

## **Nghiên cứu lựa chọn vật liệu nền gốm xốp mang vật liệu khung cơ kim ứng dụng trong xử lý khí**

Lê Thanh Bắc\*, Nguyễn Thị Hoài Phương, Lê Đức Dương, Trần Văn Cường

Viện Hóa học - Vật liệu, Viện Khoa học và Công nghệ quân sự.

\*Email: lethanhbac888@gmail.com

Nhận bài: 26/8/2022; Hoàn thiện: 06/11/2022; Chấp nhận đăng: 28/11/2022; Xuất bản: 20/12/2022.

DOI: <https://doi.org/10.54939/1859-1043.j.mst.FEE.2022.221-229>

### **TÓM TẮT**

Trong bài báo này đã khảo sát một số tính chất của vật liệu gốm lọc, hạt nhôm hoạt tính có sẵn trên thị trường và vật liệu gốm nhôm oxit được chế tạo bằng phương pháp thiêu kết. Kết quả khảo sát cho thấy vật liệu hộp lọc gốm và hạt nhôm hoạt tính có tỷ trọng từ 0,9 g/cm<sup>3</sup> đến 1,26 g/cm<sup>3</sup>, độ xốp từ 50-53 %, độ hút nước từ 39-45 % trong khi vật liệu gốm nhôm oxit được chế tạo bằng phương pháp thiêu kết có tỷ trọng từ 0,64-0,73 g/cm<sup>3</sup>, độ xốp từ 69-74% và độ hút nước lên tới 108%. Kết quả mang vật liệu khung cơ kim bằng phương pháp tẩm phủ cho thấy các hạt nhôm hoạt tính và gốm lọc mang tối đa được 6 % CuBTC và 8% FeBTC theo khối lượng, trong khi đó vật liệu gốm nhôm oxit có thể mang tới 9 % CuBTC và hơn 10% FeBTC. Các kết quả thử nghiệm khả năng xử lý khí NO<sub>x</sub> và hơi dung môi axeton cho thấy vật liệu khung cơ kim trên nền gốm nhôm oxit có thể hấp phụ lên tới 19 % khí NO<sub>x</sub> và 23 % hơi axeton theo khối lượng.

**Từ khóa:** Vật liệu gốm xốp; Gốm nhôm oxit; Xử lý khí; CuBTC; FeBTC.

### **1. MỞ ĐẦU**

Xử lý khí đang là vấn đề được rất nhiều quốc gia, các tổ chức thế giới quan tâm. Với sự phát triển của các ngành công nghiệp, lượng các khí thải độc hại thải ra môi trường ngày càng tăng cao. Ô nhiễm không khí trong không khí xung quanh hiện nay đã được xác định là yếu tố nguy cơ môi trường lớn nhất trên toàn thế giới đối với sức khỏe con người [1]. Có nhiều chất ô nhiễm là yếu tố chính gây ra bệnh tật ở người điển hình như nitơ ôxít, lưu huỳnh điôxít, các hợp chất hữu cơ dễ bay hơi (VOC), điôxin và hydrocacbon thơm đa vòng (PAH) đều được coi là những chất ô nhiễm không khí có hại cho con người. Carbon monoxit thậm chí có thể gây ngộ độc trực tiếp khi hít vào ở mức độ cao [2]. Nguồn phát thải các khí này thường là từ các khu công nghiệp, các nhà máy hóa chất, hoặc từ các hoạt động của con người. Việc cắt giảm lượng khí ô nhiễm trong không khí yêu cầu sự kết hợp giữa các yếu tố kỹ thuật, cơ chế chính trị và cả mặt ý thức của con người [3].

Hiện nay, việc ứng dụng các vật liệu mới tiên tiến có độ xốp cao trong việc hấp phụ khí để xử lý tình trạng ô nhiễm môi trường đã và đang được quan tâm nhiều bởi các nhà khoa học [4, 5]. Vật liệu kết cấu khung cơ kim (MOFs) được nghiên cứu và phát triển mạnh mẽ trong 10 năm trở lại đây, bởi tính ưu việt của chúng so với các vật liệu xốp khác như diện tích bề mặt riêng cao, lên tới vài ngàn m<sup>2</sup>/g, có khả năng hấp phụ khí tốt, thân thiện với môi trường và có khả năng tái sinh cao,... [6-9]. Các vật liệu MOFs còn có khả năng điều chỉnh được thông số độ xốp từ đó có thể ứng dụng hấp phụ chọn lọc các khí độc hại có trong không khí mà không bị ảnh hưởng bởi hơi nước hay các khí khác [10].

Tuy nhiên, vật liệu khung cơ kim sau khi chế tạo thường có dạng bột mịn, rất khó để có thể sử dụng trực tiếp đặc biệt là trong lĩnh vực hấp phụ xử lý khí. Các phương pháp tạo hình hiện có được sử dụng để tạo hình MOFs thành màng, viên nén, dạng gel và dạng tổ ong. Tuy nhiên, các quá trình tạo hình thường sẽ làm suy giảm tính chất của vật liệu MOFs ban đầu như giảm diện tích bề mặt cụ thể và độ xốp [11, 12]. Do đó, điều quan trọng khi tạo hình cũng như sử dụng vật liệu MOF phải đảm bảo được độ ổn định và tính chất ban đầu của vật liệu. Chính vì vậy, trong nghiên cứu này chúng tôi lựa chọn vật liệu gốm xốp làm vật liệu nền để mang phủ vật liệu khung cơ kim ứng dụng trong xử lý một số loại khí thải.

