



República Federativa do Brasil

Ministério do Desenvolvimento, Indústria,
Comércio e Serviços

Instituto Nacional da Propriedade Industrial



(21) BR 102025004719-5 A2

(22) Data do Depósito: 12/03/2025

(43) Data da Publicação Nacional:
22/09/2026

(54) **Título:** COMPOSIÇÃO DE ARGAMASSA DE CIMENTO PORTLAND COM O USO DE ÓXIDO DE GRAFENO FUNCIONALIZADO POR MEIO DE OCTA (AMINOPROPIL) SILSESQUIOXANO

(51) **Int. Cl.:** C04B 28/04; C04B 14/02; C04B 111/72.

(52) **CPC:** C04B 28/04; C04B 14/024; C04B 2111/72.

(71) **Depositante(es):** INSTITUTO FEDERAL DE EDUCAÇÃO, CIÊNCIA E TECNOLOGIA GOIANO; UNIVERSIDADE ESTADUAL PAULISTA JULIO DE MESQUITA FILHO.

(72) **Inventor(es):** ALEXSANDRO DOS SANTOS FELIPE; MATHEUS SILVA DE ARAUJO; DEVANEY RIBEIRO DO CARMO; CARLOS FREDERICO DE OLIVEIRA GRAEFF; SÉRGIO AUGUSTO MELLO DA SILVA.

(57) **Resumo:** COMPOSIÇÃO DE ARGAMASSA DE CIMENTO PORTLAND COM O USO DE ÓXIDO DE GRAFENO FUNCIONALIZADO POR MEIO DE OCTA (AMINOPROPIL) SILSESQUIOXANO. A presente invenção descreve uma nova utilização do óxido de grafeno como adição em argamassa de cimento Portland, sendo este funcionalizado por meio de octa (aminopropil) Silsesquioxano, obtendo-se assim, aumento de resistência a tração na flexão, aumento de resistência à compressão, retardo no calor de hidratação, menor produção de hidróxido de cálcio, maior formação de Silicato de Cálcio Hidratado (C-SH), menores índices de retração, baixa absorção de água e, portanto, maior densificação da matriz.

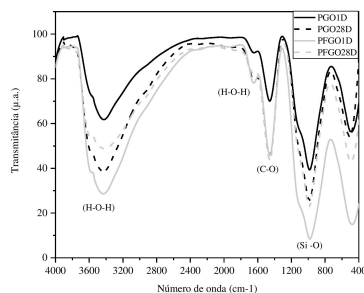


Figura 1

COMPOSIÇÃO DE ARGAMASSA DE CIMENTO PORTLAND COM O USO DE ÓXIDO DE GRAFENO FUNCIONALIZADO POR MEIO DE OCTA (AMINOPROPIL) SILSESQUIOXANO

Campo da invenção

[001] A presente invenção trata-se da utilização de óxido de grafeno funcionalizado por meio de octa (aminopropil) Silsesquioxano visando sua aplicação como adição em argamassa de cimento Portland, destinado principalmente ao uso no campo da Engenharia Civil, Ciência dos materiais e Química.

Fundamentos da invenção

[002] O uso de nanomateriais tem se expandido em diversas áreas do conhecimento. Na construção civil, essa tendência não é diferente, uma vez que há uma ampla gama de aplicações no aprimoramento de materiais já utilizados (MOUSAVI; MOUSAVI AJAROSTAGHI; BHOJARAJU, 2021; WANG et al., 2020). Com o objetivo de melhorar as propriedades das matrizes cimentícias, o uso de nanomateriais oferece benefícios à microestrutura podendo resultar em um aumento na resistência à compressão, tração e flexão, além de modificar a área superficial específica. Esses materiais também atuam como elementos de ligação em escalas nano e micro, contribuindo para características como porosidade, absorção de água e durabilidade (BHOJARAJU et al., 2021; ONAIZI et al., 2021).

[003] Pesquisas na área de tecnologias alternativas de materiais, com foco em matrizes cimentícias têm demonstrado bons resultados com a adição de óxido de grafeno (OG) (CHINTALAPUDI; PANNEM, 2020). Esse material se mostra promissor ao conferir ao cimento Portland propriedades como maior resistência à tração e compressão, maior resistência a ataques ácidos (CHINTALAPUDI; PANNEM, 2022), maior hidrofobicidade, melhores resistências térmicas (INDUKURI; NERELLA, 2021), redução da porosidade

(MOHAMMED et al., 2018) e influenciar positivamente na reação de hidratação do cimento (KANG et al., 2019).

[004] Com base nos benefícios comprovados do uso de OG em matrizes cimentícias, existem ainda formas de aprimorar essa composição por meio de técnicas de funcionalização que consistem no aprimoramento de uma molécula (núcleo) ao adicionar um grupo químico específico à sua superfície. O óxido de grafeno funcionalizado (OGF) já tem sido amplamente estudado e sua aplicação em matrizes cimentícias tem mostrado melhorias nas propriedades das misturas. Pesquisas recentes indicam que a adição de OGF utilizando silano em estruturas de concreto resultou em um aumento significativo na hidrofobicidade superficial dos substratos de cimento. Isso significa que a mistura apresentou uma redução considerável na absorção de água capilar, melhorando sua impermeabilidade. Além disso, observou-se um aumento na resistência ao ataque de íons cloreto e sulfato, tornando a estrutura mais adequada para ambientes marinhos (HOU et al., 2021).

[005] Entretanto, os efeitos do OGF não podem ser generalizados, pois dependem da mudança química estrutural introduzida, ou seja, o efeito varia conforme o grupo químico adicionado ao núcleo, o que determina as características desejadas na mistura. A inovação deste produto reside no desenvolvimento de uma argamassa de cimento Portland com a utilização de OGF por meio de octa (aminopropil) silsesquioxano.

[006] Para destacar a singularidade desta invenção em relação a outras patentes que abordam temas semelhantes, foi elaborada a Tabela 1, onde se observa que, embora o óxido de grafeno ou grafeno seja utilizado em matrizes cimentícias, nenhuma das patentes analisadas aplicam os benefícios do óxido de grafeno funcionalizado por meio de octa (aminopropil) silsesquioxano.

Tabela 1 - Patentes divergentes em objetivos

Autores	Patente	Breve descrição
MOYA; IZQUIERDO; LOPEZ, 2021	BR 112021007280-2 A2	Descreve uma composição de concreto com o uso de óxido de grafeno e distintas nanofibras de grafeno

XIANGGUO et al., 2017	CN 105294027 B	Descreve uma argamassa de cimento Portland com o uso de óxido de grafeno e álcool polivinílico (PVA)
CHRISTIANSEN et al., 2016	CA 2980168 C	Descreve um método de obtenção de flocos de grafeno, óxido de grafeno e óxido de grafeno reduzido podendo estes serem funcionalizados para a utilização com cimento portland, polipropileno, polietileno, policarbonato, cerâmica, etc.
NETTO et al., 2022	BR 102022010679-7 A2	Descreve métodos para obtenção de argamassas e/ou concretos com a utilização de grafeno como aditivos para essas matrizes depositantes.

Breve descrição dos desenhos

A Figura 1 apresenta a espectroscopia no infravermelho com transformada de Fourier para amostras de PGO1D, PGO28D, PFGO1D e PFGO28D.

A Figura 2 apresenta o difratograma para pastas na idade de 1 dia de cura.

A Figura 3 apresenta o difratograma para pastas na idade de 28 dias de cura.

A Figura 4 apresenta a micrografia de PREF1D (a), PGO1D (b) e PFGO1D (c), com aumento de 10kx.

A Figura 5 apresenta a micrografia de PGO28D (a) e PFGO28D (b), com aumento de 2kx.

A Figura 6 apresenta a micrografia de MREF28D, com o aumento de 500x (a) e aumento de 20kx (b).

A Figura 7 apresenta a micrografia de MFGO28D, com o aumento de 500x (a) e aumento de 20kx (b).

A Figura 8 apresenta a temperatura interna em relação ao tempo de amostras de pastas de cimento.

A Figura 9 apresenta as curvas de termogravimetria e termogravimetria derivada para amostra de PREF28D.

A Figura 10 apresenta as curvas de termogravimetria e termogravimetria derivada para amostra de PGO28D.

A Figura 11 apresenta as curvas de termogravimetria e termogravimetria derivada para amostra de PFGO28D.

A Figura 12 apresenta graficamente a presença de água quimicamente combinada, portlandita e calcita nas pastas após 28 dias.

A Figura 13 apresenta a curva de resistência à tração para as composições aos 7, 28 e 90 dias .

A Figura 14 apresenta a curva de resistência à compressão para as composições aos 7, 28 e 90 dias.

A Figura 15 apresenta a análise entre resistência à compressão e massa específica para as argamassas de cimento Portland aos 7 dias.

A Figura 16 apresenta a análise entre resistência à compressão e massa específica para as argamassas de cimento Portland aos 28 dias.

A Figura 17 apresenta a análise entre variação dimensional, resistência à compressão e massa específica, aos 7 dias.

A Figura 18 apresenta a análise entre variação dimensional, resistência à compressão e massa específica, aos 28 dias.

A Figura 19 apresenta a análise entre absorção de água e massa específica aos 7 dias.

A Figura 20 apresenta a análise entre absorção de água e massa específica aos 28 dias.

Descrição da invenção

[007] A presente invenção descreve uma nova utilização do óxido de grafeno como adição em argamassa de cimento Portland, sendo este funcionalizado por meio de octa (aminopropil) Silsesquioxano, obtendo-se assim aumento de resistência à tração na flexão, aumento de resistência à compressão, retardo no calor de hidratação, menor produção de hidróxido de cálcio, maior formação de Silicato de Cálcio Hidratado (C-S-H), menores índices de retração, baixa absorção de água e, portanto, maior densificação da matriz.

Aplicação em concreto de cimento Portland

[008] Para o preparo da argamassa, foi devidamente utilizado: Aglomerante (cimento tipo CP V-ARI), agregado miúdo (areia natural como agregado miúdo com massa específica de 2645 kg/m³. A mesma atende os requisitos presentes nas normas NBR 16916 (ABNT, 2021), NBR 16972 (ABNT, 2021), NBR NM 248 (ABNT, 2003) e NBR 6467 (ABNT, 2006)), água de amassamento (decorrente de abastecimento público, que é considerado adequada para uso de matriz de cimento e não necessita ser ensaiada conforme preconiza a NBR 15900-1 (ABNT, 2009)), aditivo químico superplastificante (baseado em policarboxilado ADVATM CAST 525 da marca Grace Construction ProductsTM) e adições de OG e OGF (q) (quando necessário).

[009] Para melhor entendimento dos reais benefícios que a utilização de óxido de grafeno por meio de octa (aminopropil) Silsesquioxano ocasiona em argamassas de cimento Portland, foram criadas, portanto, três tipos de composições, sendo elas: referência (MREF), utilizando óxido de grafeno (MGO) e utilizando óxido de grafeno por meio de octa (aminopropil) Silsesquioxano (MFGO). Na Tabela 2 é possível verificar as proporções de cada constituinte para cada argamassa.

