

TRẦN THỊ KIM THOA

HÓA VÔ CƠ

NĂM 2023

**BỘ GIÁO DỤC
VÀ ĐÀO TẠO**

**VIỆN HÀN LÂM KHOA HỌC
VÀ CÔNG NGHỆ VIỆT NAM**

HỌC VIỆN KHOA HỌC VÀ CÔNG NGHỆ



Trần Thị Kim Thoa

**NGHIÊN CỨU CHẾ TẠO VẬT LIỆU NANO SILICA RỖNG
TRÊN NỀN HYDROTALCITE TỔNG HỢP ĐỊNH HƯỚNG
ỨNG DỤNG LÀM VẬT LIỆU CÁCH NHIỆT**

LUẬN VĂN THẠC SĨ HÓA HỌC

Thành phố Hồ Chí Minh - Năm 2023

**BỘ GIÁO DỤC
VÀ ĐÀO TẠO**

**VIỆN HÀN LÂM KHOA HỌC
VÀ CÔNG NGHỆ VIỆT NAM**

HỌC VIỆN KHOA HỌC VÀ CÔNG NGHỆ



Trần Thị Kim Thoa

**NGHIÊN CỨU CHẾ TẠO VẬT LIỆU NANO SILICA RỖNG
TRÊN NỀN HYDROTALCITE TỔNG HỢP ĐỊNH HƯỚNG
ỨNG DỤNG LÀM VẬT LIỆU CÁCH NHIỆT**

Chuyên ngành: Hóa vô cơ
Mã số: 8440113

LUẬN VĂN THẠC SĨ NGÀNH HÓA HỌC

**NGƯỜI HƯỚNG DẪN KHOA HỌC:
TS. Đỗ Mạnh Huy**

Thành phố Hồ Chí Minh - Năm 2023

LỜI CAM ĐOAN

Tôi xin cam đoan đề tài nghiên cứu trong luận văn này là công trình nghiên cứu của tôi dựa trên những tài liệu, số liệu do chính tôi tự tìm hiểu và nghiên cứu. Chính vì vậy, các kết quả nghiên cứu đảm bảo trung thực và khách quan nhất. Đồng thời, kết quả này chưa từng xuất hiện trong bất cứ một nghiên cứu nào. Các số liệu, kết quả nêu trong luận văn là trung thực nếu sai tôi hoàn chịu trách nhiệm.

TP. Hồ Chí Minh, ngày 17 tháng 04 năm 2023

Học viên cao học

Trần Thị Kim Thoa

LỜI CẢM ƠN

Tại đây, em xin được dành một phần luận văn Thạc sĩ của mình để gửi lời cảm ơn sâu sắc nhất đến những người đã luôn bên cạnh, giúp đỡ và động viên em trong khoảng thời gian vừa qua.

Trước tiên, em xin gửi lời cảm ơn đến TS. Đỗ Mạnh Huy – Viện Công nghệ Hóa học, người đã giúp đỡ tận tình cung cấp các ý kiến quan trọng để luận văn Thạc sĩ của em được hoàn thành tốt hơn.

Tiếp theo, em xin được gửi lời cảm ơn chân thành đến ThS. Phan Minh Vương – Viện Công nghệ Hóa học, người đã luôn dành thời gian và công sức quý báu của mình để hướng dẫn, định hướng, giải đáp mọi thắc mắc của trong quá trình nghiên cứu và làm thực nghiệm của em. Em xin được gửi lời cảm ơn đến chị Phạm Quỳnh Như, người đồng hành đáng tin cậy đã luôn sát cánh bên em, cùng em làm việc và sinh hoạt tại phòng thí nghiệm Công nghệ Hóa sinh.

Cạnh đó, em xin gửi lời cảm ơn đến Viện Công nghệ Hóa học, Phòng Công nghệ Hóa sinh, nơi em đã làm việc trong suốt những năm vừa qua và những anh chị đồng nghiệp, người bạn và người em tại đây đã cùng em chia sẻ những buồn, vui, kinh nghiệm học tập và làm việc. Em xin cảm ơn Học viện Khoa học và Công nghệ Việt Nam, đặc biệt là các thầy cô trong Học viện đã giảng dạy và truyền đạt cho em những kiến thức quan trọng và bài học bổ ích trong đoạn thời gian được học tập tại Học viện. Em xin được gửi lời cảm ơn đến gia đình và bạn bè, những người luôn động viên và giúp đỡ em để em có thể vượt qua những giai đoạn khó khăn nhất trong quá trình học tập và nghiên cứu.

Luận án này được hỗ trợ kinh phí từ đề tài của chương trình hỗ trợ cán bộ trẻ của Viện Hàn lâm KHCNVN, mã số đề tài: ĐLTE00.05/21-22.

Trân trọng.

TP. Hồ Chí Minh, ngày 17 tháng 04 năm 2023

Học viên cao học

Trần Thị Kim Thoa

MỤC LỤC

MỞ ĐẦU.....	1
Chương 1. TỔNG QUAN NGHIÊN CỨU	3
1.1. HIỆN TRẠNG VẬT LIỆU ỨNG DỤNG TRONG LĨNH VỰC CÁCH NHIỆT	3
1.2. VẬT LIỆU NANO SILICA.....	4
1.2.1. Giới thiệu.....	4
1.2.2. Cấu trúc của nano silica	4
1.2.3. Phương pháp tổng hợp nano silica rỗng.....	5
1.3.3.1. Phương pháp hard-template	5
1.3.3.2. Phương pháp soft-template	6
1.3.3.3. Phương pháp self-template	6
1.3. VẬT LIỆU HYDROTALCITE	7
1.3.1. Giới thiệu.....	7
1.3.2. Ứng dụng.....	7
1.2.3. Một số phương pháp tổng hợp hydrotalcite	8
1.2.3.1. Phương pháp đồng kết tủa	8
1.2.3.2. Phương pháp thủy nhiệt.....	9
1.2.3.3. Phương pháp ure	9
1.2.3.4. Phương pháp cơ học.....	10
1.4. TÌNH HÌNH NGHIÊN CỨU TRÊN THẾ GIỚI VÀ Ở VIỆT NAM.....	10
1.4.1. Tình hình nghiên cứu trên thế giới.....	10
1.4.2. Tình hình nghiên cứu ở Việt Nam.....	13
1.5. SỰ CẦN THIẾT CỦA NGHIÊN CỨU	15
Chương 2. ĐỐI TƯỢNG VÀ PHƯƠNG PHÁP NGHIÊN CỨU	15
2.1. ĐỐI TƯỢNG NGHIÊN CỨU	15
2.2. PHƯƠNG PHÁP NGHIÊN CỨU	15
2.2.1. Nguyên vật liệu	15
2.2.2. Dụng cụ và trang thiết bị	16
2.2.3. Các phương pháp xác định tính chất đặc trưng của vật liệu	16
2.2.4. Phương pháp thực nghiệm.....	18
2.2.4.1. Tổng hợp vật liệu hydrotalcite.....	18
2.2.4.2. Tổng hợp vật liệu nano silica rỗng	19
2.2.4.3. Chuẩn bị màng epoxy chứa nano silica rỗng.....	21
Chương 3. KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN	22
3.1. TỔNG HỢP VẬT LIỆU HYDROTALCITE.....	22

3.1.1. Ảnh hưởng của pH đến quá trình tổng hợp vật liệu hydrotalcite.....	22
3.1.2. Ảnh hưởng của nhiệt độ đến quá trình tổng hợp vật liệu hydrotalcite.....	28
3.2. TỔNG HỢP VẬT LIỆU NANO SILICA RỖNG	32
3.2.1. Đặc trưng hóa lý của vật liệu nano silica rỗng	33
3.2.2. Ảnh hưởng của điều kiện pH đến quá trình phá lõi	41
3.2.3. Kết quả kiểm soát độ dày vỏ của vật liệu nano silica rỗng	42
3.3. CHẾ TẠO MÀNG CÁCH NHIỆT.....	44
3.3.1. Ảnh hưởng của hàm lượng nano silica rỗng đến cấu trúc màng.....	44
3.3.2. Kết quả khảo sát tính cách nhiệt.....	46
KẾT LUẬN VÀ KIẾN NGHỊ	48
DANH MỤC CÔNG TRÌNH ĐÃ CÔNG BỐ.....	50
DANH MỤC TÀI LIỆU THAM KHẢO	51
PHỤ LỤC.....	59

DANH MỤC CÁC KÝ HIỆU VÀ CHỮ CÁI VIẾT TẮT

Từ viết tắt	Diễn giải đầy đủ	
	Tiếng Anh	Tiếng Việt
BET	Brunauer-Emmett-Teller	Phương pháp đẳng nhiệt hấp phụ - giải hấp phụ nitơ
EDS	Energy Dispersive X-ray Spectroscopy	Phổ tán xạ năng lượng tia X
FE-SEM	Field Emission Scanning Electron Microscopes	Phương pháp kính hiển vi điện tử quét tán xạ trường
FTIR	Fourier-Transform Infrared Spectroscopy	Phương pháp quang phổ hồng ngoại
HSN	Hollow silica nanoparticle	Nano silica rỗng
HT	Hydrotalcite	Hydrotalxit
ICP-OES	Inductively coupled plasma optical emission spectroscopy	Phương pháp quang phổ phát xạ plasma
STEM	Scanning Transmission Electron Microscopy	Kính hiển vi điện tử truyền qua quét
TEM	Transmission Electron Microscopy	Phương pháp kính hiển vi điện tử truyền qua
TG-DSC	Thermogravimater and Differential Scanning calorimeter	Phương pháp phân tích nhiệt
XRD	X-ray difraction	Phương pháp nhiễu xạ tia X

DANH MỤC CÁC BẢNG

Bảng 2.1. Danh mục các hóa chất sử dụng trong nghiên cứu	15
Bảng 2.2. Danh mục các trang thiết bị sử dụng trong nghiên cứu	16
Bảng 3.1. Thông số mạng tinh thể của hydrotalcite tổng hợp ở pH 8, pH 10 và pH 12 tại 125 °C trong 16 giờ	23
Bảng 3.2. Kết quả phân tích kim loại và công thức phân tử của hydrotalcite.....	26
Bảng 3.3. Thông số mạng tinh thể của hydrotalcite thủy nhiệt ở 80, 100, 125 và 150 °C ở pH 10 trong 24 giờ	29
Bảng 3.4. Đặc trưng của HT-80, HT-100, HT-125 và HT-150 được tổng hợp ở 80, 100, 125 và 150 °C tại pH 10 trong 24 giờ	30
Bảng 3.5. Thế zeta và cường độ phản xạ trung bình của mẫu thu được ở các bước tổng hợp nano silica rỗng	39
Bảng 3.6. Hệ số phản xạ trung bình và dẫn nhiệt của màng epoxy với hàm lượng HSN khác nhau	46

DANH MỤC CÁC HÌNH ẢNH

Hình 1.1. Cấu trúc tinh thể (Quartz) và vô định hình (Glass) của nano silica	4
Hình 1.2. Quy trình tổng hợp hạt nano với cấu trúc rỗng bằng phương pháp hard-template	5
Hình 1.3. Mô hình cấu trúc vật liệu hydrotalcite	7
Hình 1.4. Ảnh SEM và giản đồ XRD của hydrotalcite (a, b), CTA ⁺ -SiO ₂ -Hydrotalcite (c, d), oxit hỗn hợp SiO ₂ -Mg-Al (e, f) và SiO ₂ (g, h)	10
Hình 1.5. Sơ đồ tổng hợp HSNS thông qua phương pháp hard-template	11
Hình 1.6. Sơ đồ tạo mầm của SiO ₂ trên mẫu ZnO	11
Hình 1.7. Sơ đồ tổng hợp các hạt nano silica rỗng xốp bằng phương pháp hard-template	12
Hình 1.8. Ảnh SEM (trên) và TEM (dưới) của (a) ZnO, (b) vỏ-lõi ZnO@SiO ₂ và (c) các hạt HHSP	12
Hình 1.9. Sơ đồ minh họa quy trình chế tạo từng bước của hạt nano silica rỗng	13
Hình 1.10. Sơ đồ tổng hợp HMSN-NH ₂ và DOX/HMSN-NH ₂	13
Hình 1.11. Ảnh TEM của (a) hạt nano PS@SiO ₂ cấu trúc lõi-vỏ và (b, c) các hạt nano silica rỗng	14
Hình 2.1. Sơ đồ tự thiết kế được sử dụng để đo độ dẫn nhiệt của màng composít..	17
Hình 2.2. Sơ đồ thí nghiệm tổng hợp hydrotalcite	18
Hình 2.3. Quy trình tổng hợp hydrotalcite	19
Hình 2.4. Sơ đồ tổng hợp nano silica rỗng	20
Hình 2.5. Quy trình tổng hợp nano silica rỗng	20
Hình 2.6. Quy trình chế tạo màng epoxy chứa nano silica rỗng với hàm lượng khác nhau	21
Hình 3.1. Giản đồ XRD của hydrotalcite tổng hợp ở pH 8, pH 10 và pH 12 tại 125 °C trong 16 giờ	22
Hình 3.2. Phổ hồng ngoại của hydrotalcite tổng hợp tại pH 8, pH 10 và pH 12 ở 125 °C trong 16 giờ	24
Hình 3.3. Giản đồ TG-DSC của hydrotalcite tổng hợp ở pH 8, pH 10 và pH 12	25
Hình 3.4. Ảnh FE-SEM và giản đồ phân bố kích thước hạt của HT-8 (a), HT-10 (b), HT-12 (c) và HT-10K	27
Hình 3.5. Giản đồ XRD của HT-80, HT-100, HT-125 và HT-150 tổng hợp ở 80, 100, 125 và 150 °C tại pH 10 trong 24 giờ	28
Hình 3.6. Phổ hồng ngoại của hydrotalcite tổng hợp ở 80, 100 và 125 °C tại pH 10 trong 24 giờ	30

Hình 3.7. Ảnh FE-SEM và giản đồ phân bố kích thước hạt HT-80 (a, a-1), HT-100 (b, b-1), HT-125 (c, c-1) và HT-150 (d, d-1) được tổng hợp ở 80, 100, 125 và 150 °C tại pH 10 trong 24 giờ	31
Hình 3.8. Thế zeta của HT-80, HT-100, HT-125 và HT-150 được bảo quản trong 90 ngày	32
Hình 3.9. Giản đồ XRD của HT-125, HT-125@SiO ₂ và HSN-125	33
Hình 3.10. Phổ hồng ngoại của HT-125, HT125@SiO ₂ và HSN-125	34
Hình 3.11. Giản đồ TG-DSC của HT-125, HT125@SiO ₂ và HSN-125	36
Hình 3.12. Ảnh FE-SEM và TEM của HT-125 (a-1-a-2), HT125@SiO ₂ (b-1-b-2) và HSN-125 (c-1-c-2)	37
Hình 3.13. Ảnh STEM của hạt HT125@SiO ₂ (a) và ảnh EDS (b) của các thành phần các nguyên tố trong vật liệu HT125@SiO ₂	37
Hình 3.14. Phổ EDS thành phần các nguyên tố trong HT125@SiO ₂	38
Hình 3.15. Giản đồ hấp phụ - giải hấp phụ (a) và phân tích lỗ xốp (b) của HSN-125	39
Hình 3.16. Giản đồ UV-Vis-NIR của HT-125, HT125@SiO ₂ , HSN-125 và silica fume	40
Hình 3.17. Giản đồ XRD của HSN-125 phá lỗi ở pH 1,5, pH 2,0, pH 2,5 ở 85 °C trong 12 giờ	41
Hình 3.18. Ảnh TEM của HSN-125 phá lỗi đến pH 2,5 (a), pH 2 (b) và pH 1,5 (c) ở 85 °C trong 12 giờ	42
Hình 3.19. Ảnh TEM của các mẫu HSN-0,5 (a), HSN-0,75 (b), HSN-1,0 (c), HSN-1,25 (d) và HSN-1,5 (e) được tổng hợp với nồng độ Na ₂ SiO ₃ lần lượt là 0,5, 0,75, 1,0, 1,25 và 1,5 M ở 85 °C trong 12 giờ	42
Hình 3.20. Giản đồ UV-Vis-NIR của các mẫu HSN được tổng hợp với độ dày vỏ lần lượt là 6,8, 12,1, 17,1, 20,8 và 22,5 nm	43
Hình 3.21. Ảnh FE-SEM (mặt cắt ngang bên trong) của màng epoxy 0 (a) và màng compozit với hàm lượng HSN khác nhau: 5% (b), 10% (c) và 20% (d)	45
Hình 3.22. Độ phản xạ ánh sáng của màng epoxy tinh khiết (Epoxy 0) và màng compozit với hàm lượng khác nhau của HSN: 5, 10, 15 và 20%	46
Hình 3.23. Nhiệt độ bề mặt của màng epoxy 0 và màng compozit với hàm lượng khác nhau: 5, 10, 15 và 20% dưới bức xạ đèn hồng ngoại	47

MỞ ĐẦU

Lý do chọn đề tài

Hiện nay, nhu cầu tiết kiệm năng lượng đang nhận được rất nhiều sự quan tâm, do vậy việc nghiên cứu, chế tạo vật liệu cách nhiệt với hiệu suất cao trở nên ngày càng quan trọng [1,2]. Vật liệu nano silica rỗng (Hollow silica nanoparticle-HSN) đã cho thấy nhiều hứa hẹn trong lĩnh vực cách nhiệt do sự tồn tại của các cấu trúc rỗng với mật độ cao, điều này làm suy giảm tính liên tục của các đường truyền nhiệt, chuyển đổi dẫn nhiệt thành đối lưu nhiệt và kéo dài đường truyền nhiệt [3,4]. Đặc tính không gian rỗng này có thể làm hạn chế độ dẫn nhiệt và hỗ trợ việc giảm tiêu thụ năng lượng ngày càng hiệu quả. Bên cạnh đó, nano silica rỗng thể hiện một số ưu điểm như tỷ trọng thấp và ổn định cao [5-7]. Hơn nữa, silica không độc hại và dễ phân tán trong polyme hơn các hạt nano khác. Điều này làm HSN trở thành một lựa chọn an toàn và là ứng cử viên đầy triển vọng để phát triển nhiều ứng dụng bao gồm xác tác [8,9], phân phối thuốc [10-12], vi sinh [13] và vật liệu cách nhiệt [14,15]. Ngoài ra, lớp vỏ silica (SiO_2) của HSN còn cho thấy đặc tính phản xạ ánh sáng có kiểm soát thông qua kiểm soát độ dày của lớp vỏ [16-18]. Do đó, các nhà nghiên cứu đã tập trung vào việc kiểm soát đặc điểm này để cung cấp nền tảng linh hoạt trong nhiều ứng dụng tiềm năng.

HSN được tổng hợp bằng nhiều phương pháp khác nhau, nhưng phổ biến nhất là phương pháp hard-template vì có thể dễ dàng kiểm soát kích thước và hình dạng các hạt vật liệu tạo thành. Điển hình, lõi polystyrene (PS) và tiền chất tetraethyl orthosilicate (TEOS) được sử dụng để tổng hợp các hạt nano cấu trúc lõi-vỏ, tiếp theo là loại bỏ lõi thông qua phương pháp nung hoặc sử dụng dung môi hòa tan [5,19,20]. Phương pháp này cho phép tổng hợp HSN với kích thước và độ dày vỏ được kiểm soát, nhưng trong quá trình loại bỏ lõi polyme sẽ giải phóng nhiều cacbon dioxit (CO_2) và dung môi hữu cơ, điều này gây ảnh hưởng đến môi trường. Do đó, những năm gần đây, các nhà khoa học đã nghiên cứu sử dụng nhiều loại template vô cơ khác như kẽm oxit (ZnO) [21,22], canxi cacbonat (CaCO_3) [23,24], muối natri [25] hoặc polylactic (PLA) [26]... Trong hầu hết các nghiên cứu, quy trình Stober dựa theo phương pháp sol-gel sử dụng TEOS làm tiền chất silan để tạo thành axit orthosilicic $\text{Si}(\text{OH})_4$ thông qua phản ứng thủy phân và phản ứng ngưng tụ để hình thành liên kết Si-O-Si giữa các phân tử tạo thành lớp vỏ silica. Tuy nhiên, quá trình này đòi hỏi lượng lớn dung môi hữu cơ như ethanol để kiểm soát quá trình thủy phân TEOS [20,27]. Bên cạnh đó, các tác nhân hoạt động bề mặt cũng được sử dụng để thay đổi tính chất bề mặt mẫu, làm tăng số lượng các vị trí tích điện dương có sẵn cho silica

liên kết vào trong quá trình thủy phân và ngưng tụ. Tất cả các yếu tố trên hạn chế khả năng của silica rỗng trong các ứng dụng quy mô lớn và làm tăng chi phí tổng hợp [20,21]. Do đó, việc nghiên cứu các phương pháp tổng hợp nano silica rỗng với quy trình đơn giản hơn, ít tốn kém và không gây tác động xấu đến môi trường là một thách thức lớn đối với các nhà khoa học.

Vì vậy, đề tài "Nghiên cứu chế tạo vật liệu nano silica rỗng trên nền hydrotalcite tổng hợp định hướng ứng dụng làm vật liệu cách nhiệt" được lựa chọn do tính cấp thiết và tiềm năng ứng dụng trong việc nâng cao hiệu quả cách nhiệt, bảo vệ môi trường và giảm chi phí sản xuất trong ứng dụng với quy mô lớn. Nghiên cứu này sẽ tập trung vào tổng hợp vật liệu nano silica rỗng sử dụng hydrotalcite (HT) làm khuôn lõi, một loại vật liệu có tính chất đa dụng và tiềm năng ứng dụng rộng rãi trong các lĩnh vực khoa học và công nghệ. Quy trình chế tạo vật liệu nano silica cấu trúc rỗng sử dụng khuôn lõi HT và tiền chất sodium silicate (Na_2SiO_3) được thực hiện, tiếp theo sản phẩm được phân tích đặc trưng hóa-lý cơ bản bằng các phương pháp phân tích có độ tin cậy cao. HSN được trộn đều với epoxy theo tỷ lệ thích hợp để tạo thành màng HSN/epoxy và sau đó tiến hành kiểm tra tính dẫn nhiệt của màng. Nhóm nghiên cứu thực hiện đề tài này với mong muốn đưa ra một hướng đi mới trong quá trình tổng hợp nano silica có cấu trúc rỗng, trong đó độ dày vỏ được kiểm soát và đưa vào màng epoxy nhằm ứng dụng trong lĩnh vực cách nhiệt.

Mục đích nghiên cứu

Đề tài được tiến hành với mục đích tổng hợp vật liệu nano silica rỗng với độ dày vỏ được kiểm soát bằng phương pháp hard-template nhằm ứng dụng trong lĩnh vực cách nhiệt.

Nội dung nghiên cứu

Để hoàn thành mục tiêu đề tài, các nội dung nghiên cứu chính được thực hiện bao gồm:

- Tổng hợp hydrotalcite bằng phương pháp đồng kết tủa kết hợp với xử lý thủy nhiệt trong điều kiện có khuấy trộn.
- Tổng hợp vật liệu cấu trúc lõi-vỏ bằng cách biến tính bề mặt hydrotalcite với tác nhân sodium silicate (Na_2SiO_3). Kiểm soát độ dày lớp vỏ của hạt nano bằng cách thay đổi nồng độ Na_2SiO_3 trong quy trình phủ mẫu.
- Ăn mòn lõi bằng tác nhân acid (HCl) nhằm thu vật liệu nano silica rỗng.
- Đặc trưng hóa-lý của vật liệu bằng các phương pháp phân tích hiện đại bao gồm XRD, FTIR, FE-SEM, TEM, UV-Vis-NIR, BET, thế zeta, EDS, STEM, ICP-OES và TG-DSC.

- Chế tạo màng cách nhiệt HSN/epoxy sử dụng nano silica rỗng trên nền epoxy, sau đó khảo sát đặc tính phản xạ ánh sáng và dẫn nhiệt của sản phẩm.

Cơ sở khoa học và tính thực tiễn của đề tài

Kết quả từ đề tài sẽ đóng góp vào việc tăng cường kiến thức về phương pháp hard-template dùng để tổng hợp nano silica rỗng và đặc trưng hóa-lý của vật liệu, đồng thời đem lại những kiến thức mới về ứng dụng của nano silica rỗng vào vật liệu cách nhiệt trong lĩnh vực sản xuất và tiết kiệm năng lượng. Ngoài ra, việc nghiên cứu và phát triển vật liệu cách nhiệt tiết kiệm năng lượng và giảm ảnh hưởng đến môi trường cũng đóng góp đáng kể vào việc xây dựng một xã hội bền vững và phát triển.

Những đóng góp của luận văn

Nghiên cứu tổng hợp vật liệu nano silica rỗng từ chất nền hydrotalcite ứng dụng trong lĩnh vực cách nhiệt đóng góp đáng kể cho việc ứng dụng vật liệu cách nhiệt hiệu quả. Kết quả của đề tài này góp phần định hướng cho việc triển khai và ứng dụng HSN với chi phí thấp, đồng thời giúp tăng độ bền và tính ổn định của sản phẩm. Bên cạnh đó, sử dụng HSN từ chất nền HT trong lĩnh vực này còn giúp giảm tác động của ngành sản xuất đến môi trường, góp phần vào việc bảo vệ môi trường. Với những đóng góp này, HSN tổng hợp từ chất nền HT ứng dụng trong lĩnh vực cách nhiệt có tiềm năng phát triển mạnh.

Chương 1. TỔNG QUAN NGHIÊN CỨU

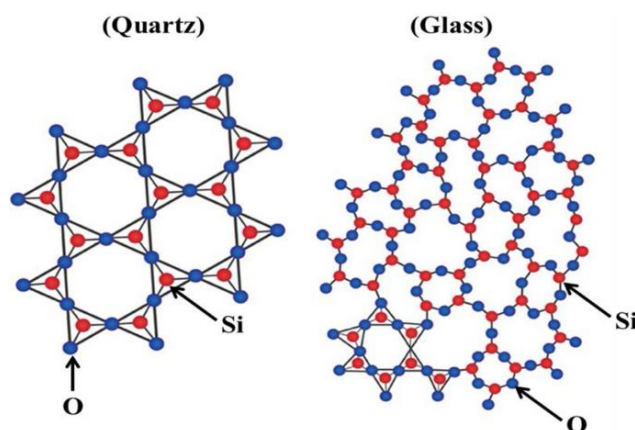
1.1. HIỆN TRẠNG VẬT LIỆU ỨNG DỤNG TRONG LĨNH VỰC CÁCH NHIỆT

Vật liệu cấu trúc rỗng hiện nay thường được sử dụng trong lĩnh vực cách nhiệt bao gồm polyme foam, aerogel, và hạt cầu nano rỗng với độ dẫn nhiệt kém. Các tấm polyme foam đã được sử dụng rộng rãi trên thị trường như một vật liệu cách nhiệt sử dụng trong xây dựng vì chi phí thấp và khả năng cách nhiệt cao (0,020-0,040 W/mk) [28]. Tuy nhiên, khả năng chống cháy thấp và độc hại làm giới hạn phạm vi ứng dụng của chúng [29]. Aerogel vô cơ, như aerogel silica, là vật liệu cách nhiệt có hiệu suất cao (ít hơn 0,030 W/mk). Tuy nhiên, vật liệu này có chi phí sản xuất cao và dễ bị suy giảm đặc tính cơ học [30,31]. Các hạt nano silica rỗng như một vật liệu cách nhiệt được tổng hợp dựa trên silica, chứa khí bên trong cấu trúc rỗng [7]. Nano silica rỗng chủ yếu được tổng hợp bằng phương pháp hard-template (như polystyrene (PS), polymethylmethacrylate (PMMA), các hạt nano kim loại và hạt cầu cacbon,...) [26,32-34] và phương pháp soft-template (như emulsion droplet, micelles và vesicle) [35-38] đã được công nhận là một chất thay thế tuyệt vời cho aerogel silica vì kỹ thuật

tổng hợp đơn giản [39]. Nhiều kết quả nghiên cứu cho thấy HSN thể hiện tính linh hoạt cao trong việc thay đổi các đặc tính bằng cách kiểm soát các thông số trong thí nghiệm. Độ dày và cấu trúc vỏ của các hạt nano silica rỗng có thể được điều chỉnh để tổng hợp vật liệu có độ dẫn nhiệt thấp. Việc nghiên cứu sâu hơn về phương pháp tổng hợp vật liệu với khả năng cách nhiệt tốt hơn, độ phản xạ ánh sáng cao hơn và năng lượng tiêu thụ thấp hơn là rất quan trọng và cần được khai thác.

1.2. VẬT LIỆU NANO SILICA

1.2.1. Giới thiệu



Hình 1.1. Cấu trúc tinh thể (Quartz) và vô định hình (Glass) của nano silica

Silic là một nguyên tố chính của vỏ trái đất. Cát silic, nguồn quặng silic phổ biến, dồi dào và dễ khai thác. Khoáng chất silica được gọi là thạch anh, tridymite, đá biến chất, cristobalit và khoáng chất như dạng đa hình của silica [40]. Trong các hợp chất vô cơ sẵn có, silic được chứng minh là không độc hại, có độ ổn định về nhiệt, cơ học cao [41]. Sự kết hợp giữa silic và oxy được gọi là silica (hay silicon dioxide) là thành phần chính của vỏ trái đất. Silica có thể tự nhiên hoặc được tổng hợp, có thể là tinh thể hoặc ở dạng vô định hình (xem Hình 1.1) [42]. Nghiên cứu này tập trung vào quy trình tổng hợp vật liệu nano silica rỗng và ứng dụng chúng trong lĩnh vực cách nhiệt nên sản phẩm được đề cập đến ở đây là nano silica rỗng ở cấu trúc dạng vô định hình.

1.2.2. Cấu trúc của nano silica

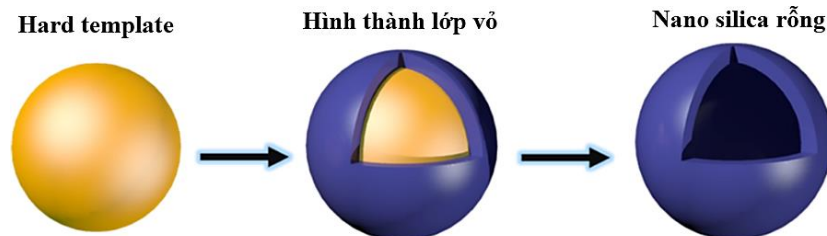
Cấu trúc của hạt nano silica, bao gồm bề mặt hoặc bên trong, có chứa các nhóm silanol (Si-OH) và siloxane (Si-O-Si). Trên bề mặt, các nhóm silanol có thể được phân loại thành nhóm đơn (có một nhóm OH^- tự do hoặc liên kết hydrogen) và nhóm gemini (hai nhóm hydroxyl trên một nguyên tử silic), nhưng phổ biến nhất là nhóm silanol đơn và gemini [43]. Các nhóm silanol được hình thành trong quá trình tổng hợp bằng cách ngưng tụ và polyme hóa của Si(OH)_4 hoặc thông qua quá trình

hydrat hóa. Các nhóm silanol này có tính chất và loại liên kết khác nhau, tùy thuộc vào vị trí của nhóm OH^- trong cấu trúc vật liệu. Một nhóm silanol đơn bao gồm một nhóm OH^- nằm ở vị trí xa các nhóm hydroxyl khác, giúp ngăn chặn sự tạo thành liên kết hydro. Tín hiệu phổ hồng ngoại ở số sóng 3750 cm^{-1} được tạo ra bởi nhóm silanol này. Các nhóm OH^- trên bề mặt của silica là trung tâm hấp phụ chính của các phân tử nước. Nước có thể tạo liên kết hydro với bất kỳ loại silanol bề mặt nào và đôi khi cả với các nhóm silanol bên trong cấu trúc. Các hạt cầu siloxane được tạo thành bằng cách ngưng tụ các nhóm silanol trên bề mặt hoặc bên trong cấu trúc ở nhiệt độ khoảng $500\text{ }^\circ\text{C}$. Quá trình tạo thành các cầu siloxane này là rất quan trọng, vì chúng là yếu tố quyết định tính chất của silica [43].

1.2.3. Phương pháp tổng hợp nano silica rỗng

Các nhà nghiên cứu đã tập trung khảo sát nhiều phương pháp để tổng hợp vật liệu nano silica với cấu trúc rỗng. Có ba phương pháp chính dựa trên loại khuôn (template) để tạo ra lỗ rỗng bên trong vật liệu, đó là phương pháp hard-template (khuôn cứng), soft-template (khuôn mềm) và phương pháp self-template (tự tạo khuôn).

1.3.3.1. Phương pháp hard-template



Hình 1.2. Quy trình tổng hợp hạt nano với cấu trúc rỗng bằng phương pháp hard-template

Phương pháp hard-template bao gồm ba giai đoạn chính được trình bày trong Hình 1.2 bao gồm (1) chuẩn bị các hạt nano để sử dụng làm lõi cứng, (2) phủ lớp vỏ ít bị ăn mòn và có kích thước nano trên bề mặt lõi, và (3) xử lý lõi cứng để tạo thành lõi rỗng bên trong lớp vỏ [44]. Trong đó, giai đoạn phủ lớp vỏ trên bề mặt lõi yêu cầu sự tương thích giữa vật liệu lõi và vỏ. Do đó, trước khi phủ lớp vỏ, bề mặt lõi được biến tính để tạo ra các tương tác vật lý và hóa học với tiền chất tạo lớp vỏ. Cơ chế của phương pháp này dựa vào sự khác biệt về tính chất giữa phần lõi và phần vỏ, từ đó sử dụng các tác nhân ăn mòn thích hợp để phân hủy phần lõi bên trong mà không tác động đến lớp vỏ bên ngoài của sản phẩm cuối cùng. Phương pháp này được cải tiến từ phương pháp soft-template nhằm khắc phục các khuyết điểm là khó kiểm soát quá trình tạo hạt và kích thước hạt. Thay vì sử dụng phần lõi là các vật liệu mềm, phương pháp này đã sử dụng các vật liệu cứng như canxi cacbonat (CaCO_3) [23,24],

kẽm oxit (ZnO) [21,22] và polylactic (PLA) [26]... làm lõi để tạo cấu trúc bên trong và sau đó phần lõi cứng này được loại bỏ ở điều kiện thích hợp [45-47].

