

## Incorporação de resíduos de borracha em compósitos de matriz polimérica termorrígida

### Incorporation of rubber wastes into thermorigid polymeric matrix composites

Silva, A.S.<sup>1</sup>, Nacif, G.C.L.<sup>1</sup>, Panzera, T.H.<sup>1</sup>,  
Christoforo, A.L.<sup>1</sup>, Batista, F.B.<sup>1</sup>, Mano, V.<sup>2</sup>

<sup>1</sup> Centro de Inovação e Tecnologia em Compósitos – CITeC,  
Departamento de Engenharia Mecânica (DEMEC),  
Universidade Federal de São João del-Rei (UFSJ),  
Praça Frei Orlando no 170, Centro, São João Del-Rei – MG.  
e-mail: [alansousaengenharia@yahoo.com.br](mailto:alansousaengenharia@yahoo.com.br); [glauciolaun@yahoo.com.br](mailto:glauciolaun@yahoo.com.br)  
[panzera@ufsj.edu.br](mailto:panzera@ufsj.edu.br); [alchristoforo@ufsj.edu.br](mailto:alchristoforo@ufsj.edu.br); [fabianchini@ufsj.edu.br](mailto:fabianchini@ufsj.edu.br)

<sup>2</sup> Departamento de Ciências Naturais (DCNAT),  
Universidade Federal de São João del-Rei (UFSJ),  
Campus Dom Bosco, São João Del-Rei – MG  
e-mail: [mano@ufsj.edu.br](mailto:mano@ufsj.edu.br)

---

#### RESUMO

A dificuldade de degradação e armazenamento de rejeitos de pneus vem a cada ano intensificando os problemas ambientais, além da proliferação de insetos e roedores, tornando um resíduo danoso à saúde pública. Este trabalho tem como objetivo estudar o efeito da incorporação de resíduos de borracha de pneus nas propriedades físicas e mecânicas de compósitos de matriz polimérica termorrígida, visando à reutilização do resíduo industrial e a obtenção de produtos que atendam aos padrões e normas técnicas da indústria Brasileira. Um planejamento fatorial completo de experimentos do tipo  $2^2 3^1$  foi utilizado na análise dos resultados. Os fatores experimentais investigados neste trabalho foram: granulometria (30/50 e 100/200 US-Tyler), fração volumétrica (10, 25 e 50%) das partículas de borracha e adição de anidrido maléico (1,5%) como agente compatibilizante. As variáveis respostas investigadas neste experimento foram: densidade volumétrica, porosidade aparente e resistência à compressão. As partículas 100/00 US-Tyler promoveram maior densidade, aumentando a resistência mecânica dos compósitos. O aumento da fração de borracha reduz a densidade e a resistência mecânica, entretanto, o percentual de 25% exhibe propriedades aceitáveis em aplicações de engenharia. O anidrido maléico afetou as propriedades dos compósitos principalmente quando partículas de 30/50 US-Tyler e fração de 10 a 25% de borracha foram adicionadas.

**Palavras-chave:** compósito polimérico, resíduo de borracha, anidrido maléico.

---

#### ABSTRACT

The difficulty of degradation and storage of rejected tyres has led to increasing environmental problems, beyond the proliferation of insects which may transmit diseases becoming a harmful residue to the public health. This work investigates the physical and mechanical properties of polymeric composites based on tyre rubber wastes in order to achieve a sustainable material which is in accordance with international construction standards. A full factorial design of experiments of type  $2^2 3^1$  was used to analyze the results. The experimental factors investigated were: particle size (30/50 US-Tyler and 100/200 US-Tyler), volume fraction (10, 25 and 50%) of rubber particles and the addition of maleic anhydride (1.5%) as a compatibilizing agent. The investigated responses in this experiment were: bulk density, apparent porosity and compressive strength. The rubber particles of 100/200 US-Tyler provided the increase of density and strength of the composites. The increase of rubber fraction reduced the density and strength, however, the level of 25% of rubber exhibited acceptable properties for engineering applications. The maleic anhydride

affected the properties of the composites mainly when the rubber particle size is at 30/50 US-Tyler and rubber fractions at 10 and 25%.

