



Rem: Revista Escola de Minas

ISSN: 0370-4467

editor@rem.com.br

Escola de Minas

Brasil

Gonçalves, Gislayne Elisana; Sabioni, Antônio Claret Soares; Ferraz, Wilmar Barbosa; Costa, Geraldo Magela da; Brito, Walter de; Dias, José Alves; Garcia, Fillipe Augusto da Costa

Síntese e caracterização de mulita utilizando sílica obtida da casca de arroz

Rem: Revista Escola de Minas, vol. 62, núm. 3, julio-septiembre, 2009, pp. 367-372

Escola de Minas

Ouro Preto, Brasil

Disponível em: <http://www.redalyc.org/articulo.oa?id=56416739016>

- Como citar este artigo
- Número completo
- Mais artigos
- Home da revista no Redalyc

redalyc.org

Sistema de Informação Científica

Rede de Revistas Científicas da América Latina, Caribe, Espanha e Portugal

Projeto acadêmico sem fins lucrativos desenvolvido no âmbito da iniciativa Acesso Aberto

# Metalurgia & Materiais

## Síntese e caracterização de mulita utilizando sílica obtida da casca de arroz

(Synthesis and characterization of mullite using silica from rice husk)

### Resumo

Mulita com composição  $1,4 \text{ Al}_2\text{O}_3 \cdot \text{SiO}_2$  foi sintetizada a partir de  $\alpha$ -alumina comercial (Alfa Cesar Company) e de sílica obtida da calcinação da casca de arroz. Essa sílica possui alta área superficial, alta pureza e pequeno diâmetro médio de partícula. Pós de sílica e de alumina foram misturados na proporção estequiométrica  $3\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 2\text{SiO}_2$  correspondente a 71,8 % em peso de  $\text{Al}_2\text{O}_3$  e 26,2 % em peso de  $\text{SiO}_2$ , homogeneizados em moinho de disco orbital de alumina antes e após a calcinação a  $1100^\circ\text{C}$ , durante 4 h, ao ar. Em seguida, os pós foram prensados uniaxialmente sob uma pressão de 1200 MPa. Os corpos verdes foram sinterizados a  $1650^\circ\text{C}$ , por 4 h, ao ar. As densidades dos corpos sinterizados foram determinadas pelo método hidrostático. As caracterizações química e estrutural foram realizadas por ICP, DRX e MAS RMN de  $^{29}\text{Si}$ , respectivamente, e a análise microestrutural por MEV. Os resultados obtidos mostram que é possível sintetizar cerâmica mulita de alta pureza, com pouca fase vítrea, a partir da  $\alpha$ -alumina e sílica, obtida da casca de arroz purificada e calcinada.

**Palavras-chave:** Casca de arroz, mulita,  $3\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 2\text{SiO}_2$ .

### Abstract

Mullite, composed of  $1,4\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot \text{SiO}_2$ , was synthesized using commercial  $\alpha$ -alumina (Alpha Cesar Company) and silica obtained from the calcinations of rice husk. This silica exhibits a high specific surface area, high purity and small average particle diameter. Silica (26.2 wt.%) and  $\alpha$ -alumina powders (71.8 wt.%) were mixed and homogenized using an alumina orbital disc mill before and after the calcinations at  $1100^\circ\text{C}$  for 4 h in an air atmosphere. Then, the powders were pressed uniaxially at a pressure of 1200 MPa. The green compacts were sintered at  $1650^\circ\text{C}$ , for 4 h, in air. The density of compacted sintering samples was determined using the hydrostatic method. The chemical and structural properties were observed using ICP (Inductively Coupled Plasma), XRD (X-ray diffraction) and  $^{29}\text{Si}$  MAS (Magic Angle Spinning) NMR (Nuclear Magnetic Resonance) and the microstructural characterization performed using SEM (Scanning Electron Micrography). The results show that it is possible to synthesize mullite ceramic of high-purity and with little glassy phase from the  $\alpha$ -alumina and silica obtained from the rice husk that is purified and calcinated.

