

ma empírica com argilas locais que são de predominância caulinítica e de elevada plasticidade. Em decorrência de uma massa excessivamente plástica, é comum a ocorrência de defeitos dimensionais nas peças e trincas de secagem e queima. Além disso, a predominância caulinítica e presença de hidróxido de alumínio (gibsite) nas argilas locais, conferem às mesmas um comportamento refratário durante a queima (VIEIRA, HOLANDA, PINATTI, 2000, p. 14-17 e MONTEIRO, VIEIRA, 2002, p. 152-157).

No caso das telhas cerâmicas, essas apresentam uma porosidade excessiva que acarreta em elevados valores de absorção de água e baixa resistência mecânica. Com isso, há necessidade de reformulação das massas cerâmicas com a utilização de matérias-primas não plásticas e fundentes. Uma alternativa tecnológica para diminuição da porosidade em produtos de cerâmica vermelha e que vem sendo bastante pesquisada atualmente é a utilização de resíduo da serragem de granito (SOUTO et al., 2000; SOUTO et al., 2001). O granito é uma rocha que apresenta grande quantidade de quartzo, feldspatos e mica. Nas etapas que antecedem a queima, esses minerais atuam como desplastificante, diminuindo a quantidade de água necessária para conformação e facilitando a secagem. Na queima o quartzo atua como inerte, podendo ainda apresentar uma parte dissolvida na fase líquida formada. Já os feldspatos e mica favorecem a formação de fase líquida contribuem para a diminuição da porosidade das peças.

No município de Cachoeiro de Itapemirim, localizado no sul do Estado do Espírito Santo e a cerca de 150 km de Campos dos Goytacazes, há uma intensa atividade industrial de rochas ornamentais, sobretudo granito. Após a etapa de lavra, onde há a extração dos blocos, estes são submetidos a um beneficiamento primário para a obtenção de peças em forma de placas brutas, tiras ou espessores (semi-acabados). Posterior-

mente, há um beneficiamento secundário onde ocorre um polimento e acabamento final das peças serradas. No beneficiamento primário, estima-se uma perda de 20 a 25% do volume dos blocos, na forma de pó. Este pó é misturado com água e eventualmente outros acessórios como granalha metálica e cal, constituindo-se num resíduo na forma de lama (REJEITOS, 1998, p. 1). Estima-se que em Cachoeiro de Itapemirim haja uma produção mensal de 400 toneladas de lama (SOUTO et al., 2001). A disposição final desta lama tem acarretado sérios problemas ambientais já que muitas vezes não há tratamento adequado, ocorrendo contaminação do solo e subsolo e assoreamento de córregos e rios.

Neste sentido, este trabalho tem por objetivo reformular uma massa cerâmica utilizada para fabricação de telhas através da adição de resíduo da serragem de granito. Utilizou-se como principal ferramenta para a reformulação das massas cerâmicas a distribuição de tamanho de partículas das matérias-primas, já que este parâmetro relaciona-se com importantes propriedades tecnológicas como a plasticidade e resistência mecânica (PRACIDELLI, MELCHIADES, 2000, p. 57-65).

MATERIAIS E MÉTODOS

Para realização deste trabalho, as matérias-primas utilizadas foram: duas argilas plásticas, areia e resíduo de granito. As argilas plásticas são denominadas de argila preta e argila carolinho e juntamente com a areia, são constituintes da massa cerâmica utilizada para fabricação de telhas por uma olaria do município de Campos dos Goytacazes. A massa cerâmica industrial, denominada de MI, é composta por 70% em peso de argila preta, 20% de argila carolinho e 10% de areia. O resíduo de granito, na forma de lama e constituído por pó de granito, granalha metálica, cal e água, é proveniente do beneficiamento primário dos blocos por uma

serraria localizada no município de Cachoeiro de Itapemirim-ES.

Após coleta das matérias-primas, estas foram secas em estufa a 110°C e desagregadas com pilão manual e submetidas a um peneiramento de 20 mesh (0.840 mm). As matérias-primas foram submetidas aos seguintes ensaios de caracterização: difração de raios-X, composição química, distribuição de tamanho de partícula e plasticidade.

