

ĐẠI HỌC THÁI NGUYÊN
TRƯỜNG ĐẠI HỌC SƯ PHẠM

TRẦN THỊ NỤ

**TỔNG HỢP, NGHIÊN CỨU ĐẶC TRƯNG CẤU TRÚC
CỦA OXIT NANO NiAl_2O_4 , CoAl_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, năm 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

Trần Thị Nụ

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 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 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 04 năm 2016

Tác giả

Trần Thị Nụ

MỤC LỤC

TRANG BÌA PHỤ

LỜI CAM ĐOAN	ii
LỜI CẢM ƠN	iii
MỤC LỤC	ivii
DANH MỤC CÁC KÝ HIỆU, CÁC CHỮ VIẾT TẮT	iv
DANH MỤC CÁC BẢNG	vi
DANH MỤC CÁC HÌNH	vii
MỞ ĐẦU	1
CHƯƠNG 1: TỔNG QUAN	2
1.1. Công nghệ nano và vật liệu nano	2
1.1.1. Khái niệm về công nghệ nano và 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 oxit nano.....	4
1.1.4. Ứng dụng của vật liệu nano.....	9
1.2. Giới thiệu về oxit phức hợp kiểu spinel	11
1.2.1. Cấu trúc của oxit phức hợp kiểu spinel	11
1.2.2. Tính chất và ứng dụng của oxit phức hợp kiểu spinel	12
1.2.3. Một số kết quả nghiên cứu tổng hợp oxit phức hợp kiểu spinel	14
1.3. Phenol và sự ô nhiễm môi trường do phenol.....	15
1.3.1. Phenol	15
1.3.2. Sự ô nhiễm môi trường do phenol.....	16
1.4. Các phương pháp oxy hóa phenol trong môi trường nước	16
1.4.1. Oxi hóa phenol trong dung dịch nước bằng oxi không khí nhờ xúc tác.....	18
1.4.2. Oxi hóa phenol trong dung dịch nước bằng H ₂ O ₂	18
1.5. Tính chất xúc tác của oxit kim loại	20
1.5.1. Động học của các phản ứng xúc tác	20

1.5.2. Xúc tác dị thể	23
CHƯƠNG 2: THỰC NGHIỆM VÀ CÁC PHƯƠNG PHÁP NGHIÊN	
CỨU VẬT LIỆU	25
2.1. Dụng cụ, hóa chất	25
2.1.1. Dụng cụ, máy móc.....	25
2.1.2. Hóa chất.....	25
2.2. Tổng hợp oxit nano NiAl ₂ O ₄ , CoAl ₂ O ₄ bằng phương pháp đốt cháy.....	25
2.3. Các phương pháp nghiên cứu vật liệu	26
2.3.1. Phương pháp phân tích nhiệt	26
2.3.2. Phương pháp nhiễu xạ Ronghen.....	27
2.3.3. Phương pháp hiển vi điện tử quét (SEM) và truyền qua (TEM).....	28
2.3.4. Phương pháp đo diện tích bề mặt riêng	30
2.3.5. Phương pháp đo phổ tán sắc năng lượng tia X (EDX).....	31
2.3.6. Phương pháp trắc quang	32
2.4. Xây dựng đường chuẩn xác định phenol đỏ theo phương pháp trắc quang.....	33
2.5. Khảo sát một số yếu tố ảnh hưởng đến khả năng phân hủy phenol đỏ của vật liệu.....	34
2.5.1. Khảo sát ảnh hưởng của thời gian phản ứng	34
2.5.2. Khảo sát ảnh hưởng của khối lượng vật liệu	35
2.5.3. Khảo sát ảnh hưởng của nồng độ phenol đỏ	35
2.6. Phương pháp nghiên cứu động học phản ứng oxy hóa phenol đỏ bằng H ₂ O ₂ trên xúc tác NiAl ₂ O ₄ , CoAl ₂ O ₄	35
CHƯƠNG 3: KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN	36
3.1. Kết quả nghiên cứu vật liệu bằng phương pháp phân tích nhiệt.....	36
3.2. Kết quả nghiên cứu vật liệu bằng phương pháp nhiễu xạ Ronghen	37
3.3. Kết quả nghiên cứu vật liệu bằng phương pháp đo phổ tán sắc năng lượng tia X (EDX)	42

