

II-023 – TRATAMENTO DE EFLUENTES TÊXTEIS REAIS POR ADSORÇÃO EM ÓXIDO DE GRAFENO AMINO-Fe₃O₄-FUNCIONALIZADO

Tiago Jose Marques Fraga ⁽¹⁾, Maryne Patrícia da Silva ⁽²⁾, Ziani Santana Bandeira de Souza ⁽¹⁾, Marilda Nascimento Carvalho ⁽³⁾, Mauricio Alves da Motta Sobrinho ⁽⁴⁾

⁽¹⁾ Engenheiro Químico e Mestre em Engenharia Química pela Universidade Federal de Pernambuco (UFPE).

⁽²⁾ Engenheira Química pela Universidade Federal de Pernambuco (UFPE).

⁽³⁾ Mestre e Doutora em Engenharia Química pela Universidade Federal de Pernambuco (UFPE); Vice-coordenadora do Laboratório de Análises Minerais, Solos e Água (LAMSA/UFPE).

⁽⁴⁾ Doutor em Engenharia Química e Professor do Departamento de Engenharia Química da Universidade Federal de Pernambuco (UFPE).

Endereço⁽¹⁾: Rua Artur de Sá, s/n, CEP: 50.740-521, Cidade Universitária, Recife/PE, Brasil - e-mail: tiago.fraga2012@gmail.com

RESUMO: Os efluentes da indústria têxtil são conhecidos por sua elevada carga e volume de água. Tais efluentes são caracterizados pelo alto teor de sais, tensoativos, íons metálicos e, sobretudo pelos corantes têxteis. Neste trabalho, foi sintetizado o óxido de grafite pelo método de Hummers modificado seguido por esfoliação em banho de ultrassom, produzindo o óxido de grafeno em multicamadas (nOG). Em seguida o nOG foi amino funcionalizado a partir da dietilenotriamina (DETA) e FeCl₃ para gerar o óxido de grafeno multicamadas amino-Fe₃O₄-funcionalizado (nOG-NH₂-Fe₃O₄), que foi empregado como adsorvente no tratamento de efluente de lavanderia têxtil. Os testes de adsorção realizados com efluente têxtil após a coagulação real mostraram um queda de 56% na Demanda química de oxigênio (DQO), de 607,00 mg O₂-L⁻¹ para 269,57 mg O₂-L⁻¹. Os experimentos também mostraram uma queda na cor aparente do efluente bruto de 370 para 177 Hazen, o que evidencia a remoção na carga de corante presente nas amostras.

1. INTRODUÇÃO

O monitoramento contínuo da carga orgânica e da presença de compostos cancerígenos presentes nos efluentes despejados nos corpos d'água constitui-se um grande desafio, em virtude da limitação de recursos das empresas e a falta de uma cultura orientada para a preservação ambiental. Este fato é observado, sobretudo, nas regiões do agreste pernambucano, como os municípios de Toritama e Santa Cruz do Capibaribe, onde predominam as lavanderias de pequeno e médio porte. Essas empresas enquadram-se na tipologia de pequenas tingidoras industriais, que prestam serviços às diversas empresas de confecções de jeans espalhados pelo município, não dispondo de recursos financeiros e tecnológicos para a realização de um tratamento eficaz de remoção de corantes do efluente gerado em seus processos.

O problema ambiental se agrava à medida que esses efluentes são lançados em corpos hídricos da região, responsáveis pelo abastecimento de água dos municípios citados. Ressalta-se que a região do semiárido pernambucano passa por problemas crônicos de desabastecimento de água em virtude dos sucessivos períodos de seca. Juntamente com a descarga de efluentes têxteis nos corpos hídricos, a falta de infraestrutura básica na região, como rede de drenagem e distribuição precária de água potável (FARIAS, 2012) contribui para agravar o quadro. O descarte desordenado de efluentes, em conjunto com a escassez de chuvas, também vem acarretando problemas na qualidade da água, elevando de certa forma o custo da empresa de saneamento responsável pelo abastecimento na região. Visando mitigar os problemas do descarte de corantes e outros poluentes orgânicos que compõem os efluentes têxteis industriais (tensoativos, saponáceos, sais, íons metálicos, etc.), muitos autores têm se debruçado sobre a pesquisa de novos adsorventes para remoção desses poluentes, sobretudo de corantes têxteis (BOAKYE *et al.*, 2019; LEE *et al.*, 2019; FRAGA *et al.*, 2019); contudo, a grande maioria desses artigos tratam de estudos com efluentes sintéticos e monocomponentes, em que não há a presença dos demais compostos

que podem competir com os corantes pelos sítios ativos dos respectivos adsorventes. Além disso, não é comum encontrar trabalhos publicados na literatura que tratem de processos adsorptivos com nanosorventes envolvendo efluentes têxteis reais.

