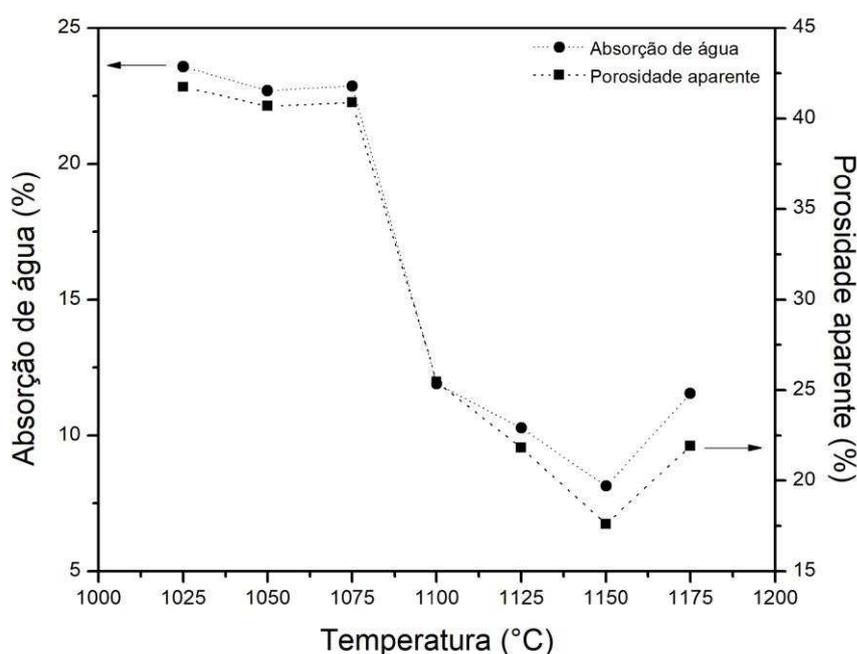


Figura 16 - Absorção de água e porosidade aparente das amostras C1 após sinterização.

A Figura 17 apresenta as imagens das secções transversais das amostras sinterizadas à 1050, 1100, 1150 e 1175 °C após ensaios mecânicos.

As imagens mostram a diferença nas superfícies de fratura das amostras em diferentes temperaturas. Pode-se observar uma estrutura porosa com poros pouco distribuídos por toda a superfície. É possível observar também muitos grãos e bastante fase vítrea. Como visto anteriormente, a porosidade aparente foi afetada pelo processo de sinterização, diminuindo com o aumento da temperatura. Isso está relacionado a formação de fase líquida, associada a elevadas temperaturas e os óxidos fundentes presentes no material.

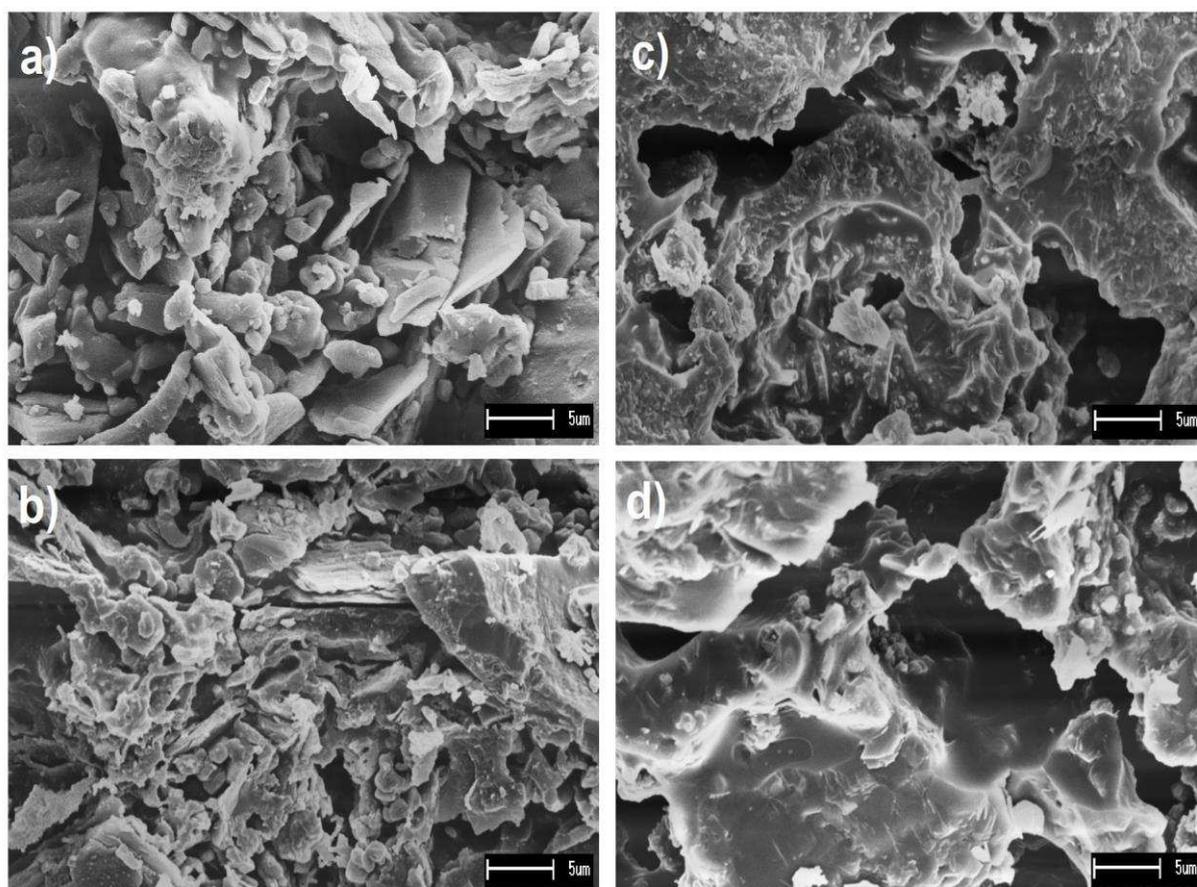


Figura 17 – Imagens obtidas por microscopia eletrônica de varredura das superfícies de fratura das amostras sinterizadas (a) 1050 °C; (b) 1100 °C; (c) 1150 °C; (d) 1175 °C.

Os poros do material cerâmico mudaram gradualmente com o processo de sinterização e tendem a se tornarem mais largos na medida em que a temperatura aumenta. Provavelmente, a fase líquida está favorecendo a coalescência de poros maiores em detrimento do fechamento dos poros menores. Este fenômeno pode estar associado ao processo de solubilidade líquida no sólido, no qual o líquido

formado durante a sinterização migra de regiões de maior empacotamento para o interior de poros menores e isolados, levando a coalescência e formação de poros maiores (Rahaman, 2006). Isso pode ser observado nitidamente na temperatura de 1175 °C. No entanto há bastante fase vítrea devido a quantidade de fases amorfas e impurezas.

Os módulos de ruptura à flexão estão representados na Figura 18. O menor valor obtido foi de 6,0 MPa encontrado à 1025 °C, enquanto o maior valor foi de 41,8 MPa observado à 1175 °C. De uma forma geral, verifica-se um aumento nos valores de ruptura à flexão com o aumento da temperatura para todas as amostras. É possível observar também uma melhoria pronunciada na resistência mecânica entre 1075 e 1100 °C, fato este que segue ao ocorrido com a retração linear e a porosidade aparente. Como mencionado anteriormente, isso pode estar associado a formação de fase líquida e a intensificação das fases cristalinas que contribuíram na resistência mecânica.

Correlacionando esses resultados com a análise mineralógica, pode-se observar que o maior valor obtido foi encontrado à 1175 °C, enfatizando a maior quantidade da fase α -cordierita e safirina nessa temperatura, como mostrado nos resultados de quantificação de fases cristalinas. Segundo Liu et al (2016), crescimentos dos cristais de cordierita podem promover melhoria na resistência mecânica de materiais cerâmicos.

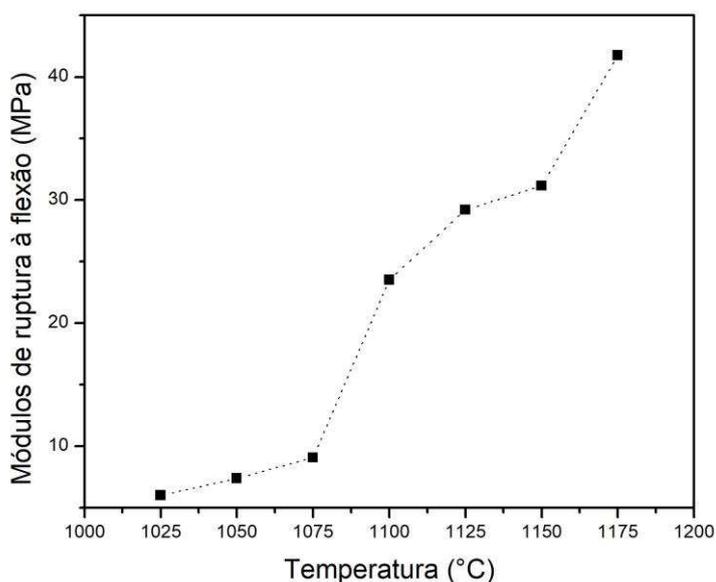


Figura 18 - Módulos de ruptura à flexão das amostras C1.

4.5 Caracterização Física e Mineralógica da Composição 2

Todos os resultados experimentais referentes as propriedades físicas e mecânicas estão apresentados no APÊNDICE, neste tópico estarão os valores médios das mesmas.

A Tabela 6 apresenta a distribuição granulométrica do chamote. Foi observado diâmetro médio de 18,84 μm e uma elevada percentagem de partículas largas acima de 20 μm . Provavelmente, esse chamote é um conjunto de partículas largas. Verifica-se ainda um teor considerável de partículas finas abaixo de 20 μm .

Tabela 6 - Distribuição de partículas do chamote.

Composição granulométrica (%)				
Amostra	< 2 μm	> 2 μm e < 20 μm	> 20 μm	D_m^a (μm)
Chamote	12	48	52	18,84

^a D_m : diâmetro médio.

Como mencionado anteriormente, o chamote foi obtido a partir da sinterização da mistura contendo argila *ball clay*, alumina e talco, à 1175 °C. A Figura 19 apresenta os padrões de difração de raios X do chamote. Pode-se observar que a sua composição mineralógica é essencialmente cordierita- α , apresentando também a presença de fase safirina.

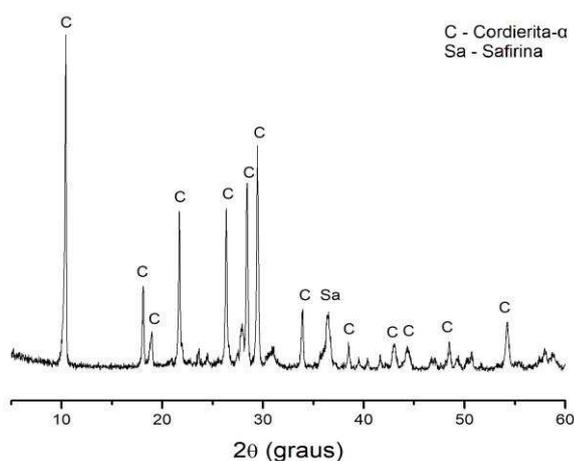


Figura 19 – Padrões de difração de raios X do chamote.

