



Tổng hợp, nghiên cứu đặc trưng cấu trúc của các vật liệu hydrotanxit Mg-Al-CO<sub>3</sub> biến tính bởi ion Cu<sup>2+</sup> và ứng dụng làm xúc tác xử lý metylen xanh trong nước

Synthesis, characterization of Mg-Al-CO<sub>3</sub> hydrotalcites modified by Cu<sup>2+</sup> ions using as photocatalyst for degradation of methylene blue in water

Phạm Thị Hà Thanh<sup>1</sup>, Nguyễn Quốc Dũng<sup>1</sup>, Lê Thị Phương<sup>1</sup>, Vũ Văn Nhung<sup>1,\*</sup>

<sup>1</sup>Khoa Hóa học, Trường đại học Sư phạm – Đại học Thái Nguyên

\*Email: [nhuongw@tnue.edu.vn](mailto:nhuongw@tnue.edu.vn)

#### ARTICLE INFO

Received: 17/5/2021

Accepted: 15/7/2021

Published: 15/10/2021

#### Keywords:

Hydrotalcite, co-precipitation, characterization, photocatalyst, conversion.

#### ABSTRACT

The CuMgAl hydrotalcite materials were synthesized by co-precipitation method using nitrate salts of Mg<sup>2+</sup>, Al<sup>3+</sup>, Cu<sup>2+</sup> and Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> (Merck), at pH = 9.5, aged in a teflon flask at 100 °C for 24 hours. The synthesized materials were characterized by the following methods: XRD diagram, TEM image, EDS spectrum, the adsorption/desorption isotherm N<sub>2</sub> (BET), UV-Vis DRS spectroscopy. The characterization results showed that the 8 synthesized samples have a double layered structure of hydrotalcite, the average particle sizes in the range of 15.09-21.20 nm and the absorption margin shifts strongly to the visible light region. The conversion of methylene blue (MB) increases when the ratio molars of ion Cu<sup>2+</sup> in the samples arrange in 0 to 3.5, and set of the CuMgAl-2.5, CuMgAl-3.0 and Cu-MgAl-3.5 materials showed that they are able to degradate MB very well under visible light. The conversion of MB 30 ppm can reach 94 % after 90 min on CuMgAl-3.0 sample using irradiation of LED lamp 30 W light. The catalytic activity of the materials depends on the amount of Cu<sup>2+</sup> in the sample, the concentration of H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>, MB and the pH values of the medium.

#### Giới thiệu chung

Các vật liệu hydrotanxit đã được biết cách đây khoảng 150 năm. Từ đó tới nay, họ vật liệu này đã được nhiều nhà khoa học quan tâm nghiên cứu và ứng dụng trong nhiều lĩnh vực khác nhau: hấp phụ, xúc tác cho tổng hợp hữu cơ, xúc tác hóa dầu, quang xúc tác... Hydrotanxit có công thức là Mg<sub>0,667</sub>Al<sub>0,333</sub>(OH)<sub>2</sub>(CO<sub>3</sub>)<sub>0,167</sub>(H<sub>2</sub>O)<sub>0,5</sub> là khoáng vật trong tự nhiên. Ngày nay, người ta đã tổng hợp các vật liệu

hydrotanxit chứa tỷ lệ M<sup>2+</sup>/M<sup>3+</sup> khác nhau (M<sup>2+</sup> là kim loại hóa trị II như Mg<sup>2+</sup>, Zn<sup>2+</sup>; M<sup>3+</sup> là kim loại hóa trị III như Al<sup>3+</sup>) và cả các vật liệu hydroxit lớp kép của các kim loại hóa trị II, III hoặc II và IV [1]. Nhiều mẫu vật liệu trên cơ sở hydrotanxit, hydroxit lớp kép Mg-Al đã được tổng hợp thành công để ứng dụng làm chất hấp phụ, xúc tác, quang xúc tác: các vật liệu MgCuAl dùng để oxi hóa chọn lọc styren [2], Mg-Al dùng cho phản ứng decarboxyl hóa dầu dừa thu hydrocacbon [3], Cu-Mg-Al, Cu-Ti-hydrotanxit dùng làm xúc tác phân hủy

rhodamin-B trong nước [4,5]. Các kết quả nghiên cứu đã cho thấy việc tổng hợp các họ vật liệu hydrotanxit chủ yếu được tổng hợp bằng phương pháp đồng kết tủa, dụng cụ, thiết bị đơn giản, chi phí thấp, đặc biệt chúng có hoạt tính xúc tác khá cao. Tuy nhiên, việc nghiên cứu ảnh hưởng của tỉ lệ mol ion  $\text{Cu}^{2+}$  đến cấu trúc hydrotanxit Mg-Al- $\text{CO}_3$  và hoạt tính quang xúc tác của các vật liệu biến tính này trong phản ứng phân hủy metylen xanh chưa được nghiên cứu một cách hệ thống. Do vậy, chúng tôi đã tiến hành tổng hợp các vật liệu hydrotanxit Mg-Al- $\text{CO}_3$  biến tính bằng ion  $\text{Cu}^{2+}$  theo các tỉ lệ mol  $\text{Cu}^{2+}$  khác nhau và ứng dụng làm xúc tác xử lý MB trong nước dưới ánh sáng đèn LED 30 W (sản xuất bởi công ty Cổ phần Bóng đèn Phích nước Rạng Đông - Việt Nam).

