

UNIVERSIDADE DE CAXIAS DO SUL
ÁREA DE CONHECIMENTO DE CIÊNCIAS EXATAS
E ENGENHARIAS
PROGRAMA DE PÓS-GRADUAÇÃO EM ENGENHARIA DE
PROCESSOS E TECNOLOGIAS

DESENVOLVIMENTO DE COMPÓSITOS DE POLIPROPILENO COM
EMBALAGENS FLEXÍVEIS RECICLADAS MOLDADOS POR INJEÇÃO

Renata Negrini

Renata Negrini

**DESENVOLVIMENTO DE COMPÓSITOS DE POLIPROPILENO COM
EMBALAGENS FLEXÍVEIS RECICLADAS MOLDADOS POR INJEÇÃO**

Dissertação apresentada no Programa de Pós-Graduação em Engenharia de Processos e Tecnologias da Universidade de Caxias do Sul, visando a obtenção de grau de mestre em Engenharia de Processos, orientado pelo Prof. Dr. Matheus Poletto.

Caxias do Sul, 2024

Dados Internacionais de Catalogação na Publicação (CIP)
Universidade de Caxias do Sul
Sistema de Bibliotecas UCS - Processamento Técnico

N392d Negrini, Renata

Desenvolvimento de compósitos de polipropileno com embalagens flexíveis recicladas moldados por injeção [recurso eletrônico] / Renata Negrini. – 2024.

Dados eletrônicos.

Dissertação (Mestrado) - Universidade de Caxias do Sul, Programa de Pós-Graduação em Engenharia de Processos e Tecnologias, 2024.

Orientação: Matheus Poletto.

Modo de acesso: World Wide Web

Disponível em: <https://repositorio.ucs.br>

1. Embalagens flexíveis - Reaproveitamento. 2. Materiais compostos. 3. Polipropileno. 4. Materiais - Testes. 5. Proteção ambiental. I. Poletto, Matheus, orient. II. Título.

CDU 2. ed.: 678.742.2

Catalogação na fonte elaborada pela(o) bibliotecária(o)
Ana Guimarães Pereira - CRB 10/1460

Renata Negrini

**DESENVOLVIMENTO DE COMPÓSITOS DE POLIPROPILENO COM
EMBALAGENS FLEXÍVEIS RECICLADAS MOLDADOS POR INJEÇÃO**

Dissertação apresentada no Programa de Pós-Graduação em Engenharia de Processos e Tecnologias da Universidade de Caxias do Sul, visando a obtenção de grau de mestre em Engenharia de Processos, orientado pelo Prof. Dr. Matheus Poletto.

DISSERTAÇÃO APROVADA EM TRINTA DE AGOSTO DE 2024

Orientador: Prof. Dr. Matheus Poletto / Universidade de Caxias do Sul

Banca Examinadora:

Profa. Dra. Camila Baldasso / Universidade de Caxias do Sul

Prof. Dr. Diego Piazza / Universidade de Caxias do Sul

Prof. Dr. Giordano Pierozan Bernardes / Atlantic Technological University

AGRADECIMENTOS

Gostaria de agradecer a todos que estiveram ao meu lado durante esta trajetória, me incentivando e me dando forças para conseguir concluir mais uma etapa, mais um sonho. Em especial à toda minha família, que nunca poupou esforços para me ajudar.

SUMÁRIO

1 INTRODUÇÃO.....	12
1.1 OBJETIVO GERAL	14
1.2 OBJETIVOS ESPECÍFICOS	14
2 REFERENCIAL TEÓRICO.....	15
2.1 RECICLAGEM DE POLÍMEROS	15
2.2 EMBALAGENS FLEXÍVEIS MULTI E MONOCAMADAS E SUA RECICLAGEM.....	16
2.3 RECICLAGEM DE EMBALAGENS FLEXÍVEIS MULTI E MONOCAMADAS.....	21
2.4 COMPÓSITOS POLIMÉRICOS.....	25
2.4.1 Agentes de Acoplamento.....	27
2.5 ESTADO DA ARTE.....	29
3 MATERIAIS E MÉTODOS.....	34
3.1 MATERIAIS	34
3.2 MÉTODOS.....	34
3.2.1 Espectroscopia no Infravermelho por Transformada de Fourier (FTIR)....	36
3.2.2 Microscopia de Varredura Eletrônica (MEV).....	37
3.2.3 Massa Específica (ρ) e Índice de Fluidiez (MFI).....	37
3.2.4 Análise Termogravimétrica (TGA).....	37
3.2.5 Calorimetria Exploratória Diferencial (DSC).....	37
3.2.6 Ensaios de Propriedades Mecânicas: Tração, Flexão e Impacto.....	38
3.2.7 Análise Estatística.....	38
4 RESULTADOS E DISCUSSÃO.....	39
4.1 RESULTADOS DAS ANÁLISES DO RESÍDUO.....	39
4.1.1 FTIR.....	39
4.1.2 MEV/EDS.....	40
4.1.3 Densidade.....	42
4.2 RESULTADOS DAS ANÁLISES DA ETAPA 1.....	42
4.2.1 MEV.....	42
4.2.2 Densidade.....	48
4.2.3 Avaliação da Fluidiez do material.....	48
4.2.4 Análise Termogravimétrica.....	49
4.2.5 DSC.....	52
4.2.6 Propriedades Mecânicas.....	54
4.3 RESULTADOS DA ANÁLISE DA ETAPA 2.....	58
4.3.1 MEV/EDS.....	58
4.3.2 Densidade.....	64
4.3.3 Índice de Fluidiez.....	65
4.3.4 Análise Termogravimétrica.....	66

4.3.5 DSC.....	69
4.3.6 Ensaios Mecânicos.....	71
4.3.6.1 Resistência à Tração.....	71
4.3.6.2 Resistência à Flexão.....	74
4.3.6.3 Resistência ao Impacto.....	77
5 CONCLUSÃO.....	80
REFERÊNCIAS.....	82

LISTA DE TABELAS

Tabela 1. Normas sobre reciclagem.....	15
Tabela 2. Alguns materiais e suas aplicações nas embalagens multicamadas alimentícias.....	19
Tabela 3. Identificação das amostras na etapa 1.....	35
Tabela 4. Numeração das amostras na etapa 2.....	35
Tabela 5. Densidade do Resíduo.....	42
Tabela 6. MFI das amostras.....	49
Tabela 7. Análise termogravimétrica das amostras.....	51
Tabela 8. Temperaturas, entalpia e cristalinidade das amostras avaliadas por DSC....	53
Tabela 9. Média e desvio padrão dos resultados de resistência à tração.....	54
Tabela 10. Média e desvio padrão de resistência à flexão.....	55
Tabela 11. Média e desvio padrão dos resultados de resistência ao impacto.....	57
Tabela 12. MFI das amostras da etapa 2.....	65
Tabela 13. Resultados TGA segunda etapa.....	68
Tabela 14. Temperaturas, entalpia e cristalinidade das amostras avaliadas por DSC na etapa 2.....	70
Tabela 15. Resultado do ensaio de tração para as amostras.....	72
Tabela 16. Resultados do ensaio de flexão para as amostras.....	74
Tabela 17. Resultados do ensaio de impacto.....	78

LISTA DE FIGURAS

Figura 1. Crescimento dos principais setores de bens de consumo.....	14
Figura 2. Hierarquia de resíduos.....	16
Figura 3. Processo de Metalização.....	18
Figura 4. Ciclo de vida dos polímeros.....	21
Figura 5. Etapas de coprocessamento.....	22
Figura 6. Esteira de reciclagem.....	23
Figura 7. Espessura de embalagens multicamadas.....	24
Figura 8. Funcionamento do agente de acoplamento.....	27
Figura 9. Espectro de FTIR do resíduo analisado.....	38
Figura 10. Micrografias obtidas para o resíduo, em 25x (a) e 1000x (b).....	40
Figura 11. Análise de EDS do resíduo.....	41
Figura 12. Micrografias do PP e dos 5 compósitos produzidos na etapa 1.....	43
Figura 13. Análises de EDS do PP e dos 5 compósitos produzidos na etapa 1.....	46
Figura 14. Determinação de densidade das amostras.....	48
Figura 15. Curva termogravimétrica (a) e primeira derivada (b) dos materiais avaliados, referentes a etapa 1.....	50
Figura 16. Termogramas para a primeira etapa de testes.....	52
Figura 17. Micrografias do PP/50R e dos 3 compósitos produzidos com <i>Polybond</i> 3200, na etapa 2.....	60
Figura 18. Análises de EDS do PP/50R e dos 3 compósitos produzidos com <i>Polybond</i> 3200, na etapa.....	62
Figura 19. Determinação de densidade das amostras etapa 2.....	64
Figura 20. Curva termogravimétrica (a) e primeira derivada (b) dos materiais avaliados, referentes a etapa 2.....	67
Figura 21. Termogramas das amostras da etapa 2.....	70

LISTA DE FLUXOGRAMAS

Fluxograma 1. Descrição das macroetapas da pesquisa, etapa 1 e 2.....33

RESUMO

Esta dissertação investiga a adição de embalagens flexíveis multicamadas recicladas em uma matriz de polipropileno copolímero, como um aspecto crucial para desenvolver um compósito. O objetivo principal foi o reaproveitamento deste resíduo, minimizando impactos ambientais e otimizando a disponibilidade de matéria-prima reciclada. Para alcançar esses objetivos, foi adotada uma metodologia de adição de diferentes percentuais deste resíduo através da reciclagem mecânica e incorporação por extrusão, com posterior injeção. O estudo foi dividido em duas etapas, sendo que a primeira etapa foi de inserção na matriz polimérica dos teores de 20, 30, 40, 50 e 60% do resíduo de embalagens flexíveis multicamadas. Os ensaios mecânicos demonstraram que quanto maior o percentual de resíduo no compósito, mais rígido e menos resistente ao impacto, ao passo que a densidade aumentou e o índice de fluidez reduziu. O MEV/EDS mostram que a superfície ficou bastante heterogênea. A análise de TGA mostrou que tem uma elevação do grau de degradação e no teor de cinzas residual, indicando que o resíduo possui contaminantes inorgânicos. O DSC demonstrou uma redução no grau de cristalinidade à medida que aumenta a adição de resíduo. Já na segunda etapa, foi mantido o percentual de resíduo fixo em 50%, devido ao balanço de propriedades e para maximizar o impacto ambiental. Foi adicionado nestes compósitos, via extrusão e posterior injeção, 2,5%, 5% e 10% de agente de acoplamento Polybond 3200. As mesmas análises da primeira etapa foram realizadas e, em algumas delas, resultados otimizados foram obtidos. O índice de fluidez aumentou ao passo que a densidade ficou estabilizada. A cristalinidade voltou a aumentar, conforme foi sendo aumentada a concentração do Polybond 3200. Mas, com a adição do agente de acoplamento em concentração de 2,5% houve um acréscimo de 42,50% na resistência a flexão, ao passo que para as amostras de 5% e 10% os acréscimos foram de 33% e 34%, respectivamente.

Palavras-chave: embalagens flexíveis multicamada, polipropileno, agente de acoplamento.

ABSTRACT

This dissertation investigates the addition of recycled multilayer flexible packaging into a polypropylene copolymer matrix as a crucial aspect of developing a composite. The main objective was to reuse this waste, minimizing environmental impacts and optimizing the availability of recycled raw material. To achieve these goals, a methodology was adopted that involved adding different percentages of this waste through mechanical recycling and incorporation by extrusion, followed by injection molding. The study was divided into two stages, with the first stage involving the incorporation of 20%, 30%, 40%, 50%, and 60% of the multilayer flexible packaging waste into the polymer matrix. The mechanical tests showed that the higher the waste percentage in the composite, the stiffer and less impact-resistant it became, while density increased and melt flow index decreased. SEM/EDS revealed that the surface became quite heterogeneous and embedded. The TGA analysis showed an increase in the degree of degradation and residual ash content, indicating the presence of inorganic contaminants in the waste. DSC demonstrated a reduction in crystallinity as the amount of waste increased. In the second stage, the waste percentage was fixed at 50%, due to the balance of properties and to maximize environmental impact. In these composites, 2.5%, 5%, and 10% of Polybond 3200 coupling agent were added via extrusion followed by injection molding. The same analyses from the first stage were performed, and some showed optimized results. The melt flow index increased, while the density remained stable. Crystallinity increased again as the concentration of Polybond 3200 was raised. However, with the addition of 2.5% coupling agent, there was a 42.50% increase in flexural strength, while the samples with 5% and 10% showed increases of 33% and 34%, respectively.

Keywords: multilayer flexible packaging, polypropylene, coupling agent.

1 INTRODUÇÃO

Com o avanço tecnológico, os polímeros ganham destaque devido a sua versatilidade, propriedades mecânicas aprimoradas e baixo custo, sendo amplamente utilizados em setores como automóveis, vestuário e implantes médicos (KUMAR et al., 2021). Contudo, a produção em crescimento resulta em desafios ambientais, com estimativas apontando para a geração anual de 460 milhões de toneladas de resíduos poliméricos até 2030 (KUMAR et al., 2021; NOGUEIRA et al., 2023).

A preservação ambiental, vinculada à recuperação e reciclagem de polímeros, torna-se crucial para a qualidade de vida, dada a dificuldade de decomposição desses materiais. A reciclagem de polímeros é promovida por programas governamentais em todo o mundo, trazendo benefícios econômicos e ambientais, mas embalagens laminadas com alumínio, comuns em alimentos, representam um desafio devido à dificuldade de reciclagem eficiente (KUMAR et al., 2021).

A falta de infraestrutura adequada para o tratamento dessas embalagens laminadas contribui para baixos percentuais de reciclagem, resultando em grande parte desses resíduos sendo destinados a aterros sanitários. É imperativo que se invista em tecnologias avançadas de reciclagem, promovendo iniciativas para conscientização da população, visando a redução do impacto ambiental causado por essas embalagens (ABRE, 2022).

No Brasil, embalagens laminadas são um desafio significativo para reciclagem, compreendendo 33,6% da produção física total no setor de embalagens poliméricas flexíveis (ABRE, 2022). Essas embalagens, utilizadas para alimentos como *snacks* e café, são compostas por camadas de polímero e alumínio, dificultando a reciclagem convencional e levando a baixos índices de reciclagem (ABRE, 2022). As embalagens poliméricas metalizadas, contendo camadas de polímero revestidas por metais como alumínio, apresentam desafios adicionais à reciclagem devido à complexidade na separação de materiais diferentes, tornando o processo dispendioso e menos sustentável (SOARES et al., 2023).

Um estudo conduzido por Seier et al (2024) analisou 240 embalagens pós-consumo coletadas de lixeiras domésticas no leste da Áustria entre 2018 e 2023, focando em categorias de produtos de vida útil curta, como queijos fatiados, carnes curadas, lanches, refeições prontas, tubos e alimentos congelados, representando uma ampla variedade do mercado austríaco. Após a reciclagem mecânica, as embalagens foram testadas quanto às combinações de polímeros encontrados nos fluxos de resíduos e suas propriedades. Os resultados foram promissores, indicando bons indícios de processamento e utilização destes materiais.

A busca por alternativas ecologicamente corretas e práticas de reciclagem de embalagem, tal qual a conduzida por Seier et al (2024), torna-se fundamental para mitigar os impactos negativos dessas embalagens no ambiente. Diante desse cenário, o trabalho proposto busca explorar a utilização dessas embalagens complexas como reforço em compósitos poliméricos, considerando a diversidade de materiais envolvidos, sendo altamente relevante e alinhando-se aos Objetivos de Desenvolvimento Sustentável (ODS) da Agenda 2030 da Organização das Nações Unidas (ONU). A abordagem busca enfrentar desafios ambientais como a gestão de resíduos, ODS 12, promovendo a economia circular ao reintroduzir materiais reciclados na cadeia produtiva. Além disso, ao reduzir a quantidade de resíduos destinados a aterros sanitários, contribui para a meta de redução de poluição e conservação de recursos, representadas pela ODS 11 e ODS 14.

Ao avaliar o impacto de diferentes teores de resíduos reciclados nas propriedades dos compósitos, a pesquisa contribui para o desenvolvimento de tecnologias limpas e sustentáveis, além de promover a inovação na indústria de materiais, caso tratado pela ODS 9. Portanto, a relevância deste trabalho se estende além dos aspectos técnicos, contribuindo significativamente para o avanço em direção a uma economia mais sustentável e responsável, alinhada com os Objetivos de Desenvolvimento Sustentável da ONU.

1.1 OBJETIVO GERAL

Avaliar o efeito da adição de embalagens flexíveis recicladas nas propriedades físicas, químicas, térmicas e morfológicas de compósitos de polipropileno copolímero heterofásico.

1.2 OBJETIVOS ESPECÍFICOS

Analisar as propriedades físicas, químicas, morfológicas e térmicas de embalagens flexíveis recicladas mecanicamente.

Analisar as propriedades físicas, químicas, morfológicas e térmicas de diferentes teores de embalagens flexíveis recicladas mecanicamente nas propriedades de compósitos de polipropileno copolímero.

Avaliar o efeito do teor de adição de agente de acoplamento nas propriedades mecânicas, físicas e térmicas destes compósitos.

2 REFERENCIAL TEÓRICO

A indústria petroquímica converte aproximadamente 10% dos hidrocarbonetos fósseis em polímeros, totalizando 350 Mt globalmente anualmente, principalmente destinados a embalagens, mas também aplicados em setores como automotivo e construção (LANGE, Jean-Paul, 2021). No entanto, cerca de 10% dos 1,1 Gt anuais de Resíduo Sólido Urbano (RSU) são polímeros, com apenas 12% desse polímero sendo reciclado globalmente (WASTE ENERGY COUNCIL, 2016). A questão ambiental resultante desse descarte motivou a adoção da economia circular promovendo um fluxo contínuo e rastreabilidade do ciclo de vida dos polímeros (HUNDERTMARK et al., 2018).

A predominância de embalagens *single-use plastics* (SUPs), que são embalagens de uso único, ou seja, após uma utilização são descartadas, nas embalagens alimentícias aumenta os desafios de reciclagem, destacando a necessidade de soluções para as estruturas multicamadas. Em 2018, a produção da indústria de embalagens cresceu 2,5%, com embalagens flexíveis liderando, seguidas por embalagens poliméricas rígidas e cartonadas assépticas (MRFF, 2020). Apesar da retração no volume de embalagens entre 2014 e 2018, devido à crise econômica, o estudo indica perspectivas de crescimento a longo prazo para todos os tipos de embalagens até o ano de 2024, conforme demonstra a Figura 1 (ABRE, 2018).

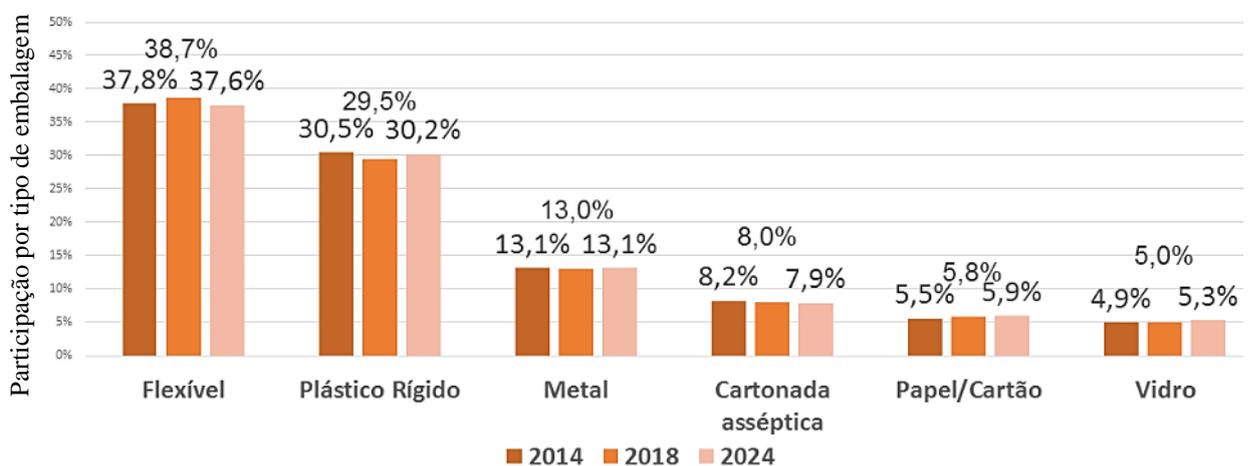


Figura 1. Crescimento dos principais setores de bens de consumo (ABRE, 2018).

2.1 RECICLAGEM DE POLÍMEROS

O aumento das preocupações ambientais relacionadas ao uso dos polímeros tem se tornado uma questão cada vez maior. Por isso e pelo fato de a maior porção dos polímeros ainda

remanescer sem reciclagem, muitos pesquisadores estão trabalhando em métodos de reciclagem mais sustentáveis e eficientes (HUANG et al, 2022). Atualmente há quatro tipos de processo de reciclagem, primário, secundário, terciário e quaternário, conforme Tabela 1.

Tabela 1. Normas sobre reciclagem (A AUTORA, 2023).

Definições ASTM D7209:2015	Definições Norma ISO 15270:2008	Exemplo
Reciclagem Primária	Reciclagem mecânica	Embalagens ligadas a economia circular com ciclo fechado
Reciclagem Secundária	Reciclagem mecânica	Reciclagem que gera produtos de menor valor agregado
Reciclagem Terciária	Reciclagem química	Depolimerização de poliésters
Reciclagem Quaternária	Recuperação de energia	Pirólise

A reciclagem primária abrange a transformação de materiais pré-consumo em polímeros, enquanto a reciclagem secundária processa resíduos pós-consumo, exigindo separação manual e extrusão para reprocessamento. A reciclagem terciária complementa métodos tradicionais, selecionando polímeros e retornando-os à estrutura monomérica inicial, como no caso da reciclagem de garrafas PET. A reciclagem quaternária, por sua vez, é destinada a polímeros degradados, envolvendo a recuperação de energia via pirólise, embora possa gerar consequências ambientais e sociais (ANUAR SHARUDDIN et al, 2016; MARIS et al, 2018).

Já na hierarquia dos resíduos, que é a determinação de prioridades para o uso eficiente dos recursos, a reciclagem mecânica pode ser inserida como a terceira, atrás somente de evitar o desperdício do resíduo polimérico e de reutilizar, conforme Figura 2. O processo de reciclagem envolve a moagem, lavagem, separação, secagem, regranulação e, em alguns casos, *compounding*, que é a criação de um composto de matriz polimérica com o intuito de melhorar alguma propriedade. E mesmo assim, a reciclagem mecânica deve ser favorecida em relação à recuperação e descarte de energia, inerentes a outros tipos de reciclagem (JESSON et al, 2014).



Figura 2. Hierarquia de resíduos (Adaptado da Diretiva 2008/98/EC).

A incineração tem o potencial de recuperar a energia térmica vinculada ao polímero, correspondente ao seu potencial energético. Como alguns polímeros têm poder calorífico em uma faixa próxima ao petróleo bruto (40 MJ/kg), os resíduos poliméricos podem estar relacionados como um substituto do petróleo. Entretanto, deve ser notório que a energia de processamento que é necessária para produzir itens poliméricos não pode ser recuperada por incineração. Dependendo do tipo de polímero, a faixa de energia de processamento vai de 27 MJ/kg para o PE a 53 MJ/kg para o PET. O benefício ecológico da reciclagem mecânica ocorre pelo resultado das economias de energia de processamento menos a energia utilizada para coletar, transportar e reprocessar o polímero, aproximadamente 9 MJ/kg (KAISER; SCHMID; SCHLUMMER, 2018).

No geral, há dois métodos que podem ser utilizados para reciclar itens de embalagens multicamadas: a primeira opção é utilizar os componentes juntos em uma etapa de compatibilização (reciclagem mecânica) e a segunda opção é separar os diferentes componentes e deixá-los disponíveis para reciclagem em fluxos separados de reciclagem (reciclagem química). Para a separação dos diferentes componentes, dois métodos são aplicados: uma separação que pode acontecer tanto por delaminação do sistema ou por uma seletiva dissolução-precipitação dos diferentes componentes (KAISER; SCHMID; SCHLUMMER, 2018).

2.2 EMBALAGENS FLEXÍVEIS MULTI E MONOCAMADAS E SUA RECICLAGEM

Registrando um aumento de 1,3% no volume de produção brasileiro em 2022 em comparação ao ano anterior, o setor de embalagens poliméricas flexíveis difere de outras atividades industriais que utilizam o polímero como matéria-prima principal. Foram produzidas

no Brasil 2.167 mil toneladas, em contraste com as 2.139 mil toneladas de 2021. O setor é composto por 4.079 empresas, sendo mais de 80% localizadas nas regiões Sul (1.166) e Sudeste (2.239) do país. As embalagens poliméricas flexíveis, conhecidas por sua versatilidade e sustentabilidade, registram crescimento no Brasil. Em 2022, das 2.167 mil toneladas, 114 mil toneladas foram provenientes de materiais reciclados, representando um aumento de 9% em relação ao ano anterior (CLUBE DA EMBALAGEM, 2023).

Destinando 80% dos filmes à fabricação de embalagens, o restante é utilizado no agronegócio (11%) e sacolas plásticas (9%). Em 2023, as embalagens multicamadas aumentaram sua participação em 2%, representando 51% do total produzido, enquanto as monocamadas mantiveram-se estáveis. A indústria de bebidas liderou o consumo, com um aumento de 9%, seguida pelo setor agropecuário (7%) (CLUBE DA EMBALAGEM, 2023). A indústria de polímeros multicamadas conseguiu reduzir a espessura média das embalagens ao mesmo tempo em que combina propriedades funcionais de resistência mecânica e tolerância a variações de temperatura. Porém, a estrutura molecular densa de embalagens fabricadas em alumínio é a que confere a propriedade de barreira ao oxigênio e à umidade, o que não ocorre em materiais poliméricos, especialmente nas espessuras comumente utilizadas para filmes. A estrutura molecular polimérica é composta de cadeias entrelaçadas e orientadas como uma grande rede. Mesmo que seja possível criar uma quantidade maior de redes de interligação, não será suficiente para alcançar níveis de barreira eficientes para embalagens alimentícias, como ocorre com embalagens de alumínio. Por isso, os revestimentos metálicos são utilizados para este fim, sendo então um material multicamada polimérico laminado com alumínio, confeccionados por um processo denominado metalização, conforme Figura 3 (BRASKEM, 2021).

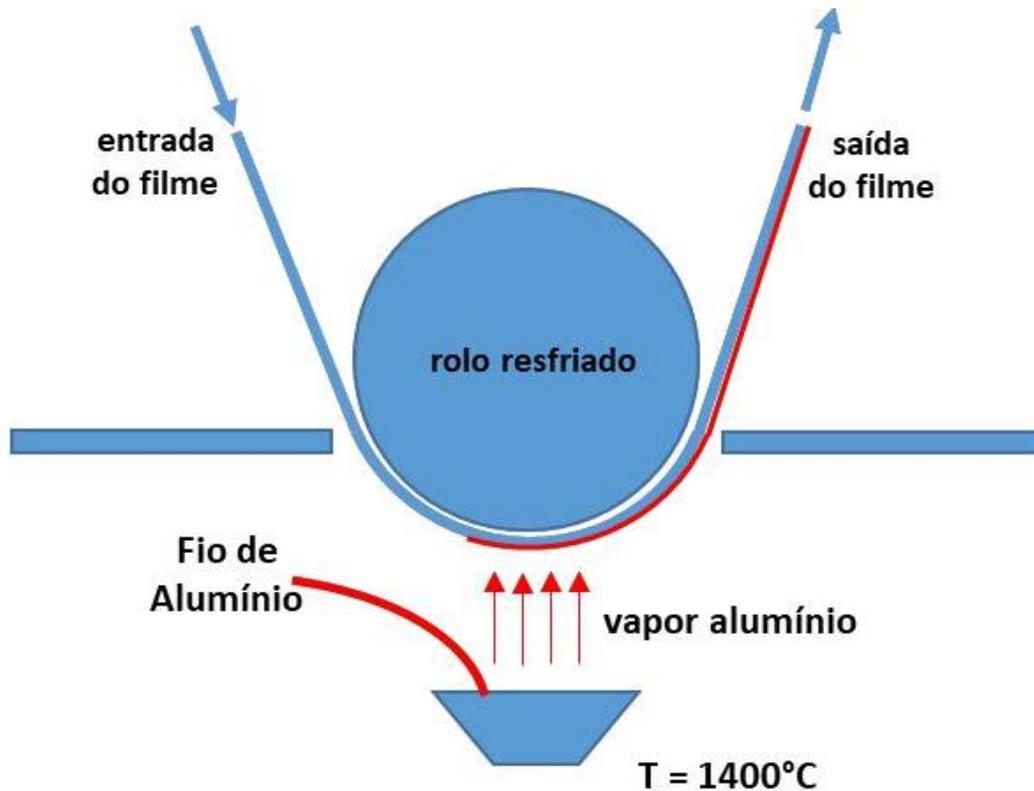


Figura 3. Processo de Metalização (BRASKEM, 2021).

