

doi 10.46943/VII.CONAPESC.2022.01.020

MEMBRANA DE BAIXO CUSTO (BRASGEL) UTILIZADA NA REMOÇÃO DE CORANTE: ESCALA PILOTO

ANTUSIA DOS SANTOS BARBOSA

Pesquisadora do Curso de Engenharia Química da Universidade Federal de Campina Grande – UFCG, antusiasb@hotmail.commailto:coautor1@email.com;

ANTONIELLY DOS SANTOS BARBOSA

Doutora do Curso de Engenharia Química da Universidade Federal de Campina Grande – UFCG, antoniellybarbosa@yahoo.com.br;

MEIRY GLAUCIA FREIRE RODRIGUES

Professora orientadora: Doutora, Unidade Acadêmica de Engenharia Química da Universidade Federal de Campina Grande - UFCG, meiry.freire@eq.ufcg.edu.br.

RESUMO

Uma atenção considerável tem sido dada aos efluentes compostos por água contaminada com corantes sintéticos, que são danosos à vida aquática. A crescente necessidade do desenvolvimento de processos de separação de corantes mais eficientes tem se voltado para o uso de membranas cerâmicas. Membranas podem ser definidas como uma película inorgânica que funcionam como uma barreira semipermeável para processos de filtração em escala molecular, separando duas fases e restringindo, total ou parcialmente, o transporte de uma ou várias espécies químicas (solutos) presentes na solução. A tecnologia de membrana é promissora em relação a outras tecnologias no tratamento de águas residuais devido à sua natureza ecologicamente correta, operabilidade com menor consumo de energia e alta eficiência de separação. Portanto, o objetivo deste trabalho é produzir membrana cerâmica de baixo custo utilizando argila Brasgel. A membrana cerâmica foi produzida em forma de disco, a partir da argila Brasgel natural de Boa-Vista, Paraíba, Brasil. Foi preparado pelo método de compactação uniaxial seca e sinterização a 650°C. A membrana foi caracterizada por DRX, FRX, porosidade e permeabilidade

à água pura e seu desempenho foi avaliado por testes de separação de corantes de um efluente sintético, utilizando um módulo de PVC com fluxo perpendicular. As condições de concentração inicial da solução foram de 50 mg/L, temperatura de 25 °C e pressão de 2,0 bar. Os resultados obtidos indicam que a argila brasgel apresenta todas as características correspondentes a esmectita, e a membrana de baixo custo apresentou elevada capacidade de rejeição. Sendo assim o processo de separação da membrana cerâmica de baixo custo em escala piloto com corante são promissores para o tratamento de efluentes.

Palavras-chave: Membrana cerâmica, Corantes textil, Escala piloto, Baixo custo.

INTRODUÇÃO

A superfície do globo terrestre é 70 % coberta pelas águas dos oceanos e mares e apenas uma proporção de 3 % representa as reservas de água doce que se distribuem nas geleiras, nas águas subterrâneas e uma pequena quantidade nos lagos e rios. Como resultado, a escassez de água potável e o tratamento de efluentes têm atraído muita atenção devido à sua importância na vida cotidiana e ao crescimento do uso em diversos campos industriais. Além disso, a reutilização de águas residuais tornou-se um desafio considerável, especialmente em países onde os recursos hídricos são limitados. A mudança acelerada da qualidade da água, devido à poluição industrial, é uma das principais preocupações ambientais em todo o mundo (BENKHAYA et al., 2020).

A indústria têxtil gera um grande volume de efluentes que contém uma variedade de agentes tóxicos como corantes sintéticos, agentes umectantes, tensoativos, etc. Seus efluentes estão crescendo cada vez mais, em termos de quantidade e grau de contaminação devido ao desenvolvimento e extensão dessas indústrias pelo mundo (YOUNSSI et al., 2018). Cabe apenas informar que a produção mundial anual de corantes é estimada em mais de dez mil toneladas e cerca de 15 % dessa quantidade é perdida durante a transformação industrial (KUMAR et al., 2015). Vários corantes sintéticos têm sido usados nas indústrias têxteis para tingir produtos têxteis.

Na maioria dos casos, uma enorme quantidade de águas residuais tem sido produzida e despejada diretamente no mar e nos rios sem tratamento suficiente para eliminar ou reduzir sua poluição (CHAARI et al., 2019). Portanto, a poluição da água afeta diretamente o meio ambiente e causa sérios problemas no ecossistema global (ZHOU et al., 2017; DEROUICH, et al., 2020).

A fim de proteger o meio ambiente, é estritamente exigido pelas legislações atuais controlar a qualidade das águas residuais coloridas antes de descartá-las no ecossistema aquático, mesmo que a concentração de corante seja inferior a 1,0 mg/L (SAJA et al., 2020). Portanto, há um imperativo urgente para estabelecer uma tecnologia eficaz e eficiente para o tratamento de água colorida.

Conforme relatado na literatura, existem diversas tecnologias para eliminar corantes de efluentes como coagulação/floculação (RIERA-TORRES et al., 2010), adsorção (DEROUICH et al., 2019), processo de oxidação avançada (LI et al., 2018) e digestão anaeróbica (MENEZES et al., 2019). Entretanto, essas tecnologias nem sempre são evidentes na remoção de corantes solúveis devido

à variação do efluente em termos de natureza e quantidade de corantes, bem como complexidade e volume do efluente. Portanto, é necessário considerar métodos adequados e eficazes para o tratamento de efluentes coloridos. Nesse sentido, a separação por membrana pode ser considerada uma técnica verde e eficiente, pois a separação é baseada principalmente no mecanismo de peneiramento, o que torna os processos por membrana relativamente mais adequados para a maioria dos efluentes industriais (CAO et al., 2020).

As tecnologias de membranas são conhecidas por serem ecologicamente corretas graças à sua relação custo-benefício, simplicidade de aplicação e alta eficiência energética (HUBADILLAH et al., 2018). As membranas cerâmicas são conhecidas por suas excelentes propriedades, como alta eficiência de separação, baixo consumo de energia, excelente estabilidade térmica, alta resistência à pressão, estabilidade química e durabilidade a longo prazo (VINOTH KUMAR et al., 2015; ELOMARI et al., 2022).

Geralmente, as membranas cerâmicas são fabricadas a partir de Titânia (TiO_2), sílica (SiO_2), alumina (Al_2O_3) e zircônia (ZrO_2). No entanto, essas matérias-primas são caras e requerem altas temperaturas de sinterização. Portanto, o custo das matérias-primas e a temperatura de sinterização devem ser minimizados para tornar as membranas cerâmicas economicamente viáveis. Pesquisas vem sendo realizadas na preparação de membranas cerâmicas com matérias-primas de baixo custo, mantendo suas vantagens. Além disso, as temperaturas de sinterização também podem ser reduzidas, ou seja, abaixo de $1500\text{ }^\circ\text{C}$, utilizando materiais cerâmicos de baixo custo (SANDHYA RANI E KUMAR et al., 2021).

