



## **AVALIAÇÃO DA ADESÃO INTERFACIAL PROMOVIDA POR FILME TERMOCOLANTE DE EVA EM LAMINADO DE PEAD/GRAFENO E TECIDO DE ARAMIDA**

**Vagner Grison<sup>1\*</sup>, Daiane Romanzini<sup>2</sup>, Ademir J. Zattera<sup>1</sup>, Diego Piazza<sup>1</sup>**

*1 - Área do Conhecimento de Ciências Exatas e Engenharias, Universidade de Caxias do Sul (UCS),  
Rua Francisco Getúlio Vargas, 1130, Caxias do Sul, CEP 95070-560, RS. [vgrison2@ucs.br](mailto:vgrison2@ucs.br)*

*2 - Instituto Federal de Educação Ciência e Tecnologia do Rio Grande do Sul, Feliz, RS.*

### **RESUMO**

*Dentre os desafios relacionados com a produção de materiais compósitos, se destacam o controle das propriedades mecânicas e os custos de produção. A termoprensagem é uma técnica muito popular, pois permite a obtenção em larga escala de compósitos híbridos formados por camadas sobrepostas para obtenção de laminados. Parâmetros como tempo, temperatura e pressão, são as principais variáveis do processo. Além disso, as propriedades do laminado são influenciadas pelas características individuais e pela compatibilidade dos materiais que o compõem, sendo função da matriz promover a transferência de carga na interface matriz-fibra. Neste trabalho, foi avaliada a contribuição de filme termocolante de etileno acetato de vinila (EVA) na adesão interfacial de compósito laminado de polietileno de alta densidade/grafeno (PEAD/GR) e tecido de aramida (ARA). Ensaios de calorimetria exploratória diferencial identificaram a temperatura de fusão do filme termocolante (73 °C) e do nanocompósito (131 °C). As amostras foram separadas em dois grupos: o Grupo 1, contendo o filme de EVA foi processado nas temperaturas de 100 °C e 120 °C sob pressões de 0,5, 1,0 e 1,5 MPa. O Grupo 2, sem filme de EVA foi processado nas temperaturas de 150 °C e 180 °C sob pressão de 1,5 MPa. Cinco corpos de prova de cada amostra foram ensaiados com base nas normas ABNT NBR 10456:2020 e ASTM D2724, para obtenção das forças de resistência da colagem promovida entre os filmes poliméricos e o tecido de aramida. Com isso, foi possível observar que temperatura e pressão têm pouco efeito sobre os resultados, mas a incorporação de filmes termocolantes de EVA intermediários às camadas de PEAD/GR e tecido de aramida promovem melhoria significativa na adesão interfacial dos laminados que serão produzidos e submetidos a ensaio balístico na próxima etapa desse trabalho.*

**Palavras-chave:** *Termoprensagem, PEAD/grafeno/aramida, filme termocolante de EVA, adesão interfacial.*

### **INTRODUÇÃO**

Os compósitos poliméricos laminados têm sido utilizados com sucesso em barreiras balísticas aplicadas em equipamentos de proteção individual<sup>(1)</sup>. A termoprensagem é um processo de densificação que combina pressão e temperatura para produzir compósitos laminados com distribuição homogênea de camadas e seção transversal compacta<sup>(2,3)</sup>. Nanocompósitos híbridos obtidos a partir da laminação de filmes de polietileno de alta densidade/grafeno (PEAD/GR) e

tecido de aramida apresentam alto desempenho balístico, sendo uma opção para aumentar o nível de proteção ou reduzir a massa de blindagens<sup>(4-6)</sup>.

