

Influência do tempo e da pressão de impregnação em propriedades de resistência e rigidez na flexão

José R. G. Kuniyoshi^{1*}, André L. Christoforo², Francisco A. R. Lahr¹

¹ Departamento de Engenharia de Estruturas, Escola de Engenharia de São Carlos (EESC), Universidade de São Paulo (USP), São Carlos/SP, Brasil.

² Departamento de Engenharia Civil, Universidade Federal de São Carlos (UFSCar), São Carlos/SP, Brasil.

* e-mail do autor correspondente: josericardogk@gmail.com

Resumo: Uma possibilidade de ampliar o uso do *Pinus* é a realização de sua impregnação com monômeros seguido de sua polimerização no interior dos poros da madeira, o que forma o material denominado de compósito polímero-madeira (CPM). Entretanto, poucas pesquisas têm estudado formas de otimizar o processo de impregnação da madeira, levando em consideração variáveis relacionadas. Nesse sentido, esta pesquisa teve como objetivo avaliar como os efeitos dos parâmetros de pressão de impregnação e de tempo de permanência na autoclave afetam as propriedades de resistência e rigidez na flexão dos CPMs. Para isso, foi utilizado um planejamento fatorial (2^2), considerando dois níveis de pressão (0,3; 0,6 MPa) e dois níveis de tempo (30; 60 min). Os resultados mostraram que a impregnação permitiu um aumento entre 50% e 137% da resistência convencional à flexão (f_{MO}), enquanto o módulo de elasticidade na flexão (E_{MO}) não variou em relação ao grupo de controle.

Palavras-chave: madeira impregnada; compósitos polímero-madeira; *Pinus*; metacrilato de metila.

Influence of impregnation time and pressure on the flexural strength and stiffness properties

Abstract: One way to expand the use of pine wood is by impregnating it with monomers followed by polymerization within the wood pores, forming a material called wood-polymer composite (WPC). However, few studies have optimized the wood impregnation process, considering related variables. This research aimed to evaluate how the effects of impregnation pressure parameters and autoclave residence time affect the flexural strength and stiffness properties of WPCs. A 2^2 factorial design was used, considering two pressure levels (0.3; 0.6 MPa) and two time levels (30; 60 min). The results showed that impregnation allowed an increase of 50% to 137% in conventional flexural strength (f_{MO}), while the modulus of elasticity in flexion (E_{MO}) did not vary compared to the control group.

Keywords: impregnated wood; wood-polymer composites; pine wood; methyl methacrylate.

1. INTRODUÇÃO

Nas últimas décadas, o uso de madeiras nativas tem sido substituído gradualmente pelas madeiras de reflorestamento de rápido ciclo de corte, tendo as árvores do gênero de *Pinus* e de *Eucalyptus* como as mais presentes no mercado brasileiro. No caso da madeira de *Pinus*, há cerca de 1,9 milhão de hectares de floresta plantada no Brasil (IBA, 2023). No geral, a madeira de *Pinus* possui propriedades mecânicas inferiores e mais defeitos em comparação às espécies tropicais.

Dessa forma, é comum a aplicação de métodos de modificação da madeira para promover o aumento das propriedades mecânicas, sendo uma das técnicas a impregnação com polímeros (Sandberg; Kutnar; Mantanis, 2017). O processo de impregnação com polímeros constitui a classe de materiais denominada compósito polímero-madeira (CPM), ou *wood-plastic composite*, ou ainda *wood-polymer composite* (WPC). Entre os principais métodos utilizados para a impregnação da madeira, destaca-se o método de vácuo-pressão. Neste método, a madeira inicialmente fica em vácuo; em seguida, ainda sob vácuo, é introduzido o produto de tratamento e, por fim, a impregnação é feita sob pressão acima da atmosférica (Stolf, 2005).

