

# EL PROCESO DE MICROGRANULACIÓN, UNA TECNOLOGÍA PARA DESCARBONIZAR LA INDUSTRIA CERÁMICA

**Antonio Arnau<sup>(1)</sup>, Pablo Arnau<sup>(1)</sup>, Javier García -Ten<sup>(2)</sup>, Ana Mezquita<sup>(2)</sup>, Eliseo Monfort<sup>(2)</sup>, Marisa Soriano<sup>(2)</sup>**

**(1) Granulation System**

**(2) Instituto de Tecnología Cerámica (ITC). Asociación de Investigación de las Industrias Cerámicas (AICE). Universitat Jaume I. Castellón. España.**

## RESUMEN

El proceso más utilizado en la fabricación de baldosas cerámicas es la preparación de las composiciones de soportes por molienda vía húmeda y posterior secado de las suspensiones por atomización, proceso conocido como "vía húmeda", llevándose a cabo posteriormente la cocción de los soportes esmaltados en una única etapa (monococción). Este proceso de fabricación lleva asociado un importante consumo de energía y de recursos naturales, entre los que se encuentra el agua. El consumo promedio de agua por metro cuadrado producido oscila en torno a 20 litros, mientras que el consumo energético se encuentra alrededor de los 32 kWh por metro cuadrado producido.

En lo que respecta a los consumos de energía, la mayor proporción de energía consumida (casi el 90 %) es de origen térmico mediante la combustión de gas natural, por lo que las mejoras energéticas deben ir dirigidas principalmente hacia la reducción de este tipo de energía para lograr descarbonizar la industria. Las dos etapas que consumen mayor energía térmica son el secado por atomización de las suspensiones de soporte (35%) y la cocción (55%). Una tecnología alternativa al proceso de preparación de las materias primas del soporte por vía húmeda es la tecnología de microgranulación, dado que presenta simultáneamente la ventaja de reducir las emisiones de CO<sub>2</sub> y los costes energéticos.

En el presente trabajo se muestra una comparativa de las propiedades de los gránulos, así como de las piezas crudas y cocidas obtenidas por el proceso de vía húmeda y por microgranulación, con la particularidad de que los materiales en estudio se han obtenido a escala industrial.

## 1. INTRODUCCIÓN

El proceso más utilizado en Europa para la fabricación baldosas cerámicas, tanto esmaltadas como sin esmaltar, es el denominado "vía húmeda" por monococción [1]. Este proceso proporciona gránulos con una elevada fluidez, lo que ha permitido la fabricación de piezas de grandes dimensiones gracias al adecuado reparto de los gránulos en el alveolo de la prensa. Ello se traduce en una distribución homogénea de la densidad aparente en crudo de las piezas prensadas, lo que minimiza, entre otros, los problemas de estabilidad dimensional. La elevada fluidez de este granulado también ha permitido la fabricación de placas cerámicas de grandes dimensiones, con tecnologías de conformado que no confinan el granulado en un molde.

El proceso vía húmeda lleva asociado un importante consumo de energía y de recursos naturales, entre los que se encuentra el agua. El consumo promedio de agua y energía por metro cuadrado producido oscila en torno a 20 litros y a 32 kWh respectivamente [2].

En torno al 60% del agua consumida corresponde a la utilizada en la molienda de la composición del soporte. Aunque una parte importante del agua consumida es reciclada [3], para algunos tipos de soporte la situación es diferente debido a que los sólidos que contienen el agua a reciclar pueden modificar algunas características del producto acabado, como el color y fundencia, lo que limita el reciclado de agua residual.

En lo que respecta a los consumos de energía, la mayor proporción de energía consumida (90%) es de origen térmico [2], por lo que las mejoras energéticas deben ir dirigidas principalmente hacia la reducción de este tipo de energía. Las dos etapas que consumen más del 90% de energía térmica son el secado por atomización de las suspensiones de soporte (35%) y la cocción (55%). Aunque se continúan implantando medidas de ahorro energético en los hornos monoestrato [4], en la actualidad no se prevé que surjan a corto-medio plazo tecnologías para descarbonizar la cocción de baldosas que supongan un coste energético significativamente inferior al actual.

