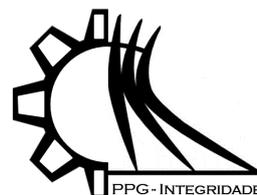




SSN 2447-6102



Article

Estudo da influência do tratamento e teor de fibras de coco e sisal nas propriedades térmicas de pré-impregnados de fibra natural/ epóxi

Silva, S.O.¹ e Luz, S.M.^{2,*}

¹ Departamento de Engenharia Mecânica, Faculdade de Tecnologia, Universidade de Brasília – UnB; sayraoliveiras.so@gmail.com

² Engenharia Automotiva, Faculdade do Gama, Universidade de Brasília – UnB; sandraluz@unb.br

* correspondence: sandraluz@unb.br

Received: 15/07/2020; Accepted: 27/08/2020; Published: 02/09/2020

Resumo: Pré-impregnados são normalmente utilizados na indústria automobilística e aeroespacial com a combinação de fibras sintéticas e resina epóxi parcialmente curada. Nesse estudo inovador, porém, serão utilizadas fibras naturais como a fibra de coco e sisal como reforço do epóxi. Os pré-impregnados laminados podem ser empilhados para a manufatura de compósitos laminados, que após curados podem apresentar excelentes propriedades mecânicas. Entretanto, a estabilidade térmica e o grau de cura desses materiais dependem de vários fatores, como tipo, tratamento e teor de fibras. Desta forma, neste estudo, o método Planejamento Fatorial de Experimentos (PFE) foi proposto para definir as melhores condições de fabricação de pré-impregnados de fibra natural/ epóxi. O planejamento tem como objetivo determinar as relações de significância das variáveis de um processo e definir a melhor metodologia de obtenção de um material. Os pré-impregnados obtidos a partir do planejamento foram então caracterizados por análise termogravimétrica (TGA) e calorimetria exploratória diferencial (DSC). As amostras foram preparadas a temperatura ambiente e analisadas após cinco dias de armazenamento. Os dados foram calculados com o auxílio de softwares estatísticos. Além disso, a interpretação dos efeitos foi feita de duas formas: geométrica e gráfica. Para ambas as interpretações, os pré-impregnados se comportaram de forma semelhante, onde os materiais confeccionados com fibras mercerizadas tiveram suas propriedades térmicas melhoradas, já que a temperatura de estabilidade térmica foi aumentada e o grau de cura ideal foi alcançado. Ambas as fibras se mostraram relevantes. Quanto ao teor de fibras, este apresentou efeito somente sobre a estabilidade térmica.

Palavras-chave: Pré-impregnados; Fibra natural/ epóxi; Planejamento fatorial; Análises térmicas.

Study of the influence of the treatment and the content of coconut and sisal fibers on the thermal properties of natural fiber/ epoxy prepregs

Abstract: Prepregs are typically used in the automotive and aerospace industry with the combination of synthetic fibers and partially cured epoxy resin. In this innovative study, however, natural fibers such as coconut fiber and sisal will be used as reinforcement in the epoxy. The laminated prepregs can be stacked for the manufacture of laminated composites, which after curing can have excellent mechanical characteristic. However, the thermal stability and degree of cure for these materials depend on the several factors, such as type, treatment, and fiber content. Thus, in this study, the Experimental Factorial Planning (EFP) method was proposed to define the best conditions to the manufacture of natural fiber/epoxy prepregs. Statistic planning has the objective to determine the significant relationships of the variables in a process and to define the best methodology to obtain a material. The prepregs selected after the planning were then characterized by thermogravimetric analysis (TGA) and differential scanning calorimetry (DSC). The samples were prepared at room temperature and analyzed after 5 days of storage. The data were calculated by using a statistical software. In addition, the effects were interpreted in two ways: geometric and

graphic. For both such as interpretations, the prepregs behave in a similar way, where the materials made with mercerized fibers have their thermal properties improved since the thermal stability temperature has been increased and the ideal degree of cure has been obtained. Both fibers are relevant. Regarding the fiber content, there is a significant effect only on the thermal stability.

Keywords: Prepregs; Natural fiber/epoxy; Factorial planning; Thermal Analysis.

1. Introdução

O sistema de pré-impregnados pode ser entendido como um material pronto para moldagem, composto por uma fibra de reforço e uma matriz polimérica, e é um dos principais métodos de fabricação de compósitos. Nos últimos anos devido a crescente preocupação ambiental, novas formas de substituir as fibras de reforço sintéticas, como carbono e vidro, por fibras naturais têm sido amplamente estudadas (Satyanarayana et al. 2005; Angrizani et al. 2006). Novos materiais baseados em fontes renováveis têm se tornado atrativos e já são utilizados em algumas aplicações nas áreas automotiva, aeroespacial e de construção civil (Rosa et al. 2010).

Entretanto existe uma lacuna na literatura relacionada ao efeito da inserção das fibras naturais sobre as propriedades térmicas de um pré-impregnado de resina epóxi/fibra natural. Questões relacionadas ao comportamento térmico perante o tipo, tratamento e teor de fibras sobre o desempenho da resina como grau de cura e estabilidade térmica ainda não foram completamente respondidas. Dessa forma, este trabalho tem como objetivo investigar por meio da metodologia de Planejamento Fatorial de Experimentos (PFE) os efeitos das variáveis contidas no processo de fabricação de pré-impregnados de fibra natural/ epóxi que influenciam nas propriedades térmicas do material.

Embora existam muitos tipos diferentes de fibras naturais, o sisal (*Agave sisalana*) tem sido uma opção atrativa devido seu crescimento em uma ampla gama de condições climáticas. É uma fibra lignocelulósica leve e atóxica com alta resistência específica e baixo custo. Originária da península Yucatã, México, essas fibras são extraídas das folhas de sisal e possuem de 150 a 200 cm de comprimento (Webo, Masu, e Maringa 2018). Diferente do sisal, o coco (*cocos nucifera*) é extraído dos tecidos que cercam a semente e medem cerca de 35 cm. Assim como o sisal é um material lignocelulósico caracterizado pela alta tenacidade e durabilidade devido ao seu alto teor de lignina e também uma opção de fibra para compor reforços em polímeros. Além disso possui boa resistência à ação microbiana e aos danos da água salgada (Rosa et al. 2010; Lau et al. 2018). Mesmo que as fibras tenham potencial para utilização como reforço, surgem limitações em seu desempenho devido seu caráter hidrofílico e a falta de compatibilidade com a matriz polimérica causando uma redução das propriedades térmicas e mecânicas. Para produzir superfícies mais rugosas que aderem melhor aos materiais poliméricos, as fibras precisam passar por tratamentos químicos a fim de modificar a estrutura de sua superfície. O hidróxido de sódio (NaOH) é o produto químico mais utilizados para clarear e limpar a superfície das fibras naturais, conhecido por alterar a estrutura da celulose pelo processo de alcalinização (Mwaikambo e Ansell 2002; Vidil et al. 2016).

