(12) **BẢN MÔ TẢ GIẢI PHÁP HỮU ÍCH THUỘC BẰNG ĐỘC QUYỀN**
GIẢI PHÁP HỮU ÍCH

(19) **Cộng hòa xã hội chủ nghĩa Việt Nam (VN)**
CỤC SỞ HỮU TRÍ TUỆ

(11) **2-0003498**

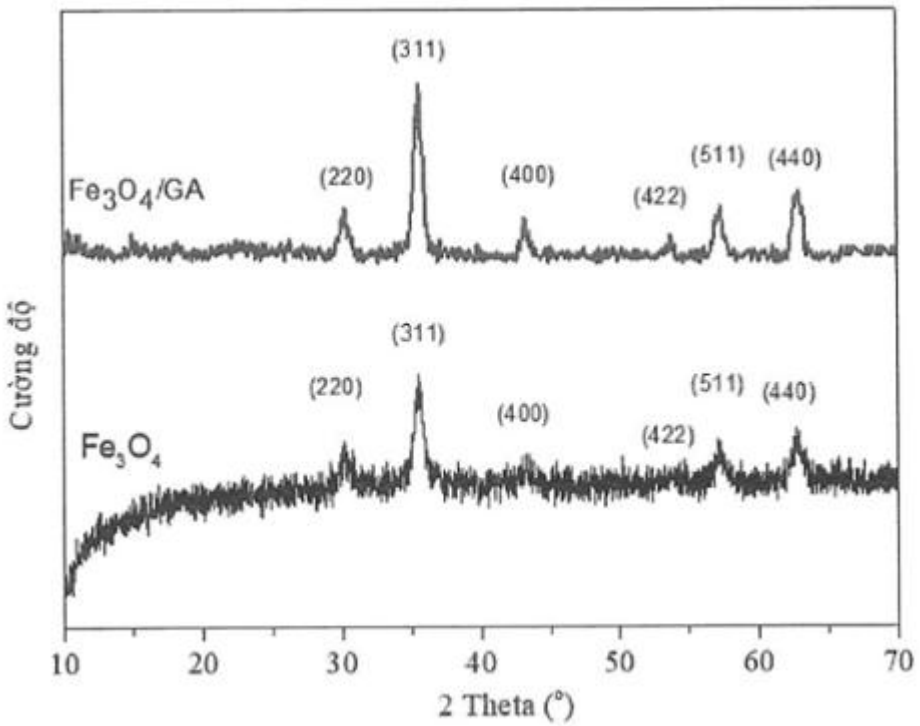
(51) **B01J 20/20**; C01B 32/194
2019.01

(13) **Y**

(21) 2-2019-00147
(22) 09/05/2019
(45) 25/01/2024 430
(43) 25/11/2020 392A
(73) Sở Khoa học và Công nghệ thành phố Hồ Chí Minh (VN)
244 Điện Biên Phủ, Phường 7, Quận 3, thành phố Hồ Chí Minh
(72) Nguyễn Hữu Hiếu (VN).

(54) QUY TRÌNH TỔNG HỢP VẬT LIỆU FE3O4/GA DÙNG LÀM CHẤT HẤP PHỤ HỢP CHẤT PHENOLIC

(57) Giải pháp hữu ích đề cập đến quy trình tổng hợp vật liệu Fe_3O_4/GA (Fe_3O_4/Graphene Aerogel) dùng làm chất hấp phụ hợp chất phenolic. Vật liệu Fe_3O_4/GA (Fe_3O_4/Graphene Hydrogel) được tổng hợp trên cơ sở graphen oxit và Fe_3O_4 nano trong môi trường khử là etylendiamin cho phép thu được vật liệu với Fe_3O_4 nano được phân tán đồng đều trong mạng graphen (Fe_3O_4/GH). Sau khi cấp đông và sấy thăng hoa Fe_3O_4/GH thu được vật liệu Fe_3O_4/GA có khả năng hấp phụ hợp chất phenolic hiệu quả tới 85%.



Lĩnh vực kỹ thuật được đề cập

Giải pháp hữu ích thuộc lĩnh vực tổng hợp vật liệu, và cụ thể là giải pháp hữu ích đề cập đến quy trình tổng hợp vật liệu Fe_3O_4/GA (Fe_3O_4/Graphene Aerogel) dùng làm chất hấp phụ hợp chất phenolic ứng dụng trong xử lý nước nhiễm hợp chất phenolic.

Tình trạng kỹ thuật của giải pháp hữu ích

Hiện nay, cùng với sự phát triển của công nghiệp, môi trường nước bị ô nhiễm ngày càng nghiêm trọng, tác động xấu với sức khỏe con người, động vật, thực vật, và môi trường. Trong đó, nước thải có chứa hợp chất phenolic từ các nhà máy sản xuất nhựa, chất màu, và dược phẩm gây ô nhiễm nghiêm trọng. Các hợp chất này khi hấp thu vào máu và tích lũy trong cơ thể gây tổn thương gan, thận, và mô tụy; rối loạn huyết áp, suy giảm hệ hô hấp, rối loạn khả năng điều khiển nhận thức và hành vi, tê liệt hệ thần kinh, có thể dẫn tới hôn mê, tử vong. Vì vậy, cần có biện pháp loại bỏ hợp chất phenolic ra khỏi nước thải trước khi đưa vào môi trường.