Recente estudo relativo ao tratamento de efluentes têxteis in natura foi realizado por Araújo *et al.* (2019) por meio da adsorção em óxido de grafeno (OG). Foi verificado significativa remoção na Demanda Química de Oxigênio (DQO) do efluente de aproximadamente 61 %, além de 90 % na sua turbidez e 76 % na sua cor aparente (Hazen). Neste trabalho, o óxido de grafeno multicamadas (nOG) foi obtido pelo método de Hummers modificado (HUMMERS; OFFEMANN, 1958). Posteriormente, o nOG foi submetido à funcionalização covalente por meio da dietilenotriamina (DETA) e à ancoragem de nanopartículas de óxido de ferro visando à inserção de grupos funcionais nitrogenados de modo a possibilitar uma maior eficiência na remoção de corantes e outros poluentes dos efluentes têxteis (FRAGA *et al.*, 2019). Finalmente, o óxido de grafeno multicamadas amino-Fe₃O₄-funcionalizado (nOG-NH₂-Fe₃O₄) foi testado no tratamento de efluentes têxteis brutos, com o monitoramento das principais propriedades: Demanda Bioquímica de Oxigênio (DBO), Demanda Química de Oxigênio (DQO), sólidos voláteis e totais, pH, concentração e cor. Este trabalho tem como objetivo contribuir para esclarecer esse tema e mudar a realidade das comunidades locais do interior de Pernambuco.

Finalmente, este trabalho tem como objetivo sintetizar o nOG-NH₂-Fe₃O₄ a partir da oxidação do grafite e posterior funcionalização e avaliar a sua performance no tratamento de efluentes têxteis brutos, coletados em lavanderias e lavanderias da região do Agreste de Pernambuco.

2. MATERIAIS E MÉTODOS

2.1 Síntese do nOG

O óxido de grafeno multicamadas (nOG) foi sintetizado a partir do Método de Hummers modificado. 1,0 g de grafite em pó (*Synth*, 99% P.A.) foi adicionado juntamente com 25 mL de ácido sulfúrico (H₂SO₄, *Vetec*, 99% P.A.) a um becker sob agitação mantido a temperatura abaixo de 12°C até a homogeneização da mistura. Em seguida, foi adicionado permanganato de potássio (KMnO₄, *Dinâmica*, 99% P.A.) lentamente e elevada a temperatura para 32°C por um período de 6h. Após a reação de oxidação do grafite, foi adicionado 35 mL de peróxido de hidrogênio (H₂O₂) para finalizar a reação; em seguida, foi adicionado 200 mL de solução de ácido clorídrico (HCl) 25%. Após o processo de oxidação do grafite, o óxido de grafite foi submetido a sucessivas lavagens com água destilada até a neutralização do pH da suspensão. Após as lavagens, a amostra foi submetida à esfoliação em banho de ultrassom para a obtenção da suspensão de nOG.

2.2 Amino-Fe₃O₄-uncionalização do nOG

O processo de síntese das nanopartículas de Fe₃O₄ ocorreu pelo método solvotérmico em que se utilizou etilenoglicol como solvente orgânico (Figura 1a). Para a funcionalização covalente e a ancoragem de nanopartículas de Fe₃O₄, foi separada uma alíquota de 4,0 mL de suspensão de nOG (~0,031 g·mL⁻¹) e misturado com 250 mL de monoetilenoglicol, sob aquecimento até atingir a temperatura de 180°C. Foi adicionado à mistura 0,5 g de cloreto de ferro III hexahidratado (FeCl₃·6H₂O, *Dinâmica*), 3,0 g de acetato de sódio (H₃CCOONa, 99% P.A.) e 30 mL de dietilenotriamina (DETA, *Sigma-Aldrich*, 99% P.A.). A reação de funcionalização ocorreu em modo batelada, num becker de 600 mL fechado com refluxo, com velocidade de agitação vigorosa por 6h e temperatura rigorosamente controlada em 180°C. O processo de funcionalização ocorre através do ataque nucleofílico das aminas primárias aos carbonos adjacentes das hidroxilas e podem levar à formação de aminas e amidas (Figura 1b). Após a reação, a mistura foi refrigerada até atingir a temperatura ambiente (24°C). Em seguida, foi realizada lavagem com 150 mL de etanol absoluto (*Neon*) e sucessivas lavagens com água destilada. Por fim, a suspensão foi decantada e o sobrenadante foi removido. A suspensão de nOG amino-Fe₃O₄-funcionalizado foi então estocada para realizar varredura UV-vis e posteriores análises de caracterização, bem como para uso no processo adsorptivo.

