



Xúc tác ZIF-14 trong phản ứng ngưng tụ giữa benzaldehyde và ethyl cyanoacetate trong ethanol

ZIF-14 catalyst in the condensation reaction between benzaldehyde with ethyl cyanoacetate in ethanol

Tạ Ngọc Thiện Huy¹, Danh Mô¹, Nguyễn Tống Ngọc Nhung¹, Nguyễn Thị Kim Phước¹, Lê Văn Dương², Hà Thị Lan Anh³, Lê Thị Như Quỳnh⁴, Nguyễn Việt Quang⁵, Nhữ Thị Thảo^{2,*}

¹ Trường Đại học Kiên Giang

² Trường Hóa và Khoa học sự sống, Đại học Bách khoa Hà Nội

³ Trường Cao đẳng Công nghiệp Thực phẩm, Bộ Công thương

⁴ Trường Đại học Phạm Văn Đồng

⁵ Viện Kỹ thuật Xăng dầu Quân đội

* Email: don.tangoc@hust.edu.vn

ARTICLE INFO

Received: 11/05/2026

Accepted: 15/06/2026

Published: 30/06/2026

Keywords:

Catalyst; Knoevenagel;

ZIF-14; zinc acetate dihydrate;

ethyl α -cyanocinnamate.

ABSTRACT

This paper presents the results of a study on the catalytic activity of ZIF-14 synthesized from zinc acetate dihydrate in the condensation reaction between benzaldehyde (BA) with ethyl cyanoacetate (ECA). From the study of the effects of the BA : ECA molar ratio, catalyst content, temperature, and reaction time in ethanol solvent, the optimal reaction conditions for achieving BA conversion and ethyl α -cyanocinnamate (ECC) selectivity of 89.32 % and 92.16 %, respectively, were found to be a BA : ECA molar ratio of 1 : 1.5; 1.5 % catalyst (by weight of BA); a temperature of 50 °C; and a reaction time of 3 hours. The paper also showed that the crystalline structure of the catalyst was partially broken after each reaction. The catalyst could be reused up to 5 times, achieving BA conversion and ECC selectivity of 83.18 % and 90.86 %, respectively.

Giới thiệu

ZIF-14 là một trong số vật liệu mới có cấu trúc khung hữu cơ – kim loại (MOFs), được tìm thấy lần đầu tiên vào năm 2006 bởi X.C. Huang và cộng sự [1] với tên gọi ban đầu là MAF-5. Năm 2008, R. Banerjee và cộng sự [2] cũng đã xây dựng được cấu trúc của ZIF-14 tương tự như cấu trúc của MAF-5. Các báo cáo [1,2] đều chứng minh ZIF-14 có cấu trúc tương tự zeolite kiểu anacime (ANA) với các hốc mao quản thon dài, hình elip và độ xốp lớn, hệ mao quản của ZIF-14 liên kết qua vòng 6

cạnh có kích thước mao quản và hốc lớn tương ứng bằng 2,2 và 2,2 Å. Tuy nhiên, đến năm 2012, cấu trúc ZIF-14 đã được A.X. Zhu và cộng sự [3] chứng minh rằng, ngoài cấu trúc liên kết qua vòng 6 cạnh với kích thước mao quản và hốc lớn, ZIF-14 còn liên kết qua vòng 8 cạnh với kích thước mao quản và hốc lớn tương ứng bằng 4,0 x 5,8 Å và 7,0 x 10,0 Å. Cấu trúc của ZIF-14 được xây dựng từ các tứ diện Zn^{2+} thông qua cầu nối là các linker 2-ethyl imidazole (HeIM), tạo ra góc Zn–eIM–Zn tương tự góc Si–O–Si trong zeolite [4-6] và xấp xỉ 145°[2]. Do độ dài cầu nối khá lớn của các vòng imidazolate so với nguyên tử oxy nên kích thước mao

quản của ZIF-14 lớn hơn so với các vật liệu zeolite có cùng kiểu cấu trúc [7-9]. Điều này mở ra một tiềm năng ứng dụng lớn của ZIF-14 trong lĩnh vực hấp phụ và xúc tác [10].

ZIF-14 được tổng hợp chủ yếu bằng phương pháp nhiệt dung môi, nguồn kim loại cho tổng hợp ZIF-14 chủ yếu được sử dụng là $Zn(OH)_2$, ZnO , $Zn(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$, cá biệt sử dụng $Zn(CH_3COO)_2 \cdot 2H_2O$ [10]. Gần đây, ZIF-14 đã được tổng hợp thành công từ $Zn(CH_3COO)_2 \cdot 2H_2O$ [11] và từ $ZnCl_2$ [12].

