



(12)

BREVET DE INVENȚIE

(21) Nr. cerere: **a 2017 00659**

(22) Data de depozit: **15/09/2017**

(45) Data publicării mențiunii acordării brevetului: **30/12/2020** BOPI nr. **12/2020**

(41) Data publicării cererii:
29/03/2019 BOPI nr. **3/2019**

(73) Titular:

- **INSTITUTUL DE CHIMIE FIZICĂ "ILIE MURGULESCU"**, SPLAIUL INDEPENDENȚEI NR. 202, SECTOR 6, BUCUREȘTI, B, RO;
- **UNIVERSITATEA POLITEHNICA DIN BUCUREȘTI**, SPLAIUL INDEPENDENȚEI NR.313, SECTOR 6, BUCUREȘTI, B, RO

(72) Inventatori:

- **CULIȚĂ DANIELA CRISTINA**, ȘOSEAUA PANTELIMON, NR.256, BL.53, SC.A, AP.42, SECTOR 2, BUCUREȘTI, B, RO;
- **SIMONESCU CLAUDIA MARIA**, STR. PICTOR ȘTEFAN DIMITRESCU NR.15, BL.13, SC.2, AP.34, SECTOR 4, BUCUREȘTI, B, RO;
- **MARINĚSCU GABRIELA**, STR. GEORGE BOGDAN TUDOR, NR.2, BL. 20B, SC.1, AP.15, SECTOR 3, BUCUREȘTI, B, RO;

- **PĂTESCU RODICA ELENA**, SAT MANICESTI, NR.102, COMUNA BĂICULEȘTI, AG, RO;
- **ȚARDEI CRISTU**, STR.PROF.DR.ȘTEFAN S.NICOLAU NR.11, BL.G 1, AP.15, SECTOR 3, BUCUREȘTI, B, RO;
- **DELEANU CARMEN**, BD.2 GRĂNICERI, BL.25, SC.A, AP.13, FĂLTICENI, SV, RO

(56) Documente din stadiul tehnicii:

- "Adsorption of heavy metals on functionalized-mesoporous silica"
E. Dana, Microporous and Mesoporous Materials, Vol. 247, 15 July 2017, Pages 145-157; Wu, F. Li, R. Xu, S. Wei, G. Li, "Synthesis of thiol-functionalized MCM-41 mesoporous silicas and its application in Cu(II), Pb(II), Ag(I) and Cr(III) removal", Journal of Nanoparticle Research 2010, 12, 2111-2124; "Versatility o Evaporation-Induced Self-Assembly (EISA) Method for Preparation of Mesoporous TiO₂ for Energy and Environmental Applications", Mahoney, R.T. Koodali, Materials 2014, 7, pag. 2697-2746.

(54) **PROCEDEU DE OBTINERE A UNUI ADSORBANT PE BAZĂ DE SILICE MEZOPOROASĂ FUNCȚIONALIZATĂ PENTRU ADSORBȚIA IONILOR PB²⁺ DIN SOLUȚII APOASE**



RO 133147 B1

1 Invenția se referă la un procedeu pentru obținerea unui material adsorbant pe bază de
silice mezoporoasă funcționalizată cu 2-hidroxi-3-metoxibenzaldehidă, cu capacitate ridicată
3 de adsorbție a ionilor Pb^{2+} din soluții apoase.

5 Poluarea cu ioni ai metalelor grele (Pb, As, Cd, Hg, Cu etc.) reprezintă una dintre cele
mai stringente probleme de poluare a mediului cu care se confruntă omenirea. Ca și în cazul
7 altor poluanți, când se depășesc limitele maxime admise, ionii metalelor grele afectează grav
organismele vii datorită toxicității și capacității lor de a se bioacumula în diverse țesuturi. Din
9 categoria metalelor grele, plumbul este unul dintre cele mai utilizate în activități industriale
precum rafinarea țițeiului, fabricarea bateriilor, industria extractivă, placarea metalelor etc. Limita
11 maximă de Pb^{2+} în apa potabilă, admisă de Organizația Mondială a Sănătății și de Uniunea
Europeană este de 10 $\mu g/L$. Din acest motiv îndepărtarea Pb^{2+} din apele reziduale, utilizând
13 diverse materiale și tehnologii, a devenit în ultimii ani un subiect deosebit de important și intens
investigat datorită impactului asupra sănătății populației și asupra mediului.

