

**UNIVERSIDADE DO ESTADO DO AMAZONAS
ESCOLA SUPERIOR DE TECNOLOGIA
BACHARELADO EM ENGENHARIA DE MATERIAIS**

NALANDA SAID ROSAS

ESTUDO DA INTERCALAÇÃO DE DMSO EM CAULIM E SUA INFLUÊNCIA
NAS PROPRIEDADES MECÂNICAS DE COMPÓSITOS EPOXÍDICOS

MANAUS – AM

2025

NALANDA SAID ROSAS

ESTUDO DA INTERCALAÇÃO DE DMSO EM CAULIM E SUA INFLUÊNCIA
NAS PROPRIEDADES MECÂNICAS DE COMPÓSITOS EPOXÍDICOS

Trabalho de Conclusão de Curso, apresentado ao Curso de bacharelado em Engenharia de Materiais, da Escola Superior de Tecnologia, da Universidade do Estado do Amazonas, como requisito parcial à obtenção de Título de Bacharel em Engenharia de Materiais.

Orientador: Prof.: Dr. José Costa de Macêdo Neto

Manaus – AM

2025

Ficha Catalográfica

Ficha catalográfica elaborada automaticamente de acordo com os dados fornecidos pelo(a) autor(a).
Sistema Integrado de Bibliotecas da Universidade do Estado do Amazonas.

R789e

Rosas, Nalanda Said

Estudo da Intercalação de DMSO em Caulim e sua Influência nas Propriedades Mecânicas de Compósitos Epoxídicos / Nalanda Said
Rosas. Manaus : [s.n], 2025.

27 f.: il.; 21.0 cm.

TCC - Graduação em Engenharia de Materiais- Universidade do Estado do Amazonas, Manaus, 2025.

Inclui Bibliografia.

Inclui Apêndice.

Inclui Anexo.

Orientador: José Costa de Macedo Neto.

Coorientador: Roger Hoel Bello.

1. Compósitos epóxi. 2. caulim. 3. ativação mecanoquímica. 4. propriedades mecânicas. I. José Costa de Macedo Neto (Orient.) II . Roger Hoel Bello (Coorient.) III. Universidade do Estado do Amazonas. IV. Título

CDU(1997)66.03

**UNIVERSIDADE DO ESTADO DO AMAZONAS
ESCOLA SUPERIOR DE TECNOLOGIA
BACHARELADO EM ENGENHARIA DE MATERIAIS
TERMO DE APROVAÇÃO**

NALANDA SAID ROSAS

ESTUDO DA INTERCALAÇÃO DE DMSO EM CAULIM E SUA INFLUÊNCIA
NAS PROPRIEDADES MECÂNICAS DE COMPÓSITOS EPOXÍDICOS

Trabalho de Conclusão de Curso aprovado como requisito parcial para a obtenção do
Título de Bacharel em Engenharia de Materiais, Escola Superior de Tecnologia,
Universidade do Estado do Amazonas, pela seguinte banca examinadora:

BANCA EXAMINADORA



Documento assinado digitalmente

JOSE COSTA DE MACEDO NETO

Data: 08/12/2025 22:22:39-0300

Verifique em <https://validar.iti.gov.br>

Prof. Dr. José Costa de Macêdo Neto – Orientador



Documento assinado digitalmente

ROGER HOEL BELLO

Data: 08/12/2025 22:12:34-0300

Verifique em <https://validar.iti.gov.br>

Prof. Dr. Roger Hoel Bello – Membro da banca



Documento assinado digitalmente

ANTONIO DE LIMA MESQUITA

Data: 09/12/2025 12:04:24-0300

Verifique em <https://validar.iti.gov.br>

Prof. Dr. Antônio de Lima Mesquita – Membro da banca

Manaus, 01 de dezembro de 2025

AGRADECIMENTOS

Agradeço a Deus por tudo que ele tem me proporcionado, e por me permitir chegar até aqui. Toda honra e toda glória são para ti senhor.

A toda minha família por sempre me apoiar e principalmente ao meu irmão Ramon Said que me emprestou seu notebook durante minha graduação toda até aqui nos finalmentes.

A meu orientador Prof. Dr. José Costa, que me ofereceu a oportunidade de trabalhar em projetos valerosos no início da graduação, que tiveram papel vital na formação que tenho hoje. Ele é fonte de inspiração e motivação no propósito de unir a indústria e a pesquisa.

A todo o departamento de Engenharia de Materiais, os docentes do curso sem exceção, que contribuíram com enorme conhecimento na minha formação até aqui, aos meus amigos que compartilharam experiências ao longo dessa jornada, em especial ao Luís Felipe, Gabriela Rocha, Gabriel Pádua Samuel Correa e Diego Costa. Ao meu amigo Kaiky Shinji que contribuiu para realização deste trabalho.

A toda a estrutura da Escola Superior de Tecnologia da Universidade do Estado do Amazonas em especial os Laboratórios de Materiais (LABMAT) e Pesquisa e Desenvolvimento (LABP&D), que foram os primeiros laboratórios onde pude trabalhar e desenvolver meus trabalhos.

A todos que contribuíram de forma direta ou indireta para a realização deste trabalho.

Estudo da intercalação de DMSO em caulim e sua influência nas propriedades mecânicas de compósitos epoxídicos

Nalanda Said Rosas

Prof.: Dr José Costa de Macêdo Neto

*¹Universidade do Estado do Amazonas, Departamento de engenharia de Materiais,
Manaus, Amazonas, Brasil*

RESUMO:

A resina epóxi é um polímero termofixo de alto desempenho, porém sua aplicação é frequentemente limitada por sua inerente fragilidade e custo. A incorporação de cargas minerais, como o caulim, surge como uma alternativa para modificar essas propriedades, mas a natureza hidrofílica e a estrutura aglomerada da argila *in natura* dificultam sua dispersão. Este trabalho investigou o efeito da ativação mecanoquímica do caulim com dimetilsulfóxido (DMSO), via moagem de bolas úmida por até 120 horas, nas propriedades mecânicas de compósitos epoxídicos. As alterações estruturais da carga foram monitoradas por Difração de Raios X (DRX) e Microscopia Eletrônica de Varredura (MEV), enquanto o desempenho mecânico foi avaliado por ensaios de tração em compósitos com 2% de carga. Os resultados de DRX revelaram que a moagem prolongada promoveu a total amortização da caulinita, evidenciada pelo desaparecimento dos picos cristalinos nas amostras de 60h e 120h. As imagens de MEV corroboraram essa transformação, mostrando a transição de grandes tactóides lamelares (0h) para aglomerados globulares densos e amorfos (120h). Nos ensaios mecânicos, a adição de caulim não tratado (0h) agiu como defeito estrutural, reduzindo a resistência à tração (24,53 MPa) em comparação à resina pura (28,91 MPa). Em contrapartida, o tratamento de 60h resultou no compósito mais rígido, com um aumento de 25% no Módulo de Young (986,85 MPa), porém com severa redução na ductilidade. O tempo de 120h mostrou-se o ponto de equilíbrio ideal, mantendo elevada rigidez (882,38 MPa) e recuperando a deformação na ruptura (19,73%) para níveis similares aos da resina pura. Conclui-se que a amortização mecanoquímica é uma rota eficaz para transformar o caulim de uma carga inerte em um reforço funcional, permitindo o desenvolvimento de compósitos epoxídicos com rigidez aprimorada sem o comprometimento da tenacidade.