Este processo de metalização, conforme evidenciado na Figura 3, é o mais utilizado pela indústria. É realizado através da fusão e vaporização de um metal no vácuo, neste caso é mais comumente utilizado, o alumínio, enquanto que o filme polimérico passa através de um rolo resfriado e sobre a região de vaporização do alumínio. O filme metálico é conferido no polímero pelo acúmulo na superfície fria do filme, das moléculas vaporizadas (BRASKEM, 2021).

As embalagens desenvolvidas para alimentos frescos costumam ter entre quatro e sete camadas de diferentes componentes, formando uma gama enorme de propriedades físicas e químicas que, unidas, mantêm as propriedades destes alimentos quase que intactas (KAISER; SCHMID; SCHLUMMER, 2018). Na Tabela 2 é descrito um resumo dos principais materiais utilizados nas embalagens e suas principais funcionalidades.

Tabela 2. Alguns materiais e suas aplicações nas embalagens multicamadas alimentícias (adaptado de SOARES et al, 2020).

	Material	Funcionalidade da Camada	Exemplo de Aplicação
Polímeros sintéticos	Polietileno (PE)	Selante de temperatura	Caixas de bebidas (geralmente LDPE)
		Barreira de umidade	
		Em combinação com PA ou EVOH proporciona barreira a gás/aroma	
	Polipropileno (PP)	Barreira de umidade	Produtos de higiene pessoal, cosméticos, embalagens de alimentos para micro-ondas
		Resistência mecânica	
		Em combinação com PA ou EVOH proporciona barreira a gás/aroma	
	Polietileno tereftalato (PET)	Barreira de umidade	Embalagens de bebidas (garrafas) ou para carne e queijo
		Resistência mecânica	
		Barreira a gás/aroma	
Poliestireno (PS)	Selante de temperatura	Capacidade de impressão com tinta na parte externa da embalagem	
	Permeabilidade de gás		
	Boa capacidade de impressão		
Cloreto de polivinila (PVC)	Barreira a gás/aroma	Filme <i>Stretch</i>	
	Resistência mecânica		
Poliamida (PA)	Barreira a gás/aroma	Embalagens alimentícias termoformadas	
	Resistência mecânica		
Poli(etileno-co-álcool vinílico) (EVOH)	Barreira ao oxigênio	Embalagens sensíveis à oxigênio	
Acetato de vinila (EVA)	Adesivo	Intercamada para colar PE com PVC	
	Selante de temperatura		
Outros materiais	Folha de Alumínio	Barreira leve	Embalagens sensíveis à oxigênio
		Barreira a gás/aroma	
		Barreira de umidade	
	Papel ou papelão	Resistência mecânica	Caixas de bebidas
Resistência à abrasão			

Outro tipo de embalagem multicamada pode ser produzida com diferentes camadas de um mesmo polímero, que é quimicamente modificado para obter determinadas características e funcionalidades e são denominadas embalagens monomateriais multicamadas. A diferenciação das características moleculares permite a modificação física, mecânica e de barreira. Entretanto, este tipo de embalagem usualmente tem propriedades limitadas, principalmente as de barreira e selantes, sendo impróprias para utilização em embalagens alimentícias (ANUKIRUTHIKA et al, 2020).

Em um estudo da Associação Brasileira de Embalagens (ABRE) (2021) foi relatado que os consumidores não apreendem as tecnologias de embalagem e o valor que ela traz na ampliação da vida útil e na diminuição do desperdício de alimentos. Uma pesquisa de 2013 da ONG WRAP revelou que 61% dos consumidores entrevistados consideravam que frutas e vegetais se estragavam mais rapidamente em suas embalagens, e somente 13% tinham ciência de que manter os alimentos em suas embalagens originais os manteria frescos por mais tempo. Uma pesquisa feita pela Comissão Europeia do Meio Ambiente, evidenciou que 89% dos clientes de supermercados nos Estados Unidos acham que os resíduos de embalagem são mais prejudiciais ao meio ambiente do que os alimentos descartados. No entanto, 40% dos alimentos nos EUA acabam sem ser consumidos, o que implica em um desperdício de 165 bilhões de dólares anualmente. Adicionalmente, 20% da terra, 30% da água potável disponível e 34,7 milhões de toneladas de alimentos são descartados em aterros, onde se degradam em condições anaeróbicas e emitem 25% de todas as emissões de metano dos aterros nos Estados Unidos (GUARANY, 2017).

2.3 RECICLAGEM DE EMBALAGENS FLEXÍVEIS MULTI E MONOCAMADAS

Por outro lado, considerando que as embalagens monomateriais são mais homogêneas que as multimaterias, o sistema convencional de reciclagem conseguiria absorver estas correntes de resíduos. Porém, após a mistura das embalagens multi e monomateriais no resíduo sólido urbano, fica difícil para o sistema convencional de reciclagem separá-las, principalmente pelo fato da mão de obra nas recicladoras não ser estável e constante. Desta forma, a grande maioria destes produtos, tanto multi-material quando monomaterial, acabam sendo descartados de forma a dificultar, ou até inviabilizar, a reciclagem (RAGAERT et al, 2020).

A Figura 4, apresenta uma representação visual do ciclo de vida dos polímeros, enfocando desde sua produção até sua fase de descarte e subsequente impacto nos compartimentos ambientais e na biosfera. A notável persistência dos polímeros no ambiente é motivo de preocupação, uma vez que pode acarretar consequências desconhecidas. Diante desse contexto, Ahamed et al (2021) realizaram uma exploração detalhada das rotas de entrada, destino, exposição e efeitos adversos resultantes do manejo inadequado do resíduo de embalagens poliméricas flexíveis nos diversos segmentos ambientais, ressaltando, ao mesmo tempo, as lacunas existentes no âmbito das pesquisas. Ademais, procederam uma análise das tecnologias proeminentes destinadas ao tratamento das embalagens flexíveis. Por fim, sugeriram abordagens abrangentes de mitigação, incluindo o fomento do desenvolvimento da economia

circular e a aplicação de métodos de reciclagem avançados, como meios de superar os desafios impostos pela problemática dos resíduos poliméricos.



Figura 4. Ciclo de vida dos polímeros (SINDIPLAST, 2017).

A reciclagem é uma escolha preferencial, destacando-se na gestão de resíduos pela circularidade no fluxo de materiais. Contudo, sua viabilidade comercial depende da aceitação de materiais recuperados por compradores potenciais. A reciclagem mecânica enfrenta desafios na segregação de diferentes polímeros e na gestão de materiais multicamada, enquanto para materiais mono, a reextrusão é comum, exigindo processos de classificação, limpeza e secagem. Estratégias de design sustentável e produtos incentivadores da reciclagem estão sendo propostos, mas a separação ainda é um obstáculo. A reciclagem de resíduos poliméricos urbanos ou industriais mostra potencial, enquanto polímeros recuperados do ambiente após intempéries são menos valiosos. A recuperação de resíduos marinhos é pouco explorada devido a desafios na coleta, separação e caracterização. A adição de até 5% em massa de PP reciclado de origem marinha ao PP virgem para novos grânulos é viável, mesmo com perda mínima de desempenho mecânico (AHAMED et al., 2021).

Para embalagens flexíveis alimentícias, a reestruturação visa facilitar a reciclagem, especialmente para filmes multicamada. A customização dessas embalagens, com diversas camadas de polímeros e não-polímeros, dificulta os processos de reciclagem, exigindo soluções mais direcionadas. Embalagens multicamadas flexíveis correspondem a cerca de 10% de todas

as soluções de embalagem. A quantidade relativa pode não parecer alta, mas pelo menos 40% de todos os produtos alimentícios ao redor do mundo são embalados por flexíveis, fato que pode tornar este número extremamente relevante (BAUER et al, 2021).

Por isso, a solução de reciclagem para estes produtos deve contemplar todos estes vieses, facilitando e aumentando a sua reciclagem, de forma que será mais fácil e vantajoso economicamente fazer a segregação destas embalagens, evitando sua destinação para aterros sanitários ou plantas de coprocessamento, que é o processo que transforma resíduos sólidos industriais em uma fonte de energia para alimentar fornos de cimento, contribuindo para a redução das emissões de CO₂ e diminuindo a quantidade de materiais descartados em aterros sanitários (RCR AMBIENTAL, 2023). Na etapa de queima, a combustão desempenha um papel essencial ao promover a reação que converte as matérias-primas em clínquer, um componente vital na produção de cimento. A técnica empregada no coprocessamento de resíduos sólidos é conhecida como blendagem, que consiste na mistura cuidadosa dos materiais até se atingir uma consistência homogênea, pronta para ser reutilizada (RCR AMBIENTAL, 2023).

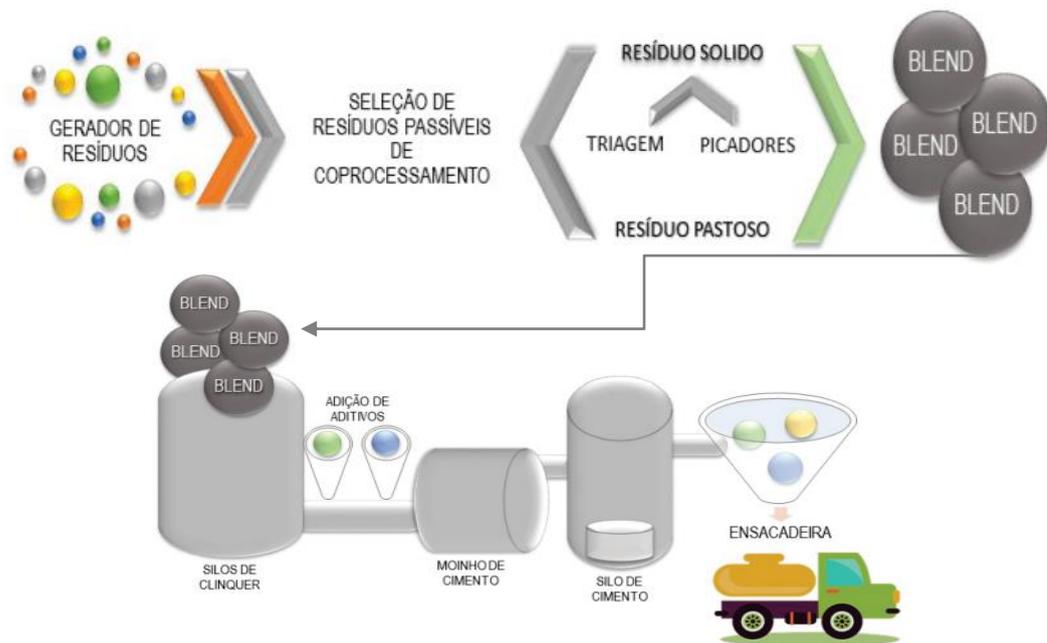


Figura 5. Etapas de coprocessamento (PEREIRA et al, 2019).

Em um case de sucesso, as empresas Nestlé e Boomera implementaram uma iniciativa inovadora e sustentável, transformando os sachês dos produtos Nestlé em itens esportivos circulares, como traves de futebol, cestas de basquete e postes de vôlei. Essa ação foi desenvolvida como parte do projeto global de reciclagem mecânica de embalagens flexíveis, reforçando a importância da circularidade dos produtos. Para viabilizar esse projeto que

transformou mais de 200 embalagens flexíveis em itens esportivos foi desenvolvida uma resina pós-consumo (PCR) exclusiva. Os materiais resultantes foram doados para a ONG Bairro da Juventude, localizada em Criciúma, no estado de Santa Catarina. Além disso, as cooperativas de catadores envolvidas no projeto também se beneficiaram dessa iniciativa. Esses catadores desempenharam um papel fundamental, permitindo que duas toneladas de materiais flexíveis deixassem de ser descartados em aterros sanitários e ganhassem uma nova vida, através de plantas de reciclagem, conforme Figura 6. Com a venda desses resíduos para a realização do projeto, as cooperativas conseguiram melhorar sua renda (AMBIPAR GROUP, 2021).

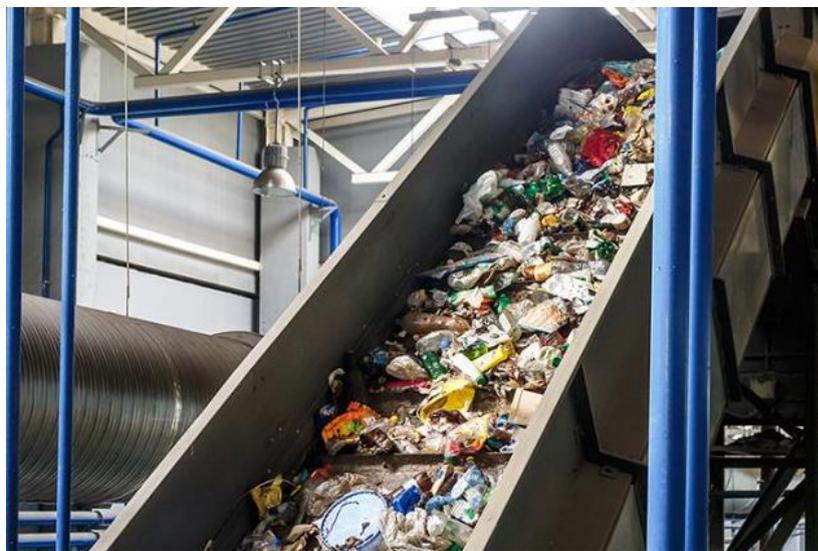


Figura 6. Esteira de reciclagem (AMBIPAR GROUP, 2021).

Porém, a maioria dos polímeros que compõem uma embalagem multicamada são imiscíveis, como por exemplo PP com PE e poliamida (PA) ou PET, o que pode dificultar o processo de reciclagem mecânica, que é hoje a rota de reciclagem convencional, além de mais barata e eficiente em comparação à reciclagem química, por exemplo (GARCIA; ROBERTSON, 2017).

Um estudo conduzido pela PLÁSTICO SUL (2021) utilizando um filme composto por cinco camadas, incluindo 15% de copoliamida, demonstrou a viabilidade da reciclagem desse material, conforme Figura 7. Além disso, é relevante salientar que a tecnologia de reciclagem avaliada é compatível com a utilizada no processo de reciclagem do polietileno, corroborando a reciclabilidade e a sustentabilidade de filmes contendo PE/PA. Portanto, a presença de poliamida na composição não afeta adversamente o fluxo de reciclagem do polietileno.



Figura 7. Espessura de embalagens multicamadas (PLÁSTICO SUL, 2021).

Nos estudos de Kaiser et al (2017) foi discutido a possibilidade de solucionar esta imiscibilidade dos polímeros e não desviar a rota de reciclagem mecânica da economia circular destas embalagens fazendo uso de agentes de acoplamento. Uma vez que a grande maioria das embalagens BOPP possuem a camada de metalização acima mencionada, mesmo que haja uma completa miscibilidade entre as camadas poliméricas, sempre haverá pelo menos duas fases no produto da reciclagem mecânica destas embalagens: a fase polimérica e a fase metálica. Devido a isso, os produtos que forem processados utilizando este polímero reciclado serão compreendidos como compósitos.

2.4 COMPÓSITOS POLIMÉRICOS

Os materiais compósitos são compostos por duas ou mais fases, a matriz e a fase dispersa, ou reforço. A primeira, deve ser contínua e possuir uma fração volumétrica maior na mistura, quando em comparação com a fase dispersa. A finalidade desta mescla de fases é de agregar ao material final propriedades específicas. Sendo assim, as características de uma fase complementam as características da segunda fase. De acordo com a norma ASTM D3878 - 2016, um compósito pode ser definido conforme descrição abaixo:

Material compósito é uma substância que consiste de uma ou mais camadas de materiais, insolúveis entre si, que são combinadas a fim de formar materiais de engenharia que quando combinados possuem propriedades não presentes nos constituintes separados.

Polímeros termorrígidos, como poliésteres insaturados e resinas epóxi, têm sido comuns em compósitos, mas os termoplásticos, como o polipropileno (PP), emergem como

concorrentes devido a processos mais rápidos e propriedades de resistência ao impacto. Compósitos baseados em PP oferecem soluções econômicas para desafios de engenharia, destacando-se pela compatibilidade com várias cargas de reforço para ajustar propriedades específicas (ALTAY et al, 2021). A incorporação de pós metálicos, cerâmicas, carbonos e minerais tem sido estudada para aprimorar rigidez, durabilidade e estabilidade dimensional (ALTAY et al, 2021).

Estudos morfológicos, como os de Nofar, Ozgen e Girginer, exploraram a orientação cristalina em compósitos PP/talco, observando influências da temperatura e teor de talco nas propriedades mecânicas. Rallini e Kenny (2017) investigaram proporções diferentes de talco em compósitos PP, observando aumento de módulo e redução de ductilidade. Wang et al. (2018) examinaram a influência da reextrusão e diferentes teores de talco, destacando degradação termomecânica e alterações no tamanho do talco. O tipo, tamanho e teor de partículas do reforço foram identificados como influentes nas propriedades mecânicas dos compósitos (AKKOYUN, 2022).

O padrão de classificação para compósitos considera geometria e conformação espacial das partículas da fase dispersa, sendo essencial para as propriedades do material. A dispersão do reforço na matriz, considerando forma, orientação e tamanho, é crucial. Compósitos poliméricos com reforço metálico, por exemplo, mantêm flexibilidade e tenacidade do polímero com alta condutividade térmica e elétrica da fase metálica (AKKOYUN, 2022).

Para o processamento dos compósitos deve sempre ser avaliado as condições de processamento, pois pode variar dependendo da concentração e do tipo de reforço. Reforços naturais tendem a ter uma degradação acelerada se expostas a altas temperaturas ou a elevados níveis de cisalhamento, enquanto que reforços minerais tendem a suportar uma temperatura maior de processamento, diminuindo inclusive o índice de fluidez do compósito, se tratando de um termoplástico (FERREIRA, 2020).

A morfologia, tamanho das partículas e energia superficial são significativamente importantes para o sucesso de um compósito. Porém, quanto menor forem as partículas, tais como as nanométricas e micrométricas, haverá uma maior propensão a uma dispersão menos homogênea, pois estes reforços têm uma forte tendência de se aglomerarem umas nas outras (FERREIRA, 2020).

Em relação à matriz pura, uma dispersão homogênea das partículas pode levar à formação de uma região denominada interface, promovendo modificações nas propriedades do compósito. Porém, muitas vezes, não são explorados a dispersão adequada, a geometria do reforço ou o aumento da razão de aspecto. Neste cenário, mesmo com o tamanho das partículas,

o compósito obtido é classificado como convencional, resultando em pouca ou nenhuma melhoria em suas propriedades. Os elementos primordiais que incidem na interface e se vinculam às três camadas compreendem: a flexibilidade da cadeia, que modifica a temperatura de transição vítrea; a configuração da cadeia polimérica e as reações químicas entre as camadas. Portanto, para alcançar uma adesão interfacial mais eficaz, além de uma dispersão apropriada, é imprescindível que a tensão superficial entre as fases seja comparável e que haja afinidade química entre elas, o que pode ser adquirido utilizando agentes de acoplamento (BRANDENBURG et al., 2017).

2.4.1 Agentes de Acoplamento

A obtenção de uma interface eficaz entre o reforço e a matriz é um desafio crucial na tecnologia de materiais compósitos. Estratégias investigadas incluem interação química por meio de agentes de acoplamento, modificação do reforço ou alteração da matriz, tendo impactos significativos na energia interfacial, estabilidade da morfologia e adesão entre fases (FAGUNDES, 2022). A introdução de cargas de reforço em polímeros semicristalinos altera suas propriedades, exigindo controle da quantidade do reforço para evitar diminuição nas propriedades mecânicas da matriz (FAGUNDES, 2022).

Diversos métodos de compatibilização são empregados, como o processo de polimerização *in situ* e a adição de copolímeros em bloco para estabelecer ligações entre polímeros (FERREIRA, 2020). Os aditivos compatibilizantes, como metacrilato de glicidila (GMA), ácido acrílico (AA) e anidrido maleico (MA), são frequentemente usados para melhorar a adesão. O MA, em particular, destaca-se pela acessibilidade e miscibilidade com a maioria dos polímeros usados em embalagens multicamada, reagindo com grupos hidroxila e amina para melhorar propriedades pós-reciclagem. Esses aditivos podem ser incorporados diretamente em estruturas multicamadas, tornando-as recicláveis e representando uma alternativa promissora (BRAGA et al, 2019).

Muitas vezes, a eficácia de compósitos depende da presença de agentes de acoplamento na interface entre seus componentes. Isso ocorre porque a função desses agentes é reduzir a tensão e promover a adesão interfacial entre as fases, resultando em uma dispersão mais eficiente do reforço nos polímeros. Consequentemente, há uma maior distribuição de fase e uma redução no tamanho dos aglomerados. Essa melhora na interação é possível devido a uma alteração na polaridade da cadeia polimérica em alguns sítios, dependendo do monômero adicionado, permitindo a interação ou reação entre polímeros apolares e a carga adicionada. A

Figura 8 apresenta um esquema de funcionamento da interação induzida pelos agentes de acoplamento (FAGUNDES, 2020).

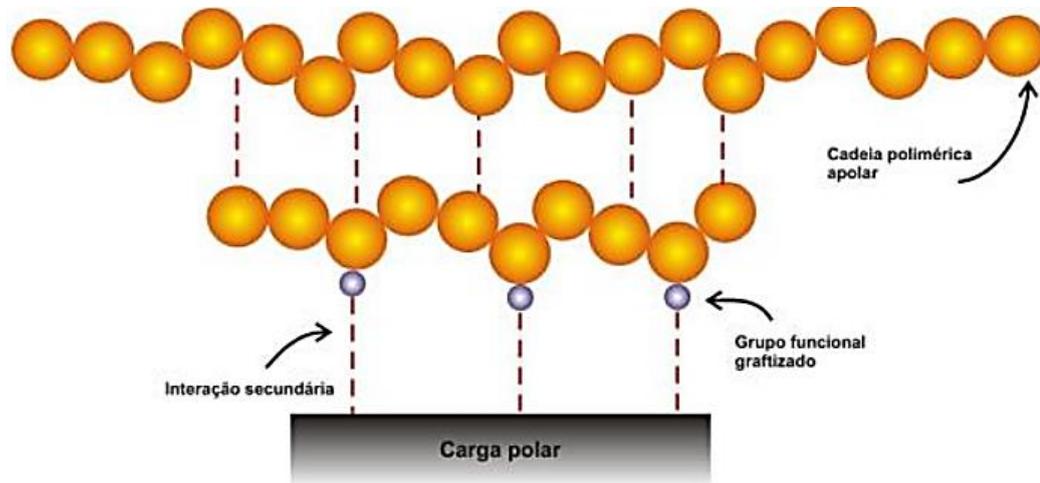


Figura 8. Funcionamento do agente de acoplamento (FAGUNDES, 2022).

A incorporação de agentes de acoplamento baseados em MA durante o processo de reciclagem em embalagens multicamadas tem sido relatada na literatura. Filmes de PP/PET/SiOx compatibilizados com polipropileno com anidrido maleico foram estudados (WYSER; LETERRIER; MÅNSON, 2000). Os resultados mostraram que a incorporação de 5% em massa de agente de acoplamento proporciona controle da microestrutura e propriedades de interface, melhorando consideravelmente as propriedades mecânicas do material reciclado e permitindo aplicações de alto valor agregado. Outra pesquisa investigou filmes de PET/PE compatibilizados com metacrilato de glicidila (E-GMA) ou PE-g-MA (UEHARA; FRANÇA; CANEVAROLO JR, 2015). Os estudos destacados incorporaram aditivos compatibilizantes durante o processo de reciclagem, o que pode resultar em custos para o reciclador e até mesmo impossibilitar a reciclagem dessas embalagens. Assim, a incorporação de um aditivo compatibilizante diretamente na estrutura multicamada é uma alternativa que pode solucionar o problema de resíduos compostos por materiais múltiplos, especialmente quando são reciclados em fluxos de PE ou PP. Portanto, embora esses aditivos compatibilizantes resultem em um material multicamada reciclável, sua incorporação direta pode influenciar a própria embalagem primária. Uma elucidação completa dessas influências é indispensável, pois além de interferir no desempenho do material, a possibilidade de migração do aditivo pode ser um fator limitante para seu amplo uso comercial (AUMNATE; RUDOLPH, 2019).

O PP, que possui resistência à tração e alta temperatura de distorção térmica, porém sua fragilidade em baixas temperaturas restringe sua aplicação em campos especializados, como o desenvolvimento de componentes e estruturas de alto desempenho. Nas últimas décadas, tem sido realizada uma quantidade substancial de pesquisas teóricas e experimentais sobre compósitos de PP para uma variedade de aplicações potenciais, incluindo retardante de chamas e aumento da resistência mecânica. O PP é intrinsecamente semicristalino e geralmente mostra falta de compatibilidade com a maioria dos outros polímeros, embora a inclusão de agentes de acoplamento e o processo de extrusão reativa possam torná-lo compatível com outros polímeros e permitir a adição de reforços. Os aditivos mencionados anteriormente, como anidrido maleico resina epóxi, ácido acrílico e copolímero estireno etileno butileno estireno (SEBS), são alguns dos compatibilizantes preferidos para o PP, pois reduzem significativamente a tensão interfacial entre os dois polímeros constituintes, melhorando a adesão do reforço ao PP e resultando em compósitos de alto desempenho (SINGH; KATIYAR; SINGH, 2023).

No presente momento, as preocupações crescentes com o meio ambiente em relação ao uso excessivo de polímeros e aditivos derivados do petróleo estão impulsionando a pesquisa de novos materiais poliméricos amigável do meio ambiente obtidos a partir de recursos naturais. A criação de compósitos verdes representa um salto significativo para solucionar esses problemas ambientais, uma vez que esses materiais inovadores combinam um polímero de fonte fóssil a um aditivo baseado em materiais naturais. A adição de cargas, aditivos ou polímeros naturais a polímeros termoplásticos fósseis oferece diversas vantagens, incluindo a redução de custos e da pegada de carbono equivalente (CO_2_{eq}) (RAPOPORT; LEVY; DOTAN, 2023).

2.5 ESTADO DA ARTE

O estudo de Soares et al (2022) sobre os cenários da reciclagem de embalagens multicamadas utilizou entrevistas em profundidade, planejamento de cenários e uma pesquisa online com especialistas para explorar o futuro da reciclagem de embalagens poliméricas multimateriais e multicamadas. Profissionais de diversas áreas, incluindo ciência de polímeros e economia industrial, contribuíram com perspectivas de diferentes países. O planejamento de cenários envolveu a identificação de incertezas críticas e a criação de cenários futuros, enquanto a pesquisa online buscou *feedback* sobre esses cenários e outros fatores relevantes para o futuro da reciclagem de embalagens. O estudo analisou quatro cenários futuros para a reciclagem de embalagens poliméricas multimateriais e multicamadas (MMPP), com base em duas variáveis principais: a pressão regulatória para a reciclagem e o avanço das tecnologias de triagem.

- i. **Reciclagem de alto desempenho:** Caracterizado por uma forte regulamentação e tecnologias avançadas de triagem, resultando em materiais reciclados de alta qualidade, semelhantes aos polímeros virgens. Este cenário é ideal, mas requer investimentos significativos.
- ii. **Reciclagem para hidrocarbonetos (*feedstock*):** Com uma regulamentação rigorosa, mas sem tecnologias avançadas de triagem, a reciclagem química para hidrocarbonetos torna-se uma solução viável, embora com desafios de consumo energético e custos elevados.
- iii. ***Business as Usual* (BAU):** Sem uma regulamentação forte ou tecnologias de triagem eficazes, a gestão de resíduos de MMPP permanece inalterada, com descarte em aterros ou recuperação de energia, especialmente em países de baixa renda.
- iv. **Reciclagem de baixo desempenho (*Downcycling*):** Com algumas tecnologias de triagem e uma regulamentação menos rigorosa, a reciclagem mecânica produz produtos de baixa qualidade, adequados para uso limitado e sem suportar uma economia circular robusta.

Em suma, a reciclagem de embalagens poliméricas multimateriais e multicamadas enfrenta desafios devido à complexidade de coleta e separação, com avanços tecnológicos esperados para melhorar o processo, especialmente em países de alta renda. A integração entre os atores da cadeia de valor é crucial para uma economia circular transparente, enquanto materiais baseados em fontes renováveis podem oferecer uma solução sustentável de curto prazo (SOARES et al, 2022).

