

Delineamento Experimental Aplicado à Reciclagem Química do PET por Aminólise Utilizando Nanotubos de Titanato como Catalisador

Jessica Vargas da Silva¹, Tiago Vidalletti¹, Gabriel Schmidt Pradella¹, Vinicius Demétrio da Silva¹, Anderson Ramos Carvalho², Rosane Angélica Ligabue¹, Wesley Formentin Monteiro^{2*}, Marcus Seferin^{1*}

¹ jessicavargas_silva@hotmail.com - Escola Politécnica, Pontifícia Universidade Católica do Rio Grande do Sul

¹ tiago.vidalletti@edu.pucrs.br - Escola Politécnica, Pontifícia Universidade Católica do Rio Grande do Sul

¹ gabriel.pradella@edu.pucrs.br - Escola Politécnica, Pontifícia Universidade Católica do Rio Grande do Sul

¹ viniciusdemetrio@gmail.com - Escola Politécnica, Pontifícia Universidade Católica do Rio Grande do Sul

¹ rligabue@pucrs.br - Escola Politécnica, Pontifícia Universidade Católica do Rio Grande do Sul

¹ seferin@pucrs.br - Escola Politécnica, Pontifícia Universidade Católica do Rio Grande do Sul

² anderson.amos@ufrgs.br - Instituto de Química, Universidade Federal do Rio Grande do Sul

² wesley.monteiro@ufrgs.br - Instituto de Química, Universidade Federal do Rio Grande do Sul

Resumo/Abstract

RESUMO - O poli(tereftalato de etileno) (PET) é um polímero amplamente utilizado em diversos setores, especialmente em embalagens para alimentos e bebidas, mas seu acúmulo representa uma preocupação ambiental significativa. Neste estudo, nanotubos de titanato de sódio (TNT) foram sintetizados via rota hidrotérmica e avaliados como um catalisador heterogêneo na reciclagem química de *flakes* de PET cristal pós-consumo por meio da aminólise com etanolamina (EA). O catalisador foi caracterizado por DRX, MEV e MET, confirmando a formação de estruturas nanotubulares de titanato. Um planejamento experimental do tipo fatorial 2^4 foi aplicado para investigar a influência de parâmetros reacionais como tempo, temperatura e razão molar EA:PET. O TNT apresentou atividade catalítica, promovendo a despolimerização completa do PET (100% de conversão) e alcançando rendimentos de N¹,N⁴-bis(2-hidroxietil) tereftalamida (BHETA) de até 91%. A análise estatística revelou que a razão EA:PET foi o fator mais significativo no rendimento do monômero. O catalisador TNT se mostrou promissor para a aminólise do PET, contribuindo para o avanço das tecnologias de reciclagem química.

Palavras-chave: Aminólise do PET, Despolimerização do PET, Nanotubos de Titanato, Delineamento Experimental.

ABSTRACT - Poly(ethylene terephthalate) (PET) is a widely used polymer in various sectors, especially in food and beverage packaging, but its accumulation poses a significant environmental concern. In this study, sodium titanate nanotubes (TNT) were synthesized via a hydrothermal route and evaluated as heterogeneous catalyst in the chemical recycling of post-consumer crystalline PET flakes through aminolysis using ethanolamine. The catalyst was characterized by XRD, SEM, and TEM, confirming the formation of nanotubular titanate structures. A 2^4 factorial experimental design was applied to investigate the influence of reaction parameters such as time, temperature, and EA:PET molar ratio. TNT exhibited high catalytic activity, promoting complete PET depolymerization (100% conversion) and achieving of N¹,N⁴-bis(2-hydroxyethyl) terephthalamide (BHETA) yields up to 91%. Statistical analysis revealed that the ethanolamine/PET ratio was the most significant factor affecting monomer yield. The TNT catalyst proved to be promising for the aminolysis of PET, contributing to advances in chemical recycling technologies.

Keywords: PET Aminolysis, PET depolymerization, Titanate Nanotubes, Experimental Design.