15 Metodele cele mai utilizate de eliminare a ionilor metalelor grele sunt: precipitarea chi-
mică, flotația, schimbul ionic, coagularea-flocularea, adsorbția, filtrarea prin membrane, osmoza
17 directă și inversă. Dintre acestea, adsorbția este considerată una dintre cele mai eficiente,
economice, facile și selective metode de eliminare a contaminanților din ape. Materialele
adsorbante cele mai performante sunt cele care îndeplinesc cumulativ mai multe condiții:
19 suprafață specifică mare, porozitate bine definită cu dimensiuni ale porilor care să permită
accesul facil al contaminanților la centrul de adsorbție și o cinetică rapidă, proprietăți ale supra-
21 feței care să determine o capacitate ridicată de adsorbție, posibilitate de regenerare și reutili-
zare în mai multe cicluri de adsorbție-desorbție. Până în prezent au fost studiate numeroase
23 materiale adsorbante, dintre care cele mai importante sunt: cărbunele activ, silicea mezo-
poroasă, zeoliții, oxizii metalici, mineralele argiloase, rocile fosfatice, apatitele, biopolimerii
25 (exemplu: chitosan). Fiecare dintre aceste materiale prezintă atât avantaje cât și dezavantaje,
care în funcție de raportul lor, determină utilizarea practică a acestora. Silicea mezoporoasă se
27 remarcă datorită proprietăților texturale deosebite pe care le are: suprafață specifică și volum
mare de pori, distribuție dimensională a porilor îngustă și controlabilă. Volumul mare de pori și
29 distribuția dimensională a acestora permit o mai ușoară accesibilitate a ionilor metalici/mo-
leculelor organice la suprafața internă a silicei mezoporoase, ceea ce conduce la procese de
31 adsorbție mult mai rapide în comparație cu alte materiale adsorbante. Deoarece controlul precis
al structurii și proprietăților (în special al porozității) materialelor mezoporoase este un factor
33 determinant în aplicațiile acestora, strategiile de sinteză trebuie adaptate în așa fel încât să
conducă la obținerea proprietăților dorite.

35 Este cunoscută din articolul ("**Adsorption of heavy metals on functionalized-
mesoporous silica**" - E. Da'na, **Microporous and Mesoporous Materials, Vol. 247, 15 July
37 2017, Pages 145-157**) performanța adsorbantilor de metale grele, pe bază de silice mezo-
poroasă, punându-se accent pe factorii care o afectează, cum ar fi proprietățile structurale, pro-
39 prietățile chimice ale grupărilor funcționale și proprietățile structurii anorganico-organice com-
binate. Articolul include adsorbantii sintetizați prin două căi de sinteză majore și anume grefarea
41 și co-condensarea.

43 Metodele tradiționale cele mai cunoscute de sinteză a materialelor pe bază de silice
mezoporoasă sunt cele hidrotermale și respectiv sol-gel, utilizând agenți de direcționare a
45 structurii de tipul surfactanților anionici, cationici sau neutri, și o sursă de silice, în diverse
condiții de pH, temperatură, presiune și diferiți solvenți. Sinteza hidrotermală constă, în prin-
47 cipiu, în adăugarea sursei de silice la o soluție acidă sau bazică de surfactant, de concentrație
cunoscută, pentru a se obține un gel apos care mai apoi este supus unui tratament termic la o
anumită temperatură și pentru un anumit interval de timp, în autoclavă, pentru a cristaliza.

Materialul obținut este apoi spălat, uscat și prelucrat prin calcinare sau extracție pentru a îndepărta surfactantul utilizat și a obține silicea mezoporoasă. Metoda prezintă o serie de dezavantaje, dintre care cele mai importante sunt consumul mare de energie și de timp. De asemenea, prezența mediului apos determină hidroliza rapidă a organosilanilor utilizați în scopul funcționalizării suprafeței, deci un grad mai redus de condensare între aceștia și matricea de silice, și în consecință o cantitate redusă de grupări funcționale pe suprafață. Pe de altă parte, metoda sol-gel este o metodă relativ simplă în cadrul căreia precursorii de silice sunt dispersați într-un solvent, de obicei alcool, la temperaturi scăzute ($< 100^{\circ}\text{C}$). Într-o primă etapă se formează particule coloidale independente, care de cele mai multe ori sunt foarte bine dispersate în solvent, obținându-se o suspensie coloidală numită sol. În timp, particulele coloidale se agregă pentru a forma o rețea tridimensională deschisă, numită gel. Cele două reacții importante în procesul sol-gel, hidroliza și condensarea, conduc la formarea punților de tip M-OH-M sau M-O-M.

