

INFLUÊNCIA DA IRRADIAÇÃO GAMA NA TENACIDADE DO POLICARBONATO (PC) ¹

Ricardo Pondé Weber ²
João Carlos Míguez Suarez ³

Resumo

No presente trabalho foi estudado o comportamento na fratura de uma amostra comercial de policarbonato (PC), produzido no Brasil, antes e após sua exposição à radiação gama. As modificações produzidas no PC pela irradiação foram avaliadas por meio do ensaio de tenacidade à fratura empregando-se o método do Trabalho Essencial de Fratura (EWF) e por microscopia eletrônica de varredura (MEV). Os resultados do ensaio EWF indicaram que o desempenho do policarbonato foi afetado pela irradiação gama, na faixa de doses estudada. A análise microscópica caracterizou, com sucesso, os modos de fratura atuantes no PC, confirmando os resultados numéricos do ensaio de tenacidade à fratura.

Palavras-chave: Policarbonato; Irradiação gama; Trabalho essencial de fratura; Degradação.

INFLUENCE OF GAMMA IRRADIATION ON THE POLYCARBONATE (PC) TOUGHNESS

Abstract

In the present work the fracture behavior of a Brazilian commercial polycarbonate (PC) sample was studied before and after gamma radiation exposure. The modifications produced by irradiation in the PC were evaluated by fracture toughness test using the Essential Work of Fracture (EWF) method and by scanning electron microscopy (SEM). The EWF test results indicated that the polycarbonate (PC) behavior was influenced by gamma irradiation, in the studied dose range. The microscopic analyses characterized, with success, the fracture modes confirming the numerical results of the fracture toughness test.

Key words: Polycarbonate; Gamma irradiation; Essential work of fracture; Degradation.

¹ *Contribuição técnica ao 64º Congresso Anual da ABM, 13 a 17 de julho de 2009, Belo Horizonte, MG, Brasil.*

² *Engenheiro e Mestre em Ciências, Instituto Militar de Engenharia, Rio de Janeiro, RJ.*

³ *Sócio da ABM, Engenheiro e Doutor em Ciências, Professor Emérito, Instituto Militar de Engenharia, Rio de Janeiro, RJ.*

1 INTRODUÇÃO

O policarbonato (PC) é um polímero de engenharia, termoplástico, com boas propriedades tecnológicas, especialmente, tenacidade, estabilidade dimensional e transparência. O PC, devido a estas boas características, é utilizado em diversas aplicações, podendo-se destacar o seu emprego na fabricação de produtos das indústrias eletrônica, biomédica, nuclear, aeroespacial e de defesa. A irradiação gama, em muitas aplicações destas indústrias, pode ser uma etapa obrigatória no processo de produção de componentes, tais como, na fabricação de circuitos integrados quando se necessita modificar propriedades de filmes, na esterilização de itens médicos e farmacêuticos, em dosímetros de radiação utilizados em diversos dispositivos das indústrias nuclear e médica etc. Todavia, a irradiação gama de um polímero pode introduzir alterações na cadeia macromolecular do mesmo, levando a modificação de uma ou mais de suas características. Além disso, considerando que o estudo do envelhecimento natural dos polímeros demanda um longo período de tempo, é necessário, face às atuais necessidades das indústrias, o desenvolvimento de uma metodologia que avalie o comportamento destes materiais através de um envelhecimento acelerado, o que pode ser alcançado pela exposição do polímero à radiação gama.⁽¹⁻³⁾

O comportamento viscoelástico dos polímeros tem estimulado o desenvolvimento de modelos mais sofisticados que incorporem estes conceitos à análise da mecânica da fratura. O método do Trabalho Essencial de Fratura (EWF), desenvolvido e aplicado, desde 1970, aos polímeros, utiliza uma metodologia que, ao possibilitar avaliar os comportamentos viscoelástico e viscoplástico, tem se mostrado adequado para o estudo do desempenho mecânico e do comportamento na fratura destes materiais.⁽⁴⁻⁷⁾

No presente trabalho a tenacidade à fratura de um policarbonato, antes e após exposição à radiação gama, foi avaliada pelo método do trabalho essencial de fratura (EWF) utilizando-se a microscopia eletrônica de varredura como uma técnica de apoio.

