

**UNIVERSIDADE DO EXTREMO SUL CATARINENSE - UNESC**  
**PROGRAMA DE PÓS-GRADUAÇÃO EM CIÊNCIA E ENGENHARIA DE**  
**MATERIAIS - PPGCEM**  
**MESTRADO EM CIÊNCIA E ENGENHARIA DE MATERIAIS**

**RAFAELLA DE BONNA**

**DESENVOLVIMENTO DE EMBALAGENS MULTICAMADAS DE**  
**POLI(ÁCIDO LÁTICO) E PAPEL COM TRATAMENTO DE SUPERFÍCIE**  
**COM SILANO**

**CRICIÚMA**

**2025**

**RAFAELLA DE BONNA**

**DESENVOLVIMENTO DE EMBALAGENS MULTICAMADAS DE  
POLI(ÁCIDO LÁTICO) E PAPEL COM TRATAMENTO DE SUPERFÍCIE  
COM SILANO**

Dissertação de Mestrado apresentada ao  
Programa de Pós-Graduação em Ciência e  
Engenharia de Materiais da Universidade do  
Extremo Sul Catarinense - UNESC

Orientador: Prof. Dr. Matheus Vinicius  
Gregory Zimmermann

Coorientadora: Prof. Dra. Ruth Marlene  
Campomanes Santana

**CRICIÚMA**

**2025**

Dados Internacionais de Catalogação na Publicação

B697d Bonna, Rafaella de.

Desenvolvimento de embalagens multicamadas de poli(ácido láctico) e papel com tratamento de superfície com silano / Rafaella de Bonna. - 2025.  
74 p. : il.

Dissertação (Mestrado) - Universidade do Extremo Sul Catarinense, Programa em Ciência e Engenharia de Materiais, Criciúma, 2025.

Orientação: Matheus Vinicius Gregory Zimmermann.  
Coorientação: Ruth Marlene Campomanes Santana.

1. Polímeros. 2. Polímeros biodegradáveis. 3. Embalagens. 4. Embalagens de papel. 5. Papel. 6. Resíduos plásticos. 7. Poliacido láctico. I. Título.

CDD 23. ed. 620.192

Bibliotecária Eliziane de Lucca Alosilla - CRB 14/1101  
Biblioteca Central Prof. Eurico Back - UNESC


Rafaella de Bonna

Desenvolvimento de embalagens multicamadas de poli(ácido láctico) e papel com tratamento de superfície com silano”.


Esta Dissertação foi julgada adequada à obtenção do grau de Mestre(a) em Ciência e Engenharia de Materiais pelo Programa de Pós-Graduação em Ciência e Engenharia de Materiais - PPGCEM (Área de concentração: Tecnologia de Materiais) da Universidade do Extremo Sul Catarinense – UNESC.

Criciúma, SC, 09 de dezembro de 2025.


### **Banca Examinadora:**

Documento assinado digitalmente  
 **ELÍDIO ANGIOLETTO**  
Data: 10/12/2025 11:05:06-0300  
Verifique em <https://validar.iti.gov.br>

**Prof. Dr. Elídio Angioletto**  
Universidade do Extremo Sul Catarinense - UNESC

Documento assinado digitalmente  
 **ALEXANDRE GONCALVES DAL BO**  
Data: 11/12/2025 13:19:42-0300  
Verifique em <https://validar.iti.gov.br>

**Prof. Dr. Alexandre Gonçalves Dal-Bó**  
Universidade do Extremo Sul Catarinense - UNESC

Documento assinado digitalmente  
 **JORDANA CORRALO SPADA**  
Data: 10/12/2025 12:00:19-0300  
Verifique em <https://validar.iti.gov.br>

**Prof.<sup>a</sup> Dra. Jordana Corralo Spada**  
Universidade Federal do Rio Grande do Sul – UFRGS

## **AGRADECIMENTOS**

Gostaria de agradecer primeiro aos meus pais, Leonardo e Silvana, por todo o apoio e incentivo aos estudos que recebi desde a primeira vez que peguei um caderno em mãos. Sem o suporte de vocês, eu jamais conseguiria chegar tão longe.

Aos meus orientadores, prof. Matheus e prof. Ruth, que me auxiliaram ao longo do trabalho. Sem vocês, as dúvidas teriam me consumido a cada etapa deste projeto.

Ao grupo de pesquisa CEPOL por todo o auxílio prestado, seja por fornecer equipamentos ou insumos. Gostaria também de agradecer o grupo de pesquisa LADEBIMA, em especial o prof. Elídio Angioletto, quem me guiou e me auxiliou em parte do projeto.

Aos meus amigos, que me incentivaram e cederam seu ombro durante o desenvolvimento do projeto. Irei, para sempre, estar em dívida com vocês por me ouvirem balbuciar sobre polímeros durante dois longos anos.

Aos membros da banca pela disposição de ler, corrigir e discutir essa dissertação.

A CAPES pelo apoio financeiro, e ao PPGCEM e a Universidade do Extremo Sul Catarinense (UNESC) pelo suporte e estruturas fornecidas.

A Universidade Federal do Rio Grande do Sul (UFRGS), pela disponibilização de seus laboratórios para realização de ensaios.

E a todos aqueles que de alguma forma contribuíram diretamente ou indiretamente na produção deste trabalho.

## LISTA DE ILUSTRAÇÕES

Figura 1: Diferentes tipos de polímeros.....	17
Figura 2: Molécula de celulose.....	20
Figura 3: Esquema das camadas nos filmes laminados para a) 1 Lam ST; b) 1 Lam CT; c) 2 Lam ST; e d) 2 Lam CT.....	25
Figura 4: <i>Trichoderma viride</i> (cultura) após 7 dias de cultivo em meio Sabouraud sólido.....	27
Figura 5: Esquema de aparato para o ensaio de permeabilidade.....	28
Figura 6: FTIR das amostras Papel ST e Papel CT, e para o TEVS.....	32
Figura 7: Micrografias obtidas por MEV das amostras de a) e b) Papel ST e c) e d) Papel CT em diferentes resoluções.....	33
Figura 8: Resultados ensaio de permeabilidade das amostras avaliadas após 48h de ensaio..	42
Figura 9: a) TG e b) DTG das amostras de blenda de PLA, Papel ST, Papel CT, 1 Lam ST e 1 Lam CT.....	44
Figura 10: Imagens das amostras ao longo do experimento de biodegradação em solo simulado.....	45
Figura 11: a) TGA e b) DTG das amostras de blenda de PLA ao longo do experimento de biodegradação em solo simulado.....	47
Figura 12: FTIR das blendas de PLA ao longo do experimento de biodegradação em solo simulado.....	48
Figura 13: Micrografias obtida por MEV para as amostras de blenda de PLA do ensaio de biodegradação em solo simulado; a) e b) PLA 0 dias; c) e d) PLA 30 dias; e) e f) PLA 90 dias.....	49
Figura 14: a) TG e b) DTG das amostras de 1 Lam CT ao longo do experimento de biodegradação em solo simulado.....	50
Figura 15: Micrografias obtida por MEV das amostras de 1 Lam CT que passaram pelo ensaio de biodegradação em solo simulado, tiradas pelo lado do papel; a) e b) 1 Lam CT 0 dias; c) e d) 1 Lam CT 30 dias; e) e f) 1 Lam CT 90 dias.....	50
Figura 16: a) TG e b) DTG das amostras de 2 Lam CT ao longo do experimento de biodegradação em solo simulado.....	52
Figura 17: Amostras de blenda PLA ao longo do ensaio de biodegradação com <i>Trichoderma viride</i> .....	55
Figura 18: Amostras de papel ao longo do ensaio de biodegradação com <i>Trichoderma viride</i> .....	55
Figura 19: Amostras de laminado ao longo do ensaio de biodegradação com <i>Trichoderma viride</i> .....	56
Figura 20: Micrografias obtidas por MEV das amostras de a) PLA Viride e b) PLA (Lam CT) Viride ao final dos 28 dias de ensaio de biodegradação com T. viride.....	57
Figura 21: FTIR amostras de PLA 0d, PLA Viride e PLA (Lam CT) Viride ao final dos 28 dias de ensaio de biodegradação com T. viride.....	58
Figura 22: a) TG e b) DTG das amostras de PLA 0d, PLA Viride e PLA (Lam CT) Viride ao final dos 28 dias de ensaio de biodegradação com T. viride.....	59
Figura 23: Micrografia obtida por MEV das amostras de Papel ST que passaram pelo ensaio de biodegradação com T. viride.....	59
Figura 24: FTIR das amostras de Papel ST, Papel CT, Papel ST Viride, Papel (Lam CT) Viride ao final dos 28 dias de ensaio de biodegradação com T. viride.....	60
Figura 25: a) TG e b) DTG das amostras de Papel CT, Papel ST Viride, Papel (Lam CT) Viride ao final dos 28 dias de ensaio de biodegradação com T. viride.....	61

## LISTA DE TABELAS

Tabela 1: Configurações do ensaio de ponto central.....	29
Tabela 2: Resultados ensaio ângulo de contato.....	34
Tabela 3: Propriedades físicas das amostras.....	36
Tabela 4: Resultados dos ensaios mecânicos das amostras avaliadas. Após ANOVA de uma via, as médias foram comparadas pelo teste post hoc de Tukey ( $\alpha = 0,05$ ). Médias seguidas por letras diferentes (a,b,c,d) diferem estatisticamente entre si.....	37
Tabela 5: ANOVA força de laminação das amostras avaliadas.....	38
Tabela 6: ANOVA para a tensão máxima das amostras avaliadas.....	39
Tabela 7: ANOVA para o módulo de elasticidade das amostras avaliadas.....	40
Tabela 8: Resultados ensaio de permeabilidade das amostras avaliadas.....	41
Tabela 9: Perdas de massa das amostras avaliadas ao longo do ensaio de biodegradação em solo simulado.....	45
Tabela 10: Resultados dos ensaios mecânicos ao longo do ensaio de biodegradação em solo simulado.....	52
Tabela 11: Perda de massa (g) das amostras de blenda de PLA, Papel e Laminado ao longo do ensaio de biodegradação com <i>Trichoderma viride</i> .....	54

## LISTA DE ABREVIATURAS E SIGLAS

PLA - Poli(ácido láctico)

PVOH - Poli(álcool vinílico)

PE - Polietileno

PP - Polipropileno

HDPE - Polietileno de alta densidade

PET - Poli(tereftalato de etileno)

PU - Poliuretano

PS - Poliestireno

SPC - Sustainable Packaging Coalition

EUROPEN - European Organization for Packaging and Environment

PLLA - Poli(ácido L-láctico)

PDLA - Poli(ácido D-láctico)

PDLLA - Poli(ácido D,L-láctico)

WVTR - Water vapor transmission rate (taxa de transmissão de vapor de água)

APTES - 3-aminopropiltriétoxisilano

3APTMS - 3-(aminopropil)trimetoxisilano

TEVS - Triethoxysilane-ethylene

Lam - Laminação

ST - Sem tratamento

CT - Com tratamento

FTIR - Espectroscopia no Infravermelho por Transformada de Fourier

MEV - Microscopia eletrônica de varredura

TGA - Análise termogravimétrica

DTG - Termogravimetria derivada

WVP - Water vapor permeability (permeabilidade a vapor de água)

C - Concentração

SQ - Soma dos quadrados

GL - Graus de liberdade

QM - Quadrados médios

TPS - Amido termoplástico

R - Radical

## SUMÁRIO

1. INTRODUÇÃO.....	7
1. INTRODUÇÃO.....	7
2. OBJETIVOS.....	10
2. OBJETIVOS.....	10
<b>2.1. OBJETIVO GERAL.....</b>	<b>10</b>
<b>2.1. OBJETIVO GERAL.....</b>	<b>10</b>
<b>2.2. OBJETIVOS ESPECÍFICOS.....</b>	<b>10</b>
<b>2.2. OBJETIVOS ESPECÍFICOS.....</b>	<b>10</b>
3. REVISÃO BIBLIOGRÁFICA.....	11
3. REVISÃO BIBLIOGRÁFICA.....	11
<b>3.1. Problemática dos Resíduos Plásticos.....</b>	<b>11</b>
<b>3.1. Problemática dos Resíduos Plásticos.....</b>	<b>11</b>
<b>3.2. Embalagens.....</b>	<b>13</b>
<b>3.2. Embalagens.....</b>	<b>13</b>
<b>3.3. Embalagens Sustentáveis.....</b>	<b>14</b>
<b>3.3. Embalagens Sustentáveis.....</b>	<b>14</b>
<b>3.4. Polímeros Biodegradáveis.....</b>	<b>17</b>
<b>3.4. Polímeros Biodegradáveis.....</b>	<b>17</b>
3.4.1. <i>Poli(Ácido Lático)</i> .....	18
3.4.1. <i>Poli(Ácido Lático)</i> .....	18
3.4.2. <i>Papel (Celulose)</i> .....	19
3.4.2. <i>Papel (Celulose)</i> .....	19
<b>3.5. Silanos.....</b>	<b>21</b>
<b>3.5. Silanos.....</b>	<b>21</b>
4. MATERIAIS E MÉTODOS.....	23
4. MATERIAIS E MÉTODOS.....	23
<b>4.1. Materiais.....</b>	<b>23</b>
<b>4.1. Materiais.....</b>	<b>23</b>
<b>4.2. Métodos.....</b>	<b>23</b>
<b>4.2. Métodos.....</b>	<b>23</b>
<b>4.3. Caracterizações.....</b>	<b>27</b>
<b>4.3. Caracterizações.....</b>	<b>27</b>
5. RESULTADOS E DISCUSSÕES.....	32
5. RESULTADOS E DISCUSSÕES.....	32
<b>5.1. PROPRIEDADES DE SUPERFÍCIE DO PAPEL.....</b>	<b>32</b>

<b>5.1. PROPRIEDADES DE SUPERFÍCIE DO PAPEL.....</b>	<b>32</b>
5.1.1. FTIR.....	32
5.1.1. FTIR.....	32
5.1.2. MEV.....	33
5.1.2. MEV.....	33
5.1.3. ÂNGULO DE CONTATO.....	34
5.1.3. ÂNGULO DE CONTATO.....	34
<b>5.2. PROPRIEDADES DOS FILMES MULTICAMADAS.....</b>	<b>36</b>
<b>5.2. PROPRIEDADES DOS FILMES MULTICAMADAS.....</b>	<b>36</b>
5.2.1. PROPRIEDADES FÍSICAS.....	36
5.2.1. PROPRIEDADES FÍSICAS.....	36
5.2.2. PROPRIEDADES MECÂNICAS.....	37
5.2.2. PROPRIEDADES MECÂNICAS.....	37
5.2.3. PERMEABILIDADE A VAPOR DE ÁGUA.....	41
5.2.3. PERMEABILIDADE A VAPOR DE ÁGUA.....	41
5.2.4. TGA.....	43
5.2.4. TGA.....	43
5.2.5. DEGRADAÇÃO EM SOLO SIMULADO.....	45
5.2.5. DEGRADAÇÃO EM SOLO SIMULADO.....	45
5.2.6. DEGRADAÇÃO COM MICRO-ORGANISMO ESPECÍFICO.....	54
5.2.6. DEGRADAÇÃO COM MICRO-ORGANISMO ESPECÍFICO.....	54
6. CONCLUSÃO.....	62
6. CONCLUSÃO.....	62
7. SUGESTÕES PARA TRABALHOS FUTUROS.....	64
7. SUGESTÕES PARA TRABALHOS FUTUROS.....	64
REFERÊNCIAS.....	65
REFERÊNCIAS.....	65

## RESUMO

As preocupações ambientais relacionadas aos resíduos plásticos provenientes de embalagens impulsionam o desenvolvimento de alternativas sustentáveis que conciliem desempenho, viabilidade econômica e menor impacto ambiental. Dentre essas alternativas, destaca-se a laminação no papel, que confere rigidez, leveza e baixo custo, com poli(ácido láctico) (PLA), um polímero de fonte renovável com boas propriedades de barreira a gases e gorduras. Entretanto, o papel apresenta alta hidrofilicidade e porosidade, o que compromete a fixação do adesivo, promove a absorção da umidade do adesivo, dificulta o processo de laminação e restringe sua aplicação. Este estudo propõe o tratamento superficial do papel com organossilanos, visando aumentar sua hidrofobicidade, a adesão ao PLA e a resistência à água. O processo experimental incluiu a extrusão do PLA, modificação superficial do papel, aplicação de adesivo à base de poli(álcool vinílico) - PVOH, laminação e posterior caracterização dos laminados. As amostras foram submetidas a análises mecânicas, térmicas, morfológicas e de biodegradação. Os resultados demonstraram aumento significativo da hidrofobicidade do papel posterior ao tratamento e maior resistência mecânica e de força de laminação nos filmes multicamadas com tratamento químico, sem comprometer a biodegradabilidade, validando a proposta como uma alternativa ambiental e tecnicamente viável.

## **ABSTRACT**

Environmental concerns related to plastic waste from packaging are driving the development of sustainable alternatives that reconcile performance, economic feasibility, and reduced environmental impact. Among these alternatives, paper lamination stands out, as it provides rigidity, lightness, and low cost, combined with poly(lactic acid) (PLA), a renewable-source polymer with good barrier properties against gases and fats. However, paper exhibits high hydrophilicity and porosity, which compromises adhesive bonding, promotes moisture absorption from the adhesive, hinders the lamination process, and limits its application. This study proposes the surface treatment of paper with organosilanes to increase its hydrophobicity, adhesion to PLA, and water resistance. The experimental process included PLA extrusion, surface modification of the paper, application of a poly(vinyl alcohol)-based adhesive (PVOH), lamination, and subsequent characterization of the laminates. The samples were subjected to mechanical, thermal, morphological, and biodegradation analyses. The results demonstrated a significant increase in paper hydrophobicity after treatment, as well as greater mechanical strength and lamination force in the multilayer films with chemical treatment, without compromising biodegradability, validating the proposal as an environmentally and technically viable alternative.



## 1. INTRODUÇÃO

Segundo a Plastics Europe, em 2024, foram produzidas aproximadamente 430,9 milhões de toneladas de plástico no mundo, com apenas 41,2 milhões de toneladas sendo reciclados. Do restante, estima-se que aproximadamente 353 milhões de toneladas métricas se tornaram resíduos, com cerca de 79 milhões de toneladas sendo descartadas indevidamente (DAS et al, 2025). O setor de embalagens é o maior responsável pela geração desses resíduos, principalmente devido à curta vida útil de seus produtos, muitas vezes inferior a três anos (LI et al, 2024). Para minimizar esse ciclo e como alternativa para combater o consumo desenfreado do modelo linear de produção atualmente vigente, uma alternativa proposta é a adoção do modelo de economia circular, em que os resíduos plásticos seriam coletados, separados e reciclados de forma adequada, retornando à indústria como matéria-prima (SCHYNS & SHAVER, 2021). Outra proposta é a inserção de polímeros biodegradáveis, de origem renovável ou não, como matéria prima para produção de artefatos onde a reciclagem não consegue suprir a demanda (GRZEBIENIARZ et al, 2023).

Dentre os polímeros biodegradáveis utilizados no mundo, dois se destacam: papel e poli(ácido láctico) - PLA (JIANG et al., 2022; NABELS-SNEIDERS et al., 2022). O papel é um excelente material para diversas aplicações dentro da indústria de embalagens, como confeitaria, pet food e ração seca, oferecendo resistência mecânica e proteção contra a luz (GADHAVE et al, 2022; JIANG et al., 2022). No entanto, ele deixa a desejar como barreira para água e óleos devido à sua hidrofiliabilidade e porosidade do substrato (GANICZ et al, 2020). O PLA é um biopolímero emergente e promissor, obtido completamente de fontes renováveis como o milho, e com ligações de poliéster alifático que oferecem diferentes propriedades de acordo com a sua composição estereoquímica (SUNDAR et al., 2021). Ele pode ser menos elástico e de maior custo quando comparado com outros polímeros convencionais, como o polietileno (PE) e o polipropileno (PP); por outro lado, suas propriedades de barreira contra gordura e oxigênio são bastante promissoras, além de sua facilidade de integração em processos tradicionais de produção, como a extrusão por sopro (TRINH et al., 2021; SHAIKH et al., 2021).

Devido às particularidades de cada material, na maioria dos casos, é difícil uma única camada de filme atender a todos os requisitos de embalagem de alimentos,

especialmente as propriedades de barreira (ANUKIRUTHIKA et al., 2020). Para isso, na indústria é utilizado o processo de laminação para a produção de filmes chamados multicamadas, em que dois filmes são unidos com uso de um adesivo de, por exemplo, poliuretano ou acetato de vinil (LI et al., 2024). No entanto, essa composição mais complexa prejudica os processos de reciclagem, pois as camadas devem ser separadas para recuperar os materiais puros, uma tarefa dificultada por fortes ligações adesivas e tecnologias limitadas de delaminação (ÜGDÜLER et al., 2021). Em especial, a laminação de papel na indústria de embalagens apresenta ainda outros desafios que afetam tanto a funcionalidade quanto a sustentabilidade dos materiais de embalagem. Um deles é a natureza hidrofílica da celulose, que pode comprometer a integridade mecânica do filme quando exposta à umidade do adesivo (RIVERO et al., 2017).

Uma das formas de melhorar as propriedades mecânicas e a barreira das embalagens de papel é através do tratamento químico do papel. Compostos com fluorocarbonetos reduzem a hidrofílicidade do papel, conhecido por suas propriedades de estabilidade e resistência à degradação, também foi identificado o potencial de migração desses compostos para os alimentos (ALDANA et al., 2014). Diferentes compostos com baixas energias superficiais têm sido aplicados na forma de revestimento ou spray, como fibras de madeira lignocelulósicas com cargas minerais, quitosana, e poliuretano curável por ultravioleta funcionalizado com grupos acrilato (MUJTABA et al., 2022). Outras técnicas para aumentar a resistência à umidade do papel envolvem tratamentos químicos das fibras com organosilanos. Silanos e resinas de siloxano são altamente hidrofóbicos, com boa resistência na presença de umidade; além disso, esses materiais não apresentam perfil de toxicidade para humanos (MOHAMMADZADEH et al., 2020). Modificações químicas da celulose por organosilanos mostraram melhora nas propriedades físicas, mecânicas e térmicas com melhor morfologia interfacial da celulose, o que contribuiu para maior adesão do filme laminado (GADHAVE et al., 2021).

Compostos de organosilanos parecem ser um método promissor e futuro de hidrofobização de celulose, graças à sua natureza hidrofóbica e resistência à presença de umidade (MOHAMMADZADEH et al., 2020; PERDOCH et al., 2025). Estudos foram realizados aplicando compostos de silano em uma suspensão no material avaliado, para depois formar o filme (GÜRLER et al., 2021; MOHAMMADZADEH et al., 2020; PERDOCH et al., 2025;). No entanto, a aplicação direta de organosilanos em filmes de

papel é pouco explorada na literatura, podendo se citar o trabalho de Chen (2022), que aplicou uma solução contendo metiltrimetoxisilano em um filme de papel através de dispersão por spray. O presente trabalho tem como objetivo modificar a superfície do papel com revestimento de silano hidrofóbico e impermeabilizante para melhorar a adesão dos componentes, sem que haja comprometimento das propriedades mecânicas do filme, e comparar a biodegradação entre os filmes tratado e não tratado.

## 2. OBJETIVOS

### 2.1. OBJETIVO GERAL

Desenvolver uma embalagem sustentável à base de poli(ácido lático)/papel pelo processo de laminação para produção de embalagens multicamadas biodegradáveis avaliando métodos de impermeabilização de superfície.

### 2.2. OBJETIVOS ESPECÍFICOS

- Modificar a superfície do papel com revestimento hidrofóbico à base de organosilano visando melhorar a adesão dos componentes (papel e PLA);
- Avaliar o efeito da concentração de organosilanos e o pH da reação na modificação da superfície de papel;
- Avaliar a influência de diferentes concentrações de impermeabilizante na força de laminação da embalagem;
- Avaliar as propriedades físicas, mecânicas e de biodegradação do material produzido visando sua aplicação em embalagens flexíveis de alimentos com baixo teor de umidade.

### 3. REVISÃO BIBLIOGRÁFICA

#### 3.1. PROBLEMÁTICA DOS RESÍDUOS PLÁSTICOS

A descoberta, síntese e uso de polímeros sintéticos pela humanidade são avanços relativamente recentes em comparação com outros materiais. A baquelite, sintetizada em 1907, é considerada o primeiro polímero artificial criado pelo homem. Em 1933, com a descoberta da polimerização sob alta pressão ( $>1000$  atm e  $170^{\circ}\text{C}$ ) do etileno, foi sintetizado o polietileno. Somente na década de 1950, com a descoberta da polimerização em condições moderadas (30 a 40 atm e 70 a  $100^{\circ}\text{C}$ ) utilizando catalisadores, foi possível produzir o polietileno de alta densidade (HDPE) (FELDMAN, 2008). Em 1950, a produção global de plásticos era de apenas 2 milhões de toneladas anuais (RAFEY & SIDDIQUI, 2023). Em 2024, essa produção atingiu cerca de 430,9 milhões de toneladas (PLASTICS EUROPE, 2025).

