	CATEGORY	Page
1-	Photocatalytic degradation of Rhodamine-B under visible light region by ZnO nanoparticles loaded on activated carbon made from longan seed biomass - *Nguyen Van Hung, Bui Thi Minh Nguyet, Bui Thi Thuy Linh, Nguyen Huu Nghi, Nguyen Thanh Tuoi, Nguyen Anh Tien, Le Lam Son*	1
2-	Effect of synthesis conditions on methylene blue adsorption capacity of electrochemically preparated graphene *- Pham Van Hao, Ha Xuan Linh, Phung Thi Oanh, Phan Ngoc Hong, Nguyen Nhat Huy, Dang Van Thanh, Nguyen Van Dang*	9
3-	Study on the preparation of TiO_2/SiO_2 and the treatment capacity of 2-chloroethyl ethyl sulfide on the surface of sensitive equipment and components *- Hoang Kim Hue, Le Van Long, Hoang Thanh Thai, Le Minh Thao*	15
4-	Synthesis of $TiO_2/g-C_3N_4$ material for visble light driven photocatalytic degradation of methylene blue *- Dang Thi Ngoc Hoa, Nguyen Thi Thanh Tu*	21
5-	Multiwalled carbon nanotubes synthesis from methane using a stainless steel foils as a catalyst *- Huynh Minh Thuan, Nguyen Sura, Nguyen Thi Kim Ngan, Nguyen Manh Huan, Do Pham Noa Uy, Nguyen Anh Thu Hang, Nguyen Cong Danh, Nguyen Huu Luong, Nguyen Cat Tien*	27
6-	Sorption of Pb(II) and Cd(II) ions from aqueous solutions by activated biomass of common reed *- Nguyen Van Hung, Bui Thi Minh Nguyet, Nguyen Kim Nuong, Nguyen Huu Nghi, Nguyen Thanh Tuoi, Nguyen Anh Tien, Le Lam Son*	31
7-	Synthesis of Fe_3O_4/MIL-101 material and evaluation of photocatytic activity *- Nguyen Van Kim, Huynh Thi Minh Thanh*	40
8-	Preparation and optimization of the composition of novel nZVI/(Fe-Mn) binary oxide/bentonite adsorbent for removal of reactive yellow 145 dye (RY-145) from aqueous solution *- Pham Thi Thanh Huyen, Nguyen Binh Duong, Quan Thi Thu Trang, Phan Thi Ngoc Bich, Pham Van Lam*	45
9-	Photocatalytic activities of $NiFe_2O_4$/nitrogen-doping graphene oxide synthesized by hydrothermal method *- Nguyen Ngoc Minh, Le Thi Cam Nhung, Truong Cong Duc, Nguyen Thi Lieu, Nguyen Van Thang, Dinh Quang Khieu, Nguyen Thi Vuong Hoan*	52
10-	Synthesis of $ZnMn_2O_4$ nanostructure via hydrothermal method *- Nguyen Le My Linh, Do Mai Nguyen*	58
11-	Synthesis and application of Fe-BTC nanocomposites as highly efficient photocatalysts in the dye degradation *- Nguyen Ba Manh, Vu Anh Tuan, Le Ha Giang*	63
12-	A theoretical study on the influence of non-metal (B, C, N, O, F) doping on the electronic and optical properties of graphitic carbon nitride ($g-C_3N_4$) *- Nguyen Thi Thu Ha, Nguyen Ngoc Ha*	69
13-	Synthesis, characterization and photocatalytic application of CNTs/ZnO composite *- Nguyen Duc Vu Quyen, Tran Ngoc Tuyen, Dang Xuan Tin, Ho Van Minh Hai, Bui Thi Hoang Diem, Dang Do, Ho Thi Thuy Dung*	75
14-	Adsorption PO_4^{3-} ion in aqueous solution using ZnO nanomaterials fabricated by electrochemical method *- Pham Huong Quynh, Luong Thi Anh, Luu Thi Liu, Ha Nam Phuong, Nguyen Phuong Chi, Nguyen Thanh Trung, Phung Thi Oanh*	82
15-	Fischer-Tropsch synthesis over $Co/\gamma-Al_2O_3$ catalyst loaded on ceramic monolith-structured substrate *- Do Pham Noa Uy, Nguyen Manh Huan, Hoang Van Loc, Luc Minh Chien, Nguyen Thi Chau Giang, Truong Van Nhan, Phan Minh Quoc Bonh, Nguyen Huu Luong, Huynh Minh Thuan*	88
16-	Synthesis and photocatalytic activity of ZnO/CuO composite for the degradation of methyl blue under vilsible light iradiation *- Nguyen Van Kim, Nguyen Thi Viet Nga, Vu Thi Thanh Tuyen, Vu Vien*	94
17-	Synthesis nanocompsite TiO_2-ZrO_2 for photocatalic degration of phenol and methylene blue (MB) *- Nguyen Thi Hai Yen, Le Thi Hong Hai, Pham Thi Minh Thao*	101
18-	Study on the synthesis of porphyrin-modified copper ferrite as photocatalyst for treatment of MB organic dye in aqueous media *- Tran Van Chinh, Nguyen Tuan Anh, Nguyen Thi Hoai Phuong, Mai Huu Thuan, Tran Van Khanh, Dinh The Dung, Nguyen Thi Hong Phuong, Tran Dai Lam, Lo Duc Duong*	107
19-	Study on Fabrication and investigation of the effects of copper salt precursor with different anions SO_4^{2-}, Cl^-, CH_3COO^- and NO_3^- on the structure and photocatalytic properties for decomposition of methyl orange dye of octahedral Cu_2O nanoparticles *- Nguyen Thi Tuyet Mai, Dang Thi Minh Hue, Nguyen Thi Lan, Tran Thi Thu Huyen, Nguyen Kim Nga, Huynh Dang Chinh, Ta Ngoc Dung, Nguyen Cong Tu, Trinh Xuan Anh, Truong Thi May, Luu Thi Lan Anh*	112
20-	Studying effect of temperature on to formation and red congo absorption ability of cupper oxide *- Nguyen Thi Lan, Nguyen Thi Tuyet Mai, Pham Van Thang, Huynh Dang Chinh, Ta Ngoc Dung, Luu Thi Lan Anh*	118