## Thực nghiệm và phương pháp nghiên cứu

### Tổng hợp vật liệu

Các vật liệu tổng hợp hydrotanxit MgAl- $\text{CO}_3$  và hydrotanxit biến tính bằng ion  $\text{Cu}^{2+}$  (CuMgAl-n) được tổng hợp như sau [2,4]: Hòa tan đồng thời

$\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{Mg}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$  (Merck) (được lấy theo tỉ lệ mol xác định của  $\text{Cu}^{2+}:\text{Mg}^{2+}:\text{Al}^{3+}:\text{CO}_3^{2-}$ ) với 150 mL nước khử ion trong bình tam giác nút nhám 250 mL. Đặt bình phản ứng trên máy khuấy từ gia nhiệt để được dung dịch đồng nhất. Tiếp theo, nhỏ từ từ từng giọt cho đến hết 25 mL  $\text{Na}_2\text{CO}_3$  0,6 M vào bình phản ứng và khuấy 60 phút ở nhiệt độ phòng. Chuyển toàn bộ hỗn hợp vào cốc thủy tinh 400 mL và điều chỉnh pH của hỗn hợp bằng dung dịch NaOH 2M đến pH = 9,5, thu được gel. Sau đó, khuấy gel trên máy khuấy từ 60 phút.

Tiếp tục, gel được già hóa trong bình Teflon ở 100 °C trong 24 giờ. Sau khi già hóa gel, tiến hành lọc, rửa sản phẩm bằng nước nóng (70 °C) vài lần bằng nước khử ion đến pH = 7,0. Sấy chất rắn ở 80 °C trong 24 giờ thu được các mẫu vật liệu hydrotanxit (kí hiệu là MgAl) và hydrotanxit biến tính bằng ion  $\text{Cu}^{2+}$  (kí hiệu là CuMgAl-n với n là tỉ lệ mol  $\text{Cu}^{2+}$  trong mẫu) (bảng 1). Sau đó, các mẫu được nghiền bằng chày cối mã não và được dùng để tiến hành nghiên cứu đặc trưng cấu trúc và hoạt tính quang xúc tác.

Bảng 1: Các mẫu vật liệu tổng hợp hydrotanxit MgAl và hydrotanxit biến tính bằng  $\text{Cu}^{2+}$  (CuMgAl-n)

STT	Kí hiệu	Tỉ lệ mol Cu:Mg:Al:CO <sub>3</sub> ( $n_{\text{Mg}} + n_{\text{Cu}} = 0,7$ )	Công thức	Giá trị $d_{003}$ (Å)	Kích thước hạt trung bình tính theo Scherrer (nm)	Màu sắc
1	MgAl	0:7,0:3,0:1,5	$\text{Mg}_{0,7}\text{Al}_{0,3}(\text{OH})_2(\text{CO}_3)_{0,15} \cdot n\text{H}_2\text{O}$	7,830	33,28	Trắng
2	CuMgAl-0,5	0,5:6,5:3,0:1,5	$\text{Mg}_{0,65}\text{Cu}_{0,05}\text{Al}_{0,3}(\text{OH})_2(\text{CO}_3)_{0,15} \cdot n\text{H}_2\text{O}$	7,667	18,64	Xanh
3	CuMgAl-1,0	1,0:6,0:3,0:1,5	$\text{Mg}_{0,6}\text{Cu}_{0,1}\text{Al}_{0,3}(\text{OH})_2(\text{CO}_3)_{0,15} \cdot n\text{H}_2\text{O}$	7,767	20,31	Xanh
4	CuMgAl-1,5	1,5:5,5:3,0:1,5	$\text{Mg}_{0,55}\text{Cu}_{0,15}\text{Al}_{0,3}(\text{OH})_2(\text{CO}_3)_{0,15} \cdot n\text{H}_2\text{O}$	7,825	17,96	Xanh
5	CuMgAl-2,0	2,0:5,0:3,0:1,5	$\text{Mg}_{0,5}\text{Cu}_{0,2}\text{Al}_{0,3}(\text{OH})_2(\text{CO}_3)_{0,15} \cdot n\text{H}_2\text{O}$	7,762	15,09	Xanh
6	CuMgAl-2,5	2,5:4,5:3,0:1,5	$\text{Mg}_{0,45}\text{Cu}_{0,25}\text{Al}_{0,3}(\text{OH})_2(\text{CO}_3)_{0,15} \cdot n\text{H}_2\text{O}$	7,859	21,20	Xanh
7	CuMgAl-3,0	3,0:4,0:3,0:1,5	$\text{Mg}_{0,4}\text{Cu}_{0,3}\text{Al}_{0,3}(\text{OH})_2(\text{CO}_3)_{0,15} \cdot n\text{H}_2\text{O}$	7,794	16,09	Xanh + Đen
8	CuMgAl-3,5	3,5:3,5:3,0:1,5	$\text{Mg}_{0,35}\text{Cu}_{0,35}\text{Al}_{0,3}(\text{OH})_2(\text{CO}_3)_{0,15} \cdot n\text{H}_2\text{O}$	7,865	19,02	Xanh + Đen