2 PROCEDIMENTO EXPERIMENTAL

Foi estudada uma amostra comercial de policarbonato (PC) marca PCLIGHT da Policarbonatos do Brasil S.A. (São Paulo, SP), com 8 mm de espessura.⁽⁸⁾

O material, que foi recebido, sob a forma de corpos de prova (CP's) para o ensaio EWF, foi dividido em dois grupos, tendo um permanecido "como recebido", e que foi considerado "como referência", enquanto que o outro foi exposto à radiação gama.

A irradiação foi realizada ao ar, na temperatura ambiente, em um equipamento dotado de uma fonte de ^{137}Cs , em uma taxa de dose de 2kGy. Os CP's receberam uma dose total de radiação gama de 340kGy, que foi escolhida considerando que o policarbonato pode apresentar, após irradiação, uma transição dúctil-frágil.⁽⁹⁾

A Tabela 1 apresenta o valor médio de propriedades mecânicas do PC estudado, antes e após exposição à radiação gama, onde se pode verificar que a irradiação influencia o comportamento mecânico do polímero, reduzindo os valores de dureza, limite de resistência e alongamento na ruptura.⁽¹⁰⁾

Tabela 1 - Propriedades mecânicas da chapa de policarbonato (PC) marca PCLIGHT com 8mm de espessura, antes e após irradiação gama.⁽⁹⁾

Dose (kGy)	Dureza Rockwell M	Limite de resistência (MPa)	Alongamento na ruptura (%)
0	55,2	64,3	77,3
340	47	56,3	55,6

O ensaio de tenacidade à fratura foi realizado, na temperatura ambiente, em uma máquina universal de ensaios marca EMIC, modelo DL 10000, por flexão em 3 (três) pontos e na velocidade de 1 mm/min, de acordo com o método do trabalho essencial de fratura (EWF).⁽¹¹⁾

Foram fabricados quatro corpos-de-prova (CP's) com dimensões de 70,6 mm x 16 mm x 8 mm (Figura 1), que foram separados em dois pares de CP's (como recebido e irradiado), cada um com a mesma profundidade de trinca.

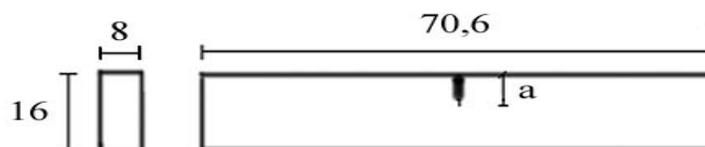


Figura 1: Corpo de prova utilizado no ensaio de tenacidade à fratura.

A Tabela 2 apresenta os valores de profundidade de trinca obtidos, podendo-se observar que os comprimentos de ligamento de cada par apresentam uma variação inferior a 0,30 mm.

Tabela 2 - Trabalho de fratura total e de fratura total específico da chapa de policarbonato (PC) marca PCLIGHT com 8 mm de espessura, “como recebido” e irradiado, em função do comprimento do ligamento

Condição do PC	“Como recebido”		Irradiado	
Profundidade de trinca, “a” (mm)	2,29	1,12	2,02	1,02
Comprimento do ligamento (mm)	13,71	14,88	13,98	14,98

O exame fratográfico foi realizado em um microscópio eletrônico de varredura marca JEOL modelo JSM 5800LV, pela observação direta da topografia das superfícies de fratura dos corpos de prova de tenacidade à fratura (EWF), procurando-se correlacionar os resultados numéricos do ensaio EWF com as modificações produzidas pela irradiação gama e com os mecanismos de fratura, dúctil ou frágil, do PC. Antes do exame, as superfícies das amostras foram recobertas com ouro, em uma câmara de vácuo.

3 RESULTADOS E DISCUSSÃO

3.1 Ensaio de Tenacidade à Fratura

A tenacidade à fratura do PC foi avaliada pelo trabalho de fratura total específico determinado a partir do trabalho de fratura total segundo o método EWF. O trabalho de fratura total específico foi calculado dividindo-se o valor do trabalho de fratura total, obtido pela integração da área sob a curva força-deslocamento do ensaio de flexão dos corpos-de-prova EWF, pela área do ligamento, que é igual ao produto do seu comprimento pela espessura do corpo-de-prova. A Tabela 3 mostra

estes resultados para cada condição do policarbonato, “como recebido” e irradiado, em função de cada comprimento do ligamento.

