

ĐẠI HỌC THÁI NGUYÊN
TRƯỜNG ĐẠI HỌC SƯ PHẠM

TRẦN THỊ MAI LOAN

NGHIÊN CỨU TỔNG HỢP VÀ KHẢO SÁT
KHẢ NĂNG XÚC TÁC CỦA OXIT NANO $ZnFe_2O_4$

LUẬN VĂN THẠC SĨ HÓA HỌC

THÁI NGUYÊN - 2018

**ĐẠI HỌC THÁI NGUYÊN
TRƯỜNG ĐẠI HỌC SƯ PHẠM**

TRẦN THỊ MAI LOAN

**NGHIÊN CỨU TỔNG HỢP VÀ KHẢO SÁT
KHẢ NĂNG XÚC TÁC CỦA OXIT NANO $ZnFe_2O_4$**

Ngành: Hóa vô cơ

Mã ngành: 8.44.01.13

LUẬN VĂN THẠC SĨ HÓA HỌC

Người hướng dẫn khoa học: PGS.TS. Lê Hữu Thiêng

THÁI NGUYÊN - 2018

LỜI CAM ĐOAN

Tôi xin cam đoan đây là công trình nghiên cứu của riêng tôi dưới sự hướng dẫn của PGS.TS. Lê Hữu Thiêng. Các số liệu, kết quả nêu trong luận văn này là trung thực và chưa từng được ai công bố trong bất kỳ công trình nào khác.

Tác giả luận văn

Trần Thị Mai Loan

LỜI CẢM ƠN

Luận văn đã được hoàn thành tại khoa Hóa học, trường Đại học Sư phạm, Đại học Thái Nguyên.

Em xin bày tỏ lòng biết ơn sâu sắc tới PGS.TS. Lê Hữu Thiêng người đã tận tình hướng dẫn, giúp đỡ, tạo điều kiện thuận lợi để em hoàn thành luận văn.

Em xin chân thành cảm ơn các thầy, cô giáo trong Ban giám hiệu, phòng Đào tạo, khoa Hóa học - trường Đại học Sư phạm, Đại học Thái Nguyên đã tạo mọi điều kiện thuận lợi cho em trong suốt quá trình học tập và nghiên cứu thực hiện đề tài.

Xin chân thành cảm ơn cán bộ phòng máy XRD, IR- Đại học Khoa học Tự nhiên - Đại học Quốc gia Hà Nội, phòng máy phân tích nhiệt - Viện Hóa học - Viện Hàn lâm Khoa học và Công nghệ Việt Nam, phòng máy EDS, SEM, TEM - Viện Vệ sinh Dịch tễ Trung ương, các bạn bè đồng nghiệp đã đồng viên, giúp đỡ, tạo mọi điều kiện thuận lợi cho tôi trong suốt quá trình thực nghiệm và hoàn thành luận văn.

Mặc dù đã có nhiều cố gắng, song do thời gian có hạn, khả năng nghiên cứu của bản thân còn hạn chế nên kết quả nghiên cứu còn nhiều thiếu sót. Em rất mong nhận được sự góp ý, chỉ bảo của các thầy cô, các bạn bè đồng nghiệp và những người đang quan tâm đến vấn đề đã trình bày trong luận văn để bản luận văn được hoàn thiện hơn.

Thái Nguyên, tháng 9 năm 2018

Tác giả luận văn

Trần Thị Mai Loan

MỤC LỤC

LỜI CAM ĐOAN	i
LỜI CẢM ƠN.....	ii
MỤC LỤC	iii
DANH MỤC CÁC KÝ HIỆU, CÁC CHỮ VIẾT TẮT	iv
DANH MỤC CÁC BẢNG	v
DANH MỤC CÁC HÌNH	vi
MỞ ĐẦU	1
Chương 1: TỔNG QUAN	2
1.1. Cấu trúc, tính chất oxit hỗn hợp kiểu spinel.....	2
1.1.1. Cấu trúc.....	2
1.1.2. Tính chất	3
1.2. Ứng dụng của $ZnFe_2O_4$	3
1.3. Tổng quan tình hình nghiên cứu $ZnFe_2O_4$	4
1.4. Một số phương pháp tổng hợp $ZnFe_2O_4$	5
1.4.1. Phương pháp đồng tạo phức	5
1.4.2. Phương pháp đồng kết tủa	6
1.4.3. Phương pháp thủy nhiệt.....	6
1.4.4. Phương pháp đốt cháy	6
1.5. Các phương pháp nghiên cứu.....	8
1.5.1. Phương pháp phân tích nhiệt.....	8
1.5.2. Phương pháp nhiễu xạ Ronghen.....	9
1.5.3. Phương pháp hiển vi điện tử quét (SEM).....	10
1.5.4. Phương pháp hiển vi điện tử truyền qua (TEM)	10
1.5.5. Phương pháp phổ tán xạ năng lượng tia X (EDS).....	11
1.5.6. Phương pháp phổ hấp thụ hồng ngoại	11