Giá trị  $d_{003}$ : Khoảng cách giữa hai lớp bên trong.

### Các phương pháp vật lý nghiên cứu đặc trưng xúc tác

Thành phần pha tinh thể được xác định bằng giản đồ nhiễu xạ tia X, thành phần các nguyên tố trong mẫu được xác định bằng phổ EDS tại khoa Hóa học, trường

Đại học KHTN – ĐHQG Hà Nội. Các ảnh TEM của vật liệu được đo tại Viện vệ sinh dịch tễ TW Hà Nội. Các đường đẳng nhiệt hấp phụ/giải hấp phụ  $\text{N}_2$  được đo tại Viện Hóa học - Viện Hàn Lâm Khoa học Việt Nam. Quang phổ UV-Vis DRS được xác định trên máy U-

<https://doi.org/10.51316/jca.2021.135>

4100 Spectrophotometer tại khoa Hóa học - trường Đại học Sư phạm – Đại học Thái Nguyên.

### Khảo sát hoạt tính xúc tác của các mẫu vật liệu tổng hợp đối với MB

Để khảo sát khả năng phân hủy quang hóa của các mẫu vật liệu tổng hợp, chúng tôi tiến hành khảo sát như sau: Sử dụng 0,2 g các mẫu vật liệu tổng hợp để tiến hành hấp phụ 250 mL MB nồng độ 30 ppm trong bóng tối 30 phút để đạt cân bằng hấp phụ. Sau khi hấp phụ trong bóng tối, thêm 1,2 mL H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> 30% vào hỗn hợp phản ứng, tiến hành khảo sát khả năng phân hủy MB dưới ánh sáng đèn LED 30 W theo thời gian chiếu sáng. Sau mỗi khoảng 30 phút, tiến hành lấy mẫu, ly tâm và đo độ hấp thụ quang phân tử tại bước sóng 664 nm để xác định nồng độ MB tại các thời điểm lấy mẫu. Từ đó, có thể so sánh được hoạt tính quang xúc tác của các mẫu vật liệu tổng hợp. Sau đó, chúng tôi sử dụng mẫu vật liệu có hoạt tính tốt để khảo sát ảnh hưởng của các yếu tố ảnh hưởng: nồng độ MB, nồng độ H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>, pH môi trường.

### Xác định nồng độ MB trong nước

Sau mỗi khoảng thời gian xác định, ly tâm để loại bỏ mẫu vật liệu, pha loãng mẫu để xác định nồng độ MB còn lại trong dung dịch theo phương pháp đo độ hấp thụ phân tử của MB ở bước sóng 664 nm. Độ hấp thụ quang phân tử của MB được đo trên máy UV-Vis 1700 tại Khoa Hóa học - Trường Đại học Sư phạm Thái Nguyên. Nồng độ MB còn lại trong dung dịch được

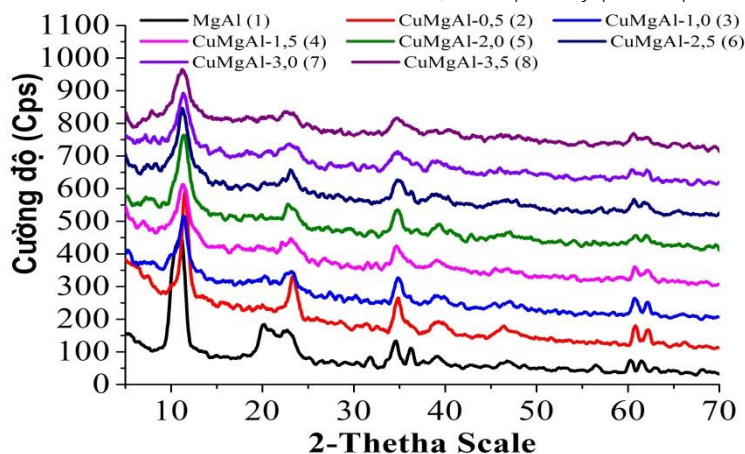
tính toán theo phương pháp đường chuẩn  $y = 0,1796x + 0,0433$ ,  $R^2 = 0,9995$ .

