

ĐẠI HỌC THÁI NGUYÊN
TRƯỜNG ĐẠI HỌC SƯ PHẠM

NGUYỄN THỊ THANH HUỆ

TỔNG HỢP, NGHIÊN CỨU ĐẶC TRƯNG CẤU TRÚC
CỦA OXIT NANO $MnAl_2O_4$, $MnFe_2O_4$
VÀ BƯỚC ĐẦU THĂM DÒ ỨNG DỤNG CỦA CHÚNG

LUẬN VĂN THẠC SĨ KHOA HỌC VẬT CHẤT

THÁI NGUYÊN - 2016

ĐẠI HỌC THÁI NGUYÊN
TRƯỜNG ĐẠI HỌC SƯ PHẠM

NGUYỄN THỊ THANH HUỆ

**TỔNG HỢP, NGHIÊN CỨU ĐẶC TRƯNG CẤU TRÚC
CỦA OXIT NANO $MnAl_2O_4$, $MnFe_2O_4$
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: TS. Nguyễn Thị Tố Loan

THÁI NGUYÊN - 2016

LỜI CAM ĐOAN

Tôi xin cam đoan đây là công trình nghiên cứu của riêng tôi dưới sự hướng dẫn của TS. Nguyễn Thị Tố Loan. 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

Nguyễn Thị Thanh Huệ

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

Người hướng dẫn

PGS.TS. Nguyễn Thị Hiền Lan

TS. Nguyễn Thị Tố Loan

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 TS. Nguyễn Thị Tố Loan 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 các bạn bè đồng nghiệp đã động viên, giúp đỡ, tạo mọi điều kiện thuận lợi cho tôi trong suốt quá trình thực nghiệm và hoàn thành luận văn.

Thái Nguyên, tháng 09 năm 2016

Tác giả luận văn

Nguyễn Thị Thanh Huệ

MỤC LỤC

LỜI CẢM ƠN	ii
MỤC LỤC	iii
DANH MỤC CÁC KÝ HIỆU, CÁC CHỮ VIẾT TẮT.....	iv
DANH MỤC BẢNG	v
DANH MỤC HÌNH	vi
MỞ ĐẦU	1
Chương 1 TỔNG QUAN.....	2
1.1. Vật liệu nano.....	2
1.1.1. Phân loại vật liệu nano.....	2
1.1.2. Tính chất của vật liệu nano.....	3
1.1.3. Một số phương pháp tổng hợp vật liệu nano.....	4
1.1.4. Ứng dụng của vật liệu nano.....	9
1.2. Giới thiệu về oxit phức hợp kiểu spinel	10
1.2.1. Cấu trúc của oxit phức hợp kiểu spinel	10
1.2.2. Tính chất và ứng dụng của các spinel	12
1.2.3. Một số kết quả nghiên cứu tổng hợp oxit phức hợp kiểu spinel	14
1.3. Metylen xanh	15
1.4. Tính chất xúc tác của oxit kim loại	16
1.4.1. Động học của các phản ứng xúc tác	17
Chương 2. CÁC PHƯƠNG PHÁP NGHIÊN CỨU và THỰC NGHIỆM.	22
2.1. Dụng cụ, hóa chất	22
2.1.1. Dụng cụ, máy móc.....	22
2.1.2. Hóa chất.....	22
2.2. Tổng hợp oxit nano $MnAl_2O_4$, $MnFe_2O_4$ bằng phương pháp đốt cháy dung dịch.....	22
2.3. Các phương pháp nghiên cứu vật liệu	23
2.3.1. Phương pháp phân tích nhiệt	23

