



UNIVERSIDADE FEDERAL DO MARANHÃO
CENTRO DE CIÊNCIAS EXATAS E TECNOLOGIA-CCET
PROGRAMA DE PÓS-GRADUAÇÃO EM QUÍMICA-PPGQUIM

FERNANDA GARCIA CORRÊA

**SISTEMA HÍBRIDO FUNCIONAL À BASE DE HIDRÓXIDO DUPLO LAMELAR E
PONTOS QUÂNTICOS DE CARBONO**

São Luís
2025

FERNANDA GARCIA CORRÊA

**SISTEMA HÍBRIDO FUNCIONAL À BASE DE HIDRÓXIDO DUPLO LAMELAR E
PONTOS QUÂNTICOS DE CARBONO**

Dissertação apresentada ao programa de Pós-Graduação em Química da Universidade Federal do Maranhão-UFMA, como requisito para obtenção do título de Mestre em Química.

Área de Concentração: Química

Orientadora: Profª. Dra. Ana Clécia Santos de Alcântara

Co-Orientador: Prof. Dr. Marco Aurélio Suller Garcia

São Luís
2025

Ficha gerada por meio do SIGAA/Biblioteca com dados fornecidos pelo(a) autor(a).
Diretoria Integrada de Bibliotecas/UFMA

Corrêa, Fernanda Garcia.

Sistema híbrido funcional à base de hidróxido duplo lamelar e ponto quânticos de carbono / Fernanda Garcia Corrêa. - 2025.

85 p.

Coorientador(a) 1: Marco Aurélio Suller Garcia.

Orientador(a): Ana Clecia Santos de Alcântara.

Dissertação (Mestrado) - Programa de Pós-graduação em Química/ccet, Universidade Federal do Maranhão, São Luís, 2025.

1. Materiais Híbridos. 2. Hidróxidos Duplos Lamelares. 3. Pontos Quânticos de Carbono. 4. Biocompatibilidade. 5. Adsorção. I. Alcântara, Ana Clecia Santos de. II. Garcia, Marco Aurélio Suller. III. Título.

FERNANDA GARCIA CORRÊA

**SISTEMA HÍBRIDO FUNCIONAL À BASE DE HIDRÓXIDO DUPLO LAMELAR E
PONTOS QUÂNTICOS DE CARBONO**

Dissertação apresentada ao programa de Pós-Graduação em Química da Universidade Federal do Maranhão-UFMA, como requisito para obtenção do título de Mestre em Química.

Área de Concentração: Química

Orientadora: Profa. Dra. Ana Clécia Santos de Alcântara

Co-Orientador: Prof. Dr. Marco Aurélio Suller Garcia

Aprovada em: 31 de julho de 2025.

BANCA EXAMINADORA

Profa. Dra. Ana Clécia Santos de Alcântara (Orientadora)

Doutora em Química

Universidade Federal do Maranhão (UFMA)

Prof. Dr. Ricardo Lopes de Souza Júnior (Examinador 1)

Doutor

Universidade Federal do Rio de Janeiro (UFRJ)

Prof. Dr. Roberto Batista de Lima (Examinador 2)

Doutor

Universidade Federal do Maranhão (UFMA)

AGRADECIMENTOS

Seguir a carreira acadêmica é bem desafiador, rodeado de sentimento de insegurança e incerteza, mas ter uma rede de apoio faz total diferença durante o processo. Por isso, aproveito para expressar meu agradecimento:

A Deus, primeiramente, pela dádiva da vida, cuidado, amparo e força nos momentos difíceis. À minha família pelo amor, carinho, apoio constante e incentivo aos estudos.

À minha orientadora, Profa. Dra. Ana Alcântara, pela paciência e confiança, mesmo diante das dificuldades que enfrentei durante o mestrado. Obrigada pelo aprendizado, ajuda, elogios e conselhos. Ao meu coorientador, Prof. Dr. Marco Suller, pela contribuição valiosa na condução da minha pesquisa e pela confiança depositada. Ambos são professores e pesquisadores que admiro muito e sou profundamente grata e privilegiada pelo conhecimento adquirido e por toda oportunidade dada de crescimento acadêmico.

Ao meu grupo de pesquisa, Bionanos, onde pude desenvolver grande parte da minha pesquisa, aprender constantemente e encontrar acolhimento, colaboração e companheirismo dos meus colegas e amigos: Mayara, Elaine, Socorro, Jaynne, Josefa, Vanessa, Rebecca, Marília, Rayssa, Lucas, Leandro, André, Ismael e Johnnatan. A convivência com vocês tornou meus dias mais leves, obrigada pelo ensinamento, encorajamento e momentos descontraídos.

Ao Laboratório de Intensificação de Processos e Catálise (LIPCAT-UFRJ), onde durante minha jornada acadêmica, com ajuda dos meus orientadores, recebi a oportunidade de realizar um breve estágio. A experiência contribuiu significativamente para minha formação científica e pessoal. Agradeço à Ingrid e ao Samuel que me acompanharam desde os preparativos e pela amizade desenvolvida, obrigada pelo suporte e boa convivência. Aos professores e colegas, especialmente a Jéssica, Sofia, Fellipe, Ricardo, Mateo, Hugo, Jhonatam, Daniel e Dennis. Obrigada pelo acolhimento, troca de conhecimento, incentivo, amizade e momentos de alegria e leveza.

Aos amigos e colegas que conheci na Universidade, cujas amizades e apoio tornaram essa trajetória mais leve e significativa. Aos professores, em especial a Profa. Dra. Cláudia Quintino e Prof. Dr. Roberto Lima, gratidão pelos ensinamentos e incentivo.

Sou grata à Universidade Federal do Maranhão (UFMA) e à Coordenação do Programa de Pós-Graduação em Química (PPGQUIM), pela oportunidade de formação acadêmica e pelo suporte. Agradeço à CAPES pelo financiamento da bolsa, essencial para a execução deste trabalho. Aos

laboratórios parceiros, como a Central Analítica e a Central de Materiais, por realizar análises essenciais para a continuidade da pesquisa.

Por fim, agradeço a todos que, de alguma forma, contribuíram para a execução deste trabalho, tanto no âmbito acadêmico quanto social. A cada mensagem de apoio, incentivo, encontro espontâneo, momento divertido, gesto de ajuda, meus sinceros agradecimentos.

"Nada na vida deve ser temido, apenas compreendido. Agora é hora de compreender mais, para temer menos."

(Marie Curie)

RESUMO

Os materiais híbridos, resultantes da integração sinérgica de componentes orgânicos e inorgânicos, emergem como uma estratégia inovadora para alcançar propriedades físico-químicas únicas e aprimoradas para serem aplicados como materiais adsorventes na remediação ambiental. Dentre esses materiais, os hidróxidos duplos lamelares (HDLs) possuem elevada capacidade de troca aniônica, enquanto os pontos quânticos de carbono (CQDs) apresentam alta condutividade elétrica e facilidade de funcionalização superficial. Neste trabalho, desenvolveu-se um nanomaterial híbrido (HDL-CQD) a partir da incorporação de CQDs em uma matriz de HDL pelo método de coprecipitação *in situ* para ser empregado como material adsorvente de poluente orgânico. Os materiais foram caracterizados por DRX onde demonstraram a boa formação do HDL na presença dos CQDs, enquanto o FTIR, ensaios de adsorção/dessorção de N₂ e pH no ponto de carga zero (pHpzc) indicaram a presença de grupos funcionais do CQD no material híbrido, aumento expressivo da área superficial e modificações na química de superfície do HDL após funcionalização com CQD, confirmando a formação de uma estrutura híbrida. Ensaios de hemólise empregando eritrócitos de carneiro indicam que o material híbrido HDL-CQD possui o caráter não tóxico, o que pode ser promissor para aplicações na remediação ambiental, pois evita a contaminação secundária e aumenta a segurança do processo. Por outro lado, testes de adsorção foram realizados para remoção do anti-inflamatório ibuprofeno em meio aquoso, o HDL-CQD exibiu desempenho adsorptivo maior que seu respectivo, com capacidade máxima de 22,13 mg·g⁻¹ (R(%) = 88,53%) a 25 ppm, e em concentrações mais baixas (5 e 10 ppm), o híbrido apresentou 100% de remoção. A modelagem cinética evidenciou que o ajuste ao modelo de pseudo-segunda ordem foi o mais adequado, sugerindo que os mecanismos de quimissorção predominam no processo adsorptivo. Enquanto os ensaios de adsorção com variação de pH (ácido, neutro e básico) mostrou que interações de fisissorção também podem ocorrer na interação entre o fármaco e o material híbrido. A isoterma foi melhor representada pelo modelo de Sips, indicando a presença de adsorção mista decorrente de múltiplas interações físicas e químicas. Dessa forma, a funcionalização do HDL com CQD demonstrou ser uma estratégia eficaz para potencializar a atividade adsorptiva, possibilitando sua aplicabilidade no campo ambiental.

Palavras-chaves: materiais híbridos; hidróxidos duplos lamelares; pontos quânticos de carbono; biocompatibilidade; adsorção.

ABSTRACT

Hybrid materials, resulting from the synergistic integration of organic and inorganic components, have emerged as an innovative strategy to achieve unique and enhanced physicochemical properties. Among these materials, layered double hydroxides (LDHs) exhibit high anion exchange capacity, while carbon quantum dots (CQDs) offer high electrical conductivity and ease of surface functionalization. In this work, a hybrid nanomaterial (LDH-CQD) was developed by incorporating CQDs into an LDH matrix via *in situ* co-precipitation, and the materials were characterized by FTIR, XRD, UV-Vis, DSC, TGA-DTG, TEM, SEM-EDS, nitrogen adsorption/desorption analysis, and point of zero charge (pHpzc) determination. XRD results confirmed the successful formation of LDH in the presence of CQDs, while FTIR, N₂ adsorption/desorption data, and pHpzc analysis indicated the presence of CQD functional groups in the hybrid material, a significant increase in surface area, and modifications in surface chemistry of LDH after CQD functionalization, confirming the formation of a hybrid structure. Hemolysis assays using sheep erythrocytes demonstrated that the LDH-CQD hybrid material is non-toxic, suggesting potential for biomedical applications. On the other hand, adsorption tests were performed for the removal of the anti-inflammatory drug ibuprofen in aqueous medium, and the LDH-CQD exhibited superior adsorptive performance compared to its pristine counterpart, with a maximum capacity of 22.13 mg·g⁻¹ (R(%) = 88.53%) at 25 ppm. At lower concentrations (5 and 10 ppm), the hybrid material achieved 100% removal. Kinetic modeling showed that the pseudo-second-order model best described the data, suggesting that chemisorption mechanisms dominate the adsorption process. The isotherm data were best fitted by the Sips model, indicating mixed adsorption behavior resulting from multiple physical and chemical interactions. Thus, the functionalization of layered double hydroxides with carbon quantum dots proved to be an effective strategy to enhance the adsorptive performance of these materials, enabling their applicability in the environmental field.

Keywords: hybrid materials; layered double hydroxides; carbon quantum dots; biocompatibility; adsorption.

INTEGRAÇÃO DA PESQUISA AOS OBJETIVOS DE DESENVOLVIMENTO SUSTENTÁVEL

A adsorção se destaca como uma técnica eficiente, simples e barata, amplamente aplicada no tratamento de efluentes. Neste contexto, a nanotecnologia contribui significativamente ao aprimorar o desempenho de adsorventes por meio da modificação de propriedades físico-químicas. A redução do tamanho de partícula, por exemplo, favorece o aumento da área superficial e a disponibilidade de sítios ativos, otimizando a remoção de poluentes, como fármacos, corantes e metais pesados. Sendo assim, o presente estudo está alinhado com os Objetivos de Desenvolvimento Sustentável (ODS) da ONU, em especial o ODS 6 (Água Potável e Saneamento), ao propor um material híbrido com potencial para purificação de águas contaminadas com ibuprofeno. Além disso, a síntese por métodos acessíveis e a possibilidade de reuso do material estão em concordância com o ODS 12 (Consumo e Produção Responsáveis), ao incentivar o uso racional de recursos e a redução de resíduos. Portanto, este trabalho integra inovação tecnológica à busca por soluções sustentáveis para remediação de águas contaminadas com responsabilidade ambiental e social.

LISTA DE FIGURAS

Figura 1 - Grupos de materiais utilizados em sistemas híbridos.	24
Figura 2 - Representação estrutural de hidróxido duplo lamelar.	26
Figura 3 - Estrutura dos pontos quânticos de carbono.	27
Figura 4 - Síntese do HDL-Mg/Al.	29
Figura 5 - Difratoograma dos materiais HDL-Mg/Al, CQD e HDL-CQD.	41
Figura 6 - Espectro de FTIR dos materiais HDL-Mg/Al, CQD e HDL-CQD.	43
Figura 7 - (a) Espectro de absorção UV-Vis do CQD preparado por via solvotermal. O <i>insert</i> se refere aos espectros UV-Vis dos materiais de partida empregados na síntese do CQD e (b) espectros de absorção do HDL-Mg/Al, CQD e híbrido HDL-CQD.	45
Figura 8 - Materiais sintetizados (a) sem e (b) com a incidência da luz UV e suas concentrações.	46
Figura 9 - DSC dos materiais HDL, CQD e HDL-CQD.	47
Figura 10 - TGA/DTG do HDL-Mg/Al.	48
Figura 11 - TGA/DTG do CQD.	49
Figura 12 - TGA/DTG do híbrido HDL-CQD.	50
Figura 13 - Micrografia do material HDL puro.	51
Figura 14 - Micrografia do material HDL-CQD.	52
Figura 15 - (a) Espectro EDS e (b) imagens de mapeamento de elementos correspondentes ao HDL-Mg/Al.	53
Figura 16 - (a) Espectro EDS e (b) imagens de mapeamento de elementos correspondentes ao híbrido HDL-CQD.	54
Figura 17 - Imagens obtidas pela técnica de TEM dos materiais HDL Mg/Al (a,b) e HDL-CQD (c,d).	55
Figura 18 - Isoterma de adsorção e dessorção do HDL-Mg/Al.	57
Figura 19 - Isoterma de adsorção e dessorção do HDL-CQD.	58
Figura 20 - Gráficos do teste de pHpcz (a) HDL-Mg/Al (b) HDL-CQD.	59
Figura 21 - Taxa de hemólise dos nanomateriais obtidos (a) HDL-Mg/Al; (b) CQD; (c) HDL-CQD.	60
Figura 22 - Influência do tempo de contato e de concentração (a) 5 ppm; (b) 10 ppm; (c) 15 ppm;	

(d) 20 ppm e (e) 25 ppm na adsorção de ibuprofeno por HDL Mg/Al e material híbrido HDL-CQD.	62
Figura 23 - Efeito do pH na eficiência de remoção do fármaco HDL puro e HDL-CQD.	64
Figura 24 - Eficiência de regeneração e reutilização do material híbrido HDL-CQD para adsorção de IBU ao longo de quatro ciclos.	66
Figura 25 - A cinética de adsorção de IBU pelo HDL-CQD usando o (a) modelo de pseudo-primeira ordem; (b) modelo de pseudo-segunda ordem; (c) modelo cinético de difusão intrapartícula de Weber-Morris e (d) modelo de Elovich.....	67
Figura 26 - Diagrama de dispersão residual para os dados gerados a partir do (a) modelo de pseudo- primeira ordem; (b) modelo de pseudo-segunda ordem; (c) modelo cinético de difusão intrapartícula de Weber-Morris e (d) modelo de Elovich.....	70
Figura 27 - Isotherma de adsorção de IBU por HDL-CQD: pontos experimentais representados por q_e experimental (preto) e curvas ajustadas aos modelos teóricos de adsorção: Langmuir (vermelho), Freundlich (azul), D-R (rosa) e Sips (verde).	72

LISTA DE TABELAS

Tabela 1 - EDS do material HDL-Mg/Al.	52
Tabela 2 - EDS do material híbrido HDL-CQD.	54
Tabela 3 - Área de superfície BET e diâmetro médio dos poros dos materiais obtidos.	57
Tabela 4 - Parâmetros e coeficientes derivados do ajuste da curva dos modelos cinéticos para a adsorção de fármaco pelo HDL-CQD em pH 7,0 e temperatura ambiente.	68
Tabela 5 - Comparação dos parâmetros dos modelos de adsorção de IBU pelo híbrido HDL-CQD.	73

LISTA DE ABREVIATURAS E SIGLAS

CQD	Pontos Quânticos de Carbono (<i>sigla em inglês</i>)
DRX	Difração de Raios X
DSC	Calorimetria de Varredura Diferencial
DTG	Derivada da Análise Termogravimétrica (<i>sigla em inglês</i>)
EDS	Espectroscopia de Energia Dispersiva de Raios-X
FTIR	Espectroscopia na Região do Infravermelho por Transformada de Fourier
HDL	Hidróxido Duplo Lamelar
HDL-CQD	Material Híbrido a Base de Hidróxido Duplo Lamelar e Pontos Quânticos de Carbono
IBU	Ibuprofeno
MEV	Microscopia Eletrônica de Varredura
R(%)	Porcentagem da Eficiência de Remoção
TEM	Microscopia Eletrônica de Transmissão
TGA	Análise Termogravimétrica (<i>sigla em inglês</i>)

SUMÁRIO

1 INTRODUÇÃO.....	17
2 OBJETIVOS.....	18
2.1 Objetivo geral.....	18
2.2 Objetivos específicos	18
3 REVISÃO BIBLIOGRÁFICA	19
3.1 Adsorção de fármaco	19
3.2 Materiais híbridos	21
3.3 Matrizes para formação de sistemas híbridos.....	23
3.3.1 Hidróxidos duplo lamelares	25
3.3.2 Pontos quânticos de carbono	26
4 METODOLOGIA.....	29
4.1 Preparação do HDL-Mg/Al.....	29
4.2 Obtenção do CQD	30
4.3 Síntese do material HDL-CQD pelo método de co-precipitação	30
4.4 Caracterização dos materiais obtidos	31
4.4.1 Difractometria de raios X (DRX)	31
4.4.2 Espectrometria de infravermelho com transformada de Fourier (FTIR)	31
4.4.3 Espectroscopia na região do UV-Visível (UV-Vis)	32
4.4.4 Calorimetria Diferencial de Varredura (DSC).....	32
4.4.5 Análise termogravimétrica (TGA) e análise térmica diferencial (DTG)	32
4.4.6 Análise morfológica e composicional	32
4.4.7 Análise de adsorção/dessorção de Nitrogênio	33
4.4.8 pH no ponto de carga zero (pHpzc).....	33
4.4.9 Ensaios de hemólise com eritrócitos de carneiro	33

4.5 Avaliação adsorptiva do sistema HDL-Mg/Al e híbrido HDL-CQD	34
4.5.1 Efeito do tempo de contato e de concentração	34
4.5.2 Influência do pH e regeneração do material.....	35
4.5.3 Modelos teóricos de cinética	36
4.5.4 Isoterma de adsorção.....	38
5 RESULTADOS E DISCUSSÃO.....	40
5.1 Difractometria de raios X	40
5.2 Espectroscopia de infravermelho com transformada de Fourier	42
5.3 Espectrometria na região do UV-Vísivel	44
5.4 Calorimetria Diferencial de Varredura.....	46
5.5 Análise termogravimétrica e análise térmica diferencial.....	47
5.6 Análise morfológica e composicional	50
5.7 Análise de adsorção/dessorção de Nitrogênio	55
5.8 pH no ponto de carga zero (pHpzc)	58
5.9 Ensaios de hemólise com eritrócitos de carneiro.....	59
5.10 Avaliação adsorptiva do sistema HDL-Mg/Al e híbrido HDL-CQD.....	60
5.10.1 Efeito do tempo de contato e de concentração	61
5.10.2 Influência do pH e regeneração do material.....	63
5.10.3 Modelos teóricos de cinética	67
5.10.4 Isoterma de adsorção.....	71
6 CONCLUSÕES.....	74
REFERÊNCIAS.....	76

1 INTRODUÇÃO

A nanotecnologia promove avanços significativos no desenvolvimento de materiais funcionais com desempenho superior e aplicações em diversas áreas estratégicas, como catálise, energia, meio ambiente e biomedicina. Dentre as vertentes mais promissoras nesse campo, destaca-se o conceito de materiais híbridos, definidos como sistemas compostos por dois ou mais constituintes — orgânicos e inorgânicos — integrados de maneira sinérgica. Essa integração visa combinar, de forma racional, propriedades complementares que não seriam atingidas pelos materiais isoladamente. Tais materiais abrangem desde compósitos densos e particulados até espumas, estruturas porosas e quase todos os materiais encontrados na natureza (Ashby *et al.*, 2003).

Uma estratégia promissora consiste na combinação de hidróxidos duplos lamelares (HDLs) com pontos quânticos de carbono (CQDs). Os HDLs apresentam estrutura lamelar, biocompatibilidade, alta capacidade de troca aniônica, estabilidade térmica e composição modulável, mas possuem baixa condutividade elétrica (Mochane *et al.*, 2020). Já os CQDs oferecem biocompatibilidade, rica funcionalização com grupos oxigenados e excelente condutividade elétrica, além de propriedades ópticas únicas (Shafique *et al.*, 2022). A associação HDL com o CQD contorna limitações individuais e resulta em sistemas multifuncionais com desempenho superior.

Essa sinergia tem sido explorada em diferentes áreas, com destaque para a adsorção de poluentes orgânicos, catálise e aplicações biomédicas. Em sistemas híbridos, a estrutura do HDL favorece a interação com ânions, enquanto os grupos funcionais dos CQDs ampliam os mecanismos de interação com compostos diversos, promovendo elevada eficiência de remoção. Na catálise, a maior exposição de sítios ativos e a melhoria na condução eletrônica favorecem reações redox. Em biomedicina, a biocompatibilidade e a funcionalização dos CQDs permitem aplicações em liberação de fármacos e imagem (Rahmanian *et al.*, 2018; Molaei, 2023).

Neste contexto, o presente trabalho propõe a utilização de materiais híbridos à base de HDL de sistema Mg/Al associado aos CQDs, visando sua aplicação na remoção dos fármacos ibuprofeno em meio aquoso. A caracterização físico-química e morfológica do sistema foi realizada por técnicas de FTIR, DRX, UV-Vis, DSC, TGA/DTG, TEM, MEV-EDS, adsorção e dessorção de nitrogênio, pH_{pzc}, além da análise de toxicidade por meio do teste de hemólise.

2 OBJETIVOS

2.1 Objetivo geral

Desenvolver um nanomaterial híbrido multifuncional à base de hidróxido duplo lamelar e pontos quânticos de carbono e explorar suas propriedades visando possível aplicação na área ambiental.

2.2 Objetivos específicos

- a) Obter o HDL-Mg/Al por meio do método de coprecipitação *in situ*;
- b) Sintetizar CQDs pelo método solvotérmico;
- c) Sintetizar o material híbrido HDL-CQD utilizando o método de co-precipitação *in situ* de preparação de HDLs na presença dos CQDs previamente sintetizados;
- d) Realizar a caracterização físico-química e espectroscópica dos materiais obtidos;
- e) Avaliar a biocompatibilidade do sistema a partir de ensaios de hemólise;
- f) Investigar a capacidade adsortiva do compósito HDL-CQD em relação ao ibuprofeno;
- g) Contribuir para o avanço no desenvolvimento de nanomateriais híbridos com potencial aplicação em remediação ambiental.

3 REVISÃO BIBLIOGRÁFICA

3.1 Adsorção de fármaco

O desenvolvimento do setor industrial, em conjunto com o crescimento populacional, ocasiona a poluição ambiental. Os resíduos encontrados nos recursos hídricos são constituídos por uma ampla variedade de substâncias como, por exemplo, corantes, pesticidas, metais pesados e fármacos (Oba *et al.*, 2021; Hosseinian Naeini; Hosseini Moradi, 2023). Dentre esses contaminantes emergentes, os produtos farmacêuticos são considerados como um dos grupos mais representativos na poluição ambiental (Ahmed, 2017). Antibióticos, analgésicos, anti-inflamatórios, reguladores lipídicos, hormônios e terapias antirretrovirais são alguns representantes dessa classe de substâncias. Esses compostos biologicamente ativos já foram detectados em águas do tipo residual, superficial, subterrânea, potável e no mar. Além disso, são provenientes do descarte doméstico incorreto, da atividade agrícola e do ambiente hospitalar e industrial (Sigonya *et al.*, 2023).

Apesar de sua importância para o tratamento e cura de doenças, a presença de fármacos nos corpos hídricos ocasiona malefícios para a saúde humana, os animais e a vida marinha, devido à alta persistência desses compostos que, em alguns casos, pode gerar subprodutos ou metabólitos mais nocivos que a forma original (Zumra; Ahmed, 2025; Sigonya *et al.*, 2023). Considerando sua ampla utilização terapêutica e comercialização sem prescrição médica, o ibuprofeno pode apresentar concentração relativamente mais elevadas que outra substância farmacêutica (Oba *et al.*, 2021). Esse fármaco é pertencente ao grupo de anti-inflamatório não esteroidal, possui também atividade antipirética e analgésica, é administrado para controle da febre, inflamação, dor muscular.

Problemas gastrointestinais, danos graves ao fígado e aos rins, distúrbios no sistema nervoso central são alguns efeitos adversos humanos referentes à ingestão de água potável contendo a presença desse fármaco em concentrações baixas (Siyal *et al.*, 2025). Segundo García e colaboradores (2014), foi constatado que o ibuprofeno, tanto na sua forma quanto na forma de sal, apresentaram malefícios para organismos aquáticos ao avaliar a ecotoxicidade em *Vibrio fischeri*, algas, crustáceos e biomassa de estações de tratamento de águas residuais. O estudo também evidenciou que o ibuprofeno dificulta a reprodução e desenvolvimento de seres aquáticos.

Nesse contexto, surge a preocupação crescente da qualidade da água, pois os métodos

convencionais não conseguem eliminar ou degradar o fármaco de maneira eficaz, sendo explicado pela alta solubilidade e mobilidade em água. Sendo assim, o desenvolvimento de novas tecnologias para a remoção efetiva e segura ganhou destaque, podendo envolver processos físicos, químicos e/ou biológicos. Processos oxidativos avançados, nanofiltração, osmose reversa de alta pressão são algumas das estratégias empregadas, porém revelam desafios na aplicação devido à complexidade, ao alto custo de manutenção e capacidade de gerar mais resíduos (Siyal *et al.*, 2025). Por isso, a adsorção manifesta ser uma abordagem viável por possuir vantagens como, o alto desempenho, baixo custo, facilidade de aplicação até em larga escala.