Para os ensaios de difração de raios-X, foram utilizadas amostras em forma de pó em difratômetro marca SHEIFERT, modelo URD 65, operando com radiação de Cu-ka e 2 θ variando de 5° a 65°. A composição química das massas foi realizada por espectrometria de fluorescência de Raios-X. A distribuição de tamanho de partícula foi realizada por peneiramento via úmida e sedimentação via Pipeta de Andreasen. A plasticidade da argila plástica foi determinada através dos índices de Atterberg.

Após a caracterização das matérias-primas, foram realizadas as reformulações das massas cerâmicas através do diagrama de Winkler que se constitui em um diagrama ternário cujos vértices representam diferentes faixas granulométricas (<2mm; 2-20mm;>20mm). Definiu-se como parâmetro para as reformulações um percentual de fração “argila”, definida como partículas com diâmetro esférico equivalente < 2mm de 35% em peso. Foram reformuladas três novas massas cerâmicas, denominadas de M1, M2 e M3.

Para determinação das propriedades tecnológicas das massas cerâmicas foram preparados corpos-de-prova extrudados nas seguintes dimensões: 100 x 30 x 10 mm. Em seguida, estes corpos-de-prova foram queimados em forno elétrico de laboratório em temperaturas variando de 850 a 1.100°C com intervalo de 50°C. Utilizou-se uma taxa de aquecimento de 4°C/min, tempo de patamar de 3 horas e resfriamento realizado

por convecção natural, desligando-se o forno. As propriedades tecnológicas determinadas foram: retração linear de secagem, absorção de água, retração linear de queima e tensão de ruptura à flexão (três pontos).

RESULTADOS E DISCUSSÃO

A Figura 1 mostra os difratogramas de raios-X das matérias-primas. Observa-se que as argilas são de predominância caulínica, sendo notada também a presença de quartzo, mica e gibsita. A gibsita, como hidróxido de alumínio, contribui para aumentar a perda ao fogo e refratariedade das argilas. A areia, conforme esperado, apresenta picos de difração de grande intensidade do quartzo. Já no resíduo da serragem de granito observam-se picos de difração do quartzo, mica muscovita, albíta e microclina. Sendo estes três últimos, fontes de fundentes alcalinos, K_2O e Na_2O , que favorecem a formação de fase líquida a partir de $700^\circ C$ (KINGERY, BOWEN, UHLMANN, 1976, p. 281-301), contribuindo assim para diminuição da porosidade do material queimado.

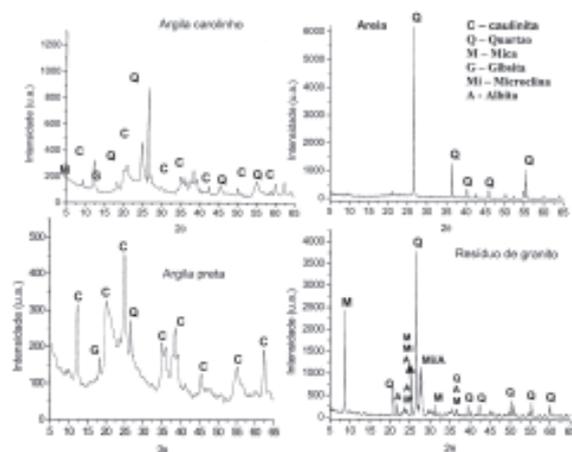


Figura 1. Difratogramas de raios-X das matérias-primas.