1.3.3.2. Phương pháp soft-template

Phương pháp soft-template dùng các khuôn mềm như micell [48], tập hợp nhiều polyme [49] hay bong bóng khí [50]... để tạo cấu trúc rỗng bên trong hạt nano silica, sau đó phủ một lớp vỏ bằng sự kết hợp giữa chất hoạt động bề mặt và tiền chất silica. Tuy nhiên, điểm chung của các khuôn mềm này là dễ loại bỏ, thậm chí ở điều kiện thường; đây là lý do mà phương pháp soft-template không được sử dụng phổ biến hiện nay. Ngoài ra, các vật liệu mềm này có kích thước nhỏ và khả năng mở rộng hạn chế, giới hạn ứng dụng của chúng trong việc mang các phân tử có kích thước lớn [45].

Phương pháp soft-template áp dụng chất hoạt động bề mặt để tạo thành cấu trúc micell, là vật liệu nền phổ biến nhất trong phương pháp này do tính bền cao. Quá trình tổng hợp vật liệu dựa trên hệ nhũ tương dầu trong nước (O/W) gồm bốn thành phần chính: nước, dầu, chất hoạt động bề mặt và dung dịch kiềm. Trước tiên, chất hoạt động bề mặt và nước được hòa tan với nhau ở nồng độ nhất định, tạo thành cấu trúc micell. Sau đó, silan (pha dầu) được nhỏ giọt vào dung dịch trên. Nhờ tính kỵ nước của tiền chất silica, chúng sẽ nằm bên trong cấu trúc micell. Tuy nhiên, dung dịch kiềm sẽ thủy phân chậm, làm cho tiền chất silica trở nên ưa nước và ngưng tụ lại trên bề mặt các micell. Cuối cùng là quy trình loại bỏ các chất hoạt động bề mặt để tạo ra các hạt nano silica rỗng hoàn thiện [51,52].

1.3.3.3. Phương pháp self-template

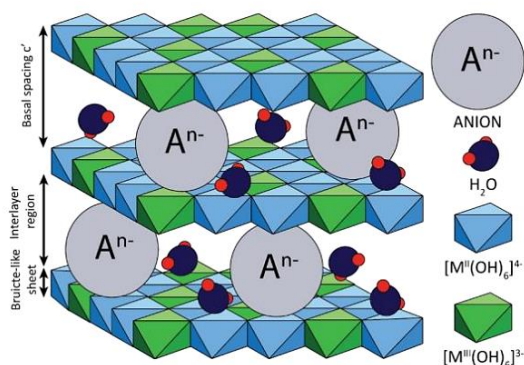
Gần đây, phương pháp self-template đã được báo cáo với hai giai đoạn quan trọng. Ở giai đoạn đầu, các hạt nano được tổng hợp để đóng vai trò là "khuôn". Trong giai đoạn thứ hai, các khuôn được chuyển đổi thành cấu trúc rỗng. Khác với các phương pháp tạo khuôn truyền thống, phương pháp self-template không chỉ cung cấp khuôn để tạo thành cấu trúc rỗng mà còn tham gia trực tiếp vào quá trình tạo thành lớp vỏ. Các khuôn có cùng thành phần với vật liệu vỏ hoặc cuối cùng sẽ biến đổi hóa học thành vật liệu vỏ. Phương pháp này dự kiến sẽ cung cấp một quy trình đơn giản và hiệu quả hơn về chi phí sản xuất vật liệu có cấu trúc rỗng. Tuy nhiên, vẫn còn những thách thức cần giải quyết, chẳng hạn như độ ổn định của hạt và độ phân tán [53,54].

1.3. VẬT LIỆU HYDROTALCITE

1.3.1. Giới thiệu

Hydrotalcite (HT) giống như đất sét anion, là một loại hợp chất phiến ion bao gồm các lớp giống như bruxit tích điện dương, các anion bù điện tích và các phân tử anion trong vùng xen kẽ (xem Hình 1.3).

Công thức của HT có thể được mô tả là: $[M_{1-x}^{II}M_x^{III}(OH)_2]^{x+}(A^{n-})_{x/n} \cdot mH_2O$. Trong đó M^{II} là các cation kim loại hóa trị hai, chẳng hạn như Mg^{2+} , Zn^{2+} hoặc Ni^{2+} , và M^{III} đại diện cho kim loại hóa trị ba, chẳng hạn như Al^{3+} , Ga^{3+} , Fe^{3+} hoặc Mn^{3+} , và x là tỷ lệ mol của $M^{III}/(M^{II} + M^{III})$, thường nằm trong khoảng từ 0,17 đến 0,33 và có thể thay đổi đối với các ứng dụng khác nhau. Hydrotalcite cũng có thể chứa các cation M^+ và M^{4+} , chẳng hạn như Li^+ và Ti^{4+} , nhưng chúng chỉ giới hạn trong các ví dụ cụ thể. A^{n-} là các anion cân bằng điện tích xen kẽ [55]. Thông thường, M^{II} được thay thế bằng M^{III} và giá trị có thể thay đổi là tỉ lệ nguyên tử $M^{II}: M^{III}$. Thay thế ion kim loại M^{III} cho ion kim loại M^{II} tạo ra các lớp hydroxit kim loại mang điện tích dương, vì ion kim loại M^{III} có thể phối trí bát diện với nhóm hydroxit [56,57]. Các lớp điện tích dương trong cấu trúc hydroxit kim loại được cân bằng bởi các anion trong lớp trung gian nên chúng có khả năng trao đổi các anion trong lớp trung gian [57,58]. Ngoài các anion, các phân tử nước cũng được định vị trong lớp trung gian giữa các lớp hydroxit kim loại. Tương tác tĩnh điện giữa các lớp hydroxit kim loại với các anion trong lớp trung gian và liên kết hydrogen giữa các phân tử nước tạo nên cấu trúc vững chắc của hydroxit kim loại. Tùy thuộc vào loại cation kim loại trong cấu trúc phân lớp và các anion có thể trao đổi có trong các lớp xen kẽ, các HT có thể thể hiện các tính chất hấp phụ [59], từ tính [60], quang học [61], xúc tác [62] và điện hóa khác nhau [63].



Hình 1.3. Mô hình cấu trúc vật liệu hydrotalcite

1.3.2. Ứng dụng

Hydrotalcite có tính chất đa dụng và được ứng dụng rộng rãi, bao gồm: chất xúc tác, chất hấp phụ, chất tạo màng và ứng dụng trong y tế...

- **Chất xúc tác:** Hydrotalcite được sử dụng như một chất xúc tác trong nhiều quá trình hóa học. Cấu trúc lớp của hydrotalcite cho phép các phân tử khác phân cực tương tác với các ion hóa trị ba trên bề mặt của vật liệu. Hydrotalcite có thể được sử dụng để tăng cường tốc độ phản ứng và cải thiện chọn lọc sản phẩm [64,65].
- **Chất hấp phụ:** Hydrotalcite có khả năng hấp phụ các ion âm như CO_2 , SO_2 , NO_x và loại bỏ các chất độc hại trong không khí hoặc trong nước [66,67].
- **Chất tạo màng:** Hydrotalcite có khả năng tạo màng bảo vệ cho các bề mặt vật và ngăn sự thâm nhập của tạp chất vào một môi trường nào đó [68,69].
- **Ứng dụng trong y tế:** Hydrotalcite được sử dụng trong điều trị viêm loét dạ dày, đại tràng và viêm hạch. Vật liệu này có khả năng kiểm chế sự sinh trưởng của vi khuẩn trong dạ dày và giúp làm giảm triệu chứng viêm nhiễm [70].

1.2.3. Một số phương pháp tổng hợp hydrotalcite

Hydrotalcite có thể tổng hợp trong môi trường nước và sử dụng nhiều phương pháp khác nhau bao gồm đồng kết tủa [71,72], thủy nhiệt [73], phương pháp Ure [74], hoặc phương pháp cơ học [75].

1.2.3.1. Phương pháp đồng kết tủa

Đồng kết tủa là phương pháp được sử dụng phổ biến nhất để tổng hợp hydrotalcite. Trong đó, các hydroxide của nhiều ion kim loại hóa trị II và III được kết tủa đồng thời [71,76]. Feitkenecht và Gerber sử dụng phương pháp này vào năm 1942 để điều chế HT [Mg-Al-CO_3] trong điều kiện dung dịch có nồng độ ion kim loại rất loãng. Sau đó, phương pháp này được Gastuche, Brown và Mortlan năm 1976 phát triển để tổng hợp tương tự, và Miyata và Okada năm 1977 đã điều chỉnh một vài số liệu thí nghiệm như nồng độ của chất tham gia phản ứng (từ khoảng 0,1 M đến 3,5 M và giảm đến khoảng 0,01 M đến 0,1 M) hoặc điều kiện rửa mẫu và kiểm soát giá trị pH trong quá trình phản ứng diễn ra. Những điều chỉnh này làm ảnh hưởng đến quá trình hình thành sản phẩm HT. Phương pháp đồng kết tủa có ưu điểm là chuẩn bị HT với thành phần có kiểm soát. Theo lý thuyết, việc có mặt đồng thời một lượng lớn hydroxit kim loại hóa trị hai và ba góp phần vào việc tạo ra một phạm vi rộng các hỗn hợp hydroxit, dựa trên sự kết hợp khác nhau của M^{II} và M^{III} . Hơn nữa, sự ổn định các anion có thể trở nên dễ dàng thông qua việc sử dụng tỷ lệ muối của kim loại một cách thích hợp hoặc bằng cách đồng kết tủa trong dung dịch chứa anion tương ứng, với điều kiện các điều kiện thí nghiệm được tuân thủ. Tuy nhiên, với phương pháp này thì sản phẩm tạo ra có độ kết tinh kém, vì vậy cần áp dụng thêm phương pháp xử lý thủy nhiệt để hoàn thiện cấu trúc tinh thể của sản phẩm cuối cùng.

1.2.3.2. Phương pháp thủy nhiệt

Phương pháp thủy nhiệt cũng là một phương pháp phổ biến khác để tổng hợp hydrotalcite. Trong phương pháp này, các muối kim loại được hòa tan trong nước và sau đó được trộn lẫn với một dung dịch chứa chất tạo kết tủa như NaOH. Tiếp theo, dung dịch được đun nóng trong môi trường thủy nhiệt và khuấy đều để hình thành kết tủa. Cuối cùng, dung dịch được lắng đọng và rửa để loại bỏ tạp chất ngoại lai và chất tạo kết tủa dư thừa [77].

Phương pháp thủy nhiệt giúp hạn chế được đa số các nhược điểm của phương pháp đồng kết tủa, với các ưu điểm bao gồm: Tiến hành thành công quy trình tổng hợp một lượng lớn hydrotalcite; Biến đổi các tinh thể có kích thước nhỏ thành tinh thể có kích thước lớn hơn với độ kết tinh cao và cần thiết cho một số mục đích đặc trưng; Biến đổi quá trình kết tủa vô định hình thành hydrotalcite có cấu trúc tinh thể; Phương pháp này tồn tại hai điều kiện thủy nhiệt cần được chú ý khi thực hiện tổng hợp hydrotalcite là thủy nhiệt ở nhiệt độ cao hơn 100°C phải tiến hành trong bình phản ứng chịu áp lực và thủy nhiệt ở nhiệt độ thấp hơn 100°C được thực hiện giống như quá trình già hóa.

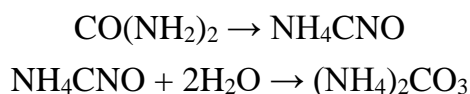
1.2.3.3. Phương pháp ure

Phương pháp ure được sử dụng khi cần tổng hợp hydrotalcite có kích thước hạt nano nhỏ và độ kết tinh cao. Phương pháp này sử dụng urea như chất tạo phức để điều chỉnh kích thước của sản phẩm tạo thành [78].

Ure là một hợp chất đặc biệt, khiến cho việc sử dụng nó làm tác nhân kết tủa trong dung dịch "đồng nhất" rất hấp dẫn. Từ lâu, ure đã được dùng trong phân tích khối lượng để kết tủa các ion kim loại dưới dạng hydroxit hoặc muối không hòa tan, khi xuất hiện các anion thích hợp. Ure là một bazơ Brønsted rất yếu, với giá trị pK_b là 13,8, có khả năng hòa tan cao trong nước. Tốc độ thủy phân của ure có thể dễ dàng được điều chỉnh bằng cách điều chỉnh nhiệt độ của phản ứng.

Theo Shaw và Bordeaux, cơ chế thủy phân của ure bao gồm sự hình thành xyanat amoni ($\text{CO}(\text{NH}_2)_2$), đóng vai trò là bước xác định định mức. Tiếp theo, xyanat (NH_4CNO) được thủy phân nhanh chóng thành amoni cacbonat ($(\text{NH}_4)_2\text{CO}_3$).

Cụ thể:



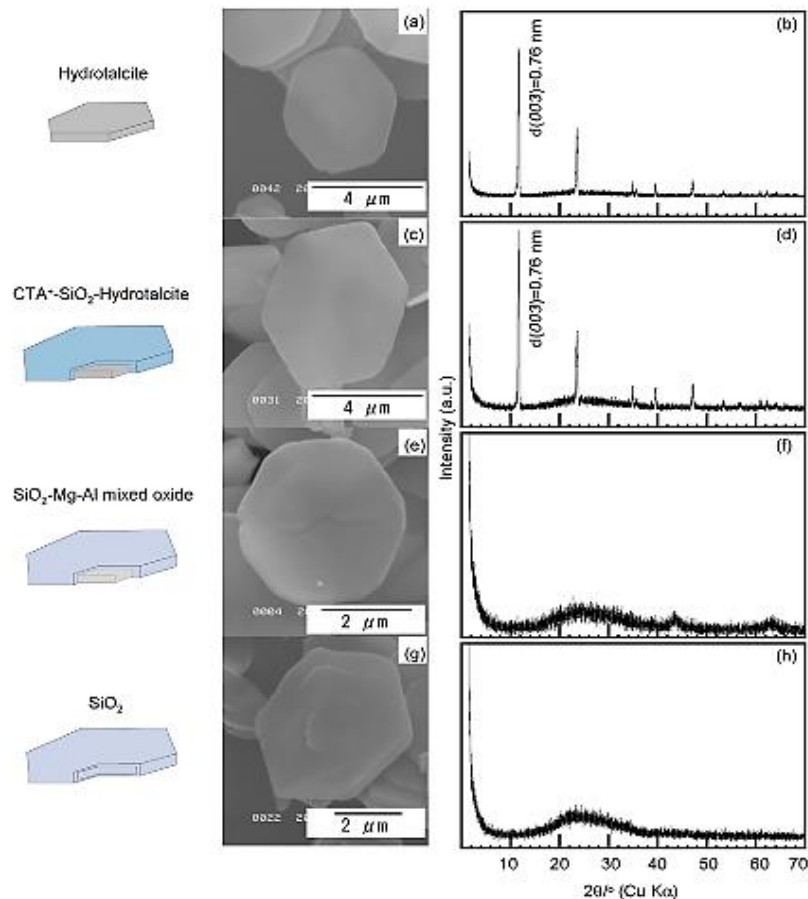
So với đồng kết tủa và thủy nhiệt, phương pháp Ure được cho là đơn giản hơn, đặc biệt là khi cần sản xuất HT với hạt tinh thể có kích thước nhỏ và độ kết tinh cao. Tuy nhiên, nhược điểm của phương pháp này là dung dịch phức có thể gây ra hiện tượng đục nước và khó kiểm soát, làm giảm hiệu quả quá trình tổng hợp.

1.2.3.4. Phương pháp cơ học

Phương pháp cơ học sử dụng nguyên liệu tổng hợp bao gồm các chất hóa học cần thiết để tạo ra hỗn hợp bột. Sau đó, hỗn hợp bột này được đưa vào máy xay bi để xay nhỏ và trộn đều các thành phần. Quá trình xay nhỏ và trộn đều này giúp cải thiện sự tương tác giữa các thành phần trong hỗn hợp bột, tăng cường khả năng hấp phụ và trao đổi ion của vật liệu hydrotalcite. Sau đó, hỗn hợp bột được đưa vào lò nung để thực hiện quá trình cố định hóa [75]. Quá trình này giúp tạo ra các pha tinh thể hydrotalcite với cấu trúc và tính chất đồng nhất. Phương pháp cơ học tổng hợp hydrotalcite có nhiều ưu điểm như giảm thời gian và phí sản xuất, đồng thời cải thiện tính đồng nhất và đồng đều của sản phẩm.

1.4. TÌNH HÌNH NGHIÊN CỨU TRÊN THẾ GIỚI VÀ Ở VIỆT NAM

1.4.1. Tình hình nghiên cứu trên thế giới

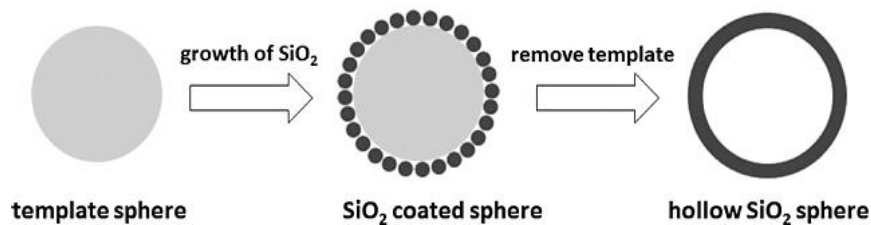


Hình 1.4. Ảnh SEM và giản đồ XRD của hydrotalcite (a, b), CTA⁺-SiO₂-Hydrotalcite (c, d), oxit hỗn hợp SiO₂-Mg-Al (e, f) và SiO₂ (g, h)

Ngày nay, các hạt nano silica rỗng có thể được tổng hợp bằng nhiều phương pháp khác nhau, nhưng trong đó phổ biến nhất là phương pháp hard-template vì có thể kiểm soát dễ dàng quá trình tạo hạt và kích thước hạt. Nhiều công trình nghiên

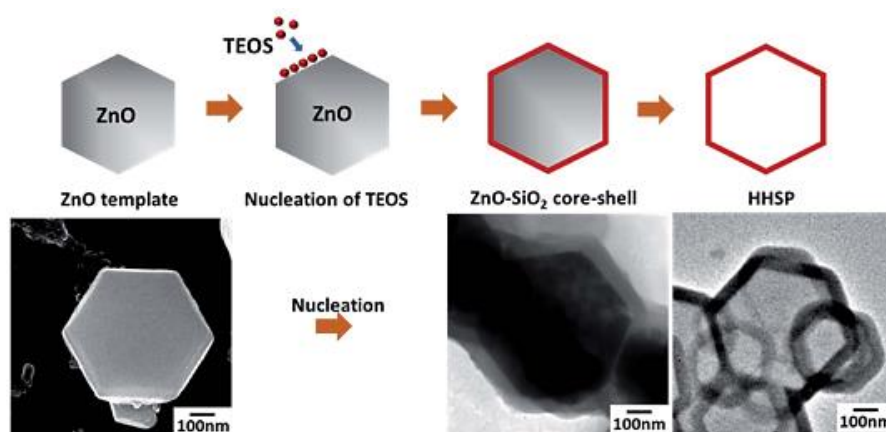
cứu về tổng hợp và biến tính bề mặt của hạt nano silica với cấu trúc rỗng để ứng dụng trong nhiều lĩnh vực đã được công bố và trình bày bên dưới:

Năm 2007, Naoki và cộng sự đã công bố nghiên cứu về phương pháp tổng hợp các hạt nano silica rỗng có hình thái lục giác bằng cách sử dụng hydrotalcite MgAl làm khuôn mẫu cứng và quy trình tổng hợp được thể hiện ở Hình 1.4 [79]. Các hạt nano silica rỗng xếp được tổng hợp có độ dày vỏ khoảng 100 nm. Các hạt này được tổng hợp bằng cách phản ứng giữa hydrotalcite MgAl với dung dịch đồng nhất chứa TEOS, hexadecyl trimetyl amoni clorua (CTAC), amniac và metanol ở 3°C. Tiếp theo, sản phẩm được nung ở 500 °C trong không khí để hình thành các hạt composite với lõi oxit hỗn hợp MgAl và vỏ nano silica xếp. Sau đó, lõi oxit hỗn hợp MgAl được loại bỏ để thu được các hạt nano silica xếp dạng lục giác với bề mặt hạt bằng phẳng có đường kính lỗ và diện tích bề mặt BET lần lượt là 2,3 nm và 700 m² (g silica)⁻¹.



Hình 1.5. Sơ đồ tổng hợp HSNS thông qua phương pháp hard-template

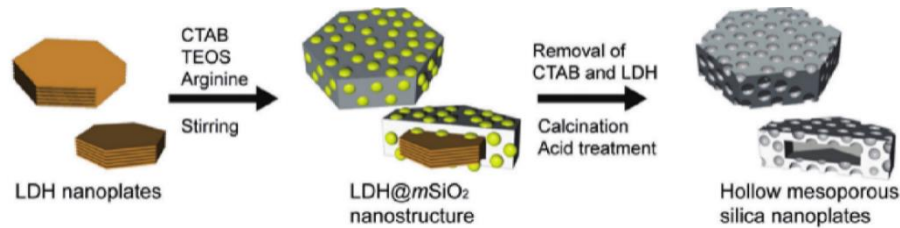
Tao và đồng sự đã nghiên cứu và tổng các hạt cấu nano silica rỗng đơn phân tán (HSNS) ứng dụng cho vật liệu cách nhiệt vào năm 2013 [5]. Các hạt nano silica rỗng được tổng hợp bằng sự hỗ trợ của phương pháp hard-template theo sơ đồ trong Hình 1.5 với sự tham gia của lõi PS và tiền chất silica TEOS với đường kính lõi rỗng, độ dày vỏ và độ dẫn nhiệt lần lượt là 150 nm, 10-15 nm và 0,02 W/(mK).



Hình 1.6. Sơ đồ tạo màng của SiO₂ trên mẫu ZnO

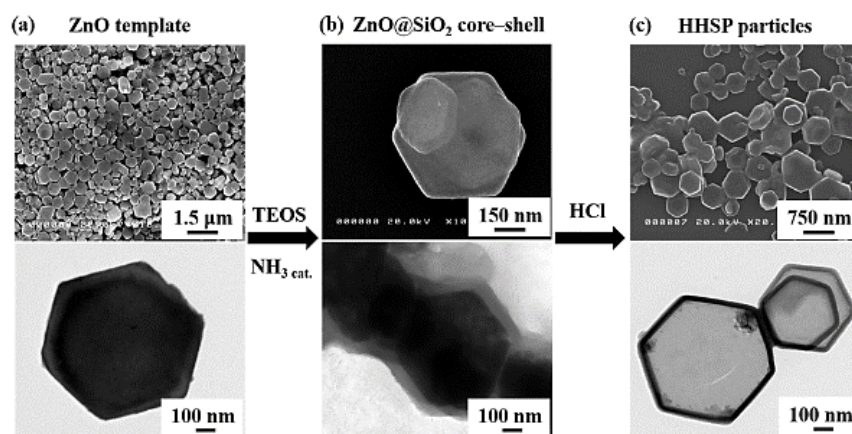
Năm 2018, nhóm nghiên cứu của Lailatul đã tổng hợp các hạt nano silica rỗng dạng tấm lục giác có độ truyền qua cao dưới ánh sáng cực tím [22]. Trong nghiên cứu này, các hạt nano rỗng dạng phiến lục giác được tổng hợp từ tetraethyl orthosilicate

(TEOS) và khuôn mẫu cứng kẽm oxit (ZnO) bằng phương pháp xử lý thủy nhiệt có hỗ trợ vi sóng. Quy trình tổng hợp của nguyên cứu này được thể hiện trong Hình 1.6. Kích thước và độ dày vỏ của các sản phẩm được kiểm soát và điều chỉnh bằng cách điều chỉnh tỷ lệ mol TEOS/ZnO và kích thước hạt ZnO. Khả năng truyền ánh sáng của các hạt này phụ thuộc vào độ dày vỏ và kích thước hạt. Tỷ lệ truyền qua cao nhất là 99% trong vùng UV-Vis (300-800 nm) được thể hiện bởi các mẫu có độ dày vỏ nhỏ nhất (6,3 nm).



Hình 1.7. Sơ đồ tổng hợp các hạt nano silica rỗng xếp bằng phương pháp hard-template

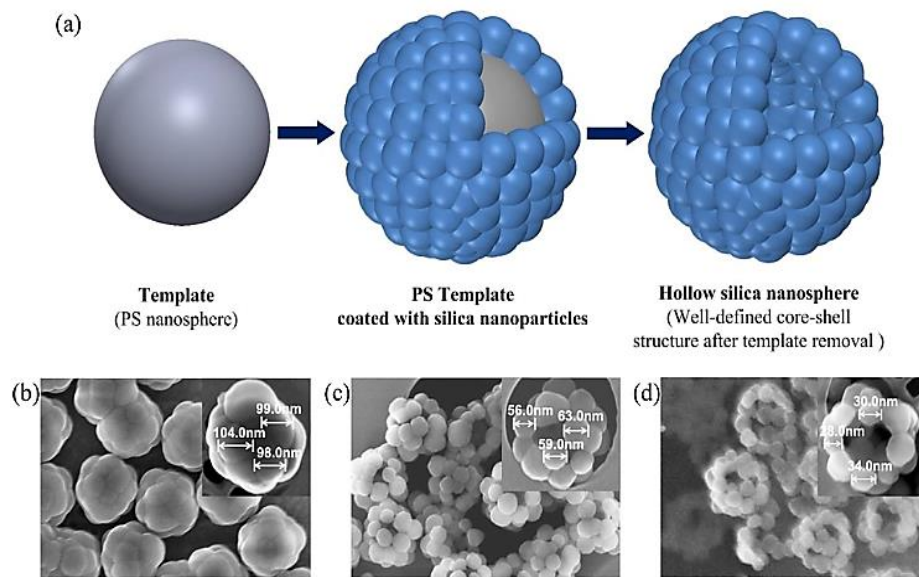
Năm 2020, Yue và đồng sự đã tổng hợp các tấm nano silica rỗng xếp bằng phương pháp hard-template sử dụng lõi là hydroxit lớp kép (LDH) và TEOS kết hợp với chất hoạt động bề mặt (hexadecyltrimethylammonium bromide-CTAB) theo sơ đồ được thể hiện trên Hình 1.7 [44]. Các tấm MgAl-LDH lục giác được tổng hợp với một axit amin cơ bản (arginine) thông qua quá trình đồng kết tủa nhanh sau đó là tiến hành xử lý thủy nhiệt có kiểm soát ở 100 đến 200 °C. Các tấm nano này được sử dụng như khuôn mẫu để tổng hợp các tấm nano silica rỗng.



Hình 1.8. Ảnh SEM (trên) và TEM (dưới) của (a) ZnO, (b) vỏ-lõi ZnO@SiO₂ và (c) các hạt HHSP

Cùng năm, nhóm nghiên cứu của Kiet Le Anh Cao đã tổng hợp các hạt nano silica rỗng hình lục giác (HHSP) và màng polyme nanocompozit của HHSP có chỉ số khúc xạ thấp. Trong nghiên cứu này, HHSP được tổng hợp thông qua phương pháp sol-gel ở nhiệt độ phòng với lõi là ZnO và tiền chất silica được sử dụng là TEOS theo

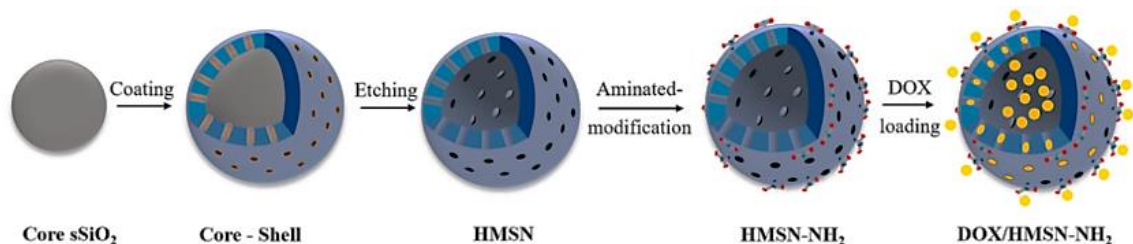
sơ đồ trong Hình 1.8. Trong đó, thời gian tiến hành phản ứng và sự thay đổi tỷ lệ mol TEOS/ZnO được khảo sát để kiểm tra sự ảnh hưởng của các thông số phản ứng này đến cấu trúc và hình dạng các hạt HHSP; sau khảo sát, độ dày vỏ của các hạt silica rỗng có thể được điều chỉnh trong khoảng 12,2 đến 43,2 nm bằng cách điều chỉnh tỷ lệ mol TEOS/ZnO. Ngoài ra, màng mỏng polyme nanocompozit đã được chế tạo bằng cách trộn đều poly(methyl methacrylate) (PMMA) với các hạt HHSP biến tính bề mặt bằng cách ghép các chất ghép nối silane. Giá trị truyền quang cao đã được quan sát (>95%) cho màng compozit (dày 5 μm , 0,1-1,0% theo trọng lượng HHSP) trong vùng UV-Vis.



Hình 1.9. Sơ đồ minh họa quy trình chế tạo từng bước của hạt nano silica rỗng

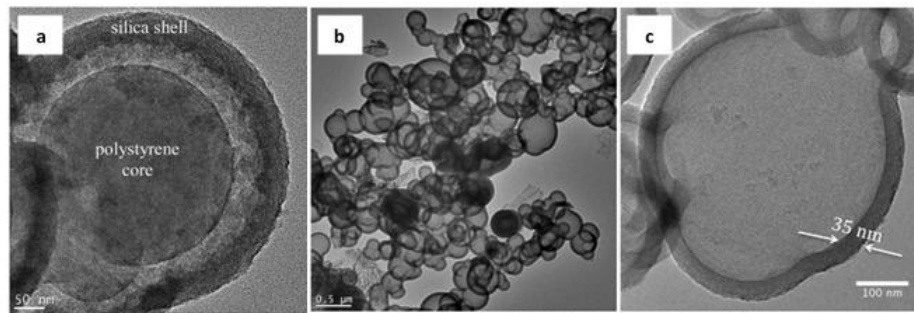
Năm 2022, Liu và đồng sự đã tổng hợp các hạt nano silica rỗng bằng phương pháp sacrificial-template được mô tả trong Hình 1.9 [14], trong đó PS được sử dụng làm khuôn để cung cấp các vị trí tạo mầm cho sự phát triển của vỏ silica. TEOS được sử dụng làm tiền chất silica để hình thành cấu trúc vỏ silica. Các mẫu PS@SiO₂ cấu trúc lõi vỏ được nung ở 450°C trong 6 giờ để loại bỏ lõi PS nhằm ứng dụng trong lĩnh vực cách nhiệt.

1.4.2. Tình hình nghiên cứu ở Việt Nam



Hình 1.10. Sơ đồ tổng hợp HMSN-NH₂ và DOX/HMSN-NH₂

Năm 2020, nhóm nghiên cứu của PGS.TS Nguyễn Đại Hải đã trình bày một phương pháp đơn giản và có hiệu quả cao để tổng hợp các hạt nano silica rỗng xốp dạng amino giúp tăng khả năng chứa và giải phóng thuốc [80]. Trong nghiên cứu này, HMSN được tổng hợp bằng phương pháp hard-template và chức năng hóa amin bằng (3-aminopropyl)-triethoxysilane (APTES) ở nồng độ khác nhau tạo thành sản phẩm HMSN-NH₂ để tối ưu hóa khả năng vận chuyển và giải phóng doxorubicin (DOX) (xem Hình 1.10). HMSN-NH₂ có đường kính $154,0 \pm 0,9$ nm, với lõi rỗng và vỏ cấu trúc mao quản đồng nhất. Sau khi được amin hóa, HMSN-NH₂ có khả năng chứa DOX tăng 3,63 lần và giảm lượng giải phóng DOX sau 48 giờ 1,5 lần. Kết quả cho thấy HMSN-NH₂ được tổng hợp có tiềm năng ứng dụng rất lớn trong việc điều trị ung thư với khả năng vận chuyển và giải phóng DOX tối ưu.



Hình 1.11. Ảnh TEM của (a) hạt nano PS@SiO₂ cấu trúc lõi-vỏ và (b, c) các hạt nano silica rỗng

Năm 2021, nhóm nghiên cứu của TS. Khanh, tại Trường ĐH Quốc Tế, ĐHQG TP. Hồ Chí Minh đã công bố phương pháp điều chế hạt PS bằng phương pháp đồng kết tủa nano (nano-coprecipitation) để làm khuôn mẫu tổng hợp các hạt nano silica rỗng, trong đó PS có thể được tái chế nhiều lần để tiếp tục tổng hợp các hạt silica rỗng [20]. Dung môi hữu cơ và nước lần lượt được sử dụng làm dung môi (solvent) và không dung môi (anti-solvent) thông qua phương pháp kết tủa nano. Các hạt PS được sử dụng làm khuôn mẫu để tổng hợp các hạt nano silica rỗng với sự trợ giúp của chất hoạt động bề mặt (CTAB). Quá trình này cho phép PS được thu hồi lại bằng cách trích xuất PS@SiO₂ composite bằng dung môi tetrahydrofuran (THF), và PS thu hồi được tái sử dụng để chế tạo các hạt nano silica rỗng với độ dày vỏ khoảng 35 nm (xem Hình 1.11).

