



(12) **BẢN MÔ TẢ GIẢI PHÁP HỮU ÍCH THUỘC BẰNG ĐỘC QUYỀN
GIẢI PHÁP HỮU ÍCH**

(19) **Cộng hòa xã hội chủ nghĩa Việt Nam (VN)
CỤC SỞ HỮU TRÍ TUỆ**

(11)



2-0002364

(51) ^{2020.01} **C07C 7/144; C07F 3/06; C07F 15/06; B01J 20/22** (13) **Y**

(21) 2-2019-00302

(22) 19/04/2017

(67) 1-2017-01439

(45) 27/07/2020 388

(43) 25/08/2017 353A

(73) Trường Đại học Bách khoa Hà Nội (VN)

Số 1, Đại Cồ Việt, quận Hai Bà Trưng, thành phố Hà Nội

(72) Tạ Ngọc Đôn (VN); Trịnh Xuân Bái (VN); Tạ Ngọc Hùng (VN); Lê Thị Như Quỳnh (VN); Nguyễn Khánh Diệu Hồng (VN); Lê Văn Dương (VN); Nguyễn Thị Linh (VN).

(54) **PHƯƠNG PHÁP TỔNG HỢP MESO NANO-ZIF-8 TRONG ĐIỀU KIỆN KHÔNG
KHUẤY TRỘN**

(57) Giải pháp hữu ích đề cập đến phương pháp tổng hợp vật liệu meso nano ZIF-8 từ kẽm nitrat hexahydrat và 2-metylimidazol trong dung môi metanol với quy trình công nghệ đơn giản nhưng ổn định trong điều kiện thường, không khuấy trộn.

Công đoạn kết tinh được tiến hành ở nhiệt độ 50°C, áp suất khí quyển, thời gian kết tinh 6 giờ. Sản phẩm meso nano ZIF-8 thu được có độ tinh thể đạt 92 đến 100%, kích thước tinh thể 30-115 nm, bề mặt riêng (theo BET) đạt 1212-1570 m²/g, chứa mao quản trung bình dạng H1 tập trung trong khoảng 2,6-3,8 nm, bền ở nhiệt độ từ 436 đến 568°C trong không khí và hiệu suất đạt từ 48,0 đến 61,2%.

Lĩnh vực kỹ thuật được đề cập

Giải pháp hữu ích thuộc lĩnh vực tổng hợp vật liệu khung cấu trúc hữu cơ – kim loại kích thước nano chứa mao quản trung bình. Cụ thể hơn, giải pháp hữu ích đề cập đến phương pháp tổng hợp vật liệu meso nano ZIF-8 bằng phương pháp nhiệt dung môi, không khuấy trộn trong điều kiện áp suất thường.

Tình trạng kỹ thuật của giải pháp hữu ích

ZIFs là một họ vật liệu có khung cấu trúc hữu cơ – kim loại (MOFs). Đây là họ vật liệu mới có cấu trúc tinh thể mang đặc tính độc đáo của cả hai dòng vật liệu zeolit và MOFs, với hệ thống vi mao quản đồng nhất và có diện tích bề mặt rất cao. ZIFs có cấu trúc liên kết kiểu zeolit, trong đó các cation kim loại hoá trị hai liên kết với các anion imidazol trong mạng tứ diện. Do có độ bền hóa học, bền thủy nhiệt và độ xốp lớn nên ZIFs đã và đang rất được chú ý trong những năm gần đây, đã được ứng dụng nhiều trong lưu trữ và tách khí, xúc tác, cảm biến hóa học và chất dẫn thuốc.