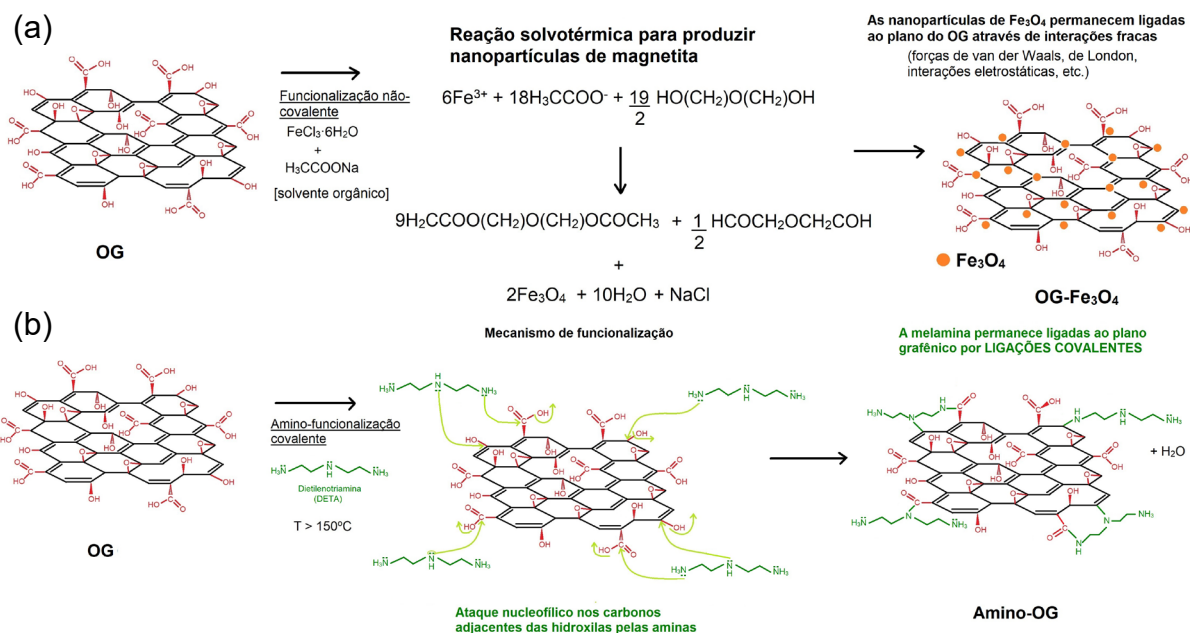


Figura 1. a) amino-funcionalização do nOG a partir da dietilenotriamina (DETA); b) método solvotérmico para produção das nanopartículas de Fe_3O_4 e sua ancoragem no plano grafênico do nOG.

2.3 Caracterização do nOG e nOG-NH₂-Fe₃O₄

A concentração da suspensão de nOG-NH₂-Fe₃O₄ foi obtida através da secagem da suspensão numa estufa a 70°C por 24h; verificou-se que esta possui 0,006 g·mL⁻¹. As alíquotas do nOG e do nOG-NH₂-Fe₃O₄ foram diluídas em 1:4 de forma a permitir a varredura no espectrofotômetro UV-vis, modelo Aquamat Thermo Genius 10S. Foram avaliados os comprimentos de onda onde houve maior pico de absorbância das duas amostras. A estabilidade térmica do nOG e nOG-NH₂-Fe₃O₄ foi caracterizada por análise termogravimétrica (ATG). Todas as medições foram realizadas em um modelo de balança termogravimétrica Netzsch STA 449F3 Jupiter, sob atmosfera de N₂ com fluxo de 50 mL·min⁻¹, em uma faixa de temperatura de 30–1000°C e com taxa de rampa de aquecimento de 3,0 K·min⁻¹. As análises de espectroscopia no infravermelho com Transformada de Fourier (FTIR) para as amostras de nOG, nOG-NH₂-Fe₃O₄ foram realizadas em um espectrômetro Brucker Tensor 27 através de transmitância em pastilha de KBr. A espectroscopia de Raman foi realizada para avaliar o comportamento das bandas gráficas características (D, G, 2D, etc.). A análise ocorreu no plano basal de nOG/nOG-NH₂-Fe₃O₄, realizado por um espectroscópio Witec Alpha 300 Raman (as amostras foram irradiadas com um laser vermelho de 633 nm). A Microscopia de Força Atômica (AFM) foi empregada para evidenciar a rugosidade, espessura e outras nano-características morfológicas de nOG e nOG-NH₂-Fe₃O₄. As análises AFM foi realizada em um microscópio de força atômica Bruker Icon Dimension, equipado com RTESPA. As suspensões de nOG e nOG-NH₂-Fe₃O₄ foram diluídas em água deionizada na proporção 1:1000, secas e depois depositadas em substrato de mica fresco antes de realizar a captura das imagens.