A delaminação é um mecanismo de falha crítico pois as fibras dispostas ao longo do plano não estruturam o laminado através da sua espessura e portanto, o compósito depende da baixa resistência relativa da matriz para suportar as cargas transversais<sup>(7)</sup>. Assim, a compatibilidade entre a matriz e as fibras, promovendo a adequada adesão entre os materiais é essencial no processo de distribuição das cargas<sup>(3)</sup>. Um método de união entre substratos termoplásticos aplicados em laminados é a adesão por fusão. Este processo requer temperaturas superiores à fusão dos materiais e compressão para promover a consolidação na interface entre as camadas do compósito<sup>(8)</sup>. Neste sentido, a incorporação de filmes termocolantes visa a redução do ciclo de processo e economia de energia por requerer de forma geral, menos tempo, temperatura e pressão<sup>(8)</sup>. Além disso, temperaturas de processo estabelecidas abaixo da temperatura de fusão dos filmes poliméricos nanoestruturados acabam preservando a dispersão das nanopartículas e consequentemente as suas propriedades mecânicas. Estudos anteriores foram desenvolvidos para aumentar a adesão interfacial sob cargas estáticas de compósitos híbridos aplicando resinas *hotmelt* reativas como promotoras de adesão<sup>(8-10)</sup>.

Neste trabalho será avaliada a adesão interfacial promovida por filme termocolante de EVA intercalado entre cada lâmina de filme de PEAD/GR e tecido de aramida em processo de termoprensagem, por meio de teste de resistência normalizado, para identificar os efeitos de temperatura e pressão.

## MATERIAIS E MÉTODOS

### Materiais

Polietileno de alta densidade (PEAD) BF4810, com  $0,948 \text{ g.cm}^{-3}$  de massa específica, foi adquirido da empresa Braskem (Rio de Janeiro, Brasil). Nanoplaquetas de grafeno (GR) com espessura entre 6-8 nm e 25  $\mu\text{m}$  de largura, foi comprada da Strem Chemicals (Newburyport, EUA). Filme termocolante de etileno acetato de vinila (EVA) Elastomelt 55, com 50  $\mu\text{m}$  de espessura, foi obtido do grupo Elastosul Filmes (Sapucaia do Sul, Brasil). Tecido de aramida (ARA) K129, com  $400 \text{ g.m}^{-2}$  de densidade por área, da empresa Barrday Advanced Materials Solutions (Cambridge, EUA) foi cedido pelo Centro Tecnológico do Exército (CTEx).

### Métodos

Nanoplaquetas de grafeno, com teor em massa de 1,5%, foram incorporadas em estado fundido na matriz de PEAD em extrusora de rosca dupla operando a 200 rpm e com perfil de temperatura de 125 °C até 145 °C para obtenção do polímero nanoestruturado (PEAD/GR). A obtenção dos filmes de PEAD/GR, com espessura de 70  $\mu\text{m}$  se deu em extrusora de rosca simples operando a 60 rpm e com perfil de temperatura de 175 °C até 200 °C.

Ensaio de calorimetria exploratória diferencial foram conduzidos em equipamento Shimadzu DSC-60 para determinar a temperatura de fusão ( $T_m$ ) dos filmes de PEAD/GR e EVA. Amostras circulares de 50 mm de diâmetros foram submetidas a duas corridas de aquecimento de 23 °C até 200 °C, sob taxas de aquecimento e resfriamento de  $10 \text{ °C.min}^{-1}$  em atmosfera de nitrogênio com fluxo de  $50 \text{ mL.min}^{-1}$ .

A investigação referente à adesão interfacial foi conduzida para dois grupos de amostras: o primeiro com filme termocolante de EVA e o segundo, sem. Uma sequência de empilhamento intercalado dos filmes (70 x 200 mm<sup>2</sup>) e do tecido de aramida (100 x 200 mm<sup>2</sup>) foi utilizada para obtenção de uma camada de material laminado conforme mostra o esquema da Figura 1.

Seis amostras com 30 x 100 mm<sup>2</sup> foram obtidas após o processo de termoprensagem, cujo tempo de processo ficou estabelecido em 3 min.