Introdução

A crescente demanda por materiais leves, duráveis e processáveis impulsionou a expansão da indústria de polímeros, cuja produção global passou de 1,5 milhão de toneladas em 1950 para cerca de 400,3 milhões em 2023. No entanto, no mundo, apenas 9% dos polímeros - como polietileno (PE), polipropileno (PP), poli(cloreto de vinila) (PVC), poli(tereftalato de etileno) (PET), poliuretano (PU) e poliestireno (PS) - são reciclados anualmente (1).

O PET, termoplástico linear obtido por transesterificação ou esterificação direta do ácido tereftálico com etilenoglicol (2,3), é o quinto polímero mais produzido mundialmente (1). Apesar de sua ampla reciclagem, com 53,6% das embalagens recicladas em 2023 (1), o descarte inadequado ainda contribui significativamente para a crise ambiental.

A reciclagem química surge como alternativa promissora. Diferente da reciclagem mecânica, que tende a degradar as propriedades do material, a reciclagem química permite

recuperar monômeros valiosos (5,6). Técnicas como glicólise, metanólise e aminólise convertem o PET em insumos reutilizáveis. Na aminólise, aminas rompem as ligações éster do PET, gerando produtos aplicáveis em adesivos, filmes e fibras (7,8). Com etanolamina (EA), obtém-se a N¹,N⁴-bis(2-hidroxietil) tereftalamida (BHETA), que combina grupos amida e hidroxila, podendo ser empregada na formulação de revestimentos (2,8,12).

Apesar do potencial, desafios como rendimento no monômero e formação de subprodutos exigem catalisadores eficientes. Catalisadores heterogêneos, como óxidos metálicos e nanotubos inorgânicos, têm se mostrado eficazes, em especial, o catalisador TNT, pois possuem alta área superficial específica ($\approx 170 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1}$) e boa estabilidade térmica (degradação $>400^\circ\text{C}$), sendo promissores na glicólise do PET (6,7,8).

Neste contexto, este estudo tem como objetivo investigar a aplicação de nanotubos de titanato de sódio como catalisador na reciclagem química do PET via aminólise.

Experimental

Síntese de Nanotubos de Titanato

A síntese do TNT foi realizada conforme metodologia descrita na literatura (5,6,7). Inicialmente, 1,5 g de TiO_2 foram dispersos em 120 mL de solução aquosa de NaOH 10 mol L^{-1} , sob agitação magnética à temperatura ambiente por 1 hora. A suspensão obtida foi transferida para um reator de aço inoxidável de 200 cm^3 , revestido com Teflon®, e submetida ao aquecimento a 135°C por 72 horas. O precipitado branco resultante foi lavado com água destilada até pH 7 e seco a 80°C por 6 horas (5,6,7).

Aminólise do PET

A aminólise do PET foi conduzida com base nos protocolos adaptados da literatura (5,6,10,11), visando à síntese do monômero BHETA. O sistema reacional foi montado em capela e consistiu em balão de três bocas (250 mL), condensador de refluxo, termopar e agitador magnético. Ao término da reação, o sistema foi resfriado até aproximadamente 100°C , seguido da adição de 150 mL de água deionizada a 90°C . Realizou-se então uma filtração a quente sob pressão reduzida. A solução filtrada foi mantida a 6°C por 3 dias para obtenção de cristais de BHETA. Posteriormente, efetuou-se a filtração a vácuo para separação dos cristais de BHETA do meio. Após secos ($60\text{--}80^\circ\text{C}$ e 24h) foi determinada a quantidade produzida por gravimetria.