2.3 Tratamento do efluente têxtil real por adsorção em nOG-NH₂-Fe₃O₄

Os efluentes oriundos de matérias-primas têxteis foram coletados na *Lavanderia Mamute Ltda.*, na cidade de Caruaru, Pernambuco, Brasil. O efluente bruto foi submetido à coagulação e depois à adsorção por nOG-NH₂-Fe₃O₄. Os principais parâmetros de caracterização do efluente têxtil foram avaliados antes e após o processo de adsorção: demanda química de oxigênio (DQO), demanda bioquímica de oxigênio (DBO), colorimetria (Hazen), turbidez, concentração e pH. Por fim, esses parâmetros foram avaliados de acordo com o estabelecido na legislação vigente para os padrões de qualidade do descarte de corpos d'água e efluentes tratados, a Resolução CONAMA 357 (BRASIL, 2005).

3. RESULTADOS E DISCUSSÃO

3.1 Caracterização do nOG-NH₂-Fe₃O₄

A varredura no espectrofotômetro UV-vis mostra a presença do pico característico em 240 nm, referente ao nOG (Figura 2a). O espectro do nOG-NH₂-Fe₃O₄ exibiu um novo pico em 330 nm, o que indica a presença de uma “interferência” na estrutura, sendo um indicativo da presença de um ou mais grupos funcionais, estranhos à estrutura do nOG.

A análise por ATG evidenciou que o pó de grafite foi suficientemente oxidado através do método de Hummers modificado, uma vez que uma redução substancial na massa de nOG é observada entre 200–425°C (Figura 2b, retângulo tracejado). De acordo com Muñoz *et al.* (2018), essa perda de massa é devida à captação de grupos oxigenados (–COOH, –OH) do plano basal de grafeno. Essa perda ocorre em pequena intensidade quando se trata de nOG-NH₂-Fe₃O₄, o que indica que a maioria dos grupos oxigenados foi reduzida durante o processo de funcionalização de amino. Em temperaturas de 50 a 120°C, os reagentes com aminas primárias em suas estruturas (DETA, etilenodiamina, dodecilamina, etc.) podem romper os anéis epóxidos distribuídos sobre a superfície do nOG; no entanto, em temperaturas mais altas (150 - 200°C), as aminas primárias atacam os grupos hidroxila do nOG (ZHANG *et al.* 2013).

Espectros de FTIR para nOG e nOG-NH₂-Fe₃O₄ adquiridos pelo método de transmitância em KBr (Figura 2c) exibiram as bandas características de 1632 cm⁻¹, atribuídas à vibração de alongamento do grupo carbonila presente no OG (–C = O); a banda larga entre 2900 e 3250 cm⁻¹ refere-se à vibração de alongamento das ligações O-H dos ácidos carboxílicos nOG e grupos hidroxila sobre a superfície nOG (ZHANG *et al.*, 2015), essa banda também foi revelada no espectro do nOG-NH₂-Fe₃O₄. Bandas estreitas e com intensidade média entre 3300 e 3500 cm⁻¹ podem ser atribuídas à presença de grupos amina (vibração de alongamento –NH) na superfície do adsorvente; contudo, em materiais derivados de OG, essas bandas ficam geralmente sobrepostas pela banda dos grupos hidroxila. No espectro nOG-NH₂-Fe₃O₄, o pico de 580 cm⁻¹ é atribuído à vibração da ligação Fe-O das nanopartículas de Fe₃O₄ no adsorvente (FRAGA *et al.*, 2018). O pico em 1572 cm⁻¹ é causado pela vibração de tensão e vibração “tesoura” da ligação N-H, que é considerada a presença de grupos amino na superfície do óxido de grafeno funcionalizado (CALIMAN *et al.*, 2018).

Os espectros de Raman para o nOG e nOG-NH₂-Fe₃O₄ exibiram um conjunto de bandas características (Figura 2d); as bandas principais são a banda D (~ 1360 cm⁻¹) e a banda G (~ 1560 cm⁻¹), além de outras harmônicas de segunda ordem. A banda G é devida ao movimento de alongamento das ligações sp² entre os átomos de carbono do plano 2D basal, que reflete a estrutura cristalina planar dos materiais de grafite/grafeno (FERRARI *et al.* 2006 *apud* FRAGA *et al.*, 2019). A banda D é devida ao espalhamento Raman na zona de descontinuidade e também devido a vibrações fora do plano, que refletem estruturas desordenadas (ou defeituosas).