Palavra-chave: Compósitos Epóxi; Caulim; Ativação Mecanoquímica; Propriedades Mecânicas.

ABSTRAT:

Epoxy resin is a high-performance thermosetting polymer, yet its application is often limited by its inherent brittleness and cost. The incorporation of mineral fillers, such as kaolin, appears as an alternative to modify these properties, but the hydrophilic nature and agglomerated structure of the *in natura* clay hinder its dispersion. This work investigated the effect of the mechanochemical activation of kaolin with dimethyl sulfoxide (DMSO), via wet ball milling for up to 120 hours, on the mechanical properties of epoxy composites. Structural changes of the filler were monitored by X-Ray Diffraction (XRD) and Scanning Electron Microscopy (SEM), while mechanical performance was evaluated by tensile tests on composites with 2 wt% filler loading. XRD results revealed that prolonged milling promoted total amorphization of kaolinite, evidenced by the disappearance of crystalline peaks in the 60h and 120h samples. SEM images corroborated this transformation, showing the transition from large lamellar tactoids (0h) to dense, amorphous globular agglomerates (120h). In mechanical tests, the addition of untreated kaolin (0h) acted as a structural defect, reducing tensile strength (24.53 MPa) compared to pure resin (28.91 MPa). In contrast, the 60h treatment resulted in the stiffest composite, with a 25% increase in Young's Modulus (986.85 MPa), but with a severe reduction in ductility. The 120h processing time proved to be the ideal equilibrium point, maintaining high stiffness (882.38 MPa) and recovering strain at break (19.73%) to levels similar to those of pure resin. It is concluded that mechanochemical amorphization is an effective route to transform kaolin from an inert filler into a functional reinforcement, allowing the development of epoxy composites with improved stiffness without compromising toughness.

Keywords: Epoxy Composites; Kaolin; Mechanochemical Activation; Mechanical Properties.

LISTA DE FIGURAS

Figura 1 – a) Caulim com DMSO. b) Moinho de bolas.	12
Figura 2 – a) amostra de caulim. b) estufa.	13
Figura 3 - a) Contra molde de PLA. b) molde de silicone conforme norma ASTM D638. c) impressora Ender 3 v3 ke.	13
Figura 4 - Corpos de prova conforme a norma ASTM D638.	14
Figura 5 – a) ensaio de tração. b) corpos de prova tracionado.	15
Figura 6 – Difratoograma de raio X das amostras de caulim intercalado.....	16
Figura 7 – Difratoograma de raios X das amostras de caulim/DMSO 0h, 60h e 120h.....	17
Figura 8 - Gráfico de expansão interlaminar em função do tempo de moagem	18
Figura 9 - Microscopia eletrônica de varredura (MEV), amostra 0h	19
Figura 10 - Microscopia eletrônica de varredura (MEV), amostra 60h.....	20
Figura 11 – Microscopia eletrônica de varredura (MEV), amostra 120h.....	20
Figura 12 – Gráfico Ensaio de tração dos corpos de prova	22

SUMÁRIO

Lista de Figuras	07
1. Introdução	09
1.1. Objetivos	10
1.2. Objetivo Geral	10
1.3. Objetivos Específico	10
1.4. Desenvolvimento	10
2. Materiais e Métodos	12
2.1. Preparação das amostras	12
2.2. Confeção do molde e corpos de prova (caulim + resina epóxi)	13
2.3. Difração de Raio X (DRX)	14
2.4. Microscopia Eletrônica de Varredura (MEV)	14
2.5. Ensaio de Tração	14
3. Resultados e Discussão	15
3.1. Evolução da Cristalinidade (DRX)	15
3.2. Análise Morfológica (MEV)	18
3.3. Propriedades Mecânica dos compósitos	21
4. Conclusão	24
5. Referências	26

1. INTRODUÇÃO

O caulim é um argilomineral composto principalmente de caulinita, um dos minerais mais abundantes na crosta terrestre, com grandes depósitos região amazônica e no Pará fazendo dele um material barato.

O uso de Caulim como reforço em matriz polimérica vem sendo utilizado cada vez mais. A obtenção e eficiência de cargas mais compatíveis com matrizes poliméricas depende criticamente do grau de esfoliação e da dispersão da fase inorgânica na resina. A kaolinita/caulim apresenta uma estrutura lamelar fortemente empilhada que limita sua dispersão; por isso, a intercalação de pequenas moléculas polares, como o dimetilsulfóxido (DMSO), tem sido amplamente empregada para aumentar o espaçamento interlamelar e facilitar a delaminação/exfoliação, melhorando a interação com polímeros como resinas epóxi.

A intercalação química com moagem mecânica favorece tanto a penetração do intercalante entre as lamelas quanto a redução do tamanho de partícula, acelerando a cinética de esfoliação. Estudos mecanoquímicos demonstram que, quando DMSO é usado como agente de intercalação durante a moagem, formam-se complexos DMSO-kaolinite com aumento do espaçamento basal, maior área específica e camadas mais finas, enquanto a integridade estrutural pode ser parcialmente preservada em comparação com moagem seca intensa.

No contexto de compósitos epóxi, a literatura mostra que a incorporação de argilas bem esfoliadas pode resultar em ganhos significativos nas propriedades mecânicas (módulo, resistência à tração) e térmicas; contudo, os efeitos dependem do grau de dispersão, da concentração de carga e do método de incorporação. Revisões sobre nanocompósitos epóxi-argila ressaltam que técnicas como XRD e microscopia eletrônica são essenciais para distinguir estados intercalados, parcialmente esfoliado ou agregado, que se correlacionam com o desempenho mecânico observado nos ensaios de tração.