Os principais plásticos produzidos globalmente incluem cloreto de polivinila (PVC), polietileno (PE), poli(tereftalato de etileno) (PET), polipropileno (PP), poliuretano (PU) e poliestireno (PS), sendo amplamente utilizados nas indústrias de embalagens, construção civil, automotiva, eletrônicos, agropecuária e têxtil (HUANG et al., 2022; PLASTICS EUROPE, 2025). Até 2022, aproximadamente 60% dos resíduos plásticos não estavam sendo reciclados, com o setor de embalagens liderando o consumo de plásticos e sendo a principal fonte de resíduos devido ao uso extensivo de itens descartáveis (HUANG et al., 2022). Dentro desse setor, apenas 2% dos materiais plásticos são reciclados globalmente, enquanto o restante é incinerado ou descartado em aterros sanitários, corpos hídricos e no meio ambiente (IBRAHIM et al., 2022).

Sacos plásticos de uso único, quando descartados de forma inadequada, podem levar décadas ou até centenas de anos para se degradar completamente (GUPTA et al., 2022). Seu destino final muitas vezes são corpos hídricos, onde causam transtornos tanto para os seres humanos, ao obstruir o escoamento das águas pluviais, quanto para os animais, que podem ingerir esses sacos por engano (RAFEY & SIDDIQUI, 2023; KABIR et al., 2023). Em aterros sanitários, a degradação do plástico ocorre devido a diversos fatores, como umidade, temperatura e atividade biológica (DU et al., 2020; RAFEY & SIDDIQUI, 2023;). O polietileno, por exemplo, degrada-se em aterros por meio de processos químicos, térmicos e biológicos, os quais podem ser acelerados com o pré-tratamento do polímero com luz e raios UV (RAFEY & SIDDIQUI, 2023).

No entanto, tanto em aterros sanitários quanto no ambiente externo, à medida que os plásticos se deterioram, eles se fragmentam em microplásticos (KABIR et al., 2023). Essas partículas representam uma ameaça significativa à vida marinha e podem ser ingeridas pelo ser humano através do consumo de água contaminada ou de pescados contaminados (DU et al., 2020). Em aterros, os microplásticos podem vazar juntamente com o percolado se a impermeabilização do local não for adequada, infiltrando-se nos lençóis freáticos e contaminando aquíferos (KABIR et al., 2023). Além disso, compostos químicos como antioxidantes, retardantes de chama, corantes e plastificantes, adicionados aos plásticos durante sua fabricação, são liberados em contato com a água, causando impactos adversos ao meio ambiente e à saúde humana (RAFEY & SIDDIQUI, 2023).

A reciclagem surge como uma alternativa importante para a destinação adequada de resíduos poliméricos, reduzindo a demanda por novas matérias-primas e aliviando a carga sobre os aterros sanitários (HUANG et al., 2022). A reciclagem de polímeros pode ser classificada em três tipos: mecânica, química e energética. A reciclagem mecânica envolve apenas transformações físicas e é um processo barato e amplamente utilizado; no entanto, enfrenta limitações, como a necessidade de limpeza dos resíduos antes da reciclagem e a degradação gradual das propriedades mecânicas do polímero após vários ciclos (SCHYNS & SHAVER, 2021). Em contraste, a reciclagem química, embora menos comum e mais cara, permite um número praticamente ilimitado de ciclos, pois os polímeros são decompostos em monômeros e reprocessados (CHANDA, 2021). Outra alternativa é a reutilização de plásticos, que não requer transformações e se caracteriza pela utilização do material para um fim diferente do original ou por um período prolongado (RAFEY & SIDDIQUI, 2023). Finalmente, a incineração é uma opção para a disposição de resíduos plásticos, que consome energia e pode gerar subprodutos prejudiciais, como dióxido de carbono, ácidos e metais pesados provenientes de aditivos (CHANDA, 2021). No entanto, em condições ideais, a incineração pode proporcionar aproveitamento energético (HUANG et al., 2022).

Diante do impacto ambiental gerado pelos resíduos plásticos, destaca-se o papel das embalagens como um dos principais responsáveis por esse quadro, o que será discutido a seguir.

### 3.2. EMBALAGENS

As embalagens desempenham um papel significativo e indispensável na sociedade moderna, sendo amplamente utilizadas em supermercados, produtos farmacêuticos, mercearias, restaurantes e outros setores (KOZIK, 2019). Elas são essenciais para a preservação dos produtos durante o manuseio, transporte e armazenamento, ajudando a prolongar sua vida útil, permitindo a expansão das redes de distribuição e garantindo a qualidade para o consumidor (MEHERISHI et al., 2019; KOZIK, 2019). Além disso, as embalagens servem para transmitir informações obrigatórias por lei, fornecer instruções sobre o produto e, ocasionalmente, para promover vendas promocionais (IBRAHIM et al., 2022).

As embalagens podem ser confeccionadas a partir de uma variedade de materiais, sendo a escolha do material crucial para a apresentação e preservação do produto (PAL et al., 2019). A proteção do alimento depende do tipo de produto, mas geralmente visa prevenir contaminação biológica, oxidação, alterações na umidade, degradação do aroma e danos físicos (PAL et al., 2019). Por exemplo, suplementos alimentares líquidos são especialmente suscetíveis à contaminação bacteriana, o que torna a embalagem crucial para prevenir essas complicações (VERMA et al., 2021). Além disso, é fundamental garantir que nenhum componente perigoso da embalagem entre em contato com os alimentos ou migre para eles, e que o sabor dos alimentos não seja comprometido (PAL et al., 2019).

Materiais poliméricos à base de petróleo são amplamente utilizados em embalagens, destacando-se polímeros como polietileno, polipropileno, poliestireno e poliéster (IBRAHIM et al., 2022; PAL et al., 2019). Esses polímeros são geralmente mais econômicos em comparação com materiais como vidro e metal, oferecendo vantagens com baixo custo, leveza, facilidade de processamento, excelente resistência química e uma ampla gama de propriedades físicas que variam conforme o tipo de polímero (VERMA et al., 2021). No entanto, sua utilização apresenta desvantagens significativas, incluindo a emissão de dióxido de carbono durante a produção e o descarte inadequado após o uso, o que contribui para o acúmulo desses materiais em aterros sanitários e corpos d'água (DU et al., 2020; KABIR et al., 2023).

Como alternativa aos polímeros convencionais e como uma opção para minimizar o problema do descarte inadequado, os polímeros biodegradáveis emergem como uma solução promissora, podendo ser de origem renovável ou não (ZHONG et

al., 2020). Muitas indústrias estão em busca de materiais sustentáveis e ecologicamente corretos, e, para atender a essa demanda, pesquisadores têm se dedicado a aprimorar as propriedades físicas e mecânicas desses materiais (ZHONG et al., 2020). Além disso, outra linha de pesquisa investiga o desenvolvimento de polímeros com alta proporção de aditivos, como polianidridos, para facilitar a reciclagem; no entanto, esses produtos geralmente apresentam difícil processabilidade, propriedades mecânicas e de barreira limitadas e um custo de produção mais elevado, fatores que são cruciais para a indústria (VERMA et al., 2021).

Outro material amplamente utilizado em embalagens é o papel e o papelão, comuns nas indústrias de embalagens alimentícias, farmacêuticas e nutracêuticas (VERMA et al., 2021). Esses materiais, derivados da celulose de origem vegetal, são biodegradáveis e oferecem vantagens em relação a polímeros, metais e vidros, como custo reduzido, leveza e sustentabilidade (MUJTABA et al., 2022). No entanto, apresentam limitações, como baixa resistência mecânica e alta suscetibilidade à umidade e produtos químicos (IBRAHIM et al., 2022). Para superar essas limitações, materiais com melhores propriedades de barreira, como plástico e alumínio, podem ser utilizados de forma combinada (ANUKIRUTHIKA et al., 2020; MUJTABA et al., 2022). Alternativamente, o papel pode passar por diversos tratamentos de superfície para aumentar sua resistência e funcionalidade, incluindo tratamento com sulfato (papel Kraft), ácido (papel Parchment), branqueamento e cera (papel Whiteboard), entre outros (VERMA et al., 2021; IBRAHIM et al., 2022).

Diante dessas alternativas, a busca por embalagens que conciliem funcionalidade e sustentabilidade tornou-se central, tema que será discutido na próxima seção.

### 3.3. EMBALAGENS SUSTENTÁVEIS

A sustentabilidade pode ser categorizada em três dimensões principais: o bem-estar humano, a economia e o meio ambiente, que servem como diretrizes para melhorar a qualidade de vida e a preservação do ecossistema (IBRAHIM et al., 2022). Quando aplicada à indústria de embalagens, a sustentabilidade geralmente se traduz na utilização de menos material virgem enquanto mantém as características físicas das embalagens tradicionais (KOZIK, 2019). Essa abordagem é influenciada por diversos

fatores, incluindo aspectos econômicos, ambientais, funcionais e estéticos (REICHERT et al., 2020). Dada a amplitude do conceito, instituições ao redor do mundo têm se empenhado em definir o que constitui uma embalagem sustentável, oferecendo diretrizes para as empresas que buscam adaptar suas práticas de produção (KOZIK, 2019).

Uma dessas instituições é a organização estadunidense Sustainable Packaging Coalition (SPC), que define uma embalagem sustentável como aquela que (GUSTAVO et al., 2018):

- É benéfica, segura e saudável para indivíduos e para a sociedade como um todo durante todo seu ciclo de vida;
- Atende aos critérios de mercado para eficiência e custos;
- É obtida, produzida, transportada e reciclada usando energia renovável;
- Otimiza o uso de materiais de origem virgem, renovável ou reciclada;
- É produzida usando tecnologias de produção mais limpas e melhores práticas;
- É efetivamente recuperada e usada em circuitos fechados biológicos e/ou industriais, ou seja, do berço ao berço.

De maneira semelhante, a Australian Sustainable Packaging Alliance considera que uma embalagem sustentável deve (KOZIK, 2019):

- Ser eficaz, agregando valor econômico e social ao produto;
- Ser eficiente, minimizando o uso de materiais e energia;
- Ser cíclica, otimizando a recuperação de materiais e minimizando sua degradação;
- Ser segura, não representando ameaça à vida e à saúde dos usuários nem aos ecossistemas.

Por sua vez, a European Organization for Packaging and Environment (EUROPEN) não utiliza explicitamente o termo “embalagem sustentável”, mas incentiva o design de embalagens que contribua para o desenvolvimento sustentável. Suas diretrizes são (KOZIK, 2019):

- Ser projetada holisticamente com o produto para otimizar o desempenho ambiental geral;
- Ser feita de materiais obtidos de forma responsável;
- Ser eficaz e segura durante todo o ciclo de vida;
- Atender aos critérios de mercado para eficiência e custos;

- Atender às expectativas e necessidades dos consumidores;
- Ser efetivamente reciclada ou recuperada após o uso.

Apesar das diferenças de abordagem entre essas organizações, é possível agrupar seus ideais em cinco pilares que definem uma embalagem sustentável:

- Minimiza o impacto das embalagens no meio ambiente;
- Atende às necessidades do usuário;
- Reduz custos e tempos de produção;
- Permite o desenvolvimento de novas ideias;
- Facilita sua reciclagem e recuperação da matéria-prima.

As embalagens disponíveis no mercado devem ser continuamente aprimoradas e ajustadas às mudanças nos requisitos do mercado, às demandas sociais e ambientais, bem como ao progresso da indústria (MUJTABA et al., 2022;). Esse processo dinâmico busca novas soluções e inovações. Tecnologias emergentes e inovações na área promovem um crescimento inteligente, enquanto o uso de recursos recuperados contribui para a sustentabilidade, e a consideração das necessidades sociais apoia um crescimento inclusivo (ANUKIRUTHIKA et al., 2020; GRZEBIENIARZ et al, 2023).

A indústria de embalagens está cada vez mais adotando práticas que promovem o desenvolvimento sustentável, alinhando sua produção aos novos princípios, buscando soluções que beneficiem o meio ambiente e a sociedade, ao mesmo tempo que geram lucro (GADHAVE et al, 2022; MUJTABA et al., 2022; GRZEBIENIARZ et al, 2023). Assim, os princípios de sustentabilidade não apenas refletem as mudanças em curso, mas também atuam como força motriz que impulsiona essas transformações (KOZIK, 2019).

A preferência do consumidor por produtos sustentáveis aumentou significativamente nos últimos anos, uma tendência evidente em todos os mercados mundiais (ISLAM et al., 2021). Várias corporações, incluindo McDonald's, Unilever, Nestlé, Kraft-Heinz, PepsiCo e Coca-Cola, definiram metas em planos de ação para melhorar a sustentabilidade de suas embalagens até 2025, incluindo maior reciclagem, redução do uso de material virgem, fornecimento sustentável, redução de peso e design para facilitar a recuperação (BOZ et al., 2020). Exemplos incluem a folha verde da Coca-Cola para simbolizar garrafas PET recicladas; a promoção de garrafas de vidro retornáveis; a categoria de alimentos para animais de estimação da Nestlé, Purina, que lançou com sucesso uma embalagem mais sustentável à base de polpa moldada (BOZ et

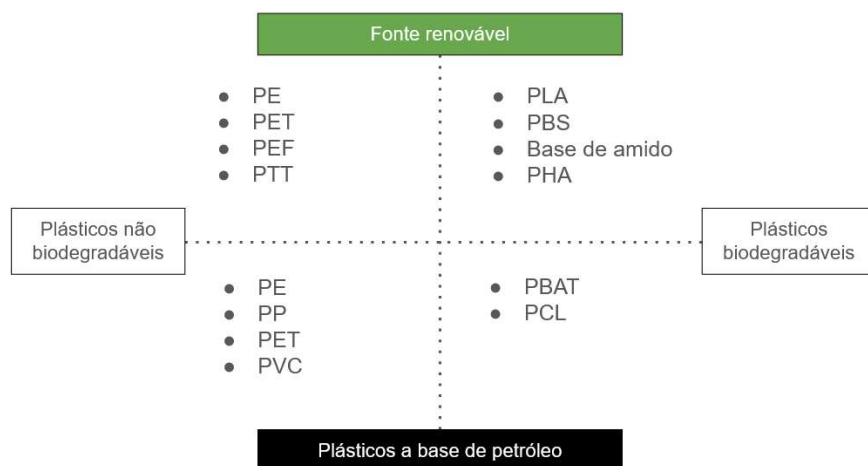
al., 2020). O Panagia Group migrou para uma embalagem ecológica feita de fibras compostáveis de base biológica, que, quando descartada em composteiras domésticas ou em aterros, se decompõe em 24 horas (JESTRATIJEVIC et al., 2022). Outra iniciativa relevante foi a recente concentração de detergentes para roupas, que resultou em embalagens menores, com menos plástico e menor consumo de energia no transporte. Além disso, duas alternativas foram exploradas para substituir o tradicional anel plástico usado para agrupar latas: uma cola para mantê-las unidas e um anel feito de material degradável (BOZ et al., 2020).

Entre as diversas alternativas sustentáveis, destacam-se os polímeros biodegradáveis, que serão introduzidos a seguir.

### 3.4. POLÍMEROS BIODEGRADÁVEIS

Polímeros biodegradáveis, segundo (EMBLEM & EMBLEM, 2012), são aqueles capazes de se decompor física, química, térmica ou biologicamente, em um processo que transforma a matéria original em água, dióxido de carbono, compostos inorgânicos ou biomassa (SHAIKH et al., 2021). Alguns autores, como a Sociedade Americana de Testes e Materiais (ASTM), especificam a necessidade da ação de microrganismos naturais, como bactérias, fungos e algas, nesse processo (ASTM D6400). Eles podem ter ou não origem biodegradável, como ilustrado na Figura 1 (IBRAHIM et al., 2022; ZHONG et al., 2020).

Figura 1: Diferentes tipos de polímeros



Fonte: Adaptado de IBRAHIM et al., 2022

O grande apelo dos polímeros biodegradáveis é seu uso em embalagens alimentícias convencionais, substituindo plásticos não-biodegradáveis para reduzir o impacto ambiental delas (ZHONG et al., 2020). Eles apresentam algumas limitações quando comparados com os polímeros tradicionais derivados do petróleo, principalmente em relação à propriedade mecânicas e de barreira (GUPTA et al, 2022; SHAIKH et al., 2021; REICHERT et al., 2020). Ainda assim, alguns polímeros biodegradáveis e de fonte renovável têm se destacado no mercado, com destaque para o poli(ácido láctico) e a celulose.

### **3.4.1. POLI(ÁCIDO LÁCTICO)**

O poli(ácido láctico) (PLA) é um poliéster alifático obtido pela polimerização por abertura de anel do monômero ácido láctico (SHAIKH et al., 2021). O ácido láctico é uma molécula quiral que se apresenta em dois enantiômeros: L-ácido láctico e D-ácido láctico, que se diferenciam pelo efeito na luz polarizada (LASPRILLA et al., 2012). Em 2019, mais de 90% do ácido láctico no mercado global era produzido por bactérias do ácido láctico, que sintetizam estereosseletivamente os monômeros através da fermentação de produtos de origem renovável, como milho, açúcar e outras matérias-primas (DJUKIĆ-VUKOVIĆ et al., 2019; SHAIKH et al., 2021; ABEDI et al., 2020). Outras formas de síntese incluem a hidrólise de lactonitrila, a degradação de açúcares catalisada por bases e a oxidação de propilenoglicol, resultando em uma mistura racêmica dos enantiômeros (DJUKIĆ-VUKOVIĆ et al., 2019).

A síntese do PLA exige um controle rigoroso das condições de reação, incluindo temperatura, pressão e pH, além do uso de catalisadores e longos períodos de polimerização, o que resulta em elevado consumo de energia (LI et al, 2023; XU et al, 2021). O PLA pode ser sintetizado a partir do ácido láctico por diversos processos de polimerização (Li et al, 2023; ZHONG et al., 2020). Entre os mais comuns estão a policondensação e a polimerização por abertura de anel, enquanto métodos como a desidratação azeotrópica e a polimerização enzimática também são utilizados, só com menos frequência (LASPRILLA et al., 2012). A reação de policondensação tende a produzir produtos de baixa massa molecular, ao passo que a polimerização por abertura de anel, especialmente na presença de catalisadores metálicos, resulta em polímeros de alta massa molecular (ICART et al., 2018).

O PLA apresenta propriedades variadas dependendo de sua composição estereoquímica, podendo existir como dois isômeros distintos - poli(ácido L-lático) (PLLA) e poli(ácido D-lático) (PDLA) - ou como copolímero de ambos, conhecido como poli(ácido D,L-lático) (PDLLA) (SUNDAR et al., 2021). Quando puros, o PLLA e o PDLA são biopolímeros semicristalinos, com grau de cristalinidade de até 40%; no entanto, ao alterar a proporção dos monômeros, podem se tornar amorfos (XU et al, 2021; HE et al, 2024). A temperatura de transição vítrea do PLA comercial é de 63°C (SHAIKH et al., 2021). Enquanto o PDLA e o PLLA puros têm um ponto de fusão de 207°C, a mistura dos dois isômeros em proporções iguais pode elevar esse ponto de fusão para até 230°C (LI et al., 2020).

O grau de cristalinidade do PLA impacta significativamente sua degradação: polímeros altamente cristalinos podem levar vários meses para se degradar, enquanto polímeros com baixa cristalinidade podem ser decompostos em poucas semanas (LI et al., 2020). O principal mecanismo proposto para a degradação do PLA é a hidrólise em cadeia catalisada por prótons (CODARI et al., 2012; XU et al, 2021). Durante a degradação hidrolítica, a clivagem da cadeia ocorre preferencialmente nas regiões amorfas, resultando em aumento da cristalinidade do polímero (ELSAWY et al., 2017; XU et al, 2021; HE et al, 2024). A taxa de degradação hidrolítica é fortemente influenciada pelo pH, que afeta tanto o mecanismo quanto a cinética da degradação, além de outros fatores como temperatura, massa molecular e estereoconfiguração da cadeia (CODARI et al., 2012; ELSAWY et al., 2017; LI et al, 2023).

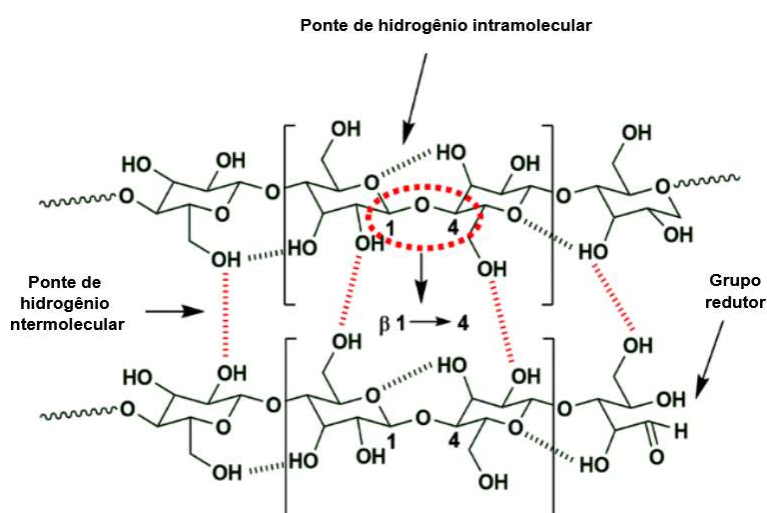
Dessa forma, o PLA se apresenta como um material de grande potencial para o desenvolvimento de embalagens sustentáveis, conciliando a biodegradabilidade e a possibilidade de origem renovável, embora ainda enfrente desafios quanto ao custo de produção e ao desempenho mecânico em comparação com os polímeros tradicionais.

### **3.4.2. PAPEL (CELULOSE)**

A celulose é o biopolímero mais abundante na natureza e é utilizada em embalagens alimentícias devido à sua renovabilidade, biodegradabilidade, biocompatibilidade e custo acessível (HUAG & WANG, 2022; ASIM et al, 2022; JIANG et al., 2022). Estruturalmente, é um polissacarídeo linear composto por unidades repetidas de  $\beta$ -D-glucopiranosose unidas por ligações  $\beta$ -1,4-glicosídicas, formando longas

cadeias capazes de estabelecer extensas redes de ligações de hidrogênio (LIU et al, 2023). Essas interações promovem a formação de regiões cristalinas e amorfas, conferindo à celulose alta resistência mecânica e estabilidade térmica (LIU et al, 2023). No entanto, os numerosos grupos hidroxila presentes em sua estrutura conferem caráter hidrofílico ao material, o que compromete sua eficiência como barreira à umidade e vapor de água. No entanto, a natureza hidrofílica da celulose - causada pelos grupos hidroxila (OH) presentes no monômero da celulose (Figura 2) e pela porosidade da sua estrutura - limita suas propriedades de barreira ao vapor de água e reduz a resistência mecânica na presença de umidade (ALIAS et al, 2022; LIU et al, 2023; LI et al, 2022). Essas características intrínsecas restringem a aplicação de embalagens de papel, comprometendo a vida útil dos alimentos (JIANG et al., 2022).

Figura 2: Molécula de celulose



Fonte: GADHAVE et al., 2021.

Na indústria, os papéis celulósicos encontram aplicações em embalagens de bebidas (copos, tigelas), alimentos congelados, produtos lácteos, pratos e bandejas descartáveis, além de dispositivos eletrônicos e embalagens médicas (LIU et al, 2023). Devido à sua natureza porosa e absorvente, filmes e papéis celulósicos convencionais apresentam baixa resistência em ambientes úmidos e permeabilidade elevada ao vapor, limitando sua aplicação direta como barreira primária em embalagens alimentícias (LI et al, 2022; LIU et al, 2023). Para garantir o desempenho funcional, é comum a laminação ou o revestimento desses substratos com polímeros hidrofóbicos (ALIAS et al, 2022; CHEN et al., 2022). Entretanto, há um movimento crescente para substituir polímeros sintéticos como PE, PP e PET por alternativas biodegradáveis ou por

estruturas multicamadas com materiais naturais, que conferem desempenho similar com menor impacto ambiental (CETIN et al., 2022; LIU et al, 2023; ASIM et al, 2022).

Diversas abordagens têm sido empregadas para modificar quimicamente ou fisicamente a superfície da celulose a fim de reduzir ou até substituir o uso de polímeros sintéticos. Dentre elas, destacam-se os tratamentos químicos com fluorocarbonetos e fluoropolímeros, que promovem o efeito superhidrofóbico e reduzem significativamente a permeabilidade à umidade (ASIM et al, 2022). Embora compostos perfluorados sejam conhecidos por suas propriedades de estabilidade e resistência à degradação, também foi identificado o potencial de migração desses compostos para os alimentos (ALDANA et al., 2014). Outro destaque são os silanos e resinas de siloxano que, por sua vez, são altamente hidrofóbicos, com boa resistência na presença de umidade; além disso, esses materiais não apresentam perfil de toxicidade para humanos (MOHAMMADZADEH et al., 2020). Modificações químicas da celulose por silanos mostraram aumento nas propriedades físicas, mecânicas e térmicas com melhor morfologia interfacial da celulose, o que contribuiu para maior adesão (GADHAVE et al., 2022).

