

# Planejamento experimental no estudo da maximização do teor de resíduos em blocos e revestimentos cerâmicos

## *(Experimental design to maximize the waste content in ceramic bricks and tiles)*

L. F. A. Campos, R. R. Menezes, D. Lisboa, L. N. L. Santana, G. A. Neves, H. C. Ferreira

Departamento de Engenharia de Materiais, Universidade Federal de Campina Grande

Av. Aprígio Veloso 882, Bodocongó, Campina Grande, PB 58109-970

romualdomenezes@dema.ufcg.edu.br, gelmires@dema.ufcg.edu.br

### Resumo

A utilização de planejamentos experimentais para o estudo de misturas encontra uma grande gama de aplicações tanto em pesquisas laboratoriais como em trabalhos de desenvolvimento industrial. Assim, este trabalho tem por objetivo utilizar o planejamento experimental aplicado ao estudo de misturas para avaliar a potencialidade do uso conjunto dos resíduos do beneficiamento do caulim e da serragem do granito para a produção de blocos e revestimentos cerâmicos. Utilizando o planejamento experimental foram formuladas determinadas composições com as matérias-primas. As matérias-primas foram misturadas em determinadas proporções e confeccionados corpos de prova por extrusão e por prensagem uniaxial. Os corpos de prova foram queimados e, em seguida, determinou-se sua absorção de água e módulo de ruptura à flexão. Foram ajustados modelos matemáticos de regressão relacionando a absorção de água e o módulo de ruptura com as proporções das matérias-primas. Os resultados mostraram que o procedimento de planejamento experimental utilizado permite maximizar a quantidade de resíduo incorporado às formulações para blocos e revestimentos cerâmicos, sendo possível a incorporação de teores de resíduos de até 50% em formulações para a produção de blocos cerâmicos e de até 40% em composições para a produção de revestimentos cerâmicos.

**Palavras-chave:** resíduos, reciclagem, planejamento experimental, blocos, revestimentos.

### Abstract

*The use of experimental design to the study of mixtures has found a wide range of applications, even in laboratory scale or in industrial development works. Thus, this work has as aim apply the experimental design used in the study of mixtures to evaluate the suitability of use kaolin processing waste and granite sawing waste together for the production of ceramic bricks and tiles. Based on the raw materials, specific formulations were developed using the experimental design. The raw materials were mixed and sample bodies were produced using extrusion and uniaxial pressing. The sample bodies were fired and characterized in terms of water absorption and mechanical strength. Regression models were adjusted relating the water absorption and mechanical strength with the amount of raw materials. The results showed that the methodology of experimental design maximize the content of wastes incorporated in ceramic bricks and tiles formulations. Formulations containing up to 50% waste can be used for the production of ceramic bricks, and formulations, which contained up to 40% of waste can be used for the production of ceramic tiles.*

**Keywords:** wastes, recycling, experimental design, ceramic bricks, ceramic tiles.

## INTRODUÇÃO

Atualmente, em todo o mundo as atividades de mineração e processamento mineral produzem milhões de toneladas de resíduos inorgânicos a cada dia. Tradicionalmente esses resíduos são descartados em aterros a céu aberto ou jogados diretamente no meio ambiente sem o tratamento adequado. No entanto, alternativas de reciclagem e reutilização devem ser investigadas e implementadas [1, 2].

A abordagem ambiental mais recente, objetiva exatamente o desenvolvimento sustentável, com a minimização do descarte dos materiais, enfatizando que no século 21 o gerenciamento dos resíduos é uma das questões

mais importantes tanto para a saúde pública como para o desenvolvimento industrial [3, 4]. A inserção dos resíduos em ciclos alternativos de produção deve representar uma importante opção de reaproveitamento tanto da perspectiva ambiental como da econômica. A reutilização e a reciclagem são as melhores soluções para a economia de matérias-primas e a redução na quantidade de resíduos industriais produzidos [5-7]. O que faz com que o desenvolvimento de novas tecnologias de reciclagem de resíduos sólidos tenha grande importância não apenas ambiental, mas também econômica [8-10] nos dias atuais.

A reciclagem de resíduos sólidos através de sua incorporação em formulações cerâmicas para produção

de cerâmicas tradicionais, como tijolos, revestimentos e porcelanas, vem ganhando a cada dia mais destaque devido à possibilidade de aproveitamento de grandes quantidades de resíduos e pelos excelentes resultados técnicos que vêm sendo apresentados na literatura.

A indústria da mineração e beneficiamento do caulim gera uma enorme quantidade de resíduos sólidos a cada ano, que, em geral, são descartados indiscriminadamente no meio ambiente. O que faz com que o caulim, apesar da sua grande importância em várias indústrias, como a da borracha, do plástico, de tintas, papel, etc., esteja associado a um grande passivo ambiental. A indústria do caulim que processa o caulim primário produz dois tipos de resíduos. O primeiro na mineração, oriundo da etapa de separação do minério da areia grossa e representa cerca de 70% do total produzido. O segundo no beneficiamento, gerando um resíduo na forma de lama resultante da purificação a úmido do caulim.

A indústria do granito também produz uma enorme quantidade de resíduos sólidos por ano. Vários estudos [11-15] são dedicados à reciclagem do resíduo da serragem do granito através de sua incorporação em formulações cerâmicas, tendo demonstrado a viabilidade de utilização desse resíduo para a produção de revestimentos e blocos cerâmicos. Esses trabalhos também evidenciaram um grande potencial de utilização desse resíduo em combinação com outros resíduos para a produção de peças cerâmicas.

A mistura de matérias-primas é de fundamental importância para diversos setores tecnológicos, podendo-se otimizar as propriedades do produto final através da adequada combinação das matérias-primas. Nesse sentido, a utilização de planejamentos experimentais para o estudo de misturas tem encontrado larga aplicação tanto em pesquisas laboratoriais como em desenvolvimentos industriais [16-18].

