

Síntese e caracterização de nanocatalisadores de paládio suportados em materiais carbonáceos derivados de garrafas PET para produção de hidrogênio

Laís B. Moraes¹, Karla L. C. Silva², Bráulio S. Barros³, Joanna E. K. Barros^{2*}

¹Departamento de Engenharia Química, Universidade Federal de Pernambuco (UFPE), Recife-PE, 50740-560, Brasil.

²Departamento de Química Fundamental, Universidade Federal de Pernambuco (UFPE), Recife-PE, 50740-560, Brasil.

³Departamento de Engenharia Mecânica, Universidade Federal de Pernambuco (UFPE), Recife-PE, 50740-560, Brasil.

*joanna.kulesza@ufpe.br

Resumo/Abstract

RESUMO - As sociedades atuais são altamente dependentes do plástico, o que tem gerado preocupação com seus impactos ambientais. Este estudo teve como objetivo desenvolver um nanocatalisador de paládio suportado em óxido de grafeno **reduzido** (rGO) derivado da carbonização controlada de garrafas PET para produção de H₂ a partir do NaBH₄. O material carbonáceo foi obtido por pirólise a 450 °C, caracterizado por FTIR e DRX. Este material foi utilizado como suporte para a impregnação de nanopartículas de paládio, originando o nanocatalisador Pd/rGO. A atividade catalítica do Pd/rGO foi avaliada na produção de H₂ a partir da hidrólise e metanólise do NaBH₄, em reações conduzidas a 70 °C por 40 minutos. Os volumes de gás gerados foram de 65 mL (hidrólise) e 70 mL (metanólise), com rendimentos de 55% e 59%, respectivamente. Os valores de TOF obtidos foram de 130,7 h⁻¹ e 321,5 h⁻¹, respectivamente, evidenciando maior eficiência da metanólise na geração de H₂. Os resultados obtidos demonstram que o nanocatalisador Pd/rGO apresenta boa eficiência na produção de H₂, especialmente na metanólise do NaBH₄. Deste modo, destaca-se o potencial dos resíduos plásticos na obtenção de materiais com aplicações sustentáveis.

Palavras-chave: Resíduos plásticos, Polietileno tereftalato, Produção de Hidrogênio, NaBH₄, Nanocatalisadores.

ABSTRACT - Modern societies are highly dependent on plastics, raising concerns about their environmental impact. This study aimed to develop a palladium-based nanocatalyst supported on **reduced** graphene oxide (rGO), derived from the controlled carbonization of PET bottles, for hydrogen (H₂) production from NaBH₄. The carbonaceous material was obtained via pyrolysis at 450 °C and characterized by FTIR and XRD. The material was used as a support for the impregnation of palladium nanoparticles, yielding the Pd/rGO nanocatalyst. The catalytic activity of Pd/rGO was evaluated in H₂ production through the hydrolysis and methanolysis of NaBH₄, within reactions conducted at 70 °C for 40 minutes. The gas volumes produced were 65 mL (hydrolysis) and 70 mL (methanolysis), with yields of 55% and 59%, respectively. The corresponding TOF values were 130.7 h⁻¹ and 321.5 h⁻¹, respectively, indicating a higher efficiency of methanolysis in H₂ generation. The results demonstrate that the Pd/rGO nanocatalyst exhibits good performance in hydrogen production, particularly in the methanolysis of NaBH₄, highlighting the potential of plastic waste in the development of sustainable materials.

Keywords: Plastic waste, Polyethylene terephthalate, Hydrogen production, NaBH₄, Nanocatalysts.

Introdução

As sociedades atuais são altamente dependentes do plástico. Um dos polímeros mais produzidos em todo o mundo, representando ~7% do total de plásticos, é o polietileno tereftalato (PET), e sua falta de gestão resulta em uma geração de danos ao meio ambiente e à saúde humana (1, 2). Visando reduzir esses danos, diversos grupos de pesquisa têm desenvolvido tecnologias de reaproveitamento de PET a fim de sintetizar materiais carbonáceos de alto valor agregado, em especial, com estruturas semelhantes ao grafeno. Porém, em sua grande maioria são obtidos através da pirólise a elevadas temperaturas e, muitas vezes, em processos com múltiplas etapas (3, 4). Esses materiais podem ser utilizados como suporte para nanopartículas metálicas, auxiliando na produção e armazenamento de hidrogênio (5). Neste contexto, o presente trabalho, propõe a síntese de um nanocatalisador de paládio suportado em material carbonáceo de baixo custo derivado de PET para geração de H_2 a partir do $NaBH_4$.

Experimental

Síntese do material carbonáceo a partir de garrafas PET

Na síntese do material carbonáceo, garrafas PET foram coletadas, higienizadas, cortadas e carbonizadas em mufla a 450 °C por 15 minutos, com taxa de aquecimento de 2 °C/min(6). O material foi caracterizado por FTIR e DRX.

