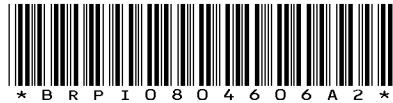




República Federativa do Brasil  
Ministério do Desenvolvimento, Indústria  
e Comércio Exterior  
Instituto Nacional da Propriedade Industrial

(21) PI0804606-9 A2



\* B R P I 0 8 0 4 6 0 6 A 2 \*

(22) Data de Depósito: 31/10/2008  
(43) Data da Publicação: 17/05/2011  
(RPI 2106)

(51) Int.Cl.:  
C01B 31/36  
C01B 33/025

(54) Título: **PROCESSO DE OBTENÇÃO DE CARBETO DE SILÍCIO**

(73) Titular(es): Fundação Universidade Federal de São Carlos

(72) Inventor(es): Romualdo Rodrigues Menezes, Ruth Herta Goldschmidt Aliaga Kiminami, Wellington Luis Idalgo

(57) Resumo: PROCESSO DE OBTENÇÃO DE CARBETO DE SILÍCIO É descrito um processo de obtenção de carbeto de silício (SiC) por redução carbotérmica a partir do uso do resíduo da queima da palha da cana-de-açúcar como matéria-prima cerâmica fonte de sulca, o processo compreendendo misturar a úmido em meio alcoólico a cinza obtida por queima da palha de cana e precursores de carbono em proporções adequadas, obtendo um material intermediário que é transformado em pellets que são secos e submetidos a aquecimento em forno convencional entre 1500°C e 1600°C por 1 a 4 horas em atmosfera inerte, e após o fim do processo, separar o SiC produto da reação. É possível tratar a cinza ou o material final com ácidos ou água oxigenada. O material obtido apresenta dimensões submicrométricas ou micrométricas, inferiores às de materiais similares do estado da técnica.



P10804606-9

## PROCESSO DE OBTENÇÃO DE CARBETO DE SILÍCIO

### CAMPO DA INVENÇÃO

A presente invenção trata de um processo de obtenção de carbeto de silício, mais especificamente, de um processo de obtenção de carbeto de silício por redução carbotérmica a partir do uso do resíduo da queima da palha da cana-de-açúcar como matéria-prima cerâmica fonte de sílica, a redução carbotérmica sendo induzida por aquecimento em forno convencional.

### FUNDAMENTOS DA INVENÇÃO

No processo de produção do álcool e do açúcar, quando as hastes de cana são submetidas a esmagamento e outros processamentos em uma usina de cana, os resíduos de cana ou bagaço são produzidos em quantidades substanciais. Há uma busca contínua para aplicações para este subproduto de baixo valor e grandes volumes. Esses usos envolvem a manufatura de papel e certos materiais de construção. Um uso comum é como combustível para as caldeiras da usina, gerando energia elétrica. Durante a colheita da cana é produzida uma enorme quantidade de palha, que recentemente, na busca por um maior aproveitamento da cana e melhora na eficiência energética na produção do álcool e açúcar, a palha também passou a ser utilizada para geração de energia nas caldeiras. Assim, a queima da bio-massa (bagaço e palha) tem gerado uma enorme quantidade de cinza após queima. A bio-massa quando alimentada nas caldeiras queima em uma cinza de baixo carbono e teor de fibra não queimada ou parcialmente queimada e cinzas volantes que, porque tende a ser levada na corrente gasosa antes da combustão completa, pode ter teor de carbono e fibra significativamente maiores, sendo a grande maioria da cinza oriunda da palha da cana. A cinza das caldeiras é considerada um produto de refugo e, portanto, descartada a não ser para uso como condicionador de solos de baixa qualidade e como agregado leve na manufatura de concreto e na construção de estradas.

O carbeto de silício é utilizado em uma vasta gama de aplicações que requerem materiais cerâmicos de alto desempenho, seja em elevadas temperaturas ou em temperaturas próximas ao ambiente, sendo considerado um dos materiais cerâmicos avançados mais utilizados e mais importantes

atualmente. Isto evidencia a importância de pesquisas sobre o SiC, particularmente no que se refere à redução de seus custos de produção e desenvolvimento de nanotecnologias com condições de aplicação rápida e barata no meio industrial.

5        Associado a isso observa-se que o aumento na produção de cana de açúcar pela elevada demanda de álcool combustível em todo o mundo e, a crescente tendência de geração de energia nas usinas de álcool e açúcar para consumo próprio e venda, através da queima da biomassa da cana (bagaço e palha da cana) fazem com que se vislumbre um horizonte com a geração de  
10        elevada quantidade de resíduo da queima da palha da cana.

Os artigos a seguir fazem menção à utilização da cinza da palha. No entanto esses artigos abordam a utilização da cinza como pozzolana (agente pozzolânico) para fabricação de cimento: J.F. Martirena Hernández, B. Middendorf, M. Gehrke, E H. Budelmann, Use of Wastes of the Sugar Industry  
15        as Pozzolana in Lime-Pozzolana Binders: Study of the Reaction, Cement and Concrete Research, Vol. 28, No. 11, pp. 1525–1536, 1998; e E. Villar-Cociña, E. Valencia-Morales, R. González-Rodríguez, J. Hernández-Ruiz, Kinetics of the Pozzolanic Reaction Between Lime and Sugar Cane Straw Ash by Electrical Conductivity Measurement: A Kinetic-Diffusive Model, Cement and Concrete  
20        Research, Vol. 33, pp. 517–524, 2003.

A literatura de patentes cita vários documentos relativos à utilização industrial de resíduos da cana de açúcar, mas nenhum trata do resíduo da queima da palha de cana como matéria-prima fonte de sílica para a síntese de carbeto de silício, tal como descrito no presente pedido.

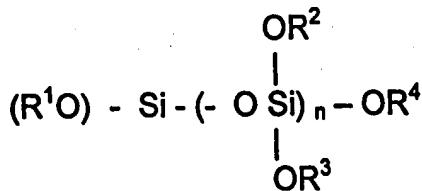
25        A patente US 4.745.096 aborda a utilização do resíduo da queima do bagaço da cana de açúcar com elevado teor de carbono (menor que 30% em vol.) e com baixo teor de carbono (< 1% vol.) como agentes de filtração e de adsorção e, em sua maioria, o processo de concentração e obtenção desse resíduo na forma seca (o processo industrial de produção de açúcar gera o  
30        resíduo estudado na forma de uma dispersão). É descrita uma série de etapas a serem seguidas, culminando com a secagem da “torta” úmida do resíduo. O material foi aplicado em um processo de filtração de água de piscina e

demonstrou características de filtração semelhantes ao de materiais comerciais.