A Figura 20 apresenta os padrões de difração de raios X das composições estudadas e sinterizadas à 1025, 1050, 1075 e 1100 °C, respectivamente.

Analisando esses resultados, verificou-se que não houve diferença mineralógica entre as amostras com o aumento da temperatura. No entanto, os picos das fases se apresentam mais cristalizados, possivelmente indicando maior quantidade de fases. É importante observar que o aumento da temperatura de 1025 para 1100 °C favoreceu a formação da fase α -cordierita possivelmente devido às reações de decomposição das fases.

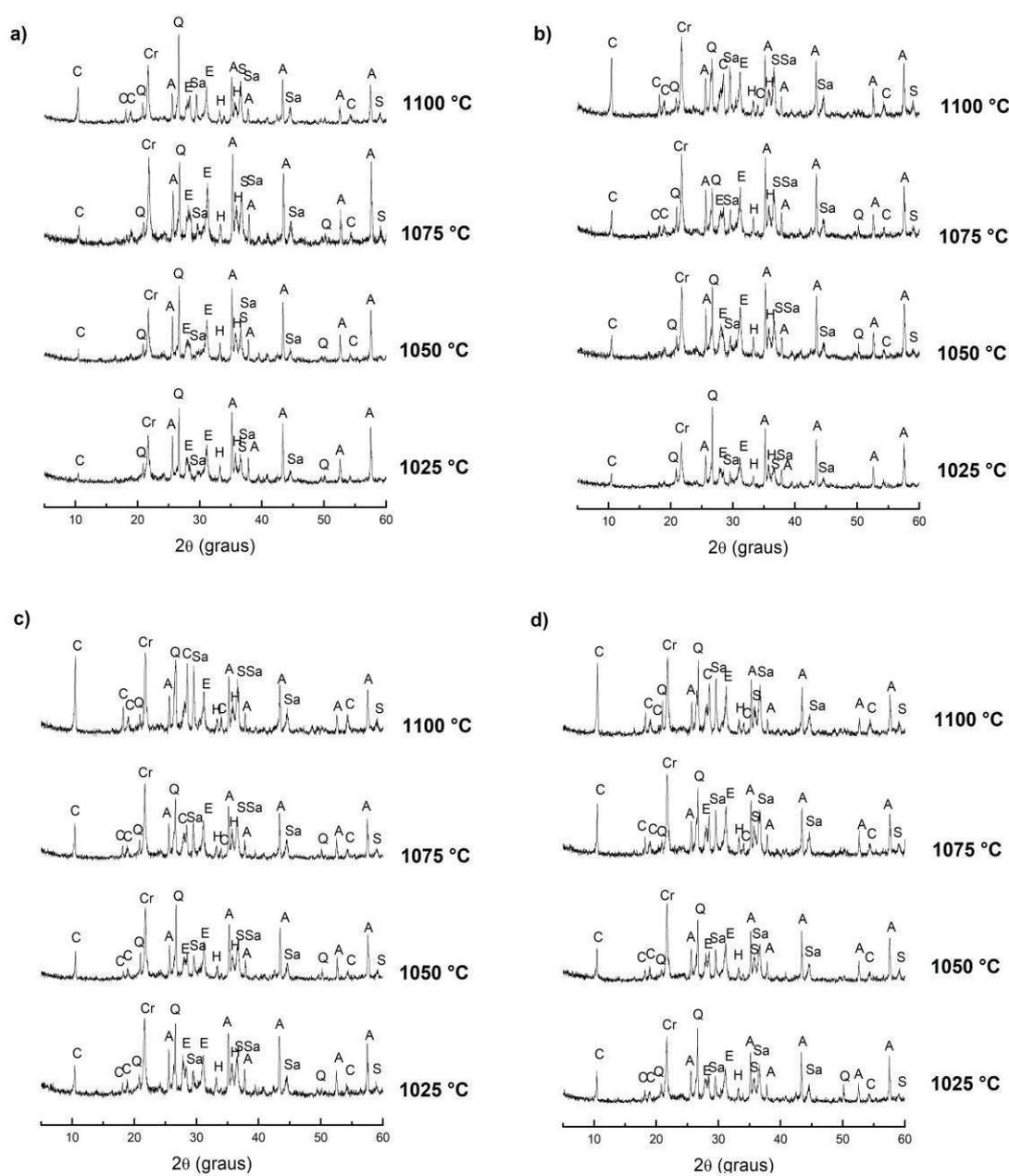


Figura 20 - Padrões de difração de raios X das amostras (a) C10, (b) C20, (c) C30 e (d) C40.

4.6 Propriedades Físicas, Microestruturais e Mecânicas dos Corpos de Prova Prensados

Na Tabela 7 estão apresentados os resultados referentes a retração linear, absorção de água e porosidade aparente das amostras sinterizadas.

Tabela 7 - Resultados das propriedades físicas das amostras referentes as composições sem chamote (C0) e com chamote (C10, C20, C30 e C40).

Composição	Temperatura (°C)	RL ^a (%)	AA ^b (%)	PA ^c (%)
C0 ^d	1025	1,5±0,0	23,6±0,2	41,7±0,3
	1050	1,6±0,0	22,7±0,5	40,7±0,4
	1075	1,7±0,0	22,9±0,3	40,9±0,4
	1100	2,4±0,1	11,9±0,2	25,5±0,3
C10	1025	2,0±0,0	20,0±1,2	38,5±1,8
	1050	2,2±0,1	16,7±1,1	33,5±1,9
	1075	2,4±0,0	16,3±0,5	32,9±0,9
	1100	2,4±0,0	15,8±0,4	32,0±0,6
C20	1025	1,5±0,0	18,7±0,6	35,8±0,7
	1050	1,7±0,2	19,3±0,7	36,6±1,0
	1075	1,9±0,0	19,5±0,4	36,7±0,7
	1100	1,9±0,1	16,5±1,0	32,6±1,4
C30	1025	1,5±0,0	16,3±0,4	33,0±0,9
	1050	1,6±0,0	16,5±1,0	32,9±1,4
	1075	1,5±0,0	16,3±0,2	32,6±0,4
	1100	1,5±0,1	18,5±0,5	35,4±0,6
C40	1025	1,0±0,0	17,7±0,2	34,3±0,3
	1050	0,9±0,0	18,3±0,4	34,1±0,5
	1075	0,9±0,1	18,4±0,5	35,4±0,6
	1100	0,8±0,0	24,0±2,2	42,1±0,5

RL^a - Retração linear de queima; ^bAA – Absorção de água; ^cPA – Porosidade aparente; C0^d: Massa cerâmica sem chamote e representativa de C1.

É possível observar comportamentos diferentes ao comparar as composições. Os valores de retração linear das amostras C0, C10 e C20 aumentam com o progresso da sinterização, ao contrário das amostras C30 e C40 que apresentaram uma leve diminuição, entretanto essas variações não foram muito significativas. Esses resultados parecem indicar que a adição do chamote na formulação promoveu baixa retração nas peças cerâmicas. Isso pode ser atribuído a presença de algumas partículas de granulometria mais grosseira do chamote que pode dificultado o empacotamento das partículas e a sua sinterização por fase líquida (Vieira et al., 2009).

Os valores de absorção de água e porosidade aparente se apresentaram decrescentes com o aumento da temperatura para as amostras C0, C10 e C20. Entretanto, foi observado o oposto nas amostras C30 e C40. Provavelmente, o baixo empacotamento proporcionado entre as partículas do chamote gerou vazios que podem atuar como poros. Comportamento similar foi observado por Vieira e Monteiro (2007), ao estudarem a incorporação de chamote da construção civil em formulações contendo argilas. Outros pesquisadores (Djangang et al., 2008) também observaram que a adição do chamote pode contribuir na porosidade de cerâmicas.

As imagens obtidas por microscopia eletrônica de varredura estão apresentadas na Figura 21 mostram as superfícies de fratura das amostras sinterizadas à 1100 °C para C1 e C2. As superfícies de fratura se apresentam rugosas com agregados de grãos envoltos por bastante fase vítrea. É possível verificar a presença de alguns poros pouco distribuídos ao longo das superfícies. Analisando essas imagens, as microestruturas parecem não apresentar diferença entre as amostras no que se refere a porosidade.

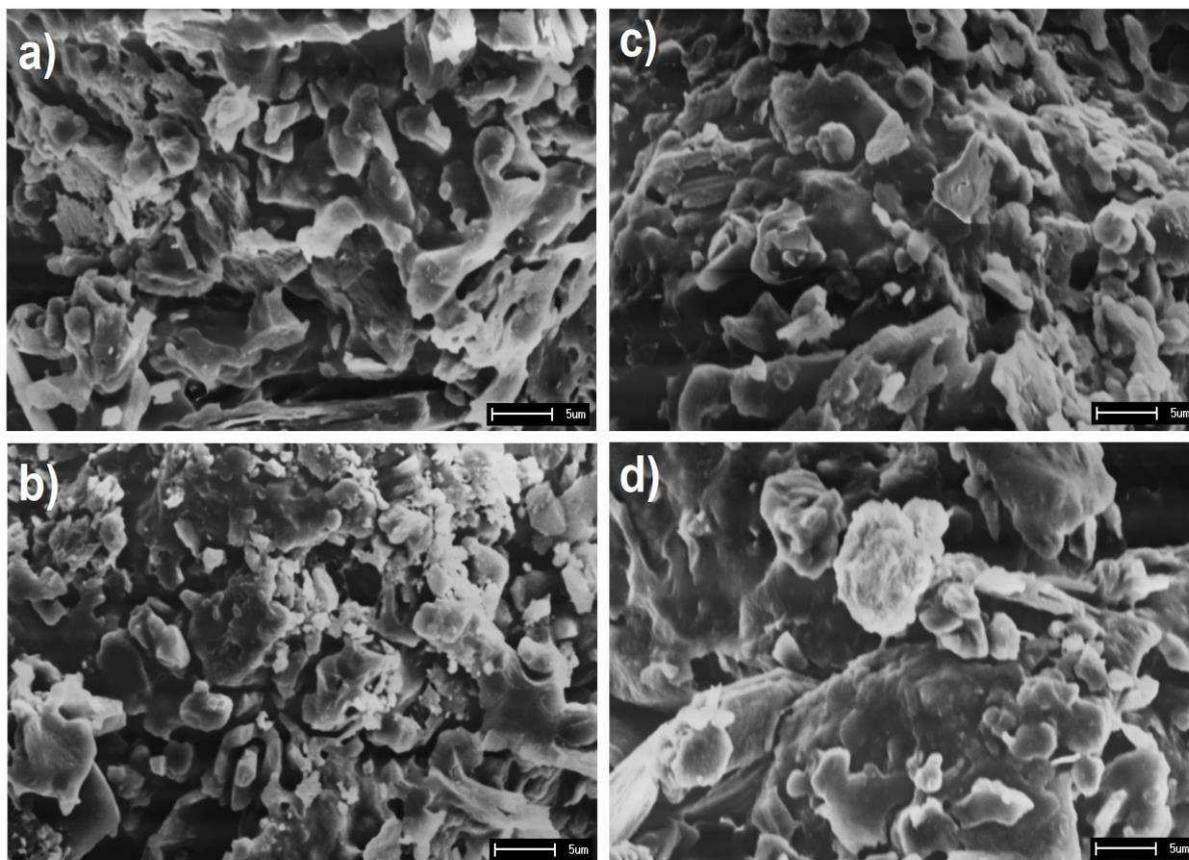


Figura 21 - Imagens obtidas por microscopia eletrônica de varredura das superfícies de fratura das amostras (a) C10 (b) C20 (c) C30 e (d) C40, sinterizadas à 1100 °C.