A definição de adsorção consiste na realização de transferência de massa, na qual certos sólidos possuem a capacidade de concentrar na sua superfície substâncias no estado líquido ou gasoso, permitindo a separação dos componentes contidos nesses fluidos. O material sólido é denominado de adsorvente, enquanto a espécie que interage com a interface do sólido chama-se de adsorvato. Esse processo pode ser classificado, de acordo com a natureza e força das interações envolvidas, em: adsorção física e adsorção química. A adsorção física compreende as forças de van der Waals, interações consideradas relativamente fracas, em contrapartida, a adsorção química se baseia em quebra e/ou formação de ligação, proveniente da doação ou compartilhamento de elétrons, caracterizando a ligação iônica e covalente. Embora exista a diferenciação conceitual entre fisissorção e quimissorção, os dois mecanismos não são totalmente independentes, sendo influenciado por vários fatores (Nascimento *et al.*, 2020).

De forma genérica, as propriedades do adsorvente, do adsorvato e as condições experimentais afetam o fenômeno de adsorção. Em relação ao adsorvente, devem ser consideradas as seguintes características: área superficial, tamanho do poro, densidade, presença de grupos funcionais na superfície e hidrofobicidade. Já a natureza do adsorvente está vinculada a fatores como: polaridade, tamanho da molécula, solubilidade e acidez ou basicidade. Por fim, os parâmetros experimentais abrangem a temperatura, pH e natureza do solvente (Nascimento *et al.*, 2020).

Materiais que possuem grande área superficial são empregados para remover poluentes por conter maior número de locais disponíveis para fixação de moléculas ou íons. Materiais porosos à base de sílica, zeólitas, carvão ativado, estruturas metalorgânicas (MOFs), argilominerais como os hidróxidos duplo lamelares são considerados como nanomateriais. A utilização de adsorventes em nanoescala possui como vantagens: a área superficial significativamente maior por unidade de

massa em comparação a materiais macroscópicos e alta reatividade (Ciğeroğlu *et al.*, 2024).

Na literatura, é possível encontrar estudos voltados para a adsorção do ibuprofeno utilizando nanomateriais, como no caso de Kim e colaboradores (2024), que desenvolveu um aerogel contendo MOFs que exibiu excelente eficiência de remoção (99,3%) em 720 minutos. No entanto, os autores trabalharam apenas em baixa concentração (3 ppm) e o ajuste da capacidade de adsorção máxima ($q_{\max}$) foi de apenas 5,96 mg.g⁻¹. Além disso, adsorventes contendo materiais carbonáceos foram investigados, como nanoplaquetas de óxido de grafeno, Banerjee *et al.* (2016) conseguiram um material com ótima reciclabilidade e satisfatória eficiência adsorptiva de 98,17% em 60 minutos, todavia a condição mais favorável foi em baixa concentração (6 ppm) e pH = 6, sujeito ao decaimento da adsorção, caso aumentasse o valor desses parâmetros, além de $q_{\max}$ equivalente a 3,72 mg.g⁻¹. Por outro lado, Sherazi *et al.* (2024) investigaram o óxido de ferro (Fe₂O₃) por síntese verde e obtiveram êxito em alta concentração (40 ppm), com eficiência de remoção (90,2%) em menos tempo de contato (30 minutos) que os trabalhos supracitados, contudo em pH acima de 5, decaiu o desempenho adsorptivo do material e o valor de $q_{\max}$ encontrado foi de 19,84 mg.g⁻¹. Nesse contexto, o planejamento de nanoadsorventes para o ibuprofeno ainda deve ser mais explorado. Assim, uma estratégia com o objetivo de potencializar a capacidade adsorptiva de um nanomaterial é a modificação da superfície com a adição de grupos funcionais, trazendo como consequência uma adsorção mais seletiva (Ciğeroğlu *et al.*, 2024).

3.2 Materiais híbridos

A nanotecnologia envolve o planejamento, desenvolvimento e aplicação de estruturas funcionais em escala nanométrica, com o objetivo de modificar e aprimorar propriedades químicas, físicas e biológicas de materiais ou sistemas. Tal aprimoramento decorre da manipulação de estruturas, cujo tamanho varia entre 1 e 100 nanômetros, situando-se entre o domínio atômico e o macroscópico. Embora reconhecida como uma área de conhecimento moderna, a nanotecnologia possui registros históricos de aplicação empírica. Evidências desse uso incluem pigmentos empregados em pinturas rupestres, compostos colorantes nas colas egípcias e o uso de coloides metálicos na confecção de vidrarias ornamentais e vitrais durante a Idade Média (Kelsall, 2005).

Entre as diversas abordagens exploradas pela nanotecnologia, destaca-se o desenvolvimento de materiais híbridos, que combinam componentes orgânicos e inorgânicos em

uma única estrutura. Um exemplo histórico de híbrido é o pigmento Maya Blue, uma associação entre o corante índigo e os nanocanais da paligorsquita, uma argila fibrosa que atuava como matriz hospedeira, conferindo estabilidade e resistência ao composto (Díaz Moreno *et al.*, 2020). Na atualidade, de maneira mais abrangente, os materiais híbridos são definidos como sistemas que combinam as propriedades de dois ou mais materiais distintos, resultando em desempenho superior ao de cada constituinte isoladamente (Ashby *et al.*, 2003).

Diversas rotas sintéticas vêm sendo exploradas para a obtenção de materiais híbridos, a primeira técnica é chamada sol-gel, amplamente utilizada para a formação de compostos moleculares homogêneos orgânico-inorgânicos, sendo especialmente eficaz na obtenção de sólidos híbridos microporosos e cristalinos, como zeólitas e estruturas do tipo Metal-Organic Frameworks (MOFs) (Boukhriss *et al.*, 2020). A segunda rota utiliza processos de automontagem mediados por surfactantes orgânicos como moldes, permitindo a formação de nanocompósitos inorgânicos ou redes híbridas organizadas (Manfo; Laaksonen, 2025; Amrouni *et al.*, 2025).

Já a terceira abordagem preserva a integridade de unidades estruturais nanométricas bem definidas (nanobuilding blocks - NBBs), promovendo sua montagem ou dispersão de maneira controlada no material final (Tarutani *et al.*, 2021). Por fim, a quarta rota combina o uso de nanopartículas e processos de auto-organização para gerar materiais hierarquicamente organizados, com estruturas específicas e propriedades otimizadas — como resistência mecânica, desempenho óptico, condutividade elétrica e estabilidade térmica —, ampliando as possibilidades de aplicação em áreas tecnológicas avançadas (Manfo; Laaksonen, 2025; Ding *et al.*, 2020; Hu *et al.*, 2025).

A formação dessas estruturas pode ocorrer por diversos mecanismos, sendo classificados em duas categorias: Classe I, caracterizada por interações fracas (ex.: Van der Waals e ligações de hidrogênio), e Classe II, em que predominam ligações químicas fortes, como covalentes ou coordenadas (Islam *et al.*, 2023). Adicionalmente, os materiais híbridos também podem ser categorizados com base em sua funcionalidade: (i) estruturalmente hibridizados, voltados à melhoria de propriedades mecânicas e morfológicas; (ii) funcionalmente hibridizados, destinados à obtenção de características como atividade óptica, condutividade ou desempenho catalítico; e (iii) quimicamente hibridizados, nos quais a ênfase está na reatividade superficial e funcionalização química. Essa distinção impacta diretamente a estabilidade estrutural, a reatividade e o desempenho dos materiais (Gomez-Romero *et al.*, 2024).

A possibilidade de combinar diferentes tipos de hibridização em um único sistema

confere aos materiais híbridos uma ampla gama de propriedades simultâneas. Essa integração de funcionalidades — estruturais, eletrônicas, ópticas e biológicas — os torna altamente versáteis, favorecendo sua aplicação em áreas de grande relevância tecnológica, como: catálise seletiva para reações orgânicas e processos redox, engenharia de tecidos, liberação controlada de fármacos, sistemas luminescentes, sensores na detecção de compostos químicos, poluentes e biomoléculas (Makowski *et al.*, 2023; Dey *et al.*, 2023; Ismail *et al.*, 2024; An *et al.*, 2023)

3.3 Matrizes para formação de sistemas híbridos

É sabido que os materiais híbridos contemplam uma ampla variedade de compósitos (Figura 1) e que suas funcionalidades não são determinadas apenas pela composição química dos constituintes, mas também pela forma e escala estrutural envolvida. Essa diversidade de características possibilita a combinação de propriedades distintas, que, quando integradas de maneira sinérgica, podem resultar em materiais com desempenho superior em aplicações avançadas (Ashby *et al.*, 2003).

No âmbito da preparação desses sistemas, argilas e sólidos análogos, tais como montmorillonita, sepiolita, hidróxido duplo lamelar, têm sido amplamente empregados como matrizes inorgânicas devido à sua disponibilidade, estabilidade e capacidade de troca iônica (Hussain *et al.*, 2024; Carmona *et al.*, 2022; Zhou *et al.*, 2022). Esses materiais são comumente combinados com fases orgânicas, como polímeros sintéticos ou biopolímeros, para formar compósitos com propriedades mecânicas e funcionais aprimoradas (Judge *et al.*, 2022). Além disso, materiais carbonáceos, tais como nanotubos de carbono e pontos quânticos de carbono, também vêm sendo incorporados nesses sistemas, contribuindo com alta condutividade elétrica, propriedades ópticas, o que complementa as características dos HDLs, matrizes que possuem, por exemplo, estabilidade térmica e capacidade de intercalação de íons (Khorshidi *et al.*, 2022).

Figura 1 - Grupos de materiais utilizados em sistemas híbridos.



Fonte: Adaptada de Ashby *et al.* (2003).

A sinergia entre HDLs e CQDs, em particular, evidencia-se na potencialização de eficiência dos compósitos híbridos. Na área de adsorção, por exemplo, a estrutura lamelar do HDL, que oferece sítios ativos para a troca aniônica, é significativamente aprimorada pela presença dos CQDs, os quais introduzem novos grupos funcionais e aumentam a área superficial, elevando a capacidade de remoção de contaminantes orgânicos e íons pesados (Feng *et al.*, 2023).

Em processos catalíticos, enquanto os HDLs demonstram alta reatividade química e uma estrutura propícia para a dispersão de espécies catalíticas, os CQDs contribuem com excelentes características elétricas e ópticas, promovendo uma melhor transferência de carga e, consequentemente, uma atividade catalítica superior (Nope *et al.*, 2024; Gao *et al.*, 2024). No campo biomédico, essa integração permite a obtenção de sistemas multifuncionais capazes de atuar tanto como plataformas para a liberação controlada de fármacos quanto como agentes de diagnóstico por meio de propriedades luminescentes, conferindo aos materiais híbridos uma alta biocompatibilidade e versatilidade funcional (Kumari *et al.*, 2023).

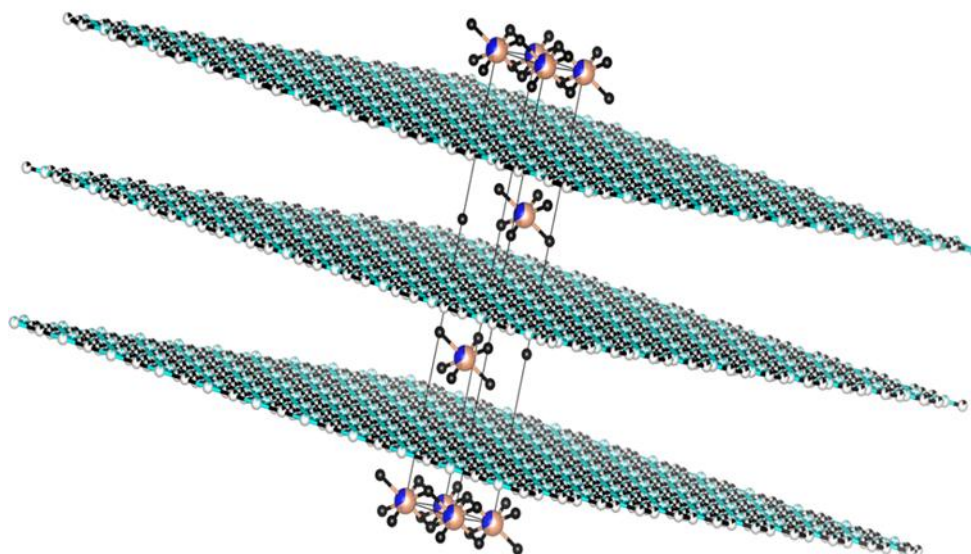
3.3.1 Hidróxidos duplo lamelares

Os HDLs são materiais inorgânicos bidimensionais (2D), ordenados em camadas, semelhantes à brucita. Esse argilomineral (Figura 2) possui a seguinte fórmula geral, análogo à composição do mineral chamado hidrotalcita: $[M^{2+}_{1-x} M^{3+}_x(OH)_2]^{x+}(A^{n-})_{x/n} \cdot mH_2O$. Nessa expressão, $[M^{2+}]$ e $[M^{3+}]$ representam os cátions metálicos, respectivamente, divalente (Mg^{2+} , Zn^{2+} , Ni^{2+} , Cu^{2+} , Ca^{2+} , Co^{2+}) e trivalente (Al^{3+} , Fe^{3+} , Ga^{3+} , Cr^{3+}), enquanto, A^{n-} corresponde ao intercalante aniônico (Cl^- , NO_3^- , SO_4^{2-} , Br^- , I^- , OH^-). Em razão da sua estrutura lamelar catiônica, esse sólido inorgânico possui a capacidade de atuar como matriz hospedeira de várias substâncias aniônicas, tanto de origem orgânica quanto inorgânica. Por isso, os HDLs são amplamente utilizados em diversas aplicabilidades, como liberação controlada, catálise e remediação ambiental (Kameliya *et al.*, 2023; Altalhi *et al.*, 2024).

Esse grupo inorgânico destaca-se por sua biocompatibilidade, estabilidade térmica, baixo custo, podendo ser sintetizados por diferentes métodos de acordo com a aplicação desejada. Dentre os métodos mais recorrentes destacam-se a coprecipitação, sol-gel, troca aniônica, hidrólise induzida e o tratamento hidrotérmico (Zubair *et al.*, 2022; Benhiti *et al.*, 2020; Naseem *et al.*, 2019; Wang *et al.*, 2021; Liu *et al.*, 2021).

O método de coprecipitação destaca-se pela simplicidade, reprodutibilidade e baixo custo operacional. Consiste na precipitação simultânea de cátions metálicos divalentes e trivalentes em meio alcalino sob controle rigoroso de pH, promovendo a formação das lamelas e a intercalação de ânions na fase interlamelar. Este método também permite certa flexibilidade na escolha dos íons metálicos e ânions intercalados, o que possibilita a modulação das propriedades físico-químicas do material (Tang *et al.*, 2020).

Figura 2 - Representação estrutural de hidróxido duplo lamelar.



Fonte: Própria Autora (2025).

No contexto da adsorção, por exemplo, modificações estruturais e superficiais dos HDLs têm sido amplamente exploradas para potencializar a interação com diferentes tipos de poluentes. A incorporação de grupos funcionais na estrutura do HDL — seja por meio da escolha dos ânions intercalados, dopagens ou funcionalizações na superfície — aponta ser uma estratégia eficaz para aumentar a afinidade por compostos orgânicos, como corantes, fármacos e pesticidas. Tais modificações promovem interações específicas, como ligações de hidrogênio, forças eletrostáticas e interações π - π , fundamentais para o desempenho adsorptivo em soluções aquosas (Zubair *et al.*, 2022).

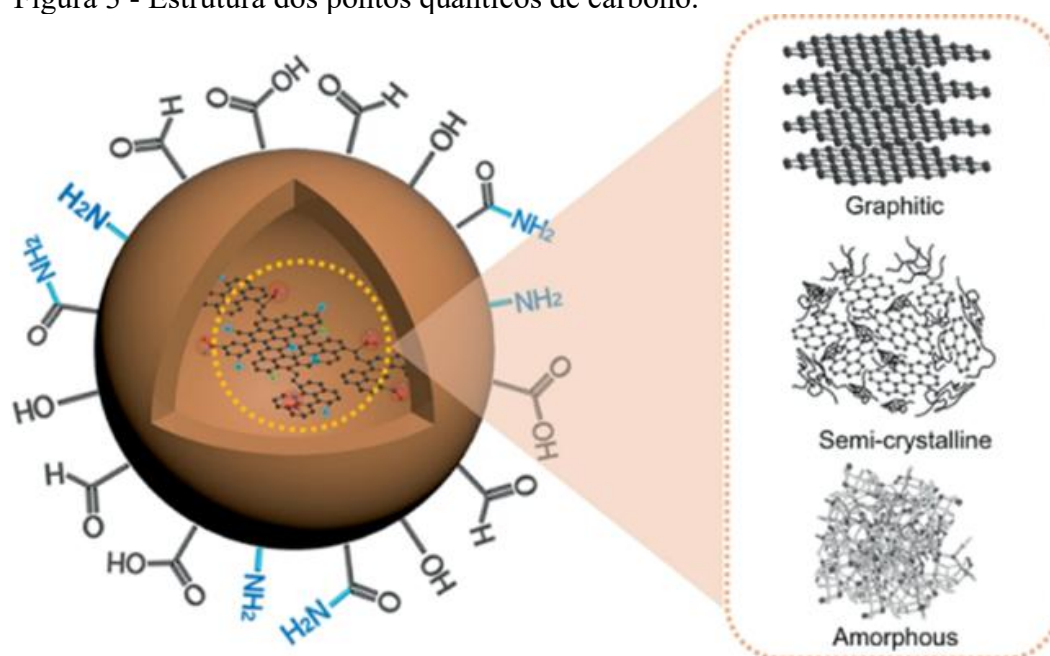
3.3.2 Pontos quânticos de carbono

Os CQDs são nanomateriais de dimensões inferiores a 10 nm, são considerados materiais zero-dimensionais (0D), pois apresentam confinamento espacial nas três direções (x, y, z) (Hornyak *et al.*, 2008). Estruturalmente, os CQDs exibem morfologia predominantemente quasi-esférica e distribuição de tamanho uniforme. Quanto à composição, esses nanomateriais são majoritariamente formados por carbonos com hibridizações sp^2 (semelhante ao grafeno) e sp^3 , característica do tipo diamante (Ye *et al.*, 2022). Essa combinação confere aos CQDs propriedades ópticas e eletrônicas singulares, relacionadas tanto ao núcleo quanto aos grupos funcionais

presentes em sua superfície (Figura 3).

Os grupos funcionais presentes na superfície ($-\text{OH}$, $-\text{COOH}$, $-\text{NH}_2$, entre outros) possibilitam diversas interações físico-químicas, o que torna os CQDs promissores para aplicações em bioimagem, detecção de íons, dispositivos optoeletrônicos, fotocatalise e processos de adsorção (Tang *et al.*, 2019). Dentre as propriedades mais notáveis dos CQDs destacam-se sua alta solubilidade em água, biocompatibilidade, estabilidade fototérmica e forte emissão de fluorescência com comportamento dependente da excitação (Hoang *et al.*, 2019).

Figura 3 - Estrutura dos pontos quânticos de carbono.



Fonte: Oliveira e Alves (2022).

Considerando a simplicidade e a versatilidade dos métodos de obtenção dos CQDs, sua síntese pode ser realizada por duas abordagens principais: top-down e bottom-up. A estratégia top-down baseia-se na quebra de estruturas de carbono em escala macroscópica, como nanotubos de carbono e óxido de grafeno, para a formação de nanopartículas. Por outro lado, a rota bottom-up envolve a montagem de estruturas nanométricas a partir de precursores atômicos ou moleculares (Magesh *et al.*, 2022).

Essa segunda abordagem apresenta diversas vantagens, como baixo custo, maior rendimento sintético e a possibilidade de dopagem com heteroátomos, o que amplia a funcionalização superficial dos CQDs. Dentre os métodos utilizados, o tratamento solvotermal destaca-se como uma das rotas mais eficazes. Esse processo consiste na exposição dos precursores

a um solvente orgânico sob condições elevadas de temperatura e pressão, promovendo reações de carbonização e polimerização responsáveis pela formação da estrutura do nanomaterial (John *et al.*, 2021).

A dopagem heteroatômica (com N, S, P, etc.) é uma estratégia frequentemente utilizada para controle das propriedades eletrônicas dos CQDs, permitindo o ajuste da intensidade da fluorescência, a estabilidade térmica e a funcionalização química da superfície. Esse processo realizado com átomos de nitrogênio é considerado como um método de baixo custo e eficiente para aprimorar suas propriedades fotocatalíticas e/ou fluorescentes. Além disso, graças à sua biocompatibilidade, capacidade de funcionalização e propriedades eletrônicas ajustáveis, os CQDs têm sido aplicados em bioimagem, detecção de íons, sensores, eletrodos modificados, fotocatalise e adsorção (Magesh *et al.*, 2022; Pechnikova *et al.*, 2025).

4 METODOLOGIA

4.1 Preparação do HDL-Mg/Al

A síntese do hidróxido duplo lamelar foi realizada pelo método de coprecipitação (Figura 4). Inicialmente, preparou-se uma solução contendo os sais $\text{MgCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ e $\text{AlCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ em uma proporção molar 2:1 (Mg/Al). Essa solução foi gotejada lentamente em 100 mL de água bidestilada previamente descarbonatada com purga de gás nitrogênio por 15 minutos, a fim de evitar interferências de ânions carbonato durante o processo. Durante o gotejamento, a solução foi mantida sob agitação constante, com o pH ajustado no intervalo de 9,0 a 10,0 mediante adição controlada de uma solução de NaOH ($1 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$). Todo o procedimento foi realizado sob atmosfera de nitrogênio.

Após o término do gotejamento, a suspensão resultante foi mantida sob agitação por até 24 horas para promover o crescimento dos cristais. O material sólido formado foi separado por centrifugação a 4.000 rpm durante 20 minutos, seguido de duas etapas de lavagem com água destilada previamente descarbonatada, para remoção de possíveis impurezas residuais. O material obtido foi seco em estufa a 60°C por uma noite. Esse processo assegurou a obtenção de um HDL-Mg/Al adequado para os estudos subsequentes.

Figura 4 - Síntese do HDL-Mg/Al.



Fonte: Própria Autora (2025).

4.2 Obtenção do CQD

A síntese do material foi realizada com base na metodologia descrita por Qu *et al.* (2016), fundamentada no tratamento solvotérmico. Inicialmente, 1 g de ácido cítrico e 2 g de ureia foram dissolvidos em 10 mL de dimetilformamida (DMF), utilizando um agitador magnético para homogeneização. A solução obtida foi transferida para uma autoclave de aço inoxidável revestida internamente com teflon, com capacidade de 15 mL, e submetida a aquecimento a 160 °C por um período de 6 horas. Após o término da reação, a autoclave foi retirada da estufa e deixada para resfriar espontaneamente até atingir a temperatura ambiente. Em seguida, foram adicionados 20 mL de uma solução de hidróxido de sódio ($50 \text{ g} \cdot \text{L}^{-1}$) ao material reacional, que foi submetido à agitação por 1 minuto. A mistura resultante foi centrifugada a 15.000 rpm por 30 minutos, e o sobrenadante descartado. O sólido obtido foi lavado duas vezes com água destilada e novamente centrifugado sob as mesmas condições, com o objetivo de remover sais e álcalis residuais. O sólido final, após as lavagens, foi disperso em pequeno volume de água destilada, congelado e submetido à liofilização por 72 horas a uma temperatura de -35 °C. O material liofilizado foi armazenado em um dessecador até sua posterior utilização.

4.3 Síntese do material HDL-CQD pelo método de co-precipitação

A síntese da nanoplateforma híbrida dos sistemas foi realizada de forma semelhante à do HDL. Para o sistema Mg/Al, foi montado um sistema reacional constituído por um balão de fundo redondo com três bocas, equipado com agitador magnético. A solução contendo 50 mg de CQD, preparado anteriormente, dissolvidos em 125 mL de água bidestilada foi previamente descarbonada com gás nitrogênio por 15 minutos. O sistema também inclui um medidor de pH, um funil de decantação contendo a solução salina de Mg^{2+} e Al^{3+} e uma bureta com solução de NaOH ($1 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$) para ajustar e manter o pH da mistura entre 9,0 e 10,0 ao longo de todo o processo de síntese, em paralelo com o borbulhamento de N_2 . Após o gotejamento completo da solução salina, a suspensão foi mantida sob agitação por 24 horas para permitir o envelhecimento e o crescimento dos cristais de HDL. Posteriormente, o material sólido foi separado por centrifugação a 15.000 rpm durante 10 minutos. O sólido obtido foi submetido a três etapas de lavagem com água destilada previamente descarbonatada, visando a remoção de álcalis residuais. O material final foi então

preparado para as etapas subsequentes de caracterização e aplicação.

4.4 Caracterização dos materiais obtidos

4.4.1 Difratometria de raios X (DRX)

O padrão de DRX das amostras foi obtido por meio de um difratômetro Bruker modelo D8-ADVANCE, contendo uma fonte de cobre (radiação $\text{CuK}\alpha$, sendo $\lambda = 0,15418 \text{ nm}$), sob os seguintes parâmetros: voltagem 40 kV e corrente 35 mA, com ângulos 2θ variando de 5 a 70° . As análises foram efetuadas por passos de $0,02^\circ$ com um tempo de aquisição de 1,5 s por passo.

Para conhecer a distância interlamelar dos materiais, foi empregada a equação de Bragg (Equação 1), conforme descrita a seguir:

$$n\lambda = 2d\sin\theta \quad (1)$$

Onde: n é um número inteiro, λ é o comprimento de onda dos raios X, d é a distância entre os planos da rede cristalina e, θ é o ângulo entre os raios incidentes e os planos de espalhamento.

Foi possível determinar também o tamanho médio do cristalito pela equação de Scherrer (Equação 2):

$$D = \frac{k \cdot \lambda}{\beta \cdot \cos \theta} \quad (2)$$

Onde compreende que: D é o tamanho médio do cristalito, k é um fator numérico que geralmente assume o valor de 0,9, λ é o comprimento de onda dos raios X, β está relacionado à largura a meia altura do pico de difração, θ o ângulo de difração.

4.4.2 Espectrometria de infravermelho com transformada de Fourier (FTIR)

As amostras foram submetidas ao equipamento de marca Shimadzu e modelo IR-

Prestige-21. Foi utilizado KBr para confecção de pastilha e os parâmetros utilizados foram: resolução equivalente a 4 cm^{-1} , número de scans igual a 40, faixa de varredura de 400 a 4000 cm^{-1} . Considerou-se o sinal proveniente do KBr puro como branco.

4.4.3 Espectroscopia na região do UV-Visível (UV-Vis)

Os espectros de absorção na região do UV-Visível do HDL-Mg/Al, dos CQDs e do material híbrido HDL-CQD foram obtidos utilizando um espectrômetro Kasuaki, modelo IL-593, de feixe único, com resolução de 1 nm. No registro dos espectros, usou-se uma cubeta de quartzo com caminho óptico de 1 cm. A varredura foi realizada de 800 a 200 nm para os materiais sintetizados.