A patente US 7.083.771 trata de um método para produzir fibras de carbeto de silício pela mistura de fibras de carbono isotrópicas descontínuas com uma fonte de sílica e exposição da mistura a uma temperatura desde cerca de 1450°C até cerca de 1800°C. As fibras de carbeto de silício são essencialmente isentas de filamentos (whiskers), apresentam excelente resistência à oxidação e excelente resposta à energia de microondas, e podem ser facilmente trabalhadas para produzir objetos cerâmicos empregando tecnologia cerâmica convencional. As fibras podem igualmente ser úteis para reforço de plástico e metal.

A publicação chinesa CN1449994 descreve um processo de preparação industrial de filamentos de carbeto de silício e micropós caracterizado por misturar a grafite e outros materiais industriais de partida à base de carbono e sílica e colocar os mesmos em um forno industrial para a fundição de SiC para efetuar reação de síntese. A grafite é usada como corpo condutor para aquecimento para preparar filamentos de carbeto de silício e micropós. É alegado que o processo é simples, o diâmetro dos filamentos é uniforme, a razão comprimento-diâmetro é elevada, há menor quantidade de cristal heteromorfo, com alta qualidade do produto.

A publicação JP61168515 trata da obtenção de pó de carbeto de silício, pelo endurecimento de uma mistura de um polímero de silício específico, um material carbonoso sólido e opcionalmente pó fino de sílica em presença de um catalisador de endurecimento e calcinação do precursor sólido obtido em atmosfera não oxidante. O polímero de silício de fórmula



onde R<1>- R<4> e n é 1-10 é um resíduo hidrocarboneto em C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub> misturado homogeneamente com um material carbonoso sólido, de preferência vários negros de fumo finamente pulverizados, coque de petróleo, etc. que

podem ser liquefeitos com um solvente como álcool etílico, e a mistura é endurecida com um catalisador de endurecimento para obter um precursor. O carbeto de silício desejado é produzido por calcinação do precursor em atmosfera não oxidante. Uma parte do polímero de silício usado como primeiro 5 componente pode ser substituído por pó de sílica fino na síntese do precursor. A proporção do pó de sílica é selecionada para dar o produto desejado com razão C/Si de  $1 < C/Si < 10$ .

O pedido brasileiro PI0202894-8 trata da carborredução de quartzo utilizando carvão vegetal de bagaço de cana-de-açúcar. O pedido aborda a 10 utilização do resíduo carbonáceo (carvão vegetal – fuligem do processo de produção da cana) da queima do bagaço da cana de açúcar em usinas de moagem de cana de açúcar como fonte de carbono em processos de carborredução. Esse resíduo foi utilizado como agente redutor de quartzo para produção de silício metálico ou carbeto de silício em processos a plasma 15 térmico.

No entanto, esse pedido brasileiro aborda a utilização do resíduo carbonáceo da queima do bagaço da cana de açúcar como fonte de carbono em processos de redução do quartzo e síntese do silício metálico e do carbeto de silício, enquanto, que o presente pedido utiliza (como um aspecto da 20 invenção) o resíduo da queima da palha como uma fonte de sílica e carbono (sendo inclusive necessária a adição de mais carbono para a adequada reação de redução) e não de apenas carbono, bem como utiliza como fonte de energia para a reação o aquecimento convencional (energia de infravermelho) e não plasma térmico, sendo um processo muito mais econômico.

25 Atualmente a cinza da palha da cana-de-açúcar é considerada rejeito da indústria da cana de açúcar ou fonte de adubo para solo.

No entanto a cinza por suas características físicas apresenta grande 30 potencial como fonte de sílica para a produção de cerâmicas de alto desempenho, como o SiC. A cinza apresenta uma elevada fração de partículas com dimensões nano e micrométricas e uma grande quantidade de aglomerados dessas partículas que podem ser reduzidos, com o adequado tratamento, a dimensões sub-micrométricas e nanométricas, o que aliado ao caráter amorf

da sílica presente na cinza, lhe confere uma elevada reatividade o que favorece as reações de síntese do SiC.

As pequenas dimensões das partículas também são importantíssimas para a obtenção de pós (produtos finais) com dimensões sub-micrométricas ou micrométricas, o que é uma das tendências dos processos de síntese cerâmica 5 atualmente, produção de sub e micropós. Para a síntese de materiais sub-micrométricos ou micrométricos é preciso utilizar precursores com dimensões também sub-micrométricas ou micrométricas que, em geral, apresentam elevado custo, ou processos de cominuição (moagem) complexos e também de 10 elevado custo.

Assim, a utilização de materiais com características sub-micrométricas ou micrométricas com baixo custo é extremamente interessante do ponto de vista de redução de custos, favorecendo a aproximação das pesquisas em microtecnologia e o uso das tecnologias desenvolvidas. Vale relembrar que a 15 sílica presente na palha está na forma amorfa, o que aumenta sua reatividade e facilita a obtenção dos produtos finais, seja por menores temperaturas de síntese ou menores tempos de processamento. O que também tem impacto direto nos custos de produção.

Já a produção de pós de SiC micrométricos, como ocorre atualmente 20 nos processos comerciais, que utilizam quartzo moído ou moagem do SiC após sua síntese, e longos tempos de reação para a produção do SiC (devido à baixa reatividade desse material) apresenta custos finais sensivelmente elevados, em virtude, particularmente, do processo de cominuição (moagem). Assim, a utilização da cinza para a produção de pós micrométricos também 25 tem a grande vantagem de acelerar o processo de síntese (em virtude das características da cinza) diminuindo drasticamente os tempos de processos de dezenas de horas para poucas horas e, por o produto final não requerer etapas de moagem há uma redução drástica dos custos de produção, associado a um expressivo aumento da produtividade por se reduzir o tempo de síntese do 30 processo.