Nhiều phương pháp đã được phát triển để loại bỏ hợp chất phenolic trong nước như xúc tác quang, ozon hóa, sinh học, chiết, hấp phụ. Với tiêu chí là chi phí vận hành thấp, quy trình đơn giản, thân thiện với môi trường, và độ chọn lọc cao, thì các vật liệu hấp phụ được sử dụng phổ biến hơn các phương pháp khác. Nhiều vật liệu hấp phụ khác nhau đã được nghiên cứu sử dụng như bã mía, than củi, nhựa polyme, và cacbon hoạt tính. Tuy nhiên, khi ứng dụng thì hiệu quả xử lý chưa cao do khả năng tái sử dụng các vật liệu này kém và độ chọn lọc chưa đạt yêu cầu.

Trong những năm trở lại đây, vật liệu Fe_3O_4/Graphene Aerogel (Fe_3O_4/GA) với cấu trúc ba chiều (3D) đã được nghiên cứu, góp phần nâng cao tiềm năng ứng dụng thực tế của các vật liệu trên cơ sở graphen như lưu trữ điện năng, cảm

biến, xúc tác, hấp phụ. Đa có một số nghiên cứu về Fe_3O_4/GA được thực hiện. Theo đó, Fe_3O_4/GA chủ yếu được tổng hợp theo phương pháp thủy nhiệt, quy trình qua nhiều giai đoạn, phản ứng tiến hành ở nhiệt độ cao (trong khoảng từ 180 đến 200°C), và thời gian kéo dài (trong khoảng từ 8 đến 24 giờ).

Phương pháp tổng hợp composit 3D-Fe_3O_4/GA tạo ra vật liệu để loại bỏ asen (III) và asen (V) đã được công bố, trong đó quá trình này được thực hiện qua nhiều giai đoạn bằng các sử dụng tác nhân liên kết là polydopamin trong điều kiện phản ứng ở 95°C trong 24 giờ. Vật liệu thu được có bề mặt riêng chỉ đạt 13,22m^2/g và từ tính thấp và 0,88emu/g thích hợp ứng dụng trong hấp phụ asen (III) và asen (V) trong nước.

Phương pháp tổng hợp Fe_3O_4/GA cũng đã được công bố, trong đó phương pháp này sử dụng GO và FeC_2O_4 trong điều kiện phản ứng là ở nhiệt độ 180°C trong 12 giờ. Vật liệu thu được thích hợp để ứng dụng hấp phụ asen (III) và asen (V) trong nước.

Phương pháp tổng hợp vật liệu từ tính polystyren/Fe_3O_4/GA để phân tách dầu-nước cũng đã được đề cập. Trong đó bằng cách sử dụng GO, $FeCl_3$, natri axetat, và polyvinyl pyrrolidon là tiền chất với dung môi sử dụng là etylen glycol, điều kiện phản ứng được thực hiện ở 200°C trong 8 giờ để thu được các hạt Fe_3O_4 phân bố trên bề mặt GA với kích thước 1µm. Với diện tích bề mặt riêng thấp 110m^2/g và có bề mặt kị nước 142,2°C, vật liệu thích hợp để ứng dụng trong hấp phụ dầu.

Tổng hợp composit 3D-GA bằng quá trình tự lắp ráp và liên kết các hạt nano cũng đã được thực hiện. Trong đó bằng cách sử dụng GO và hệ keo Fe_3O_4 trong điều kiện chất khử $NaHSO_3$. Quá trình phản ứng được thực hiện ở 95°C trong 3 giờ. Tuy nhiên, vật liệu thu được có khối lượng riêng cao, tới 42mg/cm^3 và có diện tích bề mặt riêng thấp 95,22m^2/g và độ từ tính thấp 3,4emu/g.

Ngoài ra, phương pháp tổng hợp vật liệu composit 3D-GA có gắn Fe_3O_4 cũng đã được thực hiện bằng cách sử dụng GO, sắt (II) axetat, và polypyrrol.

Phản ứng được thục hiện qua hai giai đoạn là thủy nhiệt và khử để thu được vật liệu sau quá trình phản ứng ở 180°C trong 12 giờ.

Nhìn chung các phương pháp sản xuất vật liệu hấp phụ trên cơ sở graphen phức tạp, quy trình thực hiện thường tiến hành ở nhiệt độ cao với thời gian kéo dài. Do đó, có nhu cầu về quy trình tổng hợp vật liệu Fe_3O_4/GA đơn giản, thời gian phản ứng ngắn, vật liệu được tạo ra có diện tích bề mặt và độ từ tính lớn, không sử dụng các chất liên kết ngang giúp giữ số lượng các tâm hấp phụ trên bề mặt. Bên cạnh đó, các vật liệu Fe_3O_4/GA ứng dụng trong lĩnh vực hấp phụ chủ yếu để xử lý asen trong nước. Việc nghiên cứu ứng dụng Fe_3O_4/GA vào xử lý các hợp chất hữu cơ đặc biệt là phenolic chưa được nghiên cứu. Vì vậy, nghiên cứu quy trình tổng hợp vật liệu Fe_3O_4/GA để ứng dụng hấp phụ phenolic là cần thiết.

Bản chất kỹ thuật của giải pháp hữu ích

Mục đích của giải pháp hữu ích nhằm khắc phục các vấn đề nêu trên, cụ thể là giải pháp hữu ích đề xuất quy trình tổng hợp vật liệu Fe_3O_4/GA (Fe_3O_4/Graphene Aerogel) dùng làm chất hấp phụ hợp chất phenolic ứng dụng trong xử lý nước nhiễm hợp chất phenolic.

