

Óxido grafeno reduzido via rota verde incorporado em membranas de poliacrilonitrila para remoção de contaminantes em sistema multicomponente

XXXIII CONGRESSO DE INICIAÇÃO CIENTÍFICA

Palavras-Chave: Rota verde; membrana polimérica; contaminante emergente; adsorção; nanofiltração

Autores(as): Júlia Camargo Pinto, FT –UNICAMP

Prof^(a). Dr^(a). Patricia Prediger (orientadora), FT - UNICAMP

MSc. Paula Mayara Moraes da Silva (co-orientadora), FT- UNICAMP

INTRODUÇÃO:

Os contaminantes emergentes são substâncias potencialmente prejudiciais e que podem ser identificadas no solo, no ar, e na água. Ainda pouco se sabe sobre os reais danos a longo prazo, pois considerando a identificação relativamente recente destes contaminantes, ainda é difícil mensurar seus impactos no futuro. Não existe, atualmente, uma regulamentação que determine o limite tolerável destes agentes.

Para tanto, a adsorção é um processo físico-químico de transferência de massa (forças físicas ou químicas), sendo um processo que não degrada a molécula, e de fácil manuseio tendo um baixo custo para sua utilização e contribuindo com pouca geração de subprodutos. Desta forma, a adsorção foi um dos focos deste trabalho.

A filtração é outro método utilizado para a elaboração do projeto, por ser uma alternativa como método de separação. No qual pode-se dizer que sua remoção está associada à exclusão por tamanho de partícula, e utilizou-se também no seguinte projeto a filtração adsortiva.

Contudo, ao compreender que com o óxido de grafeno reduzido (rGO) consegue-se obter uma melhor interação com o contaminante, decidiu-se utilizá-lo como um dos principais pilares do projeto. O rGO contém anéis aromáticos que podem interagir com o contaminante por interações π - π , e, grupos oxigenados que podem interagir por ligações de hidrogênio e interações eletrostáticas.

Ademais, para ser um projeto com o viés de uma produção mais ambiental, utilizou-se a “rota verde” para a geração do rGO. No qual dentre as tantas matérias primas, utilizou-se um extrato de cenoura cenoura pela sua sazonalidade, pelo baixo custo e por seu fácil acesso de comercialização.

Este trabalho foi publicado na renomada revista Separation and Purification Technology na Editora Elsevier (<https://doi.org/10.1016/j.seppur.2024.130351>).

METODOLOGIA:

Iniciou-se o procedimento partindo da redução do óxido de grafeno por rota verde através do uso do extrato de cenoura. Para isso, as cenouras foram cortadas em pedaços e deixadas em refluxo por 24 horas. Em seguida obteve-se o extrato aquoso da cenoura e adicionou-se 50ml de GO (óxido de grafeno) em suspensão (3 mg/mL), e deixou-se em refluxo durante sete dias, e ao final se obteve o rGO por rota verde.

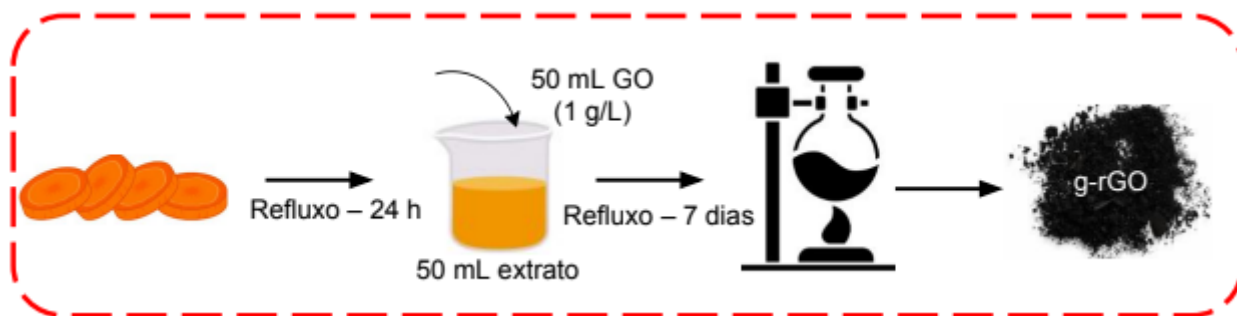


Imagem 01: Desenho que descreve o processo realizado para obtenção do rGO por rota verde através do extrato de cenoura.