A flexibilidade do tipo de energia que pode ser utilizada no processo de aquecimento, quando se utiliza a sílica presente na palha (em virtude de sua

elevada reatividade) agrega mais uma vantagem ao processo, já que, em virtude das necessidades ou objetivos locais pode-se utilizar aquecimento convencional ou outro tipo de energia.

Associado a tudo isso se tem também as perspectivas de forte crescimento do setor alcooleiro a fim de suprir as necessidades mundiais de energias limpas (mais limpas que o petróleo) e renováveis, como o álcool. Esse crescimento será acompanhado pelo aumento na geração de cinzas, particularmente agora, em que se passou a utilizar a palha da cana, e não mais apenas o seu bagaço, para a produção de energia nas usinas de açúcar e álcool. O que ressalta a disponibilidade de uma quantidade de resíduo ainda maior dentre em breve, o que possibilitará um fornecimento em escala adequada para suprir as empresas do setor cerâmico. Esse cenário é facilmente observado no Brasil em virtude do seu elevado volume de produção de derivados da cana, particularmente o álcool, e tendência de aumento significativo de produção nos próximos anos, mas também deve ser imaginado muito intenso em vários outros países em poucos anos, em virtude da demanda global pelo álcool oriundo da cana para fins energéticos.

Assim, acredita-se que a combinação da cinza, com suas características extremamente interessantes para a síntese e do potencial de crescimento do setor alcooleiro, e, por conseguinte de geração de resíduos, é uma combinação que supera vários obstáculos para a síntese de pós sub-micrométricos e micrométricos, possibilitando, além da redução dos custos, obter materiais de forma rápida, simples e a um custo reduzido, o que é um grande diferencial no desenvolvimento tecnológico e na produção de pós sub-micrométricos e micrométricos.

Portanto, a técnica ainda necessita de um processo de obtenção de carbeto de silício por redução carbotérmica a partir do resíduo da queima da palha da cana de açúcar como matéria-prima cerâmica, como fonte de sílica, a redução carbotérmica sendo induzida por aquecimento em forno convencional, tal processo sendo descrito e reivindicado no presente pedido.

## SUMÁRIO DA INVENÇÃO

De um modo amplo, o presente processo para obtenção de carbeto de silício por redução carbotérmica a partir do resíduo da queima da palha da cana de açúcar compreende:

- 5      a) Prover resíduo da queima de palha de cana (denominado cinza) obtido por queima da palha de cana em temperaturas entre 300 e 450°C;
- 10     b) Misturar a úmido em meio alcoólico dita cinza e precursores de carbono selecionados dentre negro de fumo, grafite ou carbono ativado em proporção respectivamente de 1:1, 1:2 e 1:3 em massa de cinza:fonte de carbono, em relação à composição estequiométrica para a produção de SiC, obtendo um material intermediário;
- 15     c) Transformar o dito material obtido em b) em pellets e secar o mesmo;
- d) Para obter o produto SiC desejado, efetuar reação carbotérmica em forno convencional entre 1500 e 1600°C por 1 a 4 horas, tipicamente 2h, em atmosfera inerte, incluindo atmosfera de argônio;
- e) Ao final do processo, separar o SiC produto da reação.

Durante a obtenção do SiC, antes da etapa b) ou depois da etapa e) também são realizados tratamentos químicos na cinza e/ou no SiC obtido na reação, com ácido nítrico ou ácido clorídrico ou ácido nítrico e ácido clorídrico ou H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> (de 1 a 6h e de 40 a 300°C em concentrações de 5 a 30mol e de 10 a 50% respectivamente), visando purificar a palha e/ou o material final e reduzir o tamanho de aglomerados do SiC obtido.

Assim, a invenção provê um processo para obtenção de carbeto de silício por redução carbotérmica a partir do resíduo da queima da palha da cana de açúcar.

A invenção provê ainda um processo de obtenção de carbeto de silício por mistura a úmido em meio alcoólico da cinza de cana e precursores de carbono formando pellets que são secos e submetidos a reação carbotérmica em forno convencional entre 1500 e 1600°C por 1 a 4h em atmosfera de gás inerte como argônio, após o que é separado o produto SiC desejado.

## BREVE DESCRIÇÃO DOS DESENHOS

A FIGURA 1 anexa mostra os resultados dos ensaios de difração de raios X da cinza utilizada como matéria prima para a obtenção do SiC.

5 A FIGURA 2 anexa é um gráfico que mostra os resultados dos ensaios de distribuição granulométrica da cinza utilizada como matéria prima para a obtenção do SiC.

A FIGURA 3 anexa é uma micrografia que mostra os resultados dos ensaios de microscopia eletrônica de varredura (MEV) da cinza utilizada como matéria prima para a obtenção do SiC.

10 A FIGURA 4 anexa apresenta difrações de raios X de SiC obtido em forno convencional após aquecimento a 1550°C por 2h sob atmosfera de argônio, utilizando como precursores a cinza e negro de fumo, na proporção de 1:3, tendo a cinza sido tratada com H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> (30%), por 4h a 200°C – amostra CCH1. Nesta Figura também pode ser visto o difratograma da amostra CC1 que apresenta as mesmas condições de síntese que a CCH1, mas que não teve a cinza tratada previamente com H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>.

15 A FIGURA 5A anexa apresenta distribuição granulométrica de SiC obtido em forno convencional após aquecimento a 1550°C por 2h sob atmosfera de argônio, utilizando como precursores a cinza e negro de fumo, na proporção de 1:3, tendo a cinza sido tratada com H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> (30%), por 4h a 200°C – amostra CCH1. A FIGURA 5B anexa apresenta a distribuição granulométrica da amostra CC1 que apresenta as mesmas condições de síntese que a CCH1, mas que não teve a cinza tratada previamente com H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>.

20 As FIGURAS 6A e 6B anexas apresentam micrografias de MEV (micrografias de microscopia eletrônica de varredura) de SiC obtido em forno convencional após aquecimento a 1550°C por 2h sob atmosfera de argônio, utilizando como precursores a cinza e negro de fumo, na proporção de 1:3, tendo a cinza sido tratada com H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> (30%), por 4h a 200°C – amostra CCH1.