A partir de um delineamento de misturas podem-se verificar como as propriedades de interesse são afetadas pela variação das proporções dos componentes da mistura e a partir do conhecimento prévio das propriedades de cada componente original, bem como das misturas, em proporções definidas, é possível a previsão quantitativa das propriedades do sistema estudado [16, 19, 20]. O delineamento de mistura pode ser entendido como um caso especial da metodologia do cálculo de superfícies de resposta, a qual utiliza ferramentas estatísticas e matemáticas para modelar, simular e otimizar uma determinada propriedade de uma mistura em função de seus componentes. A modelagem de uma propriedade usando essa metodologia de otimização é muito comum em diversas áreas e tem permitido, em todos os casos relatados, obter uma maior confiança nos resultados e eficiência em termos de racionalização de custos [21, 22]. O propósito geral em um experimento com misturas é tornar possível, por meio de superfícies de resposta, a estimativa das propriedades de um sistema multicomponente, a partir de um número limitado de observações. Essas observações são obtidas de combinações pré-selecionadas dos componentes na tentativa de se determinar quais delas, de alguma maneira otimizam a resposta. O planejamento experimental utilizado para misturas difere dos planejamentos fatoriais, uma vez

que as propriedades de uma mistura são determinadas pelas proporções de seus componentes, e não pela quantidade total. Além disso, as proporções dos diversos componentes de uma mistura não são independentes. A soma de todas elas deve totalizar 100%. Com os resultados obtidos no delineamento de misturas, pode-se utilizar polinômios simplificados para relacionar a propriedade de interesse às diversas proporções utilizadas, sendo esse procedimento particularmente útil quando se pretende desenvolver um determinado produto com propriedades específicas.

Na literatura abordando a reciclagem de resíduos como matérias-primas cerâmicas alternativas observam-se poucos estudos [23] utilizando a técnica de delineamento de mistura. Entretanto, esse procedimento permite maximizar a quantidade de resíduos nas formulações, favorecendo e intensificando a reciclagem de resíduos e otimizando as propriedades do produto final. Assim, o presente trabalho tem como objetivo utilizar o planejamento experimental aplicado ao estudo de misturas para avaliar a potencialidade do uso conjunto dos resíduos do beneficiamento do caulim e da serragem do granito para a produção de blocos e revestimentos cerâmicos.

## MATERIAIS E MÉTODOS

Foram utilizados os seguintes materiais: resíduo de caulim, proveniente da segunda etapa de beneficiamento (cedido pela empresa Caulisa Indústria S/A, Juazeirinho, PB), resíduo da serragem do granito (cedido pela empresa Poligran S/A, Campina Grande, PB) e duas argilas vermelha. A argila vermelha "A" foi estudada anteriormente [24] e é utilizada na produção de blocos e telhas cerâmicos, a argila "B" [25] é usada na fabricação de blocos e revestimentos cerâmicos (ambas as argilas foram cedidas pela empresa Cerâmica Espírito Santo, PB).

Os resíduos do beneficiamento do caulim e da serragem do granito foram caracterizados [15, 24, 25], sendo observado:

Tabela I - Composições obtidas através do planejamento em rede simplex {3,2} com ponto central para as formulações visando à produção de blocos cerâmicos.

[Table I - Compositions using the {3,2} simplex-centroid design for production of ceramic bricks.]

| Composições | Proporção (%)<br>Componentes<br>Originais |                      |                     | Proporção (%)<br>Pseudo-<br>componentes |     |     |
|-------------|---|----------------------|---------------------|---|-----|-----|
|             | Argila A                                  | Granito <sup>a</sup> | Caulim <sup>a</sup> | A                                       | G   | C   |
| 1           | 100                                       | 0                    | 0                   | 1                                       | 0   | 0   |
| 2           | 50  | 50                   | 0                   | 0                                       | 1   | 0   |
| 3           | 0   | 50                   | 50                  | 0                                       | 0   | 1   |
| 4           | 75  | 25                   | 0                   | 1/2                                     | 1/2 | 0   |
| 5           | 75  | 0                    | 25                  | 1/2                                     | 0   | 1/2 |
| 6           | 50  | 25                   | 25                  | 0                                       | 1/2 | 1/2 |
| 7           | 66,6                                      | 16,7                 | 16,7                | 1/3                                     | 1/3 | 1/3 |

<sup>a</sup> Resíduos de granito e caulim

Tabela II - Composições obtidas por meio do planejamento em rede simplex {3,2} com ponto central para as formulações visando a produção de revestimentos cerâmicos.

[Table II - Compositions using the {3,2} simplex-centroid design for production of ceramic tiles.]

| Composições | Proporção (%)<br>Componentes<br>Originais |                      |                     | Proporção (%)<br>Pseudo-<br>componentes |     |     |
|-------------|---|----------------------|---------------------|---|-----|-----|
|             | Argila B                                  | Granito <sup>a</sup> | Caulim <sup>a</sup> | A                                       | G   | C   |
| 1           | 80  | 10                   | 10                  | 1                                       | 0   | 0   |
| 2           | 60  | 30                   | 10                  | 0                                       | 1   | 0   |
| 3           | 60  | 10                   | 30                  | 0                                       | 0   | 1   |
| 4           | 70  | 20                   | 10                  | 1/2                                     | 1/2 | 0   |
| 5           | 70  | 10                   | 20                  | 1/2                                     | 0   | 1/2 |
| 6           | 60  | 20                   | 20                  | 0                                       | 1/2 | 1/2 |
| 7           | 66,6                                      | 16,7                 | 16,7                | 1/3                                     | 1/3 | 1/3 |

<sup>a</sup> Resíduos de granito e caulim

que o resíduo de caulim é composto por caulinita, mica e quartzo e apresenta larga distribuição do tamanho de partículas, com tamanho médio de partícula 54 µm ( $D_{10} = 5 \mu\text{m}$  e  $D_{90} = 135 \mu\text{m}$ ); o resíduo de granito, constituído por quartzo, mica, calcita e feldspato, possui um tamanho médio de partícula 24,5 µm e distribuição do tamanho de partícula mais estreita que o resíduo de caulim ( $D_{10} = 2 \mu\text{m}$  e  $D_{90} = 60 \mu\text{m}$ ).