Vietnam Journal of Catalysis and Adsorption
Tạp chí xúc tác và hấp phụ Việt Nam

http://chemeng.hust.edu.vn/jca/

Ảnh hưởng của điều kiện chế tạo tới khả năng hấp phụ methylene xanh của vật liệu graphene chế tạo bằng phương pháp điện hóa

Effect of synthesis conditions on methylene blue adsorption capacity of electrochemically preparated graphene

Phạm Văn Hảo[1,5], Hà Xuân Linh[2], Phùng Thị Oanh[3], Phan Ngọc Hồng[1], Nguyễn Nhật Huy[4], Đặng Văn Thành[1,3], Nguyễn Văn Đăng[6,*]

[1] *Học viện khoa học và Công nghệ, Viện Hàn lâm Khoa học và Công nghệ Việt Nam;*
[2] *Khoa Quốc tế, Đại học Thái Nguyên;*
[3] *Trường Đại học Y-Dược, Đại học Thái Nguyên;*
[4] *Trường Đại học Bách khoa, ĐHQG-HCM;*
[5] *Trường Đại học Công nghệ Thông tin và Truyền thông, Đại học Thái Nguyên;*
[6] *Trường Đại học Khoa học, Đại học Thái Nguyên.*
**Email: dangnv@tnus.edu.vn*

ARTICLE INFO

Received: 15/8/2020
Accepted: 20/9/2020

Keywords: Graphene, adsorption, electrochemical exfoliation, oxygen-containing groups

ABSTRACT

This report presents the effect of synthesis conditions on the synthesis of graphene nanosheets via electrochemical exfoliation method for adsorbing methylene blue from aqueous solution. Oxygen-containing functional groups and defects in the material were characterized by Raman and X-ray photoelectron spectroscopy (XPS). As a result, by using voltage of 15 V, $(NH_4)_2SO_4$ (5%, 250 mL) and KOH (7.5%, 250 mL), the obtained material showed the highest MB adsorption capacity due to the high densities of oxygen-containing groups and defects comparison to other conditions.

Giới thiệu chung

Methylene xanh hay Methylene blue (MB) nói riêng thường được sử dụng rộng rãi trong phòng thí nghiệm, các ngành dệt may, in ấn, sản xuất giấy, v.v. MB có thể gây kích ứng cho da và mắt khi tiếp xúc trực tiếp, có chứa thành phần nhuộm anion có thể gây tổn thương cho màng sừng và màng kết khi tiếp xúc với mắt. Đặc biệt, khi xâm nhập vào cơ thể qua đường ăn uống, chuyển hóa thành các amin thơm bằng vi sinh đường ruột và thậm chí có thể dẫn tới ung thư đường ruột. Do đó, nghiên cứu loại bỏ MB khỏi nước trước khi thải ra môi trường là nhiệm vụ thiết yếu và cấp bách. Các phương pháp truyền thống thường sử dụng để xử lý nước thải chứa MB là phương pháp keo tụ, trao đổi ion, điện phân, tách chiết, quang xúc tác, kết tủa hóa học và hấp phụ. Trong đó, hấp phụ sử dụng họ vật liệu graphene như graphene oxide, graphite oxide, graphene lai hóa với các oxit kim loại hay chính graphene dạng lớp đang ngày càng được quan tâm do những ưu điểm như hiệu suất cao, khả năng tái sử dụng, quy trình xử lý đơn giản. Các kết quả nghiên cứu trước cho thấy, họ vật liệu này có khả năng hấp phụ rất tốt MB do tương tác giữa các nhóm chức chứa oxy trên bề mặt graphene với các phân tử MB. Tuy nhiên, các nghiên cứu hệ thống về tính chất này liên hệ với điều kiện chế tạo của graphene, đặc biệt theo con đường điện hóa vẫn còn rất ít các công bố.