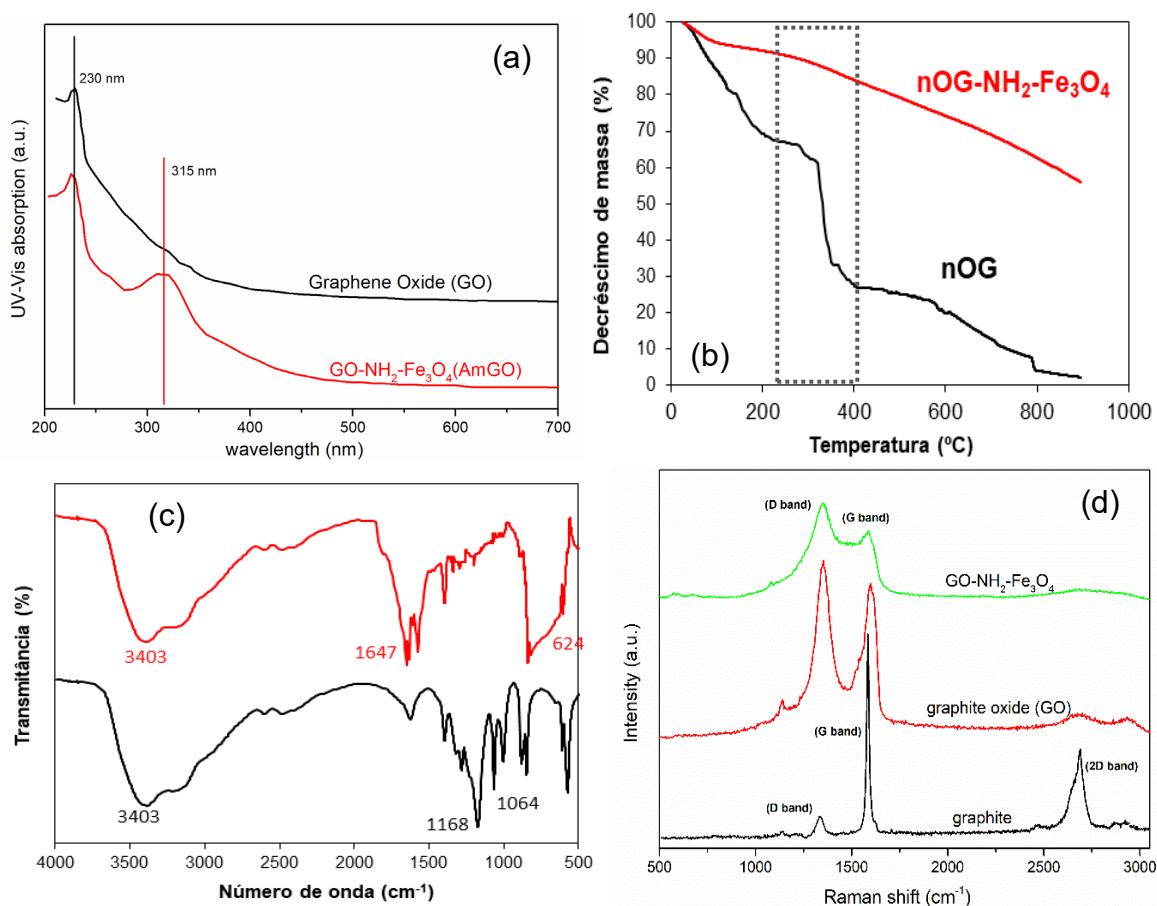


Figura 2. Caracterização do nOG e nOG-NH₂-Fe₃O₄: a) espectrofotometria no UV-Vis; b) termogramas (análise realizada com fluxo de N₂); c) espectros no infravermelho (FTIR); d) espectros de Raman.

Fonte: (c) e (d) reproduzido de Fraga *et al.* (2018), com permissão de Springer-Nature, Copyright 2019.

As imagens AFM de nOG (Figura 3a) e nOG-NH₂-Fe₃O₄ (Figura 3b) mostraram vários flocos de ambas as amostras espalhadas por todo o substrato. No entanto, a amostra de nOG-NH₂-Fe₃O₄ exibiu mais ondulações salientes em seus flocos, evidenciando um forte processo de aglomeração das nanopartículas de nOG após a funcionalização de amino. Além disso, a análise de perfis múltiplos AFM evidenciou a presença de pequenos nanoflocos com picos de espessura menores que 2,0 nm na amostra nOG (Figura 3c). Além disso, a espessura média do nOG foi de 5,79 nm e a rugosidade quadrada média (RQM) de 9,31 nm, dados medidos através de 30 perfis. Diferentemente, o nOG-NH₂-Fe₃O₄ mostrou uma espessura média de 8,43 nm, o RMS 12,14 nm e a amostra exibiu pequenos pacotes aglomerados de nanoflocos que atingiram 41,99 nm de espessura máxima (Figura 3d).