Những năm gần đây, các nghiên cứu về vật liệu nano silica rỗng ở Việt Nam chủ yếu tập trung vào việc tổng hợp, tối ưu hóa các đặc tính của nano silica rỗng. Theo hiểu biết hạn chế của nhóm thì trong nước hiện nay, việc ứng dụng nano silica rỗng trong lĩnh vực cách nhiệt vẫn còn khá ít.

1.5. SỰ CẦN THIẾT CỦA NGHIÊN CỨU

Vật liệu nano silica cấu trúc rỗng hiện rất được sự quan tâm và chú ý của các nhà khoa học. Với điều kiện khoa học và trang thiết bị hiện nay trong nước, nano silica rỗng hoàn toàn có thể nghiên cứu, chế tạo và ứng dụng cho nhiều lĩnh vực khác nhau. Với từng cấu trúc hạt nano silica rỗng sẽ có những tính chất hóa-lý và cơ học khác nhau phục vụ cho nhiều mục đích ứng dụng trong đa dạng các lĩnh vực, tiêu biểu là lĩnh vực cách nhiệt. Bên cạnh đó, việc nghiên cứu tổng hợp nano silica cấu trúc rỗng từ chất nền HT còn khá thu hút tại Việt Nam. Vì vậy, kết quả đạt được trong nghiên cứu này sẽ giải quyết được vấn đề tổng hợp HT ở nồng độ cao thông qua đó sẽ tiến hành biến tính bề mặt hydrotalcite với Na_2SiO_3 nhằm tạo ra cấu trúc nano silica rỗng với độ dẫn nhiệt thấp thích hợp để ứng dụng trong lĩnh vực cách nhiệt.

Chương 2. ĐỐI TƯỢNG VÀ PHƯƠNG PHÁP NGHIÊN CỨU

2.1. ĐỐI TƯỢNG NGHIÊN CỨU

Nghiên cứu tập trung vào việc tổng hợp có kiểm soát kích thước hạt hydrotalcite và ứng dụng làm chất nền trong tổng hợp vật liệu silica rỗng nhằm ứng dụng trong lĩnh vực cách nhiệt.

2.2. PHƯƠNG PHÁP NGHIÊN CỨU

2.2.1. Nguyên vật liệu

Hóa chất sử dụng được liệt kê trong Bảng 2.1.

Bảng 2.1. Danh mục các hóa chất sử dụng trong nghiên cứu

Tên hóa chất	Công thức phân tử/ tên thương mại	Độ tinh khiết	Nơi sản xuất
Magnesium chloride hexahydrate	$\text{MgCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$	98%	Alfa Aesar
Aluminum Chloride Hexahydrate	$\text{AlCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$	99%	Alfa Aesar
Sodium hydroxide	NaOH	96%	Scharlau
Sodium lactate	$\text{NaC}_3\text{H}_5\text{O}_3$	99,5%	Scharlau
Sodium carbonate	Na_2CO_3	99,5%	Scharlau
Sodium silicate	Na_2SiO_3	40%	Vinachem
Hydrochloric acid	HCl	36,5%	Scharlau
Epoxy bisphenol A	D.E.R-331	-	Dow Chemical
Polyamine hardener	XUS 19036.00	-	Dow Chemical
Methyl isobutyl ketone	MIBK	-	Kumho P&B Chemicals

2.2.2. Dụng cụ và trang thiết bị

Dụng cụ: bình cầu 1000 mL, bếp điện từ, hủ thủ tinh, bercher (1000 mL, 500 mL, 250 mL và 100 mL), cá từ, máy đồng hóa, bộ nghiền và rây (0,045 mm).

Thiết bị sử dụng được trình bày trong Bảng 2.2.

Bảng 2.2. Danh mục các trang thiết bị sử dụng trong nghiên cứu

STT	Tên thiết bị	Xuất xứ
1	Máy ly tâm lạnh Hermle	Đức
2	Máy đo thể zeta SZ-100, Horiba	Nhật Bản
3	Máy FE-SEM Hitachi SU 8010	Nhật Bản
4	Máy TEM JEOL JEM-2100	Nhật Bản
5	Máy đo nhiễu xạ tia X Bruker D8 Advance Eco	Đức
6	Máy đo phổ hồng ngoại FTIR Tensor 27, Bruker	Đức
7	Máy đo diện tích bề mặt và hấp phụ - giải hấp phụ khí N ₂ Tristar II Plus, Micrometrics	Mỹ
8	Máy đo phổ hấp thụ tử ngoại khả kiến UV-Vis Jasco V-770	Nhật bản
9	Máy đo nhiệt trọng lượng TGA-DSC LabSys Evo 1600 Setaram	Pháp
10	Máy quang phổ phát xạ plasma ICP-OES 5800, Agilent	Mỹ
11	Máy đo hệ số dẫn nhiệt C-Therm Trident	Canada

2.2.3. Các phương pháp xác định tính chất đặc trưng của vật liệu

Cấu trúc tinh thể của các hạt nano được phân tích bằng phương pháp nhiễu xạ tia X (X-ray Diffraction, XRD) trên thiết bị Bruker XRD D8 Advance (Đức) với tia nhiễu xạ Cu K α ($\lambda = 1,5418 \text{ \AA}$) trong khoảng góc 2θ từ 5 đến 70° tại Viện Công nghệ Hóa học.

Phổ hồng ngoại FT-IR dùng để xác định thành phần các nhóm chức của phân tử chất nghiên cứu dựa vào các tần số đặc trưng trên phổ của các nhóm chức trong phân tử. Phổ hồng ngoại được phân tích trong khoảng 400 - 4000 cm⁻¹ trên thiết bị Tensor 27, Bruker (Đức) tại Viện Công nghệ Hóa học. Sản phẩm được đo với dạng ép viên KBr.

Sự thay đổi khối lượng của mẫu trong quá trình gia nhiệt được xác định bằng phương pháp phân tích nhiệt trọng lượng (TGA-DSC). Phương pháp này được thực hiện trên thiết bị LabSys Evo TG-DSC 1600 Setaram (Pháp) từ nhiệt độ phòng đến 800 °C với tốc độ gia nhiệt là 10 °C/phút trong khí N₂ tại trường Đại học Sư phạm TP. Hồ Chí Minh.

Hàm lượng của Mg và Al trong vật liệu HT được đo bằng phương pháp quang phổ phát xạ plasma cảm (ICP-OES) trên thiết bị ICP-OES 5800 Agilent Mỹ.

Điện thế bề mặt hạt nano trong chất lỏng được đánh giá bằng cách sử dụng phương pháp đo điện thế zeta trên thiết bị SZ-100, Horiba (Nhật Bản) ở nhiệt độ 25 °C tại Viện Công nghệ Hóa học.

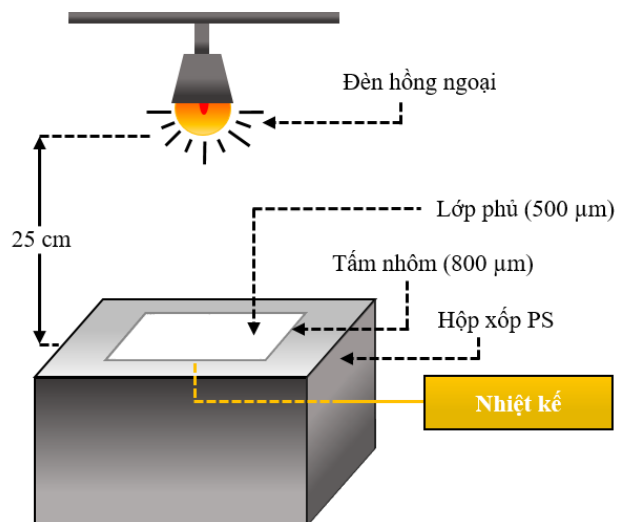
Hình thái, kích thước hạt nano, độ dày vỏ và bề mặt vật liệu của các mẫu được kiểm tra bằng kính hiển vi quét phân giải cao (FE-SEM) trên thiết bị Hitachi SU 8010 và kính hiển vi điện tử truyền qua (TEM) trên JEOL JEM-2100 (Nhật Bản) tại Viện Công nghệ Nano TP. Hồ Chí Minh. Bên cạnh đó, kích thước các hạt nano được xác định thông qua ảnh FE-SEM và TEM, và được tính toán bằng phần mềm ImageJ để đưa ra số liệu thống kê. Kích thước hạt trung bình và sự phân bố của các kích thước hạt được tính toán thông qua việc sử dụng phần mềm Origin.

Thể tích lỗ xốp, phân bố kích thước lỗ và diện tích bề mặt riêng của mẫu được đánh giá bằng phương pháp hấp phụ - giải hấp phụ khí N₂ (BET) ở nhiệt độ 77K trên thiết bị Tristar II Plus, Micrometrics (Mỹ) tại Viện Công Nghệ Hóa học.

Độ phản xạ của mẫu bột và màng compozit được phân tích bằng phương pháp quang phổ UV-Vis-NIR trên thiết bị Jasco V-770 (Nhật Bản) trong khoảng từ 200-2500 nm với mẫu tham chiếu là tấm BaSO₄ màu trắng (Viện Công nghệ Hóa học).

Độ phản xạ trung bình của mẫu (200-2500 nm) được tính bằng công thức sau:

$$\text{Phản xạ trung bình (\%)} = \frac{1}{k} \sum_{\lambda=200}^{2500} R(\lambda) \times 100\%$$

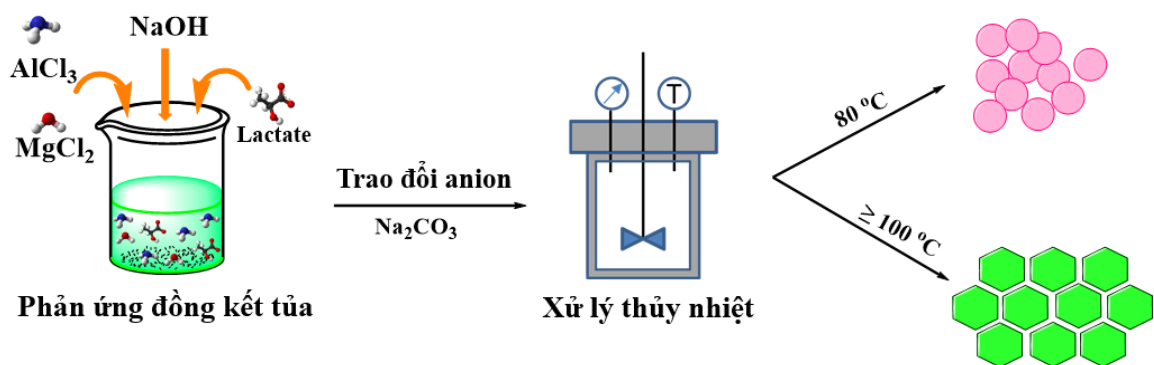


Hình 2.1. Sơ đồ tự thiết kế được sử dụng để đo độ dẫn nhiệt của màng compozit

Trong đó, $R(\lambda)$ là độ phản xạ của mẫu tại bước sóng (λ); (k) là số đo giữa 200 và 2500 nm.

Thiết bị tự thiết kế được sử dụng để mô phỏng ứng dụng cách nhiệt thực tế và đo độ dẫn nhiệt của mẫu màng HSN/epoxy được trình bày trong Hình 2.1. Thiết bị này bao gồm một hộp nhiệt (250 mm x 200 mm x 200 mm) được cách nhiệt bằng polystyren (độ dày 45 mm) và trang bị một bóng đèn hồng ngoại 250 W OSRAM. Các tấm thử được đặt trên đỉnh của hộp nhiệt và một nhiệt kế được đặt tiếp xúc trực tiếp với đáy tấm nhôm phủ HSN/epoxy để theo dõi bất kỳ thay đổi nhiệt độ nào trên bề mặt bên ngoài.

Hệ số dẫn nhiệt của màng compozit HSN/epoxy được đo trên thiết bị C-Therm Trident (Canada).



Hình 2.2. Sơ đồ thí nghiệm tổng hợp hydrotalcite

2.2.4. Phương pháp thực nghiệm

2.2.4.1. Tổng hợp vật liệu hydrotalcite

Hydrotalcite được chuẩn bị bằng cách sử dụng phương pháp đồng kết tủa kết hợp với xử lý thủy nhiệt trong điều kiện khuấy liên tục theo nghiên cứu của Miyata và cộng sự kèm theo một số thay đổi và quy trình được trình bày trên Hình 2.2 và 2.3 [81].

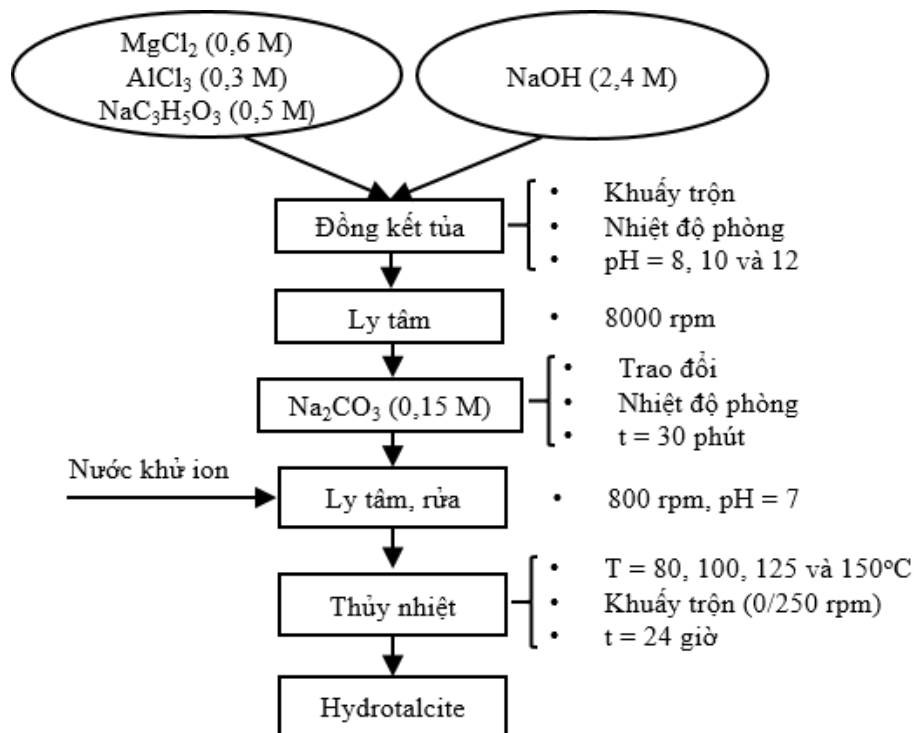
Cách tiến hành: Nhỏ từ từ 160 mL dung dịch NaOH 2,4 M vào hỗn hợp 230 mL dung dịch bao gồm muối kim loại $MgCl_2$ 0,6 M, $AlCl_3$ 0,3 M và $NaC_3H_5O_3$ 0,5 M. Sau khi phản ứng đạt pH cần khảo sát thì hỗn hợp được khuấy tiếp trong 30 phút sau đó dừng quá trình phản ứng. Chất rắn kết tủa sau phản ứng được trao đổi với 500 mL dung dịch Na_2CO_3 0,15 M trong 30 phút, sau đó ly tâm, rửa và phân tán lại trong nước khử ion để thu được dung dịch huyền phù đồng nhất có nồng độ 50 g/L, tiếp đó tiến hành thủy nhiệt tại nhiệt độ cần khảo sát với tốc độ khuấy 250 vòng/phút. Sau phản ứng, HT được ly tâm và rửa nhiều lần với nước khử ion (DI) cho đến khi về môi trường trung tính. Tiếp theo, một phần của vật liệu được phân tán lại trong nước khử ion để có được dung dịch huyền phù đồng nhất với nồng độ 100 g/L nhằm đánh giá

độ bền theo thời gian lưu trữ; phần khác của vật liệu được đem đi sấy khô ở 80 °C trong 5 giờ, sau đó nghiền thành bột mịn trước khi phân tích các đặc trưng hóa lý.

Khảo sát ảnh hưởng của pH trong phản ứng đồng kết tủa và tốc độ khuấy trộn trong quá trình xử lý thủy nhiệt đến đặc trưng của hydrotalcite tại pH 8, pH 10 và pH 12 có tốc độ khuấy là 250 vòng/phút và pH 10 không tiến hành khuấy trộn với ký hiệu lần lượt là HT-8, HT-10, HT-12 và HT-10K. Tất cả các mẫu được tổng hợp ở 125 °C trong 16 giờ.

Tiến hành khảo sát ảnh hưởng của nhiệt độ thủy nhiệt đến đặc trưng vật liệu tại 80, 100, 125 và 150 °C tương ứng với ký hiệu mẫu là HT-80, HT-100, HT-125 và HT-150. Các điều kiện tổng hợp vật liệu được cố định là: pH 10 và thời gian thủy nhiệt trong 24 giờ.

Sơ đồ khối của quy trình tổng hợp:

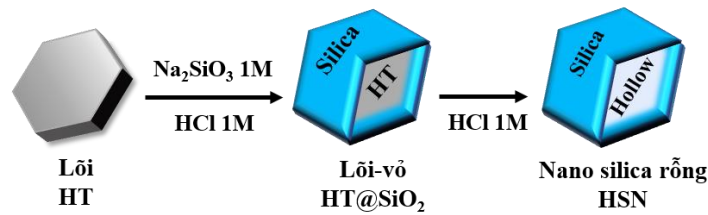


Hình 2.3. Quy trình tổng hợp hydrotalcite

2.2.4.2. Tổng hợp vật liệu nano silica rỗng

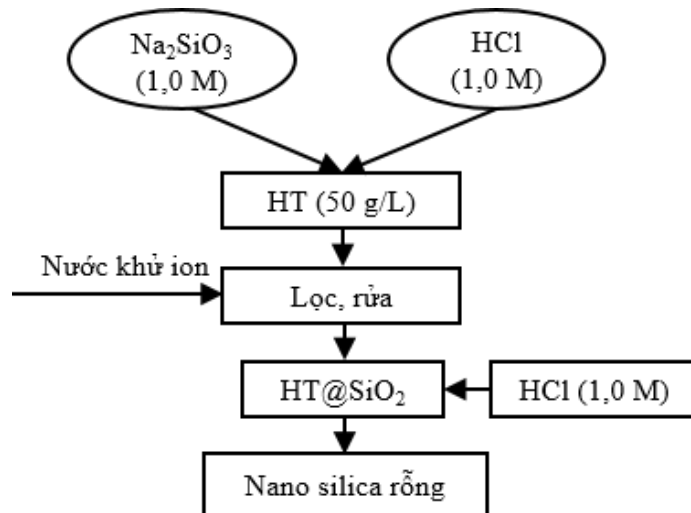
Nano silica rỗng được tổng hợp bằng phương pháp hard-template sử dụng hydrotalcite làm khuôn lõi theo nghiên cứu của Shi và cộng sự kèm theo một số thay đổi [44]. Đây là phương pháp phổ biến để tổng hợp vật liệu nano silica rỗng vì khả năng kiểm soát quá trình tạo hạt và độ dày thành vách của nó. Quy trình tổng hợp gồm ba giai đoạn chính: (1) Tổng hợp lõi hydrotalcite, (2) phủ SiO₂ lên bề mặt khuôn

mẫu HT tạo thành cấu trúc lõi-vỏ HT@SiO₂ và (3) ăn mòn lõi bằng tác nhân axit tạo thành các hạt nano silica rỗng (xem Hình 2.4 và 2.5).



Hình 2.4. Sơ đồ tổng hợp nano silica rỗng

Cách tiến hành: Hydrotalcite được biến tính bề mặt với Na₂SiO₃ bằng cách thêm từ từ hai pha bao gồm 50 mL Na₂SiO₃ 1,0 M (pha A) và HCl 1,0 M (pha B) vào hệ huyền phù HT (50 g/L) trong 12 giờ ở 85 °C với tốc độ khuấy 300 rpm. Độ pH được giữ ở mức 9,5~10 trong suốt quá trình phản ứng. Hỗn hợp thu được được rửa bằng nước DI cho đến khi pH trung tính sau đó dừng lại. Cuối cùng, lõi HT được hòa tan bằng cách thêm từng giọt HCl 1,0 M vào dung dịch chứa HT@SiO₂ ở 85 °C trong 12 giờ cho đến khi đạt được pH cần khảo sát thì dừng lại. Sau quá trình làm rỗng, kết tủa thu được được lọc và rửa bằng phễu lọc chân không cho đến khi đạt pH trung tính và sấy khô trong 8 giờ ở 80 °C trong tủ sấy chân không. Sản phẩm thu được được ký hiệu theo nhiệt độ thủy nhiệt của khuôn lõi HT-125 được chọn là HSN-125.



Hình 2.5. Quy trình tổng hợp nano silica rỗng

Quá trình được thực hiện theo sơ đồ:

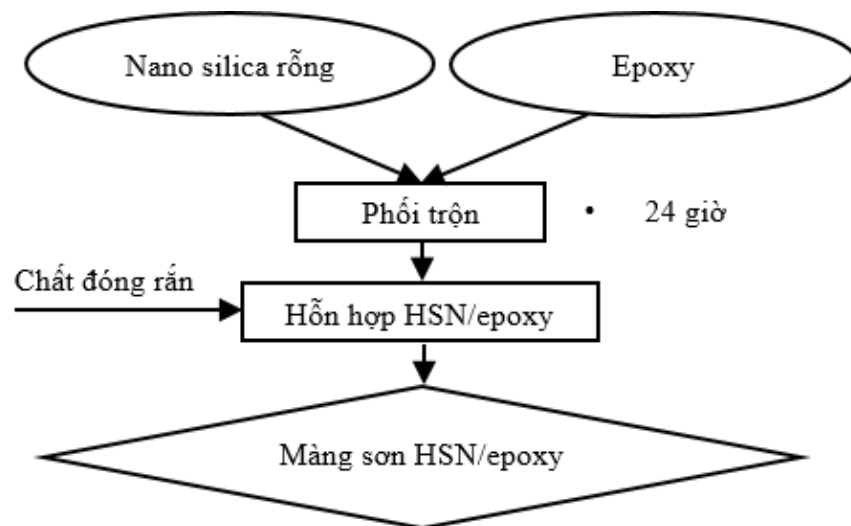
Ảnh hưởng của pH đến quá trình phá lõi được khảo sát tại pH 2,5, 2,0 và 1,5 ở 85 °C trong 12 giờ.

Khảo sát ảnh hưởng của nồng độ Na₂SiO₃ đến độ dày lớp vỏ HSN tại 0,5, 0,75, 1,0, 1,25 và 1,50 M ở 85 °C trong 12 giờ tương ứng với ký hiệu mẫu lần lượt là HSN-0,5, HSN-0,75, HSN-1,0, HSN-1,25 và HSN-1,50.

2.2.4.3. Chuẩn bị màng epoxy chứa nano silica rỗng

Các lớp phủ cách nhiệt HSN/epoxy được chuẩn bị dựa trên sự kết hợp của HSN với epoxy bisphenol A và chất đóng rắn polyamine như thể hiện ở Hình 2.6. Cụ thể, D.E.R 331 được pha loãng trong dung môi methyl isobutyl ketone (MIBK) để tạo ra dung dịch với hàm lượng epoxy là 62,5 wt% (phần A). Đồng thời, chất đóng rắn polyamine XUS 19036.00 cũng được pha loãng trong MIBK để tạo ra dung dịch đóng rắn với hàm lượng là 7,5 wt% (phần B). Tiếp theo, lượng HSN cần khảo sát được thêm vào phần A và trộn đều qua đêm bằng máy khuấy từ. Sau đó, dung dịch đóng rắn được thêm vào hỗn hợp với tỷ lệ trọng lượng 1:4. Hỗn hợp HSN/epoxy sau khi thêm chất đóng rắn được phủ lên tấm nhôm (150 mm x 100 mm x 0,8 mm) để tạo thành lớp phủ cách nhiệt. Các lớp phủ HSN/epoxy được đóng rắn ở 60 °C trong tủ sấy và sau đó màng thu được với độ dày khoảng 500 μm ; màng được lưu trữ 7 ngày trong không khí để đảm bảo quá trình đóng rắn xảy ra hoàn toàn trước khi tiến hành các phân tích khác. Màng cách nhiệt được ký hiệu dựa vào hàm lượng HSN 5, 10, 15 và 20% thêm vào ma trận epoxy lần lượt là 5% HSN/epoxy, 10% HSN/epoxy, 15% HSN/epoxy và 20% HSN/epoxy.

Quy trình chế tạo màng epoxy chứa HSN với hàm lượng khác nhau được thể hiện trong Hình 2.6.

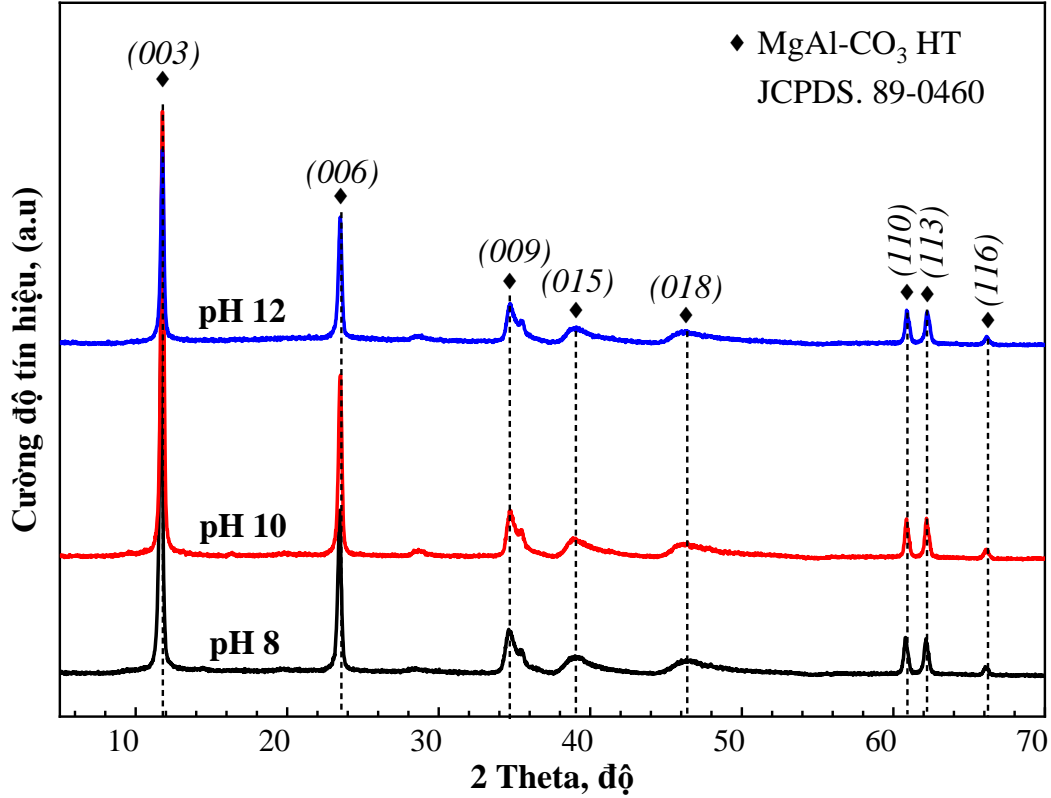


Hình 2.6. Quy trình chế tạo màng epoxy chứa nano silica rỗng với hàm lượng khác nhau

Chương 3. KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN

3.1. TỔNG HỢP VẬT LIỆU HYDROTALCITE

3.1.1. Ảnh hưởng của pH đến quá trình tổng hợp vật liệu hydrotalcite



Hình 3.1. Giản đồ XRD của hydrotalcite tổng hợp ở pH 8, pH 10 và pH 12 tại 125 °C trong 16 giờ

Giản đồ XRD của các mẫu hydrotalcite tổng hợp ở môi trường pH 8, pH 10 và pH 12 ở 125 °C trong 16 giờ được thể hiện trên Hình 3.1. Tất cả các mẫu thu được đều có các đỉnh đặc trưng được xác định rõ tại góc 2θ : 11,57°, 23,31°, 34,54°, 38,71°, 46,36°, 60,69°, 62,01° và 65,96° được gán cho các mặt phẳng nhiễu xạ tương ứng là (0 0 3), (0 0 6), (0 0 9), (0 1 5), (0 1 8), (1 1 0), (1 1 3) và (1 1 6), liên quan đến cấu trúc vật liệu hydrotalcite và tương đồng tài liệu tham khảo [Thẻ JCPDS số 89-0460] [82]. Điều này cho thấy sự tổng hợp thành công vật liệu hydrotalcite bằng phương pháp đồng kết tủa.

Khoảng cách lớp kép d (basal spacing) được tính theo định luật Bragg: $d = \lambda / 2\sin\theta$. Trong đó, λ là bước sóng chùm tia tới ($\lambda = 1,5418$ nm) và θ là góc nhiễu xạ của mặt phẳng (0 0 3).

Thông số mạng tinh thể được xác định thông qua hai giá trị a và c trong đó a đặc trưng cho khoảng cách giữa hai kim loại hóa trị hai và hóa trị ba trong lớp bruxit; c là độ dày của 1 unit cell trong mạng tinh thể hydrotalcite. Tham số mạng tinh thể a

và c được tính toán lần lượt bằng phương trình $a = 2d(1\ 1\ 0)$ và $c = 3d(0\ 0\ 3)$ [68].

Từ kết quả thu được thông qua phương pháp XRD, thông số mạng tinh thể của HT tổng hợp ở pH 8, pH 10 và pH 12 được tính toán và thể hiện trong Bảng 3.1.

Bảng 3.1. Thông số mạng tinh thể của hydrotalcite tổng hợp ở pH 8, pH 10 và pH 12 tại 125 °C trong 16 giờ

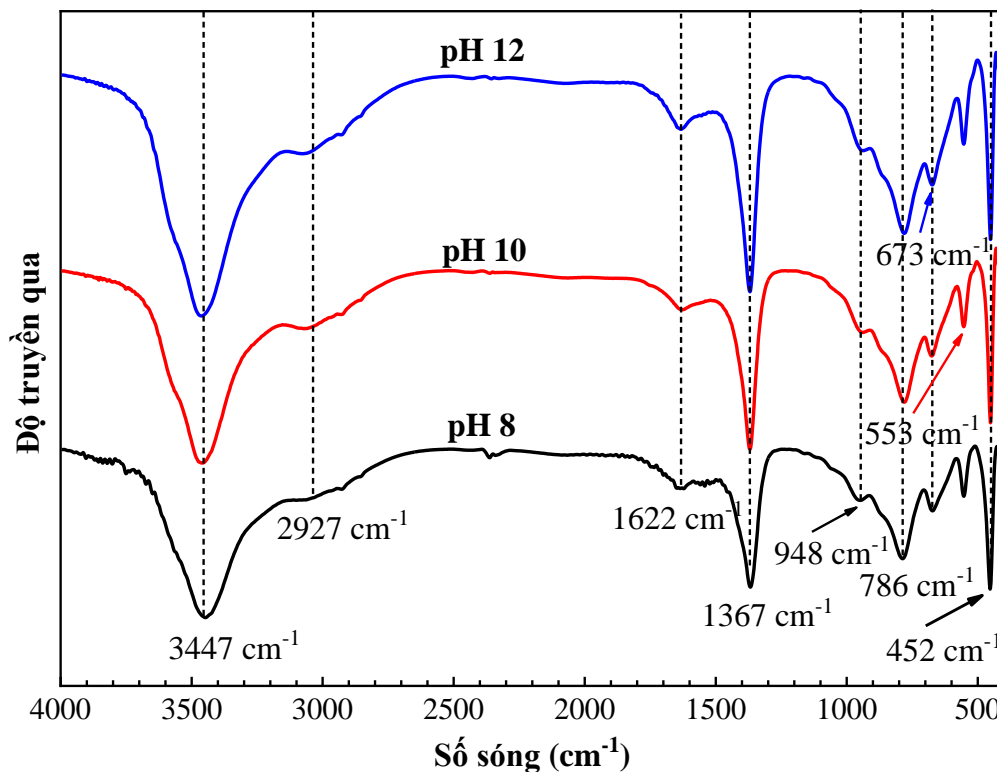
STT	Điều kiện thí nghiệm			FWHM ($0\ 0\ 3$)	$(0\ 0\ 3)$		$(1\ 1\ 0)$		Thông số mạng tinh thể	
	T (°C)	pH	t (giờ)		2 θ (°)	d (Å)	2 θ (°)	d (Å)	a (Å)	c (Å)
1	125	8	16	0,259	11,69	7,57	60,81	1,523	3,05	22,71
2	125	10	16	0,238	11,57	7,64	60,69	1,526	3,05	22,92
3	125	12	16	0,244	11,75	7,53	60,82	1,523	3,05	22,59

Dựa vào Bảng 3.1, giá trị $d(0\ 0\ 3)$ của các mẫu nằm trong khoảng từ 7,53 đến 7,64 Å tương đương với các kết quả nghiên cứu trước đây. Các giá trị của thông số mạng tinh thể a và c lần lượt nằm trong khoảng 3,05 Å và 22,59-22,92 Å; kết quả này phù hợp với tài liệu tham khảo đặc trưng cho vật liệu hydrotalcite với anion xen kẽ carbonate [71,76,81]. Phân tích giá trị độ bán rộng của đỉnh nhiễu xạ đặc trưng tại mặt phẳng $(0\ 0\ 3)$ (FWHM) (xem Bảng 3.1) và giản đồ XRD (xem Hình 3.1) chỉ ra rằng mẫu HT tổng hợp ở pH 10 có cường độ đỉnh nhiễu xạ cao và sắc nét nhất (FWHM = 0,238) trong ba mẫu.

Từ kết quả trên cho thấy pH trong khoảng 8 đến 12 không gây ảnh hưởng lớn đến quá trình tổng hợp hydrotalcite; pH thay đổi dẫn đến sự thay đổi nhỏ về cường độ và độ rộng tương đối các đỉnh đặc trưng của vật liệu. Khi tăng pH từ 8 lên 10, cường độ nhiễu xạ tăng và độ rộng vạch giảm. Tuy nhiên, ở pH 12, các đỉnh nhiễu xạ có cường độ trở nên yếu và kém sắc nét hơn so với HT-10. Điều này cho thấy độ kết tinh của HT giảm trong môi trường có độ kiềm quá cao và ở pH 10, độ tinh thể cao nhất trong các mẫu.