ZIF-8 là một trong số vật liệu ZIFs được nghiên cứu nhiều nhất do chúng có hệ thống vi mao quản có đường kính 11,6 Å được nối thông với các cửa sổ nhỏ có đường kính 3,4 Å. Quá trình kết tinh ZIF-8 diễn ra tương tự như quá trình kết tinh zeolit, đều trải qua các giai đoạn như tạo dung dịch bão hòa, tạo mầm tinh thể và giai đoạn lớn lên của mầm để hình thành các tinh thể ZIF-8 hoàn chỉnh và ổn định. Theo đó, trong giai đoạn đầu của quá trình kết tinh, dung dịch trong gel chuyển từ dạng bền sang dạng giả bền và cuối cùng là dạng không bền. Vì các dạng không bền có năng lượng liên kết rất yếu nên chúng có xu hướng kết hợp lại với nhau để hình thành nên các đơn vị cấu trúc trong tinh thể. Trong giai đoạn tạo mầm tinh thể có sự tách ra một phần dị thể từ dung dịch bão hòa. Đây được xem là giai đoạn quyết định đến tính chất và cấu trúc của sản phẩm cuối cùng. Tiếp đến, những phân tử trong dung dịch tiếp tục ngưng tụ trên những mầm đã có để hình thành tinh thể. Các tinh thể phát triển theo một hướng nhất định bởi bản chất của hệ gel phản ứng để tạo

thành các vật liệu có cấu trúc khác nhau. Tổng hợp ZIF-8 với việc điều khiển kích thước hạt và hình thái tinh thể đang mở ra nhiều cơ hội ứng dụng mới trong lĩnh vực xúc tác, hấp phụ và tách khí và chế tạo các vật liệu có cấu trúc phân tầng.

Đã có nhiều phương pháp tổng hợp ZIF-8 như phương pháp điện quay, siêu âm, tự gây mầm, vi sóng, cơ hóa, chuyển hóa gel khô hay phương pháp nhiệt dung môi được nghiên cứu rất phổ biến.

Trong phương pháp nhiệt dung môi, muối kẽm và 2-metylimidazol (Hmim) thường được hòa tan với tỷ lệ mmol khác nhau, trong các dung môi khác nhau và được thực hiện trong các điều kiện khác nhau về nhiệt độ và thời gian. Muối kẽm có thể là $\text{Zn}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, $\text{Zn}(\text{NO}_3)_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$, $\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$, ZnCl_2 hay $\text{Zn}(\text{OH})_2$. Tỷ lệ mmol của Hmim so với muối kẽm (Zn : Hmim) trong thành phần phản ứng thường được lấy dư (1 : 4 đến 1 : 16), cá biệt Hmim có thể lấy dư rất lớn (1 : 56 đến 1 : 70). Trong một số trường hợp dư kẽm, nhưng không nhiều nghiên cứu được thực hiện đúng tỷ lệ phản ứng.

Dung môi sử dụng cho tổng hợp ZIF-8 phổ biến là dimetylformamit (DMF), metanol, metanol và NH_4OH , metanol và HCOONa , nước, nước và chất hoạt động bề mặt hay một loạt dung môi hữu cơ khác như etanol, n-propanol, 2-propanol, n-butanol, 2-butanol, n-octanol, axeton. Nhìn chung, quá trình tổng hợp ZIF-8 trong các dung môi kém độc hại thường sử dụng Hmim với lượng dư rất lớn, dung dịch phản ứng khi đó trở nên rất loãng nên hiệu suất sản phẩm thu được thường rất thấp. Sự có mặt của chất hoạt động bề mặt đóng vai trò như một tác nhân để điều khiển kích thước tinh thể (từ 100-4.000 nm) và hình thái của các tinh thể ZIF-8 từ cubic 6 mặt đến rhombic 12 mặt.

Các phản ứng thường được tiến hành ở nhiệt độ từ 100 °C trở lên dưới áp suất tự sinh hay nhiệt độ dưới 100°C có. Thời gian phản ứng phổ biến trong khoảng 6 giờ, hoặc từ 1 đến 3 ngày. Chưa có công bố nào thực hiện dưới 100°C không khuấy.