Tabela 3 - Trabalho de fratura total e de fratura total específico da chapa de policarbonato (PC) marca PCLIGHT com 8 mm de espessura, “como recebido” e irradiado, em função do comprimento do ligamento

Condição do PC	“Como recebido”		Irradiado	
Comprimento do ligamento (mm)	13,71	14,88	13,98	14,98
Trabalho de fratura total (kJ)	0,79	1,77	1,06	9,68
Trabalho de fratura total específico (kJ/m ²)	7,25	14,88	10,05	80,80

Verifica-se, pela comparação entre os resultados de cada par de CP's, que o comportamento na fratura do policarbonato foi influenciado pela sua exposição à radiação gama. Observa-se, para o mesmo comprimento de ligamento (13,71 mm/13,98 mm e 14,88 mm/14,98 mm), que o policarbonato irradiado mostrou, em relação ao “como recebido”, um comportamento mais dúctil na fratura e que o aumento do comprimento de ligamento melhorou a tenacidade à fratura do PC, seja no material “como recebido”, seja no irradiado. Verifica-se, ainda, que a irradiação gama do polímero, no menor comprimento de ligamento (13,71 mm/13,98 mm), produziu uma leve modificação no valor do trabalho de fratura total específico do material “como recebido”, o que está compatível com a observada redução nas propriedades mecânicas do PC após sua exposição à radiação gama (Tabela 1).

Estes resultados confirmam que, nas duas condições, “como recebido” e irradiado, o PC apresenta, para os menores comprimentos de ligamento, um comportamento predominantemente frágil na fratura, menos intenso no material irradiado. Verifica-se, ainda, que o PC irradiado entalhado com o maior comprimento de ligamento (14,98 mm) mostrou, em relação às demais condições, um aumento sensível na tenacidade, pois fraturou com uma elevada dissipação de energia conforme indicado pelo alto valor do trabalho de fratura total específico (80,80 kJ/m²) obtido nesta condição.

Este comportamento permite concluir que o aumento do comprimento do ligamento (maior espessura resistente) melhorou a tenacidade do PC, que tanto mais alta deverá ser, quanto maior for o tamanho do ligamento.

3.2 Exame Microscópico

A análise microscópica das superfícies de fratura de amostras rompidas por meio de esforços mecânicos pode fornecer informações importantes a respeito da natureza dos processos de falha envolvidos. Uma interpretação adequada dos aspectos topográficos observados nestas superfícies permite uma melhor compreensão dos mecanismos atuantes nos estágios de iniciação e de propagação da fratura.

A Figura 2 apresenta uma vista macroscópica das superfícies de fratura dos corpos-de-prova (CP's) ensaiados em flexão pelo método EWF, mostrando que cada par de CP's apresenta um aspecto topográfico particular. A topografia das superfícies de fratura modifica-se de um aspecto completamente liso nos CP's “como recebido” para uma superfície rugosa com uma mistura de regiões planas e rugosas no material irradiado, indicando claramente que o comportamento na fratura do policarbonato foi influenciado pela irradiação gama.