Trong các nghiên cứu trước, chúng tôi sử dụng kỹ thuật điện hoá và điện hoá plasma bóc tách thành công graphene ngay tại nhiệt độ phòng, thời gian phản ứng ngắn [1] và nghiên cứu ảnh hưởng của điều kiện phân cực lên cấu trúc và hình thái học của vật liệu thu được [2]. Để mở rộng và tìm thêm các ứng dụng, trong nghiên cứu này, chúng tôi tiến hành khảo sát ảnh hưởng của điều kiện chế tạo tới khả năng hấp phụ methylene xanh của vật liệu graphene chế tạo bằng phương pháp điện hóa.

Thực nghiệm và phương pháp nghiên cứu

Dụng cụ và hóa chất

Thanh graphite có độ tinh khiết cao 99,999% (CAS7782-42-5) và KOH (CAS 1310-58-3) được mua từ Sigma-Aldrich. $(NH_4)_2SO_4$ (CAS 0140 - 3150) được mua từ Showa, nước cất 2 lần, hệ điện hoá hai điện cực tự chế tạo tại phòng thí nghiệm, cân điện tử 4 số Mettler Toledo, máy đo pH, tủ sấy chân không, máy đo phổ hấp thụ UV-visible Hitahchi UH5300.

Chế tạo vật liệu graphene

Vật liệu graphene được chế tạo trong các công bố trước của nhóm theo con đường điện hoá sử dụng hai điện cực là hai thanh graphite có độ tinh khiết cao (99,999%), mỗi thanh có đường kính 6 mm và dài 100 mm, theo 2 cách: một là điện ly plasma trên điện cực âm, hai là bóc tách điện hoá với chế độ anodic và chế độ điện hoá với các dung dịch điện ly khác nhau. Phản ứng điện ly plasma được thực hiện bằng cách nhúng điện cực dương ngập sâu trong dung dịch chất điện phân, điện cực âm vót nhọn được để cách bề mặt dung dịch khoảng 1 mm và nối với nguồn điện một chiều có hiệu điện thế phân cực 60 V, do điện cực âm được vót nhọn nên tạo ra một điện trường mạnh làm xuất hiện sự phóng điện plasma và vật liệu graphene được bóc ra khỏi điện cực [2,3]. Chế độ anodic điện cực âm nhúng chìm trong dung dịch chất điện phân, đầu mũi nhọn điện cực dương được để sao cho một đầu tiếp xúc với bề mặt dung dịch chất điện phân, nối hai điện cực với nguồn điện một chiều có hiệu điện thế khoảng 60 V khi dòng điện chạy qua graphene sẽ được bóc ra ở bề mặt điện cực dương nơi tiếp xúc với dung dịch chất điện ly. Đối với bóc tách điện hóa, cả hai điện cực được nhúng chìm trong dung dịch chất điện phân và nối với một nguồn điện một chiều có hiệu điện thế phân cực 15 V, khi có dòng điện chạy qua graphene được bóc tách ra trên điện cực dương [4]. Trong các hệ trên, nhiệt độ bình điện phân được duy trì trong khoảng 40 – 50 ^{0}C, để phản ứng điện hoá diễn ra đồng đều và để tăng tốc độ phản ứng hỗn hợp được khuấy từ ở tốc độ 250 v/ph, thời gian phản ứng được thực hiện trong khoảng 30 phút. Hỗn hợp thu được sau phản ứng đem lọc bằng màng lọc PVDF (kích thước lỗ trung bình là 0,2 µm) và rửa nhiều lần bằng nước cất 2 lần đến trung tính rồi đem sấy khô bằng tủ sấy hút chân không trong 24 giờ. Các vật liệu thu được theo các điều kiện khác nhau được đặt tên như trong bảng số 1.