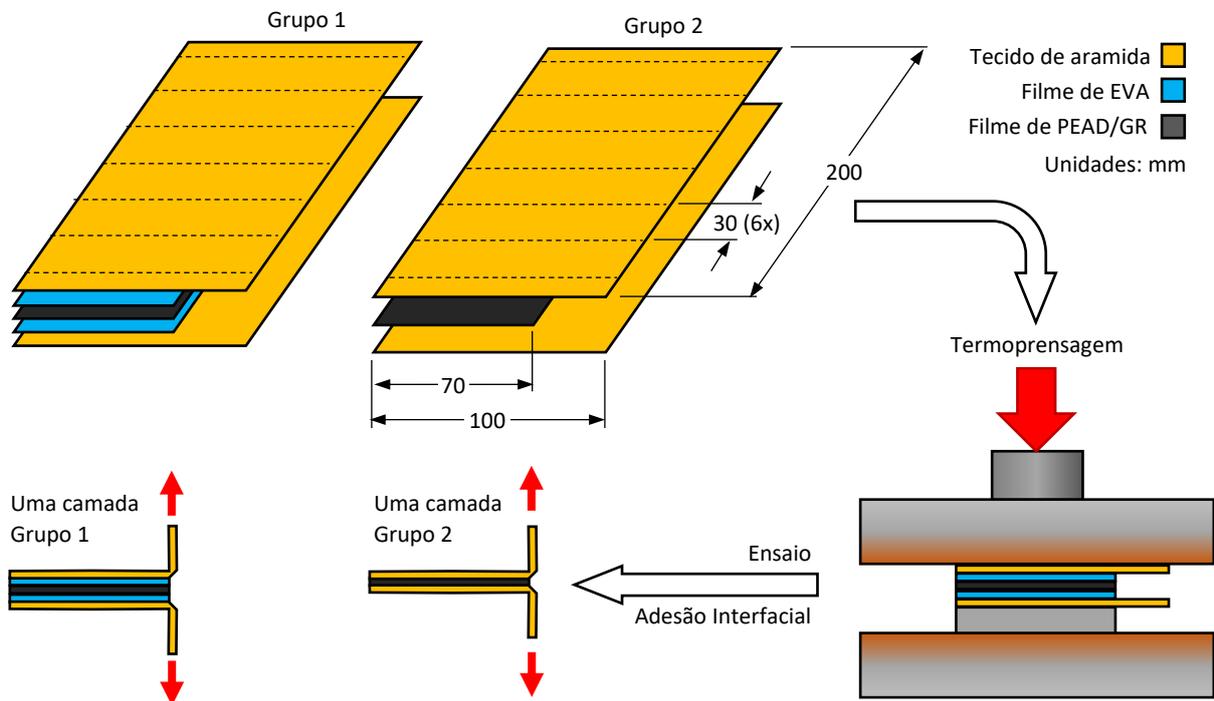


Figura 1: Esquema do processo de obtenção das amostras e ensaio de adesão interfacial.

As pressões e temperaturas adotadas no processo de termoprensagem para os dois grupos de amostras estão indicadas na Tabela 1. O ensaio para medir a adesão interfacial das amostras foi realizado em máquina de ensaio universal com célula de carga de 2,0 kN à velocidade de 100 mm.min<sup>-1</sup>, de acordo com as normas ABNT NBR 10456 e ASTM D2724. O resultado do ensaio é obtido fazendo a média aritmética dos picos e vales das forças medidas, dividido pela largura do corpo de prova.

Tabela 1: Parâmetros de pressão e temperatura adotados no processo de termoprensagem.

Parâmetros de Processo	Grupo 1 (EVA)						Grupo 2 (PEAD/GR)	
	0,5	1,0	1,5	0,5	1,0	1,5	1,5	1,5
Pressão (MPa)	0,5	1,0	1,5	0,5	1,0	1,5	1,5	1,5
Temperatura (°C)	100	100	100	120	120	120	150	180

## RESULTADOS E DISCUSSÃO

As temperaturas de fusão dos filmes de PEAD/GR e de EVA foram identificadas no ensaio de calorimetria exploratória diferencial e serviram de referência para estabelecer as temperaturas dos processos de termoprensagem. Dois níveis de temperatura foram adotados para cada grupo de amostras. O Grupo 1 foi submetido às temperaturas de 100 °C e 120 °C, enquanto o Grupo 2, às temperaturas de 150 °C e 180 °C, conforme mostra a Figura 2.