### 3.5. SILANOS

Silanos são compostos organossilícicos com a fórmula geral  $R-Si-(OR')_3$ , amplamente utilizados como agentes de acoplamento para modificar superfícies ricas em grupos hidroxilas, como fibras de celulose e materiais lignocelulósicos (SAEDI et al., 2021). A estrutura típica dos silanos inclui um grupo orgânico funcional, que confere propriedades específicas, como hidrofobicidade ou reatividade com polímeros, e três grupos alcoxi ou cloro, responsáveis pela ancoragem à superfície através de reações de hidrólise e condensação (NEVES et al., 2020). Durante o processo de silanização, os grupos alcoxi são hidrolisados em silanóis, que posteriormente se condensam com grupos hidroxilas da superfície celulósica, formando pontes siloxânicas (Si-O-Si) estáveis e ligações covalentes (Si-O-C) (NEVES et al., 2020).

A aplicação de silanos em materiais celulósicos ocorre por diferentes técnicas, como imersão, spray-coating, deposição por plasma frio ou incorporação via filmes poliméricos, sendo selecionadas conforme a natureza do substrato e os objetivos da modificação (MOHAMMADZADEH et al., 2020; CHEN et al., 2022). Por exemplo, a aplicação por imersão de silanos de cadeia longa, como o octadeciltriclorosilano (OTS),

em conjunto com nanopartículas de sílica ( $\text{SiO}_2$ ), permite a criação de superfícies superhidrofóbicas com ângulos de contato superiores a  $150^\circ$  e elevada resistência ao desgaste, acidez e alcalinidade (NING et al., 2024). Já a aplicação de hexadeciltrimetoxisilano (HDTMS) ou metiltrimetoxisilano (MTMS) em filmes de celulose regenerada através da técnica Mayer Bar de coating aumenta o ângulo de contato da água de  $35,5^\circ$  para até  $118^\circ$ , reduzindo drasticamente a absorção de umidade e a permeabilidade a gases (DU et al., 2025). Jiang et al. (2022) aplicou nanosilica hidrofóbica por spray em um filme de papel com coating de PLA; enquanto Ponsoni et al. (2025) produziu criogéis de celulose microfibrilada com organosilanos através de deposição de vapor, utilizando, dentre os organosilanos, o TEVS.

Os resultados dessas modificações indicam ganhos significativos na resistência à umidade, umidade cíclica e propriedades de barreira (MOHAMMADZADEH et al., 2020; DU et al., 2025). Em estudos com papel funcionalizado com diferentes tipos de alquilsilanos, observou-se redução acentuada da tensão superficial, com valores caindo de cerca de  $29,3 \text{ mN/m}$  para praticamente  $0 \text{ mN/m}$ , além de aumento na resistência contra óleos e líquidos aquosos (MOHAMMADZADEH et al., 2020). Da mesma forma, compósitos celulósicos tratados com silanos apresentaram notável redução nos valores de WVTR (Water Vapor Transmission Rate), além de aumento nas propriedades mecânicas como resistência à tração e ao estouro (DU et al., 2025; CHEN et al., 2022).

Além dos efeitos técnicos, os silanos são considerados alternativas viáveis do ponto de vista ambiental e econômico. Compostos como o 3-aminopropiltriethoxisilano (APTES) e o 3-(aminopropil)trimetoxisilano (3APTMS) não apresentam perfil tóxico significativo e podem ser utilizados em combinação com polímeros biodegradáveis como o amido ou o PLA (ácido polilático), formando filmes hidrofóbicos com desempenho satisfatório para embalagens alimentícias (GÜRLER et al., 2021; NOWAK et al., 2022). O uso de silanos, portanto, representa uma estratégia promissora para a funcionalização de materiais celulósicos com foco em resistência à umidade, durabilidade e sustentabilidade, podendo atender tanto às exigências técnicas quanto às crescentes demandas por embalagens ecológicas (ASIM et al., 2022; SAEDI et al., 2021).

## 4. MATERIAIS E MÉTODOS

### 4.1. MATERIAIS

O filme de celulose utilizado é papel branco de grade comercial fornecido pela empresa Canson Inc, com gramatura nominal de 140 g/m<sup>2</sup> e espessura de 0,200 mm.

Os polímeros a base de poli(ácido lático), grade FC 45140 e FC 60025, foram fornecidos pela empresa Earth Renewable Technologies. Segundo o fabricante, o material FC 45140 é uma blenda de poli(ácido lático)/amido com índice de fluidez de 2,0 g/10 min (190°C, 2,16 kg) e densidade 1,25 g/cm<sup>3</sup>; enquanto o material FC 60025 é polímero PLA puro com, de acordo com o fabricante, índice de fluidez de 1 - 3 g/10 min (190°C; 2,16 kg) e densidade 1,25 g/cm<sup>3</sup>.

O adesivo utilizado no processo de laminação foi à base de poli(vinil álcool) – PVOH, e foi fornecido pela empresa Unnicol, no grade 2400.

O organosilano TEVS (*trietoxissilano-etileno*, 97%) foi adquirido da empresa Sigma-Aldrich (Merk).

### 4.2. MÉTODOS

#### 4.2.1. Extrusão Filme PLA

Antes do processo de extrusão, a blenda de PLA foi secada em estufa com circulação de ar a 60 °C por quatro horas. A blenda de PLA foi extrusada em uma extrusora Carnevalli CHD 70 de uma camada, com rosca de 70 mm de diâmetro. O perfil de temperaturas da extrusora foi de: 150 °C na zona de alimentação; 165 °C, 175 °C e 190 °C na zona de compressão; e 195 °C na zona de dosagem. A composição do filme será de 80% do grade FC 45140 e 20% do grade FC 60025, como sugerido pelo fabricante. O filme obtido tinha espessura nominal de 31 µm e gramatura nominal de 37,8 g/m<sup>2</sup>. Após extrusado, o filme foi bobinado e devidamente acondicionado em local arejado, protegido de sol e a temperatura ambiente.

#### **4.2.2. Tratamento de Superfície do Papel**

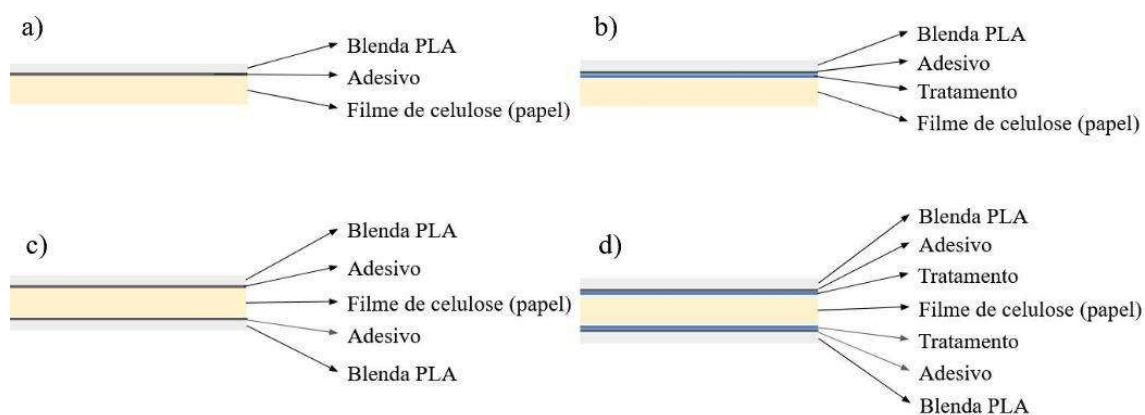
O agente modificante TEVS foi hidrolisado em método baseado no trabalho de Khanjanzadeha et al (2017). Foram realizadas quatro soluções de TEVS solubilizado, variando o pH em dois valores, 4 e 7 (pH neutro), e a concentração do silano em 1,0% e 2,5% em peso. Para a acidificação da água deionizada, foi utilizado ácido cítrico. As soluções foram agitadas por 30 minutos em temperatura ambiente para homogeneizar e hidrólise do organosilano e, depois, deixada descansar por 3h. No final deste período, uma fina camada da solução foi aplicada com o auxílio de um rolo de espuma até cobrir a superfície do papel, e deixada secar por 24 horas.

#### **4.2.3. Produção do Filme Multicamada por Laminação do Filme de PLA com Papel**

A aplicação do adesivo à base PVOH foi feita no filme de papel com o auxílio de um rolo de espuma, recomendado para uso em produtos à base de PVOH pelo fabricante. O processo ocorreu em temperatura ambiente (23 °C). A laminação da blenda de PLA com o filme de celulose foi feita em uma laminadora de bancada da marca Centro Máquinas, com distância entre rolos ajustável, que permitiu uniformizar a quantidade de adesivo utilizado ao remover o excedente. Após a laminação, o laminado foi acondicionado em local arejado e a temperatura ambiente para a cura do adesivo por 72 horas.

Foram produzidos filmes com uma e duas laminações. O filme com uma laminação possuía apenas uma camada da blenda de PLA e uma de filme de celulose, e foi feito sem (1 Lam ST) e com (1 Lam CT) tratamento de superfície. O filme de duas laminações consistia em uma camada de filme de celulose entre duas de blenda de PLA, sendo feito com filme de celulose sem tratamento (2 Lam ST) e com tratamento em ambos os lados (2 Lam CT). Um esquema dos filmes laminados pode ser encontrado na Figura 3.

Figura 3: Esquema das camadas nos filmes laminados para a) 1 Lam ST; b) 1 Lam CT; c) 2 Lam ST; e d) 2 Lam CT



Fonte: A Autora, 2025

#### 4.2.4. Avaliação sa Degradação em Solo Simulado

O solo destinado ao ensaio de biodegradação foi preparado de acordo com a norma ASTM 12 G-160-03 (*Standard Practice for Evaluating Microbial Susceptibility of Nonmetallic Materials*). Foram utilizadas partes iguais de solo fértil com baixo teor de argila, areia de praia seca peneirada com peneira 40 mesh, e esterco de cavalo seco ao sol por dois dias. A mistura foi envelhecida por três meses e re-examinada duas vezes por semana.

O pH da mistura foi mantido entre 6,5 e 7,0. O pH do solo foi medido dispersando 1 parte em peso de solo em 20 partes de água, agitando brevemente e deixando a mistura repousar por 1 hora. Se necessário, a norma sugere para correção do solo o uso de calcário moído para aumentar o pH e enxofre flor para diminuí-lo. Esta etapa não foi necessária neste desenvolvimento. A umidade do solo foi mantida entre 20 e 30%. A medição da umidade foi acompanhada periodicamente uma vez por semana, se baseando no peso perdido durante a secagem de uma amostra do solo.

Após os três meses, foi realizado um controle de viabilidade que consiste em enterrar um pano de algodão (400 a 475 g/m<sup>2</sup>) e medir a resistência à tração após cinco dias de exposição ao solo simulado. O solo foi considerado pronto para o ensaio quando a amostra de pano de algodão apresentou perda superior a 50% da sua resistência à tração, que foi determinado através de ensaios de tração de acordo com a ASTM D 882.

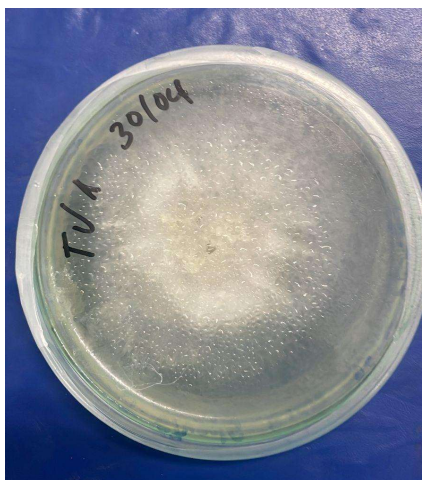
O ensaio foi realizado em quintuplicada para os seguintes filmes: blenda de PLA, filme de celulose sem tratamento, 1 laminação com tratamento, e 2 laminações com tratamento. As amostras dos filmes foram cortadas com tamanho de 25 mm x 100 mm, que foram pesadas antes de inseridas no sistema com a terra preparada. Foram feitos 4 tempos de amostragem (0, 30, 60 e 90 dias de exposição) para cada amostra prevista. Após retiradas, as amostras foram limpas e pesadas para se verificar a perda de massa, e então direcionadas aos ensaios de tração e microscopia.

#### 4.2.5. Avaliação da Degradação com *Trichoderma Viride*

A biodegradação de poli(ácido láctico) tem sido amplamente estudada, de modo a compreender melhor os mecanismos envolvidos e as cepas degradadoras (XU et al, 2021). O poli(ácido láctico) pode ser decomposto por microrganismos presentes no ambiente natural, incluindo actinomicetos, bactérias e fungos (XU et al, 2021; QI et al, 2017). No entanto, apenas um número limitado de cepas fúngicas foi relatado como capaz de assimilar ácido DL-láctico em culturas líquidas (QI et al, 2017). A degradação fúngica do PLLA já foi investigada utilizando *Tritirachium album* (ATCC 22563) em condições de cultura líquida (JARERAT & TOKIWA, 2001), e a biodegradação de poli(ácido láctico) por *Trichoderma viride* foi avaliada em meio líquido sob condições laboratoriais controladas (LIPSAA et al, 2016). Espécies de *Trichoderma* são classificadas como fungos de podridão branca, ocorrendo em praticamente todos os solos, onde formam colônias brancas com manchas esverdeadas devido à formação de conídios, frequentemente dispostos em anéis concêntricos, como pode ser visto na Figura 4 (LIPSAA et al, 2016). Esses fungos possuem atividades lignolíticas, hemicelulolíticas e celulolíticas, sendo que a cepa *T. viride* tem sido particularmente estudada pela sua produção de celulase (LIPSAA et al, 2016).

O ensaio de degradação deste trabalho foi feito com base nos estudos de Lipsaa et al (2016). *T. viride* foi cultivado em meio Sabouraud sólido por 7 dias a 28°C (Figura 4). A degradação decorreu em frascos de Erlenmeyer contendo meio Sabouraud modificado nas seguintes proporções: 100mL de água destilada, 1,0 g de peptona e 4,0 g de farelo de trigo, ajustando o pH para entre 5,6 a 5,8. Os frascos então foram esterilizados em autoclave a 121°C por cerca de 30 minutos.

Figura 4: *Trichoderma viride* (cultura) após 7 dias de cultivo em meio Sabouraud sólido



Fonte: A Autora, 2025

Após o resfriamento, foram adicionados o substrato (filme de blenda de PLA, filme de celulose sem tratamento, e filme de 1 laminação) previamente esterilizado por UV em triplicata, e o inóculo contendo o *T. viride*. Discos de 0,8 cm de diâmetro contendo o micélio ativo foram utilizados como inóculo para o ensaio de biodegradação. Os frascos foram incubados a 28°C durante 28 dias com agitações periódicas manuais. A cada 7 dias foi realizada inspeção visual, registro fotográfico e pesagem das amostras para avaliar a perda de massa.

### 4.3. CARACTERIZAÇÕES

#### 4.3.1. Espectroscopia no Infravermelho por Transformada de Fourier (FTIR)

A espectroscopia no infravermelho por transformada de Fourier (FTIR) foi feita utilizando um equipamento Tensor II da marca Bruker com comprimentos de onda na faixa de 4000 a 400  $\text{cm}^{-1}$  em temperatura ambiente, utilizando a técnica de ATR.

#### 4.3.2. Microscopia Eletrônica de Varredura - MEV

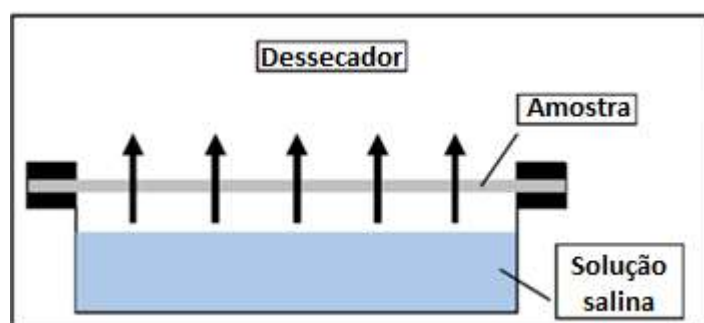
Foram realizadas avaliações morfológicas do filme laminado através de microscopia eletrônica de varredura. As análises foram realizadas no Microscópio

Eletrônico de Varredura EVO MA 10 da marca ZEISS. As amostras foram revestidas com ouro para melhor condutividade elétrica do material.

#### 4.3.3. Análise da Permeabilidade a Vapor de Água

A análise de permeabilidade ao vapor de água foi realizada de acordo com a ASTM E96/E96M (*Standard Test Methods for Water Vapor Transmission of Materials*), conforme o esquema na Figura 5. As amostras foram preparadas no aparato de teste conforme o esquema abaixo, com solução salina (saturada de cloreto de sódio) dentro do aparato a fim de se conhecer a pressão de vapor dentro do dessecador. O ensaio foi feito em triplicata das seguintes amostras: blenda de PLA, filme de celulose sem tratamento, filme de celulose com tratamento, 1 laminação sem tratamento, 1 laminação com tratamento e duas laminações com tratamento. As medidas da massa da amostra foram coletadas no tempo de 0h, 2h, 4h, 6h, 8h, 24h e 48h.

Figura 5: Esquema de aparato para o ensaio de permeabilidade



Fonte: Adaptado de CHOU et al., 2021

A taxa transmissão de vapor de água (WVTR - *water vapor transmission rate*) é dada de acordo com a Equação 1:

$$WVTR = (\Delta G / t) * (1 / A) \quad (1)$$

Onde:

WVTR: taxa transmissão de vapor de água (kg/s\*m<sup>2</sup>)

G: massa (kg)

t: tempo (s)

A: área de teste (m<sup>2</sup>)

Enquanto a permeabilidade ao vapor de água (WVP - *water vapor permeability*) é dada de acordo com a Equação 2:

$$WVP = \frac{WVTR * d}{S * (R1 - R2)} \quad (2)$$

Onde:

d: espessura da amostra (m)

S: saturação de pressão de vapor na temperatura do ensaio (Pa)

R1: umidade relativa dentro da câmara (100%)

R2: umidade relativa no dessecador (30%)

#### 4.3.4. Planejamento Experimental para os Ensaio de Tração e Força de Laminação

O planejamento experimental contemplou cinco configurações, correspondentes a um planejamento fatorial completo  $2^2$ , no qual foram avaliados os efeitos da concentração de TEVS (1,0 e 2,5% em massa) e do pH da solução (4 e 7), conforme apresentado na Tabela 1. Além dos pontos fatoriais, foi incluído um ponto central (TEVS = 1,75% e pH = 5,5), com o objetivo de estimar o erro puro e verificar a presença de curvatura no modelo estatístico.

Tabela 1: Configurações do ensaio de ponto central

Variação	Nº amostras	TEVS (% peso)	pH
A	5	1,0	4
B	5	1,0	7
C	5	2,5	4
D	5	2,5	7
E	5	1,75	5,5

Fonte: A Autora, 2025

Essa configuração experimental permitiu avaliar a influência simultânea dos fatores sobre as propriedades mecânicas do material, especificamente a força de laminação, a tensão máxima e o módulo de elasticidade. Os ensaios foram feitos em quintuplicada para cada condição experimental.

Os dados obtidos foram submetidos à análise de variância (ANOVA) para verificar a significância estatística dos efeitos dos fatores e, quando pertinente, as

médias foram comparadas pelo teste post hoc de Tukey, considerando nível de significância de 5% ( $p \leq 0,05$ ).

#### **4.3.5. Ensaio de Tração**

O ensaio de tração do produto laminado foi realizado de acordo com a ASTM D 882 (*Standard Test Method for Tensile Properties of Thin Plastic Sheeting*), em um equipamento universal de ensaios mecânicos (EMIC) DL-10000. Os corpos de prova do produto laminado foram cortados nas dimensões 25 mm x 100 mm e tiveram sua espessura averiguada. A separação inicial das garras foi de 50 mm, e a velocidade do probe foi de 50 mm/min. Da análise de resistência à tração foram obtidos os valores de tensão máxima, deformação e módulo elástico até o momento da ruptura.

#### **4.3.6. Ensaio de Força de Laminação**

O ensaio de força de laminação para o produto laminado foi realizado de acordo com a ASTM D 1876 (*Standard Test Method for Peel Resistance of Adhesives (T-Peel Test)*), em um equipamento EMIC DL 10000. Amostras do produto laminado foram cortadas nas dimensões 25 mm x 305 mm, laminadas apenas em aproximadamente 229 mm. A separação inicial das garras foi de 50 mm, e a velocidade do probe foi de 50 mm/min. A força de laminação é dada pela força máxima dividida pela largura da amostra.

#### **4.3.7. Ângulo de Contato**

A caracterização da hidrofobicidade dos filmes produzidos foi realizada por ângulo de contato, em medidas realizadas pelo contato da água com o material. Uma gota de água destilada de 50  $\mu\text{L}$ , com auxílio de um pipetador de precisão, foi depositada sobre a superfície dos filmes, a uma temperatura de  $25 \pm 1$  °C e umidade relativa de  $45 \pm 5\%$ . Foram realizadas 10 medições para cada amostra. A imagem da gota foi capturada por uma câmera digital de autofoco Panasonic, modelo DMC FZ40, e analisada pelo software SurfTens que ajusta o perfil da gota e calcula o ângulo de contato.

#### **4.3.8. Análise Termogravimétrica – TGA**

As análises termogravimétricas foram realizadas para verificar a estabilidade térmica dos produtos laminados. As análises foram realizadas no equipamento Shimadzu. As amostras foram aquecidas de 25°C a 1.000°C, com uma taxa de aquecimento de 10°C/min. As amostras foram caracterizadas em atmosfera de nitrogênio e ar sintético.

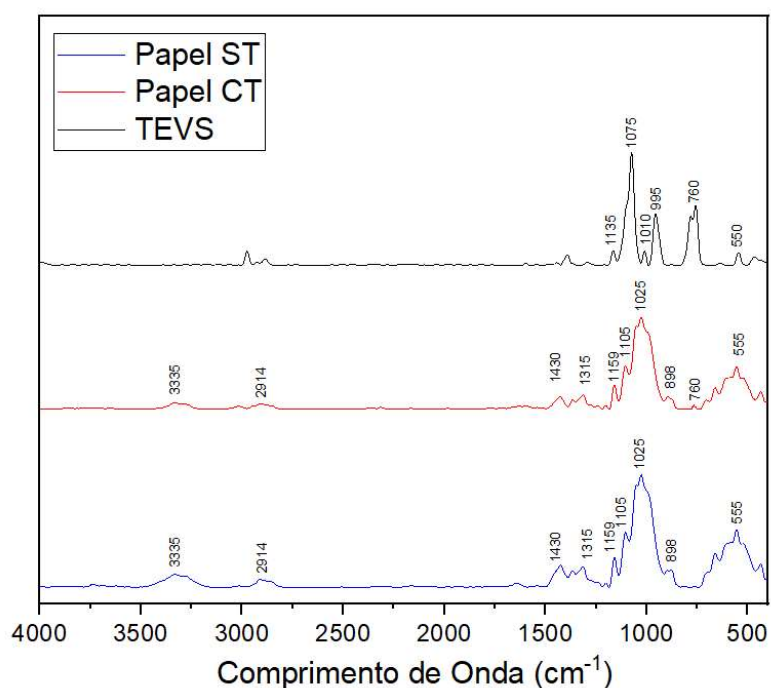
## 5. RESULTADOS E DISCUSSÕES

### 5.1. PROPRIEDADES DE SUPERFÍCIE DO PAPEL

#### 5.1.1. FTIR

A Figura 6 apresenta os espectros de FTIR das amostras de filme de celulose sem e com tratamento, Papel ST e Papel CT respectivamente, e para o composto de TEVS. Ambas as amostras apresentaram bandas características da celulose, como entre os comprimentos de onda  $3300-3400\text{ cm}^{-1}$ , observa-se o estiramento das ligações O-H presentes entre as fibras (XIAO et al., 2015). Já na banda em torno de  $2900\text{ cm}^{-1}$ , ocorre a detecção do estiramento das ligações C-H de grupos  $\text{CH}_2\text{-CH}_3$  (LEE et al., 2014; POPESCU et al., 2009).