Este cunoscută din articolul, (**“Synthesis of thiol-functionalized MCM-41 mesoporous silicas and its application in Cu(II), Pb(II), Ag(I), and Cr(III) removal”**S. Wu, F. Li, R. Xu, S. Wei, G. Li, *Journal of Nanoparticle Research* 2010, 12, 2111-2124) sinteza silicei mezoporoase de tip MCM-41 cu structură hexagonală, funcționalizată cu grupări tiol, printr-o metodă sol-gel, și anume EISA (autoasamblarea indusă prin evaporare) și aplicarea sa în îndepărtarea Cu (II), Pb (II), Ag (I) și Cr (III) din soluții apoase.

Din articolul (**“Versatility of Evaporation-Induced Self-Assembly (EISA) Method for Preparation of Mesoporous TiO₂ for Energy and Environmental Applications”**- L. Mahoney, R.T. Koodali, *Materials* 2014, 7, pag. 2697-2746) este cunoscut mecanismul metodei de sinteză EISA și parametrii care influențează procesul de sinteză.

De cele mai multe ori eficiența adsorbanților pe bază de silice mezoporoasă depinde de existența unor situsuri specifice care să faciliteze procesul de adsorbție. Din acest motiv, multe studii recente s-au focalizat pe imobilizarea diferitelor grupări funcționale pe pereții interni ai mezoporilor de silice. Există 3 căi principale prin care se poate atinge acest obiectiv:

- utilizarea unui silan funcționalizat în procesul de sinteză al silicei mezoporoase;
- co-condensarea unui organosilan împreună cu precursorul de silice;
- grefarea ulterioară a silicei mezoporoase.

Dintre acestea, co-condensarea prezintă cele mai multe avantaje, cum ar fi: imobilizarea unui număr mare de grupări funcționale și distribuția uniformă a acestora pe suprafața silicei.

Problema tehnică pe care o rezolvă invenția constă în obținerea unui material adsorbant pe bază de silice mezoporoasă funcționalizată cu suprafață specifică mare, cu capacitate mare de adsorbție a ionilor de Pb^{2+} din soluții apoase.

Procedeul conform invenției elimină dezavantajele metodelor hidrotermale de obținere a silicei mezoporoase funcționalizate, prin aceea că utilizează o strategie simplă de sinteză, și anume autoasamblarea indusă prin evaporare (EISA), o metodă sol-gel cu consum energetic și costuri reduse, și conduce la obținerea unei structuri mezoporoase bine definite și ordonate, cu o densitate mare de grupări amino pe suprafața internă a porilor, care printr-o reacție de condensare simplă cu un agent chelator (2-hidroxi-3-metoxibenzaldehida) conduce la obținerea unui material adsorbant cu suprafață specifică și volum mare de pori și, respectiv, cu o distribuție dimensională a porilor ce permite adsorbția facilă și rapidă a ionilor metalici Pb^{2+} din soluții apoase. Capacitatea de adsorbție a materialului obținut față de ionii Pb^{2+} din soluții apoase este superioară majorității materialelor pe bază de silice mezoporoasă cu structură ordonată raportate în literatura de specialitate (tabelul 1).

RO 133147 B1

1 *Capacitatea de adsorbție a ionilor Pb a unor materiale pe bază de silice mezoporoasă*