**Keywords:** Rice husk, mullite,  $3\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 2\text{SiO}_2$ .

Gislayne Elisana Gonçalves

Mestre em Engenharia de Materiais  
pela Universidade Federal de Ouro  
Preto - REDEMAT  
E-mail: gislayne.herculano@gmail.com

Antônio Claret Soares Sabioni

Prof., Dr., Departamento de Física  
Universidade Federal de Ouro Preto  
E-mail: sabioni@iceb.ufop.br

Wilmar Barbosa Ferraz

Pesquisador, Dr., CDTN/CNEN  
Belo Horizonte  
E-mail: ferrazw@cdtn.br

Geraldo Magela da Costa

Prof., Dr., Depart. de Química da  
Universidade Federal de Ouro Preto  
E-mail: magela@iceb.ufop.br

Walter de Brito

Geólogo - CDTN/CNEN  
Belo Horizonte  
E-mail: britow@cdtn.br

José Alves Dias

Prof., Dr., Instituto de Química da  
Universidade de Brasília  
E-mail: jdias@unb.br

Fillipe Augusto da Costa  
Garcia

Aluno de Mestrado do Instituto de  
Química da Universidade de Brasília  
E-mail: garcia.f@gmail.com

## 1. Introdução

A casca de grãos de arroz é um material proveniente do rejeito agrícola de atividades industriais em países produtores de arroz. A casca de grãos de arroz, removida durante o refinamento, não tem nenhum interesse comercial ou uso na área agrícola, mas se apresenta como um problema devido à necessidade de seu armazenamento. O eventual beneficiamento e a conversão da casca de arroz em outros produtos apresentam interesse sócio-econômico e ambiental. Uma possível aplicação da casca de arroz é na tecnologia cerâmica como fonte de sílica de alta pureza e baixo custo (Souza et al., 1999). O interesse na sílica obtida da casca de arroz como matéria-prima cerâmica provém da possibilidade de ser obtida com elevada área superficial específica ( $> 200 \text{ m}^2/\text{g}$ ), alta pureza ( $> 97\%$ ) e possibilidade de se obter tamanho de partícula na faixa nanométrica. Essas características são importantes nas sínteses da cerâmica mulita, que depende, entre outros fatores, das espécies usadas como matéria-prima, da composição química e do tamanho médio de partícula dessas espécies. Nesse trabalho, é feita a aplicação da sílica obtida da casca de arroz para produzir a cerâmica mulita. A mulita é a única fase cristalina intermediária estável no sistema binário  $\text{Al}_2\text{O}_3$ - $\text{SiO}_2$  na faixa de 70,5 a 74,0 % em peso de  $\text{Al}_2\text{O}_3$ - $\text{SiO}_2$ , à pressão ambiente. No entanto, mulita metaestável pode ser obtida na faixa de 74 a 83,6 % de  $\text{Al}_2\text{O}_3$ . Esse composto ocorre como uma solução sólida que pode ser descrita através da fórmula química  $\text{Al}_{4+2x}\text{Si}_{2-2x}\text{O}_{10-x}$ , onde  $x$  representa o número de vacâncias de oxigênio por célula unitária e varia de 0,17 a 0,59 (Burnham, 1964; Cameron, 1977).

Nos últimos anos, a mulita tem apresentado crescentes aplicações no campo de cerâmica avançada, estrutural e funcional, em resposta às suas excelentes propriedades físicas, tais como: baixa expansão térmica ( $4,5 - 5,6 \times 10^{-6} \text{ }^\circ\text{C}^{-1}$ ), baixa condutividade térmica ( $0,06 \text{ W cm}^{-1} \text{ }^\circ\text{K}^{-1}$ ), alto ponto de fusão ( $> 1800^\circ\text{C}$ ) e densidade baixa ( $3,16 - 3,22 \text{ g cm}^{-3}$ ) (Montanaro et al., 1997). Entre as inúmeras aplicações modernas de cerâmicas de mulita,

pode-se citar a sua utilização como substrato de circuito integrado, uma vez que essa aplicação requer o desenvolvimento de material cerâmico com baixa constante dielétrica (4,5-6,7) e coeficiente de expansão térmica similar ao do silício (Kanka et al., 1994).

Considerando que a mulita é rara na natureza e o seu consumo atual é alto e crescente, numerosos processos têm sido desenvolvidos para a sua síntese. A maior dificuldade na síntese de mulita monofásica ocorre devido às incertezas e controvérsias a respeito das relações de equilíbrio de fases nas regiões ricas em alumina do diagrama de fases do sistema  $\text{SiO}_2$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$  (Prochaska et al., 1983; Saruban et al., 1996). Porém, atualmente, corpos cerâmicos de mulita são comumente produzidos pelo uso de reação de sinterização de misturas de pós  $\text{Al}_2\text{O}_3$  e  $\text{SiO}_2$ , pela técnica sol-gel, ou pela sinterização direta da mistura de pós  $\text{Al}_2\text{O}_3$  e  $\text{SiO}_2$ , sendo que a escala de homogeneidade química é limitada pelo tamanho das partículas (Prochaska et al., 1983; Saruban et al., 1996).