### Kết quả và thảo luận

#### Đặc trưng cấu trúc vật liệu xúc tác

##### Giản đồ nhiễu xạ tia X (XRD)

Kết quả phân tích giản đồ XRD của 8 mẫu vật liệu tổng hợp ở hình 1 cho thấy, tất cả các mẫu chỉ xuất hiện các đỉnh pic đặc trưng cho cấu trúc tinh thể của hydrotanxit. Các giá trị  $d_{003}$  tại góc  $2\theta = 11,57^\circ$ ,  $d_{006}$  tại góc  $2\theta = 23,45^\circ$  và  $d_{110}$  tại góc  $2\theta = 60,9^\circ$  được dùng để tính thông số mạng của vật liệu (khoảng cách giữa các ion kim loại và bề dày của lớp bruxit).<sup>[2,5]</sup> Kết quả thu được như sau: thông số a dao động trong khoảng 3,044-3,056 Å, thông số c đạt từ 22,92-23,53 Å. Các thông số a và c này khá tương đồng với kết quả trong tài liệu.<sup>[2]</sup> Khoảng cách giữa 2 lớp bên trong ( $d_{003}$ ) được chỉ ra trong bảng 1 cho thấy các giá trị  $d_{003}$  thay đổi trong khoảng 7,667-7,859 Å đặc trưng cho cấu trúc dạng bruxit của hydrotanxit với ion CO<sub>3</sub><sup>2-</sup> nằm giữa các lớp. Cường độ và chiều cao đỉnh pic tại góc nhiễu xạ  $11,57^\circ$  giảm khi tăng tỉ lệ Cu<sup>2+</sup> trong các mẫu, cho thấy có sự suy giảm cấu trúc lớp kép khi tăng tỉ lệ mol Cu<sup>2+</sup> trong mẫu. Ngoài ra, kích thước hạt hydrotanxit trung bình giảm mạnh khi biến tính bằng ion Cu<sup>2+</sup> (bảng 1), các vật liệu biến tính có kích thước hạt trung bình thay đổi không đáng kể, dao động trong khoảng 15,09-21,20 nm, nhỏ hơn kích thước của mẫu MgAl (33,28 nm). Kết quả này phù hợp với ảnh TEM ở hình 2.

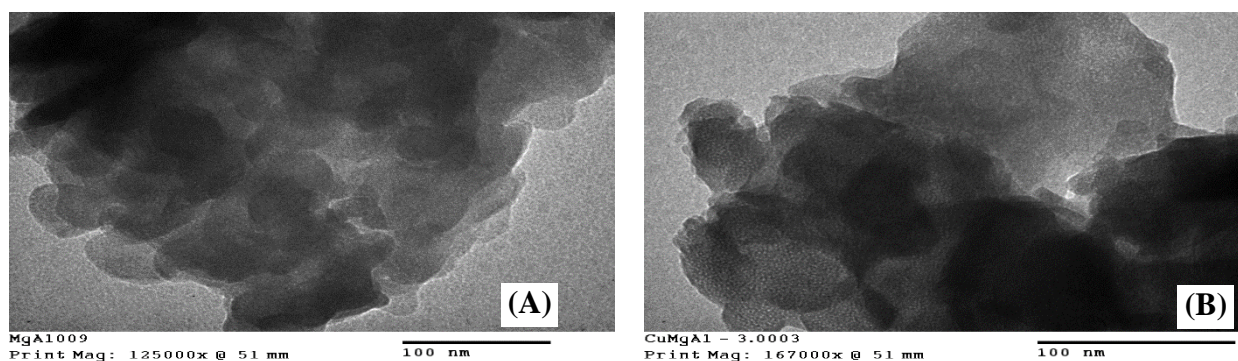


Hình 1: Giản đồ XRD của các mẫu vật liệu MgAl, CuMgAl-0,5 - CuMgAl-3,5

#### Ảnh TEM của các vật liệu

Ảnh TEM của hai mẫu vật liệu MgAl và CuMgAl-3,5 ở hình 2 đã cho thấy rõ ràng về cấu trúc lớp phiến của vật liệu hydrotanxit. Các lớp có dạng hình cầu với kích

thước không đồng đều. Cả hai mẫu vật liệu MgAl và CuMgAl-3,0 đều xuất hiện các lỗ mao quản trung bình trong các lớp phiến. Kết quả phân tích này phù hợp với kết quả thu được khi phân tích đường đẳng nhiệt hấp phụ/giải hấp phụ N<sub>2</sub>.