Figura 6: FTIR das amostras Papel ST e Papel CT, e para o TEVS



Fonte: A Autora, 2025

Em sequência, podem ser observado da banda em  $1430\text{ cm}^{-1}$ , que é associado à deformação de  $-\text{CH}_2$  e  $\text{O-C-H}$ , e sua intensidade tende a ser alterada em função da presença de agentes silanos, devido à redução da disponibilidade de grupos  $-\text{OH}$  que reagem com grupos silanóis (KHANJANZADEH et al., 2018). O estiramento das ligações C-O e O-H dos polissacarídeos da celulose pode ser notado em

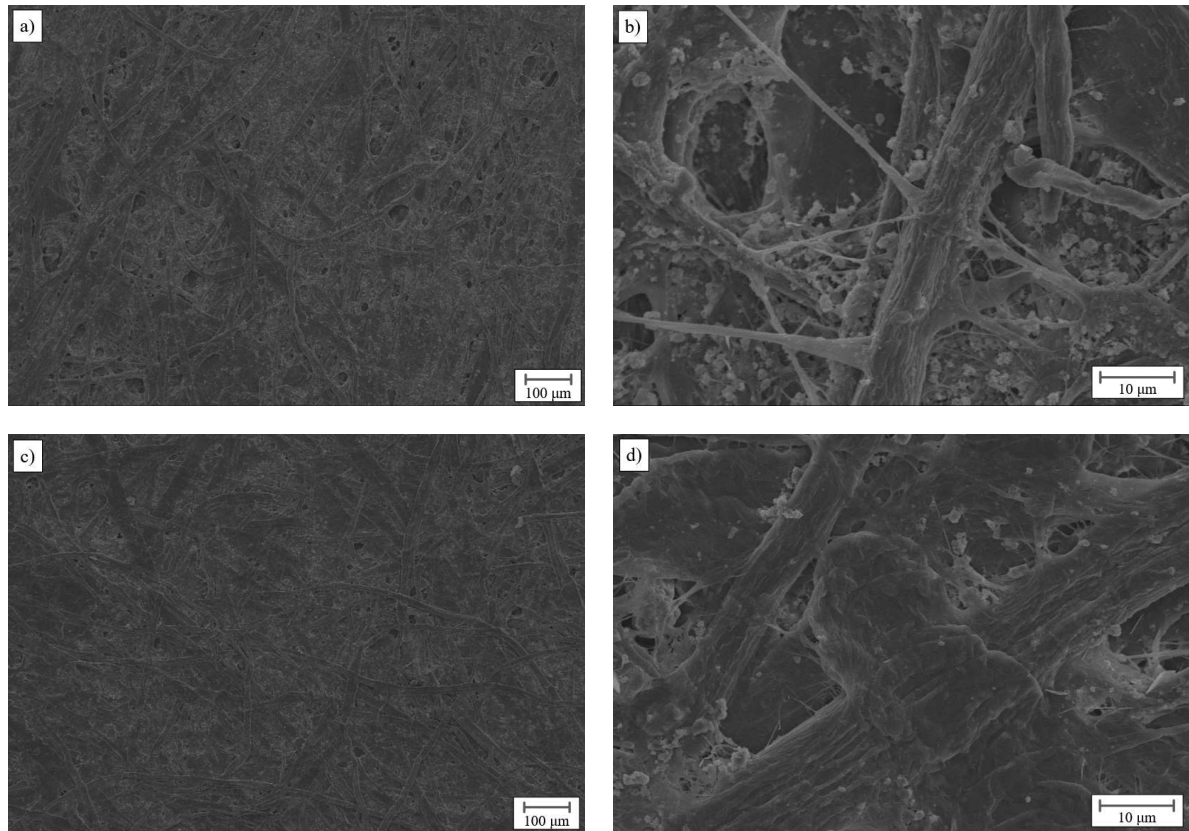
aproximadamente aproximadamente  $1025\text{ cm}^{-1}$  (KHANJANZADEH et al., 2018; NEVES et al., 2020).

Em relação ao tratamento com organosilano, a faixa correspondente aos agentes silanos possui vibrações Si-O-C próximas a  $1135\text{ cm}^{-1}$  e, para o TEVS em específico, em  $995\text{ cm}^{-1}$  ocorre o pico correspondente ao grupo vinil (DHALI et al., 2022). No entanto, ambas as atribuições são difíceis de observar devido à sobreposição com as bandas C-O-C da celulose entre  $1198\text{ cm}^{-1}$  e  $1102\text{ cm}^{-1}$  e do estiramento dos polissacarídeos em  $1025\text{ cm}^{-1}$  respectivamente (JING et al, 2022; PONSONI et al., 2025). Da mesma forma, as vibrações de Si-O ( $1000\text{-}1130\text{ cm}^{-1}$ ) acabam sobrepostas por picos característicos da celulose nesta mesma região (DU et al., 2025). Em  $760\text{ cm}^{-1}$ , observa-se um sinal fraco que pode ser atribuído ao estiramento simétrico da banda de Si-C (GWON et al, 2010).

### 5.1.2. MEV

A caracterização morfológica das amostras foi realizada por meio de Microscopia Eletrônica de Varredura (MEV), possibilitando a observação da superfície dos materiais analisados. A Figura 7 apresenta as micrografias da superfície dos filmes de Papel ST e Papel CT. É possível observar que há pouca variação entre as amostras, porém a amostra silanizada apresenta uma superfície mais uniforme (menor presença de sujidades) devido ao tratamento realizado.

Figura 7: Micrografias obtidas por MEV das amostras de a) e b) Papel ST e c) e d) Papel CT em diferentes resoluções















Fonte: A Autora, 2025

### 5.1.3. ÂNGULO DE CONTATO

A Tabela 2 apresenta as imagens fotográficas e valores mensurados para ângulo de contato das amostras de Papel ST e Papel CT. O ensaio de molhabilidade por ângulo de contato demonstrou que o tratamento de superfície com o TEVS aumentou a hidrofobicidade das amostras. De acordo com a definição apresentada por Carneiro et al (2018), a hidrofobicidade é dada quando o ângulo de contato de uma amostra permanece acima de  $90^\circ$  por um período de pelo menos 5 minutos. Como visto na Tabela 2, o ângulo das amostras de papel tratado mantiveram ângulo de contato superior a  $90^\circ$  pelo tempo do ensaio.

Tabela 2: Resultados ensaio ângulo de contato

Amostra	0 min	Ângulo em 0 min	5 min	Ângulo em 5min
Papel ST		75,1 +/- 1,29		72,4 +/- 1,31
Papel CT pH 4 - 1,0%		83,1 +/- 1,01		80,7 +/- 0,46
Papel CT pH 4 - 2,5%		100,2 +/- 0,81		97,0 +/- 0,67
Papel CT pH 7 - 1,0%		75,3 +/- 1,50		73,8 +/- 1,66
Papel CT pH 7 - 2,5%		81,1 +/- 0,61		79,1 +/- 0,80
Papel CT pH 5,5 - 1,75%		88,4 +/- 1,06		85,5 +/- 1,31

Fonte: A Autora, 2025

A superfície do Papel ST apresentou um ângulo de  $75,1^\circ$ , que reduziu para  $72,4^\circ$  após o tempo de 5 minutos. Este ângulo é elevado, considerando que celulose é hidrofílica, porém a superfície áspera do filme aumenta a área de aprisionamento de ar e, assim, a torna menos hidrofóbica (JIANG et al., 2022). Das amostras de Papel CT, exceto a amostra [pH 7 - 1,0%], as demais se tornaram mais hidrofóbicas. Entretanto, apenas a amostra [pH 4 - 2,5%] atingiu um ângulo superior a  $90^\circ$ ,  $100,2^\circ$  no tempo zero e  $97,0^\circ$  após cinco minutos, o que o caracterizaria como um material hidrofóbico. Resultados semelhantes foram encontrados por Jiang et al. (2022) e por Ponsoni et al. (2025).

A modificação da superfície do filme de celulose com silano promove um aumento da sua hidrofobicidade devido à natureza bifuncional do silano, que apresenta grupos reativos capazes de interagir com a celulose e um grupo orgânico responsável por conferir caráter hidrofóbico ao material (SAEDI et al., 2021). Em solução ácida, o silano sofre hidrólise de seus grupos alcóxi, formando silanóis que podem se adsorver à superfície celulósica por ligações de hidrogênio com as hidroxilas da celulose (NEVES et al., 2020). Em seguida, ocorre a condensação química, levando à formação de pontes siloxano (Si-O-Si) e à ligação covalente do silano à superfície das fibras por ligações Si-O-C (NEVES et al., 2020; NOWAK et al., 2022).

Durante esse processo, o grupo funcional orgânico do silano, tipicamente uma cadeia longa ou um substituinte apolar, permanece exposto na superfície, reduzindo a energia superficial do material e, por consequência, sua afinidade por moléculas de água (SAEDI et al., 2021). As ligações covalentes nessa estrutura híbrida são permanentes e dificultam a penetração de água no material celulósico (NOWAK et al., 2022).

## 5.2. PROPRIEDADES DOS FILMES MULTICAMADAS

### 5.2.1. PROPRIEDADES FÍSICAS

As propriedades físicas das amostras de papel, blenda de PLA, 1 laminação sem tratamento, 1 laminação com tratamento e 2 laminadas sem tratamento podem ser encontradas na Tabela 3 abaixo. Para os filmes laminados, os cálculos foram feitos a partir da espessura e gramaturas medidas, e das espessuras e gramaturas dos filmes simples. Após determinar as frações de papel e da blenda de PLA, a fração restante foi atribuída ao adesivo.

Tabela 3: Propriedades físicas das amostras

Material	Espessura (mm)	Gramatura (g/m <sup>2</sup> )	% Papel	% Blenda PLA	% Adesivo
Papel	0,200	140,0	100,00		
Blenda PLA	0,031	37,8		100,00	
1 Lam	0,250	196,2	71,4	19,3	9,3
2 Lam	0,300	252,4	55,4	29,9	14,6

Fonte: A Autora, 2025

O papel empregado como substrato, constituído integralmente de fibras celulósicas, apresenta espessura de 0,200 mm e gramatura de 140 g/m<sup>2</sup> de acordo com o fabricante. A blenda de PLA, por ser um filme polimérico fino, apresenta espessura significativamente menor (0,031 mm) e baixa gramatura (37,8 g/m<sup>2</sup>).

As estruturas laminadas, por sua vez, exibem aumento progressivo tanto de espessura quanto de gramatura à medida que novas camadas são adicionadas. A laminação simples, independentemente da presença de tratamento superficial, atingiu espessura total de 0,250 mm e gramatura de 196,2 g/m<sup>2</sup>, resultante da adição das camadas de filme mais o adesivo. O filme com duas laminações atingiu uma espessura de 0,300 mm e gramatura de 252,4 g/m<sup>2</sup>.

Em relação à composição percentual mássica das camadas, como esperado dada a disparidade entre as espessuras do papel e da blenda de PLA, nota-se que as amostras com uma laminação apresentam grande participação do papel (71,4%) na estrutura. Na amostra com duas laminações, a porcentagem mássica do papel diminui (55,4%), porém segue sendo o componente mais expressivo do conjunto.

### **5.2.2. PROPRIEDADES MECÂNICAS**

As propriedades mecânicas obtidas dos ensaios de tração e força de delaminação, junto dos resultados do teste de Tukey, são apresentadas na Tabela 4. Para os filmes com uma laminação, foram realizados ensaios com amostras sem tratamento (ST) e com amostras variando o pH da solução (4 e 7) e a concentração (1,0% e 2,5% em peso de TEVS), a fim de avaliar a influência destes fatores sobre a tensão. Para o filme de duas laminações, foram realizados ensaios apenas com amostras sem tratamento e com amostras com o tratamento com resultado mais significativo no ensaio prévio (pH 4 e 2,5% em peso de TEVS).

Tabela 4: Resultados dos ensaios mecânicos das amostras avaliadas. Após ANOVA de uma via, as médias foram comparadas pelo teste post hoc de Tukey ( $\alpha = 0,05$ ). Médias seguidas por letras diferentes (a,b,c,d) diferem estatisticamente entre si.

Material	Tensão Máxima (MPa)	Deformação Máxima (%)	Módulo de Elasticidade (MPa)	Força de Delaminação (N/mm)
Papel	45,53 +/- 1,31	3,5 +/- 0,3	2094,84 +/- 115,30	-
Blenda PLA	11,7 +/- 0,3	3,7 +/- 0,4	728,99 +/- 51,17	-
1 Lam ST	26,54 +/- 1,48	20,01 +/- 1,34	314,63 +/- 24,01	0,28 +/- 0,03
1 Lam CT [4 - 2,5%]	31,81 +/- 1,43 <sup>c</sup>	12,9 +/- 0,9 <sup>d</sup>	547,64 +/- 42,87	0,40 +/- 0,05 <sup>a</sup>
1 Lam CT [4 - 1,0%]	29,20 +/- 1,13 <sup>c</sup>	12,0 +/- 0,7 <sup>d</sup>	563,90 +/- 41,24	0,31 +/- 0,03 <sup>b</sup>
1 Lam CT [7 - 2,5%]	27,13 +/- 1,37 <sup>c</sup>	12,0 +/- 0,7 <sup>d</sup>	533,71 +/- 45,14	0,30 +/- 0,02 <sup>b</sup>
1 Lam CT [7 - 1,0%]	26,86 +/- 1,35 <sup>c</sup>	10,4 +/- 0,8 <sup>d</sup>	533,32 +/- 76,06	0,26 +/- 0,03 <sup>b</sup>
1 Lam CT [5,5 - 1,75%]	27,5 +/- 0,8	12,99 +/- 1,37	484,44 +/- 55,33	0,33 +/- 0,03
2 Lam ST	24,49 +/- 1,13	19,97 +/- 1,12	283,41 +/- 6,42	-
2 Lam [4 - 2,5%]	28,58 +/- 1,35	15,03 +/- 1,57	467,04 +/- 24,91	-

Fonte: A Autora, 2025

O filme de celulose atingiu uma tensão máxima de 45,53 MPa e módulo de elasticidade de 2094,84 MPa, valores que se encontram dentro da faixa encontrada na literatura (LIU et al, 2023). Poli(ácido láctico) é conhecido por ter uma alta tensão, com valores entre 31,34 MPa a 47,18 MPa, no entanto, amido costuma apresentar uma tensão mais baixa que varia de acordo com a sua fonte, podendo ir de valores como 0,80 MPa até 10,95 MPa (ALIAS et al, 2022). O filme de blenda de PLA registrou uma tensão máxima média de 11,67 MPa, um valor resultante da combinação da propriedade dos dois materiais (PLA e amido) e um resultado esperado, dado que o aumento da porcentagem de amido reduz a resistência mecânica do PLA (NAGY et al, 2021). O módulo de elasticidade da blenda de PLA é de 728,99 MPa.

Nos filmes com uma laminação, é possível observar que todos os laminados tratados tiveram desempenho igual ou superior ao filme sem tratamento quando comparadas as tensões máximas, com destaque para o filme tratado com solução de pH 4 a 2,5%, representando um aumento de 19,8% quando comparado ao filme sem tratamento. Quando comparado a força de delaminação média, o filme solução de pH 4 a 2,5% apresentou uma melhora de aproximadamente 42,8% em relação ao filme sem tratamento. Para os filmes de duas laminações, avaliado apenas sem tratamento e com tratamento por solução de pH 4 a 2,5%, houve um aumento da tensão máxima média de 16,7% para a amostra tratada.

A Tabela 5 traz a análise de variância (ANOVA) para os ensaios de força de laminação realizados segundo o planejamento fatorial  $2^2$ , considerando como fatores o pH da solução e a concentração de TEVS. O modelo mostrou-se estatisticamente significativo para ambos os fatores principais, com p-valor  $< 0,0001$  para pH e para concentração, indicando que essas variáveis são relevantes para a força de laminação. O efeito do pH demonstra que a variação da acidez do meio exerce impacto expressivo na resistência da laminação. A variação de concentração de TEVS sugere que o aumento do teor do silano favorece a adesão entre as camadas do laminado.

Tabela 5: ANOVA força de laminação das amostras avaliadas

Fonte de variação	SQ (Soma dos Quadrados)	GL (Grau de Liberdade)	QM (Quadrados Médios)	F calculado	p-valor
pH	0,03176045	1	0,03176045	32,0060967 9	$<0,0001$
Concentração	0,02805005	1	0,02805005	28,2669992 2	$<0,0001$
Interação A x B	0,00528125	1	0,00528125	5,32209709 5	$\sim 0,034$
Erro	0,01587720	16	0,000992325	-	-
Total	-	19	-	-	-

Fonte: A Autora, 2025

Entretanto, a interação entre pH e concentração apresentou significância moderada ( $F=5,32$ ;  $p=0,034$ ), indicando que o efeito de um fator depende parcialmente do nível do outro. Isso sugere que a eficiência do TEVS na laminação não é constante em diferentes condições de pH, podendo haver uma sinergia entre a maior concentração e ambientes ligeiramente ácidos, que favorecem a hidrólise do silano e a formação de ligações estáveis.

O teste de Tukey ( $\alpha = 0,05$ ) indicou que o grupo [pH 4 - 2,5%] apresentou média significativamente superior às dos demais grupos. Não foram observadas diferenças estatisticamente significativas entre os demais grupos, [pH 7 - 2,5%], [pH 4 - 1,0%] e [pH 7 - 1,0%].

O teste de curvatura, realizado com base na média das respostas do ponto central (pH 5,5; TEVS 1,75%), apresentou  $F=0,5$  e p-valor próximo de 0,50, não sendo estatisticamente significativo. Assim, não há evidência de comportamento não linear na faixa estudada, indicando que a resposta da força de laminação pode ser adequadamente descrita por um modelo linear nos fatores avaliados.

A Tabela 6 a seguir contém os resultados da análise de variância (ANOVA) para a tensão máxima (tração) dos filmes com uma laminação, obtida também a partir do planejamento fatorial de  $2^2$ . O modelo se mostrou estatisticamente significativo a 5% tanto para pH quanto para concentração de silano, no entanto, a interação entre eles não é significativa para a margem estabelecida. No entanto, o teste de Tukey (Tabela 4) não apontou diferenças estatisticamente significativas entre os níveis dos fatores, indicando que as variações observadas nas médias não foram suficientemente grandes em relação à variabilidade experimental. O teste de curvatura apresentou  $p = 0,052$ , indicando ausência de significância estatística ao nível de 5%. Entretanto, o valor marginal sugere uma possível tendência não linear. Recomenda-se o aumento do número de pontos centrais em experimentos futuros.

Tabela 6: ANOVA para a tensão máxima das amostras avaliadas

Fonte de variação	SQ (Soma dos Quadrados)	GL (Grau de Liberdade)	QM (Quadrados Médios)	F calculado	p-valor
pH	61,846445	1	61,846445	32,8247173 4	<0,0001
Concentração	10,469045	1	10,469045	5,55639767 2	~0,031
Interação A x B	6,903125	1	6,903125	3,66380196 8	~0,073
Erro	30,14628	16	1,8841425	-	-
Total	-	19	-	-	-

Fonte: A Autora, 2025

A Tabela 7 apresentada abaixo traz os resultados da análise de variância (ANOVA) para o módulo de elasticidade dos filmes com uma laminação, obtida também a partir do planejamento fatorial de  $2^2$ . Os resultados mostraram que apenas o fator pH é significativo a 5%, enquanto a concentração de silano e a interação entre eles, não. O teste de Tukey (Tabela 4) não mostrou diferenças estatisticamente significativas do fator avaliado ( $p < 0,05$ ) entre ambos os fatores principais - pH e concentração de silano. Isso sinaliza que as variações observadas nas médias foram insuficientes em relação à variabilidade do experimento.

Tabela 7: ANOVA para o módulo de elasticidade das amostras avaliadas

Fonte de variação	SQ (Soma dos Quadrados)	GL (Grau de Liberdade)	QM (Quadrados Médios)	F calculado	p-valor
pH	0,0023363	1	0,00233633	0,7991534	~0,037
Concentração	0,0004552	1	0,00045524	0,1557171	~0,7
Interação A x B	0,0004926	1	0,00049262	0,1685015	~0,68
Erro	0,0467761	16	0,00292351	-	-
Total	-	19	-	-	-

Fonte: A Autora, 2025

Por outro lado, o teste de curvatura apresentou um  $F = 6,13$  e um  $p\text{-valor} = 0,025$ , indicando presença significativa de curvatura no modelo, ou seja, o comportamento mecânico do laminado não se altera de forma proporcional com o aumento de pH ou da concentração de silano. A detecção de curvatura significativa torna necessário um modelo de ordem superior para descrever adequadamente a resposta que, junto do resultado do teste de Tukey, faz ser recomendável a ampliação do planejamento experimental com pontos adicionais para melhor ajuste.

Analisando estes resultados, foi escolhida a solução de pH 4 e concentração de 2,5% para realizar os ensaios mecânicos para o filme com duas laminações e, posteriormente, para os ensaios de degradação.

Para os filmes de duas laminações, a amostra sem tratamento atingiu 24,49 MPa de tensão com um módulo de 283,41 MPa, enquanto a amostra com tratamento teve desempenho superior, com 28,58 MPa de tensão e módulo de 467,04 MPa, o que apresenta um ganho de resistência de 16,7% na sua resistência à tração.

### 5.2.3. PERMEABILIDADE A VAPOR DE ÁGUA

Barreira a umidade é um dos requerimentos de maior importância em filmes destinados a aplicação na indústria de embalagens (TRINH et al., 2021). Dos três polímeros avaliados neste trabalho, nenhum deles possui a mesma performance quando comparados com filmes tradicionais derivados do petróleo, como o polietileno. Na blenda de PLA, o PLA de alta grade com alto teor de cristalinidade (PLA com 96-99% de L-lactídeo) apresenta baixa resistência ao calor e comportamento de fratura frágil em comparação com os plásticos convencionais, conferindo-lhe um desempenho de barreira

relativamente inferior (MARANO et al, 2022); enquanto o amido é hidrofílico por natureza, o que os torna um filme bastante sensível à umidade (TRINH et al., 2021; ALIAS et al, 2022). Paralelamente, o filme de celulose, apesar de não ser um polímero solúvel em água, possui diversos grupos polares na sua molécula, permitindo que sua superfície interage com moléculas de água através de ligações de hidrogênio, de modo que materiais celulósicos absorvem ou desorvem umidade até entrar em equilíbrio com o ambiente (LIU et al, 2023; MOHAMMADZADEH et al., 2020).

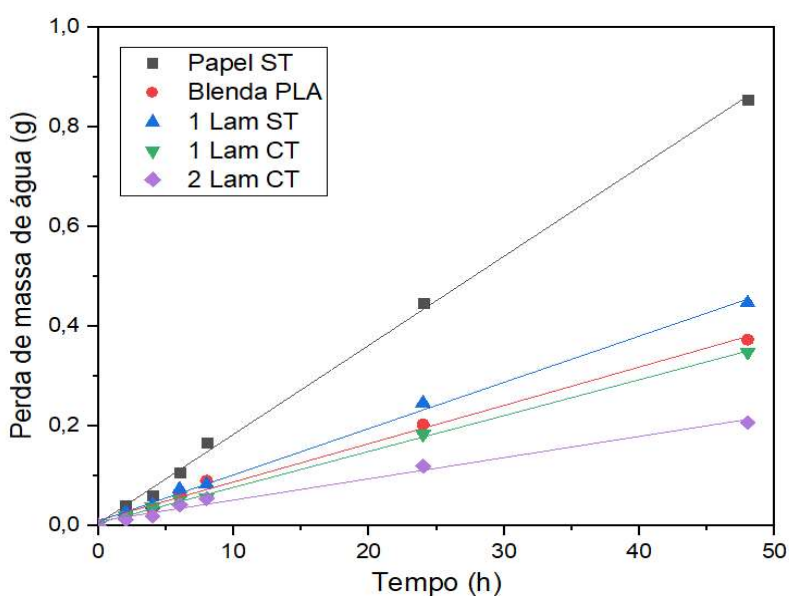
Vários fatores influenciam a taxa de transmissão de água de um filme polimérico, como pressão, temperatura, cristalinidade, hidroflicidade, densidade do filme, espessura, tamanho de poro e estrutura (LIU et al, 2023). Os resultados para a análise de permeabilidade podem ser encontrados na Tabela 8 e Figura 8.

Tabela 8: Resultados ensaio de permeabilidade das amostras avaliadas

Material	WVTR (g/(s.m <sup>2</sup> ))	WTP (g/(s.m.Pa))
Papel ST	$2,91 \times 10^{-03} \pm 1,08 \times 10^{-04}$	$4,58 \times 10^{-10} \pm 1,70 \times 10^{-11}$
Blenda PLA	$1,25 \times 10^{-03} \pm 7,48 \times 10^{-05}$	$0,30 \times 10^{-10} \pm 1,82 \times 10^{-12}$
1 Lam ST	$1,51 \times 10^{-03} \pm 3,04 \times 10^{-04}$	$2,98 \times 10^{-10} \pm 5,98 \times 10^{-11}$
1 Lam CT	$1,17 \times 10^{-03} \pm 2,41 \times 10^{-04}$	$2,30 \times 10^{-10} \pm 4,74 \times 10^{-11}$
2 Lam CT	$0,69 \times 10^{-03} \pm 1,72 \times 10^{-04}$	$1,63 \times 10^{-10} \pm 4,07 \times 10^{-11}$

Fonte: A Autora, 2025

Figura 8: Resultados ensaio de permeabilidade das amostras avaliadas após 48h de ensaio



Fonte: A Autora, 2025

A Tabela 8 apresenta os valores de taxa de transmissão de vapor de água (WVTR) e permeabilidade ao vapor de água (WTP) para o Papel ST, a blenda de PLA e diferentes configurações de laminação, com e sem tratamento superficial. Observa-se que o filme de celulose pura apresentou o maior valor de WVTR ( $2,91 \times 10^{-3} \text{ g}/(\text{s.m}^2)$ ) e de WTP ( $4,58 \times 10^{-10} \text{ g}/(\text{s.m.Pa})$ ), valores dentro das faixas trazidas nas revisões de (LIU et al, 2023s) e (ALIAS et al, 2022), confirmando elevada hidrofiliidade e limitada barreira à passagem de umidade da celulose. Em contraste, a blenda de PLA demonstrou desempenho superior, com valores mais baixos de WVTR ( $1,25 \times 10^{-3} \text{ g}/(\text{s.m}^2)$ ) e WTP ( $0,30 \times 10^{-10} \text{ g}/(\text{s.m.Pa})$ ), um valor abaixo do encontrado na literatura para PLA puro, e mais compatível com valores encontrados para filmes de amido (ALIAS et al, 2022).

