



República Federativa do Brasil  
Ministério da Economia  
Instituto Nacional da Propriedade Industrial

(21) BR 102020009121-2 A2



(22) Data do Depósito: 07/05/2020

(43) Data da Publicação Nacional: 16/11/2021

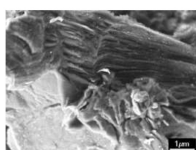
(54) **Título:** PROCESSO DE SÍNTESE DE GRAFENO A PARTIR DO MÉTODO DE FOTO-OXIDAÇÃO ASSISTIDA POR RADIAÇÃO ULTRAVIOLETA

(51) **Int. Cl.:** C01B 32/19; C01B 32/23; B82B 3/00.

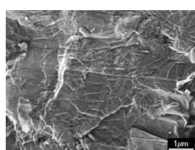
(71) **Depositante(es):** COMISSÃO NACIONAL DE ENERGIA NUCLEAR.

(72) **Inventor(es):** MARINA FUSER PILLIS; OLANDIR VERCINO CORREA; RODRIGO TEIXEIRA BENTO; SAMUEL PEREIRA COTINHO; THIAGO FERNANDO DOS SANTOS.

(57) **Resumo:** PROCESSO DE SÍNTESE DE GRAFENO A PARTIR DO MÉTODO DE FOTO-OXIDAÇÃO ASSISTIDA POR RADIAÇÃO ULTRAVIOLETA. O presente documento pertence ao campo de nanotecnologia, especificamente no campo da engenharia de materiais, química e nano estruturas de carbono. A presente invenção refere-se a um processo de síntese de nanofolhas de óxido de grafeno reduzido (rGO), compostas por multicamadas de grafeno, a partir do método de foto-oxidação do grafite sua posterior redução usando radiação ultravioleta. Essa técnica permite adicionar, em uma única etapa, diferentes reagentes oxidativos e/ou nãooxidativos à solução contendo o precursor de carbono, de forma a produzir nanofolhas de rGO, em temperatura ambiente, sob radiação UVA e UVC em diferentes tempos de foto-oxidação. O método apresenta como vantagens o baixo custo de síntese, simplicidade de construção e manutenção do sistema, facilidade de obtenção dos precursores e reagentes utilizados, além da possibilidade do emprego da luz solar para oxidar e reduzir o grafite, sem a necessidade do uso de ácidos e agentes estabilizadores, o que caracteriza a metodologia da presente invenção como uma técnica verde de produção de rGO e multicamadas de grafeno.



(a)



(b)

## **“PROCESSO DE SÍNTESE DE GRAFENO A PARTIR DO MÉTODO DE FOTO-OXIDAÇÃO ASSISTIDA POR RADIAÇÃO ULTRAVIOLETA”**

### **CAMPO DA INVENÇÃO**

[001] O presente documento pertence ao campo de nanotecnologia, especificamente no campo da engenharia de materiais, química e nano estruturas de carbono. Consiste em um método de síntese de nanofolhas de grafeno a partir do método alternativo de foto-oxidação do grafite e posterior redução por radiação ultravioleta (UV, no qual o comprimento de onda  $\lambda$  corresponde a 100-400 nm), resultando em um material na forma particulada.

### **DESCRIÇÃO DO ESTADO DA TÉCNICA**

[002] O carbono (C) é um material não metálico, não magnético e o elemento mais abundante encontrado na natureza. Em seu estado de menor energia, o C possui quatro elétrons de valência: dois situados na subcamada 2s e dois na 2p, com uma distribuição eletrônica no estado fundamental da forma  $1s^2 2s^2 2p^2$ . Ligações carbono- carbono podem ser formadas de maneiras distintas: em coordenação planar, denominada fase grafite; ou em coordenação tetraédrica, denominada fase diamante (Yoo et al., Nano Letters, **2008**, 8, 2277; Wu et al., Journal of Applied Physics, **2010**, 108, 0071301). Em condições normais de temperatura e pressão, o C apresenta a estrutura do grafite. No entanto, dependendo do tipo de hibridização que ocorra entre os orbitais dos átomos de C (sp, sp<sup>2</sup> e sp<sup>3</sup>), pode apresentar diferentes formas alotrópicas, tais como diamante, fulereno, nanotubos de carbono (CNT) e grafeno, por exemplo, cada qual com propriedades particulares e arranjos distintos (Li et al., Applied Surface Science, 2018, 430, 53).

[003] O grafeno é um nanomaterial formado por uma única camada plana bidimensional de átomos de carbono, com hibridização sp<sup>2</sup>, organizados em retículos hexagonais (Zhang et al., Progress in Natural Science: Materials

International, **2011**, 21, 467). O grafeno apresenta notáveis características físico-químicas e excelentes propriedades eletrônicas, ópticas, adsorptivas, térmicas, fotocatalíticas e mecânicas, incluindo elevados valores de módulo de elasticidade, condutividade térmica e elétrica, elevada área de superfície específica e mobilidade eletrônica de cargas (Anandan et al., ACS Applied Materials & Interfaces, **2013**, 5, 210; Li et al., Applied Surface Science, **2018**, 430, 53; Tang et al., Nanomaterials, **2018**, 8, 105). Em virtude de tais propriedades, o grafeno tem sido amplamente investigado como um potencial substituto de vários materiais em diversos campos de aplicação de ciência e tecnologia, incluindo sensores, supercapacitores, células solares, material integrante dos eletrodos de baterias, tintas condutoras, filtros, catalisadores e similares (Tan et al., Chemsuschem, **2012**, 5, 1868; Liu et al., New Journal of Chemistry, **2014**, 38, 2362).

