

Vietnam Journal of Catalysis and Adsorption Tạp chí xúc tác và hấp phụ Việt Nam

https://jca.edu.vn

Tổng hợp composite SnO₂/SrTiO₃ và hoạt tính quang xúc tác phân hủy methylene blue dưới ánh sáng mặt trời

Synthesis of SnO₂/SrTiO₃ composite and photocatalytic activity for methylene blue degradation under sunlight

Nguyễn Thị Việt Nga¹, Đỗ Hoàng Chỉnh¹, Trần Thị Thanh Tuyền¹, Nguyễn Hồng Nguyên¹, Nguyễn Thị Hồng Hạnh², Hoàng Nữ Thùy Liên³, Lê Thị Thanh Liễu³, Nguyễn Văn Kim³*

¹ Khoa Sư phạm Trường Đai học Quy Nhơn - 170 An Dương Vương, Quy Nhơn, Bình Định

² Trường THPT Nguyễn Khuyến - An Khê - Gia Lai

³ Khoa Khoa học Tự nhiên, Trường Đai học Quy Nhơn - 170 An Dương Vương, Quy Nhơn, Bình Định *Email: nguyenvankim@qnu.edu.vn

ARTICLE INFO

Received: 28/01/2024 Accepted: 30/3/2024 Published: 30/06/2024 *Keywords:* SnO₂/SrTiO₃, photocatalyst, methylene blue, sunlight

ABSTRACT

In this study, the SnO₂/SrTiO₃ composite has been fabricated by, firstly preparing SnO₂ and SrTiO₃ through, followed by coupling SnO₂ and SrTiO₃ by the hydrothermal method at 180 °C for 24 hours. The obtained materials were characterized by X-Ray diffraction (XRD), Fourier transformation infrared spectra (FT-IR), energy-dispersive X-ray spectroscopy (EDS), scanning electron microscopy (SEM). The photocatalytic activity of composite was assessed by degradation of methylene blue in water under sunlight. The composite exhibits a good photocatalytic activity compared to individual components (SnO₂ and SrTiO₃). An enhancement in photocatalytic activity of the composite with the presence of SnO₂ has been observed. 1,4-benzoquinone (BQ) và tert-butyl alcohol (TBA) were used as quenchers for trapping photogenerated superoxide radical anions ($^{\circ}O_2^{-}$) and hydroxyl radicals ($^{\circ}OH$), respectively. In the presence of the quenchers, the photocatalytic activity of the composite has decreased significantly.

1. Giới thiệu chung

Quang xúc tác đã được nghiên cứu chuyên sâu, nó đơn giản, độc tính thấp, ổn định hóa học và hiệu quả cao khi phân hủy phân tử hợp chất hữu cơ (methylene blue, rhodamine B ...) gây ô nhiễm môi trường nước [1]. Phương pháp này sử dụng nguồn năng lượng từ ánh sáng mặt trời và chất oxi hóa tổng hợp. Cùng với đó, phương pháp xúc tác quang không gây ô nhiễm thứ cấp, khả năng tái sử dụng cao và rẻ tiền là những ưu điểm rất mạnh so với các phương pháp khác. Gần đây, loại vật liệu perovskite dạng ATiO₃ (A = Ca, Ba, Sr) đã thu hút nhiều sự chú ý của các nhà khoa học bởi các ứng dụng tiềm năng của nó trong các lĩnh vực khác nhau. Trong đó, SrTiO₃ đã được tổng hợp và sử dụng cho quá trình phân hủy thuốc nhuộm trong dung dịch nước. Đây là những phát hiện hữu ích cho việc xử lý các hợp chất hữu cơ độc hại. Tuy nhiên, việc sử dụng SrTiO₃ riêng lẻ không hiệu quả do sự tái tổ hợp của cặp electron - lỗ trống quang sinh cao. Điều này đã thúc đẩy các nhà khoa học không ngừng tìm kiếm các phương pháp mới để khắc phục những nhược điểm đó. Trong công bố này, nhóm nghiên cứu tiến hành biến tính SrTiO₃ bởi SnO₂ nhằm tạo ra một loại vật liệu mới SnO₂/SrTiO₃, có hoạt tính xúc tác quang tốt, khắc phục những nhược điểm tái kết hợp electron–lỗ trống quang sinh của vật liệu SrTiO₃ đơn lẻ. Đây là một hướng đi mới đầy hứa hẹn, đang được các nhà khoa học vật liệu rất quan tâm.