A esfoliação do caulim com DMSO por meio de moagem em moinho de jarro (jarro 4 L) com ciclos acumulados até 120 horas, coletando alíquotas a cada 12 h e secando a 50°C por 24 h, para então caracterizar as amostras por DRX e MEV e selecionar a condição que apresente maior aumento do espaçamento basal e morfologia mais favorável. A expectativa é que a condição ótima de esfoliação leve a uma melhor dispersão quando a carga for incorporada à resina epóxi, refletindo-se em melhorias mensuráveis na resistência à tração dos compósitos, como observado em estudos experimentais comparáveis.

1.1 Objetivos

1.2 Objetivo Geral

O objetivo deste estudo é avaliar a influência do processo de intercalação do caulim com DMSO nas propriedades mecânicas de compósitos de matriz epoxídica.

1.3 Objetivos Específicos

- Realizar o processo de intercalação do caulim mineral com dimetilsulfóxido (DMSO).
- Caracterizar os ciclos de moagem de 0 h à 120 h (via DRX e MEV) para comprovar a eficácia da intercalação.
- Produzir corpos de provas de compósitos epoxídicos + caulim das amostras de 0 h, 60 h e 120 h.
- Executar ensaios mecânicos de tração nos corpos de prova para determinar o Módulo de Elasticidade, a resistência à tração e o alongamento na ruptura.
- Analisar e comparar os resultados mecânicos de compósitos com ciclo de moagem 0hrs, 60hrs e 120hrs.

1.4 . Desenvolvimento

O termo "caulim" deriva da palavra chinesa *Kauling* (ou *Gaoling*), que significa "colina alta" ou "crista alta", referindo-se a uma colina situada perto de Jauchau Fu, na China, onde este material foi extraído e utilizado pela primeira vez há séculos (MURRAY, 2006). Historicamente, o caulim foi o segredo por trás da porcelana chinesa, admirada no ocidente por sua brancura e translucidez.

No mundo ocidental, o interesse científico e industrial pelo caulim começou a se consolidar no século XVIII, impulsionado pela busca europeia para replicar a porcelana oriental. Contudo, foi apenas no século XX, com o avanço das técnicas de caracterização mineralógica e beneficiamento, que o caulim transcendeu a indústria cerâmica (SANTOS, 1989).

Hoje, o caulim é reconhecido como um dos minerais industriais mais versáteis do mundo. Sua estrutura lamelar única, inércia química e alvura permitiram sua expansão para aplicações como pigmento de revestimento em papel (sua maior aplicação mundial), cargas em tintas, borrachas e, mais recentemente, como reforço funcional em compósitos poliméricos avançados e nanotecnologia (PRASAD et al., 2018). O Brasil destaca-se neste cenário, possuindo algumas das maiores e mais puras reservas de caulim do planeta, especialmente na região Amazônica (SANTOS, 1989).

As resinas epóxi representam uma das classes mais importantes de polímeros termofixos na engenharia moderna. O químico suíço Pierre Castan, trabalhando para a empresa De Trey Frères, é creditado como um dos pioneiros, tendo sintetizado a primeira resina epóxi baseada em Bisfenol-A em 1936, visando aplicações odontológicas e de fundição (PASCAULT et al., 2010). Paralelamente, nos Estados Unidos, Sylvan Greenlee, pesquisador da Devoe & Raynolds, desenvolveu resinas epóxi em 1939 com o objetivo de criar novos revestimentos e vernizes resistentes a álcalis (PETRIE, 2006).

A comercialização em larga escala começou no final da década de 1940, quando a empresa suíça Ciba (hoje parte da Huntsman) licenciou as patentes de Castan e lançou a famosa marca *Araldite*. Desde então, a versatilidade química do grupo epóxido (anel oxirano) permitiu o desenvolvimento de uma vasta gama de sistemas de cura, tornando essas resinas a escolha padrão para adesivos estruturais, revestimentos de proteção e, crucialmente, como matriz para compósitos de alto desempenho nas indústrias aeroespacial e automotiva (MAY, 2018).

A combinação das propriedades intrínsecas da resina epóxi com a estabilidade e baixo custo do caulim fundamenta o desenvolvimento deste compósito. No entanto, a simples mistura física desses componentes não garante a obtenção de um material de

alto desempenho. A eficácia do compósito depende criticamente da interação interfacial entre a matriz polimérica orgânica e a carga inorgânica (KORNMANN et al., 2001).

Quimicamente, a superfície da caulinita é rica em grupos hidroxila, especificamente grupos silanol (Si-OH) nas arestas e grupos aluminol (Al-OH) na face basal. A expectativa teórica é que, através de um processo de dispersão adequado, esses grupos polares possam interagir, via ligações de hidrogênio ou reações de condensação, com os grupos epóxido (anel oxirano) ou hidroxilas geradas durante a cura da resina (LIU et al., 2012). O tratamento de intercalação/amortização proposto neste trabalho visa justamente aumentar a disponibilidade desses grupos funcionais e a área de superfície de contato, facilitando essa "ancoragem" química.

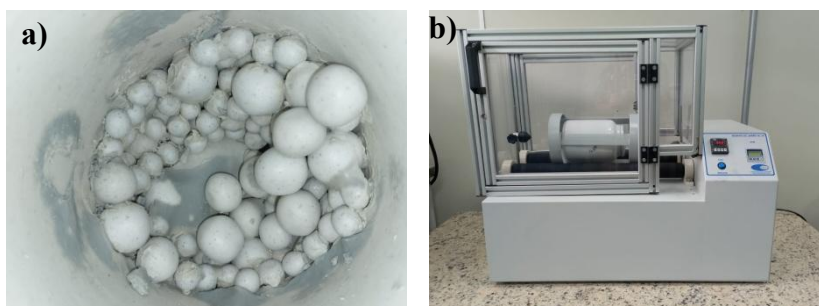
2. MATERIAIS E MÉTODOS

2.1 Preparação das Amostras

Para a realização do estudo, obtive o caulim e o dimetilsulfóxido (DMSO) fornecidos pelo orientador. Foi feito o processo de moagem no Moinho de Jarro SL-34, operando a 200 rpm, utilizando uma mistura de esferas de moagem, compostas por bolas pequenas de 15 mm de diâmetro e bolas grandes de 20 mm de diâmetro.