2.3.2. Phương pháp nhiễu xạ Ronghen.....	23
2.3.3. Phương pháp hiển vi điện tử quét (SEM) và truyền qua (TEM).....	25
2.3.4. Phương pháp đo diện tích bề mặt riêng	26
2.3.5. Phương pháp phổ hấp thụ phân tử UV-vis	28
2.4. Xây dựng đường chuẩn xác định nồng độ metylen xanh.....	29
2.5. Khảo sát một số yếu tố ảnh hưởng đến sự phân hủy metylen xanh của vật liệu.....	30
2.5.1. Ảnh hưởng của thời gian đến phản ứng	30
2.5.2. Khảo sát ảnh hưởng của khối lượng vật liệu.....	31
2.5.3. Khảo sát ảnh hưởng của nồng độ metylen xanh.....	31
2.6. Phương pháp nghiên cứu động học phản ứng oxy hóa metylen xanh bằng H_2O_2 trên xúc tác $MnAl_2O_4$, $MnFe_2O_4$	31
Chương 3. KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN.....	33
3.1. Kết quả nghiên cứu vật liệu bằng phương pháp phân tích nhiệt.....	33
3.3. Kết quả xác định hình thái học và diện tích bề mặt riêng của các vật liệu.....	35
3.4. Kết quả nghiên cứu khả năng xúc tác cho phản ứng phân hủy metylen xanh bằng H_2O_2 của các vật liệu	36
3.4.1. Kết quả nghiên cứu ảnh hưởng của thời gian.....	36
3.4.2. Kết quả nghiên cứu ảnh hưởng của khối lượng vật liệu	39
3.4.3. Kết quả nghiên cứu ảnh hưởng của nồng độ metylen xanh	40
3.5. Kết quả nghiên cứu động học phản ứng oxy hóa metylen xanh bằng H_2O_2 trên xúc tác $MnAl_2O_4$, $MnFe_2O_4$	41
KẾT LUẬN.....	50
TÀI LIỆU THAM KHẢO.....	50
PHỤ LỤC	

DANH MỤC CÁC KÝ HIỆU, CÁC CHỮ VIẾT TẮT

Tên viết tắt	Tên đầy đủ
BET	Brunauer- Emmett-Teller
CH	Cacbohydrazide
CS	Combustion Synthesis
CTAB	Cetyl trimetyl amoni bromua
CWAO	Catalytic Wet Air Oxidation
DSC	Differential Scanning Calorimetry
EDA	Etylen diamin
GPC	Gas Phase Combustion
JCPDS	Joint Committee on Powder Diffraction Standards
MDH	Malonic acid dihydrazide
ODH	Oxalyl dihydrazide
PEG	Poly (etylen glicol)
PGC	Polimer Gel Combustion
SC	Solution Combustion
SDS	Natri dodecyl sunfat
SEM	Scanning Electron Microscope
SHS	Self Propagating High Temperature Synthesis Process
SSC	Solid State Combustion
TEM	Transmission Electron Microscope
TFTA	Tetra formal tris azine
TGA	Thermo Gravimetric Analysis
XRD	X-Ray Diffraction

DANH MỤC BẢNG

Bảng 1.1. Tính chất của một số spinel.....	13
Bảng 2.1. Số liệu xây dựng đường chuẩn xác định nồng độ metylen xanh.....	29
Bảng 3.1. Hiệu suất phân hủy MB theo thời gian trong trường hợp không có và có xúc tác.....	38
Bảng 3.2. Ảnh hưởng của khối lượng vật liệu đến hiệu suất phân hủy MB	39
Bảng 3.3. Ảnh hưởng của nồng độ MB đến hiệu suất phân hủy MB khi có mặt $MnAl_2O_4$ và $MnFe_2O_4$	40
Bảng 3.4. Hiệu suất phân hủy MB ở các nhiệt độ khác nhau khi có mặt $MnAl_2O_4$	43
Bảng 3.5. Hiệu suất phân hủy MB ở các nhiệt độ khác nhau khi có mặt $MnFe_2O_4$	43
Bảng 3.6. Bảng giá trị $\ln(C_0/C)$ theo thời gian ở các nhiệt độ khác nhau khi có mặt $MnAl_2O_4$	45
Bảng 3.7. Bảng giá trị $\ln(C_0/C)$ theo thời gian ở các nhiệt độ khác nhau khi có mặt $MnFe_2O_4$	45
Bảng 3.8. Quan hệ giữa $\ln k$ và $1/T$ trên vật liệu $MnAl_2O_4$	48
Bảng 3.9. Quan hệ giữa $\ln k$ và $1/T$ trên vật liệu $MnFe_2O_4$	48