Em seguida, realizou-se o procedimento para a geração das membranas poliméricas. Primeiramente, dissolveu-se somente poliacrilonitrila (PAN) e em outro balão dissolveu-se a PAN/g-rGO, em três concentrações diferentes (2,5%, 5% e 7,5% em massa de rGO). A solução/suspensão foi despejada em placa de Petri. E por fim a placa de Petri foi imersa em água ultrapura e a membrana foi colocada em solução de NaOH por 90 minutos (hidrólise básica).

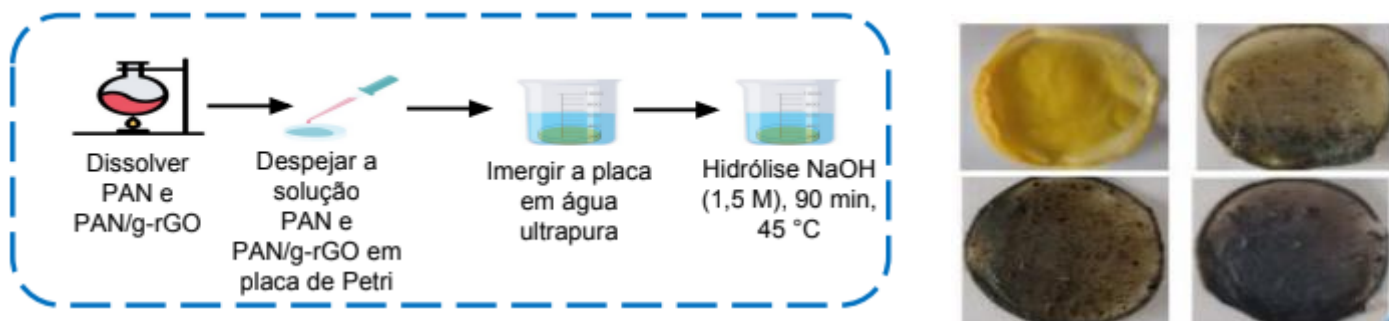


Imagem 02: Desenho que descreve o processo realizado para obtenção das membranas de PAN e PAN/g-rGO, e seu resultado.

Portanto, ao finalizar o processo, as membranas foram empregadas em ensaios de adsorção e filtração.

Para o ensaio de adsorção a membrana foi cortada em quadrados de $1 \times 1 \text{ cm}^2$ e o teste realizado foi em batelada. O ensaio em batelada de adsorção foi para análise de antibióticos.

Contudo, o ensaio de filtração foi realizado com uma membrana redonda com o diâmetro de ($12,56 \text{ cm}^2$), em um sistema multicomponente de contaminantes emergentes, sendo eles fármacos e pesticidas.

RESULTADOS E DISCUSSÃO:

Para assegurar uma compreensão mais clara dos resultados, procedeu-se à realização da caracterização do rGO por difração de raios-X (DRX). No qual, pode-se observar um pico em $10,6^\circ$ uma característica de óxido de grafeno, e também pode-se observar, no difratograma do rGO o desaparecimento deste pico em 10° e o aparecimento de um novo pico $23,4^\circ$ apontando para a presença do óxido de grafeno reduzido.

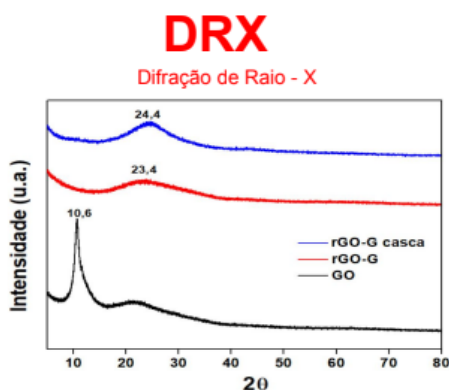


Imagem 03: gráfico do DRX

Realizou-se também a caracterização de membranas, na qual determinou-se o fluxo de água que atravessa a membrana e a porosidade da mesma. Observou-se que a porosidade e permeabilidade da membrana estão diretamente relacionadas às concentrações de rGO presentes nas membranas. É importante destacar que a membrana, rGO1, rGO2 e rGO3, foram denominadas de forma decrescente em relação a quantidade de rGO presente nas membranas, ou seja, 2,5%, 5% e 7,5% de rGO.