Adotei uma proporção de 1:1 em massa e volume, sendo 60 g de caulim e 60 mL de dimetilsulfóxido (DMSO) no jarro do moinho. O processo de moagem foi conduzido em diferentes tempos de batelada: 12h, 24h, 36h, 48h, 60h, 72h, 84h, 96h, 108h e 120h.

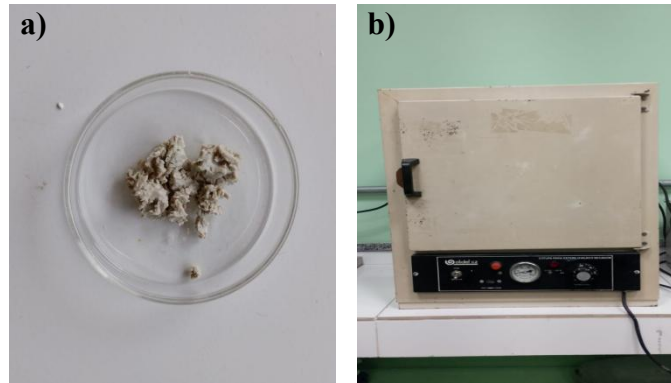
Figura 1 – a) Caulim com DMSO. b) Moinho de bolas



Fonte: O autor (2025)

Após o final de cada ciclo de 12h, eram retirados aproximadamente 4g de cada ciclo e submetido à secagem em estufa a 50 °C por 24 horas, a fim de eliminar excesso de solvente antes das análises.

Figura 2 – a) amostra de caulim. b) Estufa



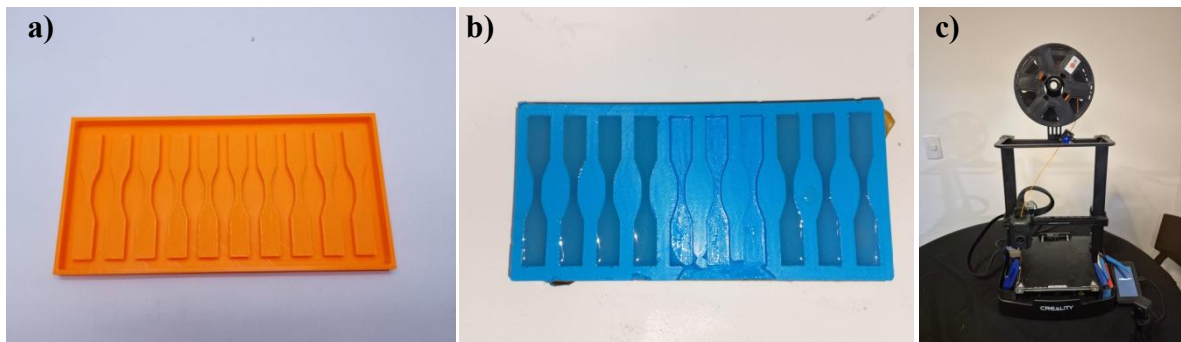
Fonte: O autor (2025)

2.2 Confeção do molde e corpos de prova (caulim + resina epóxi)

Por se tratar de um termofixo, foi necessário confeccionar um contramolde de impressão 3D utilizando uma impressora modelo Ender 3 v3 ke, seguindo a norma ASTM D638 - Standard Test Method for Tensile Properties of Plastics. Foi selecionado o corpo de prova Tipo V, ideal para materiais com disponibilidade limitada.

Este contramolde serviu de base para a confecção do molde em silicone, pois sua flexibilidade facilita a desmoldagem sem induzir tensões residuais ou microfissuras nas amostras antes do teste.

Figura 3 – a) contra molde de PLA. b) molde de silicone conforme norma ASTM D638. c) impressora Ender 3 v3 ke



Fonte: O autor (2025)

Para os corpos de prova, foram produzidos grupos de compósitos utilizando uma proporção fixa de 2% em peso de carga (caulim 0h, 60h ou 120h) para a matriz epóxi. A carga foi dispersa na resina, seguida da adição do agente de cura. A mistura foi vertida no molde e submetida à em temperatura ambiente por 24 horas

Figura 4 – Corpos de prova conforme a norma ASTM D638



Fonte: O autor (2025)

2.3 Difração de Raio X (DRX)

Para estudos comparativos, foram separadas ~4g de amostra de cada ciclo para análise. Os experimentos de difração de raio – X foram realizados em um difratômetro de pó de raios – X usando uma geometria Bragg – Brentano em modo contínuo com velocidade de $0,5 \text{ min}^{-1}$ e $1,0 \text{ min}^{-1}$. A análise foi realizada no Instituto de Engenharia militar do Rio de Janeiro.

2.4 Microscopia Eletrônica de Varredura (MEV)

A caracterização morfológica por microscopia eletrônica de varredura (MEV) das amostras de caulim processados por diferentes tempos de moagem (0h, 60h e 120h) mostra mudanças na microestrutura do argilomineral, corroborando o processo de ativação mecanoquímica. A micrografia da amostra de partida 0h exibe a morfologia típica da caulinita bem cristalizada.

2.5 Ensaio de tração

Os ensaios de tração foram realizados em uma máquina universal de ensaios INSTRON, operando com uma velocidade de deslocamento constante de 1 mm/min, conforme preconizado pela norma ASTM D638 para materiais rígidos. O objetivo foi determinar três propriedades fundamentais: Resistência à Tração (Tensão Máxima), Módulo de Elasticidade (Rigidez) e Deformação na Ruptura (Ductilidade) dos corpos de prova da resina epóxi pura e os corpos de prova com proporção fixa de 2% em peso de carga de caulim 0h, 60h e 120h.

Figura 5 – a) ensaio de tração. b) corpos de prova tracionado.