A resina epóxi é um dos polímeros mais utilizados na produção de pré-impregnados, por possuir características amorfas, ser altamente reticulado quando curado, resultando em alta resistência a tração, fácil processamento e boas estabilidades térmica, química e dimensional. Geralmente são obtidos a partir de uma mistura líquida onde as moléculas orgânicas polifuncionais reagem gradualmente entre si, formando uma rede sólida tridimensional. Além disso, sua baixa viscosidade oferece uma flexibilidade única na aplicação e umectação das fibras (Campbell 2010; Vidil et al. 2016).

O planejamento fatorial é uma metodologia utilizada para determinar as relações de significância entre as variáveis de um processo. Para ser executado é necessário que os níveis de variáveis, controladas pelo experimentador, sejam especificados como superior (+) e inferior (-). Assim como o número "k" de fatores (qualitativos ou quantitativos) que serão usados para se fazer os experimentos. Em um planejamento de dois níveis exige-se a realização $2 \times 2 \times \dots \times 2 = 2^k$ ensaios diferentes. Este é o número mínimo de ensaios necessários para que o planejamento fatorial seja considerado completo (Nascimento e Oliveira 2016). Com os fatores e níveis definidos, é possível gerar a matriz de contraste conforme mostrado na Tabela 1, onde é possível calcular a soma dos quadrados dos parâmetros de modelagem incertos e suas interações (Montgomery 2001). A coluna com todos os níveis superiores é adicionada à matriz de contrastes para o cálculo da média de todas as respostas observadas.

Tabela 1. Matriz de contraste para um planejamento fatorial 2^k .

Média	Variáveis			Interações			
	X_1	X_2	X_3	X_{12}	X_{13}	X_{23}	X_{123}
+	-	-	-	+	+	+	-
+	+	-	-	-	-	+	+
+	-	+	-	-	+	-	+
+	+	+	-	+	-	-	-
+	-	-	+	+	-	-	+
+	+	-	+	-	+	-	-
+	-	+	+	-	-	+	-
+	+	+	+	+	+	+	+

A interpretação desses dados pode ser feita a partir de contrastes geométricos, onde em um planejamento de três fatores a figura básica é representada por um cubo e seus vértices que correspondem aos rendimentos, enquanto os efeitos principais e de interação são contrastes entre dois planos. Outra forma de se interpretar é a partir de gráficos que utilizam a inclinação das linhas, que representam os fatores em determinados níveis (Barros Neto, Scarminio, e Bruns 2001)

Neste trabalho, as respostas do planejamento fatorial foram obtidas por meio de análise dos pré-impregnados por análise termogravimétrica (TGA) e calorimetria exploratória diferencial (DSC). As técnicas oferecem respostas como o comportamento de perda de massa do material com o aumento controlado da temperatura, passando pelas degradações de cada componente no compósito (TGA) e o estudo do comportamento cinético de resinas podendo determinar os melhores perfis de cura e condições de preparação de compósitos (DSC) (Venkatachalam et al. 2016; Ferrari et al. 2014).

2. Materiais e Métodos

Materiais - Foi utilizado como matriz polimérica um conjunto de resina epóxi AR260 e endurecedor AH260 da empresa *Barracuda Advanced Composites*. E fibras de sisal e coco *in natura*, com comprimentos médios de 100 e 20 cm, respectivamente, da empresa SisalSul Indústria e Comércio Ltda. Parte das fibras foram mercerizadas com uma solução de hidróxido de sódio (NaOH) 5% (m/v). Para isso, as fibras foram imersas na solução de NaOH na proporção de 10:1 (solução: fibra) em banho maria a 80°C por 2h sob constante agitação. Em seguida, as fibras tratadas foram lavadas em água destilada até atingir pH 7,0. Depois, as fibras foram secas à temperatura ambiente por 72 h.

Obtenção dos pré-impregnados - Antes da preparação dos pré-impregnados, as fibras *in natura* e mercerizadas foram secas em estufa a 80°C por 2h a fim de remover o excesso de umidade. As fibras de coco foram dispostas de forma aleatória, enquanto o sisal foi distribuído de forma unidirecional, ambos em molde em aço inox de 50 x 50 x 1 mm. Para a preparação dos pré-impregnados, a solução da matriz foi preparada a temperatura ambiente misturando-se quantidades apropriadas de endurecedor de acordo com a indicação do fabricante 21 phr (*per hundred of resin*). O conjunto resina/endurecedor foi degasado por 5 min em um banho ultrassônico da marca *Kondortek*. O processo de impregnação foi realizado a partir do método *hand lay-up*, onde os pré-impregnados de 1 cm de espessura foram mantidos a temperatura ambiente até estágio-B (cura parcial da resina), o que durou aproximadamente 10 h. Para retardar o processo de cura os pré-impregnados, estes foram armazenados a -18°C. Também foi preparado uma amostra da resina pura em estágio-B para comparação. As condições para obtenção dos pré-impregnados obedeceram ao planejamento fatorial descrito na Tabela 2.

Caracterização térmica - As análises térmicas foram realizadas simultaneamente em um equipamento SDT Q600 (*TA Instruments*, EUA). As amostras de cada experimento, armazenadas em refrigerador por cinco dias, foram descongeladas por 1 h à temperatura ambiente antes das análises. Os ensaios foram realizados utilizando-se 10 ± 1 mg de amostras do pré-impregnados, das resinas pura pré-curada e logo após a mistura. As amostras foram depositadas em cadinho de alumina selado com tampa, sob uma atmosfera de nitrogênio com fluxo de gás de 50 mL/min a uma taxa de aquecimento de 5°C/min da temperatura ambiente até 600°C.

Planejamento fatorial - A fim de se investigar os efeitos das variáveis controláveis presentes no processo de fabricação de pré-impregnados de resina epóxi/fibra natural, um planejamento fatorial 2^3 conforme mostrado na Tabela 2 foi empregado. Os efeitos das variáveis individuais e suas interações foram analisados sobre a temperatura de estabilidade térmica e o grau de cura (α cura) do material. Para isso, variou-se o tipo de fibra (sisal ou coco), o

tratamento (*in natura* e NaOH) e o teor em massa das fibras (10 % e 15 %). No planejamento, os três fatores foram variados em dois níveis.

