

NGHIÊN CỨU KHẢ NĂNG PHÂN HỦY METYLEN XANH TRÊN CÁC MẪU VẬT LIỆU TỔNG HỢP Fe-Ti/HYDROTANXIT DƯỚI ÁNH SÁNG KHẢ KIẾN

Nguyễn Thị Thảo, Vũ Văn Nhung*
Trường Đại học Sư phạm – ĐH Thái Nguyên

TÓM TẮT

Các mẫu vật liệu Fe-Ti-Hydrotanxit được biến tính bởi Fe^{3+} và Ti^{4+} mang trên nền hydrotanxit, được tổng hợp bằng phương pháp đồng kết tủa từ các tiền chất muối nitrat của các kim loại Al^{3+} , Zn^{2+} , Fe^{3+} và Ti (tetraisopropyl octotitanat (TIOT)). Các mẫu vật liệu tổng hợp đã được nghiên cứu đặc trưng cấu trúc bởi các phương pháp phân tích vật lý hiện đại: giản đồ XRD, ảnh TEM, đường đẳng nhiệt hấp phụ/giải hấp N_2 , phổ UV-Vis DRS. Hoạt tính hấp phụ và quang xúc tác của các vật liệu tổng hợp được đánh giá thông qua hiệu suất hấp phụ và độ chuyển hóa metylen xanh (MB) trong nước. Kết quả khảo sát đã lựa chọn được mẫu vật liệu FeTiH (Fe:Ti = 0,5:1,0) có khả năng phân hủy quang hóa cao nhất dưới ánh sáng đèn LED công suất 30W đối với metylen xanh. Ngoài ra, các mẫu vật liệu FeTiH (Fe:Ti=0,5:4,0 và 0,5:5,0) có khả năng hấp phụ tuyệt vời đối với metylen xanh trong nước.

Từ khóa: *Hydrotanxit biến tính; đặc trưng cấu trúc; đồng kết tủa; quang xúc tác; phân hủy.*

Ngày nhận bài: 03/3/2020; Ngày hoàn thiện: 25/3/2020; Ngày đăng: 20/5/2020

RESEARCH ON THE POSSIBILITY OF METHYLENE BLUE DEGRADATION ON SYNTHESIZED MATERIALS Fe-Ti/HYDROTAICITE UNDER LED LIGHT

Nguyen Thi Thao, Vu Van Nhung*
TNU - University of Education

ABSTRACT

Samples of Fe-Ti-Hydrotanxite materials modified hydrotalcite by Fe^{3+} and Ti^{4+} , synthesized by the method of co-precipitation from nitrate precursors of Al^{3+} , Zn^{2+} , Fe^{3+} and Ti (tetraisopropyl octotitanate (TIOT)). Sets of samples characterized by modern physical analysis methods: XRD diagram, TEM image, N_2 adsorption/desorption isotherms, UV-Vis DRS spectrum. Their adsorption and photocatalytic activities assessed by adsorption efficiency and degradation methylene blue in water. Results show that FeTiH material (Fe: Ti = 0.5 : 1.0) has the highest photodegradation under LED light of 30 W for methylene blue. However, the synthesized samples FeTiH (Fe: Ti = 0.5: 4.0 and 0.5: 5.0) have excellent adsorption capacities to methylene blue in water.

Keywords: *Modified hydrotalcite; characterization; co-precipitation; photocatalyst; degradation.*

Received: 03/3/2020; Revised: 25/3/2020; Published: 20/5/2020

* Corresponding author. Email: Trannhuong82@gmail.com

1. Mở đầu

Các vật liệu hydrotanxit và hydroxit lớp kép (LDHs) đã được biết cách đây hơn 150 năm và không ngừng được quan tâm vì chúng có nhiều ưu điểm và ứng dụng trong nhiều lĩnh vực khác nhau [1]. Nhiều vật liệu hydrotanxit ZnAl-LDH, ZnFeAl-LDH đã được tổng hợp theo phương pháp đồng kết tủa và ứng dụng làm xúc tác phân hủy metylen xanh dưới ánh sáng đèn xenon 500W [2]. Các vật liệu hydrotanxit MgAl được mang trên TiO₂, sau đó biến tính bởi các oxit sắt đã được tổng hợp theo phương pháp đồng kết tủa, kết hợp với phương pháp tẩm [3] và được ứng dụng để phân hủy MB dưới ánh sáng UV của đèn Hg 125W. Vật liệu Mg-Fe/Ti LDHs đã được tổng hợp thành công và ứng dụng cho phản ứng poly cacbonat diols [4]. Như vậy, một số công trình trên đã nghiên cứu tổng hợp chất nền hydrotanxit hoặc LDHs được biến tính bởi Fe hoặc Ti hoặc cả Fe, Ti và ứng dụng trong tổng hợp hữu cơ, xúc tác môi trường... Trên cơ sở tổng quan những hiểu biết đó, tác giả đã tiến hành tổng hợp hydrotanxit và biến tính hydrotanxit bằng Fe³⁺, Ti⁴⁺ theo phương pháp đồng kết tủa và ứng dụng để nghiên cứu khả năng hấp phụ, phân hủy MB dưới ánh sáng khả kiến của đèn LED 30W.