**Keywords:** polymeric composite, rubber waste, maleic anhydride.

---

## 1. INTRODUÇÃO

Com o crescente número de veículos que entram em circulação todos os dias, o aumento na quantidade de sucata de pneus vem crescendo paralelamente. Dados estatísticos mostram que no Brasil são geradas 300 mil toneladas de sucata de borracha por ano, das quais apenas 10% são recicladas. Nos Estados Unidos, onde a população não chega a ser o dobro da brasileira, os níveis de sucata de borracha por ano são 10 vezes maiores, sendo apenas 5% recicladas [1]. A disposição final dos pneus representa um problema de difícil solução, pois são objetos que ocupam grande volume e que precisam ser armazenados em condições apropriadas. A dificuldade de degradação e armazenamento de rejeitos de pneus vem a cada ano intensificando os problemas ambientais, além da proliferação de insetos e roedores, tornando um resíduo danoso à saúde pública [2, 3].

Pesquisas científicas vêm sendo realizadas visando o desenvolvimento de novas tecnologias para reutilização de sucatas de pneus, seja em misturas de concreto e asfálticas [4, 5]; incineração dos pneus para a produção de vapor [5, 6] e reutilização da borracha do pneu em um número de produtos cerâmicos [6-7] e poliméricos [8-11].

O uso de partículas para preenchimento (filler) é uma técnica bastante utilizada para redução de custos e aumento da durabilidade e resistência em materiais poliméricos. A adição de resíduos de borracha, principalmente provenientes de sucatas de pneus, em polímeros termorrígidos ou termoplásticos tem sido o foco de pesquisas nesta área. A adesão entre dois materiais depende de forças físicas, mecânicas e químicas existentes entre eles. As forças mecânicas são provenientes da penetração de uma fase dentro dos poros abertos presentes na superfície da segunda fase. As forças químicas são provenientes de reações químicas que podem ocorrer na interface de sistemas heterogêneos [12]. Os polímeros termoplásticos não exibem a mesma viscosidade dos polímeros termorrígidos, dificultando a penetração da matriz nos poros das partículas, e por sua vez afetando as condições de interface.

Panzera et al. [8] incorporaram partículas de pneus triturados em compósitos de matriz fenólica avaliando as propriedades físico-mecânicas. Verificou-se que o aumento da fração de borracha de 10% para 50% implicou em uma redução percentual média da resistência à compressão de 260% e da densidade volumétrica de 9,6%, além do aumento percentual de 700% sobre a porosidade aparente. A variação do tamanho das partículas de borracha entre 20/30 e 50/80US-Tyler não exibiu efeito significativo sobre as propriedades mecânicas avaliadas, entretanto as partículas mais finas promoveram a redução da densidade volumétrica dos compósitos.

Saffar and Shojaei [9] investigaram a incorporação de 40% de partículas de borracha em uma matriz polimérica fenólica para uso em sistemas de frenagem para o aumento de atrito. As partículas de borracha aumentaram a eficiência de frenagem do mecanismo devido ao seu comportamento viscoelástico. Os valores de resistência à flexão variaram de 5 a 64 MPa dependendo do tipo de matriz utilizada.

Scaffaro et al. [10] estudaram formulações, caracterização e otimização do processamento de blendas de resíduos de polietileno e resíduos de borracha de pneus descartados, exibindo valores de resistência à tração entre 4 a 17MPa.

Malers et al. [11] investigaram a adição e o tamanho de partículas de borracha, provenientes de sucata de pneus, em compósitos de matriz de poliuretano, verificando o aumento do isolamento térmico e acústico.

O uso de resíduos de borracha em compósitos poliméricos de matriz termorrígida foi investigado neste trabalho a fim de promover a reciclagem das sucatas de pneus, evitando o comprometimento da interface matriz-partícula. Este trabalho investiga, através de uma metodologia estatística baseada no planejamento fatorial de experimentos, o efeito da adição de partículas de borracha em compósitos de matriz termorrígida

modificada e não modificada sobre a resistência mecânica à compressão, a densidade volumétrica e a porosidade aparente dos materiais elaborados.

## 2. MATERIAIS E MÉTODOS

Os compósitos particulados de matriz polimérica termorrígida são constituídos de uma fase matriz de resina epóxi (fornecedor: Resiqualy, São Paulo) “com e sem” adição de anidrido maléico e uma fase dispersa de partículas de borracha (fornecedor: Recauchutadora de Pneus Mantiqueira, São João Del Rei).