## 2. THỰC NGHIỆM

### 2.1. Hoá chất, thiết bị

- Hoá chất: nhôm oxit  $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ , cao lanh  $\text{Al}_2(\text{Si}_2\text{O}_5)(\text{OH})_4$ ,  $\text{Na}_2\text{CO}_3$ ,  $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{CuCl}_2$ , than hoạt tính, ethanol, nước cất.
- Hạt nhôm hoạt tính và hộp lọc gồm có sẵn trên thị trường.
- Thiết bị: Cân phân tích, lò nung nhiệt độ cao.

### 2.2. Chế tạo vật liệu

#### 2.2.1. Phản ứng chế tạo vật liệu CuBTC và FeBTC

Vật liệu được chế tạo theo quy trình đã được công bố của nhóm tác giả CuBTC [13] và FeBTC [14].

#### 2.2.2. Chế tạo vật liệu nhôm oxit xốp

Vật liệu được tổng hợp theo quy trình sau:

- Cân từng chất theo tỷ lệ của đơn thành phần đã xác định thông qua khảo sát sơ bộ bao gồm: 60 % nhôm  $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$  + 30 % cao lanh  $\text{Al}_2(\text{Si}_2\text{O}_5)(\text{OH})_4$  + 10 %  $\text{Na}_2\text{CO}_3$ , trộn tiếp hỗn hợp với bột than hoạt tính và chất kết dính là PVA (tỷ lệ lần lượt là 50% và 5% tổng khối lượng).
- Tạo hình vật liệu bằng phương pháp đùn thủy lực với kích thước mẫu vật liệu hình trụ ( $\text{Ø}15 \times 20$ ) mm.
- Sấy ở  $300^\circ\text{C}$  trong 8 h trước khi nung thiêu kết.
- Tiến hành thiêu kết vật liệu ở các nhiệt độ  $1000^\circ\text{C}$ ,  $1150^\circ\text{C}$ ,  $1300^\circ\text{C}$  trong 8 h

### 2.3. Kỹ thuật phủ vật liệu MOF lên vật liệu xốp

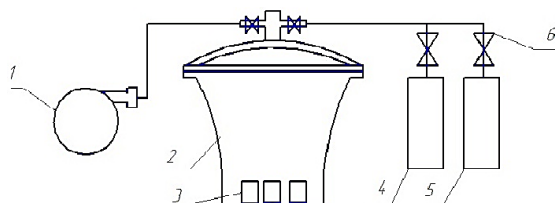
Vật liệu MOF sau khi tổng hợp được tạo dung dịch huyền phù với nước cất, phân tán bằng siêu âm trong 30 phút. Tiếp tục cho các khối vật liệu xốp vào bình và chuyển lên máy lắc, sử dụng chế độ lắc tròn trong 1 giờ. Dùng rây để tách các khối ra khỏi dung dịch huyền phù hoặc vớt bằng lưới inox. Sấy vật liệu ở  $100^\circ\text{C}$  trong 3 giờ.

### 2.4. Đánh giá tính chất của vật liệu

Các mẫu vật liệu được đánh giá hình thái học của bằng ảnh hiển vi điện tử quét (SEM) Zeiss EVO 18 tại Viện Khoa học Vật liệu, Viện Hàn lâm Khoa học và Công nghệ Việt Nam, phân tích phổ nhiễu xạ tia X (XRD) trên thiết bị X'Pert Pro tại Đại học Bách Khoa Hà Nội, đo diện tích bề mặt BET trên thiết bị Quantachrome tại Viện Hàn lâm Khoa học Công nghệ Việt Nam. Các tính chất xốp của vật liệu được xác định theo tiêu chuẩn TCVN 178:1986.

### 2.5. Đánh giá khả năng hấp phụ khí và hơi

Trước khi khảo sát khả năng hấp phụ cần phải tiến hành hoạt hóa vật liệu, ở  $100^\circ\text{C}$  trong 2 h để loại bỏ hết hơi ẩm và khí trong mao quản của vật liệu.



**Hình 1.** Sơ đồ thí nghiệm khả năng hấp phụ khí và hơi của vật liệu.

- 1 - Bơm hút chân không; 2 - Bình chân không; 3 - Mẫu thử;  
4 - Bình chứa khí; 5 - Bình hơi dung môi; 6 - Van khóa.

Cân các mẫu vật liệu trước khi đo. Đặt các mẫu đo vào bình chứa 2 (hình 1), tiến hành hút chân không, sau đó, lần lượt dẫn khí  $\text{NO}_x$  vào để đo hấp phụ khí. Để đo hấp phụ dung môi hữu cơ dễ bay hơi axeton thì các mẫu thử và 200 ml dung môi cùng đặt trong bình 2.

Cứ sau 1 h, lấy các mẫu ra cân cho đến khi khối lượng không đổi, riêng đối với mẫu đo hấp phụ NO<sub>x</sub> thì sau 6 h cân một lần. Khi đó, lượng khí và hơi bị hấp phụ đã bão hòa. Giá trị hấp phụ của vật liệu được xác định bởi sự thay đổi khối lượng của mẫu trước và sau khi đặt vào bình 2.

- Dung lượng hấp phụ được tính theo công thức:

$$P = \frac{\overline{\Delta m}}{M_0} \cdot 100\%$$

Trong đó: - P là dung lượng hấp phụ;

-  $\overline{\Delta m} = M_0 - M$  là giá trị trung bình độ thay đổi khối lượng của các mẫu thử;

- M<sub>0</sub> là khối lượng vật liệu ban đầu.

