

ĐẠI HỌC THÁI NGUYÊN  
TRƯỜNG ĐẠI HỌC SƯ PHẠM

LƯƠNG THỊ LAN

**NGHIÊN CỨU TỔNG HỢP OXIT NANO  $\text{NiAl}_2\text{O}_4$ ,  $\text{ZnAl}_2\text{O}_4$   
VÀ BƯỚC ĐẦU THĂM DÒ ỨNG DỤNG CỦA CHÚNG**

**LUẬN VĂN THẠC SĨ KHOA HỌC VẬT CHẤT**

**THÁI NGUYÊN – 2017**

ĐẠI HỌC THÁI NGUYÊN  
TRƯỜNG ĐẠI HỌC SƯ PHẠM

LƯƠNG THỊ LAN

**NGHIÊN CỨU TỔNG HỢP OXIT NANO  $\text{NiAl}_2\text{O}_4$ ,  $\text{ZnAl}_2\text{O}_4$   
VÀ BƯỚC ĐẦU THĂM DÒ ỨNG DỤNG CỦA CHÚNG**

Chuyên ngành: HÓA VÔ CƠ

Mã số: 60 44 01 13

**LUẬN VĂN THẠC SĨ KHOA HỌC VẬT CHẤT**

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

THÁI NGUYÊN – 2017

## **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**

**Lương Thị Lan**

**Xác nhận của khoa chuyên môn**  
**Trưởng khoa**

**Người hướng dẫn**

**PGS.TS. Nguyễn Thị Hiền Lan**

**PGS.TS. Lê Hữu Thiêng**

## LỜI CẢM ƠN

Luận văn đã được hoàn thành tại khoa Hóa học, trường Đại học Sư phạm, Đại học Thái Nguyên. Trước tiên 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 giáo, 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 các phòng máy của Viện Khoa học Vật liệu, Viện Hóa học - Viện Hàn lâm Khoa học và Công nghệ Việt Nam, Viện Vệ sinh Dịch tễ Trung ương, Khoa Hóa học Trường Đại học Khoa học Tự nhiên, Khoa Hóa học Trường Đại học Sư phạm Hà Nội, các bạn bè đồng nghiệp đã giúp đỡ, động viên, tạo mọi điều kiện thuận lợi cho tôi trong suốt quá trình thực nghiệm và hoàn thành luận văn.

Xin bày tỏ lòng biết ơn chân thành đến gia đình, những người đã không ngừng động viên, hỗ trợ và tạo mọi điều kiện tốt nhất cho tôi trong suốt thời gian học tập và thực hiện luận văn.

Mặc dù đã có rất nhiều cố gắng, song do thời gian có hạn, khả năng nghiên cứu của bản thân còn hạn chế nên luận văn của em có thể còn thiếu sót. Em rất mong nhận được sự góp ý, chỉ bảo của các thầy cô, 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 04 năm 2017*

**Tác giả luận văn**

**Lương Thị Lan**

# MỤC LỤC

	<b>Trang</b>
Trang bìa phụ	
Lời cam đoan .....	i
Lời cảm ơn.....	ii
Mục lục .....	iii
Danh mục các chữ viết tắt .....	iv
Danh mục các bảng.....	v
Danh mục các hình .....	vi
<b>MỞ ĐẦU</b> .....	<b>1</b>
<b>Chương 1. TỔNG QUAN</b> .....	<b>2</b>
1.1. Giới thiệu về oxit phức hợp kiểu spinel .....	2
1.1.1. Cấu trúc của oxit phức hợp kiểu spinel .....	2
1.1.2. Tính chất và ứng dụng của các spinel .....	3
1.2. Tính chất xúc tác của oxit kim loại .....	5
1.2.1. Động học của các phản ứng xúc tác .....	5
1.2.2. Xúc tác dị thể .....	8
1.3. Một số phương pháp tổng hợp đốt cháy .....	10
1.3.1. Giới thiệu về phương pháp đốt cháy .....	10
1.3.2. Đốt cháy trạng thái rắn .....	12
1.3.3. Phương pháp đốt cháy dung dịch .....	12
1.3.4. Phương pháp đốt cháy gel polime .....	13
1.4. Giới thiệu về xanh metylen.....	15
1.5. Một số kết quả nghiên cứu tổng hợp oxit phức hợp kiểu spinel .....	16
<b>Chương 2. CÁC PHƯƠNG PHÁP NGHIÊN CỨU VÀ THỰC NGHIỆM</b> ....	<b>18</b>
2.1. Phương pháp chế tạo các oxit nano .....	18
2.1.1. Hóa chất .....	18
2.1.2. Giới thiệu về ODH.....	18