Hình 2: Ảnh TEM của 2 mẫu vật liệu MgAl (A) và CuMgAl-3,0 (B)

*Kết quả phân tích thành phần % nguyên tố trong mẫu*

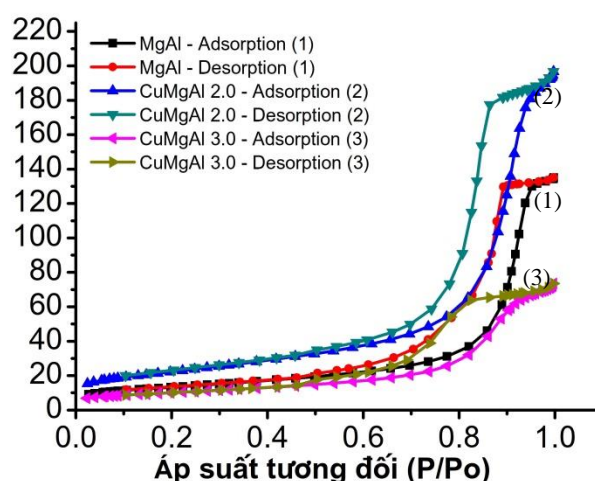
Kết quả phân tích % nguyên tử của các nguyên tố Mg, Al, Cu, O trong 3 mẫu vật liệu MgAl, CuMgAl-2,0 và CuMgAl-3,0 bằng phổ EDS được thể hiện ở bảng 2 dưới đây. Tỷ lệ số nguyên tử của các nguyên tố Mg:Al và Cu:Mg:Al không trùng khớp với tỷ lệ tính toán theo lý thuyết để tổng hợp vật liệu (Mg:Al = 7:3; Cu:Mg:Al = 2:5:3 và 3:4:3, tương ứng). Điều này có thể là do ở pH cao, một phần Al(OH)<sub>3</sub> bị hòa tan làm giảm lượng Al<sup>3+</sup> trong mẫu, làm thay đổi tỷ lệ mol của các nguyên tố.

Bảng 2: Thành phần % nguyên tử của các nguyên tố Mg, Al, Cu, O trong các mẫu vật liệu

Mẫu	MgAl	CuMgAl-2,0	CuMgAl-3,0
Nguyên tố	% Nguyên tử		
O	70,95	64,34	69,05
Mg	19,68	10,83	11,61
Al	9,37	10,46	8,68
Cu	0	14,38	10,66

*Đường đẳng nhiệt hấp phụ/giải hấp phụ N<sub>2</sub> (BET) của các mẫu vật liệu tổng hợp*

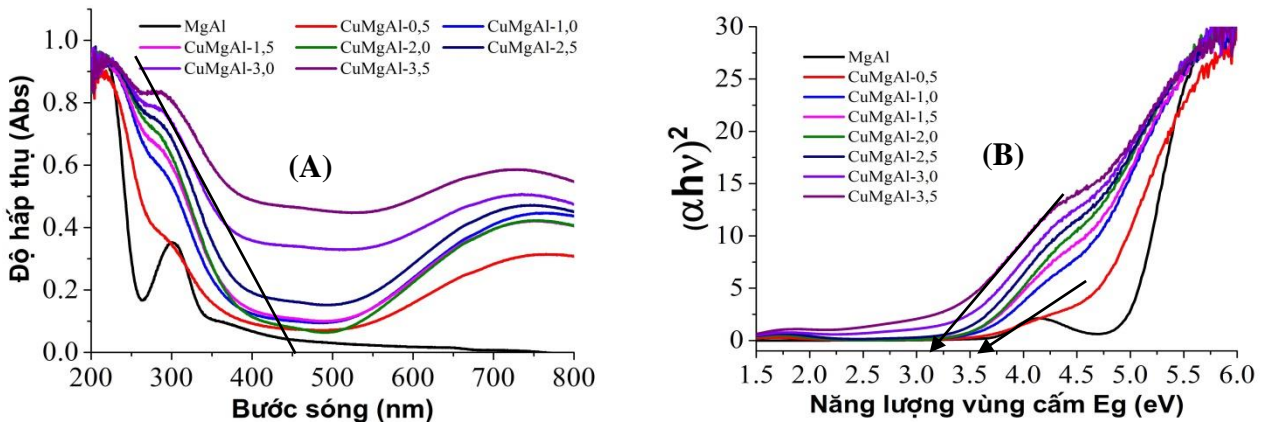
Kết quả phân tích các đường đẳng nhiệt hấp phụ/giải hấp phụ N<sub>2</sub> (BET) ở hình 3 cho thấy rằng, các mẫu vật liệu tổng hợp có đường hấp phụ và giải hấp phụ thuộc loại IV, kiểu H3 theo cách phân loại của IUPAC, đặc trưng cho mao quản trung bình [2]. Diện tích bề mặt BET của 3 mẫu vật liệu MgAl, CuMgAl-2,0 và CuMgAl-3,0 tương ứng là 47,39; 79,15 và 36,02 m<sup>2</sup>/g. Đường kính mao quản trung bình của 3 mẫu vật liệu tương ứng là 17,52; 15,22 và 12,35 nm.