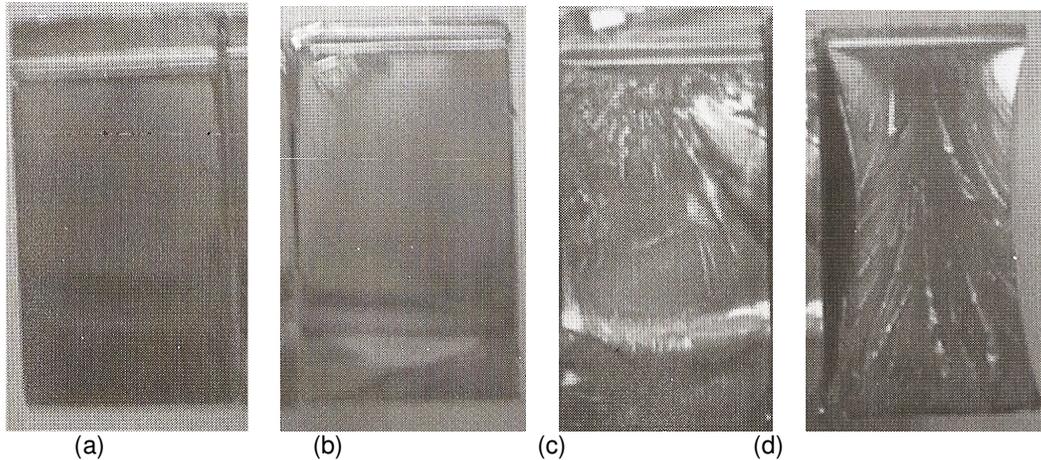


Figura 2 - Aspecto macroscópico das superfícies de fratura do policarbonato ensaiado em flexão pelo método EWF: (a) CP “como recebido” com comprimento de ligamento igual a 13,71mm; (b) idem com 14,88 mm; (c) CP irradiado com comprimento de ligamento igual a 13,98 mm; (d) idem com 14,98 mm.

Verifica-se que as superfícies de fratura dos CP's “como recebido” não apresentam diferenças substanciais entre si, independentemente do comprimento do ligamento (Figuras 2a e 2b). Observa-se a ocorrência de superfícies planas, cantos vivos e nenhuma contração lateral, mostrando que o PC, nesta condição, falhou com baixa dissipação de energia caracterizando a ocorrência de um mecanismo de fratura frágil.

Os CP's irradiados apresentam superfícies de fratura irregulares mostrando que a irradiação gama modificou substancialmente o modo de fratura em flexão e indicando que, nesta condição, a fratura ocorreu de uma maneira mais dúctil. Os aspectos topográficos mostram, todavia, diferenças marcantes quando se variou o comprimento do ligamento. O CP irradiado com o menor comprimento do ligamento (13,98 mm) mostra regiões rugosas e planas, estrias e pequena contração lateral, caracterizando um comportamento na fratura menos frágil. O aumento do comprimento do ligamento para 14,98 mm modificou profundamente o modo de falha do PC. Observa-se que a seção fraturada apresenta aspectos topográficos que podem ser separados em duas zonas diferentes, uma adjacente às bordas e composta por zonas de cisalhamento (Figura 2c) e a outra, no centro, que se apresenta mais lisa e com estrias que se desenvolvem na direção de propagação da trinca, a partir da raiz do entalhe (Figura 2d). Verifica-se, assim, que, nesta condição, o PC apresenta um comportamento dúctil.

Microfotografias típicas, por microscopia eletrônica de varredura (MEV), das superfícies de fratura de corpos de prova ensaiados em flexão, antes e após irradiação gama, mostram aspectos característicos dos mecanismos de fratura, de acordo com os critérios clássicos para a sua identificação e classificação. As microfotografias das superfícies de fraturas dos CP's EWF, “como recebido” e irradiado, estão apresentadas, respectivamente, nas Figuras 3 e 4.