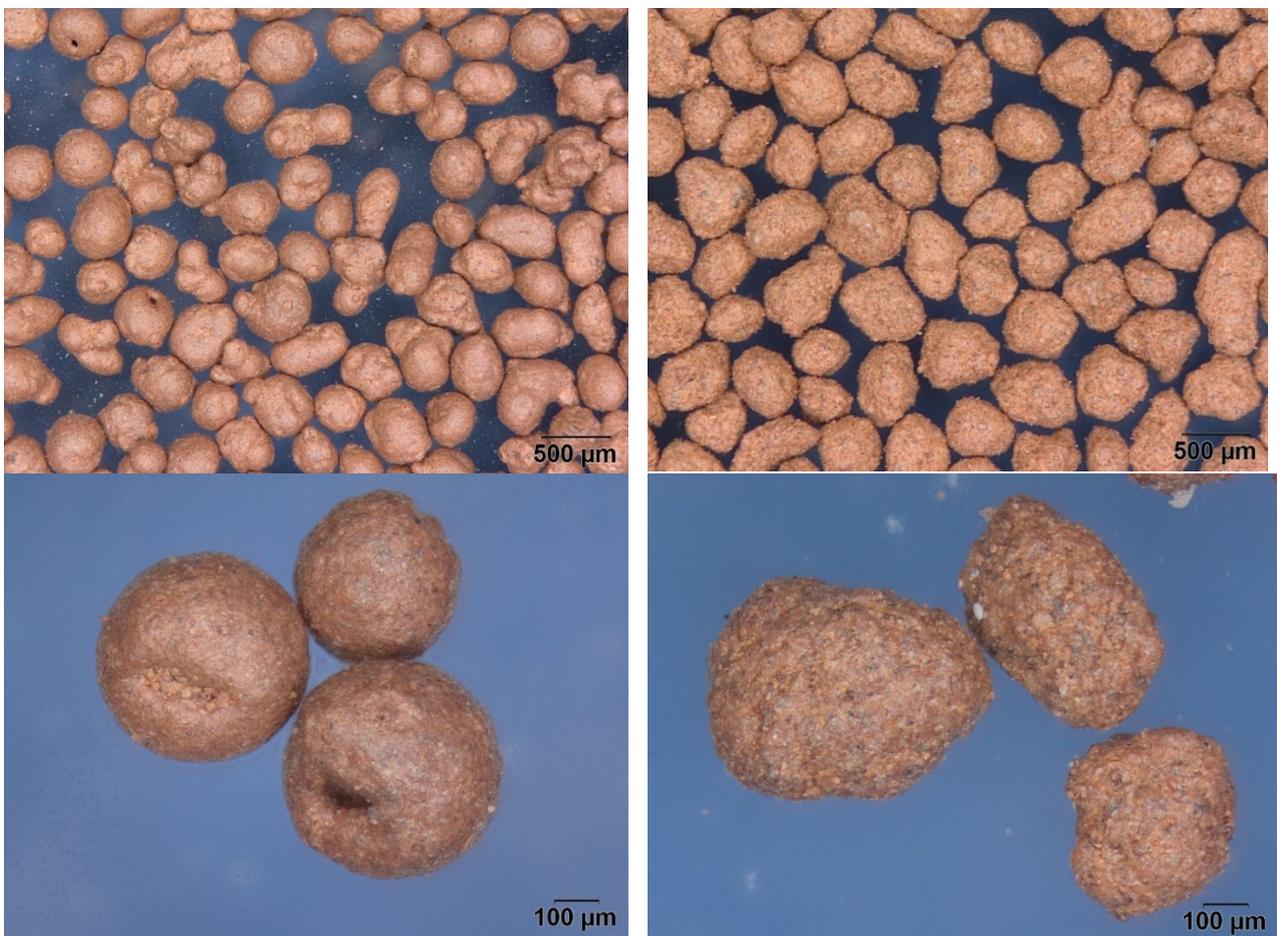
Por ello, en el presente trabajo se estudia una tecnología alternativa al actual sistema de preparación de la composición del soporte, con el objetivo de disminuir las cargas ambientales asociadas al proceso de fabricación de baldosas y los costes de fabricación. Ello implica reducir significativamente el consumo de agua durante esta etapa para hacer innecesaria la fase de secado de la suspensión. El proceso propuesto consiste en la molienda de las materias primas en molino pendular y en la posterior microgranulación mediante un proceso desarrollado específicamente para obtener un polvo de prensas con fluidez similar a la de los polvos atomizados. La novedad del trabajo estriba en la utilización de un microgranulado obtenido en una instalación industrial que opera en continuo, a diferencia de otros trabajos publicados anteriormente en los que los estudios se han desarrollado a escala de laboratorio o piloto [5, 6, 7].

## 2. EXPERIMENTAL

### 2.1. MATERIALES

Para realizar el estudio se ha empleado un polvo atomizado industrial obtenido por el proceso vía húmeda (AT) empleado en la fabricación de gres esmaltado de cocción roja, en el cual se usan arcillas rojas locales de tipo illítico-caolinítico con cantidades variables de cuarzo. Por otra parte, se ha utilizado un microgranulado (mGR), también empleado en la fabricación de gres rojo, obtenido en la instalación industrial descrita en el apartado 3.

En la Figura 1 se muestra el aspecto de ambos materiales.



**Figura 1.** Aspecto de la fracción 300-500 μm polvo atomizado y del microgranulado.

## 2.2 PROCEDIMIENTO EXPERIMENTAL

El trabajo experimental consistió en la caracterización de ambos granulados evaluando los siguientes aspectos:

- Caracterización del granulado
  - ✓ Fluidez
  - ✓ Dureza del gránulo
  - ✓ Distribución del tamaño de gránulo
- Comportamiento en crudo
  - ✓ Diagrama de compactación
  - ✓ Resistencia mecánica en seco
  - ✓ Permeabilidad
  - ✓ Observación microscópica
- Comportamiento en la cocción y propiedades finales
  - ✓ Diagrama de gresificación
  - ✓ Observación y fotografía en microscopia electrónica

Los procedimientos empleados para la realización de estos ensayos se describen brevemente a continuación.