Để đạt được mục đích nêu trên, giải pháp hữu ích đề xuất quy trình tổng hợp vật liệu Fe_3O_4/GA (Fe_3O_4/Graphene Aerogel) dùng làm chất hấp phụ hợp chất phenolic, trong đó quy trình này bao gồm các bước:

a) chuẩn bị nguyên liệu phản ứng bao gồm bước tổng hợp các vật liệu graphen oxit và Fe_3O_4 nano, trong đó:

+ graphen oxit được tổng hợp bằng cách bổ sung graphit vào hỗn hợp bao gồm axit H_2SO_4, H_3PO_4 đậm đặc và $KMnO_4$ để oxy hóa graphen trong điều kiện khuấy ở nhiệt độ 50°C trong 12 giờ, tiếp đó bổ sung dung dịch gồm nước và H_2O_2, ly tâm thu phần chất rắn và rửa lần lượt nhiều lần bằng dung dịch HCl, nước cất, và etanol, sau khi sấy khô, tiến hành tách lớp graphit oxit bằng siêu âm trong nước để thu được graphen oxit dạng huyền phù;

+ Fe_3O_4 nano được tổng hợp bằng cách hòa tan hỗn hợp bao gồm muối $FeCl_3.6H_2O$ và $FeCl_2.4H_2O$ theo tỷ lệ trọng lượng là 3,03/1,13 (g/g) với nước và điều chỉnh pH của dung dịch đến pH=10, duy trì điều kiện phản ứng khoảng 80°C trong khoảng thời gian 2 giờ, phần hạt kết tủa màu đen được thu nhận bằng từ trường ngoài rồi rửa nhiều lần với nước và etanol, sau khi sấy ở nhiệt độ khoảng 50°C trong khoảng thời gian 12 giờ thu được vật liệu Fe_3O_4 nano có kích thước hạt 21 ± 1,5nm;

b) tổng hợp vật liệu Fe_3O_4/GH (Fe_3O_4/Graphene Hydrogel) bằng cách phối trộn huyền phù graphen oxit và Fe_3O_4 nano thu được ở các bước nêu trên theo tỉ lệ khối lượng là 1:1, tiếp đó bổ sung vào hỗn hợp một lượng chất khử etylendiamin tính theo lượng graphen oxit là 6 µl/g và duy trì nhiệt độ phản ứng ở 90°C trong 6 giờ để hình thành vật liệu Fe_3O_4/GH; và

c) thu vật liệu Fe_3O_4/GA bằng cách cấp đông và sấy thăng hoa Fe_3O_4/GH thu được ở bước tổng hợp vật liệu Fe_3O_4/GH nêu trên, thu được vật liệu Fe_3O_4/GA dạng bột có tiết diện bề mặt lên tới 262,69m^2/g.

Quy trình quy trình tổng hợp vật liệu Fe_3O_4/GA theo giải pháp hữu ích đơn giản, thời gian phản ứng ngắn, và sản phẩm Fe_3O_4/GA có thể ứng dụng làm chất hấp phụ hợp chất phenolic để xử lý nước nhiễm hợp chất phenolic.

Mô tả vắn tắt các hình vẽ

Hình 1 là hình vẽ thể hiện phổ FTIR của GO, Fe_3O_4, và Fe_3O_4/GA được tạo ra theo một ví dụ cụ thể của quy trình tổng hợp vật liệu theo giải pháp hữu ích;

Hình 2 là hình vẽ thể hiện giản đồ XRD của Fe_3O_4 và Fe_3O_4/GA được tạo ra theo một ví dụ cụ thể của quy trình tổng hợp vật liệu theo giải pháp hữu ích;

Hình 3 là hình vẽ thể hiện ảnh TEM của Fe_3O_4/GA và phân bố kích thước hạt được tạo ra theo một ví dụ cụ thể của quy trình tổng hợp vật liệu theo giải pháp hữu ích;

Hình 4 là hình vẽ thể hiện ảnh SEM của Fe_3O_4/GA được tạo ra theo một ví dụ cụ thể của quy trình tổng hợp vật liệu theo giải pháp hữu ích;

Hình 5 là hình vẽ thể hiện đường cong từ tính của Fe_3O_4/GA được tạo ra theo một ví dụ cụ thể của quy trình tổng hợp vật liệu theo giải pháp hữu ích;

Hình 6 là hình vẽ thể hiện hiệu suất hấp phụ các hợp chất phenolic của vật liệu Fe_3O_4/GA được tạo ra theo một ví dụ cụ thể của quy trình tổng hợp vật liệu theo giải pháp hữu ích.

Mô tả chi tiết giải pháp hữu ích

Sau đây, giải pháp hữu ích sẽ được mô tả chi tiết thông qua các phương án thực hiện ưu tiên, cần hiểu rằng các phương án này chỉ được mô tả với mục đích làm ví dụ minh họa cho việc hiểu rõ hơn về bản chất kỹ thuật và các ưu điểm của giải pháp hữu ích, phạm vi yêu cầu bảo hộ không bị giới hạn ở các phương án được mô tả này.

Giải pháp hữu ích đề xuất quy trình tổng hợp vật liệu Fe_3O_4/GA (Fe_3O_4/Graphene Aerogel) dùng làm chất hấp phụ hợp chất phenolic, trong đó quy trình này bao gồm các bước: a) chuẩn bị nguyên liệu phản ứng; b) tổng hợp vật liệu Fe_3O_4/GH; và c) thu vật liệu Fe_3O_4/GA.

