

JOTCSA, 2(3), 2015

Synthesis of MCM-41 by Hydrothermal and Sonochemical Methods and Characterization

Hidrotermal ve Sonokimyasal Yöntemle MCM-41 Katalizörünün Sentezi ve Karakterizasyonu

Ümran GEDİKLİ¹, Zarife MISIRLIOĞLU¹, Pınar ACAR BOZKURT*¹, Muammer CANEL¹

¹ Ankara University, Faculty of Science, Department of Chemistry, 06100, Tandoğan,
Ankara, Türkiye

*Corresponding author. E-mail: p3acar@hotmail.com

ABSTRACT

One of the known groups of mesoporous materials is MCM-41 that has been applied as catalyst for various chemical reactions [1-2]. In this work, using water as solvent, cetyltrimethylammonium bromide (CTAB) as template, sodium silicate and tetraethylortosilicate (TEOS) as silica source, mesoporous MCM-41 were synthesized by direct hydrothermal synthesis method and sonochemical synthesis method. Furthermore, the effects of silica source and synthesis method on the distribution of products were studied. Both methods were successful yielding catalysts. Prepared mesoporous molecular sieves were characterized by X-ray diffraction (XRD), scanning electron microscopy (SEM) and Braunauer-Emmett-Teller (BET) surface area. The synthesized MCM-41 materials were used as catalyst in the pyrolysis of scrap mobile phone of printed circuits boards and the efficiency of their discussed.

In experiments when used sodium silicate as silica source, the synthesized MCM-41 by hydrothermal method was called as M-1, the synthesized MCM-41 by sonochemical method was called as M-2. Similarly, when used TEOS as silica source, the synthesized MCM-41 by hydrothermal method was called as M-3, the synthesized MCM-41 by sonochemical method was called as M-4.

The XRD pattern of M-1, M-2, M-3 and M-4 is shown in Figure 1. XRD spectrum of MCM-41 sample showed a sharp peak (100) and three reflection peaks corresponding to (110), (200) and (210), which meant that the sample had an ordered pore structure [3-6]. Both of the synthesized MCM-41, showed a sharp XRD peak around $2\theta=2^\circ$ and few weak peaks in $2\theta= 3-5^\circ$, which indicated well-hexagonal structure of MCM-41.

Figure 2 shows the SEM image of the synthesized M-1, M-2, M-3 and M-4. SEM results show each spherical aggregate is composed of several of individual small nanoparticles with uniform diameters of about 60 nm. The silica sources influence the shape of the produced MCM-41. Fig. 2 (a-b) demonstrates that the particles are extensively agglomerated. Also it reveals the spherical morphology of the particles. The sponge-like appearance of the MCM-41 particles is seen in Fig. 2 (c-d). BET surface area values and pore volume data are listed in Table 1. It is clearly seen from Table 1 that using the sonochemical for synthesis of MCM-41 a greater increase of surface area and pore volume is resulted.

Keywords

MCM-41, hydrothermal method, sonochemical method, synthesis, characterization.

ÖZET

Mezogözenekli malzemelerden MCM-41 çeşitli kimyasal reaksiyonlarda katalizör olarak kullanılmaktadır [1-2]. Bu çalışmada yüzey aktif madde olarak setiltrimetil amonyum bromür (CTAB), silika kaynağı olarak sodyum silikat ya da tetraetilortosilikat (TEOS), çözücü olarak su kullanılarak hidrotermal ve sonokimyasal yöntemle MCM-41 sentezlenmiştir. Ayrıca, ürünlerin dağılımına silika kaynağı ve sentez yönteminin etkisi araştırılmıştır. Her iki yöntem de, istenilen katalizörler elde edilmiştir. Elde edilen mezogözenekli yapıların karakterizasyonu X-Işını kırınım deseni (XRD) , taramalı elektron mikroskobu (SEM) ve Brunauer Emmett Teller (BET) yüzey alanı analizleri ile gerçekleştirilmiştir. Sentezlenen MCM-41 materyali atık cep telefonlarının baskılı devre kartlarının pirolizinde katalizör olarak kullanılmıştır ve katalizör verimliliği incelenmiştir.

Deneylerde silika kaynağı olarak sodyum silikat kullanılarak hidrotermal yöntemle sentezlenen MCM-41 örneği M-1, sonokimyasal yöntemle sentezlenen MCM-41 örneği M-2 olarak adlandırılmıştır. Benzer şekilde; silika kaynağı olarak TEOS kullanılarak hidrotermal yöntemle sentezlenen MCM-41 örneği M-3, sonokimyasal yöntemle sentezlenen MCM-41 örneği M-4 olarak adlandırılmıştır.