Foram formuladas composições contendo argila (A ou B), resíduo de granito e caulim, para avaliar a viabilidade da mistura dessas matérias-primas para produção de blocos e revestimentos cerâmicos. Foi empregada a metodologia de delineamento de misturas do planejamento experimental para a formulação dessas composições [16]. No sistema argila A-resíduo de granito-resíduo de caulim, visando a produção de blocos cerâmicos, foram estabelecidos, por exigências de processamento, limites inferiores de 50% de argila A e limites superiores de 50% de resíduo, criando um triângulo de composições restrito (triângulo de pseudo-componentes). Para definir as composições foi utilizado um planejamento em rede simplex {3,2} com um ponto central (simplex-centróide). No sistema de componentes argila B-resíduo de granito-resíduo de caulim, visando a produção de revestimentos cerâmicos, também foram estabelecidas, por necessidades de processamento, limites inferiores e superiores de 60 e 80% de argila, respectivamente e limites inferiores e superiores de 10 e 30% de resíduos, respectivamente. Também foi aplicado um planejamento simplex-centróide para definir as composições. As Tabela I e II apresentam as composições obtidas, tanto em termos dos componentes originais, como dos pseudo-componentes, para as formulações para a produção de blocos e revestimentos cerâmicos respectivamente.

Foram confeccionados por extrusão corpos de prova de 100 mm x 20 mm x 10 mm visando avaliar a aplicabilidade das formulações do sistema argila A-resíduo de granito-

resíduo de caulim para a produção de blocos. Os corpos de prova foram queimados a 800 e 1000 °C (ciclos de queima em torno de 10 h). Foram produzidos corpos de prova de 50 mm x 20 mm x 5 mm por prensagem uniaxial a 25 MPa para analisar a viabilidade de utilização das formulações do sistema argila B-resíduo de granito-resíduo de caulim para a produção de revestimentos. Os corpos de prova foram queimados a 1000, 1100 e 1150 °C em ciclos de queima rápida com taxas de aquecimento variando de 36 a 39 °C/min e patamares de queima de 5 min. Os corpos de prova queimados foram submetidos a ensaio de caracterização física, com determinação da absorção de água (AA) e módulo de ruptura à flexão (MR) (com velocidade de aplicação de carga de 0,5 mm/min).

Em seguida, o modelo linear (equação A), o quadrático (B) e o cúbico especial (C) em termos dos pseudo-componentes A, G e C foram utilizados para o ajuste dos valores de resposta (da AA e do MR).

$$Y(A,G,C) = b_1A + b_2G + b_3C \quad (A)$$

$$Y(A,G,C) = b_1A + b_2G + b_3C + b_4AG + b_5AC + b_6GC \quad (B)$$

$$Y(A,G,C) = b_1A + b_2G + b_3C + b_4AG + b_5AC + b_6GC + b_7AGC \quad (C)$$

sendo Y a estimativa da resposta AA ou MR e  $b_x$  os coeficientes da equação, determinados conforme [16] e A, G e C as proporções das matérias-primas presentes nas formulações.

Os resultados obtidos na caracterização foram usados para o calculado dos coeficientes das equações de regressão, utilizando o programa Statistica 6.0, StatSoft. Os modelos e coeficientes foram determinados estatisticamente em um nível de significância de 5%.

## RESULTADOS E DISCUSSÃO

A Tabela III apresenta os valores dos parâmetros absorção de água (AA) e módulo de ruptura (MR) dos corpos de prova preparados com as formulações presentes na Tabela I e queimados a 800 e 1000 °C. A Tabela IV apresenta os valores dos parâmetros AA e MR (nas quatro replicações) dos corpos de prova preparados com as formulações presentes na Tabela II e queimados a 1000, 1100 e 1150 °C.

A partir dos resultados obtidos para os módulos de ruptura e absorção de água foi possível obter equações de regressão correlacionando as proporções dos componentes na mistura com esses parâmetros, sendo escolhidas as equações estatisticamente significantes em um nível de significância de 5%. As equações (D) a (M) apresentam os modelos matemáticos obtidos, em termos dos pseudo-componentes, correlacionando os valores de AA e MR com as proporções dos componentes.

A Tabela V apresenta os parâmetros estatísticos principais dessas equações (foi usada a nomenclatura estatística usual, teste F, valor p, coeficiente de múltipla determinação,  $R^2$  e

Tabela III - Valores da absorção de água (AA) e módulo de ruptura (MR) das composições para a produção de blocos cerâmicos

[Table III - Water absorption (AA) and modulus of rupture (MR) values of formulations for production of ceramic bricks.]

| Composições | 800 °C |          | 1000 °C |          |
|-------------|--------|----------|---------|----------|
|             | AA (%) | MR (MPa) | AA (%)  | MR (MPa) |
| 1           | 11,62  | 13,75    | 10,79   | 15,30    |
| 2           | 16,7   | 8,85     | 13,70   | 10,85    |
| 3           | 16,8   | 5,98     | 15,80   | 7,68     |
| 4           | 13,79  | 10,96    | 12,31   | 12,49    |
| 5           | 14,80  | 6,55     | 13,60   | 8,05     |
| 6           | 14,38  | 5,45     | 13,50   | 6,85     |
| 7           | 13,00  | 6,85     | 11,98   | 7,98     |

coeficiente de múltipla determinação ajustado  $R^2_A$ ). Pode-se observar que todos os modelos foram estatisticamente significantes ao nível estipulado (valor do teste F > cinco vezes o valor tabelado [26] e valor p ≤ nível de significância). A maioria dos modelos apresentou variabilidade muito baixa (coeficiente de múltipla determinação elevados), com destaque para os modelos das composições para a produção de blocos cerâmicos.

$$AA_{\text{Blocos } 800^\circ\text{C}} = 11,51A + 16,50G + 16,98C - 10,86GC \quad (D)$$

$$MR_{\text{Blocos } 800^\circ\text{C}} = 13,62A + 8,72G + 6,00C - 13,42AC - 8,03GC \quad (E)$$

$$AA_{\text{Blocos } 1000^\circ\text{C}} = 10,84A + 13,13G + 15,32C \quad (F)$$

$$MR_{\text{Blocos } 1000^\circ\text{C}} = 15,07A + 10,62G + 7,73C - 14,21AC - 10,12GC \quad (G)$$

$$AA_{\text{Revestimentos } 1000^\circ\text{C}} = 14,444A + 15,98G + 15,31C - 6,88AG - 7,20AC - 8,22GC \quad (H)$$

$$MR_{\text{Revestimentos } 1000^\circ\text{C}} = 4,78A + 6,23G + 5,40C + 17,24AG + 20,04AC + 13,72GC \quad (I)$$

$$AA_{\text{Revestimentos } 1100^\circ\text{C}} = 6,24A + 4,60G + 8,48C - 6,59AG - 5,67AC - 3,44GC \quad (J)$$

$$MR_{\text{Revestimentos } 1100^\circ\text{C}} = 13,90A + 22,31G + 15,76C + 23,52AG + 17,32AC \quad (K)$$

$$AA_{\text{Revestimentos } 1150^\circ\text{C}} = 0,45A + 1,53C + 0,41C + 1,56AG + 1,22GC \quad (L)$$

$$MR_{\text{Revestimentos } 1150^\circ\text{C}} = 25,81A + 30,65G + 22,18C \quad (M)$$