A Figura 22 mostra o comportamento mecânico das amostras sinterizadas. Pode-se observar que os módulos de ruptura à flexão se apresentaram crescentes com o aumento da temperatura para todas as composições, ou seja o comportamento observado se apresentou linear com o progresso da sinterização. No entanto, quando se compara as amostras com diferentes teores de chamote, verifica-se um comportamento diferente. Verifica-se que há um ganho na resistência mecânica nas amostras com adições de até 10% em peso de chamote até a temperatura de 1075 °C. Para adições subsequentes de chamote, tendo em vista as amostras C20 e C30, os módulos de ruptura à flexão começam a diminuir.

Analisando esses resultados, a adição de 40% em peso de chamote parece comprometer a resistência mecânica das peças cerâmicas. Estas amostras atingiram um dos valores mais baixo. Provavelmente, a presença de algumas partículas de granulometria grosseira do chamote dificilmente aderiram à massa

cerâmica, tornando-se pontos de concentração de tensão (Vieira et al., 2009), razão esta que pode ter levado a menor resistência mecânica.

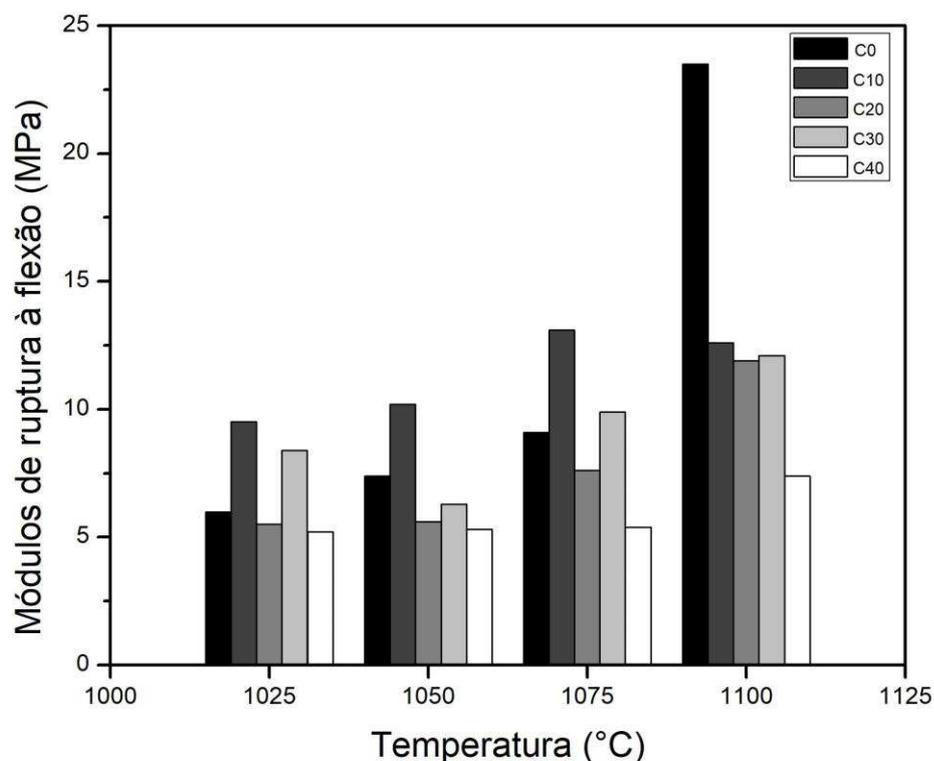


Figura 22 - Módulos de ruptura à flexão das amostras de todas as composições sem chamote (C0) e com chamote (C10, C20, C30 e C40).

Analisando todos esses resultados, fica evidenciada a relação entre a temperatura de sinterização e o teor de chamote com o comportamento mecânico das composições estudadas. Esses resultados corroboram com os dados apresentados anteriormente e mostram que a dição de chamote na massa pura da composição C1 contendo argila *ball clay*, alumina e talco, pode favorecer menor retração linear e menor resistência mecânica nas peças cerâmicas, e em alguns casos aumento na capacidade de absorção de água com o aumento da temperatura. Entretanto, os resultados indicam que não há diferença significativa entre as amostras sem chamote e com chamote.

4.7 Propriedades Físicas, Microestruturais e Mecânicas dos Corpos de Prova Extrudados da Composição 1

Todos os resultados experimentais referentes as propriedades físicas e mecânicas estão apresentados no APÊNDICE, neste tópico estarão os valores médios das mesmas.

A Figura 23 apresenta os resultados de retração linear dos tubos sinterizados. Os valores variaram de 2,4 a 6,1%, indicando que o aumento da temperatura de queima provocou a elevação da retração dos tubos cerâmicos. Como mencionado anteriormente, este fenômeno está associado a formação de fase líquida e ao processo de densificação.

Estes resultados foram mais elevados em comparação aos corpos de prova prensados. Isto se deve ao processo de conformação, já que a extrusão proporciona maior grau de homogeneidade da massa cerâmica, assim como também maior aproximação das partículas (Santos et al., 2017). O maior empacotamento proporcionado pela extrusão associada a maior quantidade de fase líquida favorecem a maior retração das peças cerâmicas (Carreiro et al., 2016).

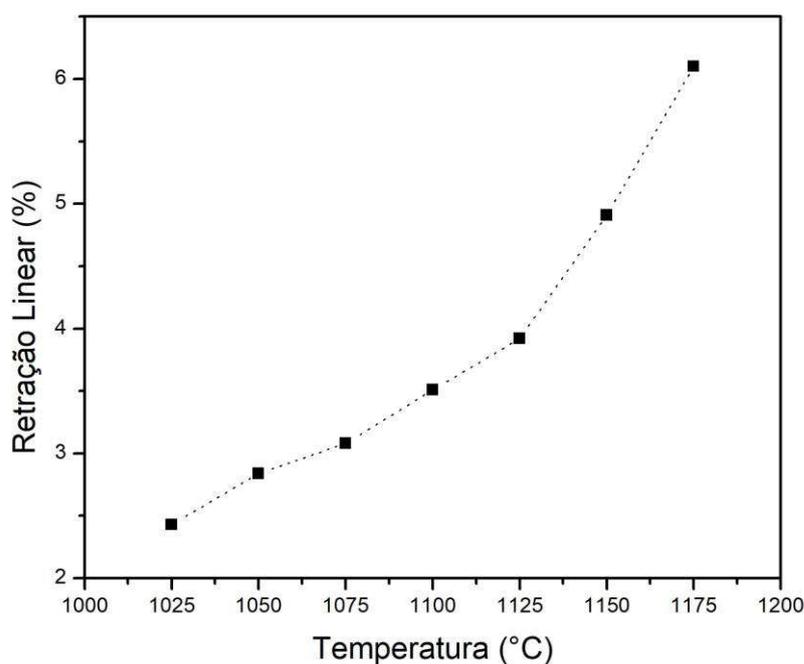


Figura 23 - Retração linear dos tubos C1 após sinterização.

Os resultados referentes a absorção de água e a porosidade aparente dos tubos estão representados na Figura 24.

Os maiores valores de absorção de água e porosidade aparente foram encontrados nos tubos sinterizados à 1025 °C, apresentando-se em média 18,9 e 36,6%, respectivamente. Os menores valores foram encontrados à 1175 °C, apresentando-se em média 1,1 e 2,7%. Como visto, os valores de porosidade dos tubos extrudados se apresentaram um pouco menor quando comparado as peças cerâmicas obtidas por prensagem. Essa diferença pode ser atribuída as propriedades plásticas das argilas, os quais prontamente formam uma pasta que pode ser facilmente extrudada para a forma desejada com baixa pressão de extrusão (Lorente-Ayza et al., 2015).

Comparando os valores obtidos com trabalhos encontrados na literatura em que foram utilizadas matérias-primas naturais na fabricação de membranas cerâmicas tubulares, destacam-se estudos realizados por (Silva e Lira, 2006). Esses pesquisadores produziram membranas tubulares de cordierita com porosidade máxima de 29,11%, entretanto foram utilizadas temperaturas mais elevadas, especificamente entre 1150 e 1280 °C.

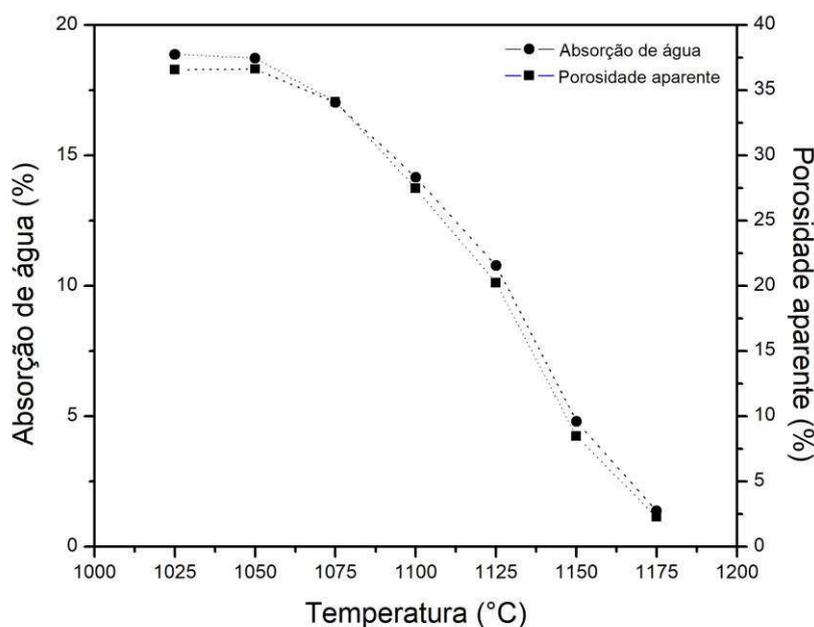


Figura 24 - Absorção de água e porosidade aparente dos tubos C1 após sinterização.