Tabela 2. Planejamento Fatorial 2³.

Fatores	Níveis	
	-	+
1. Tipo de fibra	Sisal	Coco
2. Tratamento	<i>in natura</i>	NaOH
3. Teor em massa de fibra	10 %	15 %

A matriz de planejamento (Tabela 3) lista os oito ensaios realizados na ordem padrão de níveis, alternando os sinais de forma gradativa. Para se estimar o erro padrão e avaliar a significância estatística dos efeitos, os experimentos foram realizados em duplicata. Dessa forma, a partir dos dados obtidos nos ensaios de TGA e DSC, pôde-se calcular os três fatores, das quatro interações entre os fatores e a média. Assim todos os resultados obtidos foram utilizados. A determinação de significância dos efeitos foi calculada com 95% de confiança, onde o valor do número de graus de liberdade do teste ($t_8 = 2,306$) foi multiplicado pelo erro.

Tabela 3. Matriz de Planejamento Fatorial 2³.

Pré-impregnado	Fatores		
	1	2	3
Sisal <i>in natura</i> 10 %/ epóxi	-	-	-
Coco <i>in natura</i> 10 %/ epóxi	+	-	-
Sisal NaOH 10 %/ epóxi	-	+	-
Coco NaOH 10 %/ epóxi	+	+	-
Sisal <i>in natura</i> 15 %/ epóxi	-	-	+
Coco <i>in natura</i> 15 %/ epóxi	+	-	+
Sisal NaOH 15 %/ epóxi	-	+	+
Coco NaOH 15 %/ epóxi	+	+	+

A temperatura de estabilidade térmica foi obtida nas curvas TGA quando uma considerável perda de peso começa a ocorrer em relação a linha base da curva. Já o grau de cura é determinado a partir da integração da área sob o pico exotérmico da curva DSC (Costa, Rezende, e Pardini 1999; Muralidhar 2015). Para tratamento dos dados foram utilizados os softwares *TA Instruments Analysis Q200* e *software Action Stat* integrado ao *Microsoft Excel*, dados de curvas e cálculos do planejamento fatorial, respectivamente.

3. Resultados e Discussão

Os pré-impregnados obtidos obedecendo o planejamento fatorial foram então submetidos a análise termogravimétrica. As curvas TGA e DTG (Derivada das curvas TGA) estão mostradas na Figura 1. Os picos observados ocorrem quando a variação da massa é máxima (Hatakeyama e Quinn 1999), neste momento acontece a degradação de algum componente do material.

O momento representado pelo início da queda repentina da massa na curva TGA é fixado como a temperatura de estabilidade térmica, e ocorre entre 245,87-269,72°C. Ao decorrer da queda, três picos podem ser visualizados nas curvas DTG. O primeiro, entre 250-300°C, ocorre de forma leve e está associado a degradação da hemicelulose, o segundo, entre 300-340°C, está associado a degradação das ligações glicosídicas que ocorrem em temperaturas mais elevadas. O terceiro e maior pico acontece entre 340-380°C e está relacionado a degradação da resina e seus solventes ((Dalla 2019; Martin et al. 2009). De acordo com (Nunes 2018) esse tipo de resina costuma degradar a 375°C. É importante notar que os pré-impregnados que continham as fibras mercerizadas tiveram picos iniciais menos intensos, o que comprova a remoção da hemicelulose presente em sua estrutura. Dessa forma há o aumento da rugosidade da fibra e a remoção das impurezas superficiais o que aumenta a ligação interfacial entre as fibras e a matriz (Chaishome e Rattanapaskorn 2017). Observou também que quanto maior o teor de fibras, menor a perda de

massa do material e da temperatura de estabilidade térmica acarretando no início da degradação a temperaturas mais baixas (Poletto et al. 2009).