Hình 3: Các đường đẳng nhiệt hấp phụ/giải hấp phụ N<sub>2</sub> (BET) của 3 mẫu vật liệu tổng hợp MgAl (1), CuMgAl-2,0 (2) và CuMgAl-3,0 (3)

*Phổ UV-Vis DRS của các mẫu vật liệu*

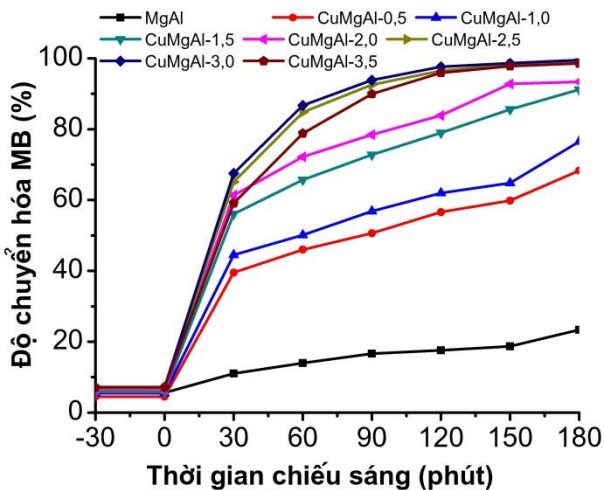
Phổ UV-Vis DRS của các mẫu vật liệu tổng hợp được thể hiện ở hình 4. Mẫu hydrotanxit MgAl có 2 vùng sóng hấp thụ là 210-240 nm và 260-320 nm và bước sóng hấp thụ cực đại vào khoảng 360 nm. Các mẫu vật liệu hydrotanxit biến tính bằng ion Cu<sup>2+</sup> đều có bờ hấp thụ dịch chuyển mạnh sang vùng nhìn thấy theo chiều tăng của tỉ lệ mol Cu<sup>2+</sup> trong mẫu từ 0,5-3,5. Các vật liệu hydrotanxit biến tính có bước sóng hấp thụ cực đại trong khoảng 395-495 nm, có hai vùng hấp thụ, vùng 1 trong khoảng 250-350 nm ứng với sự dịch chuyển điện tích của O<sup>2-</sup> → Cu<sup>2+</sup>, vùng hấp thụ thứ hai có sự mở rộng mạnh trong khoảng 600-800 nm ứng với sự dịch chuyển điện tích d-d trong môi trường bát diện của ion Cu<sup>2+</sup>. [2,6,7] Năng lượng vùng cấm E<sub>g</sub> giảm từ 3,72-3,10 eV (hình 5B) khi tăng tỉ lệ mol Cu<sup>2+</sup> trong các mẫu từ 0-3,5. [8] Từ kết quả phân tích phổ UV-Vis DRS ở trên, có thể dự đoán các mẫu vật liệu biến tính bằng Cu<sup>2+</sup> có hoạt tính quang xúc tác tốt dưới ánh sáng khả kiến.



Hình 4: Phổ UV-Vis DRS (A) và năng lượng vùng cấm của các mẫu vật liệu tổng hợp (B)

**Khảo sát khả năng phân hủy MB trên các mẫu vật liệu tổng hợp**

*Ảnh hưởng của lượng ion Cu<sup>2+</sup> trong mẫu và thời gian chiếu sáng đến hoạt tính hấp phụ, xúc tác của vật liệu*



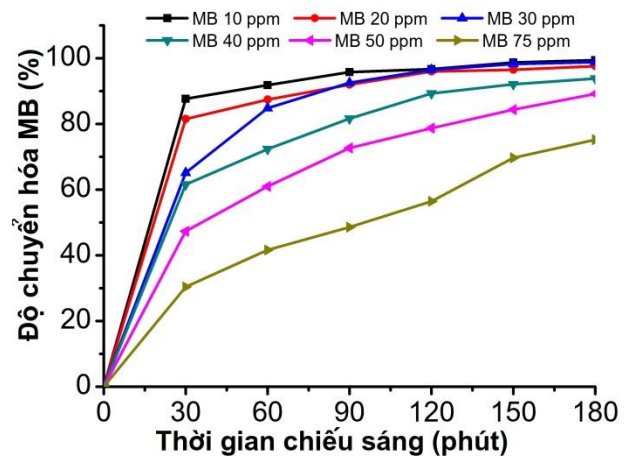
Hình 5: Độ chuyển hóa MB theo thời gian trên các mẫu vật liệu tổng hợp

*Chú thích: 250 mL dung dịch MB 30 ppm, 0,2 g vật liệu, 1,2 mL H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> 30 %*