Diversos trabalhos sobre preparação de membranas e aplicações tem sido desenvolvido no laboratório de Desenvolvimento de Novos Materiais (LABNOV).

Araújo (2010), Araújo, (2014), Araújo & Rodrigues (2012), Araújo et al., 2014, Araújo et al., 2010, Barbosa et al., 2019, Barbosa (2009), Barbosa (2013), Barbosa (2015), Barbosa et al., 2018, Barbosa et al., 2019, Barbosa et al., 2021, Barbosa et al., 2015, Barbosa et al., 2018 Barbosa et al., 2015, Barbosa et al., 2020, Santos (2014), Santos et al., (2014), Santos et al., (2015), Scheibler et al., (2015), Scheibler (2015), Silva(2017), Silva et al., (2015), Silva et al., (2015), Silva & Rodrigues (2015), Silva et al., (2021), Silva et al., (2021).

O presente estudo visa o desenvolvimento de membrana cerâmica de baixo custo em escala piloto utilizando argila Brasgel seguido de sinterização. A membrana cerâmica porosa foi feita de argila e 5 % em peso de amido como agente formador de poros através de métodos de prensagem uniaxial e sinterização. O efeito da temperatura de sinterização na característica da membrana

foi investigado. A membrana cerâmica preparada foi caracterizada usando técnicas para estudar sua permeabilidade. Por fim, a membrana cerâmica de baixo custo preparada foi aplicada para remoção do corante violeta cristal de solução aquosa a fim de avaliar seu desempenho em termos de permeabilidade e seletividade.

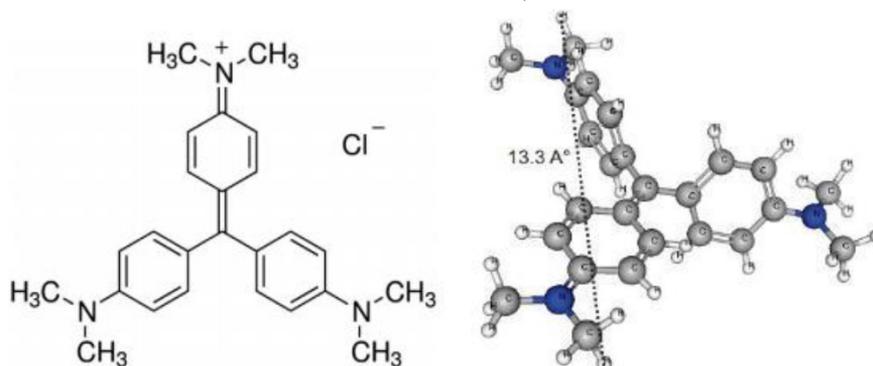
MATERIAIS E MÉTODOS

Os experimentos foram desenvolvidos no Laboratório de Desenvolvimento de Novos Materiais (LABNOV), localizado na Unidade Acadêmica de Engenharia Química, no Centro de Ciências e Tecnologia da Universidade Federal de Campina Grande (UAEQ/CCT/UFCG).

Materiais

As matérias-primas utilizadas neste trabalho são argila Brasgel (14,25 g) e 5 % em massa do aditivo (amido de milho). A argila foi fornecida pela empresa Bentonisa – Bentonita do Nordeste S.A., situada no município de Boa Vista, Paraíba, Brasil. A matéria-prima foi utilizada sem purificação adicional. A solução sintética foi preparada a partir do corante violeta cristal da marca Synth, possui fórmula química $C_{25}H_{30}ClN_3$ e massa molar de $408 \text{ g}\cdot\text{mol}^{-1}$, $\lambda = 582,5 \text{ nm}$, pureza de 99,0 %, apresentado na Figura 1.

Figura 1 - (a) Fórmula estrutural do corante Violeta Cristal (tamanho molecular de $13,3 \text{ \AA}$) e (b) forma espacial.



Fonte: Os autores (2022)

Preparação das Membranas

As matérias-primas (argila e aditivo), foram misturadas em um moinho de bolas por 1 hora. O pó resultante, apresentado na Figura 2, foi então peneirado usando uma peneira padrão de 200 mesh. Em seguida 20 g desta argila e colocada em um molde de aço inoxidável onde foi prensada em uma prensa mecânica aplicando uma pressão de 5 toneladas por 2 min dando origem a membrana cerâmica plana em forma de disco, apresentada na Figura 4. A membrana preparada apresentou as seguintes dimensões: 26 mm de diâmetro e 2,51 mm espessura.

Nesta etapa do processamento se efetua simultaneamente, a conformação e a compactação do pó da argila. Após as membranas prensadas, estas foram secas a 100 °C por 24 h para remoção completa de umidade solta, utilizando uma estufa. Em seguida, a membrana cerâmica Brasgel foi conduzida a mufla Quimis Q318M para realização da sinterização, última etapa do processo de obtenção da membrana cerâmica. A sinterização foi realizada em forno mufla a temperatura de 650 °C sob uma taxa de aquecimento de 5 °C.min⁻¹ durante 2 horas.

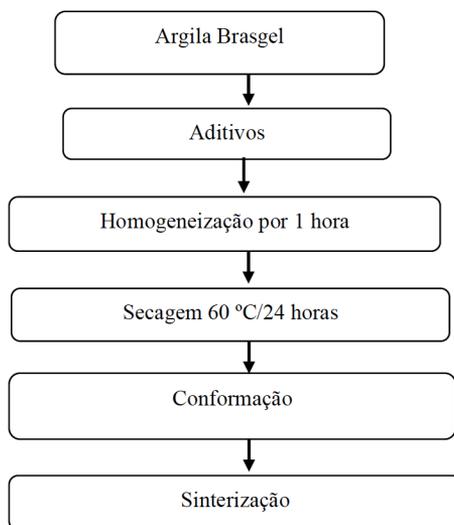
Figura 2 - Argila brasgel peneirada para produção da membrana cerâmica de baixo custo.



Fonte: Os autores (2022)

A metodologia descrita para a obtenção da membrana cerâmica Brasgel de baixo custo está apresentada na Figura 3.