3 *Tabelul 1*

5	Material adsorbant	Capacitatea de adsorbție maximă (mg/g)
7	silice mezoporoasă (AMS)	4,57
	SBA-15 funcționalizată cu grupări amino (particule cu formă lamelară)	12,85
9	silice mezoporoasă sub formă de sfere goale încărcate cu polimeri amprentați molecular (H-MIPs)	40,80
11	compozite hibride de tip silice modificată cu alginat de calciu-gumă xantan	18,9
13	SBA-15 funcționalizată cu grupări tiol (particule cu structură de fibre)	25,9
	silice funcționalizată cu tetrasulfură	46,3
15	MCM-41 obținută în câmp de microunde	58,5
	silice mezoporoasă - particule sferice (SMSM)	59,3
17	MCM-41 funcționalizată cu grupări mercapto	66,04
	KIT-6 funcționalizată cu -COOH	75
19	silice mezoporoasă funcționalizată cu N-(2-aminoetil)-3-aminopropil metildimetoxisilan (NH ₂ -HMS)	119,04
21	SBA-15 modificată cu tetrakis(4-hidroxifenil) porfirina (THPP-SBA-15)	134
	HMS funcționalizată cu grupări amino	89
23	silice mezoporoasă funcționalizată cu grupări amino obținută prin metoda EISA	85,34

25
27
29
31
33
35
Procedeul conform invenției constă în utilizarea unei soluții alcoolice ce conține unul sau doi surfactanți, cu o concentrație inițială foarte scăzută, împreună cu un silan și un organosilan, din care se dezvoltă gradual o mezofază cristalină, la temperatura camerei, pe măsură ce solventul se evaporă. Co-condensarea lentă a matricii anorganice cu faza cristalină lichidă conduce la formarea unei mezostructuri bine definite de silice ce conține o densitate mare de grupări amino, care printr-un proces facil de condensare ulterioară cu un agent chelator, determină obținerea unui material adsorbant foarte eficient pentru îndepărtarea ionilor Pb²⁺ din soluții apoase. Procedeul este foarte eficient și flexibil și permite sinteza rațională și controlată a unor mezostructuri de silice prin ajustarea judicioasă a parametrilor care influențează procesul.

37
Procedeul de obținere a adsorbantului pe bază de silice mezoporoasă funcționalizată cu 2-hidroxi-3-metoxibenzaldehidă, conform invenției, cuprinde următoarele etape:

39
41
43
- Obținerea silicei mezoporoase cu conținut de grupări amino, cu structură poroasă ordonată și volum mare de pori. Sinteza silicei mezoporoase cu conținut de grupări amino se realizează printr-o metodă sol-gel de autoasamblare indusă prin evaporare, în prezența a doi agenți de direcționare a structurii, bromura de cetiltrimetilamoniu (CTAB) și hidroxidul de tetraetilamoniu (TEAOH). Într-o primă fază are loc solubilizarea bromurii de cetiltrimetilamoniu în alcool etilic absolut, la temperatura camerei, prin agitare puternică pe un agitator magnetic,

RO 133147 B1

1 timp de 2 h. Concomitent are loc prehidroliza lentă a aminopropiltriethoxisilanului (APTES) în
2 mediu de etanol absolut (EtOH) acidifiat cu HCl 2M, timp de 1,5 h, urmată de adăugarea celui
3 de al doilea surfactant (TEAOH) și agitarea amestecului în continuare pentru încă 30 min.
4 Următoarea fază constă în adăugarea, sub agitare puternică, a soluției alcoolice de CTAB peste
5 amestecul de APTES prehidrolizat și TEAOH, urmată de adăugarea în picătură a tetra-
6 etoxisilanului (TEOS), cu formarea unei soluții opalescente. După aproximativ 20...30 min de
7 agitare puternică, soluția opalescentă gelificază. După 1 h de agitare continuă, gelul rezultat se
8 lasă să se evapore la temperatura camerei timp de 48 h. Hidroliza totală a surselor de silice se
9 realizează prin adăugarea de apă distilată la gelul uscat și menținerea suspensiei rezultate la
10 temperatura camerei, în condiții statice, timp de 48 h. Procesul este urmat de separarea fazei
11 solide de silice prin centrifugare la 4000 rpm, timp de 10 min, și spălarea acestuia cu apă
12 distilată de 3 până la 5 ori. În faza următoare, pentru îndepărtarea surfactanților din porii silicei,
13 aceasta se refluxează 6 h în metanol acidifiat cu HCl 2M, și ulterior încă 6 h într-o soluție
14 etanolică de azotat de amoniu de concentrație 2 g/L. După separarea prin centrifugare, urmată
15 de un ciclu de spălare cu etanol, faza solidă de silice mezoporoasă cu conținut de grupări amino
(notată m-SiO₂-NH₂) se usucă în etuvă la 70°C, timp de 6 h.