4.4.4 Calorimetria Diferencial de Varredura (DSC)

As amostras foram analisadas em um equipamento de marca Shimadzu e modelo DSC – 60H. As amostras foram depositadas em cadinho de alumínio, sob as seguintes condições de análise: razão de aquecimento igual a $10\text{ }^{\circ}\text{C}\cdot\text{min}^{-1}$, intervalo de temperatura de $30\text{ }^{\circ}\text{C}$ a $500\text{ }^{\circ}\text{C}$, atmosfera de nitrogênio com o fluxo de 100 mL/min .

4.4.5 Análise termogravimétrica (TGA) e análise térmica diferencial (DTG)

As análises de TG e DTG foram conduzidas em um equipamento da marca TA Waters, modelo SDT 650. Todos os experimentos foram realizados sob atmosfera inerte de nitrogênio, no intervalo de temperatura de temperatura ambiente a $800\text{ }^{\circ}\text{C}$, com uma razão de aquecimento de $10\text{ }^{\circ}\text{C}\cdot\text{min}^{-1}$ em cadinho de alumina.

4.4.6 Análise morfológica e composicional

A microscopia eletrônica de varredura (MEV) foi realizada em um equipamento JEOL JSM-IT700HR com o objetivo de analisar a morfologia superficial dos materiais. Os materiais foram aderidos em uma fita de carbono sem preparação previa para visualização, ou seja, não foi

necessário sputtering para torná-las condutoras. Para a identificação qualitativa e semiquantitativa dos elementos presentes na superfície do material, empregou-se a técnica de espectroscopia de energia dispersiva de raios X (EDS), acoplada a um microscópio Hitachi TM-1000 equipado com detector específico para EDS. A análise de Microscopia Eletrônica de Transmissão (TEM) dos materiais foi efetuada por equipamento JEOL JEM-2100F, as amostras foram depositadas em fita de carbono sem revestimento por pulverização catódica.

4.4.7 Análise de adsorção/dessorção de Nitrogênio

As propriedades texturais dos materiais sintetizados foram avaliadas por meio de ensaios de adsorção e dessorção de nitrogênio. As análises foram conduzidas utilizando um equipamento Quantachrome, programado na temperatura de $-196\text{ }^{\circ}\text{C}$. A determinação da área superficial específica foi realizada pelo método de Brunauer, Emmett e Teller (BET). Para garantir a precisão dos resultados, as amostras foram submetidas a um processo de degaseificação sob vácuo por 4 horas a $100\text{ }^{\circ}\text{C}$ antes das análises.

4.4.8 pH no ponto de carga zero (pHpzc)

O pHpzc foi determinado pela metodologia reportada por Campos *et al.*, 2024, que consiste na adição de 5 mg do adsorvente puro HDL-Mg/Al ou híbrido HDL-CQD separados em erlenmeyers de 25 mL contendo solução de KCl $0,1\text{ mol}\cdot\text{L}^{-1}$ com valores iniciais fixos de pH, no intervalo de 2 a 12. As soluções foram submetidas à agitação magnética em temperatura constante por 24 horas. Posteriormente, o pH final foi medido utilizando um pHmetro Hanna Instruments (Woonsocket, RI, EUA), modelo HI-2002. Usando um método gráfico, ΔpH ($\text{pH}_i - \text{pH}_f$) vs. pH_i , o pH no ponto de carga zero para cada sólido foi estimado sob $\Delta\text{pH} = 0$.

4.4.9 Ensaios de hemólise com eritrócitos de carneiro

A atividade hemolítica dos nanomateriais *in vitro* foi realizada em conformidade com a norma *International Standard Organization* 10993 parte 5 (ISO), por contato indireto. Na qual foi seguida a recomendação da metodologia de Almaaytah *et al.*, (2014), de forma adaptada. Foram

coletados 10 mL de sangue de carneiro em um tubo contendo ácido etilenodiamino tetra-acético (EDTA), disponibilizado pelo biotério da Universidade Federal do Maranhão. O sangue foi centrifugado a 2000 rpm por 10 minutos, a 20 °C. O plasma foi removido e os eritrócitos foram lavados três vezes com tampão fosfato salina (PBS). Após, uma alíquota de 100 µL de solução de 5% de eritrócitos (v/v, em solução salina 0,9% m/v) foi misturada a 200 µL das seguintes soluções (HDL-Mg/Al; CQD; HDL-CQD), em microplaca de 96 poços, em diferentes concentrações (1000 – 7,81 µg/mL), e incubados por 1 hora a 37 °C. Os controles positivo e negativo receberam 100 µL de Triton x-100 a 1% e PBS, respectivamente. Após 1 hora de incubação a 37 °C, as amostras foram centrifugadas a 2000 rpm por 10 minutos a 20°C. Foi retirado o sobrenadante (100 ou 150 µL), transferido para uma microplaca e suas absorbâncias medidas a 450 nm.

A atividade hemolítica foi expressa em relação a ação do Triton x-100 e calculada pela Equação 3:

$$\frac{\left(Abs_{450} - \frac{Abs_{450}}{PBS} \right)}{\left(\frac{Abs_{450}}{Triton\ x-100} - \frac{Abs_{450}}{PBS} \right)} \times 100 \quad (3)$$

Onde: Abs₄₅₀ corresponde à absorbância com a presença da amostra; Abs₄₅₀/PBS está relacionado à amostra tratada com PBS; e Abs₄₅₀/Triton é a amostra tratada com Triton.

4.5 Avaliação adsorptiva do sistema HDL-Mg/Al e híbrido HDL-CQD

4.5.1 Efeito do tempo de contato e de concentração

Para analisar o desempenho adsorptivo dos materiais sintetizados frente ao fármaco ibuprofeno (IBU), soluções do anti-inflamatório foram preparadas nas concentrações de 5, 10, 15, 20 e 25 ppm para verificar a influência do tempo de contato e da concentração inicial no efeito de adsorção. O experimento foi conduzido com 0,04 mg de material em 0,04 L de solução do fármaco. As amostras foram mantidas sob agitação constante de 300 rpm, temperatura ambiente e protegidas da incidência de luz durante todo o experimento.

Em tempos predeterminados (0, 5, 10, 20, 40, 60, 90 e 120 minutos), alíquotas de 3 mL foram coletadas e centrifugadas a 4.000 rpm por 10 minutos para promover a separação do sólido

adsorvente. Os sobrenadantes foram analisados por espectrofotometria na região do UV-Vis, sendo a absorbância registrada no comprimento de onda específico de 221 nm para o ibuprofeno.

4.5.2 Influência do pH e regeneração do material

A influência do pH na adsorção do anti-inflamatório foi investigada variando o pH para 3, 5, 7 e 9, com ajuste usando 0,1 mol/L de soluções de NaOH ou HCl. A condição experimental utilizada foi a otimizada, sendo considerado a concentração de ibuprofeno a 25 ppm, no tempo de 40 minutos. As concentrações foram mensuradas usando uma curva de quantificação relacionada com a lei de Beer-Lambert.

A regeneração do material híbrido HDL-CQD foi determinada nas condições otimizadas, concentração de 25 ppm, no tempo de 40 minutos e em pH = 7. Após a adsorção do fármaco, o adsorvente foi submetido a 30 mL de uma solução de etanol 70% e mantido em agitação por 4 horas em temperatura ambiente. O processo de dessorção foi acompanhado com o auxílio de um espectrofotômetro UV-Vis a 221 nm. Em seguida, o sólido foi centrifugado a 4000 rpm e lavado três vezes com água destilada para posterior utilização em um novo ciclo adsorativo. A cada ciclo, a eficiência de remoção (R%) foi estimada.

Com os dados acima obtidos (Tópicos 4.5.1 e 4.5.2), a eficiência de remoção (R%) foi calculada com base na Equação 4:

$$R (\%) = \left(\frac{C_0 - C_e}{C_0} \right) \times 100 \quad (4)$$

Em que: C_0 é a concentração inicial do fármaco ($\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$), C_e é a concentração em equilíbrio após o processo de adsorção ($\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$), R (%) representa a porcentagem de remoção do adsorvato em relação à concentração inicial.

A quantidade adsorvida (Q_t) em $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$ foi calculada pela seguinte Equação 5:

$$Q_t = \left(\frac{C_0 - C_e}{m} \right) \times V \quad (5)$$

Onde: m é massa do adsorvente em gramas (g) e V é o volume da solução do processo

de adsorção, em litros (L).

4.5.3 Modelos teóricos de cinética

Para avaliar o comportamento cinético do processo de adsorção, os dados experimentais foram ajustados aos modelos de pseudo-primeira ordem (Zhang *et al.*, 2013), pseudo-segunda ordem (Campos *et al.*, 2024), difusão intrapartícula de Weber-Morris (Jedynak; Charmas, 2024) e de Elovich (Wijaya *et al.*, 2024), por meio de suas formas linearizadas, conforme expressões abaixo:

- a) Modelo de pseudo-primeira ordem (Equação 6):

$$\ln (q_t - q_e) = \ln q_e - k_1 t \quad (6)$$

- b) Modelo de pseudo-segunda ordem (Equação 7):

$$\frac{t}{q_t} = \frac{1}{k_2(q_e)^2} + \frac{1}{q_e} t \quad (7)$$

- c) Modelo de difusão intrapartícula de Weber-Morris (Equação 8):

$$q_t = k_{id} t^{\frac{1}{2}} + C \quad (8)$$

- d) Modelo de Elovich (Equação 9):

$$q_t = \frac{1}{\beta} \ln t + \frac{1}{\beta} \ln \alpha \beta \quad (9)$$

Nas equações expressas acima, q_e e q_t representam a quantidades de ibuprofeno que foram adsorvidas por grama de adsorvente (mg.L^{-1}) no equilíbrio e no tempo t , respectivamente. A

constante de taxa de adsorção associada ao modelo de pseudo-primeira ordem é denotada por k_1 (min^{-1}), e a constante de taxa do modelo de pseudo-segunda ordem é denotada por k_2 ($\text{g.mg}^{-1} \text{min}^{-1}$). Além disso, C (mg.g^{-1}) é um parâmetro constante associado à espessura da camada limite, enquanto k_{id} ($\text{mg.g}^{-1}.\text{min}^{-0,5}$) é um parâmetro constante associado à taxa de difusão intrapartícula. A é a taxa de adsorção inicial ($\text{mg.g}^{-1}.\text{min}^{-1}$) e β é a constante de dessorção (g.mg^{-1}).

A aplicação desses modelos permite sugerir o possível mecanismo predominante da adsorção, avaliando-se a adequação por meio do coeficiente de determinação (R^2) e da aproximação entre os valores teóricos e experimentais de Q_e . Além disso, foi calculado o erro residual dos modelos cinéticos citados acima para complementar a análise do mecanismo controlador da adsorção, estabelecendo a relação não-linear, conforme as equações abaixo (Beri *et al.*, 2021), respectivamente:

- a) Erro residual do modelo de pseudo-primeira ordem (Equação 10):

$$q_t = q_e x (1 - e^{-k_1 t}) \quad (10)$$

- b) Erro residual do modelo de pseudo-segunda ordem (Equação 11):

$$q_t = \frac{q_e^2 k_2 t}{1 + q_e k_2 t} \quad (11)$$

- c) Dispersão residual do modelo de difusão intrapartícula de Weber-Morris (Equação 12):

$$q_t = k_{id} t^{\frac{1}{2}} + C \quad (12)$$

- d) Dispersão residual do modelo de Elovich (Equação 13):

$$q_t = \frac{1}{\beta} \ln (1 + \alpha \beta t) \quad (13)$$

4.5.4 Isoterma de adsorção

O ajuste das isotermas de adsorção foi efetuado nas concentrações de 5, 10, 15, 20 e 25 ppm. Considerou-se as condições otimizadas de pH 7 e temperatura ambiente, por um tempo de contato de 40 minutos. Os dados experimentais foram posteriormente ajustados para os modelos isotérmicos de Langmuir (Zavala-Flores *et al.*, 2024), Freundlich (Semwal *et al.*, 2023), Dubinin-Radushkevich (D-R) (Lins *et al.*, 2025) e Sips (Khaksarfard *et al.*, 2023) para determinar os parâmetros de adsorção relevantes associados a cada modelo.

a) Langmuir (Equação 14):

$$\frac{C_e}{q_t} = \left(\frac{1}{q_{max}} \right) C_e + \frac{1}{K_L q_{max}} \quad (14)$$

b) Freundlich (Equação 15):

$$\ln q_e = \ln K_F + \frac{1}{n} \ln C_e \quad (15)$$

c) Dubinin-Radushkevich (D-R) (Equação 16):

$$\ln q_e = \ln q_{max} - \beta \varepsilon^2 \quad (16)$$

d) Sips (Equação 17):

$$q_e = \frac{q_{max} (K_S \cdot C_e)^n}{1 + (K_S \cdot C_e)^n} \quad (17)$$

Em que, q_e representa a capacidade adsorvida no equilíbrio ($\text{mg} \cdot \text{g}^{-1}$), enquanto q_{max} está relacionada à capacidade máxima de adsorção, também em $\text{mg} \cdot \text{g}^{-1}$. C_e refere-se à concentração de equilíbrio de IBU em solução ($\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$). A constante de Langmuir (K_L) está

associada à energia livre de adsorção e à afinidade dos sítios de adsorção. No modelo de Freundlich, KF representa a capacidade de adsorção e a variável n indica a intensidade ou heterogeneidade do processo de adsorção. Os valores de KL and q_{max} equivalem ao slope e ao intercepto, respectivamente, e são originados da relação linear de Ce/qe com Ce . A equação do modelo Dubinin-Radushkevich (D-R) estabelece a relação de qe com o potencial de Polanyi (ϵ). Além disso, o modelo Sips combina características das isotermas de Langmuir e Freundlich com a inserção do fator de heterogeneidade (n_s). A equação de Sips fornece a capacidade máxima de adsorção (q_{max}) e a constante de afinidade (K_s), oferecendo uma descrição mais abrangente de sistemas de adsorção que não se encaixam puramente no comportamento de Langmuir ou Freundlich.

5 RESULTADOS E DISCUSSÃO

5.1 Difratometria de raios X

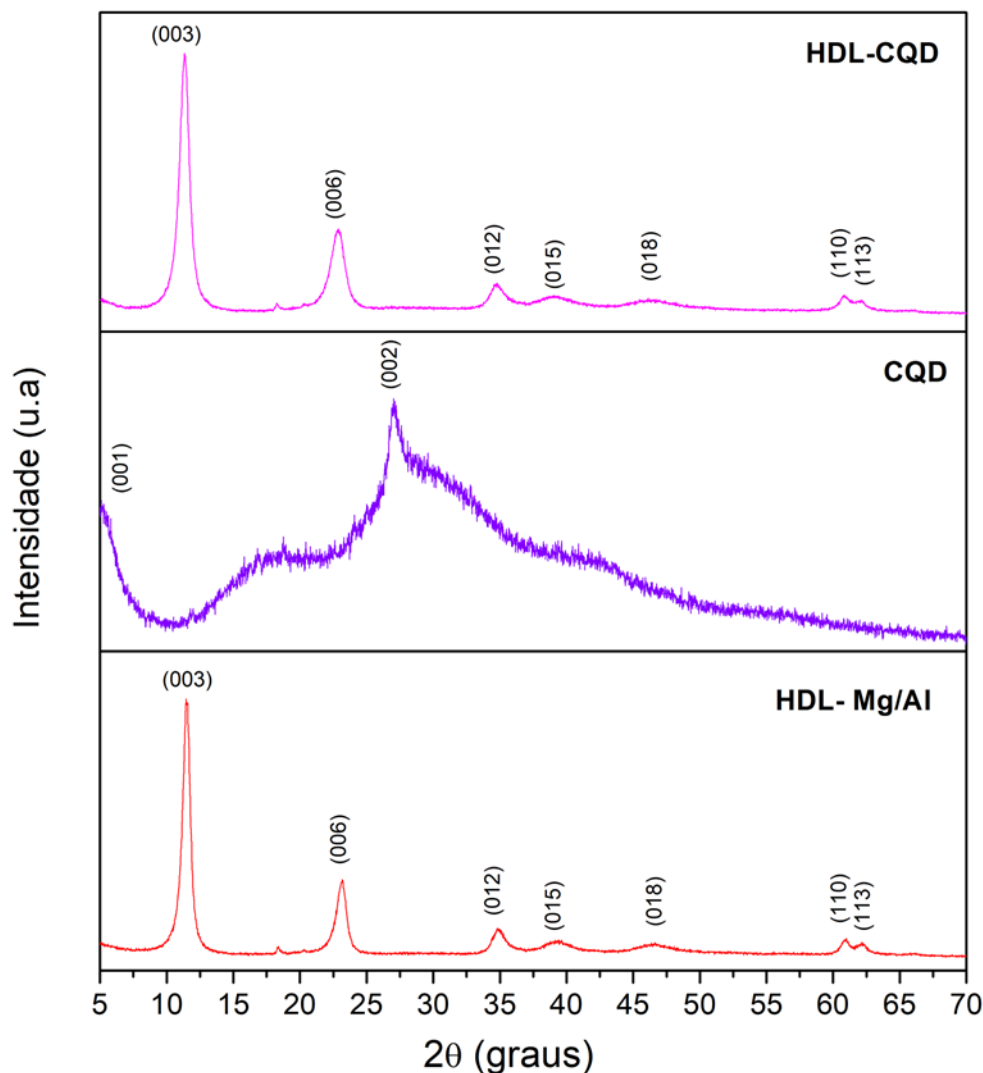
A técnica de DRX foi empregada com o objetivo de investigar a estrutura cristalina dos materiais obtidos (Figura 5). Para o HDL-Mg/Al é possível observar padrões de reflexão característicos deste sólido lamelar, de acordo com ficha do banco de dados JCPDS N° 22-0700 e, onde é possível apreciar os planos cristalográficos (003), (006), (012), (015), (018), (110) e (113). Considerando que a espessura de uma lamela do tipo brucita é 0,48 nm, o espaço interlamelar do HDL-Mg/Al é de 0,76 nm, o que está de acordo com a literatura com a intercalação de íons Cl⁻ em HDLs (Ribeiro *et al.*, 2014; Reyna-Villanueva *et al.*, 2019).

Por outro lado, o difratograma do material carbonáceo CQD apresenta dois planos de reflexão em torno de 5,07° e 26,97°, correspondentes ao espaçamento *d* equivalente a 1,74 nm e 0,33 nm, respectivamente. O primeiro plano basal está relacionado ao pico característico (001) do óxido de grafite, que geralmente está localizado em $2\theta = 10,6^\circ$ (JCPDS no 00-041-1487) (Aslam *et al.*, 2025). Esse notável deslocamento para ângulos mais baixos pode ser justificado pela presença de grupos funcionais como hidroxila, carboxilato e grupos aminos na superfície do CQD, aumentando o espaçamento entre camadas e introduzindo desordem. O segundo pico se assemelha com a reflexão basal (002) ($2\theta = 26,5^\circ$; *d* = 0,34 nm) do grafite puro (JCPDS 96-901-2231) (Mojtabazadeh; Safaei-Ghomi, 2025). No entanto, observa-se uma ligeira redução no espaçamento *d*, indicando a formação de uma estrutura semelhante a grafite não idealmente disposta no CQD (Mintz *et al.*, 2021). Este resultado indica que o CQD obtido possui uma estrutura em camadas com certo grau de cristalinidade e presença de carbono desordenado, o que está de acordo com outros estudos encontrados na literatura (Aslam *et al.*, 2025; Cutrim *et al.*, 2021).

No entanto, esses sinais não são apreciados no seu derivado híbrido com HDL-Mg/Al, diferenciando-se também apenas na redução da cristalinidade com a introdução dos pontos quânticos de carbono. Este comportamento é provavelmente devido a um possível efeito de diluição do CQDs no material híbrido, associada à proporção reduzida de massa dos CQDs nos materiais híbridos (Chandrasekaran *et al.*, 2022; Sheikh *et al.*, 2023). Ademais, os pontos quânticos de carbono apresentam picos de difração amplos e de baixa intensidade devido ao seu pequeno tamanho e domínios grafiticos desordenados, que limitam sua detecção quando incorporados em

matrizes mais cristalinas (Mintz *et al.*, 2021; Chuaicham *et al.*, 2022).

Figura 5 - Difratoograma dos materiais HDL-Mg/Al, CQD e HDL-CQD.



Fonte: Própria Autora (2025).

Além disso, os picos de difração correspondentes aos planos de reflexão (003), (006) e (012) apresentaram picos nítidos e intensos, o que aponta sucesso de síntese do HDL altamente cristalizado na presença do CQD. A existência dos planos basais (003) e (006) confirma a sustentação de uma estrutura hexagonal em camadas, inerente aos compostos semelhantes à hidrotalcita (Tang *et al.*, 2023). Todavia, foi observado um deslocamento sutil do plano mais intenso (003) para um valor menor de 2θ , uma vez que a posição de pico de HDL-Mg/Al é de $11,51^\circ$, enquanto a posição de pico do material HDL-CQD é de $11,35^\circ$, indicando que houve uma expansão na rede de HDL após interagir com o CQD.

Essas pequenas alterações estruturais para o material híbrido indicam que houve interação com os CQDs, que estão localizado na superfície da matriz inorgânica, sem intercalação interlamelar. Além disso, pode-se notar que a interação e funcionalização da superfície do HDL com CQD não compromete a sua ordem estrutural de longo alcance. Embora não haja evidências da presença de CQD na região interlamelar, a associação de CQDs com as superfícies externas das partículas de HDL sugere provocar tensão local ou distorções na estrutura em camadas. Tais efeitos são provavelmente devido a ligações de hidrogênio, forças eletrostáticas e outras interações interfaciais entre os grupos funcionais dos CQDs e a superfície rica em hidroxila do HDL. Essas interações podem enfraquecer a coesão interlamelar ou alterar a regularidade do empilhamento.

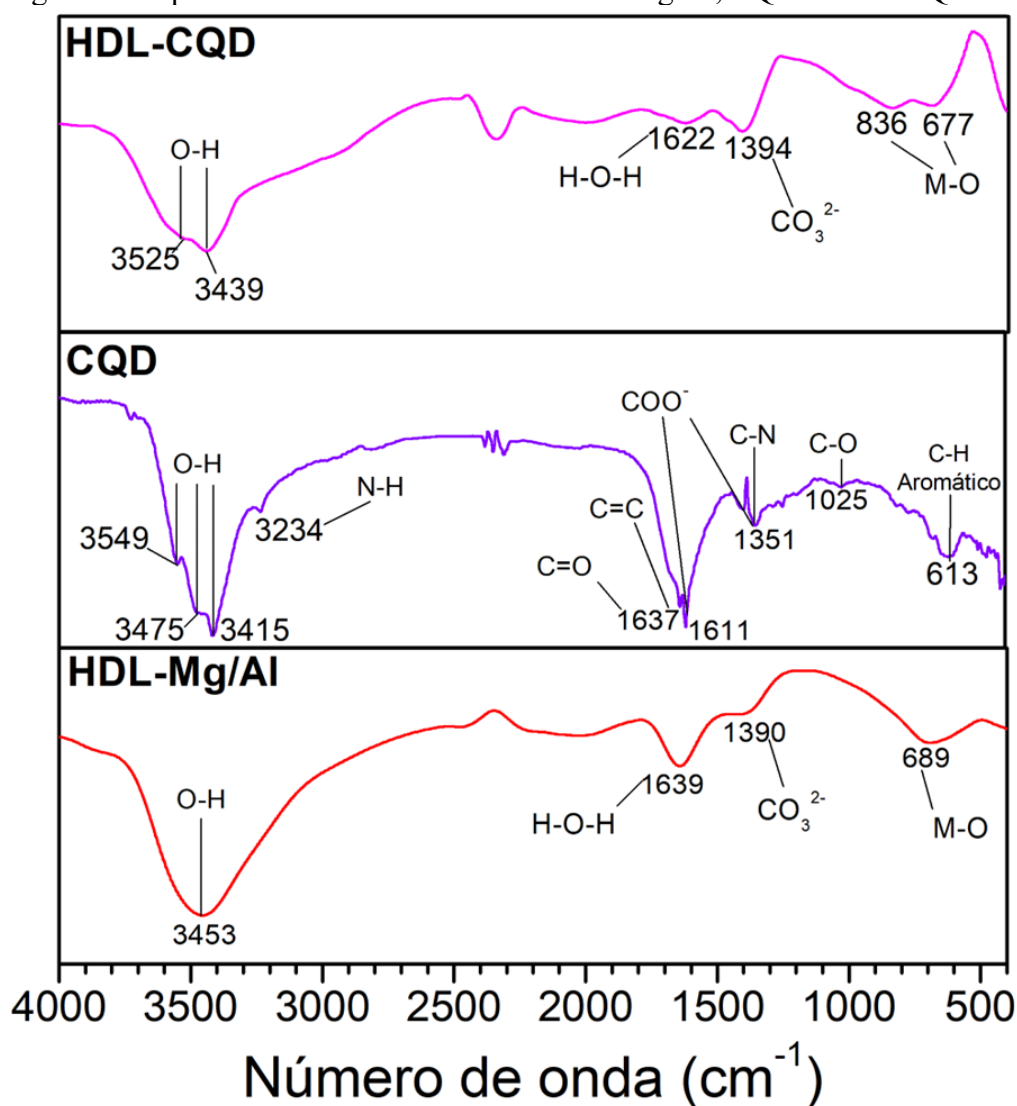
5.2 Espectroscopia de infravermelho com transformada de Fourier

Essa técnica foi utilizada para detectar a presença de grupos funcionais nos materiais sintetizados e avaliar possíveis interações químicas entre o HDL e o CQD (Figura 6). Os espectros obtidos para o HDL-Mg/Al apresentaram bandas características associadas às vibrações de estiramento da ligação O-H, em torno de 3453 cm^{-1} , atribuídas à presença de grupos hidroxila tanto na superfície do material quanto na água interlamelar (Silva *et al.*, 2023). Ademais, a banda em 1639 cm^{-1} pode estar relacionada à interação H-O-H. Essa absorção é proveniente do modo de flexão da água interlamelar, comprovando a interação dessas moléculas nas lamelas do material. Além disso, a banda em torno de 1390 cm^{-1} foi associada ao estiramento assimétrico do ânion carbonato (CO_3^{2-}), um contaminante intrínseco dos hidróxidos duplos lamelares devido à absorção de CO_2 atmosférico durante o processo de síntese (Molaei, 2023). Os espectros também apresentaram bandas na região de baixas frequências, abaixo de 1000 cm^{-1} , que são atribuídas às vibrações das ligações metal-oxigênio (M-O), características das redes cristalinas de materiais lamelares. A banda observada em 689 cm^{-1} está associada à vibração de estiramento da estrutura metal-oxigênio, reforçando a preservação da matriz inorgânica do HDL (Wang *et al.*, 2022).