Kết quả khảo sát ảnh hưởng của lượng Cu<sup>2+</sup> trong mẫu đến hoạt tính hấp phụ, xúc tác của vật liệu ở hình 5 cho thấy, các mẫu vật liệu đều hấp phụ không đáng kể MB, hiệu suất hấp phụ MB trên các vật liệu chỉ dao động trong khoảng 5-7 % sau 30 phút khuấy trong bóng tối để đạt cân bằng hấp phụ. Các kết quả khảo sát khả năng hấp phụ cho thấy các vật liệu có cấu trúc hydrotanxit đều hấp phụ không đáng kể MB, Rh-B tương tự như tài liệu [4,5,9]. Khi chiếu sáng các hỗn hợp phản ứng bằng đèn LED 30 W, kết quả thu được cho thấy các vật liệu tổng hợp đều có hoạt tính quang xúc tác tốt hơn nhiều so với mẫu MgAl. Kết quả này phù hợp với phổ UV-Vis DRS của các vật liệu. Ba mẫu vật liệu CuMgAl-2,5; CuMgAl-3,0 và CuMgAl-3,5 có

hoạt tính quang xúc tác tốt nhất. Độ chuyển hóa MB 30 ppm trên ba mẫu vật liệu này đều có thể đạt trên 90 % chỉ sau 90 phút chiếu sáng. Như vậy, hoạt tính xúc tác của vật liệu phụ thuộc vào lượng ion Cu<sup>2+</sup> biến tính, tỉ lệ mol Cu<sup>2+</sup> tối ưu trong khoảng 2,5-3,5. Kết quả khảo sát này tương tự như kết quả trong tài liệu [4].

*Ảnh hưởng của nồng độ MB đến hoạt tính xúc tác của của mẫu vật liệu*



Hình 6: Độ chuyển hóa MB trên mẫu vật liệu CuMgAl-2,5 ở các nồng độ MB khác nhau

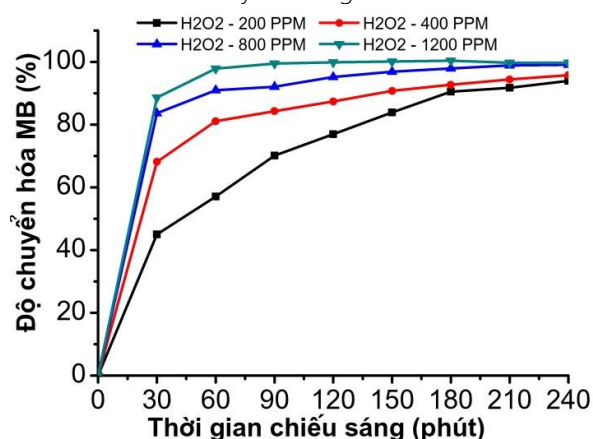
*Chú thích: 250 mL dung dịch MB ở các nồng độ khác nhau, 0,2 g vật liệu CuMgAl-2,5, 1,2 mL H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> 30 %*

Sử dụng mẫu vật liệu CuMgAl-2,5 để khảo sát khả năng phân hủy MB ở các nồng độ MB khác nhau, kết quả thu được ở hình 6 cho thấy, khi tăng nồng độ MB từ 10 đến 75 ppm, độ chuyển hóa MB trên mẫu vật liệu khảo sát giảm, giảm mạnh ở nồng độ MB 75 ppm. Điều này là do ảnh hưởng của sự che chắn ánh sáng của các phân tử MB ở nồng độ cao, làm giảm khả năng hấp thụ ánh sáng của vật liệu. Tuy nhiên, độ chuyển hóa MB 50 ppm trên mẫu vật liệu khảo sát có thể đạt tới 90 % sau 180 phút chiếu sáng. Do vậy,

chúng tôi sử dụng nồng độ MB 50 ppm để khảo sát ảnh hưởng của nồng độ H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> và pH môi trường. Khi so sánh với kết quả khảo sát của các tác giả [4] kết quả phân hủy MB thu được đã cho thấy các mẫu vật liệu CuMgAl cũng có hoạt tính xúc tác rất tốt, có thể xử lý các chất màu MB, Rh-B ở nồng độ cao.

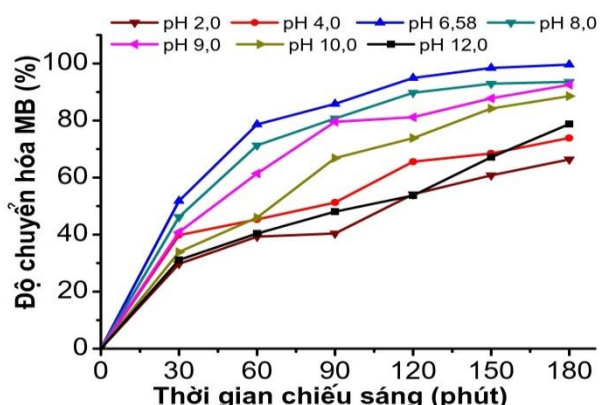
*Ảnh hưởng của nồng độ H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> và pH môi trường đến hoạt tính xúc tác của của mẫu vật liệu*