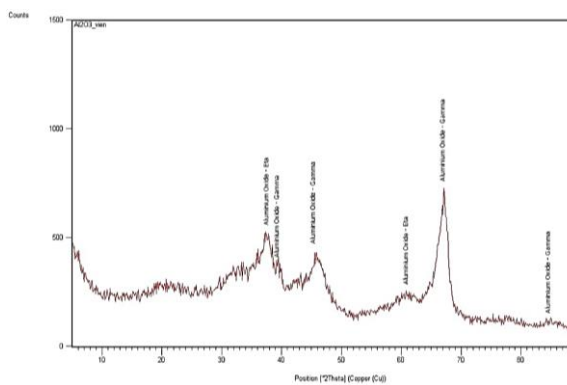
### 3. KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN

#### 3.1. Đánh giá tính chất của các vật liệu xốp

##### 3.1.1. Tính chất của hạt nhôm hoạt tính



a)



b)

**Hình 2.** Hạt nhôm hoạt tính: a) Hạt nhôm hoạt tính có sẵn trên thị trường; b) Phổ nhiễu xạ tia X của hạt nhôm hoạt tính.

Hạt nhôm hoạt tính có dạng hình cầu, màu trắng. Kết quả phân tích thành phần bằng phương pháp nhiễu xạ tia X cho thấy, thành phần chính của nhôm hoạt tính là oxit nhôm gamma.

Các tính chất xốp của hạt nhôm hoạt tính được thể hiện qua bảng 1.

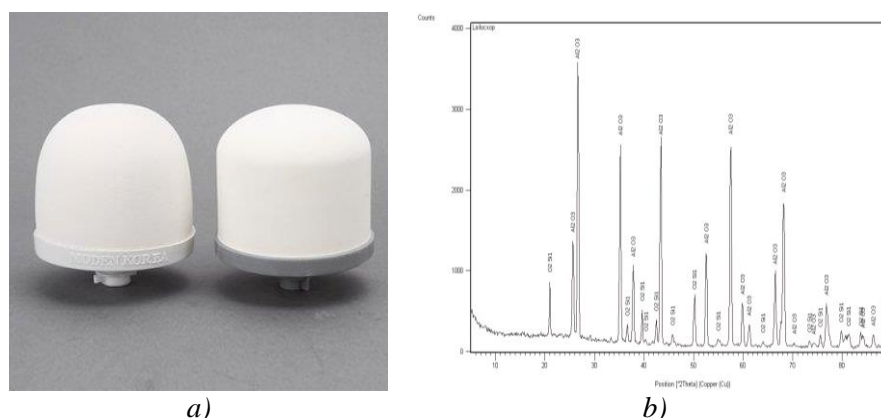
**Bảng 1.** Thông số kỹ thuật của hạt nhôm hoạt tính.

TT	Chỉ tiêu kỹ thuật	Đơn vị đo	Kết quả
1	Độ xốp	% V	50,09
2	Khối lượng riêng	g/cm <sup>3</sup>	0,92
3	Độ hút nước	%	39

Với thành phần chính là nhôm oxit trơ về mặt hóa học cùng với độ xốp cao (> 50%) nên hạt nhôm hoạt tính thường được ứng dụng chủ yếu trong hấp thụ hơi ẩm, ngoài ra hạt nhôm oxit còn được ứng dụng trong xử lý flo, asen,... [15-17].

##### 3.1.2. Tính chất của gôm lọc

Gôm lọc là sản phẩm chuyên được sử dụng trong lọc nước, với tính chất xốp, gôm lọc thường được sử dụng trong thiết bị lọc nước nhằm giữ lại các thành phần tạp chất, chất bẩn trong nước. Thành phần chính của gôm lọc là oxit nhôm và silic oxit (theo phổ nhiễu xạ tia X hình 3b). Các thông số xốp của gôm lọc được thể hiện qua bảng 2.

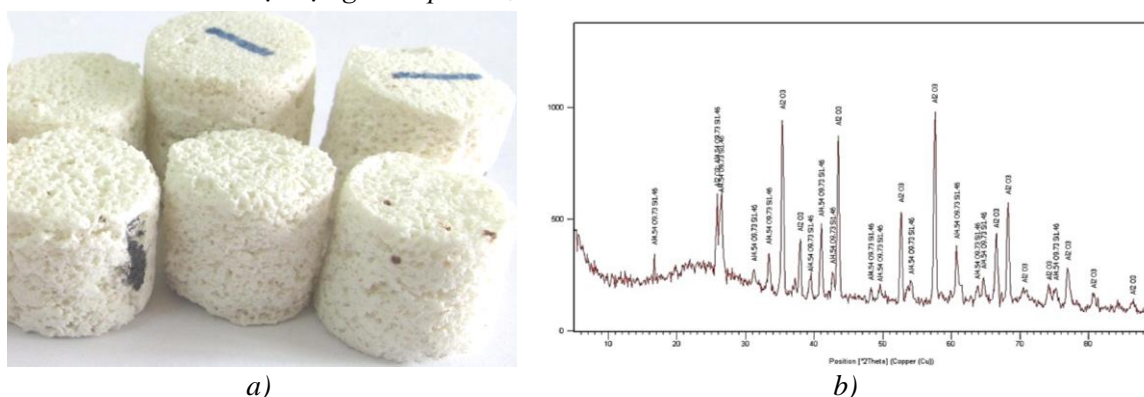


Hình 3. Gốm lọc: a) Gốm lọc có sẵn trên thị trường; b) Phổ nhiễu xạ tia X của gốm lọc.