As Figs. 1-4 apresentam as superfícies de resposta obtidas com as equações (D) a (M) para as absorções de água de módulos de ruptura à flexão das composições para a

produção de blocos e revestimentos. Pode-se observar o efeito sinérgico das matérias-primas, particularmente quando da queima a 800 °C nas composições para a produção de blocos cerâmicos e da queima a 1000 e 1100 °C nas composições para a produção de revestimentos cerâmicos.

Verifica-se que a influência da combinação das matérias-primas sobre a absorção de água e módulo de ruptura se altera conforme a temperatura de queima. Nas composições para a produção de blocos, por exemplo, a combinação de resíduo de granito e caulim, analisando em teores fixos de argila, diminui a absorção de água quando da queima a 800 °C. No entanto, quando se realiza a queima a 1000 °C, observa-se que a adição de resíduo de caulim, analisando

Tabela IV - Valores da absorção de água (AA) e módulo de ruptura (MR) das composições para a produção de revestimentos cerâmicos

[Table IV - Water absorption (AA) and modulus of rupture (MR) values of formulations for production of ceramic tiles.]

| Formulações | Temperatura |          |         |          |         |          |       |
|-------------|-------------|----------|---------|----------|---------|----------|-------|
|             | 1000 °C     |          | 1100 °C |          | 1500 °C |          |       |
|             | AA (%)      | MR (MPa) | AA (%)  | MR (MPa) | AA (%)  | MR (MPa) |       |
| Replicata 1 | 1           | 14,87    | 4,81    | 6,74     | 17,06   | 0,81     | 26,81 |
|             | 2           | 15,34    | 4,29    | 4,95     | 19,34   | 1,55     | 29,02 |
|             | 3           | 15,71    | 4,54    | 7,95     | 16,33   | 0,53     | 23,14 |
|             | 4           | 13,33    | 9,41    | 4,00     | 20,56   | 1,31     | 28,38 |
|             | 5           | 13,14    | 11,65   | 4,86     | 19,21   | 0,17     | 24,85 |
|             | 6           | 14,88    | 7,94    | 4,63     | 20,80   | 1,45     | 28,30 |
|             | 7           | 12,88    | 11,37   | 3,83     | 16,60   | 1,00     | 26,00 |
| Replicata 2 | 1           | 15,46    | 4,49    | 6,46     | 15,64   | 0,16     | 26,19 |
|             | 2           | 16,19    | 6,70    | 4,64     | 21,03   | 1,62     | 31,46 |
|             | 3           | 15,77    | 4,77    | 10,15    | 14,78   | 0,59     | 21,74 |
|             | 4           | 13,40    | 10,02   | 3,81     | 23,95   | 1,31     | 28,37 |
|             | 5           | 12,54    | 9,37    | 5,79     | 18,38   | 0,80     | 26,59 |
|             | 6           | 14,00    | 8,70    | 6,23     | 20,81   | 1,16     | 24,76 |
|             | 7           | 12,22    | 11,28   | 6,83     | 20,36   | 1,20     | 25,00 |
| Replicata 3 | 1           | 13,60    | 4,40    | 5,92     | 17,21   | 0,20     | 27,86 |
|             | 2           | 16,83    | 6,35    | 4,67     | 23,46   | 1,26     | 34,28 |
|             | 3           | 14,78    | 5,98    | 8,49     | 14,66   | 0,20     | 23,97 |
|             | 4           | 12,74    | 10,22   | 2,68     | 27,15   | 1,64     | 29,82 |
|             | 5           | 13,15    | 10,66   | 6,35     | 23,02   | 0,19     | 22,75 |
|             | 6           | 12,10    | 10,03   | 5,00     | 20,64   | 1,50     | 27,69 |
|             | 7           | 14,67    | 9,77    | 5,45     | 22,30   | 1,10     | 25,50 |
| Replicata 4 | 1           | 14,03    | 5,34    | 6,30     | 4,95    | 0,84     | 26,96 |
|             | 2           | 15,72    | 7,53    | 4,57     | 24,67   | 1,65     | 34,58 |
|             | 3           | 15,18    | 6,18    | 7,76     | 16,55   | 0,53     | 23,17 |
|             | 4           | 13,63    | 9,97    | 2,78     | 27,24   | 1,40     | 27,25 |
|             | 5           | 12,61    | 9,03    | 4,93     | 18,98   | 0,20     | 20,57 |
|             | 6           | 12,52    | 10,64   | 5,00     | 22,29   | 1,14     | 25,81 |
|             | 7           | 13,15    | 11,36   | 6,76     | 24,01   | 0,80     | 23,00 |



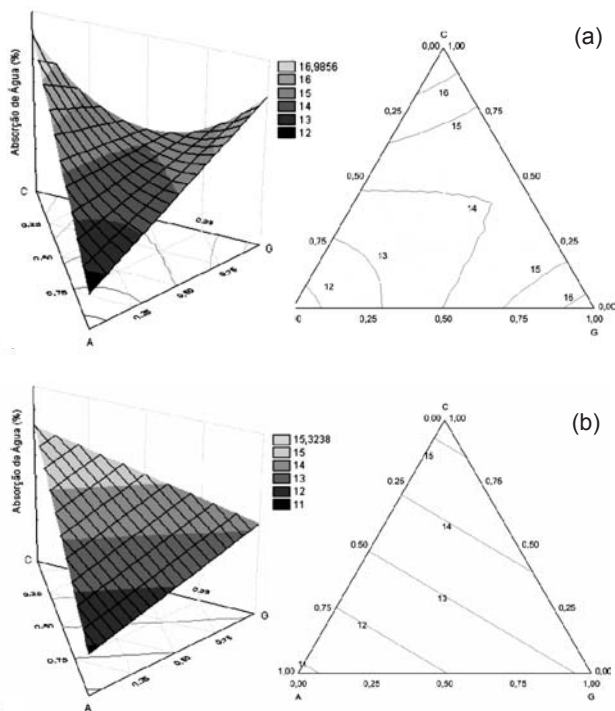


Figura 1: Superfícies de resposta para as absorções de água das composições para a produção de blocos cerâmicos queimadas a: (a) 800 °C e (b) 1000 °C.