Bảng 1. Danh sách mẫu graphene chế tạo ở các điều kiện khác nhau

STT	Điều kiện chế tạo	Tên mẫu
1	Chế độ điện ly plasma trên điện cực catốt	M1
2	Chế độ điện ly plasma anodic	M2
3	Chế độ bóc tách điện hóa trên điện cực Anốt với dung dịch KOH (7,5%)	M3
4	Chế độ bóc tách điện hóa trên điện cực Anốt với dung dịch $(NH_4)_2SO_4$ (5%)	M4
5	Chế độ bóc tách điện hóa trên điện cực Anốt với dung dịch KOH (200 mL, 7,5%) + $(NH_4)_2SO_4$ (50 mL, 5%).	M5

Khảo sát cấu trúc của vật liệu

Cấu trúc vật liệu của các mẫu chế tạo với các chế độ khác nhau được nghiên cứu qua phép đo phổ tán xạ Micro - Raman (Raman Horiba Jobin Yvon Lab RAM HR 800). Hóa trị và liên kết giữa các nguyên tử trong vật liệu được phân tích bằng phương pháp phổ kế quang điện tử tia X (09A2 U5-spectroscopy beam line for XPS, Tân Trúc, Đài Loan).

Khảo sát khả năng hấp phụ xanh methylen

Các vật liệu thu được ở các điều kiện thí nghiệm khác nhau được đem thử nghiệm khả năng hấp phụ xanh methylene (MB) trong điều kiện nhiệt độ phòng và pH trung tính. Dung dịch MB được pha thành các nồng độ 25, 50, 100, 150, 200 ppm rồi cho 50ml vào mỗi bình tam giác có chứa 0,02g vật liệu hấp phụ, lắc đều trong thời gian 90 phút. Sau thời gian hấp phụ, các mẫu được ly tâm ở tốc độ 4000 vòng / phút trong 15 phút và hút lấy phần dung dịch phía trên đem đi xác định nồng độ MB theo phương pháp đường chuẩn sử dụng máy đo UV-Vis (Hitachi UH5300) ở bước sóng 665 nm.

Hiệu suất và dung lượng hấp phụ được tính bằng công thức :

$$q_t = \frac{(C_0 - C_t)V}{m} \quad (1)$$

$$H = \frac{C_0 - C_t}{C_0}.100\% \qquad (2)$$

trong đó: q_t là dung lượng hấp phụ tại thời điểm t (mg/g), V là thể tích dung dịch MB (L), m là khối lượng vật liệu hấp phụ (g), H là hiệu suất hấp phụ (%), C_0, C_t lần lượt là nồng độ MB ban đầu và tại thời điểm t trong dung dịch (mg/L).

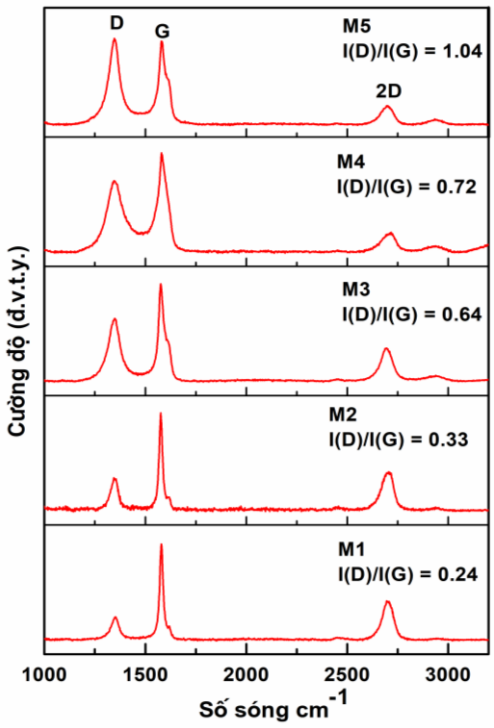
Để xác định dung lượng cực đại hấp phụ MB lên vật liệu chúng tôi sử dụng mô hình Langmuir [5]:

$$\frac{C_{cb}}{q_t} = \frac{1}{b.q_{max}} + \frac{1}{q_{max}}.C_{cb} \qquad (3)$$

trong đó: q_t và q_{max} dung lượng hấp phụ cân bằng, dung lượng hấp phụ cực đại (mg/g), b là hằng số Langmuir, C_{cb} nồng độ chất bị hấp phụ khi đạt cân bằng hấp phụ (mg/L).