Chương 2: THỰC NGHIỆM	13
2.1. Dụng cụ, hoá chất	13
2.1.1. Dụng cụ, máy móc.....	13
2.1.2. Hoá chất	13
2.2. Tổng hợp $ZnFe_2O_4$ bằng phương pháp đốt cháy dung dịch	13
2.3. Tổng hợp $ZnFe_2O_4$ bằng phương pháp đồng kết tủa	13
2.4. Nghiên cứu các đặc trưng cấu trúc của vật liệu.....	14
2.5. Khảo sát một số yếu tố ảnh hưởng đến phản ứng quang xúc tác phân hủy metylen xanh của các vật liệu.....	15
2.5.1. Xây dựng đường chuẩn xác định nồng độ metylen xanh(MB).....	15
2.5.2. Khảo sát thời gian đạt cân bằng hấp phụ.....	15
2.5.3. Khảo sát ảnh hưởng của khối lượng vật liệu	16
2.5.4. Khảo sát ảnh hưởng của thời gian chiếu sáng	16
2.5.5. Khảo sát khả năng tái sử dụng của oxit $ZnFe_2O_4$	17
Chương 3: KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN	18
3.1. Kết quả nghiên cứu vật liệu bằng phương pháp phân tích nhiệt.....	18
3.2. Kết quả tổng hợp $ZnFe_2O_4$ bằng phương pháp đồng kết tủa ($ZnFe_2O_4$ ĐKT)	19
3.2.1. Ảnh hưởng của nhiệt độ nung	19
3.2.2. Ảnh hưởng của thời gian nung	21
3.2.3. Ảnh hưởng của pH tạo mẫu.....	22
3.2.4. Kết luận.....	23
3.3. Kết quả tổng hợp $ZnFe_2O_4$ bằng phương pháp đốt cháy ($ZnFe_2O_4$ ĐC)...	24
3.3.1. Ảnh hưởng của nhiệt độ nung	24
3.3.2. Ảnh hưởng của pH tạo mẫu	25
3.3.3. Ảnh hưởng của thời gian nung	26
3.3.4. Ảnh hưởng của tỉ lệ mol ($Zn^{2+}+Fe^{3+}$)/alanin	27
3.3.5. Kết luận.....	28

3.4. Nghiên cứu các đặc trưng của $ZnFe_2O_4$ được tổng hợp từ các điều kiện tối ưu	29
3.4.1. Kết quả nghiên cứu mẫu bằng phương pháp SEM, TEM	29
3.4.2. Kết quả nghiên cứu mẫu bằng phương pháp phổ tán xạ năng lượng tia X ..	31
3.4.3. Kết quả nghiên cứu mẫu bằng phương pháp phổ hồng ngoại	32
3.5. Thăm dò khả năng quang xúc tác của $ZnFe_2O_4$ cho quá trình phân hủy MB	34
3.5.1. Kết quả khảo sát thời gian đạt cân bằng hấp phụ	34
3.5.2. Kết quả khảo sát ảnh hưởng của khối lượng vật liệu	35
3.5.3. Kết quả khảo sát ảnh hưởng của thời gian chiếu sáng	37
3.5.4. Kết quả khảo sát khả năng tái sử dụng của chất xúc tác $ZnFe_2O_4$	39
KẾT LUẬN	41
TÀI LIỆU THAM KHẢO	43
CÔNG TRÌNH ĐÃ CÔNG BỐ	47
PHỤ LỤC	

DANH MỤC CÁC KÝ HIỆU, CÁC CHỮ VIẾT TẮT

Tên viết tắt	Tên đầy đủ
CH	Cacbohydrazide
DSC	Differential scanning calorimetry (Phân tích nhiệt quét vi sai)
DTA	Differential thermal analysis (Phân tích nhiệt vi sai)
EDS	Energy dispersive X - ray spectroscopy (Phổ tán xạ năng lượng tia X)
GPC	Gas phase combustion (Đốt cháy pha khí)
IR	Infrared spectroscopy (Phổ hấp thụ hồng ngoại)
MB	Metylen blue (Metylen xanh)
MDH	Malonic acid dihydrazide
ODH	Oxalyl dihydrazide
PAA	Poly (acrylic axit)
PEG	Poly (etylen glicol)
PGC	Polimer gel combustion (Đốt cháy gel polime)
PVA	Poly (vinyl ancol)
SC	Solution combustion (Đốt cháy dung dịch)
SEM	Scanning electron microscope (Kính hiển vi điện tử quét)
SSC	Solid state combustion (Đốt cháy trạng thái rắn)
TEM	Transnission electron microscope (Kính hiển vi điện tử truyền qua)
TFTA	Tetra formal tris azine
TGA	Thermo gravimetric analysis (Phân tích nhiệt trọng lượng)
UV	Ultraviolet (Tia cực tím)
XRD	X-Ray diffraction (Nhiễu xạ tia X)