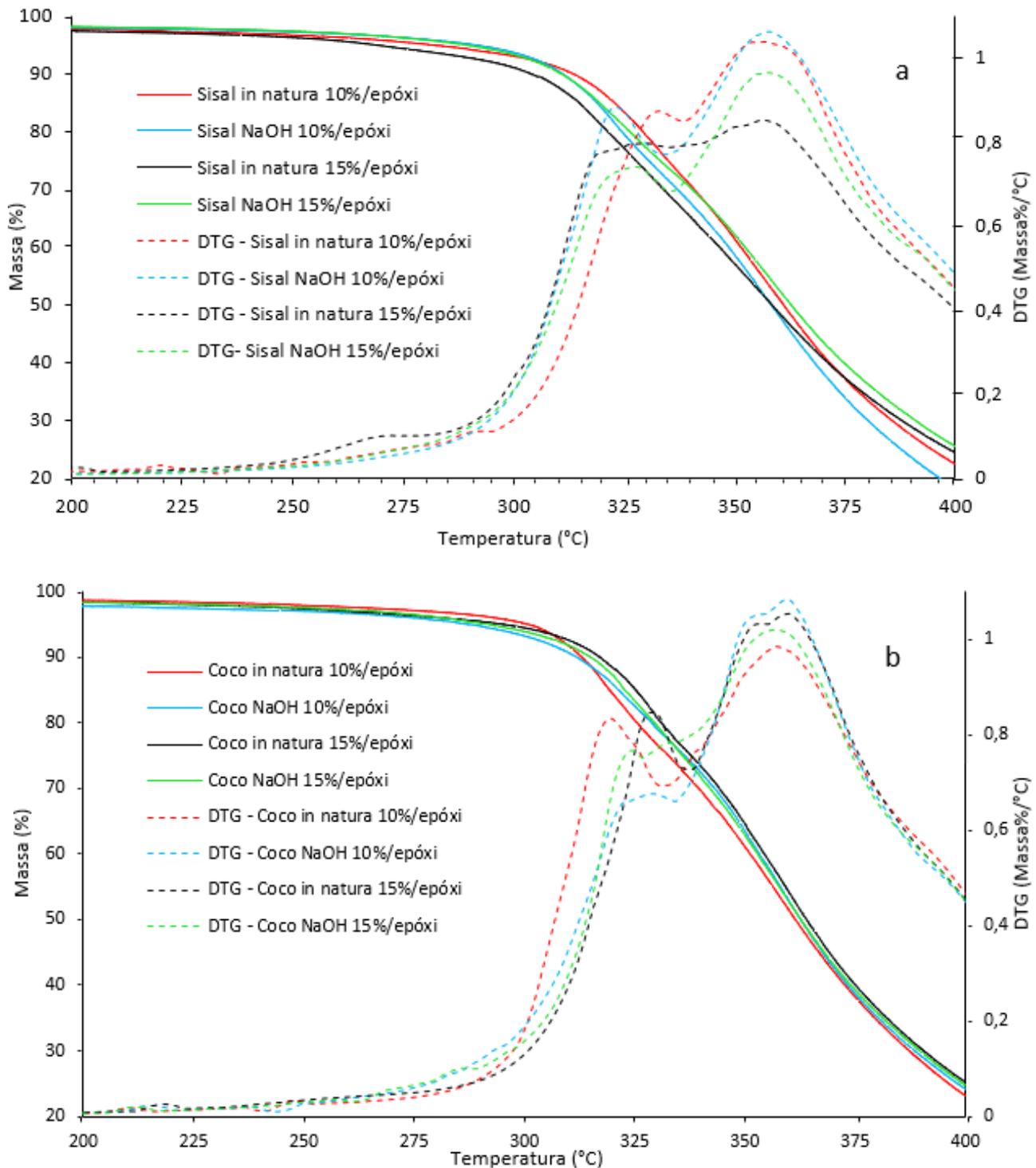


Figura 1. Curvas TGA-DTG dos pré-impregnados de (a) sisal/epóxi e (b) coco/epóxi.

Com o objetivo de verificar o grau de cura da resina, compararam-se as áreas dos picos exotérmicos nas curvas DSC (Figura 2). Percebeu-se que o pico da resina não curada é mais intenso e largo do que os materiais com resina parcialmente curada, onde a cura foi iniciada com picos mais achatados. Este fenômeno indica o início da cura, isto é, quando as ligações cruzadas se estabelecem (Vidil et al. 2016).

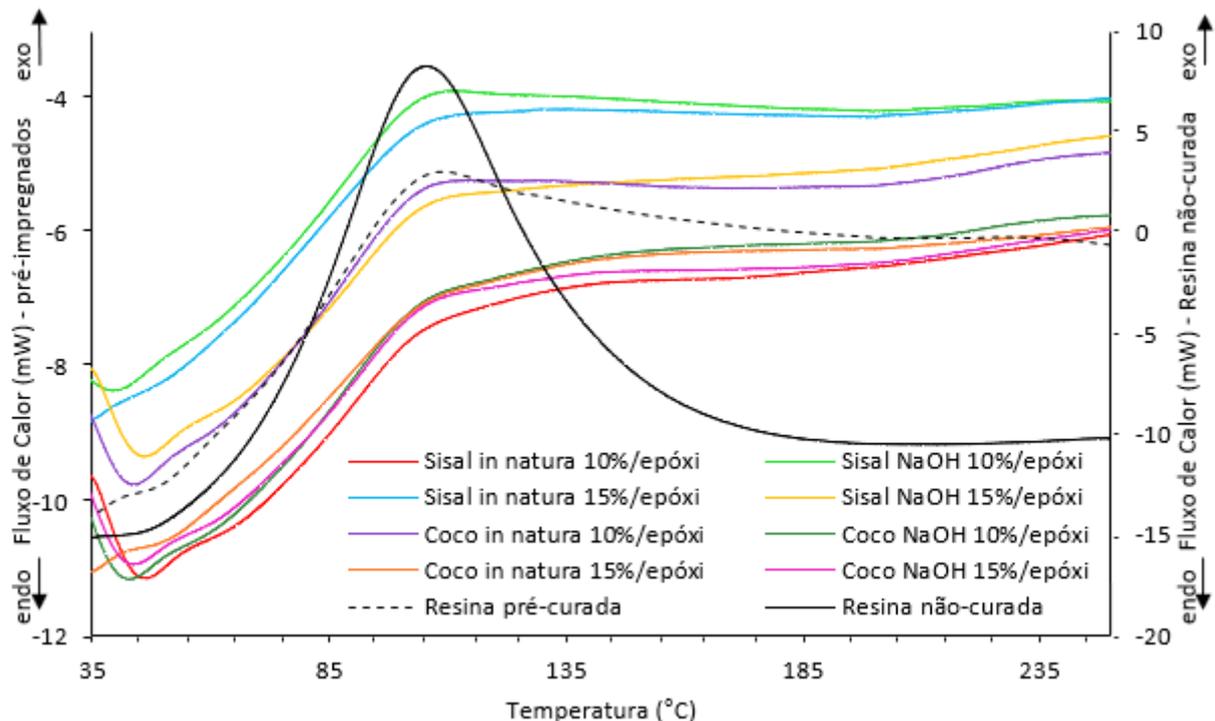


Figura 2. Curvas DSC dos pré-impregnados comparados às resinas não curada e pré-curada.

A entalpia de cura é um processo exotérmico, a ligação cruzada promove uma liberação de calor durante a reação, e a energia necessária para que este evento ocorra pode ser obtida através da integração da área sob o pico da curva DSC. A partir desses valores é possível medir o grau de cura de um material termofixo utilizando a Equação 1 (Costa, Rezende, e Pardini 1999):

$$\alpha_{cura} = \left(\frac{\Delta H_p}{\Delta H_t} \right) \quad (1)$$

onde, α_{cura} é o grau de cura, ΔH_p é a entalpia parcial (área dos materiais pré-curados) e ΔH_t a entalpia total da reação (área do pico de cura do material não curado).

Ainda se levando em conta as informações das curvas, além dos valores de entalpia é possível obter a temperatura de cura, indicada pelo pico exotérmico. Observando os parâmetros de estudo (tipo, tratamento e teor de fibras) em relação a resina parcialmente curada, tem-se que a inserção de fibras na resina diminui a temperatura de pico em torno de 10°C. Esse fenômeno pode ser explicado devido as baixas razões de aquecimento que permitem a transformação de uma maior parte dos grupos químicos de uma reação, dessa forma os eventos exotérmicos são marcados por temperaturas mais baixas. Assim, o calor e a ordem de reação aumentam com a redução da razão de aquecimento e estão relacionadas ao desaparecimento do grupo epóxi, local onde ocorre a reticulação (Lengsfeld et al. 2016; Costa et al. 2003).

As Tabelas 4 e 5 apresentam os dados do planejamento fatorial. Nelas estão os rendimentos, a média e a variância referente as duas leituras da temperatura de estabilidade térmica e grau de cura, respectivamente. A partir dos rendimentos obteve-se a variância conjunta e o valor do erro padrão de uma resposta. O valor do ponto de distribuição com 8 graus de liberdade foi multiplicado pelo erro padrão da resposta, assim o efeito foi obtido para 95% de confiança.