Em relação ao CQD puro, observou-se um conjunto de bandas características de grupos oxigenados e estruturais. As vibrações de estiramento da hidroxila (OH^-) foram identificadas em 3549 cm^{-1} , 3475 cm^{-1} e 3415 cm^{-1} , comprovando a existência desse grupo funcional. A presença de grupos carbonila (C=O) foi confirmada pela banda em 1637 cm^{-1} , enquanto as vibrações de estiramento assimétrico e simétrico dos grupos carboxilato (COO^-) foram observadas em 1611

cm^{-1} e 1351 cm^{-1} , respectivamente (Cutrim *et al.*, 2021). Além disso, a banda em 1025 cm^{-1} pode estar relacionada ao estiramento da ligação C-O. A estrutura aromática dos CQDs foi indicada pela banda em 1637 cm^{-1} , associada à vibração C=C, e pela banda em 613 cm^{-1} , correspondente às ligações de carbono aromático com hidrogênio. Por fim, as bandas em 3234 cm^{-1} e 1351 cm^{-1} foram atribuídas às vibrações de estiramento de grupos nitrogenados, N-H, originário do grupo amina (NH_2), e C-N, assim indicando o sucesso da dopagem dos CQD com nitrogênio no momento da síntese (Cutrim *et al.*, 2021; Sheikh *et al.*, 2023).

Figura 6 - Espectro de FTIR dos materiais HDL-Mg/Al, CQD e HDL-CQD.



Fonte: Própria Autora (2025).

Com a incorporação dos CQDs, os espectros do HDL-CQD mantiveram as bandas

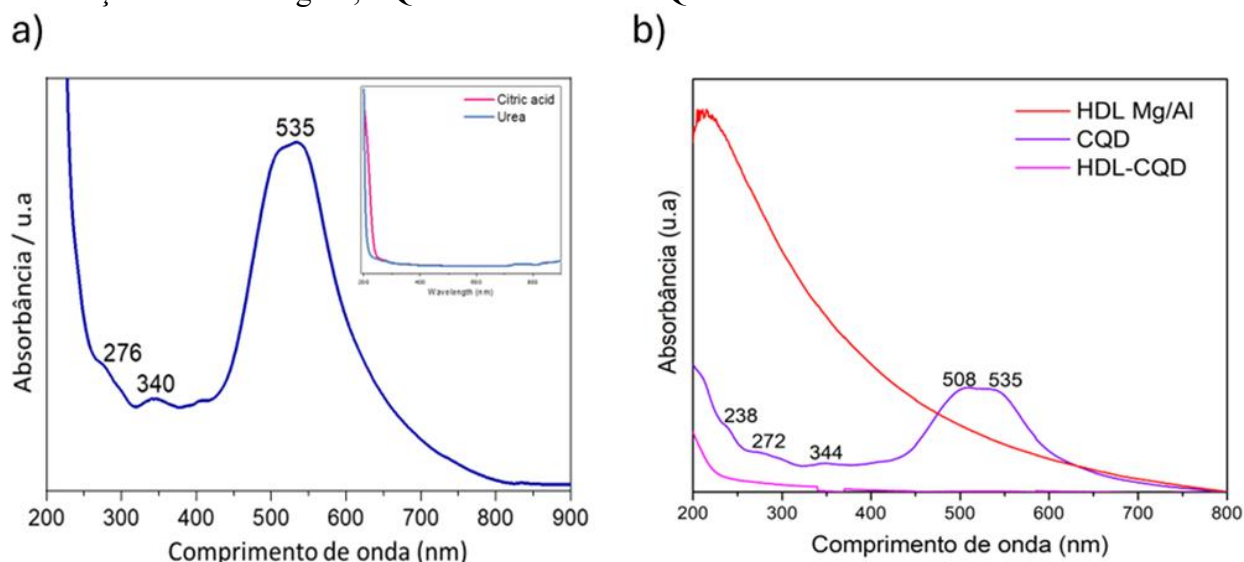
características do HDL puro, indicando a preservação da estrutura do material de base. Ainda que não seja muito perceptível a inclusão de grupos relacionados ao CQD, provavelmente pela quantidade adicionada ao sistema, nota-se um leve deslocamento da banda correspondente ao grupo O-H para menores números de onda, sugerindo a formação de interações intermoleculares entre os grupos hidroxila do HDL e os grupos funcionais presentes nos CQD. Também, verificou-se o surgimento de bandas sutis na região entre 1600 e 1700 cm^{-1} , que podem ser atribuídas ao estiramento C=O das carbonilas presentes na estrutura dos CQDs, reforçando a hipótese de que interações entre os dois materiais ocorreram. Portanto, a análise dos espectros de FTIR demonstra que a modificação da matriz lamelar com o CQD ocorreu sem comprometer sua estrutura fundamental, mas promoveu alterações na organização das ligações intermoleculares, o que pode influenciar suas propriedades superficiais e sua capacidade de interação.

5.3 Espectrometria na região do UV-Vísivel

A espectrometria UV-Vis foi utilizada para investigar as propriedades ópticas dos materiais obtidos, permitindo identificar as principais transições eletrônicas envolvidas e confirmar a formação dos pontos quânticos de carbono (Figura 7).

A Figura 7a apresenta os espectros de absorção para o ácido cítrico e a ureia. Inicialmente, os espectros de absorção dos precursores não apresentaram qualquer banda significativa na faixa analisada, indicando que esses compostos isoladamente não possuem estruturas eletrônicas conjugadas capazes de absorver radiação no UV-Vis. No entanto, após o processo de carbonização e síntese hidrotérmica, observa-se que o CQD apresenta um espectro com múltiplas bandas de absorção, caracterizando sua nova estrutura eletrônica. Na Figura 7b, nota-se que o CQD puro obtido exibiu ombros de absorção em 238 nm, podendo ser referente à transição $\pi\text{-}\pi^*$, também 272 nm, atribuído à transição $\pi\text{-}\pi^*$ das ligações C=C nos domínios aromáticos do núcleo do CQD. Além disso, foram observadas bandas bem definidas em 344 nm e 535 nm, que correspondem às transições $n\text{-}\pi^*$ envolvendo ligações C=O e C=N, presentes nos grupos funcionais oxigenados e nitrogenados da superfície dos CQDs.

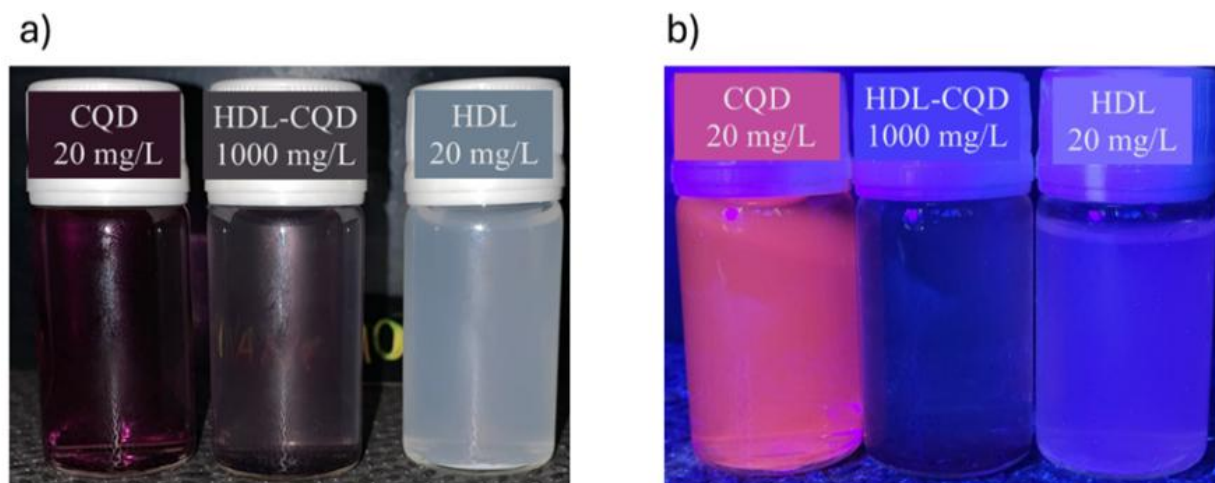
Figura 7 - (a) Espectro de absorção UV-Vis do CQD preparado por via solvotermal. O *insert* se refere aos espectros UV-Vis dos materiais de partida empregados na síntese do CQD e (b) espectros de absorção do HDL-Mg/Al, CQD e híbrido HDL-CQD.



Fonte: (a) Cutrim *et al.* (2021) e (b) Própria Autora (2025).

A banda mais larga entre 400 e 600 nm é comumente associada à presença de múltiplos estados de superfície, originados da elevada densidade de grupos funcionais, como hidroxilas, aminas e carbonilas, que conferem aos CQDs suas propriedades ópticas únicas, como a luminescência na região do vermelho, conforme mostra a Figura 8 (Cutrim *et al.*, 2021; Chen *et al.*, 2024; Campalani *et al.*, 2023). Em contrapartida, o espectro do HDL puro não apresentou bandas de absorção relevantes na faixa do UV-Vis. Esse comportamento é característico de materiais com natureza dielétrica. Os hidróxidos duplos lamelares, como o HDL-Mg/Al utilizado neste trabalho, possuem elevado valor de *band gap* e não apresentam transições eletrônicas significativas nessa faixa (Kaur *et al.*, 2023). Isso se deve, em parte, à presença do íon Al^{3+} , que não contribui com transições ópticas diretas em razão de sua configuração eletrônica, e à estrutura lamelar do HDL, cuja fraca interação entre as camadas dificulta a mobilidade eletrônica e reduz a eficiência da absorção de radiação. Estudos indicam que os HDLs exibem baixa condutividade elétrica e eletrônica, pois os elétrons eletrogerados tendem a se mover no plano das camadas, mas encontram barreiras significativas para saltar entre elas justificado pela fraca ligação interlamelar (Al-Jumaili, 2023; Khoshkholgh *et al.*, 2024).

Figura 8 - Materiais sintetizados (a) sem e (b) com a incidência da luz UV e suas concentrações.



Fonte: Própria Autora (2025).

O espectro de absorção do nanomaterial híbrido HDL-CQD revelou um perfil semelhante ao da matriz lamelar, sem a existência das bandas características atribuídas aos pontos quânticos de carbono. Esse comportamento pode ser atribuído a um possível efeito de diluição dos CQDs na estrutura híbrida, considerando a baixa proporção em massa desses nanocarbons em relação ao material como um todo, tal como discutido anteriormente nos resultados de DRX (Figura 5). Assim, embora a presença dos CQDs esteja confirmada por outras técnicas, sua contribuição ótica no espectro UV-Vis pode ter sido mascarada pela predominância do HDL, dificultando a detecção direta das bandas típicas dos CQDs.

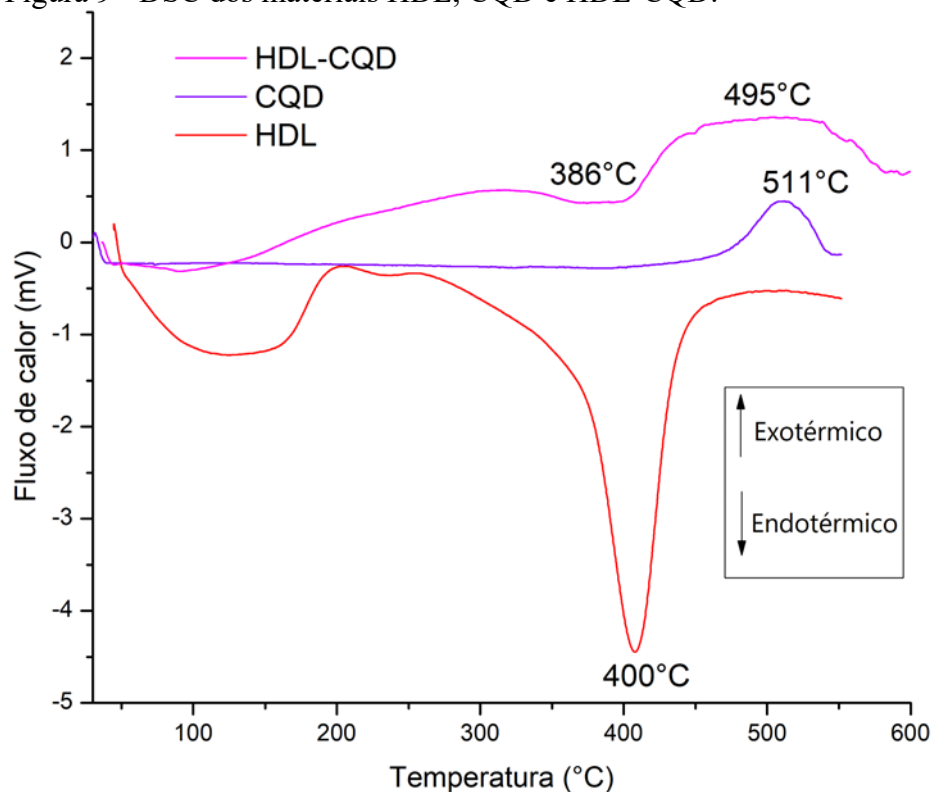
5.4 Calorimetria Diferencial de Varredura

A análise térmica por DSC permitiu avaliar o comportamento térmico dos materiais sintetizados. Inicialmente, é possível observar, na Figura 9, evento endotérmico em todos os materiais até 150 °C, que está comumente associado à eliminação de moléculas de água superficiais e intercaladas. Em relação aos sólidos puros, o HDL-Mg/Al apresenta evento endotérmico bem intenso na temperatura de 400 °C, o qual refere-se à liberação de ânions clorato e carbonato situados na região interlamelar.

Em contrapartida, no caso do CQD, nota-se um evento exotérmico, relacionado à decomposição de grupos funcionais contidos na superfície do CQD como, por exemplo, hidroxila, carbonila, carboxilato e amina (Cutrim *et al.*, 2021). A combinação de CQD com o HDL no

material híbrido HDL-CQD, resultou um leve deslocamento das temperaturas de transição térmica, sugerindo interações entre os grupos funcionais do CQD e a matriz inorgânica lamelar, conforme indicado pelas análises de FTIR (Figura 6).

Figura 9 - DSC dos materiais HDL, CQD e HDL-CQD.



Fonte: Própria Autora (2025).

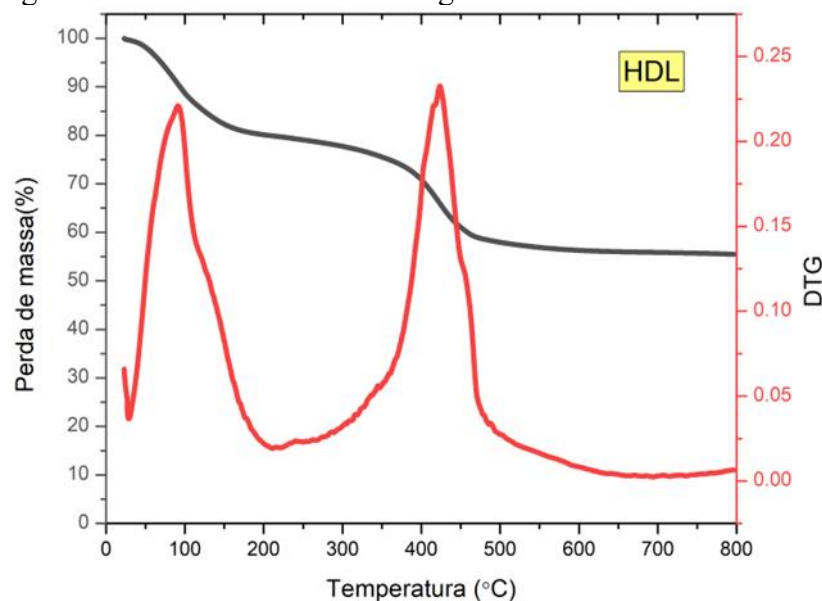
5.5 Análise termogravimétrica e análise térmica diferencial

A estabilidade térmica dos materiais HDL-Mg/Al, CQD e HDL-CQD foi avaliada por meio das técnicas de análise termogravimétrica (TGA) e sua primeira derivada de perda de massa (DTG), realizadas sob atmosfera inerte. As curvas obtidas permitiram identificar as etapas de decomposição associadas à perda de água, desidroxilação das lamelas, degradação de grupos funcionais e formação de óxidos metálicos, contribuindo para a compreensão da estabilidade térmica dos materiais sintetizados.

O HDL-Mg/Al (Figura 10) apresentou duas principais etapas de perda de massa: a primeira, de aproximadamente 21,1%, ocorreu até 200 °C, sendo atribuída à remoção de água adsorvida fisicamente na superfície e de água interlamelar presente na estrutura lamelar. Este

comportamento é amplamente relatado na literatura para hidróxidos duplos lamelares contendo ânions como o cloreto, onde a primeira faixa de decomposição ocorre até aproximadamente 220 °C (Meili *et al.*, 2019). A segunda etapa, entre 300 °C e aproximadamente 500 °C, resultou em uma perda de 23,3%, a qual é associada à desidroxilação estrutural e à degradação dos ânions intercalados (Mujtaba *et al.*, 2023), como carbonatos, como observado pelo FTIR (Figura 6). Esse processo leva à perda da estrutura lamelar típica do HDL e ao colapso da estrutura cristalina com formação de óxidos metálicos, como MgO ou MgAl₂O₄, conforme descrito por outros autores (Mkaddem *et al.*, 2022).

Figura 10 - TGA/DTG do HDL-Mg/Al.

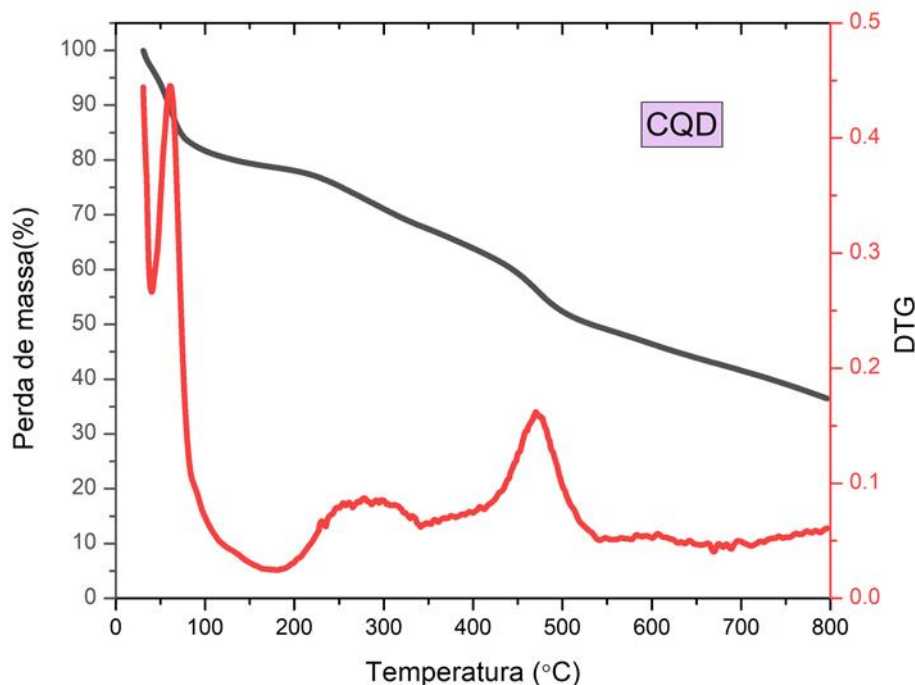


Fonte: Própria Autora (2025).

O perfil térmico do CQD puro evidenciou três etapas de degradação (Figura 11), onde a primeira perda, correspondente a 20,4% em massa, ocorrendo abaixo de 150 °C e está relacionada à evaporação de água e resíduos de solventes fracamente ligados à superfície, como DMF, confirmando a estabilidade térmica inicial dos CQDs até essa faixa (Cutrim *et al.*, 2021). Entre 200 e 400 °C, uma perda de massa de 17,7% está associada à decomposição de grupos funcionais oxigenados e nitrogenados, como carboxilas, aminas e hidroxilas, que são termicamente menos estáveis. A terceira etapa, com perda de 24,1%, foi observada entre 300 e 500 °C e está relacionada à degradação de espécies funcionalizadas fortemente ancoradas na superfície dos CQDs, como amidas e ligações C=O e C–N, corroborando a presença de funcionalização química significativa

na estrutura (Zainal Abidin *et al.*, 2020).

Figura 11 - TGA/DTG do CQD.



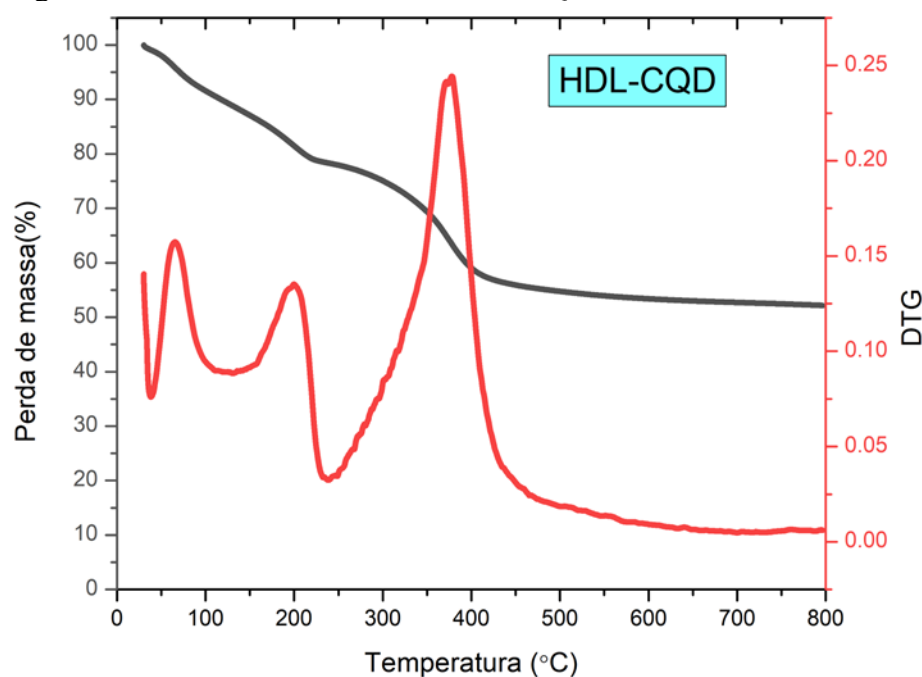
Fonte: Própria Autora (2025).

O material híbrido HDL-CQD (Figura 12), apresentou um perfil de decomposição que reflete a combinação das características térmicas dos seus precursores. A primeira perda de massa, de cerca de 20,4%, observada até cerca de 200 °C, está relacionada à desidratação da estrutura lamelar e à remoção de umidade superficial. A segunda etapa, entre 200 e 500 °C, correspondeu a uma perda de massa de 27,2%, associada simultaneamente à desidroxilação da matriz HDL e à decomposição dos grupos funcionais presentes nos CQDs. A elevação na quantidade de massa perdida nessa segunda etapa, quando comparada ao HDL puro, é atribuída à presença de frações orgânicas termoestáveis provenientes dos CQDs. Esse comportamento também foi observado em compósitos contendo pontos quânticos de carbono nitrogenados, nos quais a introdução dos CQDs resultou em maior estabilidade térmica e resíduos mais elevados após 600 °C, devido à formação de interações mais robustas e termoestáveis (Xiao *et al.*, 2020).

A perda de massa total do HDL-CQD (Figura 12) foi de 47,6%, ligeiramente superior à do HDL puro (44,5%), o que reforça a presença e a contribuição de frações orgânicas no híbrido. Ainda assim, a estabilidade térmica inicial foi mantida, com integridade da estrutura até

aproximadamente 200 °C, o que é desejável para aplicações sob condições moderadas de temperatura. Dessa forma, os resultados obtidos pelas análises térmicas demonstram que a funcionalização do HDL com CQDs preserva a estabilidade térmica da matriz inorgânica até 200 °C, e ao mesmo tempo introduz novas etapas de degradação térmica, coerentes com a presença de grupos orgânicos funcionalizados, ampliando a complexidade do perfil térmico. A estrutura híbrida formada apresenta, portanto, resistência térmica satisfatória e compatível com aplicações tecnológicas em condições ambientais.

Figura 12 - TGA/DTG do híbrido HDL-CQD.



Fonte: Própria Autora (2025).

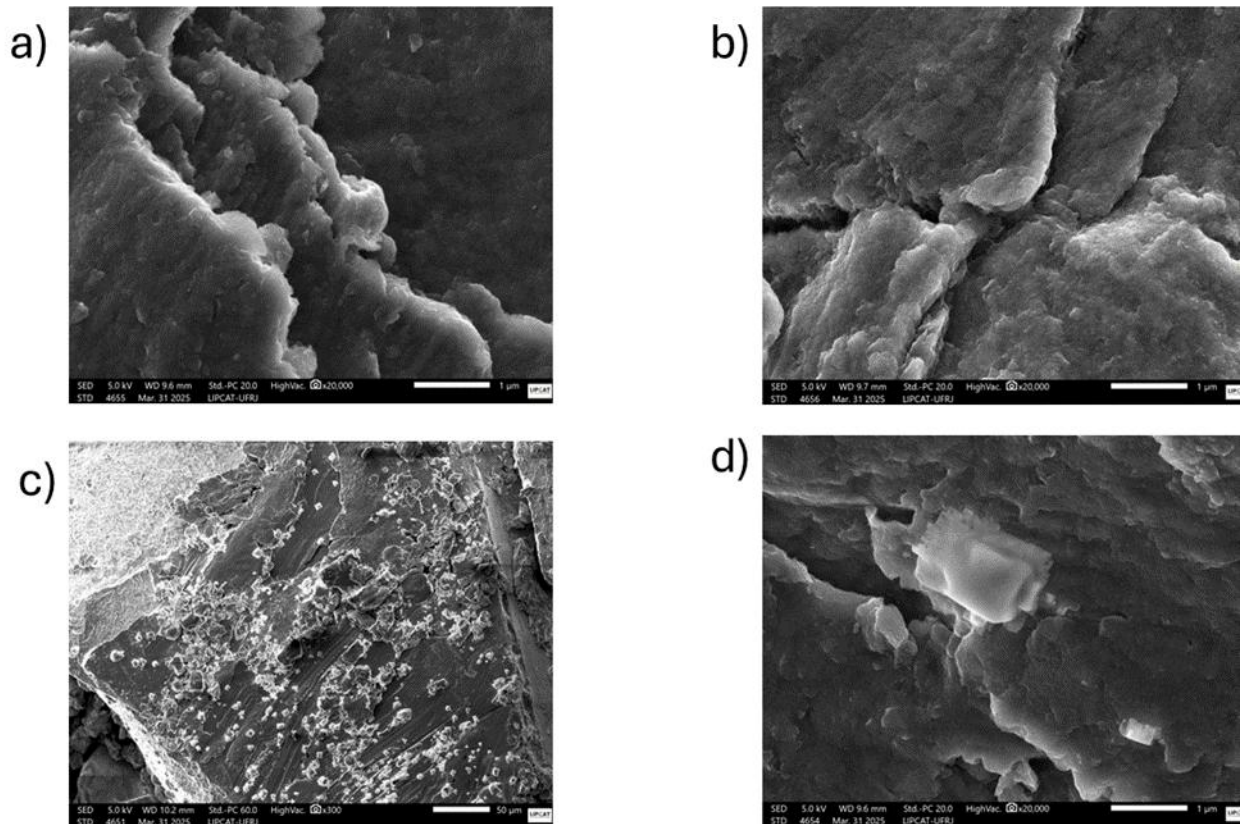
5.6 Análise morfológica e composicional

A técnica de MEV permitiu a análise da textura e organização superficial dos materiais, enquanto a EDS forneceu dados qualitativos e semi-quantitativos dos elementos presentes. Ambas as técnicas são fundamentais para analisar as propriedades texturais dos hidróxidos duplos, e avaliar alterações decorrentes da incorporação de pontos quânticos de carbono no material HDL-CQD.