Dentre os fatores de maior relevância e possíveis de serem controlados, escolheram-se três, são eles: a faixa granulométrica da fase dispersa (30/50 US-Tyler e 100/200 US-Tyler), fração em massa da fase dispersa (10%, 25% e 50%) e fração em massa do anidrido maléico (1,5%) sobre o percentual de matriz. Os fatores mantidos constantes no experimento foram o tempo de mistura (~5 minutos), tempo de cura (7 dias), temperatura ambiente de fabricação (~22oC) e tipo de matriz (resina epóxi). A Tabela 1 exibe os fatores e níveis experimentais investigados neste trabalho, estabelecendo um planejamento fatorial do tipo 2<sup>2</sup>3<sup>1</sup> que fornece 12 combinações experimentais distintas.

**Tabela 1:** Condições experimentais advindas do planejamento fatorial completo.

CONDIÇÃO EXPERIMENTAL	FATORIAL COMPLETO: 2 <sup>2</sup> 3 <sup>1</sup> = 12		
	GRANULOMETRIA (US-Tyler)	FRAÇÃO DE BORRACHA (%)	ANIDRIDO MALÉICO (%)
C1	30/50	10	0
C2	30/50	10	1,5
C3	30/50	25	0
C4	30/50	25	1,5
C5	30/50	50	0
C6	30/50	50	1,5
C7	100/200	10	0
C8	100/200	10	1,5
C9	100/200	25	0
C10	100/200	25	1,5
C11	100/200	50	0
C12	100/200	50	1,5

As fases matriz (resina) e dispersa (borracha) foram misturadas manualmente por 5 minutos para garantir a homogeneidade do material. Posteriormente, vazou-se a mistura em moldes cilíndricos poliméricos com 16,8 mm de diâmetro e 33,3 mm de altura (ver Figura 1). Após o período de 7 dias de cura, os corpos de prova foram sacados e cortados, garantindo o paralelismo necessário para a realização do ensaio de compressão mecânica. O ensaio de compressão foi realizado com base nas recomendações da norma ASTM D 695 [13]. A resistência à compressão foi calculada dividindo-se o carregamento máximo pela área da seção transversal do corpo de prova, sendo expresso em megapascal (MPa). A determinação da densidade ( $\rho$ ) e da porosidade aparente (P) foi realizada com base no princípio de Arquimedes através das seguintes equações:

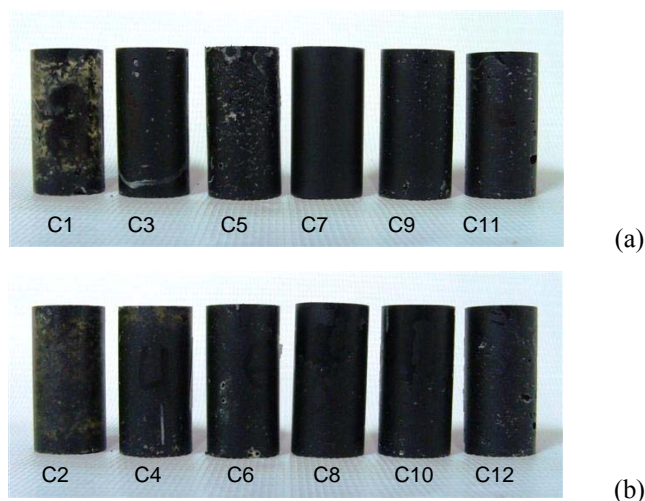
$$\rho = \frac{m_1}{m_1 - m_3}$$

$$P = \frac{m_2 - m_1}{m_2 - m_3} \times 100$$

Sendo:  $m_1$  - massa do corpo seco (g)

$m_2$  – massa do corpo saturado de água (g)

$m_3$  – massa do corpo saturado e submerso (g)



**Figura 1:** Corpos-de-prova: (a) sem anidrido, (b) com anidrido (réplica 1).

Quatro corpos-de-prova foram fabricados para cada condição experimental, adotando-se 2 réplicas. A réplica consiste na repetição da condição experimental, proporcionando a estimativa do erro experimental de uma resposta individual. A extensão desse erro é importante na decisão se existem ou não efeitos significativos que possam atribuir à ação dos fatores [14, 15]. O software estatístico Minitab versão 14 foi utilizado para o tratamento dos dados, sendo utilizada a ferramenta Design of Experiment (DOE) e a Análise de variância (ANOVA).