[004] Atualmente, há diversos métodos empregados para a síntese de grafeno e óxido de grafeno reduzido (rGO), dentre os quais destacam-se a esfoliação mecânica do grafite (do inglês: *peeling-off* ou *Scotch tape*), a redução térmica, o crescimento epitaxial e a deposição química em fase vapor (do inglês, *Chemical Vapor Deposition* – CVD) (Chen et al., Chemical Society Reviews, **2010**, 39, 3157; Sun et al., Energy & Environmental Science, **2011**, 4, 1113; Novoselov et al., Nature, **2012**, 490, 192). No processo de redução química do óxido de grafeno (GO) são utilizados ácidos fortes e agentes oxidantes ( $H_2SO_4$  e  $KMnO_4$ ), o que pode promover a formação de resíduos tóxicos perigosos. Além disso, a síntese de grafeno em larga escala e elevada reprodutibilidade ainda é o maior desafio para sua aplicação em escala industrial. Como consequência, a técnica de foto-oxidação por irradiação UV de uma dispersão do grafite, em temperatura ambiente, surge como uma solução para superar as desvantagens associadas à síntese de matérias à base de grafeno, com alta qualidade, poucos defeitos e alto rendimento. Este é o diferencial da presente invenção em relação às demais patentes existentes no

Brasil. No exterior, os processos para a obtenção de rGO apresentam modificações nas etapas, nos procedimentos e nos materiais utilizados, principalmente considerando os métodos realizados em baixas temperaturas (entre 25 °C e 70 °C). Esta técnica permite adicionar, em uma única etapa, diferentes reagentes oxidativos e/ou não-oxidativos à solução contendo o precursor de carbono, de forma a produzir nanofolhas de óxido de grafeno reduzido (rGO) compostas por multicamadas de grafeno, em temperatura ambiente, sob radiação UVA e UVC em diferentes tempos de foto-oxidação. O sistema também permite a adaptação do mecanismo para elevação de temperatura e borbulhamento. Os materiais obtidos apresentam elevado potencial para aplicação industrial, podendo ser aplicados como compostos catalisadores para o tratamento e purificação da água, armazenamento de energia, reforço de elementos estruturais e revestimentos. O método apresenta como vantagens o baixo custo de síntese, simplicidade de construção do sistema e de obtenção dos precursores e reagentes utilizados, além da possibilidade do emprego da luz solar, principal fonte de radiação luminosa e térmica da Terra, emitindo energia em praticamente todos os comprimentos de onda do espectro eletromagnético, para oxidar o grafite e reduzir o óxido de grafeno.

[005] O documento MX2017016746, revela a preparação de óxido de grafeno e / ou grafeno através do controle da reação de oxidação no material grafite, que envolve dispersar o material grafite e usar um solvente ou misturas ou pré-oxidação do material de grafite. O documento utiliza no processo de dispersão do grafite solventes como água, álcoois, cetonas, aldeídos, ácidos carboxílicos ou misturas deles. Além disso, o controle do processo de oxidação é auxiliado com a utilização de micro-ondas e fortes agentes oxidantes tóxicos são utilizados, como o permanganato de potássio, um componente que o presente objeto reivindicado evita o seu uso. Dessa forma, MX2017016746 trata-se de um assunto diferente do

proposto neste documento, pois a presente invenção revela uma metodologia de síntese de grafeno a partir do método de foto-oxidação assistida por radiação ultra-violeta.

[006] O documento EP3013742B1 revela a produção de óxido de grafeno reduzido(rGO) com fosfato de prata para o uso na fotodegradação de corantes orgânicos têxteis, que compreendem uma quantidade predefinida de óxido de grafeno reduzido e fosfato de prata. De acordo com as reivindicações do documento EP3013742B1, é evidenciado que o procedimento de obtenção de óxido de grafeno reduzido é menos simples e diferente do processo da invenção proposta, uma vez que a produção de óxido de grafeno reduzido (rGO) em EP3013742B1 é feita através de um pré-tratamento de óxido de grafeno à uma determinada faixa de temperatura (70-90°C) por 24-30 horas, dispersão do óxido de grafeno por ultra som e repouso da solução por 30-60 minutos. Diante destas informações, é evidenciado que EP3013742B1 se difere da metodologia proposta, que consiste na síntese de grafeno a partir do método de foto-oxidação assistida por radiação ultra-violeta.

[007] O documento US10285218B1, trata um processo de síntese de grafeno usado em dispositivos eletrônicos, como transistores. O processo envolve a preparação do substrato que inclui uma camada de carbono e uma camada de metal catalisador em uma câmara, e a disposição de uma ponta de sonda térmica na camada do metal do catalisador para resultar na formação do grafeno. Em comparação com a invenção proposta, temos que o presente invento utiliza um método diferenciado, que consiste na foto-oxidação e redução do grafite natural por radiação ultravioleta. Diante disso, torna-se evidente que, apesar de apresentar o mesmo produto que US10285218B1, o processo proposto para obtenção de grafeno é diferente da invenção proposta.

