

## OBTENÇÃO DE MULITA POR QUEIMA RÁPIDA A PARTIR DE ARGILAS BENTONITAS PARAIBANAS.

J. Gomes (1); A. I. O. Rocha (1); R. R. Menezes (2); S. S. Oliveira (1); G. A. Neves (1); H. L. Lira (1); L. N. L. Santana(1).

<sup>2</sup> Universidade Federal da Paraíba.

<sup>1</sup>Departamento de Engenharia de Materiais, Universidade Federal de Campina Grande. Av. Aprígio Veloso 882, Bodocongó, Campina Grande, PB 58109-970

<sup>2</sup>Departamento de Engenharia de Materiais, Universidade Federal da Paraíba.  
[josileido@yahoo.com.br](mailto:josileido@yahoo.com.br), [lisiane@dema.ufcg.edu.br](mailto:lisiane@dema.ufcg.edu.br)

### RESUMO

*Argilas bentoníticas são alumino-silicatos que quando aquecidos transformam-se em mulita. A sintetização de mulita a partir destes argilominerais via aquecimento rápido por microondas surge como um processo alternativo com grande potencial para a síntese de pós de mulita. A utilização do aquecimento rápido na síntese de nanopós cerâmicos é uma tecnologia recente, que vem sendo utilizada com sucesso nas sínteses assistidas com microondas e em processos de síntese por combustão. O aquecimento rápido por microondas possibilita adicionar calor de forma rápida e uniforme acelerando a cinética de nucleação e desenvolvimento da fase mulita. Assim, esse trabalho tem por objetivo analisar o efeito das variáveis do processo de aquecimento em microondas, analisando a influência da potência aplicada e da taxa de aquecimento na obtenção de pós de mulita a partir de argilas bentoníticas. As argilas foram beneficiadas e submetidas às seguintes caracterizações: química, granulométrica e mineralogicamente. Posteriormente foram delaminadas visando a desaglomeração e separação das frações mais finas e submetidas a caracterização granulométrica e mineralógica. A síntese foi realizada em um forno de microondas doméstico. Os pós obtidos foram caracterizados por difração de raios X. Os resultados mostraram que a variação da potência aplicada e o tempo de sintetização são fundamentais na obtenção de pós de mulita.*

**Palavras-chave:** mulita, bentonita, aquecimento por microondas.

## INTRODUÇÃO

A mulita natural ocorre muito raramente devido às suas condições de formação, alta temperatura e baixa pressão. Esse mineral possui boa resistência mecânica e tenacidade à fratura, pequena expansão térmica, o que implica em uma excelente resistência ao choque térmico, baixa condutividade térmica e elétrica, excelente resistência à fluência, transmitância no infravermelho e resistência à oxidação em altas temperaturas <sup>(1)</sup>. Nas últimas décadas, muitos pesquisadores buscam sintetizá-la, principalmente através da mistura de  $Al_2O_3$  e  $SiO_2$ , ou extraí-la de minerais que contêm  $Al_2O_3$  e  $SiO_2$  em suas composições <sup>(2,3)</sup>.

O uso de fontes precursoras de alta reatividade e que possuam em sua estrutura íons de alumínio e silício, favorecem as reações químicas durante a síntese, destacando-se neste estudo a potencialidade das argilas bentonitas, pois quando delaminadas apresentam dimensões nanométricas, o que facilita a interação química durante a síntese, reduzindo a temperatura de mulitização. Estudos anteriores <sup>(4, 5, 6)</sup> demonstraram a excelente potencialidade desta argila para a produção de mulita. Na natureza esta estrutura contém partículas primárias formadas por 5 a 10 lamelas que se mantêm juntas por íons interlamelares. Estas partículas primárias formam grandes agregados estratificados visíveis de 0,1 a 10  $\mu m$  <sup>(7)</sup>. De acordo com a literatura <sup>(8)</sup>, as argilas lamelares podem ser delaminadas em cristalitos de dezenas de nanômetros de espessura (tactóides) ou até mesmo em lamelas individuais, com espessura de aproximadamente 1 nm.