Những năm gần đây, các nhà khoa học đã nghiên cứu về ZIF-14 và bước đầu sử dụng chúng trong lĩnh vực hấp phụ và xúc tác [13-15]. Trong lĩnh vực xúc tác, ZIF-14 đã được sử dụng cho phản ứng tổng hợp 1-methoxy-2-propanol từ propylene oxide và methanol [12,14], phản ứng tổng hợp propylene carbonate từ CO_2 và propylene oxide [16,17], hay phản ứng giữa dihydroxyacetone (DHA) và formaldehyde [18] (xem bảng 1). Rõ ràng, ZIF-14 chỉ mới rất ít được sử dụng làm xúc tác và chưa được sử dụng làm xúc tác cho phản ứng ngưng tụ giữa benzaldehyde và ethyl cyanoacetate.

Bảng 1: Xúc tác ZIF-14 trong một số phản ứng đã công bố

Phản ứng	Thành phần phản ứng			Nhiệt độ phản ứng, °C	Thời gian phản ứng, giờ	Độ chuyển hóa chất phản ứng, %	Độ chọn lọc sản phẩm chính, %	Tài liệu tham khảo
	Các chất phản ứng, mol/mol	BET của xúc tác, m ² /g	Xúc tác, %KL					
CH ₃ OH + PO	CH ₃ OH: PO = 8: 1	464	1,85	110	5	PO: 90,3	1-MP: 92,6	[14]
CH ₃ OH + PO	CH ₃ OH: PO = 8: 1	464	1,85	110	7	PO: 100	1-MP: 92,2	[14]
CH ₃ OH + PO	CH ₃ OH: PO = 8: 1	830		110	6	PO: 100	1-MP: 98,6	[12]
CO ₂ + PO	24 mmol PO; 0,8 MPa CO ₂	464	0,05 g	Nhiệt độ phòng	5	PO: 8,3	PC: > 99	[16]
CO ₂ + PO	24 mmol PO; 0,8 MPa CO ₂	-	-	Nhiệt độ phòng	5	PO: < 1	PC: 0	[16]
CO ₂ + PO	24mmol PO; 0,8 Mpa CO ₂	464	0,85 mmol PO	80	5	PO: 8,3	PC: 99	[17]
DHA + formaldehyde	0,045 g DHA; 100 ml formaldehyde	-	0,03 g	80	0,5	DHA: 50	Erythrose: 38	[18]

Phản ứng ngưng tụ giữa benzaldehyde (BA) và ethyl cyanoacetate (ECA) là một phản ứng Knoevenagel điển hình, sử dụng các chất xúc tác đồng thể như amine, muối amonium, chất lỏng ion, acid amine, acid Lewis và các chất xúc tác cơ kim [19-21]. Phản ứng trong hệ đồng thể thường thực hiện ở nhiệt độ cao, khó khăn khi thu hồi xúc tác, sử dụng lượng lớn dung môi gây ô nhiễm môi trường [22].

Phản ứng ngưng tụ có thể sử dụng chất xúc tác lưỡng chức năng acid-base [23] để thúc đẩy phản ứng diễn ra nhanh hơn, ít bước hơn và thu được sản phẩm với hiệu suất cao hơn [24]. Trong số các xúc tác dị thể lưỡng chức năng acid-base thì vật liệu ZIFs rất được chú ý vì trong cấu trúc của chúng đã chứa sẵn 2 loại tâm acid và tâm base. Đã có một số công trình báo cáo kết quả nghiên cứu hoạt tính xúc tác trong phản ứng ngưng tụ giữa BA và ECA [25-30] (xem bảng 2). Kết quả, đã có 4 công trình nghiên cứu sử dụng ZIF-8 làm chất xúc tác trong phản ứng ngưng tụ giữa BA và ECA [27-30] cho kết quả tốt. Trong đó, khi sử dụng dung môi ethanol, phản ứng ngưng tụ giữa BA và ECA cho hiệu suất ethyl α -cyanocinnamate (ECC) bằng 82 % trong 0,5 giờ phản

ứng ở 80 °C [28], bằng 93,1 % trong 4 giờ phản ứng ở 40 °C [29]. Như vậy, phản ứng ngưng tụ giữa BA và ECA được thực hiện trên các xúc tác mao quản còn hạn chế, đối với họ vật liệu ZIFs mới chỉ sử dụng ZIF-8. Việc khảo sát phản ứng này trên ZIF-14 trở nên cần thiết và có ý nghĩa thực tiễn.

Tiếp theo bài báo [11], bài báo này trình bày kết quả nghiên cứu hoạt tính xúc tác của ZIF-14 được tổng hợp từ zinc acetate dihydrate trong phản ứng ngưng tụ giữa BA và ECA. Các kết quả nghiên cứu độ bền và khả năng tái sử dụng của xúc tác cũng được thảo luận.

Thực nghiệm

Xúc tác và hóa chất

Xúc tác ZIF-14 được tổng hợp theo [11] với các đặc trưng: Bề mặt riêng (BET) bằng 513 m²/g, thể tích vi mao quản bằng 0,22 cm³/g, kích thước hạt khoảng 400 nm (theo SEM). Hóa chất gồm BA, ECA, ethanol của hãng ADAMAS, Trung Quốc, độ tinh khiết 99 % và nước cất hai lần.