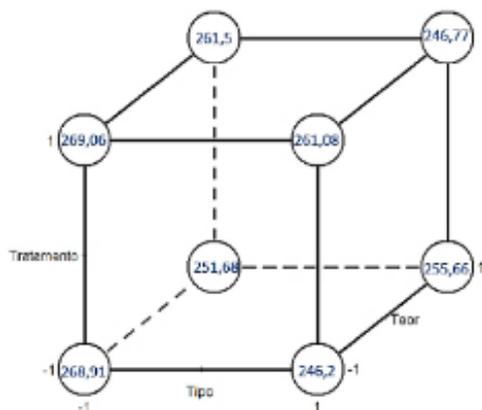
Os contrastes de um planejamento podem ser definidos como a diferença entre as observações do nível superior e inferior de um fator e pode ser visualizado de forma geométrica (Figura 3). Em um fatorial 2^3 , a Figura 3 é representada por um cubo, onde os rendimentos dos oito ensaios da matriz de planejamento correspondem aos vértices, e os efeitos ao contraste entre dois planos (Barros Neto, Scarminio, e Bruns 2001). Na Figura 3 também está representado os dados dos efeitos principais, de interação e o intervalo de confiança com $\pm 1,153$ para a temperatura de estabilidade térmica e $\pm 5,479$ para o grau de cura.

Tabela 4. Matriz de planejamento referente às temperaturas de estabilidade térmica provenientes das curvas TGA.

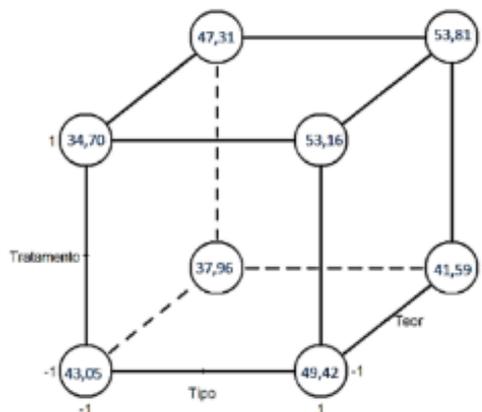
Amostra	Tipo	Tratamento	Teor	Rendimentos Estabilidade térmica (°C)		Média Estabilidade térmica (°C)	Variância
Sisal <i>in natura</i> 10%/epóxi	-	-	-	268,74	269,08	268,91	0,0578
Coco <i>in natura</i> 10%/epóxi	+	-	-	246,53	245,87	246,20	0,2178
Sisal NaOH 10%/epóxi	-	+	-	269,72	268,39	269,06	0,8845
Coco NaOH 10%/epóxi	+	+	-	260,22	261,94	261,08	1,4792
Sisal <i>in natura</i> 15%/epóxi	-	-	+	252,72	250,63	251,68	2,1841
Coco <i>in natura</i> 15%/epóxi	+	-	+	255,02	256,30	255,66	0,8192
Sisal NaOH 15%/epóxi	-	+	+	262,58	260,42	261,50	2,3328
Coco NaOH 15%/epóxi	+	+	+	246,77	246,77	246,77	0,0000

Tabela 5. Matriz de planejamento referente ao grau de cura determinado por meio das curvas DSC.

Amostra	Tipo	Tratamento	Teor	Rendimento Grau de cura (%)		Média Grau de cura (%)	Variância
Sisal <i>in natura</i> 10%/epóxi	-	-	-	41,93	44,16	43,05	2,4867
Coco <i>in natura</i> 10%/epóxi	+	-	-	54,64	44,20	49,42	54,5322
Sisal NaOH 10%/epóxi	-	+	-	33,37	36,03	34,70	3,5341
Coco NaOH 10%/epóxi	+	+	-	57,01	49,30	53,15	29,7228
Sisal <i>in natura</i> 15%/epóxi	-	-	+	31,95	43,97	37,96	72,2779
Coco <i>in natura</i> 15%/epóxi	+	-	+	44,21	38,97	41,59	13,7518
Sisal NaOH 15%/epóxi	-	+	+	48,75	45,88	47,31	4,1200
Coco NaOH 15%/epóxi	+	+	+	53,50	54,13	53,82	0,2011



Fatores	Efeitos	t 95%
Tipo	-10,358	± 1,153
Tratamento	3,990	± 1,153
Teor	-7,410	± 1,153
Tipo/Tratamento	-0,995	± 1,153
Tipo/Teor	4,985	± 1,153
Tratamento/Teor	-3,523	± 1,153
Tipo/Tratamento/Teor	-8,363	± 1,153



Fatores	Efeitos	t 95%
Tipo	8,739	± 5,479
Tratamento	4,243	± 5,479
Teor	0,091	± 5,479
Tipo/Tratamento	3,740	± 5,479
Tipo/Teor	-3,675	± 5,479
Tratamento/Teor	6,548	± 5,479
Tipo/Tratamento/Teor	-2,302	± 5,479

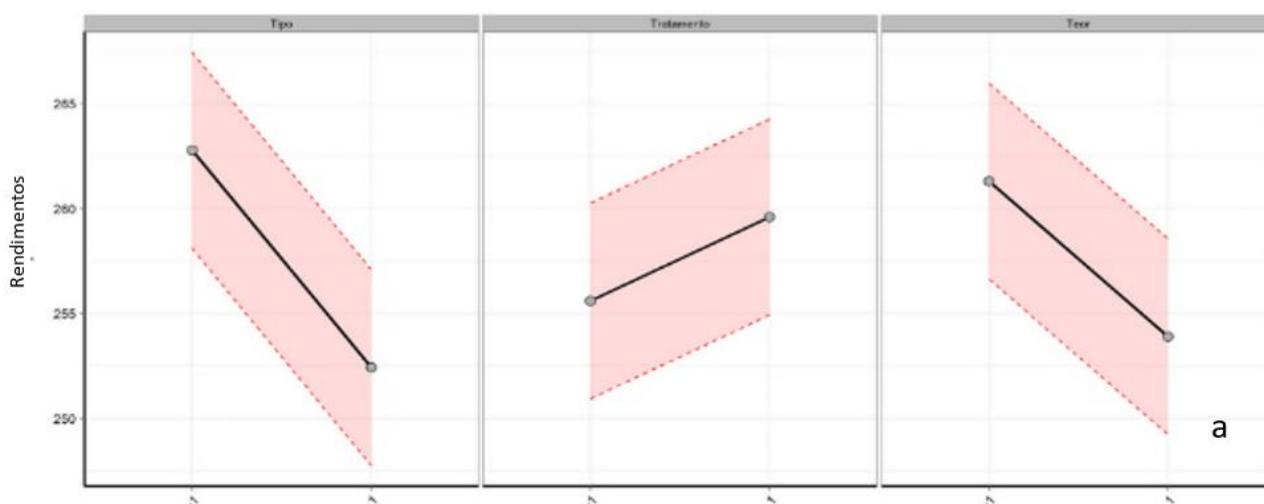
Figura 3. Interpretação geométrica e dados dos efeitos principais de interação e intervalo de confiança para avaliar a significância dos efeitos (tipo, tratamento e teor de fibras) nas propriedades dos pré-impregnados em relação a (a) temperatura de estabilidade térmica e (b) grau de cura.