Precursores naturais como minerais de aluminossilicatos são vantajosos para a produção de mulita, pois a alumina e a sílica estão misturadas em escalar molecular. Desse modo, diversos estudos <sup>(8)</sup> foram realizados para a produção de mulita nanométrica a partir de sistemas aluminossilicatos, entre eles a bentonita.

A utilização de microondas como um método de processamento em elevadas temperaturas possui muitos benefícios <sup>(10)</sup>. Diferentemente do que ocorre quando o aquecimento é realizado por convecção, em que a energia é transferida lentamente da superfície para o interior da amostra, nas reações feitas em fornos de microondas os reagentes absorvem diretamente a energia gerada pelo aparelho, provocando um

aquecimento volumétrico do material em um curto espaço de tempo. Portanto, quanto mais rápido o aquecimento menor a aglomeração das partículas e menor o tamanho das partículas obtidas <sup>(11)</sup>.

Estudos feitos anteriormente <sup>(4, 6, 12, 13)</sup> evidenciaram que a utilização de aquecimento rápido em forno convencional na obtenção de mulita. Enquanto outros trabalhos <sup>(13)</sup>, envolvendo a síntese rápida em microondas de compósitos alumina/SiC, indicaram que, aparentemente, quanto mais rápido o aquecimento menor a aglomeração das partículas e menores os tamanhos das partículas obtidas. Com base nessas observações e em resultados recentes da literatura, verificou-se um enorme potencial de aplicação da tecnologia de queima rápida com microondas, aliada a utilização de precursores naturais (bentonitas regionais).

Dentro deste contexto, este trabalho teve por objetivo a síntese de pós de mulita nanométricos e submicrométricos, utilizando a argila bentonita como material precursor e ciclos de aquecimento rápido em microondas.

## MATERIAIS E MÉTODOS

Para o desenvolvimento desse trabalho foram utilizadas duas amostras de argilas bentonitas naturais, denominadas de A e B, respectivamente. As amostras de argilas bentoníticas foram secas em estufa a 60°C, em seguida moídas em moinho tipo galga e peneiradas em malha 200 (abertura de 74µm) em mesa vibratória.

Após o beneficiamento as argilas foram submetidas as seguintes caracterizações: química, granulométrica e mineralógica. Posteriormente iniciou-se o processo de delaminação através de um processo de desaglomeração a úmido. Foram usados 87g de bentonita para 315 ml de água deionizada. A desaglomeração foi feita em moinho de alumina, a rotação usada foi de 30rpm durante 4 e 8 horas. Após a desaglomeração foram preparadas dispersões com concentrações de 15g/l e em seguida vertida em provetas com capacidade para um litro. Após 24 horas foi feita a coleta e em seguida foi realizada a análise granulométrica da fração coletada. O volume coletado foi seco em estufa a 60°C, após secagem o material foi moído em almofariz e passado em malha ABNT n° 200.

Para facilitar à discussão dos resultados serão usadas as seguintes simbologias: D4 - desaglomeração por quatro horas; D4S - desaglomeração por

quatro horas e sedimentação em provetas por 24 horas; D8 - desaglomeração por oito horas; D8S - desaglomeração por oito horas e sedimentação em provetas por 24 horas.

O material desaglomerado e seco foi então submetido a aquecimento em forno de microondas doméstico, modelo NN-GD587SRU marca PANASONIC. Os tempos de aquecimento foram de 10, 15, 20 e 25 minutos usando potência alta. Após a síntese, os pós foram caracterizados por meio de difração de raios X. As caracterizações das amostras foram realizadas no Laboratório de Caracterização de Materiais da Unidade Acadêmica de Engenharia de Materiais da Universidade Federal de Campina Grande. Os equipamentos utilizados foram os seguintes: CILAS modelo 1064 LD para determinação da distribuição do tamanho de partículas por difração de laser, Shimadzu modelo EDX-720 para a análise química e Shimadzu XRD-6000 para a análise mineralógica.