Thử hoạt tính xúc tác

Phản ứng ngưng tụ Knoevenagel giữa BA và ECA được thực hiện trong bình phản ứng kín, có khuấy và gia nhiệt. Tiến hành hòa tan một lượng ECA xác định trong một lượng ethanol xác định thu được dung dịch A. Tiếp đến, rót một lượng BA xác định vào dung dịch A, sau đó hỗn hợp này được rót vào bình phản ứng chứa sẵn chất xúc tác ZIF-14 được dung dịch B. Dung dịch B được khuấy trộn ở tốc độ 500 vòng/phút. Tỷ lệ mol BA : ECA thay đổi bằng 1 : 0,5; 1 : 1,0; 1 : 1,5 và 1 : 2,0. Chất xúc tác được sử dụng với khối lượng thay đổi bằng 0; 1,0; 1,5;

2,0 và 2,5 % (theo khối lượng BA). Nhiệt độ phản ứng thay đổi bằng 30, 40, 50 và 60 °C. Thời gian phản ứng thay đổi bằng 1, 2, 3 và 4 giờ. Kết thúc phản ứng, chất rắn được tách riêng, chất lỏng được phân tích bằng sắc ký khí – khối phổ (GC-MS).

Xúc tác được tổng hợp trong điều kiện thích hợp, được tái sử dụng liên tục 5 lần. Sau mỗi lần phản ứng, xúc tác được lọc, rửa và sấy khô ở 100 °C trong 3 giờ, phân tích nhiễu xạ tia X (XRD). Xúc tác được phân tích XRD trên máy Siemens D8 Advance–Bruker (Đức), phân tích sản phẩm phản ứng trên máy sắc ký khí Agilent 7890B kết hợp khối phổ chọn lọc Agilent 5973N (Mỹ).

Bảng 2: Một số vật liệu mao quản được sử dụng làm chất xúc tác trong phản ứng ngưng tụ giữa BA và ECA

Thành phần phản ứng	Dung môi	Đặc trưng xúc tác sử dụng				Nhiệt độ phản ứng, °C	Thời gian phản ứng, giờ	Độ chuyển hóa BA, %	Độ chọn lọc ECC, %	Hiệu suất ECC, %	Tài liệu tham khảo
		Tên xúc tác	BET, m ² /g	V, cm ³ /g	SEM, nm						
BA: ECA=1: 1; xúc tác 0,02 g	-	Zeolite Y đã trao đổi ion		0,190	-	100	3	71	100	71	[25]
BA: ECA = 8: 7; IRMOF bằng 0,06 mmol	DMSO	IRMOF	3.683	1,740	-	40	2	99	100	99	[26]
BA: ECA = 9,8: 9,4; ZIF-8 bằng 0,015 g	DMSO	ZIF-8	-	-	-	60	1		>99	96	[27]
BA: ECA = 3,5: 4; ZIF-8 bằng 0,025 g	H ₂ O	ZIF-8	1.279	0,604	100	80	0,5	-	-	82	[28]
	THF									65	
	Hexane									7	
	Ethanol									82	
	DMF									97	
	Ethyl acetate									49	
	Toluene									32	
DMSO	92										
BA: ECA =1: 1; ZIF-8 bằng 3 % BA	Ethanol	ZIF-8	1.570	0,709	32	40	4	93,6	99,4	93,1	[29]
BA: ECA = 1: 2; ZIF-8 bằng 3 % BA	H ₂ O	ZIF-8	1.570	0,709	32	30	5	100	90,3	90,3	[30]

Kết quả thử hoạt tính xúc tác

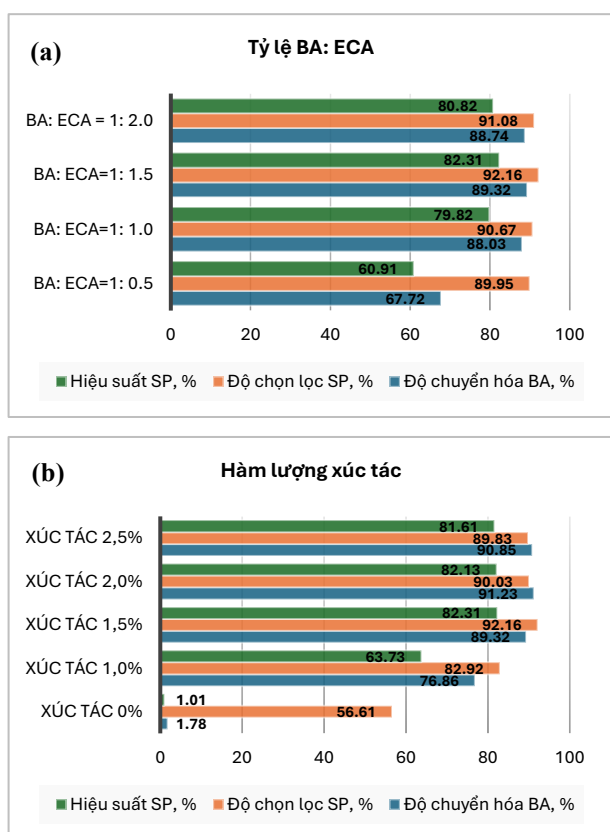
Hình 1 trình bày kết quả khảo sát ảnh hưởng của tỷ lệ mol BA : ECA (hình 1a) và ảnh hưởng của hàm lượng xúc tác ZIF-14 (theo khối lượng BA) (hình 1b). Khi khảo sát tỷ lệ mol BA : ECA thay đổi, các yếu tố khác được giữ nguyên (hàm lượng xúc tác 1,5 %; nhiệt độ phản ứng 50 °C; thời gian phản ứng 3 giờ). Khi khảo sát hàm lượng xúc tác thay đổi, các yếu tố khác được giữ nguyên (BA : ECA = 1,5; 50 °C; 3 giờ).