[Figure 1: Water absorption response surfaces of the formulations for production of ceramic blocks fired at: (a) 800 °C and (b) 1000 °C.]

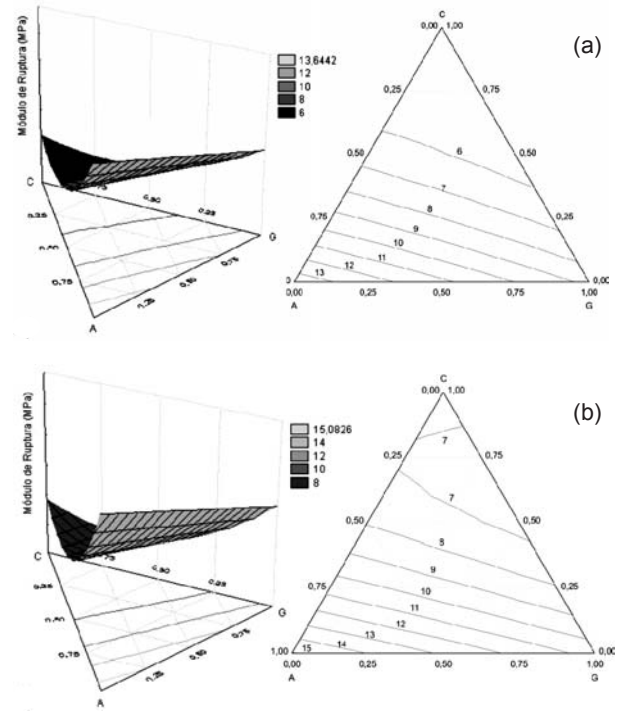


Figura 2: Superfícies de resposta para os módulos de ruptura das composições para a produção de blocos cerâmicos queimadas a: (a) 800 °C e (b) 1000 °C.

[Figure 2: Modulus of rupture response surface of the formulations for production of ceramic blocks fired at: (a) 800 °C and (b) 1000 °C.]

Tabela V - Estatísticas relevantes da análise de variância das variáveis absorção de água (AA) e módulo de ruptura (MR).

[Table V - Relevant statistics of water absorption (AA) and modulus of rupture (MR) analysis of variance.]

| Aplicação    | Propriedade | Temperatura | Modelo     | Teste F | Valor p <sup>a</sup> | R <sup>2</sup> | R <sup>2</sup> <sub>A</sub> |
|--------------|-------------|-------------|------------|---------|----------------------|----------------|-----------------------------|
| Blocos       | AA          | 800°C       | Quadrático | 14,2714 | 0,0325               | 0,9440         | 0,8882                      |
|              | AA          | 1000°C      | Linear     | 9,2878  | 0,0313               | 0,8228         | 0,7342                      |
|              | MR          | 800°C       | Quadrático | 79,1679 | 0,0125               | 0,9974         | 0,9923                      |
|              | MR          | 1000°C      | Quadrático | 26,5648 | 0,0362               | 0,9909         | 0,9728                      |
| Revestimento | AA          | 1000°C      | Quadrático | 14,8279 | 0,0000               | 0,7041         | 0,6369                      |
|              | AA          | 1100°C      | Quadrático | 5,3108  | 0,0066               | 0,7246         | 0,6622                      |
|              | AA          | 1150°C      | Quadrático | 6,7021  | 0,0051               | 0,8253         | 0,7950                      |
|              | MR          | 1000°C      | Quadrático | 57,9414 | 0,0000               | 0,8888         | 0,8635                      |
|              | MR          | 1100°C      | Quadrático | 5,3398  | 0,0064               | 0,6033         | 0,5131                      |
|              | MR          | 1150°C      | Linear     | 11,61   | 0,0216               | 0,8530         | 0,7796                      |

<sup>a</sup>Nível de significância da análise 5%; <sup>b</sup>R<sup>2</sup> ajustado

em teores fixos de argila, aumenta a absorção de água. Variações na influência da combinação das matérias-primas sobre os parâmetros estudados também são observadas nas composições para a produção de revestimentos. Como por exemplo, tem-se a diminuição da absorção de água, quando da queima a 1000 °C com a utilização conjunto do resíduo

de caulim e do resíduo de granito. Enquanto que a 1100 °C a absorção de água aumenta com o aumento na quantidade de resíduo de caulim e a 1150 °C a elevação da absorção é observada com o incremento na quantidade de resíduo de granito.

Com o objetivo de avaliar os modelos calculados e os resultados obtidos, foram utilizadas composições localizadas

no interior dos sistemas estudados para a produção de blocos e revestimentos. A Tabela VI apresenta as composições utilizadas (em termos de pseudo-componentes). Os valores de absorção de água e módulo de ruptura obtidos e previstos pelos modelos calculados estão presentes na Tabela VI. Pode-se observar que a diferença entre os valores previstos e os observados para a absorção de água das composições para a produção de blocos foi inferior a 10% e que, para o parâmetro módulo de ruptura, essa diferença situou-se entre 2 e 12,5%. Na composição para a produção de revestimentos observa-se que a diferença entre os valores previstos e observados da absorção de água variou de 12 a 17%, enquanto que para o módulo de ruptura essa diferença foi inferior a 10%. Apesar da diferença um pouco mais acentuada entre os valores de absorção (previstos e observados)

da composição para revestimento, verifica-se que os resultados confirmam o comportamento observado através da análise de variância dos modelos ajustados às variáveis absorção de água e módulo de ruptura.