2.1.3. Tổng hợp các oxit nano $\text{NiAl}_2\text{O}_4$ , $\text{ZnAl}_2\text{O}_4$ bằng phương pháp đốt cháy dung dịch.....	19
2.2. Các phương pháp xác định đặc trưng của các oxit.....	20
2.2.1. Phương pháp phân tích nhiệt .....	20
2.2.2. Phương pháp nhiễu xạ Ronghen.....	20
2.2.3. Phương pháp hiển vi điện tử quét (SEM) và truyền qua (TEM).....	22
2.2.4. Phương pháp đo diện tích bề mặt riêng .....	23
2.2.5. Phương pháp phổ tán xạ năng lượng tia X (EDS).....	24
2.2.6. Phương pháp phổ hấp thụ phân tử UV-Vis .....	25
2.3. Lập đường chuẩn xanh metylen .....	26
2.4. Nghiên cứu khả năng phân hủy xanh metylen bằng $\text{H}_2\text{O}_2$ trên xúc tác $\text{NiAl}_2\text{O}_4$ và $\text{ZnAl}_2\text{O}_4$ .....	28
2.4.1. Ảnh hưởng của thời gian phản ứng .....	28
2.4.2. Ảnh hưởng của khối lượng chất xúc tác.....	28
2.4.3. Ảnh hưởng của nồng độ xanh metylen.....	29
2.4.4. Nghiên cứu động học phản ứng phân hủy xanh metylen bằng $\text{H}_2\text{O}_2$ trên xúc tác $\text{NiAl}_2\text{O}_4$ , $\text{ZnAl}_2\text{O}_4$ .....	29
2.4.5. Khả năng tái sử dụng của các chất xúc tác $\text{NiAl}_2\text{O}_4$ , $\text{ZnAl}_2\text{O}_4$ .....	29
<b>Chương 3. KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN</b> .....	30
3.1. Nghiên cứu tổng hợp oxit nano $\text{NiAl}_2\text{O}_4$ bằng phương pháp đốt cháy gel ....	30
3.1.1. Khảo sát lựa chọn nhiệt độ nung .....	30
3.1.2. Khảo sát ảnh hưởng của thời gian nung .....	32
3.1.3. Khảo sát ảnh hưởng của nhiệt độ tạo gel.....	33
3.1.4. Khảo sát ảnh hưởng của pH tạo gel.....	34
3.1.5. Khảo sát ảnh hưởng của tỷ lệ mol KL/ODH .....	35
3.1.6. Kết quả đo phổ tán xạ năng lượng tia X (EDS) .....	36
3.2. Nghiên cứu tổng hợp oxit nano $\text{ZnAl}_2\text{O}_4$ bằng phương pháp đốt cháy gel....	37
3.2.1. Khảo sát lựa chọn nhiệt độ nung .....	37

3.2.2. Khảo sát ảnh hưởng của thời gian nung .....	39
3.2.3. Khảo sát ảnh hưởng của nhiệt độ tạo gel.....	40
3.2.4. Khảo sát ảnh hưởng của pH tạo gel.....	41
3.2.5. Khảo sát ảnh hưởng của tỷ lệ mol KL/ODH .....	42
3.2.6. Kết quả đo phổ tán xạ năng lượng tia X (EDS) .....	44
3.3. Kết quả nghiên cứu khả năng xúc tác của NiAl <sub>2</sub> O <sub>4</sub> , ZnAl <sub>2</sub> O <sub>4</sub> cho phản ứng phân hủy MB bằng H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> .....	46
3.3.1. Kết quả nghiên cứu ảnh hưởng của thời gian.....	46
3.3.2. Kết quả nghiên cứu ảnh hưởng của khối lượng chất xúc tác .....	48
3.3.3. Kết quả nghiên cứu ảnh hưởng của nồng độ xanh metylen .....	49
3.3.4. Kết quả nghiên cứu động học phản ứng phân hủy MB bằng H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> trên xúc tác NiAl <sub>2</sub> O <sub>4</sub> , ZnAl <sub>2</sub> O <sub>4</sub> .....	50
3.3.5. Tái sử dụng các oxit.....	58
<b>KẾT LUẬN</b> .....	61
<b>TÀI LIỆU THAM KHẢO</b> .....	62
<b>PHỤ LỤC</b>	

## DANH MỤC CÁC CHỮ VIẾT TẮT

Tên viết tắt	Tên đầy đủ
BET	Brunauer - Emmett - Teller Tên riêng của ba nhà khoa học (Phương pháp đo diện tích bề mặt riêng)
CH	Cacbohydrazide
CS	Combustion Synthesis (Tổng hợp đốt cháy)
DTA	Differential Thermal Analysis (Phân tích nhiệt vi sai)
EDS	Energy Dispersive X - ray Spectroscopy (Phổ tán xạ năng lượng tia X)
MB	Methylen Blue (Xanh metylen)
NO <sub>x</sub>	NO và NO <sub>2</sub>
ODH	Oxalyl dihydrazin
PVA	Polyvinyl ancol
SC	Solution Combustion (Đốt cháy dung dịch)
SEM	Scanning Electron Microscope (Phương pháp hiển vi điện tử quét)
SHS	Self Propagating High Temperature Synthesis Process Tổng hợp tự lan truyền nhiệt độ cao
SSC	Solid State Combustion (Đốt cháy trạng thái rắn)
TEM	Transmission Electron Microscope (Phương pháp hiển vi điện tử truyền qua)
TGA	Thermo Gravimetric Analysis (Phân tích nhiệt trọng lượng)
XRD	X-Ray Diffraction (Phương pháp nhiễu xạ Ronghen)