2. Thực nghiệm và phương pháp nghiên cứu

Các hóa chất được sử dụng trong nghiên cứu này đều được mua từ hãng Sigma Aldrich (Đức) bao gồm Tin (IV) Chloride Pentahydrate (SnCl₄.5H₂O, \geq 99,8%), Titanium (IV) chloride (TiCl₄, \geq 99,9%), Strotium nitrate (Sr(NO₃)₂, \geq 99,0%), Sodium hydroxide (NaOH, \geq 98%), Methylene blue (C₁₆H₁₈N₃SCl, \geq 97%), *Ethanol* (C₂H₅OH, \geq 99,9%), Isopropyl Alcohol ((CH₃)₃CHOH, \geq 99,9%). Tất cả các hóa chất đều thuộc loại có độ tinh khiết cao.

Tổng hợp SnO₂

Thêm từ từ 100 mL dung dịch SnCl₄.5H₂O 0.1M vào 150 mL ethanol. Khuấy liên tục hỗn hợp trong 2 giờ, giữ nhiệt độ ở 70 °C. Sau đó để nguội ở nhiệt độ phòng. Tiếp tục thêm từng giọt dung dịch NaOH loãng đến khi đạt giá trị pH= 8 thu được gel. Lọc gel, đem sấy khô trong 24 giờ ở 80 °C để tạo xerogels. Cho xerogels vào cốc sứ có nắp đậy, bọc kín bằng giấy nhôm và nung ở 550 °C trong 2 giờ. Để nguội ở nhiệt độ phòng, nghiền mịn thu được sản phẩm có màu nâu trắng là SnO₂.

Tổng hợp SrTiO₃

Cho lượng Sr(NO₃)₂ hòa tan trong 50 mL nước cho đến khi đạt dung dịch bão hòa, ở nhiệt độ phòng (dung dịch A). Mặt khác, cho 5 mL isopropyl alcohol và 2 mL TiCl₄, hòa tan trong 40 mL ethanol khan tạo thành dung dịch trong suốt (dung dịch B). Cho từ từ dung dịch A vào dung dịch B, khuấy trong 2 giờ, tiếp tục nhỏ thêm 10 mL dung dịch NaOH 10M và khuấy tiếp 1 giờ nữa. Dung dịch thu được cho vào autoclave, đậy kín và thủy nhiệt ở 180 °C trong 24 giờ. Kết tủa thu được đem ly tâm, rửa sạch bằng nước cất cho đến pH = 7. Sau đó, đem sấy ở 80 °C trong 24 giờ. Chất bột thu được là SrTiO₃.

Tổng hợp SnO₂/SrTiO₃

Hỗn hợp SnO_2 và $SrTiO_3$ được trộn tỉ lệ khối lượng SnO_2 : $SrTiO_3 = 1$:3. Nghiền hỗn hợp đến độ mịn cần thiết. Hỗn hợp thu được đem phân tán trong 100 mL nước cất, khuấy liên tục bằng máy khuấy từ trong 4 giờ cho đồng nhất. Chuyển toàn bộ dung dịch vào bộ

thủy nhiệt autoclave, đậy kín và tiến hành thủy nhiệt ở 180 °C trong 24 giờ. Tiếp tục đem ly tâm lấy chất rắn, rửa nhiều lần bằng nước cất đến pH = 7 và rửa bằng ethanol, sau đó đem sấy khô ở 80 °C trong 24 giờ. Chất rắn thu được là $SnO_2/SrTiO_3$.