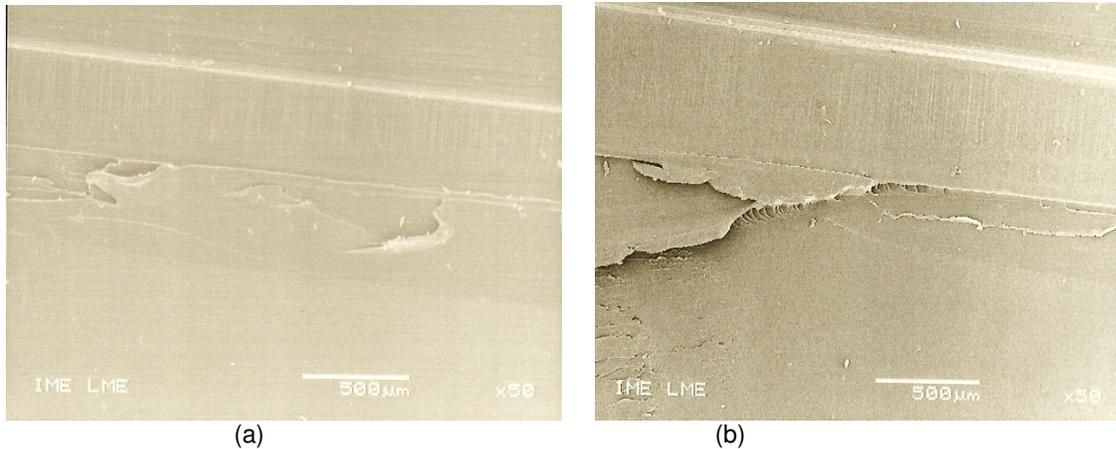


Figura 3 - Microfotografias, por MEV, das superfícies de fratura do policarbonato “como recebido” ensaiado em flexão pelo método EWF: (a) CP com comprimento de ligamento igual a 13,71 mm; (b) idem com 14,88 mm.

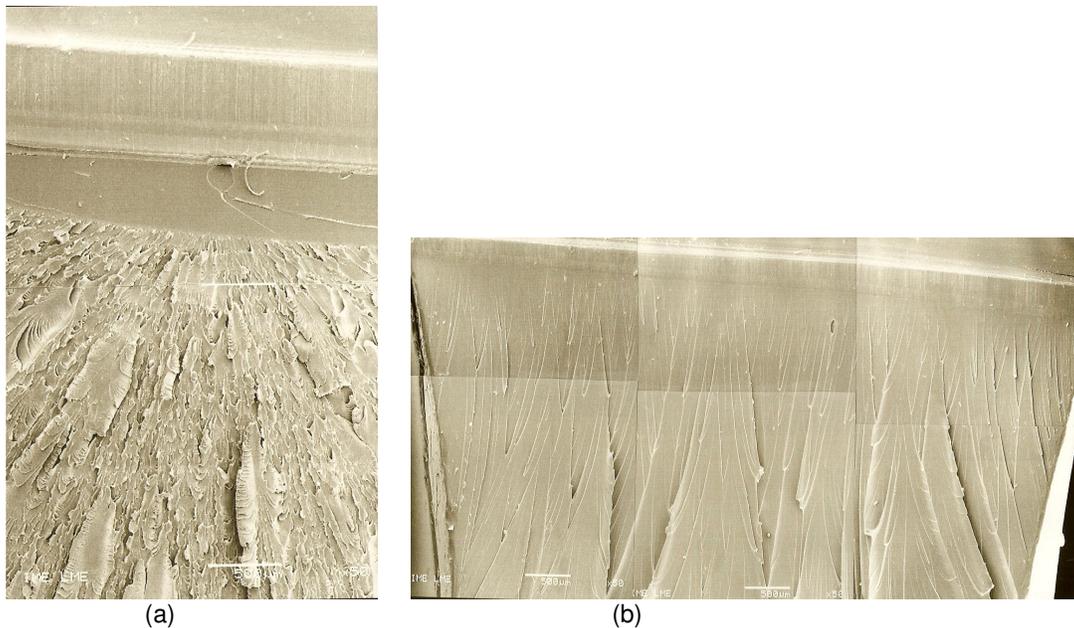


Figura 4 - Microfotografias, por MEV, das superfícies de fratura do policarbonato irradiado ensaiado em flexão pelo método EWF: (a) CP com comprimento de ligamento igual a 13,98 mm; (b) idem com 14,98 mm.

Os CP's “como recebido” (Figuras 3a e 3b) apresentam superfícies de fratura planas com trincas e “marcas de rios”, podendo-se observar que a propagação da trinca, desde o entalhe até o final da fratura, ocorreu sem deformação plástica macroscópica. Estes aspectos são característicos de uma fratura frágil.

A superfície de fratura do CP irradiado com o menor comprimento do ligamento (13,98 mm) apresenta um padrão de falha típico por microfissuramento (*crazing*) – uma região espelhada, lisa, seguida por uma zona de transição, caracterizada por um aumento na rugosidade, com uma aparência escamosa e com sulcos desenvolvidos na direção de propagação da trinca, indicando um comportamento mais dúctil, semi frágil (Figura 4a).