3.4. Kết quả xác định hình thái học và diện tích bề mặt riêng của các vật liệu	44
3.5. Kết quả nghiên cứu khả năng phân hủy phenol đỏ của các vật liệu	45
3.5.1. Kết quả nghiên cứu ảnh hưởng của thời gian.....	45
3.5.2. Kết quả nghiên cứu ảnh hưởng của khối lượng vật liệu	48
3.5.3. Kết quả nghiên cứu ảnh hưởng của nồng độ phenol đỏ	49
3.6. Kết quả nghiên cứu động học phản ứng oxy hóa phenol đỏ bằng H_2O_2 trên xúc tác $NiAl_2O_4$, $CoAl_2O_4$	51
KẾT LUẬN	59
TÀI LIỆU THAM KHẢO	60
DANH MỤC CÁC CÔNG TRÌNH KHOA HỌC ĐÃ CÔNG BỐ	64
PHỤ LỤC	65

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
EDX	Energy dispersive X- ray Spectroscopy
GPC	Gas Phase Combustion
JCPDS	Joint Committee on Powder Diffraction Standards
MDH	Malonic acid dihydrazide
ODH	Oxalyl dihydrazide
PEG	Poli 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	Transnission Electron Microscope
TFTA	Tetra formal tris azine
TGA	Thermo Gravimetric Analysis
XRD	X-Ray Diffraction

DANH MỤC CÁC BẢNG

Bảng 1.1. Tính chất của một số spinel.....	13
Bảng 2.1. Số liệu xây dựng đường chuẩn xác định nồng độ phenol đỏ.....	34
Bảng 3.1. Thành phần phần trăm các nguyên tố trong mẫu của NiAl ₂ O ₄ và CoAl ₂ O ₄	42
Bảng 3.2. Ảnh hưởng của khối lượng vật liệu đến khả năng phân hủy phenol đỏ của các vật liệu NiAl ₂ O ₄ , CoAl ₂ O ₄	48
Bảng 3.3. Ảnh hưởng của nồng độ đến khả năng phân hủy phenol đỏ của các vật liệu NiAl ₂ O ₄ , CoAl ₂ O ₄	50
Bảng 3.4. Độ chuyển hóa phenol đỏ ở các nhiệt độ khác nhau đối với vật liệu NiAl ₂ O ₄	52
Bảng 3.5. Độ chuyển hóa phenol đỏ ở các nhiệt độ khác nhau đối với vật liệu CoAl ₂ O ₄	53
Bảng 3.6. Bảng giá trị ln(C ₀ /C) theo thời gian ở các nhiệt độ khác nhau của vật liệu NiAl ₂ O ₄	54
Bảng 3.7. Bảng giá trị ln(C ₀ /C) theo thời gian ở các nhiệt độ khác nhau của vật liệu CoAl ₂ O ₄	55
Bảng 3.8. Quan hệ giữa lnk và 1/T trên vật liệu NiAl ₂ O ₄	57
Bảng 3.9. Quan hệ giữa lnk và 1/T trên vật liệu CoAl ₂ O ₄	57