Để đánh giá tính hiệu quả khi tổng hợp vật liệu ZIF-8, bên cạnh độ tinh thể, bề mặt riêng, độ bền cấu trúc còn rất cần quan tâm đến phân bố mao quản, hiệu suất

sản phẩm tạo thành và khối lượng mẫu cho mỗi lần tổng hợp với độ lặp lại tin cậy. Các nghiên cứu gần đây cho thấy:

(i) Bề mặt BET của ZIF-8 cao nhất đã được công bố bằng 1971 m²/g theo “W. Yasong, X. Yunpeng, M. Huaijun, X. Renshun, L. Hao, L. Dawei, T. Zhijian, *Microporous and Mesoporous Materials* 195 (2014) 50–59” và bằng 1950 m²/g theo “A.P.M. Patricia, E.R. Alirio, H. Patricia, S. Christian, A.C.S. José, *Microporous and Mesoporous Materials* 194 (2014) 146–156” nhưng có kích thước micro và độ bền nhiệt thấp (chỉ bền đến 250°C trong không khí).

(ii) ZIF-8 chỉ chứa MQTB khi tinh thể có kích thước nano theo các công trình “C. Janosch, N. Roman, S. Sergej, F. Armin, H. Klaus, W. Michael, *Chem. Mater.* 23(8) (2011) 2130–2141”, “T.K. Hyuk, J. Hae-Kwon, *Chemical Engineering Science* 124 (2015) 20–26” và “E.J. Carrasco-Correaa, A. Martínez-Vilataa, J.M. Herrero-Martíneza, J.B. Parrab, F. Mayac, V. Cerdàc, C.P. Cabelloc, G.T. Palominoc, F. Svec, *Talanta* 164 (2017) 348–354”, nhưng độ bền nhiệt chưa cao (chỉ bền đến 300–350°C trong không khí).

(iii) Hiệu suất ZIF-8 thu được tính theo Zn đạt 35–46% trong dung môi MeOH như đã được công bố trong các công trình “T. Chih-Wei, H.G.L. Ernie, *Microporous and Mesoporous Materials* 221 (2016) 8–13”, “Q. Song, S.K. Nataraj, M.V. Roussenova, J.C. Tan, D.J. Hughes, W.L.P. Bourgoïn, M.A. Alam, A.K. Cheetham, S.A. Al-Muhtaseband Easan Sivaniah, *Energy Environ. Sci.* 5 (2012) 8359–8369” và “L.B. Eugenia, L.F. José, M.Z. Juan, *Journal of Colloid and Interface Science* 424 (2014) 37–43”; đạt 45–50% trong dung môi DMF theo “M.S. Gui, Y. Tingxu, S.C. Tai, *Journal of Membrane Science* 415–416 (2012) 577–586” và “C.P. Li, M. Du, *Chem. Commun.* 47 (2011) 5958–5972”. Hiệu suất cao nhất đã được công bố bằng 76–79% khi tổng hợp trong dung môi DES theo “W. Yasong, X. Yunpeng, M. Huaijun, X. Renshun, L. Hao, L. Dawei, T. Zhijian, *Microporous and Mesoporous Materials* 195 (2014) 50–59”, bằng 73% khi tổng hợp trong dung môi NH₄OH theo “M. He, J. Yao, Q. Liu, K. Wang, F. Chen, H. Wang, *Microporous Mesoporous Mater.* 184 (2014) 55–60”, nhưng tất cả mẫu ZIF-8 này cũng chỉ bền đến 250 đến 300°C trong không khí.