Observa-se, de acordo com a tabela 1, que as argilas apresentam um baixo percentual de SiO_2 associado a um elevado percentual de Al_2O_3 . Isto indica um elevado percentual de fração “argila” que pode ser confirmado pelo elevado percentual de perda ao fogo. Contribui também para a perda ao fogo a presença de gibsita. Em argilas de coloração preta é comum também a ocorrência de matéria orgânica em percentuais elevados. O percentual de Fe_2O_3 de 3,63% da argila carolinho contribui para avermelhar a telha. Observa-se também que o percentual de óxidos alcalinos ($\text{K}_2\text{O} + \text{Na}_2\text{O}$), que atuam como fundentes, é baixo. Já o baixo percentual de óxidos alcalino terrosos ($\text{MgO} + \text{CaO}$) indica inexpressivo percentual de carbonatos. O MgO pode indicar também traços de minerais argilosos esmectíticos e micáceos. O elevado percentual de perda ao fogo está relacionado com significativo percentual de fração “argila”, associada à presença de matéria orgânica e hidróxido de alumínio-gibsita. A areia é predominantemente constituída de SiO_2 . Os demais óxidos observados na composição química da areia são provenientes de eventuais impurezas como mica, feldspatos e minerais argilosos. O resíduo de granito apresenta elevado percentual de óxidos alcalinos ($\text{K}_2\text{O} + \text{Na}_2\text{O}$) que são provenientes dos feldspatos e mica muscovita. Com isso, esta matéria-prima apresenta uma potencial ação fundente. Os percentuais Fe_2O_3 e CaO são provenientes dos minerais constituintes do granito como eventualmente mica para os compostos de ferro e feldspatos plagioclásios para o CaO . Também contribuem para elevar os percentuais de Fe_2O_3 e CaO do resíduo de granito, a granalha e a cal utilizados como abrasivo e lubrificante, respectivamente, na etapa de serragem dos blocos.

Tabela 1. Composição química das matérias-primas (% em peso)

Matérias-primas	Composições								
	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	TiO ₂	K ₂ O	Na ₂ O	CaO	MgO	PF
Argila Carolinho	50,79	29,15	3,63	1,83	1,83	0,22	0,15	0,96	11,84
Argila preta	48,73	29,20	2,22	1,61	0,61	0,27	0,41	0,58	16,34
Areia	92,19	3,31	1,02	0,89	1,02	0,49	0,33	0,25	0,45
Residuo de granito	64,14	13,25	8,18	0,96	4,40	2,55	3,56	1,65	1,6

As argilas carolinho e preta apresentam índice de plasticidade de 27 e 48%, respectivamente. Esses valores as caracterizam como altamente plásticas. Esta elevada plasticidade está relacionada ao excessivo percentual de fração “argila”, conforme já demonstrado. Um valor de grande interesse tecnológico é o limite de plasticidade, já que esse valor representa a quantidade mínima de água necessária para que uma massa argilosa alcance estado plástico e possibilite sua conformação. As argilas carolinho e preta apresentam limite de plasticidade de 24% e 33%, respectivamente. Somente a argila carolinho apresenta LP dentro dos valores usuais de cerâmica vermelha, que se situam entre 18% e 25% (FACINCANI, 1997, p. 73). Uma argila excessivamente plástica acarreta, em uma maior dificuldade de secagem, peças com baixa permeabilidade e retrações tanto de secagem quanto de queima excessivas. Estes fatores podem ocasionar o aparecimento de graves defeitos.

O diagrama de Winkler, mostrado na Figura 2, é um diagrama ternário cujos vértices representam faixas granulométricas distintas das partículas. A fração < 2mm é de grande interesse tecnológico já que representa a fração “argila” ou de minerais argilosos que se correlacionam com importantes propriedades tecnológicas como plasticidade e resistên-

cia mecânica a verde. De acordo com a Figura 2, observa-se que as argilas carolinho e preta apresentam fração “argila” de 44% e 63%, respectivamente. Com relação às matérias-primas não plásticas, observa-se que o resíduo de granito localiza-se mais próximo do vértice que representa a fração 2-20mm. Já a areia apresenta um elevado percentual, 94% em peso, de partículas na faixa granulométrica > 20mm.

A região adequada para fabricação de telhas, segundo o diagrama de Winkler, é a região denominada de B, que pode apresentar um percentual de fração “argila” de 30 a 50%. Observa-se que a massa industrial MI, composta por 70% em peso de argila preta, 20% de argila carolinho e 10% de areia, apresenta um excessivo percentual de fração <2mm ou fração “argila”, de 53%. Há necessidade de redução da fração “argila”. Isto poderia ser obtido simplesmente aumentando o percentual de areia. Entretanto, com o resíduo de granito apresenta uma granulometria mais fina que a areia que diminui o risco de trincas de resfriamento e favorece a dissolução do quartzo na fase líquida. Além disso, o resíduo de granito fornece fundentes alcalinos ($\text{Na}_2\text{O} + \text{K}_2\text{O}$) que possibilitam a diminuição da porosidade devido à formação de eutéticos com a sílica- SiO_2 e alumina- Al_2O_3 em temperaturas a partir de 700°C, conforme já mencionado.