O estudo conduzido por Seier et al (2024) no trabalho supracitado na seção de Introdução deste trabalho, estudaram as embalagens multicamadas alimentícias. As camadas internas e externas das embalagens foram investigadas utilizando FTIR, calorimetria diferencial de varredura (DSC) e microscopia para medir as espessuras das camadas. Posteriormente, foram processadas e testadas utilizando extrusão e moldagem por injeção, com a resistência ao impacto e a taxa de fluxo de fusão (MFR) medidas conforme normas ISO. A morfologia das superfícies fraturadas foi analisada por microscopia eletrônica de varredura (MEV), e as distribuições de Weibull dos tamanhos das partículas foram geradas. O estudo revelou que mais de 90% das 240 embalagens pós-consumo analisadas eram *multilayer*, contendo predominantemente PET (41,3%), PE-LD/LLD (37,4%), e PP (13,3%). A reciclagem dessas embalagens é desafiada pela complexidade das misturas poliméricas e pelos contaminantes presentes. Esses contaminantes incluem resíduos de alimentos, adesivos, tintas e outros

materiais, que podem chegar a até 12% da massa total da embalagem. Durante o processo de reciclagem, esses contaminantes podem causar degradação térmica e química, resultando em reciclados de qualidade inferior, com propriedades mecânicas inadequadas para aplicações exigentes. A conclusão do estudo enfatiza a necessidade de melhorar o design das embalagens para facilitar a reciclagem e a importância de uma infraestrutura e políticas adequadas para apoiar a transição para uma economia circular.

Em um estudo similar com embalagens poliméricas multicamadas, Ovchinnikov et al (2020) tiveram como foco o desenvolvimento de um novo material compósito polimérico utilizando resíduos de embalagens multicamadas recicladas. O objetivo principal foi criar um compósito de baixo custo que apresente propriedades aprimoradas para uma variedade de aplicações industriais. Para alcançar esse objetivo, os pesquisadores iniciaram o processo separando os resíduos de embalagens tetraédricas em seus componentes básicos: alumínio, polietileno e celulose. Essa separação foi feita utilizando um dispersor aerodinâmico, o que permitiu evitar o uso excessivo de água. A caracterização dos materiais resultantes dessa separação confirmou a presença de partículas de alumínio e celulose distribuídas uniformemente dentro do compósito. O compósito foi então preparado com uma composição de 61% de PolyAl (uma mistura de alumínio e polietileno), 23% de PolyCel (polietileno misturado com celulose) e 16% de Caps (que contém vários polímeros). O processo de fabricação envolveu a mistura por fusão desses componentes. As propriedades mecânicas e térmicas do compósito foram analisadas, revelando uma matriz polimérica composta de LDPE, HDPE e PP. Este novo material apresentou uma resistência à tração e um módulo de elasticidade superiores aos do polietileno puro, devido à inclusão de partículas de alumínio e celulose. No entanto, foi observado que o alongamento na ruptura do compósito foi reduzido em comparação com o polietileno. A conclusão do estudo destaca que o compósito polimérico desenvolvido a partir de resíduos de embalagens multicamadas recicladas não só possui propriedades mecânicas melhoradas, mas também é uma alternativa economicamente viável para diversas aplicações. O material apresenta benefícios ambientais consideráveis, especialmente por contribuir para a reciclagem de resíduos poliméricos difíceis de processar. Além disso, os pesquisadores sugerem que o desempenho do compósito pode ser ainda mais aprimorado com a adição de aditivos específicos, que poderiam melhorar sua elasticidade e fluidez, tornando-o mais adequado para uma gama ainda mais ampla de usos, como os agentes de acoplamento, por exemplo.

Para corroborar a sugestão de Ovchinnikov et al (2020) de que agentes de acoplamento podem aprimorar as propriedades dos compósitos desenvolvidos, Zhan et al (2024) estudaram

o processo de composição térmica de uma mistura composta por 70% de LDPE, 20% de LLDPE-g-MA (polipropileno linear de baixa densidade graftizado com anidrido maleico) e 10% de EVOH, para simular o reprocessamento termomecânico de embalagens poliméricas multicamadas. A mistura foi submetida a seis ciclos de composição térmica, moagem mecânica e moldagem por injeção para avaliar o comportamento do material durante a reciclagem e reutilização. O estudo analisou as propriedades mecânicas, morfológicas, químicas e térmicas. Os resultados mostraram que o LDPE puro apresentou comportamento típico de escoamento e encruamento, enquanto a mistura com EVOH, mais rígida, exibiu maior tensão de ruptura e ausência de escoamento. A rigidez aumentou com os ciclos de reprocessamento devido à maior interação entre LLDPE-g-MA e EVOH, evidenciada por géis de EVOH e aumento na cor escura do material. A análise FTIR confirmou a presença de grupos funcionais característicos dos componentes e a formação de novas ligações. As propriedades térmicas mostraram que os pontos de fusão do LDPE e LLDPE-g-MA se mantiveram estáveis, enquanto o ponto de fusão do EVOH diminuiu com os ciclos, indicando uma redução na cristalinidade de 30,8% para 5,6% no EVOH devido a interações com LLDPE-g-MA. As curvas de cristalização também mostraram uma diminuição na temperatura de cristalização do EVOH, refletindo restrições no processo de cristalização causadas pela reticulação entre LLDPE-g-MA e EVOH.

O estudo conduzido por Antón et al (2020) investigou a reciclagem de embalagens alimentícias multicamada, como Tetra Pak®, sem separar seus componentes (polietileno, alumínio e papelão). O objetivo é evitar o descarte em aterros ou incineração, e explorar uma nova forma de reutilização desses materiais. Para isso, eles propuseram um processo de fabricação que envolve a aplicação não simultânea de temperatura e pressão para unir várias camadas das embalagens, utilizando a fusão do polietileno como agente adesivo. Os autores analisaram como variáveis como temperatura, pressão, tempo e número de camadas influenciam nas propriedades mecânicas do material reciclado. Eles realizaram testes de flexão em três pontos para obter a resistência à flexão e o módulo de flexão, além de usar microscopia para estudar a morfologia antes e depois dos testes. A confiabilidade dos materiais foi determinada utilizando o método de Weibull, considerando tanto a resistência à flexão quanto a porosidade como propriedades críticas. Os resultados mostraram que os materiais reciclados apresentaram propriedades mecânicas comparáveis aos materiais à base de madeira, com boa confiabilidade em termos de resistência. Além disso, o estudo ressalta a importância de uma abordagem de ciclo de vida para a gestão de resíduos, destacando que a reciclagem direta dessas embalagens multicamada sem separação de componentes pode ser uma solução viável e

ambientalmente benéfica, evitando a destruição de matérias-primas valiosas e contribuindo para a economia de energia.

Em síntese, os estudos revisados destacam a complexidade e os desafios associados à reciclagem de embalagens poliméricas multicamadas e multimateriais, bem como as diversas abordagens para superar essas dificuldades. Os estudos supracitados revelam que, embora a reciclagem dessas embalagens enfrente obstáculos significativos, como a heterogeneidade dos materiais e a presença de contaminantes, há avanços promissores na melhoria dos processos e desenvolvimento de novos materiais reciclados. As técnicas investigadas, que vão desde a utilização de agentes de acoplamento para otimizar compósitos reciclados até a inovação em processos que não requerem a separação de componentes, oferecem alternativas valiosas para aumentar a eficiência e a viabilidade econômica da reciclagem. A integração dessas abordagens com uma infraestrutura de suporte adequada e políticas regulatórias eficazes pode potencializar a transição para uma economia circular, maximizando o valor dos resíduos poliméricos e minimizando o impacto ambiental. Estes avanços ressaltam a importância de continuar investindo em pesquisa e desenvolvimento, bem como em políticas públicas que promovam práticas sustentáveis e inovadoras no gerenciamento de resíduos. Este presente trabalho também busca levar em consideração todos os atuais avanços em relação à reutilização de embalagens multicamadas pós-consumo, minimizando e facilitando este processo, a fim de desenvolver compósitos com propriedades adequadas e passíveis de reintrodução na cadeia de transformação de polímeros, visto que foram encontrados poucos estudos sobre o tema.

2 MATERIAIS E MÉTODOS

3.1 MATERIAIS

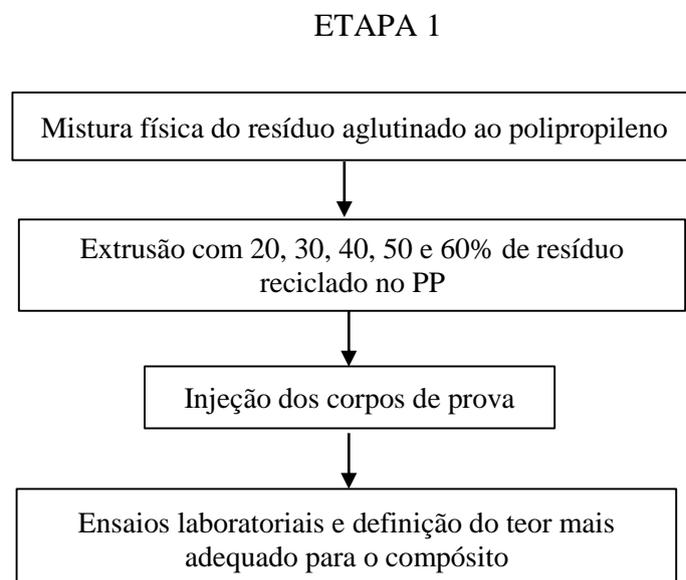
Os materiais utilizados foram polipropileno *grade* CP 442XP, copolímero heterofásico com índice de fluidez 6,0 g/10min, fornecedor Braskem, e os resíduos de embalagens flexíveis metalizadas foram separados e disponibilizados para o presente trabalho, oriundos da coleta seletiva de Caxias do Sul, aglutinados por uma recicladora caxiense.

Além disso, foi utilizado o agente de acoplamento Polybond 3200, que é um agente de acoplamento de polipropileno modificado com anidrido maleico de alta viscosidade, com teor entre 0,8 e 1,2% em massa, produzido pela *SI Group*.

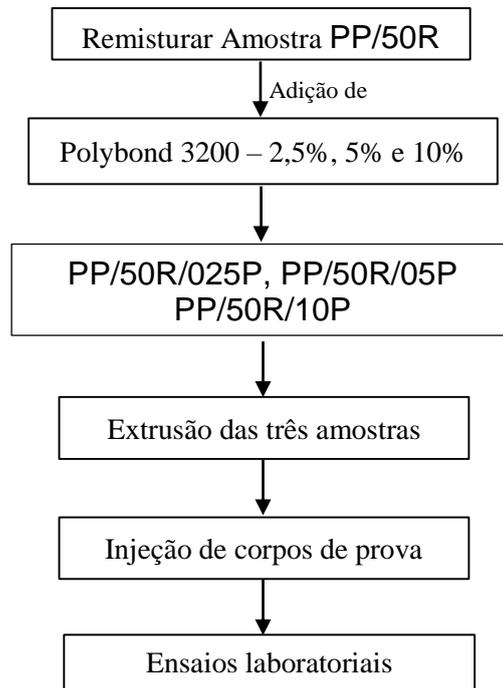
3.2 MÉTODOS

O presente trabalho foi desenvolvido em duas etapas principais, as quais correrão de acordo com o Fluxograma 1.

Fluxograma 1. Descrição das macroetapas da pesquisa, etapa 1 e 2 (A autora, 2024).



ETAPA 2



Foram misturados manualmente 20%, 30%, 40%, 50% e 60% em massa de resíduo (R) de embalagens flexíveis já aglutinados na matriz polimérica. Teores em concordância com o trabalho de Favaro et al (2017), que estudaram a resistência ao impacto de compósitos de polietileno com embalagens multicamadas. Os autores conseguiram adicionar de forma eficiente e criando compósitos com propriedades adequadas até 50% de resíduo. Desta forma, foi adicionado o percentual de 60%, para entender se os resultados obtidos com 50% se mantêm em percentuais maiores.

Cada mistura foi extrusada em extrusora monorosca marca Seibt, com temperatura variando de 160°C-220°C e velocidade de rotação da rosca de 60 rpm. A codificação das amostras está apresentada na Tabela 3. As amostras foram previamente secas em estufa com circulação de ar a 80°C por no mínimo 8h. As amostras foram moldadas por injeção em injetora marca HIMACO, modelo LH150-80, com temperaturas variando de 170°C -190°C. Foram moldados corpos de prova para ensaios de tração, flexão e impacto.

Tabela 3. Identificação das amostras na etapa 1 (A autora, 2024).

Amostra	Proporção PP/Reciclado
PP	PP
PP com 20% do resíduo	PP/20R
PP com 30% do resíduo	PP/30R
PP com 40% do resíduo	PP/40R
PP com 50% do resíduo	PP/50R
PP com 60% do resíduo	PP/60R

Após a finalização dos ensaios da etapa 1, foi definida a proporção com o melhor balanço entre percentual de adição de resíduo e propriedades térmicas e mecânicas. Desta forma, definido o compósito, a segunda etapa consistiu em refazer as misturas com o percentual escolhido e modificá-lo com o agente de acoplamento Polybond 3200 em concentrações de 2,5, 5 e 10% em massa, para avaliar a melhoria no compósito, gerando as amostras conforme Tabela 4. Estes teores foram utilizados com base na análise de Serra et al (2024) que estudaram compósitos de polipropileno com 30% de fibra de algodão, variando os teores de agente de acoplamento de 0% a 10%.

Tabela 4. Numeração das amostras na etapa 2 (A autora, 2024).

Amostra	Proporção PP/Reciclado
PP com 50% do resíduo reciclado	PP/50R
PP com 50% do resíduo reciclado + 2,5% POLYBOND 3002	PP/50R/025P
PP com 50% do resíduo reciclado + 5% POLYBOND 3002	PP/50R/05P
PP com 50% do resíduo reciclado + 10% POLYBOND 3002	PP/50R/10P

3.2.1 Espectroscopia no Infravermelho por Transformada de Fourier (FTIR)

A análise de Infravermelho com Transformada de Fourier é uma técnica analítica utilizada para identificar os grupos funcionais presentes em uma amostra e caracterizar sua composição química. Na análise, uma amostra é exposta a radiação infravermelha, que provoca vibrações nos grupos funcionais das moléculas. Essas vibrações são detectadas e registradas como um espectro, onde cada banda corresponde a uma frequência específica de vibração, associada a determinados tipos de ligações químicas. Dessa forma, o FTIR permite identificar os compostos presentes na amostra, auxiliando na análise de materiais orgânicos e inorgânicos,

como polímeros, compostos químicos e minerais. A análise foi realizada no modo de reflexão total atenuada (ATR), em um espectrofotômetro Nicolet IS10 Termo Scientific (EUA), por meio da média de 32 varreduras, no intervalo de 4000 a 400 cm^{-1} , com resolução de 4 cm^{-1} , para o as embalagens metalizadas após a reciclagem mecânica.

3.2.2 Microscopia Eletrônica de Varredura (MEV)

A morfologia de cada amostra foi analisada pela microscopia eletrônica de varredura por emissão de campo (MEV/FEG). O ensaio foi feito pós fratura do ensaio de resistência ao impacto. O equipamento utilizado é da marca Tescan (Tchéquia), modelo MIRA3. A tensão de aceleração utilizada foi de 10kV.

3.2.3 Massa Específica (ρ) e Índice de Fluidez (MFI)

A determinação da massa específica foi realizada com base na norma ASTM D792-13. As amostras foram pesadas em balança analítica e posteriormente, mergulhadas em etanol e pesadas novamente. A massa específica foi obtida através da média de três medições para cada uma das placas amostradas.

O índice de fluidez das amostras foi determinado com auxílio de um plastômetro baseado na norma ASTM D1238-10, nas seguintes condições 230°C e 2,16kg.

3.2.4 Análise Termogravimétrica (TGA)

A análise termogravimétrica é uma técnica que mede a mudança de massa de um material em função da temperatura ou do tempo, permitindo avaliar a estabilidade térmica e a composição de materiais. Já a análise derivada termogravimétrica (DTG) é uma técnica complementar que registra a taxa de perda de massa, fornecendo informações detalhadas sobre os estágios de decomposição térmica dos materiais. A análise foi realizada utilizando um equipamento TGA-50, Shimadzu (Japão), considerando um intervalo da temperatura ambiente até 600°C a uma taxa de aquecimento de 10 °C/min, em atmosfera de N₂. A massa de cada amostra foi de aproximadamente 10 mg.

3.2.5 Calorimetria Exploratória Diferencial (DSC)

Foram avaliadas também as propriedades térmicas dos materiais, no equipamento NETZSCH DSC300 Classic. As condições de análise ocorrerão a uma taxa de 10°C min em atmosfera de N₂. A primeira corrida foi realizada a temperatura ambiente até 220°C, com resfriamento até aproximadamente -50°C, já a segunda corrida estendeu-se até 220°C.

3.2.6 Ensaio de Propriedades Mecânicas: Tração, Flexão e Impacto

As amostras para os ensaios mecânicos de tração, flexão e impacto foram previamente acondicionadas à temperatura de 23°C e umidade relativa do ar de 50% por um período de 48 horas. O ensaio de tração foi realizado em cinco corpos de prova com velocidade de ensaio de 5 mm.min⁻¹, conforme ASTM D638-10. Os ensaios de flexão foram realizados de acordo com a ASTM D790-03 em máquina universal de ensaios EMIC DL3000, em cinco corpos de prova. A velocidade de ensaio utilizada foi de 1,5 mm.min⁻¹. Os ensaios de resistência ao impacto Izod, com entalhe, foram realizados em equipamento CEAST Resil 25 com martelo de 1J, conforme a ASTM D256-04, em dez corpos de prova.

3.2.7 Análise Estatística

A diferença estatística entre médias foi determinada por análise de variância (ANOVA) e por teste de Tukey, ambos com intervalo de confiança de 95%. As análises foram feitas utilizando o software OriginPro versão 8.5.

4 RESULTADOS E DISCUSSÃO

4.1 RESULTADOS DAS ANÁLISES DO RESÍDUO

4.1.1 FTIR

O espectro de FTIR do resíduo analisado, proveniente de embalagens flexíveis laminadas com alumínio recicladas e aglutinadas, apresenta diversas bandas de absorção que indicam a presença de diferentes grupos funcionais, conforme Figura 9.

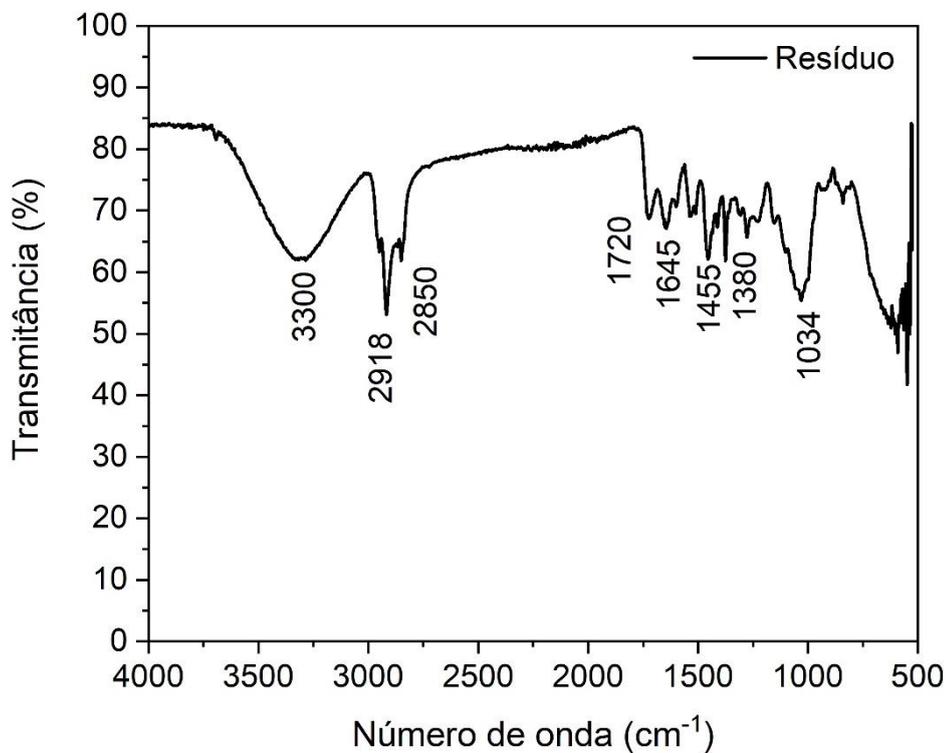


Figura 9. Espectro de FTIR do resíduo analisado (A autora, 2024).

A banda localizada em 3300 cm^{-1} sugere a presença de grupos hidroxila, comuns em álcoois ou ácidos carboxílicos, possivelmente resultantes de processos de oxidação ou hidrólise do material. As bandas em 2918 cm^{-1} e 2850 cm^{-1} são atribuídas às vibrações de estiramento assimétrico e simétrico dos grupos metileno, indicando a presença de polímeros alifáticos como o polietileno (TSOG et al, 2024).

A absorção em 1720 cm^{-1} é característica dos grupos carbonila, sugerindo a presença de compostos como ésteres, cetonas ou ácidos carboxílicos, que podem estar presentes como aditivos ou contaminantes, ou ainda como produtos de degradação do polímero. A banda em

1645 cm^{-1} pode estar relacionada às vibrações de deformação da água ou a grupos carbonila conjugados, indicando possíveis interações com o ambiente ou com aditivos presentes (SVEČNJAK et al, 2015).

As bandas em 1455 cm^{-1} e 1380 cm^{-1} são indicativas das vibrações de deformação dos grupos metileno (CH_2) e metila (CH_3), reforçando a presença de uma matriz polimérica alifática. Finalmente, a absorção em 1034 cm^{-1} sugere a presença de estiramentos C-O, que podem indicar a presença de éteres ou álcoois (SONG et al, 2018).

Resultados semelhantes foram obtidos no trabalho de Tsog et al (2024), onde foram analisados termicamente os resíduos poliméricos para a fabricação de combustíveis. As bandas examinadas no resíduo constituído por uma mistura de polímeros não segregados e não limpos, foram em 2930 cm^{-1} e 2850 cm^{-1} e estão associados à presença de grupos metileno (CH_2). Uma banda obtida em 1460 cm^{-1} corresponde às vibrações de deformação assimétrica dos grupos CH_2 e CH_3 , enquanto a banda em 1375 cm^{-1} está relacionado à vibração de flexão dos grupos CH_3 . Uma banda fraca observada pelos autores em 1645 cm^{-1} e sugere a presença de alcenos. Além disso, a banda forte em 720 cm^{-1} foi atribuída às vibrações de alongamento aromático, conforme confirmado por vários estudos. A vibração observada em 910 cm^{-1} é devida à presença de benzeno dissubstituído.

Essas características espectrais refletem a diversidade dos materiais originalmente presentes nas embalagens recicladas e também evidencia que além dos constituintes elementares, o material possui sinais de contaminação orgânica, inorgânica, e uma mistura de materiais que corrobora com o local em que foram coletadas as amostras e a forma a qual foram processadas.

4.1.2 MEV/EDS

A análise dos resíduos de embalagens alimentícias flexíveis recicladas, utilizando MEV e Espectroscopia por Dispersão de Energia (EDS), revela importantes insights sobre a microestrutura e composição desses materiais reciclados. A Figura 10, contém as análises de MEV em 25x e 1000x. O MEV com ampliação de 25x destaca uma superfície notavelmente rugosa e heterogênea, evidenciando a presença de partículas de tamanhos e formas variadas. Essa variação na morfologia pode ser atribuída à diversidade de polímeros e materiais presentes nas embalagens originais, os quais, durante o processo de reciclagem, não foram totalmente desintegrados ou, alternativamente, sofreram aglomeração.

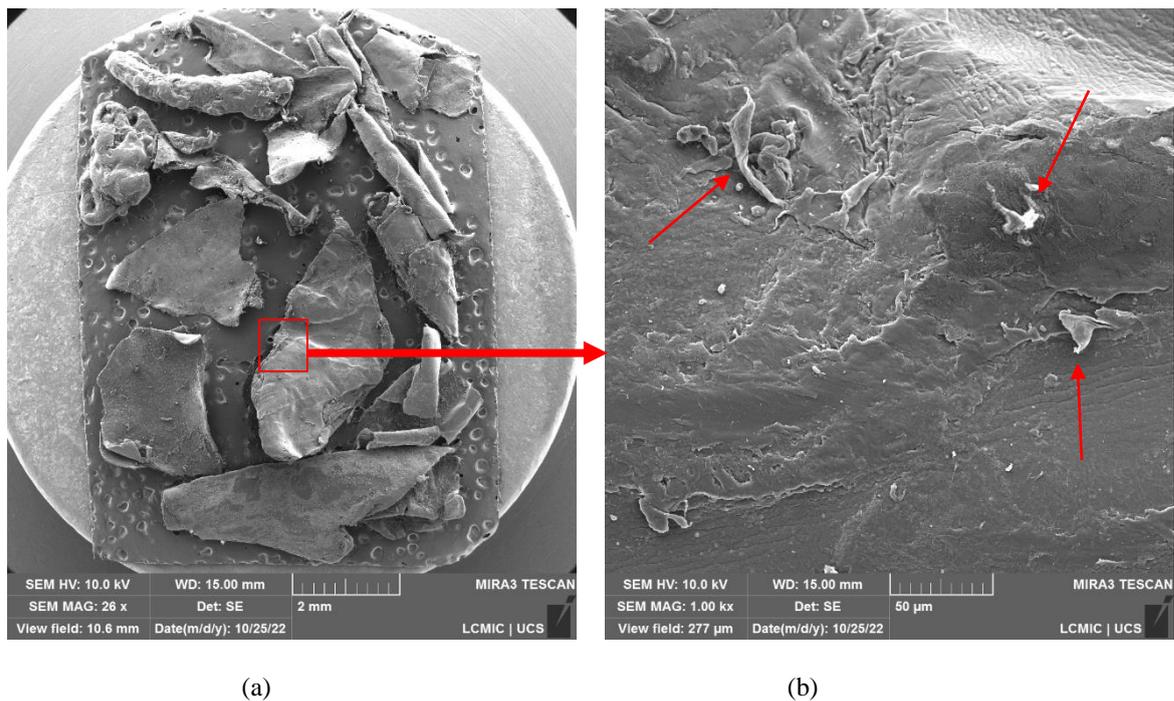


Figura 10. Micrografias obtidas para o resíduo, em 25x (a) e 1000x (b) (A Autora, 2024).

O resultado ampliado em 1000x revela microfissuras e delaminações que são indicativas de má adesão entre diferentes camadas de materiais. Estas características são comuns em materiais compósitos formados por componentes com propriedades térmicas e mecânicas divergentes. A presença de tais defeitos pode comprometer a integridade estrutural do material reciclado, diminuindo sua resistência mecânica, especialmente sob condições de carga de flexão e impacto (MIRI et al, 2019).

Os resultados de EDS complementam estas observações ao mapear a composição elementar das amostras, destacando a presença significativa de alumínio (Al), identificado pelos pontos em rosa na Figura 11.

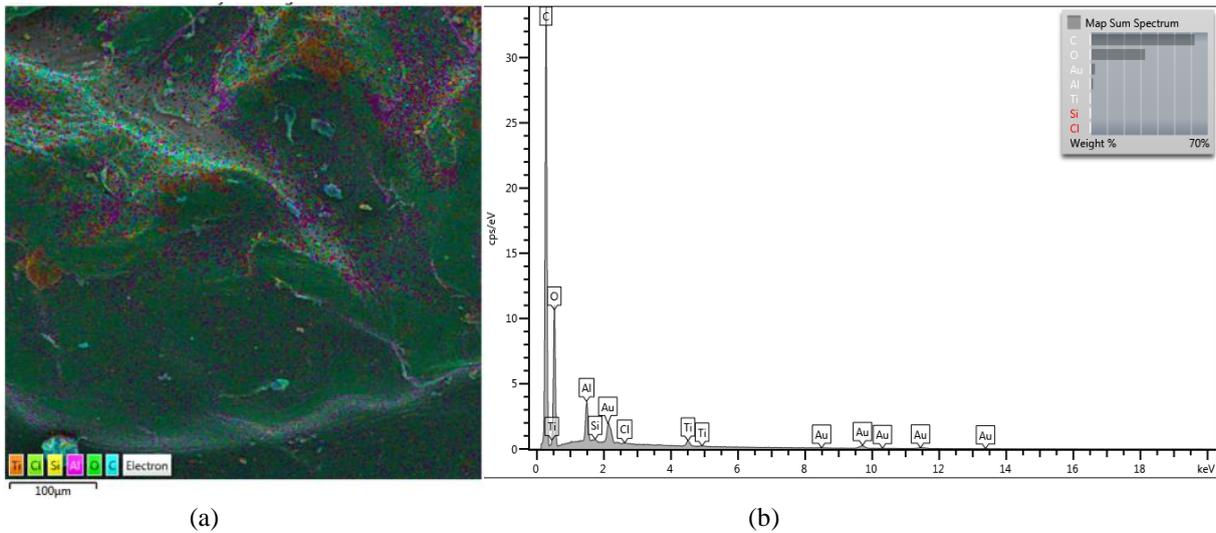


Figura 11. Análise de EDS do resíduo (A Autora, 2024).

O alumínio é comumente utilizado em embalagens para alimentos devido às suas propriedades de barreira contra gases e umidade. No entanto, sua presença nos materiais reciclados, em uma distribuição não uniforme, sugere uma dificuldade em separar completamente este metal dos polímeros durante o processo de reciclagem. Essa mistura de materiais pode resultar em uma matriz polimérica com propriedades heterogêneas e menos previsíveis (SOARES et al., 2023).