2. Thực nghiệm

2.1. Tổng hợp vật liệu

Quá trình tổng hợp vật liệu Fe-Ti/hydrotanxit và hydrotanxit được tiến hành tuần tự các bước như trong tài liệu [5] đã công bố. Có thể tóm tắt quá trình tổng hợp mẫu như sau: Hòa tan tiền chất muối Al(NO₃)₃.9H₂O, Zn(NO₃)₂.6H₂O, Fe(NO₃)₃.9H₂O trong 150 mL nước khử ion thành dung dịch. Các muối được lấy theo tỉ lệ mol Fe : Zn : Al trong bảng 1. Tiếp đó, nhỏ từ từ từng giọt TIOT vào hỗn hợp đang khuấy mạnh trên máy khuấy từ để TIOT thủy phân thành gel (thể tích TIOT được lấy đảm bảo theo tỉ lệ mol Ti trong bảng 1). Nhỏ từ từ 25 mL dung dịch Na₂CO₃ 0,6M vào hỗn hợp, khuấy đều 30 phút. Sau đó, tiến hành chỉnh pH gel thu được về 9,5 bằng dung dịch (dd) NaOH 2M, thu được gel chứa các hydroxit. Tiếp tục khuấy gel trong khoảng 1 giờ. Sau đó, già hóa gel trong bình Teflon ở 120°C, trong 24 giờ để thu được các hydrotanxit lớp kép. Lọc, rửa chất rắn bằng nước khử ion đến pH = 7 để loại bỏ các ion còn dư Na⁺, NO₃⁻, OH⁻, CO₃²⁻. Sấy chất rắn ở 80°C, trong 24 giờ. Sau đó, nghiền các chất rắn bằng chày cối mã não, thu được các mẫu vật liệu H và FeTiH-n (n là tỉ lệ Ti trong mẫu) được trình bày trong bảng 1 dưới đây.

Bảng 1. Các mẫu vật liệu tổng hợp hydrotanxit và Fe-Ti/hydrotanxit

STT	KÍ HIỆU	TỈ LỆ MOL	Giá trị d ₀₀₃ (Å°)
		Fe:Ti:Zn:Al:CO ₃	
1	H (M1)	0 : 0 : 7,0 : 3,0 : 1,5	7,937
2	FeTiH-0,5 (M1.1)	0,25 : 0,5 : 6,25 : 3,0 : 1,5	7,821
3	FeTiH-1,0 (M1.2)	0,5 : 1,0 : 5,5 : 3,0 : 1,5	7,749
4	FeTiH-2,0 (M1.3)	0,5 : 2,0 : 4,5 : 3,0 : 1,5	7,617
5	FeTiH-3,0 (M1.4)	0,5 : 3,0 : 3,5 : 3,0 : 1,5	7,610
6	FeTiH-4,0 (M1.5)	0,5 : 4,0 : 2,5 : 3,0 : 1,5	7,594
7	FeTiH-5,0 (M1.6)	0,5 : 5,0 : 1,5 : 3,0 : 1,5	Không xác định
8	FeTiH-6,0 (M1.7)	0,5 : 6,0 : 0,5 : 3,0 : 1,5	Không xác định

2.2. Các phương pháp vật lý nghiên cứu đặc trưng xúc tác

Thành phần pha tinh thể của các mẫu vật liệu tổng hợp được xác định bằng giản đồ nhiễu xạ tia X tại Khoa Hóa học - Trường Đại học Khoa học tự nhiên – Đại học Quốc gia Hà Nội. Quang phổ UV-Vis DRS được xác định trên máy U-4100 Spectrophotometer tại Khoa Hóa học – Trường Đại học Sư phạm – Đại học Thái Nguyên. Diện tích bề mặt riêng được xác định bằng phương pháp đường đẳng nhiệt hấp phụ - giải hấp phụ N₂ (BET) tại Viện Hóa học – Viện Hàn lâm Khoa học và Công nghệ Việt Nam. Các ảnh TEM của vật liệu được đo tại Viện vệ sinh dịch tễ TW Hà Nội.