Nos filmes de 1 Lam ST, houve uma redução da permeabilidade a vapor de água em relação ao filme de celulose, mas ainda manteve valores intermediários (WVTR =  $1,51 \times 10^{-3} \text{ g}/(\text{s.m}^2)$ ; WTP =  $2,98 \times 10^{-10} \text{ g}/(\text{s.m.Pa})$ ), que pode ser atribuído a uma combinação de propriedades dos dois filmes. Quando o tratamento superficial de TEVS foi aplicado, observou-se diminuição para  $1,17 \times 10^{-3} \text{ g}/(\text{s.m}^2)$  na WVTR e do WTP para  $2,30 \times 10^{-10} \text{ g}/(\text{s.m.Pa})$ , uma redução de aproximadamente 22,5% quando comparado com a amostra sem tratamento. DU et al. (2025) e CHEN et al. (2022) encontraram resultados semelhantes nos seus experimentos, com este conseguindo reduzir a WVTR de celulose microfibrilada tratada com nanosílica de  $1996,60 \text{ g.m}^{-2}.\text{dia}^{-1}$  para  $1033,79 \text{ g.m}^{-2}.\text{dia}^{-1}$  (redução de aproximadamente 48%), enquanto aquele conseguiu reduzir a WVTR de celulose-nano-cristalina tratada com silanos em até 71,2% quando comparado com celulose não tratada. Tal aumento do desempenho da barreira é atribuída à minimização das lacunas e poros na fibra celulósica. A modificação da estrutura superficial da celulose com silano fornece aos compósitos uma barreira física uniforme e densa e uma camada química hidrofóbica, que reduz a porosidade e transforma o papel de uma superfície hidrofílica para uma superfície hidrofóbica e, por consequência, aumenta a propriedade de barreira ao vapor de água (CHEN et al., 2022).

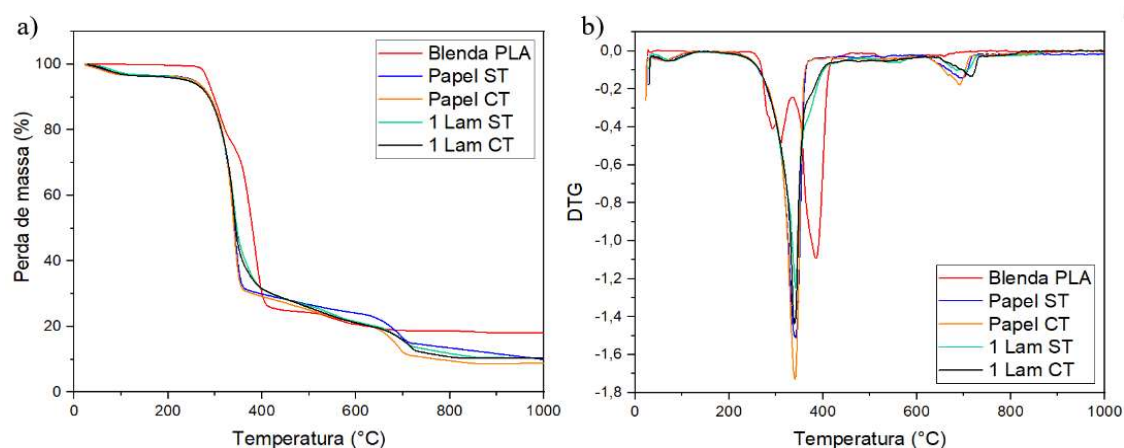
A configuração de duas laminações tratadas (2 Lam CT) apresentou redução de WVTR para  $0,69 \times 10^{-3} \text{ g}/(\text{s.m}^2)$  e WTP reduzida para  $1,63 \times 10^{-10} \text{ g}/(\text{s.m.Pa})$ . Esses resultados evidenciam o efeito de combinação da laminação dupla associada com o

tratamento superficial, que promoveu uma barreira mais efetiva contra a permeação de umidade.

#### 5.2.4. TGA

A Figura 9 apresenta os termogramas de degradação das amostras de blenda de PLA, Papel ST, Papel CT, e Lam ST e 1 Lam CT. Nela, é possível identificar uma perda de massa inicial para as amostras de filme de celulose e laminado, com e sem tratamento, por volta dos 100°C, que corresponde à perda de água livre por evaporação presente na celulose (JIANG et al., 2022; KHANJANZADEHA et al., 2017). A blenda de PLA pura não apresenta essa curva.

Figura 9: a) TG e b) DTG das amostras de blenda de PLA, Papel ST, Papel CT, 1 Lam ST e 1 Lam CT



Fonte: A Autora, 2025

Com relação à blenda de PLA, é possível observar dois principais eventos de perda de massa. O primeiro evento ocorre entre 248°C e 334°C e corresponde a uma perda de cerca de 23,8%; e o segundo ocorre entre 334°C e 461°C, correspondendo a uma perda de massa de aproximadamente 51,3%. Tal comportamento se justifica na composição do filme polimérico, que consiste de PLA e amido. O primeiro evento de perda de massa tem pico em aproximadamente 315°C e é referente à decomposição do amido (TRINH et al., 2021); enquanto o segundo evento, com pico em aproximadamente 374°C, é resultado da decomposição do PLA (KERVRAN et al., 2022). O pequeno pico observado em aproximadamente 510 °C, referente a cerca de 2,6% de perda de massa, pode ser explicado como a degradação térmica do resíduo carbonizado (char) formado nas etapas de pirólise precedentes (YAO et al., 2021).

Durante a degradação térmica do da blenda polimérica, ocorre a formação de compostos tipo tar (alcatrão), resíduo que exige maior energia para ser quebrado ou oxidado. O teor de cinzas resultante para a blenda polimérica foi de cerca de 18,2%, possivelmente proveniente do amido presente na composição do filme, que está de acordo com outros estudos (TRINH et al., 2021).

Ambos os filmes de celulose e de laminado, com e sem tratamento, apresentam comportamentos bastante similares quanto aos eventos de perda de massa na análise de TGA, o que é justificado pela composição do laminado ser majoritariamente celulose (aproximadamente 71% em massa) graças à baixíssima espessura da blenda de PLA. O maior evento de perda para os quatro filmes teve pico em aproximadamente 340°C, resultado da decomposição do filme celulósico (JIANG et al., 2022; YENG et al., 2015). Em torno de 700° a 800°C, ocorre um evento para todas as amostras com papel. O evento por ser atribuído à emissão de dióxido de carbono oriundo de carbonato de cálcio, que é comumente utilizado na fabricação de papel em escala industrial para melhorar a estabilidade química e retardar a degradação da celulose (ZHUANG et al., 2025; DALAS et al., 2000).

Por fim, o teor de cinzas para ambos os filmes de celulose e uma laminação, com e sem tratamento, se manteve em valores próximos de aproximadamente 10%, que pode ser rastreado tanto à composição do papel quanto à incorporação de SiO<sub>2</sub> inorgânico no sistema. A presença da blenda de PLA não trouxe diferenças para o resíduo nos filmes laminados, novamente porque a proporção de papel era muito maior.

### **5.2.5. DEGRADAÇÃO EM SOLO SIMULADO**

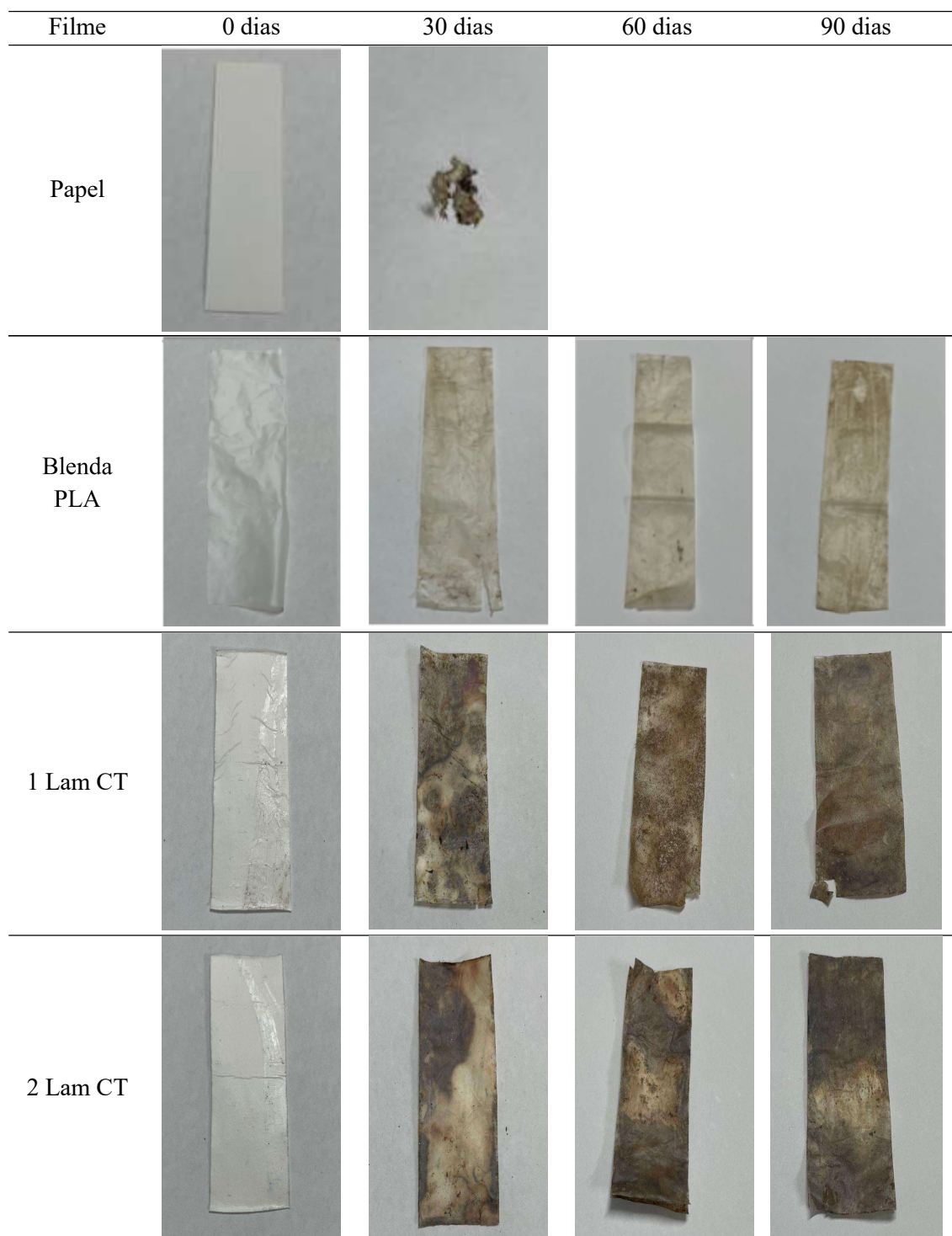
A Tabela 9 apresentada traz a evolução da perda de massa dos filmes compostos ao longo de 30, 60 e 90 dias de degradação em solo; enquanto a Tabela 10 traz imagens das amostras ao longo do ensaio.

Tabela 9: Perdas de massa das amostras avaliadas ao longo do ensaio de biodegradação em solo simulado

Filme	Perda de massa (%)		
	30 dias	60 dias	90 dias
Papel ST	~99,9	100,0	100,0
Blenda PLA	0,2 +/- 0,01	2,1 +/- 0,01	2,9 +/- 0,02
1 Lam CT	58,0 +/- 0,04	64,9 +/- 0,03	67,5 +/- 0,01
2 Lam CT	16,7 +/- 0,04	35,2 +/- 0,01	36,1 +/- 0,06

Fonte: A Autora, 2025

Figura 10: Imagens das amostras ao longo do experimento de biodegradação em solo simulado



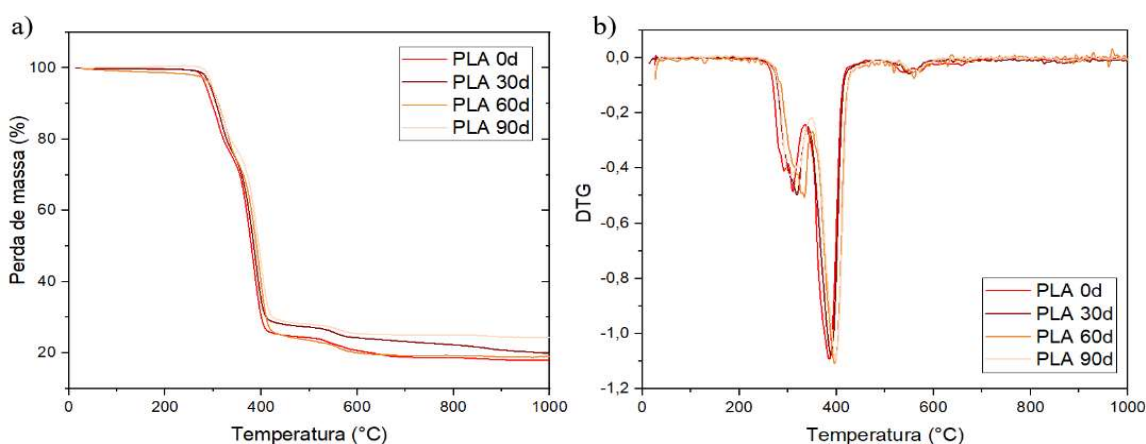
Fonte: A Autora, 2025

A celulose (Papel ST), por ser um polímero hidrofílico e suscetível à ação microbiana, apresentou rápida degradação já nos primeiros 30 dias, atingindo a completa perda de massa aos 60 dias. Tal comportamento é esperado, uma vez que a celulose é prontamente assimilada por microrganismos e fungos em ambientes aeróbios,

principalmente por espécies produtoras de celulase como *Trichoderma* e *Aspergillus*, amplamente reportadas na literatura (NIU et al, 2024). A completa mineralização da celulose também reforça seu papel como componente biodegradável e promotor de porosidade em compósitos poliméricos.

Em contraste, a blenda de PLA apresentou baixa perda de massa, inferior a 3% mesmo após 90 dias. Os resultados de TGA e DTG, apresentados na Figura 10 abaixo, comprovam a consistência estrutural das blends de PLA ao longo do experimento, com a perseverança de todos os picos e eventos. Houve uma mudança de teor de cinzas, indo de aproximadamente 18% na blenda de PLA inicial (PLA 0 dias) para aproximadamente 24% na blenda de PLA após a análise de biodegradação (PLA 90 dias) que pode ser atribuído à deposição de impurezas (terra) na superfície da amostra.

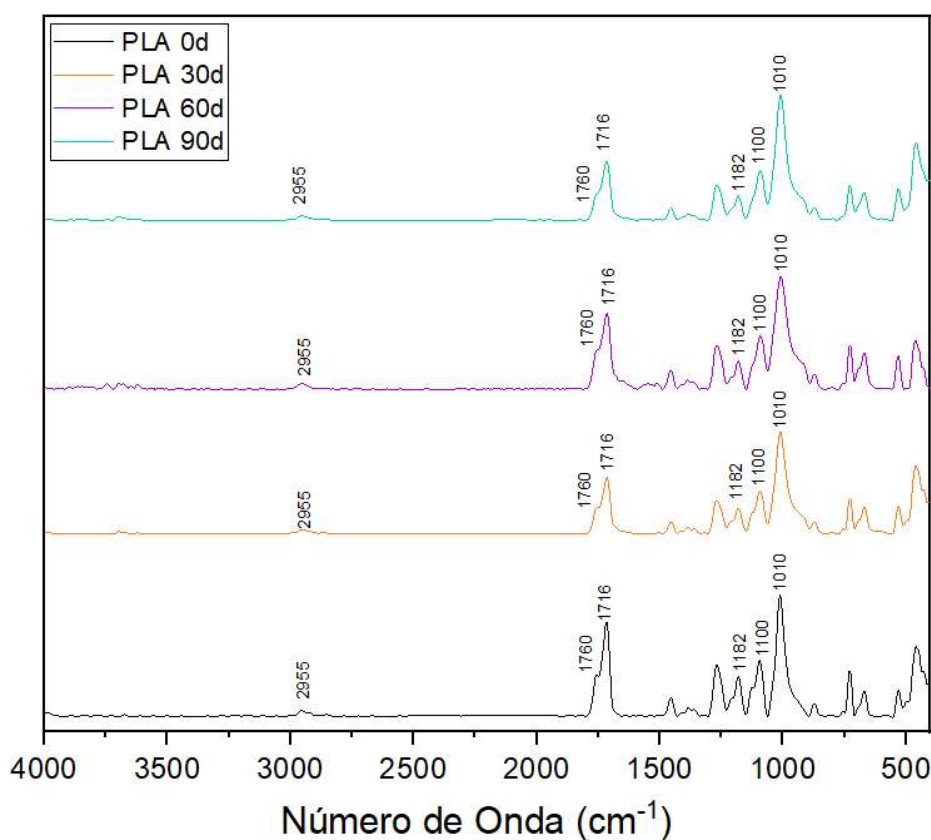
Figura 11: a) TGA e b) DTG das amostras de blenda de PLA ao longo do experimento de biodegradação em solo simulado



Fonte: A Autora, 2025

Os FTIR das amostras da blenda de PLA não degradado (PLA 0d) e ao longo do experimento (PLA 30d, PLA 60d e PLA 90d) podem ser encontradas na Figura 11. Nela, é possível observar que não houve variação significativa nas bandas características do PLA: o estiramento de carbonila (C=O) próximo a  $1750\text{ cm}^{-1}$ , o estiramento de C-O-C entre  $1180\text{-}1080\text{ cm}^{-1}$  e as bandas de estiramento de  $\text{CH}_3$  entre  $2990\text{-}2940\text{ cm}^{-1}$  (QI et al, 2017). Na Figura 12, por sua vez, apresenta-se as micrografias obtidas por MEV das amostras de blenda de PLA. Observa-se que a superfície delas se manteve visualmente íntegra em sua maioria, com apenas discretas fissuras após 30 dias e erosões mais evidentes aos 90 dias. A ausência de alterações no FTIR e de maiores irregularidades nas imagens de MEV confirmam a pouca degradação do material.

Figura 12: FTIR das blendas de PLA ao longo do experimento de biodegradação em solo simulado

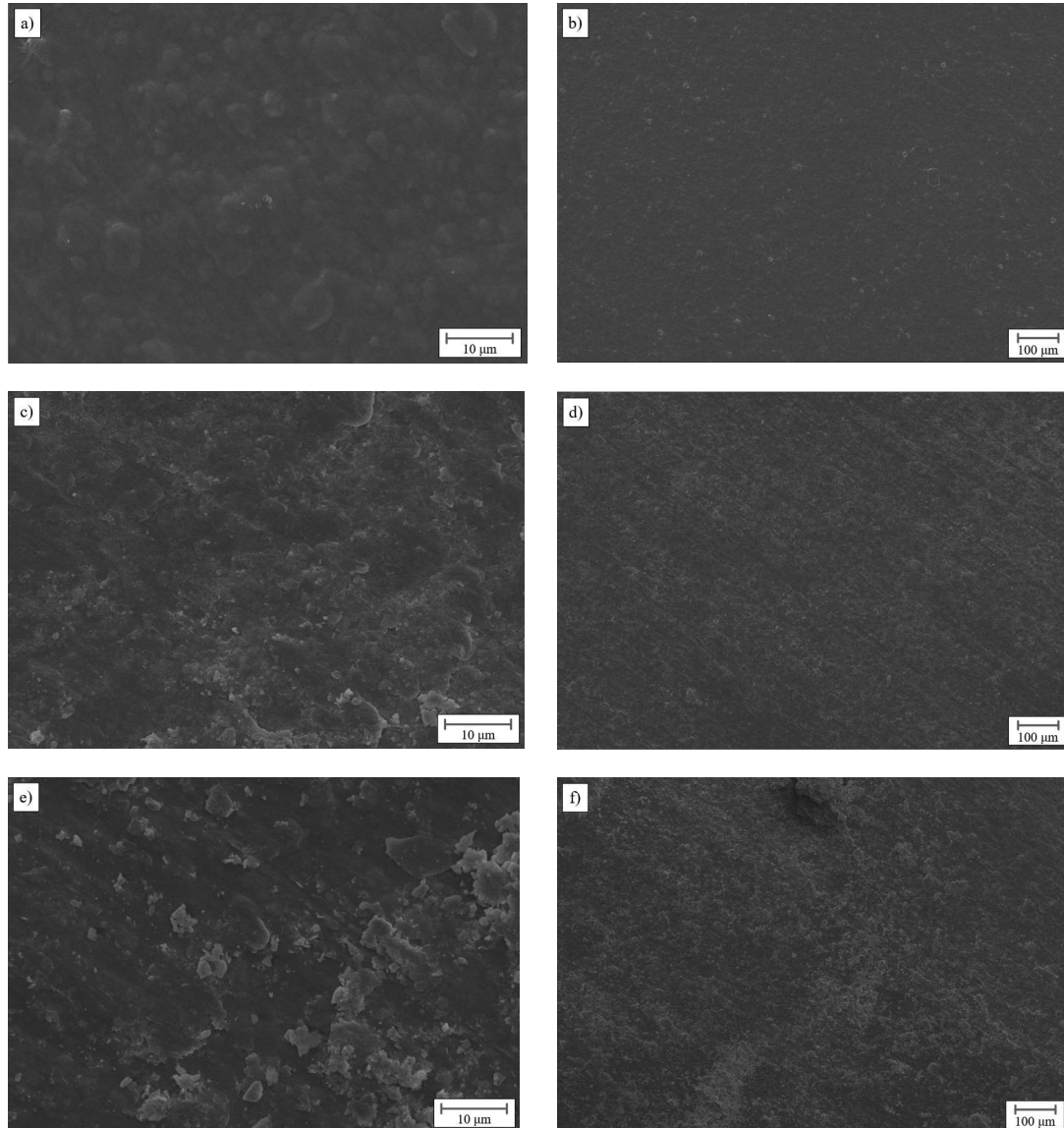


Fonte: A Autora, 2025

É discutido na literatura sobre a baixa taxa de biodegradação do poli(ácido láctico) sob condições mesofílicas de solo, uma limitação consequente da elevada cristalinidade e da hidrofobicidade da matriz de PLA, que restringem a difusão de água e o ataque microbiano (RUDNIK & BRIASSOULIS, 2011; MUÑOZ et al., 2024). Estudos indicam que a degradação significativa do PLA em solo ocorre apenas sob temperaturas próximas a 58 °C - valor próximo a transição vítrea do material, típicas de compostagem termofílica, e que em ambientes naturais o processo é lento, podendo levar vários anos (BANERJEE et al., 2024). Por outro lado, a adição de componentes amiláceos, como o amido termoplástico (TPS), tende a aumentar a taxa de perda de massa por ser mais suscetível à hidrólise e à ação microbiana, promovendo discontinuidades na matriz de PLA e favorecendo a penetração de água e microrganismos (SHARAFI ZAMIR, 2022; MUÑOZ et al., 2024). O comportamento observado para a blenda de PLA deste estudo não condiz com os resultados encontrados na literatura, todavia, graças a imiscibilidade dos dois polímeros, materiais de grade

industrial possuem aditivos químicos para aumentar a adesão interfacial entre PLA e amido, que pode ter tornado a molécula mais estável (ZAMIR et al., 2022).