DANH MỤC CÁC HÌNH

Hình 1.1. Một số ví dụ về vật liệu nano: (a) hạt nano; (b) ống nano; (c) màng nano và (d) vật liệu có cấu trúc nano	2
Hình 1.2. Hai phương pháp cơ bản để điều chế vật liệu nano	4
Hình 1.3. Sơ đồ minh họa tam giác cháy.....	7
Hình 1.4. Cấu trúc tinh thể của spinel	11
Hình 1.5. Cấu trúc ô mạng spinel thuận	11
Hình 1.6. Cơ chế tạo hạt nano $MnFe_2O_4$	15
Hình 1.6. Công thức cấu tạo của metylen xanh.....	16
Hình 1.7. Phổ UV-Vis của dung dịch metylen xanh.....	16
Hình 2.1. Sơ đồ nguyên lý của thiết bị hiển vi điện tử quét (SEM).....	26
Hình 2.2. Đường chuẩn xác định nồng độ metylen xanh.....	30
Hình 3.1. Giải đồ phân tích nhiệt của mẫu $Mn^{2+}Al^{3+}$ -ure.....	33
Hình 3.2. Giải đồ phân tích nhiệt của mẫu $Mn^{2+}-Fe^{3+}$ -ure	33
Hình 3.3. Giải đồ XRD của mẫu $MnAl_2O_4$ khi nung ở nhiệt độ từ $500 \div 800^\circ C$	34
Hình 3.4. Giải đồ XRD của mẫu $MnFe_2O_4$ khi nung ở nhiệt độ từ $500 \div 800^\circ C$	35
Hình 3.5. Ảnh SEM của mẫu $MnAl_2O_4$ (a) và $MnFe_2O_4$ (b)	36
Hình 3.6. Ảnh TEM của mẫu $MnAl_2O_4$ (a) và $MnFe_2O_4$ (b)	36
Hình 3.7. Phổ UV-vis của sản phẩm phản ứng oxi hóa metylen xanh bởi H_2O_2 khi không có xúc tác ở các thời gian khác nhau	37
Hình 3.8. Phổ UV-Vis của sản phẩm phản ứng oxi hóa metylen xanh bởi H_2O_2 khi có xúc tác $MnAl_2O_4$ trong các khoảng thời gian khác nhau	37
Hình 3.9. Phổ UV-Vis của sản phẩm phản ứng oxi hóa metylen xanh bởi H_2O_2 khi có xúc tác $MnFe_2O_4$ trong các khoảng thời gian khác nhau	38
Hình 3.10. Sự phụ thuộc của hiệu suất phân hủy MB vào khối lượng của vật liệu $MnAl_2O_4$ (a) và $MnFe_2O_4$ (b).....	40
Hình 3.11. Sự phụ thuộc của hiệu suất phân hủy MB vào nồng độ MB khi có	

mặt MnAl_2O_4 (a) và MnFe_2O_4 (b).....	41
Hình 3.12. Sự phụ thuộc của hiệu suất phân hủy MB vào thời gian ở các nhiệt độ khác nhau khi có mặt MnAl_2O_4	44
Hình 3.13. Sự phụ thuộc của hiệu suất phân hủy MB vào thời gian ở các nhiệt độ khác nhau khi có mặt MnFe_2O_4	44
Hình 3.14. Sự phụ thuộc $\ln(C_0/C)$ vào thời gian phản ứng khi có mặt MnAl_2O_4	46
Hình 3.15. Sự phụ thuộc $\ln(C_0/C)$ vào thời gian phản ứng khi có mặt MnFe_2O_4	46
Hình 3.16. Biểu diễn mối quan hệ $\ln k$ phụ thuộc và $1/T$ của vật liệu MnAl_2O_4	48
Hình 3.17. Biểu diễn mối quan hệ $\ln k$ phụ thuộc và $1/T$ của vật liệu MnFe_2O_4	49