Trong bước chuẩn bị nguyên liệu phản ứng, nguyên liệu phản ứng được sử dụng bao gồm vật liệu graphen oxit và Fe_3O_4 nano. Trong đó các vật liệu này được tổng hợp bằng các phương pháp sau:

Để tổng hợp graphen oxit, tiến hành bổ sung graphit vào hỗn hợp bao gồm axit H_2SO_4, H_3PO_4 đậm đặc và $KMnO_4$ để oxy hóa graphen. Điều kiện oxy hóa graphen được thực hiện trong điều kiện khuấy ở nhiệt độ 50°C trong 12 giờ. Tiếp đó bổ sung dung dịch gồm nước và H_2O_2 vào hỗn hợp. Sau khi ly tâm thu phần chất rắn và rửa lần lượt nhiều lần bằng dung dịch HCl, nước cất, và etanol. Sản phẩm thu được này được sấy khô và tiến hành tách lớp graphit oxit bằng siêu âm trong nước để thu được graphen oxit dạng huyền phù. Vật liệu graphen oxit (GO) thu được từ quá trình này được sử dụng là nguyên liệu để tổng hợp vật liệu Fe_3O_4/GA theo giải pháp hữu ích.

Để tổng hợp Fe_3O_4 nano, tiến hành đồng cách hòa tan hỗn hợp bao gồm muối $FeCl_3.6H_2O$ và $FeCl_2.4H_2O$ theo tỷ lệ trọng lượng là 3,03/1,13 (g/g) với nước. Tiếp đó điều chỉnh pH của dung dịch đến pH=10, duy trì điều kiện phản ứng khoảng 80°C trong khoảng thời gian 2 giờ. Phần hạt kết tủa màu đen được thu nhận bằng từ trường ngoài rồi rửa nhiều lần với nước và etanol. Sau khi sấy ở nhiệt độ khoảng 50°C trong khoảng thời gian 12 giờ thu được vật liệu Fe_3O_4 nano có kích thước hạt 21 ± 1,5nm. Vật liệu Fe_3O_4 nano thu được từ quá trình này được sử dụng là nguyên liệu để tổng hợp vật liệu Fe_3O_4/GA theo giải pháp hữu ích.

Trong bước tổng hợp vật liệu Fe_3O_4/GH (Fe_3O_4/Graphene Hydrogel), tiến hành bằng cách phối trộn huyền phù graphen oxit và Fe_3O_4 nano thu được ở trên theo tỉ lệ khối lượng là 1:1. Sau đó bổ sung vào hỗn hợp một lượng chất khử etylendiamin tính theo lượng graphen oxit là 6 µl/g và duy trì nhiệt độ phản ứng ở 90°C trong 6 giờ để hình thành vật liệu Fe_3O_4/GH.

Để thu vật liệu Fe_3O_4/GA, tiến hành cấp đông và sấy thăng hoa vật liệu Fe_3O_4/GH thu được ở bước tổng hợp vật liệu Fe_3O_4/GH nêu trên. Sản phẩm thu được là vật liệu Fe_3O_4/GA dạng bột có tiết diện bề mặt lên tới 262,69m^2/g.

Ví dụ thực hiện giải pháp hữu ích

Ví dụ 1. Tổng hợp vật liệu Fe_3O_4/GA

Dưới đây, một ví dụ cụ thể để thực hiện giải pháp hữu ích sẽ được mô tả, trong đó lượng cụ thể các nguyên liệu đầu vào được sử dụng và thực hiện lần lượt theo các bước của quy trình tổng hợp vật liệu Fe_3O_4/GA được mô tả trên đây.

Để tổng hợp vật liệu graphen oxit, hòa 3g graphit trong hỗn hợp axit H_2SO_4/H_3PO_4 đậm đặc theo tỷ lệ 360:40 mL có bổ sung 18g $KMnO_4$. Tiếp đó, tiến hành khuấy và gia nhiệt ở nhiệt độ ở 50°C trong 12 giờ. Cuối cùng bổ sung 500mL nước và 15mL H_2O_2 vào hỗn hợp. Sản phẩm phản ứng được ly tâm thu phần cặn. Sau khi rửa rửa nhiều lần với dung dịch HCl, nước cất, và etanol tới

khi đạt pH=6. Sản phẩm sau đó sấy khô ở nhiệt độ khoảng 50°C trong khoảng thời gian 12 giờ rồi tiến hành siêu âm tách lớp graphit oxit trong môi trường nước để thu được graphen oxit ở dạng huyền phù.

Để tổng hợp Fe_3O_4 nano, tiến hành phối trộn 3,03g hỗn hợp $FeCl_3.6H_2O$ và 1,13g $FeCl_2.4H_2O$ với 150mL nước. Sau khi điều chỉnh pH dung dịch đến pH=10, gia nhiệt và duy trì điều kiện phản ứng ở 80°C trong 2 giờ. Các hạt kết tủa màu đen xuất hiện được thu thập bằng từ trường bên ngoài. Sau đó rửa nhiều lần với nước và etanol rồi sấy ở nhiệt độ khoảng 50°C trong khoảng thời gian 12 giờ để thu Fe_3O_4 nano.

Để tổng hợp vật liệu Fe_3O_4/GA, tiến hành tổng hợp vật liệu Fe_3O_4/Graphene Hydrogel (Fe_3O_4/GH) bằng cách phối trộn huyền phù graphen oxit và Fe_3O_4 nano thu được ở trên theo tỉ lệ khối lượng là 1:1 (tính theo lượng graphen oxit và Fe_3O_4 nano). Sau đó, bổ sung thêm 30µL chất khử ethylenediamin vào hỗn hợp và gia nhiệt ở nhiệt độ khoảng 90°C trong khoảng thời gian 6 giờ. Sau quá trình khử này, vật liệu Fe_3O_4/Graphen Hydrogel (Fe_3O_4/GH) được hình thành.