### Determinación de la velocidad de flujo

Para el cálculo de la velocidad de flujo se empleó un fluidómetro (Figura 2) que consiste en dos embudos de vidrio de 15 cm de diámetro superior, 15 cm de altura y con un ángulo de descarga de 25°. El procedimiento de ensayo consiste en depositar el material en el embudo superior y, a continuación, activar el dispositivo que permite el paso del material al embudo inferior. Cuando todo el material ha pasado, se abre la compuerta del embudo inferior y se mide el tiempo que tarda en vaciarse. Para el cálculo de la velocidad de flujo volumétrica se mide la densidad aparente de llenado por caída libre en una probeta de 200 cm<sup>3</sup> (Figura 2). La velocidad de flujo másica ( $v_{FM}$ ) y volumétrica ( $v_{FV}$ ) se definen como:

$$v_{FM} = \frac{m}{t_F} \quad v_{FV} = \frac{V}{t_F} = \frac{m}{t_F \cdot \rho_0}$$

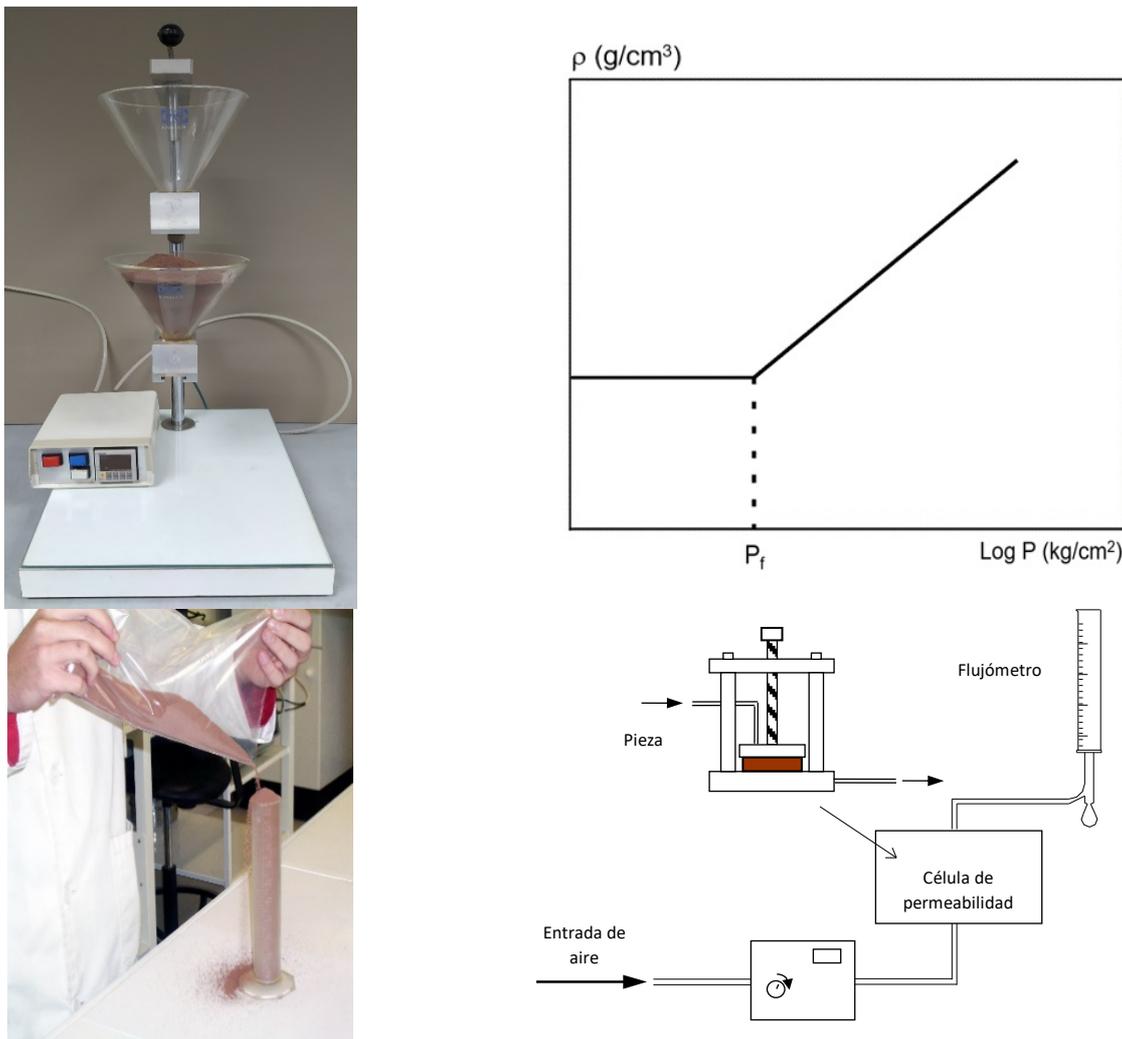
donde:

m: masa de sólido descargado (g)

$t_F$  : tiempo de descarga (s)

V: volumen de sólido descargado (cm<sup>3</sup>)

$\rho_0$ : densidad aparente de llenado por caída libre (g/cm<sup>3</sup>)



**Figura 2.** Fluidómetro de vidrio utilizado en las medidas de velocidad de flujo, medida de la densidad del lecho, diagrama de compactación y esquema del procedimiento de medida de la permeabilidad.