Kết quả FTIR của các mẫu được tổng hợp tại pH 8, pH 10 và pH 12 ở 125 °C trong 16 giờ được thể hiện ở Hình 3.2. Cả 3 mẫu đều cho thấy các đỉnh đặc trưng của hydrotalcite. Cụ thể, dải hấp thụ mạnh ở tần số khoảng 3447 cm^{-1} được gán cho dao động kéo dài của nhóm OH^- . Một vai nhỏ xuất hiện ở tần số 2927 cm^{-1} đặc trưng cho dao động của liên kết hydro giữa anion CO_3^{2-} và H_2O trong lớp xen kẽ [83]. Cường độ tại vai nhỏ này mạnh và rõ hơn khi HT được tổng hợp tại pH 10. Tất cả các mẫu đều có một đỉnh phổ yếu ở 1622 cm^{-1} liên quan đến dao động của nhóm OH^- của phân tử nước xen kẽ trong cấu trúc lớp kép.

Dải hấp thụ mạnh quan sát được ở 1367 cm^{-1} được gán cho các dao động bất đối xứng của CO_3^{2-} trong các lớp xen giữa. Các mẫu đều có các đỉnh ở 786 và 553 cm^{-1} tương ứng với dao động biến dạng của Al-OH . Ngoài ra, các đỉnh ở 673 và 452 cm^{-1} có thể được gán lần lượt cho dao động biến dạng đối xứng của các anion CO_3^{2-} và dao động tịnh tiến của nhóm liên kết Mg-O-Al . Cả 3 mẫu đều có cường độ và vị trí đỉnh hấp thụ gần như trùng lặp với nhau chứng tỏ tính ổn định của phương pháp điều chế mặc dù điều kiện tổng hợp ở giá trị pH khác nhau. Kết quả FTIR góp phần minh chứng cho sự hình thành của vật liệu hydrotalcite.



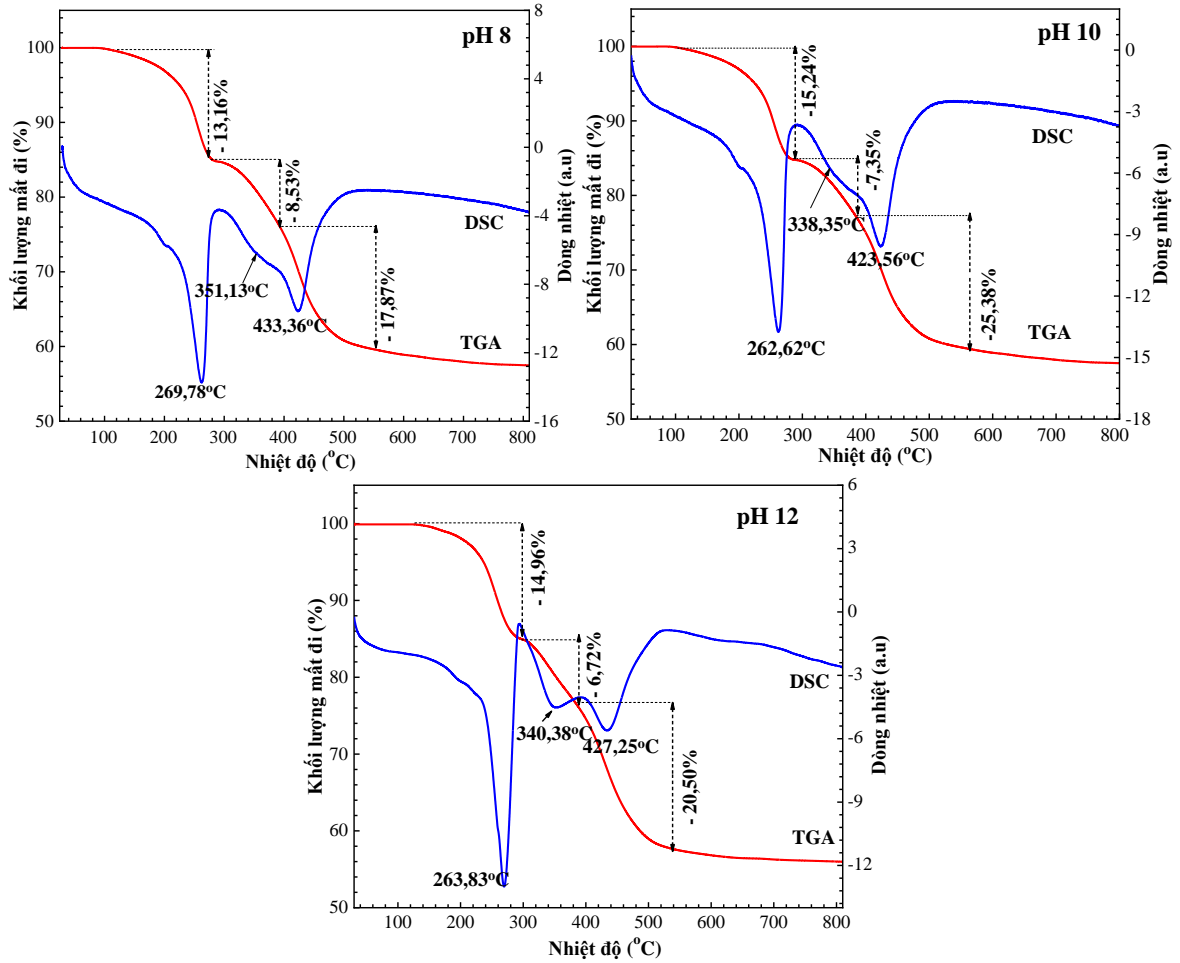
Hình 3.2. Phổ hồng ngoại của hydrotalcite tổng hợp tại pH 8, pH 10 và pH 12 ở 125°C trong 16 giờ

Ba giai đoạn giảm trọng lượng của mẫu hydrotalcite tổng hợp ở pH 8, pH 10 và pH 12 ở 125°C trong 16 giờ được ghi nhận từ giản đồ TG-DSC và lần lượt được thể hiện trong Hình 3.3. Quá trình nung được thực hiện từ nhiệt độ phòng đến 800°C với tốc độ gia nhiệt là 10°C/phút , độ giảm khối lượng của mẫu vật liệu tăng cùng với sự tăng của nhiệt độ xử lý.

Giai đoạn đầu tiên, từ 120 đến 280°C , sự giảm khối lượng của HT-8, HT-10 và HT-12 lần lượt là 13,16, 15,24 và 14,96%, điều này được gán cho sự hao hụt nước giữa các lớp xen kẽ và bay hơi CO_2 [83]. Tiếp theo, từ khoảng 300 đến 380°C , giai đoạn này xảy ra sự phân hủy các lớp hydroxit và loại bỏ các anion CO_3^{2-} làm mất khối lượng lần lượt là 8,53, 7,35 và 6,72%, tương ứng với các mẫu tổng hợp ở pH 8, pH

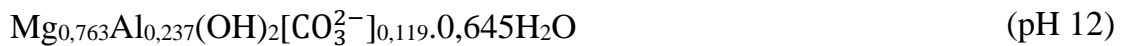
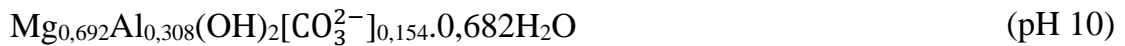
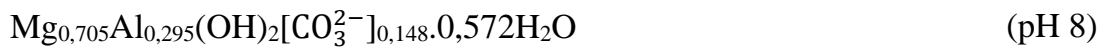
10 và pH 12. Sau đó, CO_3^{2-} còn lại trong HT-8, HT-10 và HT-12 được loại bỏ trong vùng giảm trọng lượng tiếp theo (380–450 °C) là 17,87, 25,38 và 20,50%. Giai đoạn cuối cùng xảy ra ở nhiệt độ từ 450 đến 800 °C, do sự hình thành spinel (MgAl_2O_4) với sự mất khối lượng không đáng kể của ba mẫu.

Kết quả phân tích TG-DSC đã góp phần minh chứng cho sự thành công của quá trình tổng vật liệu hydrotalcite bằng phương pháp đồng kết tủa ở các giá trị pH khác nhau kết hợp với xử lý thủy nhiệt.



Hình 3.3. Giảm đồ TG-DSC của hydrotalcite tổng hợp ở pH 8, pH 10 và pH 12

Tỷ lệ mol $[\text{Mg}]/[\text{Al}]$ của các mẫu HT tổng hợp ở pH 8, 10 và 12 lần lượt là 2,39, 2,24 và 3,22 và được thể hiện ở Bảng 3.2. Điều kiện tổng hợp ở pH 10 cho giá trị mol Mg/Al gần với giá trị lý thuyết nhất (2,07). Từ kết quả ICP-OES thành phần Mg, Al và kết quả phân tích TG-DSC, công thức phân tử (CTPT) của hydrotalcite được xác định là:

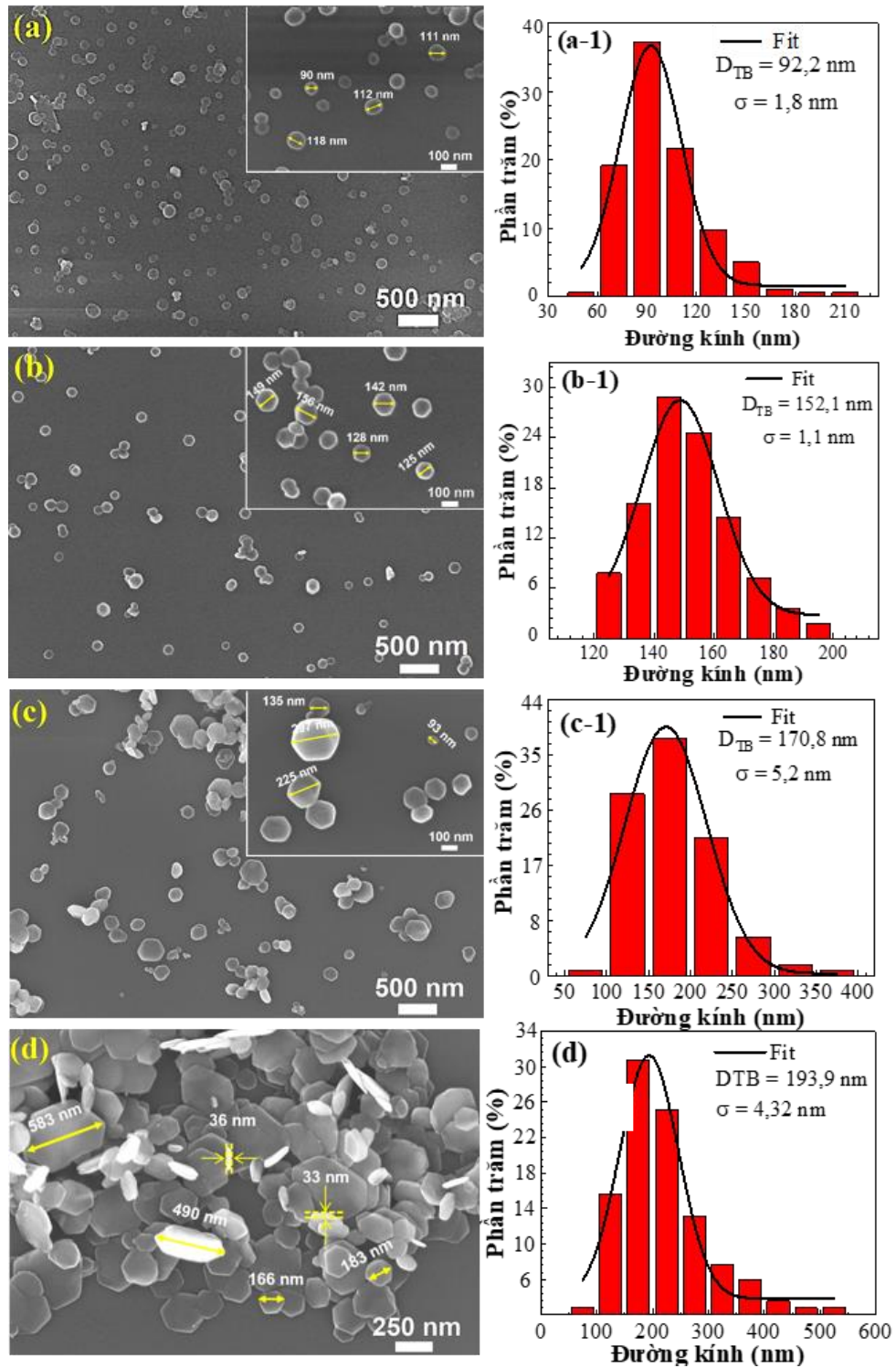


Trong đó, hàm lượng nước trong CTPT được xác định bằng sự mất khối lượng mẫu từ nhiệt độ phòng đến 280 °C dựa trên kết quả TG-DSC của các mẫu tương ứng.

Bảng 3.2. Kết quả phân tích kim loại và công thức phân tử của hydrotalcite

pH	Khối lượng (wt.%)		Tỷ lệ mol [Mg]/[Al]	Công thức
	Mg	Al		
8	18,80	8,63	2,39	$\text{Mg}_{0,705}\text{Al}_{0,295}(\text{OH})_2[\text{CO}_3^{2-}]_{0,148} \cdot 0,572\text{H}_2\text{O}$
10	23,50	11,6	2,24	$\text{Mg}_{0,692}\text{Al}_{0,308}(\text{OH})_2[\text{CO}_3^{2-}]_{0,154} \cdot 0,682\text{H}_2\text{O}$
12	21,12	7,28	3,22	$\text{Mg}_{0,763}\text{Al}_{0,237}(\text{OH})_2[\text{CO}_3^{2-}]_{0,119} \cdot 0,645\text{H}_2\text{O}$

Ảnh FE-SEM và giản đồ phân bố kích thước hạt của HT-8, HT-10, HT-12 và HT-10K được thể hiện trên Hình 3.4. Trong đó, các mẫu HT-8, HT-10 và HT-12 được tổng hợp ở pH lần lượt là 8, 10 và 12 trong điều kiện khuấy liên tục ở 125 °C trong 16 giờ và HT-10K được thủy nhiệt trong điều kiện không khuấy trộn ở pH 10 với nhiệt độ và thời gian tổng hợp tương tự. Ảnh FE-SEM cho thấy độ pH và sự khuấy trộn trong quá trình thủy nhiệt có ảnh hưởng lớn đến hình dạng và kích thước hạt nano HT. Cụ thể, ở pH thấp (pH 8), các hạt nano HT dạng hạt phẳng với các cạnh bo tròn, mỏng và có sự phân bố đồng đều với kích thước trung bình khoảng 92,2 nm (Hình 3.4-a và a-1). Khi pH tăng, các hạt nano lớn hơn và có xu hướng ngày càng hoàn thiện về hình thái lục giác, tương tự tài liệu tham khảo trước đây [71]. Ở pH 10 (Hình 3.4-b và b-1), sự phân bố kích thước tinh thể hẹp (kích thước trung bình khoảng 152,1 nm) và hình dạng lục giác của các tấm nano được quan sát rõ ràng. Tuy nhiên, khi tổng hợp HT cũng ở pH 10 nhưng không hỗ trợ khuấy trộn trong quá trình thủy nhiệt, các hạt nano bắt đầu xuất hiện sự không đồng đều về kích thước và hình dạng hạt tinh thể, với kích thước hạt phân bố trong phạm vi rộng từ 50 đến 550 nm, các hạt tinh thể này có xu hướng kết dính và có cụm lại với nhau thành những mảng lớn (xem Hình 3.4-d). Phân tích ảnh FE-SEM và giản đồ phân bố kích thước hạt của hai mẫu này chỉ ra rằng sự khuấy trộn có ảnh hưởng đáng kể trong việc kiểm soát kích thước và sự phân bố của các hạt nano HT. Ở pH 12, các hạt nano được hình thành có hình dạng và kích thước hạt không đồng đều với giá trị trung bình khoảng 170,8 nm kèm theo sai số lớn (5,2 nm); các hạt nano này xuất hiện cả dạng hình cầu và lục giác không đồng đều. Yue Shi cho rằng, khi phản ứng xảy ra ở pH cao, quá trình phát triển tinh thể dẫn đến sự bão hòa, gây ra sự tụ hợp và hạn chế sự phát triển hình dạng vật liệu một cách đồng đều [44].

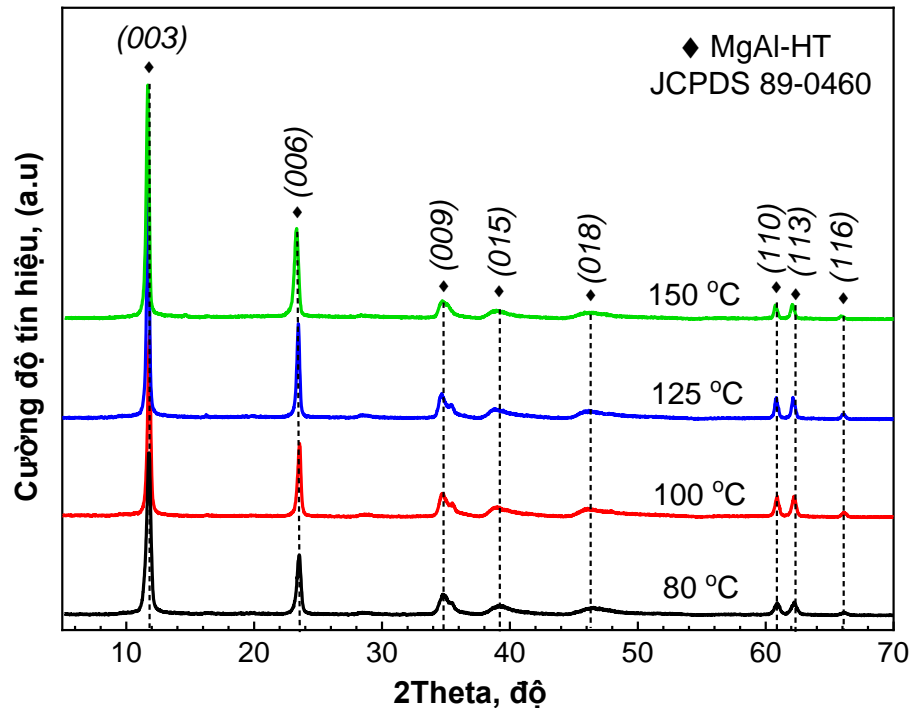


Hình 3.4. Ảnh FE-SEM và giản đồ phân bố kích thước hạt của HT-8 (a), HT-10 (b), HT-12 (c) và HT-10K

Kết quả trên cho thấy việc duy trì độ pH và điều kiện khuấy trộn trong quá trình xử lý thủy nhiệt là cần thiết để kiểm soát kích thước và hình dạng đồng nhất của các hạt nano. Trong đó, HT-10 có kích thước hạt đồng đều và hình dạng lục giác rõ ràng nhất trong các mẫu được khảo sát. Vì vậy, quá trình tổng hợp HT sẽ cố định pH

10 trong điều kiện khuấy trộn khi xử lý thủy nhiệt để tiếp tục khảo sát các yếu tố khác.

3.1.2. Ảnh hưởng của nhiệt độ đến quá trình tổng hợp vật liệu hydrotalcite



Hình 3.5. Giản đồ XRD của HT-80, HT-100, HT-125 và HT-150 tổng hợp ở 80, 100, 125 và 150 °C tại pH 10 trong 24 giờ

Giản đồ XRD của HT-80, HT-100, HT-125 và HT-150 được tổng hợp với nhiệt độ thủy nhiệt lần lượt là 80, 100, 125 và 150 °C trong 24 giờ được thể hiện trên Hình 3.5. Giản đồ XRD của 4 mẫu đều xuất hiện các đỉnh đặc trưng của hydrotalcite điển hình và không quan sát thấy các pha tạp chất nào khác. Bên cạnh đó, ở nhiệt độ thủy nhiệt khác nhau, các đỉnh nhiễu xạ ở mặt phẳng (0 0 3), (0 0 6), (0 0 9) được ghi nhận có độ sắc nét cao và hẹp. Điều này chứng tỏ cấu trúc đối xứng 3D được hình thành trong quá trình thủy nhiệt [69]. Khoảng cách lớp kép d(0 0 3) của HT tổng hợp ở 80 đến 150 °C nằm trong khoảng 7,49-7,67 Å, điều này chỉ ra rằng có sự hiện diện của anion CO_3^{2-} trong lớp xen giữa [71,76,81]. Bên cạnh đó, giá trị độ bán rộng của đỉnh nhiễu xạ tại mặt phẳng (0 0 3) (FWHM) giảm dần theo sự tăng của nhiệt độ thủy nhiệt (xem Bảng 3.3). Cụ thể, giá trị FWHM của các mẫu HT-80, HT-100, HT-125 và HT-150 lần lượt là 0,378, 0,275, 0,246 và 0,271. Giá trị FWHM tỷ lệ nghịch với độ sắc nét của đỉnh đặc trưng cho vật liệu hydrotalcite, điều này chứng tỏ khi nhiệt độ thủy nhiệt càng cao thì cường độ của đỉnh nhiễu xạ đặc trưng càng mạnh. Tuy nhiên, khi thủy nhiệt đến 150 °C, cường độ và độ sắc nét của đỉnh nhiễu xạ có dấu

hiệu giảm. Từ kết quả trên có thể thấy mẫu HT được tổng hợp ở 125 °C trong 24 giờ có cường độ đỉnh nhiễu xạ và độ sắc nét tốt nhất.

Thông số mạng tinh thể của vật liệu được tính toán từ giản đồ XRD và trình bày trong Bảng 3.3. Dựa vào kết quả tính toán từ Bảng 3.3, khoảng cách lớp kép $d(003)$, thông số mạng tinh thể a và c có giá trị lần lượt nằm trong khoảng 7,49-7,67 Å, 3,042-3,058 Å và 22,47-23,01 Å, gần với các kết quả trong nghiên cứu trước đây [71].

Kết quả phân tích XRD cho thấy nhiệt độ thủy nhiệt không có ảnh hưởng lớn sự hình thành vật liệu hydrotalcite. Trong khoảng nhiệt độ được khảo sát, HT-125 tổng hợp ở 125 °C có cường độ đỉnh đặc trưng cao và sắc nét với giá trị FWHM nhỏ nhất (0,2462), chứng tỏ HT-125 có độ kết tinh tốt nhất trong tất cả các mẫu được khảo sát.

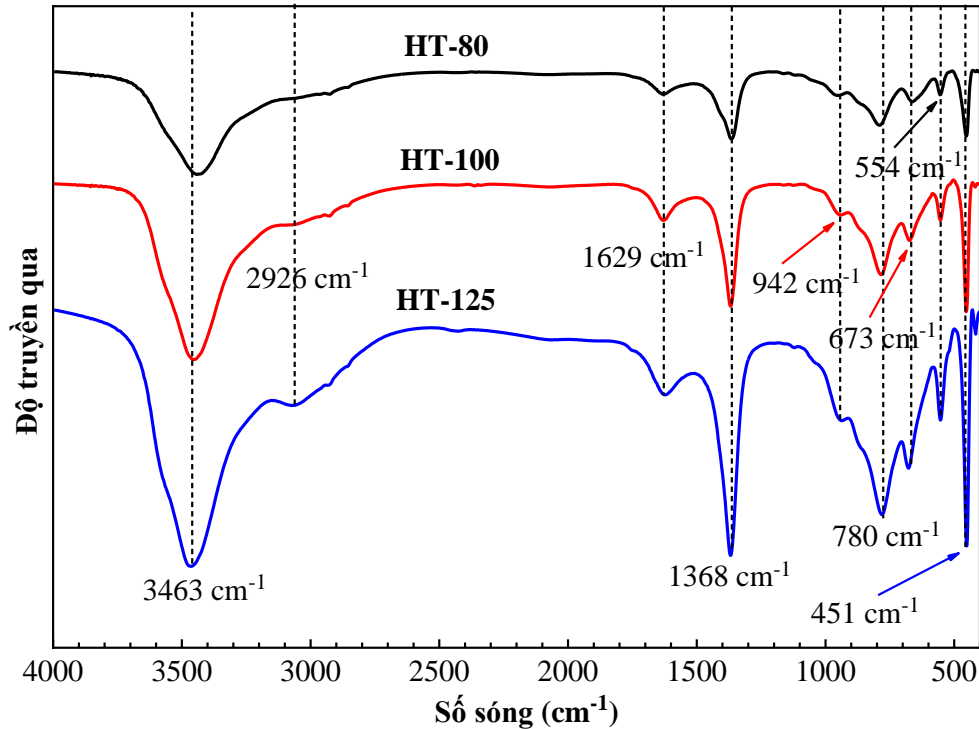
Bảng 3.3. Thông số mạng tinh thể của hydrotalcite thủy nhiệt ở 80, 100, 125 và 150 °C ở pH 10 trong 24 giờ

STT	Điều kiện thí nghiệm			FWHM (003)	(003)		(110)		Thông số mạng tinh thể	
	T(°C)	pH	t (giờ)		2 θ (°)	d(Å)	2 θ (°)	d(Å)	a(Å)	c(Å)
1	80	10	24	0,378	11,53	7,67	60,80	1,523	3,046	23,01
2	100	10	24	0,275	11,81	7,49	60,91	1,521	3,042	22,47
3	125	10	24	0,246	11,67	7,58	60,87	1,522	3,044	22,74
4	150	10	24	0,271	11,53	7,67	60,57	1,529	3,058	23,01

Kết quả FTIR của HT-80, HT-100 và HT-125 được tổng hợp ở 80, 100 và 125 °C tại pH 10 trong 24 giờ được trình bày trong Hình 3.6. Tất cả các mẫu đều thể hiện rõ các đỉnh đặc trưng của vật liệu hydrotalcite điển hình. Phổ FTIR của cả 3 mẫu đều thể hiện các dao động ở tần số khoảng 3463 cm^{-1} , đặc trưng cho dao động hóa trị đối xứng và không đối xứng của liên kết –OH của lớp nước xen giữa và –OH trong cấu trúc vật liệu hydrotalcite. Một vai dao động nhỏ tại tần số khoảng 2926 cm^{-1} xuất hiện ở giản đồ FTIR của ba mẫu được gán cho dao động của liên kết -H tạo thành giữa H_2O với anion CO_3^{2-} xen giữa. Tiếp theo, đỉnh phổ yếu ở 1629 cm^{-1} , đặc trưng cho dao động biến dạng của của nhóm OH^- của phân tử nước xen giữa cấu trúc hydrotalcite [83].

Anion cacbonat (CO_3^{2-}) có các đỉnh hấp thụ tại 1368 cm^{-1} , 780 cm^{-1} , 673 cm^{-1} [11]. Bên cạnh đó, đỉnh phổ đặc trưng tại 780 cm^{-1} và 554 cm^{-1} tương ứng với các dao động của Al–OH. Đỉnh hấp thụ ở 451 cm^{-1} có liên quan đến dao động kéo dài M-

O (M = Mg và Al) trong các lớp bát diện. Kết quả phân tích FTIR chỉ ra rằng các mẫu được khảo sát đều có sự tương đồng về dao động đặc trưng của vật liệu hydrotalcite. Điều này minh chứng cho khả năng tổng hợp thành công HT bằng phương pháp đồng kết tủa kết hợp với xử lý thủy nhiệt.



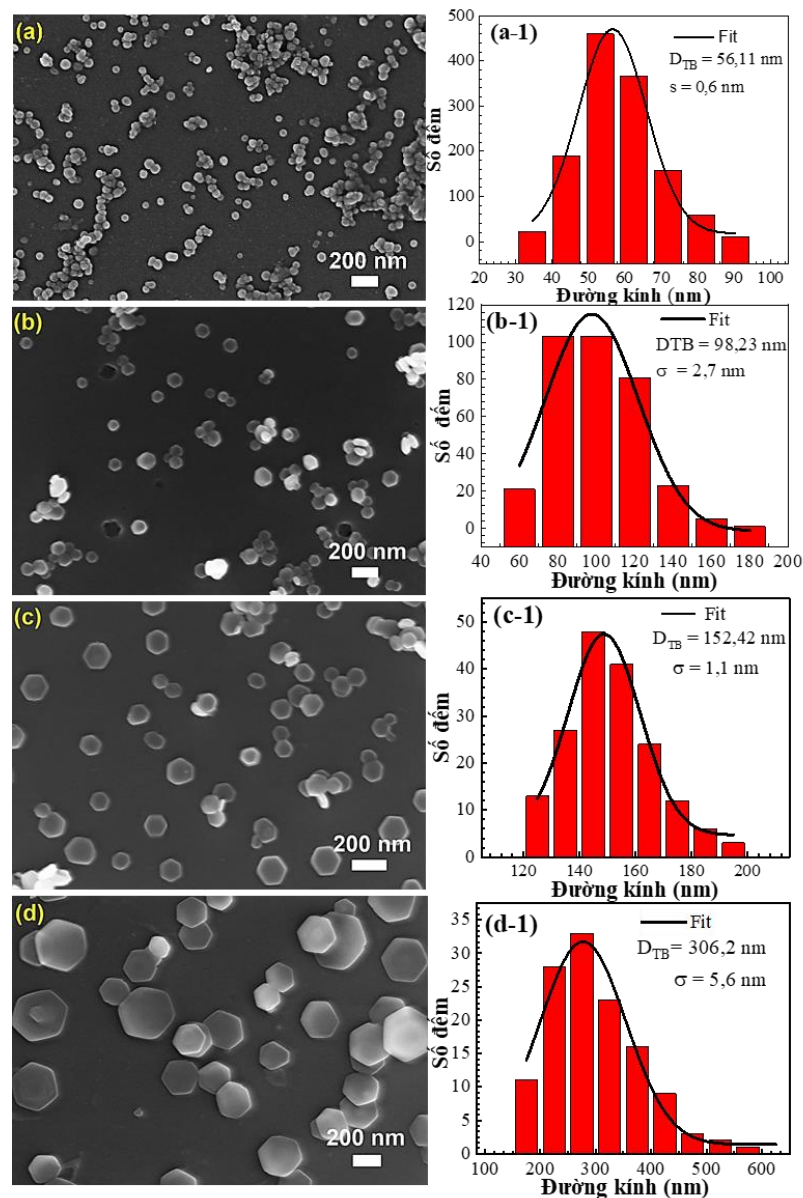
Hình 3.6. Phổ hồng ngoại của hydrotalcite tổng hợp ở 80, 100 và 125 °C tại pH 10 trong 24 giờ

Bảng 3.4. Đặc trưng của HT-80, HT-100, HT-125 và HT-150 được tổng hợp ở 80, 100, 125 và 150 °C tại pH 10 trong 24 giờ

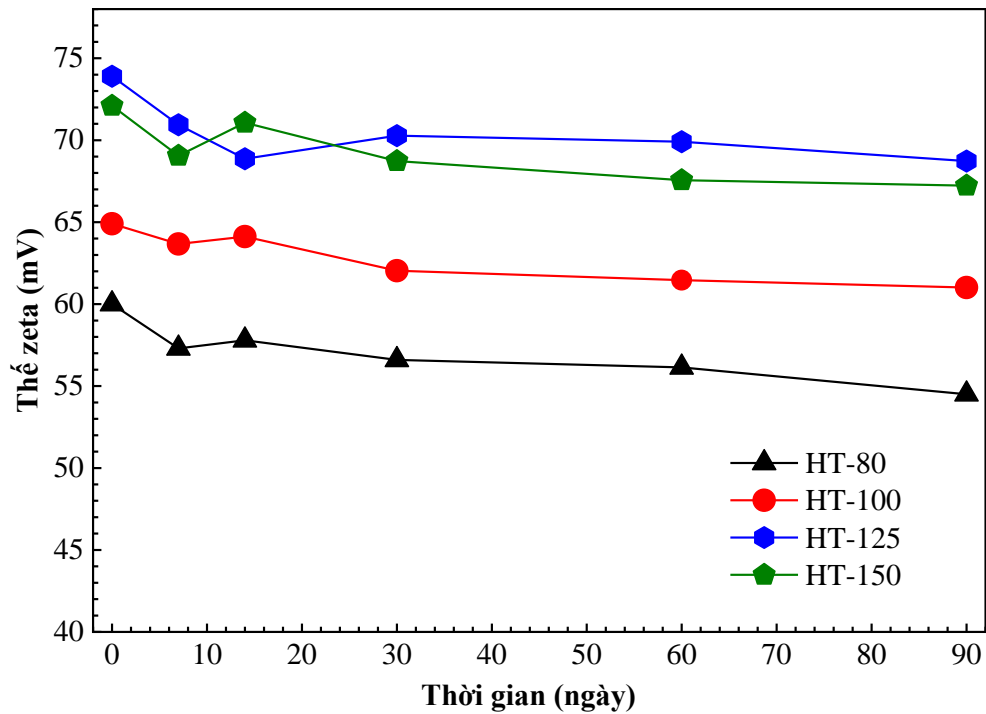
Tên mẫu	Hình thái	Kích thước trung bình (nm)	Diện tích bề mặt (m ² /g)
HT-80	Hình cầu	56,11	84,81
HT-100	Lục giác	98,23	70,18
HT-125	Lục giác	152,42	71,34
HT-150	Lục giác	306,2	79,08

Ảnh FE-SEM và giản đồ phân bố kích thước hạt của HT-80, HT-100, HT-125 và HT-150 được trình bày trong Hình 3.7. Kích thước hạt trung bình tương ứng của các mẫu được thể hiện trong Bảng 3.4. Ảnh FE-SEM và đồ thị phân bố kích thước hạt của các mẫu cho thấy khi tăng nhiệt độ thủy nhiệt từ 80 đến 150 °C thì kích thước trung bình của vật liệu tăng từ 150 đến 600 nm. Cụ thể, ở 80 °C, các tinh thể được hình thành có dạng hình cầu với kích thước các hạt nano đồng đều và nằm trong khoảng 56,11 nm. Tiếp theo, ở 100 và 125 °C, kích thước các hạt nano tăng dần với

hình dạng lục giác được hình thành và ngày càng được quan sát rõ, đặc biệt là mẫu HT-125. Kích thước trung bình của HT-100 và HT-125 lần lượt là 98,23 và 152,42 nm. Ở 150 °C, hạt HT dạng lục giác với kích thước không đồng đều trải rộng trong khoảng 150-600 nm và kích thước hạt trung bình khoảng 306,2 nm với sai số lớn (5,6 nm). Từ ảnh FE-SEM có thể thấy nhiệt độ thủy nhiệt có ảnh hưởng lớn đến hình dạng và kích thước tinh thể. Nhiệt độ thủy nhiệt càng cao thì các hạt nano được hình thành càng hoàn thiện với kích thước tinh thể phân bố nhỏ và hình lục giác rõ ràng. Tuy nhiên, khi nhiệt độ tăng quá cao (150 °C) dẫn đến các tinh thể xuất hiện sự phát triển không đồng đều về kích thước và hình dạng.