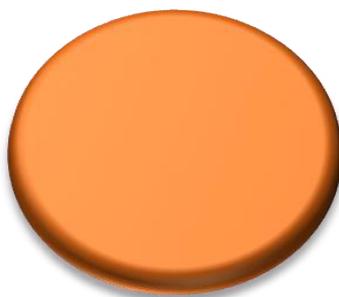
Figura 3 - Diagrama do processo de obtenção da membrana cerâmica baixo custo.
Argila Brasgel



Fonte: Os autores (2022)

As membranas cerâmicas de baixo custo Brasgel produzidas neste trabalho estão apresentadas na Figura 4.

Figura 4 - Membranas cerâmicas baixo custo Brasgel.



Fonte: Os autores (2022)

Caracterização

Difração de raio-X (DRX): Os padrões de difração do pó foram medidos em um equipamento da Shimadzu DRX 6000, com radiação de cobre K a 40

kV/30 mA, velocidade do goniômetro de 2 o/min com um passo de 0,02o sobre 2 faixa de 2° a 50°.

Porosidade: A determinação da porosidade aparente foi determinada pelo método de imersão, que é baseado no princípio de Arquimedes, utilizando água como fluido, conforme ASTM C 20 (2000). A determinação foi realizada com o auxílio de uma balança analítica. O ensaio foi realizado utilizando tréplicas para cada formulação. Após a obtenção da massa seca, imersa e úmida, dos corpos cerâmicos, foi possível calcular a porosidade aparente utilizando a Equação 1.

$$PA = \left(\frac{M_u - M_s}{M_u - M_i} \right) \times 100 \quad \text{Eq. 1}$$

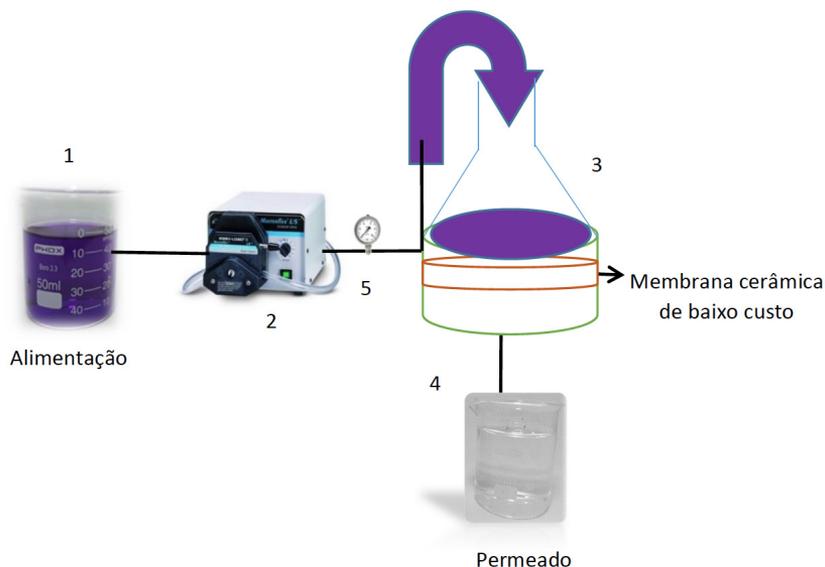
Remoção do corante violeta cristal utilizando o sistema de separação por membrana de baixo custo em escala piloto

O desempenho da membrana cerâmica no que se refere ao fluxo do permeado e fluxo de água pura foram analisados em um sistema de separação com fluxo contínuo (coluna), em escala piloto. O sistema de permeação/separação é apresentado, esquematicamente na Figura 5.

O sistema é constituído por um tanque de alimentação (Becker de 500 ml) (1), uma bomba peristáltica-Cole Parmer (bomba de alimentação) (2), um módulo de PVC (3), reservatório para o permeado (Erlenmeyer 125 ml) (4) e um manômetro (5). As condições utilizadas nos experimentos foram temperatura de 25°C e pressão de 2 bar.

Foi preparada uma solução a 1000 mgL⁻¹ do corante violeta cristal e denominou-se de solução mãe. Posteriormente a absorbância foi analisada em um aparelho espectrofotométrico para obtenção da curva de calibração. Em seguida, diluiu-se a solução mãe (1000 mg.L⁻¹) para uma concentração de 50 mg.L⁻¹.

Figura 5 - Sistema de permeação/separação utilizado para avaliação da permeabilidade e seletividade da membrana cerâmica baixo custo.



Fonte: Os autores (2022)

O volume do permeado produzido após a passagem da alimentação no módulo de permeação/separação (em regime frontal), durante 60 minutos, foi recolhido a cada 5 minutos em um becker e medido. O método adotado para medir a vazão do sistema de filtração foi manual, através da medida de um volume conhecido (proveta) a cada 5 minutos. As medidas de vazão volumétrica foi em (mL.min⁻¹), convertidas para (L.h⁻¹) e com área de permeação da membrana (m²), foi calculado o fluxo volumétrico em (Lm⁻².h⁻¹). As medidas de ΔP foi leitura direta do manômetro de pressão, em (bar), foi verificado a pressão transmembrana de 2,0 bar, para a membrana. A concentração de corante no permeado foi medida em um Espectrofotômetro de UV – Visível, com comprimento de onda de 582,5 nm, a fim de avaliar a concentração remanescente do corante violeta cristal após o processo de separação a 25 °C.

A percentagem de rejeição ao corante (%R), será obtida utilizando a equação 2:

$$\% \text{ Rem} \left(\frac{C_0 - C}{C_0} \right) \times 100 \quad \text{Eq. 2}$$

Em que: %R: Percentagem de rejeição (%); C₀: concentração inicial (mg.L⁻¹); C_f: concentração final (mg.L⁻¹).

O fluxo de permeado da membrana foi calculado utilizando a Equação 3. Através do volume coletado, do tempo da coleta e da área útil da membrana.

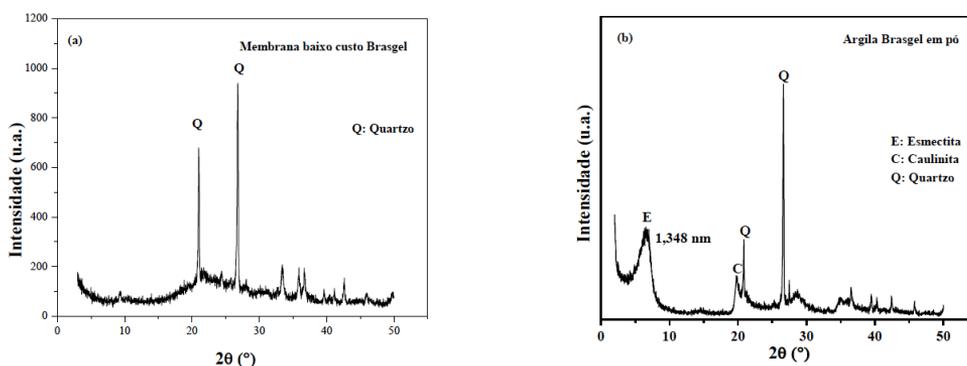
$$J=V/(A.\Delta t) \quad \text{Eq. 3}$$

Em que: J = Fluxo de água ($\text{m}^3.\text{m}^{-2}.\text{h}^{-1}$); V = Volume do permeado (m^3); A = Área da membrana (m^2); Δt = Tempo de permeação (horas).