Os resultados obtidos com MEV e EDS indicam que os resíduos de embalagens alimentícias flexíveis recicladas apresentam limitações significativas em termos de homogeneidade e integridade estrutural. A presença de microfissuras e delaminações, juntamente com a detecção de alumínio e outros constituintes, como cloro, silício, titânio, apontam para uma complexidade no reprocessamento desses materiais, que pode limitar sua aplicação em novos produtos. Esses desafios ressaltam a necessidade de desenvolver métodos de reciclagem mais eficazes, capazes de separar e purificar os componentes de forma mais eficiente. Além disso, sugerem uma reavaliação no design das embalagens, visando facilitar sua reciclagem e reduzir a inclusão de materiais que dificultem o reprocessamento (HUANG et al, 2022).

4.1.3 Densidade

A densidade medida para o resíduo está apresentada na Tabela 5. A densidade de um resíduo de embalagens flexíveis poliméricas, que foi medida em 0,947 g/cm³, é

significativamente maior do que a densidade teórica do polipropileno copolímero, que é de 0,890 g/cm³. Esta diferença pode ser explicada pela natureza e composição do material de embalagem flexível reciclado.

Tabela 5. Densidade do Resíduo (A autora, 2024).

Amostra	Densidade (g/cm ³)
Resíduo	0,947 ± 0,003

Os resíduos de embalagens flexíveis poliméricas frequentemente são compostos por uma mistura de diferentes polímeros e aditivos, que podem incluir não apenas polímeros e plastificantes, mas também contaminantes orgânicos, mas também contaminantes inorgânicos, como o alumínio, elevando a densidade do resíduo.

4.2 RESULTADOS DAS ANÁLISES DA ETAPA 1

4.2.1 MEV/EDS

A Figura 12 demonstra as análises de microscopia eletrônica de varredura com aumento de 1000x. Enquanto a amostra de PP mostra-se uniforme e sem contaminantes aparentes, as demais amostras começam a apresentar fases heterogêneas, em que não houve uma completa compatibilidade entre a fase matriz, o polipropileno, e o resíduo. Esta heterogeneidade está representada nas micrografias pelas setas vermelhas.

No PP, a superfície apresenta-se relativamente lisa e homogênea, com poucas irregularidades. Esta característica é típica de um material polimérico, onde a estrutura molecular é mais ordenada e uniforme. As superfícies lisas sugerem uma resistência mecânica, uma vez que não há evidências de microfissuras ou defeitos que possam atuar como pontos de iniciação para a fratura (HUANG et al, 2022).

A análise das microestruturas dos compósitos de polipropileno (PP) virgem e PP com diferentes proporções de resíduos de embalagens flexíveis recicladas, conforme observado nas micrografias, revela variações na morfologia das superfícies decorrentes da adição de materiais reciclados no comportamento do material.

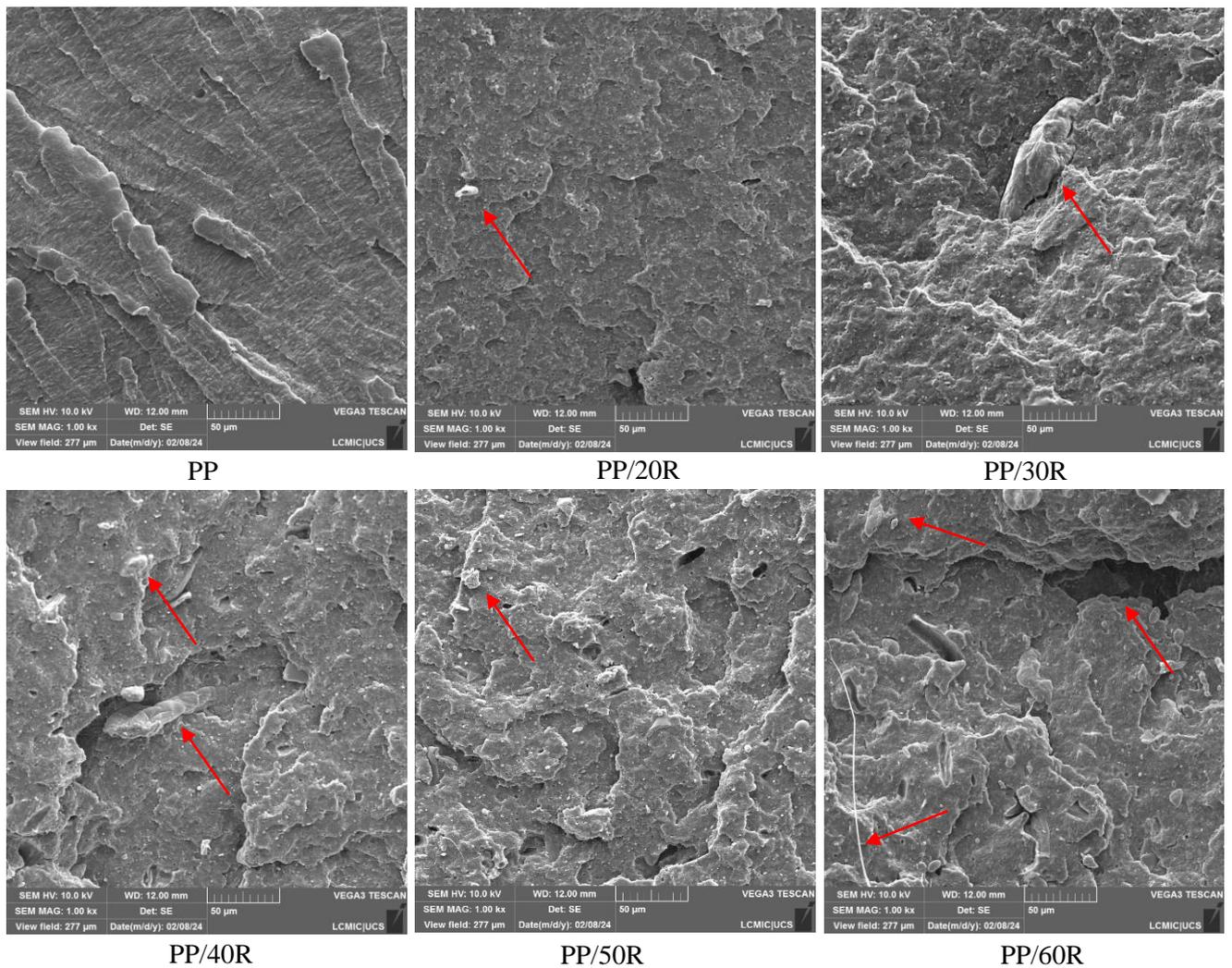


Figura 12. Micrografias do PP e dos 5 compósitos produzidos na etapa 1 (A autora, 2024).

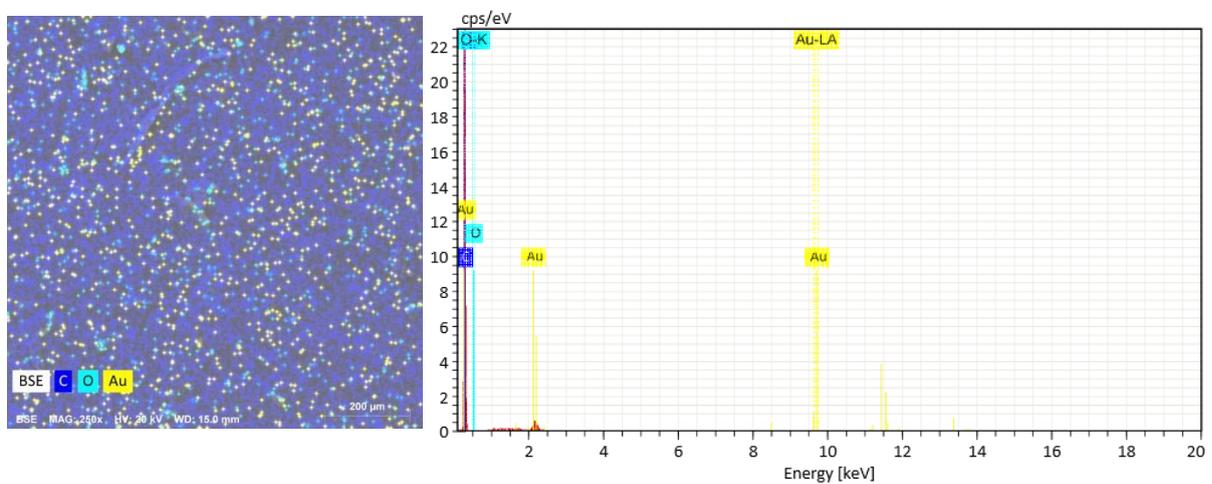
Conforme a proporção de resíduos reciclados aumenta, observa-se uma alteração na morfologia das superfícies. Nos compósitos PP/20R e PP/30R, começa a surgir uma maior irregularidade superficial e a presença de partículas incorporadas na matriz, como indicado pelas setas. Estas partículas podem ser fragmentos de polímeros ou contaminantes presentes nos resíduos de embalagens recicladas. A irregularidade superficial aumentada e a presença de inclusões indicam uma diminuição na uniformidade do material, o que pode comprometer suas propriedades mecânicas, especialmente sob tensões de impacto e flexão (HUANG et al, 2022).

Nos compósitos com maiores proporções de resíduos reciclados, PP/40R, PP/50R e PP/60R, micrografias mostram uma estrutura ainda mais heterogênea e desorganizada. A quantidade e tamanho das inclusões aumentam, e as superfícies apresentam microfissuras e delaminações mais pronunciadas. Essas características sugerem uma diminuição da interação entre a matriz polimérica e os componentes dos resíduos, o que é indicativo de má adesão entre

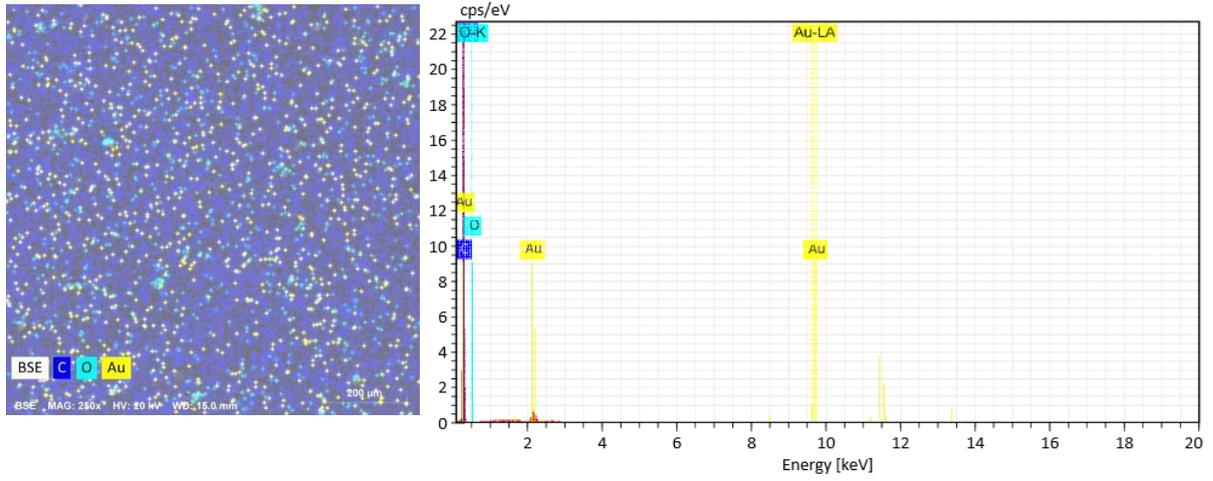
as fases. A presença de microfissuras é particularmente preocupante, pois elas podem atuar como iniciadores de falhas, resultando em uma menor resistência mecânica e uma menor durabilidade dos materiais reciclados (SEIER et al, 2023).

Resultado semelhante foi obtido no estudo de Seier et al (2024), em que foi observado que as morfologias de composições comuns de resíduos pós-consumo contendo componentes similares, como LDPE, LLDPE e EVOH, exibiram morfologias mais finas e apenas pequenas partículas distribuídas homogêneas em comparação com misturas contendo mais polímeros estruturalmente diferentes, como por exemplo PET, LDPE, LLDPE, PP e EVOH. A medida que foi sendo incorporado resíduo na amostra de PP, a sua estrutura foi ficando mais rugosa e irregular, caracterizando materiais diferente e/ou incompatíveis entre si.

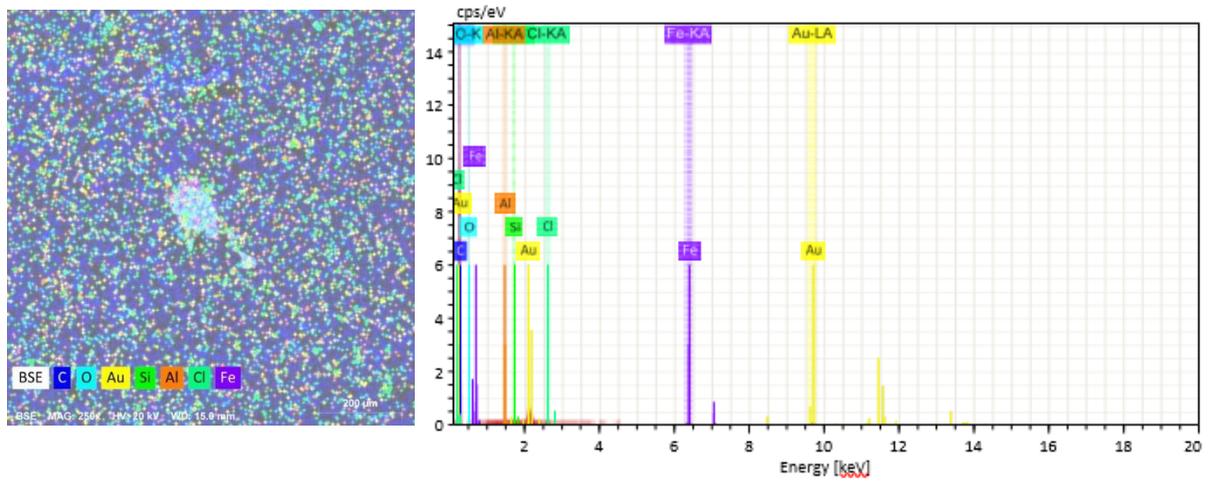
Essas observações sugerem que, embora seja possível integrar resíduos de embalagens flexíveis recicladas em uma matriz de PP, há uma clara redução nas propriedades mecânicas com o aumento da proporção de resíduos. A falta de compatibilidade entre os diferentes materiais presentes nos resíduos e o PP parece ser um fator crítico, podendo resultar em uma estrutura interna mais frágil e defeituosa. Para complementar os resultados obtidos para o MEV, na Figura 13 encontram-se as análises de EDS para as amostras com 20% a 60% de resíduo.



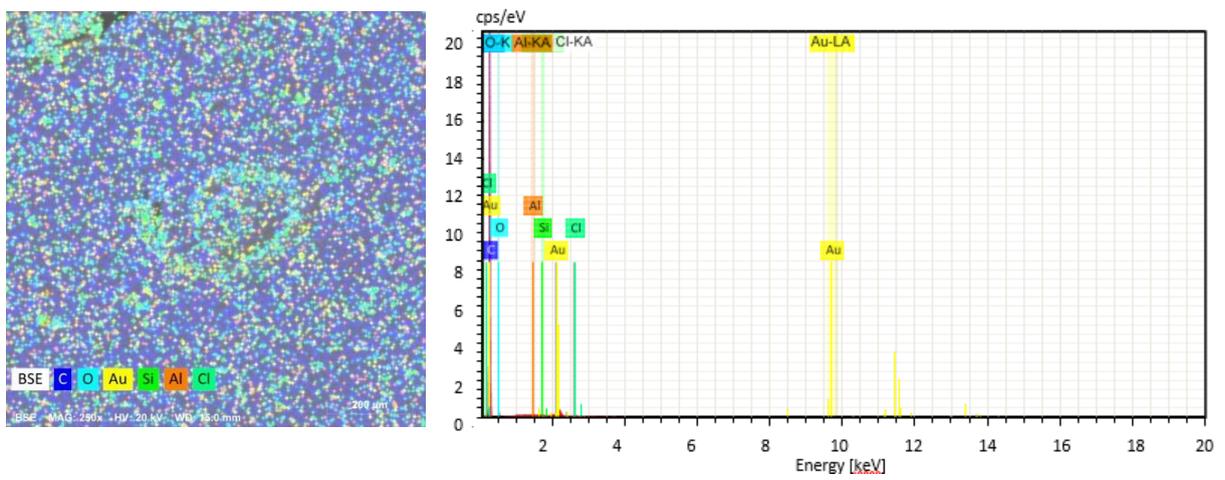
PP/20R



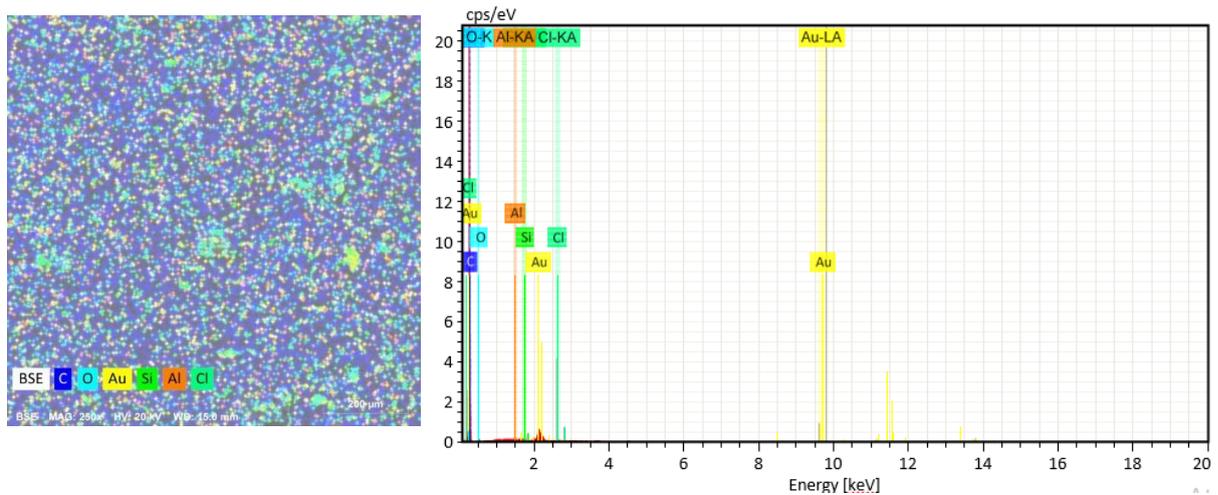
PP/30R



PP/40R



PP/50R



PP/60R

Figura 13. Análises de EDS do PP e dos 5 compósitos produzidos na etapa 1 (A autora, 2024).

Os resultados de EDS complementam a análise de MEV, fornecendo informações sobre a composição elementar das amostras. A técnica de EDS é utilizada para mapear a distribuição de elementos específicos na superfície dos compósitos. Nas amostras analisadas, foi detectada a presença de elementos como carbono (C), oxigênio (O), silício (Si), alumínio (Al), cálcio (Ca) e cloro (Cl). A presença de alguns desses elementos sugere a incorporação de materiais inorgânicos, possivelmente provenientes de aditivos ou contaminantes dos resíduos de embalagens recicladas. A presença de alumínio, em particular, confirma a existência de embalagens laminadas. Pauletti et al. (2021) também evidenciou na análise das microestruturas dos flocos de Poly-Al após tratamento com solução alcalina de NaOH 3 M por 24 horas a presença de alumínio. Este processo revelou que, apesar da remoção significativa do alumínio, ainda restaram algumas regiões com depósitos de alumínio e sódio, indicando a necessidade de um tratamento mais prolongado para a remoção completa. O estudo sobre os resíduos de Poly-Al investigou um método para reciclagem das camadas de polietileno e alumínio presentes em embalagens cartonadas pós-consumo. A estrutura analisada mostrou-se complexa, pois combinam papel, polietileno e alumínio, tal qual o presente estudo (PAULETTI et al, 2021).

Na análise comparativa entre os compósitos de PP com diferentes porcentagens de resíduos de embalagens flexíveis recicladas e os resíduos reciclados, subitem 4.1.2, observam-se diferenças marcantes na morfologia e composição elementar. No subitem 4.1.2, as micrografias dos resíduos reciclados mostram uma estrutura mais heterogênea e irregular, com a presença evidente de partículas de diferentes tamanhos e formas, além de fissuras e áreas de delaminação. Essas características indicam uma natureza complexa e não homogênea dos

resíduos, composta por diversos materiais poliméricos e possíveis contaminantes inorgânicos (ERIKSEN et al, 2018).

Quando esses resíduos são incorporados no PP, como nas amostras PP/20R, PP/30R, PP/40R, PP/50R e PP/60R, as micrografias mostram que a heterogeneidade e a irregularidade observadas nos resíduos são parcialmente transferidas para os compósitos. No entanto, a extensão e a distribuição dessas irregularidades variam conforme a quantidade de resíduos incorporados. As amostras com maiores porcentagens de resíduos (PP/50R e PP/60R) apresentam uma superfície mais irregular e uma maior presença de aglomerados de partículas, sugerindo que a compatibilidade limitada entre o PP e os materiais dos resíduos resulta em uma dispersão menos eficiente.

4.2.2 Densidade

A densidade, uma propriedade inerente ao material, guarda uma relação direta com sua cristalinidade, impactando características fundamentais como dureza, módulo de elasticidade e resistência ao escoamento (CERQUEIRA, 2018). O resultado do ensaio de densidade se encontra na Figura 14.

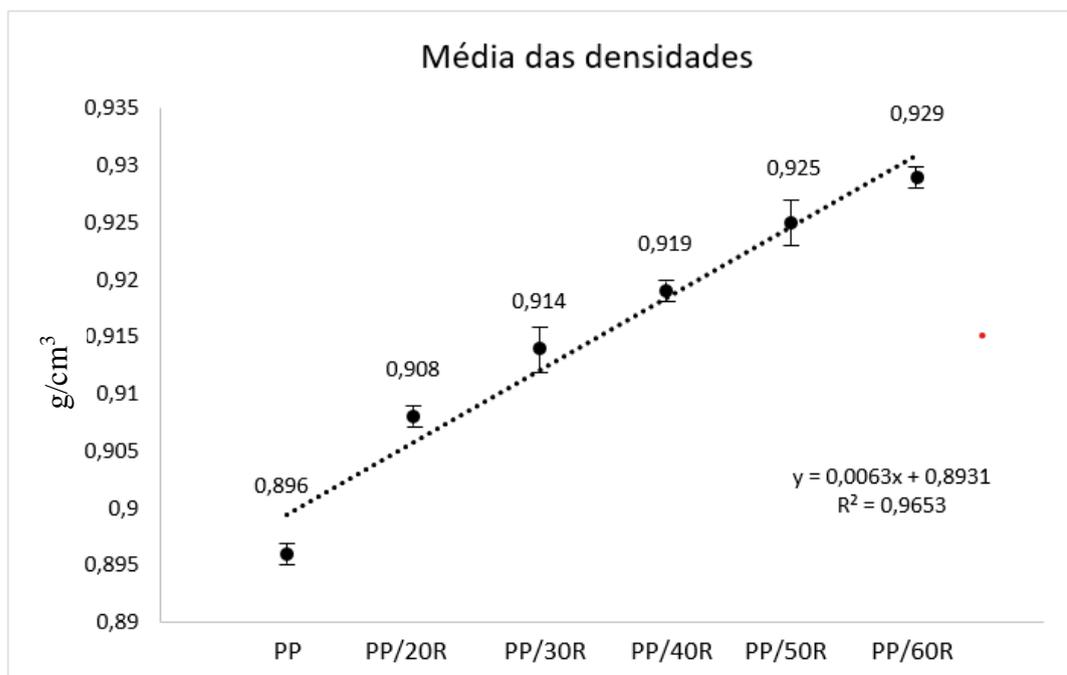


Figura 14. Determinação de densidade das amostras (A autora, 2024).

De acordo com o resultado do ensaio de densidade das amostras, observa-se que à medida que é adicionado o resíduo reciclado, a densidade das amostras aumenta. Isso se dá por alguns

fatores, tal qual a densidade do alumínio presente na embalagem, outros tipos de materiais poliméricos que tenham densidades mais elevadas e que fazem parte das embalagens multicamada e também pela presença de contaminantes. Pelo ajuste linear, o R^2 foi de 0,9653, mostrando que devido à concentração de material reciclado adicionado entre 20 e 60% de reciclado a densidade aumentou de forma proporcional aproximadamente 0,57% a cada 10% de adição de resíduo.

4.2.3 Índice de Fluidiez

O mesmo efeito que ocorreu com a densidade acontece com a viscosidade do material, conforme se dá o aumento do percentual de adição do resíduo reciclado, ela aumenta. A viscosidade mede a resistência interna de um fluido ao fluxo, e polímeros mais viscosos tendem a ser mais desafiadores de processar por injeção (NOFAR; OZGEN; GIRGINER, 2019). Em contraste, o MFI reflete a facilidade com que um polímero escoar, sendo mais alto em materiais de fácil processamento. Em geral, há uma relação inversa entre MFI e viscosidade: materiais com alto MFI geralmente exibem baixa viscosidade, facilitando seu processamento. Por este motivo, conforme a Tabela 6, o índice de fluidez (MFI) reduz proporcionalmente nas amostras testadas.

Tabela 6. MFI das amostras (A autora, 2024).

Amostra	MFI (g/10 min)
PP	9,44 ± 0,23 ^a
PP/20R	6,89 ± 0,07 ^b
PP/30R	6,88 ± 0,27 ^b
PP/40R	6,68 ± 0,32 ^{bc}
PP/50R	6,44 ± 0,42 ^c
PP/60R	6,46 ± 0,07 ^{dc}

Obs.: Média ± desvio padrão. Ao avaliar o resultado, letras diferentes indicam médias estatisticamente diferentes entre si (p-valor < 0,05).

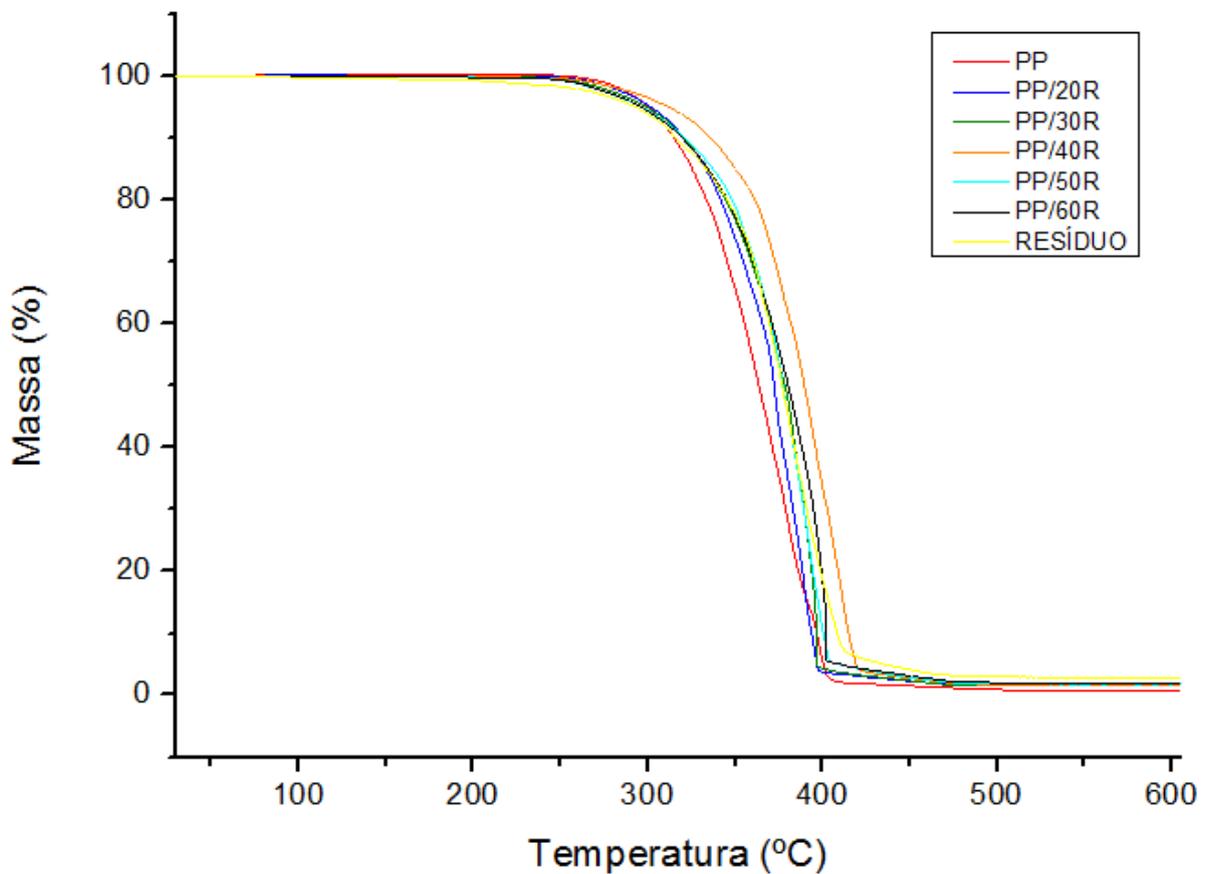
O polipropileno, um polímero amplamente utilizado para moldagem por injeção, é reconhecido por sua boa moldabilidade e processabilidade. Polímeros com índices de fluidez acima de 3,5 g/10min podem ser indicados para moldagem por injeção. O PP grade CP442XP foi ensaiado e obtido um resultado de 9,44 g/10min, enquanto que as amostras com adição de resíduo reciclado reduziram o MFI devido às cargas/contaminantes que ali se encontram, principalmente materiais que não fluem, como o alumínio e outros contaminantes. Mesmo tendo uma redução do MFI, os compósitos mostraram um MFI muito próximo, indicando que

o processamento se dará de forma muito parecida, quanto ao fluxo de injeção (ENGEL et al, 2004).