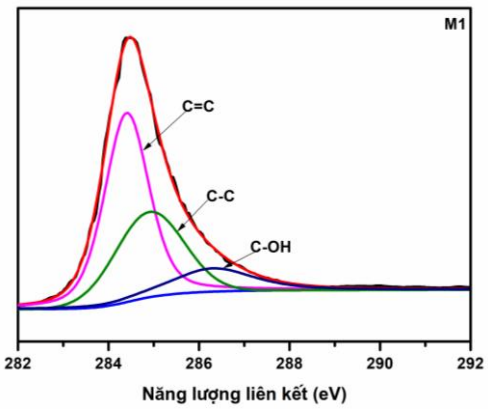
Kết quả và thảo luận

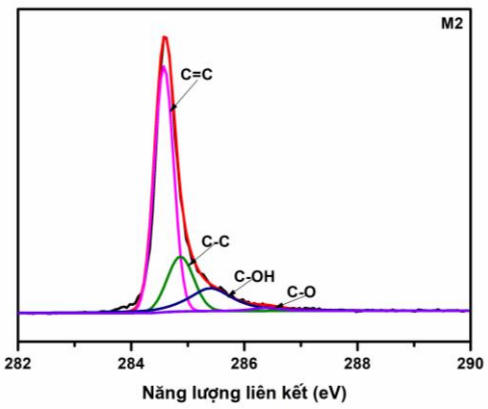
Trong các nghiên cứu trước của nhóm graphene dạng tấm có kích thước nano đã được chế tạo thành công theo phương pháp bóc tách điện hóa và điện hóa plasma [2,3,6]. Do đó, trong nghiên cứu này chúng tôi tập trung vào ảnh hưởng của điều kiện chế tạo lên các nhóm chức chứa oxy sử dụng phổ Raman (hình 1) và XPS (hình 2).

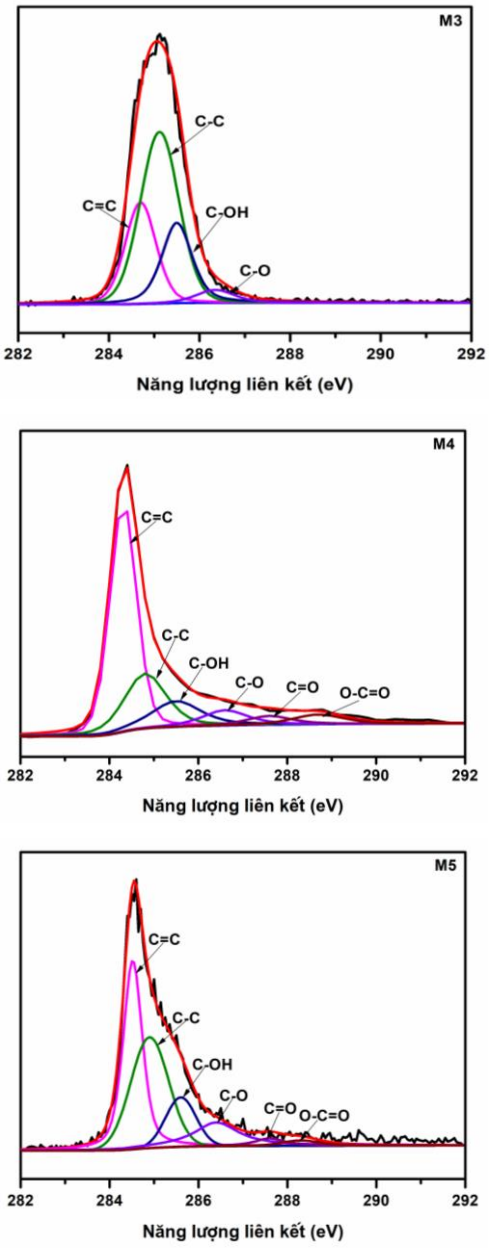


Hình 1. Phổ raman của các mẫu graphene

Thông thường, phổ Raman là một công cụ đơn giản và dễ thực hiện để nghiên cứu cấu trúc của các vật liệu carbon như than chì, kim cương, ống nano carbon, graphene và GO [7] ở đó tỷ số cường độ của dải D trên dải G (I_D/I_G) liên quan đến các khuyết tật cấu trúc được tạo ra bởi sự gắn các nhóm oxy, hydroxyl trên mặt của vật liệu graphene. Từ hình 1 cho thấy cường độ đỉnh D phụ thuộc rõ rệt vào điều kiện chế tạo, cụ thể tỷ số I_D/I_G được tính toán lần lượt là 0.24, 0.33, 0.64, 0.72 và 1.04 tương ứng với các mẫu từ M1 đến M5 (M1-5). Tỷ lệ I_D/I_G càng cao cho thấy cấu trúc khuyết tật càng cao do sự gắn kết của các nhóm chức năng chứa oxy. Để khẳng định rõ ràng hơn điều này chúng tôi sử dụng phổ quang điện tử tia X (XPS) để nghiên cứu các thành phần hoá học của các mẫu vật liệu chế tạo được. Các đỉnh tương ứng với liên kết sp^2 C=C tại 284.5 eV, liên kết sp^3 C-C tại 284.8 eV, liên kết C-OH tại 285.5 eV, liên kết C-O tại 286.6 eV, liên kết C=O tại 287.6 eV và liên kết O-C=O tại 288.8 eV [8]. Hình 2 cho thấy theo thứ tự từ M1 đến M5 mẫu sau có nhiều liên kết với oxi hơn mẫu trước nghĩa là theo thứ tự đó mẫu sau có tỉ lệ nguyên tử các bon liên kết với nhóm chức chứa oxi nhiều hơn mẫu trước (bảng 2), ở đó tạo điều kiện thuận lợi cho việc tương tác giữa các nhóm đó với các phân tử cationic dyes [9], ví dụ như MB trong nghiên cứu này.