RESULTADOS

Na Figura 6 está apresentado o difratograma da membrana cerâmica de baixo custo Brasgel (a) e da argila Brasgel em pó (b).

Figura 6 - Difratograma de raios X da membrana cerâmica de baixo custo Brasgel (a) e da Argila Brasgel em pó (b).



Fonte: Os autores (2022)

De acordo com difratograma de raios X apresentado na Figura 5 (b) é possível verificar que a argila brasgel possui o pico característico do argilomineral esmeclita, com um espaçamento basal $d(001)$ de 1,348 nm (EREN, 2008), além disso possui alguns picos característicos do material não-esmeclítico, tais como a caulinita e o quartzo (SOUZA-SANTOS, 1989; HAJJAJI et al., 2011; CUNHA et al., 2019).

Através do DRX apresentado na Figura 5 (b) verifica-se que os picos de caulinita e quartzo se mantiveram quando comparados com o difratograma da argila natural Figura 5 (a). Esses picos são referentes ao mineral não esmeclítico como o quartzo que se apresenta como impureza (WANG et al., 2004; GONZAGA et al.,

2007; RODRIGUES et al., 2010; XI et al., 2010; MOTA et al., 2012; MOTA et al., 2014). As intensidades dos picos são reduzidas devido ao processo de sinterização ao qual a membrana cerâmica foi submetida (tratamento térmico a 650 °C).

Na Tabela 1 estão expressos os resultados de porosidade para a membrana de baixo custo em escala piloto, juntamente com o resultado encontrado para a membrana de baixo custo em escala de bancada. Quanto a porosidade apresentada, quanto maior esse valor, menor será a resistência ao fluxo do material que passa através da membrana. Resultado semelhante foram apresentados por (SILVA et al., 2014). A porosidade da membrana depende, entre outros, do material, da granulometria do pó, da pressão aplicada no molde e da temperatura de sinterização.

Tabela 1 - Comparação entre as propriedades da membrana cerâmica preparada neste trabalho e os resultados relatados na literatura.

Membrana	T sinterização (C)	Porosidade (%)	Referência
Argila brasgel escala piloto	650 °C	42,51	Presente trabalho
Argila brasgel escala de bancada	650 °C	18,79	Silva et al., (2021)

Fonte: Os autores (2022)

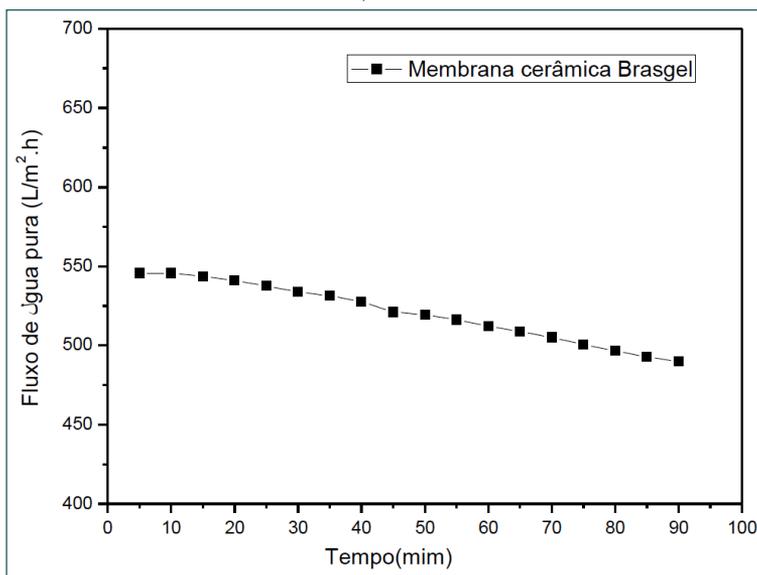
O Fluxo permeado de água pura em função do tempo para membrana cerâmica de baixo custo Brasgel é mostrado na Figura 7.

O maior valor do fluxo de água pura através da membrana cerâmica obtido neste trabalho foi de 545,67 L.m⁻².h⁻¹, que foi estabilizando ao longo do tempo até atingir o valor mínimo de 489,72 L.m⁻².h⁻¹. Comparando o maior fluxo obtido neste trabalho 545,67 L.m⁻².h⁻¹, com Silva et al (2021) que foi de 305,45 L.h⁻¹.m⁻², observa-se um valor superior. Essa diferença de valores pode ser atribuída à diferença entre o diâmetro dos poros e porosidade das membranas, uma vez que a membrana utilizada neste trabalho se trata de uma membrana em escala piloto, ou seja, maior área da membrana, proporcionando maior quantidade de sítios ativos e a membrana estudada por Silva et al., (2021), se trata de uma membrana em escala de bancada (CARMO et al., 2017).

A estabilidade destes fluxos ocorreu, provavelmente devido a uma compactação mecânica promovida pela pressão aplicada ou a um possível inchamento ocorrido nestas membranas, pois quando as mesmas entram em contato com a água, provoca uma diminuição gradativa dos poros, diminuindo assim a sua permeabilidade. Quando ocorre um decréscimo de fluxo da água destilada com

o tempo, este se deve ao adensamento da microestrutura da membrana, o qual é função do valor da pressão que foi submetida e das características estruturais desta membrana. Neste caso, foi utilizada uma membrana de argila Brasgel que é um material hidrofílico, facilitando a absorção de água, reduzindo o tamanho dos poros existente na superfície desta membrana, além de contribuir diretamente com a redução do fluxo do permeado obtido (CARVALHO et al., 2017).