O CP com o maior comprimento do ligamento (14,98 mm) apresenta uma fratura com um aspecto superficial diferente, onde a superfície de fratura pode ser

dividida em duas zonas distintas (Figura 4b). Observa-se a existência de uma região adjacente às bordas, em tensão plana, composta por zonas de cisalhamento, e outra, no centro, em deformação plana, que se apresenta mais lisa com estrias que se desenvolvem na direção de propagação da trinca, a partir da raiz do entalhe. Este aspecto topográfico indica que a fratura ocorreu com uma elevada dissipação de energia, caracterizando uma fratura altamente dúctil.

Desta maneira verifica-se que, nas condições estudadas no presente trabalho, os CP's EWF entalhados extraídos da chapa de policarbonato com 8mm de espessura "como recebido" apresentaram um comportamento frágil, independentemente do comprimento do ligamento, enquanto que o material irradiado fraturou de um modo dúctil quando foi aumentado o comprimento do ligamento.

O policarbonato, embora seja, normalmente, um polímero dúctil e tenaz, pode falhar, sob certas condições, de uma maneira frágil com uma baixa deformação plástica, apresentando uma transição dúctil-frágil no comportamento mecânico. O PC, por exemplo, apresenta uma alta sensibilidade ao entalhe; o que, devido à existência de um estado plano de tensões, reduz a sua tenacidade.^(12,13) A exposição do PC à radiação gama produz cisão das cadeias macromoleculares, aumentando a quantidade de cadeias mais curtas e o caminho de propagação da trinca.^(14,15)

Assim, o comportamento na fratura do policarbonato, antes e após irradiação, pode ser racionalizado em termos de uma competição entre o comprimento do ligamento (espessura resistente) e a degradação produzida pela irradiação gama, porque, dependendo da predominância de um sobre o outro, a fratura pode ocorrer em situação de "tensão plana" ou de "deformação plana". Desta maneira pode-se afirmar que podem ser observados dois tipos de transição: (i) de uma fratura por microfissuramento simples (*single crazing*) no polímero "como recebido" para uma fratura por microfissuramento múltiplo (*multiple crazing*) no material irradiado e (ii) uma transição frágil-dúctil no polímero irradiado quando se aumenta o comprimento do ligamento, ou seja, quando se reduz o tamanho da trinca. Nesta última situação a fratura muda de microfissuramento simples para um escoamento por cisalhamento (*shear yielding crack propagation mode*).^(16,17)

A análise microscópica por MEV está consistente com os resultados obtidos no ensaio de tenacidade à fratura do policarbonato, "como recebido" e irradiado, confirmando que a irradiação gama com a dose de 340 kGy associada a um aumento no comprimento do ligamento produz uma transição frágil-dúctil no modo de fratura do PC.

4 CONCLUSÕES

Foi investigada a influência da irradiação gama e do comprimento do ligamento (comprimento da trinca) na tenacidade à fratura de uma chapa de policarbonato com 8mm de espessura, produzida no Brasil.

A principal conclusão do trabalho é que a resistência à propagação da trinca neste material pode ser estruturalmente relacionada com a dose de radiação gama e com o comprimento do ligamento. Tendo em vista os resultados dos ensaios realizados podem ser apresentadas as seguintes conclusões:

- 1) O comportamento na fratura do policarbonato é influenciado pela exposição à radiação gama.

- 2) Um aumento na relação comprimento do ligamento / espessura do corpo de prova pode alterar o estado de tensões de deformação plana para tensão plana modificando a tenacidade do policarbonato irradiado.
- 3) A irradiação gama do policarbonato produz uma transição frágil-dúctil no comportamento na fratura do polímero, especialmente quando solicitado com maiores comprimentos de ligamento.
- 4) A morfologia de fratura do policarbonato depende das condições de sollicitação e do modo como ocorre a propagação da trinca.
- 5) O método do trabalho essencial de fratura (EWF) é adequado para caracterizar o comportamento na fratura do policarbonato.
- 6) Foi estabelecida uma metodologia preliminar que permite aplicar o método do trabalho essencial de fratura (EWF) ao policarbonato.