Fonte: O autor 2025

3. RESULTADOS E DISCUSSÃO

3.1 Evolução da Cristalinidade

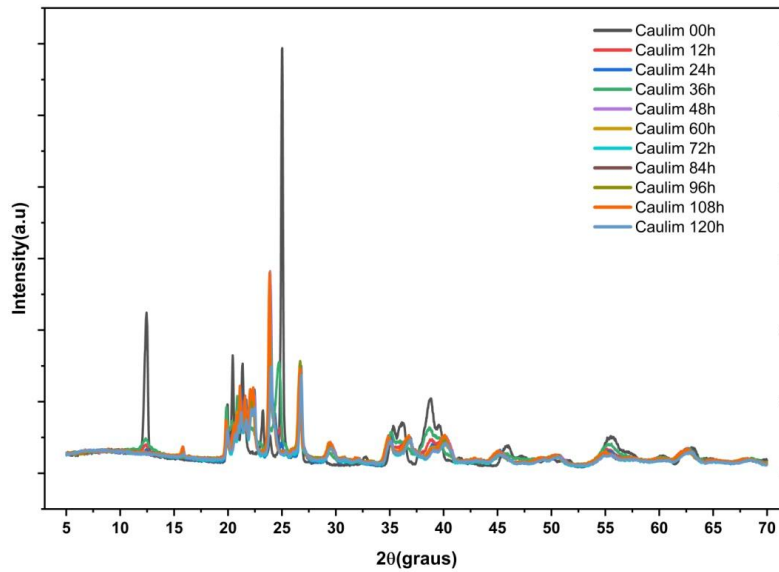
A caulinita ($\text{Al}_2\text{Si}_2\text{O}_5(\text{OH})_4$) é um argilomineral do tipo 1:1, formado por camadas alternadas de tetraedros de Si-O e octaedros de Al-OH, unidas por fortes pontes de hidrogênio (SANTOS, 1989). Devido a essa estrutura, a intercalação de moléculas polares como dimetilsulfóxido (DMSO) é possível quando ocorre a quebra

parcial das ligações interlamelares (GARDOLINSKI; WYPYCH, 2005). O método mecanoquímico favorece essa reação ao aumentar o contato sólido-líquido e gerar defeitos estruturais que facilitam a entrada de DMSO entre as camadas (CHENG et al., 2010).

A análise de difração de raio X nas amostras de (0 à 120 horas) observou que na região de baixos ângulos (5° - 15°), correspondente ao plano basal (001), a caulinita pura apresenta um pico característico em torno de $2\Theta \approx 12,3^{\circ}$, associado a um espaçamento interplanar $d_{001} \approx 7,1 \text{ \AA}$. Após o processo de intercalação, observa-se o deslocamento desse pico para menores ângulos ($\approx 7^{\circ}$ - 8°), indicando o aumento do espaçamento basal ($d \approx 10,9 - 12,6 \text{ \AA}$) devido à inserção das moléculas de DMSO. Esse deslocamento é uma evidência clara de intercalação. Segundo (CHENG et al. 2010), esse aumento confirma a inserção bem-sucedida das moléculas de DMSO entre camadas de aluminossilicatos, facilitada pela perda de energia de impacto da moagem que rompe as ligações de hidrogênio interlamelares.

As amostras processadas por diferentes tempos (0 à 120 horas), são possíveis observar uma transição gradual da fase original para a forma intercalada. O pico (001) da caulinita diminui em intensidade, enquanto o novo pico intercalado se torna mais evidente, indicando a progressiva incorporação do DMSO. A região intermediária (20° - 30°) mostra picos alargados atribuídos às ligações Si-O e Al-O, enquanto os picos em altos ângulos (30° - 60°) tornam-se difusos, evidenciando a redução da cristalinidade e a formação de fases parcialmente amorfas.

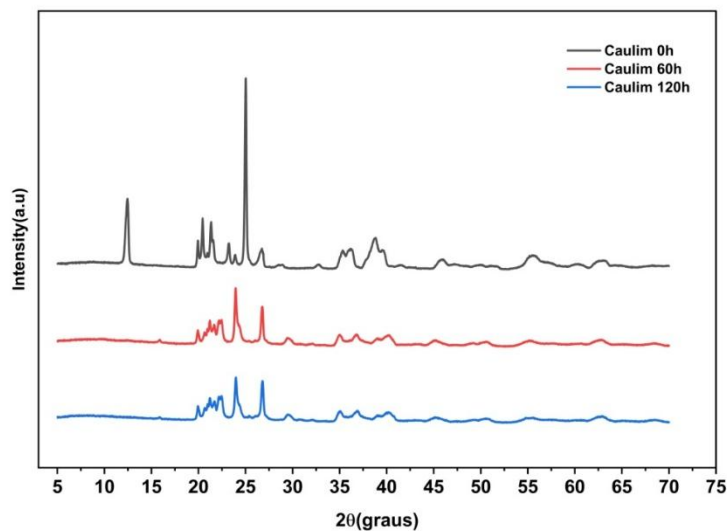
Figura 6 – Difratoograma de raios X das amostras de caulim intercalado



Fonte: O autor (2025)

A evolução estrutural e do colapso da cristalinidade, os difratogramas foram plotados com um deslocamento vertical (offset) como demonstrado na figura 6, permitindo comparar isoladamente o perfil de difração de 0h, 60h e 120h

Figura 7 – Difratoograma de raios X das amostras de caulim + DMSO 0h, 60h e 120h



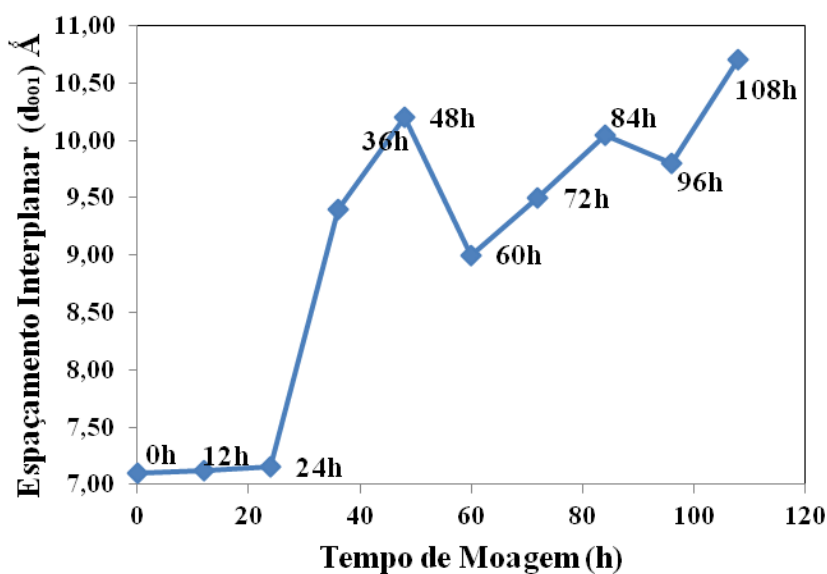
Fonte: O autor (2025)

A curva inferior (Caulim 0h), a amostra de partida exibe o perfil clássico da caulinita cristalina, com picos basais (001) e (002) estreitos e de alta intensidade, indicando a preservação da ordem estrutural de longo alcance e o empilhamento regular das lamelas.