Os parâmetros de síntese foram escolhidos com base na literatura (10-14) e avaliados em intervalos que incluíram concentrações de TNT entre 2 e 4% em relação a massa de PET, proporções molares EA:PET de 3 a 5, e temperaturas de reação variando de 120 a 140°C . Após atingir a

temperatura desejada, 7,0 g de *flakes* de PET pós-consumo (pré-secos a 70°C por 30 min) foram adicionados, mantendo-se a reação por intervalos de 2 a 4 horas. A conversão do PET (C, %) ao longo do tempo foi determinada conforme a Eq. 1, onde m_i é a massa inicial de PET e m_f a massa do PET não despolimerizado. O rendimento molar de BHETA na forma monomérica (Y_M , %) foi determinado conforme a Eq. 2, em que W_{BHETA} é a massa de monômero BHETA, MW_{BHETA} sua massa molar ($254,252 \text{ g} \cdot \text{mol}^{-1}$), $W_{PET,i}$ a massa inicial de PET e MW_{mero_PET} a massa molar da unidade repetitiva do PET ($192 \text{ g} \cdot \text{mol}^{-1}$) (5,6,11).

$$C = \frac{m_{PET,i} - m_{PET,f}}{m_{PET,i}} \times 100 \quad (1)$$

$$Y_M = \frac{W_{BHETA}/MW_{BHETA}}{W_{PET,i}/MW_{mero_PET}} \times 100 \quad (2)$$

Planejamento Experimental (DoE)

A otimização da reação de aminólise do PET foi realizada por meio da metodologia de superfície de resposta (RSM). A análise dos dados foi conduzida no software *Design Expert 13* (Stat-Ease Inc.), adotando-se nível de significância de 5% para o ajuste do modelo de regressão e análise de variância (ANOVA). Utilizou-se um planejamento fatorial completo 2^4 , totalizando 16 experimentos com todas as combinações dos fatores, além de 3 pontos centrais para avaliação da curvatura e repetibilidade do modelo. Foram investigadas quatro variáveis independentes: temperatura de reação, percentual mássico de catalisador, razão mássica EA:PET e tempo de reação. As variáveis de resposta consideradas foram a conversão do PET e o rendimento monomérico de BHETA.

Caracterização do TNT

A morfologia do catalisador TNT foi analisada por Microscopia Eletrônica de Varredura (MEV) em alta resolução, utilizando um microscópio FEI Inspect F50 no modo de elétrons secundários (SE) a 10 kV e spot 3.5. As amostras foram fixadas em *stubs* metálicos com fita dupla face de carbono e metalizadas com uma fina camada de ouro. A caracterização da estrutura cristalina do TNT foi realizada por Difratomia de Raios X (DRX) utilizando um difratômetro Shimadzu XRD 7000 com radiação $\text{CuK}\alpha$ ($\lambda = 1,542 \text{ \AA}$), 40 kV e 30 mA, com varredura de 5° a 70° (2θ) em intervalos de $0,02^\circ$ e tempo de contagem de 2,0 s. A análise da estrutura dimensional do TNT foi realizada por Microscopia Eletrônica de Transmissão (MET), com amostras suspensas em acetona e submetidas a ultrassom por 5 min, sendo colocadas em grids de cobre com filme de carbono (300 mesh) e o diâmetro médio do TNT foi obtido realizando 10 medidas utilizando o software *ImageJ*

(National Institutes of Health) nas imagens obtidas da respectiva análise.

Caracterização dos monômeros de BHETA

A caracterização dos grupos funcionais do produto BHETA foi feita por Espectroscopia de Infravermelho por Transformada de Fourier (FTIR), utilizando um espectrômetro PerkinElmer Spectrum 100 com acessório UATR (Reflectância Total Atenuada Universal), com célula de ZnSe e diamante.

Resultados e Discussão

Caracterização do catalisador TNT

A Figura 1 mostra imagens obtidas por (a) MEV e (b) MET do TNT sintetizado, revelando estruturas nanométricas alongadas e entrelaçadas, com formação de tubos de diâmetro externo médio de aproximadamente 8 nm. Esses resultados confirmam a conversão bem-sucedida de nanopartículas de TiO_2 em TNT, em concordância com estudos anteriores (5,6,7).