Os trabalhos continuam em nosso laboratório visando o desenvolvimento da metodologia estudada para um melhor aproveitamento da mecânica da fratura no estudo dos polímeros termoplásticos.

Agradecimentos

Os autores agradecem à FAPERJ, CAPES e CNPq pelo apoio financeiro.

REFERÊNCIAS

- 1 WEYERS, R.E., BLANKENHORN, P.R., STOVER, L.R., KLINE, D.E., Effects of sterilization procedures on the tensile properties of polycarbonate, J. Appl. Polym. Sci., v.22, p.2019-2024, 1978.
- 2 KALKAR, A.K., KUNDAGOL, S., CHAND, S., CHANDRA, S., Effect of gamma-Irradiation on structural and electrical properties of poly (bisphenol-A carbonate) films, Radiation Phys. Chem., v.39, n.5, p.435-442, 1992.
- 3 SHAMSHAD, A., RASHID, M., HUSAIN, A., High gamma dose dosimetry by polycarbonate. Radiation Phys. Chem., v.50, n.3, p.307-311, 1997.
- 4 HERTZBERG, R.W. Deformation and Fracture mechanics of engineering materials. New York: John Wiley & Sons, Inc., 1976.
- 5 ANDERSON, T.L. Fracture mechanics: Fundamentals and application. New York: CRC Press, 2nd edition, 1995.
- 6 WU, J.; MAI, Y-W. The essential fracture work concept for toughness measurement of ductile polymers: Polym. Engng. Sci, v.36, n.18, p.2275-2288, 1996.
- 7 MAI, Y-W; CHING, E.C.Y.; POON, W.K.Y.; LI, R.K.Y. Effect of strain rate on the fracture toughness of some ductile polymers using the Essential Work of Fracture (EWF) approach. Polym. Engng. Sci., v. 40, n. 12, p.2558-2564, 2000.
- 8 Catálogo comercial do policarbonato PCLIGHT, Policarbonatos do Brasil S.A., São Paulo, SP, 2004.
- 9 SEGUCHI, T.; YAGI, T.; ISHIKAWA, S.; SANO, Y. New material synthesis by radiation processing at high temperature - polymer modification with improved irradiation technology. Radiation Phys. Chem, v.63, p.35-40, 2002.
- 10 WEBER, R.P.; Da SILVA, M.R.M.; MIGUEZ SUAREZ, J.C.. Influência das condições de emprego na tenacidade à fratura do policarbonato. Anais do 62º Congresso Anual da ABM (Associação Brasileira de Metalurgia e Materiais) (CDROM), Vitória, ES, 2007, p.3107-3114.
- 11 Protocolo de teste ESIS - Essential work of fracture (EWF). European Structural Integrity Society (ESIS) - TC-4 Group, Les Diablerets, Switzerland, 1997.
- 12 CHO, K., YANG, J., KANG, B.I., PARK, C.E., Notch sensitivity of polycarbonate and toughened polycarbonate. J. Appl. Polym. Sci., v.89, p.3115-3121, 2003.

- 13 ANNAND, L., GEARING, B.P., Notch-sensitive fracture of polycarbonate, *Int. J. Solids & Structures*, v.41, p.827-845, 2004.
- 14 FRASER, R.A., WARD, I.M., The impact fracture behaviour of notched specimens of polycarbonate, *J. Mater. Sci.*, v.12, p.459-468, 1977.
- 15 ACIERNO, D.; LA MANTIA, F.P.; TITOMANLIO, G.; CALDERARO, E.; CASTIGLIA, F. γ -Radiation effects on a polycarbonate. *Radiation Phys. Chem.*, v.16, p.95-99, 1980.
- 16 HULL, D.; OWEN, T.W. Interpretation of fracture surfaces features in polycarbonate. *J. Polym. Sci.: Polym. Phys. Ed.*, v.11, p.2039-2055, 1973.
- 17 GAYMANS, R.J., HAMBERG, J.J., INBERG, J.P.F. The brittle-ductile transition temperature of polycarbonate as a function of test speed. *Polym. Engng. Sci.*, v.40, p.1-7, 2000.