[008] O documento US20190263664 apresenta um processo de produção de

óxido de grafeno reduzido interconectado (IC-RGO) que, ao oxidar uma quantidade de grafite por um período de tempo através de uma mistura de ácido compreendendo permanganato, produz uma estrutura de óxido de grafite em camada. Diante disso, é notável que US20190263664 é diferente da invenção proposta, uma vez que a invenção proposta justamente utiliza componentes menos tóxicos que o permanganato citado, além do fato de US20190263664 não citar nenhuma etapa relacionada à foto-oxidação assistida por radiação ultra-violeta. Diante destas informações, torna-se evidente que o documento US20190263664 se difere da presente proposta.

### **SUMÁRIO DA INVENÇÃO**

[009] O processo em tela é sintetizado a partir do método de foto-oxidação assistida por radiação ultra-violeta.

[010] Este processo de síntese de nanofolhas de rGO, compostas por multicamadas de grafeno cujo método compreende:

- a) Moagem mecânica e peneiramento do precursor de carbono;
- b) Preparação de uma solução que consiste em uma mistura de água deionizada, álcool e/ou cetona;
- c) Adição do grafite processado na etapa (a) à solução obtida na etapa (b);
- d) Obtenção de uma dispersão de grafite;
- e) Homogeneização e oxigenação da dispersão obtida na etapa (d) por borbulhamento constante com ar sintético;
- f) Irradiação da mistura obtida na etapa (e) com luz UVA ou UVC em temperatura ambiente;
- g) Esfoliação, foto-oxidação e redução do grafite a partir das etapas (e) e (f);
- h) Lavagem do material obtido na etapa (g) em um banho de água deionizada, à temperatura ambiente;
- i) Secagem do grafeno em estufa por 24 h.

[011] Nesta metodologia, o precursor de carbono empregado como fonte é selecionado do grupo de materiais carbonosos compreendendo: grafite grau nuclear, grafite natural, grafite modificado, grafite não-modificado, óxido de grafite, fibra de carbono e nanotubos de carbono.

[012] Em relação à etapa (1a) desta metodologia, a granulometria é obtida entre 0,075 e 0,025 mm, preferencialmente 0,038 mm.

[013] Em relação à etapa (1b) desta metodologia, a solução preparada compreende a adição de álcool, que pode ser metanol, etanol, propanol, butanol e glicerol.

[014] Além disso, a quantidade de álcool utilizada na etapa (1b) dessa metodologia pode variar de 10% a 90% em relação ao volume total da solução, preferencialmente 33,33%.

[015] Convém notar que a solução preparada em (1b) também compreende a adição de cetona, que pode ser propanona, pentanona e metil-etil-cetona.

[016] Além disso, a quantidade de cetona utilizada na etapa (1b) dessa metodologia pode variar de 10% a 90% em relação ao volume total da solução, preferencialmente 33,33 %.

[017] Nesta metodologia, a adição do grafite na etapa (1c) compreende uma razão na faixa de 0,001 % a 10 % em massa da solução, preferencialmente 1 %.

[018] Convém notar que, utiliza-se ar sintético ( $N_2$  / 20%  $O_2$ ) para a oxigenação e homogeneização da solução por borbulhamento constante na etapa (1e) desta metodologia;

[019] Nesta metodologia, processo de foto-oxidação do grafite e subsequente redução na etapa (1f) é realizado sob irradiação de luz UVA de comprimento de onda na faixa de 320 a 400 nm ou luz UVC de comprimento de onda na faixa de 100 a 290 nm, em temperatura ambiente.

[020] Convém notar que, nesta metodologia, o processo de foto-oxidação do grafite e subsequente redução sob irradiação de luz UV da etapa (1f) é realizado na faixa de 2 h a 24 h.

[021] Além disso, a lavagem da etapa (1h) é realizada com água deionizada, dentre 5 e 30 minutos, preferencialmente por 10 minutos.

[022] Por fim, a secagem do rGO na etapa (1i) é realizada em uma faixa de temperatura compreendida entre 30 e 70 °C, preferencialmente 50 °C.

### **OBJETIVO DA INVENÇÃO**

[023] O objetivo da presente invenção é a síntese de nanofolhas de rGO, formadas por multicamadas de grafeno, que podem ser utilizadas na preparação de fotocatalisadores para aplicações ambientais, tais como tratamento e descontaminação da água, e conversão e armazenamento de energia. O referido processo possui as vantagens descritas abaixo em relação ao estado da arte de síntese nanofolhas de rGO.

[024] Possibilidade de sintetizar nanofolhas de rGO em temperatura ambiente, utilizando água como principal solvente, sem a necessidade do uso de ácidos e agentes estabilizadores, o que caracteriza a metodologia da presente invenção como um método verde de produção de grafeno.

[025] Durante as etapas do processo detalhado na presente invenção, os produtos intermediários obtidos compreendem nanofolhas de óxido de grafeno, nanofolhas de rGO, multicamadas de grafeno.

[026] O reator consiste de uma câmara de simples construção e manutenção, contendo lâmpadas que emitem no comprimento de onda da luz UV, de baixo custo e fácil obtenção.

[027] O precursor empregado como fonte é selecionado do grupo de materiais carbonosos e compreende: grafite grau nuclear, grafite natural, grafite modificado, grafite não-modificado, óxido de grafite, fibra de carbono e nanotubo de carbono,

o que configura a possibilidade de reciclagem e reutilização dos respectivos materiais.

[028] O material obtido na presente patente tem aplicação em setores industriais, como eletrônico e energético, mas principalmente biomédico e farmacêutico, devido ao efeito fotocatalítico promovido pela radiação UV, nociva a compostos orgânicos e micro-organismos.