Nhiễu xạ tia X (XRD) của các mẫu được đo trên máy Brucker D8 Advance, ống phát tia X bằng Cu có bước sóng λ = 1,540 Å, điện áp 30kV, cường độ dòng ống phát 0,01A. Phổ hồng ngoại (IR) của mẫu vật liệu được ghi trên máy GX - PerkinElmer. Phổ tán xạ năng lượng tia X (EDS) và ảnh hiển vi điện tử quét (SEM) được đo trên máy Nova Nano SEM 450. Nồng độ dung dịch MB được xác định bằng phương pháp đo quang trên máy UV–vis Jenway 6800.

Nồng độ dung dịch MB được xác định dựa trên đường chuẩn được thiết lập bởi mối quan hệ giữa độ hấp thụ theo nồng độ dung dịch MB trên máy UV–vis Jenway 6800, tại bước sóng 663 nm. Hiệu suất phân hủy MB của các vật liệu được xác định theo công thức:

$$H = \frac{C_0 - C_t}{C_0} \times 100\%$$

trong đó, C₀ là nồng độ đầu của MB tại thời điểm đạt cân bằng hấp phụ và C_t là nồng độ MB tại từng thời điểm khảo sát.

Thí nghiệm xác định điểm điện tích 0 (pH_{PZC}) của vật liệu SnO₂/SrTiO₃ được tiến hành bằng phương pháp chuẩn độ đo pH của dung dịch chất điện ly NaCl 0,1 M ở 29 °C. Thể tích dung dịch NaCl 0,1 M là 50 mL, các dung dịch ban đầu được điều chỉnh pH_i về các giá trị 2,00; 4,02; 6,00; 8,03; 10,00 và 12,02. Quá trình hấp phụ của vật liệu được tiến hành trong 24 giờ. Dung dịch thu được đem lọc bỏ chất rắn và đo lại pH_f. Đồ thị Δ pH_i = pH_i - pH_f cắt trục hoành, giá trị điểm giao nhau theo hoành độ chính là pH_{PZC}.

3. Kết quả và thảo luận

Kết quả đặc trưng nhiễu xạ XRD của các mẫu SnO₂, SrTiO₃ và SnO₂/SrTiO₃ được bày ở Hình 1a. Từ giản đồ XRD cho thấy, đối với mẫu SnO₂, hiển thị đầy đủ các peak tại $2\theta = 26,65^{\circ}$; $34,20^{\circ}$; $38,25^{\circ}$; $39,02^{\circ}$; $47,53^{\circ}$; $55,95^{\circ}$; $58,20^{\circ}$; $61,85^{\circ}$; $64,98^{\circ}$ và $66,09^{\circ}$ tương ứng với các mặt (110), (101), (200), (111) (211), (220), (002), (310), (112) và (301) [2, 3] là nhiễu xạ đặc trưng của SnO₂ cấu trúc rutile kiểu tứ diện theo thẻ chuẩn JCPDS 41-1445 [4]. Đối với mẫu SrTiO₃, hiển thị đầy đủ các peak tại $2\theta = 32,42^{\circ}$; $39,99^{\circ}$; $46,85^{\circ}$; $57,19^{\circ}$; $68,12^{\circ}$; tương ứng với các mặt (110), (111), (200), (211) và (220) [5] là nhiễu xạ đặc trưng của SrTiO₃ cấu trúc lập phương. Đối với mẫu composite SnO₂/SrTiO₃ hiển thị đầy đủ các nhiễu https://doi.org/10.62239/jca.2024.029 xạ tinh thể của SnO_2 và $SrTiO_3$. Ngoài ra, trên mẫu này không thấy xuất hiện pha tinh thể của bất kì chất khác. Điều này chứng tỏ, composite $SnO_2/SrTiO_3$ chỉ gồm hai thành phần là SnO_2 và $SrTiO_3$.