Hình 3.7. Ảnh FE-SEM và giản đồ phân bố kích thước hạt HT-80 (a, a-1), HT-100 (b, b-1), HT-125 (c, c-1) và HT-150 (d, d-1) được tổng hợp ở 80, 100, 125 và 150 °C tại pH 10 trong 24 giờ



Hình 3.8. Thế zeta của HT-80, HT-100, HT-125 và HT-150 được bảo quản trong 90 ngày

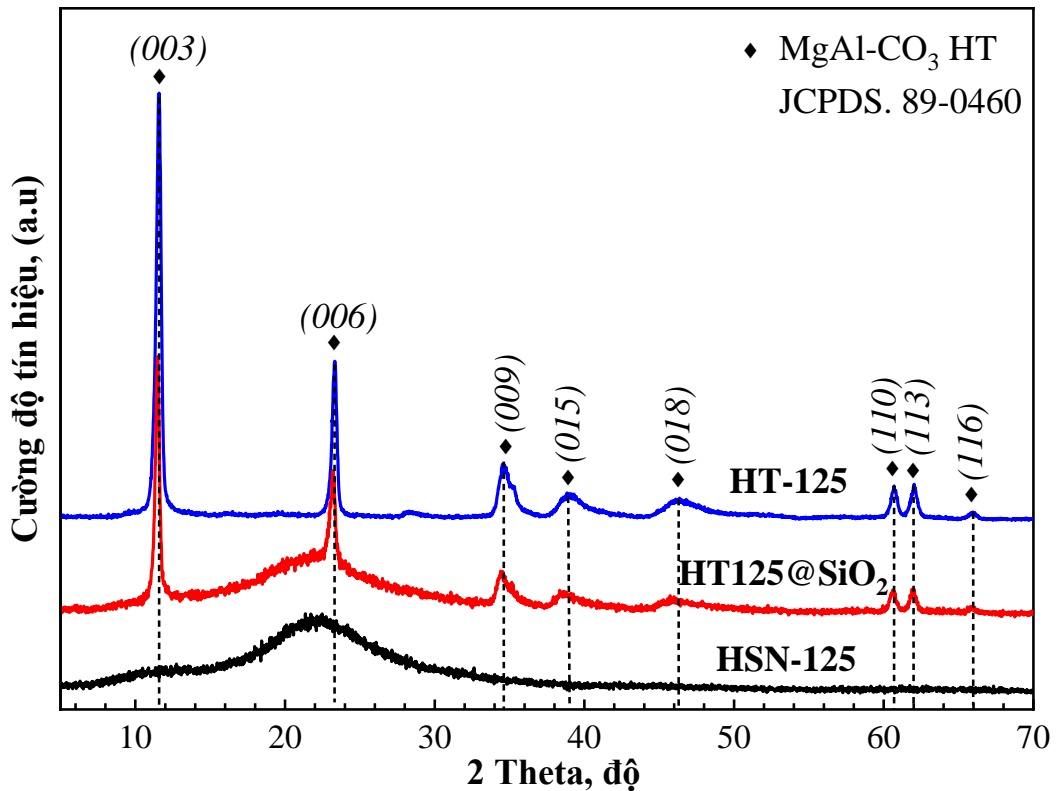
Thế zeta được ghi nhận dựa vào điện tích tồn tại trên bề mặt của các hạt nano và cho thấy độ bền của hệ keo hình thành [84]. Thế zeta của HT-80, HT-100, HT-125 và HT-150 trong nước (3 g/L) được trình bày trên Hình 3.8. Mẫu HT-80 thu được điện thế zeta thấp nhất là 60,0 mV. Điện thế zeta được cải thiện trong khoảng 60,0-75,6 mV bằng cách tăng nhiệt độ thủy nhiệt trong khoảng từ 100 đến 150 °C. Trong ảnh FE-SEM (Hình 3.7), mẫu HT-80 dạng hình cầu có kích thước hạt đồng đều và nhỏ hơn so với các mẫu còn lại. Trong khi đó, các mẫu được tổng hợp ở nhiệt độ cao hơn có kích thước hạt lớn hơn HT-80 với bề mặt hạt nhẵn. Từ kết quả zeta cho thấy mẫu có các hạt nano hình dạng rõ ràng, bề mặt nhẵn nhụi có điện thế zeta cao hơn các hạt có kích thước nhỏ và bề mặt sần sùi. Kết quả cho thấy trong 90 ngày bảo quản, tất cả các huyền phù đồng nhất đều cho giá trị điện thế zeta cao, chứng tỏ tính bền vững của hệ nano HT trong suốt thời gian bảo quản.

3.2. TỔNG HỢP VẬT LIỆU NANO SILICA RỖNG

Đặc trưng hóa lý và ảnh hưởng của nồng độ Na_2SiO_3 đến độ dày vỏ của vật liệu nano silica rỗng được nghiên cứu bằng một loạt thí nghiệm sử dụng HT-125 làm khuôn lõi cố định và Na_2SiO_3 làm tiền chất silica với các nồng độ được sử dụng khác nhau theo mục đích nghiên cứu. Đặc trưng hóa lý của vật liệu được xác định bằng các phương pháp phân tích bao gồm XRD, FTIR, TGA, FE-SEM, TEM, STEM, EDS, BET, thế zeta và UV-Vis-NIR. Độ dày lớp vỏ được xác định bằng ảnh TEM. Bên

cạnh đó, ảnh hưởng của độ dày vỏ đến độ phản xạ của HSN cũng được phân tích bằng phương pháp UV-Vis-NIR.

3.2.1. Đặc trưng hóa lý của vật liệu nano silica rỗng



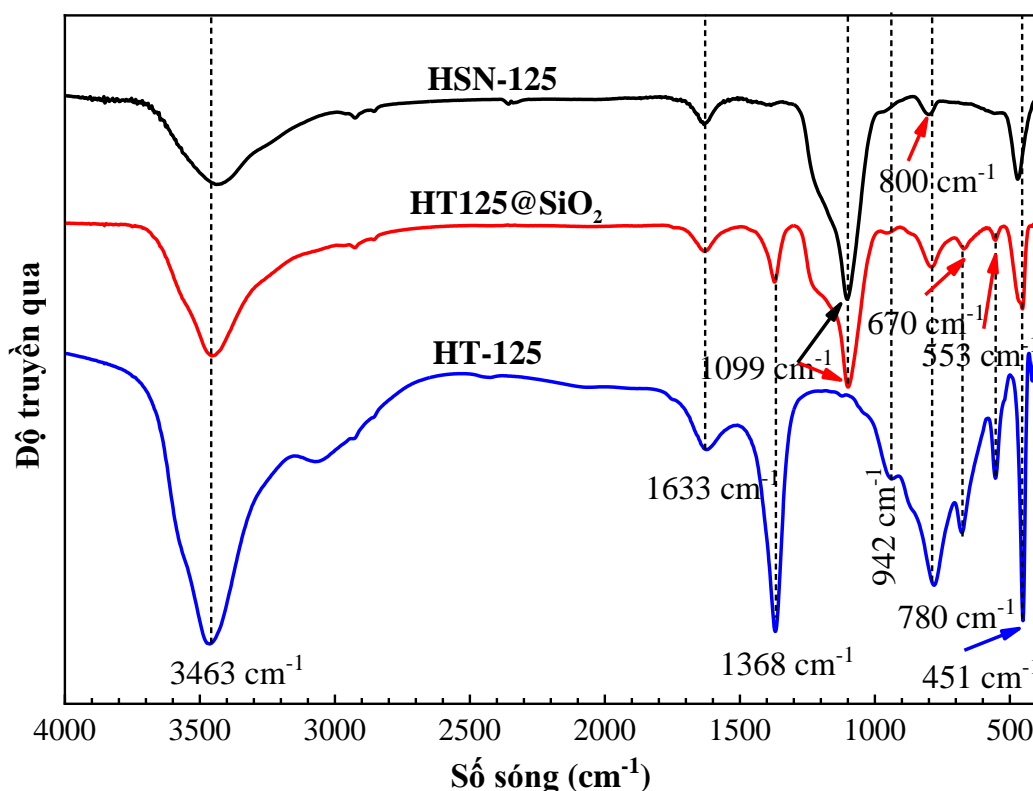
Hình 3.9. Giản đồ XRD của HT-125, HT125@SiO₂ và HSN-125

Giản đồ XRD của HT-125, HT125@SiO₂ và HSN-125 phá lỗi đến pH 1,5 được trình bày trong Hình 3.9.

Giản đồ XRD của HT125@SiO₂ xuất hiện các đỉnh nhiễu xạ đặc trưng của vật liệu hydrotalcite [Thẻ JCPDS số. 89-0460] tại 2θ : 11,53°, 23,31°, 34,52°, 38,54°, 46,47°, 60,79°, 61,82° và 65,89° được gán cho các mặt phẳng nhiễu xạ tương ứng là (0 0 3), (0 0 6), (0 0 9), (0 1 5), (0 1 8), (1 1 0), (1 1 3) và (1 1 6). Ngoài ra, d của mặt nhiễu xạ (0 0 3), (0 0 6), (0 0 9), (1 1 0) và (1 1 3) lần lượt là 7,67, 3,82, 2,60, 1,52 và 1,50 Å; phù hợp với những kết quả đã được công bố về vật liệu hydrotalcite trước đây [71]. Bên cạnh đó, cường độ đỉnh nhiễu xạ đặc trưng cao và không có đỉnh tạp chất xuất hiện cho thấy rằng HT-125 có độ kết tinh tốt và độ tinh khiết cao của pha hydrotalcite điển hình. So sánh giản đồ XRD của HT-125 và HT125@SiO₂ cho thấy các đỉnh nhiễu xạ gần như không có sự thay đổi đáng kể sau quá trình phủ mẫu, điều này chỉ ra rằng không có sự xâm nhập của bất kỳ anion lạ nào vào lớp xen giữa của cấu trúc hydrotalcite và xác nhận cấu trúc hydrotalcite được bảo toàn trong suốt quá trình phản ứng. Tuy nhiên, tín hiệu đường nền của HT125@SiO₂ dâng cao ở phạm vi dưới 30°, chứng minh rằng có cấu trúc vô định hình của lớp phủ tồn tại trong mẫu

HT125@SiO₂ [27]. Bên cạnh đó, giá trị độ bán rộng đỉnh nhiễu xạ trên mặt phẳng (0 0 3) (FWHM) của HT125@SiO₂ (0,341) cao hơn so với HT-125 (0,246), điều này chứng tỏ sau quá trình phủ mẫu, cường độ và độ sắc nét của mẫu giảm mạnh so với vật liệu hydrotalcite sử dụng ban đầu.

Sau quá trình làm rỗng tại pH 1,5, các đỉnh nhiễu xạ đặc trưng cho vật liệu HT biến mất khỏi giản đồ XRD để lại một đỉnh nhiễu xạ rộng với cường độ cao tại $2\theta = 22,07^\circ$, đặc trưng cho silic dioxit (SiO₂) cấu trúc vô định hình. Kết quả này cung cấp bằng chứng cho việc tổng hợp thành công HT125@SiO₂ và HSN-125.



Hình 3.10. Phổ hồng ngoại của HT-125, HT125@SiO₂ và HSN-125

Sự phát triển của lớp phủ SiO₂ lên bề mặt HT được xác nhận thêm bằng phổ FTIR (xem Hình 3.10), thể hiện những thay đổi đáng chú ý về cường độ và sự có mặt của các đỉnh hấp thụ. Đối với HT và HT@SiO₂, đỉnh hấp thụ mạnh ở tần số khoảng 3454 cm⁻¹ có liên quan đến dao động của liên kết -OH của lớp nước xen giữa và -OH trong cấu trúc hydrotalcite. Bên cạnh đó, đối với mẫu HT125@SiO₂ và HSN-125, đỉnh hấp thụ với cường độ mạnh này còn đặc trưng cho nhóm OH- trên bề mặt nano silica.

Cả 3 mẫu HT-125, HT125@SiO₂ và HSN-125 đều xuất hiện vân phổ 1633 cm⁻¹ với cường độ yếu liên quan đến dao động của liên kết O-H trong nước xen giữa cấu trúc vật liệu. Giản đồ FTIR của HT-125 và HT125@SiO₂ đều xuất hiện các đỉnh hấp thụ mạnh ở 1368 cm⁻¹ tương ứng với dao động bất đối xứng của nhóm CO₃²⁻

trong các lớp xen giữa. Cũng trong quả phân tích FTIR của hai mẫu này, cái dải hấp thụ ở vùng nhỏ hơn 1000 cm^{-1} bao gồm các đỉnh ở 780 cm^{-1} , 670 cm^{-1} , 553 cm^{-1} và 451 cm^{-1} lần lượt đặc trưng cho dao động biến dạng cầu Al-OH và các dao động tịnh tuyến của liên kết M-O-M và O-M-O trong hydrotalcite với M là Mg hoặc Al [83,85].

So sánh HT@SiO₂ với HT tinh khiết, những thay đổi đáng chú ý đã được ghi nhận lại trong khoảng $1300\text{--}700\text{ cm}^{-1}$, cho thấy sự xuất hiện của SiO₂ trong mẫu vật liệu. HT@SiO₂ xuất hiện thêm đỉnh hấp thụ ở tần số 1099 cm^{-1} đặc trưng cho dao động kéo giãn Si-O-Si và Si-O (800 cm^{-1}) [59,86,87], những kết quả trên đặc trưng cho việc hình thành lớp phủ SiO₂ trong cấu trúc lõi-vỏ HT125@SiO₂ của phản ứng phủ mẫu.

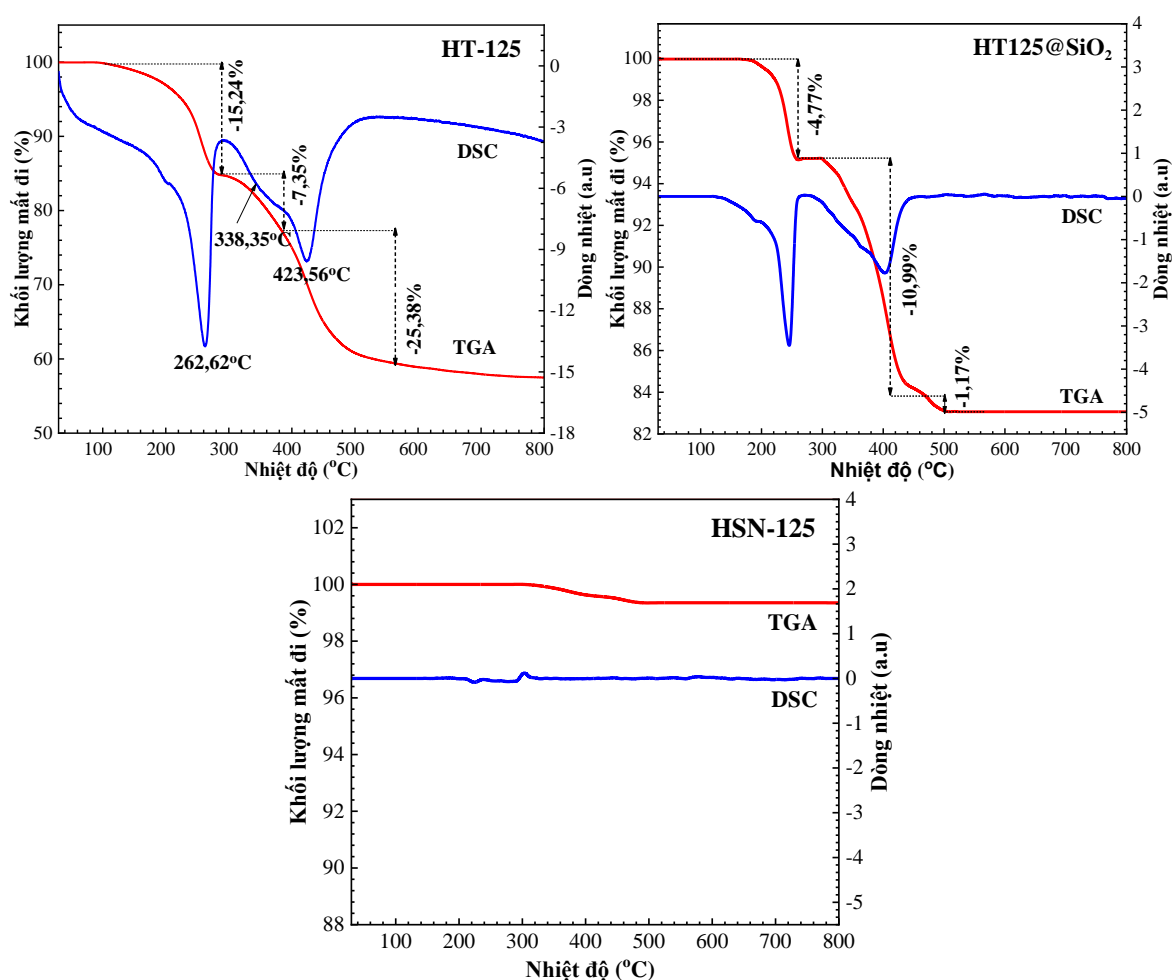
Sau quá trình làm rỗng, nhóm hydroxit vẫn tồn tại trên bề mặt của hạt nano silica rỗng với tần số tương tự như hai mẫu còn lại [9]. Các dao động kéo giãn Si-O-Si ở tần số 1099 cm^{-1} vẫn xuất hiện minh chứng cho sự hiện diện tiếp tục của SiO₂ trong cấu trúc HSN [86]. Ngoài ra, sự biến mất của nhóm CO_3^{2-} tại vị trí 1368 cm^{-1} cho thấy quá trình làm rỗng đã loại bỏ hoàn toàn HT ra khỏi sản phẩm cuối cùng. Những kết quả trên góp phần minh chứng cho sự thành công của quy trình tổng hợp các hạt nano HSN rỗng dựa trên khuôn mẫu HT. Các kết quả phân tích FTIR này phù hợp và góp phần bổ trợ cho kết quả XRD.

Phân tích nhiệt đồng thời (TG-DSC) được dùng để theo dõi sự giảm khối lượng của mẫu cần phân tích từ nhiệt độ phòng lên đến đến $800\text{ }^{\circ}\text{C}$ với tốc độ gia nhiệt là $10\text{ }^{\circ}\text{C/phút}$ theo thời gian, độ giảm khối lượng của mẫu vật liệu tăng cùng với tăng nhiệt độ xử lý. Các đường cong TGA của HT-125, HT125@SiO₂ và HSN-125 được trình bày trong Hình 3.11. Từ đồ thị TGA, trục tung biểu diễn phần trăm hao hụt khối lượng của mẫu tương ứng với sự tăng dần từ nhiệt độ phòng đến $800\text{ }^{\circ}\text{C}$ (trục hoành).

Ở nhiệt độ từ 120 đến $550\text{ }^{\circ}\text{C}$, đường cong TGA cho thấy sự giảm khối lượng của HT-125 và HT125@SiO₂. Khi nhiệt độ tiếp tục tăng và đạt đến $800\text{ }^{\circ}\text{C}$, các đường cong TGA trở nên ổn định, chứng tỏ các phản ứng liên quan đến biến đổi cấu trúc vật liệu ở khoảng này không xảy ra. Cụ thể, trong khoảng từ 120 đến $300\text{ }^{\circ}\text{C}$, sự giảm khối lượng của HT-125 và HT125@SiO₂ lần lượt là $13,2$ và $4,8\%$, điều này được cho là do sự mất nước ở lớp xen kẽ và sự bay hơi của CO₂ [88]. Giai đoạn giảm trọng lượng cuối cùng xảy ra với sự giảm nhiệt độ không đáng kể của cả hai mẫu từ nhiệt độ trên $450\text{ }^{\circ}\text{C}$ do sự hình thành spinel (MgAl₂O₄) [89]. Giai đoạn giảm trọng lượng giữa $400\text{ }^{\circ}\text{C}$ và $450\text{ }^{\circ}\text{C}$ của HT-125 và HT125@SiO₂ tương ứng với quá trình phân hủy lõi HT [90]. Trong quá trình tăng nhiệt, sự giảm trọng lượng của mẫu HT được phát hiện là khoảng $42,5\%$, trong khi đó là $17,7\%$ đối với HT125@SiO₂. Thông qua

kết quả TGA của HT125@SiO₂ và HT-125, có thể xác định được hàm lượng của SiO₂ trong cấu trúc lõi-vỏ khoảng 24,8%.

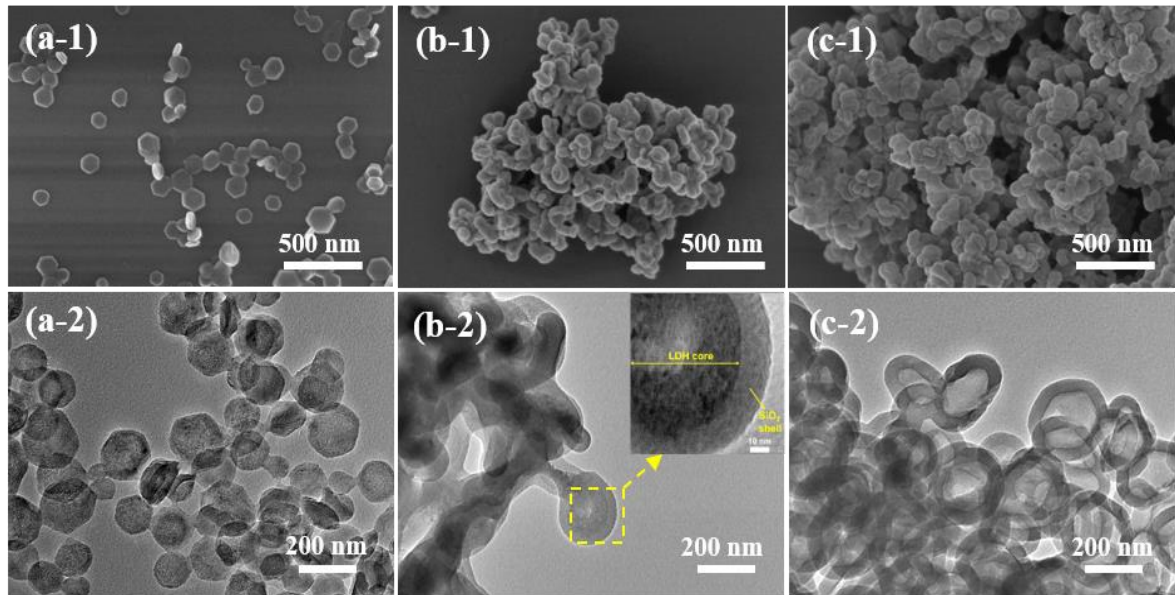
Đối với HSN, sơ đồ TGA cho thấy sự mất khối lượng nhỏ (khoảng 0,632%) ở khoảng 300 đến 500 °C do các tạp chất từ vật liệu lõi ban đầu bị mất đi hoặc do một phần sự khử hydrat các nhóm silanol bên trong cấu trúc vật liệu. Từ 500 đến 800 °C mẫu HSN không xuất hiện thêm sự giảm trọng lượng, điều này chỉ ra rằng không có thêm phản ứng nào liên quan đến những biến đổi về cấu trúc của vật liệu, xác nhận lõi HT đã bị loại bỏ.



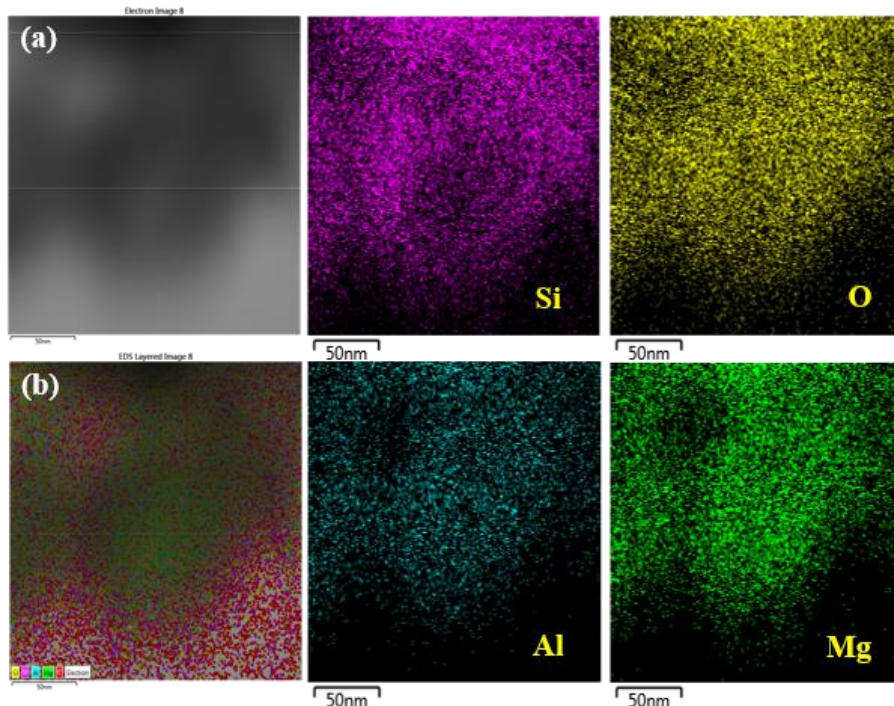
Hình 3.11. Sơ đồ TG-DSC của HT-125, HT125@SiO₂ và HSN-125

Hình thái điển hình của HT-125, HT125@SiO₂ và HSN-125 được trình bày trong ảnh FE-SEM (xem Hình 3.12). Hình 3.12a-1, a-2 thể hiện ảnh FE-SEM và ảnh TEM của mẫu HT-125, các hạt nano có hình dạng tam lục giác với kích thước hạt nano trung bình khoảng 150 nm. Sau khi biến tính với Na₂SiO₃, mẫu thu được vẫn giữ nguyên hình thái lục giác với cấu trúc lõi-vỏ được quan sát rõ ràng và có xu hướng tụ lại với nhau như trong Hình 3.12b-1,b-2. Một vòng tương phản rõ ràng có thể được quan sát rõ với độ bao phủ đầy đủ giữa lõi và vỏ cho thấy lớp phủ được phân bố tốt trên bề mặt mẫu. Sau khi xử lý bằng HCl, bề ngoài hạt HSN vẫn không thay đổi so

với HT125@SiO₂ (Hình 3.12c-1), nhưng khi quan sát ảnh TEM (Hình 3.12c-2), hình thái lục giác vẫn rõ ràng ở phần rỗng và các hạt nano HSN rỗng thu được có thể được nhận ra nhờ độ tương phản của lõi sáng và cạnh tối trên ảnh TEM cho thấy việc loại bỏ thành công lõi HT. Dựa trên độ dày và đường cong vỏ có thể kết luận rằng vỏ silica được phân tán đều và duy trì tính toàn vẹn sau quá trình làm rỗng bằng HCl.

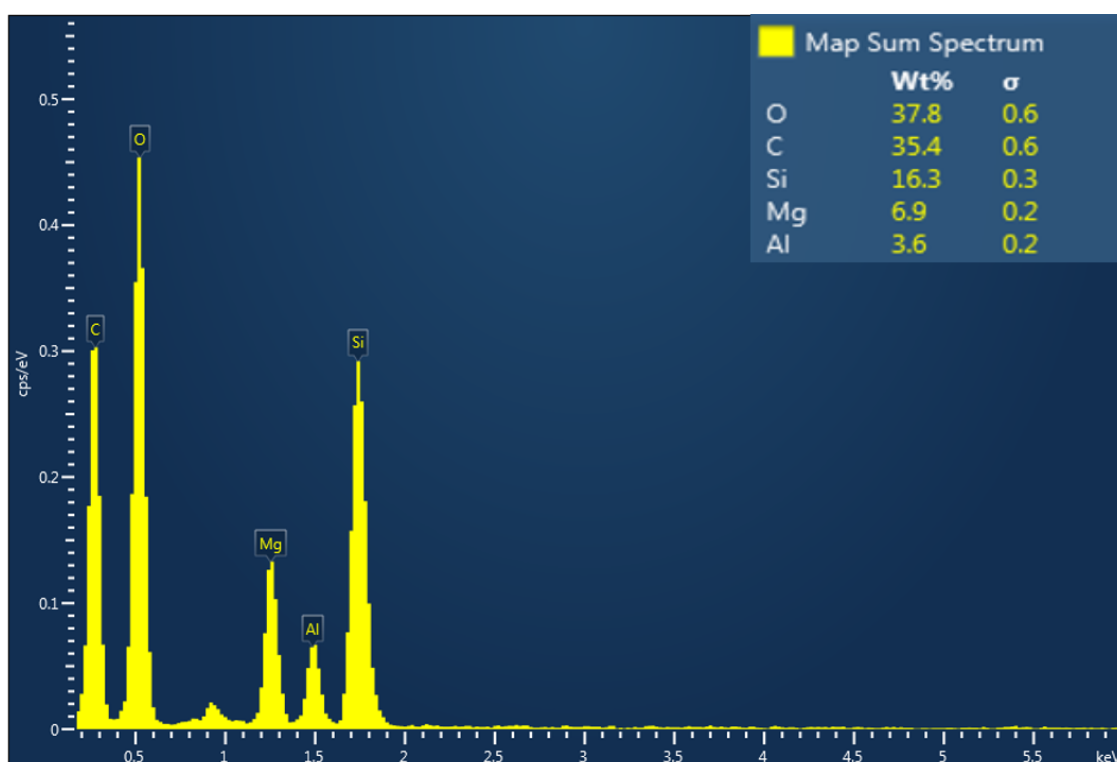


Hình 3.12. Ảnh FE-SEM và TEM của HT-125 (a-1-a-2), HT125@SiO₂ (b-1-b-2) và HSN-125 (c-1-c-2)



Hình 3.13. Ảnh STEM của hạt HT125@SiO₂ (a) và ảnh EDS (b) của các thành phần các nguyên tố trong vật liệu HT125@SiO₂

Thành phần các nguyên tố và cấu trúc của HT125@SiO₂ được xác nhận bằng ảnh ánh xạ STEM và phổ EDS, kết quả được trình bày trong Hình 3.13 và Hình 3.14. Từ kết quả phân bố bề mặt qua phân tích EDS-mapping, sự phân bố của các nguyên tố Mg, Al tập trung vào trung tâm hạt HT125@SiO₂ trong khi Si và O bao phủ toàn bộ hạt, đặc biệt ở vùng ngoại vi của hạt; điều này xác nhận sự hình thành cấu trúc lõi-vỏ sau quá trình phủ mẫu. Kết quả EDS xác nhận thành phần HT125@SiO₂ có độ tinh khiết cao với sự hiện diện của cả 5 nguyên tố bao gồm C, O, Mg, Al và Si và không xuất hiện các nguyên tố gây nhiễu như Cl⁻.

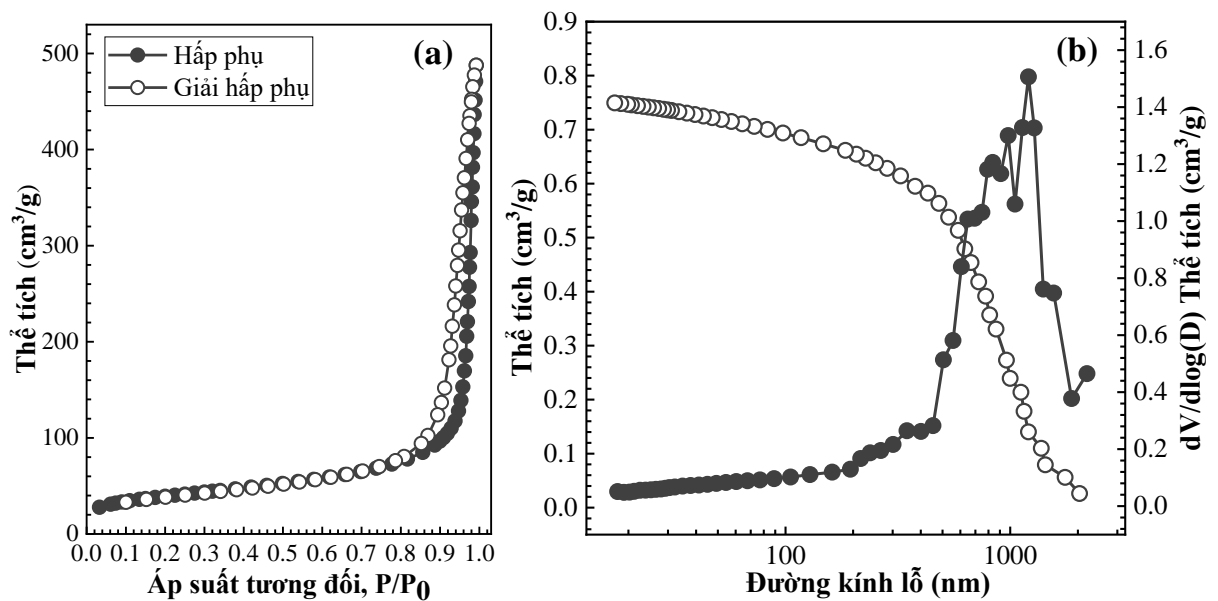


Hình 3.14. Phổ EDS thành phần các nguyên tố trong HT125@SiO₂

Phần trăm khối lượng các thành phần nguyên tố theo lý thuyết có sự chênh lệch không đáng kể so với số liệu thực tế. Tỷ lệ mol của Mg/Al là 2,07 gần với số liệu thực nghiệm được sử dụng để tổng hợp lõi HT. Iyi và cộng sự đã chứng minh quá trình trao đổi anion carbonate của HT không xảy ra trong môi trường kiềm [91,92], điều này chứng tỏ không có sự xâm nhập của bất kỳ anion lạ nào vào lớp xen giữa của HT trong quá trình phủ mẫu và được xác nhận bởi kết quả XRD (Hình 3.9) và FTIR (Hình 3.10).