Nas Figuras 13a e 13b, é possível notar que o HDL-Mg/Al revelou uma morfologia típica de materiais lamelares, com partículas organizadas de forma aglomerada, compatível com

compostos do tipo hidrotalcita, com lamelas empilhadas (Wang *et al.*, 2022). No entanto, as lamelas individuais não foram visualizadas diretamente, o que se deve à resolução limitada da técnica MEV para estruturas dessa ordem de grandeza (Mujtaba *et al.*, 2023). Além disso, foi constatada a presença de cristais de NaCl (Figuras 13c e 13d), possivelmente resultante do excesso de NaOH.

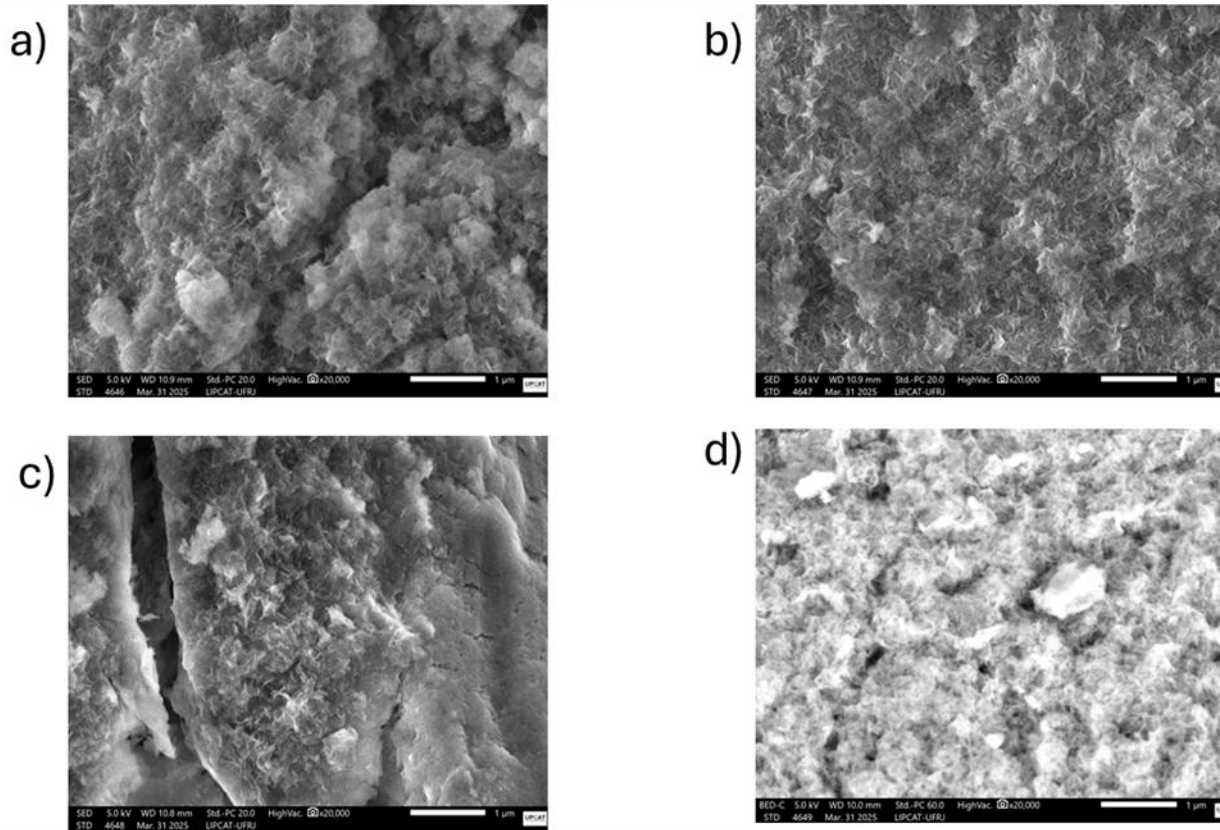
Figura 13 – Micrografia do material HDL puro.



Fonte: Própria Autora (2025).

Por outro lado, o material híbrido mantém a morfologia lamelar (Figura 14), com aglomerados formados por placas empilhadas de forma desordenada, com partículas ligeiramente mais compactas e superfície aparentemente mais homogênea. Essa modificação pode ser atribuída à deposição do CQD na superfície externa das lamelas do HDL, o que tende a modificar a rugosidade superficial. Todavia, os CQDs, por apresentarem tamanho inferior a 10 nm, não puderam ser visualizados diretamente por MEV.

Figura 14 - Micrografia do material HDL-CQD.



Fonte: Própria Autora (2025).

A análise semi-quantitativa de EDS do HDL-Mg/Al (Tabela 1) apresenta razão Mg/Al de aproximadamente 1,92:1, próxima ao valor teórico de 2:1 utilizado na síntese. Esses dados confirmam a incorporação adequada dos cátions metálicos na rede lamelar. Ademais, revelou a presença dos elementos, como O, Na, Cl e C (Figura 15). A presença significativa de Na e Cl pode estar associada à retenção de íons provenientes dos sais utilizados no processo de co-precipitação juntamente com NaOH ou ainda à neutralização do meio reacional.

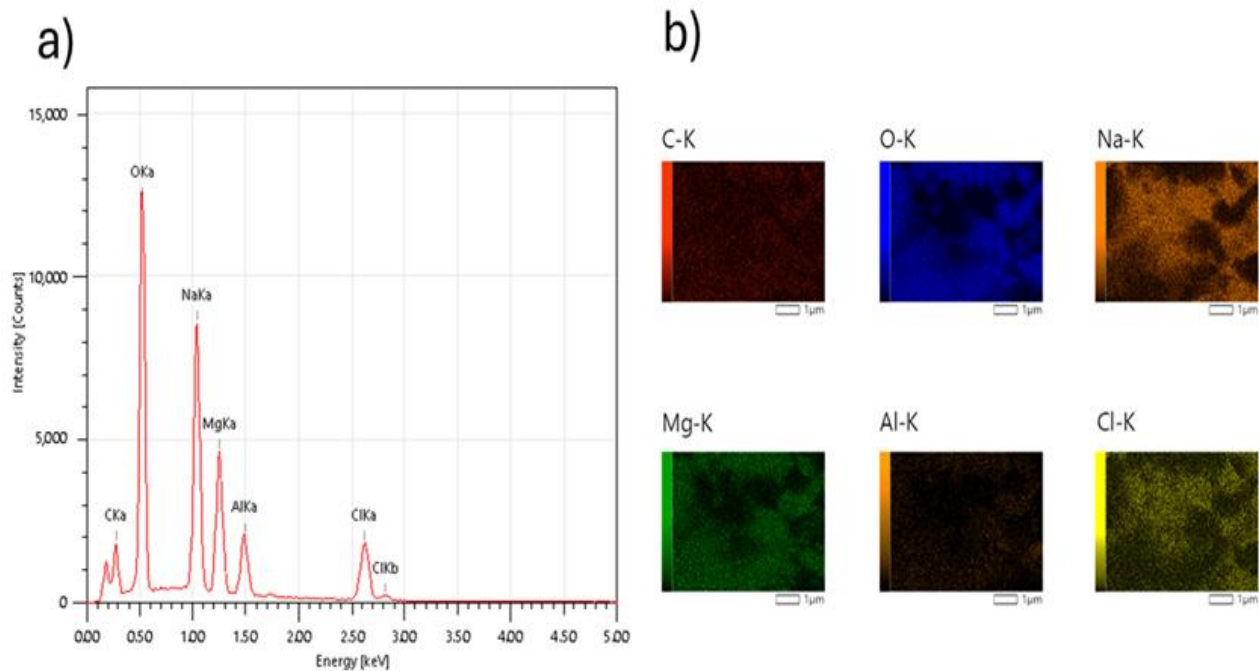
Tabela 1 - EDS do material HDL-Mg/Al.

Elemento	Linha	Massa (%)	Teor Atômico (%)
C	K	$3,94 \pm 0,02$	$4,66 \pm 0,03$
O	K	$29,15 \pm 0,10$	$62,87 \pm 0,15$
Na	K	$19,45 \pm 0,10$	$21,24 \pm 0,10$
Mg	K	$12,31 \pm 0,09$	$11,13 \pm 0,08$
Al	K	$6,40 \pm 0,07$	$5,22 \pm 0,06$

Cl	K	28,74 ± 0,26	17,82 ± 0,16
Total		100	100

Fonte: Própria Autora (2025).

Figura 15 - (a) Espectro EDS e (b) imagens de mapeamento de elementos correspondentes ao HDL-Mg/Al.



Fonte: Própria Autora (2025).

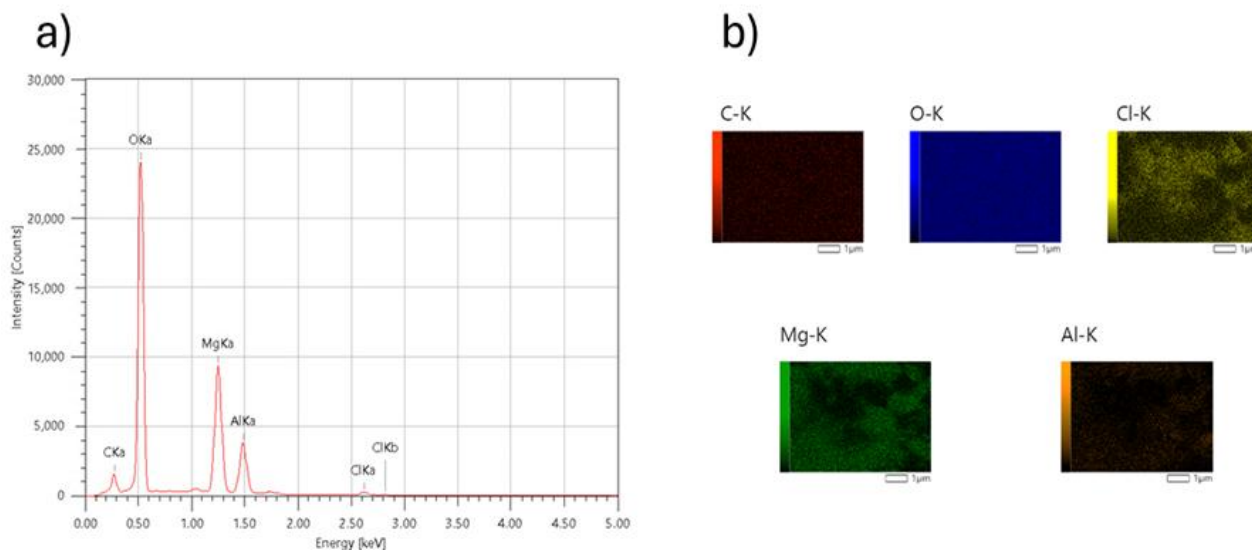
Já o material híbrido HDL-CQD apresentou uma composição elementar um pouco distinta (Tabela 2). A razão Mg/Al foi em torno de 2,01:1, indicando o sucesso de formação do HDL na presença dos CQDs. Adicionalmente, foram identificados apenas os elementos O, Cl e C (Figura 16). A ausência de sódio no espectro do HDL-CQD sugere que os processos de lavagem e purificação foram mais eficazes após a funcionalização com os CQDs. Por outro lado, a redução acentuada do teor de cloro no HDL-CQD, associada ao aumento expressivo do teor de oxigênio, gera a hipótese de possível substituição parcial dos ânions interlamelares por grupos oxigenados dos CQDs, como hidroxilas, carboxilas e carbonilas. Essa alteração também está de acordo com os dados da literatura, que descrevem os CQDs como ricos em grupos funcionais oxigenados, capazes de interagir com superfícies carregadas positivamente, como as lamelas do HDL (Li *et al.*, 2023; Al Farsi *et al.*, 2022).

Tabela 2 - EDS do material híbrido HDL-CQD.

Elemento	Linha	Massa (%)	Teor Atômico (%)
C	K	$2,95 \pm 0,02$	$4,66 \pm 0,03$
O	K	$53,05 \pm 0,13$	$62,87 \pm 0,15$
Mg	K	$27,24 \pm 0,13$	$21,24 \pm 0,10$
Al	K	$13,54 \pm 0,11$	$9,52 \pm 0,08$
Cl	K	$3,21 \pm 0,10$	$1,72 \pm 0,05$
Total		100	100

Fonte: Própria Autora (2025).

Figura 16 - (a) Espectro EDS e (b) imagens de mapeamento de elementos correspondentes ao híbrido HDL-CQD.



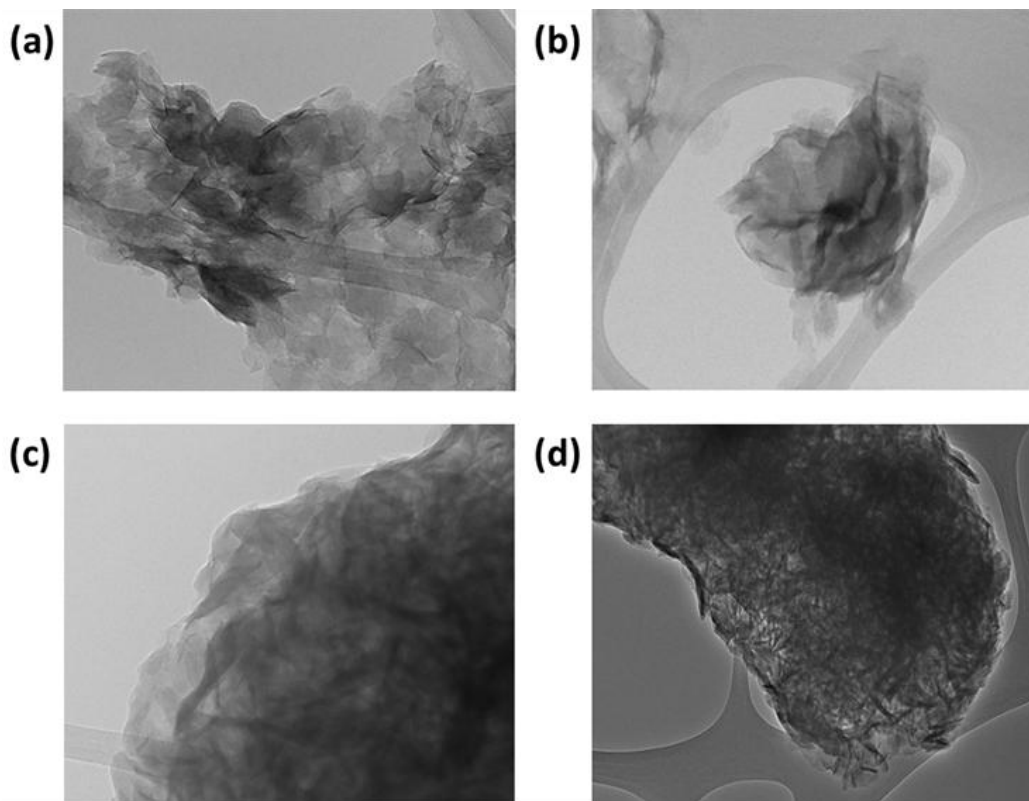
Fonte: Própria Autora (2025).

Portanto, os dados obtidos por MEV-EDS confirmam a formação do composto híbrido HDL-CQD, mantendo a morfologia e a proporção entre os cátions metálicos da estrutura lamelar, ao mesmo tempo em que mudanças na composição elementar que comprovam a funcionalização com os CQDs.

As imagens de TEM provê informações adicionais sobre a organização estrutural dos nanomateriais sintetizados. Observa-se que, pelas Figuras 17a e 17b, o HDL não modificado aponta a presença de lâminas finas lamelares parcialmente sobrepostas, típicas de materiais semelhantes à brucita (Remesh *et al.*, 2023). Por outro lado, as imagens do material híbrido HDL-CQD (Figuras 17c e 17d) revelaram planos bem definidos associados à disposição em camadas pertencentes à

estrutura do HDL, enquanto a presença de nanocarbono pode ser sugerida por regiões menos organizadas, que contrastam com a ordenação lamelar clássica, promovendo a aproximação entre as camadas lamelares, sem o comprometimento estrutural. De modo abrangente, esses materiais parecem exibir aglomeração reduzida em larga escala e uma distribuição mais uniforme dos domínios lamelares, esse evento também foi observado por Rahmanian e colaboradores (2018), após a incorporação de CQD em HDL de sistema Zn/Al. Essa alteração morfológica pode ser relacionada à capacidade dos pontos quânticos de carbono de melhorar a dispersão das partículas de HDL durante a coprecipitação, provavelmente modificando as interações de superfície e reduzindo a agregação de partículas. Por esta razão, a funcionalização com CQD na matriz lamelar torna promissor a aplicação deste material híbrido para aplicações avançadas, como a adsorção.

Figura 17 - Imagens obtidas pela técnica de TEM dos materiais HDL Mg/Al (a,b) e HDL-CQD (c,d).



Fonte: Própria Autora (2025).

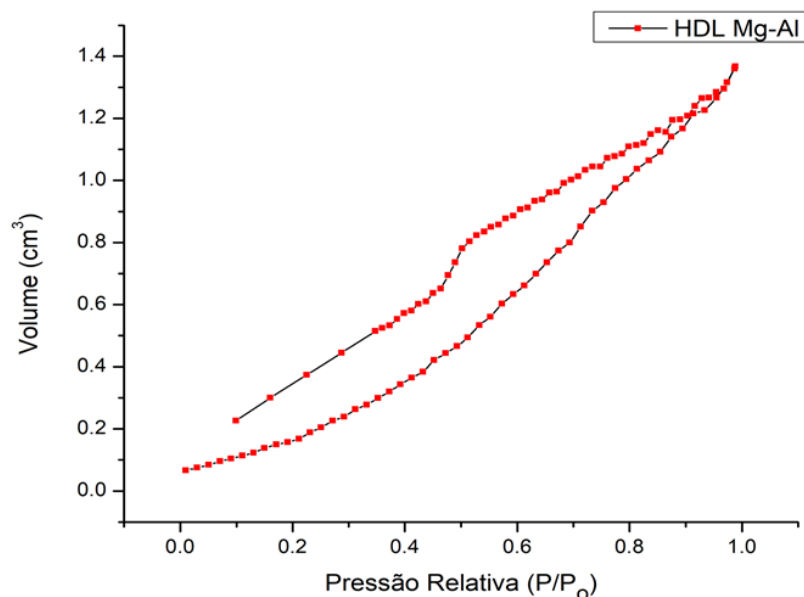
5.7 Análise de adsorção/dessorção de Nitrogênio

A caracterização textural dos materiais foi realizada por meio da fisissorção de

nitrogênio, aplicando o modelo de Brunauer-Emmett-Teller (BET). As isotermas de adsorção e dessorção obtidas para o HDL e para o nanomaterial híbrido HDL-CQD estão apresentadas nas Figuras 18 e 19, respectivamente. De acordo com a classificação IUPAC, tanto o HDL puro quanto o HDL-CQD exibiram isotermas do Tipo IV, que são características de sólidos mesoporosos (Wang *et al.*, 2024). Esses perfis revelam adsorção em multicamadas seguida de condensação capilar dentro dos mesoporos. Em ambos os materiais, foi observada também a presença de histerese do tipo H3, tipicamente associada a poros em forma de fenda ou agregados de partículas semelhantes a placas, o que é esperado para compostos semelhantes à hidrotalcita (Jafari Foruzin *et al.*, 2023).

O material HDL Mg/Al puro (Figura 18) apresentou uma área superficial específica de aproximadamente $3,0 \text{ m}^2/\text{g}$, com diâmetro médio de poros de $6,8 \text{ nm}$, indicando ser um material com baixa porosidade, típica de hidrotalcitas não modificadas (Mkaddem *et al.*, 2022). Esses resultados são compatíveis com a literatura, na qual hidrotalcitas MgAl-LDH puras apresentam áreas superficiais variando entre $4,5$ e $5,7 \text{ m}^2/\text{g}$, com diâmetros médios de poros entre $8,56 \text{ nm}$ e $10,5 \text{ nm}$ (Mujtaba *et al.*, 2023; Mkaddem *et al.*, 2022). A isoterma obtida para o HDL indica o predomínio de estruturas mesoporosas ou pouco porosas. Observa-se também pelo gráfico que a isoterma desse material permaneceu aberta, o que pode ser atribuído à sua baixa área superficial. Essa abertura, com volume de aproximadamente $1 \text{ cm}^3/\text{g}$, é considerada normal e está associada à própria limitação do equipamento em detectar volumes muito baixos quando o material possui pouca ou nenhuma área acessível.

Figura 18 - Isoterma de adsorção e dessorção do HDL-Mg/Al.



Fonte: Própria Autora (2025).

Em contraste, o material HDL-CQD (Figura 19) exibiu uma área superficial significativamente maior, de 66,9 m²/g, com diâmetro médio de poros de 7 nm, evidenciando um aumento expressivo na área superficial — mais de 23 vezes em relação ao HDL puro. Este comportamento está relacionado à incorporação dos pontos de carbono quântico (CQDs), que promovem a introdução de novos sítios ativos na superfície, gerando uma estrutura mesoporosa bem desenvolvida.

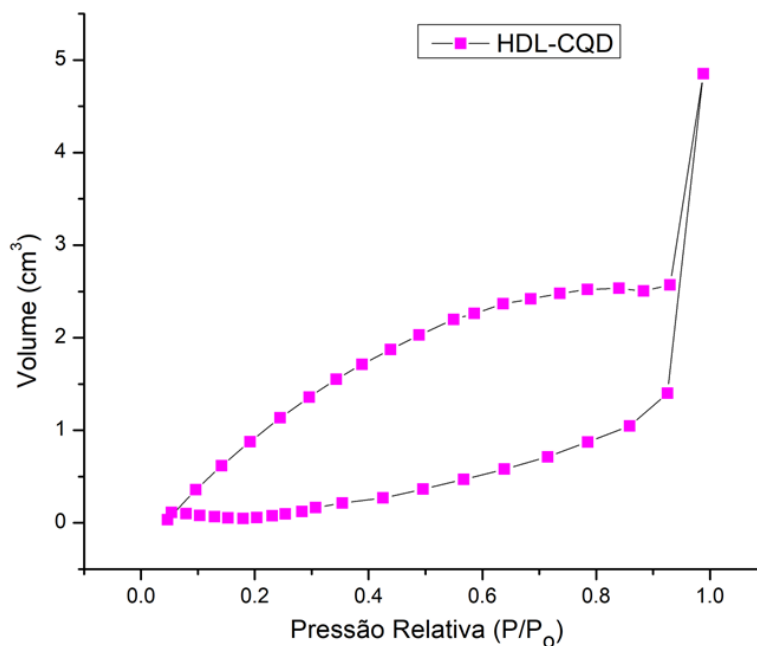
Esses resultados são coerentes com estudos prévios, como o de Mujtaba *et al.*, 2023, em que a modificação de HDL Mg/Al com amido aumentou a área superficial de 5,7 m²/g para 37,1 m²/g, além de elevar o diâmetro médio de poros. Assim como observado na presente pesquisa (Tabela 3), a modificação de hidrotalcitas com estruturas orgânicas ou nanomateriais leva a alterações morfológicas significativas, capazes de impactar diretamente suas propriedades superficiais e aumentar sua eficácia em aplicações como adsorção ou catálise.

Tabela 3 - Área de superfície BET e diâmetro médio dos poros dos materiais obtidos.

Amostra	Área de superfície BET (m ² /g)	Diâmetro médio dos poros (nm)
HDL MgAl	2,89	6,80
HDL – CQD	66,9	7,67

Fonte: Própria Autora (2025).

Figura 19 - Isoterma de adsorção e dessorção do HDL-CQD.



Fonte: Própria Autora (2025).