2.3. Khảo sát hoạt tính hấp phụ, xúc tác của các mẫu vật liệu tổng hợp

Để tiến hành khảo sát khả năng hấp phụ của 8 mẫu vật liệu tổng hợp, tác giả sử dụng 0,2 g các mẫu vật liệu để hấp phụ 250 mL metylen xanh trong bóng tối (cốc chứa MB được bọc kín bằng túi bóng đen) ở các nồng độ MB khác nhau. Đặt cốc mẫu trên máy khuấy từ, tiến hành khuấy mẫu ở tốc độ 500 vòng/phút. Sau mỗi khoảng thời gian 15 phút, tác giả lấy khoảng 8 mL dd MB đem ly tâm để xác định nồng độ MB. Lượng 8 mL dd MB là phù hợp để xác định nồng độ MB bằng cách đo điểm và quét dải, đồng thời không làm thay đổi đáng kể thể tích dung dịch, cũng như lượng xúc tác trong hỗn hợp phản ứng sau mỗi lần lấy mẫu.

Để khảo sát hoạt tính xúc tác của vật liệu, tác giả dùng 0,2 g mẫu cho vào cốc chứa 250 mL dung dịch MB 10 ppm, khuấy các mẫu trong bóng tối 30 phút để đạt cân bằng hấp phụ [2], [3]. Sau đó, thêm 1,2 mL H₂O₂ 30% vào cốc thủy tinh, tiến hành khảo sát khả năng phân hủy MB dưới ánh sáng đèn LED 30W theo thời gian. Nồng độ MB còn lại trong mẫu được xác định bằng phương pháp trắc quang UV-Vis sau khi ly tâm để loại bỏ xúc tác.

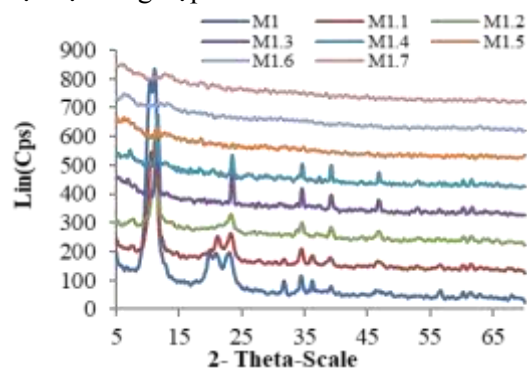
2.4. Xác định nồng độ metylen xanh (MB) trong nước (mẫu pha)

Tiến hành xây dựng đường chuẩn xác định nồng độ MB trong nước bằng phương pháp trắc quang, đo độ hấp thụ quang phân tử ở bước sóng 664 nm, nồng độ từ 1,0 – 10,0 ppm, ta được phương trình đường chuẩn có dạng $y = 0,1813x - 0,0528$, $R^2 = 0,9986$. Sau khi ly tâm để loại bỏ mẫu vật liệu, nồng độ MB còn lại trong dung dịch được xác định bằng cách đo độ hấp thụ quang phân tử (Abs) và được tính toán theo phương trình đường chuẩn ở trên.