Sabe-se que os dados dos efeitos podem ser obtidos a partir do contraste entre os dois planos, identificados a partir dos coeficientes de contraste da Tabela 1. No cálculo dos efeitos os rendimentos entram com sinais positivos (1) e negativos (-1), onde todos os de mesmo sinal estão em uma face do cubo. Portanto os efeitos principais são os contrastes entre as essas duas faces (positiva e negativa). Já os efeitos de interação são contrastes entre dois planos diagonais (Barros Neto, Scarminio, e Bruns 2001).

Os efeitos principais de um fator só podem ser interpretados individualmente se não existirem evidências de que ele não interage com os outros fatores. Quando há a interação, as variáveis que interagem entre si devem ser analisadas em conjunto (Montgomery 2001). Os resultados dos efeitos da Figura 3 foram obtidos com o auxílio do software estatístico *Action Stat*. Na Figura 3(a) apenas as interações “Tipo/Teor” e “Tratamento/Teor” são importantes, pois o valor dos seus efeitos é maior que a significância a 95%. Dessa forma, nenhum dos efeitos principais podem ser analisados individualmente, mesmo que apresentem valores maiores de interação. Quanto a Figura 3(b) apenas o efeito de interação “Tratamento/Teor” é relevante. Assim, o único efeito principal relevante é o “Tipo”.

Com esses dados é possível afirmar que para se obter valores superiores de estabilidade térmica, os pré-impregnados devem ser produzidos sob as condições de fibra de sisal (-), mercerizadas (+) com teor de fibras de 10% em massa (-). No trabalho de Poletto et al. (Poletto et al. 2009) afirmam que o aumento do teor de fibra acarreta em maiores quantidades de celulose e da hemicelulose no material, o que colabora para a diminuição da temperatura de estabilidade térmica, o que é melhorado com o mercerização já que a hemicelulose é removida no processo. A escolha da fibra de sisal contradiz a literatura, já que as fibras de coco possuem concentrações de hemicelulose e celulose bem menores que o sisal em sua composição (Faruk et al. 2012). Quanto ao grau de cura, sabe-se que o estado de cura completa nunca é alcançado pois a proporção resina/endurecedor não é perfeitamente obtida, além disso, o grau de reticulação é ideal para moldagem quando a resina ainda está em ponto de gel, ou seja, com menor grau de reticulação (Lengsfeld et al. 2016). Para atender essas condições os pré-impregnados devem ser produzidos com fibra de coco (+), mercerizada (+), em ambos teores de fibra empregados. A escolha da fibra de coco se dá por ela possuir um caráter hidrofóbico menor do que as demais fibras naturais, a mercerização aumenta a interação entre fibra/matriz o que diminui a quantidade de vazios no interior do material diminuindo os concentradores de tensão, logo, colabora para um menor grau de reticulação (Megiatto et al. 2009).

Outra forma de visualizar os efeitos principais e de interação é por meio de gráficos. A Figura 4 mostra os resultados para a estabilidade térmica e a Figura 5, para grau de cura. Essa interpretação visual é feita de forma simples, onde a inclinação e a posição das linhas simbolizam o que possui rendimento superior e sob qual condição (Zhou et al. 2016). Os resultados de estabilidade térmica indicaram que o tipo de fibra de sisal e o teor de 10% em massa apresentaram valores de rendimentos superiores, assim como a fibra mercerizada. Embora a inclinação da linha seja suave indicando que o tratamento não é tão relevante quanto os demais fatores. Quanto às interações, o fator teor a 10%, independente do fator com que este interage, indicou rendimentos superiores, assim como o tipo de fibra de sisal e o fator tratamento com NaOH.



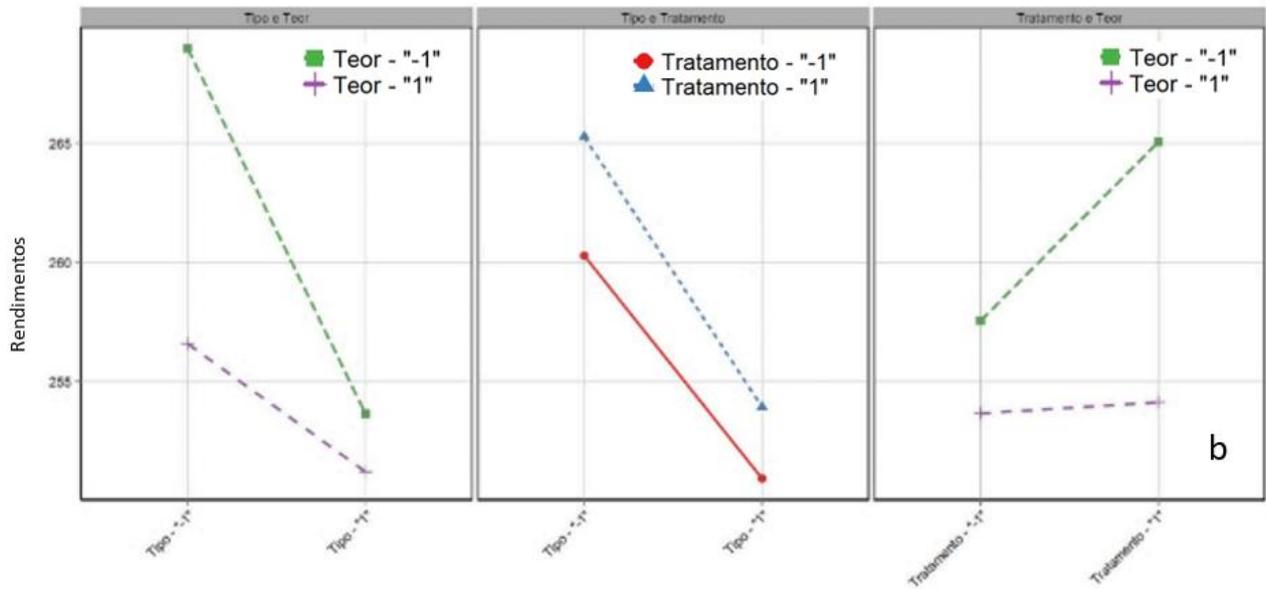


Figura 4. Gráficos dos (a) efeitos principais e de (b) interação para a temperatura de estabilidade térmica.