Entretanto, apesar de existirem vários estudos correlatos ao tema de CPMs, poucas pesquisas foram realizadas com o intuito de otimizar a técnica de impregnação, sobretudo a de vácuo-pressão. Nesse sentido, o objetivo do presente trabalho foi estudar o processo de impregnação do monômero metacrilato de metila (MMA) na madeira de *Pinus caribaea* var. *hondurensis* pelo método de vácuo-pressão, com o intuito avaliar o efeito dos fatores de pressão de impregnação e tempo de permanência, sob pressão, na resistência convencional à flexão e no módulo de elasticidade longitudinal na flexão estática.

2. MATERIAL E MÉTODOS

2.1 Material

Foi utilizada madeira da espécie *Pinus caribaea* var. *hondurensis*, com idade entre 15 e 16 anos, proveniente do município de Itapetininga, Estado de São Paulo. Além disso, foi utilizado o monômero metacrilato de metila (MMA), um líquido incolor em temperatura ambiente, cuja temperatura de ebulição é por volta de 101°C. Sua

fórmula molecular é $C_5H_8O_2$. A polimerização do monômero MMA forma o poli(metacrilato de metila) (PMMA), um polímero sintético, amorfo, transparente, termoplástico e pertencente à família dos acrilatos. O peróxido de benzoíla (fórmula molecular: $C_{14}H_{10}O_4$) foi utilizado como iniciador da polimerização, uma vez que foi utilizado em várias pesquisas da área (Acosta et al., 2020; Mattos et al., 2015; Stolf, 2005), sempre mostrando ser bem eficiente.

2.2 Planejamento experimental

Para avaliar o efeito das variáveis de tempo e pressão de impregnação no tratamento da madeira pelo método de vácuo-pressão nas propriedades de resistência e rigidez na flexão, foi utilizado o planejamento fatorial, que é uma das maneiras mais eficientes de conduzir um experimento que analisa os efeitos de dois ou mais fatores (Montgomery, 2012). Para tanto, foi realizado um planejamento fatorial completo (2^2), considerando os níveis de 0,3 MPa e 0,6 MPa para o fator pressão [P] bem como os níveis de 30 min e 60 min para o fator tempo [T], resultando em quatro tratamentos experimentais distintos, assim como mostrado na Tabela 1, além da condição de referência (madeira não impregnada).

Tabela 1. Tratamentos experimentais estipulados.

Tratamento (Tr)	Nº de corpos de prova	Pressão [P] (MPa)	Tempo [T] (min)
Controle	12	-	-
1	12	0,3	30
2	12	0,3	60
3	12	0,6	30
4	12	0,6	60

2.3 Preparação dos corpos de prova

Os corpos de prova foram preparados com as dimensões da seção transversal de 1,8 cm x 1,8 cm e comprimento na direção das fibras de 40 cm. Esses corpos de prova foram colocados inicialmente para secagem em estufa a 50°C, até atingirem um teor de umidade de 12%. Em seguida, os corpos de prova foram colocados na autoclave, para a realização da impregnação. Inicialmente foi aplicado um vácuo de 580 mmHg por 30 min para retirar o ar do interior dos poros da madeira. Após 30 min,

ainda em vácuo, foi aberto o reservatório, e a solução de monômero-iniciador sofreu sucção para o interior da autoclave. Para a solução de monômero-iniciador, foi utilizado o MMA, e o peróxido de benzoíla na proporção 2,5% em massa.

Com os corpos de prova imersos na solução de monômero-iniciador, foi retirado o vácuo, e aplicada a pressão. Conforme mostrado anteriormente na Tabela 1, os níveis de pressão e tempo considerados nessa etapa dependeram de qual tratamento estava sendo realizado. Após esse processo, foram retirados da autoclave, e o excesso de impregnante acumulado nas superfícies dos corpos de prova foi removido com papel toalha. Em seguida, foram embrulhados em papel alumínio e colocados em estufa para a consolidação da polimerização no interior da madeira, à temperatura de 60°C por 120 h, com base nas recomendações de Meyer (1984). Por fim, os corpos de prova foram retirados da estufa, desembulhados, pesados e foram tomadas as medidas de suas dimensões.