3. Kết quả và thảo luận

3.1. Đặc trưng cấu trúc vật liệu xúc tác

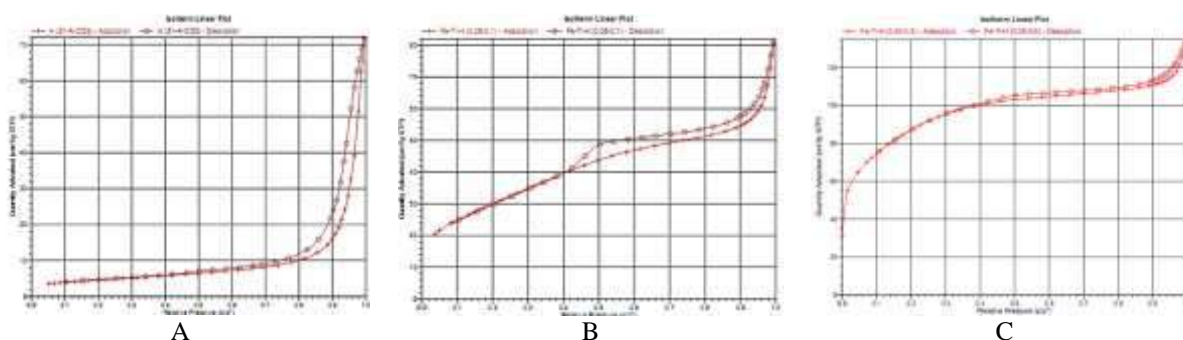
Giản đồ XRD của các mẫu vật liệu (hình 1) cho thấy, cả 6 mẫu vật liệu (M1, M1.1 – M1.5) đều xuất hiện đỉnh pic tại góc nhiễu xạ $2\theta = 11,4^\circ$, đặc trưng cho cấu trúc lớp kép của pha hydrotanxit [6]. Khoảng cách giữa 2 lớp được đưa ra trong bảng 1 có giá trị khoảng $7,6\text{Å}$ nên anion giữa 2 lớp là CO_3^{2-} [7]. Pha hydrotanxit có công thức hợp thức là $\text{Zn}_{0,67}\text{Al}_{0,33}(\text{OH})_2(\text{CO}_3)_{0,165} \cdot x\text{H}_2\text{O}$. Các mẫu M1.1 – M1.3 xuất hiện hầu hết các pic đặc trưng cho cấu trúc hydrotanxit ở các góc $2\theta = 23,2^\circ$; $34,8^\circ$; $39,1^\circ$ và $46,3^\circ$. Tuy nhiên, cường độ và chiều cao đỉnh pic ở góc $2\theta = 11,4^\circ$ giảm khi tăng lượng Ti^{4+} từ 0,5 – 3,0, chứng tỏ rằng độ kết tinh tinh thể hydrotanxit giảm [6]. Khi lượng Ti^{4+} trong mẫu tăng (từ 3,0 – 6,0) chiều cao, cường độ đỉnh pic tại góc $11,4^\circ$ giảm mạnh, thậm chí không xuất hiện trên 2 mẫu M1.6, M1.7, chứng tỏ cấu trúc lớp kép của hydrotanxit không tồn tại trong 2 mẫu vật liệu này. Sự suy giảm cấu trúc hydrotanxit là do không đảm bảo tỷ lệ phù hợp của ion $\text{M}^{2+}/\text{M}^{3+} = 2/1$; $3/1$; $4/1$. Như vậy, tỉ lệ Fe : Ti mang trên hydrotanxit đã ảnh hưởng rõ rệt đến độ kết tinh tinh thể hydrotanxit của các vật liệu tổng hợp.



Hình 1. Giản đồ XRD của các mẫu vật liệu tổng hợp H và FeTiH



Hình 2. Ảnh TEM của hai mẫu vật liệu M1(A) và M1.2(B, C)



Hình 3. Đường đẳng nhiệt hấp phụ/giải hấp phụ N₂ (BET) của 3 mẫu vật liệu M1(A), M1.2(B) và M1.6(C)

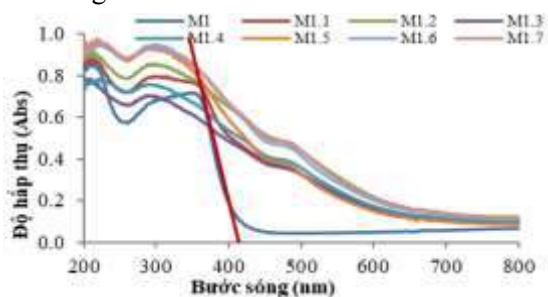
Ảnh TEM của hai mẫu vật liệu M1 và M1.2 (hình 2) cho thấy, cả hai mẫu vật liệu đại diện đều có cấu trúc dạng lớp (phiến) đặc trưng cho cấu trúc hydrotanxit. Tuy nhiên, các lớp có kích thước không đồng đều. Ngoài ra, xuất hiện những khối thanh xen giữa các lớp ở vật liệu M1. Tuy nhiên, mẫu M1.2 xuất hiện tập hợp các hạt nhỏ bám phủ trên bề mặt các lớp. Đó là tập hợp các hydroxit của Al(OH)₃, Zn(OH)₂, Fe(OH)₃ và Ti(OH)₄, có thể là trung tâm xúc tác hiệu quả cho phản ứng phân hủy MB dưới ánh sáng khả kiến. Kết quả giản đồ XRD và ảnh TEM cũng cho thấy một phần các ion Fe³⁺, Ti⁴⁺ thay thế đồng hình trong mạng lưới hydrotanxit, phần dư của các ion này sẽ được kết tủa ở dạng hydroxit và nằm phía bên ngoài các phiến (lớp) của hydrotanxit.