As curvas superiores (Caulim 60h e 120h), é possível observar o desaparecimento abrupto das reflexões características observadas na amostra 0h. Não há apenas um alargamento ou deslocamento, mas uma supressão total dos picos, resultando em linhas de base planas e halos difusos típicos de materiais amorfos. Conforme descrito por (SANCHEZ-SOTO et al. 2000) e (KRISTÓF et al. 1995), a moagem de alta energia por períodos prolongados induz uma desordem estrutural severa, colapsando a estrutura cristalina de longo alcance e transformando o caulim em um material amorfo metaestável de alta reatividade.

O método mecanoquímico é eficiente em promover a intercalação do DMSO na caulinita. O deslocamento de pico (001) para menores ângulos confirma o aumento do espaçamento interlamelar, enquanto o alargamento e a diminuição dos picos indicam desordem estrutural crescente. A amortização parcial observada nas amostras com maior tempo de moagem sugere que o processo de intercalação atinge um ponto de saturação, possivelmente próximo de 60 a 72 horas de moagem.

Figura 8 – Gráfico de Expansão interplanar em função do tempo de moagem



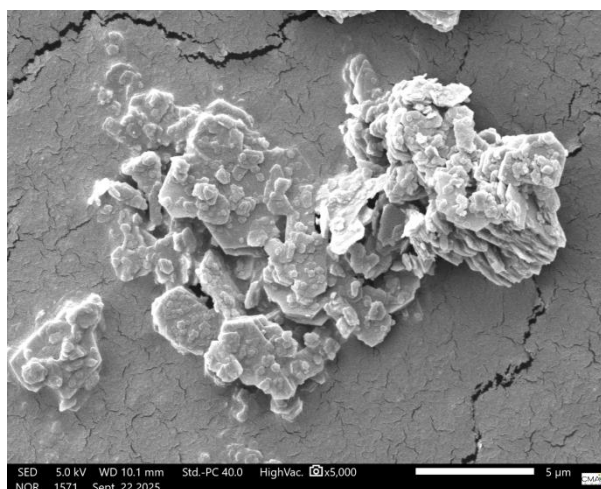
Fonte: O autor (2025)

Conforme o gráfico 1, é possível observar o espaçamento interplanar d_{001} com o aumento do tempo de moagem. A tendência de crescimento até aproximadamente 60 horas, seguida por estabilização, indica que o processo de intercalação atinge o limite máximo de expansão. Esse comportamento está em concordância com a literatura segundo (CHENG et al., 2010), que descreve o DMSO como um dos intercalantes mais eficazes para caulinita, promovendo espaçamento da ordem de 11 - 12Å.

3.2 Análise Morfológica (MEV)

As micrografias obtidas por MEV consolidam os dados de DRX e ilustram a evolução física das partículas. O caulim 0h apresentou-se na forma de grandes aglomerados ("tactóides") com estrutura lamelar empilhada e arestas definidas, típicas da caulinita natural. É possível observar partículas com geometria de placas pseudo-hexagonais, muitas vezes empilhadas em estruturas conhecidas como "livretos" ou tactóides.

Figura 9 – microscopia eletrônica de varredura (MEV), amostra 0h



Fonte: O autor (2025)

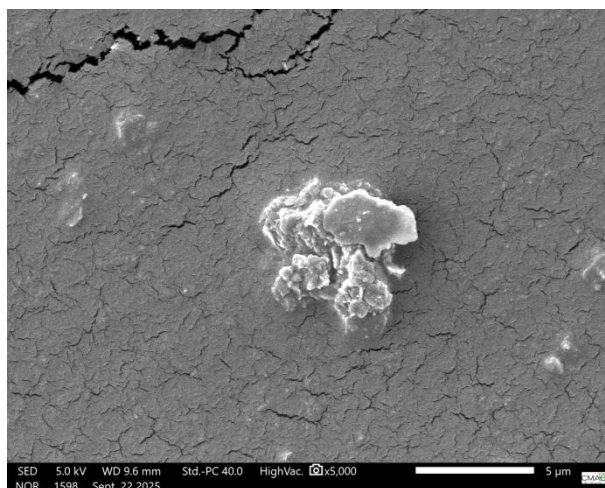
Segundo (SANTOS, 1989), a caulinita natural tende a formar esses empilhamentos devido às fortes ligações de hidrogênio entre as faces da gibbsita e da sílica de camadas adjacentes. (VISERAS et al. 2008) descrevem que essas partículas possuem bordas bem definidas e superfícies lisas, o que confirma a integridade cristalina do material antes do processamento. A presença desses grandes aglomerados

explica a menor área de superfície específica e a baixa reatividade química do material original.

Após 60 horas de moagem nota-se o desaparecimento quase completo dos grandes tactóides originais. O mecanismo predominante nesta etapa é a cominuição (redução de tamanho) e a delaminação. A energia de impacto das esferas promoveu a fratura das placas maiores e a separação das lamelas. Observa-se uma distribuição de tamanho de partícula mais irregular, com a presença de fragmentos menores e bordas fraturadas/irregulares.

Conforme observado por (SANCHEZ-SOTO et al. 2000), as primeiras etapas da moagem de argilominerais são dominadas pela quebra das partículas ao longo dos planos de clivagem basal (delaminação) e fraturas transversais.

Figura 10 – microscopia eletrônica de varredura (MEV), amostra 60h



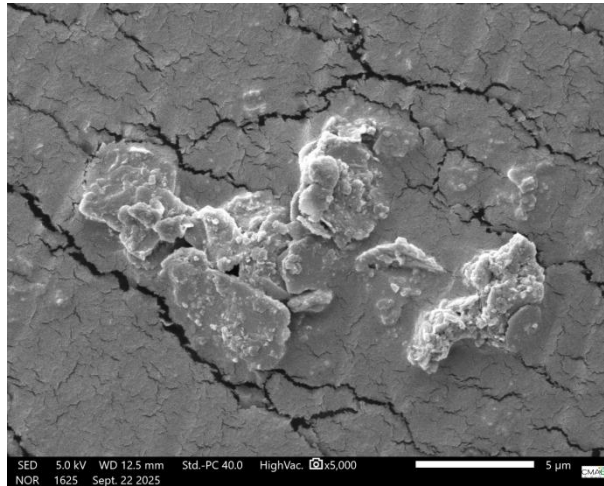
Fonte: O autor 2025

A amostra processada por 120 horas apresenta uma morfologia radicalmente distinta. Não é mais possível distinguir a forma lamelar ou de placas original. As partículas assumem um aspecto esferoidal ou de aglomerados globulares densos.