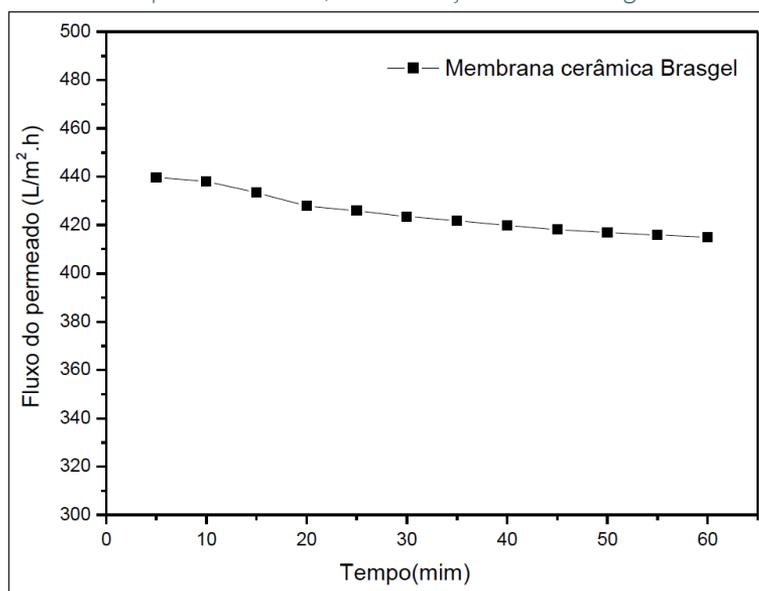
Figura 7 – Fluxo permeado de água pura em função do tempo para a membrana cerâmica de baixo custo Brasgel. Condições operacionais: P = 2,0 bar, Temperatura = 25 °C, tempo = 90 minutos.



Fonte: Os autores (2022)

Na Figura 8 observa-se o fluxo do permeado em função do tempo para a membrana cerâmica de baixo custo Brasgel.

Figura 8 – Fluxo do permeado em função do tempo para a membrana cerâmica de baixo custo Brasgel. Condições operacionais: P = 2,0 bar, Temperatura = 25 °C, tempo = 60 minutos, Concentração inicial: 50 mg.L⁻¹.



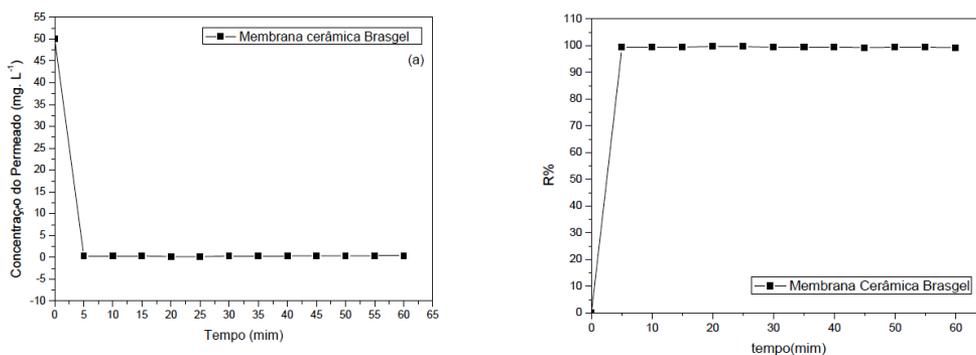
Fonte: Os autores (2022)

Foi verificado que a faixa de fluxo apresentada pela membrana cerâmica de baixo custo em função do tempo, foi de 439,66 L.h⁻¹.m⁻², observando uma discreta diminuição durante o tempo de operação, implicando que para um tempo de 1h não se verifica um entupimento total na superfície da membrana.

Os resultados indicaram que a passagem da solução de corante violeta cristal pela membrana promoveu uma redução de até 19% do fluxo, comparado com água pura. O maior declínio do fluxo para o sistema de filtração frontal, foi de 414,97 L.h⁻¹.m⁻², conforme esperado, já que o material retido impede a passagem de mais solução pela membrana, reduzindo a área efetiva para permeação (BRANDÃO e FIGUEIREDO, 2019). A maior contribuição para a redução do fluxo foi reversível, indicando que a polarização de concentração foi o principal fator que influenciou o sistema. Isso indica que a utilização da membrana para o tratamento de água contaminada com corante é bastante promissora, já que é possível reverter os efeitos causadores da queda de fluxo com o tempo (BELFORT et al., 1994). Logo, a capacidade de separação depende fundamentalmente da seletividade e da permeabilidade de da membrana, que são funções da distribuição e do tamanho médio dos poros e da espessura da camada de separação (LI et al., 2012 e SOUTO et al., 2005).

Na Figura 9 mostra a concentração do permeado e coeficiente de remoção do corante violeta cristal, %R da membrana cerâmica de baixo custo Brasgel.

Figura 9 – Concentração do permeado (a) e coeficiente de rejeição do corante violeta cristal, %R (b) da membrana cerâmica de baixo custo Brasgel. Condições operacionais: P = 2,0 bar, Temperatura = 25 °C, tempo = 60 minutos, Concentração inicial: 50 mg.L⁻¹.



Fonte: Os autores (2022)

Esses dados foram coletados utilizando o procedimento descrito na seção experimental e a eficiência do processo de separação da emulsão óleo/água utilizando uma membrana cerâmica de baixo custo Brasgel em escala piloto.

A membrana foi utilizada para o processo de separação de água contaminada com corante (50 mg.L⁻¹ teórico) observando-se uma rápida diminuição da concentração de corante. Portanto, há uma grande eficiência na remoção de corante para a membrana cerâmica.

A membrana cerâmica de baixo custo Brasgel em escala piloto, obtida neste trabalho atingiu permeado com concentração de 0,333 mg.L⁻¹, que é referente a uma remoção de (99,34 %), nos primeiros minutos de remoção. A mesma permaneceu praticamente constante durante todo tempo de processo de remoção. Quanto menor a concentração do permeado, mais eficiente é a separação.

Na Figura 10 mostra a solução inicial do corante violeta cristal utilizado na alimentação com concentração de 50 mg.L⁻¹ e o permeado coletado, após processo de separação por membrana em 5 mim de processo.

Figura 10 - Solução inicial do corante violeta cristal utilizado na alimentação com concentração de $50 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ e o permeado coletado, após processo de separação por membrana em 5 mim de processo.



Fonte: Os autores (2022)

Analisando a Figura 10 é possível observar que o desempenho da membrana cerâmica de baixo custo Brasgel foi bastante eficaz, mostrando-se como uma excelente alternativa na descontaminação de água contaminadas com corantes.

Após a permeação através da membrana a taxa de remoção da cor para a água contaminada com corante foi de 99 %. Estes resultados indicam que a água ficou dentro dos padrões recomendáveis pela legislação brasileira.

CONCLUSÃO

Foi preparada a membrana de baixo custo em escala piloto através do método da compactação a seco uniaxial e foi evidenciado a presença dos picos característicos esperados devido a composição do material e as suas condições de sinterização. Portanto é possível afirmar que membrana preparada a partir do uso de matéria-prima regional e sinterizada na temperatura de $650 \text{ }^\circ\text{C}$ é promissora para o processo de fabricação de membranas cerâmicas de baixo-custo em escala piloto.