Com base nos modelos calculados verifica-se que é possível a maximização dos teores de resíduos utilizados nas formulações para blocos e revestimentos. Através da superposição das superfícies de resposta para a absorção e o módulo de ruptura das composições aplicadas à produção de blocos (bem como telhas), Fig. 5, e por comparação com os valores indicados na literatura [27, 28] para a produção de blocos e telhas cerâmicos (absorção de água inferior a 20% e módulo de ruptura superior a 6,5 MPa), observa-se que várias composições podem ser aplicadas para a produção de

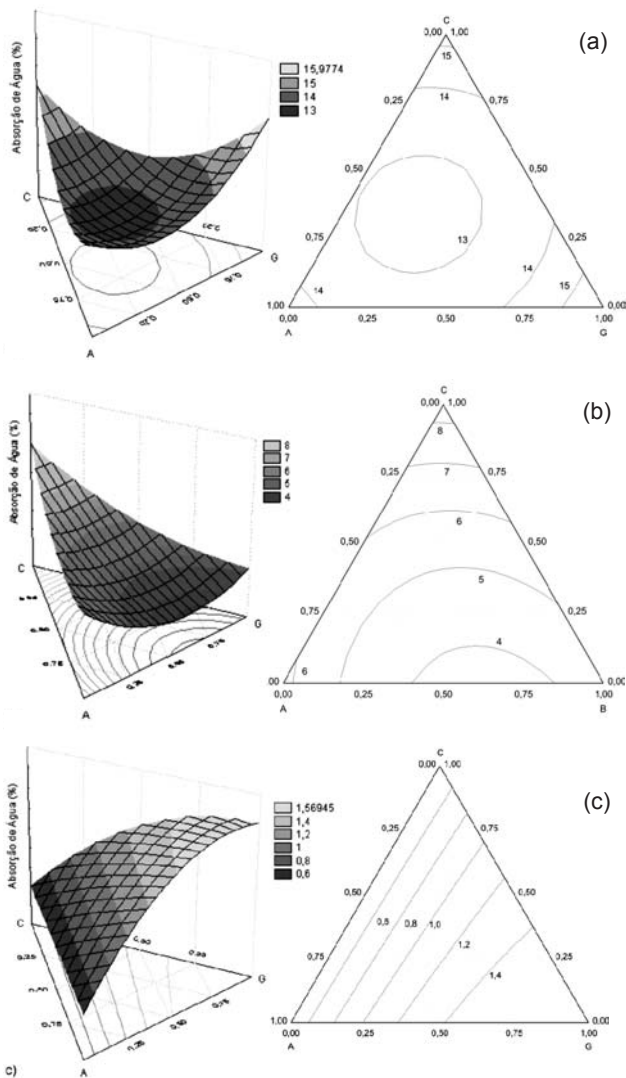


Figura 3: Superfícies de resposta para as absorções de água das composições para a produção de revestimentos cerâmicos queimadas a: (a) 1000 °C, (b) 1100 °C e (c) 1150 °C.

[Figure 3: Water absorption response surface of the formulations for production of ceramic tiles fired at: (a) 1000 °C, (b) 1100 °C and (c) 1150 °C.]

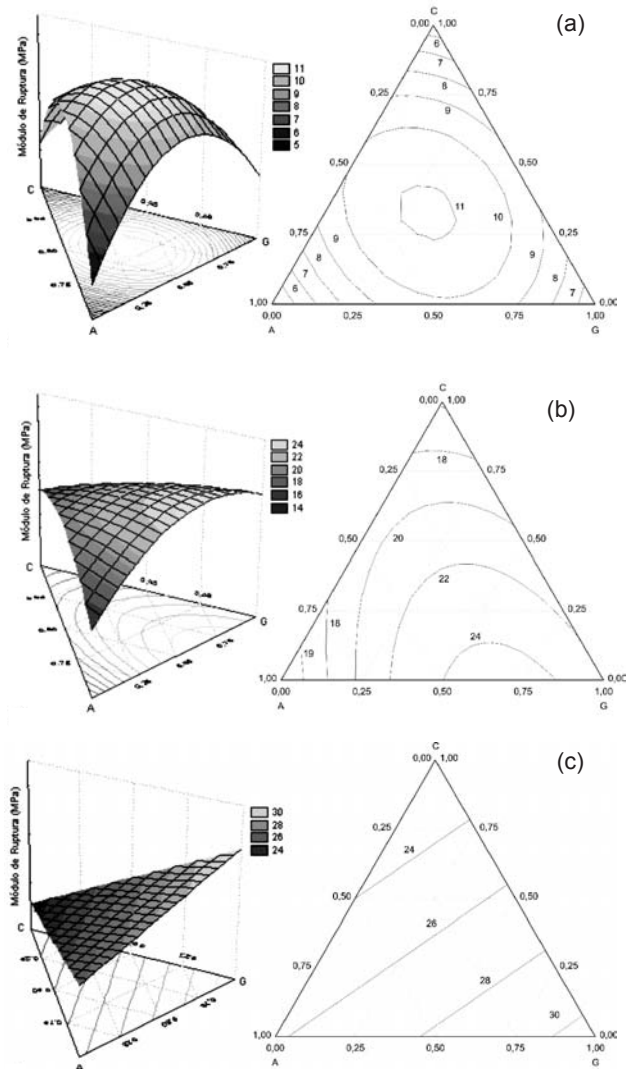


Figura 4: Superfícies de resposta para os módulos de ruptura das composições para a produção de revestimentos cerâmicos queimadas a: (a) 1000 °C, (b) 1100 °C e (c) 1150 °C.

[Figure 4: Modulus of rupture response surface of the formulations for production of ceramic tiles fired at: (a) 1000 °C, (b) 1100 °C and (c) 1150 °C.]

blocos e telhas, tal como evidenciado pela zona tracejada na Fig. 5. Observa-se também, que é possível minimizar a utilização da argila na produção de blocos e telhas após queima a 800 °C, por exemplo, composições com 50% de argila e teores de resíduo de caulim de até 12,5% e teores de resíduo de granito variando de 37,5 a 50% podem ser aplicadas [27, 28] para a produção de blocos. Quando da queima a 1000 °C, observa-se que é possível utilizar composições com apenas 50% de argila e elevados teores de resíduo de caulim, até 25% quando da utilização em conjunto com resíduo de granito, ou com até 50% de granito quando esse é utilizado como o único resíduo.