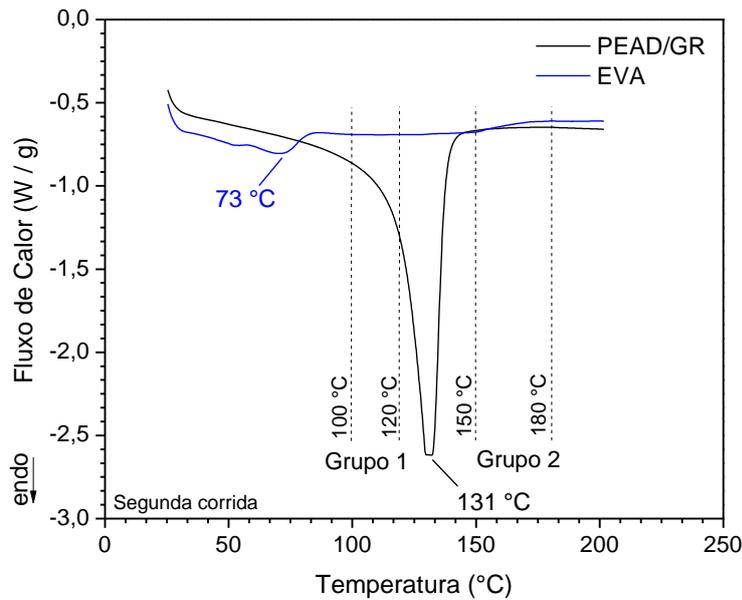


Figura 2: Temperaturas de processo definidas com base nos resultados do ensaio DSC.

A Figura 3 mostra os resultados do ensaio de adesão interfacial<sup>(normas)</sup> das amostras do Grupo 1, que conta com o filme termocolante de EVA. Observa-se que os diferentes níveis de pressão adotados no processo de laminação não tiveram efeito sobre as forças medidas da união. A resistência média das amostras laminadas à 100 °C vale 0,59 N.mm<sup>-1</sup> enquanto das amostras laminadas à 120 °C chega a 0,65 N.mm<sup>-1</sup>, sendo 10% maior. Entretanto, esse aumento de resistência não é significativo devido ao nível de variância dos resultados.

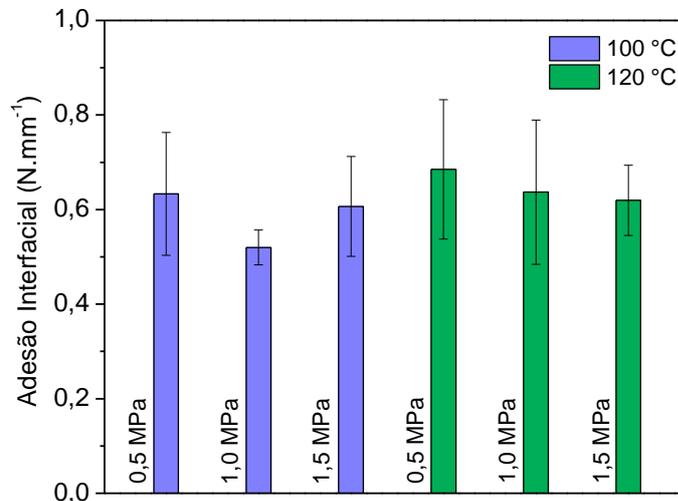


Figura 3: Resultados do ensaio de adesão interfacial para as amostras do Grupo 1.

A Figura 4 mostra os resultados das forças médias de resistência à adesão interfacial obtidas com as amostras do Grupo 1 e do Grupo 2 produzidas por laminação à 1,5 MPa de compressão. A resistência média das amostras produzidas à temperatura de 180 °C vale 0,45 N.mm<sup>-1</sup>, sendo 20% maior que a resistência média das amostras obtidas à 150 °C, mas ainda assim, sem significância estatística devido ao nível de variância dos resultados.