25 A FIGURA 7 anexa apresenta micrografia de MEV (micrografia de microscopia eletrônica de varredura) de SiC obtido em forno convencional após aquecimento a 1550°C por 2h sob atmosfera de argônio, utilizando como precursores a cinza e negro de fumo, na proporção de 1:3, para a amostra CC1

que apresenta as mesmas condições de síntese que a amostra CCH1 mas que não teve a cinza previamente tratada com  $H_2O_2$ .

#### DESCRÍÇÃO DETALHADA DA INVENÇÃO

A invenção trata da utilização do resíduo da queima da palha da cana de açúcar como matéria-prima cerâmica, como fonte de sílica, para a obtenção de carbeto de silício por reação carbotérmica.

Assim, um aspecto da invenção é o processo de obtenção do carbeto de silício  $SiC$  misturando o dito resíduo com fontes de carbono (negro de fumo, grafite, carbono ativado) e submetendo o mesmo a aquecimento. O aquecimento é realizado em forno convencional em temperaturas entre 1500 e 1600°C durante 1 a 4 horas, com uma duração típica de 2 horas.

Através da síntese por redução carbotérmica são obtidos carbetos de silício sub-micrométricos e micrométricos tanto na forma cristalográfica hexagonal como cúbica.

O processo de obtenção de carbeto de silício conforme a invenção será detalhado a seguir, e descrito com base nas Figuras anexas.

A palha da cana é queimada (tanto em forno convencional como em placa de aquecimento em temperaturas entre 300 e 450°C), visando simular as condições de queima da indústria e obter-se o resíduo da queima, doravante denominado cinza.

A caracterização química e física da cinza é dada a seguir. A faixa de composições das cinzas analisadas é:

$SiO_2$ : 53,5 a 62,5%;  $Al_2O_3$ : 2,8 a 3,8%;  $Fe_2O_3$ : 1,1 a 1,8%;  $CaO$ : 8,0 a 16,0%;  $Na_2O$ : 0,2 a 0,8%;  $K_2O$ : 3,0 a 10%;  $MnO$ : 0,2 a 0,3%;  $TiO_2$ : 0,1 a 0,3%;  $MgO$ : 25 7,0 a 18,0%;  $P_2O_5$ : 1,8 a 3,5%.

Os demais ensaios de caracterização são apresentados nas Figuras 1, 2 e 3, que são os resultados dos ensaios de difração de raios X, distribuição granulométrica e microscopia eletrônica de varredura (MEV) da cinza respectivamente.

Através da Figura 1 e da composição química acima, pode-se observar que a cinza é constituída basicamente por material amorfo (sílica amorfa),

sendo a única fase cristalina o carbonato de cálcio. O que evidencia uma elevada reatividade do material.

5 Através das Figuras 2 e 3 pode-se observar que a cinza apresenta uma fração extremamente elevada de partículas com dimensões inferiores a  $2\mu\text{m}$ , o que ressalta a reatividade do material.

10 Após a caracterização da palha e observação do seu potencial como matéria-prima cerâmica para a produção de materiais finos, nanométricos, submicrométricos e micrométricos, as pesquisas da Requerente que conduziram ao presente invento envolveram o preparo de misturas contendo a 15 cinza e precursores de carbono (negro de fumo ou grafite ou carbono ativado), visando a utilização da cinza como fonte de sílica ( $\text{SiO}_2$ ) para a produção de carbeto de silício ( $\text{SiC}$ ).

15 Como mencionado, a cinza é misturada com negro de fumo ou com grafite ou com carbono ativado (os últimos dois são cominuídos e passados em peneira ABNT 325 – o negro de fumo possui granulometria muito mais fina (da ordem de sub-microns e nanos, não sendo necessário passar por peneira)). As proporções foram de 1:1, 1:2 e 1:3 em massa de cinza:fonte de carbono, em relação à composição estequiométrica para a produção de  $\text{SiC}$ . A mistura é feita a úmido em meio alcoólico.

20 No presente relatório, a expressão "forno convencional" significa fornos elétricos com resistência kanthal, com atmosfera controlada e fluxo de 0,1 a 1,0L/min do gás argônio ou outro gás inerte como  $\text{N}_2$ , sem estar limitado a estes.

25 No presente relatório, a expressão "mistura feita a úmido" significa que a umidade utilizada para a confecção dos pellets variou de 6 a 30%, sendo observado uma faixa ótima entre 20 e 25% (porcentagens em massa).

30 No presente relatório, a expressão "a mistura é feita em meio alcoólico" significa que foram utilizados álcool etílico ( $\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}$ ) ou isopropílico ( $\text{C}_3\text{H}_7\text{OH}$ ) para a mistura e homogeneização das matérias-primas (a fonte de carbono e a cinza), utilizando dispersões com concentração de sólidos de 5 a 50% em volume.

Em seguida o material é transformado em pellets e seco tanto ao ar, sem controle de temperatura e umidade, como em estufa a 110°C por 24h.

As reações em forno convencional são realizadas entre 1500 e 1600°C por tempos entre 1 e 4 horas, tipicamente 2h. Foi obtido SiC em todas as amostras (ensaio de raios X). A atmosfera é de argônio ou outro gás inerte selecionado dentre N<sub>2</sub>, He, etc. Com a reação usando N<sub>2</sub>, não se observou a formação de nitreto de silício na reação em forno convencional.

5 Durante o processo de obtenção do SiC também são realizados tratamentos químicos na cinza e/ou no SiC obtido na reação, com ácido nítrico ou ácido clorídrico ou ácido nítrico e ácido clorídrico ou H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> (de 1 a 6h e de 40 a 10 300°C em concentrações de 5 a 30mol e de 10 a 50%), visando purificar a palha e/ou o material final e reduzir o tamanho de aglomerados do SiC obtido.

15 As Figuras 4, 5A, 6A e 6B e Tabela 1 abaixo, apresentam difrações de raios X, distribuição granulométrica e micrografias de MEV (micrografias de microscopia eletrônica de varredura) de SiC obtido em forno convencional após aquecimento a 1550°C por 2h sob atmosfera de argônio, utilizando como precursores a cinza e negro de fumo, na proporção de 1:3, tendo a cinza sido tratada com H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> (30%), por 4h a 200°C – amostra CCH1.