(iv) Khối lượng mẫu cho mỗi lần tổng hợp ZIF-8 có bề mặt riêng BET $\geq 1600 \text{ m}^2/\text{g}$ theo các công trình “T. Chih-Wei, H.G.L. Ernie, *Microporous and Mesoporous Materials* 221 (2016) 8–13”, “A.P.M. Patricia, E.R. Alirio, H. Patricia, S. Christian, A.C.S. José, *Microporous and Mesoporous Materials* 194 (2014) 146–156”, “C. Janosch, N. Roman, S. Sergej, F. Armin, H. Klaus, W. Michael, *Chem. Mater.* 23(8) (2011) 2130–2141”, “Z. Yang, Z. Lin, Z. Xinghua, C. Yunlin, *Microporous and Mesoporous Materials* 225 (2016) 488–493”, “W. Yasong, X. Yunpeng, M. Huaijun, X. Renshun, L. Hao, L. Dawei, T. Zhijian, *Microporous and Mesoporous Materials* 195 (2014) 50–59”, “Z. Lin, Q. Gang, L. Zongjian, C. Qun, W. Haiyan, Y. Huqing, *Separation and Purification Technology* (2015), <http://dx.doi.org/10.1016/j.seppur.2015.10.037>” và “K. Oleksii, C. Jean-Marc, A. Halima, G. Emilien, M. Kevin, M. Ghouti, S. Raphaël, *Materials and Design* 122 (2017) 31–41” đã được công bố nằm trong khoảng 1,7-6 mmol muối Zn (khoảng 0,5-1,5 g) là rất thấp.

Như vậy, sau 10 năm kể từ khi O.M. Yaghi và cộng sự (K.S. Park, Z. Ni, A.P. Cote, J.Y. Choi, R. Huang, F.J. Uribe-Romo, H.K. Chae, M. O’Keeffe, O.M. Yaghi, *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.* 103(27) (2006) 10186–10191) lần đầu tiên tổng hợp được ZIF-8, cho đến nay chưa có giải pháp hữu ích nào tổng hợp ZIF-8 đạt được đồng thời các ưu việt về độ tinh thể, hiệu suất sản phẩm, độ bền nhiệt và chứa cả MQTB ngoài hệ thống vi mao quản truyền thống đặc trưng cho ZIF-8.

Bản chất kỹ thuật của giải pháp hữu ích

Mục đích của giải pháp hữu ích là đề xuất phương pháp tổng hợp vật liệu meso nano ZIF-8 bằng phương pháp nhiệt dung môi, không khuấy trộn trong điều kiện áp suất thường.

Nguyên liệu ban đầu là $\text{Zn}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ (Ký hiệu ZnN, 98%), 2-metylimidazol (Ký hiệu Hmim, 99%) được cung cấp bởi Sigma–Aldrich và dung môi metanol (Ký hiệu MeOH, 99,8%) được cung cấp bởi Merck. Phương pháp này bao gồm các bước:

a. Tiến hành hòa tan ZnN vào dung môi MeOH theo tỷ lệ ZnN : MeOH = 1 : 150 (mmol:ml) (dung dịch A) và Hmim vào dung môi MeOH theo tỷ lệ Hmim :

MeOH = 4 : 150 (mmol : ml) (dung dịch B), sau đó rót từ từ dung dịch A vào dung dịch B để tạo thành hỗn hợp phản ứng với tỷ lệ ZnN : Hmim : MeOH = 1 : 4 : 300 (mmol : mmol : ml).

b. Hỗn hợp phản ứng ở bước (a) được kết tinh tại 50°C trong 6 giờ, không khuấy trộn.

c. Sản phẩm ở bước (b) được lọc và ly tâm với tốc độ 5000 vòng/phút trong 20 phút, rửa 3 lần bằng MeOH, sấy trong chân không tại 120°C trong 6 giờ. Sản phẩm meso nano ZIF-8 thu được có độ tinh thể 100%, kích thước tinh thể 30 nm, bề mặt riêng (theo BET) bằng 1570 m²/g, chứa mao quản trung bình dạng H1 tập trung tại 3,8 nm, độ bền nhiệt bằng 565°C trong không khí và hiệu suất bằng 61,2%.

Mô tả chi tiết giải pháp hữu ích

Theo giải pháp hữu ích, nguồn nguyên liệu ban đầu được chọn là Zn(NO₃)₂.6H₂O (Ký hiệu ZnN, 98%), 2-metylimidazol (Ký hiệu Hmim, 99%) được cung cấp bởi Sigma–Aldrich và dung môi metanol (Ký hiệu MeOH, 99,8%) được cung cấp bởi Merck.