Tabela 2 - Proporção de constituintes para a composição de argamassa

Composição	Cimento (g)	Areia (g)	a/c	Aditivo (%)	OG (%)	OGF (%)
MREF	571,42	1428,57	0,45	-	-	-

MGO	571,42	1428,57	0,45	0,2	0,03	-
MFGO	571,42	1428,57	0,45	0,2	-	0,03

* Medidas de "Aditivo", "OG" e "OGF" baseado em porcentagem de massa de cimento

[010] As adições de OG ou OGF se deram por meio da água de amassamento em conjunto ao aditivo químico para posterior adição do cimento e areia. Primeiramente, a quantidade de nanomaterial utilizado para a composição de argamassa foi devidamente pesado, em estado seco, após isso foi disposto em um béquer com a quantidade total de água de amassamento e aditivo químico. A mistura foi submetida ao disruptor de célula ultrassônico por um tempo total de 60 minutos com pulso repetitivo ao longo de 3 segundos e descanso de 3 segundos. A temperatura deste processo foi controlada e margeava entre 22 a 25 °C.

[011] Após a finalização do processo de sonicação, a mistura foi retirada do aparelho e deixado em repouso até a estabilização da temperatura. A água de amassamento perdida por meio da ebulição foi então recomposta e então a mistura pôde ser utilizada para a confecção da argamassa.

Exemplos de concretizações da invenção

Espectroscopia na Região do Infravermelho com Transformada de Fourier (FT-IR)

[012] O espectro de FT-IR para a amostra de pasta de óxido de grafeno na idade de 1 dia (PGO1D), pasta de óxido de grafeno na idade de 28 dias (PGO28D), pasta de óxido de grafeno funcionalizado na idade de 1 dia (PFGO1D) e pasta de óxido de grafeno funcionalizado na idade de 28 dias (PFGO28D), podem ser observadas na Figura 1. É possível notar que as bandas são muito parecidas e que houve um leve deslocamento entre elas. O pico que ocorre em torno de 3430 cm^{-1} e 1640 cm^{-1} são atribuídos para as vibrações de estiramentos característicos das moléculas de HOH, presentes nos silicatos de cálcio hidratado (LI et al., 2020; SIVAKUMAR; RAVIBASKAR, 2009). Já o pico que ocorre na região de 1456 cm^{-1} é devido a vibração do CO, que se refere a carbonatação na pasta (STEPKOWSKA et al., 2004). É importante ressaltar também a vibração de

estiramento em torno de 975 cm^{-1} que se refere a ligação Si-O, uma importante responsável pela formação do CSH, onde já é mais evidente e esperado para as amostras que contêm a funcionalização (YU et al., 2004).

Difração de Raios-X (DRX)

[013] O difratograma para pasta de referência na idade de 1 dia (PREF1D), PGO1D e PFGO1D podem ser observadas na Figura 2, enquanto na Figura 3 pode-se observar para pasta de referência na idade de 28 dias (PREF28D), PGO28D e PFGO28D. Nas mesmas imagens foram identificados compostos como a portlandita, etringita, calcita e silicato de cálcio hidratado (HOPPE FILHO et al., 2017; NASCIMENTO et al., 2023; RUPASINGHE et al., 2017; YAO; SONG; CHEN, 2023).

[014] Na Figura 2 pode-se observar que o pico de maior intensidade da portlandita que é compreendido entre $33,6^\circ$ e $34,6^\circ$, houve menor expressividade na pasta de referência, enquanto as pastas nas quais houve o acréscimo da nanomodificação em sua composição se mantiveram quase equivalentes. Entretanto, quando é observado na Figura 3 a mesma faixa para as pastas com a idade de 28 dias, observou-se que a pasta funcionalizada obteve uma menor intensidade, enquanto as demais se mantiveram equivalentes. O maior consumo de portlandita para PFGO28D dentre as três pastas estudadas aos 28 dias foi comprovado também nos ensaios de termogravimetria e termogravimetria derivado.

Microscopia Eletrônica de Varredura (MEV)

[015] As micrografias das pastas de cimento Portland para a idade de 1 dia de cura podem ser verificadas na Figura 4. Fica evidente uma maior compacidade na pasta com adição de óxido de grafeno funcionalizado (Figura 4 (c)) em comparação com as demais. A Figura 4 (b) reforça que o uso de óxido de grafeno resultou em densificação mesmo na ausência de funcionalizações específicas. A Figura 4 (a) reflete os resultados

mecânicos em idades mais avançadas, demonstrando uma menor densificação como observado na análise.

[016] Para melhor análise das pastas de cimento Portland, nas quais houveram a adição de OG e OGF em sua composição, foi realizado a micrografia para a idade de 28 dias de cura conforme apresentado na Figura 5 (a) e Figura 5 (b), respectivamente. Comparando as morfologias de ambas as pastas foi possível notar que PGOF28D apresentou ainda uma diferença na compacidade, compreendendo uma maior densificação quando comparada com PGO28D. Por outro lado, em PGO28D observou-se em uma região menos densa as formações mais evidentes do polimorfo da calcita, a vaterita. Apesar da formação desta calcita estar presente em ambas as pastas, essa foi mais evidente na pasta POG28D.

[017] Para ter um melhor entendimento e uma maior fonte comparativa entre as estruturas formadas com a utilização do OGF, foi realizada a microscopia para MREF28D, conforme pode ser observado na Figura 6, e MFGO28D, conforme demonstra a Figura 7. Para ambas as argamassas foram feitas uma ampliação de 20 kx na região circundada o que permitiu demonstrar que há a presença de uma descontinuidade na região do agregado miúdo com a pasta, porém é considerado algo natural.

[018] Para as micrografias das argamassas de cimento Portland, percebeu-se a continuidade dos resultados já exibidos pelas pastas quando ainda é nítido que a argamassa na qual houve a adição de OGF promoveu uma maior compacidade quando comparada à MREF28D. Esses ensaios de MEV complementam os resultados obtidos por meio dos ensaios mecânicos de tração na flexão e compressão, uma vez que também é verificado uma maior densificação na argamassa que foi beneficiada com óxido de grafeno funcionalizado.

Análise do calor liberado das pastas de cimento Portland

[019] O resultado obtido para o ensaio de análise do calor liberado das amostras de pasta de referência (PREF), pasta de óxido de grafeno (PGO) e pasta de óxido de grafeno funcionalizada (PFGO) pode ser visto na Figura 8, onde é apresentado a leitura apenas do sensor termopar localizado na parte interna do tubo de ensaio. De uma maneira geral, nas pastas estudadas observam-se padrões conforme o esperado, com algumas ressalvas.

[020] A adição de óxido de grafeno, tanto funcionalizado quanto não funcionalizado, nas pastas de cimento Portland promoveu um atraso nos picos exotérmicos para ambas as pastas, sendo esse atraso mais acentuado em PFGO. Os nanomateriais adicionados influenciaram o ambiente ao redor dos grãos de cimento devido à sua maior área superficial específica, tornando-o menos reativo nos tempos de 2,5 horas e 5 horas. A postergação continua na formação inicial de C-S-H, com os picos ocorrendo em torno de 10 horas e 14 horas, respectivamente. No entanto, de forma não convencional e contrária aos padrões observados na literatura, surge outro pico mais intenso por volta das 18,5 horas para a pasta PFGO. Isso indica uma continuidade mais intensa na formação de C-S-H, o que está de acordo com as observações da caracterização mecânica. A menor intensidade dos picos com as adições de OG e OGF reflete a capacidade desses nanomateriais de conduzir o calor de forma mais eficiente, tornando-se favoráveis, inclusive, na redução da retração plástica.

Termogravimetria (TG) e termogravimetria derivada (DTG)

[021] As curvas TG/DTG das amostras PREF28D, PGO28D e PFGO28D podem ser analisadas conforme a Figura 9, Figura 10 e Figura 11, respectivamente. Elas evidenciam diferentes estágios de decomposição na matriz cimentícia. Nas pastas de cimento hidratado, além da fase sólida, encontram-se espaços vazios e água quimicamente incorporada (AQC), que é liberada à medida que os hidratos se decompõem durante o processo. (MEHTA; MONTEIRO, 2014). Com base na literatura, as curvas de TG/DTG tipicamente apresentam três etapas distintas de perda de massa,

sendo a primeira entre a temperatura de 50°C à 200°C, relacionado à água de formação de etringita e tobermorita; a segunda fase entre 385°C à 460°C, correspondente a desidratação do hidróxido de cálcio; e a terceira perda de massa entre a temperatura de 520°C à 730°C, representando decomposição do carbonato de cálcio (HOPPE FILHO et al., 2017; PETKOVA; STOYANOV; PELOVSKI, 2012).

[022] A leitura dos resultados dos testes termogravimétricos não pode ser realizada diretamente devido à discrepância nas massas residuais após os testes. Portanto, foi necessário corrigir as perdas de massa para uma base comum de não voláteis, afim de tornar os resultados comparáveis (TAYLOR, 1997).

[023] Para tanto, houve a normalização da massa residual obtida no teste termogravimétrico, o que resultou em um aumento nas perdas de massa nas diferentes faixas de temperatura usadas na análise das curvas TG/DTG. A Tabela 3 apresenta os resultados das amostras PREF28D, PGO28D e PFGO28D com suas massas após a correção para uma base comum de não voláteis.

Tabela 3 - Perda de massa corrigida para ensaio de TG/DTG

Amostra	AQC (%)	Hidróxido de Cálcio (%)		Carbonato de Calcio (%)		Massa Residual (%)	Fator Normalizado
		H ₂ O	Ca(OH) ₂	CO ₂	CaCO ₃		
PREF28D	Perda de massa						
	16,39	3,92	16,12	4,07	9,26	75,62	1,32
	Perda de massa corrigida						
	21,67	5,18	21,32	5,38	12,24		
PGO28D	Perda de massa						
	17,37	3,51	14,44	4,03	9,16	75,09	1,33
	Perda de massa corrigida						
	23,13	4,67	19,23	5,37	12,21		
PFGO28D	Perda de massa						
	15,29	2,95	12,13	4,01	9,12	77,75	1,29
	Perda de massa corrigida						
	19,67	3,79	15,61	5,16	11,73		

[024] Na Figura 12, é apresentada graficamente a presença de AQC, portlandita e calcita, juntamente com o aumento correspondente de AQC e portlandita com base na composição de referência das amostras com 28 dias de idade. Nota-se que a amostra funcionalizada obteve uma redução em produção de portlandita em comparação com as demais, isso demonstra uma maior capacidade de nucleação do C-S-H, uma vez que sua produção de calcita foi a menor entre as composições. A análise em MEV comprovou uma pasta mais densa que as demais. Em relação aos resultados de carbonatação, a amostra PFGO28D demonstrou menor valor para este parâmetro em comparação com as demais.

Ensaio das propriedades mecânicas das argamassas

Ensaio de resistência à tração na flexão

[025] Os dados relativos ao teste de resistência à tração após 7, 28 e 90 dias podem ser visualizados na Figura 13, destacando um acréscimo notável dessa propriedade mecânica nos corpos, o que prova que foram submetidos à adição dos nanomateriais.

[026] Nitidamente, as composições nas quais houve a adição dos nanomateriais apresentaram melhores resultados quando comparados com a matriz cimentícia de referência. Deve ser dada atenção para as composições MGO90D e MFGO90D, as quais obtiveram bons resultados quando comparados com MREF90D, registrando um aumento de 0,75 MPa e 2,02 MPa, que representa 10,49% e 28,38%, respectivamente. Para uma compreensão mais clara das variações percentuais em relação à amostra de referência nas argamassas contendo OG e OGF aos 7, 28 e 90 dias, essas informações são delineadas na Tabela 4.