20 A FIGURA 6A apresenta o aspecto morfológico das partículas de SiC, observa-se partículas em formato de whiskers e aglomerados de partículas com morfologia homogênea (FIGURA 6B) com tamanho médio das mesmas inferiores a 0,5 µm. Observa-se também a formação de pequenos agregados constituídos dessas partículas, decorrente da alta temperatura de reação.

25 A Figura 7 apresenta a morfologia das partículas de SiC constituída de novelos fibrosos e esferas. As esferas observadas são decorrentes da fusão das partículas catalíticas das impurezas a cerca de 1400°C, provenientes da palha.

30 Observa-se que o produto obtido, particularmente o que utilizou palha tratada para sua síntese, apresenta uma granulometria da ordem de sub-microns e microns, mais fina, inclusive que os SiC micrométricos com a palha sem ser tratada. Essa variedade de morfologias se deve a fatores como a quantidade de formador de fase líquida presente na matéria-prima, a formação

de  $\text{SiO}_{(g)}$  durante a reação de redução e a presença de impurezas também na palha da cana de açúcar.

As Figuras 4, 5B e 7 e Tabela 1 também apresentam o difratograma de raios X, micrografias de MEV e a distribuição granulométrica da amostra CC1 que apresenta as mesmas condições de síntese que a CCH1, mas que não teve a cinza tratada previamente com  $\text{H}_2\text{O}_2$ .

Com base nas Figuras 4 e 5 e Tabela 1, pode-se observar que o tratamento químico prévio influencia nas fases finais formadas, havendo uma maior quantidade de impurezas nos materiais não tratados quimicamente e também na distribuição granulométrica do material sintetizado, observando-se uma maior pureza e finura no material obtido a partir da cinza tratada previamente.

Observa-se que o produto obtido, particularmente o que utilizou palha tratada para sua síntese, apresenta uma granulometria da ordem de sub-microns e microns, mais fina, inclusive que os SiC micrométricos encontrados comercialmente (com tamanhos médios da ordem de 3 a 6 microns). Nessa amostra sintetizada observa-se também a presença de elevada quantidade de microfibras de SiC.

Na Tabela 1 observa-se que o diâmetro médio das partículas da amostra tratada com  $\text{H}_2\text{O}_2$ , CCH1, encontra-se em torno de  $2,0\mu\text{m}$ , com 50% do volume das partículas com diâmetro inferior a  $1,5\mu\text{m}$ , enquanto que para a amostra não tratada o tamanho médio se encontra em torno de  $13,0\mu\text{m}$ , com 50% do volume das partículas com diâmetro inferior a  $8,0\mu\text{m}$ .

TABELA 1

	CCH1( $\mu\text{m}$ )	CC1 ( $\mu\text{m}$ )
20%	0,7	3,0
50%	1,5	8,0
90%	4,0	30,0

**REIVINDICAÇÕES**

1. Processo para obtenção de carbeto de silício por redução carbotérmica a partir do resíduo da queima da palha da cana de açúcar, caracterizado por dito processo compreender:

- 5           a) Prover resíduo da queima de palha de cana (denominado cinza) obtido por queima da palha de cana em temperaturas entre 300 e 450°C;
- 10           b) Misturar a úmido em meio alcoólico dita cinza e precursores de carbono selecionados dentre negro de fumo, grafite ou carbono ativado em proporção respectivamente de 1:1, 1:2 e 1:3 em massa de cinza:fonte de carbono, em relação à composição estequiométrica para a produção de SiC, obtendo um material intermediário;
- 15           c) Transformar o dito material obtido em b) em pellets e secar o mesmo;
- 20           d) Efetuar reação carbotérmica em forno convencional entre 1500 e 1600°C por 1 a 4 horas, em atmosfera inerte, a fim de obter o produto SiC desejado;
- 25           e) Ao final do processo, separar o SiC produto da reação.
2. Processo de acordo com a reivindicação 1, caracterizado por antes da etapa b) ou depois da etapa e) realizar tratamentos químicos na cinza e/ou no SiC obtido na reação, com ácido nítrico ou ácido clorídrico ou ácido nítrico e ácido clorídrico ou  $H_2O_2$  de 1 a 6h e de 40 a 300°C em concentrações de 5 a 30mol e de 10 a 50% respectivamente.
3. Processo de acordo com a reivindicação 1, caracterizado por a mistura a úmido compreender umidade para a confecção dos pellets entre 6 a 30%, tipicamente entre 20 e 25% em massa.
4. Processo de acordo com a reivindicação 1, caracterizado por utilizar álcool etílico ( $C_2H_5OH$ ) ou isopropílico ( $C_3H_7OH$ ) para a mistura e homogeneização da fonte de carbono e cinza, as dispersões tendo concentração de sólidos de 5 a 50% em volume.

5. Processo de acordo com a reivindicação 1, caracterizado por na etapa c) a transformação em pellets e secagem ser efetuada ao ar, sem controle de temperatura e umidade, ou alternativamente em estufa a 110°C por 24h.
6. Processo de acordo com a reivindicação 1, caracterizado por o SiC obtido apresentar diâmetro médio das partículas da amostra tratada com H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> em torno de 2,0µm, com 50% do volume das partículas com diâmetro inferior a 1,5 µm.
7. Processo de acordo com a reivindicação 1, caracterizado por o SiC obtido apresentar diâmetro médio das partículas para a amostra não tratada em torno de 13,0µm, com 50% do volume das partículas com diâmetro inferior a 8,0µm.