DANH MỤC CÁC BẢNG

Bảng 2.1. Số liệu xây dựng đường chuẩn xác định nồng độ metylen xanh.....	15
Bảng 3.1. Kích thước hạt tinh thể của $ZnFe_2O_4$ ĐKT ở các nhiệt độ nung khác nhau.....	20
Bảng 3.2. Kích thước hạt tinh thể của $ZnFe_2O_4$ ĐKT ở các thời gian nung khác nhau.....	22
Bảng 3.3. Kích thước hạt tinh thể của $ZnFe_2O_4$ ĐKT ở các pH khác nhau.....	23
Bảng 3.4. Ảnh hưởng của nhiệt độ nung đến kích thước hạt tinh thể.....	25
Bảng 3.5. Ảnh hưởng của pH đến kích thước hạt tinh thể.....	26
Bảng 3.6. Ảnh hưởng của thời gian nung đến kích thước hạt tinh thể.....	27
Bảng 3.7. Ảnh hưởng của tỉ lệ mol ($Zn^{2+}+Fe^{3+}$)/alanin đến kích thước hạt tinh thể	28
Bảng 3.8. Khảo sát khả năng hấp phụ của $ZnFe_2O_4$ ĐKT, $ZnFe_2O_4$ ĐC.....	34
Bảng 3.9. Ảnh hưởng của khối lượng $ZnFe_2O_4$ ĐKT, $ZnFe_2O_4$ ĐC đến hiệu suất phân hủy MB.....	35
Bảng 3.10. Ảnh hưởng của thời gian chiếu sáng đến hiệu suất phân hủy MB của $ZnFe_2O_4$ ĐKT, $ZnFe_2O_4$ ĐC.....	37
Bảng 3.11. Hiệu suất phân hủy MB ứng với $ZnFe_2O_4$ tái sử dụng	39

DANH MỤC CÁC HÌNH

Hình 1.1. Cấu trúc ô mạng spinel.....	2
Hình 2.1. Đồ thị đường chuẩn xác định nồng độ metylen xanh.....	15
Hình 3.1. Giảm đồ phân tích nhiệt của hỗn hợp đồng thể $Zn(OH)_2$, $Fe(OH)_3$...	18
Hình 3.2. Giảm đồ phân tích nhiệt của gel ($Zn^{2+} + Fe^{3+}$)/alanin	19
Hình 3.3. Giảm đồ XRD của mẫu ở các nhiệt độ nung khác nhau	20
Hình 3.4. Giảm đồ XRD của mẫu ở các thời gian nung khác nhau	21
Hình 3.5. Giảm đồ XRD của mẫu ở các pH khác nhau.....	22
Hình 3.6. Giảm đồ XRD của mẫu $ZnFe_2O_4$ ĐKT tối ưu.....	23
Hình 3.7. Giảm đồ XRD của mẫu ở các nhiệt độ nung khác nhau	24
Hình 3.8. Giảm đồ XRD của mẫu ở các pH khác nhau.....	25
Hình 3.9. Giảm đồ XRD của mẫu ở các thời gian khác nhau	26
Hình 3.10. Giảm đồ XRD của mẫu ở các tỉ lệ mol ($Zn^{2+}+Fe^{3+}$)/alanin khác nhau	28
Hình 3.11. Giảm đồ XRD của mẫu $ZnFe_2O_4$ ĐC ở điều kiện tối ưu	29
Hình 3.12. Ảnh SEM của mẫu $ZnFe_2O_4$ ĐKT tối ưu.....	30
Hình 3.13. Ảnh TEM của mẫu $ZnFe_2O_4$ ĐKT tối ưu.....	30
Hình 3.14. Ảnh SEM của mẫu $ZnFe_2O_4$ ĐC tối ưu.....	30
Hình 3.15. Ảnh TEM của mẫu $ZnFe_2O_4$ ĐC tối ưu	31
Hình 3.16. Phổ tán xạ năng lượng tia X của mẫu $ZnFe_2O_4$ ĐKT tối ưu.....	31
Hình 3.17. Phổ tán xạ năng lượng tia X của mẫu $ZnFe_2O_4$ ĐC tối ưu	32
Hình 3.18. Phổ hồng ngoại $ZnFe_2O_4$ ĐKT tối ưu.....	32
Hình 3.19. Phổ hồng ngoại $ZnFe_2O_4$ ĐC tối ưu	33
Hình 3.20. Sự phụ thuộc của hiệu suất phản ứng phân hủy MB vào khối lượng chất xúc tác $ZnFe_2O_4$ ĐKT(a), $ZnFe_2O_4$ ĐC(b).....	36
Hình 3.21. Sự phụ thuộc của hiệu suất phân hủy MB của $ZnFe_2O_4$ ĐKT(a), $ZnFe_2O_4$ ĐC(b) theo thời gian chiếu sáng	38
Hình 3.22. Sự phụ thuộc của $\ln(C_0/C_t)$ vào thời gian phản ứng khi có mặt $ZnFe_2O_4$ ĐKT(a), $ZnFe_2O_4$ ĐC(b)	38
Hình 3.23. Hiệu suất phân hủy MB của vật liệu $ZnFe_2O_4$ ĐKT(a), $ZnFe_2O_4$ ĐC(b).....	39