Determinación de la dureza de gránulo

La dureza de los gránulos se determinó en una máquina universal de ensayos a una velocidad de desplazamiento de 2 mm/min. El ensayo consiste en conformar una probeta por prensado, de tal modo que se registren las parejas de valores carga aplicada - altura del lecho de gránulos. A partir de estos valores se obtiene una gráfica similar a la mostrada en la figura 2, donde se representa la densidad del lecho ( $\rho$ ) en función del logaritmo de la presión ( $P$ ). El punto de corte entre los dos tramos de la gráfica se define como el punto o presión de fluencia ( $P_f$ ). Este valor está relacionado directamente con la dureza o resistencia mecánica de los gránulos.

Diagrama de compactación

Para determinar el diagrama de compactación, se conformaron probetas cilíndricas (de 4 cm de diámetro y aproximadamente 7 mm de espesor) a una humedad del 5,5% (base seca) para el polvo atomizado y de 6,5% para el microgranulado y a diferentes presiones de prensado. Las probetas se secaron a 110 °C en una estufa eléctrica de laboratorio, con recirculación de aire. Posteriormente, se pesaron y se determinó su densidad aparente en seco por el método de inmersión en mercurio.

### Resistencia mecánica en seco

La resistencia mecánica en seco se determinó mediante flexión por tres puntos de apoyo. Para ello se moldearon probetas prismáticas de 80 mm de longitud, 20 mm de anchura y aproximadamente 7 mm de espesor por prensado unidireccional, en las condiciones descritas anteriormente y a una presión de 250 kg/cm<sup>2</sup>. Las probetas fueron secadas en una estufa eléctrica de laboratorio con recirculación de aire a 110 °C.

Los ensayos se realizaron en una máquina universal de ensayos mecánicos a una velocidad de deformación constante de 1 cm/min.

### Coefficiente de permeabilidad

Para la determinación de la permeabilidad se conformaron probetas cilíndricas (de 4 cm de diámetro y aproximadamente 7 mm de espesor) por prensado unidireccional, en las condiciones descritas anteriormente y a una presión de 250 kg/cm<sup>2</sup>.

Para la realización del ensayo se introduce una pieza seca, cuya superficie lateral se ha impermeabilizado previamente para evitar la pérdida de aire a su través, en la célula de permeabilidad, como se indica en la figura 2. Modificando convenientemente la válvula de regulación de la presión, se fija en el manómetro un gradiente de presión a través de la pieza. A continuación, para cada valor del gradiente de presión, se determina con el flujómetro el tiempo que tarda en atravesar la pieza un volumen perfectamente medido de aire. Para cada pieza se realizan determinaciones con al menos cinco gradientes de presión distintos.

La permeabilidad se calcula a partir de la ecuación:

$$K_p = \frac{2 \cdot \mu_a \cdot Q_a \cdot L}{S} \cdot \frac{P_{atm}}{(P_1^2 - P_2^2)}$$

donde:

$K_p$ : Permeabilidad (m<sup>2</sup>)

$\mu_a$ : Viscosidad del aire a la temperatura de trabajo (N·s/m<sup>2</sup>)

$Q_a$ : Caudal de aire (m<sup>3</sup>/s)

$L$ : Espesor de la pieza (m)

$S$ : Sección de paso de aire (m<sup>2</sup>)

$P_1$ :  $P_{atm} + \Delta P$  (N/m<sup>2</sup>)

$P_2 = P_{atm}$ : Presión atmosférica (N/m<sup>2</sup>)

$\Delta P$ : Diferencia de presión establecida (N/m<sup>2</sup>)

### Diagrama de gresificación

Para determinar el comportamiento en la cocción se conformaron probetas cilíndricas (de 4 cm de diámetro y aproximadamente 7 mm de espesor) por prensado unidireccional, en las condiciones descritas anteriormente y a una presión de 250 kg/cm<sup>2</sup>. Las cocciones se realizaron a diferentes temperaturas en un horno eléctrico de laboratorio con un ciclo rápido de cocción y un tiempo de permanencia a la máxima temperatura de 6 minutos. La velocidad de calentamiento fue de 25°C/min.