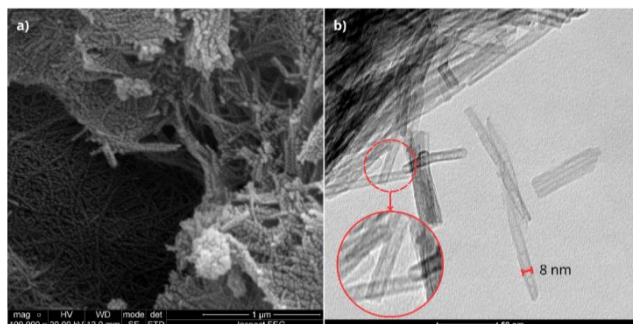


Figura 1. Imagens obtidas do catalisador TNT utilizando as técnicas e ampliações: (a) MEV com aumento de 100k e (b) MET com aumento de 180k.

Já a Figura 2 apresenta o difratograma obtido para o TNT, no qual se observa um padrão típico que confirma a estrutura cristalina do catalisador. Os picos localizados em $2\theta \approx 9,83^\circ$, $24,26^\circ$, $28,26^\circ$ e $48,04^\circ$ são característicos da fase $\text{Na}_2\text{Ti}_3\text{O}_7$, indicando a formação da estrutura lamelar do titanato. O pico mais intenso, próximo a 10° , está relacionado ao espaçamento interlamelar das camadas de titanato, sugerindo uma organização regular das lamelas. Este espaçamento foi calculado com base na equação de Bragg, resultando em um valor de 0,90 nm, estando em concordância com a literatura (5,6,7). Já os picos de menor intensidade, localizados entre aproximadamente 24° e 61° , são atribuídos à presença de íons Na^+ intercalados entre as lamelas (5,6,7).

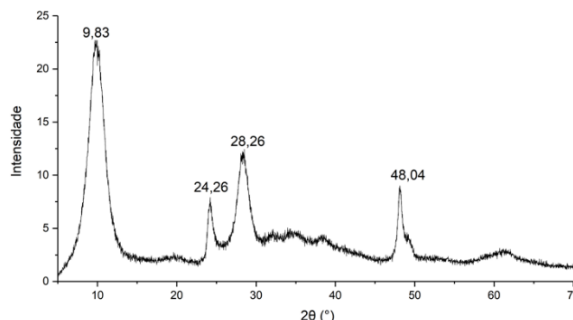


Figura 2. Difrátograma obtido para o TNT.

Modelo de Regressão Baseado no DoE

Foram investigados os efeitos de quatro variáveis independentes, razão EA:PET, temperatura, percentual de catalisador em relação ao PET (TNT:PET) e tempo de reação, visando o desenvolvimento de um modelo preditivo com o menor número de experimentos (Tabela 1). Para isso, utilizou-se um planejamento fatorial 2^4 para avaliar a conversão do PET e o rendimento do monômero BHETA (Y_M), por meio de regressão linear. O TNT foi escolhido como catalisador por seu baixo custo, não toxicidade, estabilidade térmica e boa atividade catalítica (5,6). Após as sínteses, constatou-se que conversão do PET foi completa (100%) em todos os experimentos.

Tabela 1. Matriz experimental com os rendimentos de BHETA.

Corrida	EA: PET	Temp. (°C)	TNT: PET	Tempo (h)	Y_M (%)
9	3	120	2%	4	49,87
1	3	120	2%	2	69,44
2	5	120	2%	2	57,95
10	5	120	2%	4	84,66
16	5	140	4%	4	55,67
13	3	120	4%	4	56,08
15	3	140	4%	4	70,26
12	5	140	2%	4	91,03
3	3	140	2%	2	46,19
6	5	120	4%	2	76,60
17(C)	4	130	3%	3	79,63
19(C)	4	130	3%	3	84,95
5	3	120	4%	2	82,03
18(C)	4	130	3%	3	78,44
11	3	140	2%	4	84,87
14	5	120	4%	4	87,94
7	3	140	4%	2	65,10
8	5	140	4%	2	84,68
4	5	140	2%	2	76,52