[029] O material apresenta elevada estabilidade físico-química por longos períodos após a síntese, o que permite seu armazenamento e utilização por mais tempo.

[030] A presente invenção descreve uma nova rota para a síntese de nanofolhas de rGO, constituídas de multicamadas de grafeno, a partir da foto-oxidação do grafite grau nuclear e redução do GO por radiação UVA e UVC, utilizando uma dispersão à base de água, álcool e cetona, sem qualquer necessidade do emprego de ácidos ou compostos estabilizantes. A correta combinação dos respectivos compostos é crucial para alterar a energia de superfície do grafite e, conseqüentemente, permitir sua esfoliação. O método proposto permite a reutilização de materiais carbonosos que podem ser usados como precursores. Além disso, pode ser realizado em temperatura ambiente, é de fácil execução, utiliza reagentes não tóxicos e de baixo custo, o que o caracteriza como uma tecnologia verde e de interesse comercial.

#### **BREVE DESCRIÇÃO DAS FIGURAS**

[031] Figura 1 - Apresenta a micrografia obtida por MEV-FEG do grafite antes do processo de foto-oxidação e redução sob radiação UV.

[032] Figura 2 - Apresenta a morfologia das nanofolhas de rGO obtidas por foto-oxidação e redução sob radiação UVA (a-b) e UVC (c-d), em imagem gerada por microscopia eletrônica de varredura.

[033] Figura 3 - Revela a imagem de nanofolhas obtida por MEV- FEG e o

espectro EDS (do inglês, *Energy-dispersive X-ray Spectroscopy*) efetuado nessa região, do material obtido a partir do processo apresentado na presente invenção.

[034] Figura 4 - Apresenta o espectro de difração de raios X do grafite antes e depois do processo de foto-oxidação e redução sob radiação UVA e UVC em diferentes tempos (2 e 24 h).

[035] Figura 5 - Apresenta os espectros de espalhamento Raman do grafite antes e depois do processo de foto-oxidação e redução sob radiação UVA e UVC em diferentes tempos (2 e 24 h).

### **DESCRIÇÃO DETALHADA DA INVENÇÃO**

[036] O método proposto na presente invenção para a síntese de nanofolhas de rGO compreende as seguintes etapas:

- Moagem mecânica e peneiramento do grafite natural até obter uma granulometria entre 0,075 e 0,025 mm, preferencialmente 0,0038 mm;
- Preparação de uma solução que compreende a mistura de água deionizada, álcool e/ou cetona;
- Adição do grafite processado na etapa (a) à solução obtida na etapa (b);
- Obtenção de uma dispersão de grafite;
- Homogeneização e oxigenação da dispersão obtida na etapa (d) por borbulhamento constante com ar sintético ( $N_2 / 20 \% O_2$ );
- Irradiação da mistura obtida na etapa (e) com luz UVA ( $320 < \lambda < 400 \text{ nm}$ ) ou UVC ( $100 < \lambda < 290 \text{ nm}$ ) em temperatura ambiente;
- Esfoliação, foto-oxidação e redução do grafite a partir das etapas (e) e (f);
- Lavagem do material obtido na etapa (g) em um banho de água deionizada, à temperatura ambiente;
- Secagem do grafeno em estufa por 24 h.

- A presente metodologia consistiu em unir os dois diferentes métodos: esfoliação e redução química do grafite natural, de tal forma que foi possível sintetizar nanofolhas de rGO separadas umas das outras.

[037] Os respectivos procedimentos foram realizados sob diferentes condições visando avaliar as alterações químicas, físicas e nanoestruturais sofridas pelo grafite grau nuclear após as etapas de foto-oxidação e redução, tendo em vista a caracterização do material obtido na presente invenção. Dentre as principais técnicas empregadas para essa finalidade, foram realizadas análises de microscopia eletrônica de varredura com canhão de emissão de campo (MEV-FEG, do inglês, *Field Emission Gun Scanning Electron Microscopy*), difração de raios X (DRX), e espectroscopia Raman.

[038] Como exemplo de concretização da presente invenção, serão descritos mais detalhes sobre um dos inúmeros processos possíveis para a obtenção do material, contudo sem limitar o seu escopo.

[039] A partir das imagens de MEV-FEG apresentadas na Figura 1 foi possível avaliar as características morfológicas do grafite, utilizado como precursor. Observa-se que o material de partida é formado por espessos flocos de grafite, dispostos em padrões regulares de empilhamento, com tamanho médio do floco de 6,5  $\mu\text{m}$  e espessura média de 2,7  $\mu\text{m}$ . Estes flocos são subdivididos em lâminas de superfície rugosa.

[040] A morfologia das nanofolhas de rGO foi observada por MEV-FEG, como mostrado na Figura 2. Nota-se que o processo de foto-oxidação do grafite e posterior redução por irradiação em luz UV promoveu modificações em sua morfologia. Após o tratamento, o material apresenta nanofolhas de rGO. Pode-se observar que estas nanofolhas são mais finas e espaçadas umas das outras que no grafite. Os resultados sugerem a esfoliação do grafite em nanofolhas de rGO parcialmente separadas umas das outras após 2 h de exposição (Figura 2.: 2a e 2c).

Após 24 h de exposição observam-se nanofolhas isoladas (Figura 2.: 2b e 2d).