### Resistencia mecánica en cocido

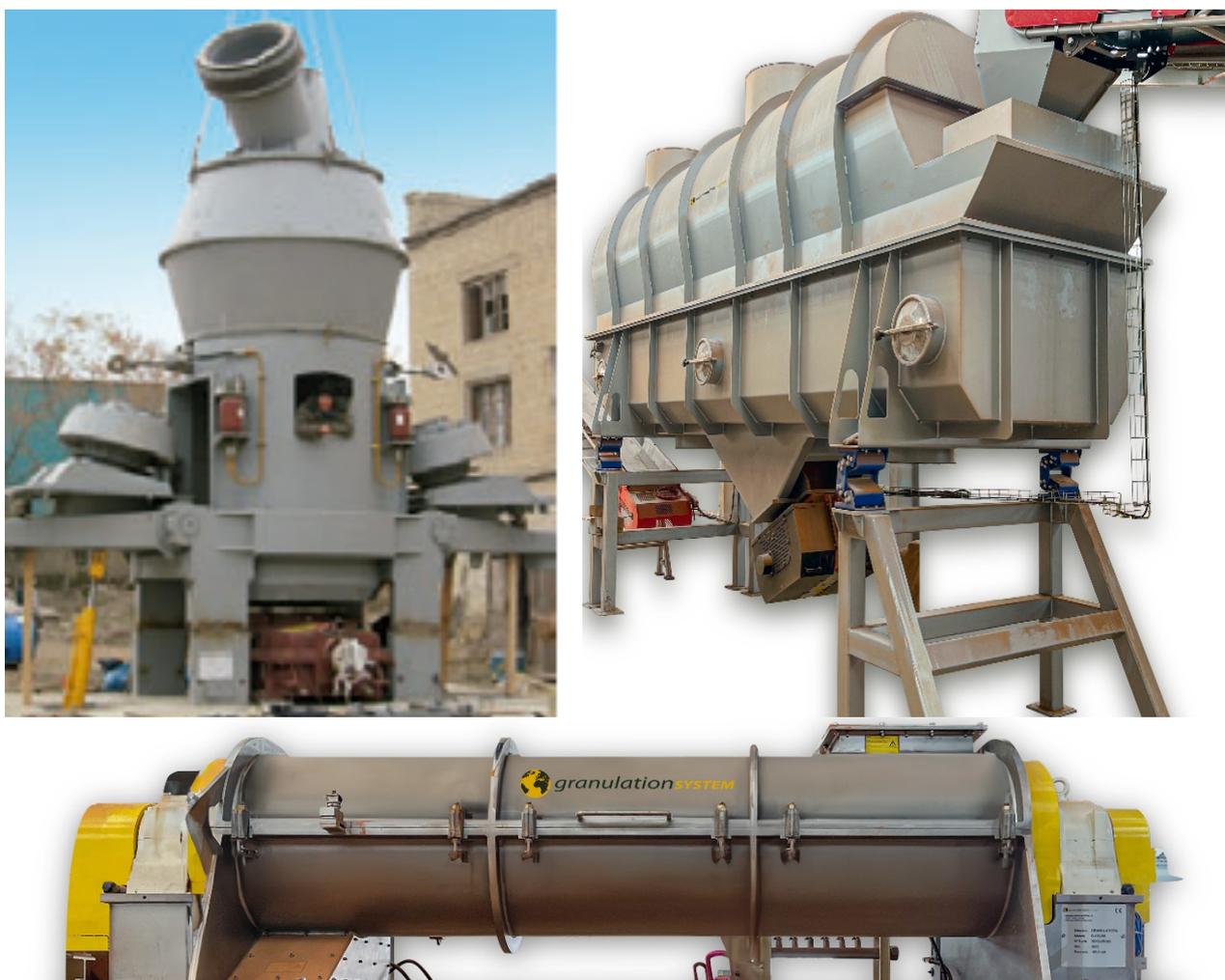
La resistencia mecánica en cocido se determinó mediante flexión por tres puntos de apoyo sobre probetas cocidas a 1130 °C.

### 3. DESCRIPCIÓN DEL PROCESO DE MICROGRANULACIÓN

La tecnología de microgranulación desarrollada y patentada por Granulation System consta de 3 etapas principales (Figura 3). En primer lugar, la composición cerámica se molutra en un molino pendular vertical (GS-VM200) de Granulation System. La micronización puede proporcionar un material molido con un tamaño menor de 45 micras y con una humedad final inferior al 1%. A continuación, el material molido se introduce en el microgranulador (GS-G200) donde se genera el microgranulado empleando agua exclusivamente. El producto obtenido es un microgranulado con una humedad del 12% y un tamaño entre 125 micras a 1 milímetro.

El exceso de humedad del microgranulado se elimina en el secadero de lecho fluido. El secadero (GS-S200) está desarrollado exclusivamente para el proceso de microgranulación de Granulation System y permite aprovechar el calor residual de otros procesos térmicos o el secado por electricidad, dejando el microgranulado a la humedad óptima para su prensado.

Todo el proceso de microgranulación se encuentra patentado mundialmente por Granulation System y cumple la normativa europea de descarbonización total en el proceso de preparación de materias primas para la industria cerámica.

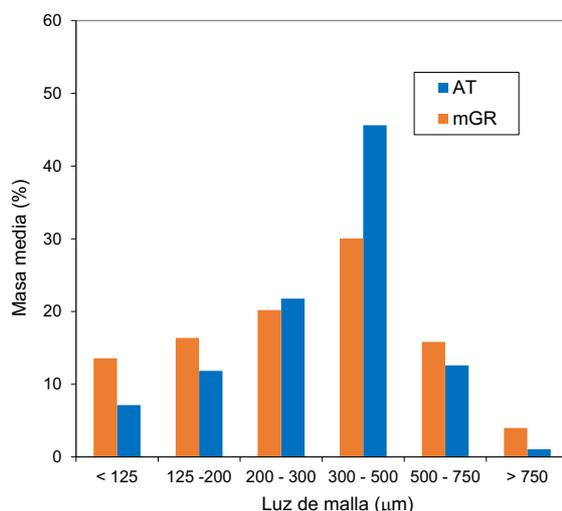


**Figura 3.** Molino vertical GS-VM200 (arriba izquierda), Secadero GS-S200 (arriba derecha) y Microgranulador GS-G200 (abajo)

## 4. RESULTADOS Y DISCUSIÓN

### 4.1. CARACTERIZACIÓN DEL GRANULADO

La distribución granulométrica de ambos materiales se muestra en figura 4 en la que se aprecia la una gran similitud en las curvas granulométricas. En la Tabla 1, se muestran los valores de la velocidad de flujo y la densidad aparente del lecho de los 2 materiales. Cabe indicar que, durante su descarga, ambas muestras presentaron un patrón de descarga másico en el cual todos los gránulos del material se movían de forma uniforme desde la entrada a la salida. Se observa que el microgranulado presenta una densidad de llenado ( $\rho_0$ ) ligeramente más elevada debido a la ausencia del hueco central característico del atomizado, y que la fluidez de ambos materiales es prácticamente la misma.