Neste estudo, foi avaliada a remoção do corante violeta cristal, utilizando a membrana de baixo custo em escala piloto, e conclui-se que a membrana

apresenta a capacidade de remover o corante violeta cristal, evidenciando sua alta eficiência, com coeficiente de rejeição de 99,00 %. O presente estudo representa o desenvolvimento de estratégias para preparar membranas de baixo custo em escala piloto para aplicação atual na remoção de corantes, bem como futuras limpezas e regeneração das membranas.

AGRADECIMENTOS

Os autores agradecem todo o apoio do Laboratório de Desenvolvimento de Novos Materiais, fundamental para a elaboração deste trabalho e a CAPES (Coordenação do Aperfeiçoamento de Pessoal de Nível Superior) pelo auxílio financeiro.

REFERÊNCIAS

ARAÚJO, A. P. Avaliação da influência dos parâmetros de síntese na preparação de membranas zeolíticas Y/ α -alumina. Tese (Doutorado em Engenharia Química), Universidade Federal de Campina Grande, Campina Grande, Paraíba, 110p. 2014.

ARAÚJO, A. P. Síntese de membranas zeolíticas (Y/membrana cerâmica) visando sua aplicação na catálise. Dissertação (Mestrado em Engenharia Química), Universidade Federal de Campina Grande, Campina Grande, Paraíba, 80p, 2010.

ARAÚJO, A. P., SILVA, V. J., CRISPIM, A. C., MENEZES, R. R., & RODRIGUES, M. G. F. Synthesis of Zeolite Membrane (Y/ α -Alumina). Materials Science Forum, v. 660-661, p. 1058-1063, 2010.

ARAÚJO, A. P.; RODRIGUES, M. G. F. Síntesis de una membrana zeolítica de tipoy soportada en α -alúmina: efecto del tratamiento térmico sobre la estructura. Avances en ciencias e ingeniería, v. 3, p. 51-58, 2012.

ARAÚJO, A.P.; BRITO, A. L. F.; CUNHA, R. S. S.; RODRIGUES, M. G. F. Efeito de diferentes concentrações de sílica sobre a síntese da membrana zeolítica (Zeólita Y/ α -alumina), In Anais do CITEM - IX Ibero-American Congress on Membrane Science and Technology, 2014.

BARBOSA A.S., BARBOSA AS, RODRIGUES, M. G. F. Influence of the methodology on the formation of zeolite membranes MCM-22 for the oil/water emulsion separation. *Cerâmica*. V. 65, p. 531-540, 2019.

BARBOSA, A.S. Preparação de membranas zeolíticas (MCM-22/ α -alumina), em escala de laboratório, utilizando rubbing, dip-coating e transporte a vapor. Tese (Doutorado em Engenharia Química), Universidade Federal de Campina Grande, Campina Grande, Paraíba, 107p, 2013.

BARBOSA, A.S. Preparação de membranas zeolíticas (Y/gama-alumina) utilizando diferentes métodos e sua avaliação no processo de separação emulsão óleo/água. Tese (Doutorado em Engenharia Química), Universidade Federal de Campina Grande, Campina Grande, Paraíba, 158p, 2015.

BARBOSA, A.S. Síntese de membranas zeolíticas (MCM-22/membrana cerâmica), em escala de laboratório, utilizando o método de síntese hidrotérmica. Dissertação (Mestrado em Engenharia Química), Universidade Federal de Campina Grande, Campina Grande, Paraíba, 98p, 2009.

BARBOSA, A.S., BARBOSA, A.S.; BARBOSA, T. L. A.; RODRIGUES, M. G. F. Synthesis of zeolite membrane (NaY/alumina): Effect of precursor of ceramic support and its application in the process of oil–water separation. *Separation and Purification Technology*, v. 200, p. 141–154, 2018.

BARBOSA, A.S.; BARBOSA, A.S., RODRIGUES, M. G. F. Synthesis of MCM-22 zeolite membrane on a porous alumina support. *Materials Science Forum* v. 805, p. 272–278, 2015.

BARBOSA, A.S.; BARBOSA, A.S.; RODRIGUES, M. G. F. Synthesis of zeolite membrane (MCM-22/ α -alumina) and its application in the process of oilwater separation. *Desalination and Water Treatment*, v. 56, (13), 3665–3672, 2015.

BARBOSA, A.S.; BARBOSA, A.S.; RODRIGUES, M.G.F. Contaminants Removal in Wastewater Using Membrane Adsorbents Zeolite Y/Alpha-Alumina. *Materials Science Forum*, v. 912, p. 12-15 2018.

BARBOSA, A.S.; BARBOSA, A.S.; RODRIGUES, M.G.F. Study of the influence of the aluminum source (acetate or sulfate) on the synthesis of the ceramic membrane and applications of emulsion oil water: use and reuse. *Research, Society and Development*, v. 10, p. 75101321023, 2021.

BARBOSA, A.S.; BARBOSA, A.S.; RODRIGUES, M.G.F. Y-Type Zeolite Membranes: Synthesis by Secondary by Method and Application in Treatment of Oily Effluents. *Materials Science Forum*, v. 958, p. 23-28, 2019.

BARBOSA, T. L. A.; SILVA, F. M. N.; BARBOSA, A. S.; LIMA, E. G.; RODRIGUES, M. G. F. Synthesis and application of a composite NaA zeolite/gammaalumina membrane for oil-water separation process. *Cerâmica*, v. 66, p. 137-144, 2020.

BELFORT, G.; DAVIS, R. H.; ZYDNEY, A. L. "The behavior of suspensions and macromolecular solutions in crossflow microfiltration". **Journal of Membrane Science**, v. 96, n. 1-2, p. 1-58, 1994.

BENKHAYA, S.; M'RABET, S.; HSISSOU, R.; EL HARFI, A. Synthesis of new low-ost organic ultrafiltration membrane made from Polysulfone/Polyetherimide blends and its application for soluble azoic dyes removal. **Journal of Materials Research and Technology**, v. 9, n. 3, p. 4763-4772, 2020.

BRANDÃO, E. C. V.; FIGUEIREDO, K. C. DE S. Flux decline mechanisms in polyetherimide microfiltration membranes for clarification of synthetic produced water. **Revista Matéria**, v. 24, n.4, 2019

CAO, X. L.; YAN, Y.-N.; ZHOU, F.Y.; SUN, S. P. Tailoring nanofiltration membranes for effective removing dye intermediates in complex dye-wastewater. **Journal of Membrane Science**, v. 595, p. 117476, 2020.