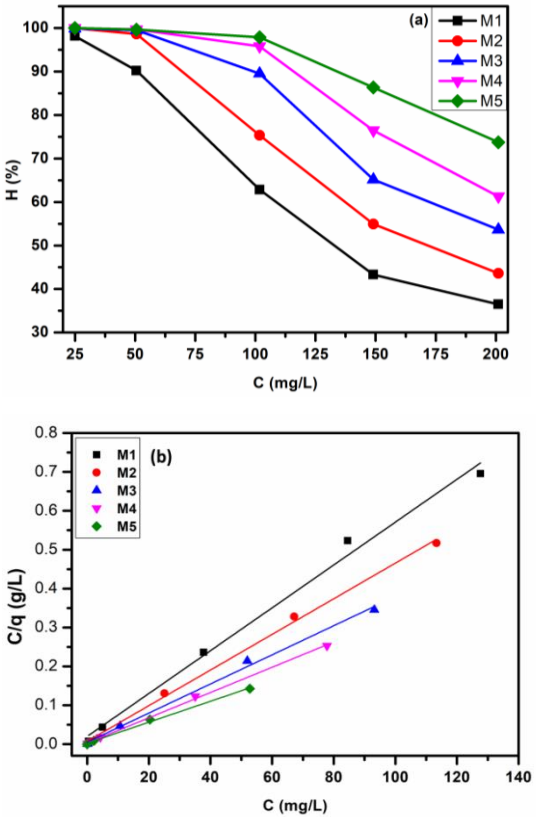


Hình 2. Phổ XPS của các mẫu graphene

Bảng 2. Tỷ lệ phần trăm tương đối của nguyên tử cacbon trong các nhóm chức khác nhau trong (M1-5), được tính toán dựa trên diện tích các đỉnh trong C1s.

	M1	M2	M3	M4	M5
C=C (%) ~284.5eV	54.29	62.00	24.06	51.27	35.94
C–C (%) ~284.8eV	32.24	19.02	56.63	20.93	33.59
C–OH (%) ~285.5 eV	13.47	17.54	16.54	12.48	12.50
C-O(%) ~286.7 eV	-	1.48	3.76	6.85	13.28
C=O(%) ~287.6 eV	-	-	-	3.94	2.73
O-C=O ~288.6 eV	-	-	-	4.53	1.95

Để kiểm tra giả thiết này, các vật liệu (M1-5) được khảo sát hiệu suất hấp phụ MB với các nồng độ khác nhau, kết quả thể hiện trên hình 3a. Có thể nhận thấy, tất cả các đường đều có cùng một xu hướng hiệu suất giảm khi nồng độ MB ban đầu tăng lên. Điều này có thể giải thích với một lượng vật liệu xác định thì số vị trí hút bám trên bề mặt vật liệu là xác định trong khi nồng độ MB trong dung dịch tăng lượng MB dư lại trong dung dịch tăng làm cho hiệu suất xử lý giảm. Cũng theo hình 3a ta thấy, với cùng một lượng vật liệu 0.02g, thời gian 90 phút hấp phụ, và pH trung tính, hiệu suất hấp phụ MB tăng dần theo thứ tự vật liệu từ M1 đến M5. Từ các kết quả thực nghiệm, mô hình Langmuir tuyến tính được sử dụng để tính dung lượng hấp phụ cực đại của các vật liệu từ M1 đến M5, kết quả lần lượt là 181.81, 217.39, 270.27, 303.03 và 370.37 mg/g.



Hình 3. (a) Hiệu suất hấp phụ của các mẫu phụ thuộc nồng độ MB ban đầu. (b) Đồ thị đẳng nhiệt Langmuir hấp phụ MB lên vật liệu

Có thể nhận thấy, mô hình đẳng nhiệt langmuir mô tả khá tốt sự hấp phụ MB lên các vật liệu từ M1 đến M5 thể hiện qua hệ số tương quan hồi qui tương quan R^2 > 0.99 của phương trình Langmuir tuyến tính (bảng 3). Chúng tôi cho rằng, tỷ lệ phần trăm nguyên tử cacbon liên kết với các nhóm có chứa oxy (trong XPS) liên hệ với I_D/I_G (trong Raman) góp phần làm tăng khả năng hấp phụ của các vật liệu từ M1 đến M5. Để so sánh khả năng hấp phụ MB của graphene chế tạo được trong nghiên cứu này với các công trình đã công bố khác chúng tôi liệt kê tại bảng 4.