Để thu vật liệu Fe_3O_4/GA, tiến hành cấp đông và sấy thăng hoa vật liệu Fe_3O_4/GH thu được này. Sản phẩm thu được là vật liệu Fe_3O_4/GA dạng bột.

Ví dụ 2. Đánh giá đặc tính lý hóa của vật liệu thu được

Để xác định các đặc tính lý hóa của vật liệu Fe_3O_4/GA và các sản phẩm trung gian được tổng hợp theo Ví dụ 1 nêu trên. Tiến hành đo đạc các thông số lý hóa. Kết quả được thể hiện trong các hình từ Hình 1 đến Hình 7.

Kết quả trên Hình 1 thể hiện phổ FTIR của GO (Graphene Oxit), Fe_3O_4, và Fe_3O_4/GA. Như được thể hiện trên hình vẽ, sự có mặt của các nhóm chức chứa oxy đặc trưng của GO tại 1225cm^{-1} (-C-O), 1065cm^{-1} (-O-), 1727cm^{-1} (C=O), và 3485cm^{-1} (-OH). Phổ Fe_3O_4/GA cho thấy sự suy giảm của cường độ của các nhóm chức giảm, GO đã bị khử một phần để tạo cấu trúc vật liệu 3D. Bên cạnh

đó, sự xuất hiện của liên kết Fe-O tại 585cm^{-1} cho thấy các hạt Fe_3O_4 đã liên kết với mạng lưới vật liệu GA.

Trên Hình 2 thể hiện giản đồ XRD của Fe_3O_4 và Fe_3O_4/GA. Như được thể hiện trên hình vẽ, các đỉnh nhiễu xạ của Fe_3O_4 tương đồng với các đỉnh của Fe_3O_4/GA tại các vị trí 2θ = 30,15°, 36,27°, 43,32 °, 53,89 °, 57,13 °, và 62,29 ° tương ứng với các mặt (220), (311), (400), (422), (511), và (440). Điều này cho thấy sự tồn tại của các hạt nano Fe_3O_4 trong vật liệu nanocomposit Fe_3O_4/GA.

Hình 3 thể hiện hình thái bề mặt của Fe_3O_4/GA được nghiên cứu thông qua ảnh TEM. Như được thể hiện trên hình vẽ, các hạt Fe_3O_4 phân bố trên bề mặt GA với kích thước trung bình 21 ± 1,5nm. Điều này cho thấy sự tương tác hiệu quả giữa các hạt nano và GA giúp ngăn cản sự kết tụ của các hạt Fe_3O_4.

Trên Hình 4 thể hiện diện tích bề mặt riêng của Fe_3O_4/GA được xác định là 262,69m^2/g. Kết quả này phù hợp với kích thước lỗ xốp 10 đến 15µm. Như được thể hiện trên hình vẽ, cấu trúc lỗ xốp của Fe_3O_4/GA được tạo thành do sự sắp xếp ngẫu nhiên của các tấm graphen bởi các tương tác π-π, Van der Waals, và liên kết hydro.

Trên Hình 5 thể hiện, vật liệu Fe_3O_4/GA có đường cong từ tính. Như được thể hiện trên hình vẽ, đường cong có dạng gần giống chữ S với lực kháng từ nhỏ H_c = 50,3Oe. Giá trị lực kháng từ nhỏ chứng minh vật liệu nanocomposit dễ dàng từ hóa. Đồng thời, độ từ tính bão hòa của vật liệu Fe_3O_4/GA là M_s = 21,12emu/g, cho thấy vật liệu composit dễ dàng thu hồi bằng từ trường ngoài. Hình 6 thể hiện biểu đồ biểu thị khả năng xử lý hợp chất phenolic của vật liệu Fe_3O_4/GA tổng hợp được. Như được thể hiện trên hình vẽ, khả năng hấp phụ hợp chất phenolic của Fe_3O_4/GA có khả năng xử lý hợp chất phenolic với hiệu quả đạt được hơn 85%.

Hiệu quả đạt được của giải pháp hữu ích

Quy trình tổng hợp vật liệu Fe_3O_4/GA (Fe_3O_4/Graphene Aerogel) theo giải pháp hữu ích cho phép tạo được vật liệu xốp, có hạt nano Fe_3O_4 được phân tán

đồng đều trong cấu trúc graphen cho phép ứng dụng làm chất hấp phụ hợp chất phenolic để xử lý nước nhiễm hợp chất phenolic.

Quy trình tổng hợp vật liệu Fe_3O_4/GA theo giải pháp hữu ích có thể được thực hiện một cách đơn giản, ở nhiệt độ thấp, thời gian phản ứng ngắn, vật liệu được tạo ra có diện tích bề mặt và độ từ tính lớn, không sử dụng các chất liên kết ngang giúp giữ số lượng các tâm hấp phụ trên bề mặt.

Bên cạnh đó, quy trình tổng hợp vật liệu Fe_3O_4/GA Aerogel) theo giải pháp hữu ích có thể tạo ra vật liệu Fe_3O_4/GA có khả năng hấp phụ hợp chất phenolic với hiệu quả lên tới 85%.