Com base nisso, foi realizada a reformulação da massa cerâmica industrial MI, com a introdução de resíduo da serragem de granito, em percentuais variando de 20 a 40% em peso, e retirada da areia. Inicialmente definiu-se em 35% em peso o percentual de fração “argila” das massas reformuladas, com base na adequação deste percentual para fabricação de telhas, de acordo com o diagrama de Winkler. Com isso, foram obtidas três novas massas cerâmicas denominadas de M1, M2 e M3, conforme mostram a Tabela 2 e Figura 2. Observa-se que nas massas reformuladas não há a utilização de areia, visto que o resíduo de

granito é rico em SiO_2 e ainda apresenta uma granulometria mais fina. Ocorreu também uma drástica diminuição no percentual de argila preta em relação à massa industrial. Isto foi necessário devido ao seu elevado percentual de fração “argila”.

Tabela 2. Composição das massas cerâmicas (% em peso)

Massas cerâmicas	Matérias-primas			
	Argila carolinho	Argila preta	areia	Resíduo de granito
M1	20	70	10	-
M1	80	-	-	20
M2	45	25	-	30
M3	15	45	-	40

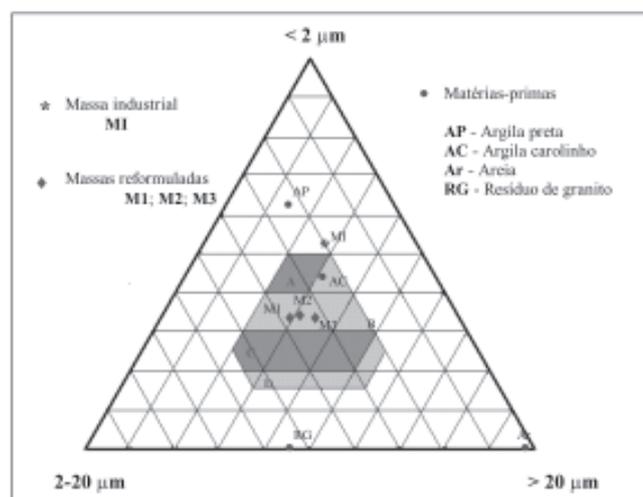


Figura 2. Diagrama de Winkler com a localização das matérias-primas e massas cerâmicas.

A Tabela 3 mostra alguns parâmetros das massas cerâmicas que apresentam grande interesse tecnológico. Observa-se que com a fixação do percentual de “argila” para 35% das massas reformuladas, estas apresentam um incremento da relação sílica/alumina, diminuição da plasticidade e da perda ao fogo em relação à massa industrial. Observa-se também que com a adição de resíduo de granito, houve um aumento substancial no percentual de óxidos alcalinos. Entretanto, as massas reformuladas apresentam maiores teores de Fe_2O_3 em relação à massa industrial. Isto pode acarretar num escurecimento dos produtos.

Tabela 3. Parâmetros tecnológicos das massas cerâmicas (%)

Parâmetros tecnológicos	Massas cerâmicas			
	MI	M1	M2	M3
Fração <2 μm	53	35,4	35,85	35,35
$\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$	1,87	2,06	2,23	2,42
Limite de plasticidade	27,9	19,2	19	18,5
PF	13,85	9,79	9,89	9,77
$\text{K}_2\text{O} + \text{Na}_2\text{O}$	1,18	3,03	3,23	3,48
Fe_2O_3	2,38	4,54	4,64	4,84

A Figura 3 mostra os valores de retração linear de secagem para as massas cerâmicas estudadas. Observa-se que houve uma redução da retração linear de secagem das massas reformuladas em relação à massa industrial. Este comportamento é devido à menor plasticidade das massas reformuladas que acarretou em um menor quantidade de água de conformação utilizada. A redução da retração linear de secagem é benéfica já que acelera o processo, reduz gasto energético e diminui o risco de trincas e defeitos dimensionais.