C: ponto central

Os resultados da ANOVA para o modelo de regressão estão apresentados na Tab 2. O efeito principal mais relevante foi a razão EA:PET, enquanto os demais fatores apresentaram significância apenas em suas interações. Consideram-se significativos os efeitos com $p < 0,05$, sendo que valores de F mais altos indicam maior influência sobre

a resposta. Destacaram-se os efeitos significativos de A (EA:PET), BC (temperatura $\times$ TNT), CD (TNT $\times$ tempo), ABD (EA:PET $\times$ temperatura $\times$ tempo) e BCD (temperatura $\times$ TNT $\times$ tempo). O valor de F (19,08) confirma a significância do modelo, com apenas 0,01% de chance de erro aleatório. O baixo valor de F para falta de ajuste (2,77) indica bom ajuste do modelo aos dados experimentais.

Tabela 2. ANOVA para os rendimentos de BHETA.

Fonte	Soma dos quadrados	Graus de liberdade	Quadrado médio	F	p	Significância
Model	2832,68	5	566,54	19,08	< 0,0001	sim
A	519,95	1	519,95	17,51	0,0013	sim
BC	253,05	1	253,05	8,52	0,0129	sim
CD	609,97	1	609,97	20,54	0,0007	sim
ABD	1258,65	1	1258,65	42,39	< 0,0001	sim
BCD	191,06	1	191,06	6,43	0,0261	sim
Curva	243,92	1	243,92	8,21	0,0142	sim
Residual	356,32	12	29,69			
Falta de ajuste	332,29	10	33,23	2,77	0,2947	não
Erro puro	24,03	2	12,02			
Total corrigido	3432,92	18				

F : distribuição F – estatística de razão entre variâncias
 p : probabilidade associada a F – valor de significância

Os coeficientes estimados para o modelo de resposta correspondente ao Y_M , expresso em termos de fatores codificados, consta na Tabela 3. Cada coeficiente quantifica a variação esperada na resposta associada a um aumento de uma unidade no respectivo fator, mantendo os demais fatores constantes. Com base no DoE ortogonal, o intercepto representa a média geral das respostas em todos os experimentos. Todos os fatores apresentaram valores de Fator de Inflação da Variância (VIF) iguais a 1,0, confirmando a ausência de multicolinearidade e garantindo a independência estatística entre os fatores. A análise da tabela de coeficientes mostra que, para a resposta Y_M , o único fator principal significativo é A (EA:PET). Esse fator apresenta um efeito positivo, levando a um aumento significativo na resposta Y_M . As interações BC (temperatura $\times$ TNT), CD (TNT $\times$ tempo), ABD (EA:PET $\times$ temperatura $\times$ tempo) e BCD (temperatura $\times$ TNT:PET $\times$ tempo) apresentam coeficientes negativos, resultando em uma diminuição na resposta Y_M . Além disso, a comparação entre os rendimentos previstos e experimentais (Figura 3) demonstrou boa concordância dos dados com a linha ideal (declive 1 e intercepto próximo de zero), o que confirma a

adequação do modelo de regressão para prever Y_M no intervalo estudado.

O modelo incluiu termos de curvatura, o que aumentou sua precisão. Os indicadores estatísticos (Tabela 4) reforçam a qualidade do ajuste: o coeficiente de determinação R^2 foi de 0,8883, indicando que grande parte da variabilidade do Y_M foi explicada pelo modelo. Os valores de R^2 ajustado e previsto foram consistentes entre si (diferença < 0,2), evidenciando boa capacidade preditiva. Além disso, o valor de precisão adequada de 12,23, bem acima do limite mínimo de 4, confirmou um excelente sinal em relação ao ruído e atestou a robustez do modelo.

Tabela 3. Coeficientes em termos de fatores codificados para Y_M .