YÊU CẦU BẢO HỘ

1. Quy trình tổng hợp vật liệu Fe_3O_4/GA (Fe_3O_4/Graphene Aerogel) dùng làm chất hấp phụ hợp chất phenolic, trong đó quy trình này bao gồm các bước:

a) chuẩn bị nguyên liệu phản ứng bao gồm bước tổng hợp các vật liệu graphen oxit và Fe_3O_4 nano, trong đó:

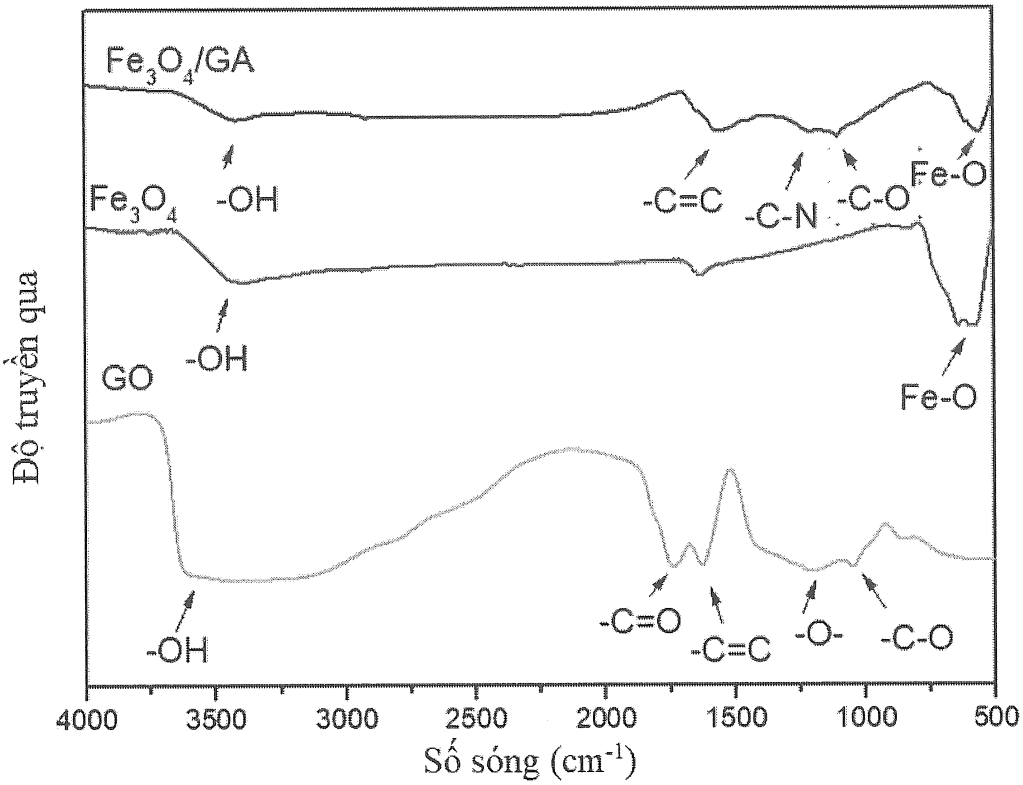
+ graphen oxit được tổng hợp bằng cách bổ sung graphit vào hỗn hợp bao gồm axit H_2SO_4, H_3PO_4 đậm đặc và $KMnO_4$ để oxy hóa graphen trong điều kiện khuấy ở nhiệt độ 50°C trong 12 giờ, tiếp đó bổ sung dung dịch gồm nước và H_2O_2, ly tâm thu phần chất rắn và rửa lần lượt nhiều lần bằng dung dịch HCl, nước cất, và etanol, sau khi sấy khô, tiến hành tách lớp graphit oxit bằng siêu âm trong nước để thu được graphen oxit dạng huyền phù;

+ Fe_3O_4 nano được tổng hợp bằng cách hòa tan hỗn hợp bao gồm muối $FeCl_3.6H_2O$ và $FeCl_2.4H_2O$ theo tỷ lệ trọng lượng là 3,03/1,13 (g/g) với nước và điều chỉnh pH của dung dịch đến pH=10, duy trì điều kiện phản ứng khoảng 80°C trong khoảng thời gian 2 giờ, phần hạt kết tủa màu đen được thu nhận bằng từ trường ngoài rồi rửa nhiều lần với nước và etanol, sau khi sấy ở nhiệt độ khoảng 50°C trong khoảng thời gian 12 giờ thu được vật liệu Fe_3O_4 nano có kích thước hạt 21 ± 1,5nm;