Bảng 3. Các giá trị tham số của phương trình đẳng nhiệt Langmuir

Mẫu	Langmuir			
	q_{max}(mg/g)	K_L(L/g)	R^2	R_L
M1	181.81	0.0015	0.9931	0.7683
M2	217.39	0.0029	0.9979	0.6317
M3	270.27	0.0029	0.9966	0.6317
M4	303.03	0.0040	0.9987	0.5543
M5	370.37	0.0029	0.9967	0.6317

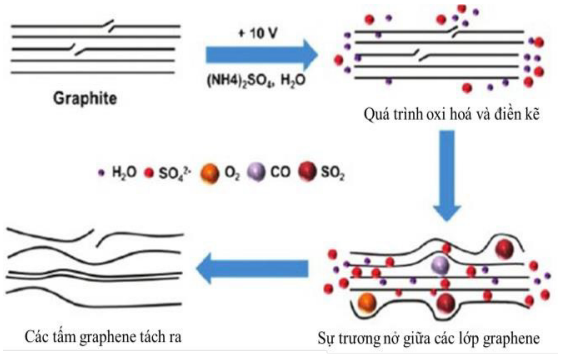
Bảng 4. So sánh dung lượng hấp phụ cực đại theo mô hình Langmuir của một số vật liệu gốc cacbon

STT	Vật liệu	q_{max} (mg/g)	Trích dẫn
1	Graphene oxide chế tạo bằng phương pháp Hummer.	153.85	[10]
2	Activated Carbon	259.74	[11]
3	Graphene oxide modified persimmon tannins	256.58	[12]
4	magnetic graphene oxide modified zeolite	97.346	[13]
5	Graphene chế tạo bằng phương pháp điện hoá	370.37	Bài báo này

Để làm sáng tỏ thêm về sự thay đổi của tỷ lệ phần trăm nguyên tử cacbon liên kết với các nhóm có chứa oxi và I_D/I_G chúng tôi đề xuất như sau:

Trong trường hợp điện ly plasma, hiệu ứng mũi nhọn làm tập trung một điện trường rất lớn, khi hiệu điện thế tăng tới khoảng 50-60V hiện tượng phóng điện bắt đầu xảy ra, giải phóng nhiệt mạnh mẽ do sự sôi dung môi tiếp xúc với điện cực và đi kèm với nó là các phản ứng khử giải phóng mãnh liệt khí hydro bao phủ toàn bộ bề mặt điện cực, vùng này gọi là plasma trong dung dịch. Trong điều kiện nhiệt độ cao của hiện tượng phóng điện khí hydro sinh ra sẽ điền kẽ vào các lớp trong cấu trúc của graphite thắng lực Van der Waals và chúng tách ra thành graphene [1]. Trong trường hợp này, bóc tách do khí hydro đóng góp lớn hơn nên tỷ lệ phần trăm nguyên tử cacbon liên kết với các nhóm có chứa oxi và I_D/I_G của mẫu M1 nhỏ nhất.

Trong trường hợp bóc tách điện hóa, sự bóc tách graphene trên điện cực dương được miêu tả trong hình 4: (1) Đặt điện áp phân cực dẫn đến nước bị khử ở cực âm, tạo ra các ion hydroxyl (OH^{-1}) hoạt động như một nucleophin mạnh trong chất điện phân. Sự tấn công của nucleophin lên graphite ban đầu xảy ra ở các vị trí rìa và ranh giới hạt; (2) Quá trình oxy hóa tại các vị trí rìa và ranh giới hạt sau đó dẫn đến sự khử cực và mở rộng các lớp graphite, do đó tạo điều kiện thuận lợi cho sự xen phủ các ion sulfat (SO_4^{2-}) trong các lớp graphite. Trong giai đoạn này, các phân tử nước có thể xen kẽ với các anion (SO_4^{2-}); (3) Sự khử anion (SO_4^{2-}) và sự tự oxy hóa của nước tạo ra các dạng khí như SO_2, O_2, và các chất khác trong quá trình điện hóa [14,15]. Các loại khí này có thể tác động lực lớn lên các lớp graphite, đủ để tách các lớp graphite liên kết yếu với nhau [16]. Trong trường hợp này, quá trình này xảy ra trên điện cực anốt dẫn đến sự điền kẽ của oxi và các nhóm chức chứa oxi vào giữa các lớp graphite và tách chúng ra thành graphene đóng góp chính dẫn đến tỷ lệ phần trăm nguyên tử cacbon liên kết với các nhóm có chứa oxi và I_D/I_G tăng dần.



Hình 4. Sơ đồ minh họa cơ chế bóc tách điện hóa theo Khaled Parvez và cộng sự [16].

