

北京工业大学等科研团队利用MOFs去除痕量苯蒸气

作者：writer 来源：爱科学

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/18133.html>

本文仅供学习交流之用，版权归原作者所有，请勿用于商业用途！

北京工业大学等科研团队利用MOFs去除痕量苯蒸气。北京时间2022年4月28日，北京工业大学、南开大学和爱尔兰利默瑞克大学的研究者们合作在Nature Materials上发表了题为Trace removal of benzene vapor using double-walled metal-dipyrzolate frameworks的论文。

在这项研究中，作者通过调控孔尺寸和孔环境，产生苯分子的强结合位点与有效限域，使金属有机框架（MOFs）吸附剂能够捕获痕量苯蒸气，有望用于苯污染空气的净化和环境修复。

论文通讯作者为李建荣、聂祚仁和Michael J. Zaworotko教授；第一作者为何涛、孔祥婧博士。

包括苯在内的挥发性有机化合物（VOCs）是一类可导致室内和室外空气污染的有毒污染物，即使在痕量浓度下也可能引起严重的环境和健康问题。目前从空气中去除苯的方法包括等离子氧化、光催化氧化、活性炭吸附等。由于吸附剂使用方便、循环利用能耗较低，物理吸附是去除污染空气和工业废气中VOCs的良好选择。然而，驱动物理吸附的非共价作用力往往较弱，因此设计可在低浓度条件下高效吸附苯的吸附剂具有挑战性。

金属-有机框架（Metal-organic framework, MOFs）是一类具有高比表面积且结构/功能容易调节的新型分子基多孔材料，在气体吸附储存/分离等领域有广阔的应用前景，目前已有用于VOCs去除的研究。MOFs与芳香族VOCs（如苯）之间通常只存在较弱的作用力，在低压条件下对VOCs的吸附能力较弱。尽管一些MOFs在相对高压下（10 kPa以上）对VOCs的吸附量很高，但这并不太适合评估MOFs对空气中痕量VOCs的吸附性能。一些只在相对高压下具有高VOCs吸附量的MOFs在实际空气净化中的表现并不理想。另一方面，除良好的吸附能力外，高稳定性是MOFs在诸多领域应用的先决条件，但许多MOFs的水及热稳定性较差，难以长时间保持结构及吸附性能稳定。此外，潮湿条件下水蒸气与VOCs的共吸附现象也会降低其吸附性能。

北京工业大学相关科研团队在稳定MOFs构筑及污染物吸附/去除系列研究成果（Nature Commun. 2013, 4:1538; J. Am. Chem. Soc. 2016, 138, 6204; Chem 2018, 4, 1911; Acc. Chem. Res. 2021, 54, 3083; Engineering 2021, 7, 1115）的基础上，与爱尔兰利默瑞克大学、南开大学的研究团队合作，构筑了一系列双壁吡唑MOFs材料（BUT-53 ~ BUT-58），它们具有多样的孔尺寸和孔环境，能够实现空气中ppm级浓度苯蒸气的高效捕获，在苯污染空气的净化和环境修复等领域展现出良好的应用潜力（图1-3）。