[041] A composição da solução, a fonte de radiação e o tempo de exposição empregados durante o processo de foto-oxidação e posterior redução do óxido de grafeno são fundamentais nas etapas de esfoliação e estabilização das camadas.

[042] Nanofolhas de rGO obtidas sob luz UVA apresentaram espessura média de  $4,88 \text{ nm} \pm 0,23$ , enquanto que as obtidas sob luz UVC apresentaram espessura média de  $1,68 \text{ nm} \pm 0,27$ . É possível notar a formação de nanofolhas de rGO bem separadas umas das outras, com baixa ocorrência de enrugamento superficial, comumente encontrado em processos que utilizam ácidos e/ou agitação mecânica.

[043] Nanofolhas de rGO, mostradas na Figura 3a, foram analisadas por EDS, Figura 3b, e destaca que os elementos presentes são carbono e oxigênio, o que sugere que estas nanofolhas apresentam pureza elevada.

[044] A estrutura cristalina do grafite precursor e das nanofolhas de rGO foi avaliada por DRX, conforme mostrado na Figura 4. O grafite natural apresenta um pico intenso em  $2\Theta = 26,56^\circ$ , correspondente ao plano cristalográfico (002), estrutura hexagonal, com distância interplanar de 0,34 nm, em virtude das ligações de van der Waals entre as camadas. Após a foto-oxidação e redução do grafite, os espectros do rGO exibiram picos mais alargados e menos intensos com valores de  $2\Theta$  variando entre  $25,01^\circ$  e  $25,71^\circ$ , característicos do grafeno. Os espectros apresentaram também um segundo pico, de menor intensidade, em  $2\Theta = 42^\circ$ , característico do rGO e equivalente ao plano cristalográfico (100).

[045] Os resultados indicam que as camadas de grafeno estão bem dispersas nas nanofolhas de rGO, o que evidencia que o método proposto permite a síntese de multicamadas de grafeno sem a necessidade do uso de agentes oxidantes agressivos, como os empregados nas técnicas convencionais. Tal comportamento pode estar associado à presença parcial de grupamentos oxigenados entre as camadas de grafeno, o que favorece a atuação das fracas interações de van der

Waals entre as mesmas. Durante a irradiação de luz UV ocorre uma reação de hidrólise, formando íons  $H^+$  e  $OH^-$ .

[046] As características das nanofolhas de rGO obtidas a partir do processo descrito na presente invenção também foram estudadas por meio da técnica de espectroscopia Raman, conforme ilustra a Figura 5. Foi verificado que o grafeno exibe uma estrutura cristalina caracterizada pela presença das bandas D (em torno de  $1350\text{ cm}^{-1}$ ), G (em torno de  $1580\text{ cm}^{-1}$ ) e 2D (em torno de  $2700\text{ cm}^{-1}$ ). Os resultados sugerem que a densidade dos defeitos estruturais na rede do rGO, expressa pela banda D, é fortemente reduzida. A presença da banda 2D indica que as nanofolhas apresentam maior grau de cristalinidade, quando comparadas com o material precursor.

[047] Os valores correspondentes aos picos de DRX e à distância entre as camadas de grafeno e os valores dos picos encontrados nos espectros de espalhamento Raman das amostras estão mostrados na Tabela 1 abaixo:

TABELA 1 – Características estruturais do grafeno nas diferentes condições de processo:

Amostra	$2\theta$		$d_{002}$ (nm)	banda D ( $\text{cm}^{-1}$ )	banda G ( $\text{cm}^{-1}$ )	banda 2D ( $\text{cm}^{-1}$ )
	(002)	(100)				
Grafite	$26,56^\circ$	-	0,3448	1357	1586	-
Grafeno UVA 2h	$25,71^\circ$	$42,67^\circ$	0,3552	1349	1570	2695
Grafeno UVA 24h	$25,17^\circ$	$42,58^\circ$	0,3625	1357	1586	2716
Grafeno UVC 2h	$25,69^\circ$	$42,71^\circ$	0,3556	1353	1578	2705
Grafeno UVC 24h	$25,01^\circ$	$42,66^\circ$	0,3647	1357	1578	2712