Đường đẳng nhiệt hấp phụ/giải hấp phụ N₂ của cả 3 mẫu vật liệu M1, M1.2 và M1.6 (hình 3) cho thấy có hiện tượng trễ trong khoảng tỉ lệ áp suất tương đối (P/P₀) = 0,4 – 1,0, chứng tỏ xuất hiện hệ thống mao quản trong các vật liệu này. Hình dáng 2 đường

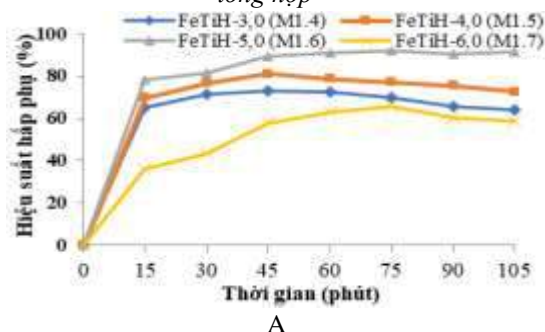
hấp phụ và giải hấp phụ N₂ cho thấy chúng thuộc kiểu H3 đặc trưng cho mao quản trung bình hoặc không có cấu trúc lỗ xốp theo cách phân loại của IUPAC [8]. Kết quả phân tích thu được diện tích bề mặt riêng BET, thể tích mao quản và đường kính mao quản của 3 mẫu vật liệu M1, M1.2 và M1.6 lần lượt là: 16,08 m²/g; 0,098 cm³/g; 28,92 nm; 110,23 m²/g; 0,1297 cm³/g; 5,18 nm; 301,53 m²/g; 0,1753 cm³/g; 3,24 nm. Diện tích BET tăng rất mạnh từ 16,08 – 110,23 – 301,53 m²/g khi cấy ghép Fe, Ti vào hydrotanxit. Khi tăng lượng Ti trong các mẫu, diện tích bề mặt tăng, vật liệu trở nên xốp, do đó có thể dự đoán khả năng hấp phụ của vật liệu cao với các mẫu có diện tích BET lớn. Ngược lại, đường kính mao quản giảm khi tăng tỉ lệ Ti trong các mẫu. Do vậy, có thể dự đoán hiện tượng hấp phụ xảy ra chủ yếu trên bề mặt của các vật liệu, không diễn ra bên trong các mao quản do đường kính mao quản hẹp.

Hình 4 là kết quả phân tích phổ UV-Vis DRS của các mẫu vật liệu tổng hợp. Kết quả thu được cho thấy, khi tăng tỉ lệ Ti trong các mẫu

vật liệu tổng hợp, bờ hấp thụ ánh sáng đều dịch chuyển sang vùng ánh sáng khả kiến. Bước sóng hấp thụ cực đại của mẫu M1 ở khoảng 405 nm ($E_g = 3,06 \text{ eV} = 1240/\lambda$), mẫu M1.1 ở 425 nm ($E_g = 2,92 \text{ eV}$), các mẫu M1.2 – M1.7 hấp thụ trong khoảng 510 - 540 - 560 - 590 nm ($E_g = 2,43 - 2,29 - 2,21 - 2,10 \text{ eV}$). Bước sóng hấp thụ cực đại của các vật liệu tổng hợp trong vùng khả kiến ($> 400 \text{ nm}$) và năng lượng vùng cấm nhỏ (so với $E_g = 3,2 \text{ eV}$ của TiO_2) cho nên có thể dự đoán rằng các vật liệu tổng hợp có hoạt tính quang xúc tác dưới ánh sáng khả kiến.