### 3. RESULTADOS

A Tabela 2 apresenta os resultados da Análise de Variância (ANOVA) para as médias das variáveis respostas investigadas. Os fatores relacionados a P-valor menor ou igual a 0,05 (95% de confiabilidade) são considerados significativos. O efeito principal de um fator deve ser interpretado individualmente apenas se não há evidência de que o fator não interage com outros [14, 15]. Portanto, os P-valores sublinhados na Tabela 2 serão aqueles analisados nos gráficos de efeitos principais e ou interações de fatores exibidos nas seções subseqüentes. Estes gráficos ilustram a análise estatística exibindo a variação dos efeitos significativos.

**Tabela 2:** Análise da variância (ANOVA).

ANOVA		P-VALOR ≤ 0,05		
	FATORES EXPERIMENTAIS	DENSIDADE VOLUMÉTRICA (g/cm <sup>3</sup> )	POROSIDADE APARENTE (%)	RESISTÊNCIA À COMPRESSÃO (MPA)
FATORES PRINCIPAIS	GRANULOMETRIA DA BORRACHA (G)	0,021	0,000	0,000
	FRAÇÃO DE BORRACHA (F)	0,000	0,000	0,000
	ADITIVO QUÍMICO (A)	0,000	0,013	0,000
INTERAÇÃO DE FATORES	G*F	0,070	0,000	0,078
	G*A	0,012	0,000	0,005
	F*A	0,058	0,250	0,002
	G*F*A	0,000	0,000	0,000
	R <sup>2</sup> (adj)	94,01%	97,25%	99,23%

Cabe ressaltar que o valor de R<sup>2</sup> exibido na ANOVA mede a proporção da variabilidade presente nas observações da variável resposta y, explicada pelas variáveis preditoras presentes na equação de regressão [14, 15]. Os valores de R<sup>2</sup> para as variáveis-respostas analisadas foram superiores a 90%, indicando ser

satisfatória a qualidade de ajuste dos modelos. O gráfico de probabilidade normal exibido na Figura 2 para a densidade volumétrica satisfaz as exigências de normalidade da análise de variância, exibindo uma distribuição homogênea dos pontos próximos à reta. Comportamento similar foi observado para as demais variáveis-respostas investigadas neste experimento, portanto estes gráficos não serão apresentados.

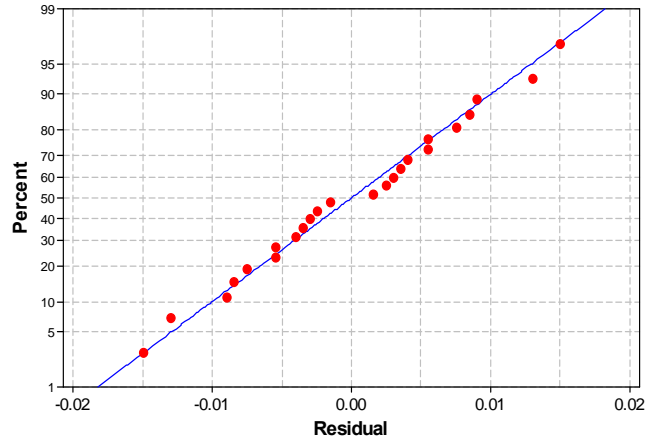


Figura 2: Gráfico de resíduos probabilidade normal para densidade volumétrica.

### 3.1 Densidade volumétrica

Os valores de densidade volumétrica dos compósitos variaram de 1,01 a 1,21g/cm<sup>3</sup>. A interação dos fatores granulometria de borracha, fração de borracha e aditivo químico exibiu um P-valor menor que 0,05, afetando significativamente esta variável-resposta. A Figura 3 exibe o gráfico de interação granulometria de borracha, fração de borracha e aditivo químico sobre a média da densidade volumétrica.