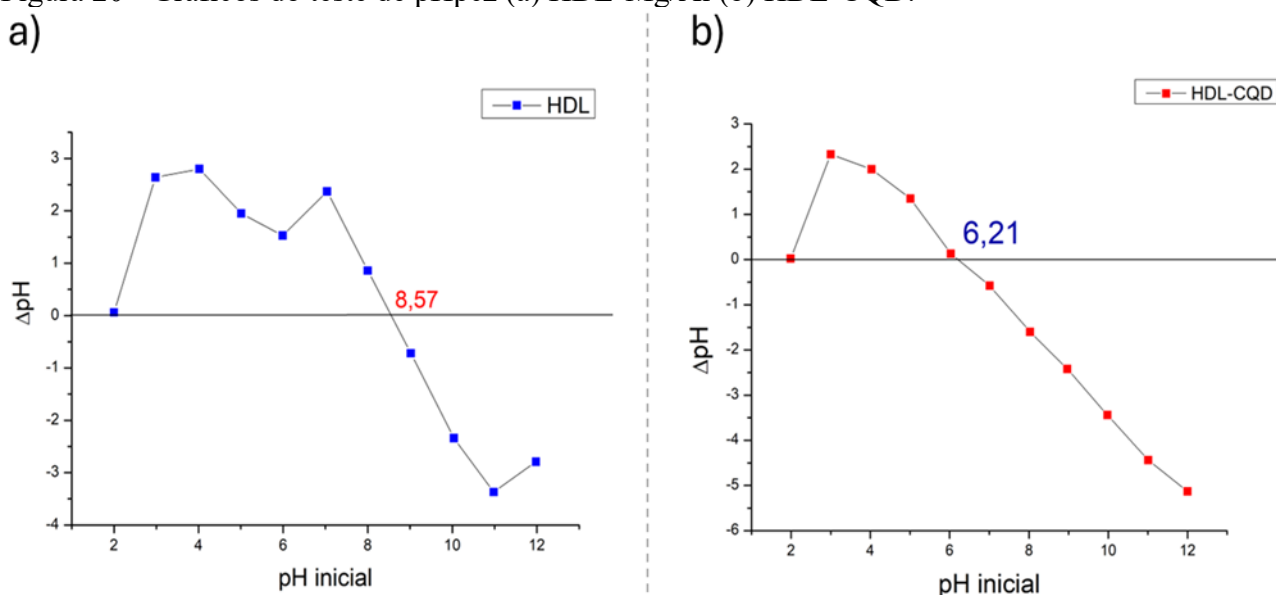
5.8 pH no ponto de carga zero (pHpzc)

O pHpzc é um parâmetro fundamental para compreender o comportamento da carga superficial do material em função do pH, permitindo presumir quais compostos vão possuir maior interação adsortiva. Este teste indica o valor do pH em que o material está eletricamente neutro; quando assume valor menor, a carga superficial torna-se positiva, enquanto acima, torna-se negativa. O gráfico de pHpzc (Figura 20a) revela o ponto isoeletrico do HDL puro correspondendo a 8,57, valor aproximado encontrado por Gondim *et al.*, 2018. Sendo assim, pH com valor abaixo do pHpzc, a superfície do HDL apresenta carga positiva ($M-OH^{2+}$), favorecendo a adsorção de espécies aniônicas. Por outro lado, acima do pHpzc, a superfície torna-se negativa ($M-O^-$), aumentando a afinidade por espécies catiônicas. Além disso, é amplamente conhecido que o pH excessivamente ácido ocasiona a lixiviação de cátions metálicos, como Mg^{2+} e Al^{3+} , comprometendo a estabilidade estrutural do material (Li *et al.*, 2023) (Ribeiro *et al.*, 2014). Em pH elevados, a predominância de cargas negativas na superfície pode ser atribuída à desprotonação dos grupos hidroxila e das espécies carbonatadas localizadas no espaço interlamelar, aumentando a basicidade de Lewis do HDL (Gondim *et al.*, 2018).

A determinação do pHpzc para o HDL-CQD (Figura 20b) correspondeu a 6,21, indicando que a adição dos CQDs altera a carga superficial do HDL. Essa diferença pode ser

atribuída à presença dos pontos quânticos de carbono na superfície do HDL com a inclusão de grupos funcionais, como carboxilas e hidroxilas, resultando em uma maior tendência à protonação em meio ácido. Com a redução do pH_{pzc}, o material HDL-CQD passa a exibir carga negativa em valores de pH mais baixos do que o HDL puro, o que pode influenciar diretamente o comportamento adsorptivo. Portanto, a redução do valor de pH_{pzc} após a incorporação dos CQDs não apenas influencia a carga superficial do HDL, mas também amplia seu potencial de aplicação em processos de adsorção.

Figura 20 - Gráficos do teste de pH_{pzc} (a) HDL-Mg/Al (b) HDL-CQD.



Fonte: Própria Autora (2025).

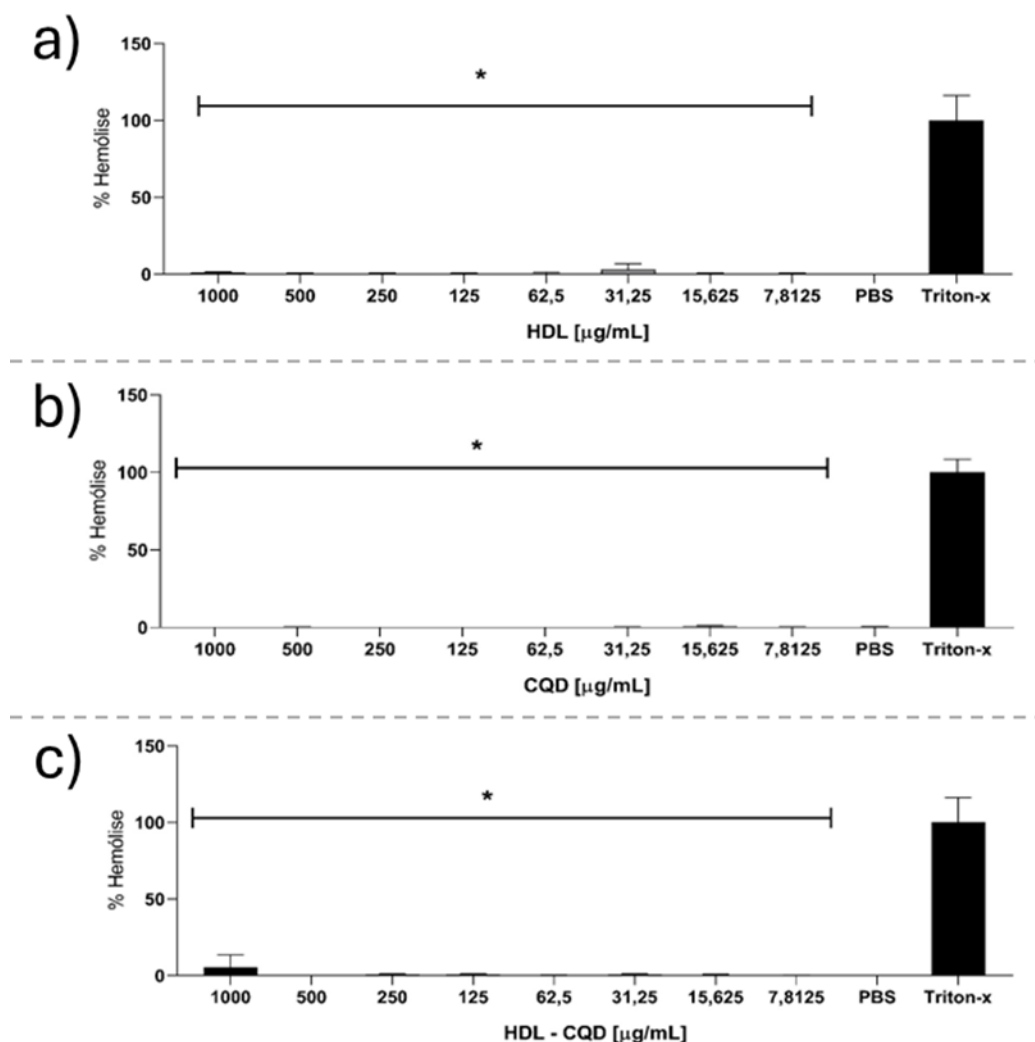
5.9 Ensaios de hemólise com eritrócitos de carneiro

A exposição de nanomateriais ao sangue pode ocasionar hemólise, que consiste na liberação de hemoglobina proveniente da lesão de hemácias. Como consequência da desintegração dos eritrócitos, é possível a manifestação de diversas condições patológicas, como anemia e comprometimento da função renal. Então, a avaliação hemolítica é reconhecida como um parâmetro indicador de toxicidade geral e bioatividade para garantir a segurança da utilização em sistemas biológicos. Por esta razão, o efeito tóxico dos materiais obtidos foi investigado em eritrócitos de carneiro em ensaio *in vitro* (Fedel, 2020).

Considerando a norma ASTM F756-00, que classifica a hemólise um índice igual ou superior a 5%, percebe-se inicialmente a hemocompatibilidade dos materiais puros (Figuras 21a e

21b) por apresentarem a taxa de hemólise muito próxima de zero, conforme reportada na literatura. O perfil é bem parecido no híbrido, conforme figura 21c, sendo um pouco mais expressiva na maior concentração testada (1000 $\mu\text{g/mL}$), mas permanecendo uma baixa atividade hemolítica. Sendo assim, os materiais sintetizados demonstram segurança na aplicabilidade que contemplam sistemas biológicos (Jung *et al.*, 2020; Fedel, 2020).

Figura 21 - Taxa de hemólise dos nanomateriais obtidos (a) HDL-Mg/Al; (b) CQD; (c) HDL-CQD.



Fonte: Própria Autora (2025).

5.10 Avaliação adsorptiva do sistema HDL-Mg/Al e híbrido HDL-CQD

5.10.1 Efeito do tempo de contato e de concentração

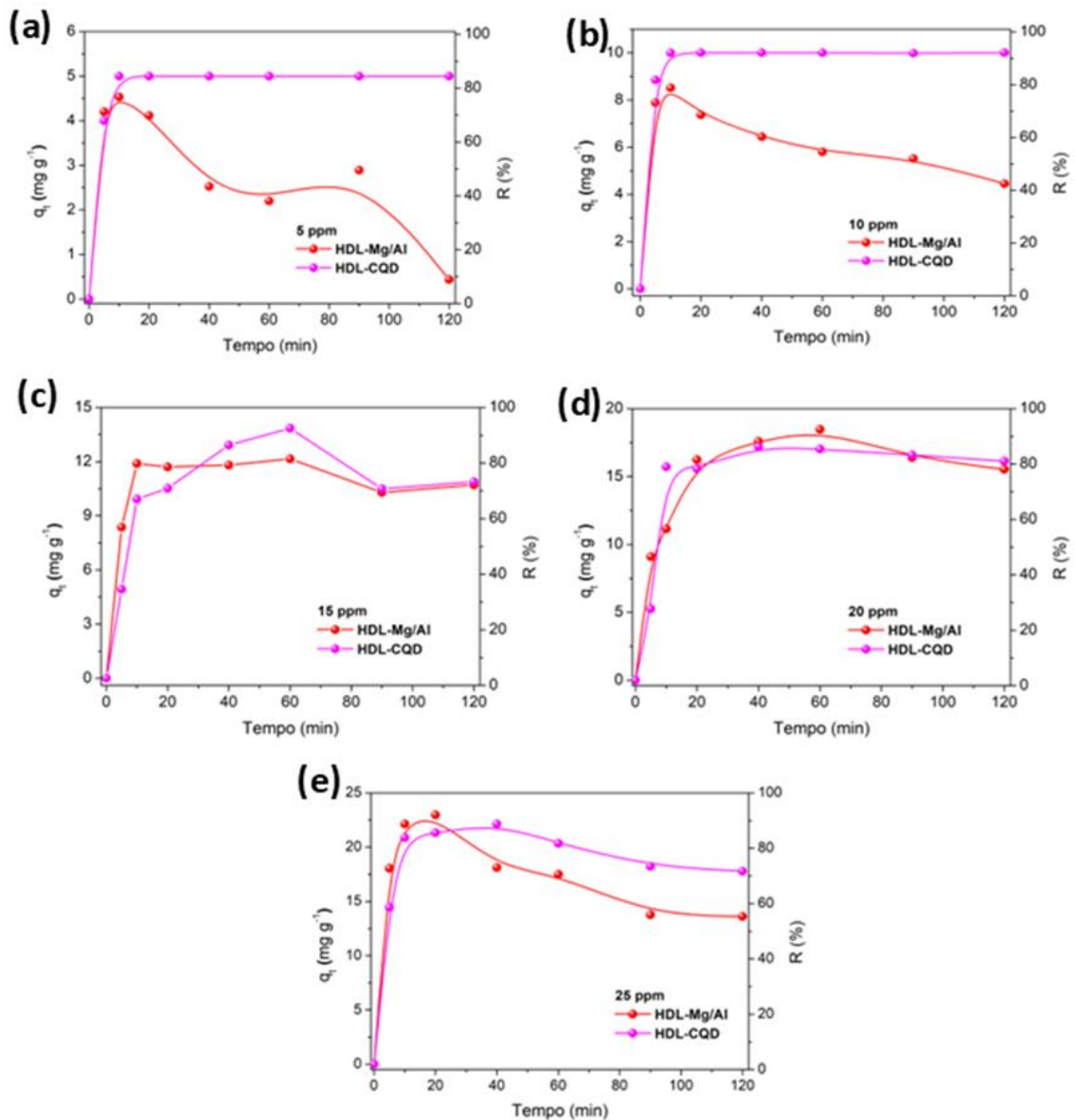
O tempo de contato e a concentração inicial do adsorbato são parâmetros importantes que influenciam o desempenho da adsorção. Os resultados obtidos são apresentados na Figura 22, comparando as capacidades de adsorção do HDL Mg/Al puro e do material híbrido HDL-CQD, considerando a concentração inicial de IBU (5, 10, 15, 20 e 25 ppm), sob um tempo de contato de 120 minutos. Para o material híbrido, em baixas concentrações (5 e 10 ppm), a quantidade de ibuprofeno adsorvida aumentou progressivamente com a concentração inicial, variando de 5 mg.g⁻¹ para 5 ppm e 10 mg.g⁻¹ em 10 ppm, sendo assim ambos exibiram a taxa de remoção completa ($R(\%) = 100\%$).

Em contraste, o HDL puro exibe um desempenho de adsorção mais baixo, com valores aumentando de apenas 0,44 mg.g⁻¹ ($R(\%) = 8,8\%$) para 4,45 mg.g⁻¹ ($R(\%) = 44,53\%$) na mesma faixa de concentração e tempo. Portanto, o material híbrido apresentou alta capacidade de adsorção em baixas concentrações de 5 e 10 ppm, indicando assim que o material possui alta eficiência de adsorção do contaminante em concentrações reais. Esses resultados destacam que a capacidade adsorptiva do híbrido HDL-CQD supera o HDL não modificado, particularmente em concentrações mais baixas, onde o material puro demonstra absorção limitada.

Em concentrações mais altas (15 e 25 ppm), a concentração de fármaco adsorvida no HDL-CQD permaneceu maior que seu respectivo puro, variando de 10,88 mg.g⁻¹ ($R(\%) = 72,53\%$) em 15 ppm para 17,78 mg.g⁻¹ ($R(\%) = 71,12\%$) em 25 ppm, enquanto o HDL puro oscilou de 10,71 mg.g⁻¹ ($R(\%) = 71,41\%$) para 13,62 mg.g⁻¹ ($R(\%) = 54,47\%$), respectivamente. Logo, pode-se observar que aos 120 min, no geral, o material híbrido demonstrou desempenho de adsorção superior em comparação com o HDL Mg/Al não modificado, uma vez que o HDL puro não mantém a capacidade de adsorção por longos períodos. Notavelmente, o HDL Mg/Al exibiu um perfil de dessorção após aproximadamente 20 minutos, sugerindo instabilidade durante o processo de adsorção. Enquanto isso, o híbrido HDL-CQD parece mostrar um comportamento de adsorção mais favorável ao longo do tempo, indicando maior estabilidade e interação com o poluente alvo. A tendência observada para a amostra híbrida pode ser atribuída a uma força motriz gerada pelo elevado gradiente de concentração, decorrente do aumento da concentração inicial de adsorbato (Mohamed *et al.*, 2021). Além disso, concentrações mais altas de ibuprofeno em solução

promovem uma maior densidade local de moléculas próximas aos sítios ativos da superfície do material híbrido, aumentando assim a probabilidade de interações moleculares entre as moléculas de ibuprofeno e a superfície de HDL-CQD, levando a uma maior quantidade de fármaco adsorvido (Show *et al.*, 2022).

Figura 22 - Influência do tempo de contato e de concentração (a) 5 ppm; (b) 10 ppm; (c) 15 ppm; (d) 20 ppm e (e) 25 ppm na adsorção de ibuprofeno por HDL Mg/Al e material híbrido HDL-CQD.



Fonte: Própria Autora (2025).

Além disso, pode-se notar que o material híbrido apresenta um elevado desempenho adsorptivo no tempo de 40 min, pois a concentração inicial de ibuprofeno aumenta de 5 ppm para 25 ppm, uma vez que a capacidade de adsorção foi de 5 mg.g⁻¹ (R(%) = 100%) para 22,13 mg.g⁻¹ (R(%) = 88,53%), o que é notavelmente maior do que o HDL Mg/Al puro com uma capacidade de adsorção de 2,52 mg.g⁻¹ (R(%) = 50,50%) a 18,12 mg.g⁻¹ (R(%) = 72,50%). Embora o material não tenha apresentado a remoção total do fármaco na concentração de 25 ppm, ainda é possível notar a alta eficiência do híbrido. Além disso, uma rápida absorção de ibuprofeno pelo híbrido HDL-CQD foi observada nos primeiros 5 minutos, atingindo o equilíbrio de forma gradual, sugerindo a saturação progressiva dos sítios ativos de adsorção. Em contraste, o HDL puro apresentou rápida adsorção nos primeiros 5 minutos e não atingiu o equilíbrio, pois após 20 min, houve redução na eficiência de remoção. Sendo assim, esses dados confirmam que a funcionalização de HDL com CQDs promove maior afinidade entre o adsorvente e o fármaco, provavelmente por interações ácido-base de Lewis, hidrogênio e aumento de área superficial (Santamaría *et al.*, 2020) (Pechnikova *et al.*, 2024).

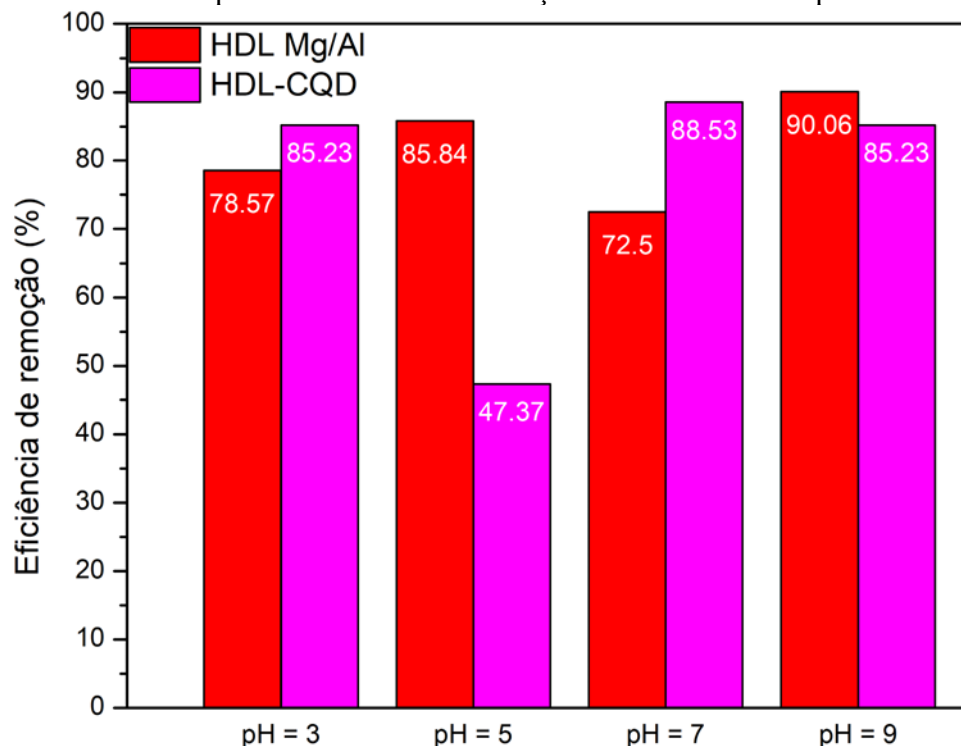
Diante disso, levando em conta a utilização em aplicação real, o tempo de contato de 40 minutos é ideal para alta performance adsorptiva do poluente, pois em tempos mais longos pode causar uma redução na capacidade de adsorção. Além disso, o sistema híbrido mantém um comportamento de adsorção mais regular, enquanto o HDL puro encara a retenção do equilíbrio, o que pode ser atribuído a interações mais fracas ou efeitos de dessorção.

5.10.2 Influência do pH e regeneração do material

A influência do pH na eficiência de adsorção do HDL Mg/Al e do material híbrido HDL-CQD foi investigada em valores de pH de 3, 5, 7 e 9, considerando o tempo de 40 min e concentração de 25 ppm, onde o material híbrido apresentou favorável capacidade de adsorção. Os resultados (Figura 23) revelaram comportamentos distintos, sendo motivado pela carga superficial dos materiais e pela especiação do ibuprofeno. Em pH 3, o híbrido HDL-CQD atingiu a eficiência de remoção ligeiramente maior (85,23%) do que seu respectivo puro (78,57%). Sob esta condição ácida, o fármaco se apresenta em sua forma neutra (-COOH), enquanto a superfície do HDL não modificado (pHpzc = 8,57) é carregada positivamente e a superfície do HDL-CQD (pHpzc = 6,21)

é levemente positiva ou próxima da neutralidade. A remoção superior da amostra híbrida neste pH pode ser atribuída à maior disponibilidade de grupos funcionais de CQD na superfície híbrida (por exemplo, $-\text{OH}$, $-\text{COOH}$, $-\text{NH}_2$), confirmada por dados de FTIR, favorecendo a ligação de hidrogênio e facilitando interações adicionais com o poluente (Siyal *et al.*, 2025; Hinz, 2001).

Figura 23 - Efeito do pH na eficiência de remoção do fármaco HDL puro e HDL-CQD.



Fonte: Própria Autora (2025).

Em pH 5, o HDL puro atingiu sua maior eficiência de remoção (85,84%), enquanto o híbrido HDL-CQD apresentou seu menor desempenho (47,37%). A diminuição significativa na eficiência de remoção do nanomaterial híbrido pode estar associada à proximidade do valor pH_{pzc} do HDL-CQD, no qual a superfície se torna quase eletricamente neutra. Essas condições comprometem a eficiência de adsorção, explicada pela densidade de carga superficial reduzida. Adicionalmente, a coexistência de espécies neutras e aniônicas de ibuprofeno, devido ao seu pK_a , limita as interações eletrostáticas e específicas com a superfície do adsorvente. Em contraste, o HDL Mg/Al nesse pH ainda mantém uma carga superficial positiva, o que favorece a interação eletrostática com a forma parcialmente aniônica do fármaco, explicando seu melhor desempenho.

Em pH = 7, a condição mais próxima dos recursos hídricos, o HDL-CQD superou o

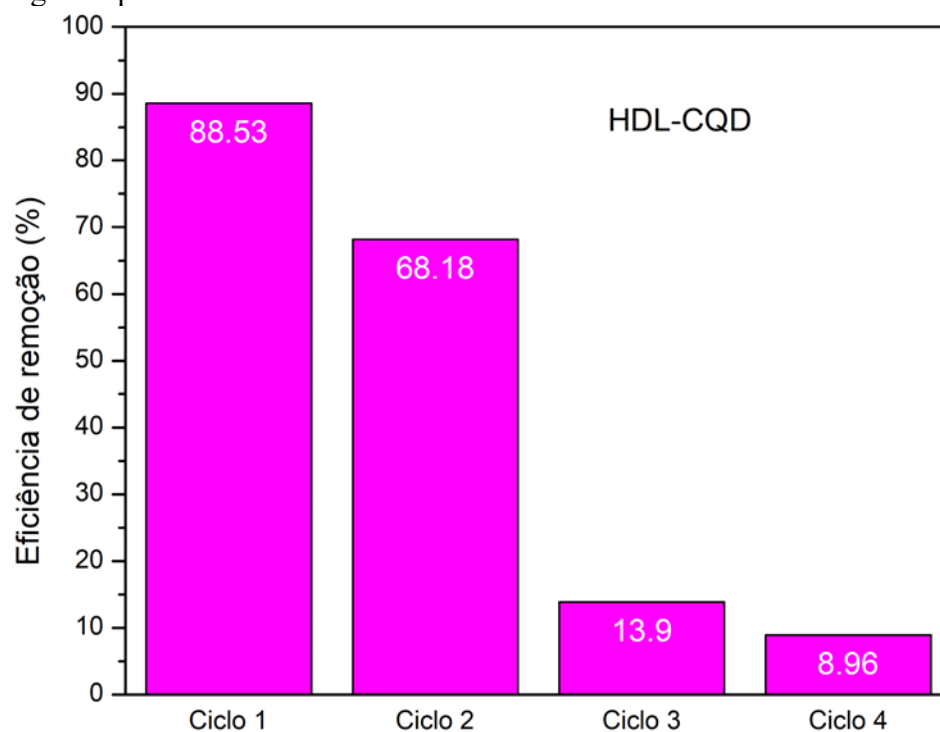
material puro, com eficiências de remoção de 88,53% e 72,5%, respectivamente. Essa melhoria sugere que o material híbrido oferece um equilíbrio mais favorável de carga superficial e disponibilidade de local funcional, permitindo a adsorção efetiva da forma aniônica do anti-inflamatório, provavelmente devido à sua maior área de superfície e à presença de grupos funcionais do CQD. Para HDL Mg/Al, a eficiência de adsorção diminuiu devido a interações eletrostáticas enfraquecidas, à medida que o pH se aproxima de valor de pH_{pzc} .

Em $pH = 9$, o ibuprofeno é totalmente desprotonado ($-COO^-$) e ambos os adsorventes são carregados negativamente, o que resulta em repulsão eletrostática. Por outro lado, a alta adsorção foi sustentada por ambos os materiais, especialmente para o HDL Mg/Al, sugerindo que outros mecanismos, como ligações de hidrogênio e troca de ligantes, contribuem substancialmente para a retenção do poluente em meio alcalino. Para o híbrido, embora o desempenho tenha diminuído ligeiramente, a preservação da capacidade de adsorção sugere que as interações não eletrostáticas continuam a dominar.

De forma geral, ambos os materiais exibiram comportamento adsorptivo dependente da variação de pH, sendo influenciado pelas propriedades de carga superficial e pela especiação do IBU. O desempenho superior do híbrido HDL-CQD, especialmente no meio ácido e neutro, demonstra que, mesmo em condições eletrostaticamente desfavoráveis, a presença de grupos funcionais decorrentes da funcionalização do CQD e as propriedades texturais aprimoradas contribuem para o predomínio de interações não-eletrostáticas, ocasionando a elevada performance adsorptiva (Teo *et al.*, 2022). Notavelmente, o excelente desempenho de remoção observado em $pH = 7$, que se aproxima de sistemas naturais de água, reforça a possível aplicação na remediação ambiental.

A regeneração do adsorvente é essencial para o processo de adsorção em larga escala. O teste de reutilização do material híbrido HDL-CQD foi realizado ao longo de quatro ciclos consecutivos de adsorção-dessorção em condições experimentais favoráveis (25 ppm de IBU, $pH = 7$, tempo de contato em 40 min). Conforme mostrado na Figura 24, a eficiência de remoção no primeiro ciclo foi de 88,53%, seguida por uma diminuição progressiva nos ciclos subsequentes para 68,18%, 13,9% e 8,96%, respectivamente.