16 - Funcționalizarea silicei mezoporoase m-SiO₂-NH₂ cu 2-hidroxi-3-metoxibenzaldehida. 17
18 Procedeu constă în condensarea grupărilor amino existente în structura silicei mezoporoase
19 cu grupările aldehydice ale moleculelor de 2-hidroxi-3-metoxibenzaldehidă, cu formarea unor
20 legături de tip imină cu proprietăți chelatoare față de ioni ai metalelor tranzitionale. Într-o primă
21 fază are loc solubilizarea 2-hidroxi-3-metoxibenzaldehidei în metanol absolut, prin agitare
22 puternică (-500 rpm) pe un agitator magnetic, timp de 5 min. Următoarea fază constă în adău-
23 garea silicei mezoporoase m-SiO₂-NH₂ la soluția de 2-hidroxi-3-metoxibenzaldehidă și refluxa-
24 rea amestecului obținut la 80°C, timp de 8 h. După finalizarea reacției, faza solidă galbenă de
25 silice funcționalizată cu 2-hidroxi-3-metoxibenzaldehidă este separată din amestecul de reacție
26 prin centrifugare și spălată de trei ori cu metanol absolut, apoi uscată în etuvă la 75°C, timp de
27 6 h.

28 În experimente s-au utilizat materii prime de puritate înaltă (TEOS, APTES, CTAB,
29 soluție apoasă TEAOH 20%, EtOH absolut > 99,5%, HCl 2M, apă bidistilată). Materialul obținut
30 a fost caracterizat din punct de vedere structural, textural și morfologic, prin spectroscopie FTIR,
31 adsorbție - desorbție de azot (analyzer de suprafață specifică și porozitate ASAP 2020,
32 Micromeritics) și prin microscopie electronică de baleiaj SEM (microscop electronic de înaltă
33 rezoluție FEI Quanta 3D FEG). Determinarea concentrației ionilor Pb²⁺ în soluțiile apoase
34 utilizate pentru efectuarea experimentelor de adsorbție s-a realizat cu ajutorul unui spectrometru
35 de adsorbție atomică .

36 Într-un vas de reacție tip pahar Berzelius se solubilizează 2,19 g CTAB în 40 g EtOH
37 absolut, prin agitare puternică (~ 750 rpm), pe un agitator magnetic, la temperatura camerei,
38 timp de 2 h, până la obținerea unei soluții limpezi. Concomitent, într-un alt pahar Berzelius, se
39 prehidrolizează lent 1,76 g APTES în 20 g EtOH absolut acidifiat cu 0,4 g HCl 2M, timp de 1,5 h,
40 la temperatura camerei, apoi se adaugă 3,6 g TEAOH sub agitare continuă (~ 500 rpm) și se
41 menține amestecul în aceleași condiții pentru încă 30 min. Ulterior soluția alcoolică de CTAB
42 se adaugă, sub agitare puternică, peste amestecul de APTES prehidrolizat și TEAOH. La ames-
43 tecul rezultat se adaugă în picătură și sub agitare continuă 6,64 g TEOS, obținându-se o soluție
44 opalescentă care gelificază după aproximativ 20...30 min de agitare. După o oră de agitare
45 puternică, gelul rezultat se transferă într-un cristalizor din sticlă, cu diametrul de 140 mm, și se
46 lasă să se evapore la temperatura camerei timp de 48 h. Hidroliza totală a surselor de silice se
47 realizează prin adăugarea a 20 ml apă distilată la gelul uscat și menținerea suspensiei rezultate
la temperatura camerei, în condiții statice, timp de 48 h. Procesul este urmat de separarea fazei

RO 133147 B1

1 solide de silice prin centrifugare la 4000 rpm, timp de 10 min, și spălarea acesteia cu apă
2 distilată de 3 ori. În etapa următoare, pentru îndepărtarea surfactanților din porii silicei, aceasta
3 se refluxează timp de 6 h în 100 ml metanol acidifiat cu câteva picături de HCl 2M, și ulterior,
4 după separarea din soluția metanolică, se refluxează încă 6 h în 100 ml soluție etanolică de
5 azotat de amoniu de concentrație 2 g/L. După separarea prin centrifugare a fazei solide de silice
6 mezoporoasă, aceasta este supusă unui ciclu de spălare cu EtOH absolut și apoi uscării în
7 etuvă la 70°C, timp de 6 h. După uscare se obține o cantitate de 3,95 g silice mezoporoasă cu
8 conținut de grupări amino.