2.4 *Ensaio de densidade aparente e ensaio de flexão estática*

A densidade aparente foi medida conforme as recomendações da NBR 7190 (ABNT, 2022), que define essa propriedade como o quociente da massa pelo volume, correspondentes a um teor de umidade de 12 %. No presente trabalho, a densidade aparente foi medida para todos os corpos de prova antes do tratamento (ρ_i), inclusive do grupo de controle, e novamente medida para os corpos de prova tratados (ρ_f).

O ensaio de flexão estática foi realizado em conformidade com as orientações da NBR 7190 (ABNT, 2022). Este ensaio foi realizado na máquina universal de ensaios EMIC, modelo DL 3000, cuja capacidade é de 30 kN. Esse equipamento dispensa a necessidade de relógio comparador, uma vez que a movimentação do atuador gera o registro da deformação sofrida pelo corpo de prova ensaiado.

2.5 *Análise estatística*

A análise de variância (ANOVA), ao nível de 5% de significância, foi utilizada para investigar a influência de cada um dos fatores assim como da interação ($P \times T$) entre esses em cada propriedade mecânica avaliada. Para apresentar os efeitos significativos em cada modelo, foram apresentados gráficos de Pareto dos efeitos padronizados. Esse tipo de gráfico contém os valores absolutos dos efeitos

padronizados e a linha de referência, que indica os efeitos estatisticamente significantes e os que não são. Na sequência, é considerado o método de superfície de resposta (Equação 1) para elaborar um modelo de estimativa das propriedades mecânicas da madeira impregnada a partir da combinação entre pressão de impregnação e tempo na autoclave. Da Equação 1, Y é a variável resposta, β_i são os coeficientes a ajustar pelo método dos mínimos quadrados e ε consiste no erro aleatório.

$$Y = \beta_0 + \beta_1 \cdot P + \beta_2 \cdot T + \beta_3 \cdot P \cdot T + \varepsilon \quad (1)$$

4. RESULTADOS E DISCUSSÃO

A Figura 1a apresenta os valores médios e os intervalos de confiança da densidade aparente antes do tratamento (ρ_i) e após a impregnação (ρ_f). A impregnação proporcionou um aumento entre 60% e 75% dos valores médios da densidade, o que indica que todos os quatro tratamentos permitiram uma incorporação do monômero e uma polimerização eficientes.

Os valores médios e os intervalos de confiança da resistência convencional à flexão (f_{M0}) estão apresentados na Figura 1b. Todos os quatro tratamentos promoveram um aumento significativo da propriedade (entre 50% e 137%). Acosta et al. (2020) atribuíram o aumento da resistência convencional à flexão às possíveis ligações covalentes que o polímero faz com a parede celular da madeira e ao suporte mecânico do interior dos poros da madeira, inibindo a formação de microfissuras durante a aplicação da força.

A Figura 1c apresenta os valores médios e os intervalos de confiança do módulo de elasticidade estimado no ensaio de flexão estática. Apesar de a impregnação proporcionar aumento considerável da resistência, a mesma tendência não é observada para o módulo de elasticidade devido às propriedades mecânicas do PMMA. Segundo Brandrup, Immergut e Grulke (1999, p. V/88), o PMMA apresenta resistência convencional na flexão de 145 MPa, enquanto o módulo de elasticidade na flexão é de 3300 MPa, inferior ao da própria madeira de *Pinus*. Portanto, acredita-se que o tratamento com MMA leva ao aumento nas propriedades elásticas do *Pinus* de classes de resistência inferiores (módulo de elasticidade de pequena magnitude). Porém, nas

espécies com módulos de elasticidades maiores, o efeito da impregnação não é significativo.