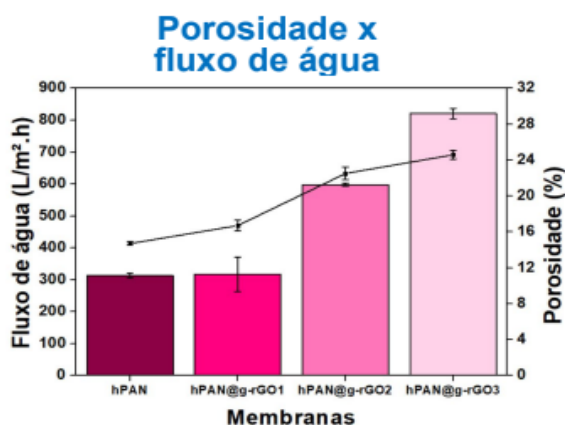


Imagem 04: gráfico da porosidade x fluxo de água.

A fim de investigar de forma mais detalhada a rugosidade das membranas para entender um pouco melhor sobre os sítios ativos nela, realizou-se uma Microscopia de Força Atômica (AFM) em meio líquido. E foi notável que o aumento da rugosidade das membranas estava diretamente relacionado com o aumento das concentrações de rGO.

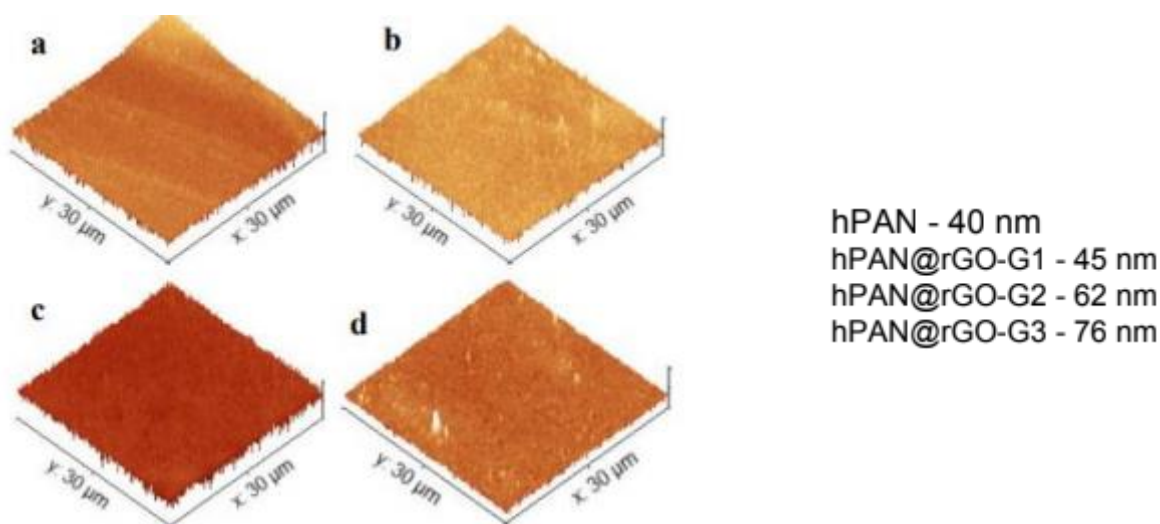


Imagem 05: a) hPAN; b) hPAN@rGO-G1; c) hPAN@rGO-G2; d) hPAN@rGO-G3.

Ensaio de adsorção foram realizados com os antibióticos e com a membrana com maior teor de rGO, a hPAN@rGO-G3, e com a membrana sem rGO, a hPAN. Os antibióticos utilizados no ensaio foram, Ciprofloxacina (CIP); Levofloxacina (LEV); Moxifloxacina (MOX). Observou-se uma notável remoção, pois a adição de 7,5% de g-rGO à membrana hPAN aumentou significativamente a remoção dos antibióticos CIP (em 158%) e MOX (em 83%). A hPAN pura não adsorveu LEV, mas a hPAN@g-rGO7.5 obteve 55% de remoção e 10 mg/g de capacidade de remoção. Isso se deve à maior polaridade e hidrofobicidade de CIP e MOX em comparação com LEV. A estrutura rígida tricíclica do LEV e o grupo metil causam impedimento estérico, dificultando sua adsorção. Assim, a interação com a membrana é mais eficaz para antibióticos polares e flexíveis.