**Figura 4.** Distribución granulométrica.

Muestra	Humedad (%)	$\rho_0$ (g/cm <sup>3</sup> )	$V_{FM}$ (g/s)	$V_{FV}$ (cm <sup>3</sup> /s)
AT	5,5	1,090 ± 0,010	33,0 ± 1,1	30,3 ± 1,2
mGR	6,5	1,127 ± 0,011	33,0 ± 1,1	29,3 ± 1,3

**Tabla 1.** Valores de la densidad de lecho y fluidez

En lo que respecta a otras propiedades de los granulados (Tabla 2) se aprecia que el microgranulado presenta un mayor contenido en partículas mayores de 63  $\mu\text{m}$  así como valores más bajos de la expansión post-prensado y dureza de los gránulos, lo que debe asegurar su deformación durante el prensado de las piezas.

Composición	AT	mGR
Humedad (%)	5,5	6,5
Rechazo 63 $\mu\text{m}$ (%)	8,6	13,5
Carbonatos (%)	2,5	1,7
Densidad de lecho vibrado ( $\text{g}/\text{cm}^3$ )	$1,148 \pm 0,011$	$1,193 \pm 0,007$
Expansión diametral (%)	$0,49 \pm 0,08$	$0,30 \pm 0,08$
Expansión axial (%)	$8,9 \pm 0,9$	$8,8 \pm 0,8$
Presión de fluencia ( $\text{kg}/\text{cm}^2$ )	$4,1 \pm 0,2$	$3,6 \pm 0,2$

Tabla 2. Propiedades en crudo de las composiciones.

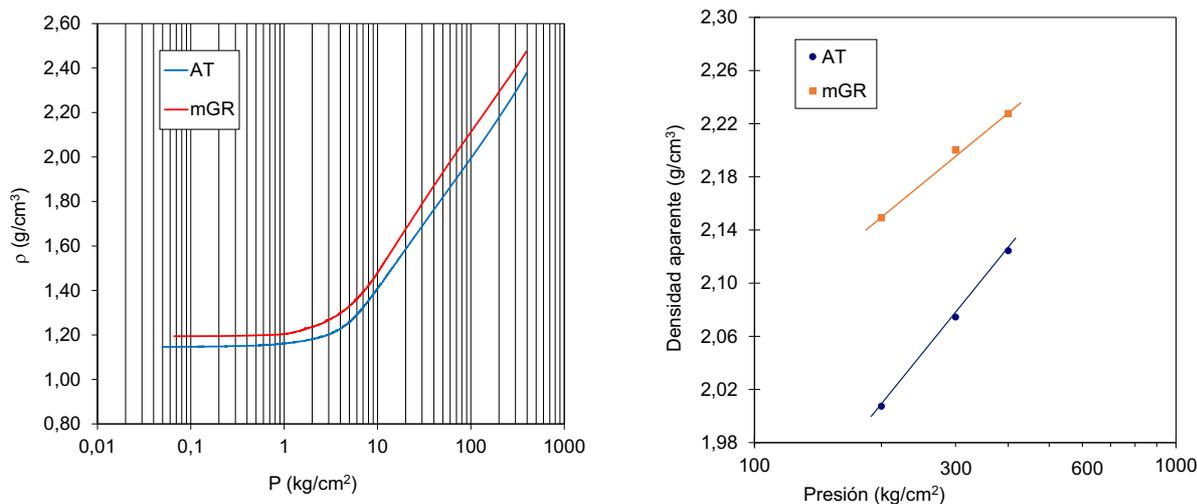


Figura 5. Evolución de la densidad aparente del lecho (izqda.) y de la pieza (dcha.) con la presión de prensado.