A partir do método dos mínimos quadrados, foram ajustados os coeficientes dos modelos de estimativas de cada uma das propriedades. A **Tabela 2** apresenta os resultados da ANOVA. Como ambos os p-valores resultaram abaixo do nível de significância de 5%, os modelos são satisfatórios. Os modelos de regressão encontram-se apresentados de duas formas: em forma de equação (**Tabela 2**) e de gráficos de superfície de resposta (**Figura 2**). Além disso, os gráficos Pareto dos efeitos padronizados estão apresentados na **Figura 3**, mostrando quais efeitos são significativos ou não.

Figura 1. Valores médios e intervalos de confiança: (a) ρ ; (b) f_{M0} ; (c) E_{M0} .

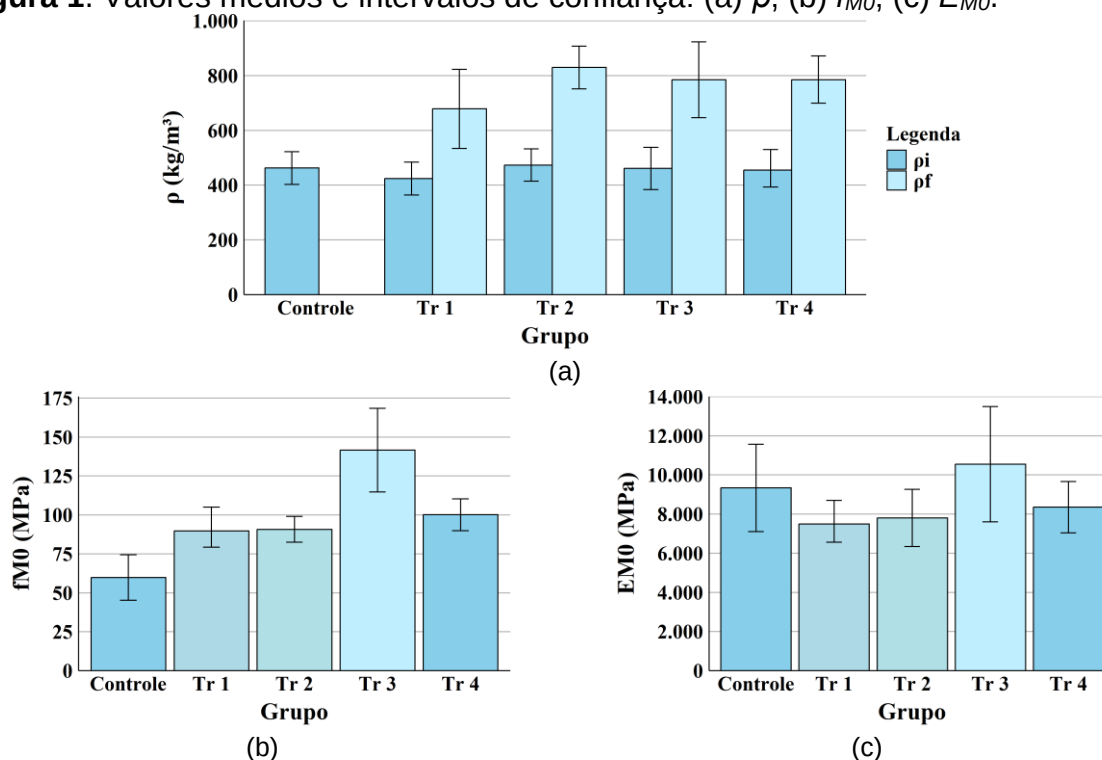


Tabela 2. Equações dos modelos de superfície de resposta (P em MPa e T em min).

