



Síntese e exfoliação de g-C₃N₄ para fabricação de membranas fotocatalíticas

Isadora Filgueiras(G)*, Luzia S. F. Neto (PQ)¹, Eudes Lorençon (PQ)¹.

Centro Federal de Educação Tecnológica de Minas Gerais (CEFET/MG), Departamento de Química, Belo Horizonte, Minas Gerais, Brasil, 30421-040

Crisadora2000@gmail.com

RESUMO

Este trabalho investigou a esfoliação química do g-C₃N₄ com H₂SO₄ visando aprimorar suas propriedades fotocatalíticas. A modificação resultou em aumento da área superficial e redução do empilhamento entre camadas, conforme indicado pelas análises de DRX e BET. Os ensaios fotocatalíticos mostraram maior eficiência do material esfoliado na conversão de nitrogênio molecular em amônia sob luz visível, evidenciando seu potencial para aplicações futuras em membranas fotocatalíticas sustentáveis.

Palavras-chave: fotocatalise, nitreto de carbono grafítico, esfoliação química

Introdução

A busca por rotas químicas mais sustentáveis tem impulsionado o desenvolvimento de novas tecnologias para a conversão de moléculas sob condições mais brandas e com menor impacto ambiental. Nesse contexto, a fotocatalise heterogênea destaca-se por permitir a realização de reações químicas utilizando luz visível como fonte de energia (1). Entre os fotocatalisadores mais promissores, o nitreto de carbono grafítico (g-C₃N₄) chama atenção por sua estrutura conjugada, estabilidade térmica e banda proibida adequada (~2,7 eV) (2). No entanto, limitações como a baixa área superficial e a rápida recombinação de pares elétron-lacuna comprometem seu desempenho (3). Estratégias de modificação estrutural, como a esfoliação química com ácido sulfúrico, têm se mostrado eficazes para gerar nanosheets com maior área específica, porosidade aprimorada e melhor separação de cargas fotogeradas, resultando em melhor desempenho fotocatalítico (3). Este trabalho apresenta a síntese de g-C₃N₄ esfoliado para posterior incorporação em membranas de matriz polimérica mista, visando à obtenção de materiais fotocatalíticos mais eficientes, estáveis e reutilizáveis, com potencial para aplicações sustentáveis em sistemas contínuos.

Experimental

Síntese do g-C₃N₄

O g-C₃N₄ foi sintetizado por policondensação térmica de melamina em forno mufla. Para isso, 10 g do precursor foram colocados em cadinho cerâmico coberto e submetidos ao aquecimento até 550 °C por 2 h, sob atmosfera de ar. Após o resfriamento, o sólido amarelo foi macerado até a obtenção de um pó fino.

Esfoliação química

Para a obtenção do g-C₃N₄ esfoliado, 500 mg do material previamente sintetizado foram adicionados a 8 mL de H₂SO₄ concentrado (95%) sob agitação magnética por 1 hora à temperatura ambiente.

Devido à alta reatividade do ácido, essa etapa requermuseio cauteloso, com uso de EPI e capela de exaustão. Em seguida, adicionaram-se lentamente 2 mL de água destilada gelada, seguidos de 100 mL de água destilada à temperatura ambiente. A suspensão formada foi filtrada a vácuo utilizando papel de filtro faixa azul, lavada até pH neutro, redispersa em isopropanol e submetida à sonicação em banho ultrassônico por 1 hora. O material foi então seco a 60 °C e, posteriormente, a 120 °C ambas as secagens com duração de 12 horas.

Ensaios fotocatalíticos

A atividade fotocatalítica foi avaliada pela conversão de nitrogênio molecular em amônia sob irradiação no espectro visível. Para isso, uma massa previamente definida do catalisador macerado (g-C₃N₄ bulk e esfoliado) foi dispersa por 3 minutos, em lavadora ultrassônica, em 100 mL de uma solução composta por 90 mL de água destilada previamente borbulhada com N₂ por 30 minutos e 10 mL de metanol. Em seguida, a suspensão foi transferida para o reator, mantida sob agitação e em ambiente escuro por 30 minutos para promover a adsorção de N₂. Após esse período, uma alíquota foi retirada (ponto de adsorção), filtrada em filtro de seringa, e a ela foram adicionados 1 mL do reagente de Nessler e 2 mL de água destilada. Após 10 minutos, a leitura foi realizada por espectrofotometria UV-Vis ($\lambda = 420$ nm).

Na sequência, a lâmpada LED (395 nm, 300 W) foi acionada, mantendo-se a suspensão sob irradiação e agitação por 60 minutos. Decorrido esse tempo, uma nova alíquota foi coletada e analisada da mesma forma. A quantificação da amônia foi feita com base em curva de calibração.



Resultados e Discussão

A Figura 1 ilustra o processo de esfoliação química do g-C₃N₄. O material inicialmente na forma bulk (B-CN), com estrutura altamente empilhada, é submetido à ação do ácido sulfúrico (H₂SO₄). Esse tratamento promove a separação das camadas, resultando em folhas finas de g-C₃N₄ esfoliado (E-CN). A representação mostra o rompimento das interações entre as camadas, refletido também na mudança visual da coloração do material, de amarelo para esbranquiçado, indicando alterações morfológicas significativas.