Phương pháp hấp phụ N₂ được sử dụng để phân tích diện tích bề mặt riêng và cấu trúc xốp của HSN-125. Giảm đồ đường cong đẳng nhiệt hấp thụ - giải hấp N₂ và phân bố kích thước lỗ xốp của vật liệu HSN-125 được trình bày trong Hình 3.15. Diện tích bề mặt riêng của HSN-125 tăng lên 134,54 m²/g và đường đẳng nhiệt hấp

phụ của các hạt nano silica rỗng được phân loại là loại IV, thuộc một trong 6 kiểu đường hấp phụ đẳng nhiệt theo phân loại của IUPAC-1985 biểu thị vật liệu có sự phân bố rộng của các lỗ rỗng [27]. Điều này được xác định là do bề mặt hạt mấp mô của HSN, xuất hiện khi có sự lắng đọng của các hạt silica trên bề mặt lõi HT trong quá trình phủ mẫu. Sự phân bố kích thước lỗ rỗng của HSN-125 thu được trong phạm vi 100 - 155 nm, tương ứng với lõi rỗng được quan sát bởi ảnh TEM (Hình 3.12). Kết quả này xác nhận việc loại bỏ thành công lõi HT-125 khỏi cấu trúc lõi-vỏ HT125@SiO₂.



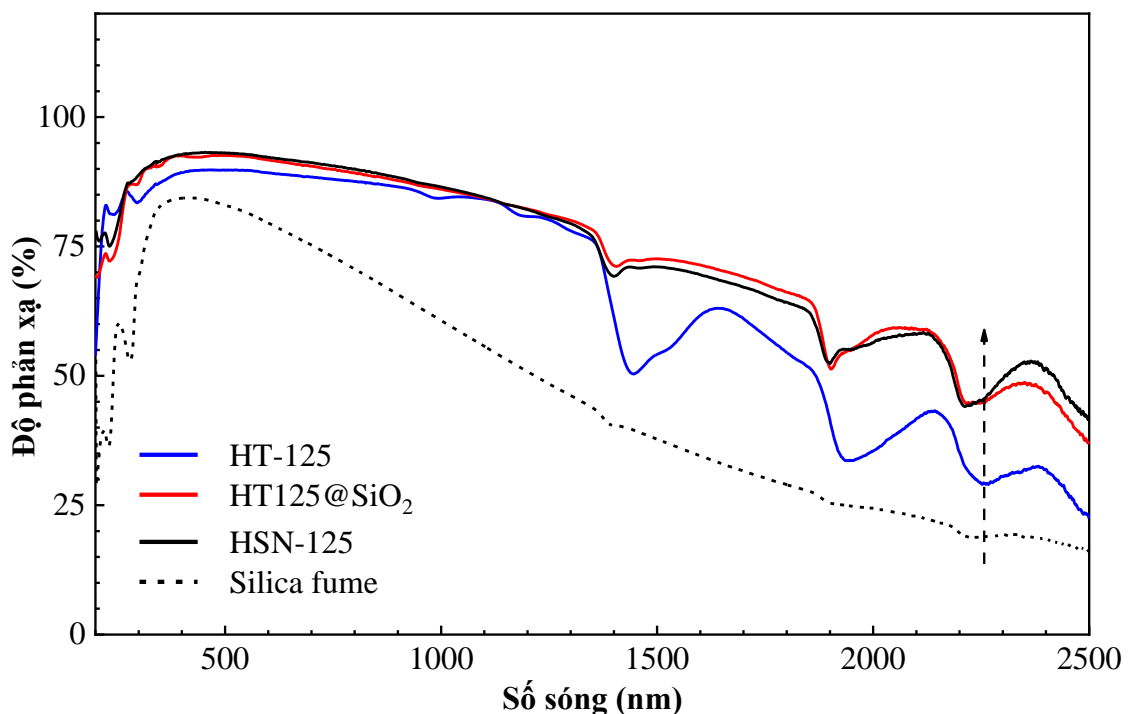
Hình 3.15. Giảm độ hấp phụ - giải hấp phụ (a) và phân tích lỗ xốp (b) của HSN-125

Bảng 3.5. Thế zeta và cường độ phản xạ trung bình của mẫu thu được ở các bước tổng hợp nano silica rỗng

Mẫu	Thế zeta (mV)	Cường độ phản xạ trung bình (%)
HT-125	74,9	65,34
HT125@SiO ₂	-18,7	81,20
HSN-0,5	-38,9	51,07
HSN-0,75	-43,6	61,77
HSN-1,0	-50,4	73,45
HSN-1,25	-41,2	79,98
HSN-1,50	-38,5	81,99

Điện tích tồn tại trên bề mặt của mẫu HT-125 và sản phẩm thu được ở mỗi giai đoạn của quy trình được xác định bởi thế zeta và được trình bày trong Bảng 3.5. HT-125 có thế zeta dương cao nhất (+74,9 mV), điều này cho thấy sự hình thành

huyền phù HT ổn định. Trong quá trình xử lý thủy nhiệt, cation phân bố đều hơn trong các lớp hydroxit giúp thúc đẩy sự phát triển của các tinh thể riêng lẻ thông qua khuếch tán cation và sàng lọc tinh thể [56]. Kết quả là các tấm nano HT có thể duy trì ổn định và chống lại sự kết tụ bởi chuyển động Brown, tạo thành một chất keo ổn định. Các nghiên cứu gần đây cho thấy rằng huyền phù đồng nhất ổn định của HT được duy trì ngay cả sau 90 ngày lưu trữ, điều này giúp củng cố ý tưởng sử dụng các tấm nano hydrotalcite trong những ứng dụng với quy mô lớn [69]. Sau khi phủ một lớp SiO_2 lên bề mặt HT-125, điện tích bề mặt của HT125@ SiO_2 thu được có giá trị âm (-18,7 mV), kết quả này phù hợp với sự phân ly của nhóm silanol (Si-OH) trên bề mặt mẫu [27]. Thế zeta của cấu trúc lõi-vỏ được phát hiện là ít âm hơn so với HSN. Mẫu HT125@ SiO_2 có xu hướng kết tụ lại với nhau tạo nên một mảng lớn, điều này có thể do phần lõi nặng HT tạo thành. Vì vậy, việc loại bỏ lõi sẽ làm HSN-125 nhẹ hơn dẫn đến các hạt nano ít bị kết tụ lại trong nước hơn. Ngoài ra, khi độ dày của lớp SiO_2 tăng lên, nhiều hạt nano SiO_2 hơn có thể được đóng gói vào lớp vỏ nano dẫn đến mật độ lớp vỏ nano cao hơn. Sự gia tăng mật độ này tạo điều kiện thuận lợi để điện tích âm hơn do có nhiều nhóm SiO^- trên bề mặt [93]. Tuy nhiên, khi nồng độ Na_2SiO_3 cao (1,5 M) thì điện thế zeta giảm dẫn đến sự kết tụ có thể xảy ra ở mẫu này.

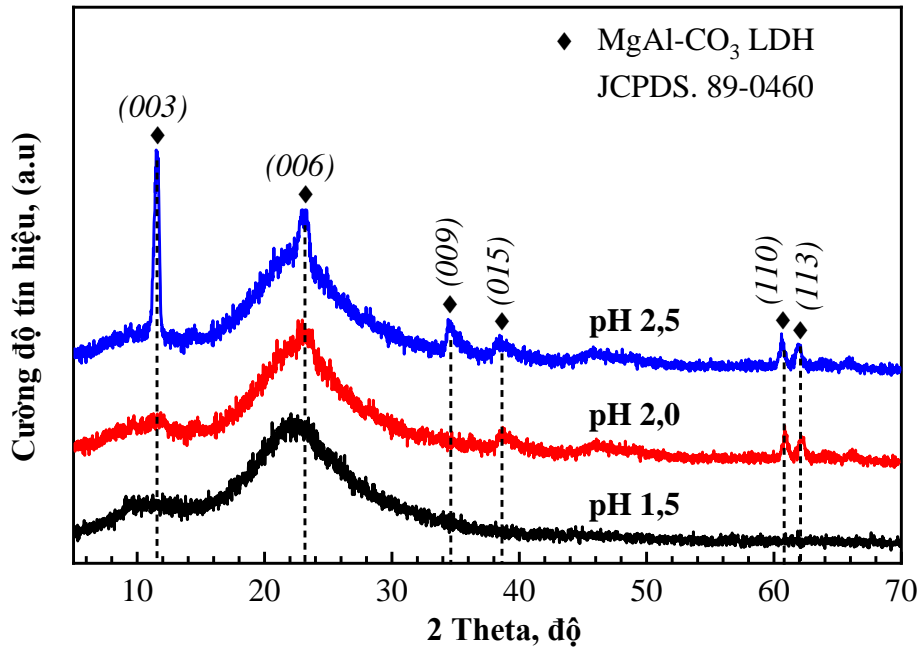


Hình 3.16. Biểu đồ UV-Vis-NIR của HT-125, HT125@ SiO_2 , HSN-125 và silica fume

Biểu đồ UV-Vis-NIR của HT-125, HT125@ SiO_2 và HSN-125 được thể hiện trong Hình 3.16. Độ phản xạ trung bình của HT-125, HT125@ SiO_2 , HSN-125 và silica fume lần lượt là 65,34, 81,99, 81,20 và 46,64% được trình bày trong Bảng 3.5.

Các mẫu được phân tích cho thấy giá trị phản xạ giảm dần khi tăng bước sóng từ UV-Vis lên vùng NIR, và độ phản xạ ánh sáng trung bình của các mẫu đều trên 50% ngoại trừ silica fume (46,64%). Trong đó, HSN-125 có độ phản xạ cao nhất.

3.2.2. Ảnh hưởng của điều kiện pH đến quá trình phá lõi

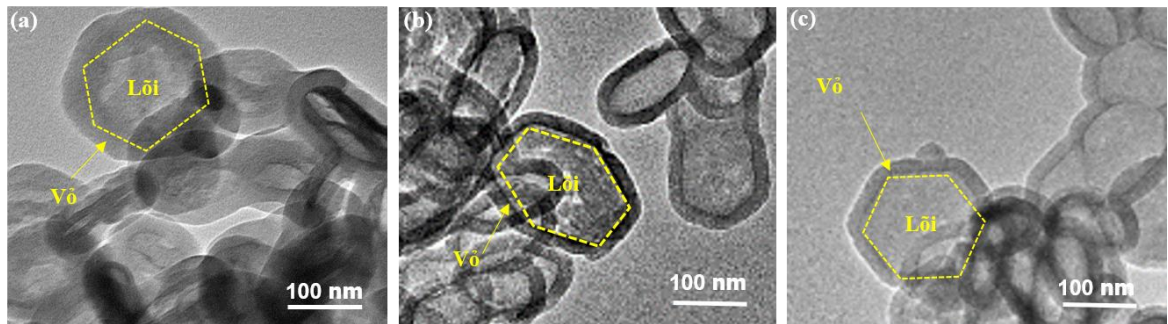


Hình 3.17. Giản đồ XRD của HSN-125 phá lõi ở pH 1,5, pH 2,0, pH 2,5 ở 85 °C trong 12 giờ

Hình 3.17 thể hiện giản đồ XRD của HSN-125 phá lõi đến pH 1,5, 2,0 và 2,5 thì dừng lại ở 85 °C trong 12 giờ. Ở pH 2,5, các đỉnh đặc trưng cho vật liệu HT vẫn xuất hiện trong phổ nhiễu xạ của HSN-125 và chỉ giảm cường độ và độ sắc nét so với HT-125 và HT125@SiO₂ (xem Hình 3.9), điều này chỉ ra rằng ở pH 2,5 lõi HT chưa thể loại bỏ hoàn toàn khỏi cấu trúc của các hạt HSN. Để làm rõ hơn điều này, HT125@SiO₂ tiếp tục được làm rỗng bằng HCl 1,0 M đến pH 2,0 thì dừng lại. Ở pH 2,0, các đỉnh đặc trưng của HT lại tiếp tục giảm cường độ xuất hiện và mất đi một số đỉnh ở mặt phẳng nhiễu xạ (0 0 3) và (0 0 9); các đỉnh đặc trưng của HT chỉ biến mất hoàn toàn khi tiếp tục thêm HCl 1,0 M cho đến khi pH đạt 1,5. Điều này chứng tỏ rằng pH đóng vai trò quan trọng trong bước phá lõi của vật liệu nano silica rỗng.

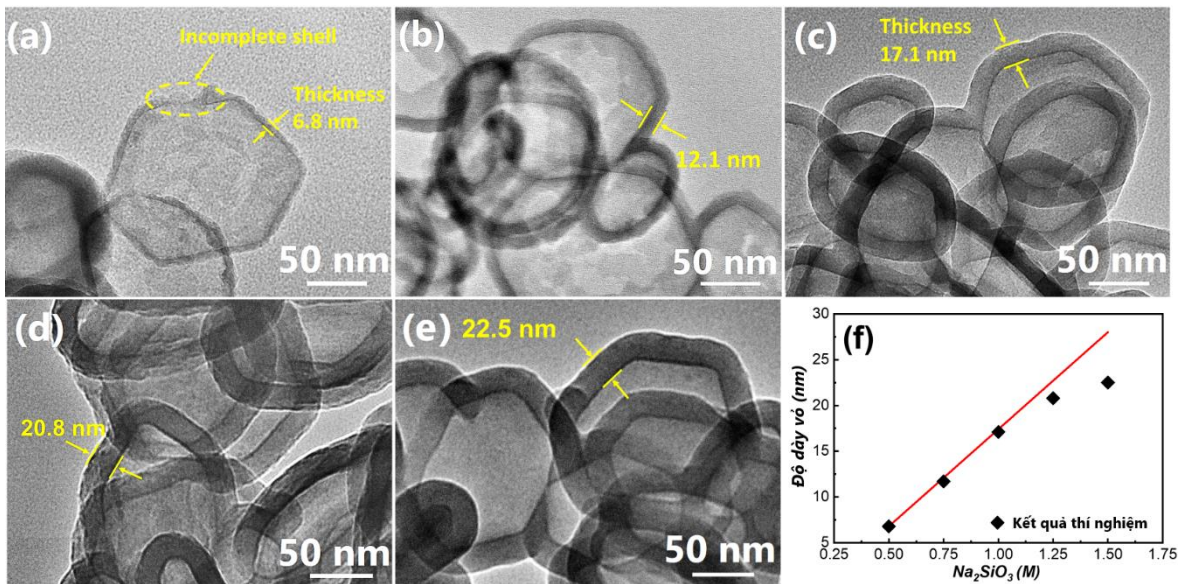
Ảnh TEM của mẫu HSN-125 phá lõi ở pH 2,5, 2,0 và 1,5 lần lượt được trình bày trong Hình 3.18-a,b,c. Một vòng với màu sắc tương phản phân biệt giữa lõi HT-125 và vỏ SiO₂ của ba mẫu HSN-125 phản ứng đến pH 2,5, pH 2,0 và pH 1,5 được quan sát rõ ràng trong ảnh TEM. Tuy nhiên, ở pH 2,5 (Hình 3.18-a), phân vỏ có màu sắc đậm bao quanh lõi màu sáng hơn chưa cho thấy được sự phân biệt rõ ràng giữa cấu trúc lõi rỗng-vỏ, điều này chỉ ra rằng HT chưa được hoàn toàn loại bỏ khỏi cấu trúc HSN. Kết quả này không khác biệt với phân tích XRD (xem Hình 3.17). Ở pH

2, phần vỏ tương phản đã có màu sắc rõ ràng hơn để có thể quan sát thấy sự khác biệt giữa phần lõi rỗng là vỏ SiO_2 , nhưng nó vẫn xuất hiện những vết màu đậm hơn trong phần lõi của vật liệu, điều này cũng góp phần minh chứng cho sự mất đi chưa hoàn toàn của lõi HT (Hình 3.18-b). Tại pH 1,5 xuất hiện sự tương phản rõ ràng giữa màu sắc đậm của phần vỏ và phần màu nhạt dạng lục giác rõ ràng đại diện cho lõi rỗng của HSN (Hình 3.18-c), điều này minh chứng cho việc loại bỏ hoàn toàn lõi HT ra khỏi cấu trúc vật liệu. Những kết quả này hoàn toàn phù hợp với kết quả phân tích XRD (Hình 3.17).



Hình 3.18. Ảnh TEM của HSN-125 phá lõi đến pH 2,5 (a), pH 2 (b) và pH 1,5 (c) ở 85 °C trong 12 giờ

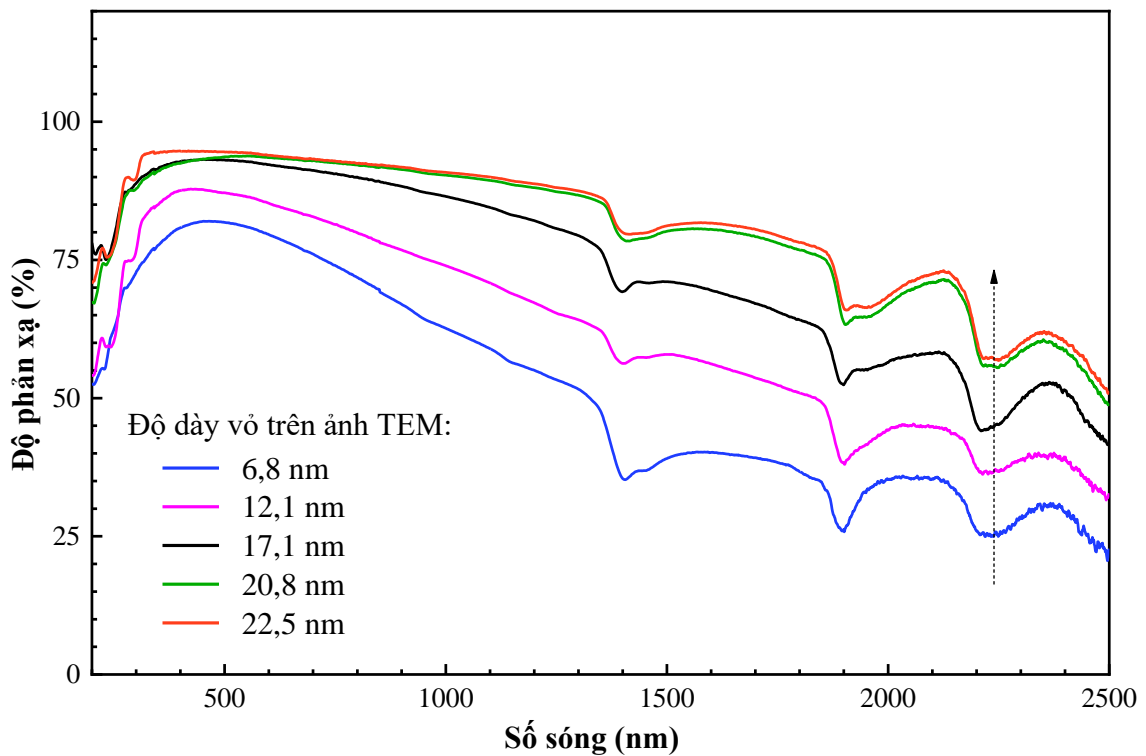
3.2.3. Kết quả kiểm soát độ dày vỏ của vật liệu nano silica rỗng



Hình 3.19. Ảnh TEM của các mẫu HSN-0,5 (a), HSN-0,75 (b), HSN-1,0 (c), HSN-1,25 (d) và HSN-1,5 (e) được tổng hợp với nồng độ Na_2SiO_3 lần lượt là 0,5, 0,75, 1,0, 1,25 và 1,5 M ở 85 °C trong 12 giờ

Độ dày vỏ được xác định thông qua ảnh TEM (xem Hình 3.19), trong đó một viền bóng mờ màu đen bao quanh lõi rỗng nhạt màu dùng để xác định độ dày vỏ của HSN. Ảnh TEM của HSN-125 tổng hợp ở nồng độ Na_2SiO_3 là 0,5, 0,75, 1,0, 1,25 và

1,5 M với độ dày vỏ lần lượt là 6,8, 12,1, 17,1, 20,8 và 22,5 nm. Điều này cho thấy độ dày vỏ có thể dễ dàng kiểm soát ở một mức độ cụ thể bằng cách điều chỉnh nồng độ Na_2SiO_3 trong phản ứng. Tuy nhiên, mối quan hệ giữa nồng độ Na_2SiO_3 và độ dày vỏ HSN không phải là tuyến tính. Ở nồng độ cao hơn 1,0 M, độ dày vỏ của các hạt nano silica rỗng có xu hướng tăng chậm hơn so với thời điểm sử dụng nồng độ Na_2SiO_3 thấp hơn. Điều này có thể liên quan đến sự tạo mầm của một số monome nhất định trong môi trường nước thay vì lắng đọng trên bề mặt khuôn lõi hydrotalcite khi sử dụng Na_2SiO_3 với nồng độ cao ($> 1,0$ M) trong phản ứng phủ mẫu. Kết quả là sự phát triển của độ dày vỏ silica bị hạn chế.



Hình 3.20. Giảm đồ UV-Vis-NIR của các mẫu HSN được tổng hợp với độ dày vỏ lần lượt là 6,8, 12,1, 17,1, 20,8 và 22,5 nm

Nồng độ Na_2SiO_3 được thay đổi để tổng hợp vật liệu nano silica rỗng với lớp vỏ có độ dày khác nhau, nhằm xác minh ảnh hưởng của độ dày lớp vỏ đến đặc tính phản xạ. Giảm đồ UV-Vis-NIR của các mẫu HSN với độ dày vỏ khác nhau được thể hiện trong Hình 3.20.

Hình 3.20 cho thấy tất cả các mẫu có giá trị phản xạ giảm dần khi tăng bước sóng từ vùng UV-Vis lên vùng NIR tương ứng với đặc tính của nano silica rỗng trong nghiên cứu trước đây [16]. Giảm đồ UV-Vis-NIR cho thấy các hạt nano silica rỗng có lớp vỏ dày hơn thể hiện độ phản xạ cao hơn so với các hạt nano có lớp vỏ mỏng hơn. Độ dày của các hạt nano silica rỗng lần lượt là 6,8, 12,1, 17,1, 20,8 và 22,5 nm tương ứng với độ phản xạ trung bình là 51,07, 61,77, 73,45, 79,98 và 81,2%. Xu

hướng tăng trưởng này chỉ ra rằng lượng SiO_2 bao phủ trên bề mặt hạt nano có ảnh hưởng lớn đến đặc tính phản xạ của vật liệu [17,93]. Độ dẫn nhiệt của các hạt nano silica rỗng có độ dày vỏ lớn nhất (22,5 nm) được xác định là 0,0413 W/m.K tương đương với các kết quả đã được công bố trước đây [16]. Hơn nữa, HSN có độ dày vỏ cao thích hợp hơn cho nhiều ứng dụng khác nhau do tính ổn định cơ học của chúng.

Độ dẫn nhiệt của HSN đóng vai trò quan trọng trong việc xác định hiệu suất khi đưa vào ứng dụng thực tế của các hạt nano. Độ dẫn nhiệt của khuôn lõi HT-125 sau quá trình phủ mẫu giảm từ 0,0712 W/m.K xuống còn 0,0452 W/m.K và việc loại bỏ khuôn lõi tiếp tục làm giảm độ dẫn nhiệt xuống còn 0,0389 W/m.K. Bên cạnh đó, độ dẫn nhiệt của silica fume là 0,0465 W/m.K, cao hơn khoảng 20% so với nano silica rỗng. Kết quả này xác nhận tác động đáng kể của cấu trúc rỗng đối với sự gián đoạn truyền nhiệt trong các hạt nano HSN, làm nổi bật tiềm năng của chúng như là một vật liệu cách nhiệt hiệu quả.

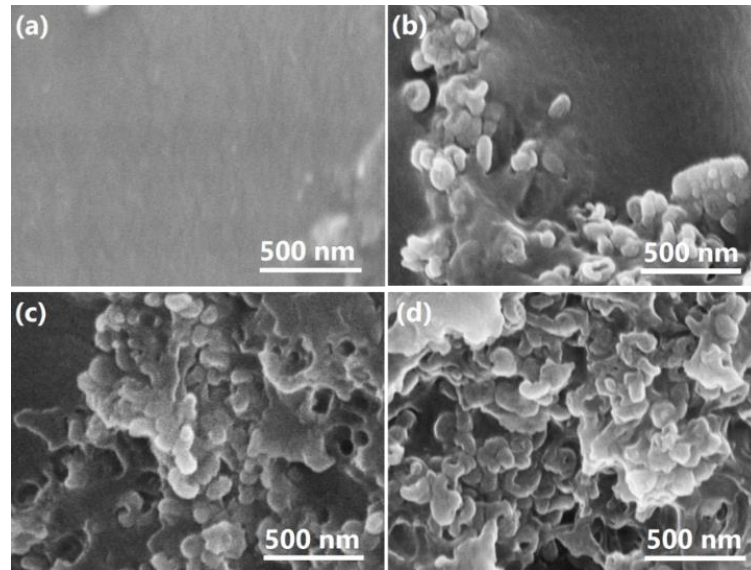
Các kết quả trên chỉ ra rằng HSN có khả năng tăng cường hiệu quả cách nhiệt của vật liệu composit bằng hai cơ chế hoạt động. Thứ nhất, với vai trò là chất đệm phản xạ, lớp vỏ phủ SiO_2 có thể phản xạ và phân tán ánh sáng để làm chậm quá trình tích tụ nhiệt từ bề mặt khi nguồn sáng chiếu vào bề mặt lớp phủ. Thứ hai, với vai trò là chất đệm rào cản, lõi rỗng lưu trữ một lượng không khí đáng kể với hệ số dẫn nhiệt thấp, làm giảm chuyển động nhiệt giữa các chất rắn do có nhiều khí trong màng [16]. Những cơ chế này đều đóng góp vào việc tăng tính cách nhiệt của vật liệu. Vì vậy, có thể kết luận rằng, silica rỗng là một ứng cử viên triển vọng để ứng dụng vào lớp phủ cách nhiệt.

3.3. CHẾ TẠO MÀNG CÁCH NHIỆT

Hạt nano silica có độ dày vỏ lớn nhất được chọn để tiến hành chế tạo màng composit cách nhiệt để tránh việc các hạt bị phá vỡ khi tiến hành trộn cơ học vào epoxy. Trước khi thêm chất đóng rắn vào hỗn hợp, các hạt nano đã được trộn vào epoxy bằng máy khuấy từ trong 24 giờ để đảm bảo sự phân bố đều trong vật liệu composit. Sau đó, hỗn hợp này được phủ lên tấm nhôm để bắt đầu phản ứng đóng rắn. Tuy nhiên, hàm lượng tối đa của HSN chỉ được sử dụng là 20%, vì khi sử dụng lượng HSN cao hơn, màng sẽ bị nứt trong quá trình đóng rắn. Do đó, sử dụng một lượng lớn hơn 20% HSN có thể làm suy giảm đặc tính cơ học của màng composit.

3.3.1. Ảnh hưởng của hàm lượng nano silica rỗng đến cấu trúc màng

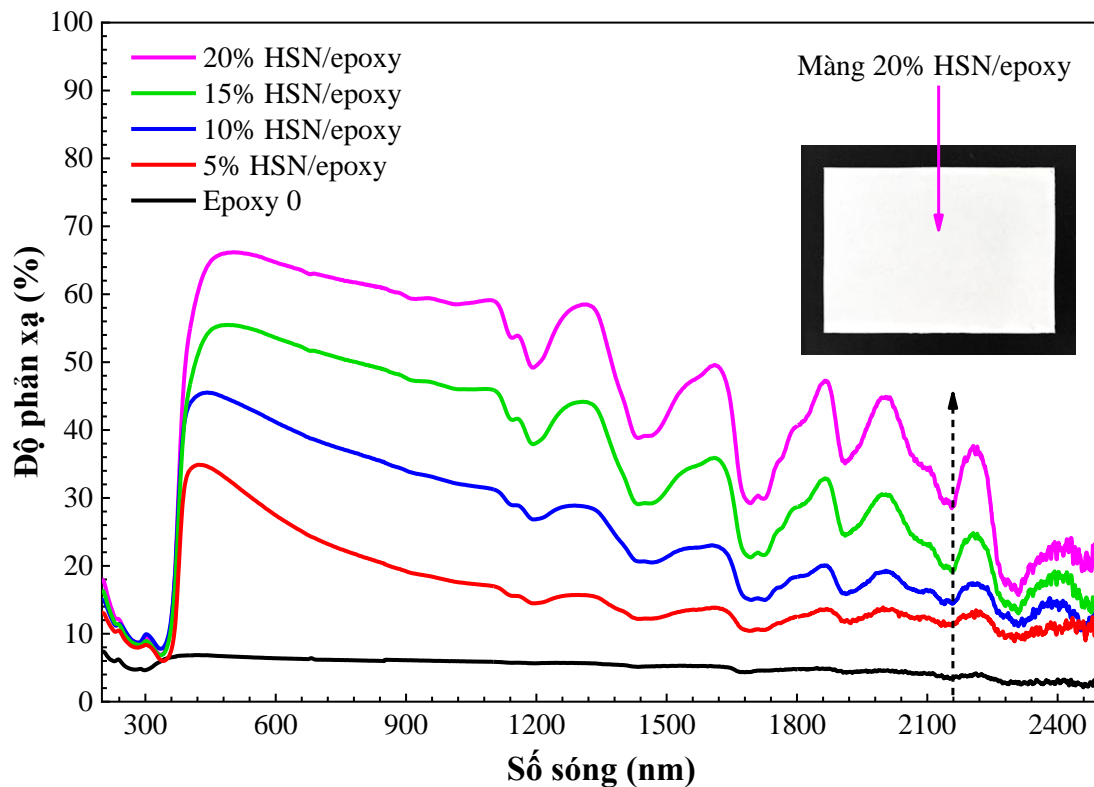
Để tìm hiểu rõ hơn sự ảnh hưởng của HSN đến tính chất của màng composit, một phân tích hình thái mặt cắt của màng được thực hiện bằng cách sử dụng ảnh FE-SEM (xem Hình 3.21).



Hình 3.21. Ảnh FE-SEM (mặt cắt ngang bên trong) của màng epoxy 0 (a) và màng composit với hàm lượng HSN khác nhau: 5% (b), 10% (c) và 20% (d)

Khi không trộn HSN trong màng epoxy, màng có bề mặt trong và nhẵn như thể hiện ở Hình 3.21-a. Tuy nhiên, khi HSN được trộn vào epoxy với hàm lượng mẫu tăng dần là 5, 10, và 20%, mật độ xuất hiện của các hạt nano HSN tăng đáng kể theo độ giảm của hệ số dẫn nhiệt (xem Bảng 3.6). Ở hàm lượng HSN cao (≥ 10 wt%), HSN được phân bố đều trong ma trận polyme epoxy tạo thành một màng tương đối dày đặc do độ phân tán cao. Điều này rất cần thiết để tăng hiệu quả các đặc tính của màng [21,94]. Hơn nữa, không phần vỡ nào của HSN được quan sát thấy, chứng tỏ tính ổn định của thành vách dày dưới tác động cơ học mạnh mẽ. Điều này cho thấy rằng việc thêm vào của HSN không chỉ tăng đáng kể hiệu suất của màng composit, mà còn giữ cho màng ổn định và chịu được sức ép mạnh mẽ.

Phổ phản xạ ánh sáng của màng epoxy với hàm lượng HSN khác nhau được trình bày trong Hình 3.22 và độ phản xạ trung bình tương ứng được thể hiện trong Bảng 3.6. Kết quả cho thấy việc thêm HSN làm cải thiện đặc tính phản xạ ánh sáng của màng composit và giá trị cao nhất đạt được là 45,26% ở hàm lượng 20% HSN. Trong khi đó, mẫu epoxy tinh khiết (epoxy 0) chỉ có độ phản xạ thấp là 4,87%.