Hình 4. Phổ UV-Vis DRS của các mẫu vật liệu tổng hợp



Hình 5. Hiệu suất hấp phụ MB của các mẫu vật liệu tổng hợp khi khảo sát MB nồng độ 20 ppm (A) và so sánh khả năng hấp phụ MB của mẫu M1.6 ở các nồng độ MB khác nhau 20, 35 và 50 ppm (B)

3.2.2. Khảo sát khả năng chuyển hóa MB trên các mẫu vật liệu tổng hợp dưới ánh sáng LED

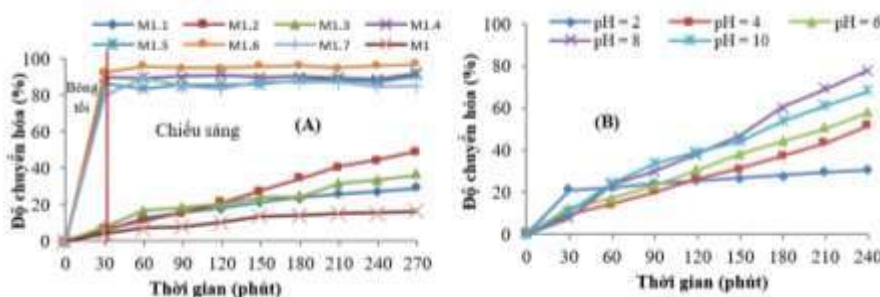
Kết quả phân hủy MB nồng độ 10 ppm dưới ánh sáng đèn LED 30W được thể hiện ở hình 6A. Sau 30 phút khuấy trộn hỗn hợp phản ứng trong bóng tối để đạt cân bằng hấp phụ, khả năng hấp phụ MB trên của 4 mẫu vật liệu M1, M1.1 – M1.3 không đáng kể. Tuy nhiên, 4 mẫu vật liệu có lượng Ti cao từ 3,0 – 6,0 (M1.4 – M1.7) đều có khả năng hấp phụ rất tốt MB 10 ppm ($H\%_{HP}$ từ 80 – 92%). Tiến hành chiếu sáng các hỗn hợp phản ứng, độ chuyển hóa MB tăng khi tăng thời gian chiếu sáng. Sau 240 phút chiếu sáng, độ chuyển hóa MB cao nhất thuộc về mẫu M1.2 ($H\% = 49,3\%$), trong khi đó, độ chuyển hóa MB trên các mẫu M1.4 – M1.7 thay đổi không đáng kể. Như vậy, các mẫu vật liệu M1.1 – M1.3 có khả năng phân hủy MB khi được kích thích bởi ánh sáng khả kiến, phù hợp với kết quả phân tích phổ UV-Vis DRS, các vật liệu có tỉ lệ Ti lớn chủ yếu gây ra hiệu ứng hấp phụ. Kết quả thu được cho thấy cấu trúc lớp kép giống hydrotanxit và tỉ lệ Fe:Ti là những nhân tố quan trọng, quyết định hoạt tính quang xúc tác của vật liệu [8].

3.2. Kết quả khảo sát khả năng phân hủy rhodamin-B trên các mẫu vật liệu tổng hợp

3.2.1. Khảo sát khả năng hấp phụ MB của các vật liệu

Kết quả khảo sát khả năng hấp phụ của các mẫu vật liệu đối với MB nồng độ 10 ppm cho thấy, vài mẫu vật liệu (M1, M1.1, M1.2 và M1.3) hấp phụ không đáng kể MB (hiệu suất hấp phụ $< 10\%$). Kết quả này phù hợp với công bố của các tác giả [2], [5]. Trái ngược hoàn toàn với các mẫu vật liệu M1 và M1.1 – M1.3, bốn mẫu vật liệu M1.4 – M1.7 có khả năng hấp phụ rất tốt MB nồng độ 20 ppm (hình 5A). Các vật liệu này có cấu trúc hydrotanxit bị suy giảm hoặc ở dạng vô định hình, nhưng có đặc tính xốp và diện tích BET lớn. Đặc biệt, mẫu M1.6 có khả năng hấp phụ tuyệt vời MB (hiệu suất hấp phụ có thể đạt trên 90% sau 45 phút ở nồng độ MB = 20 ppm). Khả năng hấp phụ của các mẫu giảm theo trật tự: $M1.6 > M1.5 > M1.3 > M1.7$. Ngoài ra, khả năng hấp phụ của mẫu vật liệu M1.6 giảm khi tăng nồng độ MB trong dung dịch từ 20 – 50 ppm (hình 5B).