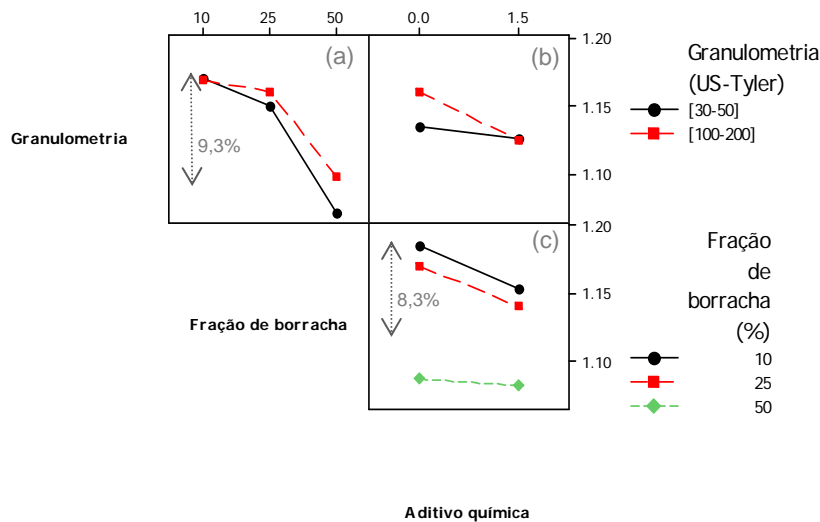


Figura 3: Gráfico de interação dos fatores granulometria de borracha, fração de borracha e aditivo químico sobre a densidade volumétrica.

Uma redução percentual média de 9,3% da densidade em função do aumento da fração de borracha entre as faixas granulométricas é apresentada na Figura 3a. Observa-se que o fator faixa granulométrica 100/200 US-Tyler de borracha apresenta uma densidade volumétrica superior à faixa de 30/50 US-Tyler. Isto pode ser atribuído ao efeito de empacotamento das partículas de borracha, ou seja, quanto menor o tamanho

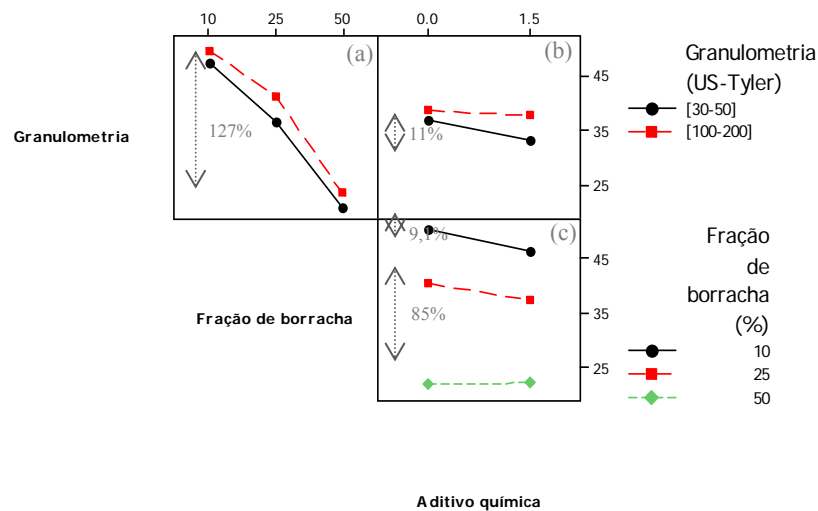
das partículas, maior o volume de matriz polimérica ( $1,18 \pm 0,01 \text{ g/cm}^3$ ) no compósito a qual exibe uma densidade superior à borracha ( $1,08 \pm 0,02 \text{ g/cm}^3$ ). Além disso, este resultado sugere que as partículas maiores promovem mais espaços vazios na zona de interface. Um comportamento similar foi observado por Panzera et al. [8] em compósitos de matriz fenólica reforçados com partículas de borracha entre as faixas granulométricas de 20/30 e 50/80 US-Tyler.

Verifica-se na Figura 3b que a adição do anidrido maléico promoveu a redução da densidade volumétrica dos compósitos, sendo este comportamento mais significativo para as partículas de borracha de tamanhos menores (100/200 USTyler). Isto indica que o aditivo químico alterou a reologia do sistema através da modificação química da matriz polimérica. Nota-se que o efeito do aditivo químico foi mais relevante quando um menor percentual de borracha é adicionado, ou seja, maior presença de fase polimérica.

A Figura 3c mostra a redução da densidade em função da adição do anidrido maléico em todas as frações de borracha, sendo que para a fração de 50% de borracha este efeito foi menos acentuado devido à menor quantidade de matriz polimérica. Nota-se também uma redução percentual significativa de 8,3% entre a fração de borracha de 25% e 50% em ambos os níveis de agente compatibilizante.

