



ESTUDO DAS PROPRIEDADES QUÍMICAS E MECÂNICAS DE ÓXIDO DE GRAFITE PARA INCORPORAÇÃO EM ARGAMASSA DE REVESTIMENTO

Lilian Keylla Berto¹; Lídia Pereira AmaroSilvia²; Luciana Fávaro³; Luciana Cristina Soto Herek Rezende⁴

¹ Acadêmica do Curso de Engenharia Civil, UNICESUMAR, Maringá-PR. Bolsista PIBIC/UniCesumar.

² Acadêmica do Curso de Engenharia Civil, UNICESUMAR, Maringá-PR.

³ Co-Orientadora, Doutora, Universidade Estadual de Maringá – UEM, Maringá-PR.

⁴ Orientadora, Profa. Pós Doutora do Centro de Ciências Exatas, Tecnológica e Agrária e Pesquisadora do Instituto Cesumar de Ciência, Tecnologia e Inovação – ICETI, Maringá-PR.

RESUMO: Há um desequilíbrio ambiental devido ao desenvolvimento urbano e a alta escala de produção de resíduos sólidos, principalmente na indústria cimenteira. A melhoria do desempenho dos materiais à base de cimento pode torná-los produtos mais duráveis e ecologicamente corretos. Este trabalho teve como proposta sintetizar e caracterizar o óxido de grafite visando sua utilização na produção de argamassa de revestimento. O óxido de grafite foi sintetizado por meio da metodologia modificada de Hummers. Para a caracterização do óxido de grafite obtido no processo foram utilizadas as técnicas de espectroscopia no infravermelho por transformada de Fourier (FTIR) e espectroscopia Raman. Este trabalho desenvolveu um método simples e eficiente para a síntese e caracterização do óxido de grafite. As propriedades físico-químicas demonstraram que a síntese foi efetiva na oxidação do grafite a óxido de grafite. O óxido de grafite permite ser incorporado em outros materiais, como a argamassa de revestimento, tornando-a ambientalmente correta, pois diminui necessidade de intervenções nas construções em virtude de uma estrutura mais rígida.

PALAVRAS-CHAVE: nanotecnologia; nanotubo de carbono; sustentabilidade; matriz cimentícia.

1 INTRODUÇÃO

Há um desequilíbrio ambiental devido ao desenvolvimento urbano e a alta escala de produção de resíduos sólidos. Sendo que a indústria cimenteira é uma das principais geradoras de poluentes que podem causar prejuízos, gerando um impacto ambiental negativo (BONATO, 2014; BRAGA *et al.*, 2005).

Na China e na Índia a escala de produção mundial ultrapassa 7,5 bilhões de toneladas por ano, excedendo mais de 1 m³ de cimento por pessoa no mundo (US, 2007 apud FERRO *et al.*, 2014). A concentração ou quantidade de resíduos podem ser evitados ou controlados, como exemplo, a fabricação de novos produtos mais eficientes, duráveis e sustentáveis (OLIVEIRA, 2015).

Há estudos para a melhoria do desempenho dos materiais à base de cimento com investigação de propriedades e características, principalmente a durabilidade, a qualidade e a resistência, o que os tornam ecologicamente corretos. As nanotecnologias vêm contribuindo significativamente para esse processo devido as suas características estruturais, com destaque nas áreas de automóveis, elétrica, química e outros (ALIMENETI, 2015; BAI, *et al.*, 2018).

A construção civil é o setor que busca constantemente tecnologias que possam substituir fontes não renováveis (areia, cal, água potável, por exemplo) (MOTTA *et al.*, 2015). Uma dessas tecnologias utilizadas atualmente é a incorporação de diferentes nanomateriais em matriz cimentícia.

Os nanomateriais que tem relevância por apresentarem excelentes propriedades mecânicas, elétricas e térmicas. Além disso, as microestruturas podem exibir resistência à tração superior ao aço com menos peso incorporado (BAI, *et al.*, 2018; LEMES; FELIX, 2016; SAKTHIESWARAN; SURESH, 2015).