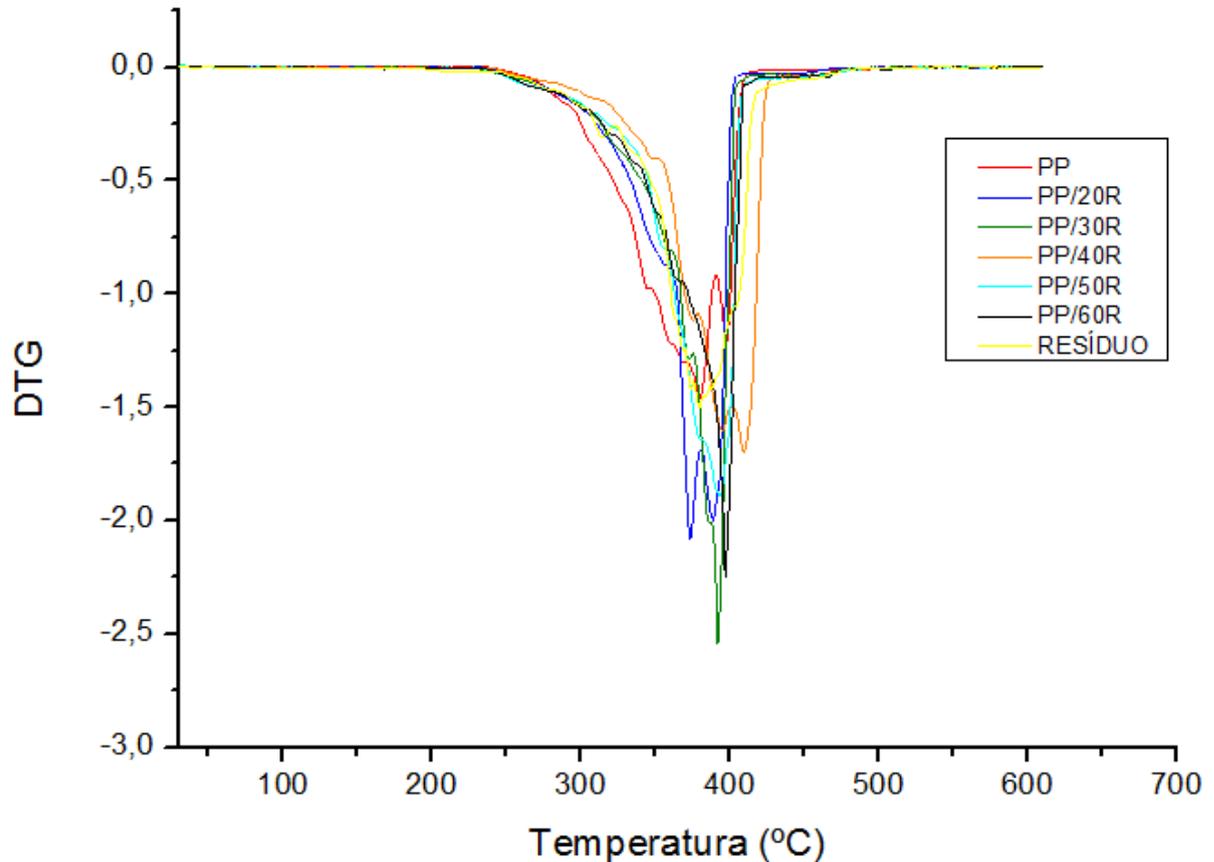
Um estudo semelhante foi conduzido por FERG e BOLO (2013), onde eles investigaram e compararam o comportamento do fluxo de polipropileno (PP) reciclado e virgem utilizando o método MFI para moldagem por injeção de novos estojos e tampas de bateria. Suas conclusões destacaram que diversos fatores podem influenciar as propriedades do fluxo fundido, incluindo a presença de cargas, impurezas e polietileno na matriz polimérica.

4.2.4 Análise Termogravimétrica

Já a análise termogravimétrica, foi conduzida com a finalidade de examinar as temperaturas de decomposição tanto dos materiais utilizados quanto dos compósitos. Durante a investigação, foi avaliada a variação da massa em relação à temperatura. As curvas resultantes para os diferentes materiais analisados são apresentadas na Figura 15.



(a)



(b)

Figura 15. Curva termogravimétrica (a) e primeira derivada (b) dos materiais avaliados, referentes a etapa 1 (A autora, 2024).

Pelo que pode-se observar da Figura 15 as amostras apresentam um único evento de perda de massa que inicia em 250°C e se estende até 390°C. Este resultado indica que, quanto as propriedades térmicas do material, as amostras com incorporação de resíduo obtiveram resultados bem próximos ao PP, evento que demonstra que a incorporação de até 60% em massa de resíduo não afeta de forma considerável as propriedades térmicas do polipropileno.

O parâmetro T_{3%} (°C) representa a temperatura na qual ocorre uma perda de massa de 3% durante o ensaio termogravimétrico. Essa temperatura pode indicar o início da degradação térmica do material, fornecendo informações importantes sobre sua estabilidade térmica. Já o T_{Pico} (°C) refere-se à temperatura de pico, onde a taxa de decomposição térmica do material atinge seu valor máximo. Essa temperatura indica o ponto em que a decomposição do material é mais significativa, destacando os momentos críticos do processo de degradação térmica. Por fim, o teor de cinzas a 600 °C indica a quantidade de resíduo inorgânico deixado após a queima do material a uma temperatura específica. Esse valor é uma medida da quantidade de materiais não inflamáveis presentes na amostra, fornecendo informações sobre a composição do material

e sua capacidade de resistir a altas temperaturas sem degradação (FERREIRA et al, 2019). Estes dados estão compilados na Tabela 7.

Tabela 7. Análise termogravimétrica das amostras (A autora, 2024).

AMOSTRA	T_{3%} (°C)	T_{Pico} (°C)	Teor de Cinzas a 600 °C
PP	290,8	379,1 e 397,3	0,86
RESÍDUO	274,7	381,4	2,82
PP/20R	289,5	372,9 e 388,7	1,91
PP/30R	284,9	370,5 e 392,5	1,54
PP/40R	295,8	394,9 e 410,7	1,67
PP/50R	280,7	401,6	1,77
PP/60R	280,9	402,3	1,91

A partir desses dados, pode-se inferir que as amostras de PP com diferentes quantidades de resíduo reciclado apresentam uma tendência geral de diminuição na temperatura de início da degradação térmica (T_{3%}) em comparação com o PP. Isso pode ser atribuído à presença de resíduo reciclado, que pode conter impurezas ou materiais com menor estabilidade térmica. Além disso, as amostras com resíduo reciclado mostram uma variação nas temperaturas de pico (T_{Pico}), indicando que a adição de resíduo pode afetar a natureza e a extensão da degradação térmica. Notavelmente, o resíduo reciclado em si tem um pico com temperatura mais baixa em comparação com as amostras compostas. Além disso, nas amostras de PP, PP/20R, PP/30R e PP/40R, a degradação térmica do polipropileno copolímero (PP) é caracterizada pela presença de dois picos distintos na análise termogravimétrica, as quais correspondem à degradação das duas fases principais do material: a fase de polietileno e a fase de polipropileno. O primeiro pico, geralmente observada a uma temperatura mais baixa, está associada à decomposição térmica da fase etilênica, que possui maior estabilidade térmica em comparação à fase propilênica. O segundo pico, que ocorre a uma temperatura mais alta, representa a degradação da fase de PP, que é mais resistente ao calor. Essas bandas distintas refletem a natureza bifásica do copolímero, onde cada fase apresenta uma resistência térmica diferente, evidenciando a complexidade do processo de degradação térmica do material (ADNAN et al, 2023).

Por fim, o teor de cinzas a 600 °C aumenta com o aumento do resíduo reciclado nas amostras de PP, o que sugere uma maior quantidade de materiais inorgânicos presentes na composição. Isso pode ser devido à presença de aditivos, cargas minerais ou outras impurezas presentes no resíduo reciclado.

4.2.5 DSC

A análise de DSC foi realizada com o intuito de entender a influência da adição do resíduo no grau de cristalinidade, na temperatura de cristalização e fusão das amostras, bem como a diferença de entalpia relativa aos compósitos. O termograma resultante da análise do primeiro aquecimento está apresentado na Figura 16.

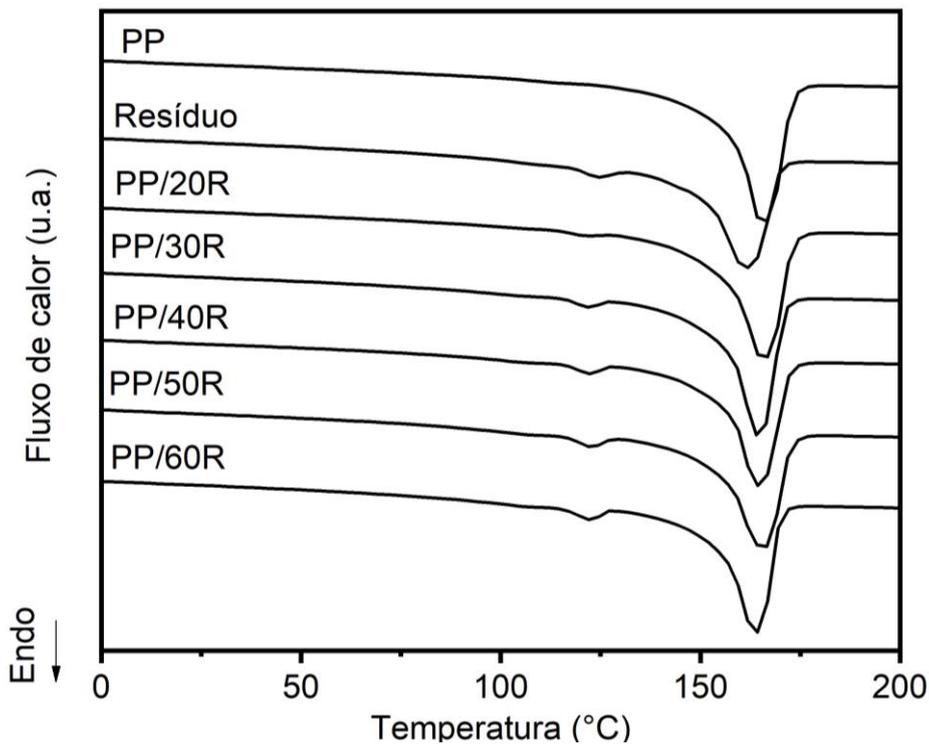


Figura 16. Termogramas para a primeira etapa de testes (A autora, 2024).

Para melhor compreender os resultados desta análise, os valores retirados da Figura 16 estão compilados na Tabela 8.

Tabela 8. Temperaturas, entalpia e cristalinidade das amostras avaliadas por DSC (A autora, 2024).

Amostra	T_c (°C)	T_m (°C)	ΔH (J.g ⁻¹)	x_c (%)
PP	121,0	166,6	77,5	37,1
RESÍDUO	110,9	124,8 e 161,9	60,6	29,0
PP/20R	121,0	124,6 e 169,6	71,8	34,4
PP/30R	121,1	124,7 e 169,2	69,8	33,4
PP/40R	120,8	122,2 e 169,3	66,3	31,7
PP/50R	118,6	122,0 e 167,0	64,7	30,9
PP/60R	118,6	122,2 e 167,0	65,0	31,1

A análise da curva DSC das amostras revela propriedades importantes sobre as transições térmicas do polipropileno (PP) virgem e seus compósitos com resíduos reciclados. As temperaturas de cristalização (T_c) apresentam uma leve tendência de diminuição conforme a proporção de resíduo aumenta, com o PP virgem exibindo uma T_c de 121,0 °C, enquanto os compósitos, como o PP/60R, mostram temperaturas mais baixas. Isso indica que a adição de resíduos reciclados afeta a temperatura em que o material começa a cristalizar (ROUX et al, 2018). Essa diminuição pode resultar em uma estrutura cristalina menos estável, levando a uma maior quantidade da fase amorfa. Fato esse que é comprovado com o índice de cristalinidade (X_c) na Tabela 8, o qual vai reduzindo à medida que aumenta a incorporação de resíduo na matriz de polipropileno.

As temperaturas de fusão (T_m) também são impactadas, com o PP apresentando uma T_m de 166,6 °C e o resíduo apresentando dois picos endotérmicos, um de valor mais baixo, representando possivelmente outros tipos de materiais ou polímeros, e um pico muito próximo ao pico de polipropileno, indicando que possivelmente há a presença de polipropileno dentro do resíduo reciclado. Estes dois picos se mantiveram nos compósitos, sugerindo uma alteração na estrutura cristalina. A presença de dois picos de T_m em uma curva DSC indica que o material contém diferentes fases ou morfologias. Isso pode ocorrer quando o material é um compósito ou uma mistura de polímeros, onde cada componente tem sua própria temperatura de fusão. Outra possibilidade é que o material apresente duas formas cristalinas distintas, que se fundem em temperaturas diferentes. Essas transições de fase são importantes para compreender o comportamento térmico e as propriedades físicas do material, oferecendo informações sobre sua aplicabilidade em diversas situações (LIN et al, 2015).

A entalpia de fusão (ΔH), que representa a quantidade de calor necessária para a fusão do material, é maior no PP (77,5 J/g) e diminui à medida que a proporção de resíduo aumenta, refletindo uma estrutura menos ordenada. Resultado este que vai ao encontro com as reduções de grau de cristalinidade, reiterando a uma interpretação de a cada adição de resíduo no PP, a estrutura molecular do compósito torna-se menos ordenada (ROUX et al, 2018).

4.2.6 Propriedades Mecânicas

Os resultados dos ensaios de propriedades mecânicas foram submetidos à análise de variância (ANOVA). Na Tabela 9, são apresentados os resultados dos ensaios de tração.

Tabela 9. Média e desvio padrão dos resultados de resistência à tração (A autora, 2024).

Amostra	Alongamento (%)	Resistência à Tração Escoamento (MPa)	Módulo de Tração (MPa)
PP	12,54 ± 0,16 ^a	21,95 ± 0,40 ^a	439,7 ± 32,6 ^a
PP/20R	14,71 ± 0,25 ^b	23,02 ± 0,18 ^b	461,4 ± 9,4 ^a
PP/30R	15,39 ± 0,40 ^b	22,58 ± 0,18 ^{ab}	444,1 ± 16,1 ^a
PP/40R	16,46 ± 0,70 ^c	21,46 ± 0,38 ^{ac}	418,8 ± 17,1 ^a
PP/50R	17,94 ± 0,66 ^d	21,61 ± 0,52 ^{acd}	400,7 ± 38,2 ^{ab}
PP/60R	17,92 ± 0,42 ^d	21,76 ± 0,59 ^{acde}	437,6 ± 15,0 ^a

Obs.: Média ± desvio padrão. Ao avaliar o resultado, letras diferentes indicam médias estatisticamente diferentes entre si (p-valor < 0,05).

Os resultados obtidos no ensaio de tração revelam algumas diferenças nas propriedades mecânicas das amostras de polipropileno em comparação com as amostras contendo diferentes porcentagens de resíduo reciclado, 20%, 30%, 40%, 50% e 60%. O alongamento no escoamento, resistência à tração e módulo de tração são parâmetros essenciais que refletem a capacidade do material de suportar forças de tração antes de se deformar ou romper.

Observa-se que, em geral, o aumento do teor de resíduo reciclado nas amostras de PP resulta em um aumento do alongamento de escoamento. Isso pode ser relacionado ao resultado encontrado na análise de DSC, em que evidencia um aumento na região amorfa do material, impactando nas propriedades mecânicas.

A redução da cristalinidade obtida no DSC também corrobora o enfraquecimento das ligações intermoleculares no polipropileno, resultando em uma redução na capacidade do material de resistir à aplicação de uma força de tração. Isso pode explicar o leve decréscimo na resistência à tração das amostras de 40, 50 e 60%, porém pode ser considerado um aumento não significativo, de acordo com a análise de variância.

Quanto ao módulo de tração, não há uma tendência clara com o aumento do teor de resíduo reciclado. Os valores permanecem relativamente consistentes entre as diferentes amostras, sugerindo que o módulo de elasticidade do material não é significativamente afetado pela adição de resíduo reciclado.

Os resultados indicam que a adição de resíduo reciclado ao polipropileno pode influenciar suas propriedades mecânicas, afetando tanto sua resistência quanto sua ductilidade. Já na Tabela 9, estão demonstrados os resultados dos ensaios de flexão realizados.

Amostra	Deformação (%)	Resistência à Flexão (MPa)	Módulo de Flexão (MPa)
PP	7,86 ± 0,26 ^a	20,29 ± 0,37 ^a	528,2 ± 16,1 ^a
PP/20R	7,94 ± 0,19 ^a	19,61 ± 0,77 ^a	540,4 ± 26,1 ^a
PP/30R	7,95 ± 0,33 ^a	19,47 ± 0,26 ^a	526,7 ± 26,5 ^a

PP/40R	7,92 ± 0,58 ^a	19,09 ± 0,76 ^{ab}	525,4 ± 38,6 ^a
PP/50R	8,15 ± 0,49 ^a	18,96 ± 0,29 ^{ac}	543,2 ± 11,7 ^a
PP/60R	8,27 ± 0,36 ^a	20,90 ± 0,58 ^{ad}	568,5 ± 38,6 ^a

Tabela 10. Média e desvio padrão de resistência à flexão (A autora, 2024).

Obs.: Média ± desvio padrão. Ao avaliar o resultado, letras diferentes indicam médias estatisticamente diferentes entre si (p-valor < 0,05).

Os resultados do ensaio de flexão indicam variações nas propriedades mecânicas das amostras de polipropileno em comparação com as amostras contendo diferentes proporções de resíduo reciclado. A deformação, resistência à flexão e módulo de flexão são parâmetros cruciais que refletem a capacidade do material de suportar carga e deformação sob flexão.

Observa-se que, em geral, a deformação permanece relativamente constante entre as amostras, com pequenas variações que não seguem uma tendência clara com o aumento do teor de resíduo reciclado. Isso sugere que a adição de resíduo reciclado ao polipropileno não tem um efeito significativo na deformação do material sob flexão.

No que diz respeito à resistência à flexão, observa-se uma tendência de diminuição com o aumento do teor de resíduo reciclado. O comportamento observado na resistência à flexão dos compósitos com resíduos reciclados está correlacionado com as alterações nas propriedades térmicas do material, conforme evidenciado pela análise de DSC. A diminuição da resistência à flexão com o aumento do teor de resíduo reciclado pode estar associada a modificações na estrutura molecular do material, refletidas em uma redução na temperatura de cristalização (T_c) e no X_c . O termograma do DSC mostra que, à medida que a proporção de resíduo reciclado aumenta, a T_c diminui e a entalpia de fusão (ΔH) reduz, sugerindo uma estrutura cristalina menos estável e uma maior fase amorfa. Esta estrutura menos ordenada pode resultar em uma capacidade reduzida de suportar cargas sob flexão, indicando que a presença de resíduos reciclados reduz a resistência do material. A presença de mais de uma pico de fusão também sugere uma alteração nas fases cristalinas, o que pode contribuir para a redução da resistência à flexão, uma vez que a estrutura do compósito se torna mais defeituosa e menos coesa.

Por outro lado, o módulo de flexão mostra uma tendência variada com o aumento do teor de resíduo reciclado. Algumas amostras apresentam um aumento no módulo de flexão, enquanto outras mostram uma diminuição ou permanecem relativamente constantes. Isso sugere que a adição de resíduo reciclado pode afetar a rigidez do material de forma inconsistente, possivelmente devido a variações na distribuição de carga e na microestrutura do polipropileno. Em resumo, os resultados do ensaio de flexão indicam que a adição de resíduo reciclado ao polipropileno pode ter efeitos variados nas propriedades mecânicas do material sob flexão (LAHTELA et al, 2020).

As fases heterogêneas observadas através do MEV nas amostras de polipropileno com diferentes proporções de resíduo reciclado podem ter uma influência direta nestas propriedades de tração e flexão. A presença dessas fases distintas pode criar regiões com diferentes características mecânicas dentro da matriz polimérica. Por exemplo, a presença de inclusões ou impurezas nas fases heterogêneas pode atuar como pontos de concentração de tensão, reduzindo a resistência à tração e flexão do material. Além disso, a segregação de fases pode afetar a homogeneidade da distribuição de carga e, conseqüentemente, a capacidade do material de suportar deformações sob carga. Portanto, as observações das fases heterogêneas pelo MEV fornecem insights importantes sobre as possíveis variações nas propriedades mecânicas, como resistência à tração e flexão, nas amostras de polipropileno com resíduo reciclado (LAHTELA et al, 2020). Essa relação entre a microestrutura observada e as propriedades mecânicas destaca a importância de um entendimento abrangente da estrutura do material para otimizar seu desempenho em aplicações específicas.

Cockburn et al (2020) obtiveram um resultado semelhante ao comparar polipropileno virgem com um moído e reprocessado 5 vezes. As amostras confeccionadas com material reciclado manifestaram propriedades mecânicas aprimoradas. É relevante que os espécimes derivados de material reciclado demonstram o pico do valor de resistência à tração quando comparados à amostra de material virgem utilizada como referência. Efetivamente, suas características mecânicas denotam um acréscimo de 3,07% para o módulo de Young, 10,97% para o limite de escoamento, 27,33% para a tensão máxima, além de uma discreta redução de 1,29% na deformação na ruptura, contrastando com as propriedades das amostras compostas por material virgem.

Na Tabela 11, são apresentados os resultados obtidos para resistência ao impacto das amostras. A diminuição desta resistência, originada pela inclusão de partículas rígidas no polipropileno, está condicionada às propriedades intrínsecas dessas cargas, assim como às possíveis modificações na matriz induzidas por elas. Por exemplo, o tamanho das partículas exerce influência, embora tal efeito não seja independente. Partículas de dimensões reduzidas geralmente se mostram mais propensas a otimizar esta propriedade (COSTA, 2019).

Tabela 11. Média e desvio padrão dos resultados de resistência ao impacto (A autora, 2024).

Amostra	Resistência ao Impacto (J/m)
PP	304,74 ± 3,93 ^a
PP/20R	107,23 ± 8,36 ^b
PP/30R	87,75 ± 9,21 ^c
PP/40R	107,16 ± 11,0 ^{bd}

PP/50R	83,02 ± 9,68 ^{ce}
PP/60R	67,47 ± 7,00 ^f

Obs.: Média ± desvio padrão. Ao avaliar o resultado, letras diferentes indicam médias estatisticamente diferentes entre si (p-valor < 0,05).

No entanto, em determinadas circunstâncias, uma carga mais fina pode apresentar aglomeração excessiva, resultando em uma resistência ao impacto. Essa resposta antecipada estava prevista e encontra respaldo em pesquisas anteriores, corroborando a diminuição da resistência ao impacto à medida que a rigidez dos compósitos se intensifica com o aumento da carga mineral (COSTA, 2019).

Nesse contexto, o material passa a absorver uma quantidade reduzida de energia durante o impacto, tornando-se mais suscetível à fratura. Tal fenômeno está vinculado também a uma adesão interfacial deficiente entre a carga e a matriz (RYBIŃSKI et al, 2021).

Desta forma, há a possibilidade de adicionar as concentrações de cargas testadas mais altas, 40% até 60%. Já a adição de apenas 20% de resíduo reciclado significa o decréscimo de quase 3 vezes o valor de resistência ao impacto em relação do PP. Através da Tabela 10, pode-se notar que pela média e desvio padrão as amostras PP/20R, PP/30R, PP/40R e PP/50R mantiveram os valores de resistência ao impacto próximos entre si, ao passo que a amostra PP/60R iniciou um decréscimo maior em relação aos demais. Este decréscimo na propriedade de impacto, principalmente na amostra com 60% de resíduo reciclado pode estar relacionado ao resultado do MEV, mostrado na Figura 10, onde pode ser visto uma grande heterogeneidade na matriz do polipropileno, devido às impurezas ali presentes.

A amostra PP/50R se destacou em comparação com o teor de resíduo adicionado, devido à sua combinação ideal de propriedades mecânicas e térmicas. Os resultados de MEV mostraram que a amostra PP/50R apresenta uma morfologia de superfície com uma distribuição equilibrada dos fragmentos reciclados e da matriz de polipropileno. Essa uniformidade contribuiu para uma resistência mecânica superior, evidenciada pelos testes de tração e flexão, onde a amostra PP/50R exibiu uma melhoria no alongamento no escoamento em comparação com amostras com menor teor de resíduos reciclados. A densidade também mostrou um aumento adequado, refletindo a presença de materiais reciclados sem comprometer mais a resistência do compósito, em comparação com teores mais baixos.

Além disso, as análises térmicas, incluindo o DSC e o TGA, confirmaram que a amostra PP/50R manteve um desempenho estável em termos de propriedades térmicas. As temperaturas de fusão e cristalização foram menos afetadas, sugerindo que a adição de 50% em massa de resíduos reciclados não alterou significativamente as características térmicas do material em

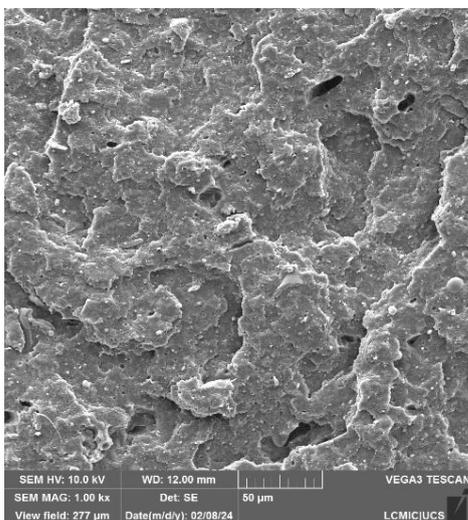
comparação com outras amostras que apresentaram maiores variações. Isso demonstra que a proporção de 50% de resíduos reciclados ofereceu um equilíbrio ideal entre a melhoria das propriedades mecânicas e a manutenção da integridade térmica do compósito, tornando a amostra PP/50R a mais eficiente entre as testadas.

Optar por uma composição de 50% em massa de resíduos reciclados no compósito PP/50R não só demonstrou ser o mais estável em termos de propriedades mecânicas e térmicas, mas também oferece benefícios significativos do ponto de vista ambiental. A escolha desse percentual maximiza a reutilização de materiais, reduzindo a necessidade de matéria-prima virgem e, conseqüentemente, minimizando os impactos ambientais associados à produção e ao descarte de resíduos. A incorporação de um percentual mais alto de resíduos ajuda a diminuir a quantidade de resíduos sólidos e a conservação de recursos naturais, promovendo práticas mais sustentáveis e alinhadas com as políticas de economia circular.

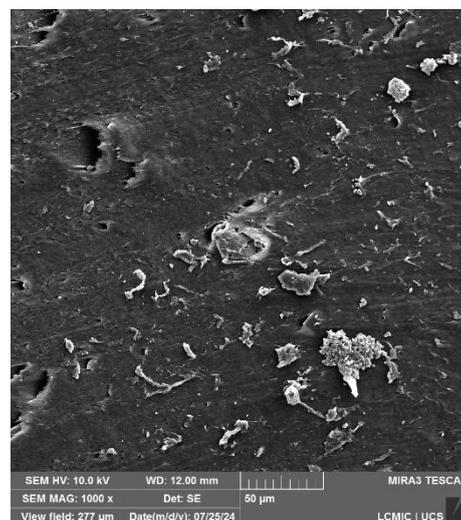
4.3 RESULTADOS DA ANÁLISE DA ETAPA 2

4.3.1 MEV/EDS

A análise das micrografias mostradas na Figura 17 permite uma avaliação detalhada da morfologia superficial dos compósitos de polipropileno contendo resíduos de embalagens flexíveis recicladas e diferentes concentrações de agente de acoplamento. As amostras analisadas foram o PP/50R, PP/50R/025P, PP/50R/05P e PP/50R/10P, respectivamente.