Utilizando procedimento semelhante de sobreposição das superfícies de resposta para as formulações aplicadas à produção de revestimentos, observa-se que após queima a 1100 °C é possível produzir peças classificadas como BIIa (absorção > 3% e < 6% e módulo > 22 MPa) [29] contendo

quantidade de resíduo superiores a 30%, a exemplo das composições 62% de argila, 23% de resíduo de granito e 15% de resíduo de caulim ou 60% de argila, 30% de resíduo de granito e 10% de resíduo de caulim. Verifica-se também que após queima a 1150 °C as peças obtidas da composição contendo 60% de argila, 30% de resíduo de granito e 10% de resíduo de caulim são classificadas como BIb (absorção > 0,5% e < 3% e módulo > 30MPa [29]) e que as demais composições produzem peças BIIa [29] (teores de resíduo de caulim de até 20%). Assim, observa-se que utilizando o procedimento de delineamento de mistura é possível maximizar a quantidade de resíduo de caulim e de granito nas composições cerâmicas para a produção de blocos, telhas e revestimentos, o que é de grande importância para economia de matérias-primas de boa qualidade. O procedimento também se mostra extremamente interessante quando da necessidade de incorporar às formulações resíduos que provocam dificuldades de densificação no corpo cerâmico, como o resíduo

Tabela VI - Composições utilizadas nos testes dos modelos e os respectivos valores observados e previstos de absorção de água (AA) e módulo de ruptura (MR)

[Table VI - Formulations used in the test of the models and the observed and predetermined values.]

| Aplicação    | Temperatura | composição <sup>a</sup> |                      |                     | valores previstos |       | valores observados |       |
|--------------|-------------|-------------------------|----------------------|---------------------|-------------------|-------|--------------------|-------|
|              |             | Argila                  | Granito <sup>b</sup> | Caulim <sup>b</sup> | AA                | MR    | AA                 | MR    |
| Bloco        | 800 °C      | 3/5                     | 1/5                  | 1/5                 | 13,17             | 9,18  | 11,90              | 8,16  |
|              | 1000 °C     | 3/5                     | 1/5                  | 1/5                 | 12,19             | 10,60 | 11,75              | 9,63  |
|              | 800 °C      | 1/5                     | 2/5                  | 2/5                 | 13,96             | 6,25  | 13,18              | 6,42  |
|              | 1000 °C     | 1/5                     | 2/5                  | 2/5                 | 13,54             | 7,59  | 12,50              | 6,92  |
| Revestimento | 1000 °C     | 1/2                     | 1/4                  | 1/4                 | 12,77             | 10,82 | 11,34              | 10,22 |
|              | 1100 °C     | 1/2                     | 1/4                  | 1/4                 | 4,64              | 21,57 | 3,96               | 20,71 |
|              | 1150 °C     | 1/2                     | 1/4                  | 1/4                 | 0,98              | 26,11 | 0,89               | 24,90 |

<sup>a</sup>em termos dos pseudo-componentes; <sup>b</sup>resíduo de granito e resíduo de caulim

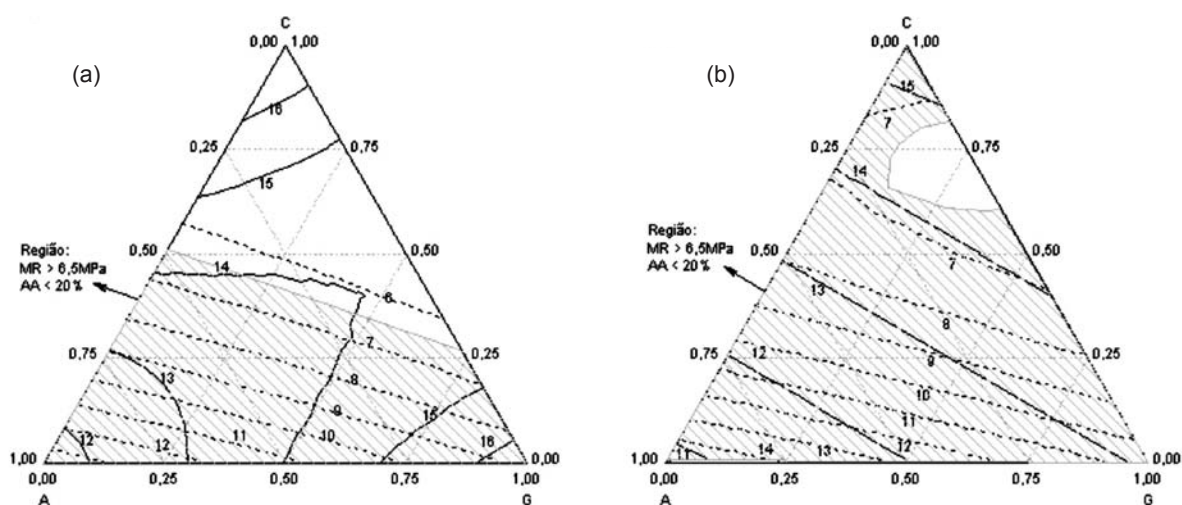


Figura 5: Sobreposição das superfícies de resposta da absorção de água (AA) e módulo de ruptura (MR) das composições para a produção de blocos cerâmicos queimadas: a) 800 °C e b) 1000 °C - área hachurada indica a região com AA inferior a 20% e MR superior a 6,5 MPa.

[Figure 5: Water absorption (AA) and modulus of rupture (MR) response surfaces of the ceramic bricks compositions fired at a) 800 °C and b) 1000 °C - delimited areas indicate the region with AA lower than 20% and MR higher than 6,5 MPa.]

de caulim [24], sendo possível reciclá-los sem, no entanto, afetar significativamente as propriedades do produto final.

O delineamento de mistura aplicado à reciclagem de resíduos em formulações cerâmicas também se mostra muito útil para evidenciar os efeitos sinérgicos das matérias-primas nas propriedades do produto final (tal como observado nas Figs. 1-4), destacando os possíveis benefícios dos materiais alternativos utilizados (que variarão de acordo com o resíduo usado). Nesse sentido, esse procedimento também favorece a redução do tempo de estudo para otimização das formulações contendo resíduo, a fim de maximizar a quantidade de resíduo e atingir as melhores propriedades dos produtos finais.