### 3.2 Porosidade aparente

Os valores de porosidade aparente dos compósitos variaram de 0,13% a 2,82%. O P-valor menor que 0,05 exibido na Tabela 2 revela uma interação significativa de terceira ordem ( $G^*F^*A$ ) sobre a porosidade aparente. A Figura 4 mostra os resultados obtidos da interação granulometria de borracha, fração de borracha e aditivo químico sobre a porosidade aparente.



**Figura 4:** Gráfico de interação dos fatores granulometria de borracha, fração de borracha e aditivo químico sobre a porosidade aparente.

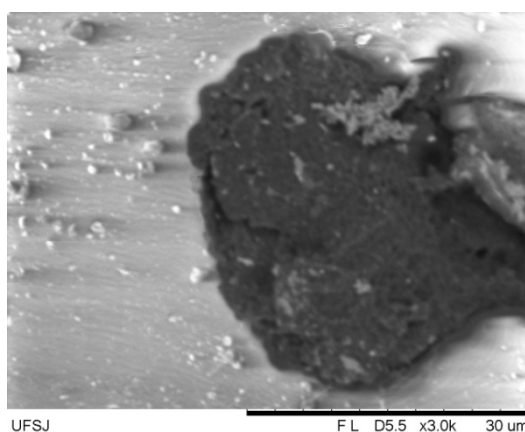
As partículas de borracha de tamanho 100/200 US-Tyler apresentaram maior densidade (ver Fig. 3a) e menor porosidade aparente (ver Fig. 4a), implicando em uma maior resistência mecânica dos compósitos (Fig. 5a) em todos os níveis de fração de borracha. Uma variação percentual média de 127% foi observada entre os níveis extremos (10 e 50%) de borracha adicionada (ver Fig. 5a). Resultados similares, entretanto inferiores, foram obtidos para compósitos fenólicos reforçados com borracha de granulometria 50/80 US-Tyler [8], entretanto não apresentando efeito de interação dos fatores.

O efeito da adição de anidrido maléico na resistência mecânica foi mais expressivo para os tamanhos de partículas de borracha 30-50 US-Tyler (Figura 5b), exibindo uma variação percentual de 11% e frações de borracha de 10 e 25% (Figura 5c), exibindo uma variação percentual de 9,1%. Além disso, observa-se uma

redução percentual de 85% da resistência mecânica em função do aumento da fração de borracha (Figura 5c). Este comportamento já era esperado, visto que a fase matriz apresenta uma maior resistência à compressão.

### 3.4 Análise Microestrutural

A Figura 6 exibe a imagem de microscopia eletrônica de varredura no modo de elétrons retroespalhados com ampliação de 3000x da interface matriz-partícula. A amostra analisada foi apenas cortada transversalmente utilizando uma máquina cortadeira de precisão, evitando o polimento, e assim a extração da partícula de borracha na matriz polimérica. Cabe ressaltar que diferentemente dos resultados reportados por Scaffaro et al. [10] e Carné [12] envolvendo resíduos de borracha e matriz termoplástica, a porosidade aparente dos compósitos investigados exibiu valores inferiores. Este comportamento pode ser atribuído à molhabilidade da matriz epóxi sobre as partículas de borracha, evitando a formação de poros na interface e por sua vez favorecendo uma boa adesão matriz-particulado. A ausência de microporos na interface matriz-partícula é fundamental para evitar fratura prematura do material, propagação de trincas e penetração de umidade. A absorção de umidade está diretamente relacionada com a durabilidade dos compósitos comprometendo a adesão entre a fase matriz e dispersa.



**Figura 6:** Imagem de microscopia eletrônica de varredura da interface matriz-partícula.

## 4. CONCLUSÕES

As principais conclusões do trabalho são:

(i) As partículas de borracha de tamanho 100/200 US-Tyler apresentaram maior densidade e menor porosidade aparente, alcançando maior resistência mecânica.

(ii) Os efeitos da adição de anidrido maléico na densidade volumétrica e resistência mecânica foram mais significativos para os tamanhos de partículas de borracha 30-50 US-Tyler e frações de borracha de 10 e 25%. Por outro lado, o anidrido maléico reduziu a porosidade aparente dos compósitos, principalmente aqueles constituídos com 50% de fração de borracha.

(iii) A condição de interface matriz polimérica/partícula de borracha mostrou-se satisfatória, com ausência de micro poros.