PP/50R



PP/50R/025P

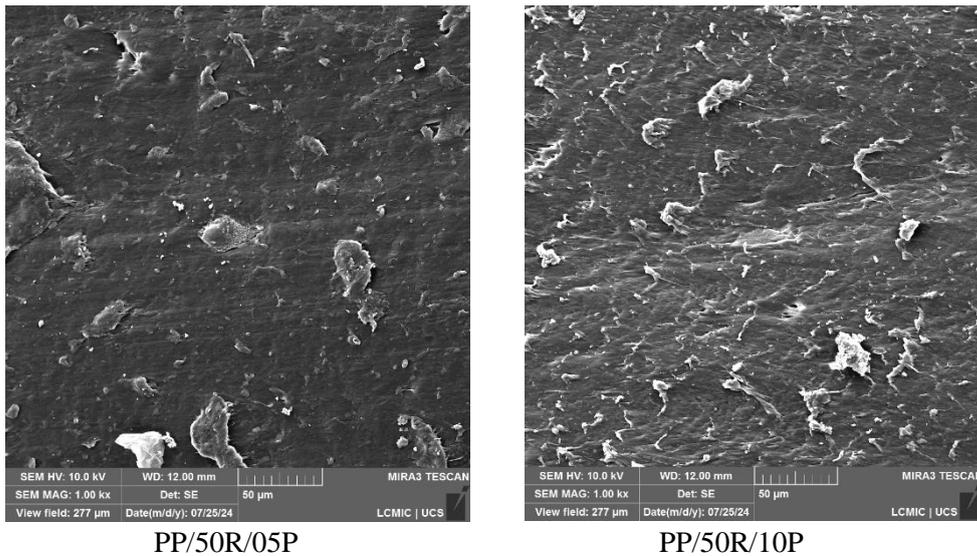


Figura 17. Micrografias do PP/50R e dos 3 compósitos produzidos com *Polybond 3200*, na etapa 2 (A autora, 2024).

Na micrografia do compósito PP/50R, observa-se uma superfície irregular com aglomerações de material, indicando uma dispersão heterogênea dos resíduos reciclados na matriz de PP. Esta morfologia sugere uma adesão fraca entre os resíduos e a matriz polimérica, o que pode comprometer as propriedades mecânicas do material, como resistência à tração e flexão.

A adição do agente de acoplamento nas amostras PP/50R/025P, PP/50R/05P e PP/50R/10P resultou em mudanças visíveis na morfologia do compósito. Na amostra PP/50R/025P, as micrografias revelam uma superfície menos rugosa e mais homogênea, indicando uma melhora na compatibilidade entre os resíduos e a matriz de PP. Contudo, ainda são visíveis algumas regiões com partículas mal distribuídas, o que sugere que a quantidade de compatibilizante pode não ser suficiente para alcançar uma compatibilização ideal.

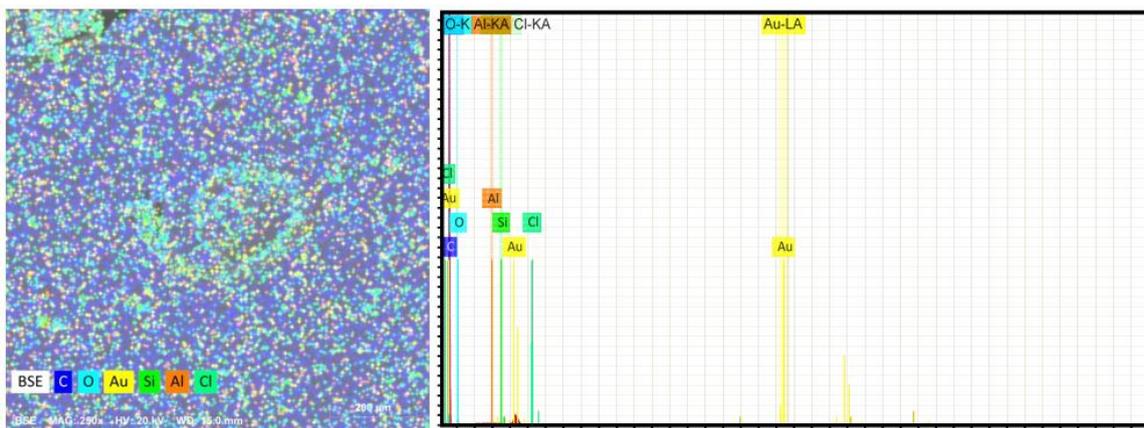
Na amostra PP/50R/05P, observa-se uma superfície mais uniforme e homogênea, com menos evidências de aglomeração de partículas. Isso indica uma melhor dispersão dos resíduos e uma interface mais estável entre os componentes do compósito, o que provavelmente se traduz em melhores propriedades mecânicas e térmicas.

Finalmente, na amostra PP/50R/10P, a superfície do compósito apresenta uma homogeneidade ainda maior, com uma distribuição de partículas muito bem dispersas e menor quantidade de defeitos. Esta composição parece proporcionar uma melhor compatibilidade entre o PP e os resíduos reciclados, indicando que a adição de 10% em massa de agente de

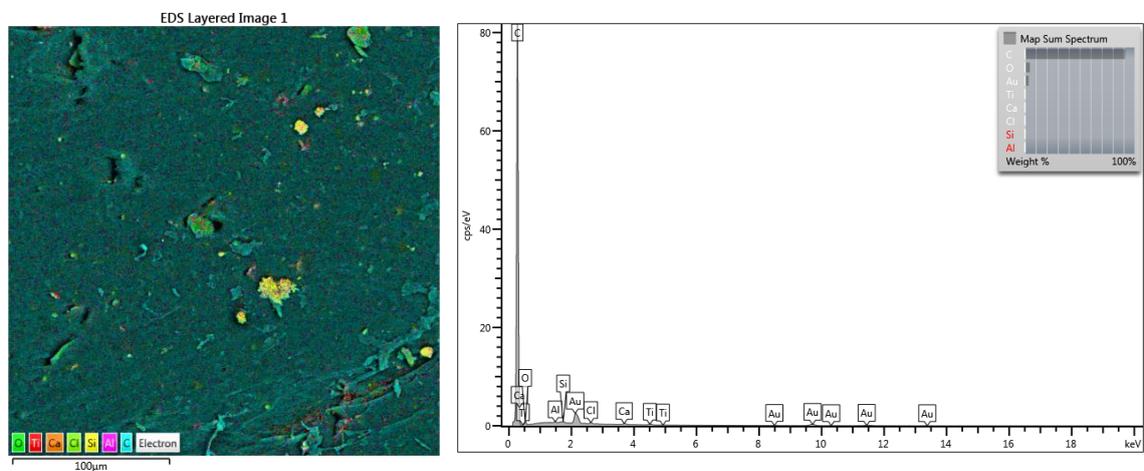
acoplamento é a mais eficaz em termos de melhoria da dispersão e adesão entre as fases do compósito.

Em resumo, a análise das micrografias demonstrou claramente a influência positiva do agente de acoplamento na melhoria da morfologia dos compósitos de PP com resíduos reciclados. A adição deste compatibilizante melhora a interface entre a matriz de PP e os resíduos, resultando em uma estrutura mais homogênea e, presumivelmente, em melhores propriedades mecânicas e térmicas, avaliadas nos próximos subitens deste trabalho.

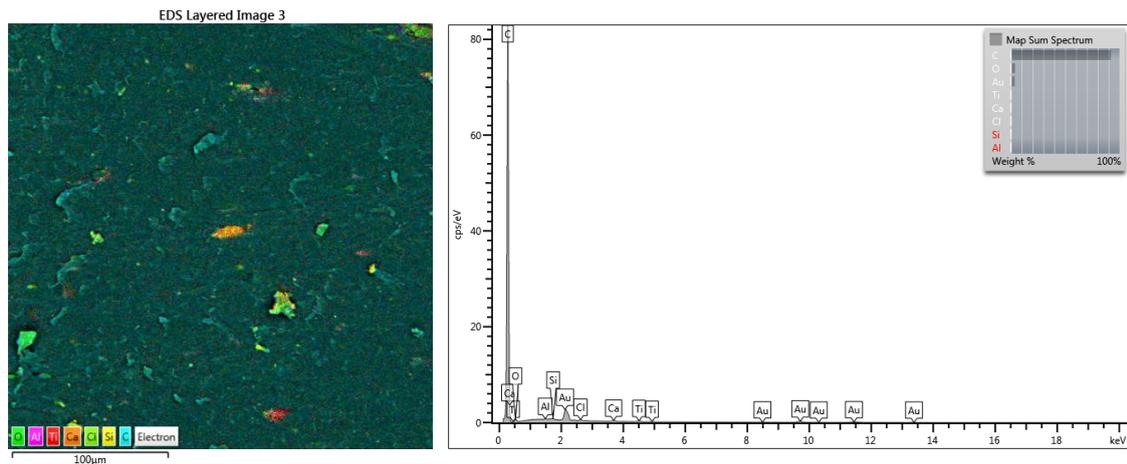
As análises EDS realizadas nas amostras PP/50R, PP/50R/025P, PP/50R/05P e PP/50R/10P revelaram detalhes importantes sobre a composição elementar e a distribuição dos componentes nos compósitos de polipropileno (PP) misturado com resíduos de embalagens flexíveis recicladas, com diferentes percentuais de agente de acoplamento. Na Figura 18, está representando que cada uma dessas amostras foi examinada para entender a influência do agente de acoplamento na integração dos resíduos na matriz polimérica.



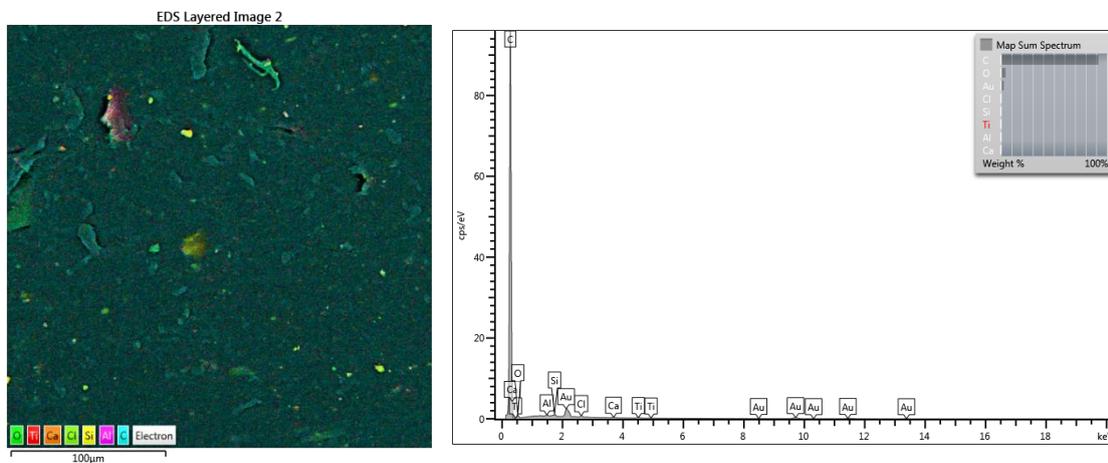
PP/50R



PP/50R/025P



PP/50R/05P



PP/50R/10P

Figura 18. Análises de EDS do PP/50R e dos 3 compósitos produzidos com *Polybond 3200*, na etapa 2 (A autora, 2024).

Para a amostra PP/50R, a imagem EDS mostra predominantemente a presença de carbono (C), que é o principal constituinte do PP. Além do carbono, a análise também detecta quantidades menores de alumínio (Al), silício (Si) e oxigênio (O). A presença desses elementos pode ser atribuída a contaminantes residuais ou a materiais de embalagem, como filmes de alumínio ou revestimentos à base de silicone, que não foram completamente removidos durante o processo de reciclagem. A distribuição desses contaminantes é bastante heterogênea, indicando uma dispersão limitada dos resíduos na matriz de PP (ERIKSEN et al, 2018).

Na amostra PP/50R/025P, que inclui 2,5% de agente de acoplamento PP-g-MA, a análise EDS revela uma composição semelhante, com carbono como o componente dominante. A adição de PP-g-MA visa melhorar a compatibilidade entre a matriz de PP e os resíduos

reciclados, promovendo uma melhor adesão entre eles. No entanto, a detecção de elementos como alumínio e silício continua presente, embora a homogeneidade da distribuição possa ter sido levemente melhorada. Esta melhora não é facilmente observável apenas pela composição elementar, mas é relevante para a análise da morfologia e das propriedades físicas dos materiais.

A análise da amostra PP/50R/05P, contendo 5% de PP-g-MA, mostra uma tendência similar, mas com um aumento notável na detecção de elementos como alumínio e silício. Este aumento sugere que o compatibilizante pode estar mais eficaz em expor ou integrar contaminantes e resíduos na matriz polimérica, possivelmente facilitando uma melhor dispersão das fases recicladas. A presença de partículas de alumínio e silício pode estar ligada a resíduos de embalagens compostas, que incluem camadas de alumínio ou sílica como barreiras.

Na amostra PP/50R/10P, que contém 10% de PP-g-MA, a análise de EDS continua a mostrar carbono como o elemento predominante, com presença adicional de alumínio, silício e oxigênio. A maior concentração de compatibilizante nesta amostra sugere uma melhor compatibilização e integração dos resíduos na matriz de PP. No entanto, os contaminantes identificados permanecem presentes, o que indica que mesmo com o aumento do compatibilizante, há uma quantidade significativa de material residual que não se integra completamente na matriz de PP ou que forma fases distintas.

No estudo de Pauletti et al (2021), foi desenvolvido um método eficiente de reciclagem de resíduos de polímero-alumínio de embalagens de papelão usando digestão alcalina com NaOH, que removeu o alumínio sem comprometer as propriedades térmicas do polietileno. Os resultados indicam a presença de carbono (C) representa 66,64% da concentração, seguido por oxigênio (O) com 24,81%, sódio (Na) compõe 4,39%, enquanto alumínio (Al) está presente em 1,38%, cálcio (Ca) aparece com uma concentração de 2,01%, Silício (Si) com 0,50%, e Ferro (Fe) com 0,28%. O carbono está associado à estrutura polimérica do resíduo Poly-Al, enquanto a alta presença de oxigênio está relacionada às regiões oxidadas do polímero e à possível estrutura de hidróxido ou óxido dos elementos alcalinos e metálicos restantes na superfície do resíduo após o tratamento. A presença de cálcio e silício deve-se à constituição química dos preenchimentos minerais presentes nas formulações das tintas flexográficas, usadas na impressão em embalagens de papelão, assim como o ferro. Essas condições podem ser responsáveis pela presença desses elementos contaminantes, que, embora em pequenas quantidades, aparecem como contaminantes na superfície do resíduo de Poly-Al após o processo de digestão alcalina.

As micrografias complementam a análise EDS, proporcionando uma visão mais clara da morfologia superficial e da distribuição dos resíduos dentro da matriz polimérica. A amostra

PP/50R, sem compatibilizante, mostra uma superfície com maior heterogeneidade e partículas de tamanhos variados, sugerindo uma má compatibilidade entre o PP e os resíduos reciclados. As partículas de alumínio e silício são visíveis como inclusões distintas e mal dispersas (SCHYNS; SHAVER, 2021).

Nas amostras contendo o compatibilizante PP-g-MA (PP/50R/025P, PP/50R/05P e PP/50R/10P), observa-se uma melhora na homogeneidade superficial, com uma redução no tamanho e na quantidade de partículas observáveis na superfície. Isso é especialmente evidente na amostra PP/50R/10P, onde o maior percentual de PP-g-MA parece ter facilitado uma distribuição mais uniforme dos resíduos. A integração das partículas de resíduos na matriz é mais evidente, com menos aglomerados visíveis, o que sugere uma melhor compatibilidade e adesão entre os diferentes componentes.

A combinação de EDS e MEV fornece uma análise detalhada dos efeitos do agente compatibilizante PP-g-MA na morfologia e composição dos compósitos de PP com resíduos de embalagens recicladas. A análise de EDS revela a composição elementar e a presença de contaminantes, enquanto o MEV destaca as mudanças na morfologia e na distribuição dos resíduos, mostrando como o compatibilizante pode melhorar a compatibilidade e a integração dos materiais reciclados na matriz de PP.

4.3.2 Densidade

Os valores de densidade das amostras, apresentado na Figura 19, com o agente de acoplamento adicionado nos teores de 2,5% e 5,0% não apresentaram diferença significativa de densidade. Já a amostra com 10% de adição do agente mostrou-se sutilmente menor. Isso pode estar relacionado ao fato de que o agente de acoplamento pode estar agindo de forma a melhorar a adesão interfacial entre a matriz e o resíduo (LIBANO et al, 2020).

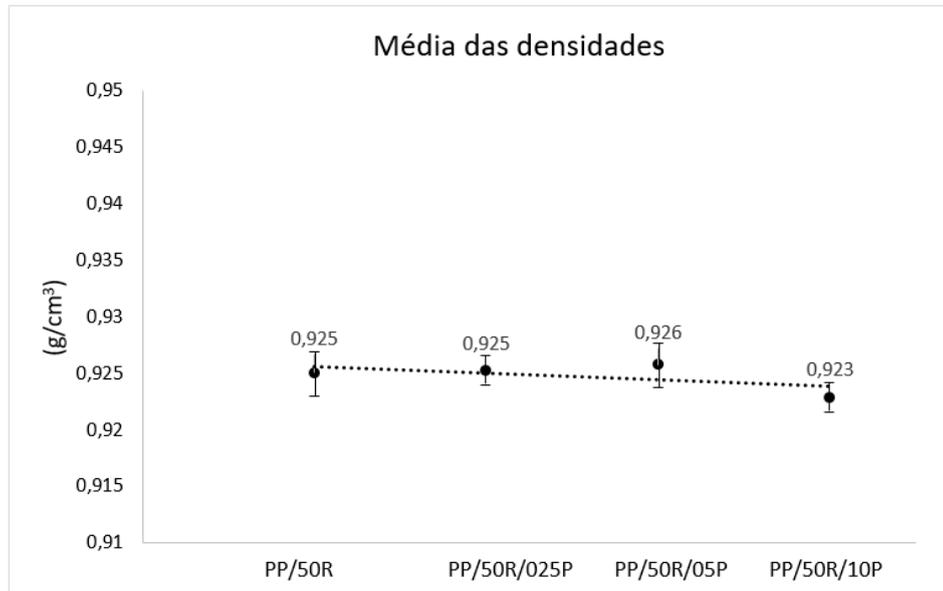


Figura 19. Determinação de densidade das amostras etapa 2 (A autora, 2024).

Além disso, a densidade que consta no *datasheet* do Polybond 3200 é de $0,91 \text{ g/cm}^3$ (SI GROUP, 2024). Este valor menor de densidade teórica pode indicar que a medida que o agente de acoplamento é adicionado na matriz de PP/50R, com densidade maior, a densidade do compósito tende a ir reduzindo, uma vez que está sendo adicionado um constituinte de densidade menor. Porém, considerando os desvios padrão listados na Figura 19, pode-se considerar que não houveram grandes discrepâncias entre as quatro amostras apresentadas, mesmo a PP/50R/10P tendo destoado devido as explicações acima.

4.3.3 Índice de Fluidez

O MFI é um parâmetro estabelecido experimentalmente, sendo inversamente relacionado à viscosidade do material fundido em uma temperatura e taxa de cisalhamento determinadas pelas condições de medição. A inclusão de cargas, como resíduos e fibras, por exemplo, geralmente resulta na diminuição do MFI dos compósitos, uma vez que sua presença na matriz polimérica limita a mobilidade das cadeias, dificultando o fluxo do polímero fundido e, consequentemente, elevando a viscosidade (BASTOS et al., 2018). Este comportamento foi evidenciado na Tabela 5, a qual mostra que a medida que o resíduo foi sendo adicionado, o índice de fluidez em relação ao polímero foi diminuindo.

Nesta segunda etapa de testes, em que a quantidade de resíduo foi mantida a mesma e foi sendo alterada a quantidade de agente de acoplamento, obteve-se um resultado oposto ao da

primeira etapa, conforme evidenciado na Tabela 12. A amostra PP/50R/025P não apresentou alteração significativa em relação à amostra PP/50R. O PP/50R/05P apresentou um aumento de cerca de 6% em relação à amostra anterior. Já a amostra PP/50R/10P apresentou o maior aumento dentre estas amostras, se distanciando em aproximadamente 27% da amostra com 5% em massa de compatibilizante e cerca de 44,5% maior que a amostra sem agente de acoplamento.

Tabela 12. MFI das amostras da etapa 2 (A autora, 2024).

Amostra	MFI (g/10 min)
PP/50R	6,44 ± 0,42
PP/50R/025P	6,89 ± 0,16
PP/50R/05P	7,31 ± 0,09
PP/50R/10P	9,31 ± 0,11

Obs.: Média ± desvio padrão.

A medida em que o Polybond 3200 foi sendo adicionado, os resultados dos índices de fluidez das amostras foi aumentando. Isso se deve ao fato de que, proporcionalmente, o teor de resíduo no compósito foi sendo diminuído, para dar lugar aos percentuais de agente de acoplamento. Outro fator que pode ser decisivo neste aumento de fluidez é o próprio MFI do Polybond 3200, que é de 115 g/10 min (SI GROUP, 2024). Sendo assim, de forma proporcional, tende-se a ter um aumento não linear de índice de fluidez a medida que aumenta o teor de Polybond 3200.

O estudo de Bettanin et al (2019) que envolveu o estudo da influência do agente de acoplamento nas propriedades mecânicas de compósitos com filmes metalizados. O teste reológico de índice de fluidez (IF) mostrou uma redução notável no IF com a introdução de 1,5% de agente de acoplamento, o que indica um aumento na viscosidade do polímero. Isso sugere uma compatibilização aprimorada entre os polímeros da amostra devido à inclusão dos agentes de acoplamento. Contudo, com o aumento da quantidade de agente de acoplamento, o índice de fluidez das amostras também se elevou, provavelmente porque o IF do PP-g-AM é consideravelmente mais alto do que os polímeros originalmente presentes no resíduo IF_{PP-g-AM} (190°C/2,16 kg) = 115 g/10 min, aproximando-se dos valores da amostra sem adição de agentes.

Por fim, o valor de 9,31 g/10 min obtido para a amostra PP/50R/10P tende a facilitar o processamento por injeção deste compósito, uma vez que a viscosidade do mesmo está diminuída em relação à amostra de PP/50R. Para processamentos por injeção, esta condição enquadra-se melhor para um processamento mais fluido e possivelmente mais eficaz (NOFAR; OZGEN; GIRGINER, 2019).

4.3.4 Análise Termogravimétrica

Esta análise nesta seção foi utilizada para avaliar os efeitos da adesão na estabilidade térmica do compósito em comparação à amostra que não sofreu modificação e com o PP. Os resultados obtidos são apresentados na Figura 20.

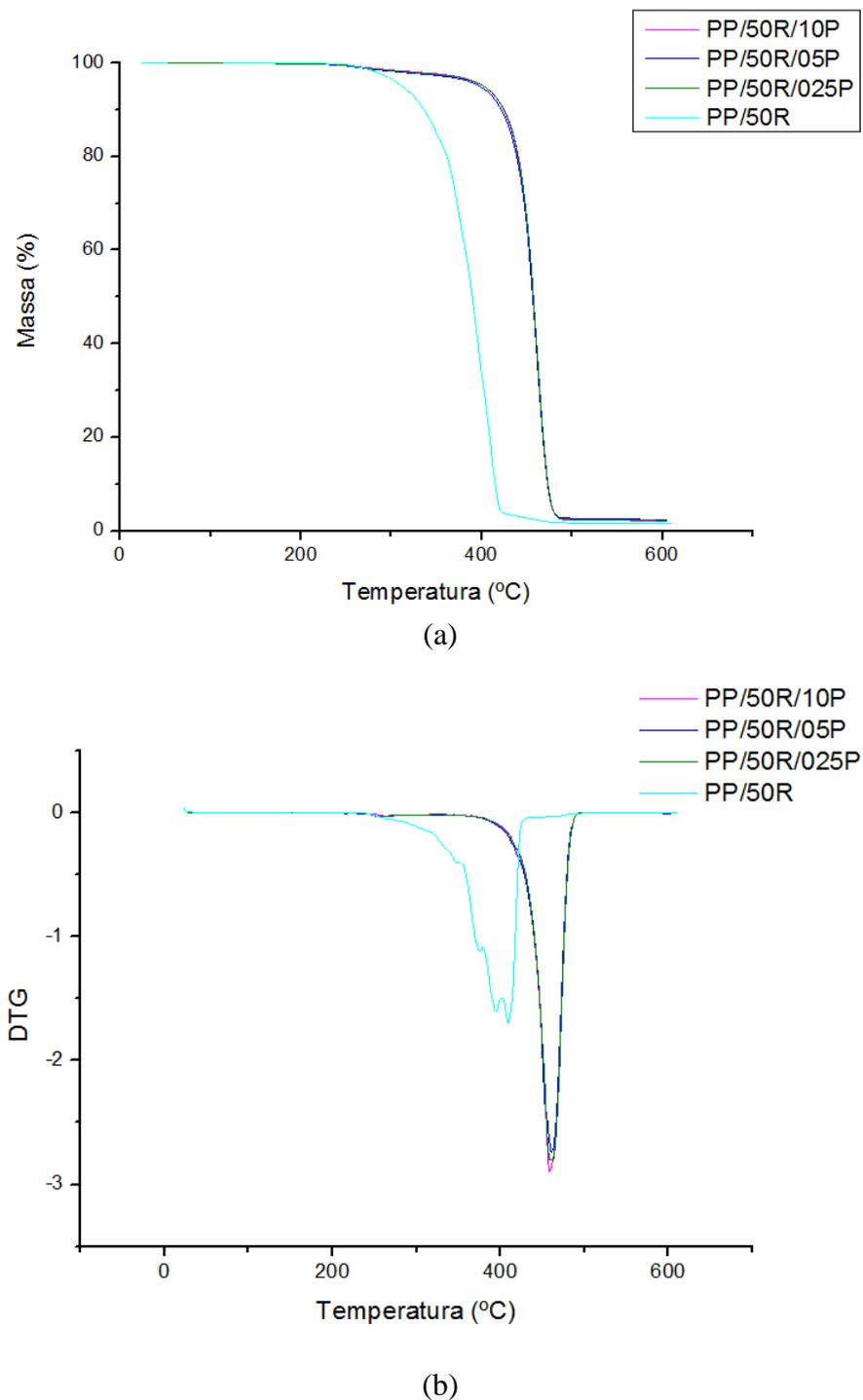


Figura 20. Curva termogravimétrica (a) e primeira derivada (b) dos materiais avaliados, referentes a etapa 2 (A autora, 2024).

Os dados que melhor descrevem os valores obtidos das curvas mostradas na Figura 20 estão descritos na Tabela 13. A amostra PP/50R apresentou mais de um pico de degradação, sendo eles o primeiro em 370,1 °C, o segundo em 387 °C o terceiro em 373,6 °C e por fim o valor listado na Tabela 13, 401,6 °C. Estes diferentes picos de degradação indicam que neste compósito há diferentes componentes, cujas temperaturas de picos são distintas entre si e não apresentam boa compatibilidade um com o outro. Sendo assim, esta amostra mostra-se bastante heterogênea.

Conforme Bastos et al (2018), em um compósito, cada componente (matriz polimérica, fibras de reforço, aditivos, etc.) possui uma temperatura de degradação específica. Durante a análise termogravimétrica, essas diferenças se manifestam como múltiplos picos na curva de perda de massa em função da temperatura, indicando as etapas distintas de decomposição térmica para cada componente. Por exemplo, a matriz polimérica ou os contaminantes orgânicos podem se degradar em uma faixa de temperatura mais baixa, enquanto as fibras de reforço, contaminantes inorgânicos ou demais constituintes, podem se degradar em uma faixa de temperatura mais alta. A presença de picos distintos permite a identificação dos componentes individuais e a compreensão de suas contribuições específicas para a estabilidade térmica global do compósito.

Tabela 13. Resultados TGA segunda etapa (A autora, 2024).

AMOSTRA	T_{3%} (°C)	T_{Pico} (°C)¹	Teor de Cinzas a 600 °C
PP/50R	280,7	401,6	1,77
PP/50R/025P	483,3	459,5	0,26
PP/50R/05P	485,7	460,9	0,25
PP/50R/10P	483,4	457,9	0,24

¹Pico mais alto encontrado.

A análise comparativa entre o compósito de polipropileno com 50% de material de embalagens flexíveis recicladas, PP/50R, e as amostras contendo diferentes concentrações de Polybond 3200, revela importantes diferenças nas propriedades térmicas e de cinzas. Inicialmente, ao comparar o PP/50R com a amostra PP/50R/025P, observa-se uma melhoria significativa na estabilidade térmica. A temperatura de decomposição inicial (T_{3%}) da amostra com o agente de acoplamento é substancialmente mais alta do que a do PP/50R, indicando que o agente de acoplamento proporciona uma maior resistência térmica ao compósito. Esse aumento é uma indicação de que o agente de acoplamento melhora a adesão entre a matriz

polimérica e a carga, o que resulta em uma maior resistência térmica e uma estrutura mais estável (ADNAN et al, 2023). Além disso, esta amostra apresentou um teor de cinzas reduzido, refletindo uma combustão mais eficiente e menos resíduos não combustíveis.