Hình 1: (a) Giản đồ nhiễu xạ XRD và (b)-Phổ IR của các mẫu vật liệu SnO₂, SrTiO₃ và SnO₂/SrTiO₃

Kết quả từ phổ IR ở Hình 1b cho thấy, với mẫu SnO₂ có một dải hấp thụ rộng ở số sóng khoảng 3300 - 3500 cm⁻¹ và 1632 cm⁻¹ là dao động hóa trị của liên kết O-H của các phân tử H₂O hấp phụ trên bề mặt các hạt vật liệu [6, 7]. Vùng có số sóng thấp ở 635 cm⁻¹ và 553 cm⁻¹ là dao động đặc trưng của liên kết Sn-O-Sn phản đối xứng và đối xứng [8]. Đặc biệt, vùng có số sóng từ 1521–1261 cm⁻¹ còn xuất hiện các peak khá mạnh là dao động của liên kết Sn-OH.

Từ kết quả thực nghiệm, sự hình thành SnO_2 về bản chất có thể được đề xuất như sau:

Khi cho SnCl₄.5H₂O cho vào nước, Sn(OH)₄ thu được là do quá trình thủy phân nhanh các cation Sn⁴⁺:

 $Sn^{4+} + H_2O \rightarrow Sn(OH)_4 + H^+$ (1)

Khi thêm dung dịch NaOH loãng đến pH = 8:

 $Sn(OH)_4 + H^+ + OH^- \rightarrow Sn(OH)_4 + H_2O$ (2) Quá trình thủy nhiệt, dưới ảnh hưởng của nhiệt độ xảy ra quá trình:

 $Sn(OH)_4 \rightarrow SnO_2 + 2H_2O$ (3)

Tiếp tục nung kết tủa ở các nhiệt độ 550 °C, SnO₂ nano có cấu trúc được hình thành.

Đối với mẫu vật liệu SrTiO₃, có một dải hấp thụ rộng ở 3465 cm⁻¹ được quy cho dao động hóa trị của liên kết O-H của các phân tử H₂O hấp phụ trên bề mặt các hạt vật liệu và dao động của các liên kết hydrogen giữa chúng. Một peak mạnh, rộng trong khoảng từ 800 - 490 cm⁻¹ được xác nhận là dao động của các liên kết Ti-O, Sr-Ti-O trong phân tử SrTiO₃ [9]. Ngoài ra còn có một dải peak từ 1045–1421 cm⁻¹ là do lượng alcohol sử dụng trong quá trình tổng hợp vật liệu [10].

Từ kết quả thí nghiệm, sự hình thành perovskite SrTiO₃ tổng hợp theo pháp này chủ yếu trải qua các quá trình:

- Trong dung dịch B (dung môi C₂H₅OH):

 $4C_{3}H_{7}OH + TiCI_{4} \rightarrow (C_{3}H_{7}O)_{4}Ti + 4HCI$ (4)

 $(C_3H_7O)_4Ti + 4H_2O \rightarrow Ti(OH)_4 + 4C_3H_7OH$ (5)

- Khi cho từ từ dung dịch B vào dung dịch A, với sự có mặt của NaOH:

 $Ti(OH)_4 + Sr(NO_3)_2 + 2NaOH \rightarrow SrTiO_3\downarrow + 2NaNO_3 + 3H_2O$ (6)

Trên mẫu composite SnO₂/SrTiO₃ hiển thị đầy đủ các dao động đặc trưng của các liên kết trong SnO₂ và SrTiO₃. Kết quả này hoàn toàn phù hợp với kết quả thu được từ nhiễu xạ XRD. Như vậy, kết quả đặc trưng XRD và IR đã chỉ ra sự hình thành composite SnO₂/SrTiO₃.

Thành phần nguyên tố của mẫu vật liệu SnO₂/SrTiO₃ được đặc trưng bởi phổ tán xạ năng lượng tia X (EDS), kết quả được trình bày ở Hình 2a.