Com base nesses resultados, observa-se que a composição estudada permitiu a obtenção de cerâmicas porosas com características físicas, mecânicas e

microestruturais com potencial para aplicação em processos de separação por membranas. Nesse sentido, a porosidade aparente é um parâmetro muito importante quando se trata de membranas, já que a estrutura para microfiltração exige alta porosidade associada a alta permeabilidade (Rosa et al., 2006). Portanto, foram escolhidos os tubos sinterizados em 1025, 1050, 1075 e 1100 °C para tal aplicação, pois apresentaram os resultados de porosidade aparente mais satisfatórios.

A figura 25 apresenta as imagens das secções transversais dos tubos sinterizados. É possível observar a morfologia de cada tubo que apresenta partículas e poros interconectados de formatos variados, ambos bem distribuídos ao longo das secções transversais. A estrutura se assemelha a um conjunto de fendas e canais possivelmente interligando as superfícies externas e internas dos tubos. Esses poros mudam gradualmente com o progresso da sinterização se tornando mais largos, no entanto, a quantidade de poros diminuem.

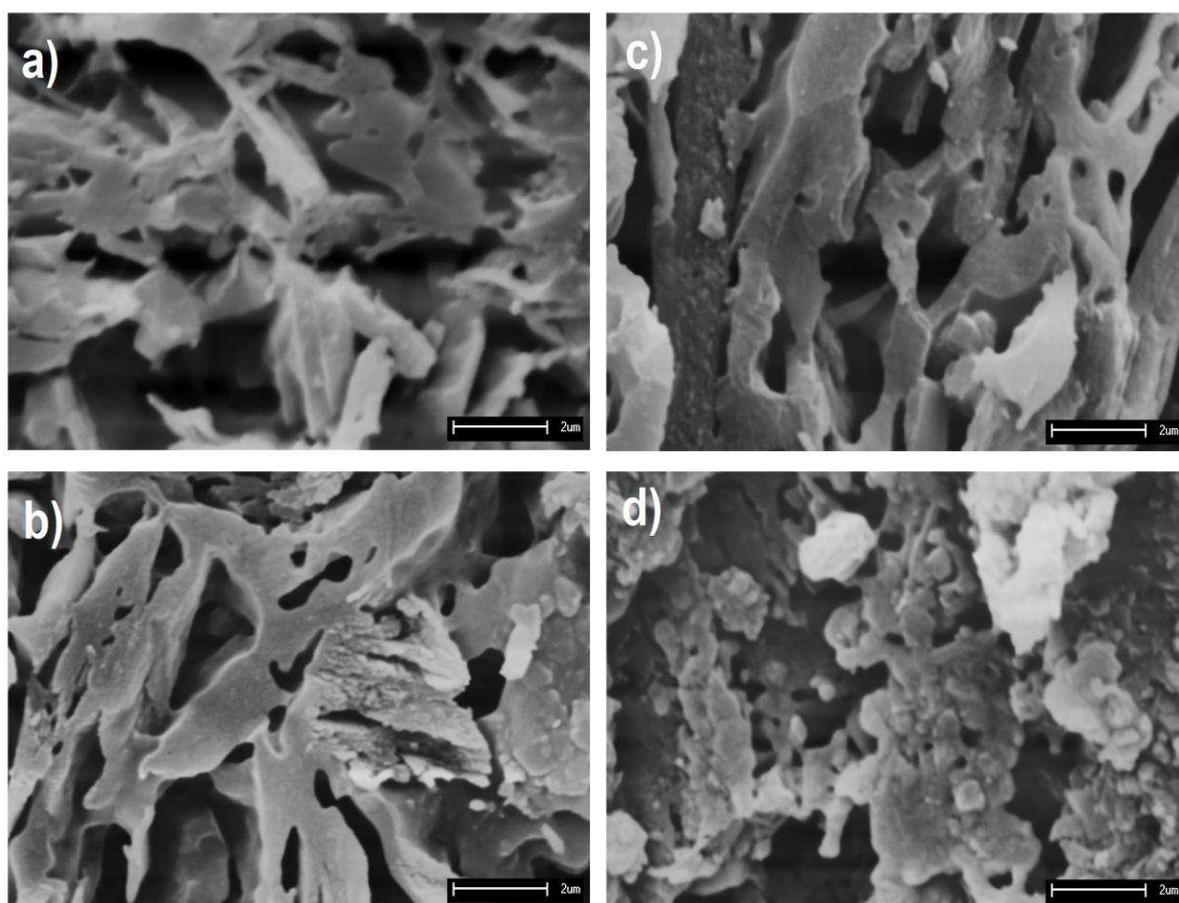


Figura 25 – Imagens obtidas por microscopia eletrônica de varredura das secções transversais dos tubos C1 sinterizados à (a) 1025 °C; (b) 1050 °C; (c) 1075 °C; (d) 1100 °C.

As imagens das secções longitudinais estão apresentadas na Figura 26. A presença de alguns poros esféricos que estão pouco distribuídos são observados ao longo dessas superfícies. Essas secções são menos porosas e mais lisas em comparação as secções transversais. Essa diferença se deve ao processo de conformação por extrusão que por sua vez, proporciona um alinhamento das partículas nessas superfícies em virtude do contato direto entre a peça do molde e a massa cerâmica.

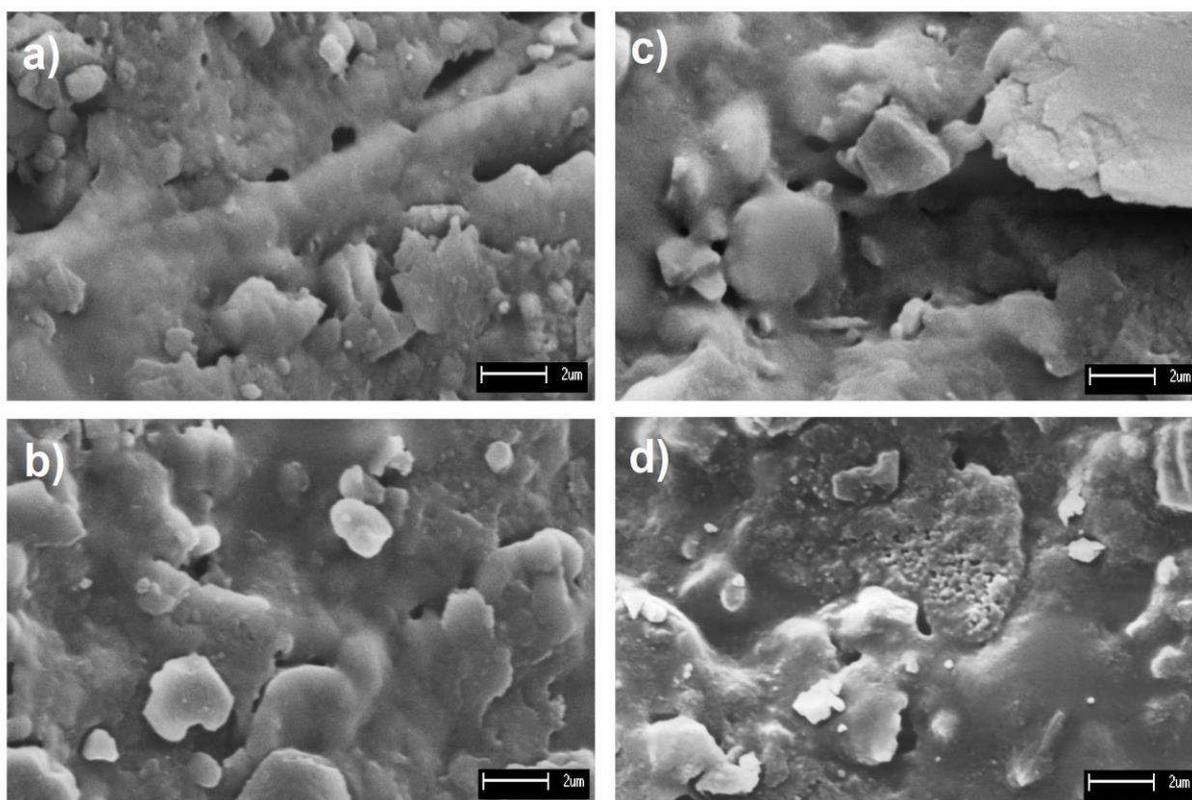


Figura 26 – Imagens obtidas por microscopia eletrônica de varredura das secções longitudinais dos tubos sinterizados à (a) 1025 °C; (b) 1050 °C; (c) 1075 °C; (d) 1100 °C.

4.8 Ensaio de Fluxo dos Tubos da Composição 1

Os resultados dos ensaios de fluxo com água destilada estão apresentados na Figura 26. Os resultados indicam um decréscimo no fluxo de 41,1 para 19,9 L.h/m² quando a temperatura é elevada. Foi observado que o fluxo apresentou um comportamento similar a porosidade aparente, diminuindo com o progresso da sinterização. Isso possivelmente indica que não houve mudança significativa no tamanho dos poros com o aumento da temperatura, indicando que o fluxo é mais

influenciado pela porosidade do que pelo tamanho do poro.

Resultados diferentes foram obtidos por Silva e Lira (2006), os quais estudaram membranas de cordierita obtidas a partir de misturas contendo *ball clay*, talco e bentonita sinterizadas entre 1150 e 1280 °C. Esses pesquisadores observaram que o aumento da temperatura provocou redução da porosidade aparente e elevação do fluxo permeado como consequência do aumento no tamanho dos poros.

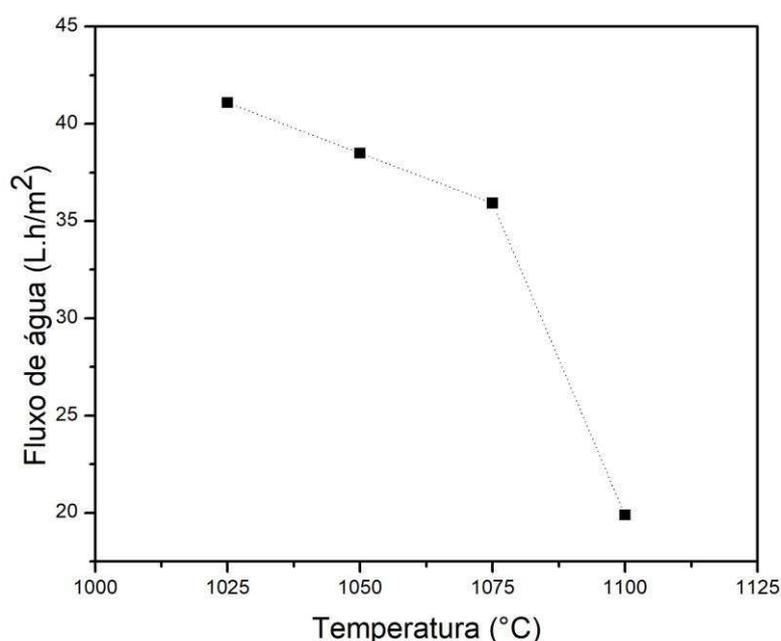


Figura 27 - Fluxo de água destilada dos tubos C1 em função da temperatura.