Bảng 2. Chỉ tiêu kỹ thuật chủ yếu của gốm lọc.

TT	Chỉ tiêu kỹ thuật	Đơn vị đo	Kết quả
1	Độ xốp	% V	53,63
2	Khối lượng riêng	g/cm <sup>3</sup>	1,17
3	Độ hút nước	%	45,67

### 3.1.3. Tính chất của vật liệu gốm xốp Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>



Hình 4. Mẫu vật liệu gốm xốp Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>: a) Vật liệu xốp Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> sau khi chế tạo; b) Phổ nhiễu xạ tia X của vật liệu xốp Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.

Từ phổ nhiễu xạ tia X cho thấy, thành phần pha chủ yếu của vật liệu xốp Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> sau khi chế tạo bao gồm pha của Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> và Al<sub>2</sub>(Si<sub>2</sub>O<sub>5</sub>). Kết quả đánh giá tính chất xốp của vật liệu ở các điều kiện thiêu kết khác nhau cho thấy, khi thiêu kết đến 1000 °C vật liệu thu được có độ xốp rất cao > 71% với độ hút nước hơn 97%. Độ xốp các của vật liệu thu được nhờ quá trình thiêu kết ở nhiệt độ cao làm phân hủy các chất kết dính, đồng thời quá trình giải phóng khí CO<sub>2</sub> từ cacbon và từ Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> tạo nên các lỗ xốp hở, giúp tăng độ hút nước. Tính chất xốp tiếp tục tăng lên khi thiêu kết ở 1150 °C và đạt độ xốp tới hơn 74%. Tuy nhiên, khi tăng nhiệt độ thiêu kể lên 1300 °C tính chất xốp giảm nhẹ. Vì vậy, có thể lựa chọn nhiệt độ để thiêu kết vật liệu xốp Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ở 1150 °C.

Bảng 3. Chỉ tiêu kỹ thuật chủ yếu của các mẫu vật liệu gốm xốp Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.

TT	Nhiệt độ thiêu kết, °C	Độ hút nước, %	Độ xốp, %	Tỷ trọng, g/cm <sup>3</sup>
1	1000	97,92	71,83	0,73
2	1150	108,03	74,56	0,64
3	1300	103,69	69,59	0,72

Kết quả khảo sát tính chất xốp của các vật liệu cho thấy các vật liệu trên đều có tính chất xốp tốt (với độ hút nước cao, độ xốp lớn), phù hợp làm vật liệu nền để mang vật liệu khung cơ kim.

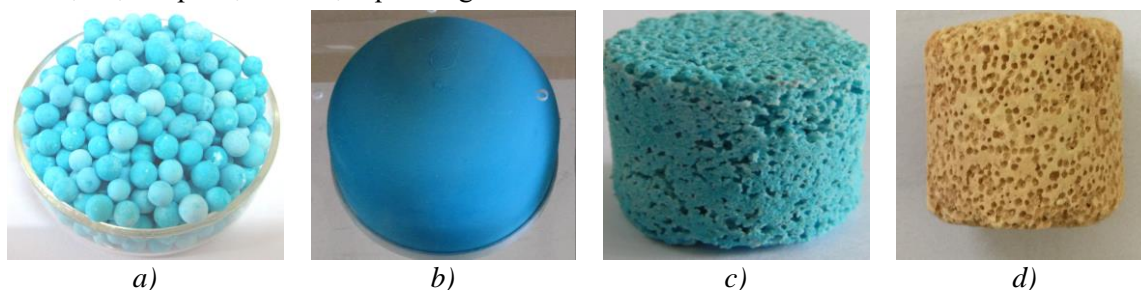
**3.2. Khả năng mang vật liệu MOF của các vật liệu xốp**



**Hình 5.** Vật liệu khung cơ kim sau khi chế tạo: a) CuBTC; b) FeBTC.

Vật liệu MOFs thu được có dạng hạt mịn, với màu sắc đặc trưng của các muối tương ứng. Các tính chất xốp đặc trưng của vật liệu đã được báo cáo ở các nghiên cứu trước của nhóm tác giả. Diện tích bề mặt vật liệu CuBTC là 1460 m<sup>2</sup>/g[13] và của FeBTC là 950 m<sup>2</sup>/g [14].

Do có dạng hạt mịn nên việc sử dụng vật liệu MOFs vào các ứng dụng khác nhau như xử lý khí, xử lý nước sẽ gặp nhiều khó khăn trong quá trình sử dụng cũng như thu hồi, Tính ứng dụng của vật liệu không chỉ dựa vào vào tính chất ưu việt của vật liệu mà còn phụ thuộc vào lĩnh vực ứng dụng, hình dạng (trạng thái tồn tại) của vật liệu. Chính vì vậy, khả năng ứng dụng của vật liệu trong xử lý môi trường còn phụ thuộc khả năng mang và vào hàm lượng của vật liệu MOF được mang lên nền vật liệu xốp. Bằng kỹ thuật lắng đọng cơ học, vật liệu khung cơ kim được đưa lên nền vật liệu xốp vào các lỗ xốp thông qua chất dẫn là dung môi (trong trường hợp này là nước). Vật liệu MOFs được phân tán đều trong nước, sau đó, theo nước dẫn đến các mao quản của vật liệu gồm xốp và bám dính lên bề mặt vật liệu gồm xốp. Kết quả mang vật liệu MOF trên các vật liệu xốp được thể hiện qua bảng 4.