Recentemente, a ISO TS 80004/2017 foi editada com o objetivo de melhor padronizar os parâmetros de qualidade para os nanomateriais de carbono 2D. Por esta norma, grafeno é considerado, para efeito de nomenclatura, como nanofolhas ou nanoblocos com um mínimo de 10 nanocamadas (ISSO, 2017), que podem ser determinados por meio de microscopia de força atômica (AFM) ou microscopia de transmissão de elétrons (MTE). Trabalhos publicados previamente reportam uma média de 0,4 – 1,7 nm na espessura de uma única nanofolha de OG através de análises de perfis de AFM e espectroscopia de Raman, levando-se em conta a presença de impurezas (SHEARER *et al.*, 2016; EIGLER *et al.*, 2014). Nesse sentido, os nanocompósitos avaliados neste trabalho foram denominados óxido de grafeno e óxido de grafeno amino-Fe₃O₄-funcionalizado n-camadas (ou multicamadas).

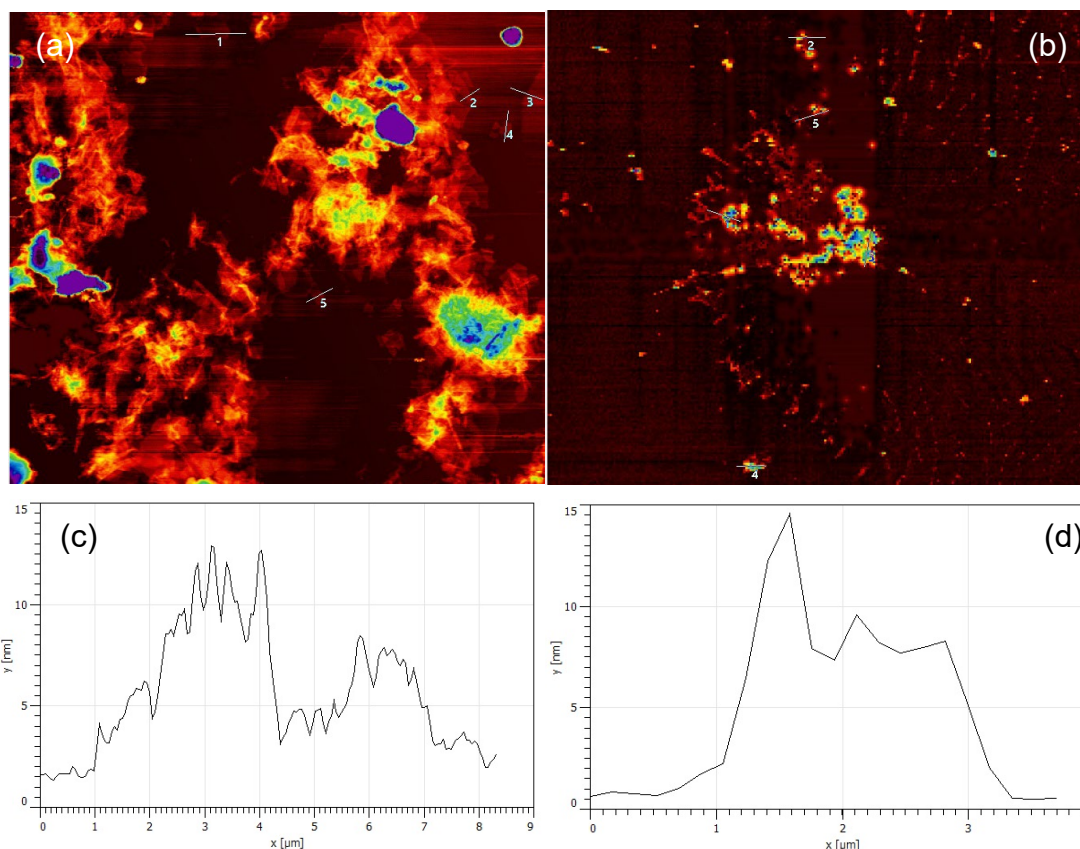


Figura 3. Imagens AFM para o nOG (a) e nOG-NH₂-Fe₃O₄ (b) área do substrato: 623,8 μm^2 (Gwyddion®); Espessura de múltiplos perfis AFM (y - em nm versus x - em μm) para nOG (c) e nOG- NH₂-Fe₃O₄ (d).

Fonte: reproduzido de Fraga *et al.* (2019), com permissão de Springer-Nature, Copyright 2019.