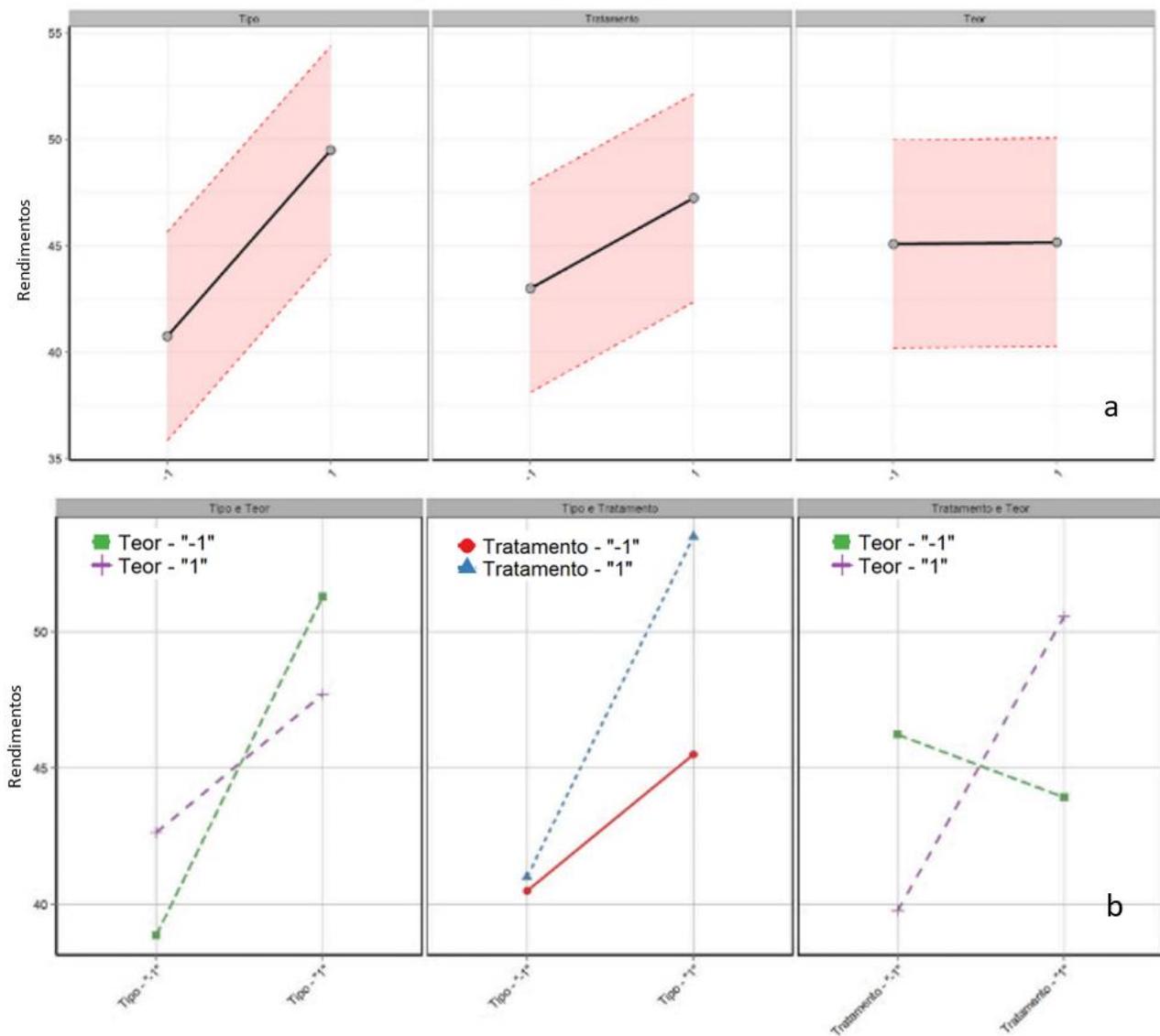


Figura 5. Gráficos dos (a) efeitos principais e de (b) interação para o grau de cura.

Na análise dos gráficos do efeito principal do grau de cura, o tipo de fibra e o tratamento tiveram os parâmetros positivos com melhores resultados, quanto ao teor de fibras, não houve significância para nenhum dos teores empregados. Como resultado das interações, semelhante ao cálculo dos efeitos a partir dos contrastes, o tratamento e o tipo de fibra mantiveram seus rendimentos superiores. Diferentemente do teor de fibra que mudou de comportamento dependo do fator com qual estava interagindo. Pode-se interpretar que o teor se mostrou superior quando relacionado ao tipo de fibra de coco já que as mesmas possuem caráter hidrofóbico mais baixos, quando interagidos com o tratamento a condição de mercerização se mostrou mais eficaz, já que a interação entre fibra/matriz é melhorada após o processo de alcalinização como dito anteriormente (Rosa et al. 2010).

4. Conclusões

Foi constatado que a partir do planejamento fatorial é possível determinar as melhores condições para a produção de pré-impregnados de fibra natural/epóxi. Em todas as análises é possível concluir que fibras mercerizadas indicam o melhoramento das propriedades térmicas do material, pois remove a hemicelulose e aumenta a interação entre a fibra e a matriz, dessa forma, a temperatura de estabilidade é aumentada e o grau de cura é alcançado de forma ideal para moldagem. Quanto ao tipo, ambas as fibras se mostraram relevantes a partir dos parâmetros observados. Na estabilidade, as fibras de sisal se destacaram, entendendo-se que a remoção dos componentes da fibra que interferem nesse parâmetro foram maiores, enquanto no grau de cura para o pré-impregnado com a fibra de coco que se mostrou mais relevante. Já o teor de fibras só apresentou significância quando investigado a partir da estabilidade térmica, independente da fibra adicionada.