Figura 24 - Eficiência de regeneração e reutilização do material híbrido HDL-CQD para adsorção de IBU ao longo de quatro ciclos.



Fonte: Própria Autora (2025).

No entanto, essa redução expressiva no desempenho da adsorção é atribuída principalmente à perda significativa de massa do adsorvente durante as etapas de separação. Dada a natureza nanoestruturada do composto HDL-CQD (tamanho do cristalito 12,1 nm), conforme indicado pela análise de DRX, além de sua alta dispersibilidade, a separação efetiva por centrifugação foi comprometida devido à sedimentação insuficiente, limitando sua regeneração entre os ciclos. Esse comportamento é característico na utilização de nanoadsorventes, geralmente permitem a reutilização em até 4 a 5 ciclos em média e quando a eficiência adsorptiva sofre o decréscimo maior que 10%, é necessário o planejamento para aumentar sua estabilidade e viabilizar sua aplicação comercial (Sigonya *et al.*, 2023; Siyal *et al.*, 2025).

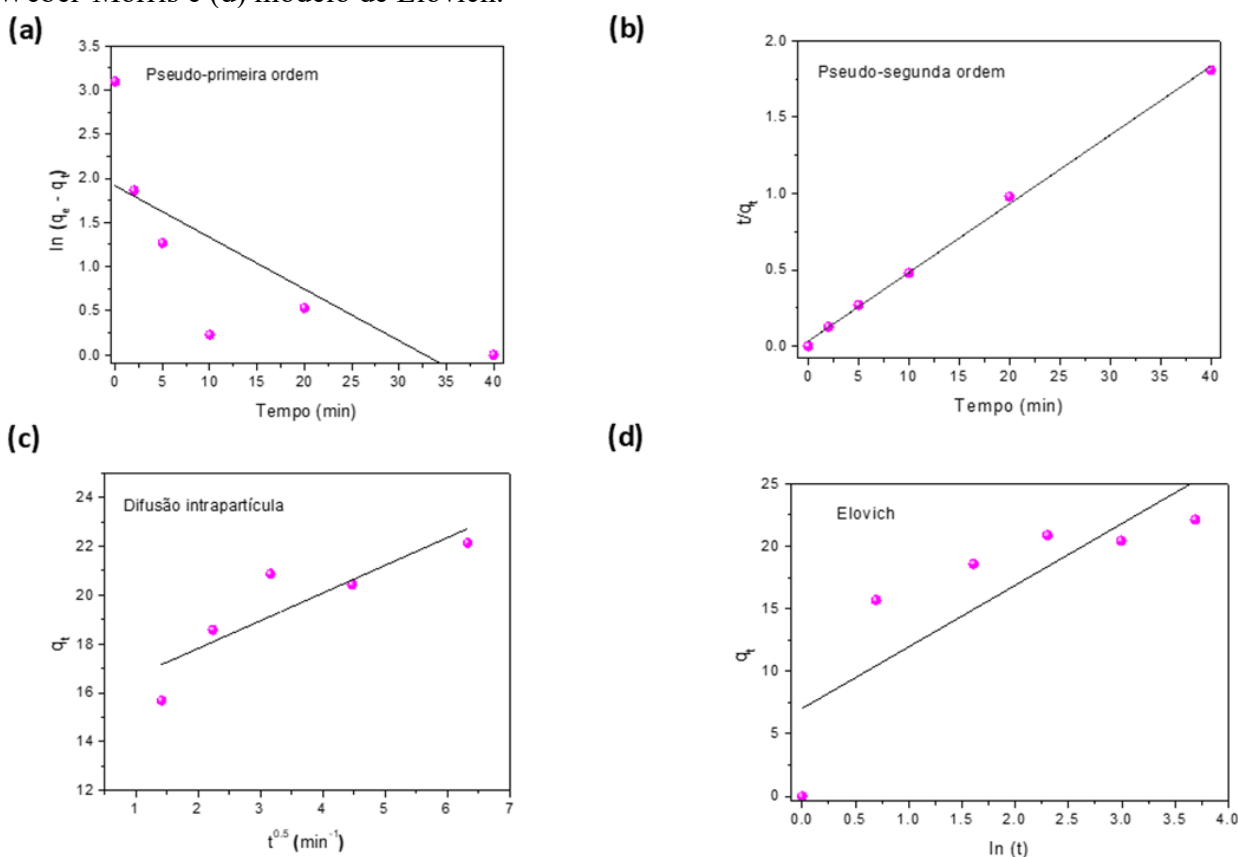
Esses resultados enfatizam que, embora o HDL-CQD exiba desempenho adsorptivo

promissor, sua baixa eficiência de recuperação destaca os desafios associados à regeneração de adsorventes em nanoescala. Nesse contexto, para superar essa limitação, existem estratégias, como a integração em matrizes poliméricas ou géis, para melhorar a reciclabilidade e garantir a aplicabilidade prática de sistemas híbridos em processos de tratamento de água.

5.10.3 Modelos teóricos de cinética

A modelagem cinética é utilizada para avaliar os fenômenos que regem a velocidade e o mecanismo de remoção do adsorbato. Neste estudo, a cinética de adsorção do ibuprofeno sobre o nanocompósito HDL-CQD foi investigada por meio do ajuste dos dados experimentais aos modelos de pseudo-primeira ordem, pseudo-segunda ordem, difusão intrapartícula de Weber-Morris e Elovich (Figura 25). A análise cinética foi baseada no experimento de solução aquosa de ibuprofeno a 25 ppm, em pH 7 e temperatura ambiente.

Figura 25 - A cinética de adsorção de IBU pelo HDL-CQD usando o (a) modelo de pseudo-primeira ordem; (b) modelo de pseudo-segunda ordem; (c) modelo cinético de difusão intrapartícula de Weber-Morris e (d) modelo de Elovich.



Fonte: Própria Autora (2025).

O modelo de pseudo-primeira ordem é frequentemente associado ao processo de fisissorção e interações fracas de van der Waals. De acordo com a Tabela 4, esse ajuste apresentou baixo coeficiente de determinação ($R^2 = 0,4599$) e valor estimado de capacidade de adsorção em equilíbrio ($q_e = 6,7855 \text{ mg}\cdot\text{g}^{-1}$) significativamente inferior ao valor experimental ($q_e = 22,1331 \text{ mg}\cdot\text{g}^{-1}$), demonstrando inadequação para representar a cinética do sistema. Em contrapartida, o modelo de pseudo-segunda ordem apresentou o melhor ajuste aos dados experimentais ($R^2 = 0,9978$), com boa concordância entre o valor calculado ($q_e = 22,2717 \text{ mg}\cdot\text{g}^{-1}$) e o valor experimental. A constante cinética (K_2) obtida ($0,0576 \text{ g}\cdot\text{mg}^{-1}\cdot\text{min}^{-1}$) indica que a ocupação dos sítios ativos acontece de forma rápida no estágio inicial do processo adsorptivo. Embora esse modelo seja geralmente relacionado ao processo de quimissorção, é importante destacar que ele representa essencialmente o comportamento cinético, não sendo capaz de confirmar isoladamente a natureza do mecanismo controlador de adsorção (Hinz, 2001).

Tabela 4 - Parâmetros e coeficientes derivados do ajuste da curva dos modelos cinéticos para a adsorção de fármaco pelo HDL-CQD em pH 7,0 e temperatura ambiente.

Parâmetro / Modelo	Pseudo- primeira ordem	Pseudo- segunda ordem	Difusão intrapartícula	Elovich
q_e experimental ($\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$)		22,1331		
q_e teórico ($\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$)	6,7865	22,2717	-	-
Constante k_1 (min^{-1})	0,585	-	-	-
Constante k_2 ($\text{g}\cdot\text{mg}^{-1}\cdot\text{min}^{-1}$)	-	0,0576	-	-
Coeficiente de determinação R^2	0,4599	0,9978	0,5447	0,6084
K_{dif} ($\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}\cdot\text{Min}^{-0.5}$)	-	-	2,9362	-
C ($\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$)	-	-	7,6683	-
α ($\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}\cdot\text{min}^{-1}$)	-	-	-	20,457
β ($\text{g}\cdot\text{mg}^{-1}$)	-	-	-	0,2029

Fonte: Própria Autora (2025).

Para investigar melhor a contribuição do mecanismo de difusão intrapartícula, foi

aplicado o modelo de Weber–Morris. Os resultados indicam o comportamento cinético em três etapas: (i) difusão externa das moléculas de ibuprofeno até a superfície do adsorvente; (ii) difusão intrapartícula e adsorção gradual nos poros; e (iii) aproximação do estágio de equilíbrio, caracterizada pela saturação dos sítios ativos. O valor do intercepto ($C = 7,6683 \text{ mg}\cdot\text{g}^{-1}$) está relacionado a espessura da camada limite e a constante de difusão encontrada foi $K_{\text{dif}} = 2,9362 \text{ mg}\cdot\text{g}^{-1}\cdot\text{min}^{-0,5}$. O comportamento multilinear sugere que a difusão intrapartícula contribui para o processo, porém não é a única etapa envolvida na taxa de adsorção (Zahoor *et al.*, 2022; Jedynak; Charmas, 2024).

O modelo de Elovich, comumente aplicado para processos de quimissorção em superfícies heterogêneas, não representou adequadamente os dados experimentais, com desvio considerável entre os parâmetros obtidos ($\alpha = 20,457$ e $\beta = 0,2029$) e os valores observados experimentalmente, sugerindo que o processo de adsorção não está de acordo com o modelo de Elovich nesse sistema. Portanto, a modelagem cinética aponta que o modelo de pseudo-segunda ordem descreve melhor o comportamento adsorptivo do ibuprofeno pelo nanocompósito HDL-CQD ($R^2 = 0,9978$). Conforme discutido anteriormente, embora o modelo cinético seja frequentemente relacionado ao processo de quimissorção, o mecanismo de adsorção não pode ser definido diretamente com base no ajuste cinético (Tran *et al.*, 2017). Em consequência disso, possíveis interações físicas não devem ser desprezadas, como ligação de hidrogênio entre os grupos hidroxila da superfície lamelar e o grupo carboxílico presente na estrutura do ibuprofeno, além da possibilidade de interações eletrostáticas entre moléculas de ibuprofeno desprotonadas, carregadas negativamente, e os sítios carregados positivamente localizados nas lamelas do HDL Mg/Al, sugerindo a existência de um mecanismo híbrido.

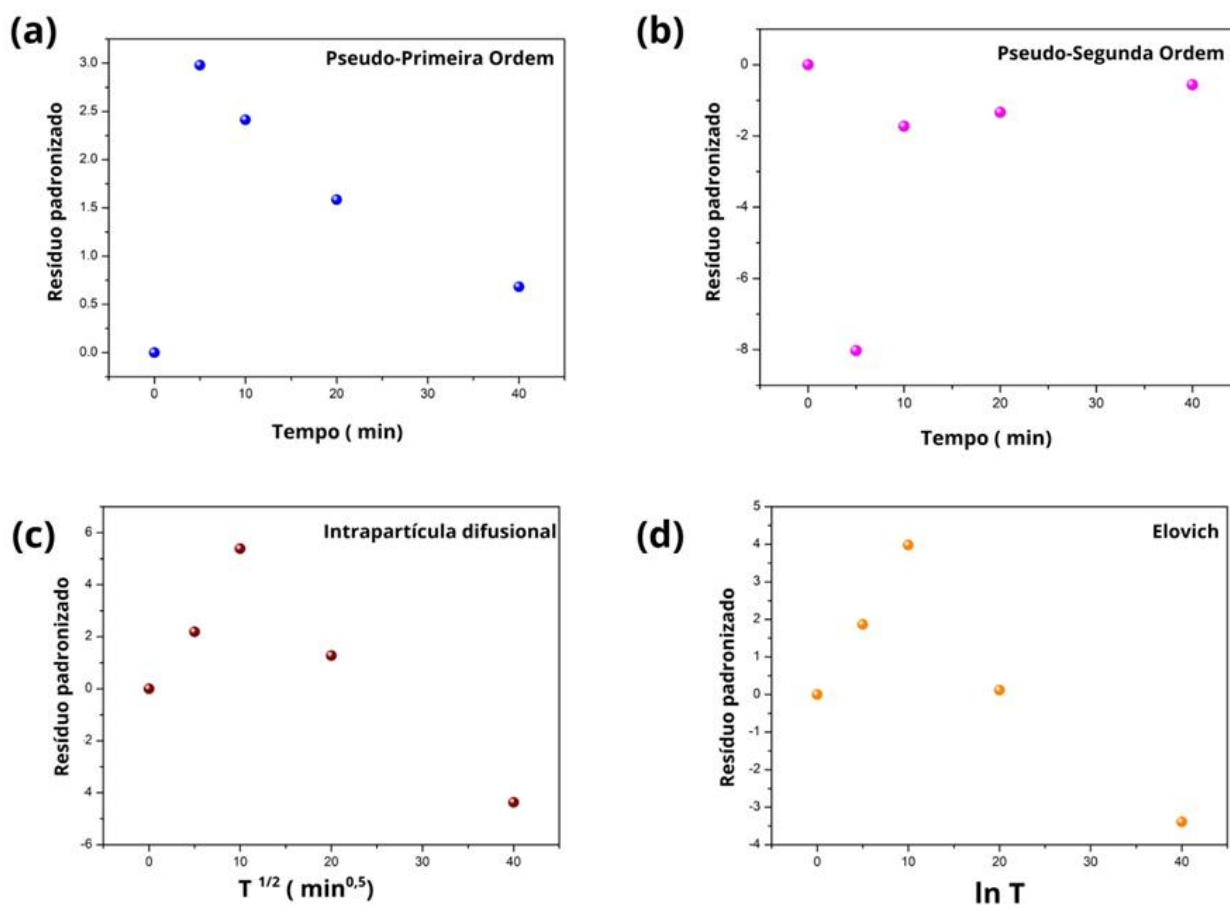
Para validar a confiabilidade dos ajustes, foi realizado um ajuste de erro residual para todos os modelos cinéticos testados anteriormente. Os residuais foram obtidos pela diferença entre a capacidade de adsorção experimental e a teórica para cada tempo analisado. De acordo com Beri *et al.* (2021), a distribuição de erro residual é um critério essencial para garantir a confiabilidade de um modelo cinético, complementando com os valores de R^2 . De modo geral, um modelo com bom ajuste deve apresentar uma análise residual distribuída aleatoriamente em torno de zero.

Os gráficos de erro residual (Figura 26) revelam que o modelo de pseudo-segunda ordem exibiu a distribuição mais aleatória e homogênea em torno de zero, enfatizando sua adequação para descrever o processo de adsorção do fármaco pelo material híbrido. Por outro lado,

os modelos de pseudo-primeira ordem, difusão intrapartícula e Elovich apresentam residuais com maior dispersão, sugerindo menor precisão na descrição do processo. Adicionalmente, o modelo de pseudo-segunda ordem e os demais modelos foram ajustados também em sua forma não linear e a análise de erro residual condiz com os resultados obtidos com os dados linearizados, comprovando a robustez e validade do modelo de pseudo-segunda ordem para este sistema.

Contudo, o mecanismo real de adsorção é possivelmente híbrido, envolvendo contribuições sinérgicas de quimissorção e fisissorção. A efetiva remoção do fármaco, mesmo sob condições eletrostaticamente desfavoráveis, como evidenciado no teste de influência do pH, reforça a existência desses mecanismos complementares, associados à funcionalização superficial do CQD e à melhoria da propriedade textural do material híbrido.

Figura 26 - Diagrama de dispersão residual para os dados gerados a partir do (a) modelo de pseudo-primeira ordem; (b) modelo de pseudo-segunda ordem; (c) modelo cinético de difusão intrapartícula de Weber-Morris e (d) modelo de Elovich.



Fonte: Própria Autora (2025).

5.10.4 Isoterma de adsorção

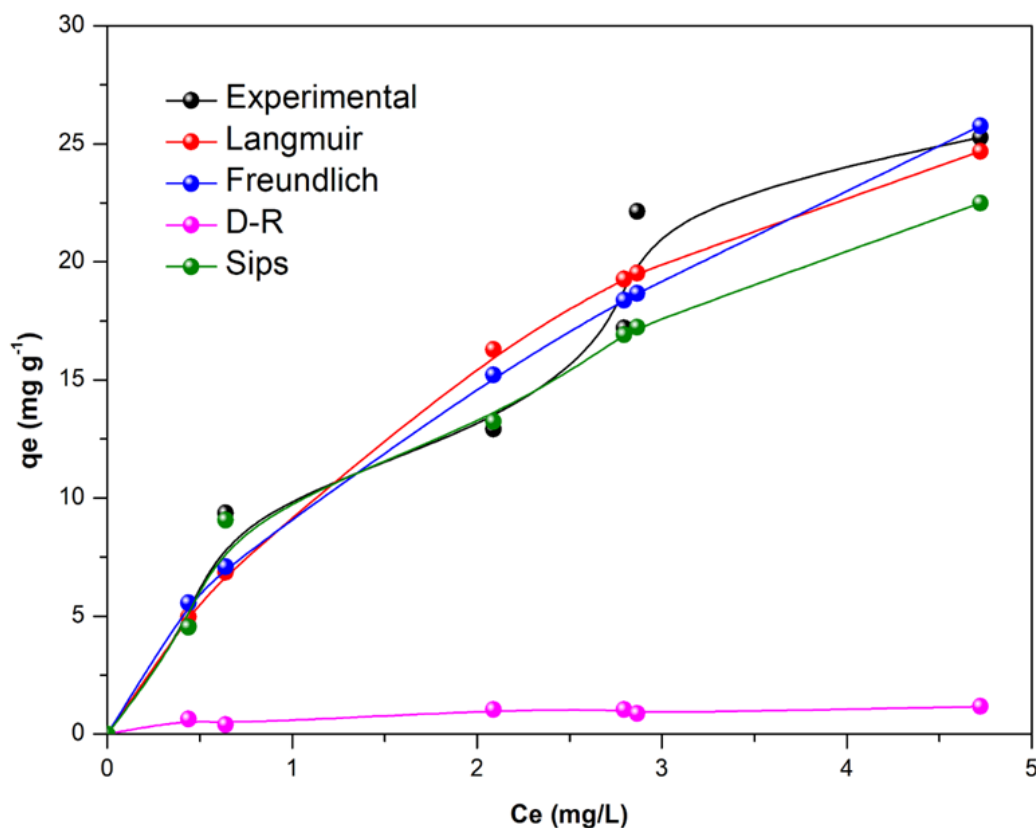
A isoterma de adsorção do ibuprofeno pelo material híbrido HDL-CQD foi obtida variando-se a concentração de equilíbrio (C_e), sob condições fixas de temperatura (25 °C), pH = 7 e tempo de contato de 40 min. Os dados foram aplicados para os modelos de Langmuir, Freundlich, Dubinin–Radushkevich (D–R) e Sips, com o objetivo de compreender os supostos mecanismos envolvidos no processo adsorptivo e características de superfície do adsorvente. O modelo de Langmuir considera a adsorção em monocamada, assumindo que os sítios ativos são energeticamente iguais, sem interação entre as moléculas adsorvidas (Langmuir, 1918). Em contrapartida, o modelo de Freundlich é empírico e aplicado para superfície heterogênea e adsorção em multicamada (Aharoni; Ungarish, 1977). De acordo com a classificação de Giles, a isoterma experimental (Figura 27) aparenta perfil do tipo L4, caracterizada pela presença de leve inflexão e tendência ao platô, sugerindo que o processo inicial de adsorção ocorre em monocamada. Em seguida, ocorre a ocupação de sítios secundários, possivelmente oriundos da interação entre as moléculas do ibuprofeno previamente adsorvidas e outras em solução que chegam na superfície, contribuindo para a formação de multicamadas.

Entre os modelos avaliados (Tabela 5), o modelo de Sips forneceu o melhor ajuste aos dados experimentais ($R^2 = 0,993$; $SSE = 24,25$), com capacidade máxima de adsorção estimada em $24,15 \text{ mg} \cdot \text{g}^{-1}$, próxima ao valor experimental. Este modelo, que combina os pressupostos de Langmuir (monocamada) e Freundlich (heterogeneidade de sítios), revelou-se o mais adequado para representar o sistema que exhibe comportamento de adsorção cooperativo, conforme observado nesse estudo.

Considerando que para que a adsorção seja considerada favorável, o valor da constante de Freundlich (KF) deve variar entre 1 e 10. Nesse contexto, o modelo de Freundlich também apresentou razoável ajuste ($R^2 = 0,843$), com valor $n > 1$ ($n = 1,531$), indicando adsorção favorável. No entanto, demonstrou a qualidade de ajuste inferior ($SSE = 24,82$) devido a sua natureza empírica e por não contemplar para efeitos cooperativos, limita sua capacidade de representar adequadamente a curvatura observada. Já o modelo de Langmuir ($R^2 = 0,565$; $SSE = 28,97$) superestimou a capacidade máxima ($q_{\text{max}} = 34,361 \text{ mg} \cdot \text{g}^{-1}$) e não representou os fenômenos cooperativos demonstrados nos dados experimentais, logo a suposição de sítios homogêneos é inadequada para este sistema. Por fim, o modelo D–R ($R^2 = 0,089$; $SSE > 1000$) além de não

demonstrar satisfatória representação dos dados experimentais, subestimou significativamente a capacidade de adsorção ($q_m = 42,991 \text{ mg}\cdot\text{g}^{-1}$), indicando que o preenchimento de microporos com energia uniforme não descreve o mecanismo envolvido.

Figura 27 - Isoterma de adsorção de IBU por HDL-CQD: pontos experimentais representados por q_e experimental (preto) e curvas ajustadas aos modelos teóricos de adsorção: Langmuir (vermelho), Freundlich (azul), D-R (rosa) e Sips (verde).



Fonte: Própria Autora (2025).

Em resumo, a combinação entre a qualidade estatística do ajuste, a coerência com os princípios físico-químicos do sistema e a capacidade do modelo de Sips em descrever a forma sigmoideal observada, comprovam sua adequação como a isoterma mais representativa para o processo de adsorção de ibuprofeno pelo compósito HDL-CQD. O crescimento sigmoideal da isoterma reforça a presença de múltiplas interações entre as moléculas adsorvidas, favorecidas por uma superfície funcionalizada e heterogênea, resultado da incorporação dos CQDs à matriz lamelar, que amplia a diversidade e disponibilidade de sítios ativos.

De forma ampla, os modelos isotérmicos validam a eficácia do híbrido HDL-CQD

como adsorvente promissor para fármacos em meio aquoso, especialmente para o ibuprofeno. Em virtude da sua elevada capacidade de adsorção, facilidade de síntese e à modificação estrutural, este material híbrido demonstra ser uma alternativa tecnicamente viável para a remediação ambiental, tanto no contexto ambiental quanto no âmbito industrial.

Tabela 5 - Comparação dos parâmetros dos modelos de adsorção de IBU pelo híbrido HDL-CQD.

Modelo	Parâmetro	Valores
Freundlich	$K_F [(mg.g^{-1})(L.mg^{-1})^{1/n}]$	9,475
	N	1,531
	R^2	0,843
	SSE	24,82
Langmuir	$q_{max} (mg.g^{-1})$	34,361
	$K_L (L.mg^{-1})$	0,332
	R^2	0,565
	SSE	28,97
Dubinin-Radushkevich	$q_{max} (mg.g^{-1})$	42,991
	$\delta (mol^2.J^{-2})$	$3,779 \times 10^{-8}$
	R^2	0,089
	SSE	≥ 1000
Sips	$q_{max} (mg.g^{-1})$	24,150
	$K_s (L.mg^{-1})$	1,020
	N	1,740
	R^2	0,993
	SSE	24,25

Fonte: Própria Autora (2025).

6 CONCLUSÕES

Os resultados obtidos neste trabalho confirmam o êxito na síntese do HDL, reforçando a viabilidades de sua preparação por meio de uma rota sintética simples, eficiente e baixo custo. Com base nos padrões de difração de raios X, observou-se a presença clara e bem definida das reflexões características da estrutura lamelar dos HDLs, indicando a preservação do arranjo cristalino após a associação com os CQDs, enquanto a análise de FTIR evidenciou elevada pureza estrutural do sólido inorgânico, cujas bandas vibracionais se mostraram compatíveis com dados reportados na literatura.

Além disso, a funcionalização conferiu melhorias significativas às propriedades do material, como evidenciado pelo aumento expressivo da área superficial, alteração da química de superfície e aprimoramento do comportamento térmico. As análises morfológicas e composicionais apontaram uma morfologia lamelar com maior dispersão, maior pureza e aumento do teor de oxigênio no híbrido HDL-CQD, o que pode estar associado à funcionalização da superfície com CQDs. Nos ensaios de adsorção, o material HDL-CQD demonstrou desempenho promissor frente ao fármaco ibuprofeno em solução aquosa sob condições variadas de tempo de contato, concentração de poluente e pH da solução.

Considerando baixas concentrações, condições mais próximas do contexto ambiental, como 5 e 10 ppm de solução de ibuprofeno, foi observada a maior eficiência de remoção, atingindo a taxa de 100%. Ademais, na concentração mais elevada, 25 ppm, o material híbrido exibiu desempenho satisfatório de adsorção ($q_t = 22,13 \text{ mg.g}^{-1}$ ($R(\%) = 88,53\%$) no tempo de 40 minutos. O estudo de influência de pH aliado ao melhor ajuste cinético de pseudo-segunda ordem revelaram a participação de interações de natureza tanto químicas quanto físicas no processo adsorptivo do ibuprofeno. O modelo Sips proporcionou o melhor ajuste aos dados experimentais ($R^2 = 0,2415$; $SSE = 24,25$), com capacidade máxima de adsorção de $24,150 \text{ mg.g}^{-1}$. Por unir características dos modelos de Langmuir e Freundlich, o modelo Sips permitiu a representação adequada do comportamento adsorptivo observado, caracterizado por superfície heterogênea e efeitos

cooperativos, demonstrando adsorção em monocamada e multicamada.

No geral, foi constatada que a performance adsortiva superior ao material puro é explicada pela integração de grupos funcionais presentes no CQD na superfície lamelar, promovendo a ocorrência de múltiplos mecanismos, como ligação de hidrogênio, interações eletrostáticas, empilhamento π - π . Ademais, o material HDL-CQD demonstrou parâmetros otimizados, em relação a outros nanoadsorventes publicados, como alta concentração inicial, tempo de contato, influência de pH, capacidade máxima adsorvida ($q_{\max}$). Sendo assim, a nanoplataforma desenvolvida apresenta grande potencial para remoção de contaminantes farmacêuticos, como o ibuprofeno, em aplicações de tratamento de água, necessitando de sua otimização em reciclabilidade.