Từ các kết quả và phân tích trên cho thấy, có thể điều khiển các điều kiện trong quá trình bóc tách điện hóa để điều khiển tỷ lệ phần trăm nguyên tử cacbon liên kết với các nhóm có chứa oxi cho mục đích hấp phụ các cationic dyes như MB cũng như tăng khả năng phân tán quá trình chế tạo vật liệu tổ hợp.

Kết luận

Bằng cách điều khiển các điều kiện chế tạo khác nhau trong quá trình bóc tách điện hoá graphite chúng tôi đã điều khiển được tỷ lệ phần trăm nguyên tử cacbon liên kết với các nhóm có chứa oxi cho mục đích hấp phụ. Dung lượng hấp phụ MB đạt được cao nhất với vật liệu graphene chế tạo bởi chế độ U = 15 V, $(NH_4)_2SO_4$ (5 %, 250 mL) and KOH (7.5 %, 250 mL) liên hệ với tỷ lệ phần trăm nguyên tử cacbon liên kết với các nhóm có chứa oxi cao hơn các điều kiện chế tạo khác.

Lời cảm ơn

Nghiên cứu này được tài trợ bởi đề tài thuộc Chương trình phát triển Vật lý đến năm 2020, mã số ĐTĐLCN.35/18

Tài liệu tham khảo

1. D. Van Thanh, P.P. Oanh, P.H. Le, Ultrasonics sonochemistry 34 (2017) 978. https://doi.org/ 10.1016/j.ultsonch.2016.07.025
2. H.X.L. Phạm Văn Hảo, Phùng Thị Oanh, Phan Ngọc Hồng, Nguyễn Nhật Huy, Đặng Văn Thành Tạp chí hóa học 57(2e1,2) (2019) 104.
3. D. Van Thanh, L.-J. Li, C.-W. Chu, P.-J. Yen, K.-H. Wei, RSC advances 4 (2014) 6946. https://doi.org/10.1039/C3RA46807K
4. K. Parvez, Z.-S. Wu, R. Li, X. Liu, R. Graf, X. Feng, K. Mullen, Journal of the American Chemical society 136 (2014) 6083. https://doi.org/10.1021/ja5017156
5. Y. Yao, F. Xu, M. Chen, Z. Xu, Z. Zhu, Bioresource technology 101 (2010) 3040. https://doi.org/ 10.1016/j.biortech.2009.12.042
6. H.X. Linh, P.T. Oanh, N.N. Huy, P. Van Hao, P.N. Minh, P.N. Hong, D. Van Thanh, Materials Letters 250 (2019) 16. https://doi.org/10.1016/ j.matlet.2019.04.115
7. T. Livneh, T.L. Haslett, M. Moskovits, Physical Review B 66 (2002) 195110. https://doi.org/10.1103/ PhysRevB.66.195110
8. S. Stankovich, D.A. Dikin, R.D. Piner, K.A. Kohlhaas, A. Kleinhammes, Y. Jia, Y. Wu, S.T. Nguyen, R.S. Ruoff, carbon 45 (2007) 1558. https://doi.org/ 10.1016/j.carbon.2007.02.034
9. F. Wang, Chemical Engineering Research and Design 128 (2017) 155. https://doi.org/10.1016/ j.cherd.2017.10.007
10. T. Liu, Y. Li, Q. Du, J. Sun, Y. Jiao, G. Yang, Z. Wang, Y. Xia, W. Zhang, K. Wang, Colloids and Surfaces B: Biointerfaces 90 (2012) 197. https://doi.org/10.1016/ j.colsurfb.2011.10.019
11. O. Üner, Ü. Geçgel, Y. Bayrak, Water, Air, & Soil Pollution 227 (2016) 247. https://doi.org/10.1007/ s11270-016-2949-1
12. Z. Wang, M. Gao, X. Li, J. Ning, Z. Zhou, G. Li, Materials Science and Engineering: C 108 (2020) 110196. https://doi.org/10.1016/j.msec.2019.110196
13. T. Huang, M. Yan, K. He, Z. Huang, G. Zeng, A. Chen, M. Peng, H. Li, L. Yuan, G. Chen, Journal of colloid and interface science 543 (2019) 43. https://doi.org/10.1016/j.jcis.2019.02.030
14. F. Beck, J. Jiang, H. Krohn, Journal of Electroanalytical Chemistry 389 (1995) 161. https://doi.org/10.1016/0022-0728(95)03870-M
15. F. Beck, H. Junge, H. Krohn, Electrochimica Acta 26 (1981) 799. https://doi.org/10.1016/0013-4686(81)85038-4
16. K. Parvez, Z.-S. Wu, R. Li, X. Liu, R. Graf, X. Feng, K. Müllen, Journal of the American Chemical Society 136 (2014) 6083. https://doi.org/10.1021/ja5017156