No presente trabalho, foram desenvolvidos corpos cerâmicos de mulita  $1,4 \text{ Al}_2\text{O}_3 \cdot \text{SiO}_2$ , correspondente a 58,3 % molar de alumina, de alta pureza, com pouca sílica amorfa, através da mistura de pós de sílica e  $\alpha$ -alumina. A sílica utilizada foi obtida por calcinação da casca de arroz.

## 2. Materiais e métodos

### 2.1 Sílica

A sílica foi obtida a partir da casca de arroz purificada conforme os procedimentos realizados por Souza et al. (1999). Antes da calcinação, procedeu-se ao seguinte processo de purificação. A casca de arroz foi imersa numa solução de ácido clorídrico 1:1 em água deionizada, durante 72 horas, e, posteriormente, lavada com água deionizada até se obter pH entre 6,0 e 7,0. O material obtido foi calcinado a  $700^\circ\text{C}$ , com taxa de aquecimento de  $1,7^\circ\text{C}/\text{min}$ , sem patamar, em atmosfera oxidante, resultando em sílica amorfa. As impurezas dos pós foram ca-

racterizadas utilizando um espectrofotômetro de emissão atômica com fonte de plasma indutivamente acoplado (ICP-OES). A área superficial, o diâmetro médio de partícula e a dimensão dos poros foram analisados através das isotermas de adsorção de nitrogênio, à temperatura de 77 K, pelo método BET (Brunauer-Emmett-Teller). A análise cristalográfica do pó de sílica foi realizada por difração de raios X, utilizando um difratômetro com radiação  $\text{FeK}\alpha$  e monocromador de grafite, à velocidade de  $2^\circ/\text{min}$ , na faixa de  $15^\circ$  a  $70^\circ$ .

### 2.2 Alumina

O pó de  $\alpha$ -alumina foi utilizado como fornecido pela empresa Alfa Aesar Company, e apresenta uma pureza de 99,98 %, com tamanho médio de partícula inferior a  $1 \mu\text{m}$ .

### 2.3 Síntese e caracterização de mulita

Os pós de sílica e  $\alpha$ -alumina foram devidamente pesados na proporção correspondente a 71,8 % em peso de  $\text{Al}_2\text{O}_3$ - $\alpha$  e 26,2 % em peso de  $\text{SiO}_2$ . Os pós foram homogeneizados no moinho de disco de alumina por 30 minutos e depositados em cadinhos de alumina, levados ao forno resistivo tipo mufla e calcinados a  $1100^\circ\text{C}$ , por 4 horas. Na sequência, o material foi, novamente, homogeneizado, no moinho de disco de alumina, por 30 minutos, para a remoção de eventuais aglomerados e para se aumentar o contato entre as partículas dos pós. Foram produzidas 5 pastilhas para cada lote, todas de, aproximadamente, 1 g cada. Essas pastilhas foram produzidas por prensagem uniaxial a 1200 MPa, por 5 segundos utilizando a prensa hidráulica uniaxial, de dupla ação, com capacidade máxima de 10 toneladas. As pastilhas obtidas com diâmetro de 1 cm e altura de 5 mm foram sinterizadas a  $1650^\circ\text{C}$ , com taxa de aquecimento de  $10^\circ\text{C}/\text{min}$ , durante 4 h, ao ar, em forno resistivo tipo mufla. As densidades das pastilhas verdes foram analisadas pelo método geométrico e após a sinterização pelo método

do de Arquimedes, com o uso de água destilada como líquido de imersão. A análise da superfície de fratura foi realizada por MEV (microscopia eletrônica de varredura). Para esta análise, as amostras foram revestidas por uma película de carbono, utilizando um evaporador a vácuo. As caracterizações de fases e cristalográficas dos corpos cerâmicos de mulita foram realizadas por difração de raios X (DRX), pelo método do pó, utilizando um equipamento com radiação  $\text{FeK}\alpha$  e monocromador de grafite, à velocidade de  $2^\circ/\text{min}$  na faixa de  $10^\circ$  a  $70^\circ$ . Os parâmetros de rede das amostras tratadas foram calculados. Nesses casos, ocorreu a adição de 10 % de silício como padrão interno e as medidas foram feitas com velocidade de  $0,5^\circ/\text{min}$ . A percentagem molar de alumina presente na mulita produzida foi obtida através da seguinte equação:

$$m = 144,5a - 1029,5 \quad (1)$$

onde “a” corresponde ao parâmetro de rede obtido por DRX e “m” corresponde a percentagem molar de alumina (Fischer et al., 1996). O espectro de ressonância magnética nuclear de  $^{29}\text{Si}$  com rotação no ângulo mágico (MAS) foi realizado em um espectrômetro a 59,6 MHz, usando uma janela espectral de 100 kHz, pulso de  $7,5 \mu\text{s}$  ( $\pi/2$ ), intervalo entre pulsos de 30 s, tempo de aquisição de 0,05 s e 500 transições. A amostra foi condicionada em rotor de zircônia, girada a 4 kHz e o espectro referenciado ao padrão interno TMS (tetrametilsilano). A deconvolução do espectro foi feita utilizando um programa matemático para ajustar curvas Gaussianas ao comportamento de cada sítio. O espectro foi processado utilizando as funções largura de linha (15 Hz) e gaussiana (0,01).

### 3. Resultados e discussão

#### 3.1 Caracterização do pó de sílica

O difratograma de raios X apresenta uma banda amorfa na região de  $2\theta$  entre  $20^\circ$  e  $40^\circ$  o que está relacionado ao

estado amorfo da sílica obtida da casca de arroz (Figura 1), como reportado na literatura (Souza et al., 1999; Souza et al., 2000; Della et al., 2001; Yalçın et al., 2001; Liou, 2004). Muitos autores têm mostrado que a casca de arroz é uma excelente fonte de obtenção de sílica amorfa (Souza et al., 1999; Souza et al., 2000; Della et al., 2001; Yalçın et al., 2001; Liou, 2004).

A área superficial específica obtida foi de  $317 \text{ m}^2/\text{g}$ , é mostrada na Tabela 1, e está de acordo com os valores encontrados na literatura (Souza et al., 1999; Souza et al., 2000; Della et al., 2001; Yalçın et al., 2001; Liou, 2004). Pode-se perceber através da Tabela 1 que a sílica obtida pela calcinação da palha de arroz a  $700^\circ\text{C}$  apresentou valor de diâmetro médio de partícula nanométrico, sendo muito menor que os dados previamente divulgados na literatura (Souza et al., 1999; Souza et al., 2000; Della et al., 2001; Yalçın et al., 2001; Liou, 2004). Segundo Liou, 2004, a maior contribuição para o aumento da área superficial específica é a remoção de matéria-orgânica durante a decomposição térmica, conduzindo a uma estrutura altamente porosa. A Tabela 1 também mostra que a sílica obtida no presente trabalho tem pureza da ordem de 99,9 %, ou seja, maior que os valores publicados previamente na literatura (Souza et al., 1999; Souza et al., 2000; Della et al., 2001; Yalçın et al., 2001; Liou, 2004).

A Tabela 2 mostra os teores de impurezas presentes na mulita produzida e confirma sua alta pureza, uma vez que elas estão presentes na faixa de ppm. Dentre os metais detectados na mulita produzida, K, Ca são indesejáveis em materiais refratários, uma vez que estes são considerados fundentes e formadores de fase vítrea, pois tendem a abaixar o ponto de fusão (Della et al., 2001).

#### 3.2 Caracterização dos corpos cerâmicos sintetizados

A Tabela 3 mostra as características dos corpos cerâmicos produzidos por prensagem e subsequente sinterização a  $1650^\circ\text{C}$ , 4h. Pode-se perceber que o valor estimado da percentagem molar de alumina presente na mulita formada por reação no estado sólido é de 58,3 % molar, havendo, portanto, a formação de mulita  $1,4\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot \text{SiO}_2$ . Nesse caso, percebe-se que uma pequena parte da  $\alpha$ -alumina não reagiu totalmente com a sílica amorfa. A formação de mulita  $1,4\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot \text{SiO}_2$  (58,3% molar de alumina) está prevista no diagrama de fases de Aksay e Pask, em 1975, o qual mostra a mulita presente numa faixa de solução sólida de, aproximadamente, 58% a 63% molar de alumina. Entretanto, considerando a incerteza de 1,5% molar, estima-se que é possível a ocorrência da forma-