Agradecimentos

Este trabalho foi financiado pela Capes, CNPq, Departamento de Pós-Graduação da Universidade de Brasília e Fundação de Apoio à Pesquisa do Distrito Federal (FAP-DF) sob [projeto n°. 0193.001794/ 2017].

Referencias

1. Angrizani, C. a., C a B Vieira, a J Zattera, E Freire, R M C Santana, and S C Amico. 2006. "Influência Do Comprimento Da Fibra de Sisal e Do Seu Tratamento Químico Nas Propriedades de Compósitos Com Poliéster." In *Congresso Brasileiro de Engenharia e Ciência Dos Materiais*.
2. Barros Neto, B., I. S. Scarminio, and R. E. Bruns. 2001. *Como Fazer Experimentos: Pesquisa e Desenvolvimento Na Ciência e Na Indústria*.
3. Campbell, F.C. 2010. *Structural Composite Materials. ASM International*. 1^o. Materials Park, Ohio, USA.
4. Chaishome, J., and S. Rattanapaskorn. 2017. "The Influence of Alkaline Treatment on Thermal Stability of Flax Fibres." *IOP Conference Series: Materials Science and Engineering*.
5. Costa, Michelle L., Mirabel C. Rezende, and Luiz C. Pardini. 1999. "Métodos de Estudo Da Cinética de Cura de Resinas Epóxi." *Polímeros*.
6. Costa, Michelle L, Jane M F De Paiva, Edson C Botelho, and Mirabel C Rezende. 2003. "Avaliação Térmica e Reológica Do Ciclo de Cura Do Pré-impregnado de Carbono / Epóxi." *Polímeros: Ciência e Tecnologia, Vol.*
7. Dalla, Vilson. 2019. "Compósitos Laminados de Fibra de Curauá/Epóxi Obtidos a Partir de Pré-impregnados."
8. Faruk, Omar, Andrzej K. Bledzki, Hans-Peter Fink, and Mohini Sain. 2012. "Biocomposites Reinforced with Natural Fibers: 2000–2010." *Progress in Polymer Science*.
9. Ferrari, Vanesa C G M, Margarete F P Azevedo, Luis H. David, and Vera L. Lourenço. 2014. "Estudo Da Cinética de Cura de Um Pré-impregnado de Resina Epoxídica/Fibra de Carbono Pelo Método Isoconversional." *Polimeros*.
10. Hatakeyama, T., and F.X. Quinn. 1999. *Thermal Analysis: Fundamentals and Applications to Polymer Science. John Wiley & Sons Ltd*.
11. Lau, Kin tak, Pui yan Hung, Min Hao Zhu, and David Hui. 2018. "Properties of Natural Fibre Composites for

- Structural Engineering Applications." *Composites Part B: Engineering*.
12. Lengsfeld, Hauke, Felipe Wolff-Fabris, Johannes Krämer, Javier Lacalle, and Volker Altstädt. 2016. *Composite Technology: Prepregs and Monolithic Part Fabrication Technologies*.
 13. Martin, Adriana R., Maria A. Martins, Luiz H.C. Mattoso, and Odilon R.R.F. Silva. 2009. "Caracterização Química e Estrutural de Fibra de Sisal Da Variedade Agave Sisalana." *Polimeros*.
 14. Megiatto, Jackson D., Cristina G. Silva, Elaine C. Ramires, and Elisabete Frollini. 2009. "Thermoset Matrix Reinforced with Sisal Fibers: Effect of the Cure Cycle on the Properties of the Biobased Composite." *Polymer Testing*.
 15. Montgomery, Douglas C. 2001. "Design and Analysis of Experiments." *Design and Analysis of Experiments*. <https://doi.org/10.1002/9780470191750>.
 16. Muralidhar, B. A. 2015. "Viscoelastic and Thermal Behaviour of Flax Preforms Reinforced Epoxy Composites." *Journal of Industrial Textiles*.
 17. Mwaikambo, Leonard Y, and Martin P Ansell. 2002. "Chemical Modification of Hemp , Sisal , Jute , and Kapok Fibers by Alkalization." *Journal of Applied Polymer Science*.
 18. Nascimento, E O, and L N Oliveira. 2016. "Sensitivity Analysis of Cutting Force on Milling Process Using Factorial Experimental Planning and Artificial Neural Networks." *Ieee Latin America Transactions*.
 19. Nunes, S. G. 2018. "Processamento Por Infusão a Vácuo de Compósitos Espessos Aramida/Epóxi e Análise Do Desempenho Sob Impacto." *Programa de Pós-Graduação Em Engenharia de Minas*.
 20. Poletto, Matheus, Juliane Dettenborn, Mara Zeni, and Ademir J Zattera. 2009. "Influência Do Comprimento Das Fibras Nas Propriedades Mecânicas e Térmicas de Compósitos de Poliestireno e Fibras de Sisal." *Anais Do 10o Congresso Brasileiro de Polímeros*.
 21. Rosa, M. F., E. S. Medeiros, J. A. Malmonge, K. S. Gregorski, D. F. Wood, L. H.C. Mattoso, G. Glenn, W. J. Orts, and S. H. Imam. 2010. "Cellulose Nanowhiskers from Coconut Husk Fibers: Effect of Preparation Conditions on Their Thermal and Morphological Behavior." *Carbohydrate Polymers*.
 22. Satyanarayana, K.G., F. Wypych, J.L. Guimarães, S.C. Amico, T. H. D. Sydenstricker, and L. Pereira Ramos. 2005. "Studies on Natural Fibers of Brazil and Green Composites." *Metals Materials and Processes*, 2005.
 23. Venkatachalam, N., P. Navaneethakrishnan, R. Rajsekar, and S. Shankar. 2016. "Effect of Pretreatment Methods on Properties of Natural Fiber Composites: A Review." *Polymers and Polymer Composites*.
 24. Vidil, Thomas, François Tournilhac, Simone Musso, Agathe Robisson, and Ludwik Leibler. 2016. "Control of Reactions and Network Structures of Epoxy Thermosets." *Progress in Polymer Science*.
 25. Webo, Wilson, Leonard Masu, and Maina Maringa. 2018. "The Impact Toughness and Hardness of Treated and Untreated Sisal Fibre-Epoxy Resin Composites." *Advances in Materials Science and Engineering*.
 26. Zhou, Yang, Gordon Huang, Hua Zhu, Zhong Li, and Jiapei Chen. 2016. "A Factorial Dual-Objective Rural Environmental Management Model." *Journal of Cleaner Production* 124: 204–16.