Ưu điểm của giải pháp hữu ích chính là việc tìm ra chế độ kết tinh và tỷ lệ thành phần phản ứng phù hợp, cùng với quá trình xử lý sản phẩm sau kết tinh hợp lý nên đã tạo ra meso nano ZIF-8 tinh khiết, có hiệu suất và độ bền nhiệt cao nhất được biết từ trước đến nay khi tổng hợp trong dung môi MeOH. Đặc biệt, giải pháp hữu ích đã đồng thời đề cập đến quy trình công nghệ đơn giản nhưng ổn định để tổng hợp meso nano ZIF-8 với trọng lượng mẫu tổng hợp cao hơn các công bố đã có từ 10-20 lần (10 g cho một lần tổng hợp). Điều này giúp giải pháp hữu ích dễ áp dụng, giảm giá thành sản phẩm và mở rộng phạm vi ứng dụng trong lĩnh vực xúc tác và hấp phụ.

Phương pháp tổng hợp meso nano ZIF-8 theo giải pháp hữu ích bao gồm các bước sau:

a. Tiến hành hòa tan ZnN vào dung môi MeOH theo tỷ lệ ZnN : MeOH = 1 : 150 (mmol : ml) (dung dịch A) và Hmim vào dung môi MeOH theo tỷ lệ Hmim : MeOH = 4 : 150 (mmol : ml) (dung dịch B), sau đó rót từ từ dung dịch A vào dung

dịch B để tạo thành hỗn hợp phản ứng với tỷ lệ $\text{ZnN} : \text{Hmim} : \text{MeOH} = 1 : 4 : 300$ (mmol : mmol : ml).

b. Hỗn hợp phản ứng ở bước (a) được kết tinh tại 50°C trong 6 giờ, không khuấy trộn.

c. Sản phẩm ở bước (b) được lọc và ly tâm với tốc độ 5000 vòng/phút trong 20 phút, rửa 3 lần bằng MeOH, sấy trong chân không tại 120°C trong 6 giờ.

Sản phẩm meso nano-ZIF-8 thu được mịn và xốp, công thức $\text{Zn}(\text{Mim})_2$, độ tinh thể 100%, kích thước tinh thể 30 nm, bề mặt riêng (theo BET) bằng $1570 \text{ m}^2/\text{g}$, chứa mao quản trung bình dạng H1 tập trung tại 3,8 nm, độ bền nhiệt bằng 565°C trong không khí và hiệu suất bằng 61,2%.

Để đánh giá cấu trúc và các tính chất đặc trưng của sản phẩm thu được, các mẫu được phân tích trên máy phát nhiễu xạ BRUKER D8 ADVANCE (Đức). Chế độ ghi: ống phát tia Cu với bước sóng $K_\alpha = 1,54056 \text{ \AA}$, điện áp 40 kV, cường độ ống phóng 30 mA, nhiệt độ 25°C và góc quét $2\theta = 5-45^\circ$. Phân tích phổ hấp thụ hồng ngoại (FTIR) theo phương pháp ép viên với KBr, tỷ lệ 1mg mẫu/200 mg KBr, áp lực nén là 2000 kg/cm^2 (200 Mpa), trên máy SHIMADZU FTIR 8101M (Nhật) ở nhiệt độ 25°C , bước quét là 4 cm^{-1} trong vùng dao động tinh thể từ 400 đến 1500 cm^{-1} . Chụp ảnh hiển vi điện tử quét (SEM) trên máy S-4800 (Nhật); chụp ảnh hiển vi điện tử truyền qua trên máy JEM 1010 (Nhật); xác định bề mặt riêng (BET) trên hệ Micromeritics Gemini VII 2390 (Mỹ); ghi giản đồ TG-DSC trên máy Netzsch STA 409 PC (Đức).

Độ tinh thể được tính toán từ phương pháp XRD, kích thước tinh thể được xác định theo phương trình Scherrer, hiệu suất sản phẩm ZIF-8 tạo thành được tính toán theo lượng kẽm trong sản phẩm so với lượng kẽm đã sử dụng.