9 *Funcționalizarea silicei mezoporoase cu 2-hidroxi-3-metoxibenzaldehida*

10 Într-un balon din sticlă termorezistentă, se introduc 0,6 g 2-hidroxi-3-metoxibenzaldehidă
11 care se solubilizează în 40 ml metanol absolut, prin agitare puternică pe un agitator magnetic
12 (~ 500 rpm), timp de 5 min, la temperatura camerei. Peste soluția rezultată se adaugă 0,6 g
13 silice mezoporoasă cu conținut de grupări amino. Amestecul de reacție astfel rezultat se
14 refluxează la 80°C, timp de 8 h. După finalizarea reacției, faza solidă galbenă de silice funcțio-
15 nalizată cu 2-hidroxi-3-metoxibenzaldehidă este separată din amestecul de reacție prin centri-
16 fugare și spălată de trei ori cu câte 40 ml metanol absolut. După tratamentul termic de uscare
17 în etuvă la 75°C, timp de 6 h, se obține o pulbere fină, omogenă (fig. 1), de silice mezoporoasă
18 funcționalizată cu 2-hidroxi-3-metoxibenzaldehidă (m-SiO₂-NH-VAN) cu următoarele caracte-
19 ristici: suprafață specifică BET determinată din izoterma de adsorbție (fig. 2) de 485 m²/g,
20 volum total de pori de 1,52 cm³/g, distribuția dimensională a porilor determinată din izoterma
21 de desorbție prin metoda BJH (Barrett Joyner Halenda) cuprinsă între 2 și 23 nm (fig. 3), cu o
22 valoare medie de 10,6 nm. Spectrul de vibrație FTIR (fig. 4) a confirmat grefarea 2-hidroxi-3-
23 metoxibenzaldehidei pe suprafața silicei prin prezența benzii caracteristice vibrației legăturii
24 azometinice rezultată prin condensare, la 1624 cm⁻¹.

25 *Evaluarea capacității de adsorbție a ionilor Pb²⁺ pe silicea mezoporoasă funcționalizată* 26 *cu 2-hidroxi-3-metoxibenzaldehidă*

27 Experimentele de adsorbție s-au realizat în regim discontinuu, utilizând soluții apoase
28 sintetice de Pb(NO₃)₂ de diverse concentrații. Toate testele de echilibru s-au efectuat prin
29 agitarea a 0,025 g adsorbant m-SiO₂-NH-VAN cu 25 ml soluție apoasă de Pb²⁺ de concentrație
30 cunoscută, la temperatura camerei, timp de 24 h, pe un shaker orbital la 150 rpm. După
31 atingerea echilibrului, soluțiile au fost filtrate, iar concentrația reziduală de plumb în filtrat s-a
32 determinat prin spectrometrie de adsorbție atomică. Pe baza rezultatelor obținute s-a determinat
33 că modelul care descrie cel mai bine procesul de adsorbție a ionilor Pb²⁺ pe suprafața
34 adsorbantului este modelul izotermei Langmuir. Capacitatea maximă de adsorbție determinată
35 utilizând acest model este de 142,86 mg/g.

36 Pentru a stabili cinetica procesului de adsorbție, s-a studiat efectul timpului de contact
37 asupra adsorbției ionilor Pb²⁺ pe silicea mezoporoasă funcționalizată cu 2-hidroxi-3-metoxi-
38 benzaldehidă, în intervalul de timp 0...360 min, la pH = 6, utilizând soluții cu diverse concentrații
39 de Pb(II) (fig. 5). Rezultatele experimentale obținute au demonstrat că procesul de adsorbție
40 a ionilor Pb²⁺ pe silicea mezoporoasă funcționalizată cu 2-hidroxi-3-metoxibenzaldehidă poate
41 fi descris folosind modelul cinetic de pseudo-ordinul II conform căruia adsorbția decurge prin
42 intermediul unor interacțiuni chimice între grupările funcționale de pe suprafața adsorbantului
43 și ionii Pb²⁺ din soluția apoasă. Procesul este foarte rapid, în primele 60 min fiind adsorbită 93%
din cantitatea totală de ioni Pb²⁺ reținută de acest material adsorbant.