Hình 6B là kết quả khảo sát khả năng phân hủy quang hóa MB đối với mẫu vật liệu M1.2 ở các khoảng pH môi trường khác nhau. Kết quả khảo sát cho thấy, pH môi trường có khả năng cải thiện đáng kể hoạt tính xúc tác của vật liệu M1.2 (độ chuyển hóa MB cao nhất có thể đạt khoảng 78% sau 240 phút chiếu sáng tại pH tối ưu = 8,0).



Hình 6. Khả năng phân hủy quang hóa MB 10 ppm trên các mẫu vật liệu dưới ánh sáng đèn LED 30 W (A) và ảnh hưởng của pH môi trường đến hoạt tính xúc tác của mẫu M1.2 (B)

4. Kết luận

8 mẫu vật liệu FeTiH đã được tổng hợp bằng phương pháp đồng kết tủa và được nghiên cứu đặc trưng cấu trúc bằng các phương pháp vật lý hiện đại. Khi cấy ghép đồng thời Fe^{3+} và Ti^{4+} vào cấu trúc lớp của hydrotanxit đã làm giảm độ kết tinh tinh thể hydrotanxit, nhưng vài mẫu trong số đó vẫn lưu giữ được những đặc trưng của chất mang hydrotanxit (M1.1 – M1.4), đồng thời tạo ra những trung tâm xúc tác cho quá trình phân hủy MB. Khi tăng tỉ lệ Ti trong mẫu, khả năng hấp phụ MB tăng, đặc biệt là mẫu vật liệu M1.6 có khả năng hấp phụ MB tốt nhất. Trái ngược với khả năng hấp phụ của những vật liệu này, khả năng phân hủy MB của chúng không đáng kể. Do vậy, hoạt tính quang xúc tác của các vật liệu hydrotanxit biến tính phụ thuộc vào tỉ lệ Fe:Ti và cấu trúc lớp kép hydrotanxit. Kết quả khảo sát cũng cho thấy, mẫu M1.2 có hoạt tính xúc tác cao nhất và độ chuyển hóa MB có thể đạt 78% tại pH môi trường tối ưu bằng 8,0.

Lời cảm ơn

Các tác giả xin chân thành cảm ơn nguồn tài chính từ đề tài ĐH2017-TN04-03.

TÀI LIỆU THAM KHẢO/ REFERENCES

[1]. T. Li et. al., "Review Polyoxometalate (POM)-Layered Double Hydroxides (LDH) Composite Materials: Design and Catalytic

Applications," *Catalysts*, 7, p. 260, 2017.

- [2]. S. Xia, L. Zhang, G. Pan, P. Qian, and Z. Ni, "Photocatalytic degradation of methylene blue with a nanocomposite system: synthesis, photocatalysis and degradation pathways," *Physical Chemistry Chemical Physics*, vol. 17, pp. 5345-5351, 2015.
- [3]. L. D. L. Miranda et. al., "Hydrotalcite-TiO₂ magnetic iron oxide intercalated with the anionic surfactant dodecylsulfate in the photocatalytic degradation of methylene blue dye," *Journal of Environmental Management*, vol. 156, pp. 225-235, 2015.
- [4]. Y. Wang et. al., "High catalytic activity over novel Mg-Fe/Ti layered double hydroxides (LDHs) for polycarbonate diols (PCDLs): synthesis, mechanism and application," *RSC Adv.*, vol. 7, pp. 35181-35190, 2017.
- [5]. V. N. Vu et. al., "Synthesis, characterization of sets Ti-Cu/hydrotalcite and examination degradation rhodamine-B in water," *Journal of Chemistry*, vol. 57, pp. 210-215, 2019.
- [6]. K. D. H. Nguyen, and N. D. Hoang, "Study on synthesis and characterization of Mg-Al hydrotalcite catalyst system for decarboxylation reaction of coconut oil collecting hydrocarbons," *Journal of Science and Technology*, vol. 52, no. 6, pp. 755-764, 2014.
- [7]. A. V. Radha, and P. V. Kamath, "Aging of trivalent metal hydroxide/oxide gels in divalent metal salt solutions: Mechanism of formation of layered double hydroxides (LDHs)," *Bull. Mater. Sci.*, vol. 26, no. 7, pp. 661-666, 2003.
- [8]. T. T. Nguyen, and T. K. H. Le "Catalytic oxidation of styrene over Cu-doped hydrotalcites," *Chemical Engineering Journal*, vol. 279, pp. 840-850, 2015.