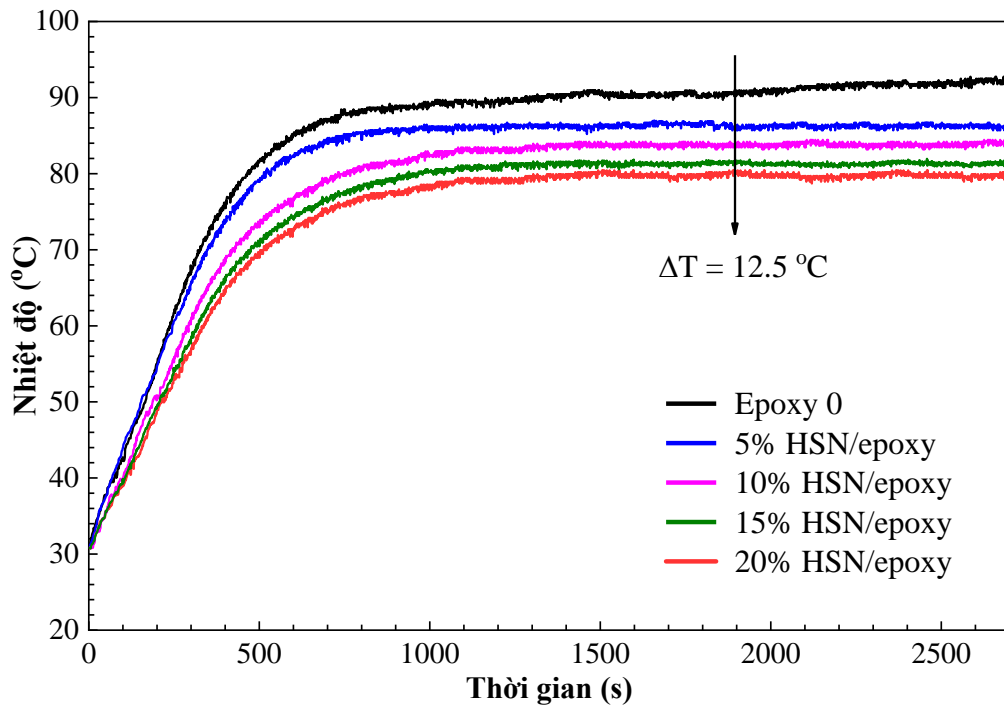
Hình 3.22. Độ phản xạ ánh sáng của màng epoxy tinh khiết (Epoxy 0) và màng compozit với hàm lượng khác nhau của HSN: 5, 10, 15 và 20%

3.3.2. Kết quả khảo sát tính cách nhiệt

Bảng 3.6. Hệ số phản xạ trung bình và dẫn nhiệt của màng epoxy với hàm lượng HSN khác nhau

Mẫu	Hệ số phản xạ trung bình (%)	Hệ số dẫn nhiệt (W/m.K)
HSN-125	81,2	0,0413
Epoxy 0	4,87	0,352
5% HSN/Epoxy	16,10	0,302
10% HSN/Epoxy	24,29	0,275
15% HSN/Epoxy	33,95	0,216
20% HSN/Epoxy	45,26	0,183

Độ dẫn nhiệt của màng epoxy tinh khiết (epoxy 0) và HSN/epoxy với hàm lượng HSN khác nhau được thể hiện trong Bảng 3.6. Hệ số dẫn nhiệt của màng epoxy 0, 5% HSN/epoxy, 10% HSN/epoxy, 15% HSN/epoxy và 20% HSN/epoxy lần lượt là 0,352 W/m.K, 0,302 W/m.K, 0,275 W/m.K, 0,216 W/m.K và 0,183 W/m.K. So với mẫu epoxy 0, độ dẫn nhiệt của màng 20% HSN/epoxy giảm đáng kể (khoảng 50%) từ 0,352 W/m.K xuống 0,183 W/m.K. Với sự gia tăng cấu trúc xốp cho màng compozit, độ dẫn nhiệt có xu hướng giảm. Điều này góp phần khẳng định tác động của HSN đến đặc tính cách nhiệt của màng compozit.



Hình 3.23. Nhiệt độ bề mặt của màng epoxy 0 và màng composit với hàm lượng khác nhau: 5, 10, 15 và 20% dưới bức xạ đèn hồng ngoại

Khả năng dẫn nhiệt của màng HSN/epoxy được xác định bằng phương pháp đo nhiệt độ bề mặt của lớp phủ khi tiếp xúc với bức xạ đèn hồng ngoại. Nhiệt độ bề mặt của màng epoxy 0 và màng composit với hàm lượng khác nhau của HSN: 5, 10, 15 và 20% được trình bày trong Hình 3.23. Ban đầu, mẫu màng epoxy 0 cho thấy nhiệt độ bề mặt tăng dần sau 15 phút chiếu xạ đầu tiên và duy trì ở mức cao hơn so với các mẫu khác. Tuy nhiên, khi hàm lượng HSN tăng lên, nhiệt độ bề mặt của lớp phủ giảm xuống. Đặc biệt, lớp phủ chứa 20% khối lượng hạt nano HSN có nhiệt độ bề mặt thấp nhất khoảng 77,6 °C, mát hơn 12,5 °C so với mẫu epoxy 0 (90 °C). Việc giảm nhiệt độ này có thể được giải thích bởi tính dẫn nhiệt thấp của màng composit cách nhiệt. Hơn nữa, mẫu 20% HSN/epoxy thể hiện độ trắng cao cho thấy đặc tính phản xạ nhiệt tốt. Phát hiện này phù hợp với kết quả UV-Vis-NIR thể hiện trong Hình 3.22, trong đó màng cách nhiệt 20% HSN/epoxy có hệ số phản xạ trung bình cao nhất (45,26%). Tất cả các kết quả được ghi nhận chỉ ra hạt nano silica rỗng được tổng hợp từ khuôn mẫu HT có tiềm năng trở thành một chất phụ gia tiết kiệm chi phí và năng lượng tiêu hao trong đó truyền nhiệt thấp là một yếu tố cấp thiết.

KẾT LUẬN VÀ KIẾN NGHỊ

KẾT LUẬN

Luận văn với mục tiêu tổng hợp vật liệu nano silica rỗng bằng phương pháp hard-template với khuôn mẫu được sử dụng là hydrotalcite được kiểm soát hình dạng và kích thước, mục tiêu cải thiện độ phản xạ ánh sáng và tăng cường hiệu quả cách nhiệt khi trộn vào lớp phủ epoxy. Qua thời gian thực nghiệm, đề tài thu được những kết quả như sau:

Tổng hợp có kiểm soát chất nền hydrotalcite

Đã tổng hợp HT với kích thước và hình thái có kiểm soát thông qua kiểm soát pH, nhiệt độ và tốc độ khuấy trộn trong quá trình thủy nhiệt. Kích thước hạt nano HT nằm trong khoảng 50 đến 150 nm tương ứng với nhiệt độ thủy nhiệt từ 80 đến 125 °C. Những kết quả này đã góp phần khẳng định tính khả thi của việc chuẩn bị kích thước và hình thái của HT có kiểm soát với độ lặp lại cao, điều này là cần thiết để áp dụng cho ứng dụng cách nhiệt.

Tổng hợp thành công nano silica rỗng độ dày vỏ được kiểm soát, khảo sát được cấu trúc thành vách và đặc trưng hóa lý

Phương pháp tổng hợp HSN từ khuôn HT đã cho thấy hiệu quả trong việc kiểm soát đường kính hạt và độ dày vỏ của hạt nano silica rỗng. Phương pháp này sử dụng quá trình thủy phân Na_2SiO_3 để tạo ra lớp SiO_2 trên bề mặt lõi HT, điều chỉnh bởi axit để tạo ra các hạt silica rỗng với bề mặt tròn tương ứng với diện tích bề mặt tăng của HSN. Độ dày của vỏ có thể được điều chỉnh bằng cách kiểm soát nồng độ Na_2SiO_3 trong quá trình phản ứng.

Chế tạo thành công lớp phủ cách nhiệt với hàm lượng nano silica rỗng khác nhau

Phương pháp này không chỉ có tiềm năng cho tổng hợp quy mô lớn với chi phí hiệu quả mà còn giữ lại tính chất nổi bật của HSN và có thể áp dụng rộng rãi cho các mục đích khác.

KIẾN NGHỊ

Dựa vào những kết quả đã đạt được trong luận văn, một số định hướng phát triển tiếp theo của đề tài có thể bao gồm:

- Tiếp tục nghiên cứu về đặc tính cách nhiệt của vật liệu nano silica rỗng dựa trên cơ sở phối hợp với một số vật liệu khác nhằm tăng hiệu quả và tính ổn định của vật liệu.
- Ứng dụng vật liệu nano silica rỗng này trong các lĩnh vực khác bao gồm lưu trữ, chuyển đổi năng lượng và các ứng dụng y tế.

- Nghiên cứu các phương pháp sản xuất vật liệu nano silica rỗng trên chất nền hydrotalcite với quy mô lớn, tăng hiệu quả và độ ổn định trong quá trình sản xuất.
- Nghiên cứu tính kinh tế của sản xuất vật liệu nano silica rỗng này trên quy mô lớn và tăng cường hiệu suất sản xuất để tăng tính cạnh tranh trên thị trường của sản phẩm.

DANH MỤC CÔNG TRÌNH ĐÃ CÔNG BỐ

- [1]. Vuong P. M., **Thoa T. T. K.**, Nhu P. Q., No N. T. H., Ty N. M., Huy D. M., ... & Hang T. T. X., 2022, Controllable synthesis of uniform MgAl-hydrotalcite nanoplates and their size-dependent on anti-corrosion properties of carbon steel, *Vietnam Journal of Chemistry*, 60, pp. 32-40.

DANH MỤC TÀI LIỆU THAM KHẢO

- [1]. Jelle B.P., Kalnæs S.E., Gao T., 2015, Low-Emissivity Materials for Building Applications: A State-of-the-Art Review and Future Research Perspectives, *Energy. Build*, 96, pp. 329-356.
- [2]. Abu-Jdayil B., Mourad A.-H., Hittini W., Hassan M., Hameedi S., 2019, Traditional, State-of-the-Art and Renewable Thermal Building Insulation Materials: An Overview, *Constr. Build. Mater*, 214, pp. 709-735.
- [3]. Hu F., Wu S., Sun Y., 2019, Hollow-Structured Materials for Thermal Insulation, *Adv. Mater*, 31(38), pp. 1801001.
- [4]. Rashidi S., Esfahani J.A., Karimi N., 2018, Porous Materials in Building Energy Technologies—a Review of the Applications, Modelling and Experiments, *Renew. Sustain. Energy. Rev*, 91, pp. 229-247.
- [5]. Gao T., Jelle B.P., Sandberg L.I.C., Gustavsen A., 2013, Monodisperse Hollow Silica Nanospheres for Nano Insulation Materials: Synthesis, Characterization, and Life Cycle Assessment, *ACS. Appl. Mater. Interfaces*, 5(3), pp. 761-767.
- [6]. Xu L., He J., 2012, Fabrication of Highly Transparent Superhydrophobic Coatings from Hollow Silica Nanoparticles, *Langmuir*, 28(19), pp. 7512-7518.
- [7]. Takai-Yamashita C., Fuji M., 2020, Hollow Silica Nanoparticles: A Tiny Pore with Big Dreams, *Adv. Powder. Technol*, 31(2), pp. 804-807.
- [8]. Fang X., Liu Z., Hsieh M.-F., Chen M., Liu P., Chen C., Zheng N., 2012, Hollow Mesoporous Aluminosilica Spheres with Perpendicular Pore Channels as Catalytic Nanoreactors, *ACS. Nano*, 6(5), pp. 4434-4444.
- [9]. Jiang W., Xiao J., Gao X., An X., Leng Y., Zhu L., Zhu W., Li H., 2021, In Situ Fabrication of Hollow Silica Confined Defective Molybdenum Oxide for Enhanced Catalytic Oxidative Desulfurization of Diesel Fuels, *Fuel*, 305, pp. 121470.
- [10]. Shin D., Lee S., Jang H.S., Joo J.B., Choi I., 2022, Redox/Ph-Dual Responsive Functional Hollow Silica Nanoparticles for Hyaluronic Acid-Guided Drug Delivery, *J. Ind. Eng. Chem*, 108, pp. 72-80.
- [11]. Tang F., Li L., Chen D., 2012, Mesoporous Silica Nanoparticles: Synthesis, Biocompatibility and Drug Delivery, *Adv. Mater*, 24(12), pp. 1504-1534.
- [12]. Yang Q., Li L., Zhao F., Han H., Wang W., Tian Y., Wang Y., Ye Z., Guo X., 2018, Hollow Silica–Polyelectrolyte Composite Nanoparticles for Controlled Drug Delivery, *J. Mater. Sci*, 54(3), pp. 2552-2565.
- [13]. Wang Y., Gou K., Guo X., Ke J., Li S., Li H., 2021, Advances in Regulating Physicochemical Properties of Mesoporous Silica Nanocarriers to Overcome Biological Barriers, *Acta. Biomater*, 123, pp. 72-92.

- [14]. Liu H., Tian Y., Mofid S.A., Li S., Zhou J., Hu M., Jelle B.P., Gao T., Wu X., Li Z., 2022, Numerical Modeling of Effective Thermal Conductivity of Hollow Silica Nanosphere Packings, *Int. J. Heat. Mass. Transf.*, 182, pp. 122032.
- [15]. Sharma J., Polizos G., Jafta C.J., Bai Y., Hun D., Lyu X., 2022, A Lightweight Thermally Insulating and Moisture-Stable Composite Made of Hollow Silica Particles, *RSC. Adv.*, 12(24), pp. 15373-15377.
- [16]. Bao Y., Guo R., Ma J., 2020, Hierarchical Flower-Like Hollow $\text{SiO}_2@\text{TiO}_2$ Spheres with Enhanced Thermal Insulation and Ultraviolet Resistance Performances for Building Coating, *ACS. Appl. Mater. Interfaces*, 12(21), pp. 24250-24261.
- [17]. Kim J., Lee C., Suh Y.J., Chang H., Roh K.-M., Jang H.D., 2015, Synthesis and Characterization of Highly Reflective Hollow Silica Particles, *Mater. Res. Bull.*, 70, pp. 184-189.
- [18]. Fuji M., Takai C., Tarutani Y., Takei T., Takahashi M., 2007, Surface Properties of Nanosize Hollow Silica Particles on the Molecular Level, *Adv. Powder. Technol.*, 18(1), pp. 81-91.
- [19]. Yang Y., Li F., Xiao M., Zhang Z., Wei J., Hu J., Yu Q., 2020, Teos and Na_2SiO_3 as Silica Sources: Study of Synthesis and Characterization of Hollow Silica Nanospheres as Nano Thermal Insulation Materials, *Appl. Nanosci.*, 10, pp. 1833-1844.
- [20]. Vu K.B., Phung T.K., Tran T.T., Mugemana C., Giang H.N., Nhi T.L.P., 2021, Polystyrene Nanoparticles Prepared by Nanoprecipitation: A Recyclable Template for Fabricating Hollow Silica, *J. Ind. Eng. Chem.*, 97, pp. 307-315.
- [21]. Cao K.L.A., Taniguchi S., Nguyen T.T., Arif A.F., Iskandar F., Ogi T., 2020, Precisely Tailored Synthesis of Hexagonal Hollow Silica Plate Particles and Their Polymer Nanocomposite Films with Low Refractive Index, *J. Colloid. Interface. Sci.*, 571, pp. 378-386.
- [22]. Qomariyah L., Arif A.F., Widiyastuti W., Winardi S., Taniguchi S., Ogi T., 2018, Hexagonal Hollow Silica Plate Particles with High Transmittance under Ultraviolet-Visible Light, *RSC. Adv.*, 8(46), pp. 26277-26282.
- [23]. Fuji M., Shin T., Watanabe H., Takei T., 2012, Shape-Controlled Hollow Silica Nanoparticles Synthesized by an Inorganic Particle Template Method, *Adv. Powder. Technol.*, 23(5), pp. 562-565.
- [24]. Nakashima Y., Takai C., Razavi-Khosroshahi H., Suthabanditpong W., Fuji M., 2018, Synthesis of Ultra-Small Hollow Silica Nanoparticles Using the Prepared Amorphous Calcium Carbonate in One-Pot Process, *Adv. Powder. Technol.*, 29(4), pp. 904-908.

- [25]. Li C., Yao J., Huang Y., Xu C., Lou D., Wu Z., Sun W., Zhang S., Li Y., He L., 2019, Salt-Templated Growth of Monodisperse Hollow Nanostructures, *J. Mater. Chem. A*, 7(4), pp. 1404-1409.
- [26]. Schneider E.M., Taniguchi S., Kobayashi Y., Hess S.C., Balgis R., Ogi T., Okuyama K., Stark W.J., 2017, Efficient Recycling of Poly (Lactic Acid) Nanoparticle Templates for the Synthesis of Hollow Silica Spheres, *ACS. Sustain. Chem. Eng*, 5(6), pp. 4941-4947.
- [27]. Cha J.H., Choi H.-H., Jung Y.-G., Choi S.-C., An G.S., 2020, Novel Synthesis of Core–Shell Structured $\text{Fe}_3\text{O}_4@\text{SiO}_2$ Nanoparticles Via Sodium Silicate, *Ceram. Int*, 46(10), pp. 14384-14390.
- [28]. Jelle B.P., 2011, Traditional, State-of-the-Art and Future Thermal Building Insulation Materials and Solutions–Properties, Requirements and Possibilities, *Energy. Build*, 43(10), pp. 2549-2563.
- [29]. Hirschler M., 2008, Polyurethane Foam and Fire Safety, *Polym. Adv. Technol*, 19(6), pp. 521-529.
- [30]. Wang L., Feng J., Jiang Y., Feng J., 2019, Polyvinylmethyldimethoxysilane Reinforced Methyltrimethoxysilane Based Silica Aerogels for Thermal Insulation with Super-High Specific Surface Area, *Mater. Lett*, 256, pp. 126644.
- [31]. Li C., Cheng X., Li Z., Pan Y., Huang Y., Gong L., 2017, Mechanical, Thermal and Flammability Properties of Glass Fiber Film/Silica Aerogel Composites, *J. Non. Cryst. Solids*, 457, pp. 52-59.
- [32]. Ng S., Jelle B.P., Sandberg L.I., Gao T., Mofid S.A., 2018, Hollow Silica Nanospheres as Thermal Insulation Materials for Construction: Impact of Their Morphologies as a Function of Synthesis Pathways and Starting Materials, *Constr. Build. Mater*, 166, pp. 72-80.
- [33]. Du Y., Luna L.E., Tan W.S., Rubner M.F., Cohen R.E., 2010, Hollow Silica Nanoparticles in Uv– Visible Antireflection Coatings for Poly (Methyl Methacrylate) Substrates, *ACS. Nano*, 4(7), pp. 4308-4316.
- [34]. Guo X., Liu X., Xu B., Dou T., 2009, Synthesis and Characterization of Carbon Sphere-Silica Core–Shell Structure and Hollow Silica Spheres, *Colloids. Surf. A. Physicochem. Eng. Asp*, 345(1-3), pp. 141-146.
- [35]. Tao C., Yan H., Yuan X., Yao C., Yin Q., Zhu J., Ni W., Yan L., Zhang L., 2016, Synthesis of Shape-Controlled Hollow Silica Nanostructures with a Simple Soft-Templating Method and Their Application as Superhydrophobic Antireflective Coatings with Ultralow Refractive Indices, *Colloids. Surf. A. Physicochem. Eng. Asp*, 501, pp. 17-23.

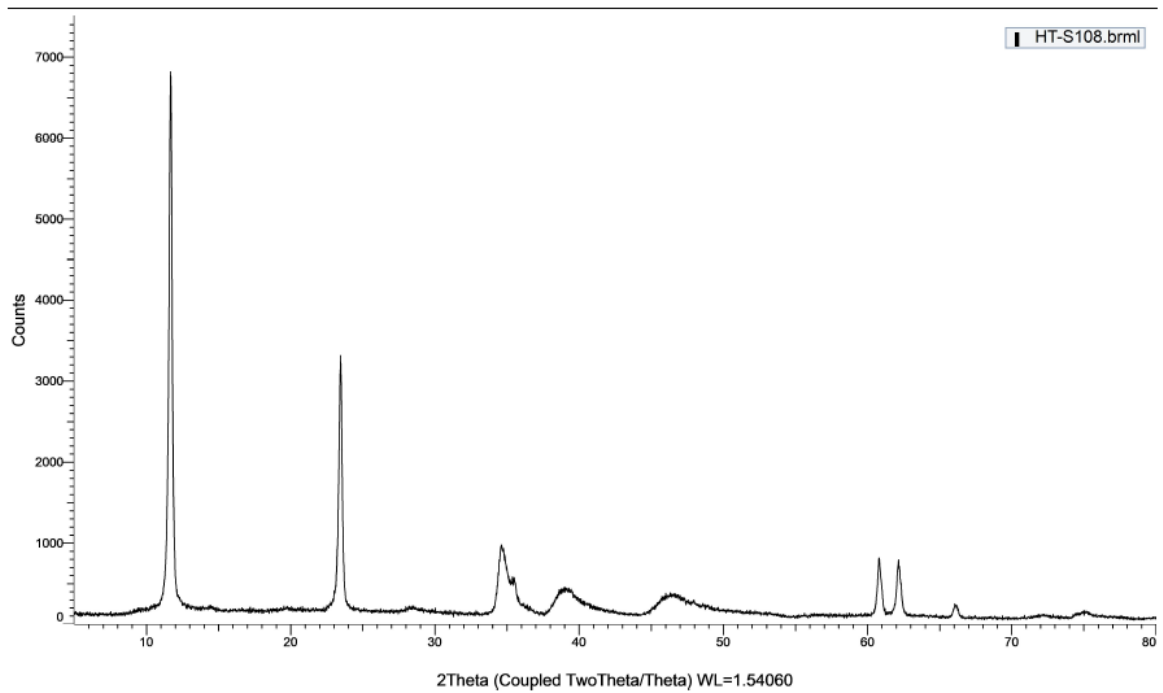
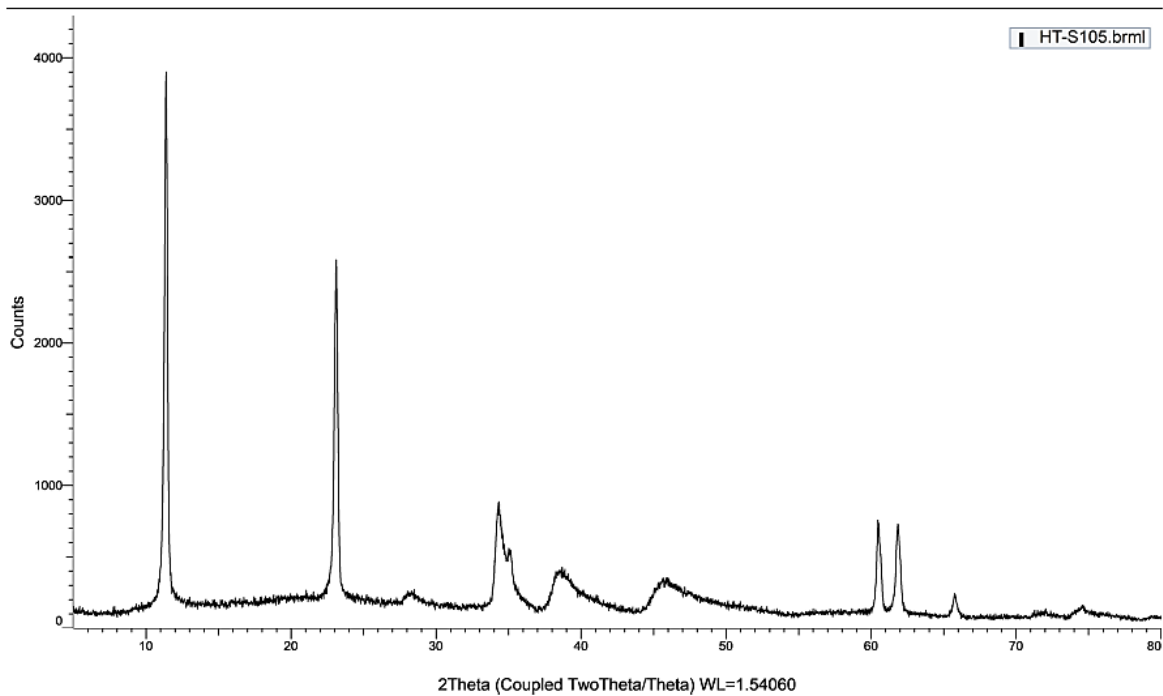
- [36]. Li Y., Wang S., Hao P., Tian J., Cui H., Wang X., 2018, Soft-Templated Formation of Double-Shelled ZnO Hollow Microspheres for Acetone Gas Sensing at Low Concentration/near Room Temperature, *Sens. Actuators. B. Chem.*, 273, pp. 751-759.
- [37]. Teng Z., Han Y., Li J., Yan F., Yang W., 2010, Preparation of Hollow Mesoporous Silica Spheres by a Sol–Gel/Emulsion Approach, *Microporous. Mesoporous. Mater.*, 127(1-2), pp. 67-72.
- [38]. Bao Y., Wang T., Kang Q., Shi C., Ma J., 2017, Micelle-Template Synthesis of Hollow Silica Spheres for Improving Water Vapor Permeability of Waterborne Polyurethane Membrane, *Sci. Rep.*, 7(1), pp. 1-14.
- [39]. Liu C., Kim J.S., Kwon Y., 2016, Comparative Investigation on Thermal Insulation of Polyurethane Composites Filled with Silica Aerogel and Hollow Silica Microsphere, *J. Nanosci. Nanotechnol.*, 16(2), pp. 1703-1707.
- [40]. Richard Drees L., Wilding L.P., Smeck N.E., Senkayi A.L., 1989, Silica in Soils: Quartz and Disordered Silica Polymorphs, *Minerals in soil environments*, 1, pp. 913-974.
- [41]. Aziz T., Fan H., Khan F.U., Haroon M., Cheng L., 2019, Modified Silicone Oil Types, Mechanical Properties and Applications, *Polym. Bull.*, 76, pp. 2129-2145.
- [42]. Prabha S., Durgalakshmi D., Rajendran S., Lichtfouse E., 2021, Plant-Derived Silica Nanoparticles and Composites for Biosensors, Bioimaging, Drug Delivery and Supercapacitors: A Review, *Environ. Chem. Lett.*, 19(2), pp. 1667-1691.
- [43]. Jal P.K., Patel S., Mishra B.K., 2004, Chemical Modification of Silica Surface by Immobilization of Functional Groups for Extractive Concentration of Metal Ions, *Talanta*, 62(5), pp. 1005-1028.
- [44]. Shi Y., Wang J., Yamamoto E., Osada M., 2020, Hard-Template Synthesis of Hollow Mesoporous Silica Nanoplates Using Layered Double Hydroxide, *Chem. Lett.*, 49(9), pp. 1078-1080.
- [45]. Lee J., Kim S.M., Lee I.S., 2014, Functionalization of Hollow Nanoparticles for Nanoreactor Applications, *Nano. Today*, 9(5), pp. 631-667.
- [46]. Li Y., Shi J., 2014, Hollow-Structured Mesoporous Materials: Chemical Synthesis, Functionalization and Applications, *Adv. Mater.*, 26(20), pp. 3176-3205.
- [47]. Wang X., Feng J., Bai Y., Zhang Q., Yin Y., 2016, Synthesis, Properties, and Applications of Hollow Micro-/Nanostructures, *Chem. Rev.*, 116(18), pp. 10983-11060.
- [48]. Singh L.P., Bhattacharyya S.K., Kumar R., Mishra G., Sharma U., Singh G., Ahalawat S., 2014, Sol-Gel Processing of Silica Nanoparticles and Their Applications, *Adv. Colloid. Interface. Sci.*, 214, pp. 17-37.

- [49]. Niu D., Ma Z., Li Y., Shi J., 2010, Synthesis of Core– Shell Structured Dual-Mesoporous Silica Spheres with Tunable Pore Size and Controllable Shell Thickness, *J. Am. Chem. Soc.*, 132(43), pp. 15144-15147.
- [50]. Guo L., Liang F., Wen X., Yang S., He L., Zheng W., Chen C., Zhong Q., 2007, Uniform Magnetic Chains of Hollow Cobalt Mesospheres from One-Pot Synthesis and Their Assembly in Solution, *Adv. Funct. Mater.*, 17(3), pp. 425-430.
- [51]. Wu S.-H., Mou C.-Y., Lin H.-P., 2013, Synthesis of Mesoporous Silica Nanoparticles, *Chem. Soc. Rev.*, 42(9), pp. 3862-3875.
- [52]. Lou X.W., Archer L.A., Yang Z., 2008, Hollow Micro-/Nanostructures: Synthesis and Applications, *Adv. Mater.*, 20(21), pp. 3987-4019.
- [53]. Zhang Q., Wang W., Goebel J., Yin Y., 2009, Self-Templated Synthesis of Hollow Nanostructures, *Nano. Today*, 4(6), pp. 494-507.
- [54]. Pérez-Lorenzo M., Vaz B., Salgueiriño V., Correa-Duarte M.A., 2013, Hollow-Shelled Nanoreactors Endowed with High Catalytic Activity, *Chemistry—A European Journal*, 19(37), pp. 12196-12211.
- [55]. Zhang Y., Xu H., Lu S., 2021, Preparation and Application of Layered Double Hydroxide Nanosheets, *RSC. Adv.*, 11(39), pp. 24254-24281.
- [56]. Xu Z.P., Stevenson G.S., Lu C.Q., Lu G.Q., Bartlett P.F., Gray P.P., 2006, Stable Suspension of Layered Double Hydroxide Nanoparticles in Aqueous Solution, *J. Am. Chem. Soc.*, 128(1), pp. 36-37.
- [57]. Guo X., Zhang F., Evans D.G., Duan X., 2010, Layered Double Hydroxide Films: Synthesis, Properties and Applications, *Chem. Commun.*, 46(29), pp. 5197-5210.
- [58]. Chubar N., Gilmour R., Gerda V., Mičušík M., Omastova M., Heister K., Man P., Fraissard J., Zaitsev V., 2017, Layered Double Hydroxides as the Next Generation Inorganic Anion Exchangers: Synthetic Methods Versus Applicability, *Adv. Colloid. Interface. Sci.*, 245, pp. 62-80.
- [59]. Chen C., Gunawan P., Xu R., 2011, Self-Assembled Fe₃O₄-Layered Double Hydroxide Colloidal Nanohybrids with Excellent Performance for Treatment of Organic Dyes in Water, *J. Mater. Chem.*, 21(4), pp. 1218-1225.
- [60]. Miotto Menino N., da Silveira Salla J., do Nascimento M.S., Dallago R.M., Peralta R.A., Moreira R., 2021, High-Performance Hydrophobic Magnetic Hydrotalcite for Selective Treatment of Oily Wastewater, *Environ. Technol.*, pp. 1-12.
- [61]. Silva C.G., Bouizi Y., Fornés V., García H., 2009, Layered Double Hydroxides as Highly Efficient Photocatalysts for Visible Light Oxygen Generation from Water, *J. Am. Chem. Soc.*, 131(38), pp. 13833-13839.

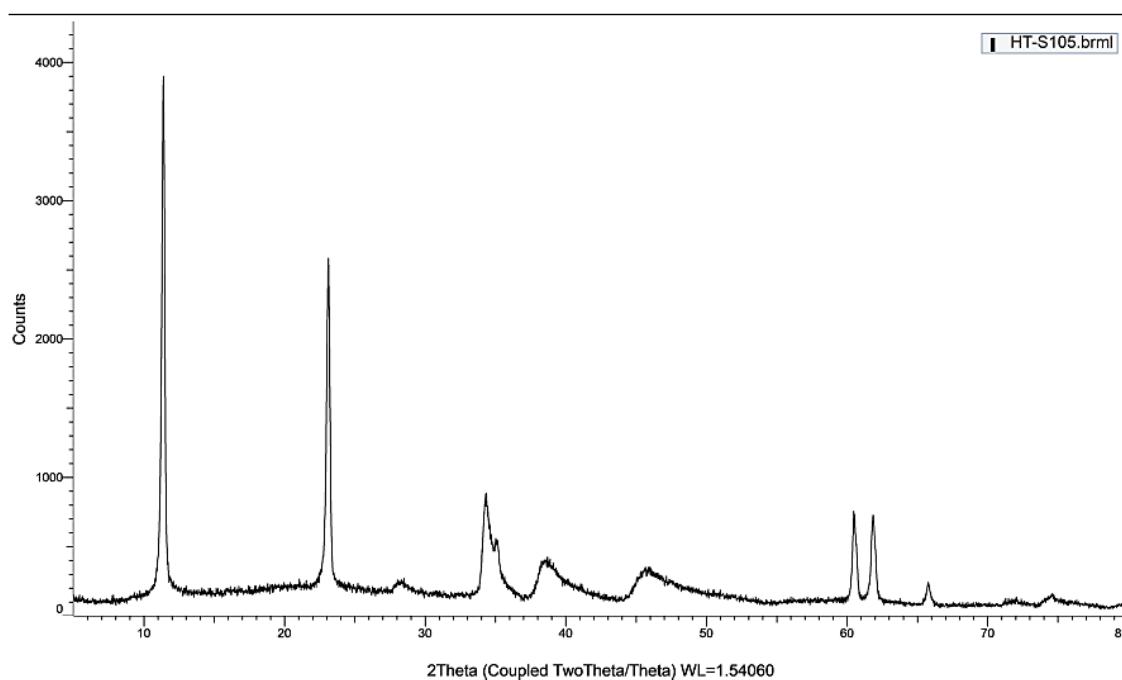
- [62]. Wang Y., Yang L., Peng X., Jin Z., 2017, High Catalytic Activity over Novel Mg–Fe/Ti Layered Double Hydroxides (Ldhs) for Polycarbonate Diols (Pcdls): Synthesis, Mechanism and Application, *RSC. Adv*, 7(56), pp. 35181-35190.
- [63]. Wang J., You J., Li Z., Yang P., Jing X., Cao D., Zhang M., 2008, Electrochemical Performance of Ni/Al Hydrotalcite Supported on Porous Nickel Electrode in Hexacyanoferrate (Iii) Media, *Solid. State. Sci*, 10(8), pp. 1093-1098.
- [64]. Lin X., Zhu H., Huang M., Wan C., Li D., Jiang L., 2022, Controlled Preparation of Ni–Cu Alloy Catalyst Via Hydrotalcite-Like Precursor and Its Enhanced Catalytic Performance for Methane Decomposition, *Fuel. Process. Technol*, 233, pp. 107271.
- [65]. Florea M., Bocirnea A., Neațu S., Kuncser A.M., Trandafir M.-M., Neațu F., 2022, Tuning the Acidity by Addition of Transition Metal to Mn Modified Hollow Silica Spheres and Their Catalytic Activity in Ethanol Dehydration to Ethylene, *Appl. Catal. A. Gen*, 646, pp. 118860.
- [66]. El Khanchaoui A., Sajieddine M., Mansori M., Essoumhi A., 2022, Anionic Dye Adsorption on ZnAl Hydrotalcite-Type and Regeneration Studies Based on “Memory Effect”, *Int. J. Environ. Anal. Chem*, 102(15), pp. 3542-3560.
- [67]. Choi Y., Jung H., Kim S., Han J.W., Lee K.B., 2022, Structural Changes of Hydrotalcite-Based Co-Containing Mixed Oxides with Calcination Temperature and Their Effects on Nox Adsorption: A Combined Experimental and Dft Study, *Chem. Eng. J*, 437, pp. 135209.
- [68]. Nguyen T.D., Tran B.A., Vu K.O., Nguyen A.S., Trinh A.T., Pham G.V., To T.X.H., Phan M.V., Phan T.T., 2019, Corrosion Protection of Carbon Steel Using Hydrotalcite/Graphene Oxide Nanohybrid, *J. Coat. Technol. Res*, 16(2), pp. 585-595.
- [69]. Vuong P.M., Thoa T.T.K., Nhu P.Q., No N.T.H., Ty N.M., Huy D.M., Thao P.T., Hang T.T.X., 2022, Controllable Synthesis of Uniform MgAl-Hydrotalcite Nanoplates and Their Size-Dependent on Anti-Corrosion Properties of Carbon Steel, *Vietnam. J. Chem*, 60, pp. 32-40.
- [70]. Shirin V.A., Sankar R., Johnson A.P., Gangadharappa H., Pramod K., 2021, Advanced Drug Delivery Applications of Layered Double Hydroxide, *J. Control. Release*, 330, pp. 398-426.
- [71]. Cavani F., Trifiro F., Vaccari A., 1991, Hydrotalcite-Type Anionic Clays: Preparation, Properties and Applications, *Catal. Today*, 11(2), pp. 173-301.
- [72]. Wang Q., Tay H.H., Guo Z., Chen L., Liu Y., Chang J., Zhong Z., Luo J., Borgna A., 2012, Morphology and Composition Controllable Synthesis of Mg–Al–Co₃ Hydrotalcites by Tuning the Synthesis Ph and the Co₂ Capture Capacity, *Appl. Clay. Sci*, 55, pp. 18-26.