Figura 13: Micrografias obtida por MEV para as amostras de blenda de PLA do ensaio de biodegradação em solo simulado; a) e b) PLA 0 dias; c) e d) PLA 30 dias; e) e f) PLA 90 dias

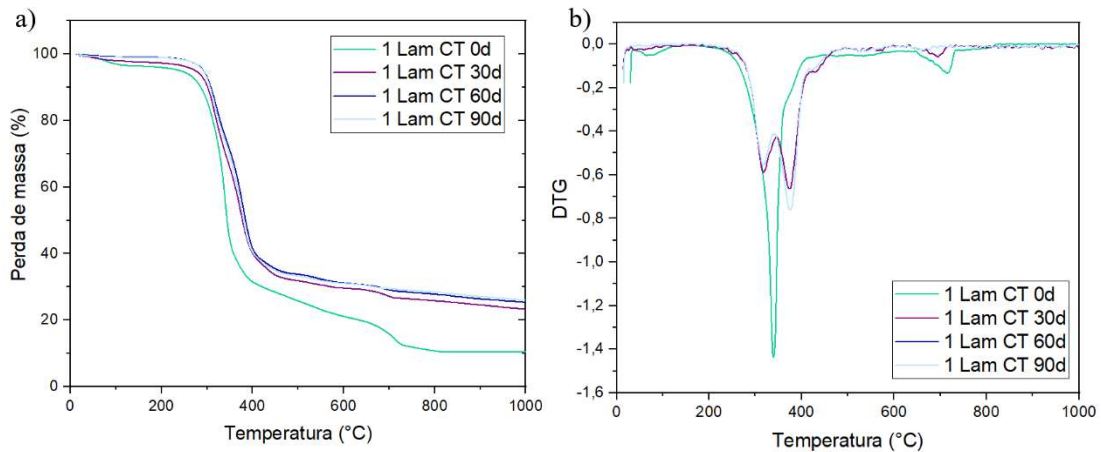


Fonte: A Autora, 2025

Os filmes laminados, de acordo com a Tabela 9, apresentaram perdas de massa de 67,49% e 36,07% aos 90 dias para as amostras com uma e duas laminações, respectivamente. A Figura 13 traz o TGA e DTG para as amostras com uma laminação, onde é possível observar a perda gradual do evento a aproximadamente 700°C, referente à lixiviação do carbonato de cálcio, confirmando sua incorporação pela microbiota presente no solo. Inclusive, nas amostras de 30 dias em diante, conforme a fração de

celulose nas amostras é consumida, surgem os dois picos de degradação da blenda de PLA em aproximadamente 315°C e 374°C, correspondentes aos eventos de decomposição do amido e de decomposição do PLA respectivamente.

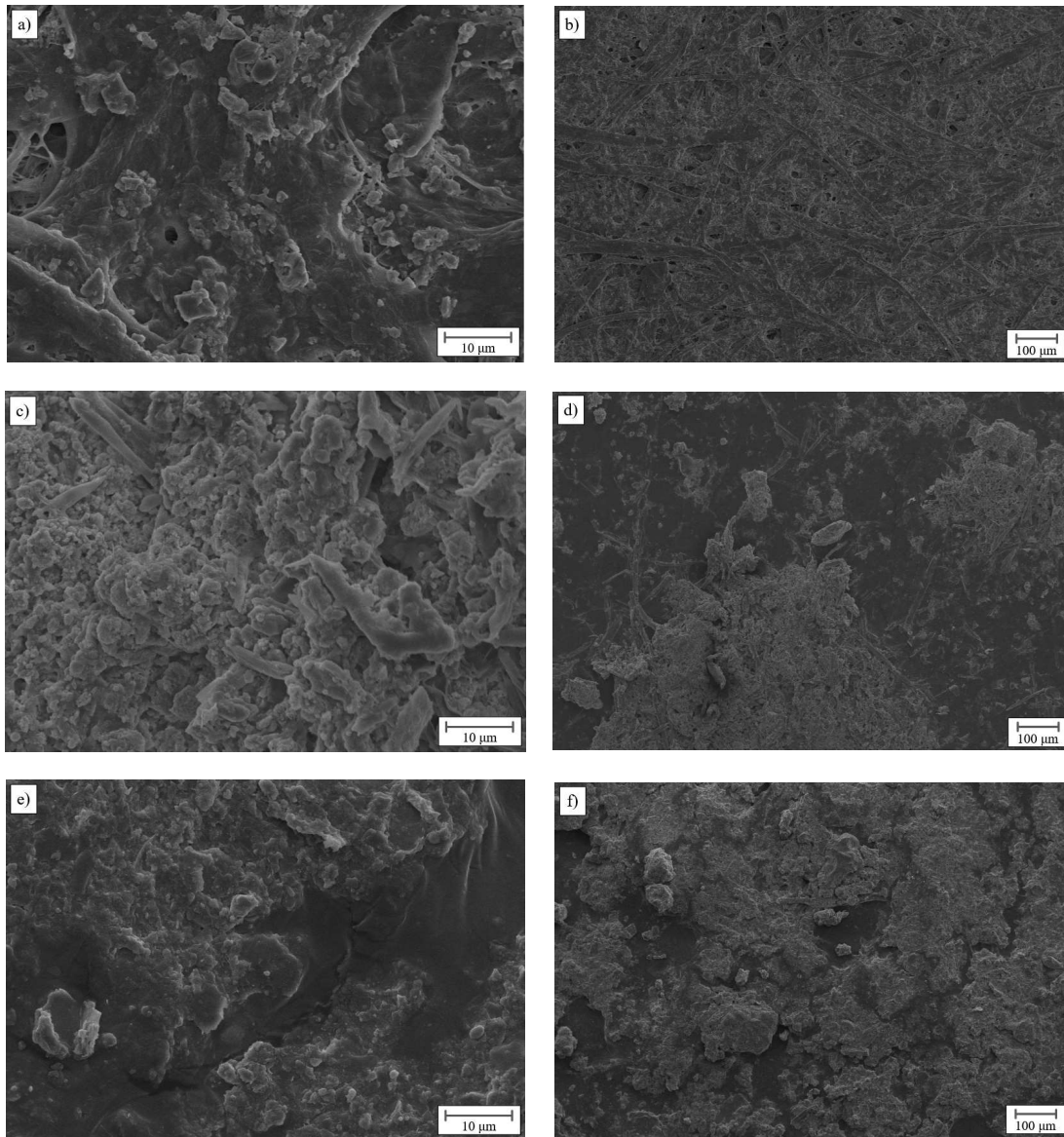
Figura 14: a) TG e b) DTG das amostras de 1 Lam CT ao longo do experimento de biodegradação em solo simulado



Fonte: A Autora, 2025

As alterações morfológicas confirmam esse comportamento: já aos 30 dias, observam-se fissuras, delaminações e formação de poros nas amostras de uma laminação (Figura 14c e 14d), evoluindo para erosão superficial intensa e fragmentação após 90 dias (Figura 14e e 14f). A presença da camada celulósica promoveu uma degradação mais acelerada em comparação à blenda de PLA isolada, evidenciando a função da celulose como catalisadora da degradação do sistema híbrido. Esse efeito é atribuído à capacidade da celulose em absorver umidade e permitir o avanço da hidrólise interna da matriz, favorecendo a fragmentação do PLA e a posterior bioassimilação (ZAMIR et al., 2022).

Figura 15: Micrografias obtida por MEV das amostras de 1 Lam CT que passaram pelo ensaio de biodegradação em solo simulado, tiradas pelo lado do papel; a) e b) 1 Lam CT 0 dias; c) e d) 1 Lam CT 30 dias; e) e f) 1 Lam CT 90 dias

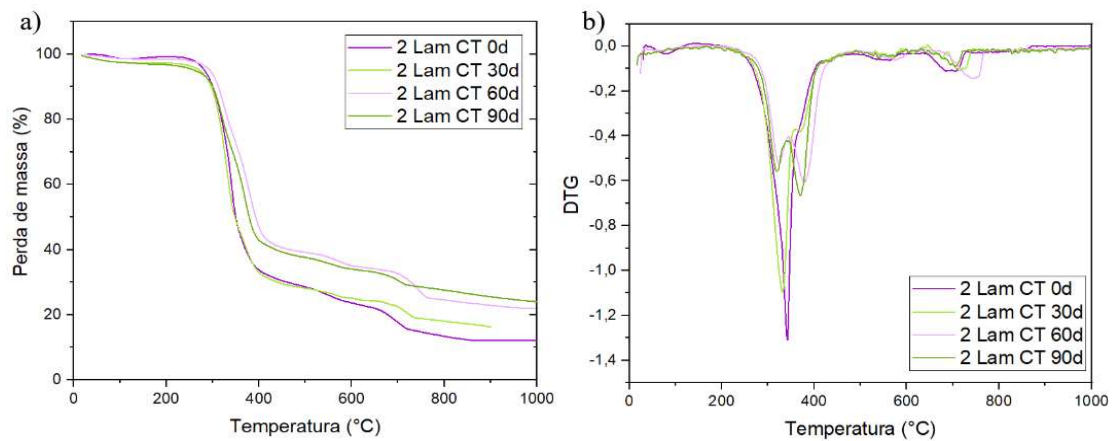


Fonte: A Autora, 2025

Comportamento semelhante é observado no TGA e DTG das amostras de duas laminações (Figura 15). No entanto, na dupla laminação, a lixiviação do carbonato de cálcio (evento a 700°C) resiste mais e ainda se encontra presente nas amostras a 90 dias, apenas com intensidade reduzida. Também é notável o surgimento dos picos a aproximadamente 315°C e 374°C, cuja definição e intensidade aumenta conforme o tempo de ensaio. A diferença entre as amostras de uma e duas laminações indica que o aumento do número de camadas de blenda de PLA reduz a taxa global de degradação, devido à barreira física adicional ao transporte de água e oxigênio. Essa tendência é coerente com resultados prévios na literatura que apontam que filmes multicamadas

retardam a penetração de umidade e, conseqüentemente, a etapa inicial de hidrólise (JHA et al, 2024). Tal comportamento confirma o potencial de laminados blenda de PLA+celulose como alternativas biodegradáveis mais eficazes do que a blenda de PLA monocamada para aplicações de curto ciclo de vida, especialmente sob condições ambientais reais (BANERJEE et al., 2024; NIU et al, 2024). Apesar disso, a degradação progride ao longo do tempo, sugerindo que a desintegração da camada celulósica expõe gradualmente o polímero subjacente à ação do meio, que pode ser visualmente observado na Tabela 10.

Figura 16: a) TG e b) DTG das amostras de 2 Lam CT ao longo do experimento de biodegradação em solo simulado



Fonte: A Autora, 2025

A Tabela 11 abaixo evidencia o comportamento mecânico dos filmes de celulose, blenda de PLA e dos laminados com diferentes estruturas ao longo do período de exposição em solo.

Tabela 10: Resultados dos ensaios mecânicos ao longo do ensaio de biodegradação em solo simulado

Material	Tensão Máxima (MPa)	Deformação Máxima (%)	Módulo Elasticidade (MPa)	Variação Tensão (%)	Variação Módulo (%)
Papel ST 0 dias	45,53 +/- 1,31	3,5 +/- 0,3	2094,84 +/- 115,3	-	-
PLA 0 dias	11,67 +/- 0,34	3,7 +/- 0,4	728,99 +/- 51,17	-	-
PLA 30 dias	20,75 +/- 0,59	5,7 +/- 0,4	549,40 +/- 47,83	77,75	-24,64
PLA 60 dias	17,6 +/- 0,9	8,48 +/- 4,33	482,46 +/- 67,22	50,80	-33,82
PLA 90 dias	17,8 +/- 0,7	12,52 +/- 9,00	523,90 +/- 72,81	52,04	-28,13
1 Lam CT 0 dias	31,81 +/- 1,43	12,92 +/- 0,92	547,64 +/- 42,87	19,87	74,06
1 Lam CT 30 dias	4,5 +/- 0,2	83,72 +/- 49,56	109,43 +/- 88,95	-85,95	-80,02
1 Lam CT 60 dias	4,3 +/- 0,2	57,72 +/- 26,15	74,12 +/- 5,44	-86,39	-86,47
1 Lam CT 90 dias	4,8 +/- 0,2	28,22 +/- 8,95	75,48 +/- 9,28	-84,82	-86,22
2 Lam CT 0 dias	28,58 +/- 1,35	15,03 +/- 1,57	467,04 +/- 24,91	16,68	64,80
2 Lam CT 30 dias	5,3 +/- 0,7	57,18 +/- 7,59	117,33 +/- 35,39	-81,24	-74,88
2 Lam CT 60 dias	5,2 +/- 0,3	22,40 +/- 2,55	95,46 +/- 7,47	-81,67	-79,56
2 Lam CT 90 dias	4,53 +/- 0,648	15,40 +/- 4,85	77,21 +/- 21,39	-84,15	-83,47

Fonte: A Autora, 2025

O filme de Papel ST, avaliado apenas no tempo inicial de 0 dias, apresentou a maior tensão máxima (45,53 MPa) e módulo elástico de 2094,84 MPa, coerente com sua natureza fibrosa e estrutura cristalina ordenada. Esses valores são compatíveis com o comportamento mecânico típico de filmes celulósicos, que exibem elevada rigidez inicial e moderada deformação até a ruptura (NIU et al, 2024).

Para a blenda de PLA, nota-se um incremento inicial de resistência nas amostras que permaneceram até 30 dias em degradação, seguido de uma redução gradual para as amostras de 60 e 90 dias. A elevação inicial na tensão máxima (de 11,67 MPa para 20,75 MPa) pode estar associada à reorganização das cadeias poliméricas e aumento temporário da cristalinidade em função da lixiviação parcial do amido e à recristalização do PLA durante o processo de degradação (ZAMIR et al., 2022). Contudo, a subsequente redução da resistência e do módulo de elasticidade reflete o predomínio da hidrólise das ligações éster e da consequente perda de coesão da matriz, fenômeno amplamente relatado em estudos de degradação de PLA em solo (RUDNIK & BRIASSOULIS, 2011; BANERJEE et al., 2024). Após 90 dias, a blenda de PLA ganhou cerca de 52% na tensão e perdeu cerca de 28% no módulo elástico, confirmando o enfraquecimento estrutural.

Nos filmes com uma laminação com tratamento, a resistência inicial foi superior à da blenda de PLA, indicando que a camada celulósica atua como reforço mecânico. Entretanto, o envelhecimento nas amostras com tratamento reduziu drasticamente tanto a resistência quanto a rigidez, com perdas acima de 85% para ambas as propriedades em 90 dias. Essa queda acentuada pode ser atribuída à degradação da camada de celulose, que, uma vez comprometida, reduz a integridade do compósito e facilita o avanço da degradação nas camadas poliméricas adjacentes (MUÑOZ et al., 2024). Esse efeito é consistente com o observado em sistemas laminados híbridos, nos quais a fase hidrofílica atua como porta de entrada para a umidade e agentes microbianos (NIU et al., 2024).

Os laminados com duas camadas com tratamento exibiram comportamento semelhante, com perda de propriedades mecânicas já acima de 80% após 30 dias. No entanto, como pode ser observado na Figura 10, a segunda camada de PLA impediu a mesma rápida deterioração do papel como nos filmes com uma laminação. Essa estrutura adicional reduziu a difusão de água e atrasou a degradação inicial, conforme também reportado por JHA et al. (2024), que destaca a importância de estruturas multicamadas para controle da taxa de hidrólise.

A tendência geral revela que a redução do módulo elástico é mais acentuada que a da tensão máxima, indicando a transição do comportamento frágil para um comportamento mais dúctil à medida que as cadeias se rompem e a estrutura se torna menos coesa (BANERJEE et al., 2024). Essa perda de rigidez é típica do processo de degradação do poli(ácido lático), no qual o encurtamento das cadeias poliméricas e a geração de oligômeros reduzem a capacidade de suportar tensões, ao mesmo tempo em que aumentam a mobilidade molecular (ZAMIR et al., 2022).

#### **5.2.6. DEGRADAÇÃO COM MICRO-ORGANISMO ESPECÍFICO**

A biodegradação dos filmes de blenda de PLA, Papel ST e 1 Lam CT com *Trichoderma viride* demonstrou um comportamento dependente da composição do substrato e do tempo de incubação.

Para as amostras de blenda de PLA, de acordo com a Tabela 12, observou-se inicialmente uma perda de massa moderada até o 14º dia, seguida por um aparente ganho de massa no 21º dia, e nova perda no 28º dia. Este comportamento oscilatório é

compatível com o desenvolvimento e metabolismo do fungo sobre o substrato: nas fases iniciais, ocorre hidrólise superficial e remoção de componentes mais acessíveis; posteriormente, a intensa proliferação micelial pode adicionar biomassa à superfície da amostra, resultando no ganho de massa observado (LIPSAA et al, 2016). Este cenário é confirmado visualmente pela expressiva colonização micelial na Figura 17, especialmente na amostra 1.

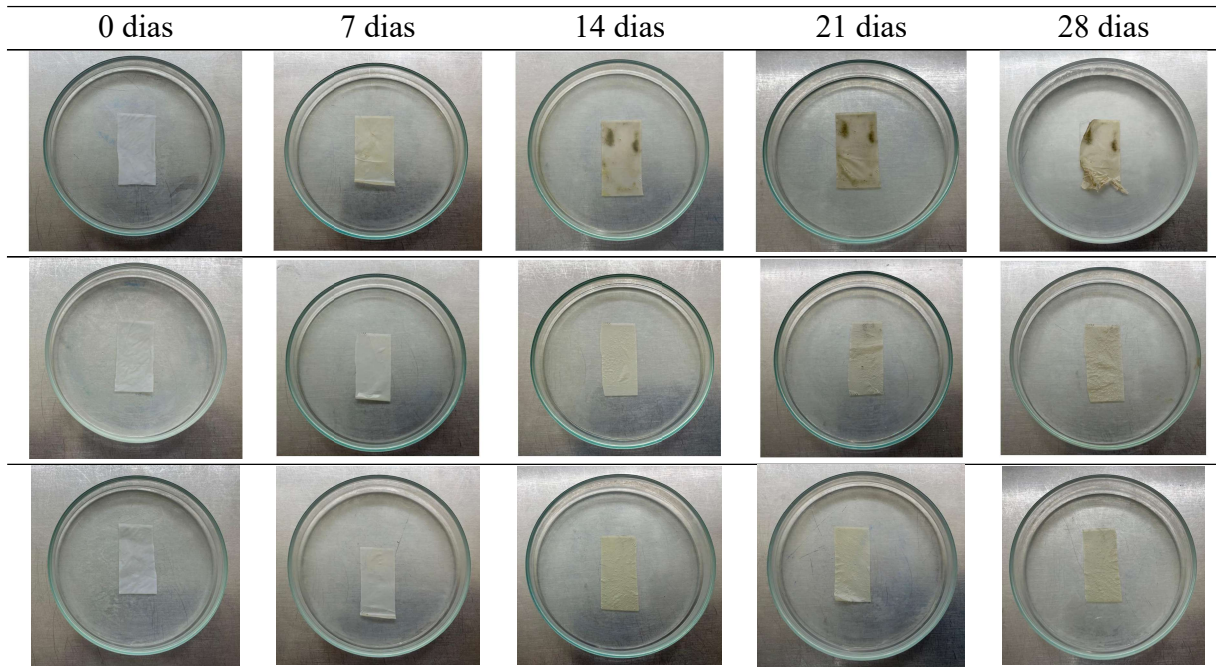
Para as amostras de Papel ST, observou-se perda de massa contínua e, como pode ser visto na Figura 18, uma das amostras foi completamente consumida em 21 dias, condizente com a elevada atividade celulolítica do *T. viride* (LIPSAA et al, 2016). No caso das amostras de 1 Lam CT, a perda de massa foi progressiva e contínua. No entanto, através das imagens na Figura 19, pode-se observar que houve delaminação das amostras, expondo e fragmentando as superfícies dos materiais e facilitando seu ataque subsequente (XU et al, 2021).

Tabela 11: Massa (g) das amostras de blenda de PLA, Papel e Laminado ao longo do ensaio de biogradção com *Trichoderma viride*

Amostras	0 dias	7 dias	14 dias	21 dias	28 dias
PLA	0,02820 +/-	0,02750 +/-	0,01883 +/-	0,02423 +/-	0,02180 +/-
Viride	0,0021	0,0024	0,0017	0,0011	0,0029
Papel ST	0,12257 +/-	0,11897 +/-	0,05133 +/-	0,04920 +/-	0,02140 +/-
Viride	0,0034	0,0351	0,0406	0,0182	0,0126
1 Lam CT	0,16343 +/-	0,13243 +/-	0,10730 +/-	0,09335 +/-	0,08227 +/-
	0,0006	0,0049	0,0150	0,0039	0,0288

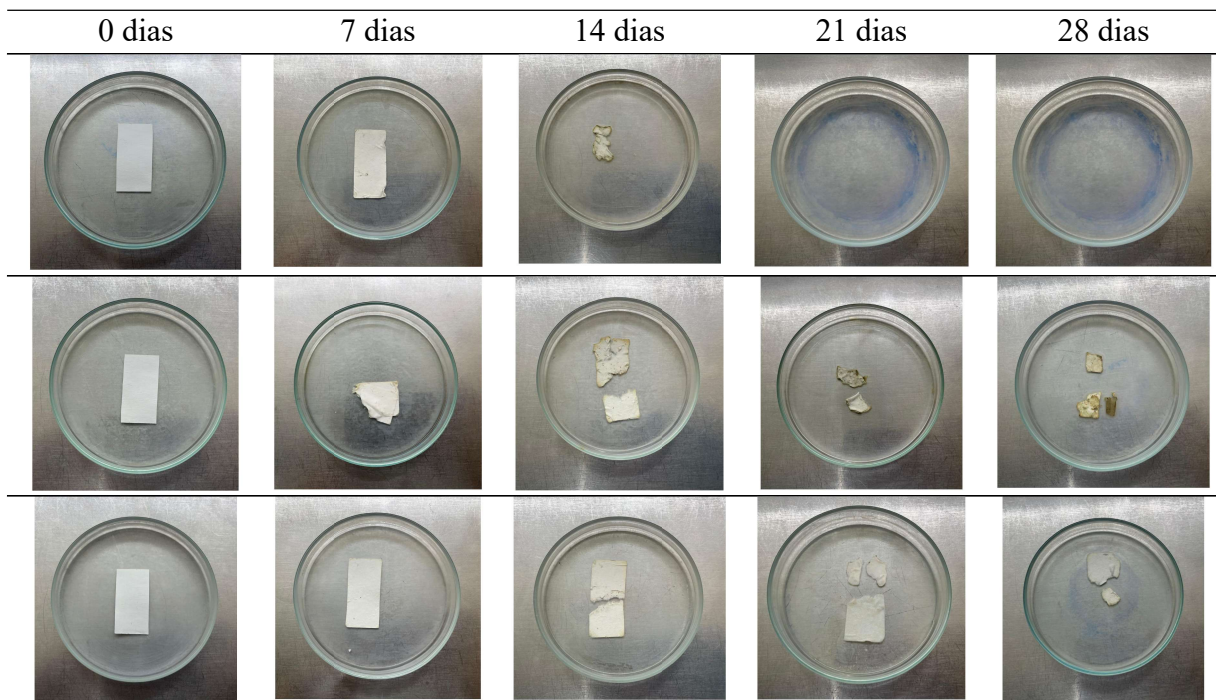
Fonte: A Autora, 2025

Figura 17: Amostras de blenda PLA ao longo do ensaio de biodegradação com *Trichoderma viride*



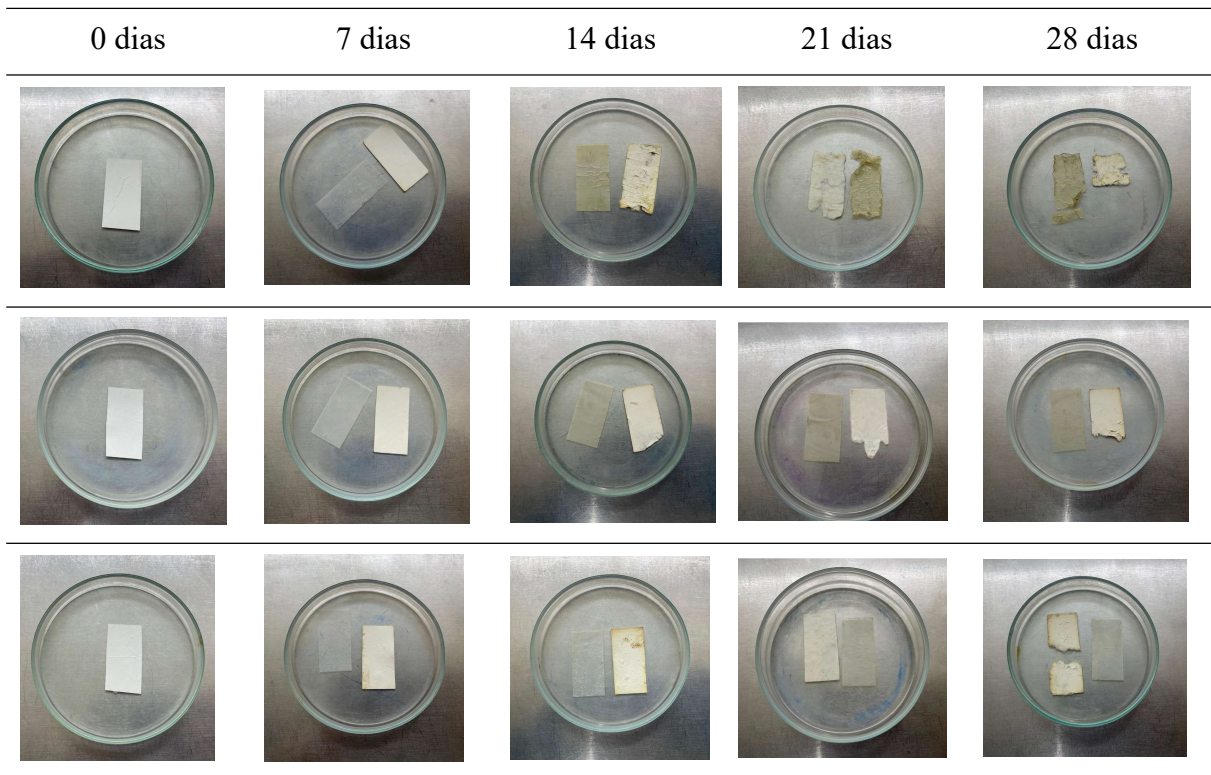
Fonte: A Autora, 2025

Figura 18: Amostras de papel ao longo do ensaio de biodegradação com *Trichoderma viride*



Fonte: A Autora, 2025

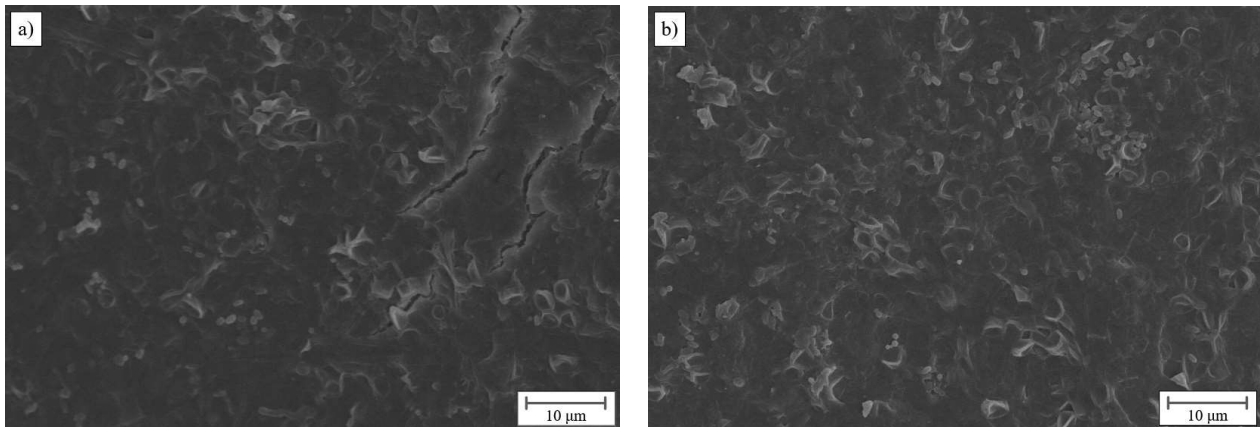
Figura 19: Amostras de laminado ao longo do ensaio de biodegradação com *Trichoderma viride*



Fonte: A Autora, 2025

A Figura 20 apresenta as micrografias MEV, que evidenciam presença de rachaduras na superfície da blenda de PLA (Figura 20-a) após o ensaio, indicando ataque localizado à matriz polimérica. Tais modificações estruturais são consistentes com o mecanismo de degradação fúngica, no qual enzimas extracelulares promovem quebra inicial das ligações éster, reduzindo a massa molecular e aumentando a porosidade superficial (XU et al, 2021). A Figura 20-b é da amostra de PLA que se desprende dos filmes laminados, chamada de PLA (Lam CT) Viride. Tanto nela quanto na Figura 20-a, é possível observar colônias de microrganismos na superfície das amostras.