## RESULTADOS E DISCUSSÃO

A Tabela 1 apresenta a composição química semi-quantitativa das amostras das bentonitas estudadas. Verifica-se que as amostras apresentaram perda de massa 12,04 e 10,52, o que está relacionado à perda de água livre e adsorvidas, hidroxilas dos argilominerais e queima da matéria orgânica.

Tabela 1 – Composição química das amostras

<i>Amostras</i>	<i>PF<sup>a</sup></i>	<i>SiO<sub>2</sub></i>	<i>Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub></i>	<i>Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub></i>	<i>MgO</i>	<i>Na<sub>2</sub>O</i>	<i>K<sub>2</sub>O</i>	<i>CaO</i>	<i>TiO<sub>2</sub></i>	<i>Outros óxidos</i>	<i>Total (%)</i>
<b>A</b>	<b>12,04</b>	<b>51,47</b>	<b>27,94</b>	<b>4,13</b>	<b>2,49</b>	<b>0,00</b>	<b>0,73</b>	<b>0,55</b>	<b>0,99</b>	<b>0,65</b>	<b>100</b>
<b>B</b>	<b>10,52</b>	<b>54,64</b>	<b>25,51</b>	<b>3,50</b>	<b>3,48</b>	<b>0,76</b>	<b>0,62</b>	<b>0,60</b>	<b>0,81</b>	<b>0,34</b>	<b>100</b>

Observa-se que o teor de Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> nas amostras foi de aproximadamente 4,0%, estando, dentro da faixa observada na literatura para argilas bentoníticas sul-americanas <sup>(15,16)</sup>. A amostra A, não apresentou óxido de sódio em sua composição, enquanto que à amostra B apresentou 0,76% deste óxido. O sódio presente na bentonita pode atuar como fundente durante o processo de síntese. Os teores de óxidos alcalinos e alcalinos terrosos (MgO, CaO e K<sub>2</sub>O) estão também dentro dos observados em bentonitas sul-americanas.

A Tabela 2 contém os dados da análise granulométrica com relação à fração acumuladas abaixo de 0,20 µm das argilas após desaglomeração por quatro e oito horas seguido de sedimentação em provetas por 24 horas.

Tabela 2 – Massa acumulada para as amostras A e B, fração acumulada < 0,20 µm (% em vol.).

Desaglomeração por 4 e 8 horas e sedimentação					
Amostras/Tratamento	Beneficiadas	D4	D4S	D8	D8S
<b>A</b>	<b>1,06</b>	<b>0,98</b>	<b>1,19</b>	<b>4,87</b>	<b>6,81</b>
<b>B</b>	<b>0,44</b>	<b>1,14</b>	<b>9,25</b>	<b>1,80</b>	<b>16,67</b>

Analisando os resultados contidos na Tabela 2, pode-se observar que, após a desaglomeração por 4 e 8 horas seguido de decantação em proveta, todas as amostras apresentaram aumentos consideráveis nas frações acumuladas, principalmente a amostra B, que passou de 0,44 % para 16,67%. A amostra B por ser sódica pode ter absorvido um maior número de camadas de água favorecendo a desaglomeração. A amostra A, após beneficiamento, apresentou maior percentual da fração abaixo de < 0,20 µm, o que pode ter favorecido a formação de aglomerados, pois não foi utilizado nenhum defloculante. De acordo com a literatura (17), pós finos, entre 0,001 µm e 1 µm, apresentam forte tendência à aglomeração, permanecendo unidos por atrações de origem eletrostática, que são acentuadas em meio líquido, afetando diretamente o estado de dispersão.

Os difratogramas das amostras de bentonitas A e B beneficiadas e delaminadas estão apresentados nas Figuras 1 e 2.