Tabela 4 - Ganhos na resistência à tração em relação ao MREF

Comparação entre as composições			Ganhos na resistência à tração (MPa)	Ganhos na resistência à tração (%)
MGO7D	x	MREF7D	0,39	5,65

MGO28D	x	MREF28D	0,44	6,18
MGO90D	x	MREF90D	0,75	10,49
MFGO7D	x	MREF7D	1,05	15,22
MFGO28D	x	MREF28D	1,14	16,09
MFGO90D	x	MREF90D	2,02	28,38

[027] Quando comparamos as composições que receberam a incorporação de nanomateriais, notamos que em todas as idades de cura, seja ela 7, 28 ou 90 dias, a amostra que recebeu o OGF obteve resultados superiores. Isso demonstra que o material funcionalizado proporcionou um bom desempenho para a composição, beneficiando a matriz de cimento.

[028] Os dados obtidos para os ensaios de resistência à tração nas idades de 28 e 90 dias foram estatisticamente avaliados por meio de análise de variância e utilizou-se o teste de Tukey. O resultado para ambos os testes pode ser visualizado na Tabela 5.

[029] É possível compreender diante da ANOVA que houve ao menos dois grupos com resultados significativamente diferentes dos demais, uma vez que o valor de “Pr” é menor que o nível de significância definido como 0,05. Como complemento para essa informação o teste de Tukey indicou que houve a diferenciação nas três argamassas e que entre elas a MFGO obteve melhor desempenho entre as demais, em ambas as idades.

Tabela 5 - Análise de variância e teste de Tukey para ensaio de resistência à tração

ANOVA		(Resistência mecânica à tração aos 28 dias)				
Fonte da variação		GL	SQ	QM	Fc	Pr > Fc
Entre grupos:		2,00	1,28	0,64	215,83	0,00
CV (%) :		0,73				
Média geral :		7,4367				Número de observações: 9
Teste Tukey		(Resistência mecânica à tração aos 28 dias)				
		Resultado do				
Composição	Médias	Teste				
MREF28D	7,06	a1				
MGO28D	7,29	a2				

MFGO28D	7,95	a3				
<hr/>						
ANOVA		(Resistência mecânica à tração aos 90 dias)				
<hr/>						
Fonte da variação	GL	SQ	QM	Fc	Pr > Fc	
Entre grupos:	2,00	6,26	3,13	853,54	0,00	
CV (%) :	0,75					
Média geral :	8,03889	Número de observações:			9	
<hr/>						
Teste Tukey		(Resistência mecânica à tração aos 90 dias)				
<hr/>						
Resultado do						
Composição	Médias	Teste				
MREF90D	7,12	a1				
MGO90D	7,86	a2				
MFGO90D	9,14	a3				

Ensaio de resistência à compressão

[030] Os resultados obtidos para o ensaio resistência à compressão aos 7, 28 e 90 dias podem ser observados na Figura 14, evidenciando um aumento nessa característica mecânica nos corpos de prova que receberam a incorporação de nanomaterial.

[031] Pode-se notar que as composições que incluíram nanomateriais apresentaram resultados superiores em comparação com a composição de referência. É importante destacar as composições MGO90D e MFGO90D, que demonstraram resultados significativos em comparação com a MREF90D, mostrando um aumento de 3,08 MPa e 8,93 MPa, correspondendo a um aumento de 7,08% e 20,54%, respectivamente. Para uma compreensão mais precisa das variações percentuais em relação à amostra de referência nas argamassas contendo OG e OGF após 7, 28 e 90 dias, essas informações estão apresentadas na Tabela 6.

Tabela 6 - Ganhos na resistência à compressão em relação ao MREF

Comparação entre as composições			Ganhos na resistência à compressão (MPa)	Ganhos na resistência à compressão (%)
MGO7D	x	MREF7D	4,00	11,76

MGO28D	x	MREF28D	2,32	6,04
MGO90D	x	MREF90D	3,08	7,08
MFGO7D	x	MREF7D	5,00	14,71
MFGO28D	x	MREF28D	5,31	13,80
MFGO90D	x	MREF90D	8,93	20,54

[032] O melhor desempenho das composições que continham a modificação de nanomateriais, podem ser explicadas pela influência positiva do óxido de grafeno na reação de hidratação do cimento. O OG acelera a formação dos compostos hidratados e facilita uma distribuição mais uniforme na matriz cimentícia, atuando como um ponto de nucleação para esses produtos. Em termos gerais, a adição do óxido de grafeno aumenta o grau de hidratação do cimento, o que otimiza as propriedades dos compostos à base de cimento (KAI et al., 2015; PENG et al., 2019).

[033] Pode-se compreender melhor essa melhora das argamassas ao examinar a resistência mecânica à compressão, juntamente à massa específica das amostras. Na Figura 15, é possível fazer uma comparação dessas propriedades para os corpos de prova com 7 dias de idade e na Figura 16 para a idade de 28 dias. Importante notar que em ambas as idades analisadas, seja ela 7 ou 28 dias, nas composições que continham a adição de nanomateriais houve o aumento de sua massa específica, demonstrando sua maior densificação.

[034] Os resultados dos ensaios de compressão realizados aos 28 e 90 dias foram submetidos à análise estatística de variância e o teste de Tukey foi empregado para a comparação. Os resultados para ambos os testes podem ser observados na Tabela 7.

[035] Com base na ANOVA, é evidente que pelo menos dois grupos apresentaram diferenças significativas em relação aos demais, uma vez que o valor de "Pr" é menor que o nível de significância estabelecido em 0,05. Além disso, o teste de Tukey indicou que houve distinção entre as três argamassas, sendo que a MFGO se destacou positivamente em comparação com as outras em ambas as faixas de idade.

Tabela 7 - Análise de variância e teste de Tukey para ensaio de resistência à compressão

ANOVA (Resistência mecânica à compressão aos 28 dias)					
Fonte da variação	GL	SQ	QM	Fc	Pr > Fc
Entre grupos:	2,00	85,08	42,54	106,40	0,00
CV (%) :	1,54				
Média geral :	41,01	Número de observações:			18
Teste Tukey (Resistência mecânica à compressão aos 28 dias)					
Resultado do					
Composição	Médias	Teste			
MREF28D	38,47	a1			
MGO28D	40,79	a2			
MFGO28D	43,78	a3			
ANOVA (Resistência mecânica à compressão aos 90 dias)					
Fonte da variação	GL	SQ	QM	Fc	Pr > Fc
Entre grupos:	2,00	247,12	123,56	147,71	0,00
CV (%) :	1,93				
Média geral :	47,50	Número de observações:			18
Teste Tukey (Resistência mecânica à compressão aos 90 dias)					
Resultado do					
Composição	Médias	Teste			
MREF90D	43,50	a1			
MGO90D	46,56	a2			
MFGO90D	52,43	a3			

Ensaio de variação dimensional

[036] Os resultados obtidos de variação da massa (Δm) e variação dimensional (ϵ) nas idades de 7 e 28 dias para o ensaio de variação dimensional das argamassas podem ser compreendidos visualizando a Tabela 8.

Tabela 8 - Resultados de variação dimensional e de massas para as composições

Amostra	Δm_{7d} (g)	ϵ_{7d} (mm/m)	Δm_{28d} (g)	ϵ_{28d} (mm/m)
MREF	-1,12	-0,80	-2,29	-0,80
MGO	-1,03	-0,43	-2,09	-0,59

MFGO	-0,95	-0,48	-1,98	-0,61
------	-------	-------	-------	-------

[037] Para a idade de 7 dias deve ser notado que entre as três composições, a MGO obteve menor retração sendo de “-0,43 mm/m” sendo seguida por MFGO (-0,48 mm/m) enquanto MREF obteve o pior valor de “-0,80 mm/m”. Porém, em questão de variação de massa, MFGO obteve menor perda que as suas concorrentes sendo de “-0,95g” enquanto MGO e MREF obteve, “-1,03 g” e “-1,12 g”, respectivamente.

[038] Já para a idade de 28 dias, é importante ser visualizado que a projeção dos resultados de 7 dias ainda se prorroga, uma vez que a retração em MGO continua sendo menor que as suas concorrentes, sendo de “-0,59 mm/m”, enquanto MFGO é de “-0,61 mm/m” e MREF de “-0,80 mm/m”. Em relação à variação de massa, MFGO ainda obtém a menor perda sendo de “-1,98 g” enquanto MGO e MREF obteve, “-2,09 g” e “2,29 g”, respectivamente.

[039] Em uma leitura geral sobre a variação de massa e dimensão obtidas no sétimo e vigésimo oitavo dia após a confecção do corpo de prova, os resultados evidenciam que houve perda de massa e retração dimensional para todas as três amostras confeccionadas, porém, esse resultado já era esperado devido à perda de água do corpo de prova para o ambiente, uma vez que estes estavam também submetidos à cura seca.

[040] Vale a pena evidenciar que as amostras que obtiveram a adição de óxido de grafeno, seja ela funcionalizada ou não, alcançou melhores resultados não perdendo tanta massa e conseguindo menor retração. Este fenômeno pode ser compreendido devido às moléculas de água que estão adsorvidas na superfície do óxido de grafeno criarem uma espécie de reserva de água e vias de transporte para a futura hidratação do cimento, resultando na diminuição da incidência de retração e perda de massa." (LIN; WEI; HU, 2016).

[041] Os resultados obtidos para o ensaio de variação dimensional quando confrontados com os valores de massa específica, atestam que as composições com a utilização de óxido de grafeno, seja na forma funcionalizada ou não, apresentam maior

densificação, quando comparados com a composição de referência, como pode ser visto na Figura 17 para a idade de 7 dias.

[042] É evidente que a incorporação de óxido de grafeno resultou na diminuição da quantidade de macroporos, o que se refletiu na redução da retração dimensional, ao mesmo tempo em que aumentou tanto a massa específica quanto a resistência à compressão das amostras. Além disso, é notável que a funcionalização aprimorou essas propriedades em comparação com a composição apenas com OG.

[043] Ao atingir o período de 28 dias, observa-se uma continuidade desse efeito, com as amostras MGO e MFGO superando a MREF em relação aos três parâmetros analisados, como ilustrado na Figura 18.

Ensaio de absorção de água e massa específica

[044] Os resultados obtidos mediante ensaio de absorção de água e massa específica aos 7 dias são apresentados na Figura 19. Pode-se perceber que dentre as três amostras testadas, o ensaio aos 7 dias de idade, MFGO7D apresentou a menor taxa de absorção de água enquanto a sua massa específica se tornou a maior entre as demais.

[045] Na Figura 20, são exibidos os resultados das argamassas referentes ao ensaio de absorção de água e massa específica realizado após 28 dias. Nota-se que a amostra MFGO28D continuou demonstrando uma taxa de absorção de água inferior em comparação com a amostra MREF28D, registrando valores de 0,3%, menor. Porém para o caso da amostra MGO28D houve uma equidade em relação a taxa de absorção, mas ainda registrou melhores números quando analisados sob a ótica da massa específica.

[046] Os resultados obtidos das composições em ambas as idades de estudo (7 ou 28 dias) mediante ensaio de absorção de água quando confrontados com a massa específica se completa e confirma que a adição de óxido de grafeno, seja ela de forma funcionalizada ou não, tornou a argamassa mais densa. Esses resultados podem ser

explicados devido a ação do nanomaterial densificar a matriz do cimento, gerando uma zona maior de pequenos poros (GOPALAKRISHNAN; KAVERI, 2021; ZENG et al., 2021).