Từ hình 1a, khi tỷ lệ mol BA : ECA = 1 : 0,5 phản ứng cho độ chuyển hóa BA và độ chọn lọc ECC tương ứng bằng

67,72 và 89,95 %. Trường hợp này phản ứng lấy dư BA. Khi tỷ lệ mol BA : ECA = 1 : 1,0 độ chuyển hóa BA và độ chọn lọc ECC tăng dần tương ứng bằng 88,03 và 90,67 %; sau đó đạt cực đại tương ứng bằng 89,32 và 92,16 % khi tỷ lệ mol BA : ECA = 1 : 1,5. Tiếp tục lấy dư ECA bằng cách chọn tỷ lệ mol BA : ECA = 1 : 2,0 thì độ chuyển hóa BA và độ chọn lọc ECC giảm nhẹ tương ứng bằng 88,74 và 91,08 %. Như vậy, khi tỷ lệ mol BA : ECA = 1 : 1,5 sẽ cho độ chuyển hóa BA và độ chọn lọc ECC cao nhất.

Trên hình 1b, phản ứng hầu như không xảy ra khi không có mặt xúc tác, độ chuyển hóa BA chỉ đạt 1,78 %. Nhưng khi có mặt xúc tác với hàm lượng tương ứng bằng 1,0;

1,5; 2,0 và 2,5 % thì độ chuyển hóa BA và độ chọn lọc ECC đã tăng mạnh, đạt cực đại tương ứng bằng 89,32 và 92,16 % khi hàm lượng xúc tác bằng 1,5 %. Có thể thấy, từ 0 đến 1,0 và 1,5 % hàm lượng xúc tác thì độ chuyển hóa BA và độ chọn lọc ECC tăng rất nhanh. Điều này chứng tỏ phản ứng diễn ra cần có mặt xúc tác và vật liệu ZIF-14 với kích thước mao quản được cho là phù hợp với các chất tham gia phản ứng, đồng thời kích thước này đủ rộng để sản phẩm chính ECC có kích thước lớn hình thành và khuếch tán ra khỏi các tâm hoạt tính của xúc tác. Khi hàm lượng xúc tác tăng lên 2,0 và 2,5 % thì độ chuyển hóa BA và độ chọn lọc ECC đều giảm chậm. Như vậy, hàm lượng xúc tác bằng 1,5 % cho kết quả tốt nhất. Điều này xảy ra có lẽ là tại hàm lượng này, số lượng tâm hoạt động vừa đủ để quá trình ngưng tụ BA và ECA diễn ra hiệu quả nhất.

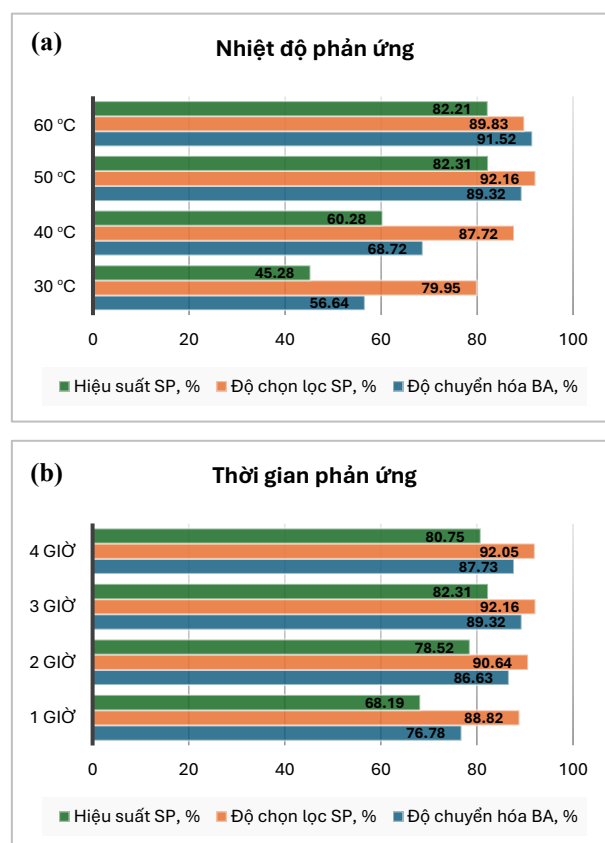


Hình 1: Ảnh hưởng của tỷ lệ mol BA: ECA (a) và hàm lượng xúc tác (theo khối lượng BA) (b)