Nồng độ H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> và pH môi trường có ảnh hưởng đáng kể đến hoạt tính xúc tác của vật liệu. Khi tăng nồng độ H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>, độ chuyển hóa MB tăng (hình 7). Điều này là do có sự tăng của số gốc hydroxyl (HO<sup>•</sup>) khi vật liệu bị kích thích bởi chùm sáng đèn LED) theo phản ứng: H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> + e<sup>-</sup> → HO<sup>•</sup> + OH<sup>-</sup>.<sup>[4]</sup> Tuy nhiên, khi nồng độ H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> quá lớn sẽ làm giảm hoạt tính quang xúc tác của vật liệu, do sự kết hợp của các gốc HO<sup>•</sup> với H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> tạo ra gốc HOO<sup>•</sup> có tính oxi hóa yếu hơn gốc HO<sup>•</sup>.



Hình 7: Độ chuyển hóa MB trên mẫu vật liệu CuMgAl-2,5 ở các nồng độ H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> khác nhau

Chú thích: 250 mL dung dịch MB 50 ppm, 0,2 g vật liệu CuMgAl-2,5



Hình 8: Độ chuyển hóa MB trên mẫu vật liệu CuMgAl-2,5 ở các khoảng pH khác nhau

Chú thích: 250 mL dung dịch MB 50 ppm, 0,2 g vật liệu CuMgAl-2,5, 1,2 mL H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> 30 %

Khi khảo sát ảnh hưởng của pH môi trường đến hoạt tính xúc tác của vật liệu, kết quả thu được ở hình 8 đã cho thấy pH phù hợp để phân hủy MB 50 ppm nằm trong khoảng 6,58-8,0 (pH = 6,58 là pH ban đầu của dung dịch MB 50 ppm). Kết quả này cũng phù hợp với công bố [4].

## Kết luận

Các vật liệu hydrotanxit MgAl và hydrotanxit biến tính bởi ion Cu<sup>2+</sup> đã được tổng hợp thành công bằng phương pháp đồng kết tủa. Đặc trưng cấu trúc vật liệu đã chứng tỏ rằng các mẫu vật liệu tổng hợp được đều có cấu trúc lớp kép giống hydrotanxit. Tuy nhiên, độ kết tinh tinh thể hydrotanxit có sự suy giảm khi tăng tỉ lệ mol Cu<sup>2+</sup> trong các mẫu từ 0,5- 3,5. Các vật liệu tổng hợp đều thuộc kiểu IV, loại H3 theo cách phân loại của IUPAC, có hệ thống mao quản trung bình với đường kính mao quản trong khoảng 12,35-17,52 nm. Kết quả khảo sát khả năng phân hủy MB của các mẫu vật liệu tổng hợp thu được đều cho thấy chúng có khả năng phân hủy rất tốt MB ở nồng độ 30 ppm, thậm chí ở nồng độ MB cao 50 ppm. Độ chuyển hóa MB 50 ppm có thể đạt tới 90 % sau 180 phút chiếu sáng. Hoạt tính xúc tác của vật liệu phụ thuộc vào tỉ lệ mol Cu<sup>2+</sup> biến tính, các mẫu vật liệu có tỉ lệ mol Cu<sup>2+</sup> trong khoảng 2,5-3,5 có hoạt tính tốt nhất. Ngoài ra, hoạt tính xúc tác của vật liệu được cải thiện đáng kể ở nồng độ H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> 800-1200 ppm, pH môi trường trong khoảng từ 6,58-8,0.

## Lời cảm ơn

Nghiên cứu này được tài trợ bởi trường Đại học Sư phạm, Đại học Thái Nguyên trong đề tài mã số CS.2021.23.

## Tài liệu tham khảo

1. Tengfei Li, Haralampos N., Miras et al., Catalysts 7 (2017) 260.
2. Nguyen Tien Thao, Le Thi Kim Huyen., Chemical Engineering Journal 279 (2015) 840-850.
3. Nguyen Khanh Dieu Hong, Hoang Ngoc Dung, Journal of Science and Technology 52(6) (2014) 755-764.
4. Syamome Somxayasine, Vu Van Nhung, Nguyen Quoc Dung, TNU Journal of Science and Technology 225(9) (2020) 3-10.

5. Vu Van Nhung, Nguyen Cong Toan et al. *Journal of Chemistry* 57(2e1,2) (2019) 210-215.
6. Shengjie Xia, Lianyang Zhang et al., *Phys.Chem.Chem.Phys.*, (2014). <https://doi.org/10.1039/c4cp03877k>.
7. Magdalena Jabłońska, Lucjan Chmielarz et al., *Applied Clay Science* 114 (2015) 273-282.
8. Xin-Rui Wang, Yong Lia, Li-Ping Tang, Wen Gana et al., *Chinese Chemical Letters* 28 (2017) 394-399.
9. Vu Van Nhung., *Journal of Analytical Sciences* 26 (2021) 18-24.