Referências Bibliográficas

ASSOCIAÇÃO BRASILEIRA DE NORMAS TÉCNICAS. **NBR 6467**: Agregados - Determinação do inchamento de agregado miúdo - Método de ensaio. Rio de Janeiro, 2006.

ASSOCIAÇÃO BRASILEIRA DE NORMAS TÉCNICAS. **NBR 15900-1**: Água para amassamento do concreto – Parte 1: Requisitos. Rio de Janeiro, 2009.

ASSOCIAÇÃO BRASILEIRA DE NORMAS TÉCNICAS. **NBR 16916**: Agregado miúdo - Determinação da densidade e da absorção de água. Rio de Janeiro, 2021.

ASSOCIAÇÃO BRASILEIRA DE NORMAS TÉCNICAS. **NBR 16972**: Agregados - Determinação da massa unitária e do índice de vazios. Rio de Janeiro, 2021.

ASSOCIAÇÃO BRASILEIRA DE NORMAS TÉCNICAS. **NBR NM 248**: Agregados - Determinação da composição granulométrica. Rio de Janeiro, 2003.

BHOJARAJU, C. et al. Fresh and hardened properties of GGBS-contained cementitious composites using graphene and graphene oxide. **Construction and Building Materials**, v. 300, p. 123902, 2021.

CHINTALAPUDI, K.; PANNEM, R. M. R. An intense review on the performance of Graphene Oxide and reduced Graphene Oxide in an admixed cement system. **Construction and Building Materials**, v. 259, p. 120598, 2020.

CHINTALAPUDI, K.; PANNEM, R. M. R. Enhanced chemical resistance to sulphuric acid attack by reinforcing Graphene Oxide in Ordinary and Portland Pozzolana cement mortars. **Case Studies in Construction Materials**, v. 17, p. e01452, 2022.

CHRISTIANSEN et al. **Estrutura compósita projetada usando óxido de grafeno**. Procurador: Aventus IP La LLP. CA 2980168 C. Depósito: 18 set. 2017. Concessão: 22 set. 2020.

GOPALAKRISHNAN, R.; KAVERI, R. Using graphene oxide to improve the mechanical and electrical properties of fiber-reinforced high-volume sugarcane bagasse ash cement mortar. **EUROPEAN PHYSICAL JOURNAL PLUS**, v. 136, n. 2, fev. 2021.

HOPPE FILHO, J. et al. Atividade pozolânica de adições minerais para cimento Portland (Parte II): Índice de atividade pozolânica com cimento Portland (IAP), difração de raios-X (DRX) e termogravimetria (TG/DtG). **Matéria (Rio de Janeiro)**, v. 22, n. 3, 10 ago. 2017.

HOU, D. et al. Investigation of composite silane emulsion modified by in-situ functionalized graphene oxide for cement-based materials. **Construction and Building Materials**, v. 304, 18 out. 2021.

INDUKURI, C. S. R.; NERELLA, R. Enhanced transport properties of graphene oxide based cement composite material. **Journal of Building Engineering**, v. 37, p. 102174, 2021.

KAI, G. et al. Reinforcing Effects of Graphene Oxide on Portland Cement Paste. **Journal of Materials in Civil Engineering**, v. 27, n. 2, p. A4014010, 1 fev. 2015.

KANG, X. et al. Effect of graphene oxide (GO) on hydration of tricalcium silicate (C3S). **Construction and Building Materials**, v. 203, p. 514–524, jan. 2019.

LI, Z. et al. Investigating the effect of carbon nanotube on early age hydration of cementitious composites with isothermal calorimetry and Fourier transform infrared spectroscopy. **Cement and Concrete Composites**, v. 107, p. 103513, 2020.

LIN, C.; WEI, W.; HU, Y. H. Catalytic behavior of graphene oxide for cement hydration process. **Journal of Physics and Chemistry of Solids**, v. 89, p. 128–133, 2016.

MEHTA, P. K.; MONTEIRO, P. J. M. **Concrete: Microstructure, Properties, and Materials**. 4th Edition ed. New York: McGraw-Hill Education, 2014.

MOHAMMED, A. et al. The role of graphene oxide in limited long-term carbonation of cement-based matrix. **Construction and Building Materials**, v. 168, p. 858–866, 2018.

MOUSAVI, S. S.; MOUSAVI AJAROSTAGHI, S. S.; BHOJARAJU, C. A critical review of the effect of concrete composition on rebar–concrete interface (RCI) bond strength: A case study of nanoparticles. **SN Applied Sciences**, v. 2, n. 5, p. 893, 2020.

MOYA, Juan Ángel Ruiz; IZQUIERDOA, Amaya Romero; LOPEZ, Maria del Prado Lavin. **Aditivos de nanomateriais de grafeno para o aprimoramento de composições cimentosas, composição cimentosa, processo para preparar um concreto reforçado, concreto reforçado e seu uso**. Depositante: Graphenano S.L.; Juan Ángel Ruiz Moya. BR 112021007280-2 A2. Depósito: 16 out. 2019. Concessão: 20 jul. 2021.

NASCIMENTO, C. F. et al. Enhancing the mechanical performance of plastering mortars with low levels of multilayer graphene and their chemical, structural, and microstructural characteristics. **Journal of Building Engineering**, v. 80, p. 107966, 2023.

NETTO et al. **Uso do grafeno como aditivo para aumento de resistência mecânica em compósitos à base de cimento**. Depositante: Universidade Federal do Triângulo Mineiro. BR 102022010679-7 A2. Depósito: 31 maio 2022. Concessão: 12 dez. 2023.

PENG, H. et al. Mechanical properties and microstructure of graphene oxide cement-based composites. **Construction and Building Materials**, v. 194, p. 102–109, 2019.

PETKOVA, V.; STOYANOV, V.; PELOVSKI, Y. TG–DTG–DTA in studying white self-compacting cement mortars. **Journal of Thermal Analysis and Calorimetry**, v. 109, n. 2, p. 797–806, 2012.

RUPASINGHE, M. et al. Investigation of strength and hydration characteristics in nano-silica incorporated cement paste. **Cement and Concrete Composites**, v. 80, p. 17–30, 2017.

SIVAKUMAR, G.; RAVIBASKAR, R. Investigation on the Hydration Properties of the Rice Husk Ash Cement Using Ftir and Sem. **Applied Physics Research**, v. 1, n. 2, 19 out. 2009.

STEPKOWSKA, E. T. et al. Phase transformation on heating of an aged cement paste. **Thermochimica Acta**, v. 420, n. 1, p. 79–87, 2004.

TAYLOR, H. F. W. (HARRY F. W.). **Cement chemistry**. 2. ed. Londres: T. Telford, 1997.

WANG, N. et al. Improved Interfacial Bonding Strength and Reliability of Functionalized Graphene Oxide for Cement Reinforcement Applications. **Chemistry - A European Journal**, v. 26, n. 29, p. 6561–6568, 20 maio 2020.

XIANGGUO, Xu et al. **Um material compósito à base de cimento modificados com óxido de grafeno e seu método de preparação**. Depositante: Universidade de Tecnologia de Wuhan. Procurador: Guo Qingwei. CN 105294027 B. Depósito: 04 dez. 2015. Concessão: 03 mar. 2017.

YAO, J.; SONG, H.; CHEN, J. Effect of temperature on damage of mortars with different supplementary cementitious materials (SCMs) under sulfate attack. **Construction and Building Materials**, v. 394, p. 132183, 2023.

YU, P. et al. Structure of Calcium Silicate Hydrate (C-S-H): Near-, Mid-, and Far-Infrared Spectroscopy. **Journal of the American Ceramic Society**, v. 82, n. 3, p. 742–748, 22 dez. 2004.

ZENG, H.; QU, S.; QIN, Y. Microstructure and transport properties of cement-based material enhanced by graphene oxide. **MAGAZINE OF CONCRETE RESEARCH**, v. 73, n. 19, p. 1011–1024, out. 2021.

REIVINDICAÇÕES

1. ARGAMASSA DE CIMENTO PORTLAND COMPOSTA POR ÓXIDO DE GRAFENO FUNCIONALIZADO POR MEIO DE OCTA (AMINOPROPIL) SILSESQUIOXANO, **caracterizada por** conter em sua composição óxido de grafeno funcionalizado por meio de octa (aminopropil) Silsesquioxano.
2. ARGAMASSA DE CIMENTO PORTLAND COMPOSTA POR ÓXIDO DE GRAFENO FUNCIONALIZADO POR MEIO DE OCTA (AMINOPROPIL) SILSESQUIOXANO, de acordo com a reivindicação 1, **caracterizada pelo** fato de que o óxido de grafeno está presente em uma concentração que varia de 0,01% a 0,1% em relação a massa de cimento e o octa (aminopropil) Silsesquioxano está presente em uma concentração que varia de 1% a 80% em relação a massa de óxido de grafeno.
3. ARGAMASSA DE CIMENTO PORTLAND COMPOSTA POR ÓXIDO DE GRAFENO FUNCIONALIZADO POR MEIO DE OCTA (AMINOPROPIL) SILSESQUIOXANO, de acordo com a reivindicação 1, **caracterizada por** conter também como ingredientes: cimento Portland, agregado miúdo, água, aditivo químico e adição de óxido de grafeno funcionalizado por meio de octa (aminopropil) Silsesquioxano; podendo ou não ser utilizado agregado graúdo com o intuito de se tornar concreto.
4. ARGAMASSA DE CIMENTO PORTLAND COMPOSTA POR ÓXIDO DE GRAFENO FUNCIONALIZADO POR MEIO DE OCTA (AMINOPROPIL) SILSESQUIOXANO, de acordo as reivindicações 1 a 3, **caracterizada por** poder ser composta por qualquer um dos seis tipos vigente de Cimento Portland: Cimento Portland Comum (CP-I), Cimento Portland Composto (CP-II), Cimento Portland de Alto-forno (CP-III), Cimento Portland Pozolânico (CP-IV), Cimento Portland de Alta Resistência Inicial (CP-V) e Cimento Portland branco, bem como seus subtipos.

5. ARGAMASSA DE CIMENTO PORTLAND COMPOSTA POR ÓXIDO DE GRAFENO FUNCIONALIZADO POR MEIO DE OCTA (AMINOPROPIL) SILSESQUIOXANO de acordo com as reivindicações 1 a 3, **caracterizada por** sua composição poder compreender como agregado miúdo o grupo que compreende a areia, podendo ela ser natural, usinada ou reciclada.
6. ARGAMASSA DE CIMENTO PORTLAND COMPOSTA POR ÓXIDO DE GRAFENO FUNCIONALIZADO POR MEIO DE OCTA (AMINOPROPIL) SILSESQUIOXANO de acordo com as reivindicações 1 a 3, **caracterizada por** poder ser utilizado como aditivo químico plastificantes ou superplastificantes na porcentagem de até 1,0% da massa de cimento.