Este fenômeno é a evidência visual da amortização mecanoquímica. A destruição da estrutura cristalina foi tão intensa que as partículas perderam sua identidade geométrica. Além disso, observa-se o fenômeno de aglomeração secundária:

as nanopartículas geradas, possuindo altíssima energia de superfície, tendem a se unir formando esses aglomerados maiores e arredondados para reduzir sua energia livre.

Figura 11 – microscopia eletrônica de varredura (MEV), amostra 120h



Fonte: O autor 2025

De acordo com (DELLISANTI et al. 2006), a moagem prolongada de caulinita leva à perda total da morfologia lamelar, resultando em partículas isométricas ou esferoidais. Esse processo é acompanhado pela formação de aglomerados densos de material amorfo. Embora o tamanho de cristalito diminua para escala nanométrica, o tamanho médio de partícula observado no MEV pode, paradoxalmente, parecer maior devido a essa forte aglomeração das partículas. (PEREIRA et al. 2005).

3.3 Propriedade Mecânicas dos Compósitos

O impacto dessas alterações estruturais na matriz polimérica foi avaliado via ensaio de tração. Os resultados comparativos estão sumarizados na Tabela 1.

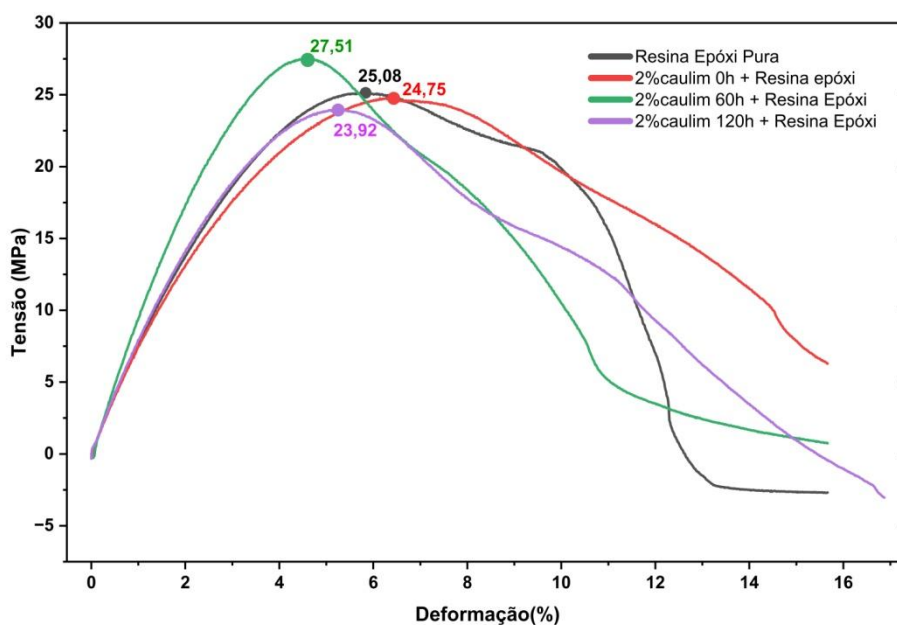
Tabela 1 - Resultados médios do ensaio de tração

	Resistência à tração (Mpa)	Módulo de Young (Mpa)	Deformação na Ruptura (%)
Resina Epóxi Pura	28,91	791,28	19,4
Caulim 0h	24,53	786,6	23,09
Caulim 60h	26,95	986,85	11,52
Caulim 120h	27,34	882,38	19,73

Fonte: O autor 2025

Observando a figura 10, o comportamento da Resina Epóxi Pura (curva preta) define o perfil de referência da matriz polimérica. Nota-se um comportamento típico de polímeros termofixos tenazes, com uma região elástica linear seguida de uma extensa deformação plástica antes da ruptura, atingindo deformações próximas a 20%.

Figura 12 – Gráfico do Ensaio de tração dos corpos de Prova



Fonte: O autor 2025

Já o compósito com caulim 0h (curva vermelha), nota-se que a curva se situa abaixo da resina pura em quase toda a sua extensão, a adição de 2% de caulim *in natura* (0h) resultou em uma redução da resistência à tração (24,53 MPa) em comparação à resina pura (28,91 MPa). Este comportamento é explicado por (AZHARI et al. 2018) partículas de argila não tratadas, devido à sua natureza hidrofílica, possuem má compatibilidade com a matriz epóxi hidrofóbica. Isso leva à formação de aglomerados

que atuam como concentradores de tensão e pontos de iniciação de falha, enfraquecendo o material em vez de reforçá-lo. Isso evidencia que a adição da carga *in natura* não contribuiu para o reforço da matriz; pelo contrário, a tensão máxima alcançada é visivelmente menor. O ligeiro aumento na deformação final sugere que os aglomerados de argila podem ter facilitado o deslizamento entre as cadeias ou atuado como falhas que permitiram uma maior alongação antes da quebra, mas sem suportar carga efetiva.

O efeito do tratamento mecanoquímico torna-se evidente nas curvas de 60h e 120h. O compósito com caulim 60h (curva azul) exibe a maior inclinação na região inicial (região elástica), apresentando (986,85 MPa), um aumento de 25% em relação à resina pura. Esse ganho expressivo de rigidez indica uma dispersão eficaz e uma forte interação interfacial, onde as partículas restringem a mobilidade das cadeias poliméricas (ROCHA et al., 2011), esta maior inclinação traduz visualmente o aumento do Módulo de Young (rigidez). No entanto, a curva é abruptamente interrompida em baixas deformações (~11%), caracterizando uma fratura frágil prematura, o material se comporta como um corpo rígido, mas incapaz de absorver energia plástica antes da falha.

O compósito com caulim 120h (curva verde) apresenta o comportamento mais equilibrado. O tratamento de 120h resultou em um compósito com propriedades otimizadas. Embora a resistência (27,34 MPa) tenha permanecido ligeiramente inferior à da resina pura, ela foi superior à do grupo 0h e 60h. O diferencial deste grupo foi a recuperação da ductilidade (19,73%), retornando aos níveis da resina pura.

A morfologia amorfa e globular observada no MEV para 120h parece favorecer uma distribuição de tensões mais uniforme do que as partículas irregulares de 60h. (ZHANG et al. 2009) observaram efeito similar em compósitos com caulim amorfo, onde a eliminação de arestas vivas e a isotropia das partículas amorfas resultaram em um melhor equilíbrio entre rigidez e tenacidade. Conclui-se que 120h representa o tempo de moagem ideal para obter um reforço que aumenta a rigidez (882 MPa) sem comprometer a ductilidade do polímero.