## REIVINDICAÇÕES

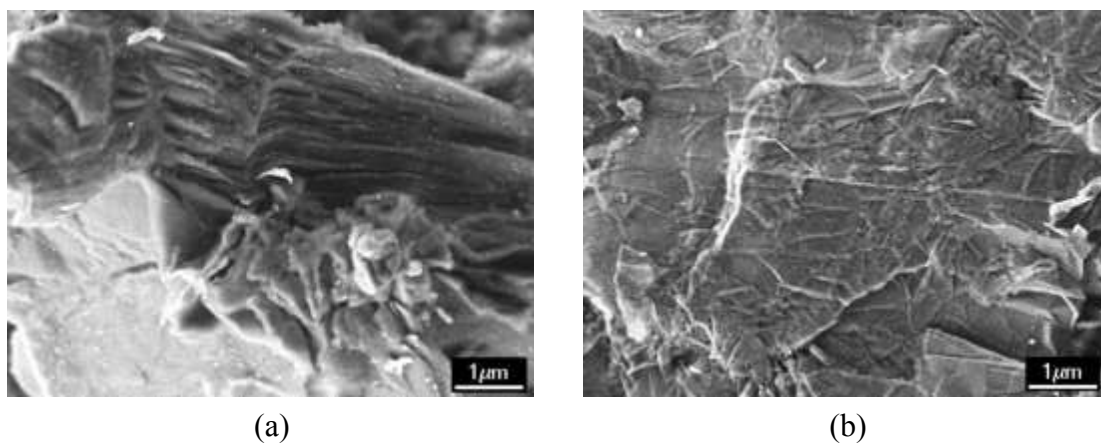
- 1) Processo de síntese de nanofolhas de rGO, compostas por multicamadas de grafeno, **caracterizado pelo** fato de ser sintetizado a partir do método de foto-oxidação assistida por radiação ultra-violeta.
- 2) Processo de síntese de nanofolhas de rGO, compostas por multicamadas de grafeno, de acordo com a reivindicação 1, **caracterizado pelo** fato de que compreende:
  - a) Moagem mecânica e peneiramento do precursor de carbono;
  - b) Preparação de uma solução que consiste em uma mistura de água deionizada, álcool e/ou cetona;
  - c) Adição do grafite processado na etapa (a) à solução obtida na etapa (b);
  - d) Obtenção de uma dispersão de grafite;
  - e) Homogeneização e oxigenação da dispersão obtida na etapa (d) por borbulhamento constante com ar sintético;
  - f) Irradiação da mistura obtida na etapa (e) com luz UVA ou UVC em temperatura ambiente;
  - g) Esfoliação, foto-oxidação e redução do grafite a partir das etapas (e) e (f);
  - h) Lavagem do material obtido na etapa (g) em um banho de água deionizada, à temperatura ambiente;
  - i) Secagem do grafeno em estufa por 24 h.
- 3) Processo de síntese de nanofolhas de rGO, compostas por multicamadas de grafeno, de acordo com as reivindicações 1 e 2, **caracterizado pelo** fato de que o precursor de carbono empregado como fonte é selecionado do grupo de

materiais carbonosos compreendendo: grafite grau nuclear, grafite natural, grafite modificado, grafite não-modificado, óxido de grafite, fibra de carbono, nanotubos de carbono, .

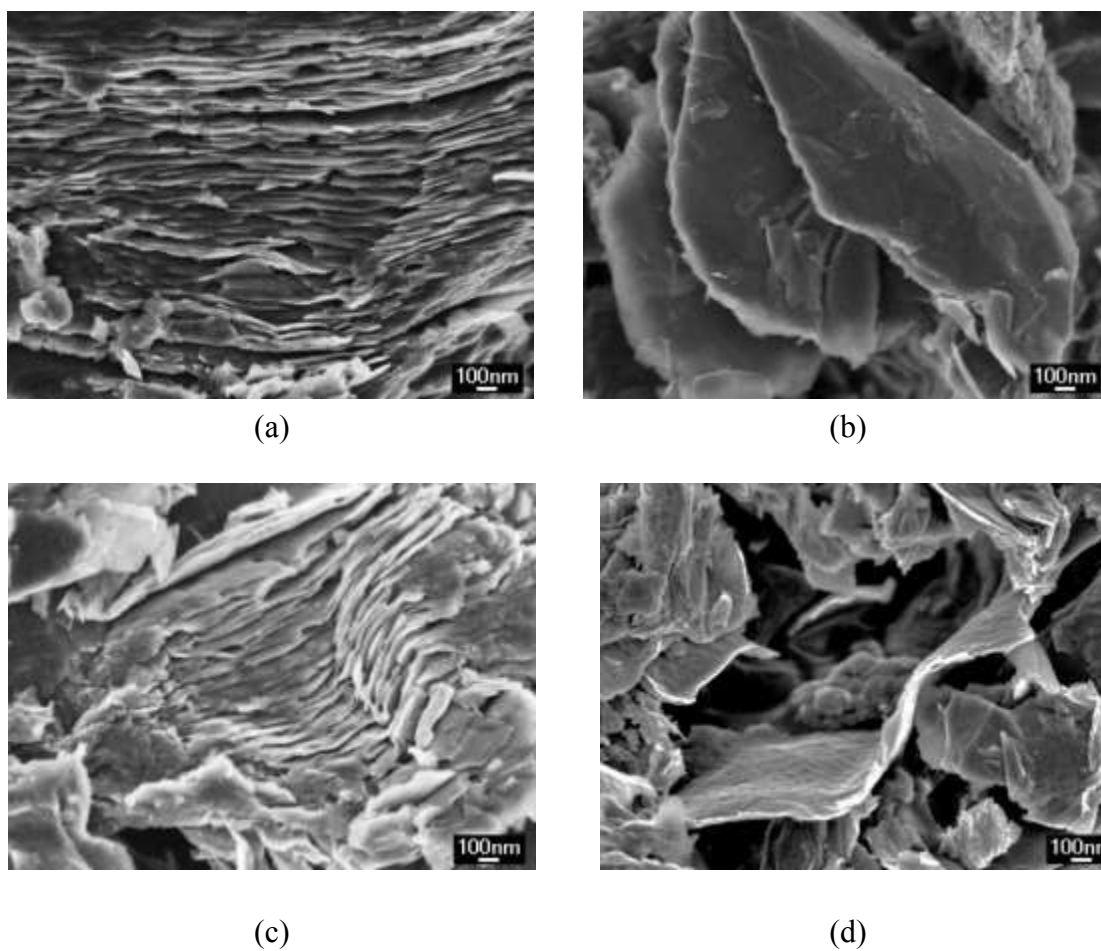
- 4) Processo de síntese de nanofolhas de rGO, compostas por multicamadas de grafeno, de acordo com as reivindicações de 1 a 3, **caracterizado pelo** fato de que, na etapa (1a), a granulometria é obtida entre 0,075 e 0,025 mm.
- 5) Processo de síntese de nanofolhas de rGO, compostas por multicamadas de grafeno, de acordo com as reivindicações de 1 a 4, **caracterizado pelo** fato de que a solução preparada na etapa (1b) compreende a adição de álcool, que pode ser metanol, etanol, propanol, butanol e glicerol.
- 6) Processo de síntese de nanofolhas de rGO, compostas por multicamadas de grafeno, de acordo com as reivindicações de 1 a 5, **caracterizado pelo** fato de que a quantidade de álcool utilizado na etapa (1b) é na faixa de 10% a 90% em relação ao volume total da solução.
- 7) Processo de síntese de nanofolhas de rGO, compostas por multicamadas de grafeno, de acordo com as reivindicações de 1 a 6, **caracterizado pelo** fato de que a solução preparada na etapa (1b) compreende a adição de cetona, que pode ser propanona, pentanona, e metil-etil-cetona.
- 8) Processo de síntese de nanofolhas de rGO, compostas por multicamadas de grafeno, de acordo com as reivindicações de 1 a 7, **caracterizado pelo** fato de que a quantidade de cetona utilizada na etapa (1b) é na faixa de 10 % a 90 % em relação ao volume total da solução..
- 9) Processo de síntese de nanofolhas de rGO, compostas por multicamadas de grafeno, de acordo com as reivindicações de 1 a 8, **caracterizado pelo** fato de que a adição do grafite na etapa (1c) compreende uma razão na faixa de 0,001 % a 10 % em massa da solução.
- 10) Processo de síntese de nanofolhas de rGO, compostas por multicamadas de