3.2 Tratamento do efluente têxtil bruto

O efluente têxtil bruto foi submetido à coagulação antes da adsorção por nOG-NH₂-Fe₃O₄. Após ambos os processos de tratamento, o efluente apresentou uma redução significativa em sua concentração (75%), o que significa 6251,14 $\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$ de capacidade adsorptiva. Além disso, com exceção da cor (177 Hazen), todos os parâmetros de qualidade das massas de água estavam de acordo com a legislação brasileira, resolução CONAMA 357 (BRASIL, 2005), conforme descrito na Tabela 1. Além disso, quando as amostras de efluente têxtil bruto foram submetidas a coagulação antes da adsorção, sua concentração diminuiu 90%. Vale ressaltar que o efluente do processo de tingimento possui uma alta carga de íons metálicos, sabões, sais e surfactantes, além dos corantes têxteis (WANG *et al.*, 2011). É claro que todos esses compostos competem com os corantes pelos locais ativos do adsorvente. Isso é evidenciado pela baixa remoção relativa da cor em comparação com os outros parâmetros: 53,6% para a amostra bruta. Também foi verificado que a DQO (em $\text{mg O}_2\cdot\text{L}^{-1}$) diminuiu 55,0% após o processo de coagulação e adsorção. No entanto, o DBO apresentou valores abaixo de 10 de todas as amostras, evidenciando a menor carga biodegradável do efluente têxtil bruto, mesmo após os tratamentos. Além disso, com exceção da colorimetria, todos os parâmetros adquiridos após o tratamento estavam dentro do limite máximo permitido pela resolução 357 do CONAMA (BRASIL, 2005). Esses resultados corroboram para destacar o alto potencial de aplicação do nOG-NH₂-Fe₃O₄ no tratamento de efluentes têxteis reais, uma vez que uma grande quantidade de poluentes contidos no efluente real oriundo da lavanderia foi removida do efluente após a adsorção.

Tabela 1. Parâmetros de avaliação da qualidade do efluente tratado e seus limites legais de acordo com a resolução 357 do CONAMA (BRASIL, 2005).

	Antes da adsorção		Após a adsorção		Limite máximo*
	Efluente bruto	Efluente coagulado	Efluente bruto	Efluente coagulado	
Turbidez (NTU)	105,0	63,5	25,9	24,7	100,0
pH	7,67	7,25	8,72	8,67	6,00–9,00
Cor aparente (Hazen)	360	274	177	199	75
Concentração (mg·L ⁻¹)	1889,94	468,80	464,68	182,92	N/A
DQO (mg O ₂ ·L ⁻¹)	607,96	380,08	640,63	269,57	N/A
DBO (mg O ₂ ·L ⁻¹)	7,0	6,0	8,0	6,0	10,0