Prop.	Equação	ANOVA	R ² (%)
f_{m0}	$f_{M0} = (4.00 + 294.80 \cdot P + 1.29 \cdot T - 4.40 \cdot P \cdot T) \text{ MPa}$	< 0,001	63,59
E_{m0}	$E_{M0} = (2193 + 17345 \cdot P + 84,3 \cdot T - 259 \cdot P \cdot T) \text{ MPa}$	0,035	24,53

Conforme evidenciado pelos gráficos de Pareto, para E_{M0} , apenas o efeito isolado da pressão é significativo e afeta positivamente. Por outro lado, para f_{M0} , a interação entre os fatores de tempo e pressão é significativa, ou seja, o efeito combinado dos fatores não corresponde simplesmente à soma de seus efeitos isolados, e afeta

negativamente f_{MO} . Nesse caso, efeito da interação promove uma “torção” da superfície de resposta.

Conseguir compreender o comportamento e a causa da interação dos fatores é mais relevante do que o conhecimento dos efeitos principais (Montgomery, 2012). Segundo Schneider, Morrell e Levien (2005), os gradientes de pressão durante o tratamento da madeira podem se tornar prejudiciais ao material. Caso esses gradientes ultrapassem as propriedades de resistência da madeira, há o risco de colapso ou de fratura. Ou seja, acredita-se, que após todos os vazios serem preenchidos, caso a pressão seja mantida, o impregnante é forçado a penetrar nos poros da madeira, mesmo não havendo mais espaço. Dessa forma, a estrutura anatômica passa a ser afetada para que haja caminhos para que o impregnante percole no interior da madeira, surgindo rupturas nas traqueídes.

Figura 2. Gráficos de superfície de resposta: (a) resistência convencional à flexão (f_{MO}); (b) módulo de elasticidade na flexão (E_{MO}).

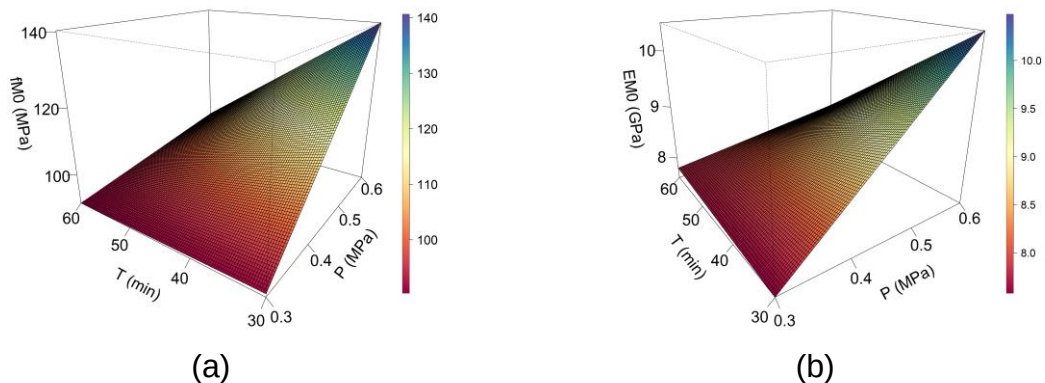
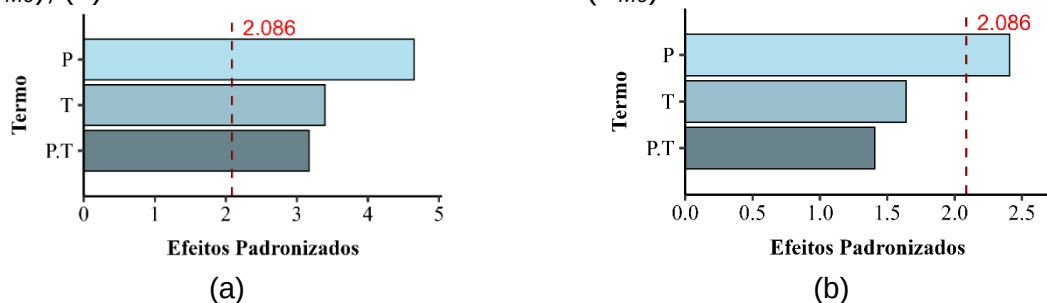


Figura 3. Gráfico Pareto dos efeitos padronizados: (a) resistência convencional à flexão (f_{MO}); (b) módulo de elasticidade na flexão (E_{MO}).