4.9 Análise da Mudança de Coloração em Função da Temperatura de Queima dos Corpos de Prova

A Figura 28 apresenta o resultado da análise de inspeção visual dos corpos de prova submetidos a aquecimento. Os corpos de prova apresentaram uma mudança acentuada na coloração com o aumento da temperatura. Isto se deve a presença do Fe_2O_3 na composição química da mistura, principal responsável pelo escurecimento da peça cerâmica quando submetida a aquecimento, ocasionada pelas reações de oxidação do ferro resultando em hematita. O alto teor deste óxido

pode indicar coloração avermelhada nas peças cerâmicas após sinterização (Taguchi et al., 2014).

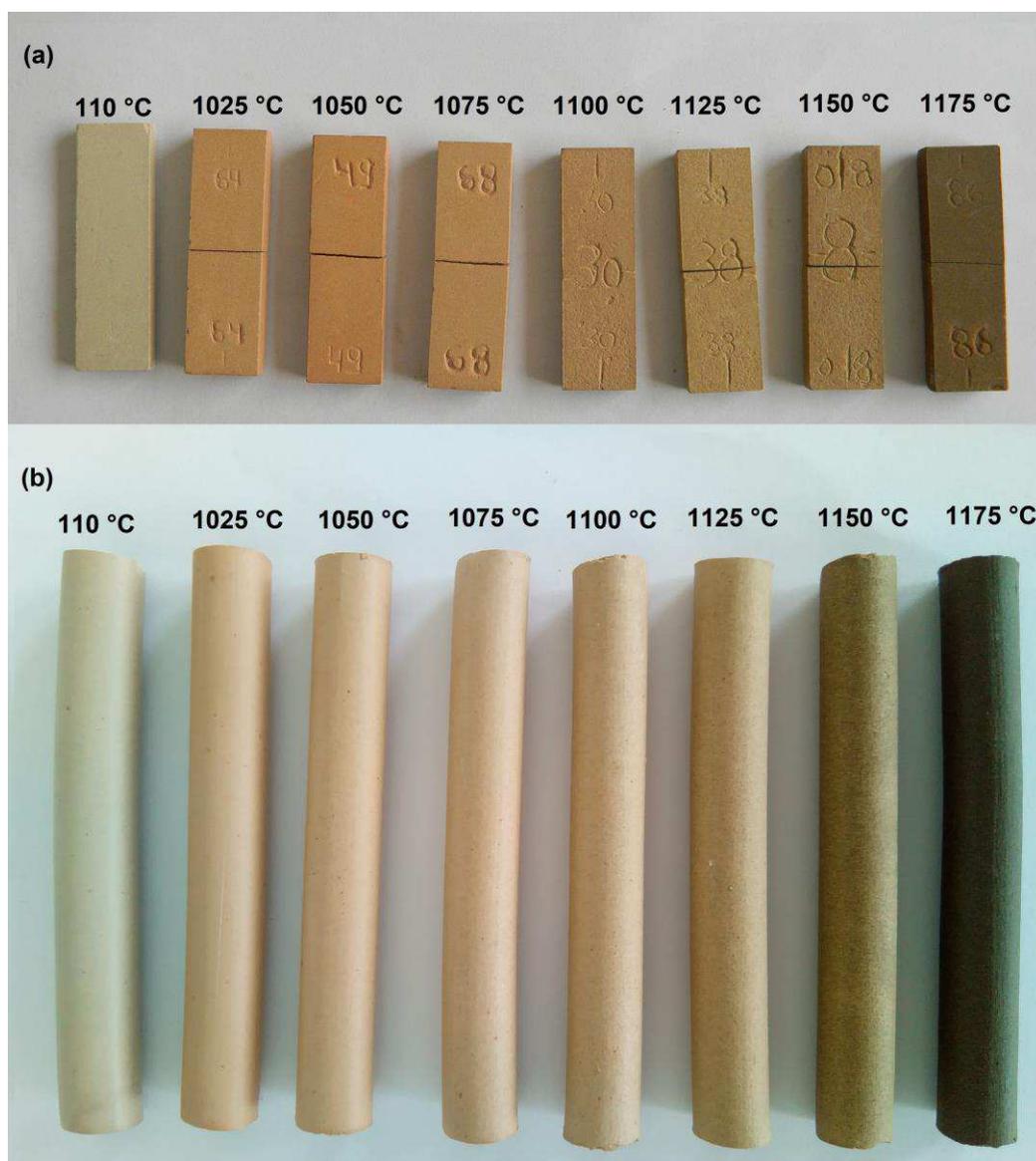


Figura 28 - Sequência dos corpos de prova das amostras C1 obtidas por (a) prensagem e (b) extrusão em ordem crescente de temperatura de sinterização.

5 CONCLUSÕES

- O presente trabalho permitiu a obtenção de cerâmicas porosas a partir da sinterização de formulações contendo argila *ball clay*, alumina, talco e chamote.
- As massas cerâmicas estudadas apresentaram composições químicas apropriadas para a fabricação de cerâmicas porosas de cordierita em virtude dos teores dos óxidos necessários para a formação deste mineral que são SiO_2 , Al_2O_3 e MgO . Além disso, também foi observado a presença de teores relevantes de Fe_2O_3 e CaO .
- Foi observado a predominância da fase α -cordierita (indialita) após sinterização à 1175 °C, acompanhado de safirina. Foi observado um teor de 51% dessa fase nessa temperatura de sinterização.
- As amostras da composição 1 sinterizadas à 1175 °C apresentaram os maiores valores de retração linear e melhor desempenho mecânico, o qual destacou maior quantidade de cordierita. Adicionalmente, os resultados mais satisfatórios de porosidade aparente e absorção de água foram encontrados na amostras sinterizadas entre 1025 e 1100 °C.
- Para o estudo da composição 2, a dição do chamote favoreceu baixa retração e baixos valores de resistência mecânica. Foi observado uma melhoria na capacidade de absorção de água das amostras C30 e C40 com o aumento da temperatura de sinterização. Entretanto, as variações não foram muito significativas.
- As análises microestruturais permitiram observar a presença de poros alongados e também de formatos variados, distribuídos ao longo das superfícies de fratura. Foram observados também a presença de cristais hexagonais da fase α -cordierita nas amostras sinterizadas à 1175 °C.
- Os tubos produzidos a partir da composição 1 apresentaram retração mais elevada em comparação aos corpos de prova prensados da mesma composição. A absorção de água e a porosidade aparente diminuíram consideravelmente com o progresso da sinterização.
- O fluxo mais elevado foi identificado nos tubos sinterizadas à 1025 °C alcançando um máximo de 41,1 L.h/m², valor este que diminuiu com o

aumento da temperatura, alcançando um mínimo de 19,9 L.h/m² à 1100 °C. Além disso, o fluxo das membranas é mais influenciado pela porosidade do que pelo tamanho dos poros.

- Os resultados obtidos com esta pesquisa indicam a potencialidade desta formulação para produção cerâmicas de baixo custo.

SUGESTÕES PARA TRABALHOS FUTUROS

Formular novas composições a partir de outras matérias-primas naturais, fazendo-se o uso também de resíduos que apresentem composições químicas apropriadas para a obtenção de cerâmicas porosas de cordierita;

Estudar novas variáveis de processamento como taxas de aquecimento e resfriamento, granulometria, tempos de patamar, etc;

Avaliar a potencialidade das composições estudadas como membranas, como também para outras aplicações incluindo refratários, materiais elétricos, filtros para gases, etc;

Realizar novos testes de fluxo com pressões mais elevadas;

Realizar testes de separação água/óleo, efluentes e resíduos industriais nas cerâmicas porosas obtidas;

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

ACIMOVIC, Z.; PAVLOVIC, L.; TRUMBULOVIC, L.; ANDRIC, L.; STAMATOVIC, M. Synthesis and characterization of the cordierite ceramics from nonstandard raw materials for application in foundry. **Materials Letters**, v. 57, n. 18, p. 2651–2656, 2003.

AL-HARBI, O. A.; OZGUR, C.; KHAN, M. M. Fabrication and characterization of single phase cordierite honeycomb monolith with porous wall from natural raw materials as catalyst support. **Ceramics International**, v. 41, p. 3526–3532, 2015.

ALBARO, J. L. A. A operação de prensagem: considerações técnicas e sua aplicação industrial, parte V: descrição da etapa de prensagem. **Cerâmica Industrial**, v. 6, p. 26–32, 2001.

ALMANDOZ, M.; PRÁDANOS, P.; PALACIO, L.; HERNÁNDEZ, A. Preparation and characterization of non-supported microfiltration membranes from aluminosilicates. **Journal of Membrane Science**, v. 241, p. 95–103, 2004.

ALMEIDA, E. P.; BRITO, I. P.; FERREIRA, H. C.; LIRA, H. L.; SANTANA, L. N. L.; NEVES, G. A. Cordierite obtained from compositions containing kaolin waste, talc and magnesium oxide. **Ceramics International**, v. 44, p. 1719–1725, 2018.

AMORÓS, J. L. A Operação de prensagem: considerações técnicas e sua aplicação industrial parte I: o preenchimento das cavidades do molde. **Cerâmica Industrial**, v. 5, p. 23–28, 2000.

ARMOA, M. H.; JR, M. J. Princípios e aplicações de processos de separação por membranas inorgânicas. **Ciência & Tecnologia: FATEC-JB**, v. 2, p. 80–97, 2011.

AWANO, M.; TAKAGI, H.; KUWAHARA, Y. Grinding Effects on the Synthesis and Sintering of Cordierite. **Journal of the American Ceramic Society**, v. 75, n. 9, p. 2535–2540, 1992.

BACCOUR, H.; MEDHIOUB, B.; JAMOSSI, F.; MHIRI, T. Influence of firing temperature on the ceramic properties of Triassic clays from Tunisia. **Journal of Materials Processing Technology**, v. 209, p. 2812–2817, 2009.

BARG, S.; SOLTMAN, C.; ANDRADE, M.; KOCH, D.; GRATHWOHL, G. Cellular Ceramics by Direct Foaming of Emulsified Ceramic Powder Suspensions. **Journal of the American Ceramic Society**, v. 91, p. 2823–2829, 2008.

BASILE, A.; NUNES, S. P. **Advanced membrane science and technology for sustainable energy and environmental applications**. 1st. ed. Sawston, Cambridge: Woodhead Pub, 2011.

BELIBI BELIBI, P.; NGUEMTCHOUIN, M. M. G.; RIVALLIN, M.; NDI NSAMI, J.; SIELIECHI, J.; CERNEAUX, S.; NGASSOUM, M. B.; CRETIN, M. Microfiltration ceramic membranes from local Cameroonian clay applicable to water treatment. **Ceramics International**, v. 41, p. 2752–2759, 2015.

BENHAMMOU, A.; HA, Y EL.; ABOURRICHE, A.; ABOULIATIM, Y.; NIBOU, LYAACOUBI, A.; TESSIER-DOYEN, N.; SMITH, A.; TANOUTI, B. Influence of sintering temperature on the microstructural and mechanical properties of cordierite synthesized from andalusite and talc. **Materials Letters**, v. 172, p. 198–201, 2016.