## CONCLUSÕES

Esse trabalho teve por objetivo utilizar o planejamento experimental aplicado ao estudo de misturas para avaliar a potencialidade do uso conjunto dos resíduos do beneficiamento do caulim e da serragem do granito para a produção de blocos e revestimentos cerâmicos. Com base nos resultados obtidos pode-se concluir que:

O delineamento de misturas mostrou-se adequado para a obtenção de modelos matemáticos, estatisticamente significativos, que relacionam a absorção de água e o módulo de ruptura com as proporções das matérias-primas utilizadas;

O procedimento de planejamento experimental utilizado permite maximizar a quantidade de resíduo incorporado às formulações para blocos, telhas e revestimentos cerâmicos e minimizar o tempo de estudo para a otimização das quantidades de resíduos frente às propriedades do produto final;

De acordo com as intersecções das superfícies de resposta para os parâmetros absorção de água e módulo de ruptura à flexão, verifica-se que é possível a incorporação de teores de resíduos de granito ou de caulim de até 50% em formulações para a produção de blocos e telhas cerâmicas e a utilização de resíduos em até 40% em composições para a produção de revestimentos cerâmicos;

As superfícies de resposta evidenciam a influência da quantidade e interação dos resíduos nas propriedades do produto final, bem como, nas suas variações de acordo com a temperatura de queima, possibilitando maximizar a quantidade de resíduo utilizado de acordo com a temperatura de processamento.

## AGRADECIMENTOS

Ao CNPq e à FAPESQ/MCT/CNPq (Projeto DCR 001/06) pelo apoio financeiro.

## REFERÊNCIAS

- [1] D. U. Tulyaganov, S. M. H. Olhero, M. J. Ribeiro, J. M. F. Ferreira, J. A. Labrincha, J. Mater. Synth. Proc. **10**, 6 (2002) 311.
- [2] F. Raupp-Pereira, O. Hotza, A. M. Segadães, J. A. Labrincha, Ceram. Int. **32**, 2 (2006) 173.
- [3] L. P. F. Souza, H. S. Mansur, J. Mater. Proc. Techn. **145** (2004) 14.
- [4] E. Ozel, S. Turan, S. Çoruh, O. N. Ergun, Waste Management & Research **24** (2006) 125.
- [5] F. Andreola, L. Barbieri, A. Corradi, I. Lancellotti, T. Manfredini, J. Eur. Ceram. Soc. **22** (2002) 1457.
- [6] M. C. Zanetti, S. Fiore, Waste Management and Research **21** (2003) 235.
- [7] M. I. Sánchez de Rojas, F. Marin, J. Rivera, M. Frías, J. Am. Ceram. Soc. **89**, 12 (2006) 3701.
- [8] R. R. Menezes, H. S. Ferreira, G. A. Neves, H. C. Ferreira, Cerâmica **48** (2002) 1.
- [9] G. E. Oliveira, J. N. F. Holanda, Waste Management & Research **22** (2004) 358.
- [10] D. G. Pinatti, R. A. Conte, M. C. Borlinic, B. C. Santos, I. Oliveira, C. M. F. Vieira, S. N. Monteiro, J. Eur. Ceram. Soc. **26**, 3 (2005) 305.
- [11] M. S. Hernández-Crespo, J. Ma. Rincón, Ceram. Int. **27** (2001) 713.
- [12] S. N. Monteiro, L. A. Peçanha, C. M. F. Vieira, J. Eur. Ceram. Soc. **24** (2004) 2349.
- [13] C. M. F. Vieira, T. M. Soares, R. Sánchez, S. N. Monteiro, Mater. Sci. Eng. A **373** (2004) 115.
- [14] P. Torres, H. R. Fernandes, S. Agathopoulos, D. U. Tulyaganov, J. M. F. Ferreira, J. Eur. Ceram. Soc. **24** (2004) 3177.
- [15] R. R. Menezes, H. S. Ferreira, G. A. Neves, H. L. Lira, H. C. Ferreira, J. Eur. Ceram. Soc. **25** (2005) 1149.
- [16] J. A. Cornell, "Experiments with mixtures-designs, models, and the analysis of mixtures data", 2<sup>nd</sup> Ed., John Wiley & Sons, New York (1990) 19.
- [17] J. Alexandre, R. Toledo, F. Saboya, M. Pereira, Cerâmica **47**, 303 (2001) 170.
- [18] L. F. A. Campos, L. V. Amorim, H. C. Ferreira, Cerâmica **52**, 321 (2006) 70.
- [19] B. Barros Neto, I. E. Scarminio, R. E. Bruns, "Planejamento e otimização de experimentos", 2<sup>a</sup> Ed., Editora Unicamp, S. Paulo (1996) 187.
- [20] C. Reis, J. C. Andrade, Química Nova **19**, 3 (1996) 313.
- [21] R. H. Myers, D. C. Montgomery, "Response surface methodology: process and product optimization using designed experiments, John Wiley and Sons, New York (2002) 35.
- [22] S. L. Correia, D. Hotza, A. M. Segadães, Matéria **9**, 4 (2004) 271.
- [23] E. S. Abdrakhimova, V. Z. Abdrakhimov, Glass and Ceramics **63**, 3-4 (2006) 95.
- [24] R. R. Almeida, Diss. Mestrado, Universidade Federal de Campina Grande, PB (2006).
- [25] R. R. Menezes, R. R. de Almeida, L. N. L. Santana, G. A. Neves, H. L. Lira, H. C. Ferreira, Cerâmica **53**, 207 (2007) 192-199.
- [26] B. Barros Neto, I. S. Scarminio, R. E. Bruns, "Planejamento e otimização de experimentos", Editora da Unicamp, Campinas (1995) 296-299.
- [27] L. Barzagui, A. Salge, Cerâmica **28** 151 (1982) 15.
- [28] P. Souza Santos, "Ciência e Tecnologia de Argilas", 3<sup>a</sup> Ed., Vol. 1, Edgard Blücher, S. Paulo (1992) 205, 397.
- [29] Associação Brasileira de Normas Técnicas, Blocos Cerâmicos - NBR 7171, Rio de Janeiro (1992). (Rec. 02/04/2007, Ac. 18/05/2007)