## DANH MỤC CÁC BẢNG

Bảng 1.1. Tính chất của một số spinel.....	4
Bảng 1.2. Một số oxit được điều chế bằng đốt cháy dung dịch .....	13
Bảng 1.3. Một số hợp chất được điều chế theo phương pháp đốt cháy gel polyme.....	14
Bảng 2.1. Sự phụ thuộc của độ hấp thụ quang vào nồng độ xanh metylen .....	27
Bảng 3.1. Kích thước hạt tinh thể $\text{NiAl}_2\text{O}_4$ ở các nhiệt độ nung khác nhau .....	31
Bảng 3.2. Kích thước hạt tinh thể $\text{NiAl}_2\text{O}_4$ ở các thời gian nung khác nhau....	32
Bảng 3.3. Kích thước hạt tinh thể $\text{NiAl}_2\text{O}_4$ ở các nhiệt độ tạo gel khác nhau.....	33
Bảng 3.4. Kích thước hạt tinh thể $\text{NiAl}_2\text{O}_4$ ở các pH tạo gel khác nhau.....	34
Bảng 3.5. Kích thước hạt tinh thể $\text{NiAl}_2\text{O}_4$ ở các tỷ lệ mol KL/ODH khác nhau ...	35
Bảng 3.6. Thành phần (%) các nguyên tố trong mẫu $\text{NiAl}_2\text{O}_4$ .....	36
Bảng 3.7. Kích thước hạt tinh thể $\text{ZnAl}_2\text{O}_4$ ở các nhiệt độ nung khác nhau.....	39
Bảng 3.8. Kích thước hạt tinh thể $\text{ZnAl}_2\text{O}_4$ ở các thời gian nung khác nhau ...	40
Bảng 3.9. Kích thước hạt tinh thể $\text{ZnAl}_2\text{O}_4$ ở các nhiệt độ tạo gel khác nhau .....	41
Bảng 3.10. Kích thước hạt tinh thể $\text{ZnAl}_2\text{O}_4$ ở các pH tạo gel khác nhau .....	42
Bảng 3.11. Kích thước hạt tinh thể $\text{ZnAl}_2\text{O}_4$ ở các tỷ lệ mol KL/ODH khác nhau.....	43
Bảng 3.12. Thành phần (%) các nguyên tố trong $\text{ZnAl}_2\text{O}_4$ .....	44
Bảng 3.13. Hiệu suất phân hủy MB theo thời gian trong trường hợp không có và có xúc tác $\text{NiAl}_2\text{O}_4$ và $\text{ZnAl}_2\text{O}_4$ .....	47
Bảng 3.14. Ảnh hưởng của khối lượng chất xúc tác đến hiệu suất phân hủy MB.....	48
Bảng 3.15. Ảnh hưởng của nồng độ MB đến hiệu suất phân hủy MB khi có mặt $\text{NiAl}_2\text{O}_4$ và $\text{ZnAl}_2\text{O}_4$ .....	49
Bảng 3.16. Hiệu suất phân hủy MB ở các nhiệt độ khác nhau khi có mặt $\text{NiAl}_2\text{O}_4$ .....	52

Bảng 3.17. Hiệu suất phân hủy MB ở các nhiệt độ khác nhau khi có mặt ZnAl <sub>2</sub> O <sub>4</sub> .....	53
Bảng 3.18. Bảng giá trị ln(C <sub>0</sub> /C) theo thời gian ở các nhiệt độ khác nhau khi có mặt NiAl <sub>2</sub> O <sub>4</sub> .....	54
Bảng 3.19. Bảng giá trị ln(C <sub>0</sub> /C) theo thời gian ở các nhiệt độ khác nhau khi có mặt ZnAl <sub>2</sub> O <sub>4</sub> .....	55
Bảng 3.20. Quan hệ giữa lnk và 1/T trên oxit NiAl <sub>2</sub> O <sub>4</sub> .....	57
Bảng 3.21. Quan hệ giữa lnk và 1/T trên oxit ZnAl <sub>2</sub> O <sub>4</sub> .....	57
Bảng 3.22. Hiệu suất phân hủy MB ứng với chất xúc tác mới và chất xúc tác tái sử dụng.....	58