BHAVE, R. R. **Inorganic membranes synthesis, characteristics and applications**. 1st. ed. Dordrecht: Springer Netherlands, 1991. ISBN 978-94-011-6547-1

BOSE, S.; DAS, C. Preparation and characterization of low cost tubular ceramic support membranes using sawdust as a pore-former. **Materials Letters**, v. 110, p. 152–155, 2013.

BOUDAIRA, B.; HARABI, A.; BOUZERARA, F.; CONDOM, S.; ZENIKHERI, F.; GUECHI, A.; FOUGHALI, L.; KARBOUA, N. Preparation and characterization of ZnO microfiltration membrane and its support using kaolin (DD3) and CaCO₃. **Cerâmica**, v. 62, p. 186–190, 2016.

BRITO, F. I. G.; MEDEIROS, K. F.; LOURENÇO, J. M. Um estudo teórico sobre a sinterização na metalurgia do pó. **Holos**, v. 3, p. 204–211, 2007.

CARREIRO, M. E. A. SANTOS, R. C.; SILVA, V J.; LIRA, H. L.; NEVES, G A.; MENEZES, R. R.; SANTANA, L. N. L. Resíduo de quartzito - matéria-prima alternativa para uso em massas de cerâmica estrutural. **Cerâmica**, v. 62, p. 170–178, 2016.

CARTAXO, J. M. BASTOS, P. DE M.; SANTANA, L. N. L.; MENEZES, R. R.; NEVES, G. A.; FERREIRA, H. C. Estudo de novas ocorrências de argilas plásticas (ball clays) do Brasil para uso em cerâmicas refratárias. **Cerâmica**, v. 62, p. 338–344, 2016.

CHAVES, A. C. LIRA, H. L.; NEVES, G. A.; SILVA, F. A.; LIMA, R. C. O. Obtenção e caracterização de membranas cerâmicas tubulares a partir de massas incorporadas com argila, caulim e quartzo. **Cerâmica**, v. 59, p. 192–197, 2013.

COELHO, A. C. V.; SANTOS, P. DE S. Argilas Especiais: O que são, caracterização e propriedades. **Química Nova**, v. 30, p. 146–152, 2007a.

COELHO, A. C. V.; SANTOS, P. DE S. Argilas especiais: argilas quimicamente modificadas - Uma revisão. **Química Nova**, v. 30, p. 1282–1294, 2007b.

CONSTANTINO, V. R. L.; ARAKI, K.; SILVA, D. O.; OLIVEIRA, W. Preparação de compostos de alumínio a partir da bauxita: Considerações sobre alguns aspectos envolvidos em um experimento didático. **Química Nova**, v. 25, p. 490–498, 2002.

DAS, B. .; CHAKRABARTY, B. .; BARKAKTI, P. . Preparation and characterization of low cost ceramic membranes for micro-filtration applications. **Ceramics International**, v. 42, p. 14326–14333, 2016.

DJANGANG, C. N.; MELO, U. C.; LECOMTE, G. L.; NKOUMBOU, C.; SORO, J.; BONNET, J. P.; BLANCHART, P.; NJOPWOUO, D. Sintering of clay-chamotte ceramic composites for refractory bricks. **Ceramics International**, v. 34, p. 1207–1213, 2008.

DONG, Y.; CHEN, S.; ZHANG, X.; YANG, J.; LIU, X.; MENG, G. Fabrication and characterization of low cost tubular mineral-based ceramic membranes for micro-filtration from natural zeolite. **Journal of Membrane Science**, v. 281, p. 592–599, 2006a.

DONG, Y.; LIU, X.; MA, Q.; MENG, G. Preparation of cordierite-based porous ceramic micro-filtration membranes using waste fly ash as the main raw materials. **Journal of Membrane Science**, v. 285, p. 173–181, 2006b.

DONG, Y.; FENG, X.; DONG, D.; WANG, S.; YANG, J.; GAO, J.; LIU, X.; MENG, G. Elaboration and chemical corrosion resistance of tubular macro-porous cordierite ceramic membrane supports. **Journal of Membrane Science**, v. 304, n. 1–2, p. 65–75, 2007.

EOM, J-H.; KIM, Y-W.; RAJU, S. Processing and properties of macroporous silicon carbide ceramics: A review. **Journal of Asian Ceramic Societies**, v. 1, p. 220–242, 2013.

FIGOLI, A.; SIMONE, S.; DRIOLI, E. Polymeric Membranes. In: HILAL, N.; ISMAIL, A. F.; WRIGHT, C. (Eds.). **Membrane Fabrication**. 1st. ed. Boca Raton, FL: Taylor & Francis Group, 2015. p. 33–44. ISBN 1482210460.

FREITAS, C. S. R. PEREIRA, Í. A. F. S.; PEREIRA, M. L. G.; SIMÕES, T. C. R.; FERREIRA, A. A. L. Influência de Diferentes Processos de Conformação nas Características Finais de Produtos Cerâmicos. **Cerâmica Industrial**, v. 14, p. 15–18, 2009.

GARCÍA, E.; GANCEDO, J. R.; GRACIA, M. Effect of cycled combustion ageing on a cordierite burner plate. **Materials Characterization**, v. 61, p. 1147–1156, 2010.

GASS, S. E.; SANDOVAL, M. L.; TALOU, M. H.; MARTINEZ, A. G. T.; CAMERUCCI, M. A.; GREGOROVÁ, E.; PABST, W. High Temperature Mechanical Behavior of Porous Cordierite-based Ceramic Materials Evaluated Using 3-point Bending. **Procedia Materials Science**, v. 9, p. 254–261, 2015.

GHITULICA, C.; ANDRONESCU, E.; NICOLA, O.; DICEA, A.; BIRSAN, M. Preparation and characterization of cordierite powders. **Journal of the European Ceramic Society**, v. 27, p. 711–713, 2007.

GÖKÇE, H.; AĞAOĞULLARI, D.; ÖVEÇOĞLU, M. L.; DUMAN, I.; BOYRAZ, T. Characterization of microstructural and thermal properties of steatite/cordierite ceramics prepared by using natural raw materials. **Journal of the European Ceramic Society**, v. 31, p. 2741–2747, 2011.

GONZÁLEZ-VELASCO, J. R. FERRET, R.; LÓPEZ-FONSECA, R.; GUTIÉRREZ-ORTIZ, M. A. Influence of particle size distribution of precursor oxides on the synthesis of cordierite by solid-state reaction. **Powder Technology**, v. 153, p. 34–42, 2005.

GOREN, R.; GOCMEZ, H.; OZGUR, C. Synthesis of cordierite powder from talc, diatomite and alumina. **Ceramics International**, v. 32, p. 407–409, 2006a.

GOREN, R.; OZGUR, C.; GOCMEZ, H. The preparation of cordierite from talc, fly ash, fused silica and alumina mixtures. **Ceramics International**, v. 32, n. 1, p. 53–56, 2006b.

HABERT, A. C.; PIACSEK, C.; NOBREGA, R. **Processos de Separação por Membranas**. 1. ed. Rio de Janeiro: Serviços Editoriais Ltda, 2006. ISBN 857650085X.

HAMMEL, E. C.; IGHODARO, O. L.-R.; OKOLI, O. I. Processing and properties of advanced porous ceramics: An application based review. **Ceramics International**, v. 40, p. 15351–15370, 2014.

HUANCA, K. Z.; NUNES, A. B. DE A. Obtenção de espumas cerâmicas a partir de resíduo da terra diatomácea e ignimbrita pelo método de réplica. **Cerâmica**, v. 62, p. 110–114, 2016.

HUMMEL, F. A. D. **Introduction to phase equilibria in ceramics Systems**. Marcel Dekker, Inc., 1984. ISBN 0-8247-7152-4.

HWANG, S.-P.; WU, J.-M. Effect of composition on microstructural development in. **The American Ceramic Society**, v. 84, p. 1108–1112, 2001.

IUPAC. Recommendations for the characterization of porous solids. **International Union of Pure and Applied Chemistry**, v. 66, p. 1739-1758, 1994.

JEAN, J.-H.; GUPTA, T. K. Liquid-phase sintering in the glass-cordierite system. **Journal of Materials Science**, v. 27, p. 1575–1584, 1992.

JEDIDI, I.; KHEMAKHEM, S.; LARBOT, A.; BEN AMAR, R. Elaboration and characterisation of fly ash based mineral supports for microfiltration and ultrafiltration membranes. **Ceramics International**, v. 35, p. 2747–2753, 2009.

JIANG, F.; LI, YU; ZHAO, L.; CANG, D. Novel ceramics prepared from inferior clay rich in CaO and Fe₂O₃: Properties, crystalline phases evolution and densification process. **Applied Clay Science**, v. 143, p. 199–204, 2017.

KHABAS, T. A.; VERESHCHAGIN, V. I.; V, VAKALOVA T.; KIRCHANOV A. A.; KULIKOVSKAYA, N. A.; KOZHEVNIKOVA, N. G. Low-temperature synthesis of the cordierite phase in ceramic mixtures of natural raw materials. **Refractories and Industrial Ceramics**, v. 44, p. 181–185, 2003.

KUSCER, D.; BANTAN, I.; HROVAT, M.; MALIČ, B. The microstructure, coefficient of thermal expansion and flexural strength of cordierite ceramics prepared from alumina with different particle sizes. **Journal of the European Ceramic Society**, v. 37, p. 739–746, 2017.

LABRINCHA, J. A.; ALBUQUERQUE, C. M.; FERREIRA, J. M.; RIBEIRO, M. J. Electrical characterisation of cordierite bodies containing Al-rich anodising sludge. **Journal of the European Ceramic Society**, v. 26, n. 4–5, p. 825–830, 2006.

LI, Y.; QIAN, H.; CHENG, X.; ZHANG, R.; ZHANG, H. Fabrication of dense cordierite ceramic through reducing Al₂O₃ mole ratio. **Materials Letters**, v. 116, p. 262–264, 2014.

LI, Y.; CHENG, X.; ZHANG, R.; WANG, Y.; ZHANG, H. Effect of Excess MgO on the Properties of Cordierite Ceramic Sintered by Solid-State Method. **International Journal of Applied Ceramic Technology**, v. 12, p. 443–450, 2015.

LIMA, R. C. O.; LIRA, H. L.; NEVES, G. A.; SILVA, M. C.; SILVA, C. D. Aproveitamento do resíduo de serragem de granito para fabricação de membranas cerâmicas de baixo custo. **Remap**, v. 3, p. 163–169, 2011.

LIU, C.; LIU, L.; TAN, K.; ZHANG, L.; TANG, K.; SHI, X. Fabrication and characterization of porous cordierite ceramics prepared from ferrochromium slag. **Ceramics International**, v. 42, p. 734–742, 2016.

LIU, P. S.; CHEN, G-F. **Porous materials: processing and applications**. Elsevier Science, 2014.