Hình 2 trình bày kết quả khảo sát ảnh hưởng của nhiệt độ (hình 2a) và thời gian phản ứng (hình 2b). Khi khảo sát ảnh hưởng của nhiệt độ, các yếu tố khác được giữ nguyên (BA : ECA = 1 : 1,5; xúc tác 1,5 %; 3 giờ). Khi khảo sát ảnh hưởng của thời gian, các yếu tố khác được giữ nguyên (BA : ECA = 1,5; xúc tác 1,5 %; 50 °C).

Trên hình 2a, dễ dàng quan sát thấy nhiệt độ có ảnh hưởng mạnh đến tiến trình phản ứng. Ở nhiệt độ thấp, 30 °C, độ chuyển hóa BA và độ chọn lọc ECC tương ứng

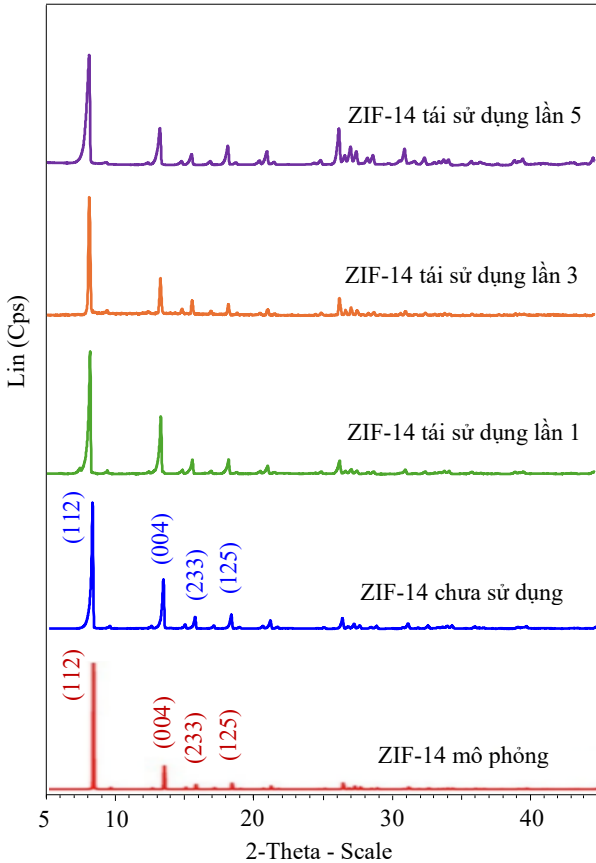
chỉ đạt 56,64 và 45,28 %; tăng lên 68,72 và 87,72 % khi phản ứng ở 40 °C. Độ chuyển hóa BA và độ chọn lọc ECC tiếp tục tăng, đồng thời độ chọn lọc ECC đạt cực đại bằng 92,16 % tại 50 °C. Khi nhiệt độ nâng lên 60 °C, độ chuyển hóa BA đạt cực đại bằng 91,52 % nhưng độ chọn lọc ECC lại giảm còn 89,83 %. Hiệu suất ECC thu được tại 50 °C đạt 82,31 %, còn tại 60 °C đạt 82,21 %. Do đó, để tiết kiệm năng lượng và ưu tiên cho độ chọn lọc sản phẩm, chúng tôi cho rằng nhiệt độ phản ứng bằng 50 °C là thích hợp. Từ kết quả nghiên cứu ảnh hưởng của nhiệt độ có thể cho rằng, khi nhiệt độ tăng dần, tốc độ phân ly, tốc độ khuếch tán giữa các ion trong dung dịch diễn ra nhanh hơn, tiếp cận nhanh hơn đến các tâm hoạt động của xúc tác để thực hiện quá trình ngưng tụ. Nhưng nếu nhiệt độ phản ứng cao quá, có thể làm chậm quá trình ngưng tụ hoặc diễn ra sự cạnh tranh giữa các ion trong dung dịch tiến đến tâm hoạt động của xúc tác.