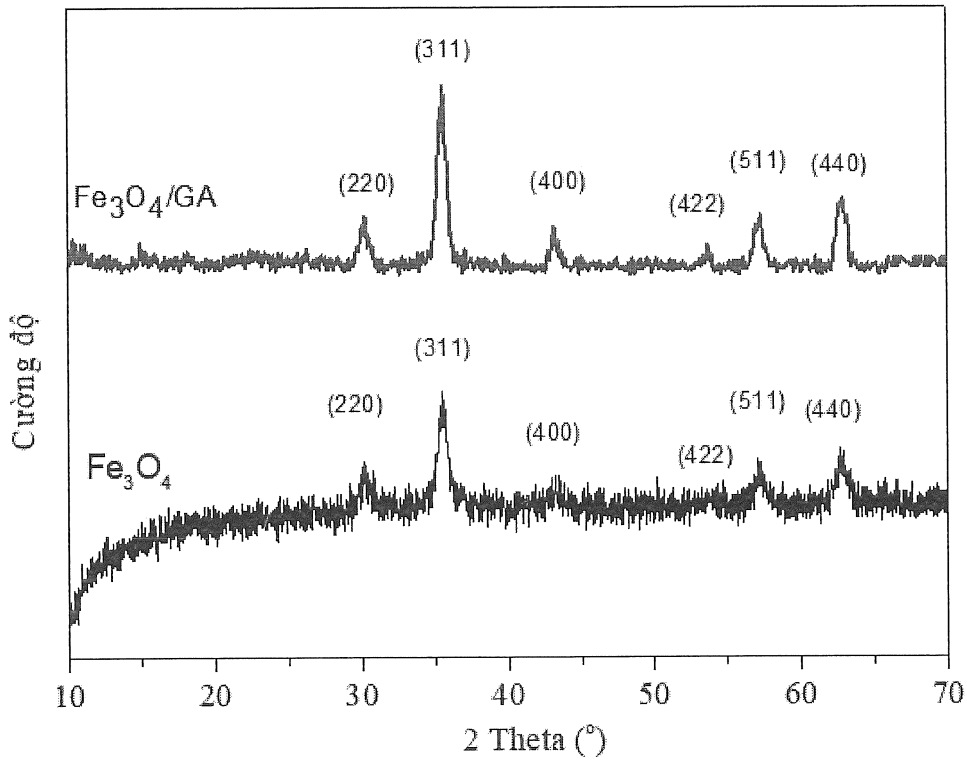
b) tổng hợp vật liệu Fe_3O_4/GH (Fe_3O_4/Graphene Hydrogel) bằng cách phối trộn huyền phù graphen oxit và Fe_3O_4 nano thu được ở các bước nêu trên theo tỉ lệ khối lượng là 1:1, tiếp đó bổ sung vào hỗn hợp một lượng chất khử etylendiamin tính theo lượng graphen oxit là 6 µl/g và duy trì nhiệt độ phản ứng ở 90°C trong 6 giờ để hình thành vật liệu Fe_3O_4/GH; và

c) thu vật liệu Fe_3O_4/GA bằng cách cấp đông và sấy thăng hoa Fe_3O_4/GH thu được ở bước tổng hợp vật liệu Fe_3O_4/GH nêu trên, thu được vật liệu Fe_3O_4/GA dạng bột có tiết diện bề mặt lên tới 262,69m^2/g.

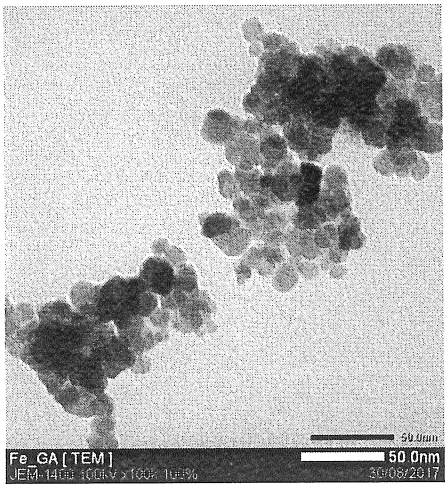
HÌNH 1

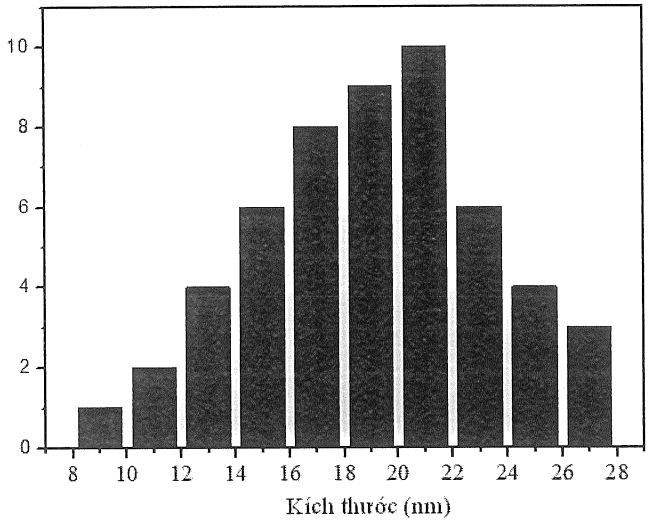

Fe3O4/GA
-OH
-C=C
-C-N
-C-O
Fe-O
Fe3O4
-OH
Fe-O
GO
-OH
-C=O
-C=C
-O-
-C-O
Độ truyền qua
4000
3500
3000
2500
2000
1500
1000
500
Số sóng (cm-1)

HÌNH 2

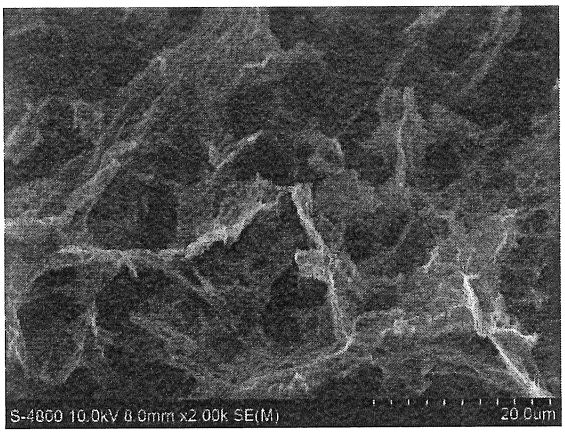

(311)
Fe3O4/GA
(220)
(400)
(422)
(511)
(440)
(311)
(220)
(400)
(422)
(511)
(440)
Fe3O4
Cường độ
10
20
30
40
50
60
70
2 Theta (°)