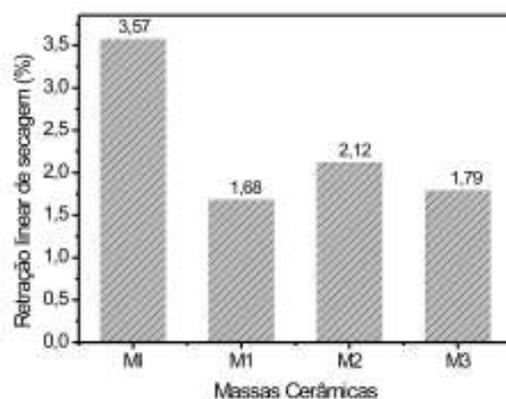


Figura 3. Retração linear de secagem das massas cerâmicas.

A Figura 4 mostra o comportamento da absorção de água e retração linear das massas cerâmicas em função da temperatura de queima. Observa-se que as massas cerâmicas apresentam uma diminuição nos valores de absorção de água e aumento da retração linear com o aumento da temperatura de queima. Isto é devido ao fenômeno de vitrificação que diminui a porosidade das amostras. A vitrificação é a formação de fase líquida que envolve as partículas sólidas, que por ação das forças de capilaridade, promove a densificação e retração do material.

Até a temperatura de 1000°C, não há diferenças muito significativas nos valores de absorção de água das massas reformuladas (M1, M2 e M3) e industrial (MI). A partir daí, a massa MI apresenta uma brusca diminuição da absorção de água, alcançando valores de 14,3 e 7,5% nas temperaturas de 1050°C e 1100°C, respectivamente. Apesar do menor teor de óxidos fundentes em relação às massas reformuladas, este comportamento da massa MI pode ser atribuído ao elevado percentual de partículas finas e baixos percentuais de quartzo. Observa-se também que

valores recomendados para telhas cerâmicas, £ 18%, só foram obtidos em temperaturas superiores a 1000°C.

Já para o parâmetro de retração linear, observa-se que a massa MI apresentou valores bem superiores às massas reformuladas para todas as temperaturas de queima. Os principais fatores que contribuem para este comportamento são a elevada perda ao fogo, finura das partículas e baixo percentual de quartzo. Uma excessiva retração linear aumenta o risco de defeitos dimensionais nos produtos como trincas, empenos, curvaturas e falta de calibre. Isto para cerâmica vermelha é ainda mais agravante, pois geralmente nos fornos há um grande diferencial de temperatura.

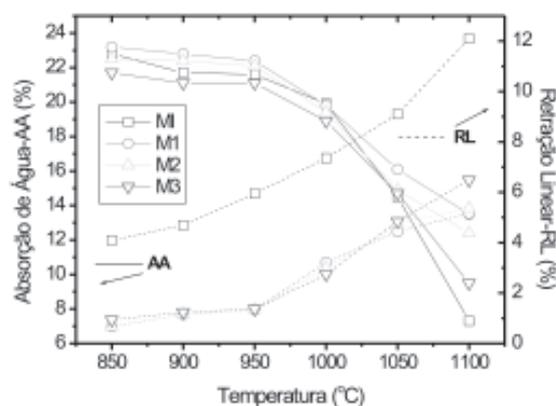


Figura 4. Absorção de água das massas cerâmicas versus temperatura de queima.

A Figura 5 mostra o comportamento da tensão de ruptura à flexão das massas cerâmicas estudadas. Observa-se que a massa M3, que é constituída por 40% em peso de resíduo de granito, apresenta maiores valores de tensão de ruptura à flexão em todas as temperaturas de queima. A resistência mecânica de materiais frágeis, como a cerâmica argilosa queimada, é determinada pela concentração de tensões em defeitos