RO 133147 B1

Revendicări

1

1. Material adsorbant pe bază de silice mezoporoasă funcționalizată, **caracterizat prin aceea că**, are o suprafață specifică BET de 485 m²/g, volum total de pori de 1,52 cm³/g și o distribuție a dimensiunii porilor cuprinsă între 2...23 nm, cu capacitate maximă de adsorbție a ionilor Pb²⁺ din soluții apoase de 142,86 mg/g. 3 5

2. Procedeu pentru obținerea unui material adsorbant pe bază de silice mezoporoasă conform revendicării 1, **caracterizat prin aceea că**, cuprinde următoarele etape: 7

- obținerea fazei de silice mezoporoasă cu conținut de grupări amino, printr-o metodă sol-gel de autoasamblare indusă prin evaporare, în prezența a doi agenți de direcționare a structurii, bromura de cetiltrimetilamoniu și hidroxidul de tetraetilamoniu 9 11

care facilitează obținerea unui volum mare de pori cu dimensiune medie superioară;
- separarea fazei solide de silice prin centrifugare și spălarea acesteia cu apă distilată de minimum 3 ori; 13

- îndepărtarea agenților de direcționare a structurii din porii silicei prin refluxare în metanol acidifiat cu HCl 2M, timp de 6 h, și apoi într-o soluție etanolică de azotat de amoniu de concentrație 2 g/L, timp de încă 6 h, urmată de separarea fazei de silice mezoporoasă prin centrifugare, spălarea acesteia cu etanol și uscarea la 70°C, timp de 6 h; 15 17

- funcționalizarea silicei mezoporoase cu 2-hidroxi-3-metoxibenzaldehidă prin refluxarea la 80°C, timp de 8 h, a amestecului obținut prin adăugarea silicei mezoporoase sintetizată anterior la o soluție metanolică de 2-hidroxi-3-metoxibenzaldehidă, urmată de separarea fazei solide prin centrifugare, spălarea cu metanol absolut de minimum 3 ori, apoi uscare la 75°C, timp de 6 h. 19 21 23

(51) Int.Cl.

B01J 20/10 (2006.01);

B01J 20/02 (2006.01)

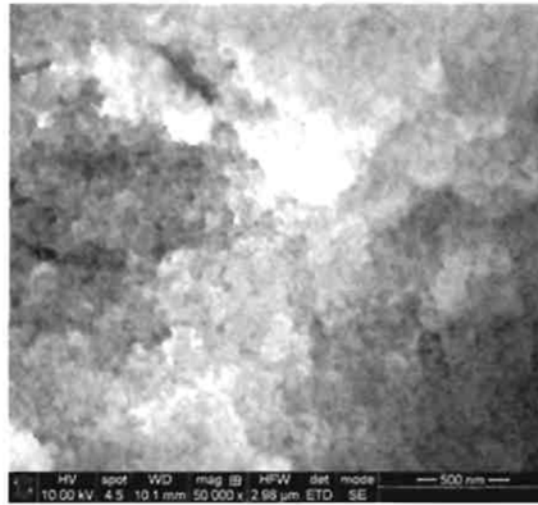


Fig. 1

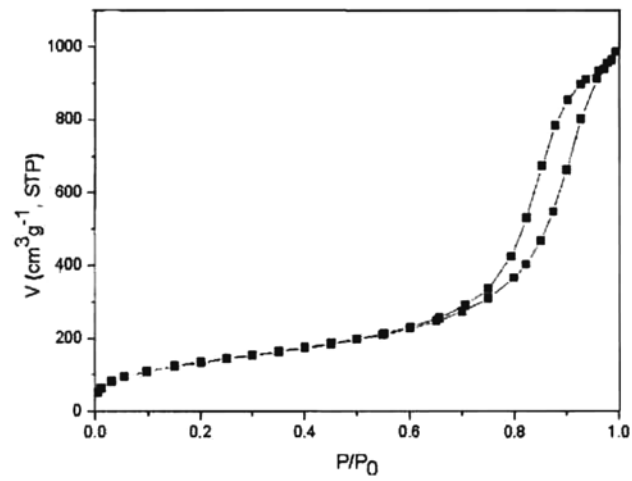


Fig. 2

(51) Int.Cl.