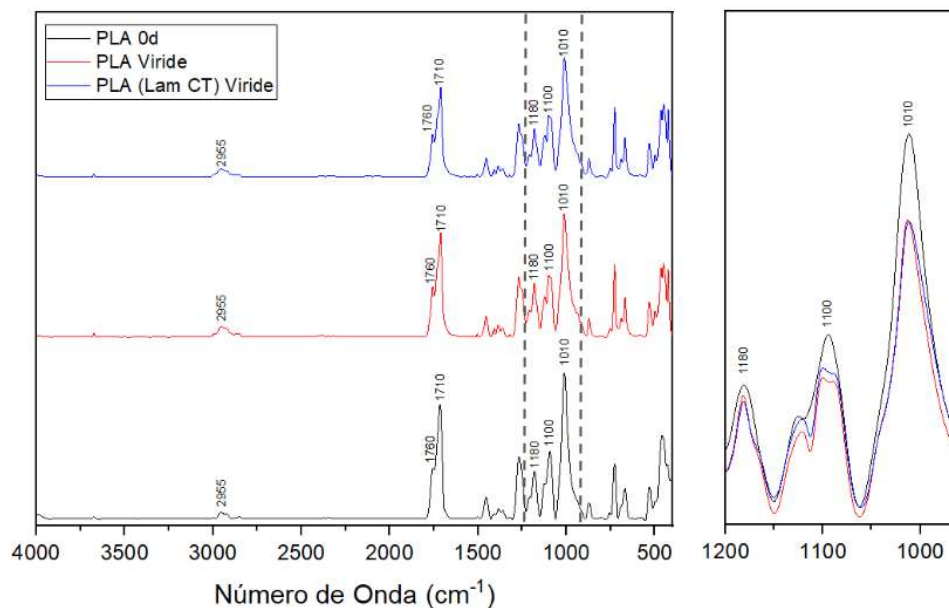
Figura 20: Micrografias obtidas por MEV das amostras de a) PLA Viride e b) PLA (Lam CT) Viride ao final dos 28 dias de ensaio de biodegradação com *T. viride*



Fonte: A Autora, 2025

A Figura 21 apresenta os espectros FTIR da blenda de PLA virgem (PLA 0d), da amostra de blenda de PLA puro após biodegradação com *T. viride* (PLA Viride) e da porção da blenda de PLA proveniente da amostra laminada após biodegradação (PLA (Lam CT) Viride). No espectro da amostra virgem, observa-se o conjunto de bandas características do PLA, com destaque para o estiramento de carbonila (C=O) próximo a  $1750\text{ cm}^{-1}$ , o estiramento de C-O-C entre  $1180\text{-}1080\text{ cm}^{-1}$  e as bandas de estiramento de  $\text{CH}_3$  entre  $2990\text{-}2940\text{ cm}^{-1}$  (Qi, 2017).

Figura 21: FTIR amostras de PLA 0d, PLA Viride e PLA (Lam CT) Viride ao final dos 28 dias de ensaio de biodegradação com *T. viride*



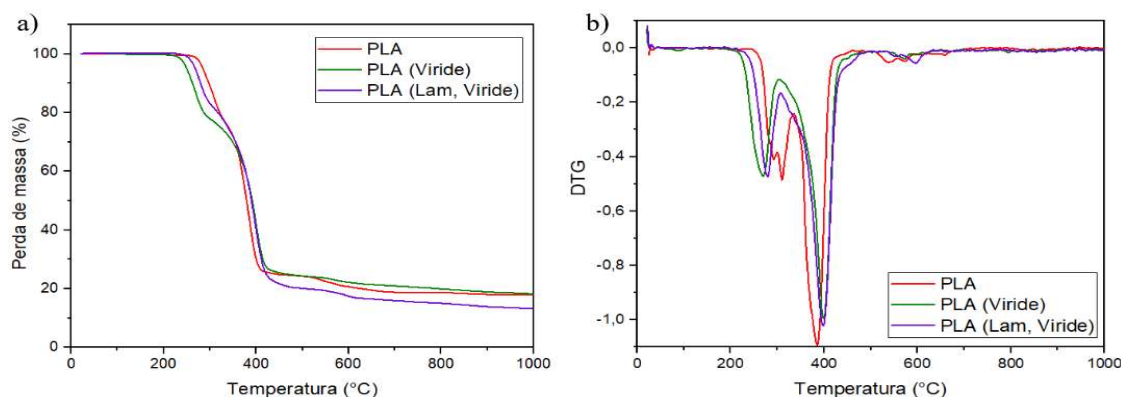
Fonte: A Autora, 2025

Após o período de 28 dias do ensaio de biodegradação, tanto o PLA Viride quanto o PLA (Lam CT) Viride apresentam alterações na intensidade e definição dessas bandas, indicando mudanças estruturais no polímero decorrentes do ataque enzimático. Observou-se uma redução relativa na intensidade da banda de C=O (aproximadamente  $1750\text{ cm}^{-1}$ ), sugerindo ruptura das ligações éster e consequente formação de cadeias de menor massa molar e oligômeros contendo grupos carboxílicos terminais. Esse efeito está diretamente relacionado ao mecanismo de biodegradação do PLA, que ocorre preferencialmente pelo ataque às ligações éster na cadeia principal (XU et al, 2021).

No caso do PLA (Lam CT) Viride, a redução relativa das bandas pode também ser explicada pela presença inicial de celulose no laminado, que facilita a adesão e colonização do fungo, promovendo microfissuras e aumentando a área superficial disponível para difusão de enzimas (QI et al, 2017; XU et al, 2021). Ademais, não foram observadas variações significativas ou surgimento e/ou desaparecimento de novas bandas.

Na análise de TGA (Figura 22) para as amostras de blenda de PLA, observou-se a desapareção do pico associado ao amido, característico do primeiro evento térmico em aproximadamente  $310^{\circ}\text{C}$  (TRINH et al., 2021), reforçando que o amido foi degradado preferencialmente, devido à sua maior suscetibilidade à hidrólise e ataque microbiano. De acordo com (ZAMIR et al., 2022; MUÑOZ et al., 2024), em blenda de PLA/amido, o amido atua como “porta de entrada” para os micro-organismos, facilitando posteriormente o ataque à matriz poliéster.

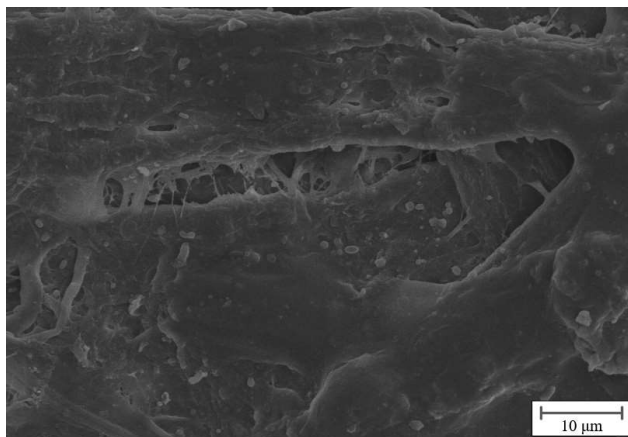
Figura 22: a) TG e b) DTG das amostras de PLA 0d, PLA Viride e PLA (Lam CT) Viride ao final dos 28 dias de ensaio de biodegradação com T. viride



Fonte: A Autora, 2025

Na Figura 23, pode-se observar a proliferação do micélio, confirmando a afinidade metabólica do fungo pela fração celulósica, na amostra de Papel ST após o ensaio de 28 dias.

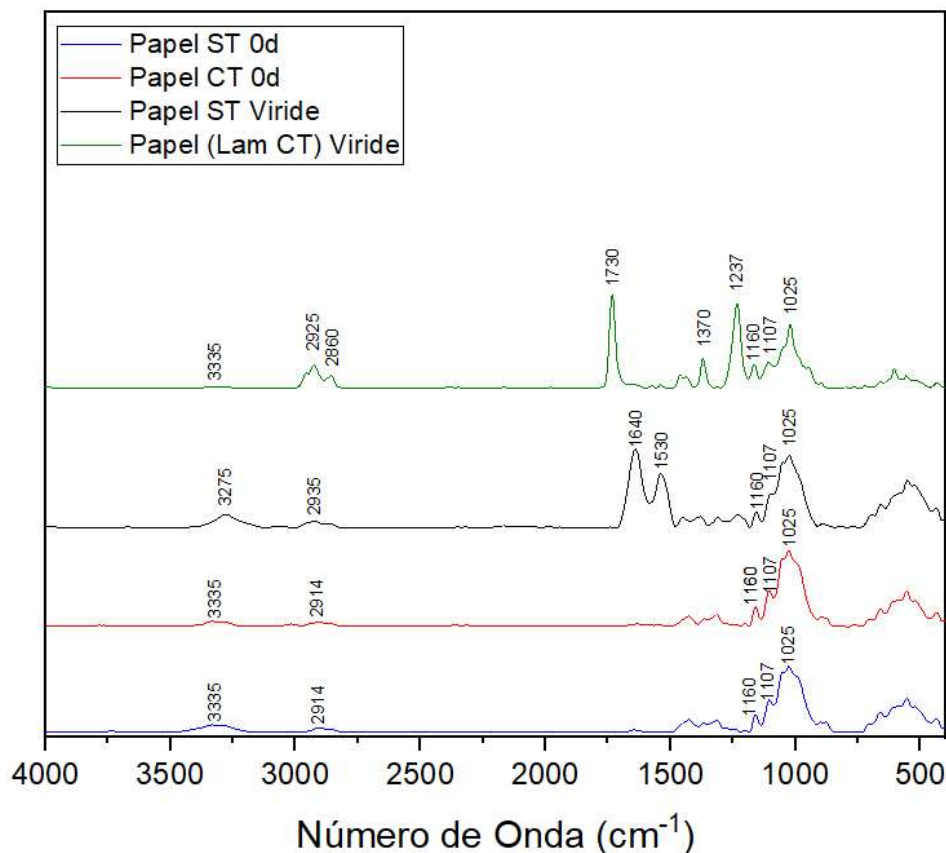
Figura 23: Micrografia obtida por MEV das amostras de Papel ST que passaram pelo ensaio de biodegradação com *T. viride*



Fonte: A Autora, 2025

A Figura 24 apresenta os espectros FTIR das amostras de filme de celulose. Em todas as amostras, pode-se encontrar as bandas características da celulose: bandas -OH ( $3300-3400\text{ cm}^{-1}$ ), e bandas de C-O na região  $1200-900\text{ cm}^{-1}$  (LEE et al., 2014; POPESCU et al., 2009; XIAO et al., 2015).

Figura 24: FTIR das amostras de Papel ST, Papel CT, Papel ST Viride, Papel (Lam CT) Viride ao final dos 28 dias de ensaio de biodegradação com *T. viride*



Fonte: A Autora, 2025

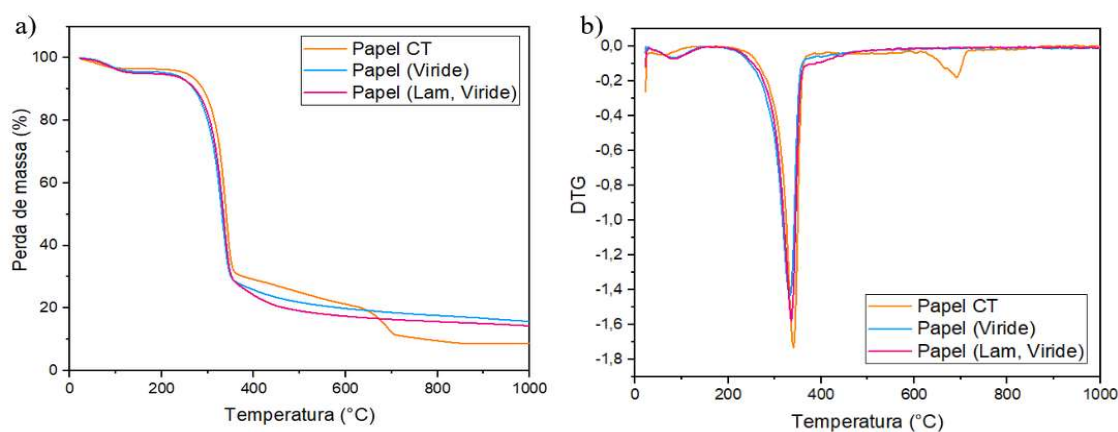
Nas amostras não-biodegradadas, é possível identificar as bandas de estiramento do -OH presentes nas fibras de celulose entre  $3300\text{-}3400\text{ cm}^{-1}$  (POPESCU et al., 2009). Nas amostras biodegradadas, a ausência da banda de estiramento do -OH pode ser atribuída ao consumo ou lixiviação da fração superficial de celulose e/ou ao mascaramento da superfície por biofilme micelial, que altera o sinal superficial detectado por FTIR (LIPSAA et al, 2016; QI et al, 2017).

Os picos observados em  $1640\text{ cm}^{-1}$  e  $1530\text{ cm}^{-1}$  na amostra Papel ST Viride é atribuível à banda Amida II (N-R dobramento/C-N estiramento), indicando presença de biomassa fúngica aderida à superfície das amostras (SILVERSTEIN et al., 2005; LIPSAA et al, 2016). Fortalecendo essa teoria, pode-se observar uma banda larga nesta mesma amostra em  $3275\text{ cm}^{-1}$ , atribuível ao estiramento N-H que, em amostras sólidas, pode ser encontrada na faixa de  $3350\text{ cm}^{-1}$  a  $3180\text{ cm}^{-1}$  devido às pontes de hidrogênio (SILVERSTEIN et al., 2005). Sua baixa intensidade indica pouca quantidade de matéria (STUART et al., 2004).

Na amostra Papel (Lam CT) Viride, é possível observar um pico em  $1730\text{ cm}^{-1}$  e um pico em  $1237\text{ cm}^{-1}$ . Esses dois picos, acompanhados da ausência das demais bandas amídicas, sugere que as absorções observadas são devidas a grupos éster/carbonila e estiramentos C-O associados, com bandas de estiramento entre  $1850\text{-}1600\text{ cm}^{-1}$  para C=O (SILVERSTEIN et al., 2005). Associando esses picos ao alargamento/deslocamento das bandas C-H ( $2900\text{-}2850\text{ cm}^{-1}$ ) e à atenuação da banda O-H ( $3300\text{-}3400\text{ cm}^{-1}$ ), pode-se observar o efeito da película superficial de cola à base de EVA aplicada antes da laminação. As unidades vinil acetato conferem carbonilas éster (C=O) com uma banda em torno de  $1725\text{-}1740\text{ cm}^{-1}$ , e estiramentos assimétricos O-C-O na região  $1250\text{-}1200\text{ cm}^{-1}$ , enquanto as unidades etileno fornecem sinais alifáticos que sobrepõem e alargam as vibrações C-H do substrato (DESAI et al., 2022).

Na análise TGA/DTG das amostras de filme de celulose (Figura 25), observou-se a desapareção do evento térmico em aproximadamente  $700^\circ\text{C}$ , relacionado ao carbonato de cálcio, nas amostras que passaram pelo ensaio, indicando lixiviação da substância devido o meio líquido do ensaio.

Figura 25: a) TG e b) DTG das amostras de Papel CT, Papel ST Viride, Papel (Lam CT) Viride ao final dos 28 dias de ensaio de biodegradação com *T. viride*



Fonte: A Autora, 2025

## 6. CONCLUSÃO

O presente trabalho desenvolveu uma embalagem multicamada sustentável à base de blenda de poli(ácido lático) e filme de celulose (papel), que demonstrou que a modificação superficial da celulose com TEVS (*triethoxysilane-ethylene*) é uma opção eficiente para aumentar a adesão interfacial, a hidrofobicidade e as propriedades de barreira do filme laminado. Os resultados mostraram que o tratamento com organosilano em pH 4 e 2,5% foi a condição mais eficaz, promovendo uma superfície hidrofóbica no papel com ângulo de contato superior a 90°, redução de 22,5% na permeabilidade ao vapor de água e aumento de 19,8% na resistência mecânica quando comparadas as amostras de laminado de uma camada sem e com tratamento. A variação da concentração do organosilano demonstrou influência direta sobre a força de delaminação da embalagem, sendo observado, para o filme de uma laminação, aumento da propriedade à medida que se elevou a concentração do impermeabilizante, especialmente na condição de pH 4, que aumentou em cerca de 42,8% quanto comparado com o filme não tratado. Nas estruturas de dupla laminação, avaliadas apenas com tratamento de pH 4 e 2,5%, a tensão máxima aumentou em 16,68%, bem se observa o aumento da propriedade de barreira e redução expressiva na WVTR e WTP.

Nas análises estatísticas ANOVA, a significância observada nos fatores pH e concentração, junto dos modelos lineares obtidos, evidencia que ambos os parâmetros têm efeito direto sobre a força de delaminação e sobre a tensão máxima. O teste de Tukey apontou significância apenas no parâmetro da força de delaminação para o filme tratado com solução pH4 e 2,5% TEVS. Isso, aliado à ausência de significância para o módulo de elasticidade na faixa estudada e detecção de curvatura no modelo, indica que ajustes experimentais futuros deverão considerar planejamentos de ordem superior.

As análises físico-químicas, mecânicas e morfológicas reforçam o papel central do silano na reatividade e no desempenho do laminado. A confirmação das ligações Si-O-C e Si-O-Si no FTIR, associadas à maior uniformidade superficial observada no MEV, explica o aumento das propriedades mecânicas e de barreira. Da mesma forma, a redução de permeabilidade observada nos laminados tratados está de acordo com a diminuição da porosidade superficial relatada na literatura e encontrada nos experimentos deste trabalho.

Os estudos de degradação em solo e com *Trichoderma viride* confirmaram que a presença de tratamento não influencia a biodegradação do compósito, e que a camada celulósica até acelera o fenômeno. No entanto, o tempo de ensaio no estudo em degradação em solo foi insuficiente para avaliar a degradação da blenda de PLA. Em estudos futuros, sugere-se aumentar o período de teste.

O desempenho superior dos laminados tratados, especialmente na configuração de tratamento pH 4 e 2,5%, aliado com a manutenção da biodegradabilidade das amostras tratadas, mostra que é possível encontrar um ponto ótimo das condições de tratamento para aumentar rigidez, resistência e facilitar a processabilidade. A redução da permeabilidade ao vapor de água, associada ao ganho de resistência mecânica e à manutenção da biodegradabilidade, indica que os laminados desenvolvidos apresentam potencial para aplicação em embalagens flexíveis destinadas a alimentos com baixo teor de umidade. Em outras palavras, o uso de organosilanos para aprimorar laminados de papel e blenda PLA/amido surge como uma alternativa ambientalmente mais adequada aos plásticos convencionais, especialmente em produtos com alta geração de resíduos pós-consumo, como é para o caso do mercado de embalagens flexíveis.

## **7. SUGESTÕES PARA TRABALHOS FUTUROS**

Avaliar mais parâmetros de pH e concentração de Silano

Expandir o tempo de ensaios de biodegradação, principalmente o do solo simulado

Estimar propriedades de permeabilidade a gordura, migração e toxicidade

Realizar laminação e os mesmos ensaios com polímeros convencionais (por exemplo, polietileno), e comparar os resultados lado a lado com a blenda de PLA

Avaliar o processo de solda do compósito formado

## REFERÊNCIAS

- ABEDI, E.; Mohammad, S.; Hashemi, B. Lactic acid production - producing microorganisms and substrates sources-state of art. **Heliyon**, 2020, v. 6. <https://doi.org/10.1016/j.heliyon.2020.e04974>
- ALDANA, D.S.; Villa, E.D.; De Dios Hernández, M.; Sánchez, G.G.; Cruz, Q.R.; Gallardo, S.F.; Castillo, H.P.; Casarrubias, L.B. Barrier Properties of Polylactic Acid in Cellulose Based Packages Using Montmorillonite as Filler. **Polymers**, v. 6, n. 9, p. 2386-2403, 2014. <https://doi.org/10.3390/polym6092386>.
- ALIAS, A.R.; Khairul Wan, M.; Sarbon N.M. Emerging materials and technologies of multi-layer film for food packaging application: A review. **Food Control**, v. 136, 2022. <https://doi.org/10.1016/j.foodcont.2022.108875>
- ANUKIRUTHIKA T.; Sethupathy P.; Wilson A.; Kashampur K.; Moses J.A.; Anandharamakrishnan C. Multilayer packaging: Advances in preparation techniques and emerging food applications. **Compr Rev Food Sci Food Saf**. 2020; 19: 1156–1186. <https://doi.org/10.1111/1541-4337.12556>.
- ASIM, N.; Badiei, M.; Mohammad, M. Recent advances in cellulose-based hydrophobic food packaging. **Emergent Materials** v. 5, p. 703–718, 2022. <https://doi.org/10.1007/s42247-021-00314-2>
- BANERJEE, A.; Borah, A.; Chah, C. N.; Dhal, M. K.; Madhu, K.; Katiyar, V.; Sekharan, S. Decoding the complex interplay of biological and chemical factors in Polylactic acid biodegradation: A systematic review. **Int. J. Biol. Macromol.**, v. 282, 2024. <https://doi.org/10.1016/j.ijbiomac.2024.136956>
- BOZ, Z.; Korhonen, V.; Sand, C. K. Consumer Considerations for the Implementation of Sustainable Packaging: A Review. **Sustainability**, v. 12, 2020. <https://doi.org/10.3390/su12062192>.
- CARNEIRO, A.R.C.; De Souza, F.F.A.; Houmard, M. Easy functionalization process applied to develop super-hydrophobic and oleophobic properties on ASTM 1200 aluminum surface. **Surface and Interface Analysis**, v. 50, n. 12–13, p. 1370–1383, 2018.
- CETIN, M. S.; Aydogdu, R.B.; Toprakci, O. Karahan Toprakci, H. A. Sustainable, Tree-Free, PLA Coated, Biodegradable, Barrier Papers from Kendir (Turkish Hemp).