Diante do exposto, este trabalho teve por objetivo a síntese e caracterização do óxido de grafite com análises químicas, físicas para investigar a viabilidade da incorporação do produto na argamassa de revestimento com o intuito da melhoria dos materiais tradicionais trazendo a necessidade de meios sustentáveis e produtos mais eficientes ecologicamente e economicamente.



2 MATERIAL E MÉTODOS

2.1 SÍNTESE DO ÓXIDO DE GRAFITE

O óxido de grafite foi sintetizado por meio da metodologia modificada de Hummers (YANG *et al.*, 2013). A síntese foi realizada no laboratório da Unicesumar de Engenharia Ambiental a partir de um grama de grafite (99,99% - Aldrich) misturado com 60 gramas de cloreto de sódio (99% PA Biotec – Reagentes Analíticos) em um béquer. Os grãos foram macerados e adicionados à um litro de água destilada. Por meio de filtração a vácuo foi retirado o cloreto de sódio dissociado da água destilada.

O material foi levado a estufa até secagem à temperatura de 50°C por 24 h. Após secagem o material foi dissolvido, sob agitação magnética por 8h, em 23 mL de ácido sulfúrico (H₂SO₄, 98%, Biotec – Reagentes Analíticos).

Em um reator encamisado acoplado a um banho termostaticado (Tecnal, mod. TE-2005) foram adicionados 3 g de permanganato de potássio (KMnO₄ - PA, Biotec – Reagentes Analíticos) sob agitação (agitador: FISATOM – MOD.752), na temperatura inferior a 20°C.

Aumentou-se a temperatura para 40°C, na qual permaneceu por 30 minutos, depois para 70°C permanecendo por 45 minutos. Quando atingida a temperatura de 105°C, manteve-se por 5 minutos e adicionou-se 3 mL de água destilada. Repetiu-se o procedimento. Após 15 minutos, abaixou-se a temperatura para 100°C, na qual foram adicionados 40 mL de água destilada. Finalizou-se a síntese com 10 mL de solução de peróxido de hidrogênio (H₂O₂ 35%, marca: Biotec – Reagentes Analíticos). Em seguida foram adicionados 140 mL de água destilada e a mistura foi transferida para outro béquer, onde foi deixada em repouso até a centrifugação.

A centrifugação foi realizada por meio de lavagem do precipitado com ácido clorídrico (HCl 37%, Biotec – Reagentes Analíticos). O procedimento repetiu-se por duas vezes. Após a lavagem foi realizada por três vezes com água destilada. O material foi centrifugado à vácuo, (Centrífuga Evlab, macro EV: 04). Em seguida o material foi seco em estufa (Atecmed, 35 litros).

2.2 CARACTERIZAÇÃO DOS MATERIAIS

Para a caracterização do óxido de grafite obtido no processo foram utilizadas as técnicas de espectroscopia no infravermelho por transformada de Fourier (FTIR) utilizando pastilhas de KBr em uma faixa espectral de 4000 a 500 cm⁻¹ em um espectrofotômetro Bruker, Vertex 70V e espectroscopia Raman com laser de 532 nm em varredura de 2 m/V utilizando um Bruker, modelo Senterra. Estes ensaios foram realizados nos laboratórios da Universidade Estadual de Maringá (UEM), Departamento de Química.

3 RESULTADOS E DISCUSSÃO

No total de seis sínteses realizadas, resultou-se em 8,06 gramas de óxido de grafite. As análises realizadas através da técnica de espectroscopia de infravermelho (FTIR) demonstraram que a síntese foi efetiva na oxidação do grafite a óxido de grafite.

A banda alargada em aproximadamente 3500 cm⁻¹ corresponde a (ν_{OH} C-OH) de álcoois e ácido carboxílico da superfície do material além de água residual. A presença de dois sinais observados na região de 1630 cm⁻¹ e 1730 cm⁻¹ podem ser atribuídos, respectivamente, ao (δ H₂O) e (ν_{C=O} de COOH) dos grupamentos presentes no óxido de grafeno (GO). Há também a presença de sinais na região de 1050 cm⁻¹ referentes a (ν_{C-O}) de grupamentos epóxi além dos sinais em 1220 cm⁻¹ de (ν_{C-O-C}) também



para epóxidos. A presença desses picos contendo grupamentos com oxigênio revela que o material foi oxidado (CHEN; YAN; BANGAL, 2010).