LORENTE-AYZA, M. M.; MESTRE, S.; MENÉNDEZ, M.; SÁNCHEZ, E. Comparison of extruded and pressed low cost ceramic supports for microfiltration membranes. **Journal of the European Ceramic Society**, v. 35, p. 3681–3691, 2015.

MACEDO, R. S.; MENEZES, R. R.; NEVES, G. A. Estudo de argilas usadas em cerâmica vermelha (Study of clays used in red ceramic). **Cerâmica**, v. 54, p. 411–417, 2008.

MAESTRELLI, S. C.; ROVERI, C. D.; NUNES, A. G. P.; FAUSTINO, L. M.; AIELO, G. F.; PINTO, L. P. A.; MANOCHIO, C.; CAL, T. M. L.; RIBEIRO, F. F.; MARIANO, N. A. Estudo de caracterização de argilas não plásticas da região de Poços de Caldas , MG. **Cerâmica**, v. 59, p. 242–248, 2013.

MAJUMDER, M.; MUKHOPADHYAY, S.; PARKASH, O.; KUMAR, D. Sintering and crystallisation behaviour of chemically prepared cordierite for application in electronic

packaging. **Ceramics International**, v. 30, p. 1067–1070, 2004.

MEDEIROS, R. R.; CARTAXO, J. M.; FERREIRA, H. S.; NEVES, G. A.; FERREIRA, H. C. Influência do uso de resíduo de quartzito na expansão por umidade de massas de revestimentos cerâmicos planos. **Cerâmica**, v. 63, p. 134–142, 2017.

MENCHI, A. M.; SCIAN, A. N. Mechanism of cordierite formation obtained by the sol – gel technique. v. 59, p. 2664–2667, 2005.

MENEZES, R. R.; FERREIRA, H. S.; NEVES, G. A.; FERREIRA, H. C. Caracterização de argilas plásticas do tipo “ball clay” do litoral paraibano. **Cerâmica**, v. 49, p. 120–127, 2003.

MIYASHIRO, A.; IYAMA, T.; YAMASAKI, M.; MIYASHIRO, T. The Polymorphism of cordierite and indialite. **American Journal of Science**, v. 253, p. 185–208, 1955.

MULDER, M. **Basic Principles of Membrane Technology**. 2nd. ed. Dordrecht: Springer Netherlands, 1996. ISBN 978-0-7923-4248-9.

NADAFAN, M.; MALEKFAR, R.; DEHGHANI, Z.; KHORRAMI, G. H. Synthesis and Analysis of Optical Properties of Cordierite Nanopowder Prepared by the Pechini Method. **Procedia Materials Science**, v. 11, p. 331–335, 2015.

NAGA, S. M.; SAYED, M.; ELMAGHRABY, H. F.; KHALIL, M. S. Fabrication and properties of cordierite/anorthite composites. **Ceramics International**, v. 43, p. 6024–6028, 2017.

NATH, K. **Membrane separation processes**. 1st. ed. New Delhi: Prentice-Hall of India, 2017. ISBN 8120335325.

NATH, S. K. .; KUMAR, S.; KUMAR, R. Effect of mechanical activation on cordierite synthesis through solid-state sintering method. **Bulletin of Materials Science**, v. 37, p. 1121–1226, 2014.

NISHIHORA, R. K.; RACHADEL, P. L.; QUADRI, M. G. N.; HOTZA, D. Manufacturing porous ceramic materials by tape casting - A review. **Journal of the European Ceramic Society**, v. 38, p. 988–1001, 2018.

NJOYA, D.; ELIMBI, A.; FOUEJIO, D.; HAJJAJI, M. Effects of two mixtures of kaolin-talc-bauxite and firing temperatures on the characteristics of cordierite-based ceramics. **Journal of Building Engineering**, v. 8, p. 99–106, 2016.

OGIWARA, T.; NODA, Y.; SHOJI, K.; Solid state synthesis and its characterization of high density cordierite ceramics using fine oxide powders. **Journal of the Ceramic Society of Japan**, v. 118, p. 246-249, 2010.

OHJI, T.; FUKUSHIMA, M. Macro-porous ceramics: processing and properties. **International Materials Reviews**, v. 57, n. 2, p. 115–131, 2012.

OHSATO, H.; KIM, J-S; CHEON, CHAE-IL; KAGOMIYA, I. Crystallization of indialite/cordierite glass ceramics for millimeter-wave dielectrics. **Ceramics International**, v. 41, p. S588–S593, 2015.

OIKONOMOPOULOS, I. K.; PERRAKI, M.; TOUGIANNIDIS, N.; PERRAKI, T.; KASPER, H. U.; GURK, M. Clays from Neogene Achlada lignite deposits in Florina basin (Western Macedonia, N. Greece): A prospective resource for the ceramics industry. **Applied Clay Science**, v. 103, p. 1–9, 2015.

RAHAMAN, M. N. **Ceramic processing and sintering**. 5. ed. New York: 2006. ISBN 0-8247-0988-8.

RAO, E. S.; MANOHAR, P. Processing Research Effect of particle size on high purity cordierite for kiln furniture applications. **Ceramic Processing Research**, v. 17, p. 1–6, 2016.

ROSA, D. S.; SALVINI, V. R.; PANDOLFELLI, V. C. Processamento e avaliação das propriedades de tubos cerâmicos porosos para microfiltração de emulsões. **Cerâmica**, v. 52, p. 167–171, 2006.

SANTOS, P. D. S. **Ciência e Tecnologia de Argilas**. 2nd. ed. São Paulo: Edgard Bluvher, 1989. ISBN 13: 9788521201984.

SANTOS, R. C.; SILVA, T. R.; NEVES, G. A.; MACEDO, R. S.; MENEZES, R. R.; SANTANA, L. N. L. Interação entre características de argilas e parâmetros de processamento sobre propriedades tecnológicas de corpos cerâmicos. **Cerâmica**, v. 63, p. 361–368, 2017.

SCHREYER, W.; SCHAIRER, J. F. Compositions and Structural States of Anhydrous Mg-Cordierites: A Re-investigation of the Central Part of the System MgO-Al₂O₃-SiO₂. **Journal of Petrology**, v. 2, p. 324–406, 1961.

SILVA, F. A. **Desenvolvimento de membranas cerâmicas tubulares a partir de matérias-primas regionais para processo de microfiltração**. 2009. 146f. Tese (Doutorado em Ciência e Engenharia de Materiais). Programa de Pós graduação em Ciência e Engenharia de Materiais, Universidade Federal de Campina Grande - UFCG, Campina Grande - PB 2009.

SILVA, F. A.; LIRA, H. L. Preparação e caracterização de membranas cerâmicas de cordierita. **Cerâmica**, v. 52, p. 276–282, 2006.

SILVA, M. C.; LIRA, H. L.; LIMA, R. C. O.; FREITAS, N. L. Effect of Sintering Temperature on Membranes Manufactured with Clays for Textile Effluent Treatment. **Advances in Materials Science and Engineering**, v. 2015, p. 1–7, 2015a.

SILVA, M. C.; LIRA, D. S.; FREITAS, N. L.; LIRA, H. L. Membranas cerâmicas assimétricas tubulares: influência do tempo de deposição da camada filtrante na morfologia das membranas. **Matéria**, v. 20, p. 335–343, 2015b.

SOUZA, A. E.; TEIXEIRA, S. R.; SANTOS, G. T. A.; LONGO, E. Addition of sedimentary rock to kaolinitic clays: influence on sintering process. **Cerâmica**, v. 59, n. 349, p. 147–155, 2013.

STUDART, A. R.; GONZENBACH, U. T.; TERVOORT, E.; GAUCKLER, L. J. Processing routes to macroporous ceramics: A review. **Journal of the American Ceramic Society**, v. 89, p. 1771–1789, 2006.

TAGUCHI, S. P.; SANTOS, J. C.; GOMES, T. M.; CUNHA, N. A. Avaliação das propriedades tecnológicas de cerâmica vermelha incorporada com resíduo de rocha ornamental proveniente do tear de fio diamantado. **Cerâmica**, v. 60, p. 291–296, 2014.

TORRES, F. J.; ALARCÓN, J. Effect of MgO/CaO ratio on the microstructure of cordierite-based glass-ceramic glazes for floor tiles. **Ceramics International**, v. 31, p. 683–690, 2005.

TSURU, T. Inorganic porous membranes for liquid phase separation. **Separation & Purification Reviews**, v. 30, p. 191–220, 2001.

VAKIFAHMETOGLU, C.; ZEYDANLI, D.; COLOMBO, P. Porous polymer derived ceramics. **Materials Science and Engineering R**, v. 106, p. 1–30, 2016.

VIEIRA, C. M. F.; TEIXEIRA, S. S.; MONTEIRO, S. N. Efeito da temperatura de queima nas propriedades e microestrutura de cerâmica vermelha contendo chamote. **Cerâmica**, v. 55, n. 335, p. 332–336, 2009.

VIVALDINI, D. O.; MOURÃO, A. A. C.; SALVINI, V. R.; PANDOLFELLI, V. C. Revisão: Fundamentos e materiais para o projeto da microestrutura de isolantes térmicos refratários de alto desempenho. **Cerâmica**, v. 60, p. 297–309, 2014.

WANG, S. Effects of Fe on crystallization and properties of a new high infrared radiance glass-ceramics. **Environmental Science and Technology**, v. 44, p. 4816–4820, 2010.

WANG, S. M.; YANG, S.; SUN, K.; QI, L. H. Crystallization and infrared radiation properties of iron ion doped cordierite glass-ceramics. **Journal of Alloys and Compounds**, v. 509, p. 2819–2823, 2011.

WIECK, R.; DUAILIBI, J. Extrusão em Cerâmica Vermelha: Princípios Básicos, Problemas e Soluções. **Cerâmica Industrial**, v. 18, p. 16–23, 2013.

WILLIAM D. CALLISTER, J. **Ciência e Engenharia de Materiais: Uma Introdução**. 5. ed. Rio de Janeiro: John Wiley & Sons, Inc., 2002.

ZDRAVKOV, B. D.; ČERMÁK, J. J.; ŠEFARA, M.; JANKŮ, J. Pore classification in the characterization of porous materials: A perspective. **Central European Journal of Chemistry**, v. 5, n. 2, p. 385–395, 2007.

ZHANG, F.; QI, C-X; WANG, S.; LIU, J-H; CAO, H. A study on preparation of cordierite gradient pores porous ceramics from rectorite. **Solid State Sciences**, v. 13, p. 929–933, 2011.

ZHANG, L.; OLHERO, S.; FERREIRA, J. M. F. Thermo-mechanical and high-temperature dielectric properties of cordierite-mullite-alumina ceramics. **Ceramics International**, v. 42, n. 15, p. 16897–16905, 2016.

ZHAO, L.; LI, Y.; ZHOU, Y.; CANG, D. Preparation of novel ceramics with high CaO content from steel slag. **Materials & Design**, v. 64, p. 608–613, 2014.