### 4.2. COMPORTAMIENTO EN CRUDO

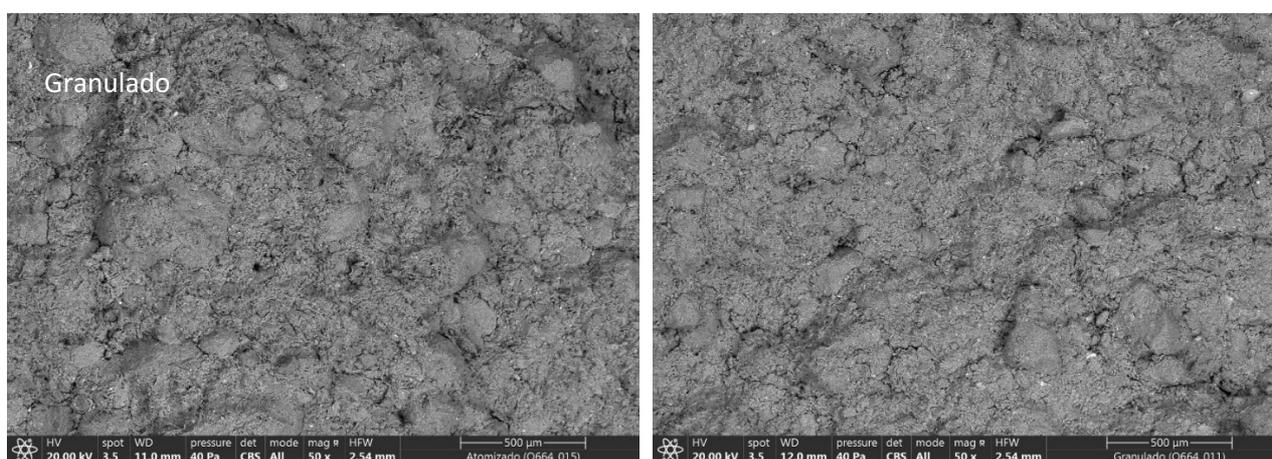
Los valores del comportamiento en crudo que presentan el polvo atomizado y el microgranulado se muestran en la Figura 5 derecha (diagramas de compactación) y en la Tabla 3 (propiedades en seco de las probetas conformadas).

Se observa que el microgranulado proporciona a las piezas valores más elevados de la densidad aparente en seco, lo que se debe a la mayor humedad del microgránulo y sobre todo a la mayor densidad de éste como consecuencia de la ausencia del hueco central característico del polvo atomizado [8]. La mayor densidad aparente en seco de las piezas obtenidas con el microgranulado les proporciona una mayor resistencia mecánica, aunque también una permeabilidad al aire más baja, aspecto de deberá regularse mediante el ajuste de la presión de prensado para balancear ambas propiedades.

Se ha observado también mediante microscopía electrónica de barrido la fractura fresca de las piezas secas (Figura 6) y en ambos casos se observa la presencia de una matriz arcillosa en la que se aprecian restos de gránulos que no se han deformado en su totalidad. Ello se debe a que la distribución del tamaño y la dureza de ambos granulados es muy similar, a diferencia de lo observado con otros tipos de sistemas de granulación donde se aprecia una mayor dureza en los microgranulados. [7].

Composición	AT	mGR
<b>Humedad (%)</b>	5,5	6,5
<b>Presión (kg/cm<sup>2</sup>)</b>	250	250
<b>Densidad aparente en seco (g/cm<sup>3</sup>)</b>	2,042	2,174
<b>Resistencia mecánica en seco (Kg/cm<sup>2</sup>)</b>	29	34
<b>Coefficiente de permeabilidad al aire (Kp) (m<sup>2</sup>x10<sup>16</sup>)</b>	1,80	1,21

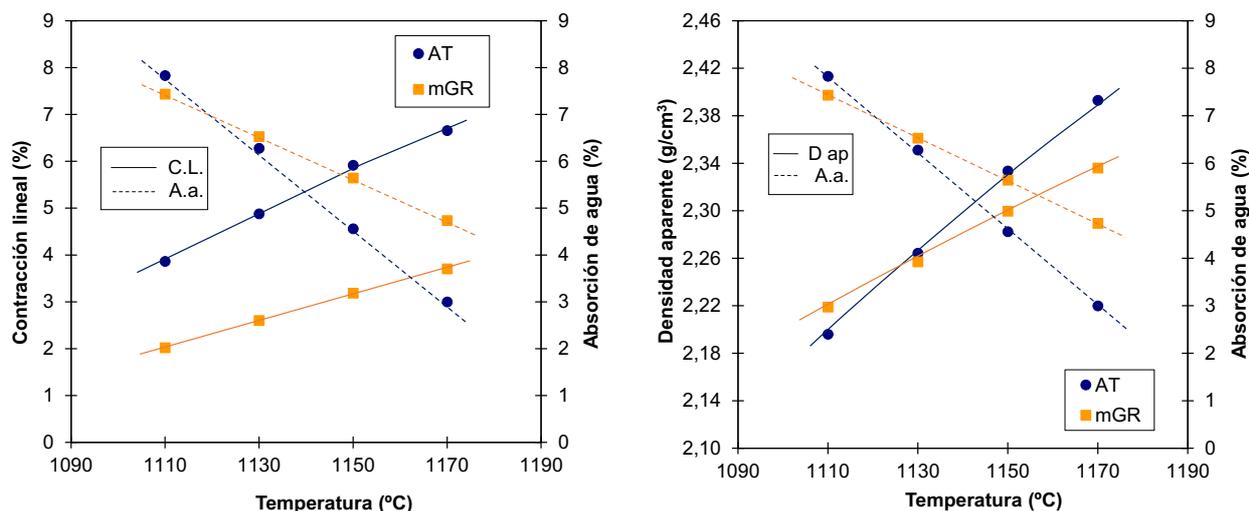
**Tabla 3.** Propiedades en crudo de las composiciones.