Phương pháp tổng hợp vật liệu meso nano ZIF-8 theo giải pháp hữu ích đơn giản, dễ áp dụng, chi phí không cao, sản phẩm thu được có độ tinh thể tốt, cỡ hạt nhỏ, chứa mao quản trung bình, hiệu suất và độ bền nhiệt tốt.

Ví dụ thực hiện giải pháp hữu ích

Dưới đây là các ví dụ ưu tiên về phương pháp tổng hợp vật liệu meso nano ZIF-8 theo giải pháp hữu ích.

Ví dụ 1

a. Tiến hành hòa tan ZnN với một lượng xác định vào dung môi MeOH theo tỷ lệ ZnN : MeOH = 1 : 150 (mmol : ml) (dung dịch A) và hòa tan Hmim với một lượng xác định vào dung môi MeOH theo tỷ lệ Hmim : MeOH = 4 : 150 (mmol : ml) (dung dịch B), sau đó rót từ từ dung dịch A vào dung dịch B để tạo thành hỗn hợp phản ứng với tỷ lệ ZnN : Hmim : MeOH = 1 : 4 : 300 (mmol : mmol : ml).

b. Hỗn hợp phản ứng ở bước (a) được kết tinh tại 50°C trong 6 giờ, không khuấy trộn.

c. Sản phẩm ở bước (b) được lọc và ly tâm với tốc độ 5000 vòng/phút trong 20 phút, rửa 3 lần bằng MeOH, sấy trong chân không tại 120°C trong 6 giờ.

Các kết quả phân tích sản phẩm:

- Độ tinh thể meso nano ZIF-8	: C = 100%
- Bề mặt riêng BET	: $S_{\text{BET}} = 1.570 \text{ m}^2/\text{g}$
- Bề mặt ngoài	: $S_{\text{ngoài}} = 117 \text{ m}^2/\text{g}$
- Phân bố MQTB tập trung	: Meso = 3,8 nm
- Kích thước tinh thể	: S = 30 nm
- Hiệu suất tính theo Zn	: Y = 61,2%
- Độ bền nhiệt trong không khí	: B = 565°C

Bằng phương pháp XRD xác nhận meso nano ZIF-8 trong mẫu tổng hợp có cùng cấu trúc với mẫu ZIF-8 thương mại (Basolite@Z1200) được cung cấp bởi Sigma-Aldrich được sử dụng để đối chứng. Bằng phương pháp FTIR xác nhận meso nano ZIF-8 trong mẫu tổng hợp có các đỉnh hấp thụ cực đại tại các giá trị 1585, 1458, 1421, 1307, 1175, 1145, 1092, 994, 953, 752, 693 và 421 cm^{-1} . Bằng phương pháp SEM và TEM khẳng định tinh thể meso nano ZIF-8 trong mẫu tổng hợp có dạng khối hình thoi 12 mặt, kích thước hạt tinh thể đều nhau trong khoảng 30 nm.

Bằng phương pháp TG-DSC xác định được mẫu meso nano ZIF-8 xuất hiện hai khoảng mất trọng lượng:

(i) từ nhiệt độ phòng đến 565°C mất 8,2%. Đây là quá trình mất nước hấp phụ, dung môi và Hmim còn dư trên bề mặt và trong mao quản của ZIF-8;

(ii) từ 565-800°C mất 59,3%. Trong khoảng nhiệt độ này xuất hiện 2 hiệu ứng đạt cực trị tại 625 và 658°C. Đây là quá trình phân hủy ZIF-8 để tạo thành ZnO.

Sản phẩm meso nano ZIF-8 thu được mịn và xốp, công thức $\text{Zn}(\text{Mim})_2$, độ tinh thể 100%, kích thước tinh thể 30 nm, bề mặt riêng (theo BET) bằng 1570 m²/g, chứa mao quản trung bình dạng H1 tập trung tại 3,8 nm, độ bền nhiệt bằng 565°C trong không khí và hiệu suất bằng 61,2%.