DESENHOS

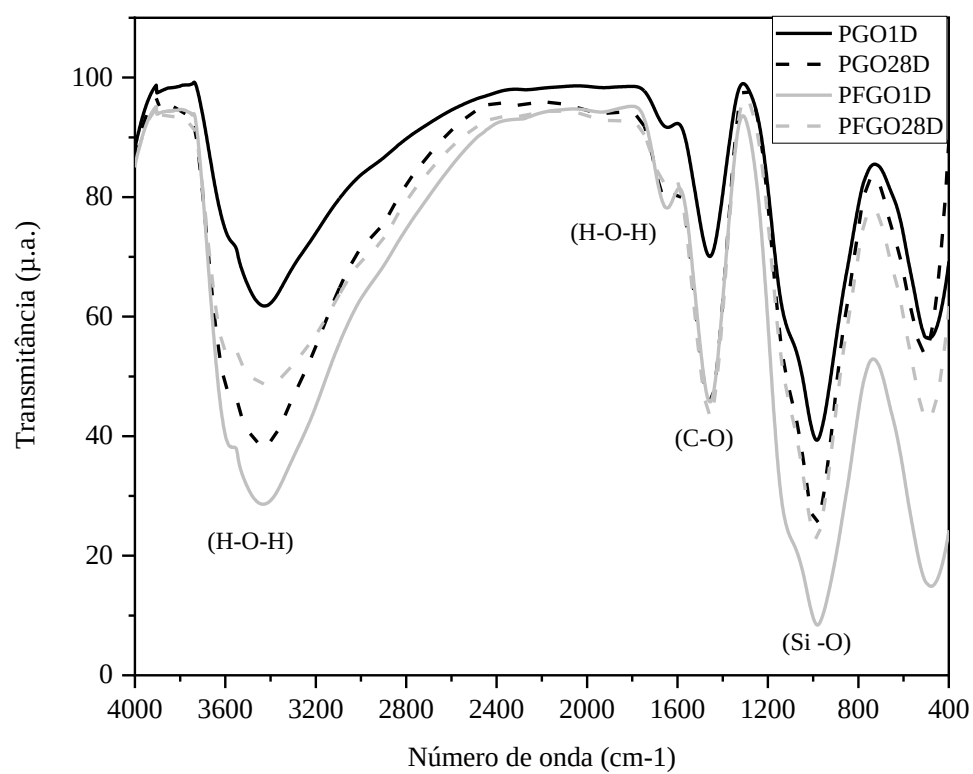


Figura 1

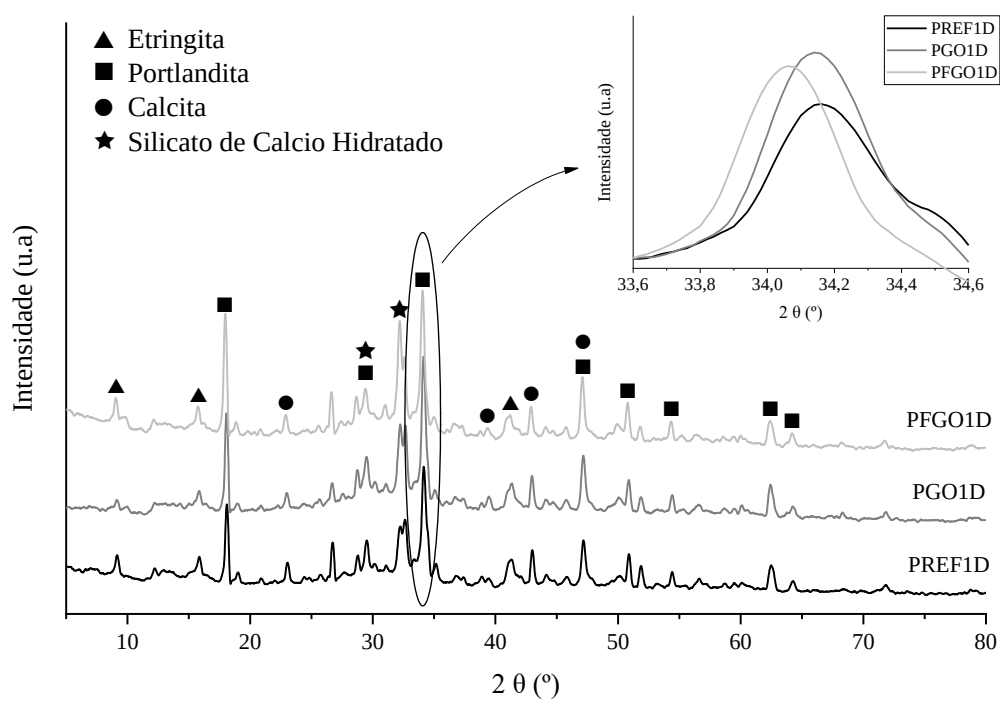


Figura 2

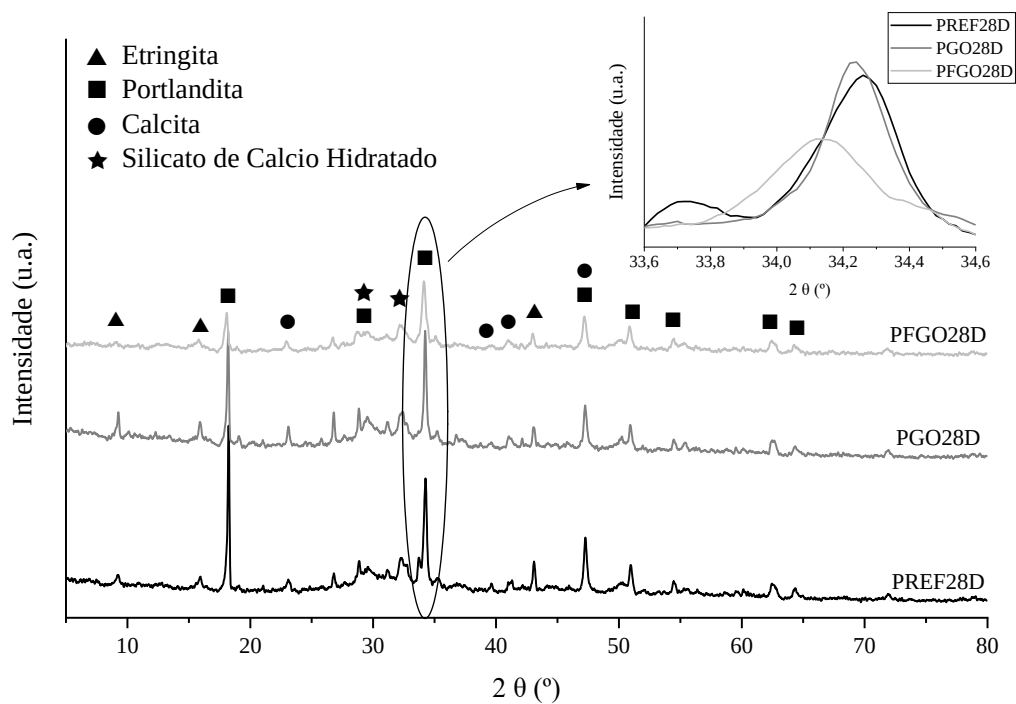


Figura 3

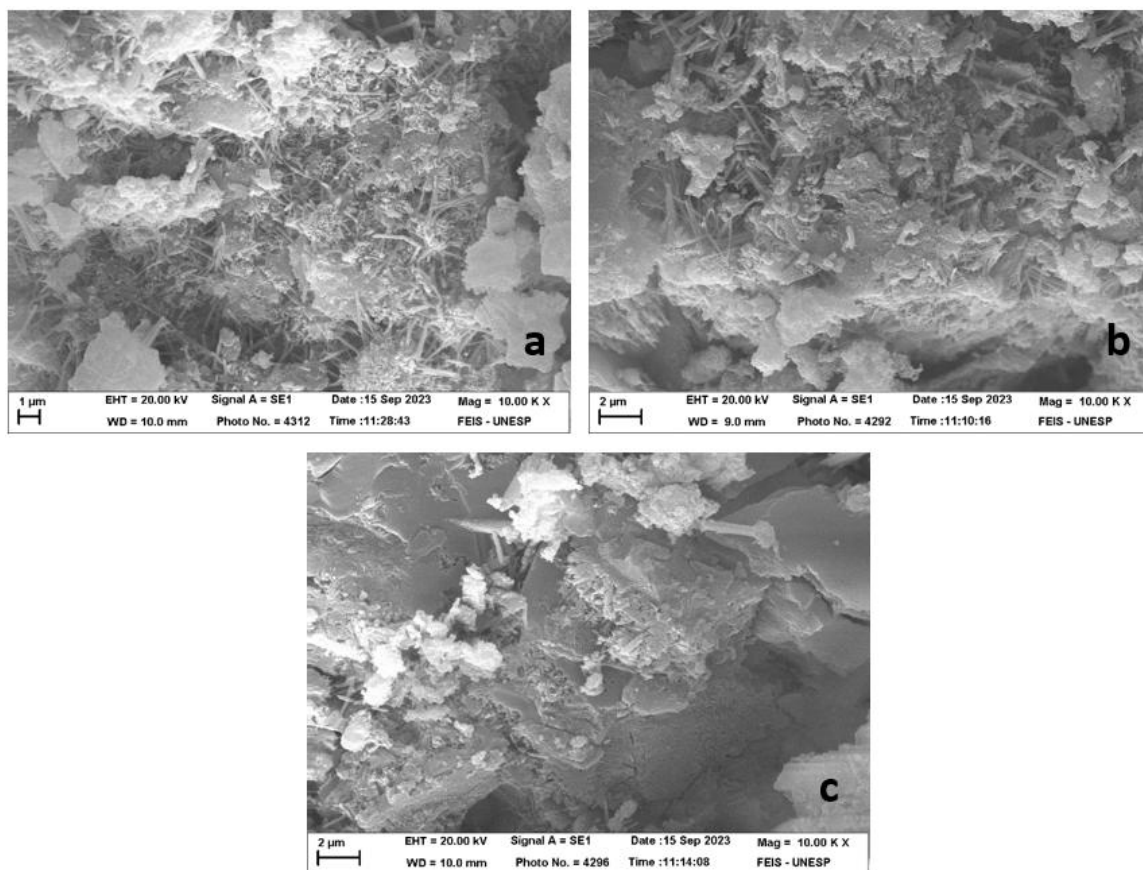


Figura 4

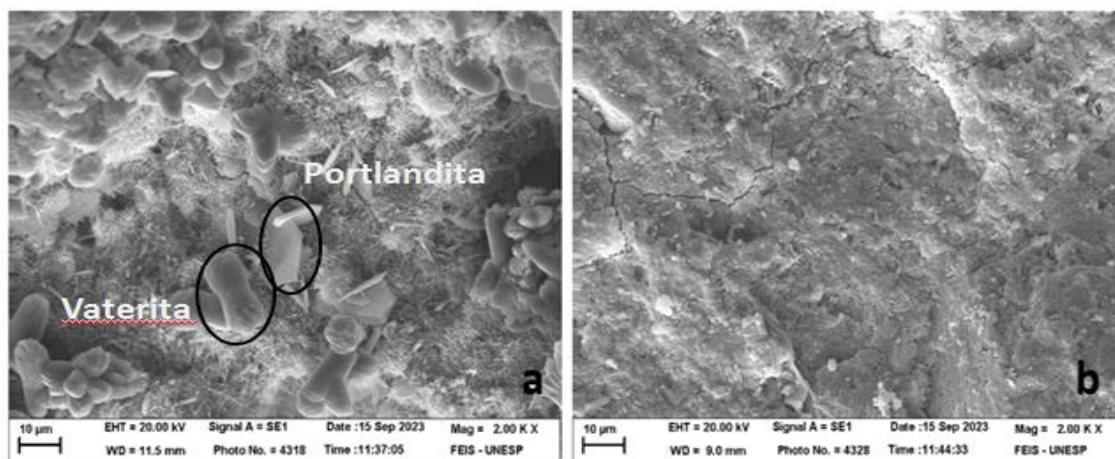


Figura 5

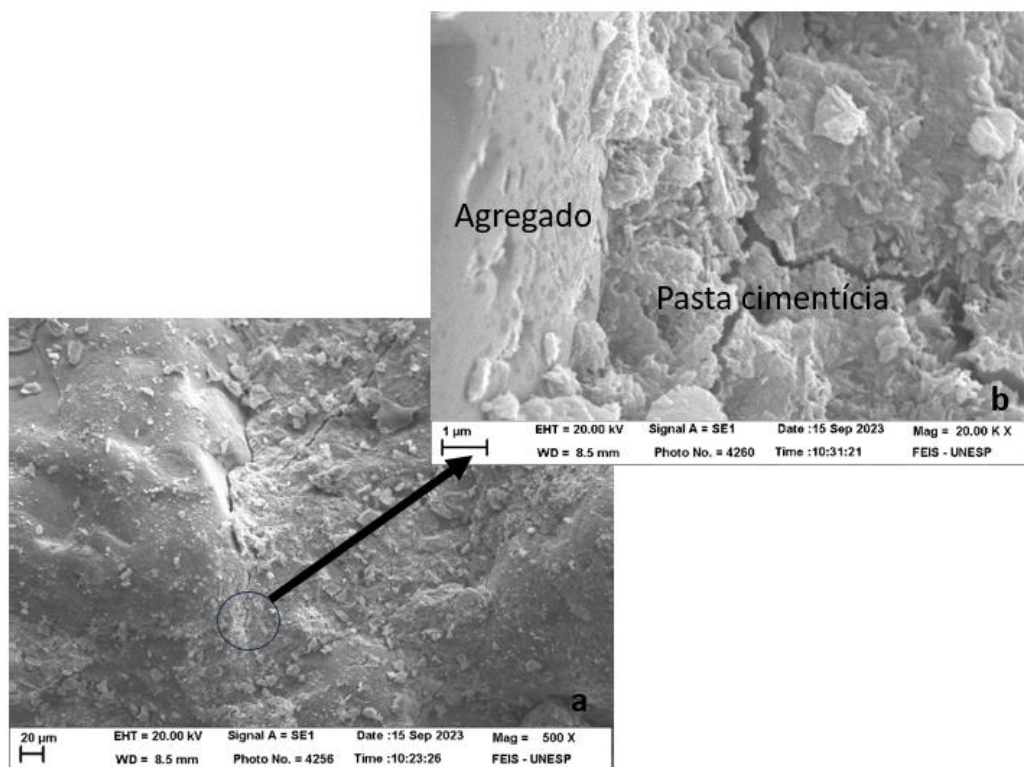


Figura 6

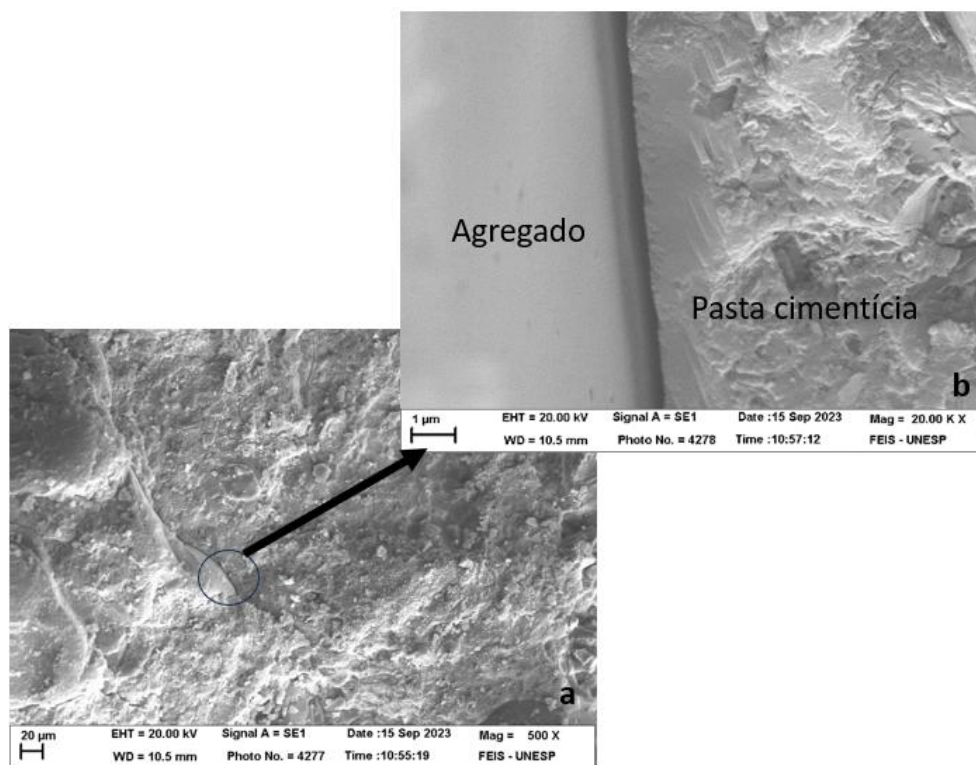


Figura 7

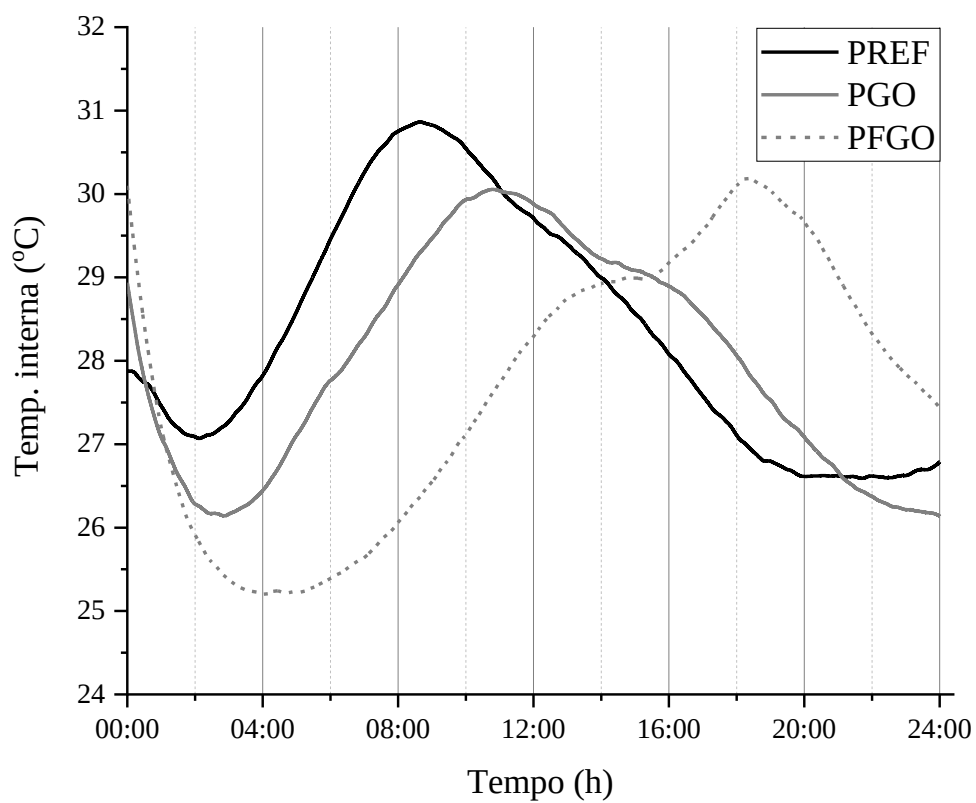


Figura 8