APÊNDICE

Formulação da massa cerâmica da composição C1

O cálculo da formulação foi realizado com base na análise química por fluorescência de raios X das matérias-primas e no diagrama ternário $\text{SiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-MgO}$ (Figura 28). O cálculo da composição química foi realizado correspondendo a estequiometria da cordierita ($2\text{MgO} \cdot 2\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 5\text{SiO}_2$) que são 13,8% de MgO, 34,8% de Al_2O_3 e 51,4% de SiO_2 .

Para a marcação dos pontos no diagrama, foram levados em consideração somente o SiO_2 , Al_2O_3 e MgO que são os óxidos que compõem a cordierita. Foi calculado uma nova percentagem referente a estes óxidos em cada matéria-prima. Dessa maneira, as novas percentagens obtidas estão representadas na Tabela 8 e apresentadas no diagrama ternário (Figura 28).

Tabela 8 - Dados obtidos a partir dos pontos no diagrama ternário.

Pontos no diagrama	SiO_2 (%)	Al_2O_3 (%)	MgO (%)
A ¹	64,5	33,4	2,1
B ²	0,3	99,7	0
C ³	62,7	14,0	23,3
D ⁴	47,5	35,5	17,0
E ⁵	64,0	19,0	17,0
F ⁶	34,5	64,5	1,0
I ⁷	51,4	34,8	13,8

¹Argila plástica ball clay; ²Alumina; ³Talco; ⁴Interseção da reta BC; ⁵E – Interseção da reta AC; ⁶F – Interseção da reta AB; ⁷I – Composição teórica da cordierita.

Na Figura 30 está representado o diagrama ternário $\text{SiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-MgO}$ apresentando o ponto da mistura referente a massa cerâmica C0. Analisando, pode-se observar que a composição estudada se apresentou próxima do ponto estequiométrico da cordierita como mencionado anteriormente. Além disso, o ponto está situado numa região que coexiste em equilíbrio as fases cordierita, safirina, mulita e líquido.

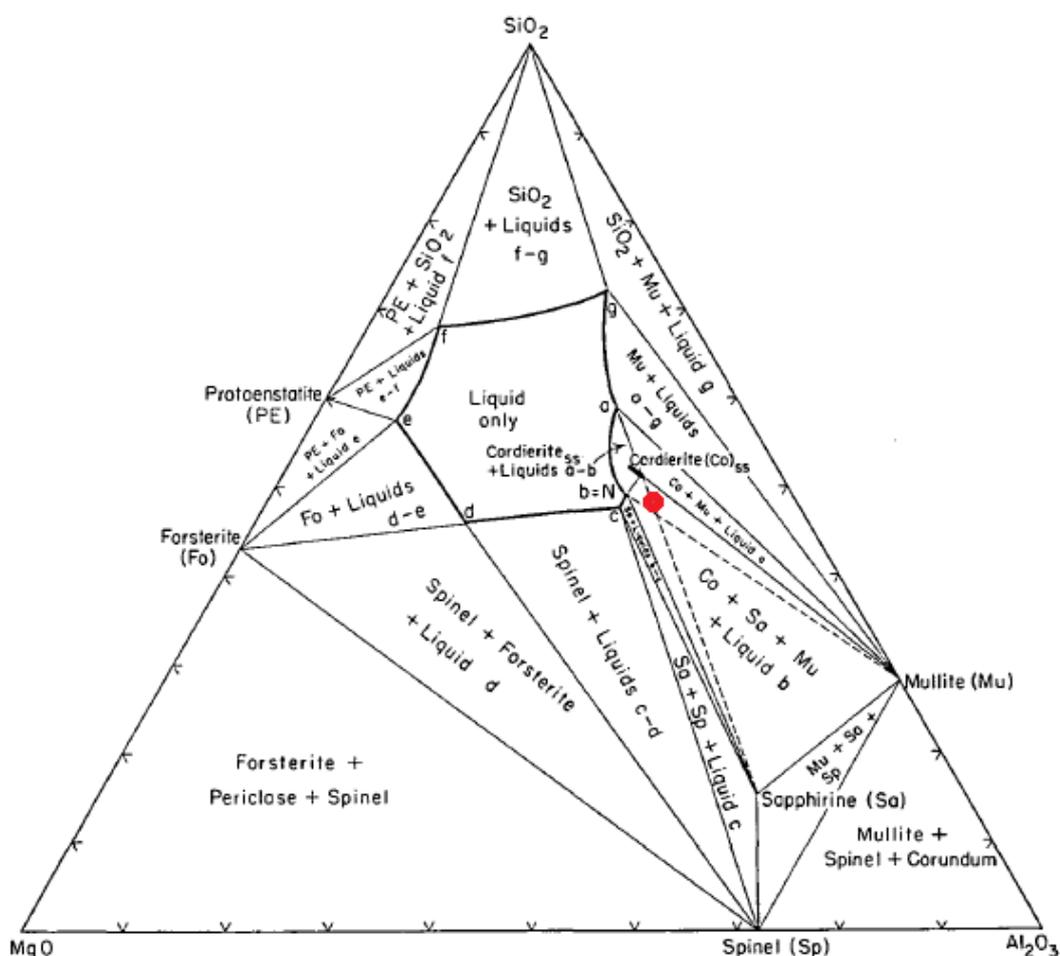


Figura 30 - Diagrama $\text{SiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-MgO}$ (Hummel, 1964)

Resultados referentes as propriedades físicas e mecânicas dos corpos de prova prensados da composição 1

Tabela 9 - Valores \pm desvios médios referente as propriedades físicas e mecânicas dos corpos de prova prensados C1.

Temperatura de sinterização (°C)	RL ^a (%)	Densidade (g/cm ³)	AA ^b (%)	PA ^c (%)	Resistência à flexão (MPa)
1025	1,5 \pm 0,0	1,8 \pm 0,0	23,6 \pm 0,2	41,7 \pm 0,3	6,0 \pm 0,6
1050	1,6 \pm 0,0	1,8 \pm 0,0	22,7 \pm 0,5	40,7 \pm 0,4	7,4 \pm 0,3
1075	1,7 \pm 0,0	1,8 \pm 0,0	22,9 \pm 0,3	40,9 \pm 0,4	9,1 \pm 0,4
1100	2,4 \pm 0,1	2,1 \pm 0,0	11,9 \pm 0,2	25,5 \pm 0,3	23,5 \pm 0,8
1125	2,6 \pm 0,0	2,2 \pm 0,0	10,3 \pm 0,3	21,8 \pm 0,5	29,2 \pm 1,6
1150	2,6 \pm 0,0	2,2 \pm 0,0	8,1 \pm 0,6	17,6 \pm 0,9	31,2 \pm 3,1
1175	2,8 \pm 0,0	1,9 \pm 0,0	11,5 \pm 0,4	21,9 \pm 0,9	41,8 \pm 4,8

RL^a - Retração linear de queima; ^bAA – Absorção de água; ^cPA – Porosidade aparente;

Resultados referentes as propriedades físicas e mecânicas dos corpos de prova prensados da composição 2

Tabela 10 - Resultados das propriedades físicas das amostras sinterizadas.

Composição	Temperatura (°C)	RL ^a (%)	Densidade (g/cm ³)	AA ^b (%)	PA ^c (%)	Resistência à flexão (MPa)
C0 ^d	1025	1,5 \pm 0,0	1,8 \pm 0,0	23,6 \pm 0,2	41,7 \pm 0,3	6,0 \pm 0,6
	1050	1,6 \pm 0,0	1,8 \pm 0,0	22,7 \pm 0,5	40,7 \pm 0,4	7,4 \pm 0,3
	1075	1,7 \pm 0,0	1,8 \pm 0,0	22,9 \pm 0,3	40,9 \pm 0,4	9,1 \pm 0,4
	1100	2,4 \pm 0,1	1,8 \pm 0,0	11,9 \pm 0,2	25,5 \pm 0,3	23,5 \pm 0,8
C10	1025	2,0 \pm 0,0	2,0 \pm 0,1	20,0 \pm 1,2	38,5 \pm 1,8	9,51 \pm 0,9
	1050	2,2 \pm 0,1	2,0 \pm 0,0	16,7 \pm 1,1	33,5 \pm 1,9	10,2 \pm 0,8
	1075	2,4 \pm 0,0	2,0 \pm 0,0	16,3 \pm 0,5	32,9 \pm 0,9	13,1 \pm 0,7
	1100	2,4 \pm 0,0	2,0 \pm 0,0	15,8 \pm 0,4	32,0 \pm 0,6	12,6 \pm 0,9
C20	1025	1,5 \pm 0,0	1,9 \pm 0,0	18,7 \pm 0,6	35,8 \pm 0,7	5,5 \pm 0,6
	1050	1,7 \pm 0,2	1,7 \pm 0,0	19,3 \pm 0,7	36,6 \pm 1,0	5,6 \pm 0,4

	1075	1,9±0,0	1,9±0,0	19,5±0,4	36,7±0,7	7,6±1,2
	1100	1,9±0,1	2,0±0,0	16,5±1,0	32,6±1,4	11,9±1,5
C30	1025	1,5±0,0	2,0±0,0	16,3±0,4	33,0±0,9	8,4±0,8
	1050	1,6±0,0	2,0±0,0	16,5±1,0	32,9±1,4	6,3±0,9
	1075	1,5±0,0	2,0±0,0	16,3±0,2	32,6±0,4	9,9±1,3
	1100	1,5±0,1	2,0±0,0	18,5±0,5	35,4±0,6	12,1±0,8
	1025	1,0±0,0	1,9±0,0	17,7±0,2	34,3±0,3	5,2±0,4
C40	1050	0,9±0,0	1,9±0,0	18,3±0,4	34,1±0,5	5,3±0,3
	1075	0,9±0,1	1,9±0,0	18,4±0,5	35,4±0,6	5,4±0,8
	1100	0,8±0,0	1,8±0,0	24,0±2,2	42,1±0,5	7,4±1,3

RL^a - Retração linear de queima; ^bAA – Absorção de água; ^cPA – Porosidade aparente;
C0^a: Massa cerâmica sem chamote e representativa de C1.

Resultados referentes as propriedades físicas e mecânicas dos corpos de prova extrudados da composição 1

Tabela 11 - Valores ± desvios médios referente as propriedades físicas e mecânicas dos tubos C1.

Temperatura de sinterização (°C)	RL ^a (%)	Densidade (g/cm ³)	AA ^b (%)	PA ^c (%)
1025	2,4±0,2	1,9±0,0	18,9±0,1	36,6±0,2
1050	2,8±0,4	1,9±0,0	18,7±0,3	36,6±0,3
1075	3,1±0,3	2,0±0,0	17,1±0,0	34,1±0,4
1100	3,5±0,2	2,1±0,0	13,7±0,5	28,3±0,8
1125	3,9±0,2	2,1±0,0	10,1±0,2	21,6±0,3
1150	4,9±0,3	2,3±0,0	4,2±0,3	9,6±0,7
1175	9,1±0,1	2,4±0,0	1,1±0,2	2,7±0,5

^aRL - Retração linear de queima; ^bAA – Absorção de água; ^cPA – Porosidade aparente;