A amostra obtida é rica em grupos carboxila conforme apresentados na Figura 1.

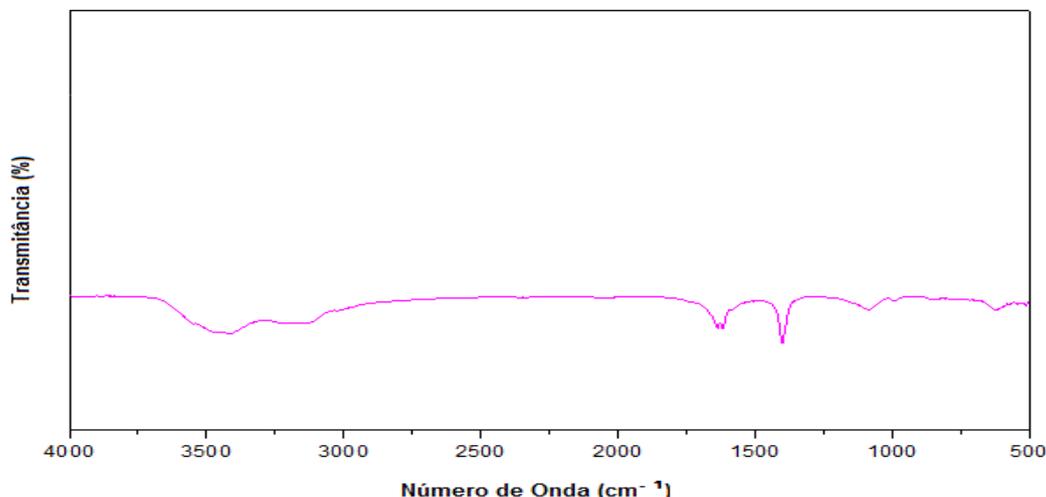


Figura 1: Espectro de infravermelho (FTIR) aplicado na amostra o óxido de grafite. **Fonte:** Autor, 2018.

A técnica de espectroscopia Raman foi utilizada para compreender as propriedades estruturais do óxido de grafite. Os resultados apontam as bandas D e G indicam respectivamente os defeitos do material e a vibração de átomos de carbono sp^2 , característica de todos os materiais compostos de carbono com esta hibridização (RATH; KUNDU, 2015).

A Figura 2 apresenta o espectro Raman do óxido de grafite. Alótropos de carbono apresentam suas impressões digitais na técnica Raman, com a presença das bandas D, G, D' e G' (ou 2D), em torno de 1350 cm^{-1} , 1580 cm^{-1} , 1620 cm^{-1} e 2700 cm^{-1} , respectivamente. Sobretons ou a combinação de modos vibracionais dependendo da condição em que o espectro é adquirido podem também ser observados, como no caso das bandas D + G (em 2930 cm^{-1}) e G'' (em 3220 cm^{-1}) (MALARD *et al.*, 2009).

Na síntese foram observadas as presenças das bandas D e G em torno de 1400 cm^{-1} e 1600 cm^{-1} , respectivamente, mostrando que a estrutura do material foi modificada por conta do processo de óxido de grafite.