(iv) O aumento da fração de borracha promoveu a diminuição da densidade volumétrica e da resistência à compressão dos compósitos.

Os compósitos C9 e C10 fabricados com 25% de fração de borracha de tamanho 100-200US-Tyler exibiram propriedades promissoras para aplicações em engenharia, proporcionando um significativo percentual de reaproveitamento de resíduos de borracha.

## 5. AGRADECIMENTOS

Os autores gostariam de agradecer à FAPEMIG pela concessão de bolsa de iniciação científica PIBIC/2010.

## 6. BIBLIOGRAFIA

- [1] FROZZA, A.A., CASAROTTO FILHO, N. Uma proposta de rede relacional de empresas: cooperativa de abastecimento para uma usina de reciclagem de borracha, Universidade Federal de Santa Catarina, 2003. [http://www.abepro.org.br/biblioteca/ENEGEPI1999\\_A0042.pdf](http://www.abepro.org.br/biblioteca/ENEGEPI1999_A0042.pdf) , Acessado em outubro de 2010.
- [2] EPPS, J.A., NCHRP Synthesis of Highway Practice 108: Uses of Recycled Rubber Tires in Highways. TRB, National Research Council, Washington, D.C., pp. 162, 1994.
- [3] BERTOLLO, S.M., FERNANDES, J.L., SCHALCH, V., “Benefícios da incorporação de borracha de pneus em pavimentos asfálticos”, In: XVII Congresso Interamericano de Engenharia Sanitária e Ambiental, Cancún, México, 2002, <http://www.bvsde.paho.org/bvsaidis/mexico26/iv-003.pdf> . Acessado em julho de 2010.
- [4] BENAZZOUK, A., DOUZANE, O., MEZREB, K., *et al.*, “Physico-mechanical properties of aerated cement composites containing shredded rubber waste”, *Cement & Concrete Composites*, v. 28, pp. 650–657, 2006.
- [5] CHOU, L.H., LU, C.K., CHANG, J.R., *et al.*, “Use of waste rubber as concrete additive”, *Waste Management Research*, v. 25; pp. 68-76, 2007.
- [6] BENAZZOUK, A., DOUZANE, O., MEZREB, K., *et al.*, “Thermal conductivity of cement composites containing rubber waste particles: Experimental study and modelling”, *Construction and Building Materials*, v. 22, pp. 573–579, 2008.
- [7] PANZERA, T.H., STRECKER, K, ASSIS, M.A.O., *et al.*, “Recycling of rubber waste into cementitious composites”, In: 11th International Conference on Non-conventional Materials and Technologies - Nocmat, 2009, Bath - UK.
- [8] PANZERA, T.H., STRECKER, K, SABARIZ, A.L.R., *et al.*, “Investigation of the incorporation of rubber wastes in polymeric composites using full factorial design” In: 11th International Conference on Non-conventional Materials and Technologies - Nocmat, 2009, Bath - UK.
- [9] SAFFAR, A., SHOJAEI, A., “Effect of rubber component on the performance of brake friction materials”, *Wear*, v. 274– 275, pp. 286– 297, 2012.
- [10] SCAFFARO, R., DINTCHEVA, T.N., NOCILLA, M.A., *et al.*, “Formulation, characterization and optimization of the processing condition of blends of recycled polyethylene and ground tyre rubber: Mechanical and rheological analysis”, *Polymer Degradation Stability*, v. 90, n.2, pp. 281-287, 2005.
- [11] MALERS, L., PLESUMA, R., LOCMELE, L., “A composite material based on recycled tires”, *Mechanics of Composite Materials*, v. 45, pp. 105-108, 2009.
- [12] CARNÉ, P.C., *Study of compatibilization methods for High Density Polyethylene and Ground Tyre Rubber: Exploring new routes to recycle scrap tyres*, D.Sc., Polytechnical University of Catalonia, Chemical Engineering Department, Barcelona, 2009.
- [13] ASTM D 695: Standard Test Method for Compressive Properties of Rigid Plastics, 2007.
- [14] MONTGOMERY, D.C., *Introduction to statistical quality control*, USA, John Wiley & Sons, 1997.
- [15] WERKEMA, M.C.C., AGUIAR, S., Planejamento e análise de experimentos: como identificar e avaliar as principais variáveis influentes em um processo, Fundação Christiano Ottoni, Escola de Engenharia da UFMG, Belo Horizonte, 1996.