**Hình 6.** Các sản phẩm vật liệu MOF trên nền vật liệu xốp:

a), b): CuBTC trên nền hạt alumina và gồm lọc;

c), d): CuBTC và FeBTC trên nền vật liệu gồm xốp Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.

**Bảng 4.** Hàm lượng mang vật liệu MOF trên các vật liệu xốp khác nhau.

TT	Vật liệu xốp	Hàm lượng MOF, % khối lượng	
		CuBTC	FeBTC
1	Hạt nhôm hoạt tính	3,0 ± 0,5	2,0 ± 0,3
2	Gôm lọc	6,0 ± 1,0	8,0 ± 0,5
3	Vật liệu gồm xốp Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	9,0 ± 2,0	10,0 ± 2,0

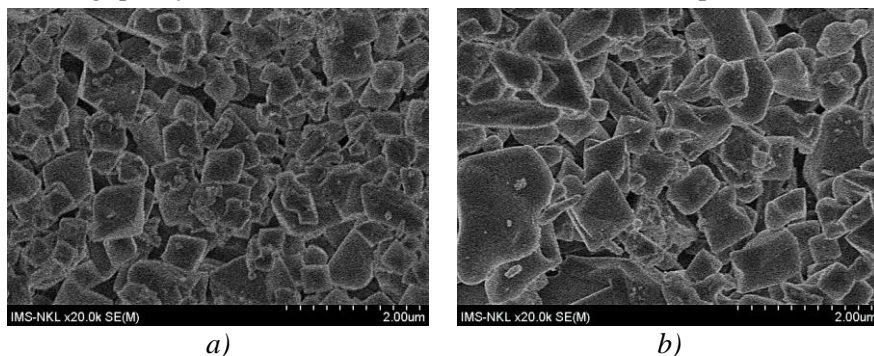
Kết quả khảo sát cho thấy, khả năng lắng đọng của vật liệu MOF lên nền vật liệu xốp khác nhau tăng theo độ xốp và độ hút nước của vật liệu của vật liệu. Vật liệu có độ xốp, độ hút nước càng lớn thì khả năng giữ vật liệu MOF càng tăng lên. Đồng thời càng nhiều lỗ xốp vi mô có kích thước phù hợp càng giúp cho quá trình lắng đọng cơ học của vật liệu MOF diễn ra thuận lợi hơn.

### 3.3. Khả năng hấp phụ một số khí và hơi của vật liệu MOF/vật liệu xốp

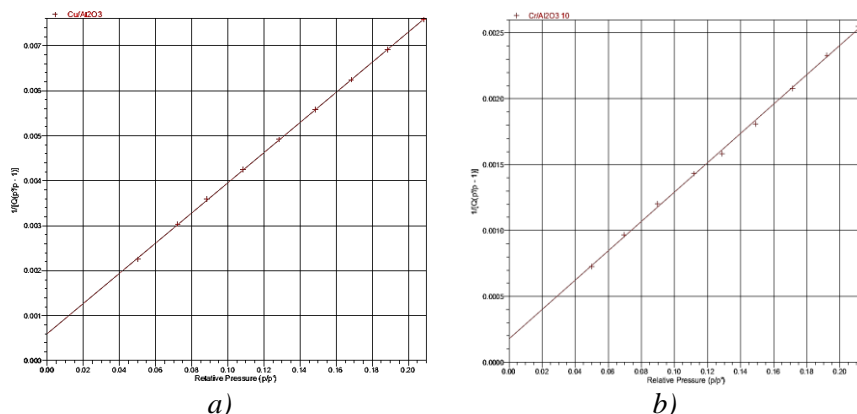
#### 3.3.1. Một số tính chất của vật liệu MOF/ vật liệu xốp

Từ kết quả khảo sát khả năng mang vật liệu MOF của các mẫu vật liệu xốp khác nhau, vật liệu gốm xốp  $Al_2O_3$  có dung lượng mang MOF là cao nhất nên phù hợp với các khảo sát hấp phụ một số khí và hơi.

Vật liệu khung cơ kim trên nền gốm xốp được khảo sát, đo đạc, đánh giá tính chất và đặc trưng vật liệu thông qua kỹ thuật nhiễu xạ tia X, ảnh SEM, đặc tính xốp,...

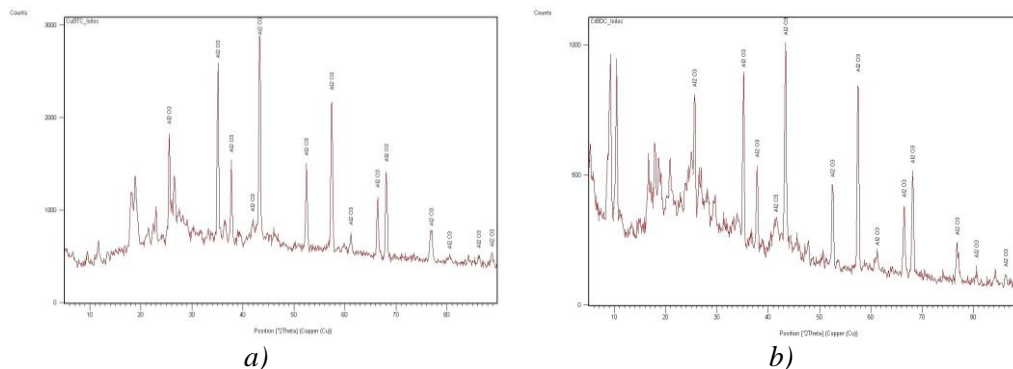


**Hình 7.** Ảnh SEM vật liệu MOF trên nền gốm xốp a) CuBTC/gốm xốp; b) FeBTC/gốm xốp.



**Hình 8.** Giản đồ BET của vật liệu CuBTC/gốm xốp (a) và FeBTC / gốm xốp (b).

Kết quả đo diện tích bề mặt thông qua hấp phụ đẳng nhiệt  $N_2$  tính toán theo phương trình BET thu được của các họ vật liệu MOF trên nền gốm xốp tương ứng là: CuBTC/gốm  $\sim 127 \text{ m}^2/\text{g}$  và FeBTC/gốm  $\sim 194 \text{ m}^2/\text{g}$ .