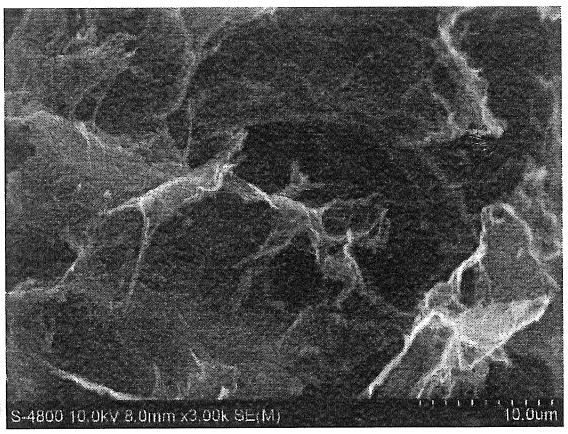
HÌNH 3


Fe_GA [TEM]
50.0nm
50.0nm

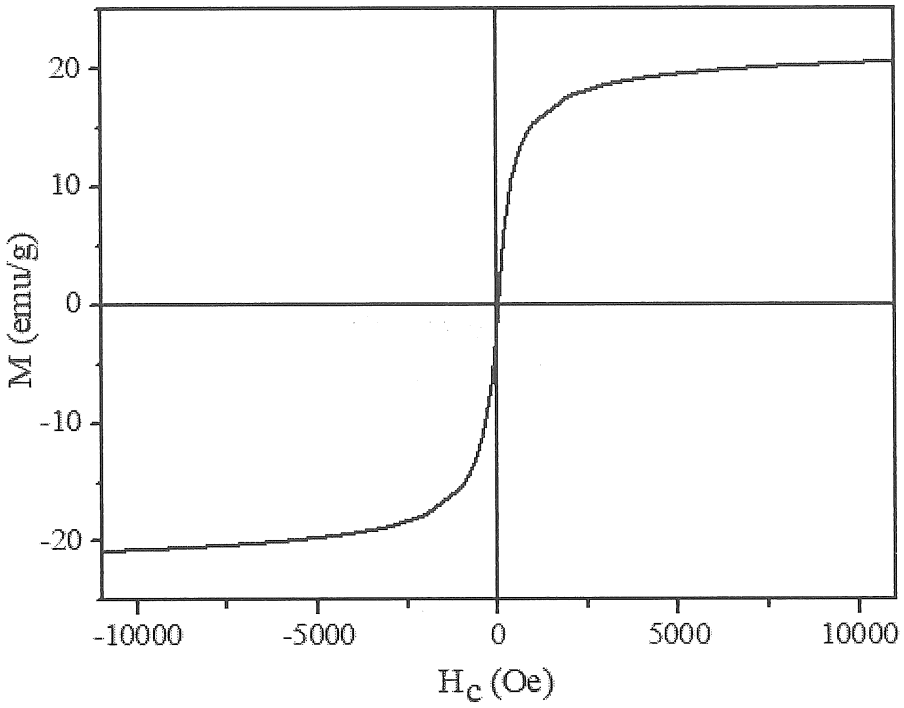

0
2
4
6
8
10
8
10
12
14
16
18
20
22
24
26
28
Kích thước (nm)

HÌNH 4

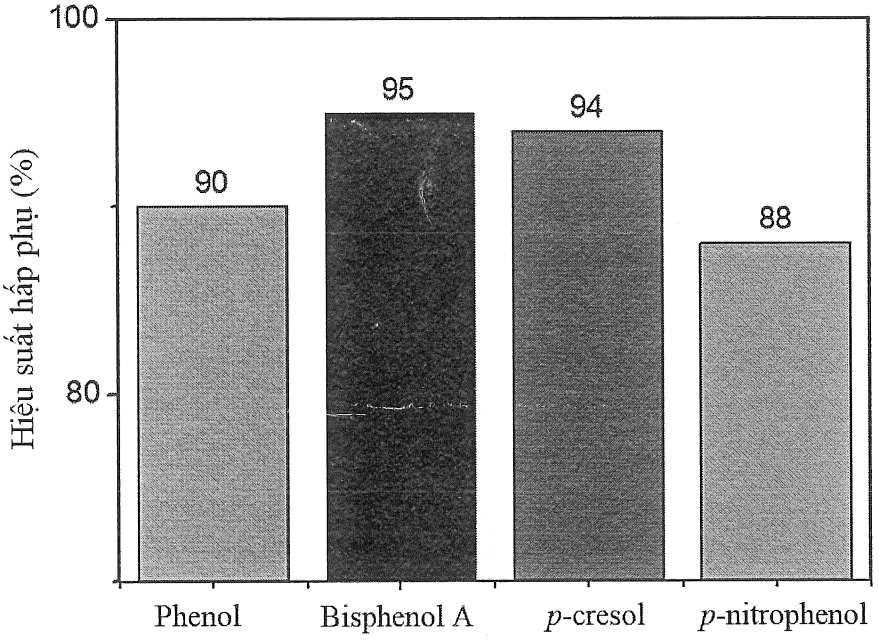

S-4800 10.0kV 8.0mm x2.00k SE(M)
20.0um


S-4800 10.0kV 8.0mm x3.00k SE(M)
10.0um

HÌNH 5


20
10
0
-10
-20
M (emu/g)
-10000
-5000
0
5000
10000
H_c (Oe)

HÌNH 6


100
80
Hiệu suất hấp phụ (%)
90
95
94
88
Phenol
Bisphenol A
p-cresol
p-nitrophenol