Quando a concentração de Polybond 3200 aumenta para 5%, a temperatura de decomposição inicial continua a se elevar em comparação com o PP/50R. Isso sugere que a adição do agente de acoplamento melhora ainda mais a estabilidade térmica do compósito. Com um aumento adicional na temperatura de decomposição inicial, a amostra PP/50R/05P apresenta uma estabilidade térmica superior à do PP/50R e à da amostra PP/50R/025P. O teor de cinzas também diminuiu, indicando que o agente de acoplamento continua a promover uma melhor compatibilidade entre a matriz e os resíduos reciclados.

Na amostra com 10% de Polybond 3200, a temperatura de decomposição inicial é ligeiramente menor em comparação com a amostra de 5% de Polybond 3200, mas ainda superior à do PP/50R. Esse pequeno decréscimo pode ser atribuído ao excesso de agente de acoplamento, que pode começar a formar aglomerados ou não se distribuir uniformemente, o que pode afetar a estabilidade térmica, ou também pode ser atribuído a heterogeneidade da amostra de reciclado, a qual poderia estar mais ou menos contaminada quando incorporada na matriz. Apesar disso, o teor de cinzas continua a ser o mais baixo entre as amostras comparadas, o que sugere que a adição de Polybond 3200 pode conferir maior homogeneidade ao material, embora a estabilidade térmica não aumente proporcionalmente ao teor de agente de acoplamento.

Em resumo, a adição de Polybond 3200 apresentou melhoras na estabilidade térmica e reduziu o teor de cinzas do compósito de PP reciclado, mas a eficácia do agente de acoplamento pode começar a decair em concentrações mais altas devido a possíveis problemas de distribuição ou formação de aglomerados (EL HOUDA SID et al, 2024).

4.3.5 DSC

Durante a primeira etapa de análises de DSC, foram utilizadas as amostras de compósitos sem nenhum tipo de modificação, a fim de avaliar somente a influência do resíduo na matriz polimérica de PP. Nesta segunda rodada, o objetivo é avaliar a influência do agente de acoplamento Polybond 3200, ao passo que a variável aqui é o teor de agente, e não o teor de resíduo. O termograma resultante desta análise está representado na Figura 21.

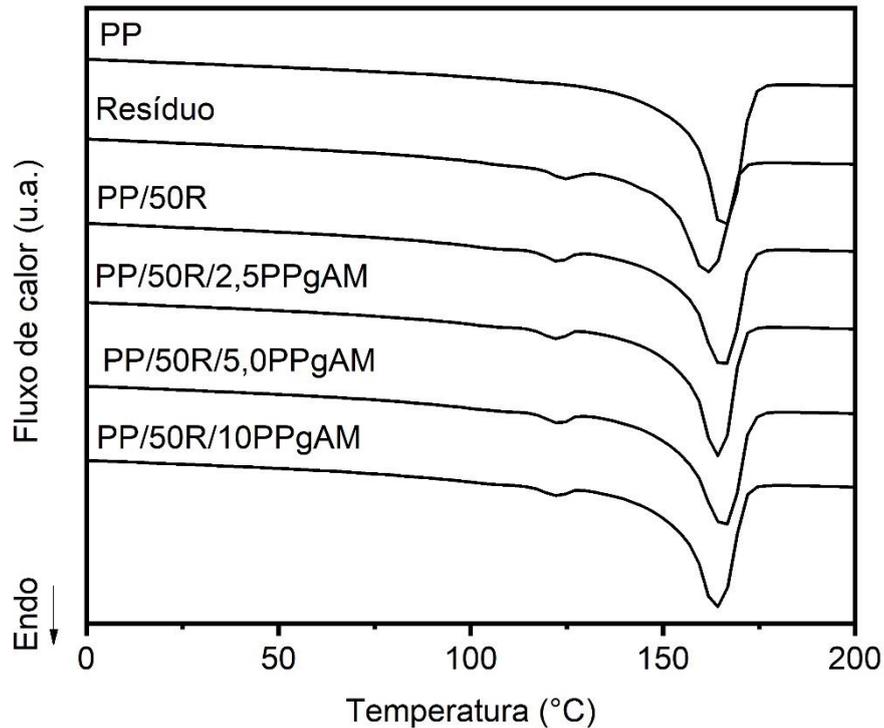


Figura 21. Termogramas das amostras da etapa 2 (A autora, 2024).

Para melhor compreender os resultados desta análise, os valores retirados dos termogramas estão compilados na Tabela 14.

Tabela 14. Temperaturas, entalpia e cristalinidade das amostras avaliadas por DSC na etapa 2 (A autora, 2024).

Amostra	T_c (°C)	T_m (°C)	ΔH (J.g ⁻¹)	x_c (%)
PP	121,0	166,6	77,5	37,1
RESÍDUO	110,9	124,8 e 161,9	60,6	29,0
PP/50R	118,6	122,0 e 167,0	64,7	30,9
PP/50R/025P	120,9	124,6 e 166,9	64,5	30,8
PP/50R/05P	120,7	124,9 e 169,5	66,0	31,6
PP/50R/10P	121,0	124,3 e 166,6	67,2	32,2

Conforme apresentado na Tabela 15, a medida em que foi aumentado o teor de resíduo incorporado na matriz de polipropileno, a temperatura de cristalização foi diminuindo, demonstrando um aumento na fase amorfa da estrutura, o que pode ser fator indicativo de que a estrutura ficou mais desornada. Na Tabela 14, o efeito da adição do agente de acoplamento causou um efeito contrário, aumentando a temperatura de cristalização, até que, no percentual de 10% de Polybond 3200, a T_c se igualou a T_c do PP virgem, indicando uma possível alteração na cristalinidade do material. Também pôde ser notado que, à medida que a temperatura de cristalização aumentou, o grau de cristalinidade também aumentou, confirmando a hipótese de

que o agente de acoplamento melhorou a estrutura polimérica de forma a reduzir a fase amorfa e aumentar a fase cristalina, aumentando o grau de ordenação das cadeias (KOSSENTINI, 2017).

No trabalho de Burgada et al (2021) analisaram o aprimoramento do polipropileno reciclado a partir de resíduos têxteis com fibra curta de cânhamo. Foram utilizados os teores de 10% de fibra curta de cânhamo (SHF) com 2,5% de agente de acoplamento, 20% de SHF com 5% de agente de acoplamento e 30% de SHF com 7,5% de agente de acoplamento. Observaram que em relação a temperatura de fusão (T_m), o polipropileno reciclado apresentou um valor de 163,7 °C, que é um valor semelhante ao do polipropileno virgem. Quando uma baixa quantidade de fibra de cânhamo (ou seja, 10% e 20%) é incorporada com o compatibilizante PP-g-MA, não se observa variação significativa na temperatura de fusão; um aumento de cerca de 2 °C pôde ser visto com a adição de 30% de fibra de cânhamo. É importante notar que a adição do compatibilizante à estrutura não influencia a temperatura de fusão dos materiais compósitos, mantendo uma temperatura semelhante à do polipropileno reciclado sem preenchimento. O pico da temperatura de cristalização diminui ligeiramente com a incorporação de 10%, 20% e 30% de fibra de cânhamo com PP-g-MA. Isso se refere à boa interação do reforçante com a matriz devido à forte ligação gerada pela reação dos grupos anidrido maleico do PP-g-MA com os grupos hidroxila das fibras de cânhamo; ocorre também uma interação com as cadeias de PP, resultando em copolímeros de anidrido maleico enxertados.

Em relação à temperatura de fusão, observa-se um comportamento parecido ao supracitado no trabalho de Burgada et al (2020), em que a medida em que foi aumentando o teor de agente de acoplamento, o segundo pico foi se aproximando do valor de T_m do PP, indicando assim uma possível melhora nas propriedades térmicas e mecânicas. Já os valores de variação de entalpia, também aumentaram em relação à amostra PP/50R, indicando que, mesmo ainda distante do valor obtido para o PP, a adição do agente de acoplamento ajudou a ordenar melhor a estrutura polimérica, aumentando o grau de cristalinidade proporcionalmente ao aumento da variação de entalpia (RASANA; JAYANARAYANAN, 2018).

4.3.6 Ensaio Mecânico

4.3.6.1 Resistência à Tração

A Tabela 15 contém os valores obtidos para o ensaio de tração das amostras, fazendo um comparativo entre o PP, o PP com adição do resíduo e as amostras com diferentes teores de carga.

Tabela 15. Resultado do ensaio de tração para as amostras (A autora, 2024).

Amostra	Alongamento (%)	Resistência à Tração (MPa)	Módulo de Tração (MPa)
PP	12,54 ± 0,16 ^a	21,95 ± 0,40 ^a	439,7 ± 32,6 ^a
PP/50R	17,94 ± 0,66 ^b	21,61 ± 0,52 ^a	400,7 ± 38,2 ^a
PP/50R/025P	18,00 ± 0,43 ^b	23,76 ± 0,27 ^b	436,7 ± 26,1 ^a
PP/50R/05P	18,13 ± 0,81 ^b	22,97 ± 0,33 ^c	421,7 ± 16,2 ^a
PP/50R/10P	17,77 ± 0,39 ^b	23,96 ± 0,25 ^b	405,3 ± 19,4 ^a

Obs.: Média ± desvio padrão. Ao avaliar o resultado, letras diferentes indicam médias estatisticamente diferentes entre si (p-valor < 0,05).

Fonte: A Autora (2024).

A amostra PP/50R demonstrou um aumento de aproximadamente 43% no alongamento, em comparação à amostra de PP. Isso pode demonstrar que a heterogeneidade do resíduo e, como obtido no resultado da primeira etapa, este efeito pode ser atribuído pois as impurezas presentes no reciclado podem agir como pontos de nucleação e aumentar a deformação plástica, levando o material a um alongamento maior antes de romper completa ou parcialmente. O agente de acoplamento não demonstrou influência significativa no alongamento percentual das amostras, como pode ser observado na Tabela 15, em que os resultados obtidos são estatisticamente iguais entre si e em relação à amostra PP/50R.

Em um estudo de Hammami et al (2024) foi analisado o efeito da adição de fibras da casca da uva no polipropileno com adição de 5% de agente de acoplamento de polipropileno grafitado com anidrido maleico. A adição da carga fez com que o compósito diminuísse seu percentual de deformação plástica, aumentando a rigidez e causando uma mudança de um material viscoelástico para um material frágil. Já o efeito do agente de acoplamento na resistência à tração dos compósitos foi de aumentar a resistência máxima à tração, mas reduzindo a deformação na ruptura.

Em seu estudo de adição de alumina modificada com silano e fibra de vidro no polipropileno virgem, utilizando 2% em massa de agente de acoplamento, Muylaert (2018) demonstrou que a aplicação do agente de acoplamento PP-g-MA mostrou uma tendência de aumento na resistência à tração no escoamento para todos os compósitos avaliados, o que está em linha com os resultados descritos na literatura. Por outro lado, o aumento na quantidade de alumina levou a uma tendência de diminuição na resistência à tração no escoamento dos compósitos.

Porém, apesar da adição de carga ter reduzido a resistência à tração do estudo de Muylaert (2018), a adição do resíduo não demonstrou alteração entre as amostras de PP e PP/50R, portanto o resíduo não exerceu influência sob esta propriedade. Nas PP/50R/025P,

houve um aumento de cerca de 10% na resistência à tração em relação ao PP/50R, enquanto a amostra PP/50R/05P aumentou 6,3% e a PP/50R/10P cresceu 10,8%. Estes resultados demonstram que o agente de acoplamento pode estar melhorando a adesão interfacial entre o resíduo e a matriz (ROUX et al, 2018). As diferenças de aumentos percentuais entre os três diferentes percentuais de Polybond 3200 estão associados à não uniformidade do resíduo.

Zulkifli e Samat (2013) estudaram o efeito da adição de agentes de acoplamento em polipropileno reciclado com fibras de celulose, e como resultado obtiveram que para os compósitos de PP reciclado (rPP) e fibra sem nenhum agente de acoplamento, a resistência à tração e o módulo de tração são menores em comparação aos do rPP. No entanto, tanto a resistência à tração quanto o módulo de tração aumentaram com a incorporação de polipropileno modificado com anidrido maleico (MAPP) nos compósitos rPP/fibra. Presume-se que o melhor desempenho dos compósitos rPP/fibra com MAPP se deve à melhoria na força da ligação interfacial entre os grupos de anidrido maleico e as fibras de celulose. A presença de MAPP também aumentou a compatibilidade entre o rPP e os segmentos de PP do MAPP. No entanto, também foi observado que as várias quantidades de MAPP (2 a 5% em massa) resultaram em mudanças insignificantes na resistência à tração, entre si. A adição de 3% de MAPP apresentou um leve ganho em relação às demais concentrações, porém foi um aumento considerado insignificante e estaticamente igual aos demais resultados.

Análogo ao estudo acima mencionado foram os resultados obtidos para as amostras listadas na Tabela 15. O PP/50R teve uma redução do módulo de tração em relação à amostra de PP de aproximadamente 9%, indicando que o resíduo não é totalmente compatível com a matriz, causando defeitos dentro do material, como fissuras ou cavidades, podendo concentrar tensões e reduzir a capacidade do material de suportar cargas. Já na amostra com 2,5% de agente de acoplamento foram observados valores mais altos de módulo, muito parecido com a amostra de PP, mostrando que o agente de acoplamento melhorou a adesão entre matriz e resíduo. Nas concentrações de 5 e 10%, o módulo volta a cair, indicando que neste caso parte do agente de acoplamento auxiliou na melhoria da adesão, e o agente de acoplamento excedente está agindo de certa forma como um auxiliar de fluxo, aditivos estes que tendem a reduzir o módulo de flexão (LIN et al, 2015).

Lin et al (2015) obtiveram um resultado semelhante a este quando realizaram um estudo que utiliza o método de mistura por fusão para produzir compósitos de polipropileno/fibras curtas de vidro (SGF). O PP serve como matriz, enquanto as SGF atuam como reforço. As propriedades de tração obtidas para os vários compósitos PP/SGF são comparadas às dos compósitos de PP/SGF puro (ou seja, o grupo de controle). Os compósitos incorporados com

8% em massa de PP-g-MA têm uma resistência à tração de 79,0 MPa, em comparação com o grupo de controle, 67,6 MPa, tendo esta propriedade aumentado. A resistência à tração dos compósitos é proporcional à quantidade de PP-g-MA. O módulo de tração dos compósitos PP/SGF incorporados com 8% em massa de PP-g-MA é de 2004 MPa, o que é maior do que o do grupo de controle, 1998 MPa.

4.3.6.2 Resistência À Flexão

Na Tabela 16 estão apresentados os resultados do ensaio de flexão para as amostras. O ensaio corresponde aos resultados de deformação percentual, resistência à flexão e seu respectivo módulo.

Tabela 16. Resultados do ensaio de flexão para as amostras (A autora, 2024).

Amostra	Deformação (%)	Resistência à Flexão (MPa)	Módulo de Flexão (MPa)
PP	7,86 ± 0,26 ^a	20,29 ± 0,37 ^a	528,2 ± 16,1 ^a
PP/50R	8,15 ± 0,49 ^a	18,96 ± 0,29 ^b	543,2 ± 11,7 ^a
PP/50R/025P	6,67 ± 0,15 ^b	27,03 ± 0,54 ^c	925,1 ± 23,3 ^b
PP/50R/05P	6,82 ± 0,26 ^b	28,32 ± 0,45 ^d	1000,7 ± 56,0 ^c
PP/50R/10P	6,96 ± 0,08 ^b	28,88 ± 0,27 ^d	986,2 ± 40,8 ^{b,c}

Obs.: Média ± desvio padrão. Ao avaliar o resultado, letras diferentes indicam médias estatisticamente diferentes entre si (p-valor < 0,05).

Fonte: A Autora (2024).

Os valores de deformação apresentados na Tabela 16 referem-se à quantidade de deformação que o material sofre quando uma força de flexão é aplicada sobre ele. Este ensaio é usado para avaliar a resistência do material à flexão e sua capacidade de resistir à deformação sem quebrar. Para PP e PP/50R os resultados de deformação foram estaticamente iguais, mas quando adicionado o agente de acoplamento, a propriedade tendeu a diminuir em todos os três percentuais testados. A adição de um agente de acoplamento em compósitos diminui a deformação percentual ao melhorar a adesão entre a matriz polimérica e o reforço. Isso resulta em uma transferência de carga mais eficiente, aumentando a rigidez e a resistência do compósito. O agente de acoplamento também distribui as tensões de forma mais uniforme, reduzindo microfissuras e delaminações, e permitindo que o material suporte cargas maiores antes de deformar significativamente. Assim, a melhoria na interação entre a matriz e o reforço leva a uma menor deformação percentual sob carga (ADNAN et al, 2023).

Adnan et al (2023) estudaram as propriedades mecânicas de compósitos de polipropileno reciclado com casca de arroz, variando a concentração de casca de arroz de 10 a 40% e mantendo constante o percentual de MAPP em 4%. A análise de flexão descobriu que

os preenchimentos na matriz possuem uma excelente ligação interfacial no compósito. Em comparação com o rPP puro, os dados mostraram que 40% em massa de fibra tem a resistência e o módulo de flexão máximos. Isso pode ser atribuído à introdução do preenchimento e do agente de acoplamento, que aumenta devido à melhoria na região de fronteira entre o preenchimento e a matriz. Isso é ainda comprovado pelo fato de que a resistência à flexão melhora quando o MAPP é adicionado ao rPP puro.

Este comportamento descrito por Adnan et al (2023) está alinhado com os resultados para a resistência a flexão apresentados na Tabela 17. Há uma redução de cerca de 6,5% na resistência a flexão entre as amostras de PP e PP/50R, demonstrando que a má adesão interfacial e a não compatibilidade do resíduo com a matriz pode causar este decréscimo no resultado. Mas, com a adição do agente de acoplamento em concentração de 2,5% houve um acréscimo de 42,50% na resistência a flexão, ao passo que para as amostras de 5% e 10% os acréscimos foram de 33% e 34%, respectivamente. O agente de acoplamento promoveu uma maior interação entre a matriz e o resíduo. Esta interação mais robusta melhora significativamente a transferência de carga para a matriz, resultando em uma estrutura compósita mais coesa e resistente. A eficácia dessa transferência de carga é fundamental para a resistência mecânica do material sob flexão. Além disso, a melhor adesão interfacial proporcionada pelo agente de acoplamento permite que as tensões aplicadas ao compósito sejam distribuídas de forma mais uniforme ao longo da matriz. Essa distribuição uniforme das tensões minimiza a concentração de tensões, que de outra forma poderia levar a falhas prematuras, aumentando assim a resistência global do material. A presença do agente de acoplamento também reduz a formação de defeitos internos, como microfissuras e delaminações, que são pontos fracos potenciais no compósito. A redução desses defeitos internos contribui diretamente para a melhoria da resistência à flexão, uma vez que materiais com menos defeitos apresentam um desempenho mecânico superior (KARINA et al, 2017).

Quanto ao módulo de flexão, as amostras de PP e PP/50R não apresentaram alterações significativas, conforme demonstra a Tabela 16. Porém, quando é iniciada a adição de 2,5% de agente de acoplamento a amostra começa a apresentar uma maior rigidez, expressa por um aumento de cerca de 70% no módulo de flexão, em relação à amostra sem tal aditivo. Com 5% de agente de acoplamento, amostra PP/50R/05P, o aumento chega a 84% em relação ao PP/50R. Um resultado muito similar ao descrito acima para as amostras de 2,5 e 5% foi observado por Morales et al (2021) em uma investigação sobre a incorporação de cascas de grãos de cacau como carga de reforço em polipropileno reciclado, onde foi demonstrado que adicionar mais fibra e MAPP como agente de acoplamento melhora o módulo de flexão em 73% em relação

ao PP. O módulo dos compósitos com agentes de acoplamento em alta carga de preenchimento foi muito melhor do que o do compósito sem agentes de acoplamento.

Os resultados do módulo de flexão das amostras mostram um aumento significativo quando se adiciona um agente de acoplamento ao polipropileno (PP) misturado com resíduos de embalagens poliméricas recicladas e flexíveis. Esse comportamento pode ser explicado com base na melhoria da adesão interfacial entre a matriz de PP e os resíduos reciclados, promovida pelo agente de acoplamento. Inicialmente, a adição de 2,5% e 5% de agente de acoplamento leva a um aumento substancial no módulo de flexão, indicando que a ligação entre a matriz de PP e os resíduos poliméricos foi significativamente fortalecida. O agente de acoplamento melhora a compatibilidade entre a matriz hidrofóbica de PP e os componentes hidrofílicos presentes nos resíduos reciclados, promovendo uma melhor transferência de carga e aumentando a rigidez do compósito. Como resultado, os materiais se tornam mais resistentes à flexão, refletido nos valores mais altos do módulo de flexão (LIN et al, 2015).

No entanto, ao aumentar a concentração do agente de acoplamento para 10%, a amostra PP/50R/10P começa a ter um decréscimo no módulo de flexão, atingindo um resultado intermediário entre as amostras PP/50R/025P e PP/50R/05P. Esse valor reduzido pode ser explicado por alguns fatores, como a saturação da interfase, pois existe um limite para a quantidade de agente de acoplamento que pode ser efetivamente utilizada para melhorar a adesão interfacial. Quando este limite é atingido, o excesso de agente de acoplamento pode não se ligar eficazmente à matriz ou a carga, resultando em agregados ou regiões onde o excesso não contribui para a rigidez do material. Além disso, o efeito de plastificação da matriz deve ser levado em conta. Em concentrações muito altas, o agente de acoplamento pode atuar como um plastificante, diminuindo a rigidez geral da matriz polimérica. Este efeito pode reduzir o módulo de flexão, mesmo que a adesão interfacial esteja melhorada. Por fim, uma concentração elevada de agente de acoplamento pode levar a uma distribuição não uniforme na matriz. Isso pode criar áreas com diferentes propriedades mecânicas, resultando em uma diminuição na rigidez global do material (SULLINS et al, 2017).

No estudo de Lin et al (2015), descrito no subitem 4.3.6.1, também obtiveram resultados para os ensaios de flexão que estão em concordância ao encontrado no presente trabalho. Nas suas análises de módulo de flexão, à medida que aumenta a concentração do agente de acoplamento, aumenta também o módulo. Suas análises limitaram-se a até 8% em massa de agente de acoplamento. O módulo de flexão por eles obtido foi de 3565,9 MPa para a amostra de PP/fibras curtas de vidro como resultado da incorporação de 8% em massa de agente de acoplamento, em comparação com o grupo de controle, 3503,4 MPa.

Serra et al (2022) estudou o comportamento de compósitos com 30% em massa de fibras recicladas de algodão em polipropileno virgem. O estudo variou os percentuais de agente de acoplamento de 0 a 10% em massa. O resultado foi que a presença de agente de acoplamento facilitou a criação de ligações químicas entre os grupos OH na superfície das fibras. O mecanismo aceito é, por um lado, a criação de ligações de hidrogênio e ligações covalentes de éster entre os grupos hidroxila da superfície das fibras e os grupos anidridos do agente de acoplamento. Por outro lado, as cadeias de PP do agente de acoplamento se entrelaçaram com a matriz. O estudo mostrou como os compósitos não acoplados tendem a apresentar uma resistência à flexão similar ou ligeiramente superior à da matriz. Assim, é comum que a região de interfase seja composta principalmente por vazios e, portanto, a ancoragem mecânica ou a criação de ligação química seja altamente restrita. Além disso, os compósitos acoplados mostram um melhor contato entre as fibras e a matriz e os vazios são difíceis de detectar. Quando a porcentagem de agente de acoplamento foi aumentada até 6%, a resistência à flexão dos compósitos também aumentou. Uma resistência máxima local à flexão foi obtida para 6% em peso de agente de acoplamento. Percentuais mais altos de agentes de acoplamento resultaram em materiais compósitos com resistência à flexão decrescente. Fato estes que foram observados nos resultados do ensaio de flexão demonstrados neste trabalho, corroborando o fato de o módulo de flexão ter apresentado um decréscimo em percentuais de 10% de agente de acoplamento.

Isso pode ser explicado pelo autoenredamento das cadeias de agente de acoplamento, que ocorre quando há uma concentração excessiva de agente de acoplamento com uma matriz, neste caso um compósito de polipropileno misturado com resíduos reciclados. O agente de acoplamento, quando adicionado, promove a formação de ligações químicas entre a matriz de PP e os resíduos reciclados, melhorando a adesão interfacial. No entanto, quando a concentração de agente de acoplamento é muito alta, as cadeias de agente de acoplamento começam a se entrelaçar de maneira excessiva devido à sua capacidade de formar ligações intermoleculares entre si. Esse fenômeno de autoenredamento resulta em uma rede complexa e densa de cadeias de agente de acoplamento, que pode comprometer a eficiência do agente de acoplamento. Em vez de melhorar a interface entre o PP e os resíduos reciclados, o excesso de agente de acoplamento pode criar uma estrutura que diminui a uniformidade do compósito, gerando pontos de falha e reduzindo a eficácia da adesão entre as fases. Conseqüentemente, a resistência mecânica e a performance geral do material compósito podem ser prejudicadas, levando a uma diminuição na resistência à flexão e em outras propriedades mecânicas, ao invés do aumento esperado (OLIVER-ORTEGA et al, 2018).

4.3.6.3 Resistência Ao Impacto

A propriedade de resistência ao impacto das amostras foi também estudada. Na Tabela 17, estão apresentados os resultados desta propriedade, que aborda a capacidade dos materiais em absorver e dissipar a energia de impacto sem sofrer fraturas significativas, propriedade que é crucial para avaliar a durabilidade e a integridade estrutural dos compósitos.

Tabela 17. Resultados do ensaio de impacto (A autora, 2024).

Amostra	Resistência ao Impacto (J/m)
PP	304,74 ± 3,93 ^a
PP/50R	83,02 ± 9,68 ^b
PP/50R/025P	74,78 ± 7,86 ^b
PP/50R/05P	82,64 ± 10,56 ^b
PP/50R/10P	74,87 ± 3,53 ^b

Obs.: Média ± desvio padrão. Ao avaliar o resultado, letras diferentes indicam médias estatisticamente diferentes entre si (p-valor < 0,05).

Fonte: A Autora (2024).

A análise comparativa entre o PP e o PP/50R revela uma redução significativa na resistência ao impacto ao adicionar o material reciclado. O PP apresenta uma resistência ao impacto de 304,74 J/m, enquanto o PP/50R mostra uma queda substancial para 83,02 J/m. Esta diminuição acentuada pode ser atribuída à incompatibilidade entre o PP e os resíduos reciclados, que resulta em uma adesão interfacial mais fraca e, conseqüentemente, a uma menor capacidade de absorver e dissipar energia de impacto. O material reciclado, possivelmente por ser mais heterogêneo e menos homogêneo do que o PP, compromete a integridade estrutural e a resistência ao impacto do compósito. Entre as amostras que contêm agente de acoplamento, há uma variação nas propriedades de resistência ao impacto dependendo da concentração do agente de acoplamento. O PP/50R/025P, com 2,5% de agente de acoplamento, apresenta uma resistência ao impacto de 74,78 J/m, enquanto o PP/50R/05P, com 5% de agente de acoplamento, mostra um leve aumento para 82,64 J/m. Por outro lado, o PP/50R/10P, tem uma resistência ao impacto de 74,87 J/m, semelhante à do PP/50R/025P. Estes resultados indicam que, embora a adição de agente de acoplamento melhore parcialmente a resistência ao impacto em concentrações moderadas, uma concentração muito alta não proporciona ganhos adicionais e pode até reduzir a eficácia do agente de acoplamento. O aumento da concentração de agente de acoplamento além de 5% parece levar a uma eficácia decrescente na melhoria da resistência ao impacto, possivelmente devido ao fenômeno de autoenredamento das cadeias de agente de

acoplamento, que pode interferir negativamente na distribuição e interação com a matriz e os resíduos reciclados (OLIVER-ORTEGA et al, 2018).

Thomason e Rudeiros-Fernández (2020) em seu trabalho estudaram a adição de 10, 20 e 30% de fibra de coco em polipropileno, modificando o compósito com 5% de agente de acoplamento. A influência da carga de fibra e do conteúdo de agente de acoplamento nas propriedades de impacto foi a seguinte: no PP sem adição de fibra e agente de acoplamento a resistência ao impacto foi de 12 kJ/m², com 10% de fibra sem agente de acoplamento foi 5,5 kJ/m² e com 5% de agente de acoplamento foi 6,5 kJ/m² e quando a adição de fibra foi máxima, 30%, a resistência ao impacto sem modificação foi de 7 kJ/m² e com modificação de agente de acoplamento foi de 5,5 kJ/m². Para estes compósitos, a energia de impacto entalhado diminuiu significativamente com a adição inicial de 10% em massa de fibra de coco. Acima desse teor de fibra, a resistência ao impacto dos compósitos não modificados aumentou com a carga de fibra. Em 30% de fibra, os compósitos modificados com agente de acoplamento mostraram uma redução de 20% em comparação com os não modificados. A adição de agente de acoplamento resultou em uma redução de 62% na performance com 30% de fibra em massa. Mostrando este resultado que a adição de agente de acoplamento nem sempre resultará em uma maior resistência ao impacto, e comprovando assim que, de fato, o agente de acoplamento tem um ponto ótimo de concentração que quando ultrapassado interfere negativamente no desempenho mecânico dos compósitos.