**Hình 9.** Giản đồ XRD của mẫu vật liệu MOF trên nền hợp lọc gốm xốp.  
a) Vật liệu FeBTC; b) Vật liệu CuBTC.

Kết quả phân tích thành phần pha của hệ vật liệu MOF trên nền gốm xốp cho thấy, các peak chính của vật liệu là bao gồm peak của vật liệu nền gốm xốp  $Al_2O_3$  và bộ peak đặc trưng của các vật liệu khung cơ kim như ở  $7^\circ$ ;  $9,7^\circ$ ;  $11,98^\circ$ ;  $13,7^\circ$ ;  $18^\circ$ ;  $19,3^\circ$  đặc trưng của FeBTC [14] (hình 9a) và  $5,5^\circ$ ;  $6^\circ$ ;  $9^\circ$ ;  $9,6^\circ$ ;  $17^\circ$  đặc trưng của CuBTC [13] (hình 9b).

Kết quả phân tích từ ảnh SEM và giản đồ pha cho thấy, sự kết hợp giữa vật liệu khung cơ kim trên nền vật liệu gốm xốp thuần túy là sự bám dính cơ học. Vật liệu khung cơ kim không bị ảnh hưởng khi được phủ lên vật liệu gốm xốp. Tính chất xốp của hệ vật liệu là sự tổng hòa giữa tính chất của vật liệu khung cơ kim và vật liệu nền gốm xốp.

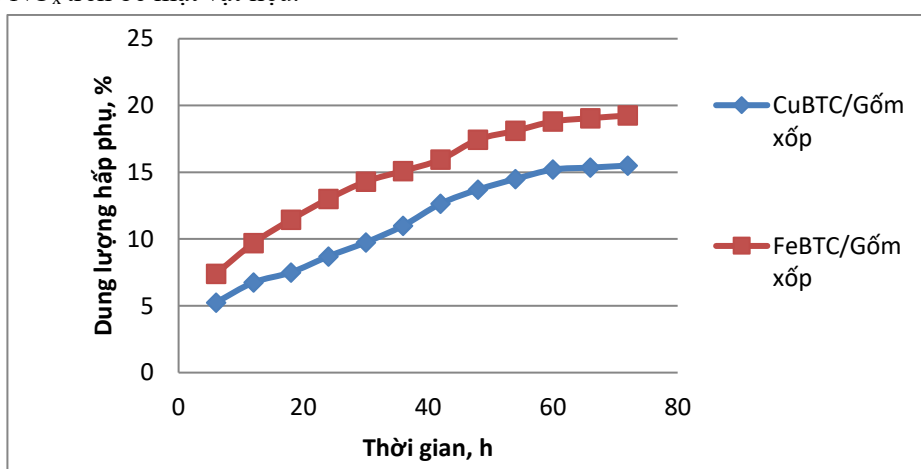
**3.3.2. Khả năng hấp phụ khí và hơi dung môi của vật liệu MOF/gốm xốp**

Kết quả thử nghiệm khả năng hấp phụ khí  $NO_x$  của vật liệu MOF/gốm xốp thể hiện ở các bảng dưới đây.

**Bảng 5. Khả năng hấp phụ khí  $NO_x$  của vật liệu MOF/gốm xốp  $Al_2O_3$ .**

Thời gian, h	Tỉ lệ % khối lượng $NO_2$ bị hấp phụ bởi CuBTC/gốm xốp và FeBTC/gốm xốp					
	CuBTC/gốm xốp			FeBTC/gốm xốp		
	M1	M2	$\bar{M}$	M1	M2	$\bar{M}$
6	5	5,5	<b>5,25</b>	7,3	7,5	<b>7,4</b>
12	6,5	6,9	<b>6,75</b>	9,5	9,9	<b>9,7</b>
18	7,3	7,7	<b>7,5</b>	11,3	11,6	<b>11,45</b>
24	8,2	9,2	<b>8,7</b>	12,9	13,1	<b>13</b>
30	9,5	9,9	<b>9,75</b>	13,8	14,8	<b>14,3</b>
36	10,5	11,5	<b>11</b>	14,6	15,6	<b>15,1</b>
42	12,4	12,9	<b>12,65</b>	15,4	16,5	<b>15,95</b>
48	13,2	14,2	<b>13,7</b>	17,2	17,7	<b>17,45</b>
54	13,9	15,1	<b>14,5</b>	17,9	18,3	<b>18,1</b>
60	14,7	15,7	<b>15,2</b>	18,7	18,9	<b>18,8</b>
66	14,8	15,9	<b>15,35</b>	18,8	19,3	<b>19,05</b>
72	15	16	<b>15,5</b>	19	19,5	<b>19,25</b>

Từ kết quả trên cho thấy, CuBTC/gốm xốp hấp phụ 15,5% khí  $NO_2$ , FeBTC/gốm xốp hấp phụ 19,25% khí  $NO_x$ . Lượng khí bị hấp phụ trên FeBTC/gốm xốp đều cao hơn hẳn so với lượng khí bị hấp phụ trên CuBTC/gốm xốp là do diện tích bề mặt của cả hệ FeBTC/gốm xốp cao hơn, bên cạnh đó ion Fe còn có khả năng tạo ái lực với nguyên tử N trong phân tử  $NO_x$  nên giúp tăng khả năng giữ  $NO_x$  trên bề mặt vật liệu.