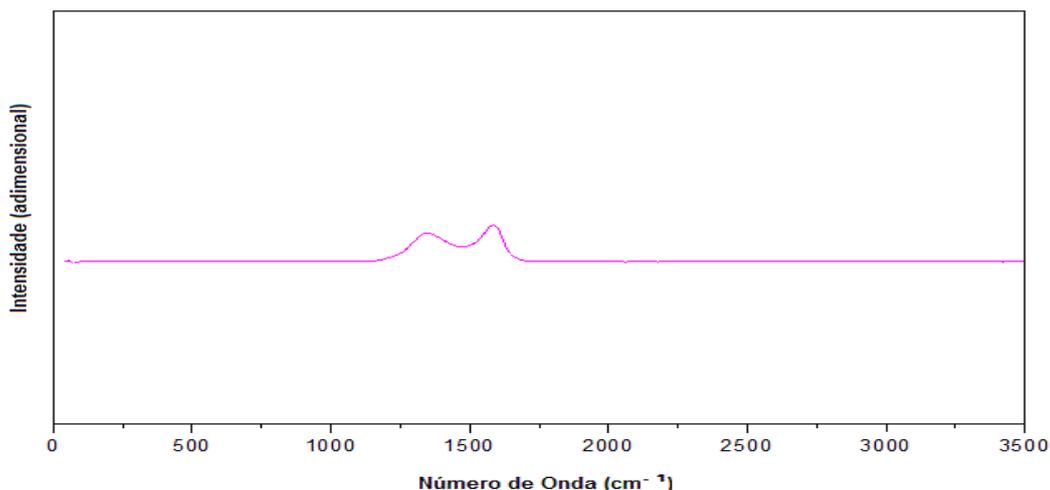


Figura 2: Espectro Raman aplicado na amostra o óxido de grafite. **Fonte:** Autor, 2018.



Vale ressaltar que após o processo de oxidação, pode ser realizada a esfoliação química para a obtenção de óxido de grafeno, como também utilizar-se de outras técnicas para obtenção de óxido de grafeno reduzido, que por comparação ao óxido de grafite apresentam melhores resultados tanto para o espectro de infravermelho (FTIR) e o espectro Raman.

Um exemplo são os estudos de Yaseen, *et al.*, 2018, que utilizou o método de Hummers para a síntese do óxido de grafeno e óxido de grafeno reduzido, que na análise de espectroscopia de Raman obteve 1362.5 e 1589.6 cm^{-1} em números de onda para o óxido de grafeno e 1348.2 e 1577.2 cm^{-1} em números de onda para o óxido de grafeno reduzido. Já a análise de espectroscopia FTIR foram localizados picos em 3432.8 cm^{-1} e 2368.3 cm^{-1} devido ao alongamento dos grupos O-H e com o alongamento de sp^2 e sp^3 em ligações híbridas C-H, respectivamente.

4 CONCLUSÃO

Este trabalho desenvolveu um método simples e eficiente para a síntese e caracterização do óxido de grafite. As propriedades físico-químicas demonstraram que a síntese foi efetiva na oxidação do grafite a óxido de grafite sintetizado na fase líquida por meio da metodologia modificada de Hummers estabelecida por Yang *et al.*, 2013.

As nanotecnologias incorporadas no cimento aumentam as propriedades mecânicas principalmente a resistência à compressão e à flexão. No entanto, existem muitos processos diferentes, por isso é fundamental desenvolver uma técnica adequada para obter ótimos resultados. O óxido de grafite permite ser incorporado em outros materiais, como a argamassa de revestimento, tornando-a ambientalmente correta, pois diminui necessidade de intervenções nas construções em virtude de uma estrutura mais rígida (MANZUR, *et al.*, 2016; SAGADEVAN, *et al.*, 2018).

REFERÊNCIAS

ALIMENETI, Narasimha Reddy. **Properties of microcement mortar with nano particles**. Master of science in civil engineering the University of Texas at Arlington. 79p. 2015.

BAI, Shuya; JIANG, Linhua; XU, Ning; JIN, Ming; JIANG, Shaobo. Enhancement of mechanical and electrical properties of graphene/cement composite due to improved dispersion of graphene by addition of silica fume. **Construction and Building Materials**, [s.l.], vol. 164, p. 433–44, march. 2018. Elsevier. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2017.12.176>

BONATO, Marcelle Maia. **Desempenho mecânico e ambiental de concretos e argamassas de cimento portland com substâncias minerais orgânicas e fotocatalíticas**. 2014. 190f. Tese (Doutorado em Engenharia e Ciências dos Materiais) – Universidade Federal do Paraná. Curitiba, PR, 2014.