CARMO, S. DO.; NETO, T. L. A.; OLIVEIRA, G. N.; CASTRO, V. D. DE.; FIGUEIREDO, K. C. DE. S. Treatment of oil produced water by means of microfiltration. **E - Xactal**, v. 10, n. 2, p. 95-106, 2017.

CARVALHO, T. C.; MEDEIROS, V. N.; LEITE, A. M. D.; ARAÚJO, E. M.; LIRA, H. L. Polyethersulfone/clay membranes and its water permeability. **Revista Matéria**, v.22, n.2, 2017.

CHAARI, I.; FAKHFAKH, E.; MEDHIOUB, M.; JAMOUSSE, F. Comparative study on adsorption of cationic and anionic dyes by smectite rich natural clays. *Journal of Molecular Structure*, v. 1179, p. 672–677, 2019.

CUNHA, R. S. S.; MOTA, J. D.; SILVA, F. M. N.; & RODRIGUES, M. G. F. Synthesis, characterization and evaluation of organophilic bofe clay for use in the removal of oil effluents. **Materials Science Forum**, v. 958 MSF, p. 17–22, 2019.

DEROUICH, G. ALAMI YOUNSSI, S. BENNAZHA, J. ACHIOU, B. OUAMMOU, M. EL HASSANI, I.-E. E. A. ALBIZANE, A. Adsorption study of cationic and anionic dyes onto Moroccan natural pozzolan. Application for removal of textile dyes from aqueous solutions. **Desalination Water and Treatment**, v. 145, p. 348–360, 2019.

DEROUICHA, G.; YOUNSSIA, S. A.; BENNAZHAA, J.; CODYB, J. A.; OUAMMOUA, M.; EL RHAZI, M. Development of low-cost polypyrrole/sintered pozzolan ultrafiltration membrane and its highly efficient performance for congo red dye removal. **Journal of Environmental Chemical Engineering**, v. 8, p. 103809, 2020.

ELOMARI, H.; ACHIOU, B.; BEQQOUR, D.; KHALESS, K.; BENIAZZA, R.; OUAMMOU, M.; AADDANE, A.; ALAMI YOUNSSI, S.; BENHIDA, R. Preparation and characterization of low-cost zirconia/clay membrane for removal of acid orange 74 dye. **Materials Today: Proceedings**, v. 51, p. 1948–1956, 2022.

GONZAGA, A. C.; SOUSA, B. V.; SANTANA, L. N. L.; NEVES, G. A.; & RODRIGUES, M. G. F. Study of the different methods in the preparation of Organoclays from the Bentonite with application in the petroleum Industry. **Brazilian Journal of Petroleum and Gas**, v. 1, n. 1, p. 16–25, 2007.

HAJJAJI, M.; KACIM, S.; ALAMI, A.; EL BOUADILI, A.; & EL MOUNTASSIR, M. Chemical and mineralogical characterization of a clay taken from the Moroccan Meseta and a study of the interaction between its fine fraction and methylene blue. **Applied Clay Science**, v. 20 n. 1–2, p. 1–12, 2011.

HUBADILLAH, S.K. OTHMAN, M.H.D. MATSUURA, T. ISMAIL, A.F. RAHMAN, M.A. HARUN, Z. JAAFAR, J. NOMURA, M. Fabrications and applications of low cost ceramic membrane from kaolin: a comprehensive review. **Ceramics International**, v. 44, n. 5, p. 4538–4560, 2018.

KUMAR, R.V.; GHOSHAL, A. K.; PUGAZHENTHI, G. Fabrication of zirconia composite membrane by in-situ hydrothermal technique and its application in separation of methyl orange. **Ecotoxicology and Environmental Safety**, v. 121, p. 73–79, 2015.

LAKSHMI SANDHYA RANI, S.; VINOTH KUMAR, R.. Insights on applications of low-cost ceramic membranes in wastewater treatment: A mini-review. **Case Studies in Chemical and Environmental Engineering**, v. 4, p. 100149, 2021.

LI, F.; YANG, Y.; FAN, Y.; XING, W.; WANG, Y. Modification of ceramic membranes for pore structure tailoring: The atomic layer deposition route. **Journal of Membrane Science**, v. 397–398, p. 17–23, 2012.

LI, Y.; LI, L.; CHEN, Z. X.; ZHANG, J.; GONG, L.; WANG, Y. X.; ZHAO, H. Q.; MU, Y. Carbonate-activated hydrogen peroxide oxidation process for azo dye decolorization: process, kinetics, and mechanisms. **Chemosphere**, v.192, p. 372–378, 2018.

MENEZES, O.; BRITO, R.; HALLWASS, F.; FLORÊNCIO, L.; KATO, M.T.; GAVAZZA, S. Coupling intermittent micro-aeration to anaerobic digestion improves tetra-azo dye Direct Black 22 treatment in sequencing batch reactors. **Chemical Engineering Research and Design**, V. 146, p. 369–378, 2019.

MOTA, M. F.; MACHADO, F.; & RODRIGUES, M. G. F. Influence of exchanged surfactant on the structure and adsorption properties of brazilian green mud clay. **Materials Science Forum**, v. 727–728, p. 1473–1478, 2012.

MOTA, M. F.; RODRIGUES, M. G. F., & MACHADO, F. Oil-water separation process with organoclays: A comparative analysis. **Applied Clay Science**, v. 99, p. 237–245 2014.

RIERA-TORRES, M.; GUTIÉRREZ-BOUZÁN, C.; CRESPI, M. Combination of coagulation–flocculation and nanofiltration techniques for dye removal and water reuse in textile effluent. **Desalination**, v. 252, p. 53–59, 2010.

RODRIGUES, M. G. F. Physical and catalytic characterization of smectites from Boa-Vista, Paraíba, Brazil. **Cerâmica**, v. 49, n. 311, p. 146–150, 2003.

RODRIGUES, S. C. G.; QUEIROZ, M. B.; PEREIRA, K. R. O.; RODRIGUES, M. G. F.; & VALENZUELA-DIAZ, F. R. Comparative study of organophilic clays to be used in the gas & petrol industry. **Materials Science Forum**, v. 660–661, p. 1037–1042, 2010.

SAJA, S.; BOUAZIZI, A.; ACHIOU, B.; OUADDARI, H.; KARIM, A.; OUAMMOU, M.; AADDANE, A.; BENNAZHA, J.; ALAMI YOUNSSI, S. Fabrication of low-cost ceramic ultrafiltration membrane made from bentonite clay and its application for soluble dyes removal. **Journal of the European Ceramic Society**, v. 40, p. 2453–2462, 2020.