M-1, M-2, M-3 ve M-4 örnekleri için XRD sonuçları Şekil 1'de verilmiştir. MCM-41 için XRD spektrumunda gözlenen keskin bir pik (100) ve üç farklı pik (100), (200), (210) örneğin sıralı bir gözenekli yapıya sahip olduğunu gösterir [3-6]. Sentezlenen MCM-41 örnekleri için $2\theta=2^\circ$ açısında keskin bir pik, $2\theta= 3-5^\circ$ açı aralığında ise birkaç zayıf pik gözlenmesi örneğin hekzagonal yapıda olduğunu göstermektedir.

M-1, M-2, M-3 ve M-4 örneklerinin SEM görüntüleri Şekil 2'de verilmiştir. SEM sonuçları her bir küresel kümenin yaklaşık 60 nm çaplı nanoparçacıklardan oluştuğunu göstermektedir. Silika kaynağı, elde edilen MCM-41 yapısını etkilemektedir. Şekil 2 (a-b) partiküllerin geniş ölçüde kümelenmiş küresel şekilde bulunduğunu göstermektedir. Şekil 2 (c-d) ise süngerimsi yapıdaki MCM-41 partikülleri görülmektedir. BET yüzey alanı ve gözenek hacmi değerleri Tablo 1'de verilmiştir. Tablodan da görüldüğü gibi, MCM-41 sentezinde sonokimyasal yöntemin kullanılması yüzey alanı ve gözenek hacminin artmasına neden olmuştur.

Anahtar kelimeler

MCM-41, hidrotermal metot, sonokimyasal metot, sentez, karakterizasyon.

FIGURES/ŞEKİLLER

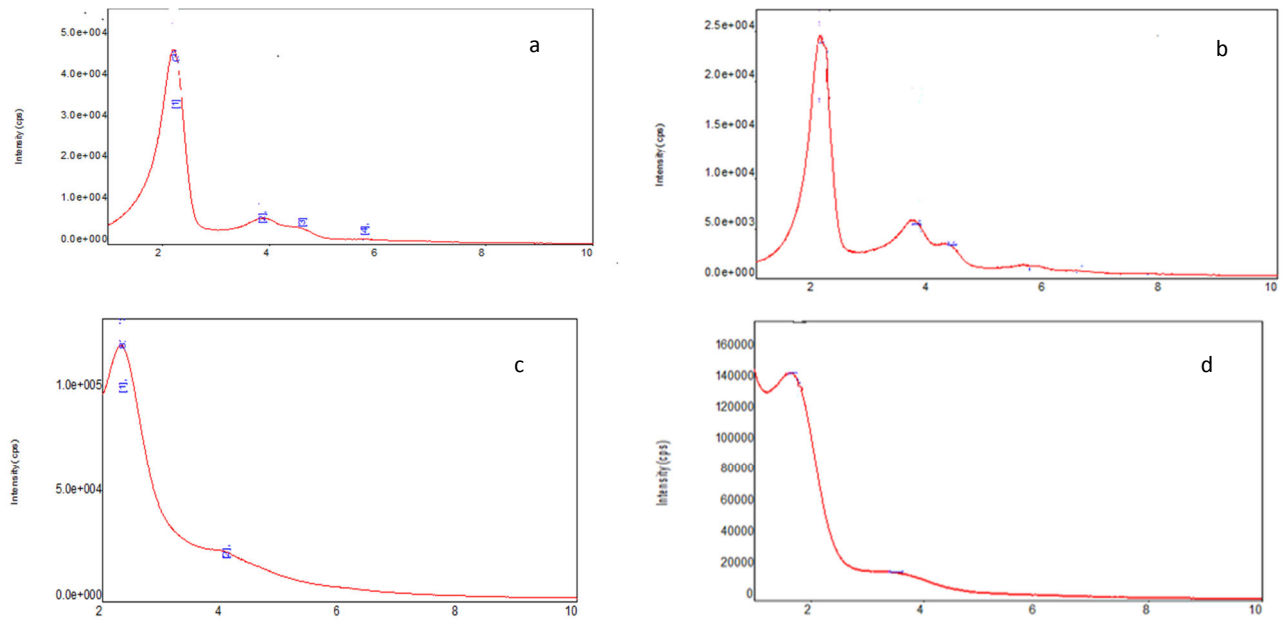


Figure 1. X-ray powder diffraction patterns for (a) M-1, (b) M-2, (c) M-3, (d) M-4.