Trên phổ tán xạ năng lượng tia X của composite SnO₂/SrTiO₃, về mặt định tính chỉ xuất hiện peak của các nguyên tố thành phần là Sn, O, Sr, Ti tương ứng của composite SnO₂/SrTiO₃ mà không thấy xuất hiện peak của bất kì nguyên tố nào khác. Kết quả này rất phù hợp với phương pháp đặc trưng XRD, IR. Điều này cho thấy, mẫu SnO₂/SrTiO₃ là khá tinh khiết. Đây là phương pháp xác định chính xác thành phần định tính các nguyên tố có trong vật liệu. Như vậy, có thể khẳng định rằng, mẫu chỉ có các nguyên tố O, Ti, Sn và Sr là thành phần cấu thành composite SnO₂/SrTiO₃.

https://doi.org/10.62239/jca.2024.029 45



Hình 2: (a, b)-Phổ EDS của các mẫu vật liệu SnO₂/SrTiO₃; (c-f)-EDS-mapping của vật liệu SnO₂/SrTiO₃

Ngoài ra, sự phân bố của các nguyên tố trong mẫu $SnO_2/SrTiO_3$ cũng được kiểm tra bằng kỹ thuật EDS-mapping (Hình 2c-2f). Kết quả chỉ ra sự phân bố của các nguyên tố O, Ti, Sn và Sr khá đồng đều trong mẫu vật $SnO_2/SrTiO_3$.

Năng lượng vùng cấm của các mẫu vật liệu SnO₂, SrTiO₃ và composite SnO₂/SrTiO₃ được đặc trưng bằng phương pháp UV-vis DRS, kết quả được trình bày trong Hình 3. Từ Hình 3 cho thấy, composite có bờ hấp thụ ánh sáng nằm hoàn toàn trong vùng tử ngoại (λ < 390 nm). Năng lượng vùng cấm của vật liệu cũng được xác định bằng hàm Kubelka-Munk, kết quả E_g = 3,24 eV. So sánh với giá trị năng lượng vùng cấm của SnO₂ và SrTiO₃ riêng lẻ, giá trị năng lượng vùng cấm của composite có chiều hướng giảm từ 3,73 (của SnO₂) về 3,24 eV. Điều này chứng tỏ, sự có mặt của SrTiO₃ trong composite SnO₂/SrTiO₃ đã làm thay đổi khả năng hấp thụ quang của vật liệu này.



Hình 3: Phổ UV-vis DRS và năng lượng vùng cấm của mẫu vật liệu SnO₂, SrTiO₃ và composite SnO₂/SrTiO₃

Để khảo sát hoạt tính xúc tác quang, nhóm nghiên cứu còn tổng hợp composite SnO₂/SrTiO₃ theo tỉ lệ khối lượng giữa SnO₂ và SrTiO₃ là 1:1 và 1:5 bằng phương pháp thủy nhiệt ở cùng nhiệt độ 180 °C nhằm so sánh với mẫu composite SnO₂/SrTiO₃ theo tỉ lệ 1:3.



Hình 4: (a)-Sự phân hủy MB bởi vật liệu SnO₂, SrTiO₃ và các composite SnO₂/SrTiO₃ dưới sự chiếu xạ ánh sáng mặt trời, lượng xúc tác 0,02 gam, MB 10 mg/L (ở điều kiện cân bằng hấp phụ); (b)-Điểm điện tích 0 (pH_{PZC}) của vật liệu SnO₂/SrTiO₃; (c)-Hiệu suất quang phân hủy MB bởi vật liệu SnO₂/SrTiO₃ ở pH khác nhau