10

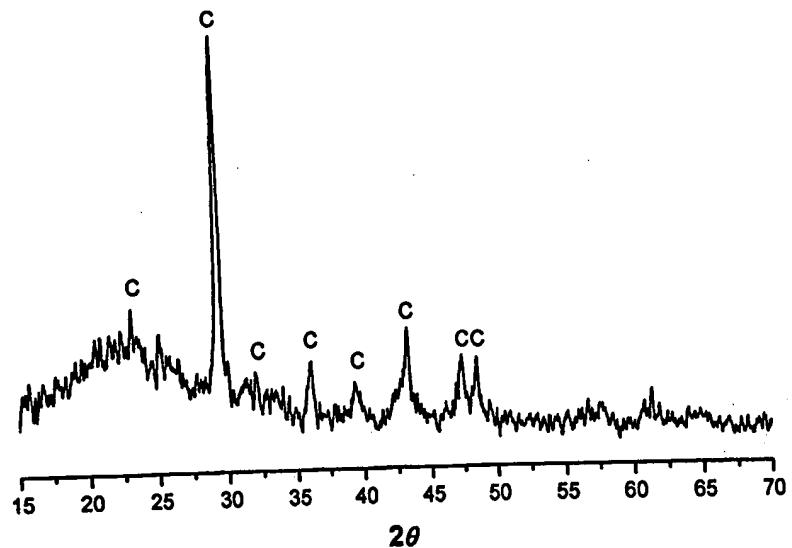
C - Calcita -  $\text{Ca}(\text{CO}_3)$ 

FIG 1

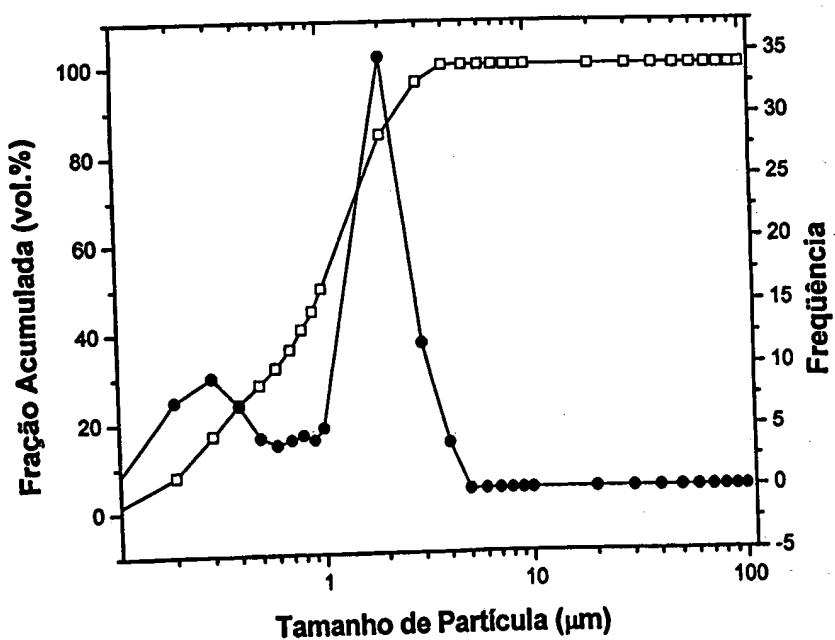


FIG 2

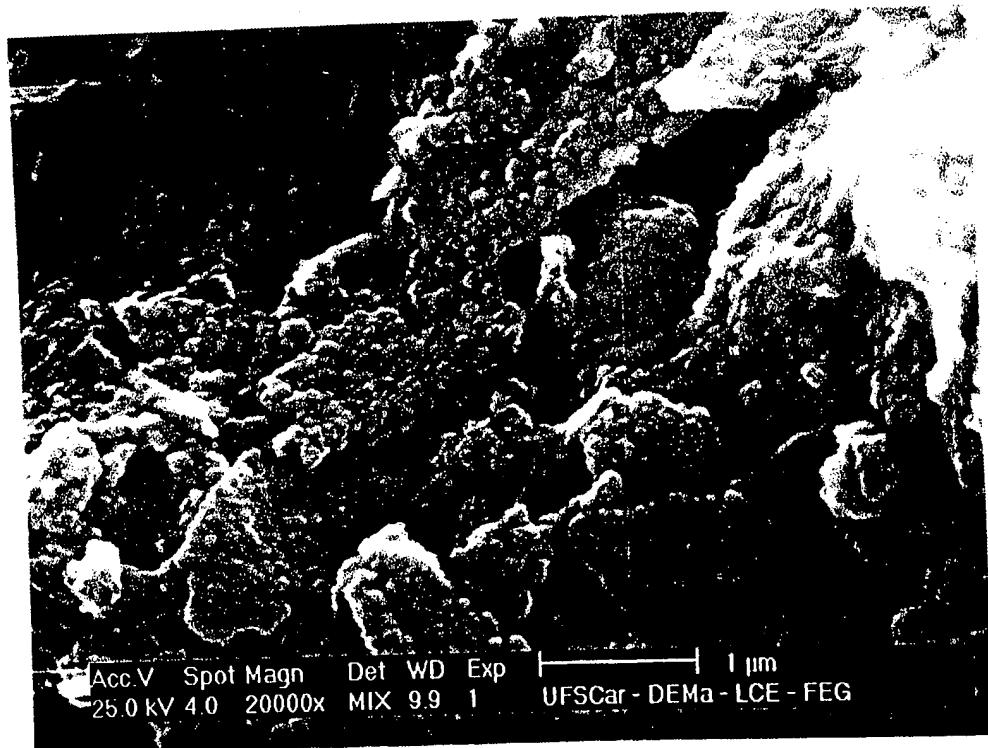


FIG 3

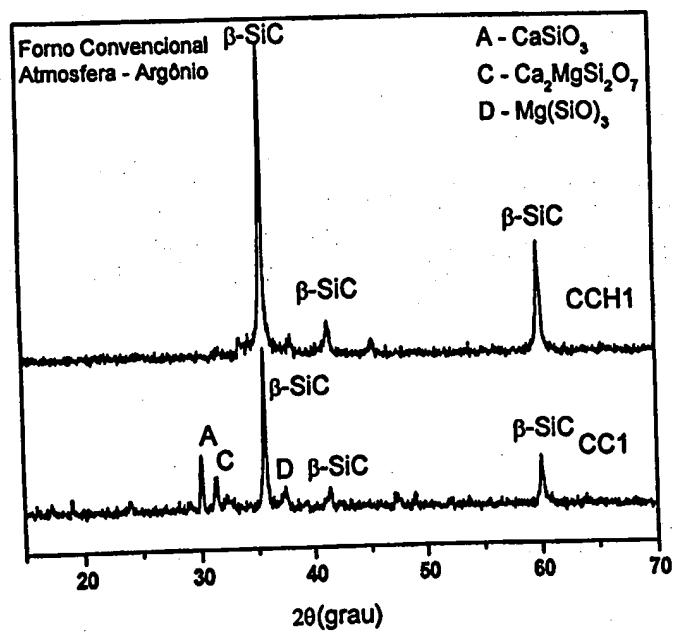


FIG 4

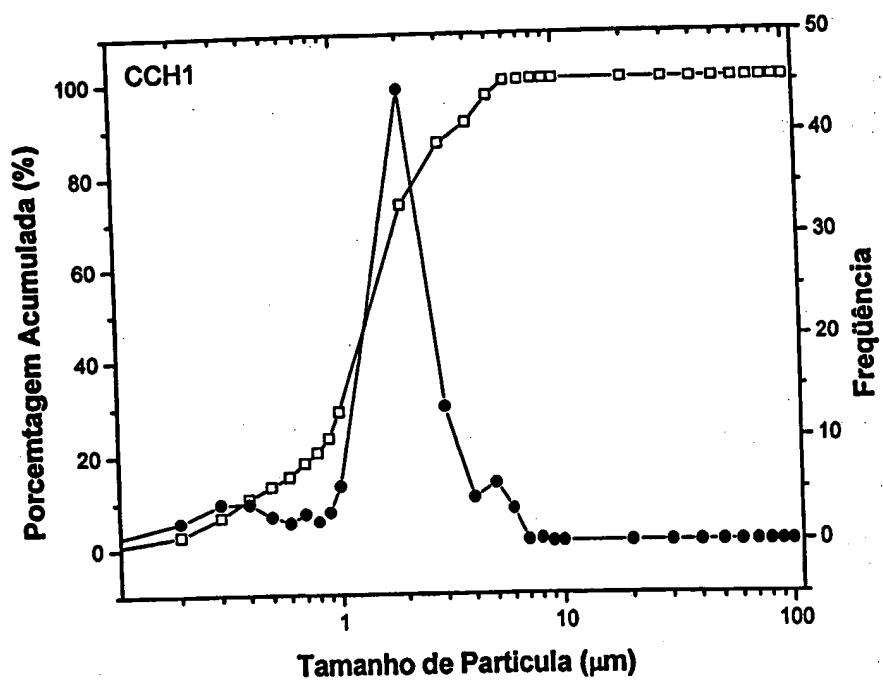


FIG 5A

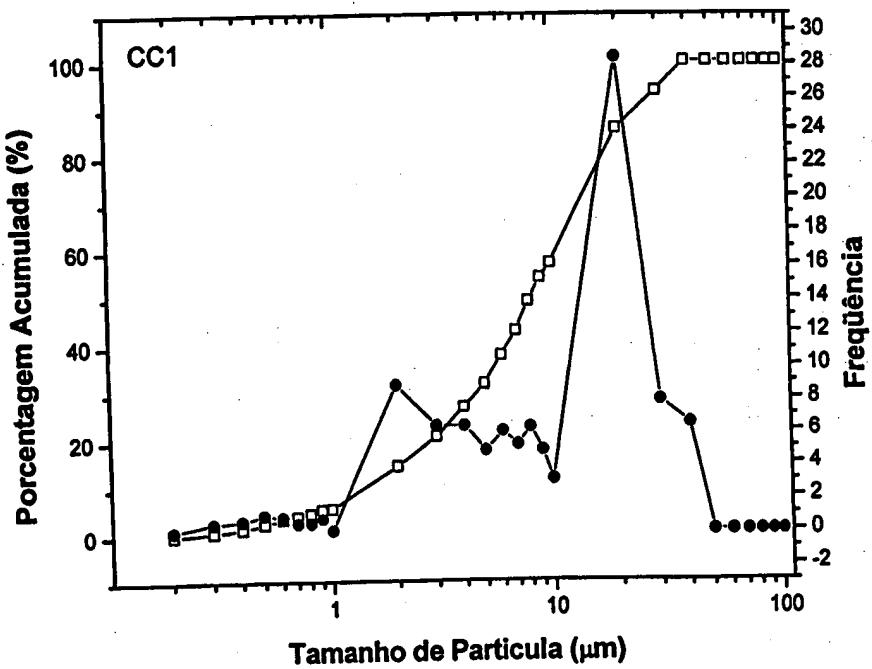


FIG 5B

4/5

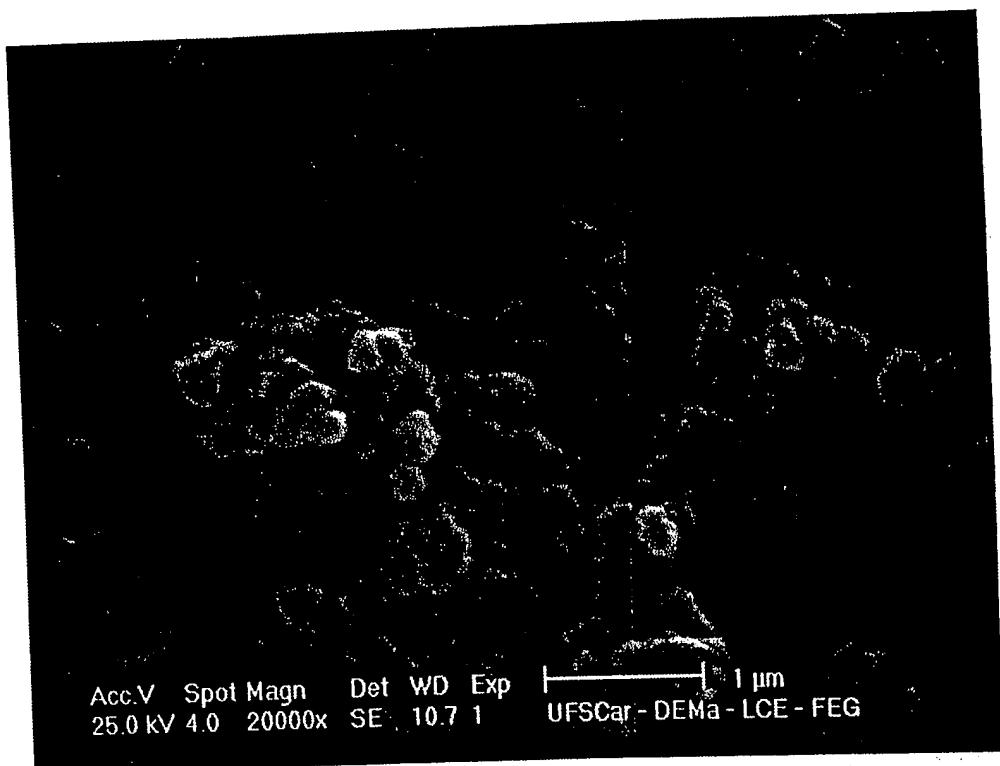


FIG 6A

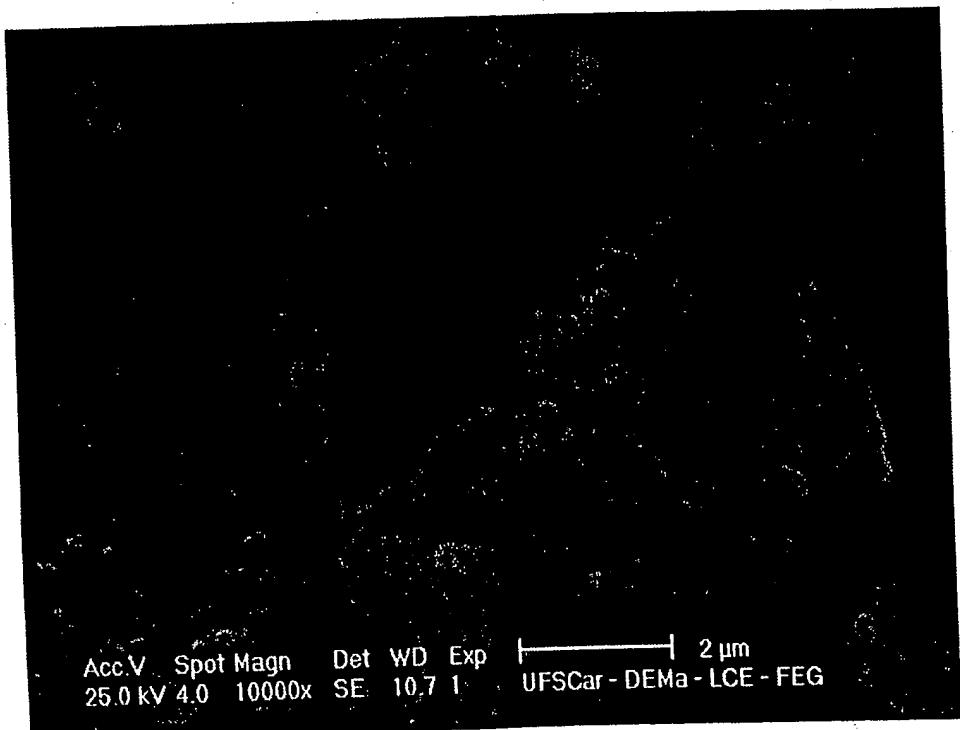