grafeno, de acordo com as reivindicações de 1 a 9, **caracterizado pelo** fato de, na etapa (1e) utilizar-se ar sintético ( $N_2$  / 20%  $O_2$ ) para a oxigenação por borbulhamento constante.

- 11) Processo de síntese de nanofolhas de rGO, compostas por multicamadas de grafeno, de acordo com as reivindicações de 1 a 10, **caracterizado pelo** fato de que o processo de foto-oxidação do grafite e subsequente redução na etapa (1f) ser realizado sob irradiação de luz UVA na faixa de comprimento de onda de 320 a 400 nm ou luz UVC na faixa de comprimento de onda de 100 a 290 nm em temperatura ambiente.
- 12) Processo de síntese de nanofolhas de rGO, compostas por multicamadas de grafeno, de acordo com as reivindicações de 1 a 11, **caracterizado pelo** fato de que o processo de foto-oxidação do grafite e subsequente redução sob irradiação de luz UV da etapa (1f) ser realizado na faixa de 2 h a 24 h.
- 13) Processo de síntese de nanofolhas de rGO, compostas por multicamadas de grafeno, de acordo com as reivindicações de 1 a 12, **caracterizado pelo** fato da lavagem da etapa (1h) ser realizada com água deionizada, dentre 5 e 30 minutos.
- 14) Processo de síntese de nanofolhas de rGO, compostas por multicamadas de grafeno, de acordo com as reivindicações de 1 a 13, **caracterizado pelo** fato de que a secagem do rGO na etapa (1i) ser realizada em uma faixa de temperatura compreendida entre 30 e 70 °C.