4. CONCLUSÕES

No presente trabalho, o óxido de grafeno multicamada foi obtido a partir do método de Hummers modificado e posterior esfoliação por ultrassom. Subsequentemente, o nOG foi amino funcionalizado e nanopartículas de Fe₃O₄ foram ancoradas sobre sua estrutura pelo método solvotérmico. Ambas as funcionalizações ocorreram simultaneamente. Análises de caracterização evidenciaram a presença de grupos funcionais oxigenados em ambas amostras, além da presença de aminas e amidas na amostra de nOG-NH₂-Fe₃O₄. Estudos de adsorção com efluente têxtil real de uma lavanderia mostraram resultados satisfatórios de mais de 75% na redução da concentração de efluentes e 55% de sua DQO, destacando o grande potencial de aplicação de nOG-NH₂-Fe₃O₄ no tratamento de efluentes têxteis brutos.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- ARAÚJO, C.M.B., NASCIMENTO, G.F.O., DA COSTA, G.R.B., BAPTISTELLA, A.M.S., FRAGA, T.J.M., ASSIS FILHO, R.B., GHISLANDI, M.G., DA MOTTA SOBRINHO, M.A. Real textile wastewater treatment using nano graphene-based materials: optimum pH, dosage and kinetics for color and turbidity removal. *Canadian Journal of Chemical Engineering (in press)*, out. 2019.
- BOAKYE, P., TRAN, H.N., LEED, D.S., WOO, S.H. Effect of water washing pretreatment on property and adsorption capacity of macroalgae-derived biochar. *Journal of Environmental Management*, v. 233, p. 165-174, mar. 2019.
- BRASIL. Ministério do Meio Ambiente. Resolução n. 357. Brasília, 2005.
- CALIMAN, C.C., MESQUITA, A.F., CIPRIANO, D.F., FREITAS, J.C.C., COTTA, A.A.C., MACEDO, W.A.A., PORTO, A.O. One-pot synthesis of amine-functionalized graphene oxide by microwave-assisted reactions: an outstanding alternative for supporting materials in supercapacitors. *RSC Advances*, v. 8, p. 6136–6145, jan. 2018.
- EIGLER, S.; HOF, F.; ENZELBERGER-HEIM, M.; GRIMM, S.; MÜLLER, P.; HIRSCH, A. Statistical Raman Microscopy and Atomic Force Microscopy on Heterogeneous Graphene Obtained after Reduction of Graphene Oxide. *Journal of Physical Chemistry C*, v. 118, p. 7698–7704, 2014.
- FARIAS, Maria Mariah M. W. E. C. Aproveitamento de águas de chuva por telhados: aspectos quantitativos e qualitativos. Dissertação de Mestrado. Caruaru, PE: UFPE, 2012.
- FERRARI, A.C., MEYER, J.C., SCARDACI, V., CASIRAGHI, C., LAZZERI, M., MAURI, F., PISCANEC, S., JIANG, D., NOVOSELOV, K.S., ROTH, S., GEIM, A.K. Raman spectrum of graphene and graphene layers. *Physical Review Letters*, v. 97, p. 1–4, nov. 2006.
- FRAGA, T.J.M., DE LIMA, L.E.M., SOUZA, Z.S.B., CARVALHO, M.N., FREIRE, E.M.P.L., GHISLANDI, M.G., DA MOTTA, M.A. Amino-Fe₃O₄-functionalized graphene oxide as a novel adsorbent of Methylene Blue: kinetics, equilibrium, and recyclability aspects. *Environmental Science and Pollution Research (in press)*, set. 2018. <https://doi.org/10.1007/s11356-018-3139-z>
- FRAGA, T.J.M., SOUZA, Z.S.B., FRAGA, D.M.S.M., CARVALHO, M.N., FREIRE, E.M.P.L., GHISLANDI, M.G., DA MOTTA SOBRINHO, M.A. Comparative approach towards the adsorption of Reactive Black 5 and Methylene Blue by n-layer graphene oxide and its amino-functionalized derivative. *Adsorption (in press)*, ago. 2019. <https://doi.org/10.1007/s10450-019-00156-9>
- HUMMERS, W.S., OFFEMAN, R.E. Preparation of Graphitic Oxide. *Journal of the American Chemical Society*, v. 80, n. 6, p. 1339–1339, mar. 1958.
- INTERNATIONAL ORGANIZATION FOR STANDARDIZATION - ISO. ISO TS 80004/2017: Nanotechnologies – Vocabulary – Part 13: Graphene and related two-dimensional (2D)

- materials*. Genebra, 2017. 21p. Disponível em <<https://www.iso.org/obp/ui/#iso:std:iso:ts:80004:-13:ed-1:v1:en>>
- LEE, S.P., ALI, G.A.M., ALGARNI, H., CHONG, K.F. Flake size-dependent adsorption of graphene oxide aerogel. *Journal of Molecular Liquids*, v. 277, p. 175-180, mar. 2019.
- MUÑOZ, P.A.R., DE OLIVEIRA, C.F.P., AMURIN, L.G., RODRIGUEZ, C.L.C., NAGAOKA, D.A., TAVARES, M.I.B., DOMINGUES, S.H., ANDRADE, R.J.E., FECHINE, G.J.M. Novel improvement in processing of polymer nanocomposite based on 2D materials as fillers. *Express Polymer Letters*, v. 12, p. 930-945, mai. 2018.
- SHEARER, C. J.; SLATTERY, A. D.; STAPLETON, A. J.; SHAPTER, J. G.; GIBSON, C. T. Accurate thickness measurement of graphene. *Nanotechnology*, v. 27, n. 125704, 2016.
- WANG, Zongping, XUE, Miaomiao, HUANG, Kai, LIU, Zizheng. *Textile Dyeing Wastewater Treatment*, In: Advances in Treating Textile Effluent, Prof. Peter Hauser (Ed.), pp. 91–116. Shangai: Intech Open, 2011.
- ZHANG, Y., MA, H.L., PENG, J., ZHAI, M., YU, Z.Z. Cr(VI) removal from aqueous solution using chemically reduced and functionalized graphene oxide. *Journal of Materials Science*, v. 48, p. 1883-1889, jan. 2013.
- ZHANG, F.R., SONG, Y.W., SONG, S., ZHANG, R.J., HOU, W.G. Synthesis of magnetite-graphene oxide-layered double hydroxide composites and applications for the removal of Pb(II) and 2,4-dichlorophenoxyacetic acid from aqueous solutions. *ACS Applied Materials and Interfaces*, v. 7, p. 7251-7263, mar. 2015.