Por outro lado, a comparação feita entre os valores médios de resistência do Grupo 1 em relação ao Grupo 2 mostra haver significância com intervalo de confiança de até 99%, de acordo com o teste de Tuckey. Neste caso, a incorporação do filme termocolante de EVA foi responsável por um aumento de 50% das forças de resistência medidas.

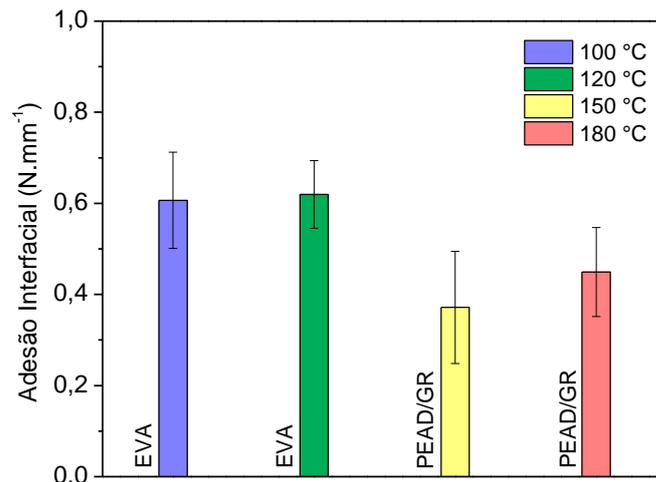


Figura 4: Resultados do ensaio de adesão interfacial das amostras laminadas à pressão de 1,5 MPa.

## CONCLUSÕES

Através deste estudo foi possível observar um aumento significativo da força de resistência à adesão interfacial, da ordem de 50%, mediante a incorporação de filme termocolante de EVA intercalado às camadas de tecido de aramida e filme de polietileno de alta densidade/grafeno em processo de termoformagem. Por outro lado, as pressões nas faixas entre 0,5 MPa e 1,5 MPa adotadas no processo de obtenção das amostras não promoveram variação significativa nos resultados do ensaio mecânico. As temperaturas de processamento adotadas neste estudo foram definidas a partir de ensaio de calorimetria exploratória diferencial, onde as temperaturas de fusão dos filmes termocolantes de EVA e PEAD/GR foram obtidas. Embora o aumento da temperatura de processo tenha apresentado uma tendência e promovido elevação de até 20% na resistência à adesão interfacial, os níveis de variância dos resultados obtidos experimentalmente indicaram que os ganhos não são significativos. Sendo assim, pode-se concluir que a aplicação de filmes termocolantes de EVA no processo de laminação por termoprensagem de tecido de aramida e filmes de PEAD/GR aumenta a adesão matriz-fibra dando ainda certa liberdade operacional em termos de pressão e temperatura, dentro das faixas estudadas.

## AGRADECIMENTOS

Os autores agradecem a CAPES pelo suporte financeiro dado a esse trabalho, ao apoio do Centro Tecnológico do Exército e do Instituto Federal de Educação, Ciência e Tecnologia do Rio Grande do Sul (IFRS).

## REFERÊNCIAS

1. RUBIO, I.; RODRÍGUEZ-MILLÁN, M.; MARCO, M.; OLMEDO, A.; LOYA, J.A. Ballistic performance of aramida composite combat helmet for protection against small projectiles. *Composite Structures*, v. 226, n. 111153, p. 1-14, 2019.
2. PUTTEGOWDA, M.; GIRIJAPPA, Y. G. T.; RANGAPPA, S. M.; SIENGCHIN, S.; PARAMESWARANPILLAI, J. Effect of process engineering on the performance of hybrid fiber composites. In: *Hybrid Fiber Composites: materials, manufacturing, process engineering*. Wiley-VCH, p. 17-40, 2020.
3. DIAS, R.R.; LAVORATTI, A.; PIAZZA, D.; DA SILVA, C.R.; ZATTERA, A.J.; LAGO, R.M.; PATRÍCIO, P.S.O.; PEREIRA, I.M. Effect of molecular structures on static and dynamic compression properties of clay and amphiphilic clay/carbon nanofibers used as fillers in UHMWPE/composites for high-energy-impact loading. *J. of App. Pol. Sc.*, n. 47094, p. 1-14, 2018.