**Figura 1**



**Figura 2**

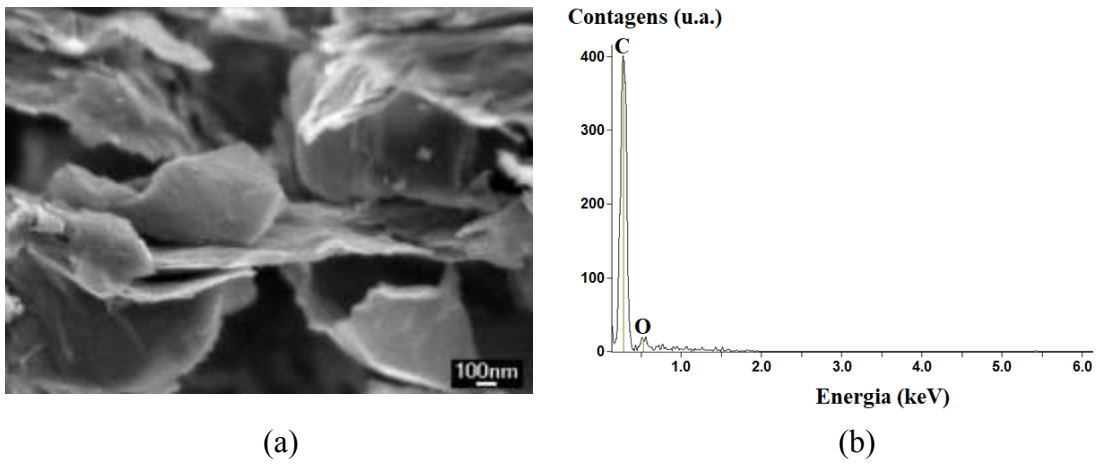


Figura 3

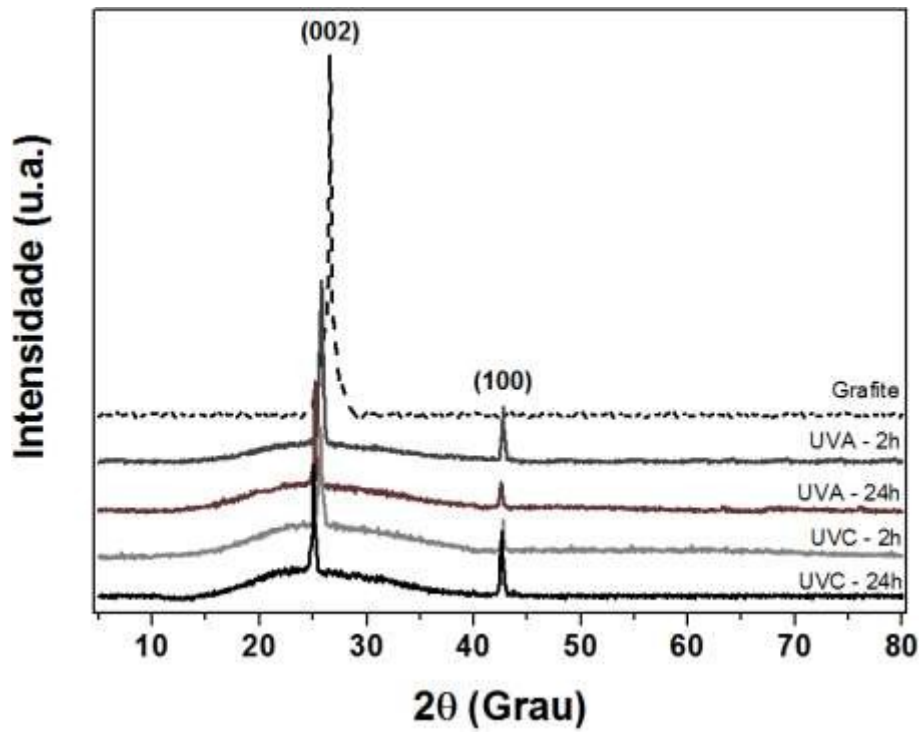


Figura 4

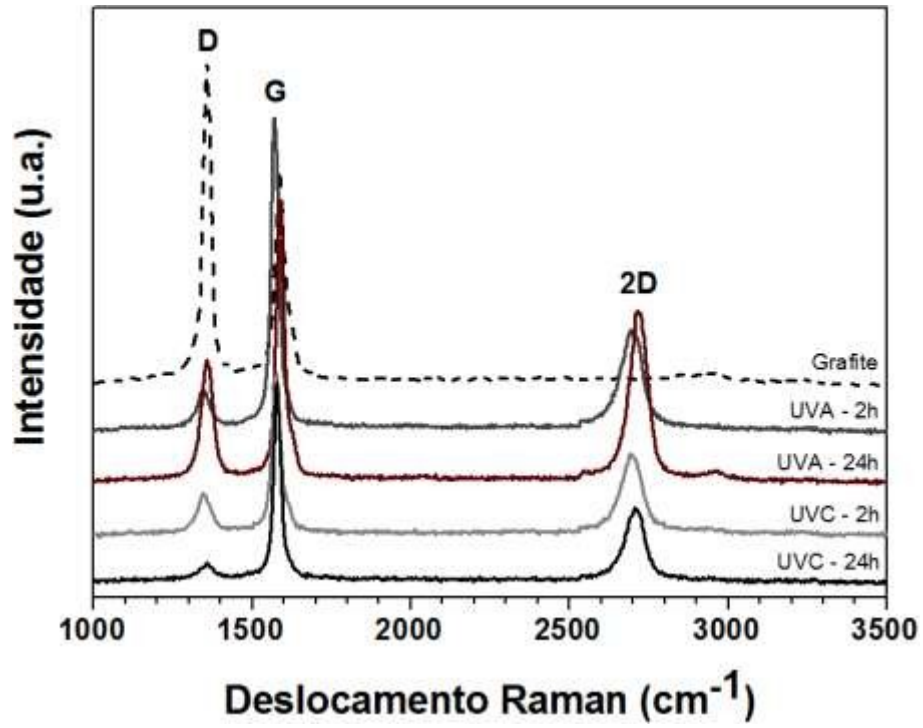


Figura 5

## RESUMO

### **“Processo de Síntese de Grafeno a partir do Método de Foto-oxidação Assistida por Radiação Ultravioleta”**

O presente documento pertence ao campo de nanotecnologia, especificamente no campo da engenharia de materiais, química e nano estruturas de carbono. A presente invenção refere-se a um processo de síntese de nanofolhas de óxido de grafeno reduzido (rGO), compostas por multicamadas de grafeno, a partir do método de foto-oxidação do grafite sua posterior redução usando radiação ultravioleta. Essa técnica permite adicionar, em uma única etapa, diferentes reagentes oxidativos e/ou não-oxidativos á solução contendo o precursor de carbono, de forma a produzir nanofolhas de rGO, em temperatura ambiente, sob radiação UVA e UVC em diferentes tempos de foto-oxidação. O método apresenta como vantagens o baixo custo de síntese, simplicidade de construção e manutenção do sistema, facilidade de obtenção dos precursores e reagentes utilizados, além da possibilidade do emprego da luz solar para oxidar e reduzir o grafite, sem a necessidade do uso de ácidos e agentes estabilizadores, o que caracteriza a metodologia da presente invenção como uma técnica verde de produção de rGO e multicamadas de grafeno.