microestruturais como poros, trincas e microfissuras. De acordo com o postulado de Griffith (VAN VLACK, 1973, p. 112-116), quanto maior o defeito, menor será a resistência mecânica. Portanto até a temperatura de 1000°C, a menor porosidade aberta da massa M3 em relação às demais, pode estar contribuindo para a obtenção de maiores valores de tensão de ruptura à flexão. A partir de 1000°C, observou-se, Figura 4, que a massa M1 diminuiu bruscamente sua porosidade aberta. Entretanto, os valores de resistência mecânica são inferiores à massa M3. Isto pode ser atribuído eventualmente a um menor tamanho dos poros abertos da massa M3 e a granulometria fina do quartzo proveniente do resíduo de granito. Partículas finas de quartzo pode contribuir para o aumento da resistência mecânica através da retenção da propagação de trinca ou aumento do caminho a ser percorrido pela mesma (KOBAYASHI, 1992, p. 1801). Observa-se também que o valor mínimo recomendado para telhas, 6,5 Mpa (SANTOS, 1989, p. 396-397), é alcançado pela massa M3 já a partir de 900°C. As demais massas cerâmicas só superaram este patamar a partir de 1000°C.

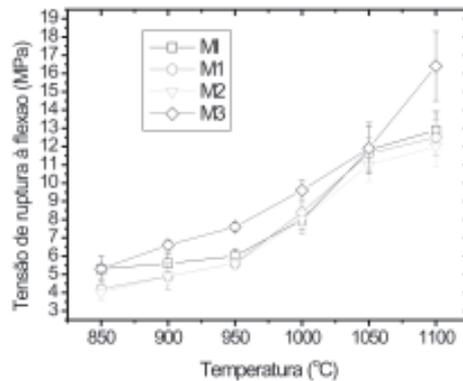


Figura 5. Tensão de ruptura à flexão das massas cerâmicas versus temperatura de queima.

CONCLUSÕES

A massa cerâmica industrial é caracterizada por apresentar elevado percentual de fração “argila”. Isto acarreta em valores de plasticidade e perda ao fogo excessivo. Como consequência, há uma elevada retração linear de secagem e de queima. Além disso, a presença de gibsita, proveniente das argilas contribui também para o aumento da perda ao fogo.

As massas cerâmicas reformuladas com resíduo da serragem de granito e apresentaram menores valores de retração linear de secagem e queima em relação à massa industrial. Isto facilita o processo de secagem e diminui o risco de defeitos dimensionais. No caso da massa composta por 40% em peso de resíduo de granito, ainda foram obtidos melhores valores de absorção de água e resistência mecânica na faixa de temperatura normalmente utilizada para telhas, de 850 a 1000°C.

REFERÊNCIAS

- VIEIRA, C.M F; HOLANDA J.N.F; PINATTI D.G. *Cerâmica*. n. 46, 2000.
- MONTEIRO, S.N.; VIEIRA C.M F. *Tile & Brick Int.* v. 18, nº 3, 2002.
- SOUTO, K. M. et al. *Anais do 14º Congresso Brasileiro de Engenharia e Ciência dos Materiais*. São Pedro/SP, dez. de 2000, CD-ROM.
- SOUTO, K. M. et al. *Anais do 45º Congresso Brasileiro de Cerâmica*. Florianópolis/SC, jun. de 2001, CD-ROM.
- REJEITOS de Rochas têm aproveitamento. *A Gazeta*. Suplemento Especial, Vitória/ES, ago. de 1998.
- PRACIDELLI, S.; MELCHIADES, F. G. *Cerâmica Industrial*. n. 2, 1997.
- OLIVEIRA, A. P. N. et al. *Cerâmica Informação*. n.10, 2000.
- KINGERY, W. D.; BOWEN H. K.; UHLMANN, D. R. *Introduction*

- to Ceramics*. New York: A Wiley Interscience Publication, 1976.
- FACINCANI. *Tecnología Cerámica – Los Ladrillos*. 3th ed., Barcelona: Faenza Editrice Iberica ,1997.
- VAN VLACK, L. H. *Propriedades dos Materiais Cerâmicos*. São Paulo: Edgard Blucher Ltda, Brasil, 1973.
- KOBAYASHI, Y. *et al.*, *J. Am. Ceram. Soc.*, n. 75, v. 7, 1992.
- SANTOS, P. S. *Tecnologia das argilas*. São Paulo: Edgard Blucher,1989.

NOTA

* Os autores agradecem a FAPERJ pelo apoio para realização deste trabalho, processos nº E-26151.544/2001e E-26151.837/2001.