Hoạt tính xúc tác quang của các vật liệu được khảo sát bằng phản ứng phân hủy MB (10 mg/L) dưới sự chiếu xạ của ánh sáng mặt trời (sau khi tiến hành khảo sát yếu tố cân bằng hấp phụ trong bóng tối với thời gian 60 phút). Kết quả được trình bày ở Hình 4a. Mẫu composite SnO₂/SrTiO₃-1:3 có hoạt tính xúc tác cao nhất, sau 210 phút chiếu sáng, sự phân hủy MB bởi mẫu này đạt 97,02%, giá trị này cao hơn nhiều so với hai mẫu composite SnO₂/SrTiO₃-1:1 (84,91%) và mẫu composite SnO₂/SrTiO₃-1:5 (72,65%) và cao hơn rất nhiều so với vật liệu đơn SnO₂ (48,54%) và SrTiO₃ (31,24%). Kết quả này cho thấy rằng, các mẫu composite có hoat tính quang xúc tác vượt trôi so với vật liệu tiền chất SnO₂ và SrTiO₃ riêng lẻ. Điều này được giải thích là do tác dụng hiệp trợ của SnO2 và SrTiO₃ trong vật liệu composite SnO₂/SrTiO₃. Sự hiện diện của SrTiO₃ trong composite SnO₂/SrTiO₃ đã khắc phục được nhược điểm tái kết hợp electron-lỗ trống quang sinh thường xảy ra trong vật liệu bán dẫn riêng lẻ, vì vậy làm tăng hoạt tính xúc tác quang của vật liệu này, đặc biệt là đối với composite SnO₂/SrTiO₃-1:3. Vì vậy mẫu này được chọn để khảo sát các yếu tố tiếp theo.

Ånh hưởng của pH đến hoạt tính quang xúc tác phân hủy MB bởi composite $SnO_2/SrTiO_3$ có thể được hiểu theo tương tác điện tích giữa các hạt mang điện với các chất màu hữu cơ, do sự hình thành gốc 'OH và ' O_2^- của các quá trình quang hóa xảy ra trên bề mặt vật liệu. Để khảo sát sự ảnh hưởng của pH môi trường đến hoạt tính quang xúc tác của vật liệu, chúng tôi tiến hành thí nghiệm trong những điều kiện pH khác nhau. Điểm điện tích 0 (pH_{PZC}) của vật liệu $SnO_2/SrTiO_3$ đã được xác định, kết quả được trình bày ở Hình 4b và Bảng 1. Từ Hình 4b và kết quả từ Bảng 1 cho thấy, pH_{PZC} của vật liệu khảo sát là 7,5. Nghĩa là tại pH < pH_{PZC}, bề mặt vật liệu tích điện dương. Ngược lại, tại pH > pH_{PZC}, bề mặt vật liệu tích điện âm.

Bảng 1:	Sự thay	đổi giá trị	ΔpH_i theo	рНi
---------	---------	-------------	--------------------	-----

рН _і	рН _f	∆pH= pH _i - pH _f
2,00	2,16	-0,16
4,02	5,91	-1,89
6,00	7,67	-1,67
8,03	7,41	0,62
10,00	8,39	1,61
12.02	11,67	0,35

Sự ảnh hưởng của pH đến hoạt tính quang xúc tác của vật liệu $SnO_2/SrTiO_3$ ở các giá trị pH khác nhau được trình bày ở Hình 4c. Kết quả cho thấy, composite $SnO_2/SrTiO_3$ thể hiện hoạt tính xúc tác quang phân hủy

MB mạnh trong các môi trường pH khác nhau. Đặc biệt, mạnh hơn trong môi trường base.

Ánh hưởng của pH đến quá trình phân hủy MB có thể giải thích dựa vào ảnh hưởng của pH môi trường đến trạng thái tồn tại của phân tử MB cũng như điện tích bề mặt của vật liệu xúc tác. Khi pH của dung dịch lớn hơn pH_{pzc} (7,5), khả năng phân hủy MB của vật liệu bắt đầu tăng nhanh và đạt hiệu suất cao nhất tại pH = 12 (98,45%). Điều này là do, ở môi trường pH cao, sự hiện diện của nhiều ion hydroxyl có sẵn trong dung dịch cao hơn các ion này bị hấp phụ trên bề mặt chất xúc tác, tạo điều kiện thuận lợi hơn cho quá trình tương tác giữa lỗ trống với các ion hydroxyl bị hấp phụ, ưu tiên hình thành các gốc •OH [11]. Ngoài ra, MB là loại thuốc nhuộm cation, khi pH > 7,5, các phân tử MB dễ dàng bị hấp phụ trên bề mặt vật liệu SnO₂/SrTiO₃ do lực hút giữa các phần mang điện tích trái dấu, làm tăng số phân tử MB tiếp xúc với các tâm xúc tác dẫn đến hiệu quả quang phân hủy MB cao trong môi trường này. Như vậy vật liệu có khả năng hoạt động quang trong vùng pH khá rộng, thể hiện tính vượt trội trong cả môi trường acid lẫn base.