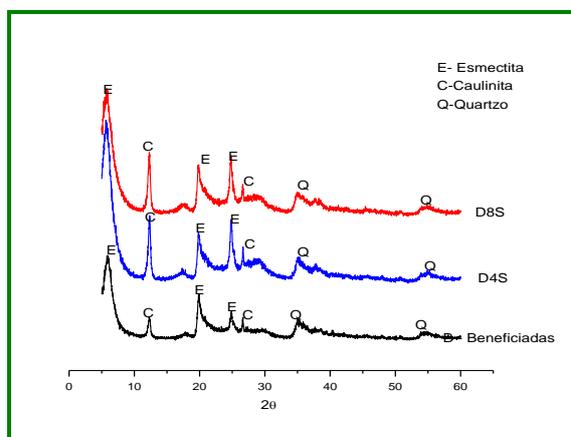
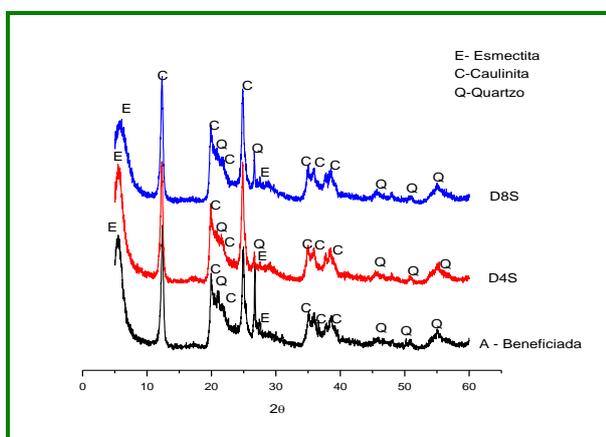


Figura 1 - Difração de raios X da amostra (A)

Figura 2 - Difração de raios X da amostra (B)



provavelmente não tenham sido alcançadas quando as amostras foram submetidas a 10, 15 e 20 de sintetização em microondas. Observou-se a formação da fase mulita para o tempo de 25 minutos, provavelmente durante este tempo houve maior reação entre o  $\text{SiO}_2$  e  $\text{Al}_2\text{O}_3$  formando cristais de mulita.

As Figuras 5 e 6 apresentam os difratogramas da amostra B, após beneficiamento e submetidas ao processo de delaminação, aquecidas em microondas durante 10, 15, 20, e 25 minutos, aplicando potência alta. Observou-se comportamento bastante similar ao da amostra A, os picos de mulita apareceram após o aquecimento durante 25 minutos, o que pode estar relacionado com a maior cristalização dessa fase. Em ambas as amostras pode se observar a formação de cristobalita, isso provavelmente, tenha ocorrido devido ao excesso de sílica presente nas amostras (relação sílica alumina de 1,84 amostra A e 2,14 amostra B), e o processo de síntese em microondas (aquecimento e resfriamento rápido), provavelmente tenha contribuído para formação dessas fases. Estudos feitos anteriormente <sup>(18)</sup>, mostraram que a formação da cristobalita após síntese é um fenômeno comum ao se tentar obter mulita a partir de fontes de alumina e sílica amorfa.

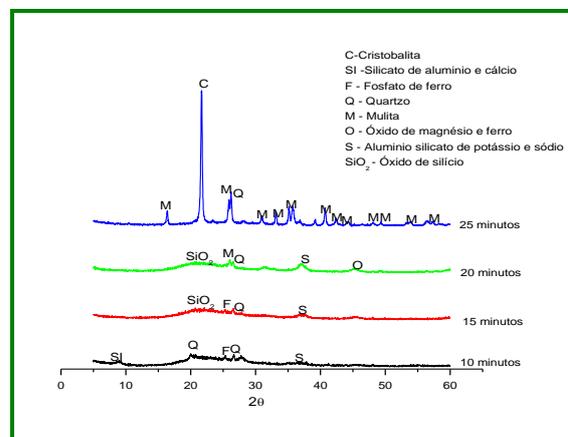
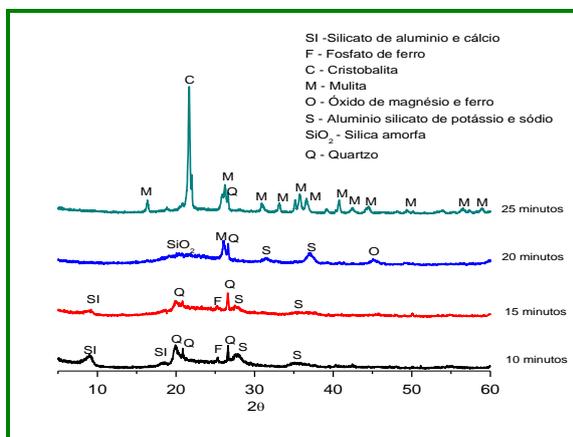