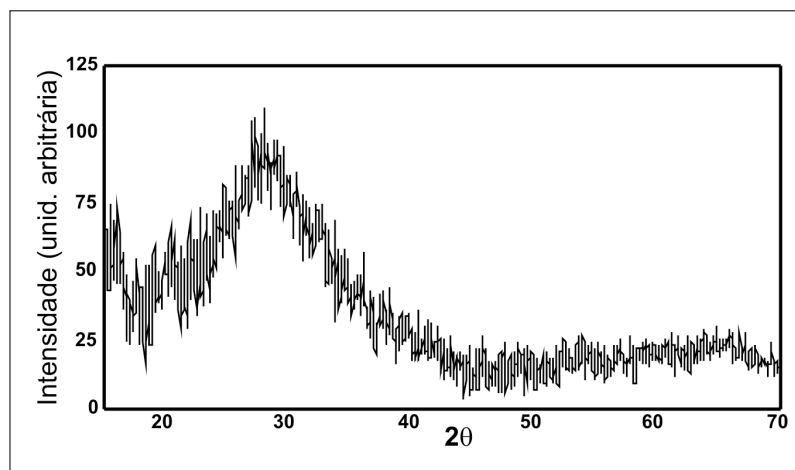


Figura 1- Difratograma de raios X de sílica calcinada a  $700^\circ\text{C}$ .

*Síntese e caracterização de mulita utilizando sílica obtida da casca de arroz*

**Tabela 1** - Comparação entre o teor de pureza, área superficial e diâmetro médio de partícula com dados disponíveis na literatura.

Referência	Tratamento Térmico (°C)	Tempo (h)	Teor de SiO <sub>2</sub> (%)	Área Superficial (m <sup>2</sup> /g)	Diâmetro Médio de Partícula (nm)
Esse trabalho	700	-	99,9	317	4,6
Souza et al., 1999	500	2	99	200	100
Souza et al., 2000	550	2	99,7	480	600
Della et al., 2001	500	1,5	97,87	177	40
Yalçin et al., 2001	600	4	99,66	321	30
Liou, 2004	727	-	99,7	235	60

**Tabela 2** - Composição química do pó de sílica obtido por calcinação da casca de arroz a 700°C e determinada por ICP. Os valores estão em ppm.

Al	Ba	Ca	Fe	K	Mg	Mn	Na	Ti	Zn
358	1,41	152	59,5	47	64,4	48,8	19,8	26,2	106

**Tabela 3** - Percentagem molar de Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> antes e após a sinterização, parâmetros de rede, proporção Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:SiO<sub>2</sub> e densidades dos corpos cerâmicos obtidos por prensagem e por sinterização a 1650°C, 4 h. Os valores representam a média das cinco pastilhas estudadas.

Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (% molar) Inicial	D. Verde (g/cm <sup>3</sup> )	a (Å)	b (Å)	c (Å)	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%molar) Sinter.	D. Sinter. (g/cm <sup>3</sup> )	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :SiO <sub>2</sub> Final
60	2,07	7,528 (0,003)	7,663 (0,003)	2,874 (0,002)	58,3 (±1,5)	2,58	1,4:1

ção de mulita 3Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.2SiO<sub>2</sub>. A porcentagem molar dessa mulita está próxima da percentagem molar do material misturado inicialmente. Essa suposta formação de mulita 3:2 pode ser reforçada pelo fato de que os parâmetros de rede da mulita produzida estão de acordo com os dados encontrados na literatura para a mulita contendo 60 % molar de alumina (3Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.2SiO<sub>2</sub>) (Cameron, 1977; Saruhan et al., 1996). Segundo Cameron, em 1977, mulitas formadas por reação no estado sólido têm a composição dependente da temperatura, na faixa de solução sólida de 60 a 66% molar de Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.

Nota-se, através da Tabela 3, que as amostras obtidas apresentaram densidades baixas. Quando o processo de

calcinação da mistura dos pós de sílica e alumina é empregado antes do processo de sinterização, com o objetivo de se obter uma densidade próxima ao valor de densidade teórica do material, utiliza-se um método de prensagem mais eficiente ou uma temperatura de calcinação menor, como 600°C (Kanka et al., 1994). No entanto, essa baixa densidade apresentada pela mulita sinterizada está de acordo com trabalhos encontrados na literatura, os quais utilizaram como fonte de sílica amorfa a casca de arroz purificada (Souza et al., 1999; 2000).