DANH MỤC CÁC HÌNH

Hình 1.1. Phân loại theo cấu trúc vật liệu nano.....	3
Hình 1.2. Hai nguyên lí cơ bản của công nghệ nano.....	5
Hình 1.3. Tam giác cháy.....	7
Hình 1.4. Cấu trúc tinh thể trong ferit spinel.....	11
Hình 1.5. Cấu trúc ô mạng spinel thuận	122
Hình 1.6. Công thức cấu tạo của phenol (a) và phenol đỏ (b).....	155
Hình 1.7. Sơ đồ oxi hóa phenol của Devlin và Harris.....	177
Hình 1.8. Sơ đồ phản ứng oxy hóa phenol	199
Hình 2.1. Sơ đồ nguyên lý của thiết bị hiển vi điện tử quét (SEM).....	29
Hình 2.2. Sơ đồ nguyên lý hoạt động của máy đo phổ EDX	331
Hình 2.3. Đường chuẩn xác định nồng độ phenol đỏ.....	34
Hình 3.1. Giải đồ phân tích nhiệt của mẫu Ni ²⁺ -Al ³⁺ -ure.....	36
Hình 3.2. Giải đồ phân tích nhiệt của mẫu Co ²⁺ -Al ³⁺ -ure	37
Hình 3.3. Giải đồ XRD của các mẫu NiAl ₂ O ₄ (a), CoAl ₂ O ₄ (b) nung ở 500°C.....	38
Hình 3.4. Giải đồ XRD của các mẫu NiAl ₂ O ₄ (a), CoAl ₂ O ₄ (b) nung ở 600°C.....	39
Hình 3.5. Giải đồ XRD của các mẫu NiAl ₂ O ₄ (a), CoAl ₂ O ₄ (b) nung ở 700°C.....	40
Hình 3.6. Giải đồ XRD của mẫu NiAl ₂ O ₄ nung ở 800°C	441
Hình 3.7. Phổ EDX của vật liệu NiAl ₂ O ₄	43
Hình 3.8. Phổ EDX của vật liệu CoAl ₂ O ₄	43
Hình 3.9. Ảnh hiển vi điện tử quét (SEM) của mẫu NiAl ₂ O ₄ (a) và CoAl ₂ O ₄ (b)	44
Hình 3.10. Ảnh hiển vi điện tử truyền qua (TEM) của mẫu NiAl ₂ O ₄ (a) và CoAl ₂ O ₄ (b).....	44

Hình 3.11. Phổ UV-Vis của sản phẩm phản ứng oxi hóa phenol đỏ khi không có xúc tác ở 60 ⁰ C.....	46
Hình 3.12. Phổ UV-Vis của sản phẩm phản ứng oxi hóa phenol đỏ khi có xúc tác NiAl ₂ O ₄ ở 60 ⁰ C	46
Hình 3.13. Phổ UV-Vis của sản phẩm phản ứng oxi hóa phenol đỏ khi có xúc tác CoAl ₂ O ₄ ở 60 ⁰ C	47
Hình 3.14. Ảnh hưởng của khối lượng vật liệu đến khả năng phân hủy phenol đỏ của các vật liệu NiAl ₂ O ₄ , CoAl ₂ O ₄	49
Hình 3.15. Ảnh hưởng của nồng độ đến khả năng phân hủy phenol đỏ của các vật liệu NiAl ₂ O ₄ , CoAl ₂ O ₄	50
Hình 3.16. Độ chuyển hóa phenol đỏ ở các nhiệt độ khác nhau đối với vật liệu NiAl ₂ O ₄	53
Hình 3.17. Độ chuyển hóa phenol đỏ ở các nhiệt độ khác nhau đối với vật liệu CoAl ₂ O ₄	54
Hình 3.18. Sự phụ thuộc ln(C ₀ /C) vào thời gian phản ứng t của vật liệu NiAl ₂ O ₄	55
Hình 3.19. Sự phụ thuộc ln(C ₀ /C) vào thời gian phản ứng t của vật liệu CoAl ₂ O ₄	56
Hình 3.20. Biểu diễn mối quan hệ lnk phụ thuộc và 1/T của vật liệu NiAl ₂ O ₄	58
Hình 3.21. Biểu diễn mối quan hệ lnk phụ thuộc và 1/T của vật liệu CoAl ₂ O ₄	58