Fator	Coeficiente Estimado	Graus de liberdade	Erro padrão	IC 95% inferior	IC 95% superior	VIF
Intercepto	71,18	1	1,36	68,21	74,15	
A	5,70	1	1,36	2,73	8,67	1,0000
BC	-3,98	1	1,36	-6,95	-1,01	1,0000
CD	-6,17	1	1,36	-9,14	-3,21	1,0000
ABD	-8,87	1	1,36	-11,84	-5,90	1,0000
BCD	-3,46	1	1,36	-6,42	-0,49	1,0000
Ponto central 1	9,83	1	3,43			

IC: Intervalo de Confiança

VIF: Fator de Inflação da Variância

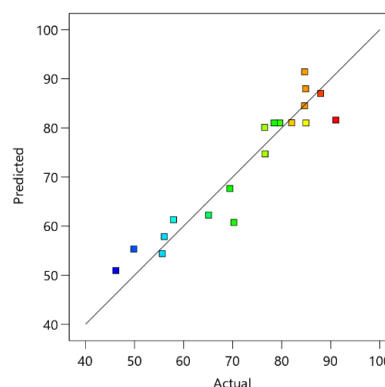


Figura 3. Valores previstos (modelo) versus reais para Y_M .

Tabela 4. Coeficientes em termos de fatores codificados para Y_M .

Desvio padrão	Média	C.V. %	R^2	R^2 Ajustado	R^2 predito	Adequação
5,45	72,73	7,49	0,8883	0,8417	0,7163	12,23

A Figura 4 apresenta os gráficos de superfície de resposta, onde em (a), sob condições de alta razão EA:PET (5) e temperatura (140 °C), o modelo indica que o maior Y_M ocorre com curto tempo de reação (2 h) e alta proporção de catalisador TNT:PET (4%), evidenciando sinergia entre

concentração catalítica e ativação térmica. Já em (b), quando a temperatura é reduzida para 120 °C, o rendimento diminui, exigindo maior tempo de reação e mostrando menor influência da quantidade de catalisador, o que sugere limitação da atividade catalítica e da cinética. Comparando as Figs. 4 (a) com (c), ao reduzir a razão EA:PET para 3, mantendo a temperatura em 140 °C, observa-se nova queda no rendimento e menor sensibilidade a tempo e catalisador, destacando a importância da quantidade do solvente para a eficiência da reação de aminólise.

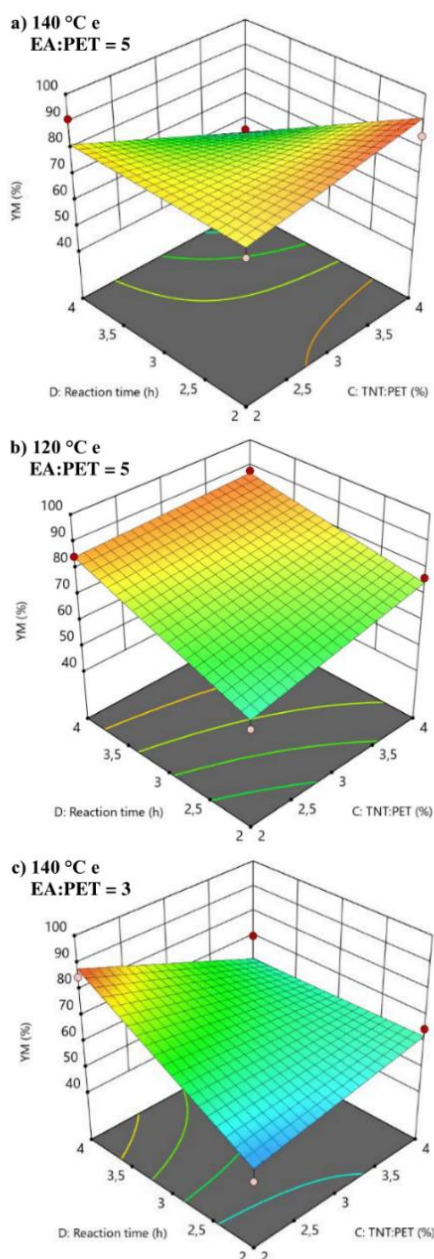


Figura 4. Gráfico de superfície de resposta para o efeito de interação entre a razão mássica TNT:PET (C) e o tempo de reação (D).