Hình 2: Ảnh hưởng của nhiệt độ (a) và thời gian phản ứng (b)

Trên hình 2b, quan sát thấy phản ứng diễn ra rất nhanh ngay trong một giờ phản ứng đầu tiên, độ chuyển hóa BA và độ chọn lọc ECC tương ứng đã đạt 76,78 và 88,82 %. Tiếp tục kéo dài thời gian phản ứng lên 2, 3 và 4 giờ, độ chuyển hóa BA và độ chọn lọc ECC tăng dần và đạt cực đại tương ứng bằng 89,32 và 92,16 % trong 3 giờ. Rõ ràng thời gian có ảnh hưởng đến quá trình ngưng tụ

BA và ECA, nhưng không quá rõ rệt. Điều này có lẽ là do xúc tác có chứa hệ thống mao quản $4,0 \times 5,8 \text{ \AA}$ và $7,0 \times 10,0 \text{ \AA}$ đủ thông thoáng để các chất phản ứng khuếch tán nhanh vào trong mao quản, tiến đến tâm hoạt tính, phản ứng, rồi khuếch tán ra khỏi mao quản tạo thành sản phẩm.



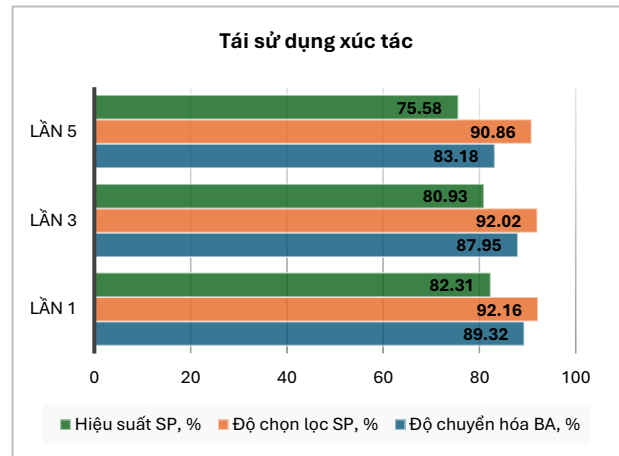
Hình 3: Giản đồ XRD của ZIF-14 chưa sử dụng, ZIF-14 sau mỗi lần tái sử dụng và ZIF-14 mô phỏng theo [1]

So sánh với báo cáo [28] (xem bảng 2), phản ứng ngưng tụ BA và ECA trên xúc tác ZIF-8 ($BET = 1.279 \text{ m}^2/\text{g}$) trong dung môi ethanol cho độ chuyển hóa BA bằng 82 % sau 0,5 giờ tại $80 \text{ }^\circ\text{C}$, thì kết quả thu được trong nghiên cứu này tốt hơn. Đối với báo cáo [29], phản ứng tương tự khi sử dụng xúc tác ZIF-8 ($BET = 1.570 \text{ m}^2/\text{g}$) cho độ chuyển hóa BA bằng 93,6 % và độ chọn lọc ECC bằng 99,4 % trong 4 giờ tại $40 \text{ }^\circ\text{C}$ tuy cao hơn kết quả trong nghiên cứu này, nhưng hàm lượng xúc tác lại sử dụng nhiều gấp đôi (3 % khối lượng BA). Sự khác nhau khi so sánh với kết quả nhận được từ các báo cáo [28,29] có thể còn có nguyên nhân là do cấu trúc của ZIF-8 và ZIF-14 khác nhau (ZIF-8: SOD và ZIF-14: ANA), kích thước mao quản cũng khác nhau (ZIF-8: $3,4 \times 11,6 \text{ \AA}$ và ZIF-14: $4,0 \times 5,8 \text{ \AA}$ và $7,0 \times 10,0 \text{ \AA}$).

Như vậy, từ kết quả khảo sát 4 yếu tố có ảnh hưởng đến phản ứng ngưng tụ nêu trên, có thể rút ra điều kiện phản ứng thích hợp là tỷ lệ mol BA : ECA = 1 : 1,5; xúc tác 1,5 %; nhiệt độ $50 \text{ }^\circ\text{C}$ và thời gian phản ứng 3 giờ.

Nghiên cứu tái sử dụng xúc tác

Xúc tác được khảo sát khả năng tái sử dụng qua 5 chu kỳ phản ứng liên tiếp dưới điều kiện thích hợp đã xác định ở trên. Sau mỗi chu kỳ, xúc tác được tách riêng, rửa sạch, sấy khô ở $100 \text{ }^\circ\text{C}$ trong 3 giờ và sử dụng cho chu kỳ tiếp theo. Các mẫu xúc tác sau tái sử dụng được phân tích XRD nhằm đánh giá sự thay đổi cấu trúc tinh thể, so sánh với xúc tác chưa sử dụng và ZIF-14 mô phỏng trong khi phần lỏng sau phản ứng được phân tích bằng GC-MS. Kết quả được trình bày trên Hình 3



Hình 4: Hoạt tính xúc tác sau các lần tái sử dụng

Quan sát hình 3 có thể thấy, giản đồ XRD của ZIF-14 chưa sử dụng rất giống ZIF-14 mô phỏng, đã được thảo luận trong [11]. Sau mỗi lần tái sử dụng, giản đồ XRD của xúc tác đã giảm dần cường độ pic đặc trưng, nhưng khá chậm, độ tinh thể ZIF-14 còn lại sau khi tái sử dụng lần 1, 3 và 5 tương ứng được xác định theo phương pháp XRD như đã mô tả trong [11] bằng 98, 92 và 86 %. Bằng trực giác thấy rằng, pic đặc trưng ở góc $2\theta \approx 7,4^\circ$ giảm nhẹ cường độ, nhưng cường độ của chùm pic ở vùng $2\theta \approx 26,4^\circ$ đến $31,1^\circ$ lại tăng lên. Đây có lẽ là hệ quả của một phần tinh thể ZIF-14 đã chuyển sang pha vô định hình sau mỗi lần phản ứng.