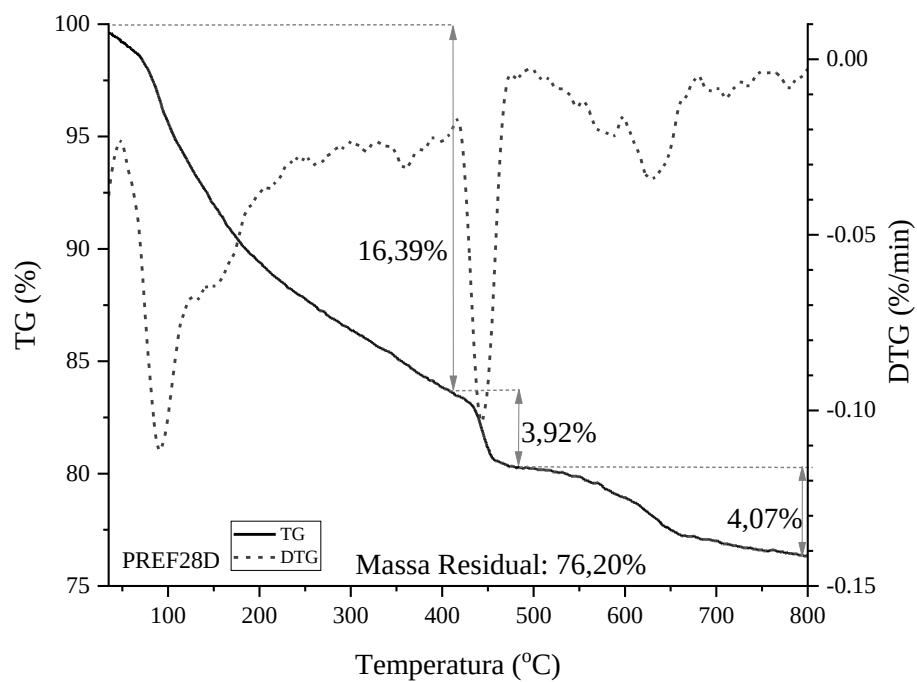


Figura 9

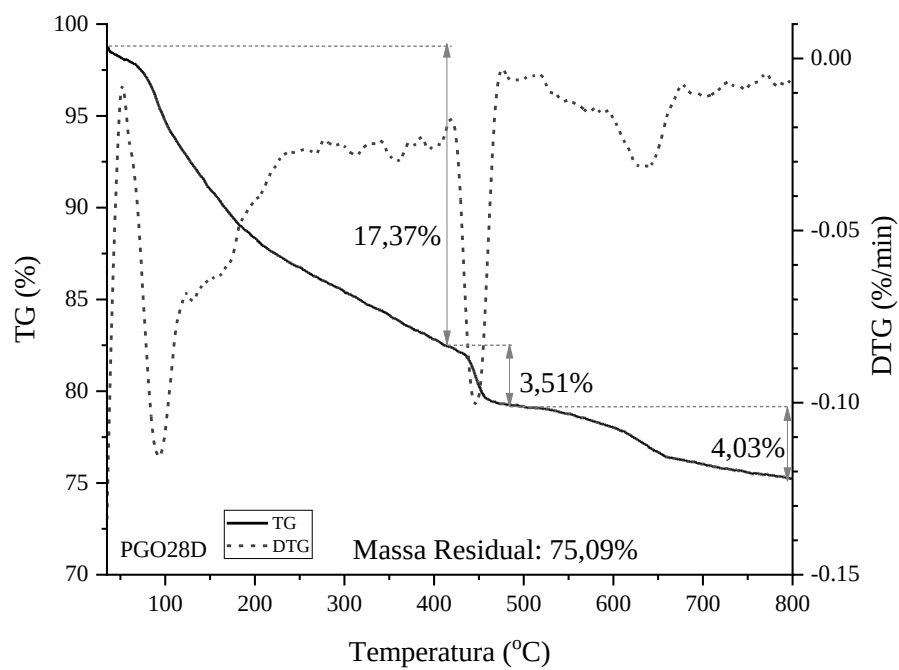


Figura 10

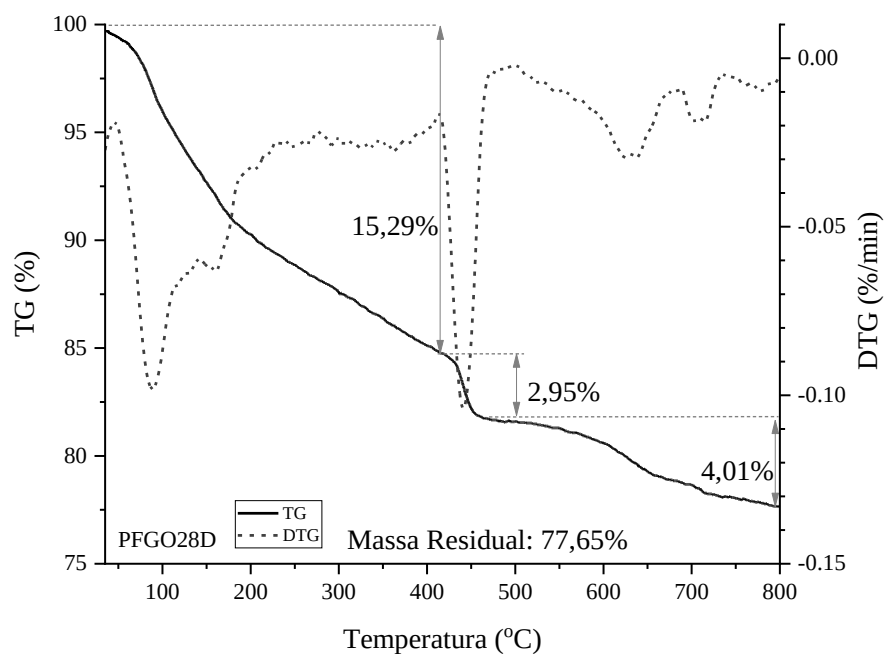


Figura 11

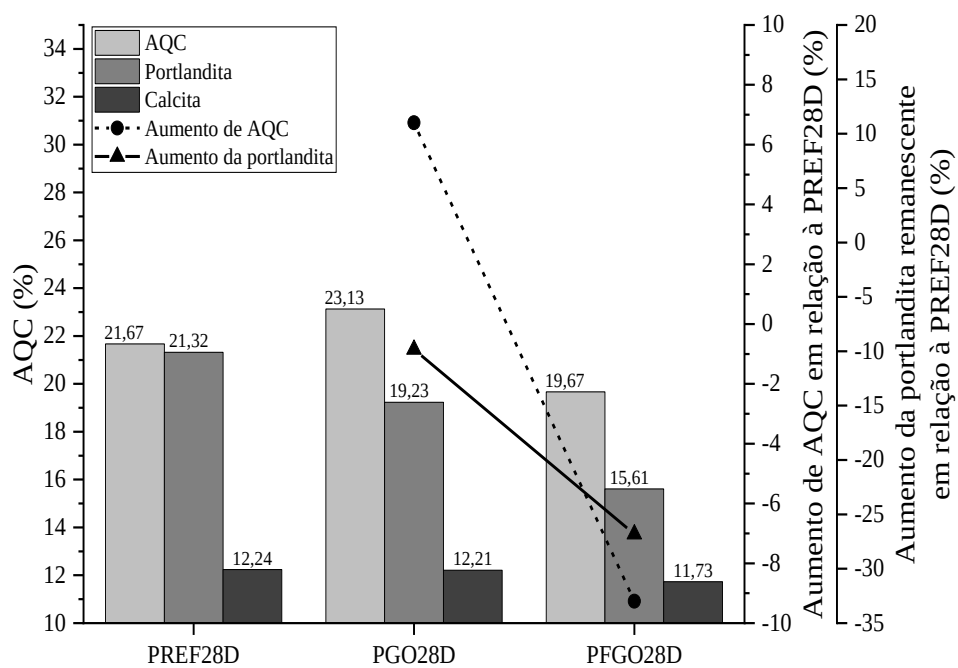


Figura 12

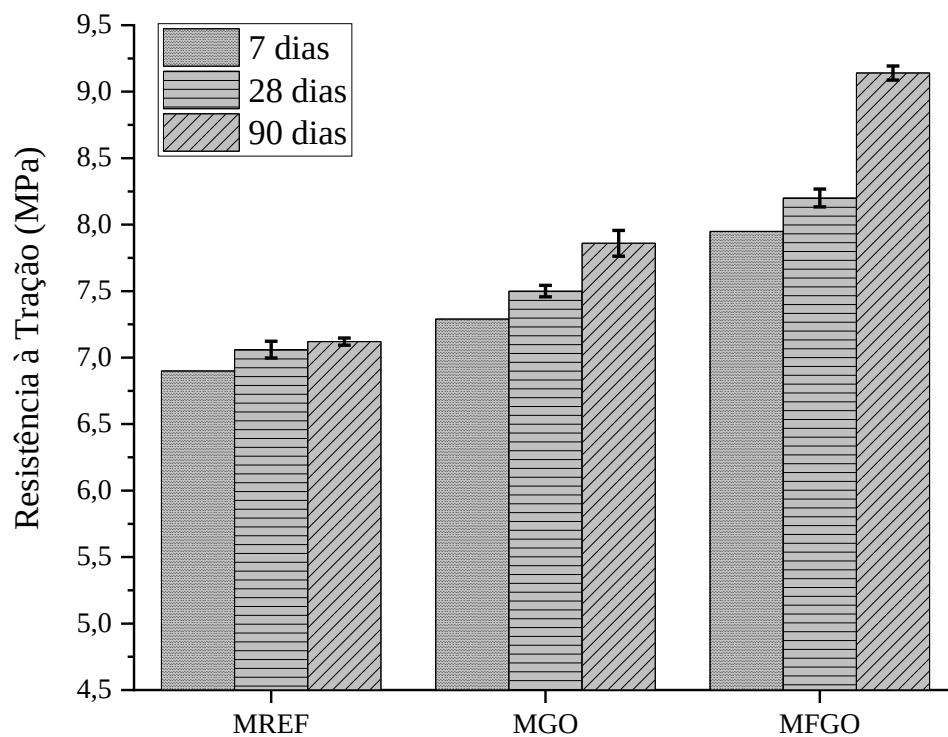


Figura 13

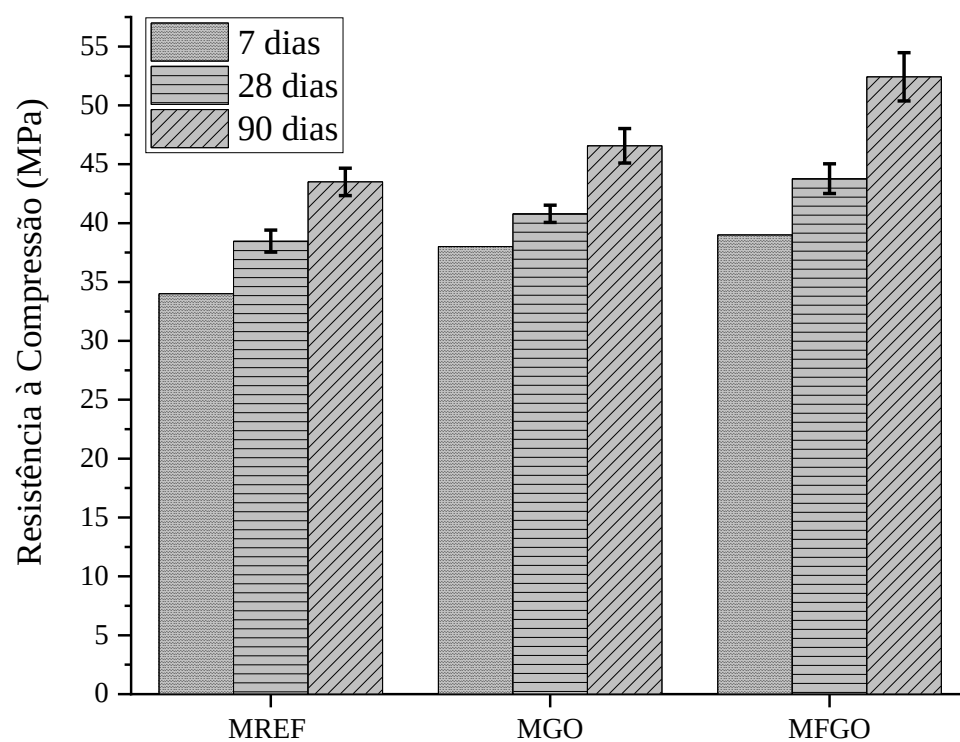


Figura 14

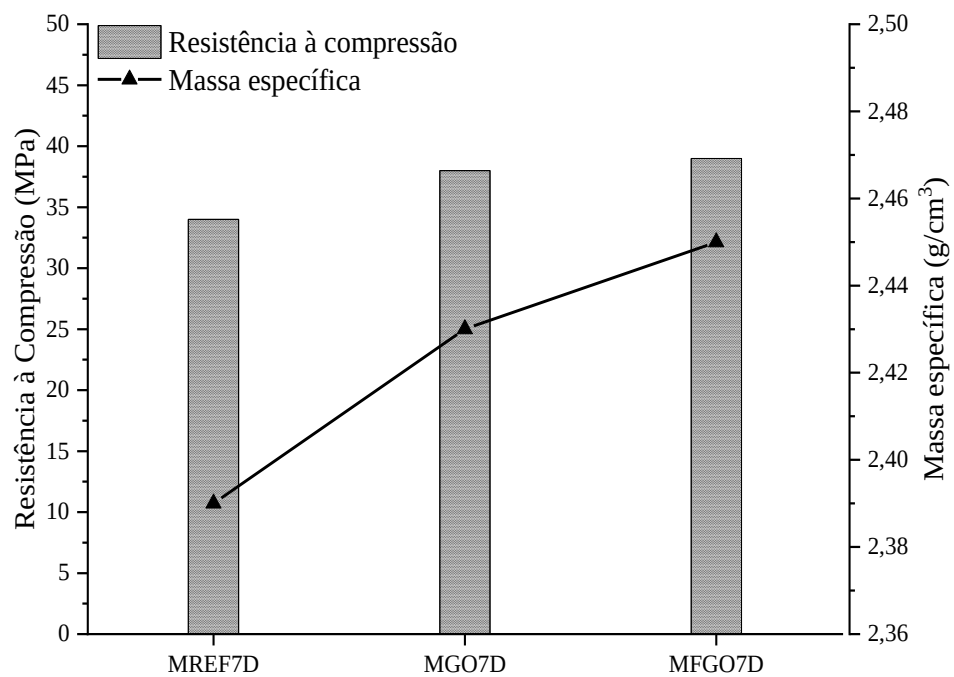


Figura 15

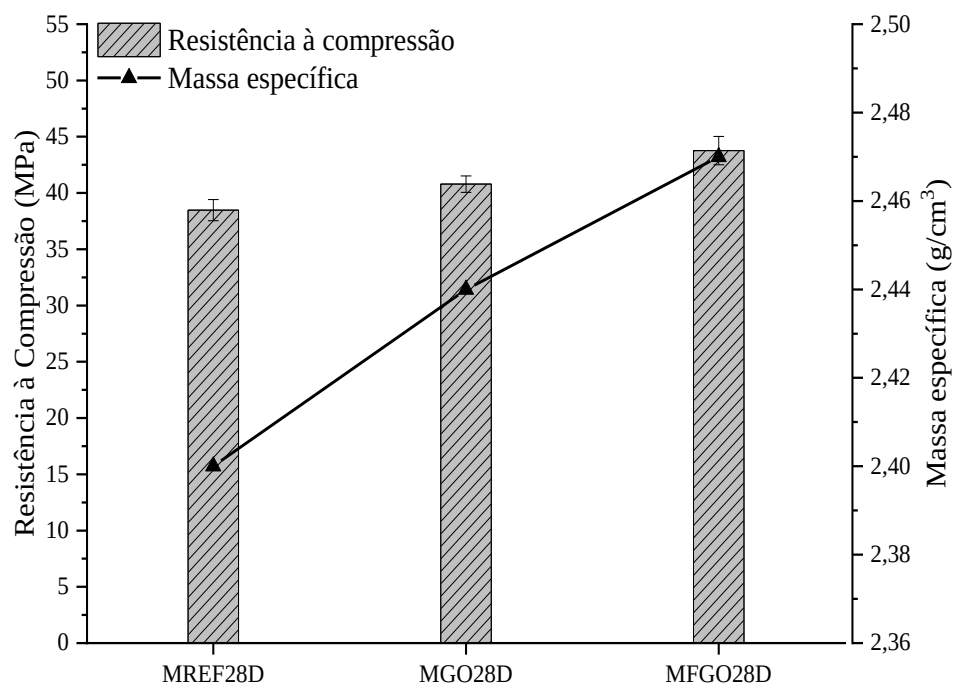


Figura 16