BRAGA, Benedito.; HESPANHOL, Ivanildo.; CONEJO, João, G. L.; MIERZWA, José, C.; BARROS, Mário, T. L.; SPENCER, Milton.; PORTO, Monica.; NUCCI, Nelson.; JULIANO, Neuza.; EIGER, Sérgio. **Introdução à engenharia ambiental**. 2 ed. São Paulo: Pearson Prentice Hall, 2005.

Chen W, Yan L, Bangal PR (2010) **Preparation of graphene by the rapid and mild thermal reduction of graphene oxide induced by microwaves**. Carbon 48:1146–1152

LEMES, S. P. S.; FELIX, J. P. Caracterização do comportamento mecânico e térmico de argamassas de cimento portland com adição de nanotubo de carbono. In: CONGRESSO BRASILEIRO DE ENGENHARIA E CIÊNCIA DOS MATERIAIS / CBECiMat, 22. Natal, 2016. **Anais eletrônicos...** Rio Grande do Norte: Natal,



2016. 12p. Disponível em: < <http://www.metallum.com.br/22cbecimat/anais/PDF/213-064.pdf>>. Acesso em: 14 mar. 2018.

Malard LM, Pimenta MA, Dresselhaus G, Dresselhaus MS (2009) **Raman spectroscopy in graphene**. Physics Reports 473:51–87

MANZUR, Tanvir; YAZDANI, Nur; EMON, Md. Abul Bashar. Potential of Carbon Nanotube Reinforced Cement Composites as Concrete Repair Material. **Journal of Nanomaterials**, [s.l.], Volume 2016. 10 pages. February. 2016. Hindawi. <http://dx.doi.org/10.1155/2016/1421959>

MOTTA, Jessica C. S.S. et al. **Tijolo de solo-cimento: análise das características físicas e viabilidade econômica de técnicas construtivas sustentáveis**. E-xacta, Belo Horizonte, v. 7, n.1, p. 13-26. (2014). Editora UniBH. Disponível em: <www.unibh.br/revistas/exacta/>. Acessado em: 21 mar. 2018.

OLIVEIRA, Talita Mesquita. **Estudo sobre o uso de materiais de construção alternativo que otimizam a sustentabilidade em edificações**. 2015. 114p. Monografia (graduação em Engenharia Civil) – Universidade Federal do Rio de Janeiro – Rio de Janeiro, 2015.

Rath T, Kundu PP (2015) **Reduced graphene oxide paper based nanocomposite materials for flexible supercapacitors**. RSC Adv 5:26666–26674

SAGADEVAN, Suresh; CHOWDHURY, Zaira Zaman; JOHAN, Mohd. Rafie Bin; RAFIQUE, Rahman Faizur; AZIZ, Fauziah Abdul. One pot synthesis of hybrid ZnS–Graphene nanocomposite with enhanced photocatalytic activities using hydrothermal approach. **Journal of Materials Science: Materials in Electronics**, [s.l.], vol. 29, p. 9099–9107, june. 2018. Springer. <https://doi.org/10.1007/s10854-018-8937-z>

SAKTHIESWARAN, N.; SURESH, M. A Study on Strength Properties for Cement Mortar added with Carbon Nanotubes and Zeolite. **International Journal Of Engineering And Computer Science**, [s.l.], vol. 4, p. 12402-12406, june. 2015. Available in: <<http://www.ijecs.in/index.php/ijecs/article/view/3748>>. Accessed in: 24 may. 2018.

US United States Geographic Service. **"Minerals commodity summary – cement - 2007"**. Technical Report Retrieved November 24, 2011, US United States Geographic Service, 1 June 2007.

Yang K, Feng L, Hong H, Cai W, Liu Z (2013) **Preparation and functionalization of graphene nanocomposites for biomedical applications**. Nature Protocols 8:2392-2403

YASEEN, Sarah Abduljabbar; YISEEN, Ghadah Abdaljabar; LI, Zongjin. Synthesis of calcium carbonate in alkali solution based on graphene oxide and reduced grapheme oxide. **Journal of Solid State Chemistry**, [s.l.], vol. 262, p. 127–134, March. 2018. Elsevier. <https://doi.org/10.1016/j.jssc.2018.03.005>