B01J 20/10 (2006.01);

B01J 20/02 (2006.01)

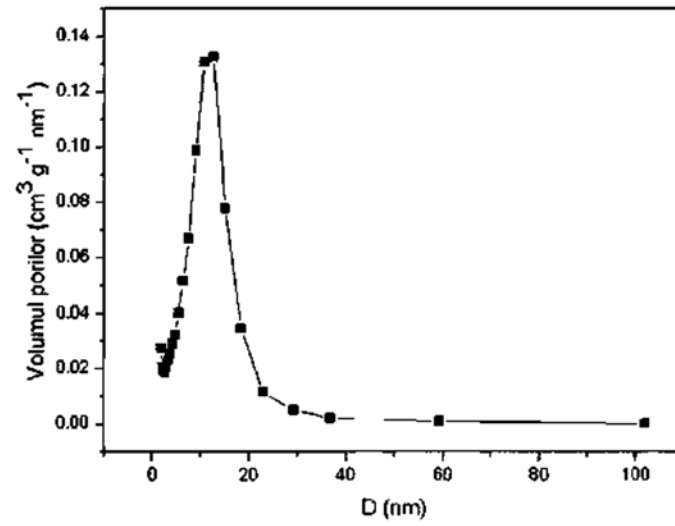


Fig. 3

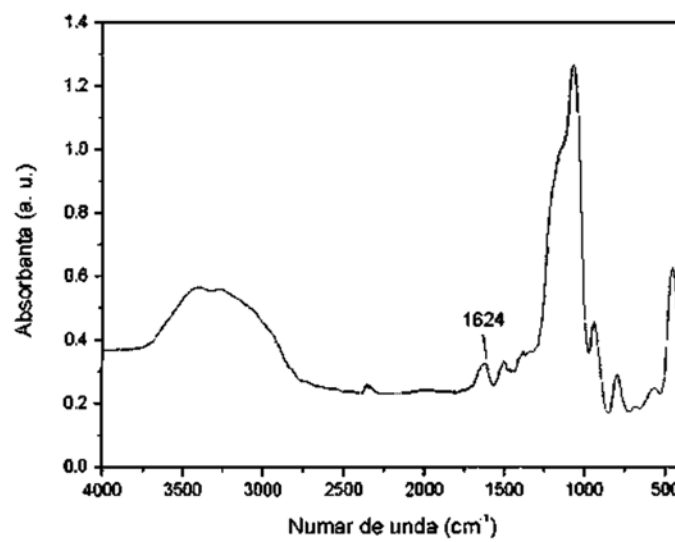


Fig. 4

(51) Int.Cl.

B01J 20/10 (2006.01);

B01J 20/02 (2006.01)

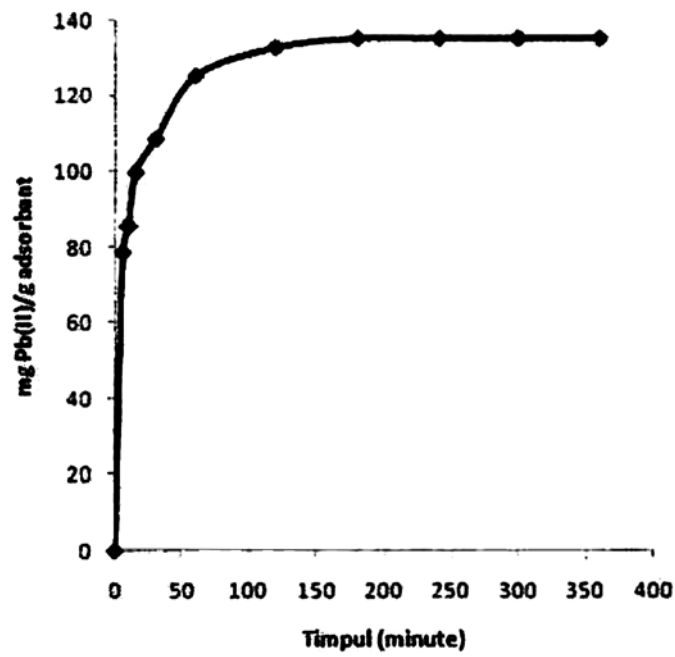


Fig. 5



Editare și tehnoredactare computerizată - OSIM
Tipărit la Oficiul de Stat pentru Invenții și Mărci
sub comanda nr. 541/2020