CONCLUSÃO

Este trabalho investigou as propriedades de compósitos de polipropileno (PP) com a incorporação de resíduos reciclados, focando em diversos aspectos, incluindo morfologia, propriedades térmicas e mecânicas. Os resultados demonstram que a adição de resíduos reciclados afeta significativamente as propriedades do PP, revelando um comportamento complexo que varia de acordo com a composição e o ciclo de reprocessamento.

No que diz respeito à morfologia, as análises de Microscopia Eletrônica de Varredura (MEV) evidenciaram uma crescente heterogeneidade na superfície dos compósitos com o aumento da porcentagem de resíduos reciclados. Essa heterogeneidade é atribuída à distribuição não uniforme dos componentes e à possível segregação de fases, o que impacta diretamente nas propriedades mecânicas e térmicas do material.

Propriedades térmicas foram avaliadas através da análise termogravimétrica (TGA) e calorimetria exploratória diferencial (DSC). A TGA mostrou que, apesar de uma leve variação na estabilidade térmica, o principal impacto da adição de resíduos está relacionado ao aumento do teor de cinzas, refletindo a presença de materiais inorgânicos. Já a DSC indicou uma redução no grau de cristalinidade dos compósitos com resíduos reciclados, sugerindo que a presença dos resíduos interfere na organização das cadeias do PP.

Em termos de propriedades mecânicas, os resultados indicam que, embora o alongamento no escoamento aumente com a adição de resíduos reciclados, a resistência à tração e à flexão apresenta uma tendência de redução. Esses achados sugerem que, embora os compósitos possam ser utilizados em aplicações que demandem maior deformidade, a diminuição das propriedades mecânicas requer um cuidado adicional na escolha das aplicações industriais.

No entanto, de maneira geral, este trabalho demonstra o potencial da utilização de compósitos de PP com resíduos reciclados. A combinação de uma abordagem sustentável com a manutenção de propriedades satisfatórias torna esses compósitos uma opção promissora para a indústria de materiais poliméricos e compósitos, contribuindo significativamente para a redução de resíduos e a economia circular.

REFERÊNCIAS

ABRE (2018). **Estudo abre macroeconômico e de tendências.**

Apresentação março de 2019: retrospecto de 2018 e perspectivas para os próximos anos.

ABRE (2021). **O valor das Embalagens Flexíveis no aumento da vida útil e na redução do desperdício de Alimentos.**

ABRE (2023). **Estudo abre macroeconômico da embalagem e cadeia de consumo.**

Apresentação março de 2023: retrospecto de 2022.

ADNAN, Umar Iqqbal Al-Biruni Mohd et al. **Mechanical Properties of Rice Husk-Recycled Polypropylene Composite.** Journal of Mechanical Engineering Vol. SI 12, 45-61, 2023.

AHAMED, Ashiq et al. **Flexible packaging plastic waste – environmental implications, management solutions, and the way forward.** Elsevier Ltd., 2021.

AKKOYUN, Serife. **Mechanical properties and interfacial interactions in oleyl titanate-treated blast furnace slag/polypropylene composites.** Journal of Applied Polymer Science, 2022.

ALTAY; Lütfiye, et al. **The effect of various mineral fillers on thermal, mechanical, and rheological properties of polypropylene.** Research on Engineering Structures & Materials 7(3) (2021) 361-373.

AMBIPAR GROUP. **Com tecnologia inovadora, NESCAU e BOOMERA transformam embalagens flexíveis pós-consumo em itens esportivos.** Disponível em:

<https://boomera.com.br/boomera-e-nescau-criam-produtos-circulares-que-geraram-impactos-sociais-e-ambientais/>. Acesso em: 15 de Jul. de 2023.

ANTÓN, Natividad et al. **Reliability and Mechanical Properties of Materials Recycled from Multilayer Flexible Packages.** Materials 2020, 13, 3992.

ANUAR SHARUDDIN, S.D, et al. **A review on pyrolysis of plastic wastes.** Energy Convers. Manage. 2016, 115, 308.

ANUKIRUTHIKA, T. et al. **Multilayer packaging: advances in preparation techniques and emerging food applications.** Compr. Rev. Food Sci. Food Saf., 19 (3) (2020), pp. 1156-1186

AUMNATE, C.; RUDOLPH, N. et al. **Recycling of polypropylene/polyethylene blends: Effect of chain structure on the crystallization behaviors.** Polymers (Basel), v. 11, n. 9, 2019.

AZEVEDO, Julia. **Entenda o que são polímeros e para que servem.** Consumo e produção, eCycle 2022. Disponível em: <https://www.ecycle.com.br/polimeros/>. Acesso em 16 jun. 2022.

BASTOS, D. C.; LEÃO, A. G.; PEREIRA, P. S. C. **Characterization of Polypropylene Post-Consume / Banana Fiber Composites**. *Acta Scientiae et Technicae*, v. 6, p. 19-22, 2018.

BAUER, Anna-Sophia et al. **Recyclability and Redesign Challenges in Multilayer Flexible Food Packaging—A Review**. *Foods* **2021**, 10, 2702.

BETTANIN, Andrea et al. **Reciclagem mecânica de filmes metalizados: influência do agente de acoplamento nas propriedades mecânicas**. 15º Congresso Brasileiro de Polímeros, São Paulo, 2019.

BÓ, M. D. et al. **Efeito da incorporação de aditivos estabilizantes na reciclagem mecânica de filmes metalizados**. Programa de Pós-Graduação em Ciência e Engenharia de Materiais – PGMAT Departamento de Engenharia Mecânica – UFSC, vol. 21, p. 5, 2011.

BRANDENBURG, R. F. **Influence of mixing methods on the properties of high density polyethylene nanocomposites with different carbon nanoparticles**. *Matéria* (Rio de Janeiro), [S. l.], v. 22, n. 4, p. e-11888, Oct. 2017.

BRASKEM. **Filme barreira para embalagens, uma novidade no mercado**. *Technical Service*, 2021. Disponível em: <https://www.braskem.com.br/technical-service/tsd-detah-noticia/filme-barreira-para-embalagens-uma-novidade-no-mercado>. Acesso em 04 jul de 2022.

BRAGA, N.F. et al (2019). **Influence of compatibilizer and carbon nanotubes on mechanical, electrical, and barrier properties of PTT/ABS blends**. *Adv Ind Eng Polym Res* 2:121–125.

BOLBA, C.A. **Tenacificação de PET reciclado com EPDM, Mestrado Acadêmico, UFRGS, Brasil, 2018**.

BURGADA, Francisco et al. **Upgrading Recycled Polypropylene from Textile Wastes in Wood Plastic Composites with Short Hemp Fiber**. *Polymers* **2021**, 13(8), 1248.

CALLISTER, J.W. D.; RETHWISCH, D.G. **Ciência dos Materiais**. 8a Ed - Livro - Portugues.pdf, 8th ed., LTC, Rio de Janeiro, 2012.

CASTRO D.O et al. **Use of castorand canola oils in biopolyethylene curaua fiber composites**. *Compos A Appl Sci Manuf* (2017) 95(4):22–30

CERQUEIRA, Vicente. **Reciclagem de Polímeros: Questões Sócio-ambientais em Relação ao Desenvolvimento de Produtos**. 9º Congresso Brasileiro de Pesquisa e Desenvolvimento em Design, Rio de Janeiro. 2018.

CHOI, Seran; KIM, Jooheon. **Thermal conductivity of epoxy composites with a binary-particle system of aluminum oxide and aluminum nitride fillers**. *Composites: Part B* 51 (2013) 140–147.

CHOUHAN, S. **Mechanical and UV absorption behavior of zinc oxide nanoparticles: reinforced poly(vinyl alcohol-g-acrylonitrile) nanocomposite films.** *Polym. Bull.* 74 (2017) 4119–4141.

CLUBE DA EMBALAGEM (2023). **Indústria brasileira de embalagens plásticas flexíveis registra alta na produção e queda no faturamento em 2022.** Disponível em: [https://clubedaembalagem.com.br/noticias/industria-brasileira-de-embalagens-plasticas-flexiveis-registra-alta-na-producao-e-queda-no-faturamento-em-2022/#:~:text=Em%202022%2C%20a%20produ%C3%A7%C3%A3o%20brasileira,\(polietileno%20de%20alta%20densidade\).](https://clubedaembalagem.com.br/noticias/industria-brasileira-de-embalagens-plasticas-flexiveis-registra-alta-na-producao-e-queda-no-faturamento-em-2022/#:~:text=Em%202022%2C%20a%20produ%C3%A7%C3%A3o%20brasileira,(polietileno%20de%20alta%20densidade).) Acesso em: 15 de Jul. de 2023.

COCKBURN, Rafael et al. **Investigation of the Mechanical Properties of Parts Fabricated with Ultrasonic Micro Injection Molding Process Using Polypropylene Recycled Material.** *Polymers.* 2020; 12(9):2033.

COSTA, Anna Raffaella de Matos. **Blendas de Poli (B-Hidroxibutirato) e Poli (Butileno-Adipatotereftalato) e seus compósitos com babaçu: efeito da composição e das condições de processamento.** 2019. 221f. Tese (Doutorado em Ciência e Engenharia de Materiais) - Centro de Ciências Exatas e da Terra, Universidade Federal do Rio Grande do Norte, Natal, 2019.

COZA. **Cesta Organizadora Coza One Pequena 1,5 Litros Natural.** Disponível em: <https://www.coza.com.br/organizacao/cestas-organizadoras/cesta-organizadora-coza-one-p-1-5-litros-natural>.

Directive 2008/98/EC of the European Parliament and of the Council of 19 November 2008 on waste, in: European Commission (Ed.) 2008.

EL HOUDA SID, Asma et al. **Improving the Environmental Sustainability through Efficient Recycling and Valorization of Polypropylene (PP)/Polyamide 66 (PA66)/Nanoclay Nanocomposite Blends with Recycled Polypropylene.** *Journal of Macromolecular Science Part B Physics*, 2024.

ENGEL, Rafael Luís et al. **Estudo da qualidade de polipropileno (PP) reciclado.** Congresso brasileiro de ciência e tecnologia em resíduos e desenvolvimento sustentável, 2004.

ERIKSEN, M. K., et al. **Contamination in plastic recycling: Influence of metals on the quality of reprocessed plastic.** *Waste Management*, 2018, New York, 79, 595–606.

FAEZ, Roselena et al. **Atualidades em Química: Polímeros Condutores.** *Química Nova Escola*, nº 11, maio 2000. Disponível em: <http://qnesc.sbq.org.br/online/qnesc11/v11a03.pdf>. Acesso em 17 jun. 2022.

FAGUNDES, Tainã Fabiane da Silva. **Adesão interfacial dos resíduos calcinados da concha de molusco em compósitos de polipropileno/polietileno com anidrido maleico (2022).** Disponível em: https://repositorio.ufpb.br/jspui/bitstream/123456789/26232/1/Tain%c3%a3FabianeDaSilvaFagundes_Dissert.pdf. Acesso em: 23 de Set. de 2023.

FAVARO, Silvia Luciana et al. **Outstanding Impact Resistance of Post-Consumer HDPE/Multilayer Packaging Composites.** *Materials Sciences and Applications*, 2017, 8, 15-25.

FERG, E. E.; BOLO, L. L. **A correlation between the variable melt flow index and the molecular mass distribution of virgin and recycled polypropylene used in the manufacturing of battery cases.** *Polymer Testing*, v. 32, n. 8, p. 1452–1459, 2013.

FERREIRA, E. DA S. B. et al.. **Properties and Morphology of Polypropylene/Big Bags Compounds.** *Materials Research*, v. 22, p. e20180850, 2019.

FERREIRA, Matheus Fonseca. **Compósito formado por poli(*o*-etoxianilina) e zinco metálico: uma abordagem estrutural, espectroscópica e morfológica.** Dissertação de Mestrado (Ciência e Engenharia de Materiais). Universidade Federal do Amazonas, Manaus, AM: 2020.

GARCIA, Jeannette; ROBERTSON, Megan L. **The future of plastics recycling.** *Science*, 2017. Vol 358, Issue 6365. pp. 870-872.

GOUD, Vijay et al. **Influence of various forms of polypropylene matrix (fiber, powder and film states) on the flexural strength of carbon-polypropylene composites.** *Composites Part B* 166 (2019) 56.

GRAZIANO, A., JAFFER, S., SAIN, M. **Review on modification strategies of polyethylene/polypropylene immiscible thermoplastic polymer blends for enhancing their mechanical behavior,** *Journal of Elastomers & Plastics*, v. 51, n. 4, pp. 291-335, 2019.

GUARANY, Juliana. **Mercado sustentável: como funcionam as lojas de desperdício zero.** Disponível em: <https://believe.earth/pt-br/mercado-sustentavel-como-funcionam-as-lojas-de-desperdicio-zero/>. Acesso em: 19 de Mar 2024.

HAMMAMI, Dorra et al. **Efect of maleic anhydride–grafted polypropylene coupling agent on mechanical properties of HDPE composites filled with grape leaves fiber.** *Biomass Conversion and Biorefinery* (2024) 14:15251–15263.

HUANG, S. et al. **Plastic Waste Management Strategies and Their Environmental Aspects: A Scientometric Analysis and Comprehensive Review.** *Int J Environ Res Pub Health Act* 2022, 19, 1.

JESSON, J.K, et al. **Barriers to Recycling: A Review of Evidence Since 2008.** *The Waste & Resources Action Programme: Banbury, UK*, 2014.

JUNG, Dongjun, et al. **Adaptive Self-Organization of Nanomaterials Enables Strain-Insensitive Resistance of Stretchable Metallic Nanocomposites.** *Adv. Mater.* 2022, 34, 2200980.

KARINA, Myrtha, et al. **"Physical and mechanical properties of recycled polypropylene composites reinforced with rice straw lignin,"** *BioRes.* 2017 - 12(3), 5801-5811.

KAISER, Katharina, SCHMID, Markus; SCHLUMMER, Martin. **Recycling of Polymer-Based Multilayer Packaging: A Review**. *Recycling*, 2018, 3, 1.

KIM, Donghwi, et al. **Effect of Aluminum Flakes on Mechanical and Optical Properties of Foam Injection Molded Parts**. *Polymers* 2021, 13, 2930.

KOSSENTINI KALLEL, T. et al. **Mechanical and structural properties of glass fiber-reinforced polypropylene (PPGF) composites**. *Polymer Composites*, v. 4, 2017.

KUMAR, Rakesh et al. **Impacts of Plastic Pollution on Ecosystem Services, Sustainable Development Goals, and Need to Focus on Circular Economy and Policy Interventions**. *Sustainability* 2021, 13(17), 9963.

LANNOY, CF. et al. **A highly electrically conductive polymer–multiwalled carbon nanotube nanocomposite membrane**. *Journal of Membrane Science* 415-416 (2012) 718–724.

LAHTELA, V.; SILWAL, S.; KARKKI, T. **Re-Processing of Multilayer Plastic Materials as a Part of the Recycling Process: The Features of Processed Multilayer Materials**. *Polymers*, 2020, 12 (11).

LE, T.-H.; KIM, Y.; YOON, H.: **Electrical and Electrochemical Properties of Conducting Polymers**. *Polymers (Basel)*. 9, 150, 2017.

LIBANO, Elaine Vidal Dias Gomes; et al. **Estudo da influência do teor de fibras e de compatibilizante na obtenção de compósitos de polietileno de alta densidade pós-consumo (PEADpc) com fibras de bagaço de cana-de-açúcar (BCA)**. *Cadernos UniFOA*, Volta Redonda, n. 43, p. 49-61, agosto 2020.

LIMA, P. H. C.; FONSECA, D. F.; BRAZ, C. J. F.; CUNHA, C. T. C. **Polímeros Condutores com Propriedades Eletrocromáticas: Uma Revisão**. *Revista Eletrônica de Materiais e Processos*, v. 13, n. 1 (2018) 1-17.

LIN, Jia-Horng et al. **Polypropylene/Short Glass Fibers Composites: Effects of Coupling Agents on Mechanical Properties, Thermal Behaviors, and Morphology**. *Materials*, Basel, v. 8, n. 12, p.8279-8291, 2015.

LIU, B.; XU, A.; BAO, L. **Preparation of carbon fiber-reinforced thermoplastics with high fiber volume fraction and high heat-resistant properties**. *Journal of Thermoplastic Composites Materials*, 2015.

LUO, Q. **Facile preparation of well-dispersed ZnO/cyclized polyacrylonitrile nanocomposites with highly enhanced visible-light photocatalytic activity**. *Appl. Catal. B Environ.* 204 (2017).

LUNA, Carlos Bruno Barreto, et al. **Desenvolvimento de Blendas Poliméricas visando a Tenacificação dos Polímeros: Uma revisão**. *Semina: Ciências Exatas e Tecnológicas*, Londrina, v. 36, n. 1, p. 67-80, jan./jun 2015.

LUNA, C. B. B.; SILVA, D. F.; ARAÚJO, E. M. **Análise do comportamento termomecânico, térmico e mecânico de blendas de PA6/resíduos de borracha.** Revista de Engenharia e Tecnologia, v. 6, n. 1, p. 160-169, 2014

MARIS S. J., et al. **Compatibilization of mixed thermoplastic wastes.** Polym. Degrad. Stab. 2018, 147, 245.

MEDEIROS, E. S.; OLIVEIRA, J. E.; CONSOLIN-FILHO, N.; PATERNO, L. G.; MATTOSO, L. H. C. **Uso de polímeros condutores em sensores. Parte 1: Introdução aos polímeros condutores.** Revista Eletrônica de Materiais e Processos, 7, 62-77, 2012.

MIRI, V. et al. **Effect of water absorption on the plastic deformation behavior of nylon 6.** Eur. Polym. J., 45 (3) (2019), pp. 757-762.

MORALES, M. A. et al. **Development and characterization of a 3D printed cocoa bean shell filled recycled polypropylene for sustainable composites.** Multidisciplinary Digital Publications Institute, vol. 13, no. 18, pp. 1–17, 2021. doi: 10.3390/polym13183162.

MYSIUKIEWICZ, Olga et al. **Mechanical, Thermal and Rheological Properties of Polyethylene-Based Composites Filled with Micrometric Aluminum Powder.** Materials 2020, 13, 1242.

NOFAR, Mohammadreza; OZGEN, Elif; GIRGINER, Burcu. **Injection-molded PP composites reinforced with talc and nanoclay for automotive applications.** Journal of Thermoplastic Composite Materials, 2019.

NOGUEIRA, Jessika Andrade dos Santos et al. **Do descarte ao reaproveitamento do resíduo de estireno-butadieno (SBRr): produção de compostos de PA6/SBRr compatibilizados com SEBS-MA e reforçados com argila montmorilonita.** Revista de gestão e secretariado v.14, n.5, 2023.

Norma ASTM D3878, 2016, **“Standard Terminology for Composite Materials”** (Terminologias padrão para materiais compósitos), ASTM International.

OLIVER-ORTEGA, H., et al. **Macro and micromechanical preliminary assessment of the tensile strength of particulate rapeseed sawdust reinforced poly-propylene copolymer biocomposites for its use as building material.** Construction and Building Materials 168:422–30, 2018.

OVCHINNIKOV, Vasily et al. **Investigation of Novel Polymer Composites Based on Recycled Multilayer Combined Packaging Materials.** Trans Tech Publications Ltd, Switzerland, 2020.

PARK, Chul Soon; LEE, Changsoo; KWON, Oh Seok. **Review: Conducting Polymer Based Nanobiosensors.** Polymers 2016, 8, 249.

PAULETTI, Hellen Cristina et al. **Study of the residual polymer-aluminum recycling process of carton packaging.** Research, Society and Development, v. 10, n. 13, 2021.

PEREIRA, Thiago Henrique et al. **Blendagem de resíduos para coprocessamento.**

Disponível em:

https://www.bambui.ifmg.edu.br/portal/images/PDF/2020/Cartilha_Blendagem_para_Coprocessamento.pdf. Acesso em: 12 de Set. 2023.

PLÁSTICO SUL. **"Nylon é reciclável e não afeta a corrente de reciclagem do PE", afirma UBE (2021).** Disponível em:

<http://www.revistaplasticosul.com.br/sustentabilidade/nylon-e-reciclavel-e-nao-afeta-a-corrente-de-reciclagem-do-pe-afirma-ube/>. Acesso em: 12 de Set. 2023.

PLASTICS RECYCLERS EUROPE (2022) **Recyclability of flexible polyethylene with novel findings**, PP & PA.

PLASTICS RECYCLERS EUROPE (2022) **PE flexible films recycling: new findings for functional barriers** - EVOH properties tested.

POLETTO, Matheus. **Modificação química do óleo de soja com anidrido maleico: uma alternativa sustentável para o óleo após a fritura.** Scien. Jour. of Envir. Scien. and Biotech., 6(1): 38-43, Abril 2020.

PROQUITEC. **Therpol, uma inovação sustentável.** Disponível em:

<https://everbio.com.br/therpol-2/>. Acesso em: 27 de Ago de 2023.

PUD, A. et al. **Some aspects of preparation methods and properties of polyaniline blends and composites with organic polymers.** Progress in Polymer Science. França. n. 28, p.1701-1753, 2003.

MUSTATA, F.; TUDORACHI, N. **Thermosets based on castor oil modified with Diels-Alder adduct of levopimaric acid and diglycidyl ether of bisphenol A.** Composites Part B, v.97, p.263-273, 2016.

MRFF, Materials Recovery for the Future, 2020.

RAGAERT K., et al. **Design from recycling: a complex mixed plastic waste case study.** Resour. Conserv. Recycl., 155 (2020), Article 104646

RALLINI, M.; KENNY, JM. **In: Nanofillers in Polymers, Elsevier Inc., 2017, pp. 47–86**

RAPOPORT, Zohar; LEVY, Galy; DOTAN, Ana. **Natural source compatibilizers for olive waste/recycled polypropylene matrix composites.** Polym Adv Technol. 2023; 34:731–739.

RASANA, Nanoth; JAYANARAYANAN, Karingamanna. **Polypropylene/short glass fiber/nanosilica hybrid composites: evaluation of morphology, mechanical, thermal, and transport properties.** *Polymer Bulletin*, v. 75, n. 6, p.2587-2605, 2018.

RCR AMBIENTAL. **Coprocessamento de resíduos: como é feito?** Disponível em:

<https://rcrambiental.com.br/coprocessamento-de-residuos-como-e-feito/#:~:text=O%20coprocessamento%20reutiliza%20os%20res%C3%ADduos,de%20>

rejeitos%20em%20aterros%20sanit%C3%A1rios. Acesso em: 12 de Set. 2023.

RETILOX QUÍMICA. **Aumento de fluidez na injeção ou reciclagem de Polipropileno.** Disponível em: <https://www.linkedin.com/pulse/aumento-de-fluidez-na-injeção-ou-reciclagem-polipropileno-retilox/?originalSubdomain=pt>. Acesso em: 21 de mar. 2024.

ROUX, C.; DENAULT, J.; CHAMPAGNE, M. **Parameters regulating interfacial and mechanical properties of short glass fiber reinforced polypropylene.** Journal of Applied Polymer Science, v. 78, n. 12, p.2047-2060, 2018.

RYBIŃSKI, P. et al. **Effects of Basalt and Carbon Fillers on Fire Hazard, Thermal, and Mechanical Properties of EPDM Rubber Composites.** Materials, vol. 14, no. 18, Sep. 2021, Art. no. 5245.

SCHÄFER J. et al. **Process–structure relationship of carbon/polyphenylene sulfide commingled hybrid yarns used for thermoplastic composites.** J Ind Textil 2016; 45:1661–73.

SCHYNS, Z.O.G., SHAVER, M.P. **Mechanical Recycling of Packaging Plastics: A Review.** Macromolecular rapid communications, 2021, 42 (3).

SEIER, Martina et al. **Prospects for Recyclable Multilayer Packaging: A Case Study.** Polymers 2023, 15, 2966.

SEIER, Martina et al. **The morphology and properties of recycled plastics made from multi-layered packages and the consequences for the circular economy.** Resources, Conservation & Recycling 202 (2024) 107388.

SENGUN, Pinar et al. **Characterization of designed, transparent and conductive Al doped ZnO particles and their utilization in conductive polymer composites.** Powder Technology 374 (2020) 214–222.

SERRA, Albert, et al. **Study of the Flexural Strength of Recycled Dyed Cotton Fiber Reinforced Polypropylene Composites and the Effect of the Use of Maleic Anhydride as Coupling Agent.** Journal of Natural Fibers 2022, Vol. 19, N°. 14, 7627–7639.

SI GROUP. **Polybond 3200.** Disponível em: <https://siigroup.com/Products/POLYBOND-3200>. Acesso em: 15 de Jul. de 2024.

SINGH, Pooja; KATIYAR, Parul; SINGH, Harinder. **Impact of compatibilization on polypropylene (PP) and acrylonitrile butadiene styrene (ABS) blend: A review.** Materials Today: Proceedings, Volume 78, Part 1, 2023.

- SINDIPLAST. **Avaliação do ciclo de vida de produtos (2017)**. Disponível em: <https://www.sindiplast.org.br/movimento-plastico-transforma/avaliacao-do-ciclo-de-vida-de-produtos/>. Acesso em: 12 de Set. 2023.
- SILVA, A.; SOUZA, S., SANCHES, E. **Polypyrrole α -Al₂O₃ and polypyrrole CeO₂ core-shell hybrid nanocomposites**, J. Compos. Mater. 52 (2018) 1433–1441.
- SOARES, Camila Távora de Mello, et al. **Recycling of multi-material multilayer plastic packaging: Current trends and future scenarios**. Resources, Conservation & Recycling 176 (2022) 105905.
- SOARES, João Vitor Souza et al. **Determinação de parâmetros de qualidade de embalagens metalizadas flexíveis para alimentos**. Brazilian Journal of Development, [S. l.], v. 9, n. 3, p. 9124–9138, 2023.
- SONG, Xue-Chao et al. **Rapid classification of virgin and recycled EPS containers by Fourier transform infrared spectroscopy and chemometrics**. Food Additives & Contaminants: Part A, v. 35, n. 11, p. 2220-2229, 2018.
- SULLINS, T. et al. **Hemp fiber reinforced polypropylene composites: The effects of material treatments**. Composites Part B: Engineering 114:15–22, 2017.
- SVEČNJAK, L. et al. **An Approach for Routine Analytical Detection of Beeswax Adulteration Using FTIR-ATR Spectroscopy**. J Apic Sci 59, Dec. 2015.
- SVOBODA, P. **High-temperature study of radiation cross-linked ethylene–octene copolymers**, Polymer Bulletin, v. 74, n. 1, pp. 121–144, 2017.
- THOMASON, J.L. RUDEIROS-FERNÁNDEZ, J. L. **Evaluation of injection moulded natural fibre-polyolefin for potential in automotive applications**. Materials Today: Proceedings 31 (2020) S201-S205.
- TSOG, Battsetseg et al. **Thermal processing of plastic wastes for fuel**. Journal of Applied Science and Engineering A, Volume 5, Issue 1, 2024, pp.01-17.
- UEHARA GB, FRANÇA MP, CANEVAROLO JUNIOR SV (2015). **Recycling assessment of multilayer flexible packaging films using design of experiments**. Polímeros 25
- HUNDERTMARK, T. et al. **Waste-plastic processing provides global challenges and opportunities**, 2018.
- WALKER, T., et al. **Recycling of multilayer plastic packaging materials by solvent-targeted recovery and precipitation**. Sci. Adv., 6 (47) (2020).
- WYSER Y., LETERRIER Y., MÅNSON J-AE (2000). **Effect of inclusions and blending on the mechanical performance of recycled multilayer PP/PET/SiO_x films**. J Appl Polym Sci 78:910–918.
- ZANARDINI, Matheus Henrique. **Cinética da conversão térmica na pirólise de compósitos de polietileno/alumínio**. Universidade Tecnológica Federal do Paraná, Ponta Grossa, 2019.

ZHAN, Ke et al. **Impact of thermomechanical reprocessing on multilayer plastic packaging blend.** Elsevier Ltd. 0141-3910, 2024.

ZULKIFLI, Nur Izzati; SAMAT, Noorasikin. **Mechanical Properties of Green Recycled Polypropylene Composites: Effect of Maleic Anhydride Grafted Polypropylene (MAPP) Coupling Agent.** Advanced Materials Research Vol. 812 (2013) pp 187-191.

Waste to Energy by world energy council, 2016. Disponível em:
<https://www.worldenergy.org/publications/entry/world-energy-resources-2016>. Acesso em:
10 Nov. 2023.