Ví dụ 2

Phương pháp tổng hợp được thực hiện tương tự như trong Ví dụ 1 nhưng quá trình kết tinh có khuấy trộn liên tục. Sản phẩm thu được có các đặc điểm:

$$C = 100\% ; S_{\text{BET}} = 1.368 \text{ m}^2/\text{g} ; S_{\text{ngoài}} = 102 \text{ m}^2/\text{g}.$$

$$\text{Meso} = 3,3 \text{ nm} ; S = 35 \text{ nm} ; Y = 58,2\% ; B = 480^\circ\text{C}.$$

Ví dụ 3

Phương pháp tổng hợp được thực hiện tương tự như trong Ví dụ 1 nhưng thành phần hỗn hợp phản ứng $\text{ZnN} : \text{Hmim} : \text{MeOH} = 1 : 4 : 150$ (mmol : mmol : ml). Sản phẩm thu được có các đặc điểm:

$$C = 100\% ; S_{\text{BET}} = 1.345 \text{ m}^2/\text{g} ; S_{\text{ngoài}} = 98 \text{ m}^2/\text{g}.$$

$$\text{Meso} = 3,4 \text{ nm} ; S = 62-100 \text{ nm} ; Y = 50,5\% ; B = 436^\circ\text{C}.$$

Ví dụ 4

Phương pháp tổng hợp được thực hiện tương tự như trong Ví dụ 1 nhưng thành phần hỗn hợp phản ứng $\text{ZnN} : \text{Hmim} : \text{MeOH} = 1 : 4 : 450$ (mmol : mmol : ml). Sản phẩm thu được có các đặc điểm:

$$C = 92\% ; S_{\text{BET}} = 1.212 \text{ m}^2/\text{g} ; S_{\text{ngoài}} = 73 \text{ m}^2/\text{g}.$$

$$\text{Meso} = 2,6 \text{ nm} ; S = 40-95 \text{ nm} ; Y = 48,0\% ; B = 482^\circ\text{C}.$$

Ví dụ 5

Phương pháp tổng hợp được thực hiện tương tự như trong Ví dụ 1 nhưng trọng lượng muối ZnN trong hỗn hợp ban đầu tăng lên 40 lần. Sản phẩm thu được có các đặc điểm:

$$C = 100\% ; S_{\text{BET}} = 1.568 \text{ m}^2/\text{g} ; S_{\text{ngoài}} = 118 \text{ m}^2/\text{g}.$$

$$\text{Meso} = 3,8 \text{ nm} ; S = 32 \text{ nm} ; Y = 61,1\% ; B = 568^\circ\text{C}.$$

YÊU CẦU BẢO HỘ

1. Phương pháp tổng hợp meso nano ZIF-8 với nguyên liệu ban đầu là $\text{Zn}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ (ký hiệu là ZnN), 2-metylimidazol (ký hiệu là Hmim) và dung môi metanol (ký hiệu là MeOH); phương pháp này bao gồm các bước:

a. tiến hành hòa tan ZnN vào dung môi MeOH theo tỷ lệ $\text{ZnN} : \text{MeOH} = 1 : 150$ (mmol : ml) (sau đây gọi là dung dịch A) và hòa tan Hmim vào dung môi MeOH theo tỷ lệ $\text{Hmim} : \text{MeOH} = 4 : 150$ (mmol : ml) (sau đây gọi là dung dịch B), sau đó rót từ từ dung dịch A vào dung dịch B để tạo thành hỗn hợp phản ứng với tỷ lệ $\text{ZnN} : \text{Hmim} : \text{MeOH} = 1 : 4 : 300$ (mmol : mmol : ml);

b. hỗn hợp phản ứng ở bước (a) được kết tinh tại 50°C trong 6 giờ, không khuấy trộn; và

c. sản phẩm ở bước (b) được lọc và ly tâm với tốc độ 5000 vòng/phút trong 20 phút, rửa 3 lần bằng MeOH, sấy trong chân không tại 120°C trong 6 giờ để tạo ra sản phẩm meso nano ZIF-8 dạng mịn và xốp.