4. BIZAO, R. A.; MACHADO, L. D.; DE SOUZA, J. M.; PUGNO, N. M.; GALVAO, D. S. Scale effects on the ballistic penetration of graphene sheets. *Scientific Reports*, v. 8(1), p. 1-8, 2018.
5. GALPAYA, D.; WANG, M.; LIU, M.; MOTTA, N.; WACLAWIK, E. R.; YAN, C. Recent advances in fabrication and characterization of graphene-polymer nanocomposites. *Graphene*, v. 1, n. 2, p. 30-49, 2012.
6. LIU, F.; HU, N.; NING, H.; ATOBE, S.; YAN, C.; LIU, Y.; WU, L.; LIU, X.; FU, S.; XU, C.; LI, Y.; ZHANG, J.; WANG, Y.; LI, W. Investigation on the interfacial mechanical properties of hybrid graphene-carbon nanotube/polymer nanocomposites. *Carbon*, v. 115, p. 694-700, 2017.
7. RUBIO, I.; RUIZ, J. A.; MILLAN, M. R.; LOYA, J. A.; MOURE, M. M. Ballistic behavior of fiber composites. In: *Hybrid fiber composites: materials, manufacturing, process engineering*. Verlag: Willey-VCH, p. 117-127, 2020.
8. XINGSHUANG, P.; SHUAI, L.; YAODONG, H.; LIN, S. Investigation of joining of continuous glass fiber reinforced polypropylene laminates via fusion bonding and hotmelt adhesive film. *Adhesion & Adhesives*, v. 100, 102615, 2020.
9. YINAN, L.; XUEMIN, L.; WEIHONG, W.; YANAN, S.; HAIGANG, W. Decorated wood fiber/high density polyethylene composites with thermoplastic film as adhesives. *Adhesion & Adhesives*, v. 95, 102391, 2019.
10. CHUNG-FENG, J. K.; WEI, L. L.; JUI-WEN, W.; JOHN-BER, C.; PIN-HUA, L. Hot-melt pressure-sensitive adhesive for seamless bonding of nylon fabric part II: process parameter optimization for seamless bonding of nylon fabric. *Textile Research Journal*, v. 89(12), p. 2294-2304, 2018.

## **INTERFACIAL ADHESION EVALUATION OF HDPE/GRAPHENE AND ARAMID HYBRID COMPOSITE APPLYING EVA HOTMELT FILM**

### **ABSTRACT**

*Among the challenges related to the production of composite materials, the control of mechanical properties and production costs stand out. The thermopressing is a very popular technique, and it allows the large-scale production of hybrid composites formed by overlapping layers to obtain laminates. Parameters such as time, temperature and pressure are the main process variables. In addition, the laminate properties are influenced by the individual materials characteristics and the compatibility of them, and the matrix function is to promote charge transfer at the matrix-fiber interface. In this study, the contribution of ethylene vinyl acetate (EVA) film on the interfacial adhesion of high density polyethylene/grapheme laminated composite (HDPE/GR) and aramid fabric (ARA) was evaluated. Differential scanning calorimetry analysis identified the melting temperature of the EVA film (73 °C) and of the nanocomposite (131 °C). The samples were separated into two groups: Group 1, containing the EVA film, was processed at temperatures of 100 °C and 120 °C under pressures of 0.5, 1.0 and 1.5 MPa. Group 2, without EVA film, was processed at temperatures of 150 °C and 180 °C under a pressure of 1.5 MPa. Five specimens were tested based on ABNT NBR 10456:2020 and ASTM D2724 standards, in order to obtain the bonding strength promoted between the polymeric films and aramid fabric. Therefore, it was possible to observe that temperature and pressure showed slightly effect on the results, but the incorporation of intermediate layers of EVA films to the HDPE/GR and aramid fabric promotes a significant improvement in the interfacial adhesion of the laminates that will be produced and subjected to ballistics testing in the next stage of this work.*

**Keywords:** *Hot Press, HDPE/graphene/aramid, EVA hotmelt film, interfacial adhesion.*