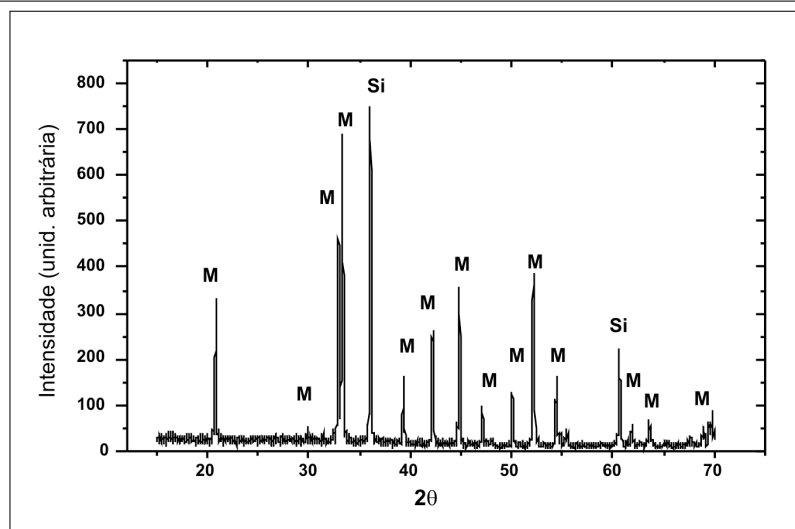
O difratograma de raios X da mulita produzida mostra que o corpo cerâmico apresenta somente as reflexões características da mulita (Figura 2).

A Figura 3 mostra a microestrutura da mulita sinterizada e revela a presença de grãos equiaxiais de tamanho médio variando na faixa de 2 a 3 µm. A presença de grãos equiaxiais tem sido associada à ausência de fase vítrea, ao desenvolvimento da cristalização da mulita e ao processo de sinterização por fluxo semiviscoso (Rani et al., 2001). Devido à grande variedade de parâmetros de reação para a formação de mulita relatada em vários estudos prévios (Kanka et al., 1994; Saruban et al., 1996; Fielitz et al., 2001), é difícil determinar o mecanismo de sinterização e de formação de mulita (Saruban et al., 1996). Porém sabe-se que a espécie de sílica usada pode vir a determinar o mecanismo de sinterização e formação de mulita, assim sendo, pode-

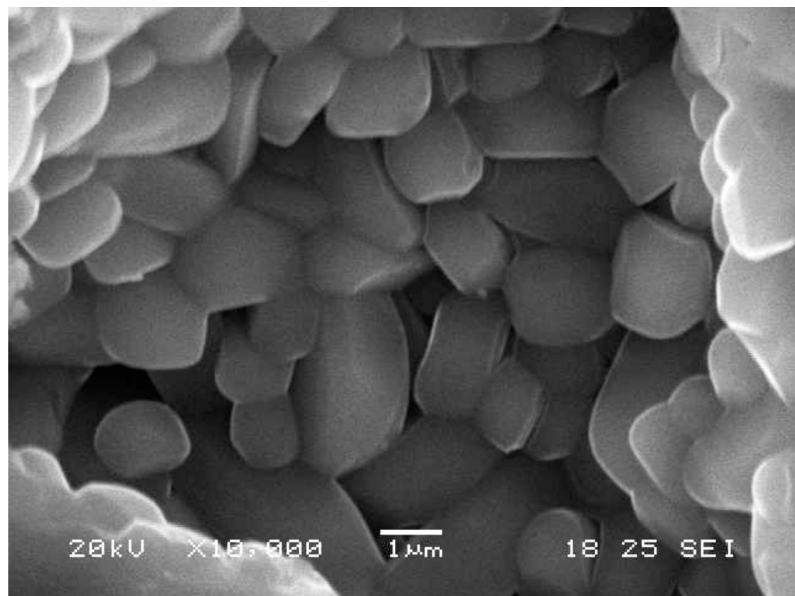


se inferir que o processo de formação de mulita que ocorreu neste trabalho possa se assemelhar ao processo relatado por Saruban et al. (1996), apesar da ausência de um estudo detalhado sobre esse processo. No entanto, essa comparação pode ser possível, porque esses autores também utilizaram mistura estequiométrica de sílica amorfa e  $\alpha$ -alumina para obtenção de mulita. Segundo esses autores, a formação de mulita ocorre após a sílica amorfa se transformar em cristobalita entre 1450°C e 1600°C. A formação da fase mulita inicia-se a 1500°C e continua num processo acelerado até 1550°C. Acima dessa temperatura e entre 1550°C e 1600°C, esse processo se torna mais demorado. Acredita-se que a sinterização ocorra pelo mecanismo de fluxo semi-viscoso de partículas sólidas de alumina em contato com a sílica viscosa. Após a temperatura de 1450°C, íons de  $Al^{3+}$  se difundem dentro das partículas de sílica até alcançar a composição estequiométrica da mulita, mas a mulita apenas vem a aparecer acima de 1500°C, posteriormente à transição de sílica amorfa para cristobalita. Após a formação de camadas de mulita entre as partículas de sílica e alumina, ocorre uma redução na taxa de formação da fase mulita, uma vez que essa camada atua como uma barreira para a difusão das espécies e somente acima de 1650°C esse processo é acelerado devido à fusão da cristobalita (Saruban et al., 1996). Esses autores utilizaram a temperatura máxima de sinterização de 1750°C. Entretanto a utilização da temperatura de sinterização de 1650°C no presente trabalho não impediu o processo de formação de mulita das amostras, como comprovado por difração de raios X.