Além disso, a presença do monômero BHETA nos produtos foi confirmada por espectroscopia no infravermelho com transformada de Fourier (FTIR), conforme ilustrado na Figura 5. O espectro apresenta uma banda larga na região de 3.300 a 3.500 cm^{-1} , atribuída aos estiramentos vibracionais dos grupos N-H ($\sim 3.350 \text{ cm}^{-1}$) e O-H ($\sim 3.250 \text{ cm}^{-1}$), característicos da função amida e dos grupos hidroxila terminais, respectivamente. A banda em 1.690 cm^{-1} corresponde ao estiramento da carbonila (C=O) da ligação amida, enquanto a absorção em 1.540 cm^{-1} é atribuída ao estiramento da ligação C-N. Observa-se ainda uma banda em 1.510 cm^{-1} , associada ao estiramento das ligações C=C do anel aromático. As bandas em torno de 2.930 cm^{-1} indicam os estiramentos C-H dos grupos metileno (CH_2), enquanto aquelas entre 1.000 e 1.200 cm^{-1} estão relacionadas aos estiramentos das ligações C-O dos grupos hidroxila. A região entre 1.400 e 1.600 cm^{-1} apresenta bandas atribuídas às ligações C-C do anel aromático. Essas absorções confirmam a presença dos grupos funcionais característicos do BHETA, corroborando a eficiência da rota de síntese empregada (2,9,10,14).

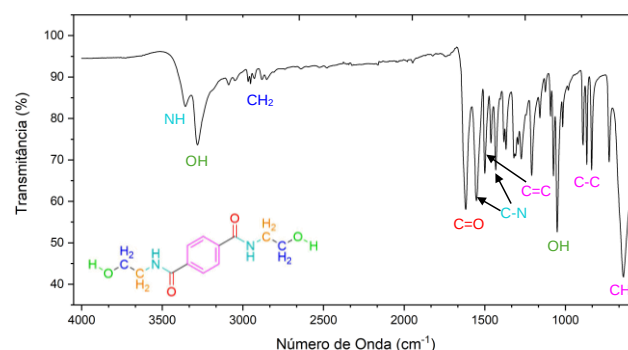


Figura 5. Espectro de FTIR para o monômero de BHETA.

Otimização das Condições Reacionais

Foi realizada uma simulação no software *Design Expert* 13 (Stat-Ease Inc.) com o objetivo de encontrar soluções numéricas de otimização dos parâmetros reacionais para a produção de BHETA, considerando o Y_M como variável-alvo. A simulação utilizou como base a matriz de restrições experimentais (Tabela 5), onde constam definidos os limites inferiores e superiores das variáveis. O objetivo da otimização foi identificar a melhor combinação entre os fatores: razão mássica EA:PET, temperatura, percentual mássico de TNT:PET e tempo reacional, de forma a maximizar o rendimento desejado. A função de desejabilidade foi utilizada para determinar a condição ideal, sendo que valores próximos de 1 indicam maior aderência ao objetivo. A solução com maior rendimento teórico de monômero BHETA e bom grau de desejabilidade foi aquela que atingiu 90% de Y_M , com desejabilidade igual a 0,713, conforme apresentado na Tabela 6, representando

assim a melhor condição prevista pelo modelo para maximizar a conversão em monômero BHETA.

Tabela 5. Restrições do projeto experimental para otimizar Y_M .

Nome	Objetivo	Mínimo	Máximo
A: EA:PET	maximizar	3	5
B: Temperatura	minimizar	120	140
C: TNT:PET	maximizar	2	4
D: Tempo de reação	minimizar	1,5	4
Y_M (%)	maximizar	80	100

Tabela 6. Solução de otimização para maximizar Y_M .