Figura 5 - Difração de raios X da amostra B após sintetização em microondas.

Figura 6 - Difração de raios X da amostra (B-D8S) após sintetização em microondas.

## CONCLUSÕES

As amostras apresentaram teores de óxido de ferro e de óxidos alcalinos e alcalinos terrosos ( $\text{MgO}$ ,  $\text{CaO}$  e  $\text{K}_2\text{O}$ ) dentro dos observados para bentonitas sul-

americanas; as amostras apresentaram após delaminação fração acumulada abaixo de 2,0 µm entre 9,256 e 16,67%. A amostra que apresentou óxido de sódio na sua composição apresentou maior fração acumulada para quase todas as frações granulométricas avaliadas. Através dos difratogramas das amostras sintetizadas pode-se observar que a formação da fase mulita foi evidenciada quando o tempo de permanência no forno de microondas foi de 25 minutos.

## AGRADECIMENTOS

Os autores agradecem ao CNPq, Processo: nº 507973/2010-0 e a CAPES pela concessão da bolsa PNPd.

## REFERÊNCIAS

1. TANG, Y., et al. Fabrication of fine mullite powders by heterogeneous nucleation growth processing, **Journal of the American Ceramic Society**, v. 87, nº. 3, p. 520-522, 2004.
2. HERCULANO, G. E. G. et al., Síntese e caracterização de mulita utilizando sílica obtida da casca de arroz (Synthesis and characterization of mullite using silica from rice husk), **Metalurgia & Materiais**, v. 367, p.367-372, 2009.
3. SANDOVAL, M. L.; TALOU, M.H.; SOUTO, P. M; KIMINAMI, R. H. G.A.; CAMERUCCI, M.A., Microwave sintering of cordierite precursor green bodies prepared by starch consolidation, *Ceramics International*, 37, p. 1237–1243, 2011
4. SANTANA, L. N. L., BRASILEIRO, M. I., NEVES, G. A., MENEZES, R. R., LIRA, H. L., GONÇALVES, W. P., **Uso da energia de microondas para a síntese da mulita**. In: Anais do 53º Congresso Brasileiro de Cerâmica, p.1 – 12, 2009.
5. SURIYANARAYANAN, N.; KANNAN NITHIN, K. V.; BERNARDO, E., Mullite glass ceramics production from coal ash and alumina by high temperature plasma, **Journal of non-oxide glasses**, v. 1, nº 4, p. 251- 264, 2009.
6. GOMES, J.; ROCHA, A. I. O.; MENEZES, R. R.; NEVES, G. A.; SANTANA, L. N. L., BRASILEIRO, M. I., Mullite evidence for rapid firing from bentonite clay of paraíba, **Materials Science Forum**, v. 660-661 p.936-942, 2010.