A técnica MAS RMN  $^{29}Si$  contribui na elucidação dos sítios de silício presentes em mulitas oriundas de diferentes fontes e tratamentos, conforme comunicado recentemente por Soares et al., em 2007. Os deslocamentos químicos característicos de sítios de Si na mulita foram observados na mulita sintetizada em -80,8 ppm (sítio próximo à vacância de oxigênios); em -86,9 ppm (sítio típico da silimanita) e em -92,0 ppm (sítio resultante de rearranjos da silimanita), nas



**Figura 2** - Difratograma de raios X da mulita produzida por sinterização a 1650 °C, por 4h. Onde M representa reflexões da Mulita e Si do Silício adicionado como padrão interno.



**Figura 3** - Micrografia da superfície de fratura da mulita sinterizada, realizada por MEV.

proporções de 12,6 %, 51,4 % e 35,9 %, respectivamente (Figura 4). A presença de um sítio em -106,3 ppm, relacionado ao ambiente de silício da sílica amorfa, foi também observada. Isso indica que alguma sílica amorfa pode estar presente, em quantidade inferior ao limite de detecção da DRX, que tem sensibilidade

inferior à da técnica MAS RMN de  $^{29}Si$  e que vem a ser a técnica mais comumente usada na caracterização de materiais. Esse fato vem confirmar que não houve a completa reação entre as partículas de alumina- $\alpha$  e sílica amorfa, presente no material misturado inicialmente numa proporção de 3:2 ( $Al_2O_3$ : $SiO_2$ ).

## 4. Conclusões

Nesse trabalho, houve a formação de corpos cerâmicos de mulita de baixa densidade, por sinterização a 1650°C, a partir de alumina- $\alpha$  e de sílica amorfa obtida a partir do tratamento químico e térmico da casca de arroz.

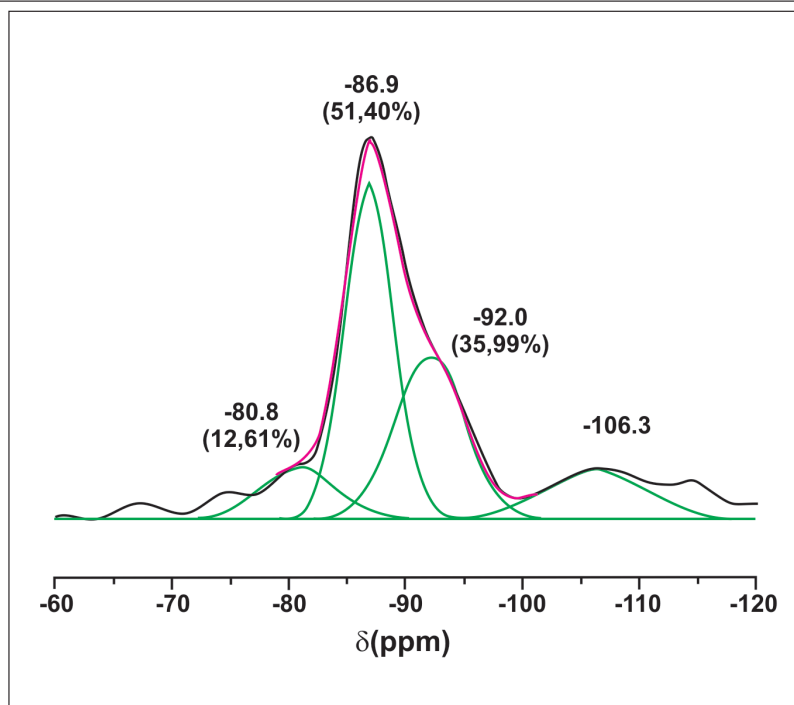
Os corpos cerâmicos de mulita produzidos por reação no estado sólido apresentaram uma segunda fase de sílica amorfa, que foi detectada pela técnica de RMN, indicando que parte das partículas de  $\alpha$ -alumina não reagiu com a sílica amorfa, formando a mulita  $1,4 \text{ Al}_2\text{O}_3 \cdot \text{SiO}_2$ . Portanto, para se obter mulita monofásica por reação no estado sólido, deve-se utilizar um método de prensagem e homogeneização mais eficiente, temperatura de sinterização mais alta e preservar a reatividade dos pós de  $\alpha$ -alumina e sílica amorfa, empregando, durante o processo de calcinação dos pós, temperaturas mais baixas, como 600°C, por exemplo.