4. CONCLUSÃO

O presente estudo avaliou a influência do tratamento mecanoquímico do caulim com DMSO nas propriedades estruturais da carga e no desempenho mecânico de compósitos de matriz epóxi. Com base nos resultados experimentais e nas análises realizadas, foi possível concluir que:

Do Processo de Amortização: O método de moagem de bolas úmida com DMSO foi altamente eficaz. As análises de DRX comprovaram que tempos de moagem de 60h e 120h foram suficientes para destruir a ordem cristalina da caulinita, levando à amortização total do material. O MEV confirmou essa alteração morfológica, demonstrando a fragmentação dos tactóides originais e a formação de partículas globulares densas no tempo de 120h.

A Limitações da Carga *In Natura*: A incorporação de caulim sem tratamento (0h) mostrou-se prejudicial à resistência mecânica da matriz. O compósito com caulim 0h apresentou resistência à tração inferior (24,53 MPa) à da resina epóxi pura (28,91 MPa), confirmando que aglomerados cristalinos atuam como concentradores de tensão e defeitos na estrutura, e não como reforço.

Ganho de Rigidez (Módulo de Young): A ativação mecanoquímica transformou o caulim em um agente de reforço efetivo para a rigidez. O compósito processado por 60h atingiu o maior Módulo de Young do estudo (986,85 MPa), representando um ganho expressivo de 25% em relação à resina pura.

Otimização e Tenacidade (120h): O tempo de processamento de 120h foi identificado como o ponto ótimo de equilíbrio. Diferente da amostra de 60h, que se tornou frágil (11,52% de deformação), a amostra de 120h permitiu a recuperação da ductilidade do material (19,73%), igualando-se à resina pura, enquanto manteve uma rigidez superior (882,38 MPa).

Portanto a hipótese do trabalho foi comprovada, a transformação do caulim de uma estrutura cristalina lamelar para uma fase amorfa nanoestruturada, via mecanoquímica, corrige as deficiências da carga natural e produz um compósito

epoxídico com propriedades de engenharia superiores, especificamente no aumento da rigidez com manutenção da ductilidade.

Devido a esse perfil de alto desempenho, combinando estabilidade dimensional (rigidez) com segurança contra falhas catastróficas (tenacidade), o material desenvolvido apresenta grande potencial de aplicação industrial, na indústria automotiva como componentes semiestruturais e de acabamento interno e em construção civil e revestimentos como pisos de alto desempenho e adesivos estruturais, onde o aumento da dureza e rigidez proporciona resistência ao desgaste, enquanto a ductilidade recuperada impede a fissuração do revestimento devido a movimentações estruturais da base.

Desse modo, o estudo demonstrou que é possível valorizar um recurso mineral nacional abundante, transformando-o em um nanoreforço de baixo custo que atende às exigências de materiais avançados de engenharia.

5. REFERÊNCIAS

CHENG, H. et al. **Kaolinite/DMSO intercalation complex prepared by a mechanochemical method.** *Journal of Thermal Analysis and Calorimetry*, v. 101, n. 1, p. 181-186, 2010.

DELLISANTI, F.; VALDRÈ, G.; MINGUZZI, V. Mechanical amorphization of kaolinite: microstrain, crystallite size, and particle morphology analysis. *Applied Clay Science*, v. 34, n. 1-4, p. 165-174, 2006.

GARDOLINSKI, J. E. F. C.; WYPYCH, F. **Caulinita intercalada com dimetilsulfóxido como precursor para a obtenção de nanocompósitos.** *Química Nova*, São Paulo, v. 28, n. 2, p. 239-243, 2005.

KORNMAN, X. et al. Synthesis of epoxy-clay nanocomposites: influence of the nature of the clay on structure. *Polymer*, v. 42, n. 4, p. 1303-1310, 2001.

LIU, P. et al. Interfacial studies on the epoxy/kaolinite nanocomposites. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, v. 43, n. 3, p. 425-435, 2012.

LUO, Shunjie et al. Effects of Typical Solvents on the Structural Integrity and Properties of Activated Kaolinite by Wet Ball Milling. *Nanomaterials*, Basel, v. 12, n. 23, p. 4255, nov. 2022. DOI: 10.3390/nano12234255. Disponível em: <https://pmc.ncbi.nlm.nih.gov/articles/PMC9737862/>. Acesso em: 26 out. 2025.

MACEDO NETO, Jose Costa de et al. Kaolinite Review: Intercalation and Production of Polymer Nanocomposites. *Engineered Science*, v. 17, p. 28-44, 2022. DOI: 10.30919/es8d499.

MACEDO NETO, Jose Costa de. **Produção e caracterização de nanocompósitos poliméricos obtidos por polimerização em emulsão utilizando caulinita amazônica.** 2011. Tese (Doutorado em Engenharia Química) - Faculdade de Engenharia Química, Universidade Estadual de Campinas (UNICAMP), Campinas, 2011.

MAY, Clayton A. (Ed.). **Epoxy Resins: Chemistry and Technology.** 2. ed. New York: Marcel Dekker, 2018.

MURRAY, Haydn H. **Applied Clay Mineralogy**: Occurrences, Processing and Application of Kaolins, Bentonites, Palygorskite-Sepiolite, and Common Clays. Amsterdam: Elsevier, 2006. (Developments in Clay Science, v. 2).

PASCAULT, Jean-Pierre et al. **Epoxy Polymers**: New Materials and Innovations. Weinheim: Wiley-VCH, 2010.

PEREIRA, R. M. S. et al. Ativação mecanoquímica da caulinita. **Cerâmica**, São Paulo, v. 51, n. 320, p. 320-327, 2005

PETRIE, Edward M. **Epoxy Adhesive Formulations**. New York: McGraw-Hill, 2006.

PRASAD, V. S. et al. Kaolin: A versatile filler in the polymer industry. **Reviews in Chemical Engineering**, Berlin, v. 34, n. 3, p. 1-21, 2018.

SANCHEZ-SOTO, P. J. et al. Mechanochemical activation of kaolinite: changes in morphology and structure. **Journal of the European Ceramic Society**, v. 20, n. 10, p. 1581-1589, 2000.

SANTOS, P. S. **Ciência e tecnologia de argilas**. 2. ed. São Paulo: Edgard Blücher, 1989. v. 1.

VISERAS, C. et al. Uses of clay minerals in semisolid health care and cosmetic products. **Applied Clay Science**, v. 36, n. 1-3, p. 37-50, 2008.