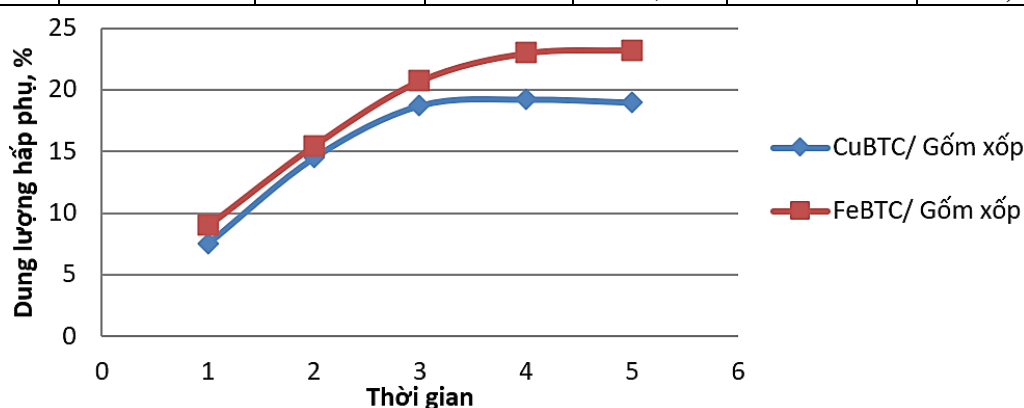


**Hình 10. Dung lượng hấp phụ khí  $NO_2$  của vật liệu khung cơ kim/ gốm xốp.**

Kết quả thử nghiệm khả năng hấp phụ hơi dung môi axeton của vật liệu được thể hiện dưới bảng 6.

**Bảng 6.** Khả năng hấp phụ hơi axeton của vật liệu MOF/gốm xốp  $Al_2O_3$ .

Thời gian, h	Tỉ lệ % khối lượng acetone					
	CuBTC/gốm xốp			FeBTC/gốm xốp		
	M1	M2	$\bar{M}$	M1	M2	$\bar{M}$
1	8	7	7,5	7,5	10,5	9
2	15,5	13,5	14,5	15	16	15,5
3	18,5	19	18,75	20,5	21	20,75
4	19	19,5	19,25	23	23	23
5	19	19	19	23,5	23	23,25



**Hình 11.** Dung lượng hấp phụ hơi axeton của vật liệu khung cơ kim/ gốm xốp  $Al_2O_3$ .

So sánh với kết quả hấp phụ hơi  $NO_x$  cho thấy, thời gian để đạt hấp phụ bão hòa hơi axeton nhanh hơn, điều này có thể giải thích do quá trình hấp phụ hơi axeton chỉ là quá trình hấp phụ vật lí, bên cạnh đó kích thước phân tử hơi axeton lớn hơn, hơi axeton là dung môi dễ bay hơi nên khả năng xâm nhập vào các lỗ xốp của vật liệu nhanh hơn. Chính vì vậy thời gian hấp phụ bão hòa hơi axeton xảy ra nhanh hơn, tuy nhiên, dung lượng hấp phụ vẫn đạt giá trị cao.

#### 4. KẾT LUẬN

Hệ vật liệu khung cơ kim trên nền gốm xốp đã được chế tạo thành công bằng phương pháp lắng đọng cơ học với dung môi dẫn là nước. Vật liệu nền được lựa chọn là vật liệu gốm xốp hệ  $Al_2O_3$  có độ xốp cao (74 %), độ hút nước lớn (108 %). Hệ vật liệu có khả năng hấp phụ khí  $NO_x$  lên tới 15-19%, đặc biệt khi hấp thụ hơi dung môi có thể lên tới trên 23%. Dung lượng hấp phụ cao có được nhờ sự kết hợp tính chất xốp giữa vật liệu khung cơ kim và gốm xốp. Vật liệu gốm xốp có độ xốp cao với các lỗ xốp kích thước lớn, độ hút nước cao tạo điều kiện thuận lợi cho quá trình giúp phân bố vật liệu khung cơ kim đồng đều lên toàn bộ bề mặt vật liệu gốm, từ đó, tăng dung lượng mang vật liệu MOFs. Với hàm lượng vật liệu khung cơ kim lớn giúp cho diện tích bề mặt chung cao, làm tăng tính chất xốp của cả hệ vật liệu, nhờ đó khả năng hấp phụ các khí và hơi dung môi cao. Bên cạnh đó, các ion  $Fe^{3+}$  có ái lực với nguyên tử nitơ, sau quá trình hoạt hóa sẽ tạo ra hai vị trí chưa bão hòa trên mỗi phân tử FeBTC chính vì vậy nên ngoài khả năng hấp phụ vật lí, vật liệu FeBTC còn có khả năng hấp phụ hóa học với khí  $NO_x$ . Việc phủ thành công vật liệu khung cơ kim lên nền vật liệu gốm xốp  $Al_2O_3$  với dung lượng >10% hứa hẹn có thể mở rộng tiềm năng ứng dụng vật liệu khung cơ kim cho các lĩnh vực khác nhau, đặc biệt trong xử lý môi trường.