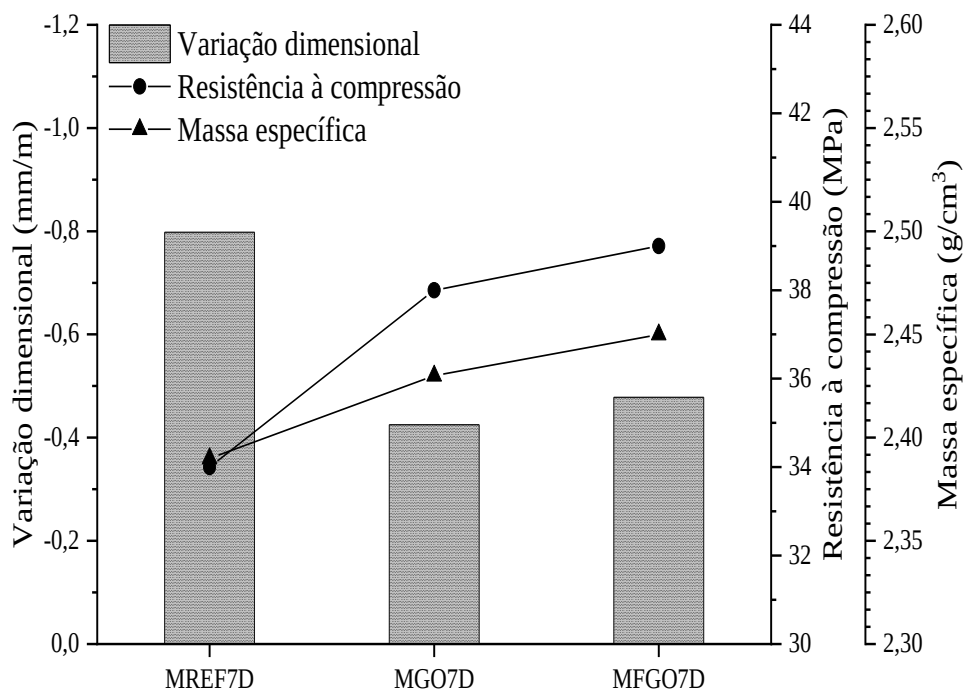


Figura 17

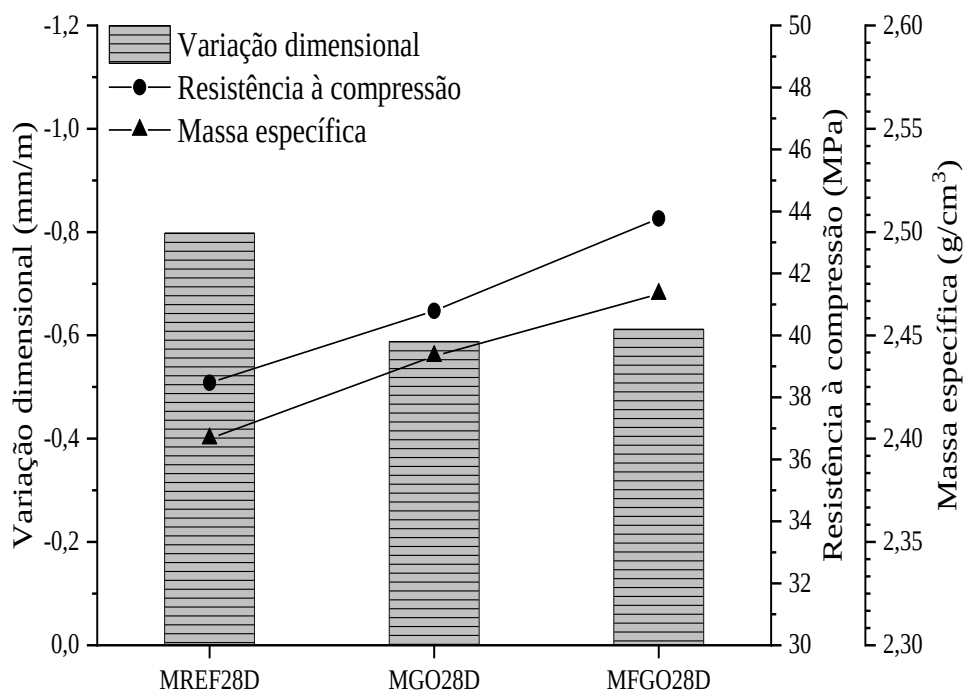


Figura 18

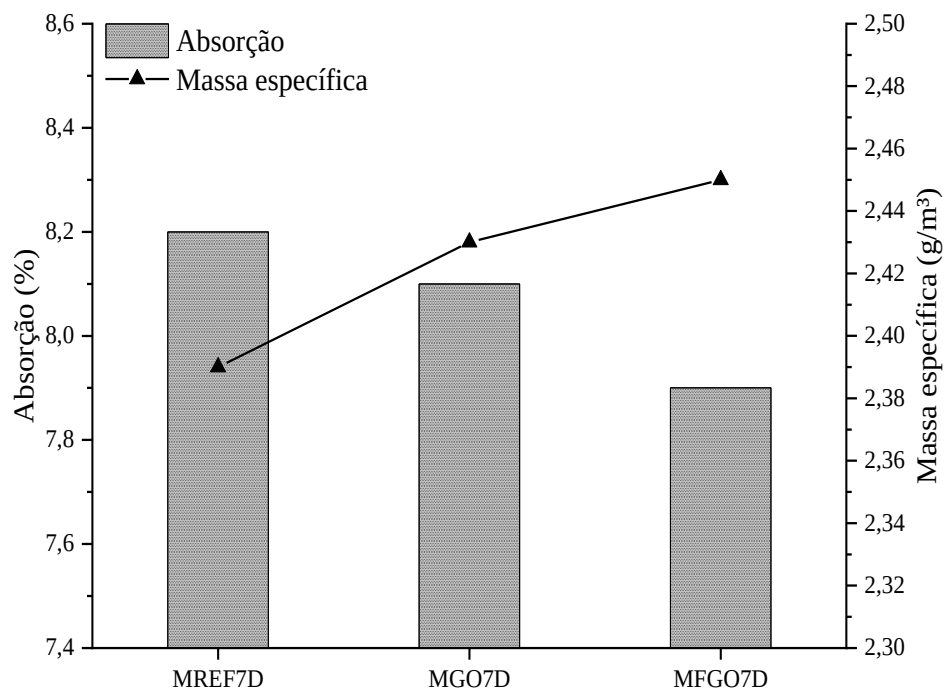


Figura 19

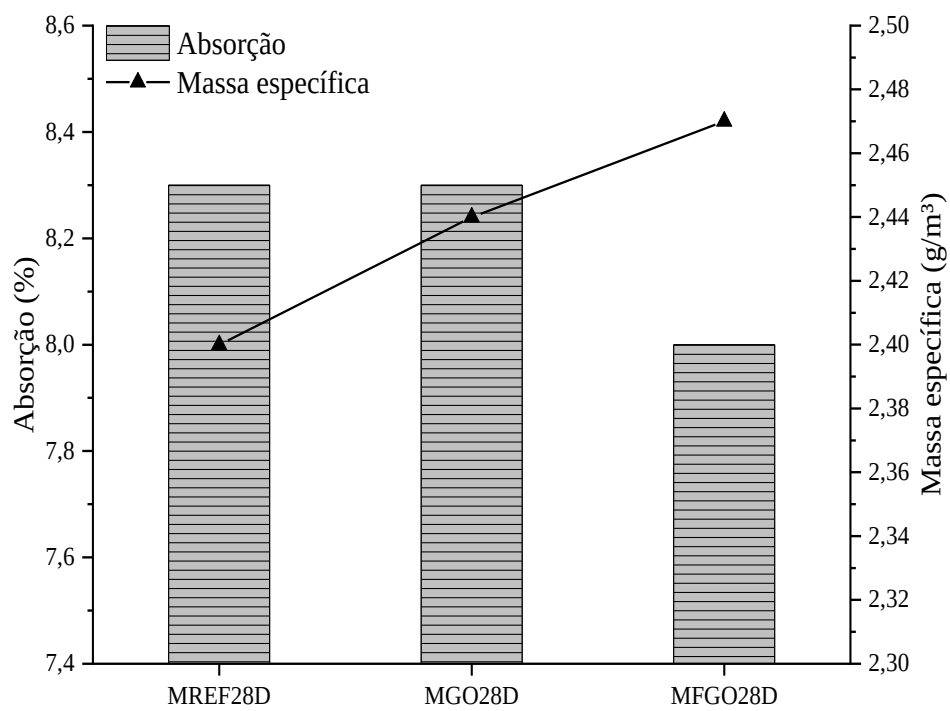


Figura 20

RESUMO

COMPOSIÇÃO DE ARGAMASSA DE CIMENTO PORTLAND COM O USO DE ÓXIDO DE GRAFENO FUNCIONALIZADO POR MEIO DE OCTA (AMINOPROPIL) SILSESQUIOXANO

A presente invenção descreve uma nova utilização do óxido de grafeno como adição em argamassa de cimento Portland, sendo este funcionalizado por meio de octa (aminopropil) Silsesquioxano, obtendo-se assim, aumento de resistência a tração na flexão, aumento de resistência à compressão, retardo no calor de hidratação, menor produção de hidróxido de cálcio, maior formação de Silicato de Cálcio Hidratado (C-S-H), menores índices de retração, baixa absorção de água e, portanto, maior densificação da matriz.