7. LIRA, L. M; CABRAL, L. M, Avaliação de Sistemas Nanoparticulados Baseados em Bentonita Sódica Purificada Como Incrementadores de Dissolução em Comprimidos Preparados por Granulação Úmida e Compressão Direta, Universidade Federal do Rio de Janeiro, dissertação de mestrado, Faculdade de Farmácia, Rio de Janeiro, Julho de 2004.
8. GOMES, J.; AZEVEDO, N. A.; VIEIRA, D. A.; NEVES, G. A.; SANTANA, L. N. L.; MENEZES. R. R.; **Síntese de mullita nanométrica por microondas a partir bentonitas delaminadas**, in: 55º Congresso Brasileiro de Cerâmica, p. 1-12, 2010.
9. BERNARD, E., et al. Mullite synthesis based on alumina nanoparticles and a preceramic polymer. **Journal of the American Ceramic Society**, v. 89, n. 5, p. 1577-1583, 2006.
10. MENEZES, R. R.; OLIVEIRA, M. F.; SANTANA, L. N. L.; NEVES, G. A.; FERREIRA H. C., Utilização do resíduo do beneficiamento do caulim para a produção de corpos mullíticos. **Cerâmica** v. 53, p. 388-395, 2007.
11. TEIXEIRA, E. F.; SANTOS, A. P. B. dos.; BASTOS, R. S.; PINTO, A. C., O uso de aparelhos de microondas domésticos em aulas experimentais de química orgânica: nitração de salicilaldeído, **Química Nova**, v. 33, nº. 7, 1603-1606, 2010.
12. SALES, M., ALARCH, J. synthesis obtained and phase transformations of mullites from  $\text{SiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  Gels. **Journal of the European Ceramic Society**, v. 16, p. 781-789, 1996.
13. SACKS, M. D., et al. Effect of seeding on phase development, densification behavior, and microstructure evolution in mullite fabricated from microcomposite particles, **Journal of the American Ceramic Society**, v. 78, nº. 11, p. 2897-2906, 1995.
14. ZHOU, M., et al. Coprecipitation and processing of mullite precursor phases. **Journal of the American Ceramic Society**, v. 79, n. 7, 1756-1760, 1996.
15. AMORIM, L. V., GOMES, C. M., LIRA, H. L.; FRANÇA, K. B., FERREIRA, H. C., **Materials Research**, nº. 583, p. 4-7, 2004.
16. MENEZES, R. R.; ÁVILA JÚNIOR, M. M.; SANTANA, L. N. L.; NEVES, G. A.; FERREIRA, H. C., Comportamento de expansão de argilas bentoníticas organofílicas do estado da Paraíba, **Cerâmica**, v. 54 nº. 330, São Paulo, 2008.

17. OLIVEIRA, R.; STUDART, A. R.; PILEGGI R. G., PANDOLFELLI, V. C., **Dispersão e Empacotamento de Partículas, Princípios e Aplicações em Processamento Cerâmico**: Fazendo Arte Editorial, São Paulo, 2000.
18. MAGLIANO, M. V. M.; PANDOLFELLI, V. C., Multitização em refratários utilizando diferentes fontes precursoras – revisão, **Cerâmica**, v. 56, p. 368-375, 2010.

## ABSTRACT

Bentonite clays are aluminium–silicates that when heated turn into mullite. The sintering of mullite obtained from these mineral clays by quick microwaves heating comes up as an alternative process for mullite powders synthesis. The use of quick heating on ceramics nanopowders' synthesis is a recent technology that is being successfully used on synthesis with microwaves and synthesis process by combustion. The quick microwaves heating enables adding heat quickly and equally, accelerating the nucleation kinetics and the development of the mullite stage. Thus, the purpose of this work is to analyze the effect of the microwaves heating process variables, analyzing the influence of the applied power and of the heating rate on the mullite powders obtaining from bentonite clays. The clays have been favored and submitted to the following characterizations: chemical granulometric and mineralogically. Subsequently, the clays have been delaminated aiming deagglomeration and separation of the thinner fractions and submitted to granulometric and mineralogical characterization. The synthesis has been realized on a domestic microwaves oven. The obtained powders have been characterized by X-ray diffraction. The results showed that the applied power variation and the sintering time are fundamental on the obtaining of mullite powders.

**Key words:** Mullite, bentonite, microwaves heating