EA: PET	Temp. (°C)	TNT: PET (%)	Tempo (h)	Desejabilidade	Y_M (%)
5,0	133	4,0	1,5	0,754	>90

Conclusões

O estudo demonstrou que os nanotubos de titanato de sódio são catalisadores promissores para a reciclagem química do PET por aminólise com etanolamina, promovendo alta conversão do polímero (100%) e rendimentos expressivos de até 91% em monômero BHETA. A caracterização confirmou a estrutura e morfologia esperadas do TNT, e a aplicação do planejamento experimental permitiu identificar que a razão EA:PET é o fator mais influente no rendimento do monômero. A análise da superfície de resposta revelou que condições de alta razão EA:PET (5) e temperatura (140 °C), associadas a curto tempo de reação (2 h) e alta proporção de catalisador (4%), favorecem significativamente o rendimento. Contudo, a simulação obtida pelo software *Design Expert* gerou uma combinação de fatores que minimizou os valores dos parâmetros de síntese, sendo reduzidos tempo e temperatura (1,5h e 132 °C), mantendo os demais fatores iguais, otimizando ainda mais o processo de obtenção do BHETA. Esses resultados inéditos destacam o TNT como uma alternativa eficiente e sustentável para processos de despolimerização do PET. Para trabalhos futuros, é sugerido o estudo do reciclo do catalisador na reação com otimização dos parâmetros de síntese.

Agradecimentos

Os autores agradecem à CAPES pela concessão da bolsa de mestrado; ao Programa de Pós-Graduação em Engenharia e Tecnologia de Materiais (PGETEMA) e à Escola Politécnica da PUCRS pelo apoio institucional e pela infraestrutura disponibilizada; ao laboratório multiusuário LabCEMM (PUCRS) e ao Laboratório de Reatividade e Catálise (LRC/UFRGS) pelo suporte técnico e pela realização das análises.

Referências

1. Abiplast. *Perfil* 2023; **2024**.
2. D. Cevher; S. Sürdem, *Int. J. Adhes.* **2021**, *105*, 102799.
3. Z. Fehér; B. Takács; P. Pukánszky; Á. Kukovecz; Z. Kónya, *Green Chem.* **2022**, *24*, 8447–8459.
4. S. Javed; M. Zafar; H. Batool; T. Mahmood; F. Rehman, *Polymers* **2023**, *15*, 687.
5. G.R. Lima; J.C. Scaquetti; D.S. Rosa; R.M. Nascimento, *Mater. Res.* **2017**, *20*, 588–595.
6. G.R. Lima; C.A.B. dos Santos; D.S. Rosa; R.M. Nascimento, *Catal. Lett.* **2019**, *149*, 1415–1426.
7. W.F. Monteiro; C.A.B. dos Santos; M.S. Hoffmann; C.L.P. Carone; S.M.O. Einloft; M.O. de Souza; R.A. Ligabue, *Polym. Compos.* **2018**, *39*, 2292–2300.
8. R. Saker; H. Shammout; G. Regdon Jr.; T. Sovány, *Pharmaceutics* **2024**, *2024*, 16, 635.
9. D.A. Mersha; Z.B. Sendekie, *Adv. Mater. Sci. Eng.* **2022**, *2022*, 9567197.
10. A.K. Singh; K. Chugh; S.T. Mhaske, *Int. J. Adhes.* **2024**, *130*, 103610.
11. B. Swapna; A. Chatterjee; P. Subramaniam; P.K. Sahoo; M. Sankar, *Sust. E. Fuels* **2024**, [no prelo].
12. S. Hiruba; R. Gopalakrishnan; D. Kumar; A. Thangamani; B. Karthikeyan, *Catalysts* **2025**, *15*, 129.
13. A.A.A. Otaibi; K.M. El-Khatib; M. Abu-Zurayk; A. Alothman; H.M. Alshammari; M. Alayoubi; H. Alshabanah, *Polymers* **2022**, *14*, 1861.
14. M. Padole; A. Dhakate; S. Gupta; S. Varma; A. Kumar, *Polym. Bull.* **2025**, [no prelo].
15. A.M. Al-Sabagh; F.Z. Yehia; E.E. Eshaq; A.E. Rabie; A.A. ElMetwally, *Egypt. J. Pet.* **2016**, *25*, 53–64.