Hình 4 trình bày kết quả xác định độ chuyển hóa BA, độ chọn lọc và hiệu suất ECC sau khi sử dụng xúc tác lần 1, 3 và 5. Rõ ràng, cả 3 chỉ tiêu này đều giảm dần qua mỗi lần sử dụng, nhưng khá chậm. Sau khi tái sử dụng xúc tác lần thứ 5, độ chuyển hóa BA và độ chọn lọc ECC tương ứng còn 83,18 và 90,86 %. Kết quả này phù hợp với kết quả phân tích XRD trên hình 3. Sự giảm dần độ chuyển hóa BA và độ chọn lọc ECC có lẽ là do xúc tác đã bị phá vỡ một phần cấu trúc tinh thể dẫn đến làm giảm số lượng tâm hoạt động trong xúc tác.

Kết luận

Đã khảo sát hoạt tính xúc tác của ZIF-14 được tổng hợp từ zinc acetate dihydrate trong phản ứng ngưng tụ

giữa BA và ECA. Theo đó, đã tìm ra điều kiện phản ứng thích hợp để cho độ chuyển hóa BA và độ chọn lọc ECC tương ứng bằng 89,32 và 92,16 % là: tỷ lệ mol BA : ECA = 1 : 1,5; xúc tác 1,5 % (theo khối lượng BA); nhiệt độ 50 °C và thời gian 3 giờ. Cấu trúc tinh thể của xúc tác bị phá vỡ một phần sau mỗi lần phản ứng. Xúc tác có thể tái sử dụng đến lần thứ 5 cho độ chuyển hóa BA và độ chọn lọc ECC tương ứng bằng 83,18 và 90,86 %.

Lời cảm ơn

Nhóm tác giả chân thành cảm ơn Bộ Giáo dục và Đào tạo và trường Đại học Kiên Giang đã tài trợ kinh phí nghiên cứu thông qua đề tài 2026.