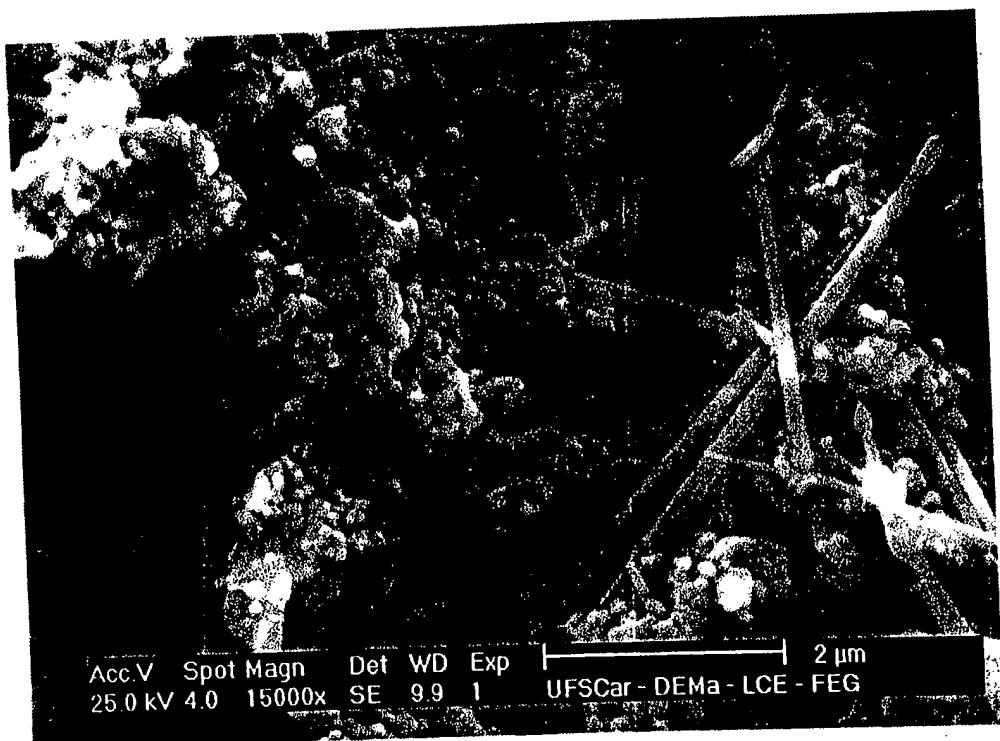


FIG 6B

5/5



**FIG 7**

**RESUMO****PROCESSO DE OBTENÇÃO DE CARBETO DE SILÍCIO**

É descrito um processo de obtenção de carbeto de silício (SiC) por redução carbotérmica a partir do uso do resíduo da queima da palha da cana-de-açúcar como matéria-prima cerâmica fonte de sílica, o processo compreendendo misturar a úmido em meio alcoólico a cinza obtida por queima da palha de cana e precursores de carbono em proporções adequadas, obtendo um material intermediário que é transformado em pellets que são secos e submetidos a aquecimento em forno convencional entre 1500°C e 1600°C por 1 a 4 horas em atmosfera inerte, e após o fim do processo, separar o SiC produto da reação. É possível tratar a cinza ou o material final com ácidos ou água oxigenada. O material obtido apresenta dimensões submicrométricas ou micrométricas, inferiores às de materiais similares do estado da técnica.