**Lời cảm ơn:** Nghiên cứu này được tài trợ bởi nhiệm vụ khoa học công nghệ cấp Bộ Công thương “Nghiên cứu chế tạo hệ thống xử lý khí thải phát sinh trong quá trình nấu luyện nhôm ứng dụng vật liệu hấp phụ cấu trúc khung cơ kim/ gốm xốp” mã số 032.2021.ĐT.BO/HĐKH-CN.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

- [1]. Organization, W.H., "Ambient air pollution: A global assessment of exposure and burden of disease". (2016).
- [2]. Manisalidis, I., et al., "Environmental and health impacts of air pollution: a review". *Frontiers in public health*, p. 14, (2020).
- [3]. Amann, M., et al., "Reducing global air pollution: the scope for further policy interventions". *Philosophical Transactions of the Royal Society A*. **378**(2183): p. 20190331, (2020).
- [4]. Kitagawa, S., "Porous materials and the age of gas", in *Angewandte Chemie International Edition*. Wiley Online Library. p. 10686-10687, (2015).
- [5]. Li, H., et al., "Porous metal-organic frameworks for gas storage and separation: Status and challenges". *EnergyChem*. **1**(1): p. 100006, (2019).
- [6]. Farha, O.K., et al., "Metal-organic framework materials with ultrahigh surface areas: is the sky the limit?". *Journal of the American Chemical Society*. **134**(36): p. 15016-15021, (2012).
- [7]. Ma, M., et al., "Recent progress of MOF-derived porous carbon materials for microwave absorption". *RSC advances*. **11**(27): p. 16572-16591, (2021).
- [8]. Okoro, H.K., et al., "Adsorptive removal of naphthalene and anthracene from aqueous solution with zinc and copper-terephthalate metal-organic frameworks". *Bulletin of the Chemical Society of Ethiopia*. **33**(2): p. 229-241, (2019).
- [9]. Li, P., et al., "A metal-organic framework as a highly efficient and reusable catalyst for the solvent-free 1, 3-dipolar cycloaddition of organic azides to alkynes". *Inorganic Chemistry Frontiers*. **2**(1): p. 42-46, (2015).
- [10]. Azmi, L.H.M., et al., "Fabrication of MIL-101-polydimethylsiloxane composites for environmental toluene abatement from humid air". *Chemical Engineering Journal*. **429**: p. 132304, (2022).
- [11]. Wang, Z., et al., "Shaping of Metal-Organic Frameworks: A Review". *Energy Fuels*. **36**(6): p. 2927-2944, (2022).
- [12]. Valizadeh, B., T.N. Nguyen, and K.C. Stylianou, "Shape engineering of metal-organic frameworks". *Polyhedron*. **145**: p. 1-15, (2018).
- [13]. Trần Văn Chinh, N.D.A., Đoàn Thị Ngãi, Nguyễn Thị Hoài Phương, Lê Thanh Bắc, Phan Thanh Xuân, Nguyễn Công Thắng, "Nghiên cứu đặc trưng của vật liệu khung cơ kim trong hấp phụ khí". *Tạp chí Hóa học*. **53**(3e12): p. 173-177, (2015).
- [14]. Le Thanh Bac, N.T.H.P., La Duc Duong, Nguyen Thi Phuong, "Green synthesis of MIL-100(Fe) metal-organic frameworks as a carrier for chloroquine delivery". *Journal of Military Science and Technology*. **76**: p. 61-67, (2021).
- [15]. Ghorai, S. and Pant, "Equilibrium, kinetics and breakthrough studies for adsorption of fluoride on activated alumina". *Separation purification technology*. **42**(3): p. 265-271, (2005).
- [16]. Singh, T.S. and Pant, "Equilibrium, kinetics and thermodynamic studies for adsorption of As (III) on activated alumina". *Separation purification technology*. **36**(2): p. 139-147, (2004).
- [17]. Lin, T.-F. and J.-K. Wu, "Adsorption of arsenite and arsenate within activated alumina grains: equilibrium and kinetics". *Water research*. **35**(8): p. 2049-2057, (2001).

ABSTRACT

**Research on the selection of porous ceramic for loading metal -organic- frameworks applied in gas treatment**

*In this paper, some properties of porous insulating foam materials, available alumina particles and alumina ceramic materials were investigated. The survey results show that the insulating foam materials and alumina particles have a density from 0.9 g/cm<sup>3</sup> to 1.26 g/cm<sup>3</sup>, porosity from 50-53 %, water absorption from 39 - 45%, while aluminum oxide ceramic materials are made by sintering method with density from 0.64-0.73g/cm<sup>3</sup>, porosity from 69-74% and water absorption up to 108%. The results of carrying the metal-organic- framework by impregnating showed that the alumina and heat-resistant ceramic particles carried a maximum of 6% CuBTC and 8% FeBTC by mass, while the alumina ceramic material can bring up to 9% CuBTC and more than 10% FeBTC. The test results of the ability to handle NO<sub>x</sub> gas and acetone vapor show that the aluminum oxide ceramic material can adsorb up to 19 % NO<sub>x</sub> gas and 23 % acetone vapor by mass.*

**Keywords:** Porous ceramic material; Alumina ceramic; Gas treatment; CuBTC; FeBTC.