Chất dập tắt các tiểu phân h⁺, e⁻, •OH và •O₂⁻ cũng được sử dụng để chứng minh cơ chế phản ứng quang xúc tác. Trong thí nghiệm này, nhóm nghiên cứu dùng tert-butyl alcohol (TBA) làm chất dập tắt gốc •OH, 1,4benzoquinone (BQ) dập tắt anion gốc •O₂⁻, ammonium oxalate (AO) dập tắt lỗ trống quang sinh h⁺ và dimethyl sulfoxide (DMSO) dập tắt electron quang sinh e⁻. Các dung dịch chất dập tắt với nồng độ đầu 10 mmol/L, thể tích 2 mL được cho vào ngay từ thời điểm bắt đầu chiếu sáng. Kết quả của thí nghiệm này được trình bày ở Hình 5a.

Từ Hình 5a cho thấy, sự có mặt của TBA và BQ đã làm cho hiệu suất phân hủy MB của vật liệu $SnO_2/SrTiO_3$ giảm hẳn, chứng tỏ cá gốc "OH và " O_2 " là tác nhân chính quyết định hiệu suất cao cũng như tốc độ phân huỷ MB của toàn bộ quá trình. Trên cơ sở một số tài liệu đã công bố [12], có thể để xuất các quá trình xảy ra như sau:

$$\begin{split} &\text{SnO}_2/\text{SrTiO}_3 + h\nu \to \text{SnO}_2/\text{SrTiO}_3(\text{e}^-_{\text{CB}} + h^+_{\text{VB}}) \\ &\text{SnO}_2/\text{SrTiO}_3 (h^+_{\text{VB}}) + H_2\text{O} \to \text{SnO}_2/\text{SrTiO}_3 + H^+ + \text{OH} \\ &\text{SnO}_2/\text{SrTiO}_3 (\text{e}^-_{\text{CB}}) + O_2 \to \text{SnO}_2/\text{SrTiO}_3 + \text{O}_2^- \\ &\text{MB} + \text{O}_2^-, \text{OH} \to \text{San phẩm phân hủy của MB} \end{split}$$

Sự duy trì hoạt tính xúc tác của vật liệu SnO₂/SrTiO₃ cũng được nhóm nghiên cứu khảo sát. Tiến hành thu hồi xúc tác SnO₂/SrTiO₃ sau mỗi thí nghiệm và rửa nhiều lần bằng nước cất, ly tâm, sấy khô ở nhiệt độ 80 °C trong 12 giờ. Chất này sau đó tiếp tục được sử dụng làm xúc tác cho các lần thí nghiệm tiếp theo. Kết quả phân hủy MB của mẫu vật liệu SnO₂/SrTiO₃ sau 3 chu https://doi.org/10.62239/jca.2024.029 kì tái sử dụng được trình bày ở Hình 5b. Từ hình này cho thấy, vật liệu composite SnO₂/SrTiO₃ thể hiện hoạt tính xúc tác ổn định sau 3 chu kì tái sử dụng. Cụ thể, hiệu suất phân hủy MB ban đầu là 97,02%, sau 3 lần thu hồi hiệu suất đạt 92.05% và 87,99% tương ứng với chu kì 1, 2 và 3. Kết quả này chỉ ra rằng, vật liệu composite $SnO_2/SrTiO_3$ có thể tái sử dụng nhiều lần cho quá trình phân hủy MB. Điều này mở ra triển vọng sử dụng vật liệu composite $SnO_2/SrTiO_3$ ứng dụng vào thực tiễn xử lý nước thải bị ô nhiễm bởi các hợp chất hữu cơ khó phân hủy.