REFERÊNCIAS

- ABD EL-MONAEM, E. M. *et al.* A comprehensive review on LDH-based catalysts to activate persulfates for the degradation of organic pollutants. **npj clean water**, v. 6, n. 1, 2023.
- AHARONI, C.; UNGARISH, M. Kinetics of activated chemisorption. Part 2. — Theoretical models. **Journal of the Chemical Society**, v. 73, n. 0, p. 456, 1977.
- AHMED, M. J. Adsorption of non-steroidal anti-inflammatory drugs from aqueous solution using activated carbons: Review. **Journal of environmental management**, v. 190, p. 274–282, 2017.
- AL FARSI, B. *et al.* The effect of microwave power level and post-synthesis annealing treatment on oxygen-based functional groups present on carbon quantum dots. **Journal of luminescence**, v. 252, n. 119326, p. 119326, 2022.
- AL-JUMAILI, B. E. Microstructural, dielectric, and microwave absorption properties of polyvinyl chloride/Mg/Al-layered double hydroxide composites. **Journal of Materials Science: Materials in Electronics**, v. 34, n. 11, 2023.
- ALTALHI, A. A.; MOHAMED, E. A.; NEGM, N. A. Recent advances in layered double hydroxide (LDH)-based materials: fabrication, modification strategies, characterization, promising environmental catalytic applications, and prospective aspects. **Energy advances**, v. 3, n. 9, p. 2136–2151, 2024.
- AMROUNI, N.; MEZIANE, A.; BOUSSAID, A. Preparation and characterization of potato starch/bentonite organophylized by SDS. **Revista Mexicana de Física**, v. 71, n. 2 Mar-Apr, 2025.
- AN, C. *et al.* Lignocellulose/chitosan hybrid aerogel composited with fluorescence molecular probe for simultaneous adsorption and detection of heavy metal pollutants. **Journal of environmental chemical engineering**, v. 11, n. 6, p. 111205, 2023.
- ASHBY, M. F.; BRÉCHET, Y. J. M. Designing hybrid materials. **Acta materialia**, v. 51, n. 19, p. 5801–5821, 2003.
- ASLAM, R. *et al.* Effect of temperature, and immersion time on the inhibition performance of Q235 steel using spent coffee grounds derived carbon quantum dots: Electrochemical, spectroscopic and surface studies. **Biomass & bioenergy**, v. 200, n. 107961, p. 107961, 2025.
- BANERJEE, P. *et al.* Application of graphene oxide nanoplatelets for adsorption of Ibuprofen from aqueous solutions: Evaluation of process kinetics and thermodynamics. **Process safety and environmental protection: transactions of the Institution of Chemical Engineers, Part B**, v. 101, p. 45–53, 2016.
- BENHITI, R. *et al.* Synthesis, characterization, and comparative study of MgAl-LDHs prepared by standard coprecipitation and urea hydrolysis methods for phosphate removal. **Environmental**

science and pollution research international, v. 27, n. 36, p. 45767–45774, 2020.

BERI, K. Y. V. *et al.* Adsorption of Estradiol from aqueous solution by hydrothermally carbonized and steam activated palm kernel shells. **Energy nexus**, v. 1, n. 100009, p. 100009, 2021.

BOUKHRISS, A. *et al.* Luminescent hybrid coatings prepared by a sol–gel process for a textile-based pH sensor. **Materials advances**, v. 1, n. 4, p. 918–925, 2020.

CAMPALANI, C. *et al.* Carbon dots as green photocatalysts for atom transfer radical polymerization of methacrylates. **Catalysis today**, v. 418, n. 114039, p. 114039, 2023.

CAMPOS, V. N. S. *et al.* High performance of ciprofloxacin removal using heterostructure material based on the combination of CeO₂ and palygorskite fibrous clay. **Minerals (Basel, Switzerland)**, v. 14, n. 8, p. 792, 2024.

CARMONA, J. A. *et al.* Effect of the welan gum concentration on the rheological and structural behaviour of biocomposite hydrogels with sepiolite as filler. **Polymers**, v. 15, n. 1, p. 33, 2022.

CHANDRASEKARAN, D. *et al.* Synthesis of blue emissive fluorescent nitrogen doped carbon dots from Annona squamosa fruit extract and their diverse applications in the field of catalysis and bio-imaging. **Journal of photochemistry and photobiology. A, Chemistry**, v. 432, n. 114097, p. 114097, 2022.

CHEN, S. *et al.* Eco-friendly and efficient synthesis of nitrogen-doped carbon quantum dots for pH sensing applications. **Applied physics. A, Materials science & processing**, v. 130, n. 2, 2024.

CHUAICHAM, C. *et al.* Efficient photocatalytic degradation of emerging ciprofloxacin under visible light irradiation using BiOBr/carbon quantum dot/saponite composite. **Environmental research**, v. 212, n. Pt E, p. 113635, 2022.

CIĞEROĞLU, Z. *et al.* Clay-based nanomaterials and their adsorptive removal efficiency for dyes and antibiotics: A review. **Materials Today Sustainability**, v. 26, n. 100735, p. 100735, 2024.

CUTRIM, E. S. M. *et al.* Preparation, characterization and in vitro anticancer performance of nanoconjugate based on carbon quantum dots and 5-Fluorouracil. **Materials science & engineering. C, Materials for biological applications**, v. 120, n. 111781, p. 111781, 2021.

DEY, K.; AGNELLI, S.; SARTORE, L. Designing viscoelastic gelatin-PEG macroporous hybrid hydrogel with anisotropic morphology and mechanical properties for tissue engineering application. **Micro**, v. 3, n. 2, p. 434–457, 2023.

DÍAZ MORENO, C. A. *et al.* Structural, magnetic and second harmonic generation properties in Mayan blue indigo nanostructured pigment. **Journal of magnetism and magnetic materials**, v. 499, n. 166052, p. 166052, 2020.

DING, Y. *et al.* Nanoporous TiO₂ spheres with tailored textural properties: Controllable synthesis, formation mechanism, and photochemical applications. **Progress in materials science**, v. 109, n. 100620, p. 100620, 2020.

DO, M. H.; NHIEM, L. T. Multifunctional sensor based on hybrid material of reduced graphene oxide and polyaniline. **Journal of electronic materials**, v. 52, n. 6, p. 4037–4044, 2023.

FARAHANI, F. V. *et al.* Investigation of layered double hydroxide/carbon dot nanocomposite on removal efficiency of Pb²⁺ from aqueous solution. **Journal of molecular liquids**, v. 338, n. 116774, p. 116774, 2021.

FATAHI, Y. *et al.* Levofloxacin-halloysite nanohybrid-loaded fibers based on poly (ethylene oxide) and sodium alginate: Fabrication, characterization, and antibacterial property. **Journal of drug delivery science and technology**, v. 64, n. 102598, p. 102598, 2021.

FEDEL, M. Hemocompatibility of carbon nanostructures. **C – Journal of Carbon Research**, v. 6, n. 1, p. 12, 2020.

FENG, W. *et al.* Layered double hydroxides, an effective nanomaterial to remove phosphorus from wastewater: Performance, mechanism, factors and reusability. **The Science of the total environment**, v. 884, n. 163757, p. 163757, 2023.

GAO, Z. *et al.* Structure engineering of layered double hydroxides (LDHs) for heterogeneous catalysis. **Chemical research in Chinese universities**, v. 40, n. 4, p. 590–610, 2024.

GOMEZ-ROMERO, P. *et al.* Hybrid materials: A metareview. **Chemistry of materials: a publication of the American Chemical Society**, v. 36, n. 1, p. 8–27, 2024.

GONDIM, D. R. *et al.* Influence of buffer solutions in the adsorption of human serum proteins onto layered double hydroxide. **International journal of biological macromolecules**, v. 106, p. 396–409, 2018.

GORBACHEVA, T. T.; MAYOROV, D. V.; FOKINA, N. V. Layered double mg–Al hydroxides to dephosphate municipal effluents. **Inorganic Materials Applied Research**, v. 12, n. 5, p. 1257–1264, 2021.

HINZ, C. Description of sorption data with isotherm equations. **Geoderma**, v. 99, n. 3–4, p. 225–243, 2001.

HOANG, V. C.; DAVE, K.; GOMES, V. G. Carbon quantum dot-based composites for energy storage and electrocatalysis: Mechanism, applications and future prospects. **Nano energy**, v. 66, n. 104093, p. 104093, 2019.

HORNYAK, G. L. *et al.* **Introduction to Nanoscience**. Boca Raton, FL, USA: CRC Press, 2012.

HOSSEINIAN NAEINI, Ali; HOSSEINI MORADI, Seyed Ali. Adsorption Method for Removal of Pharmaceuticals from Wastewater: Review. **Iranian Journal of Materials Science and**

Engineering, Iran University of Science and Technology, v. 20, n. 4, 1 dez. 2023.

HU, D. *et al.* Competitive anion anchoring and hydrogen bonding in multiscale-coupling composite quasi-solid electrolytes for fire-safety and long-life lithium metal batteries. **Advanced science** (Weinheim, Baden-Wurttemberg, Germany), v. 12, n. 19, p. e2501012, 2025.

HUSSAIN, E. *et al.* Recent advances of Clay/polymer-based nanomaterials for the treatment of environmental contaminants in wastewater: A review. **Journal of environmental chemical engineering**, v. 12, n. 3, p. 112401, 2024.

INTERNATIONAL ORGANIZATION FOR STANDARDIZATION, “Biological evaluation of medical devices”. **Part 5: Tests for cytotoxicity: in vitro methods**”, 3st ed, ISO 10993-5, 2009

ISLAM, M. S.; MUBARAK, M.; LEE, H.-J. Hybrid nanostructured materials as electrodes in energy storage devices. **Inorganics**, v. 11, n. 5, p. 183, 2023.

ISMAIL, J. *et al.* PEG-lipid-PLGA hybrid particles for targeted delivery of anti-inflammatory drugs. **Pharmaceutics**, v. 16, n. 2, 2024.

JAFARI FORUZIN, L. *et al.* Ultrasonic-assisted synthesis of Ni based-layered double hydroxide doped carbon nanotube and its highly efficient in water oxidation reaction. **International journal of hydrogen energy**, v. 48, n. 9, p. 3429–3439, 2023.

JEDYNAK, K.; CHARMAS, B. Application of activated carbons obtained from polymer waste for the adsorption of dyes from aqueous solutions. **Materials**, v. 17, n. 3, p. 748, 2024.

JOHN, V. L.; NAIR, Y.; VINOD, T. P. Doping and surface modification of carbon quantum dots for enhanced functionalities and related applications. **Particle & particle systems characterization: measurement and description of particle properties and behavior in powders and other disperse systems**, v. 38, n. 11, p. 2100170, 2021.

JUDGE, P. K. *et al.* Effects of biopolymers on the liquid limit and undrained shear strength of soft clays. **Bulletin of engineering geology and the environment**, v. 81, n. 8, 2022.

JUNG, S.-Y. *et al.* Physicochemical properties and hemato-compatibility of layered double hydroxide-based anticancer drug methotrexate delivery system. **Pharmaceutics**, v. 12, n. 12, p. 1210, 2020.

KAMELIYA, J. *et al.* Layered double hydroxide materials: A review on their preparation, characterization, and applications. **Inorganics**, v. 11, n. 3, p. 121, 2023.

KAUR, H.; SINGH, S.; PAL, B. Effect of plasmonic metal (Cu, Ag, and Au) loading over the physicochemical and photocatalytic properties of Mg-Al LDH towards degradation of tetracycline under LED light. **Applied surface science**, v. 609, n. 155455, p. 155455, 2023.

KELSALL, R. **Nanoscale Science and Technology**. [s.l.] John Wiley & Sons, 2005.

KHAKSARFARD, Y.; BAGHERI, A.; RAFATI, A. A. Synergistic effects of binary surfactant mixtures in the adsorption of diclofenac sodium drug from aqueous solution by modified zeolite. **Journal of colloid and interface science**, v. 644, p. 186–199, 2023.

KHORSHIDI, M. *et al.* A review of the synthesis methods, properties, and applications of layered double hydroxides/carbon nanocomposites. **Journal of molecular liquids**, v. 348, n. 118399, p. 118399, 2022.

KHOSHKHOLGH, Z.; SOHRABNEZHAD, S. Optimizing photocatalytic activity for chromium reduction: the role of MgAl LDH/ triazine covalent organic framework /CdS nanocomposite. **Emergent Materials**, 2024.

KIM, M. *et al.* Thermally-activated gelatin-chitosan-MOF hybrid aerogels for efficient removal of ibuprofen and naproxen. **Carbohydrate polymers**, v. 324, n. 121436, p. 121436, 2024.

KUMARI, S. *et al.* Layered double hydroxides and their tailored hybrids/composites: Progressive trends for delivery of natural/synthetic-drug/cosmetic biomolecules. **Environmental research**, v. 238, n. Pt 2, p. 117171, 2023.

LANGMUIR, I. The adsorption of gases on plane surfaces of glass, mica and platinum. **Journal of the American Chemical Society**, v. 40, n. 9, p. 1361–1403, 1918.

LI, L.; WARSZAWIK, E.; VAN RIJN, P. pH-triggered release and degradation mechanism of layered double hydroxides with high loading capacity. **Advanced materials interfaces**, v. 10, n. 8, p. 2202396, 2023.

LI, M. *et al.* Current trends in the detection and removal of heavy metal ions using functional materials. **Chemical Society reviews**, v. 52, n. 17, p. 5827–5860, 2023.

LINS, P. V. S. *et al.* Efficient removal of triarylmethane biocide from aqueous solutions using ZnAl/LDH: Adsorption kinetics, isotherms, and thermodynamic insights. **Colloids and surfaces. A, Physicochemical and engineering aspects**, v. 725, n. 137598, p. 137598, 2025.

LIU, T. *et al.* Synthesis of NiFeAl LDHs from electroplating sludge and Their excellent supercapacitor performance. **Journal of hazardous materials**, v. 404, n. Pt B, p. 124113, 2021.

MAEGAWA, K. *et al.* Control of micro- and nanostructures of layered double hydroxides by hydrothermal treatment. **Crystal growth & design**, v. 23, n. 4, p. 2128–2137, 2023.

MAGESH, V.; SUNDRAMOORTHY, A. K.; GANAPATHY, D. Recent advances on synthesis and potential applications of carbon quantum dots. **Frontiers in materials**, v. 9, 2022.

MAKOWSKI, D. *et al.* Design and synthesis of NTU-9/C3N4 photocatalysts: Effects of NTU-9 content and composite preparation method. **Materials**, v. 16, n. 14, p. 5007, 2023.

MANFO, T. A.; LAAKSONEN, H. A review of carbon-based hybrid materials for supercapacitors. **New carbon materials**, v. 40, n. 1, p. 81–110, 2025.

MEILI, L. *et al.* MgAl-LDH/Biochar composites for methylene blue removal by adsorption. **Applied clay science**, v. 168, p. 11–20, 2019.

MINTZ, K. J. *et al.* A deep investigation into the structure of carbon dots. **Carbon**, v. 173, p. 433–447, 2021.

MKADDEM, H. *et al.* Anti-inflammatory drug diclofenac removal by a synthesized MgAl layered double hydroxide. **Journal of molecular liquids**, v. 359, n. 119207, p. 119207, 2022.

MOCHANE, M. J. *et al.* Morphology, thermal stability, and flammability properties of polymer-layered double hydroxide (LDH) nanocomposites: A review. **Crystals**, v. 10, n. 7, p. 612, 2020.

MOHAMED, L. A. *et al.* Mechanistic investigation of the mass transfer stages involved during the adsorption of aqueous lead onto *Scopulariopsis brevicompactum* fungal biomass. **Environmental challenges** (Amsterdam, Netherlands), v. 5, n. 100373, p. 100373, 2021.

MOJTABAZADEH, H.; SAFAEI-GHOMI, J. High conductivity graphite paste for radio frequency identification tag with wireless hydrogen sensor based on CeO₂-Fe₂O₃-graphene oxide. **RSC advances**, v. 15, n. 16, p. 12773–12784, 2025.

MOLAEI, M. J. Carbon quantum dots-based fluorescent layered double hydroxide for targeted drug delivery application. **Diamond and related materials**, v. 137, n. 110135, p. 110135, 2023.

MUJTABA, G. *et al.* Simultaneous adsorption of methylene blue and amoxicillin by starch-impregnated MgAl layered double hydroxide: Parametric optimization, isothermal studies and thermo-kinetic analysis. **Environmental research**, v. 235, n. 116610, p. 116610, 2023.

NASCIMENTO, R. F. *et al.* **Adsorção** [livro eletrônico]: aspectos teóricos e aplicações ambientais. 2. ed. PDF: [s.n.].

NASEEM, S. *et al.* Comparison of transition metal (Fe, Co, Ni, Cu, and Zn) containing tri-metal layered double hydroxides (LDHs) prepared by urea hydrolysis. **RSC advances**, v. 9, n. 6, p. 3030–3040, 2019.

NOPE, E. *et al.* Revisiting hydrotalcite synthesis: Efficient combined mechanochemical/coprecipitation synthesis to design advanced tunable basic catalysts. **Nanotechnology reviews**, v. 13, n. 1, 2024.

OBA, S. N. *et al.* Removal of ibuprofen from aqueous media by adsorption: A comprehensive review. **The Science of the total environment**, v. 780, n. 146608, p. 146608, 2021.

OLIVEIRA, T. L.; ALVES, A. K. Carbon Quantum Dots. Em: Technological Applications of Nanomaterials. **Cham: Springer International Publishing**, 2022. p. 71–88.

ORTIZ DE GARCÍA, S. A. *et al.* Ecotoxicity and environmental risk assessment of pharmaceuticals and personal care products in aquatic environments and wastewater treatment

plants. **Ecotoxicology** (London, England), v. 23, n. 8, p. 1517–1533, 2014.

PECHNIKOVA, N. A. *et al.* Carbon quantum dots in biomedical applications: Advances, challenges, and future prospects. **Aggregate** (Hoboken, N.J.), v. 6, n. 3, 2025.

QU, S. *et al.* Toward efficient orange emissive carbon nanodots through conjugated sp² -domain controlling and surface charges engineering. **Advanced materials** (Deerfield Beach, Fla.), v. 28, n. 18, p. 3516–3521, 2016.

RAHMANIAN, O.; DINARI, M.; ABDOLMALEKI, M. K. Carbon quantum dots/layered double hydroxide hybrid for fast and efficient decontamination of Cd(II): The adsorption kinetics and isotherms. **Applied surface science**, v. 428, p. 272–279, 2018.

REMESH, S. *et al.* In-situ Mg-Al LDH infused lignin-derived laser scribed graphene for facilitated ion transport in flexible supercapacitor application. **Journal of the Taiwan Institute of Chemical Engineers**, v. 153, n. 105247, p. 105247, 2023.

REYNA-VILLANUEVA, L. R. *et al.* Biodiesel production using layered double hydroxides and derived mixed oxides: The role of the synthesis conditions and the catalysts properties on biodiesel conversion. **Fuel** (London, England), v. 251, p. 285–292, 2019.

RIBEIRO, L. N. M. *et al.* Pectin-coated chitosan-LDH bionanocomposite beads as potential systems for colon-targeted drug delivery. **International journal of pharmaceutics**, v. 463, n. 1, p. 1–9, 2014.

SANTAMARÍA, L. *et al.* Progress in the removal of pharmaceutical compounds from aqueous solution using layered double hydroxides as adsorbents: A review. **Journal of environmental chemical engineering**, v. 8, n. 6, p. 104577, 2020.

SEMWAL, N. *et al.* Adsorptive removal of Congo Red dye from its aqueous solution by Ag-Cu-CeO₂ nanocomposites: Adsorption kinetics, isotherms, and thermodynamics. **Heliyon**, v. 9, n. 11, p. e22027, 2023.

SHAFIQUE, M. *et al.* CQD/TiO₂ nanocomposite photocatalyst for efficient visible light-driven purification of wastewater containing methyl orange dye. **Materials chemistry and physics**, v. 278, n. 125583, p. 125583, 2022.

SHEIKH, M. A.; CHANDOK, R. S.; ABIDA, K. High energy density storage, antifungal activity and enhanced bioimaging by green self-doped heteroatom carbon dots. **Discover nano**, v. 18, n. 1, p. 132, 2023.

SHERAZI, A. *et al.* Removal of Ibuprofen and Diclofenac using Azadirachta indica leaves extract modified with Iron oxide. **Desalination and water treatment**, v. 317, n. 100151, p. 100151, 2024.

SHOW, S.; KARMAKAR, B.; HALDER, G. Sorptive uptake of anti-inflammatory drug ibuprofen by waste biomass-derived biochar: experimental and statistical analysis. **Biomass**

conversion and biorefinery, v. 12, n. 9, p. 3955–3973, 2022.

SIGONYA, S. *et al.* Mitigation of non-steroidal anti-inflammatory and antiretroviral drugs as environmental pollutants by adsorption using nanomaterials as viable solution—A critical review. **Applied sciences** (Basel, Switzerland), v. 13, n. 2, p. 772, 2023.

SILVA, E. H. C. *et al.* New insights about the intercalation of 5-Fluorouracil into 2D Mg–Al layered double hydroxide nanosheets: A theoretical and experimental investigation. **Journal of drug delivery science and technology**, v. 81, n. 104294, p. 104294, 2023.

SINGH, P.; SINGH, L. K. Myeloperoxidase enzyme-catalyzed breakdown of zero-dimension carbon quantum dots. **Frontiers in medical technology**, v. 6, p. 1493288, 2024.

SIYAL, A. A. *et al.* A review of the developments in adsorbents for the efficient adsorption of ibuprofen from wastewater. **RSC advances**, v. 15, n. 23, p. 17843–17861, 2025.

TANG, J. *et al.* Influence of group modification at the edges of carbon quantum dots on fluorescent emission. **Nanoscale research letters**, v. 14, n. 1, p. 241, 2019.

TANG, Y. *et al.* Facile synthesis of magnetic ZnAl layered double hydroxides and efficient adsorption of malachite green and Congo red. **Separation and purification technology**, v. 322, n. 124305, p. 124305, 2023.

TANG, Z. *et al.* Functionalized layered double hydroxide applied to heavy metal ions absorption: A review. **Nanotechnology reviews**, v. 9, n. 1, p. 800–819, 2020.

TARUTANI, N. *et al.* Interconnection of organic-inorganic hybrid nano-building blocks towards thermally robust mesoporous structures. **Nanoscale**, v. 13, n. 26, p. 11446–11454, 2021.

TEO, C. Y.; JONG, J. S. J.; CHAN, Y. Q. Carbon-based materials as effective adsorbents for the removal of pharmaceutical compounds from aqueous solution. **Adsorption science & technology: interface science for advanced materials & technologies**, v. 2022, p. 1–17, 2022.

TRAN, H. N. *et al.* Mistakes and inconsistencies regarding adsorption of contaminants from aqueous solutions: A critical review. **Water research**, v. 120, p. 88–116, 2017.

WANG, D-L. *et al.* Enhanced fluoride stabilization by modified layered double hydroxides for the remediation of soil pollution: Performance and mechanism. **Water, air, and soil pollution**, v. 233, n. 11, 2022.

WANG, H. *et al.* Engineered biochar with anisotropic layered double hydroxide nanosheets to simultaneously and efficiently capture Pb²⁺ and CrO₄²⁻ from electroplating wastewater. **Bioresource technology**, v. 306, n. 123118, p. 123118, 2020.

WANG, J. *et al.* Emerging carbon-based quantum dots for sustainable photocatalysis. **Green chemistry: an international journal and green chemistry resource: GC**, v. 25, n. 1, p. 32–58, 2023.

WANG, L.; SONG, J.; YU, C. MgAl-LDH nanoflowers as a novel sensing material for high-performance humidity sensing. **RSC advances**, v. 14, n. 30, p. 21991–21998, 2024.

WANG, X. *et al.* Carbon dot-layered double hydroxide nanocomposite with dual-mode emission for anti-fake application. **Chemistry Select**, v. 7, n. 27, 2022.

WANG, X. *et al.* Effect of synthesis temperature on the structural morphology of a metal-organic framework and the capacitor performance of derived cobalt-nickel layered double hydroxides. **Journal of colloid and interface science**, v. 664, p. 946–959, 2024.

WANG, Y.; SUN, J. Study on the preparation of Zn-Al-LDHs by different reaction methods with ion exchange resin. **Chemistry Select**, v. 6, n. 17, p. 4143–4148, 2021.

WIJAYA, A. *et al.* CuAl-LDH modified with filamentous macroalgae for anionic dyes removal: A study on selectivity, adsorption efficiency, and regeneration. **BULLETIN OF CHEMICAL REACTION ENGINEERING AND CATALYSIS**, v. 19, n. 4, p. 560–572, 2024.

XIAO, L. *et al.* Highly sensitive detection of Fe³⁺ ions using waterborne polyurethane-carbon dots self-healable fluorescence film. **Macromolecular materials and engineering**, v. 305, n. 3, p. 1900810, 2020.

YE, H. *et al.* A hydrothermal method to generate carbon quantum dots from waste bones and their detection of laundry powder. **Molecules (Basel, Switzerland)**, v. 27, n. 19, p. 6479, 2022.

ZAHOOR, M. *et al.* Novel magnetite nanocomposites (Fe₃O₄/C) for efficient immobilization of ciprofloxacin from aqueous solutions through adsorption pretreatment and membrane processes. **Water**, v. 14, n. 5, p. 724, 2022.

ZAINAL ABIDIN, N. H. *et al.* The effect of functionalization on rice-husks derived carbon quantum dots properties and cadmium removal. **Journal of water process engineering**, v. 38, n. 101634, p. 101634, 2020.

ZAVALA-FLORES, E. *et al.* Removal and adsorption kinetics of methylene blue dye by pristine cotton husk bracts (*Gossypium hirsutum* L.) from agroindustrial waste. **Industrial crops and products**, v. 209, n. 117947, p. 117947, 2024.

ZHANG, J. *et al.* Adsorption of methylene blue from aqueous solution onto multiporous palygorskite modified by ion beam bombardment: Effect of contact time, temperature, pH and ionic strength. **Applied clay science**, v. 83–84, p. 137–143, 2013.

ZHOU, S. Q. *et al.* Functional montmorillonite/polymer coatings. **Clays and clay minerals**, v. 70, n. 2, p. 209–232, 2022.

ZUBAIR, M. *et al.* Engineered biochar supported layered double hydroxide-cellulose nanocrystals composite-: Synthesis, characterization and azo dye removal performance. **Chemosphere**, v. 307, n. Pt 4, p. 136054, 2022.

ZUMRA, Z.; AHMED, S. Comprehensive review on the environmental remediation of pharmaceuticals in water by adsorption. **Environmental toxicology and chemistry**, 2025.