## 5. Agradecimentos

À Fundação Gorceix pelo apoio financeiro e à REDEMAT, à FINEP (CT-INFRA 970/01) e ao CDTN por possibilitar a realização desse trabalho de pesquisa. Os autores agradecem também ao Dr. Moacil Alves de Souza do Departamento de Fitotecnia da UFV pelo fornecimento da casca de arroz.

## 6. Referências bibliográficas

- AKSAY, L.A., PASK J. A. Stable and metastable phase equilibria in the system  $\text{Al}_2\text{O}_3$ . *Journal American Ceramic Society*, v.58, n. 11, p.507-512, 1975.
- BURNHAM, C.W. Crystal structure of mullite. *Carnegie Inst. Washington Year Book*, v. 63, n.1a, p. 223-227, 1964.
- CAMERON, W. E. Mullite: a substituted alumina. *American Mineralogist*, v. 62, n. 7-8, p.747-755, 1977.
- DELLA, V.P., KÜHN, I., HOTZA, D. Characterization of rice husk ash for use as raw material in the manufacture of silica refractory. *Química Nova*, v. 24, n. 6, ISSN 0100-4042, 2001.



**Figura 4** - Espectro de MAS RMN de  $^{29}\text{Si}$  da mulita sintetizada. Estão indicados os sítios típicos do Si na mulita: -80,8 ppm, -86,9 ppm e -92ppm, com evidência de Si em sílica amorfa em -106,3 ppm.

- FIELTIZ, P., BORCHARDT G., SCHNEIDER H., SCHMUCKER M., WIEDENBECK, M., RHEDE, D. Self-diffusion of oxygen in mullite. *Journal of the Ceramic Society*, v.21, n. 1, p. 2577-2582, 2001.
- FISCHER, R.X., SCHNEIDER H., VOLL, D. Formation of aluminum rich 9:1 mullite and its transformation to low alumina mullite upon heating. *Journal of the European Ceramic Society*, v.16, n.2, p. 109-113, 1996.
- KANKA B., SCHNEIDER, H. Sintering mechanisms and microstructural development of coprecipitated mullite. *Journal of Materials Science*, v. 29, n.5, p. 1239-1249, 1994.
- LIU, T. H. Preparation and characterization of nano-structured silica from rice husk. *Materials Science and Engineering*, v. A364, n.1-2 p. 313-323, 2004.
- MONTANARO, L., TULLIANI M., PERROT C., NEGRO A. Sintering of industrial mullites. *Journal of the European Ceramic Society*, v. 17, n. 14, p.1715-1723, 1997.
- PROCHASKA, S., KLUG, F.J. Infrared-transparent mullite ceramic. *Journal of the American Ceramic Society*, v. 66, n.12, p. 874-880, 1983.
- RANI, D.A., JAYASEELAN, D.D., GNANAM, F.D. Densification behavior and microstructure of gel-derived phase-pure mullite in the presence of sinter additives. *Journal of the European Ceramic Society*, v. 21, n. 12, p. 2253-2257, 2001.
- SARUBAN, B., ALBERS, W., SCHNEIDER, H., KAYSER, W.A. Reaction and sintering mechanisms of mullite in the systems cristobalite/ $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$  and amorphous  $\text{SiO}_2$ / $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$ . *Journal of the European Ceramic Society*, v. 16, n.10, p. 1075-1081, 1996.
- SOARES, R., SABIONI, A. C. S., RESCK, I. S., FALCOMER, V.A.Z., DIAS, J. A., Ruiz, N. M. S., COSTA, G. M. Structural characterization of mullites synthesized by thermal decomposition of topaz. *Materials Research*, v. 10, n. 1, p. 75-78, 2007.
- SOUZA, M. F., BATISTA P.S., REGIANI I., LIBORIO L. B. J., SOUZA, F. P. D. Rice hull-derived silica: applications in portland cement and mullite whiskers. *Materials Research*, v. 3, n. 2, p. 25-30, 2000.
- SOUZA, M.F., YAMAMOTO, J. Mulita a partir de hidróxido de alumínio e de sílica da casca de arroz. *Cerâmica*, v. 45, n. 291, p. 34-37, 1999.
- YALÇIN, N., SEVINÇ, V. Studies on silica obtained from rice husk. *Ceramics International*, v. 27, n. 2, p. 219-224, 2001.

Artigo recebido em 02/07/2008 e aprovado em 11/05/2009.