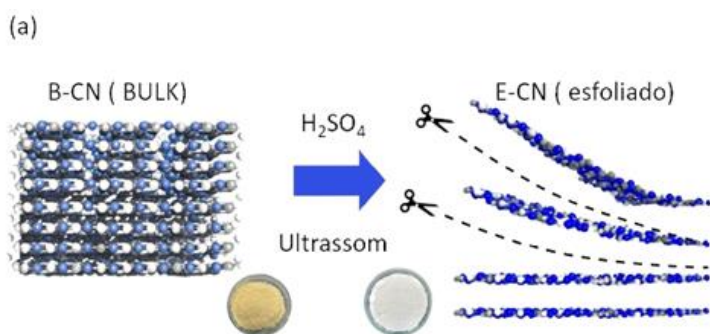


Figura 1. (a) Representação esquemática da esfoliação química

Esse processo tem como objetivo aumentar a área superficial e expor mais sítios ativos do material, favorecendo sua aplicação fotocatalítica.

Na Figura 2, observa-se o padrão de difração de raios X para os materiais B-CN e E-CN. Ambos apresentam um pico em torno de 27,7° (2θ), atribuído ao plano (002), que representa o empilhamento das camadas na direção do eixo cristalográfico c. A intensidade desse pico é significativamente menor no material esfoliado, o que indica uma redução da ordem estrutural ao longo do empilhamento, confirmando a efetiva separação das camadas promovida pelo processo de esfoliação.

A análise BET demonstrou que a área superficial do g-C₃N₄ aumentou significativamente após a esfoliação química, passando de 40,47 m²/g no material bulk para 92,70 m²/g no material esfoliado. Esse aumento de aproximadamente 129% indica uma maior exposição de sítios ativos, resultado direto da separação das camadas provocada pelo tratamento com H₂SO₄.

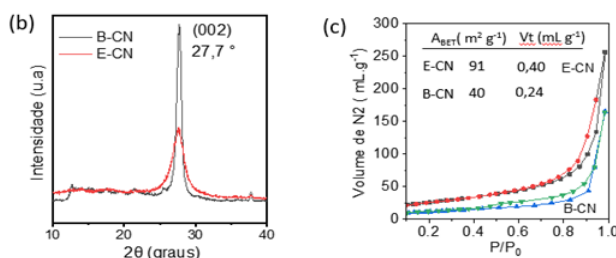


Figura 2. (b) Difração de Raios X (DRX) dos materiais analisados, (c) Isotermas de adsorção de N₂ para os materiais analisados.

Os ensaios fotocatalíticos demonstraram que a esfoliação do g-C₃N₄ teve impacto significativo na atividade do material. A Tabela 1 apresenta os valores de concentração de amônia obtidos após irradiação, evidenciando um aumento expressivo na produção de NH₃ para o material esfoliado (E-CN) em comparação ao material na forma bulk (B-CN), o que reforça a eficácia da modificação estrutural aplicada.

Tabela 1. Produção de amônia para os materiais analisados

Ident.	Produção de NH ₄ ⁺ . 60 min (μmol L ⁻¹ g ⁻¹)
B-CN	863,64
E-CN	9.909,1

O C₃N₄ esfoliado apresentou produção de amônia 11,5 vezes maior que o bulk, devido à maior área superficial e melhor separação de cargas. Esses resultado está alinhado com a literatura, que aponta a esfoliação como estratégia eficaz para melhorar a atividade catalítica do material.

Conclusões

A modificação estrutural do g-C₃N₄ por esfoliação química com H₂SO₄ mostrou-se eficaz para melhorar suas propriedades fotocatalíticas. As análises indicaram redução do empilhamento entre camadas, aumento da área superficial e desempenho superior na produção de amônia a partir de nitrogênio molecular sob luz visível. Com base nesses resultados, o material esfoliado (E-CN) apresenta potencial promissor para futura incorporação em sistemas contínuos baseados em membranas fotocatalíticas voltadas a aplicações sustentáveis.

Agradecimentos

Agradeço ao CEFET-MG pelo apoio institucional e aos professores Eudes Lorençon e Luzia Sergina pela orientação e contribuição ao desenvolvimento deste trabalho.

Referências

- HUANG, Junhao et al. *Exfoliated polymeric carbon nitride nanosheets for photocatalytic applications*. ACS Applied Nano Materials, v. 7, n. 7, p. 7442–7452, 2024. DOI: [10.1021/acsanm.4c00133](https://doi.org/10.1021/acsanm.4c00133).
- BHANDERI, Dhavalkumar; LAKHANI, Pratikkumar; MODI, Chetan K. *Graphitic carbon nitride (g-C₃N₄) as an emerging photocatalyst for sustainable environmental applications: a comprehensive review*. RSC Sustainability, v. 2, p. 265–287, 2024. DOI: [10.1039/d3su00382e](https://doi.org/10.1039/d3su00382e).
- PAPAILIAS, Ilias et al. *Chemical vs Thermal Exfoliation of g-C₃N₄ for NO_x Removal under Visible Light Irradiation*. Applied Catalysis B: Environmental, 2018. DOI: [10.1016/j.apcatb.2018.07.078](https://doi.org/10.1016/j.apcatb.2018.07.078).