SANTOS, E. R. F. Síntese das membranas inorgânicas (ZSM-5/gama-alumina, MCM-41/gama-alumina e composto MFI-MCM-41/gama-alumina) destinadas separação emulsão óleo/água. Dissertação (Mestrado em Engenharia Química), Universidade Federal de Campina Grande. Campina Grande, Paraíba, 127p, 2014.

SANTOS, E. R. F.; MOTA, M. F.; SOUSA, A. K. F.; SILVA, M. M.; RODRIGUES, M. G. F.; LAU, L. Y. Influência do tipo de semente na síntese da membrana zeolítica ZSM-5/ α -alumina, In Anais do CITEM - IX Ibero-American Congress on Membrane Science and Technology, 2014.

SANTOS, E. R. F.; SILVA, F. M. N.; BARBOSA, T. L. A.; RODRIGUES, M. G. F. Synthesis and characterization of zeolite membrane Composite MFI/MCM 41, In Anais do 12 International Conference on Catalysis in Membrane Reactors ICCMR12, 2015.

SANTOS, E. R. F.; SILVA, M. M.; RODRIGUES, M. G. F.; LAU, L. Y. Study of two methods in the preparation of zeolite membrane (ZSM-5/alfa-alumina): Rubbing and dip-coating, In Anais do CITEM - IX Ibero-American Congress on Membrane Science and Technology, 2014.

SCHEIBLER, J. R. Síntese de membranas zeolíticas (ZSM-5/g-alumina, ZSM-5/ α -alumina) por pore-plugging para permeação de N₂. Dissertação (Mestrado em Engenharia Química), Universidade Federal de Campina Grande. Campina Grande, Paraíba, 2015.

SCHEIBLER, J. R.; SANTOS, E. R. F.; BARBOSA, A. S.; RODRIGUES, M. G. F. Performance of zeolite membrane (ZSM-5/ γ -Alumina) in the oil/water separation process. *Desalination and Water Treatment*, v. 56, (13), p. 3561–3567, 2015.

SILVA, F. M. DO N.; LIMA, E. G.; DE ALMEIDA BARBOSA, T. L.; & RODRIGUES, M. G. F. Characterization and application of catalysts hard green clay and moo3/hard green clay in transesterification reaction of soybean oil. **Materials Science Forum**, v. 958 MSF, p. 29–34, 2019.

SILVA, F. M. N. Síntese de membranas zeolíticas (Mordenita/ α -alumina) utilizando os métodos de síntese hidrotérmica, dip-coating e transporte em fase vapor e avaliação na separação emulsão óleo/água. Tese (Doutorado em Engenharia Química), Universidade Federal de Campina Grande, Campina Grande Paraíba, p. 184, 2017.

SILVA, F. M. N., LIMA, E. G., BARBOSA, T. L. A., & RODRIGUES, M.G.F. Development of MOR Zeolite Membranes Supported on γ -alumina and α -alumina obtained from the decomposition of aluminum sulphate. In 13th International Conference on Catalysis in Membrane Reactors, 2017.

SILVA, F. M. N.; BARBOSA, T. L. A.; RODRIGUES, M. G. F. Synthesis and characterization of zeolite membrane MOR dip coating method. In 12th International Conference on Catalysis in Membrane Reactors, 2015.

SILVA, F. M. N.; RODRIGUES, M. G. F. Preparation and characterization of mordenite inorganic membrane for gas separation. In: Euromembrane, 2015.

SILVA, F.M.N., BEZERRA JUNIOR, A. C., BARBOSA, T. L. A., RODRIGUES, M. G. F. Single gas permeation in ZSM-5 zeolite membrane. In Euromembrane 2015.

SILVA, L. R. B.; BARBOSA, T. L. A.; RODRIGUES, M. G. F. Membrana zeolítica NaA: Preparação e aplicação para tratamento de emulsão óleo/água. In Anais do IV CONEPETRO E VI WEPETRO, 2021.

SILVA, L. R. B.; SILVA, F. A. DE. S.; BARBOSA, T. L. A.; RODRIGUES, M. G. F. Low cost ceramic membrane for treatment of oily effluents. **Research, Society and Development**, v. 10, n. 13, p. 253101321071, 2021.

SILVA, L. R. B.; SILVA, F. A. S.; BARBOSA, T.L.A.; RODRIGUES, M.G.F. Membrana cerâmica de baixo custo para tratamento de efluentes oleosos. *Research, Society and Development*, v. 10, p. 253101321071, 2021.

SILVA, M. C. DA.; LIRA, H. DE L.; FREITAS, N. L. DE. Asymmetric ceramic membrane based on clay for application in microfiltration process: influence of time of deposition. **Cerâmica**, v. 60, p. 436-442, 2014.

SOUTO, K. M.; SILVA, ADRIANA. A.; SILVA, A. A.; CARVALHO, L. H.; COSTA, A. C. F.M.; LIRA, H. L. Classificação de Membranas Cerâmicas e Poliméricas quanto à faixa de porosidade utilizando um sistema de separação óleo/água em escala de laboratório. **Revista Matéria**, v. 10, n. 3, p. 437– 446, 2005.

SOUZA-SANTOS, P. **Ciência e Tecnologia de Argilas**. v. 1, 1989.

VINOTH KUMAR, R.; KUMAR GHOSHAL, A.; PUGAZHENTHI, G. Elaboration of novel tubular ceramic membrane from inexpensive raw materials by extrusion method and its performance in microfiltration of synthetic oily wastewater treatment. **Journal of Membrane Science**, v. 490, p. 92–102, 2015.

WANG, C. C.; JUANG, L. C.; LEE, C. K.; HSU, T. C.; LEE, J. F.; & CHAO, H. P. Effects of exchanged surfactant cations on the pore structure and adsorption characteristics of montmorillonite. **Journal of Colloid and Interface Science**, v. 280, n. 1, p. 27–35, 2004.

XI, Y.; MALLAVARAPU, M.; & NAIDU, R. Preparation, characterization of surfactants modified clay minerals and nitrate adsorption. **Applied Clay Science**, v. 48, n.1–2, p. 92– 96, 2010.

YOUNSSI, S. A.; BREIDA, M.; ACHIOU, B. Alumina membranes for desalination and water treatment, in: M. Eyvaz, E. Yüksel (Eds.). **Desalination and Water Treatment**, InTech, 2018.

ZHOU, Z.; LIU, R. Fe₃O₄@polydopamine and derived Fe₃O₄@carbon core–shell nanoparticles: comparison in adsorption for cationic and anionic dyes. **Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects**, v. 522, p. 260–265, 2017.