Tài liệu tham khảo

- X.C. Huang, Y.Y. Lin, J.P. Zhan, X.M. Chen, *Angew. Chem. Int. Ed.*, 45(10) (2006) 1557–1559. <https://doi.org/10.1002/anie.200503778>
- R. Banerjee, A. Phan, B. Wang, C. Knobler, H. Furukawa, M. O’Keeffe, O.M. Yaghi, *Science*, 319(5865) (2008) 939–943. <https://doi.org/10.1126/science.1152516>
- A.X. Zhu, R.B. Lin, X.L. Qi, Y. Liu, Y.Y. Lin, J.P. Zhang, X.M. Chen, *Microporous Mesoporous Mater.*, 157 (2012) 42–49. <https://doi.org/10.1016/j.micromeso.2011.11.033>
- T.N. Don, P.T. Huyen, N.K.D. Hong, *Adv. Nat. Sci.: Nanosci. Nanotechnol.*, 4(4) (2013) 045018. <https://doi.org/10.1088/2043-6262/4/4/045018>
- T.N. Don, T.N. Hung, P.T. Huyen, T.X. Bai, H.T.T. Huong, N.T. Linh, L.V. Duong, M.-H. Pham, *Indian J. Chem. Technol.*, 23(5) (2017) 392–399. <http://nopr.niscair.res.in/handle/123456789/35507>
- H.K.D. Nguyen, D.N. Ta, H.N. Ta, *J. Appl. Chem.*, 6(1) (2017) 50–68. <http://www.joac.info/ContentPaper/2017/10.pdf>
- H.K.D. Nguyen, T.N. Don, G. Sankar, R.A. Catlow, *Catal. Commun.*, 25 (2012) 125–129. <https://doi.org/10.1016/j.catcom.2011.11.016>
- H.K.D. Nguyen, N.T. Dinh, N.L.T. Nguyen, D.T. Ngoc, *J. Porous Mater.*, 24(2) (2017) 559–566. <https://doi.org/10.1007/s10934-016-0291-z>
- T.N. Don, V.D. Thang, P.T. Huyen, P.M. Hao, N.K.D. Hong, *Stud. Surf. Sci. Catal.*, 159 (2006) 197–200. [https://doi.org/10.1016/S0167-2991\(06\)81567-3](https://doi.org/10.1016/S0167-2991(06)81567-3)
- T.N. Don, L.V. Duong, N.T.H. Phuong, N.T.T. Huyen, T.N.T. Huy, N.V. Thanh, B.T.T. Ha, *Vietnam J. Catal. Adsorpt.*, 13(1) (2024) 1–21. <https://doi.org/10.62239/jca.2024.024>
- T.N.T. Huy, N.T.K. Phước, D. Mô, N.T.M. Thu, N.T.H. Phương, P.T. Hoa, L.Đ. Khiêm, L.V. Dương, Đ.Q. Tùy, T.N. Đôn, *Vietnam J. Catal. Adsorpt.*, 15(2) (2026) 21–26. <https://doi.org/10.62239/jca.2026.019>
- T.N. Don, T.N.T. Huy, T.A. Vy, T.N. Hung, L.V. Duong, *Korean J. Chem. Eng.*, 43(4) (2026) 933–944. <https://doi.org/10.1007/s11814-025-00619-6>
- B.N. Bhadra, P.W. Seo, N.A. Khan, S.H. Jung, *Inorg. Chem.*, 55(21) (2016) 11362–11371. <https://doi.org/10.1021/acs.inorgchem.6b01882>
- M.N. Timofeeva, I.A. Lykoyanov, V.N. Panchenko, K.I. Shefer, B.N. Bhadra, S.H. Jung, *Ind. Eng. Chem. Res.*, 58(25) (2019) 10750–10758. <https://doi.org/10.1021/acs.iecr.9b00655>
- Y. Zhou, J. Men, X. Wang, X. Wang, C. Liang, Y. Xie, H. Ding, *J. Phys. Chem. C*, 127(7) (2023) 3551–3562. <https://doi.org/10.1021/acs.jpcc.2c07990>
- M.N. Timofeeva, I.A. Lukoyanov, V.N. Panchenko, K.I. Shefer, M.S. Mel’gunov, B.N. Bhadra, S.H. Jung, *Mol. Catal.*, 529 (2022) 112530. <https://doi.org/10.1016/j.mcat.2022.112530>
- M.N. Timofeeva, I.A. Lukoyanov, V.N. Panchenko, B.N. Bhadra, E.Y. Gerasimov, S.H. Jung, *Catalysts*, 11 (2021) 1061. <https://doi.org/10.3390/catal11091061>
- M.N. Timofeeva, I.A. Lukoyanov, V.N. Panchenko, S.H. Jung, *Russ. Chem. Bull.*, 71 (2022) 599–612. <https://doi.org/10.1007/s11172-022-3458-6>
- D. Elhamifar, S. Kazempoor, B. Karimi, *Catal. Sci. Technol.*, 6 (2016) 4318–4326. <https://doi.org/10.1039/C5CY01666E>
- D.K. Dumbre, T. Mozammel, P.R. Selvakannan, S.B.A. Hamid, V.R. Choudhary, S.K. Bhargava, *J. Colloid Interface Sci.*, 441 (2015) 52–58. <https://doi.org/10.1016/j.jcis.2014.11.018>
- G.B.B. Varadwaj, S. Rana, K.M. Parida, *Dalton Trans.*, 42 (2013) 5122–5129. <https://doi.org/10.1039/C3DT32495H>
- A. Ying, L. Wang, F. Qiu, H. Hu, J. Yang, *C. R. Chim.*, 18 (2015) 223–232. <https://doi.org/10.1016/j.crci.2014.05.012>
- D. Wang, B. Wang, Y. Ding, H. Wu, P. Wu, *Chem. Commun.*, 51 (2016) 12817–12820. <https://doi.org/10.1039/C6CC06779D>
- P. Li, C.-Y. Cao, Z. Chen, H. Liu, Y. Yu, W.-G. Song, *Chem. Commun.*, 48 (2012) 10541–10543. <https://doi.org/10.1039/C2CC35718F>
- L. Martins, K.M. Vieira, L.M. Rios, D. Cardoso, *Catal. Today*, 133–135 (2008) 706–710. <https://doi.org/10.1016/j.cattod.2007.12.043>
- J. Gascon, U. Aktay, M.D. Hernandez-Alonso, G.P.M. van Klink, F. Kapteijn, *J. Catal.*, 261 (2009) 75–87. <https://doi.org/10.1016/j.jcat.2008.11.010>
- K. He, W. Han, K.L. Yeung, *J. Taiwan Inst. Chem. Eng.*, 98 (2018) 85–93. <https://doi.org/10.1016/j.jtice.2018.07.025>
- Y. Zhang, X. Zhang, R. Bai, X. Hou, J. Li, *Catalysts*, 8 (2018) 315. <https://doi.org/10.3390/catal8080315>
- L.T.N. Quỳnh, Luận án Tiến sĩ Kỹ thuật Hóa học, Đại học Bách khoa Hà Nội, Hà Nội (2019).
- V.A. Tran, L.T.N. Quỳnh, T.-T.T. Vo, P.A. Nguyen, T.N. Don, Y. Vasseghian, H. Phan, S.-W. Lee, *Environ. Res.*, 204(D) (2022) 112364. <https://doi.org/10.1016/j.envres.2021.112364>