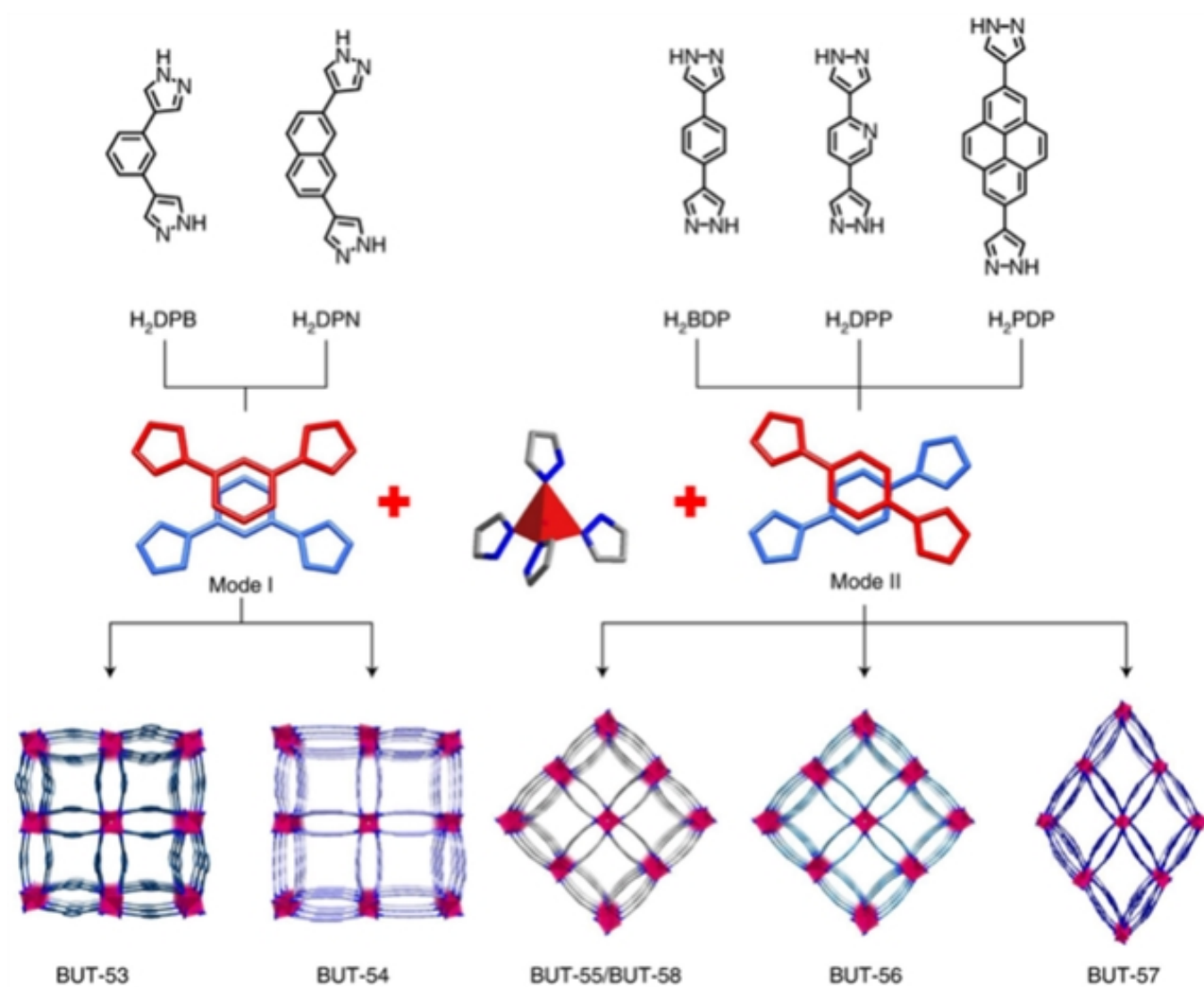


图1：采用分子化学工程策略构筑BUT-53 ~ BUT-58。

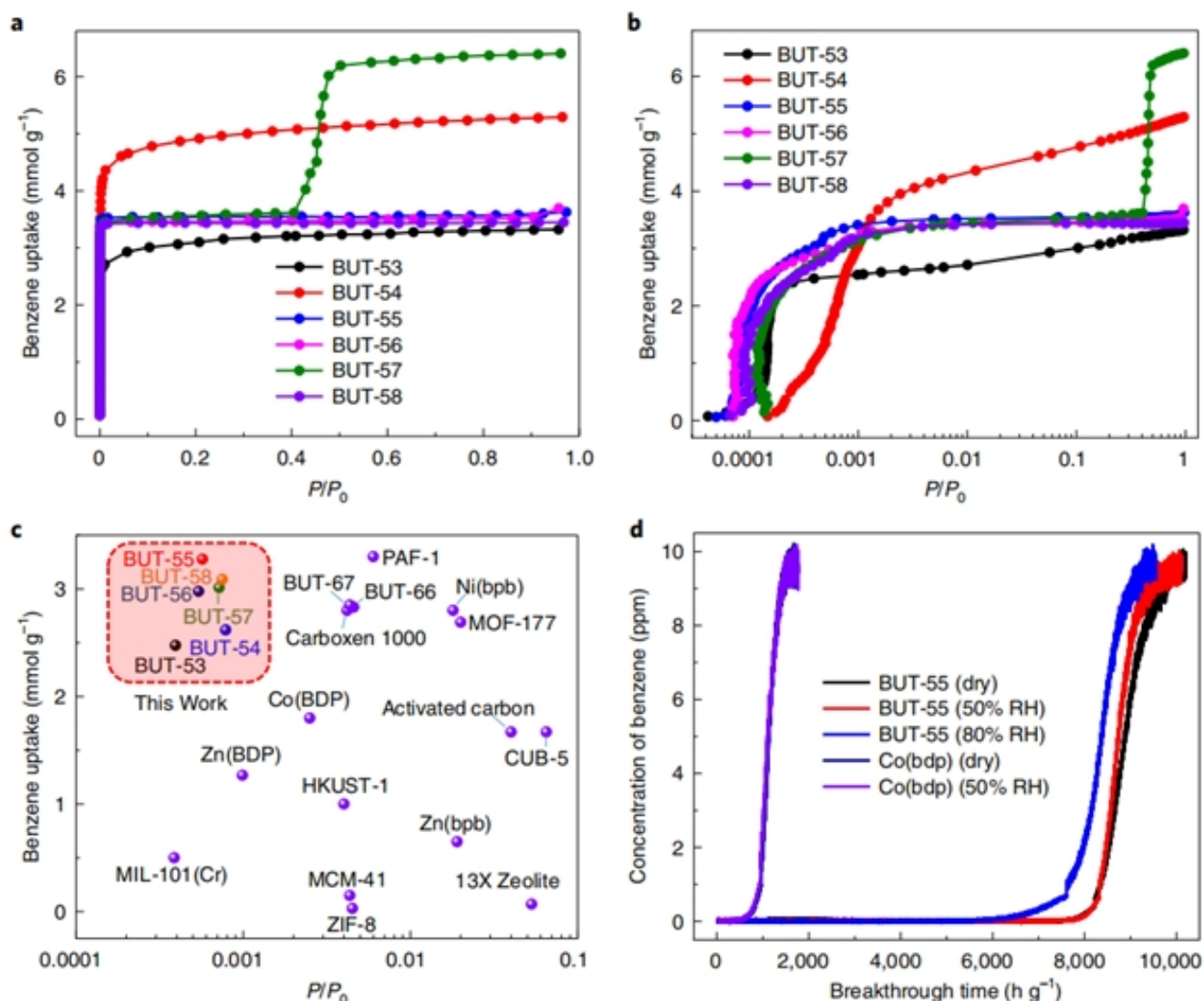


图2：苯吸附性能。

苯蒸气吸附实验结果表明，BUT-53 ~ BUT-58均在298 K、10 Pa以下的压力对苯有较高的吸附量 ($> 2 \text{ mmol g}^{-1}$)。为了评估材料从环境空气中捕获痕量苯的能力，作者进行了动态气体突破实验，包括干燥条件下、相对湿度50%和80%的多组对照实验。结果表明，相对于干燥条件下，BUT-53、BUT-54、BUT-56和BUT-57在相对湿度为50%及80%的突破性能有所降低，而湿度对BUT-55和BUT-58的性能影响较小，二者皆能保持较高的苯吸附能力。特别是BUT-55在干燥及相对湿度为50%的条件下，穿透时间可达8000 h g^{-1} 。