4. Kết luận

Composite SnO₂/SrTiO₃ đã được tổng hợp thành công bằng các phương pháp thủy nhiệt. Kết quả đặc trưng hiện đại như XRD, IR, SEM, EDS-mapping đã xác nhận điều này. Năng lượng vùng cấm của các vật liệu SnO₂, SrTiO₃ và composite SnO₂/SrTiO₃ cũng được xác định, tương ứng bằng 3,73 eV; 3,2 eV và 3,24 eV. Kết quả này được xác nhân bằng phương pháp UV-vis DRS. Đã khảo sát hoạt tính quang xúc tác của các vật liệu tổng hợp bằng phản ứng phân hủy MB dưới sự chiếu xạ của ánh sáng mặt trời. Composite SnO₂/SrTiO₃ đều có hoạt tính xúc tác cao hơn so với các mẫu thành phần SrTiO₃ và SnO₂ ở cùng điều kiện khảo sát. Trong đó, mẫu composite tối ưu SnO₂/SrTiO₃ tổng hợp ở nhiệt độ 180 °C có hiệu suất phân hủy MB cao nhất, đạt 97,02% sau 210 phút chiếu sáng và có tính ổn định cao. Các thí nghiệm ảnh hưởng của pH, tỷ lệ SnO₂ để biến tính SrTiO3 và độ bền, khả năng tái sử dụng của composite SnO₂/SrTiO₃ được khảo sát cho thấy tính ưu việt của composite này.

Tài liệu tham khảo

- 1. T. Robinson, G. McMullan, R. Marchant and P. Nigam, Bioresource Technology, 77 (2001) 247–255. https://doi.org/10.1016/S0960-8524(00)00080-8
- 2. J. Wang, H. Fan and H. Yu, Journal of Nanomaterials, 2015

(2015) 1-8. https://doi.org/10.1155/2015/395483

- W. Chen, Q. Zhou, F. Wan, and T. Gao, Journal of Nanomaterials, 2012 (2012) 1–9. https://doi.org/10.1155/2012/612420
- S.P. Kim, M.Y. Choi, H.C. Choi, Materials Research Bulletin, 74 (2016) 85–89. https://doi.org/10.1016/j.materresbull. 2015.10.024
- D. Hou, X. Hu, W. Ho, P. Hub and Y. Huang, Journal of Materials Chemistry A, 3 (2015) 3935–3943. https://doi.org/10.1039/C4TA05485G
- N. Selvi, S. Sankar, K. Dinakaran, Superlattices and Microstructures, 76 (2014) 277–287. https://doi.org/10.1016/j.spmi.2014.10.015
- W. Wan, Y. Li, X. Ren, Y. Zhao, F. Gao and H. Zhao, Nanomaterials, 8 (2018) 112. https://doi.org/10.3390/nano8020112
- S. Zhan, D. Li, S. Liang, X. Chen and X. Li, Sensors, 13 (2013) 4378–4389. https://doi.org/10.3390/s130404378
- 9. P.S. Konstas, I. Konstantinou, D. Petrakis and T. Albanis, Catalysts, 8 (2018) 554. https://doi.org/10.3390/catal8110554
- 10. A.M. Youssef, H.K. Farag, A.A. El-Kheshen, F. F. Hammad, Silicon, 10 (2018) 1225–1230. https://doi.org/10.1007/s12633-017-9596-z
- C.C. Chen, C.S. Lu, Y.C. Chung, J.L. Jan, Journal of Hazardous Materials, 141 (2007) 520-528. https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2006.07.011
- Y.P. Ong, L.N. Ho, S.A. Ong, J. Banjuraizah, A.H. Ibrahim, S.L. Lee, N. Nordin, Chemosphere, 219 (2019) 277-285. https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2018.12.004