**Figura 6.** Micrografías MEB se la sección transversal de las muestras crudas AT (izqda.) y mGR (dcha.).

### 4.3. COMPORTAMIENTO EN LA COCCIÓN Y PROPIEDADES FINALES

Los diagramas de gresificación se muestran en la Figura 7. Se observa que la evolución con la temperatura de la contracción lineal y absorción de agua de las piezas obtenidas con el atomizado es más rápida que la obtenida con el microgranulado, lo que se debe a que la composición de materias primas no era la misma en ambos casos y a la ausencia de desfloculante en el microgranulado, que al ser una sal sódica actúa como fundente. Por otra parte, el microgranulado proporciona menores valores de la contracción lineal en todo el intervalo de temperatura debido a que las piezas se encuentran más compactadas.



**Figura 7.** Evolución de la contracción lineal, densidad aparente y de la absorción de agua con la temperatura.

Al objeto de comparar las propiedades finales de las piezas cocidas con ambos materiales, se ha seleccionado como temperatura de referencia aquella para la cual se obtienen un 6 % de absorción de agua, dado que es el valor límite para clasificar las baldosas cerámicas en el grupo BIIa. A esta temperatura se han calculado las propiedades de las piezas, las cuales se detallan en la Tabla 4.

Puede comprobarse que el microgranulado proporciona la absorción de agua requerida prácticamente a la misma temperatura, pero con una menor contracción de cocción como se ha comentado anteriormente. La densidad aparente de las piezas cocidas es prácticamente coincidente.

Composición	AT	mGR
Temperatura (°C)	1132	1139
Contracción lineal (%)	5,0	2,9
Pérdida por calcinación (%)	4,8	4,5
Densidad aparente (g/cm³)	2,270	2,275

**Tabla 4.** Propiedades a una absorción de agua del 6 %.

## 5. CONCLUSIONES

En este trabajo se ha realizado una comparativa de propiedades técnicas de dos granulados, uno de ellos obtenido por atomización y otro por microgranulación. Las conclusiones obtenidas son las siguientes:

- ✓ El atomizado presenta el característico hueco central mientras que microgranulado es macizo y por tanto más denso. Ambos granulados presentan una fluidez similar, lo que asegura su adecuado reparto en el alveolo de la prensa.
- ✓ La dureza del microgranulado es ligeramente inferior a la del atomizado, lo que facilita la deformación y rotura de los gránulos durante el prensado.
- ✓ Las propiedades de las piezas crudas cambian en función del granulado utilizado. De este modo, el obtenido por microgranulación proporciona mayores valores de la densidad aparente y resistencia mecánica en seco, y también una permeabilidad inferior cuando se trabaja a presión constante. Estas características pueden ajustarse regulando las condiciones de prensado.
- ✓ La temperatura para obtener un valor de absorción de agua del 6 % con ambos granulados es similar. Para esta temperatura los valores de la densidad aparente son prácticamente coincidentes, pero la contracción obtenida por microgranulación es claramente inferior como consecuencia de la mayor densidad aparente en seco de las piezas.

## 6. BIBLIOGRAFÍA

- [1] SÁNCHEZ, E.; GARCÍA-TEN, J.; SANZ, V.; MORENO, A. Porcelain tile: almost 30 years of steady scientific-technological evolution. *Ceram. Int.*, 36, 831-845, 2010.
- [2] MONFORT, E.; MEZQUITA, A.; GRANEL, R.; VAQUER, E.; ESCRIG, A.; MIRALLES, A.; ZAERA, V. Análisis de consumos energéticos y emisiones de dióxido de carbono en la fabricación de baldosas cerámicas. *Bol. Soc. Esp. Ceram. Vidr.*, 49(4), 303-310, 2010.
- [3] ENRIQUE, J.E.; MONFORT, E.; BUSANI, G.; MALLOL, G. Reciclado de aguas residuales en la fabricación de baldosas cerámicas. *Bol. Soc. Esp. Ceram. Vidr.*, 39(1), 149-154, 2000.
- [4] MEZQUITA, A.; MONFORT, E.; VAQUER, E.; ARNAL, M.A.; TOLEDO, J. Optimización energética en la fabricación de baldosas cerámicas mediante el uso de aceite térmico. *Qualicer 2012: XI Congreso Mundial de la Calidad del Azulejo y del Pavimento Cerámico*. Castellón: Cámara Oficial de Comercio, Industria y Navegación.
- [5] MELCHIADES, F.G.; DAROS, M.T.; ZANELATTO, F.C.; BOSCHI, A.O. Porcelain tiles produced by the dry route. *Interceram*, 59 (1), 13-17, 2010.
- [6] SAMPAIO, V.G.; PINHEIRO, B.C.A.; HOLANDA, J.N.F. Dry granulation of a ceramic paste for porcelain stoneware tile. *Cerâmica*, 53, 295-299, 2007.
- [7] GIL, C.; SILVESTRE, D.; PIQUER, J.; GARCÍA-TEN, J.; QUEREDA, F.; VICENTE, M. J. Preparación de granulados de gres porcelánico mediante procesos más sostenibles Medioambientalmente. *Qualicer 2012: XI Congreso Mundial de la Calidad del Azulejo y del Pavimento Cerámico*. Castellón: Cámara Oficial de Comercio, Industria y Navegación.
- [8] AMORÓS ALBARO, J.L. Pastas cerámicas para pavimentos de monococción. Influencia de las variables del proceso sobre las propiedades de la pieza en crudo y sobre su comportamiento durante el prensado y la cocción. (Tesis Doctoral) Universidad de Valencia, Departamento de Ingeniería Química, 1987.