**Journal of Natural Fibers**, v. 19, n. 16, p. 13802-13814, 2022.  
<https://doi.org/10.1080/15440478.2022.2107140>.

CHANDA, M. Chemical aspects of polymer recycling. **Advanced Industrial and Engineering Polymer Research**, v. 3, p. 133-150, 2021.  
<https://doi.org/10.1016/j.aiepr.2021.06.002>

CHEN, H.; Wang, B.; Li, J.; Ying, G.; Chen, K., High-strength and super-hydrophobic multilayered paper based on nano-silica coating and micro-fibrillated cellulose, **Carbohydrate Polymers**, Volume 288, 2022, 119371, ISSN 0144-8617,  
<https://doi.org/10.1016/j.carbpol.2022.119371>.

CHOU, C.T.; Shi, S.C.; Chen, C.K. Sandwich-Structured, Hydrophobic, Nanocellulose-Reinforced Polyvinyl Alcohol as an Alternative Straw Material. **Polymers**, v. 13, 2021.  
<https://doi.org/10.3390/polym13244447>

CODARI, F.; Lazzari, S.; Soos, M.; Storti, G.; Morbidelli, M.; Moscatelli, D. Kinetics of the hydrolytic degradation of poly(lactic acid). **Polymer Degradation and Stability**, v. 19, n. 11, p. 2460-2466, 2012.  
<https://doi.org/10.1016/j.polymdegradstab.2012.06.026>.

DALAS, E.; Klepetsanis, P. G.; Koutsoukos, P. G. Calcium Carbonate Deposition on Cellulose. **Journal of Colloid and Interface Science**, v. 224, p. 56-62, 2000.  
<https://doi.org/10.1006/jcis.1999.6670>

DAS, T.; Das, N.; Zuthi, F. R.; Pal, S. K.; Kraft, E.; Haupt, T.; Kuehlewindt, S. Plastic Waste in Marine Ecosystems: Identification Techniques and Policy Interventions. **Water Air Soil Pollut**, 2025. <https://doi.org/10.1007/s11270-025-08092-x>.

DESAI, U.; Sharma, B.K.; Singh, A.; Singh, A. A comparison of evolution of adhesion mechanisms and strength post damp-heat aging for a range of VA content in EVA encapsulant with photovoltaic backsheets. **Solar Energy**, v. 231, p. 908-920, 2022.  
<https://doi.org/10.1016/j.solener.2021.12.031>

DHALI, K.; Daver, F.; Cass, P.; Adhikari, B. Surface modification of the cellulose nanocrystals through vinyl silane grafting. **International Journal of Biological Macromolecules**. **International Journal of Biological Macromolecules**, v. 200, p. 397–408, 2022. <https://doi.org/10.1016/j.ijbiomac.2022.01.079>

DJUKIĆ-VUKOVIĆ, A.; Mladenović, D.; Ivanović, J.; Pejin, J.; Mojović, L. Towards sustainability of lactic acid and poly-lactic acid polymers production. **Renewable and**

**Sustainable Energy Reviews**, v. 108, p. 238-252, 2019. <https://doi.org/10.1016/j.rser.2019.03.050>.

DU, J.; Xu, S.; Zhou, Q.; Li, H.; Fu, L.; Tang, J.; Wang, Y.; Peng, X.; Xu, Y.; Du, X. A review of microplastics in the aquatic environment: distribution, transport, ecotoxicology, and toxicological mechanisms. **Environmental Science and Pollution Research**, v. 27, p. 11494-11505, 2020. <https://doi.org/10.1007/s11356-020-08104-9>.

DU, X.; Zhang, X.; Hou, L.; Cheng, Y.; Chen, L.; Chen, X.; Zhang, M.; Mo, L.; Zhang, H. CNC-reinforced regenerated cellulose coating: A novel approach to enhancing barrier and mechanical properties of cellulose-based packaging. **Progress in Organic Coatings**, v. 200, 2025. <https://doi.org/10.1016/j.porgcoat.2025.109082>

ELSAWY, M.A.; Kim, K.H.; Park, J.W.; Deep, A. Hydrolytic degradation of polylactic acid (PLA) and its composites. **Renewable and Sustainable Energy Reviews**, v. 79, p. 1346-1352, 2017. <https://doi.org/10.1016/j.rser.2017.05.143>.

EMBLEM, A.; Emblem, H. Packaging Technology. **Woodhead Publishing**, 2012.

FELDMAN, D. Polymer History. **Designed Monomers and Polymers**, v. 11, p. 1, 1-15, 2008. <https://doi.org/10.1163/156855508X292383>.

GADHAVE, R.V.I.; Gadhave, C.R. Adhesives for the Paper Packaging Industry: An Overview. **Open Journal of Polymer Chemistry**, v. 12, p. 55-79, 2022. <https://doi.org/10.4236/ojpcem.2022.122004>.

GANICZ, T.; Olejnik, K.; Rózga-Wijas, K.; Kurjata, J. New method of paper hydrophobization based on starch-cellulose-siloxane interactions. **BioResources**, v. 15, p. 4124-4142, 2020.

GRZEBIENIARZ, W.; Biswas, D.; Roy, S.; Jamróz, E. Advances in biopolymer-based multi-layer film preparations and food packaging applications. **Food Packaging and Shelf Life**, v. 35, 2023. <https://doi.org/10.1016/j.fpsl.2023.101033>

GUPTA, V.; Biswas, D.; Roy, S. A Comprehensive Review of Biodegradable Polymer-Based Films and Coatings and Their Food Packaging Applications. **Materials**, v. 15, 2022. <https://doi.org/10.3390/ma15175899>.

GÜRLER, N.; Paşa, S.; Temel, H. Silane doped biodegradable starch-PLA bilayer films for food packaging applications: Mechanical, thermal, barrier and biodegradability properties. **Journal of the Taiwan Institute of Chemical Engineers**, v. 123, p. 261-271, 2021. <https://doi.org/10.1016/j.jtice.2021.05.030>.

GUSTAVO, J. U. Jr.; Pereira, G. M.; Bond, A. J.; Viegas, C. V.; Borchardt, M. Drivers, opportunities and barriers for a retailer in the pursuit of more sustainable packaging redesign. **Journal of Cleaner Production**, v. 187, p. 18-28, 2018. <https://doi.org/10.1016/j.jclepro.2018.03.197>.

GWON, J.G.; Lee, S.Y.; Doh, G.H.; Kim, J.H. Characterization of chemically modified wood fibers using FTIR spectroscopy for biocomposites. **Journal of Applied Polymer Science**, v. 116, p. 3212-3219, 2010. <https://doi.org/10.1002/app.31746>

HE, M.; Hsu, Y.I.; Uyama, H. Superior sequence-controlled poly(L-lactide)-based bioplastic with tunable seawater biodegradation. **Journal of Hazardous Materials**, v. 474, 2024. <https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2024.134819>

HUAG, K.; Wang, Y. Recent applications of regenerated cellulose films and hydrogels in food packaging. **Current Opinion in Food Science**, v. 43, p. 7-17, 2022. <https://doi.org/10.1016/j.cofs.2021.09.003>

HUANG, S.; Wang, H.; Ahmad, W.; Ahmad, A.; Ivanovich, N.V.; Mohamed, A. M.; Deifalla, A.F.; Mehmood, I. Plastic Waste Management Strategies and Their Environmental Aspects: A Scientometric Analysis and Comprehensive Review. **International Journal of Environmental Research and Public Health**, v. 19, p. 4556-4587, 2022. <https://doi.org/10.3390/ijerph19084556>.

IBRAHIM, I D.; Hamam, Y.; Sadiku, E.R.; Ndambuki, J.M.; Kupolati, W.K.; Jamiru, T.; Eze, A.A.; Snyman, J. Need for Sustainable Packaging: An Overview. **Polymers**, v. 14, 2022. <https://doi.org/10.3390/polym14204430>

ICART, L.P.; Fernandes, E.; Agüero, L.; Cuesta, M.Z.; Silva, D.Z.; Rodríguez-Fernández, D.E., Souza Jr.; F.G., Lima, L.M.T.R.; Dias, M.L. End Functionalization by Ring Opening Polymerization: Influence of Reaction Conditions on the Synthesis of End Functionalized Poly(lactic Acid). **Journal of the Brazilian Chemical Society**, v. 29, n. 1, p. 99-108, 2018. <https://doi.org/10.21577/0103-5053.20170118>.

JARERAT, A.; Tokiwa, Y. Degradation of Poly(L-lactide) by a Fungus. **Macromol. Biosci.** v.1, 2001. [doi.org/10.1002/1616-5195\(20010601\)](https://doi.org/10.1002/1616-5195(20010601)1:1<1001::AID-MOLB1001>3.0.CO;2-1)

JESTRATIJEVIC, I.; Maystorovich, I.; Vrabic-Brodnjak, U. The 7 Rs sustainable packaging framework: Systematic review of sustainable packaging solutions in the apparel and footwear industry. **Sustainable Production and Consumption**, v. 30, p. 331-340, 2022. <https://doi.org/10.1016/j.spc.2021.12.013>

- JHA, S.; Akula, B.; Enyioma, H.; Novak, M.; Amin, V.; Liang, H. Biodegradable Biobased Polymers: A Review of the State of the Art, Challenges, and Future Directions. **Polymers**, v. 16, 2024. <https://doi.org/10.3390/polym16162262>
- JIANG, X.; Li, Q.; Li, X.; Meng, Y.; Ling, Z.; Ji, Z.; Chen, F. Preparation and Characterization of Degradable Cellulose-Based Paper with Superhydrophobic, Antibacterial, and Barrier Properties for Food Packaging. **International Journal of Molecular Science**, v. 23, 2022. <https://doi.org/10.3390/ijms231911158>
- JING, M.; Zhang, L.; Fan, Z.; Liu, X.; Wang, Y.; Liu, C.; Shen, C. Markedly improved hydrophobicity of cellulose film via a simple onestep aminosilane-assisted ball milling. **Carbohydrate Polymers**, v. 275, p. 118701, 2022. <https://doi.org/10.1016/j.carbpol.2021.118701>
- KABIR, M.S.; Wang, H.; Luster-Teasley, S.; Zhang, L.; Zhao, R. Microplastics in landfill leachate: Sources, detection, occurrence, and removal. **Environmental Science and Ecotechnology**, v. 16, 2023. <https://doi.org/10.1016/j.ese.2023.100256>
- KERVAN, M.; Vagner, C.; Cochez, M.; Ponçot, M.; Saeb, M.R.; Vahabi, H. A review on thermal degradation of polylactic acid (PLA)/polyhydroxybutyrate (PHB) blends. **Polymer Degradation and Stability**, v. 201, 2022. <https://doi.org/10.1016/j.polymdegradstab.2022.109995>
- KHANJANZADEHA, H.; Behrooz, R.; Bahramifar, N.; Gindl-Altmutter, W.; Bacher, M.; Edler, M.; Griesser, T. Surface chemical functionalization of cellulose nanocrystals by 3-aminopropyltriethoxysilane. **International Journal of Biological Macromolecules**, v. 106, p. 1288-1296, 2017. <http://dx.doi.org/10.1016/j.ijbiomac.2017.08.136>
- KOZIK, N. Sustainable packaging as a tool for global sustainable development. **SHS Web of Conferences**, v. 74, 2019. <https://doi.org/10.1051/shsconf/20207404012>.
- LASPRILLA, A.J.R.; Martinez, G.A.R.; Lunelli, B.H.; Jardini, A.L.; Filho, R.M. Polylactic acid synthesis for application in biomedical devices - A review. **Biotechnology Advances**, v. 30, n. 1, p. 321-328, 2012. <https://doi.org/10.1016/j.biotechadv.2011.06.019>.
- LEE, J.A.; Yoon, M.J.; Lee, E.S.; Lim, D.Y.; Kim, K.Y. Preparation and characterization of cellulose nanofibers (CNFs) from microcrystalline cellulose (MCC)

and CNF/polyamide 6 composites. **Macromolecular Research**, v. 22, n. 7, p. 738–745, 2014. <https://doi.org/10.1007/s13233-014-2121-y>

LI, J.; Zhang, F.; Zhong, Y.; Zhao, Y.; Gao, P.; Tian, F.; Zhang, X.; Zhou, R.; Cullen, P. J. Emerging Food Packaging Applications of Cellulose Nanocomposites: A Review. **Polymers**, v. 14, 4025, 2022. <https://doi.org/10.3390/polym14194025>

LI, G.; Zhao, M.; Xu, F.; Yang, B.; Li, X.; Meng, X.; Teng, L.; Sun, F.; Li, Y. Synthesis and Biological Application of Polylactic Acid. **Molecules**, v. 25, 2023. <https://doi.org/10.3390/molecules25215023>

LI, T.; Theodosopoulos, G.; Lovell, C.; Loukodimou, A.; Maniam, K.K.; Paul, S. Progress in Solvent Based Recycling of Polymers from Multilayer Packaging. **Polymers**, v.16, 2024. <https://doi.org/10.3390/polym16121670>.

LIPSAA, R.; Tudorachi, N.; Darie-Nita, R. N.; Oprica, L.; Vasilea, C.; Chiriac, A. Biodegradation of poly(lactic acid) and some of its based systems with *Trichoderma viride*. **International Journal of Biological Macromolecules**, v. 88, p. 515-526, 2016. <https://doi.org/10.1016/j.ijbiomac.2016.04.017>

LIU, X.; Qin, Z.; Ma, Y.; Liu, H.; Wang, X. Cellulose-Based Films for Food Packaging Applications: Review of Preparation, Properties, and Prospects. **Journal of Renewable Materials**, v. 11, p. 3203-3225, 2023. <https://doi.org/10.32604/jrm.2023.027613>

MARANO, S.; Laudadio, E.; Minnelli, C.; Stipa, P. Tailoring the Barrier Properties of PLA: A State-of-the-Art Review for Food Packaging Applications. **Polymers**, v. 14, 2022. <https://doi.org/10.3390/polym14081626>

MEHERISHI, L.; Narayana, S.A.; Ranjani, K.S. Sustainable packaging for supply chain management in the circular economy: A review. **Journal of Cleaner Production**, v. 237, 2019. <https://doi.org/10.1016/j.jclepro.2019.07.057>

MOHAMMADZADEH, A.; Barletta, M.; Gisario, A. Manufacturing of cellulose-based paper: dynamic water absorption before and after fiber modifications with hydrophobic agents. **Appl. Phys. A**, v. 126, (2020). <https://doi.org/10.1007/s00339-020-03577-4>.

MOTIEI, P.; Pecchi, M.; Adair, J.L.; Goldfarbb, J.L.; O'Connor, J. Pairing combustion experiments and thermogravimetric analysis to uncover timescales controlling cellulose ignition and burnout in a Hencken burner. **Combustion and Flame**, v. 258 (113092), 2023. <https://doi.org/10.1016/j.combustflame.2023.113092>

MUJTABA, M.; Lipponen, J.; Ojanen, M.; Puttonen, S.; Vaittinen, H.; Trends and challenges in the development of bio-based barrier coating materials for paper/cardboard food packaging; a review, **Science of The Total Environment**, v. 851, 2022, <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2022.158328>.

MUÑOZ, R.C.; Castillo, H.S.V.; Concha, J.L.H.; Duque, F.S.. Aerobic biodegradation of poly(lactic acid) (PLA) in thermoplastic starch (TPS) blends in soil induced by gelatin. **International Biodeterioration & Biodegradation**, v. 195, 2024. <https://doi.org/10.1016/j.ibiod.2024.105831>

NABELS-SNEIDERS, M.; Platnieks, O.; Grase, L.; Gaidukovs, S. Lamination of Cast Hemp Paper with Bio-Based Plastics for Sustainable Packaging: Structure-Thermomechanical Properties Relationship and Biodegradation Studies. **J. Compos. Sci.**, v. 6, 2022. <https://doi.org/10.3390/jcs6090246>.

NAGY, B.; Miskolczi, N.; Eller, Z. Improving Mechanical Properties of PLA/Starch Blends Using Masterbatch Containing Vegetable Oil Based Active Ingredients. **Polymer**, v. 13, 2021. <https://doi.org/10.3390/polym13172981>

NEVES, R.M.; Ornaghi Jr., H.L.; Zatterac, A.J.; Amico, S.C. The influence of silane surface modification on microcrystalline cellulose characteristics. **Carbohydrate Polymers**, v. 230, 2020. <https://doi.org/10.1016/j.carbpol.2019.115595>

NING, S.; Tian, G.; Yang, F. Bionic silanized cellulose superhydrophobic paper for efficient oil-water separation. **Separation and Purification Technology**, v. 353, 2025. <https://doi.org/10.1016/j.seppur.2024.128523>

NIU, Y.; Pan, F.; Shen, K.; Yang, X.; Niu, S.; Xu, X.; Zhou, H.; Fu, Q.; Li, X. Status and Enhancement Techniques of Plastic Waste Degradation in the Environment: A Review. **Sustainability**, v. 16, 2024. <https://doi.org/10.3390/su16219395>

NOWAK, T.; Mazela, B.; Olejnik, K.; Peplinska, B.; Perdoch, W. Starch-Silane Structure and Its Influence on the Hydrophobic Properties of Paper. **Molecules**, v. 27, 2022. <https://doi.org/10.3390/>

PAL, M.; Devrani, M.; Hadush, A. Recent developments in food packaging technologies. **Beverage & Food World**, v. 48, p. 21-25, 2019.

PERDOCH, W.; Nowak, T.; Olejnik, K.; Sustainable hydrophobization of paper and packaging for road transport of dangerous goods - surface treatment with silane-

modified starch. **Progress in Organic Coatings**, v. 205, 2025. <https://doi.org/10.1016/j.porgcoat.2025.109312>.

PLASTICS Europe AISBL. The Circular Economy for Plastics: A European Overview. 2025.

PONSONI, L.V.; Almeida, M.K.; Tomé, B.; Maurmann, N.; Kern, A.L.; Pranke, P.; Arcaro, S.; Merillas, B.; Zimmermann, M.V.G. Scaffolds based on organosilane-functionalized cellulose microfibrillated cryogels for 3D cell culture in extracellular matrix. **Cellulose**, v. 32, p. 8419-8433, <https://doi.org/10.1007/s10570-025-06732-3>

POPESCU, C.M.; Singurel, G.; Popescu, M.C.; Vasile, C.; Argyropoulos, D.; Willför, S. Vibrational spectroscopy and X-ray diffraction methods to establish the differences between hardwood and softwood. **Carbohydrate Polymers**, v. 77, n. 4, p. 851–857, 2009. <https://doi.org/10.1016/j.carbpol.2009.03.011>

QI, X.; Ren, Y.; Wang, X. New advances in the biodegradation of Poly(lactic) acid. **International Biodeterioration & Biodegradation**, v. 117, p. 215-223, 2017. <http://dx.doi.org/10.1016/j.ibiod.2017.01.010>

RAFEY, A.; Siddiqui, F.Z. A review of plastic waste management in India: challenges and opportunities. **International Journal of Environmental Analytical Chemistry**, v. 103, n. 16, p. 3971-3987, 2023. <https://doi.org/10.1080/03067319.2021.1917560>.

REICHERT, C.L.; Bugnicourt, E.; Coltelli, M.B.; Cinelli, P.; Lazzeri, A.; Canesi, I.; Braca, F.; Martínez, B.M.; Alonso, R.; Agostinis, L. Bio-Based Packaging: Materials, Modifications, Industrial Applications and Sustainability. **Polymers**, v. 12, 2020.. <https://doi.org/10.3390/polym12071558>.

RIVERO, S.; Lecot, J.; Pinotti, A. Impregnation of kraft paper support with polylactic acid multilayers. **Advanced Materials Letters**, v. 8, n. 6, p. 741-751, 2017. <http://dx.doi.org/10.5185/amlett.2017.7107>.

RUDNIK, E.; Briassoulis, D. Degradation behaviour of poly(lactic acid) films and fibres in soil under Mediterranean field conditions and laboratory simulations testing. **Ind. Crops Prod.**, v. 33, 2011. <https://doi.org/10.1016/j.indcrop.2010.12.031>

SAEDI, S.; Garcia, C. V.; Kim, J.T.; Shin, G.H. Physical and chemical modifications of cellulose fibers for food packaging applications. **Cellulose**, v. 28, p. 8877–8897, 2021. <https://doi.org/10.1007/s10570-021-04086-0>

SCHYNS, Z.O.G.; Shaver, M.P. Mechanical Recycling of Packaging Plastics: A Review. *Macromol. Rapid Commun.*, v. 42, 2021. <https://doi.org/10.1002/marc.202000415>.

SHAIKH, S.; Yaqoob, M.; Aggarwal, P. An overview of biodegradable packaging in food industry. *Current Research in Food Science*, v. 4, p. 503-520, 2021. <https://doi.org/10.1016/j.crfs.2021.07.005>.

SILVERSTEIN, R.M.; Webster, F.X.; Kiemle, D.J.; Bryce, D.L. Spectrometric Identification of Organic Compounds. 7th ed.; **John Wiley & Sons**: Hoboken, 2005.

STUART, B.H. Infrared Spectroscopy: Fundamentals and Applications. **John Wiley & Sons**, 2004.

SUNDAR, N.; Stanley, S.J.; Kumar, S.A.; Keerthana, P.; Kumar, G.A. Development of dual purpose, industrially important PLA–PEG based coated abrasives and packaging materials. *J. Appl Polym Sci.*, v. 138 2021. <https://doi.org/10.1002/app.50495>

TRINH, B.M.; Chang, C.C.; Mekonnen, T.H. Facile fabrication of thermoplastic starch/poly (lactic acid) multilayer films with superior gas and moisture barrier properties, *Polymer*, Volume 223, 2021, 123679, ISSN 0032-3861, <https://doi.org/10.1016/j.polymer.2021.123679>.

ÜGDÜLER, S.; De Somer, T.; Van Geem, K.M.; Roosen, M.; Kulawig, A.; Leineweber, R.; De Meester, S. Towards a Better Understanding of Delamination of Multilayer Flexible Packaging Films by Carboxylic Acids. *ChemSusChem*, v. 14, p. 4198-4213, 2021. <https://doi.org/10.1002/cssc.202002877>

VERMA, M.K.; Shakya, S.; Kumar, P.; Madhavi, J.; Murugaiyan, J.; Rao, M.V.R. Trends in packaging material for food products: historical background, current scenario, and future prospects. *Journal Food Scientists & Technologists*, v. 58, n. 11, p. 4069–4082, 2021. <https://doi.org/10.1007/s13197-021-04964-2>.

WANG, Y.; Ju, J.; Diao, Y.; Zhao, F.; Yang, Q. The application of starch-based edible film in food preservation: a comprehensive review. *Food Science and Nutrition*, v. 65, p. 2731-2764. <https://doi.org/10.1080/10408398.2024.2349735>

XIAO, S.; Gao, R.; Lu, Y.; Li, J.; Sun, Q. Fabrication and characterization of nanofibrillated cellulose and its aerogels from natural pine needles. *Carbohydrate Polymers*, v. 119, p. 202–209, 2015. <https://doi.org/10.1016/j.carbpol.2014.11.041>

XU, B.; Chen, Y.; He, J.; Cao, S.; Liu, J.; Xue, R.; Xin, F.; Qian, X.; Zhou, J.; Dong, W.; Jiang, M. New insights into the biodegradation of polylactic acid: from degradation to upcycling. **Environmental Reviews**, 2021. <https://doi.org/10.1139/er-2020-0117>

YAO, C.; Zhou, Y.; Jin, X.; Song, L.; Hu, Y.; Zeng, W. Thermogravimetric analysis and kinetics characteristics of typical grains. **Journal of Thermal Analysis and Calorimetry**, v. 143, p.647–659, 2021. <https://doi.org/10.1007/s10973-019-09213-5>

YENG, L.C.; Wahit, M.U., Othman, N. Thermal and flexural properties of regenerated cellulose(RC)/poly(3- hydroxybutyrate)(PHB)biocomposites. **Jurnal Teknologi**, v. 75, 2015. <https://doi.org/10.11113/jt.v75.5338>

ZAMIR, S.S.; Fathi, B.; Ajji, A.; Robert. M.; Elkoun, S.. Biodegradation of modified starch/poly lactic acid nanocomposite in soil. **Polym. Degrad. Stab.**, v. 199, 2022. <https://doi.org/10.1016/j.polymdegradstab.2022.109902>

ZHONG, Y.; Godwin, P.; Jin, Y.; Xiao, H. Biodegradable polymers and green-based antimicrobial packaging materials: A mini-review. **Advanced Industrial and Engineering Polymer Research**, v. 3, p. 27-35, 2020. <https://doi.org/10.1016/j.aiepr.2019.11.002>.

ZHUANG, D.; Chen, Z.; Sun, B. Thermal Decomposition of Calcium Carbonate at Multiple Heating Rates in Different Atmospheres Using the Techniques of TG, DTG, and DSC. **Crystals**, v. 15, 108, 2025. <https://doi.org/10.3390/cryst15020108>