5. CONCLUSÃO

Os resultados do presente trabalho permitem as seguintes conclusões:

- A densidade da madeira aumentou para todos os quatro grupos de tratamento em relação à madeira *in natura*, confirmando a retenção do PMMA no processo de impregnação;
- Para os quatro grupos de tratamento, a resistência convencional à flexão (f_{M0}) aumentou em relação ao grupo de controle. Por outro lado, o módulo de elasticidade na flexão estática (E_{M0}) não mudou, pois o polímero é mais deformável que a madeira;
- O efeito da interação entre a pressão e o tempo ($P \times T$) foi significativo para a resistência convencional à flexão (f_{M0}). Esse efeito atua de forma a diminuir a magnitude das propriedades, quanto maior o produto de ambos os fatores.

6. REFERÊNCIAS

ACOSTA, A. P.; GALLIO, E.; SCHULZ, H. R. *et al.* Wood-polymer composites produced by in situ polymerization of styrene into juvenile and mature pine woods. **International Wood Products Journal**, v. 11, n. 4, p. 204–210, 2020. Disponível em: <https://doi.org/10.1080/20426445.2020.1776486>.

ASSOCIAÇÃO BRASILEIRA DE NORMAS TÉCNICAS. **ABNT NBR 7190**: Projeto de estruturas de madeira. Rio de Janeiro: ABNT, 2022.

BRANDRUP, J.; IMMERGUT, E. H.; GRULKE, E. A. **Polymer Handbook**. 4. ed. Nova York: John Wiley & Sons, 1999.

INDÚSTRIA BRASILEIRA DE ÁRVORES. **Relatório Anual da Indústria Brasileira de Árvores Ibá 2023**. São Paulo, 2023.

MATTOS, B. D.; CADEMARTORI, P. H. G.; MISSIO, A. L. *et al.* Wood-polymer composites prepared by free radical in situ polymerization of methacrylate monomers into fast-growing pinewood. **Wood Science and Technology**, v. 49, n. 6, p. 1281–1294, 2015. Disponível em: <http://link.springer.com/10.1007/s00226-015-0761-5>.

MEYER, J. A. Wood-Polymer Materials. *In*: The chemistry of solid wood. ACS Publications, 1984. v. 207, p. 257–289. Disponível em: <https://pubs.acs.org/doi/abs/10.1021/ba-1984-0207.ch006>.

MONTGOMERY, D. C. **Design and Analysis of Experiments Eighth Edition**. 8. ed. John Wiley & Sons, Inc., 2012. ISSN 00401706.

SANDBERG, D.; KUTNAR, A.; MANTANIS, G. Wood modification technologies - a review. **iForest - Biogeosciences and Forestry**, v. 10, n. 6, p. 895–908, 2017. Disponível em: <https://iforest.sisef.org/?doi=ifor2380-010>.

SCHNEIDER, P. F.; MORRELL, J. J.; LEVIEN, K. L. Internal pressure development during supercritical fluid impregnation of wood. **Wood and Fiber Science**, v. 37, n. 3, p. 413–423, 2005.

STOLF, D. O. **Impregnação com estireno e com metacrilato de metila em propriedades físicas e mecânicas da madeira de *Eucalyptus grandis* e de *Pinus caribaea* var. *hondurensis***. 2005. Tese (Doutorado em Ciência e Engenharia de Materiais) – Escola de Engenharia de São Carlos, Universidade de São Paulo, São Carlos, 2005. Disponível em:
<http://www.teses.usp.br/teses/disponiveis/88/88131/tde-30102005-180057/en.php>.