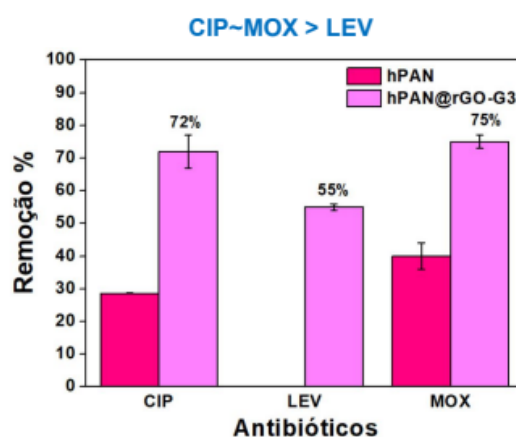


Imagem 06: gráfico mostrando a diferença entre a remoção de antibióticos pela membrana hPAN e a membrana hPAN@rGO-G3.

Por fim, realizou-se ensaios de filtração de multicomponentes com os contaminantes emergentes sulfametoxazol, acetaminofeno e atrazina. A membrana que obteve melhor desempenho foi a hPAN@rGO-2 com 5% de concentração de rGO (m/m). Ao finalizar o teste, percebeu-se que a presença do rGO, que está diretamente relacionada à remoção dos contaminantes.

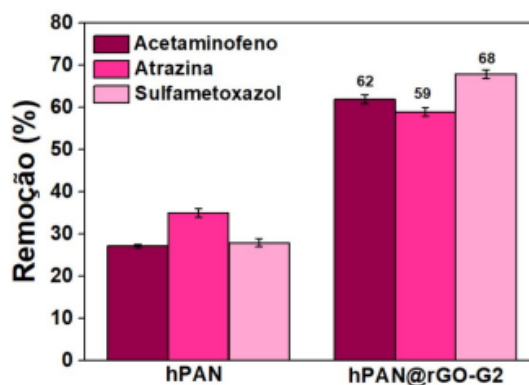


Imagem 07: gráfico mostrando a remoção da membrana com hPAN e a membrana com hPAN@rGO-G2.

CONCLUSÕES:

Conclui-se que o aumento da concentração do rGO influenciou no aumento da rugosidade, fluxo de água e porosidade. As membranas apresentaram excelentes resultados de adsorção para os antibióticos analisados. As membranas, também apresentaram excelentes resultados para a filtração de sistema multicomponente de contaminantes emergentes, sendo eles fármacos e herbicidas.

BIBLIOGRAFIA:

SILVA, Paula Mayara Morais da; MALVESTITI, Jacqueline Aparecida; CAMPAROTTO, Natália Gabriele; PINTO, Júlia Camargo; MASTELARO, Valmor Roberto; DANTAS, Renato Falcão; PREDIGER, Patrícia. *Separation and Purification Technology*, v. 359, p. 130351-1–130351-14, 2025. DOI: 10.1016/j.seppur.2024.130351. Disponível em: (<https://doi.org/10.1016/j.seppur.2024.130351>).

MAGALHÃES DE PAULA, Thatiely N.; VENDEMIATTI, Josiane A. S.; CAMPAROTTO, Natália G.; TOLEDO, Bruna; OLIVEIRA, Ádria C.; NEVES, Tauany F.; UMBUZEIRO, Gisela A.; PREDIGER, Patrícia. *Science of the Total Environment*, v. 830, p. 153515, 2022. Disponível em: (<https://www.sciencedirect.com/science/article/abs/pii/S0048969722006076>).

NEVES, Tauany de Figueiredo; et al. New graphene oxide-safranin modified polyacrylonitrile membranes: Potential for removal of multiple emerging contaminants in batch assays. Disponível em: (<https://www.sciencedirect.com/science/article/abs/pii/S1385894722026663>).