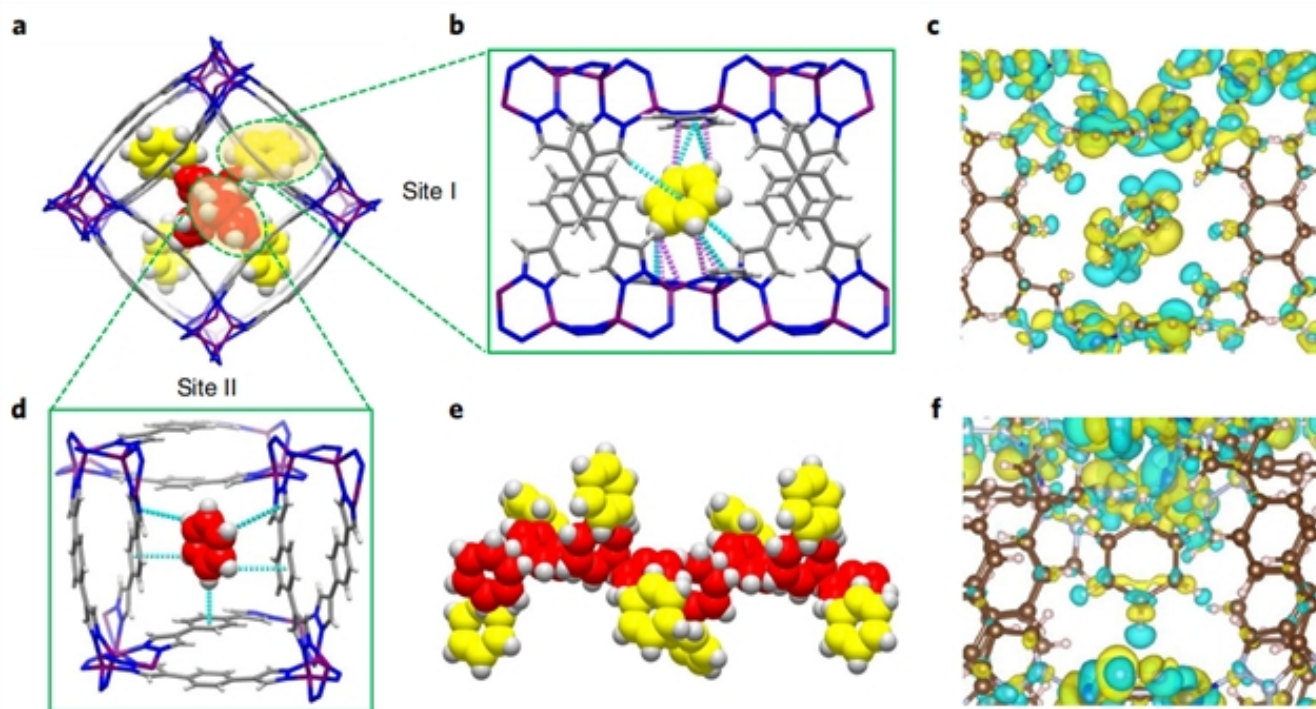


图3：C6H6@BUT-55的SCXRD结构和DFT计算。

为了研究BUT-53 ~ BUT-58高效捕获苯蒸气的吸附机理，作者解析了多个客体负载相的单晶结构，结果表明，捕获苯分子前后框架结构无明显变化，被吸附的苯分子有两种结合位点：一种（黄色）位于相邻两对BDP2 - 配体和两个Co(pz)₂单元之间的空腔中；另一种(红色)位于成对的BDP2 - 配体之上。框架-客体和客体-客体之间通过多重C-H...X相互作用实现了框架对苯的强吸附作用。为了进一步理解材料的吸附行为，作者进行了DFT计算，结果表明苯分子与I位点的相互作用更强。此外，单晶结构显示，水分子也会优先吸附在I位点；但当苯和水共存时，由于具有更强的相互作用，苯分子会被优先吸附。因此，水分子的存在对BUT-55的吸附性能影响较小。

通过客体分子与框架之间的多重非共价相互作用（包括CH...X相互作用），该研究实现了利用MOFs吸附剂从空气中选择性捕获痕量苯，并且具有高吸附量和长突破时间的优势。即使在潮湿条件下，BUT-55也具备基本完全去除空气中痕量苯的能力，有望用于空气净化与环境修复。（来源：科学网）

相关论文信息：<https://doi.org/10.1038/s41563-022-01237-x>

作者：李建荣等 来源：《自然-材料》

更多 科学进展 请访问 <https://www.iikx.com/news/progress/>

本文版权归原作者所有，请勿用于商业用途，[爱科学iikx.com](https://www.iikx.com)转发