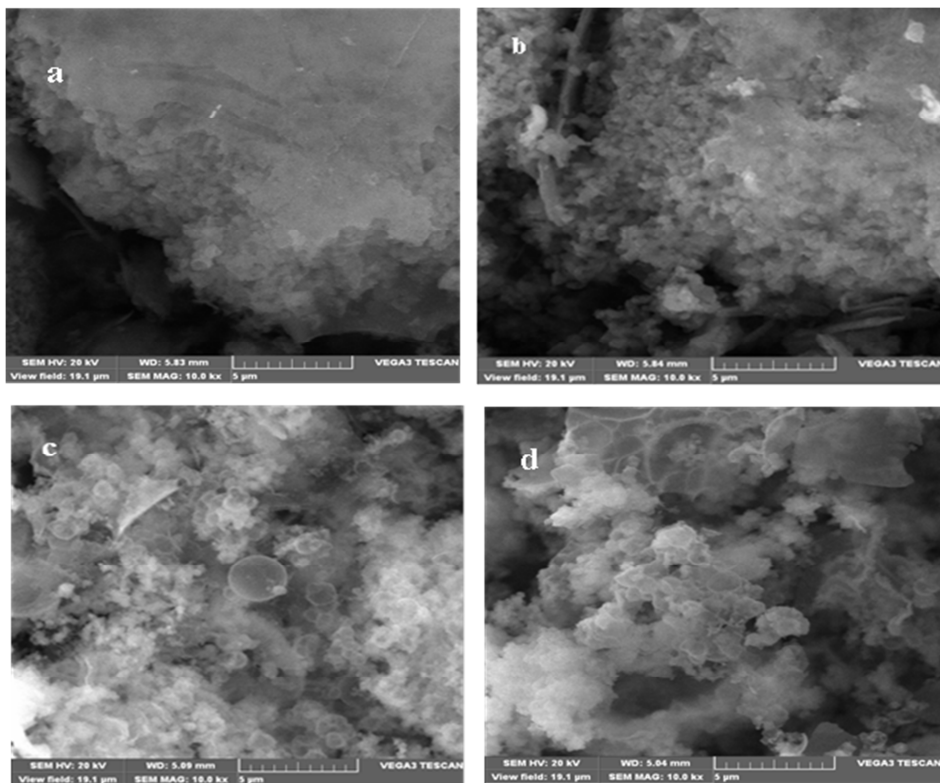


Figure 2. Scanning electron micrographs for (a) M-1, (b) M-2, (c) M-3, (d) M-4.

TABLES/TABLÖLAR

Table 1. BET surface area values and pore volume of M-1, M-2, M-3 and M-4.

Sample	BET surface area values (m ² /g)	Pore volume (cc/g)
M-1	959	0.805
M-2	1299	1.078
M-3	345	0.176
M-4	606	0.407

REFERENCES/KAYNAKLAR

[1] Jentys A, Pham N H, Vinek H, Englisch M, Lercher J A. SYNTHESIS AND CHARACTERIZATION OF MESOPORIC MATERIALS CONTAINING HIGHLY DISPERSED COBALT. *Micropor. Mater.* 1996 68:13-17.

[2] Beck J S, Vartuli J C, Roth W J, Leonowicz M E, Kresge C T, Schmitt K D, Chu C T, Olson D H, Sheppard E W, McCullen S B, Higgins J B, Schlenker J L. A NEW FAMILY OF MESOPOROUS MOLECULAR SIEVES PREPARED WITH LIQUID CRYSTAL TEMPLATES. *Journal of the American Chemical Society*, 1992 114:10834-10843.

[3] Fu L, Zhang H. PREPARATION, CHARACTERIZATION AND LUMINESCENT PROPERTIES OF MCM-41 TYPE MATERIALS IMPREGNATED WITH RARE EARTH COMPLEX. *J. Mater. Sci. Technol.* 2001 17(3):293-298.

[4] Blin J L, Otjacques C, Herrier G, B L. KINETIC STUDY OF MCM-41 SYNTHESIS. *International Journal of Inorganic Materials* 2001 3(1):75-86.

[5] Laha S C, Mukherjee P, Kumar R. SYNTHESIS AND CHARACTERIZATION OF SURFACE-MODIFIED AND ORGANIC-FUNCTIONALIZED MCM-41 TYPE ORDERED MESOPOROUS MATERIALS. *Bull. Mater. Sci.* 1999 22(3):623-626.

[6] Yu J, Shi J L, Wang L Z, Ruan M L, Yan D S. PREPARATION OF HIGH THERMAL STABILITY MCM-41 IN THE LOW SURFACTANT/SILICON MOLAR RATION SYNTHESIS SYSTEMS. *Materials Letters* 2001 48:112-116.