Síntese do nanocatalisador de Pd (5%)

Na síntese do nanocatalisador de Pd (7), foram adicionados 142,5 mg do material carbonáceo a 36 mL de água destilada, sendo sonicados por 10 minutos. Em seguida, 3,5 mL de uma solução de Na_2PdCl_4 (0,02 mol/L) foram adicionadas à suspensão e sonicados por mais 10 minutos. Posteriormente, 14 mL de $NaBH_4$ (0,2 mol/L) foram adicionados, mantendo a agitação por 90 minutos. O sólido foi centrifugado, lavado com água e metanol, e seco a vácuo a 60 °C por 12 h.

Produção de Hidrogênio

Nas atividades catalíticas realizadas em duplicata a 70°C, foram utilizados 20 e 40 mg do catalisador e do $NaBH_4$, respectivamente, e 10 mL de água ou metanol em um balão de duas bocas, o qual se mantém conectado ao sistema de medição de H_2 por deslocamento de água em proveta, através do qual foi calculado o rendimento da reação.

Resultados e Discussão

Através do tratamento térmico foi obtido o óxido de grafeno reduzido (rGO) com rendimento médio de 15%. A partir das análises de FTIR (figura 1a), observou-se que o material de partida, PET, apresentou sinais referentes aos grupos éter (1096 cm^{-1}) e anéis aromáticos (870 cm^{-1}), estes não foram vistos no material carbonizado. Além disso, houve a diminuição da intensidade da banda em 1717 cm^{-1} e surgimento de uma banda em 1599 cm^{-1} , correspondente ao estiramento dos grupos ($C=C$) dos compostos aromáticos presentes na estrutura do óxido de grafeno (8).

O difratograma indicou a formação do rGO (figura 1b), este apresentou uma banda larga com pico em $\sim 22^\circ$, que corresponde à reflexão (002), típica de material grafitico. O deslocamento da banda indica que grupos funcionais oxigenados ainda estão presentes no óxido de grafeno reduzido sintetizado a partir de resíduos de PET (6, 9).

A produção de H_2 a partir do $NaBH_4$ utilizando o catalisador Pd/rGO, apresentou resultados satisfatórios. Dentre os sistemas avaliados (figura 1c), foram produzidos $65,5 \pm 1,4\text{ mL}$ e $70 \pm 2,1\text{ mL}$ de H_2 na hidrólise (TOF = $130,7\text{ h}^{-1}$, rendimento de 55%) e metanólise (TOF = $321,5\text{ h}^{-1}$, rendimento de 59%), respectivamente. Estes resultados corroboram com estudos anteriores realizados em nosso grupo de pesquisa para a hidrólise do $NaBH_4$ utilizando estrutura metalorgânica (MOF) monometálica (Mn-BDC (BDC: 1,4-benzene dicarboxylate) (10).

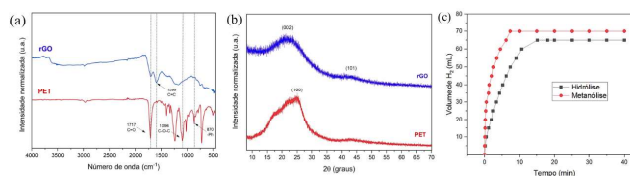


Figura 1. (a) Espectros de FTIR de rGO e de PET; (b) Padrões de DRX de rGO e de PET; (c) Volume de H_2 liberado em função do tempo nas reações de hidrólise e metanólise do $NaBH_4$.

Conclusões

O estudo demonstrou a viabilidade do reaproveitamento de garrafas PET para a obtenção de rGO de baixo custo. O nanocatalisador Pd/rGO apresentou boa atividade catalítica, reforçando o potencial de valorização de resíduos plásticos em aplicações energéticas sustentáveis. Mais estudos estão sendo realizados buscando a ativação e funcionalização da superfície do rGO, a fim de aprimorar a atividade catalítica utilizando outros carreadores de H_2 .

Agradecimentos

À Propesqi (UFPE), ao CNPq (409160/2022-9) e à FACEPE (APQ-0791-3.03/24), e ao DQF (UFPE) pelo suporte técnico.

Referências

1. H. Jung et al. *Chemosphere*. **2023**, 320, 138089.
2. O. Pencik et al. *Environmental Pollution*. **2023**, 329, 121628.
3. L. Blinová et al. *Journal of Chemical Technology and Metallurgy*. **2025**, 60, 21-32.
4. A. M. Aboraia et al. *International Journal of Modern Physics B*. **2025**, 39, 2550127.
5. S.U. Rather. *International Journal of Hydrogen Energy*. **2020**, 45, 4653-4672.
6. F.J.X. Novelo et al. *Journal of Environmental Chemical Engineering*. **2024**, 12, 112244.
7. X. Zhao et al. *International Journal of Hydrogen Energy*. **2020**, 45, 30396.
8. S.N. Alam; N. Sharma; L. Kumar. *Graphene*. **2017**, 6, 1-18.
9. Q. A. Mahmood; B. A. Abdulmajeed. *Jurnal Teknologi*. **2023**, 85, 19248.
10. M. A. Oliveira et al. *Applied Surface Science*. **2023**, 628, 157361.