

Resumo

Este trabalho teve como principal objectivo preparar, funcionalizar e caracterizar materiais de carbono mesoporosos via SBA-15 (réplicas) e avaliar a actividade catalítica destes materiais e de xerogéis de carbono na ozonização de poluentes orgânicos. Para tal, estudou-se a degradação dos corantes C.I. Reactive Blue 5 e C.I. Acid Blue 113 e do ácido oxálico por oxidação com ozono na presença dos materiais mesoporosos referidos anteriormente. Realizaram-se também ensaios de adsorção e de ozonização simples para efeitos comparativos.

De forma a avaliar a influência da química superficial dos materiais de carbono, as amostras preparadas foram sujeitas a tratamentos de oxidação em fase líquida com HNO_3 e tratamentos térmicos em atmosfera inerte. Os materiais obtidos foram caracterizados quimicamente, texturalmente e estruturalmente por um conjunto de técnicas analíticas. A química superficial foi estudada por meio de ensaios de dessorção a temperatura programada e da determinação da acidez e basicidade e do pH_{pzc} . As propriedades texturais dos materiais preparados foram avaliadas a partir das correspondentes isotérmicas de adsorção de N_2 a 77 K. A estrutura de alguns materiais foi analisada por SEM, TEM, EDS e XRD.

Através do estudo da cinética da descoloração das soluções dos corantes mencionados, verificou-se que a adsorção era insuficiente para remover a cor. Por outro lado, a ozonização simples permite descolorar as soluções em poucos minutos; no entanto, atingem-se baixos níveis de remoção de carbono orgânico total (TOC). A combinação dos materiais mesoporosos com ozono permitiu um aumento significativo na remoção de TOC, obtendo-se em alguns dos ensaios mineralizações totais dos compostos orgânicos em solução. Concluiu-se que a actividade catalítica das réplicas de carbono e dos xerogéis de carbono depende da respectiva química superficial, tendo-se obtido os melhores resultados com as amostras menos ácidas.

A conjugação do ozono com os materiais de carbono mesoporosos permitiu remoções de ácido oxálico igualmente superiores às obtidas pela ozonização e adsorção.

Os materiais de carbono mesoporosos estudados neste trabalho apresentaram um melhor desempenho relativamente ao carvão activado, quer na degradação de corantes, quer na remoção do ácido oxálico, o que revela a importância da mesoporosidade para estas reacções.

Palavras Chave: carvões mesoporosos, ozonização, corantes, descoloração, mineralização.

Abstract

The main objective of the present work was the preparation, functionalization and characterization of mesoporous carbon materials by templating SBA-15 silica, and the evaluation of the catalytic activity of these materials, along with that of carbon xerogels, in the ozonation of organic pollutants. The degradation of oxalic acid and two textile dyes (C.I. Reactive Blue 5 and C.I. Acid Blue 113) was studied by oxidation with ozone in the presence of the mesoporous carbon materials. Adsorption and single ozonation were also carried out for comparison purposes.

In order to analyze the influence of the carbon surface chemistry, the materials synthesized were modified by liquid phase oxidation with HNO_3 and thermal treatment under inert atmosphere. The chemical, textural and structural properties of the materials prepared were characterized by different techniques. The surface chemistry was studied by temperature programmed desorption experiments, determination of the pH_{pzc} and evaluation of the total acidity and basicity. The textural characterization was based on the N_2 adsorption isotherms determined at 77 K. The structure of selected materials was analyzed by SEM, TEM, EDS and XRD.

The study of the decolorization kinetics of the dye solutions has shown that under the experimental conditions used the adsorption on the carbon materials was not sufficient to completely remove the solutions color. On the other hand, the ozonation, although completely removing the solution color in a few minutes, did not lead to satisfactory results in terms of total organic carbon (TOC) removal. The combination of the mesoporous materials with ozone considerably improved the TOC removal efficiency, and hence the total mineralization of the organic matter in solution was achieved in some experiments. The results obtained show that the catalytic activity of the templated carbons and carbon xerogels strongly depends on the surface chemistry and in general the best results are obtained over the less acid samples.

The combination of ozone with the carbon mesoporous materials also allowed an oxalic acid removal higher than the obtained by ozonation and adsorption.

The mesoporous carbon materials studied in this work presented a better performance than activated carbon, both in degradation of dyes and oxalic acid, which reveals the importance of the mesoporosity for these reactions.

Keywords: mesoporous carbons, ozonation, dyes, decolorization, mineralization.