- [73]. Klopprogge J.T., Hickey L., Frost R.L., 2004, The Effects of Synthesis Ph and Hydrothermal Treatment on the Formation of Zinc Aluminum Hydrotalcites, *J. Solid. State. Chem.*, 177(11), pp. 4047-4057.
- [74]. Yang P., Yu J., Wang Z., Liu Q., Wu T., 2004, Urea Method for the Synthesis of Hydrotalcites, *React. Kinet. Catal. L.*, 83, pp. 275-282.
- [75]. Theiss F.L., Ayoko G.A., Frost R.L., 2016, Synthesis of Layered Double Hydroxides Containing Mg^{2+} , Zn^{2+} , Ca^{2+} and Al^{3+} Layer Cations by Co-Precipitation Methods—a Review, *Appl. Surf. Sci.*, 383, pp. 200-213.
- [76]. Miyata S., Kumura T., 1973, Synthesis of New Hydrotalcite-Like Compounds and Their Physico-Chemical Properties, *Chem. Lett.*, 2(8), pp. 843-848.
- [77]. Labajos F., Rives V., Ulbarri M., 1992, Effect of Hydrothermal and Thermal Treatments on the Physicochemical Properties of Mg-Al Hydrotalcite-Like Materials, *J. Mater. Sci.*, 27, pp. 1546-1552.
- [78]. Benhiti R., Ait Ichou A., Zaghloul A., Aziam R., Carja G., Zerbet M., Sinan F., Chiban M., 2020, Synthesis, Characterization, and Comparative Study of Mgal-Ldhs Prepared by Standard Coprecipitation and Urea Hydrolysis Methods for Phosphate Removal, *Environ. Sci. Pollut. Res.*, 27, pp. 45767-45774.
- [79]. Shimura N., Ogawa M., 2007, Preparation of Hexagonal Platy Particles of Nanoporous Silica Using Hydrotalcite as Morphology Template, *J. Colloid. Interface. Sci.*, 312(2), pp. 311-316.
- [80]. Nguyen T.N.T., Le N.T.T., Nguyen N.H., Ly B.T.K., Nguyen T.D., Nguyen D.H., 2020, Aminated Hollow Mesoporous Silica Nanoparticles as an Enhanced Loading and Sustained Releasing Carrier for Doxorubicin Delivery, *Microporous. Mesoporous. Mater.*, 309, pp. 110543.
- [81]. Miyata S., 1975, The Syntheses of Hydrotalcite-Like Compounds and Their Structures and Physico-Chemical Properties-I: The Systems Mg^{2+} - Al^{3+} - NO_3^- , Mg^{2+} - Al^{3+} - Cl^- , Mg^{2+} - Al^{3+} - ClO_4^- , Ni^{2+} - Al^{3+} - Cl^- and Zn^{2+} - Al^{3+} - Cl^- , *Clays. Clay. Miner.*, 23, pp. 369-375.
- [82]. Trujillano R., González-García I., Morato A., Rives V., 2018, Controlling the Synthesis Conditions for Tuning the Properties of Hydrotalcite-Like Materials at the Nano Scale, *ChemEngineering*, 2(3), pp. 31.
- [83]. Madej D., Tyrała K., 2020, In Situ Spinel Formation in a Smart Nano-Structured Matrix for No-Cement Refractory Castables, *Materials*, 13(6), pp. 1403.
- [84]. Vazquez N.I., Gonzalez Z., Ferrari B., Castro Y., 2017, Synthesis of Mesoporous Silica Nanoparticles by Sol–Gel as Nanocontainer for Future Drug Delivery Applications, *Boletín de la Sociedad Española de Cerámica y Vidrio*, 56(3), pp. 139-145.

- [85]. Okamoto K., Iyi N., Sasaki T., 2007, Factors Affecting the Crystal Size of the Mgal-Ldh (Layered Double Hydroxide) Prepared by Using Ammonia-Releasing Reagents, *Appl. Clay. Sci.*, 37(1-2), pp. 23-31.
- [86]. Tarutani N., Honda Y., Hamakawa R., Uchikoshi T., Ishigaki T., 2021, Shell-Thickness Control of Hollow SiO₂ Nanoparticles through Post-Treatment Using Sol-Gel Technique toward Efficient Water Confinement, *Colloids. Surf. A. Physicochem. Eng. Asp.*, 629, pp. 127501.
- [87]. Bock J., Su G.J., 1970, Interpretation of the Infrared Spectra of Fused Silica, *J. Am. Ceram. Soc.*, 53(2), pp. 69-73.
- [88]. Wang X., Bai Z., Zhao D., Chai Y., Guo M., Zhang J., 2013, New Synthetic Route to Mg–Al–Co₃ Layered Double Hydroxide Using Magnesite, *Mater. Res. Bull.*, 48(3), pp. 1228-1232.
- [89]. Valente J., Rodriguez-Gattorno G., Valle-Orta M., Torres-Garcia E., 2012, Thermal Decomposition Kinetics of Mgal Layered Double Hydroxides, *Mater. Chem. Phys.*, 133(2-3), pp. 621-629.
- [90]. Kanezaki E., 1998, Thermal Behavior of the Hydrotalcite-Like Layered Structure of Mg and Al-Layered Double Hydroxides with Interlayer Carbonate by Means of in Situ Powder Htxrd and Dta/Tg, *Solid. State. Ion.*, 106(3-4), pp. 279-284.
- [91]. Iyi N., Matsumoto T., Kaneko Y., Kitamura K., 2004, A Novel Synthetic Route to Layered Double Hydroxides Using Hexamethylenetetramine, *Chem. Lett.*, 33(9), pp. 1122-1123.
- [92]. Iyi N., Ebina Y., Sasaki T., 2011, Synthesis and Characterization of Water-Swellable Ldh (Layered Double Hydroxide) Hybrids Containing Sulfonate-Type Intercalant, *J. Mater. Chem.*, 21(22), pp. 8085-8095.
- [93]. Xing Z., Tay S.-W., Ng Y.H., Hong L., 2017, Porous SiO₂ Hollow Spheres as a Solar Reflective Pigment for Coatings, *ACS. Appl. Mater. Interfaces*, 9(17), pp. 15103-15113.
- [94]. Hu P., Ai D., Jiang X., Zhang X., 2020, Fabrication of Hollow Silica Nanosphere and Its Application for Thermal Insulation Coating, *J. Thermoplast. Compos. Mater.*, 33(2), pp. 198-213.

PHỤ LỤC**Phụ lục 1: Kết quả phổ nhiễu xạ tia X (XRD) - HT-8****Phụ lục 2: Kết quả nhiễu xạ tia X (XRD)-HT-10**

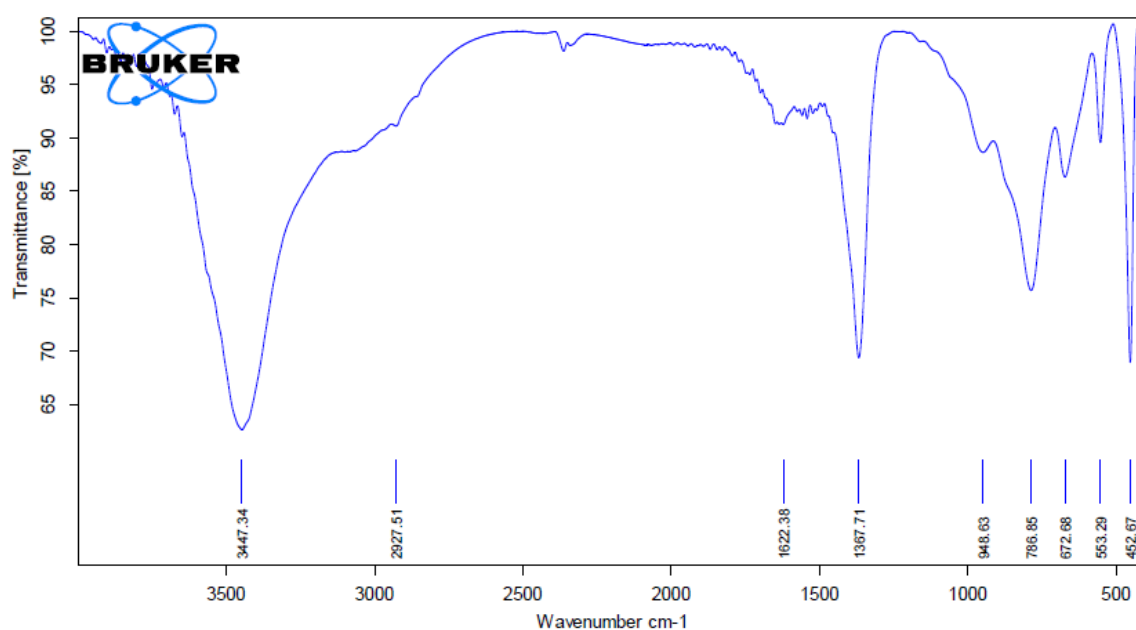
Phụ lục 3: Kết quả phổ nhiễu xạ tia X (XRD) - HT-12



Phụ lục 4: Kết quả phổ hồng ngoại FTIR – HT-8

VIỆN CÔNG NGHỆ HÓA HỌC
TL29, P. THANH LỘC, Q. 12, TP. HCM

Tel: 028.38222283
Mobile: 0909.312.880



E:\VIEN 2022\PTN 3.2\HT PROJECT\20220122\HT-S108 (pH 8)\HT-S108 (pH 8).0

HT-S108 (pH 8)

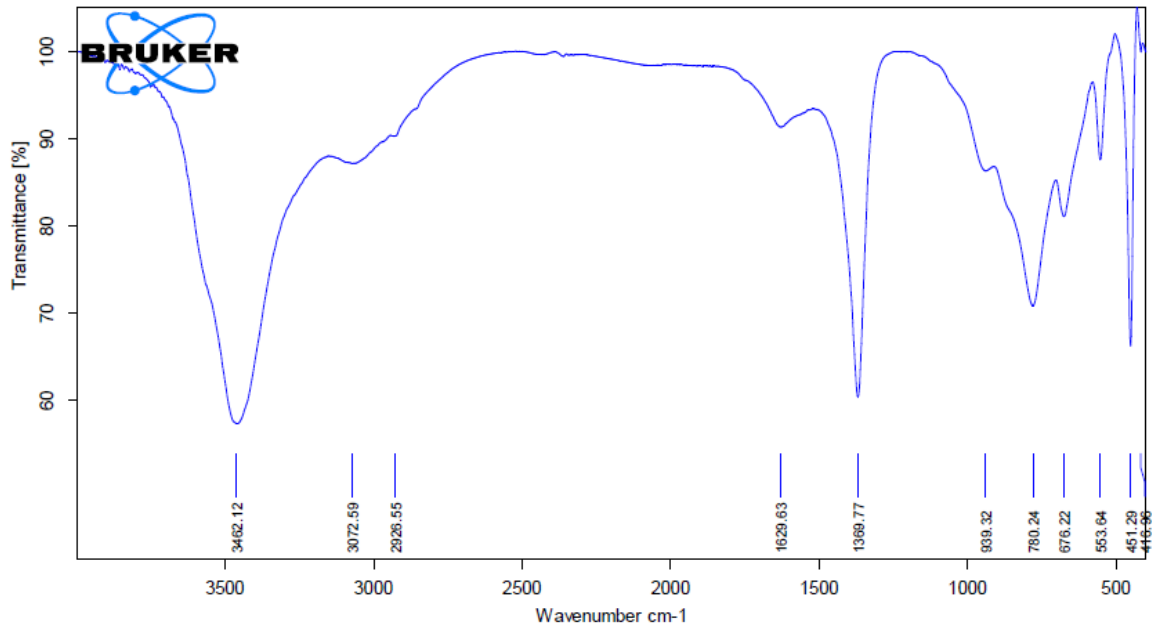
BRUKER - TENSOR 27

1/22/2022

Phụ lục 5: Kết quả phổ hồng ngoại FTIR – HT-10

VIỆN CÔNG NGHỆ HÓA HỌC
TL29, P. THANH LỘC, Q. 12, TP. HCM

Tel: 028.38222261
Mobile: 0909.312.880



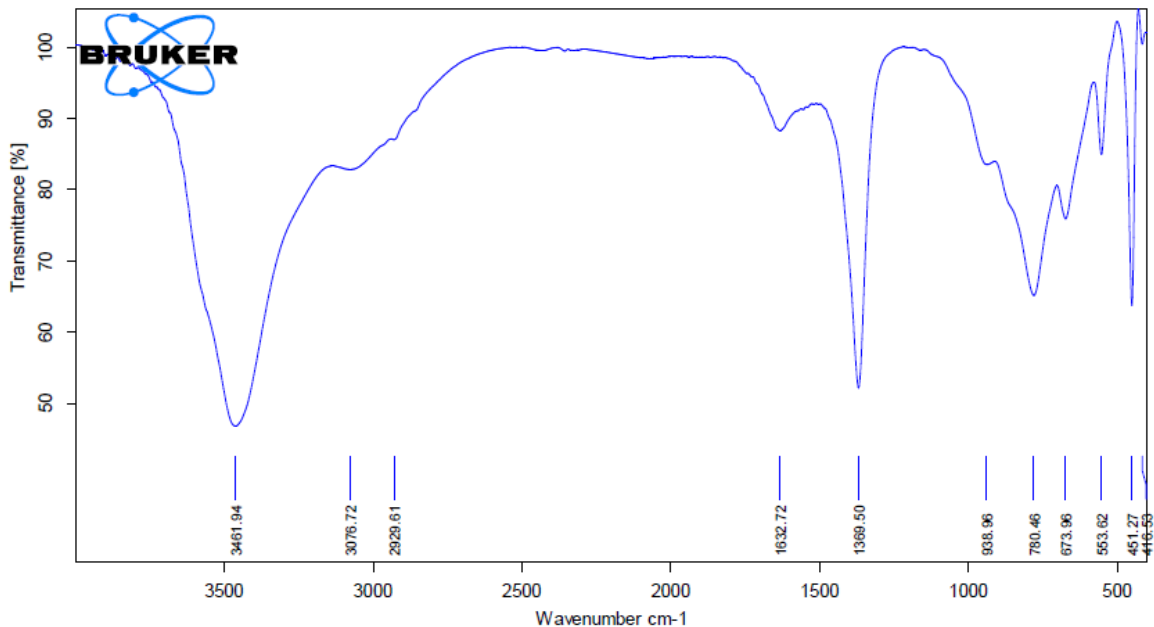
E:\VIEN 2022\PTN 3.2\HT PROJECT\20220122\HT-S107 (pH 10)\HT-S107 (pH 10).0 HT-S107 (pH 10) BRUKER - TENSOR 27 1/22/2022

Page 1/1

Phụ lục 6: Kết quả phổ hồng ngoại FTIR – HT-12

VIỆN CÔNG NGHỆ HÓA HỌC
TL29, P. THANH LỘC, Q. 12, TP. HCM

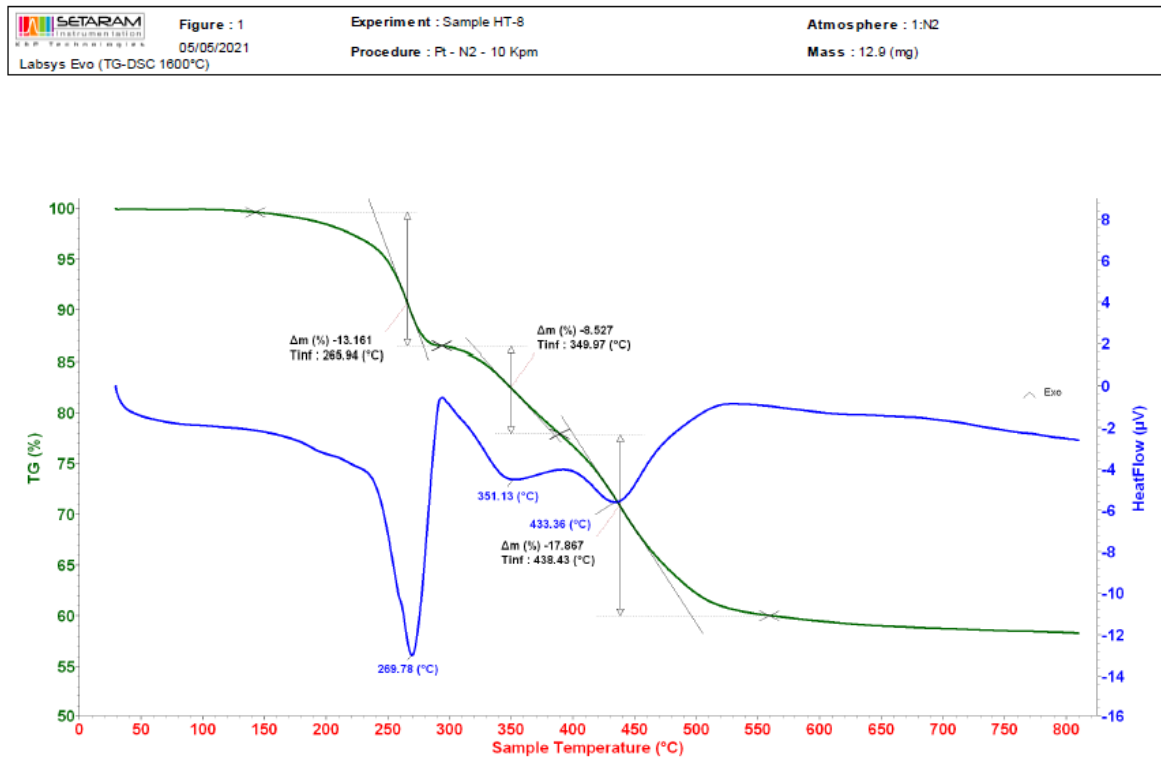
Tel: 028.38222261
Mobile: 0909.312.880



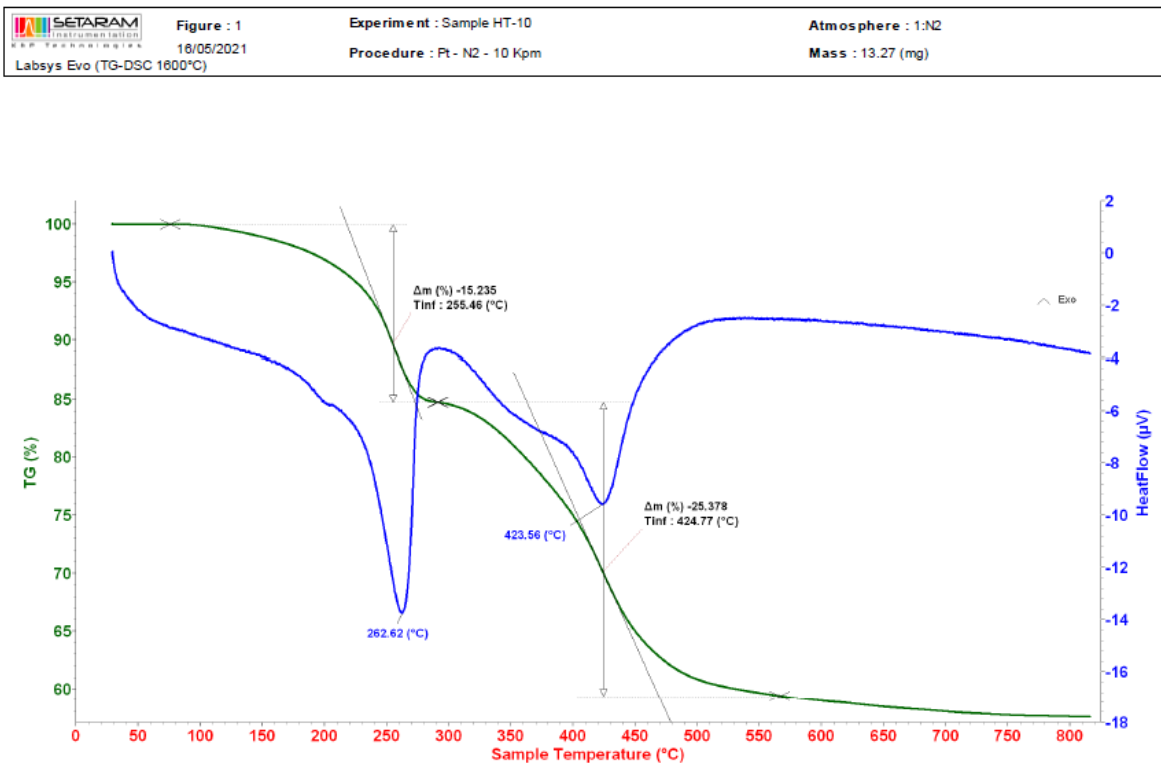
E:\VIEN 2022\PTN 3.2\HT PROJECT\20220122\HT-S105 (pH 12)\HT-S105 (pH 12).0 HT-S105 (pH 12) BRUKER - TENSOR 27 1/22/2022

Page 1/1

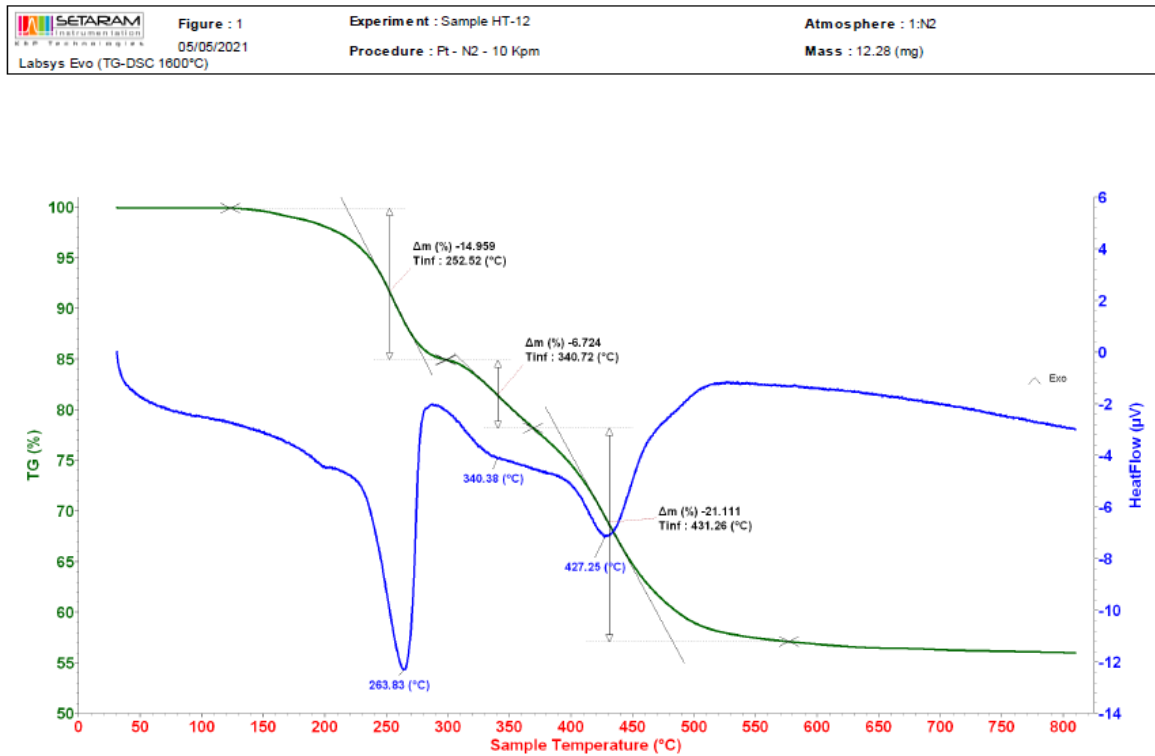
Phụ lục 7: Kết quả phân tích nhiệt đồng thời (TG-DSC)- HT-8



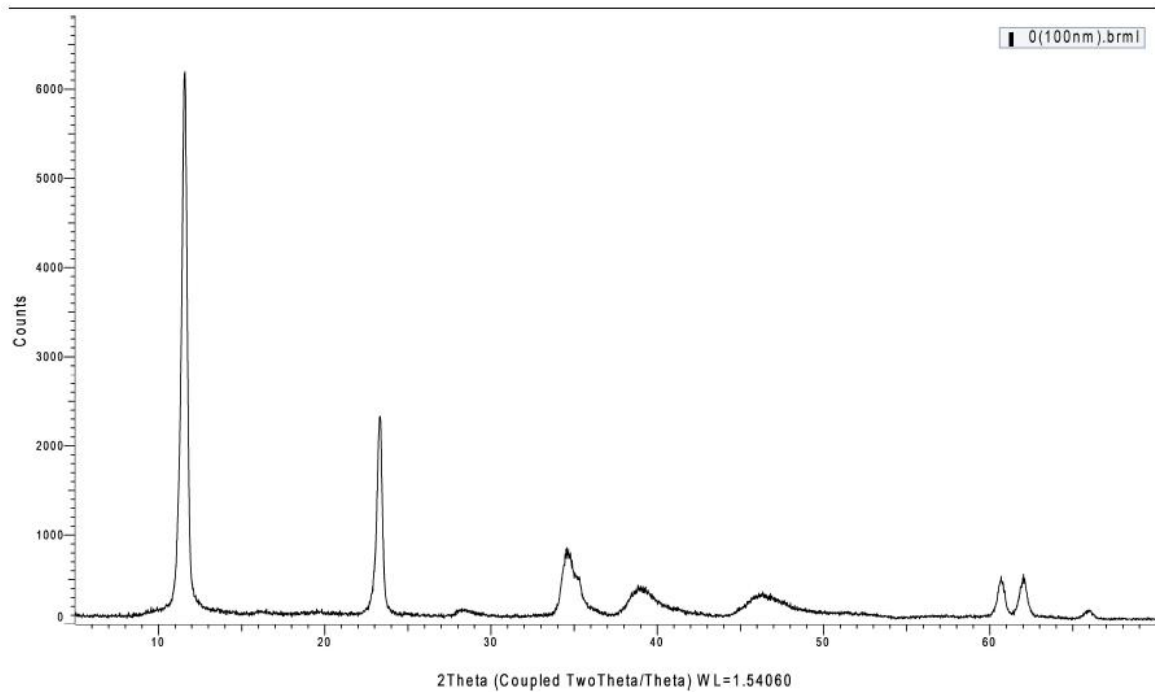
Phụ lục 8: Kết quả phân tích nhiệt đồng thời (TG-DSC)- HT-10



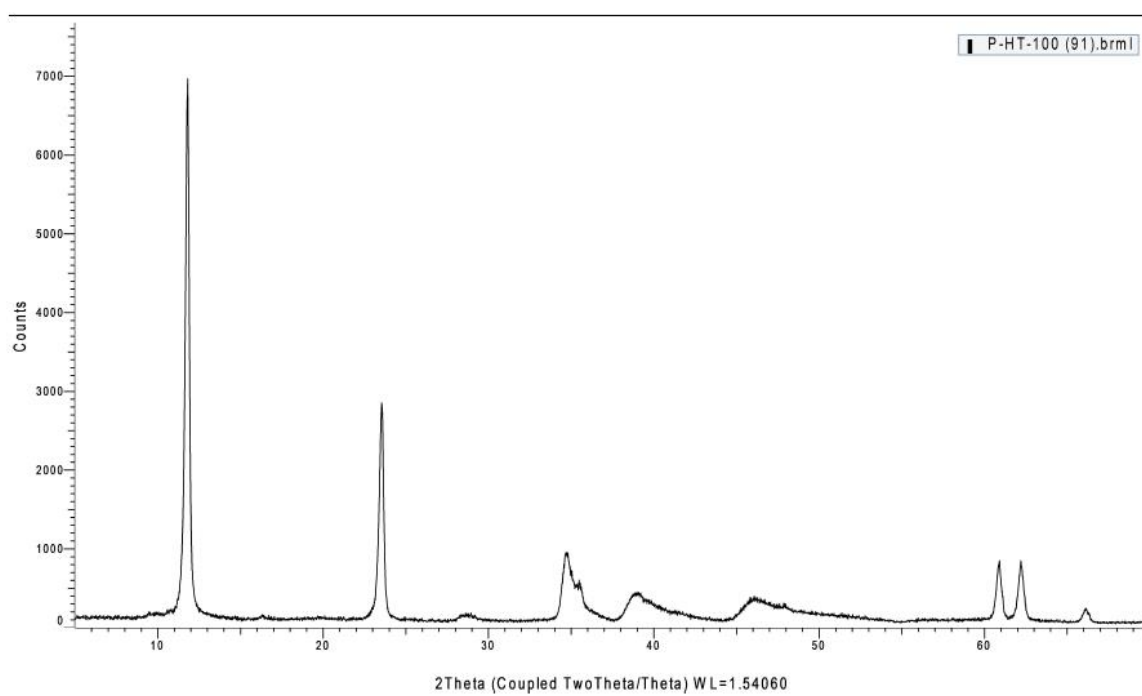
Phụ lục 9: Kết quả phân tích nhiệt đồng thời (TG-DSC)-HT-12



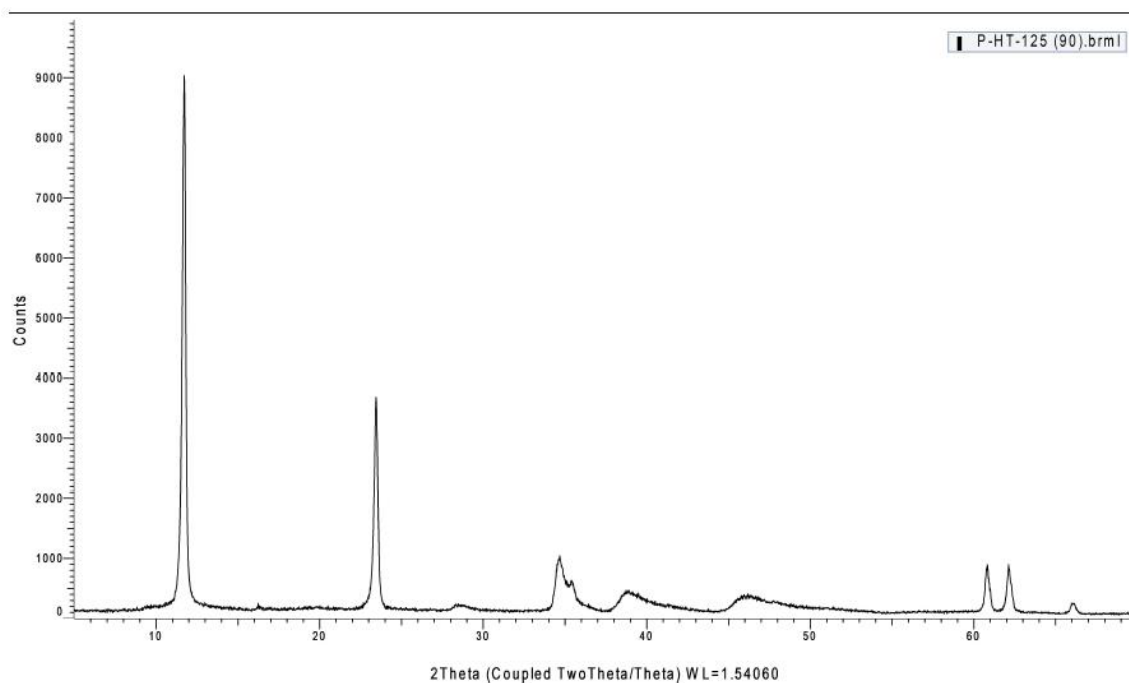
Phụ lục 10: Kết quả phổ nhiễu xạ tia X (XRD) - HT-80



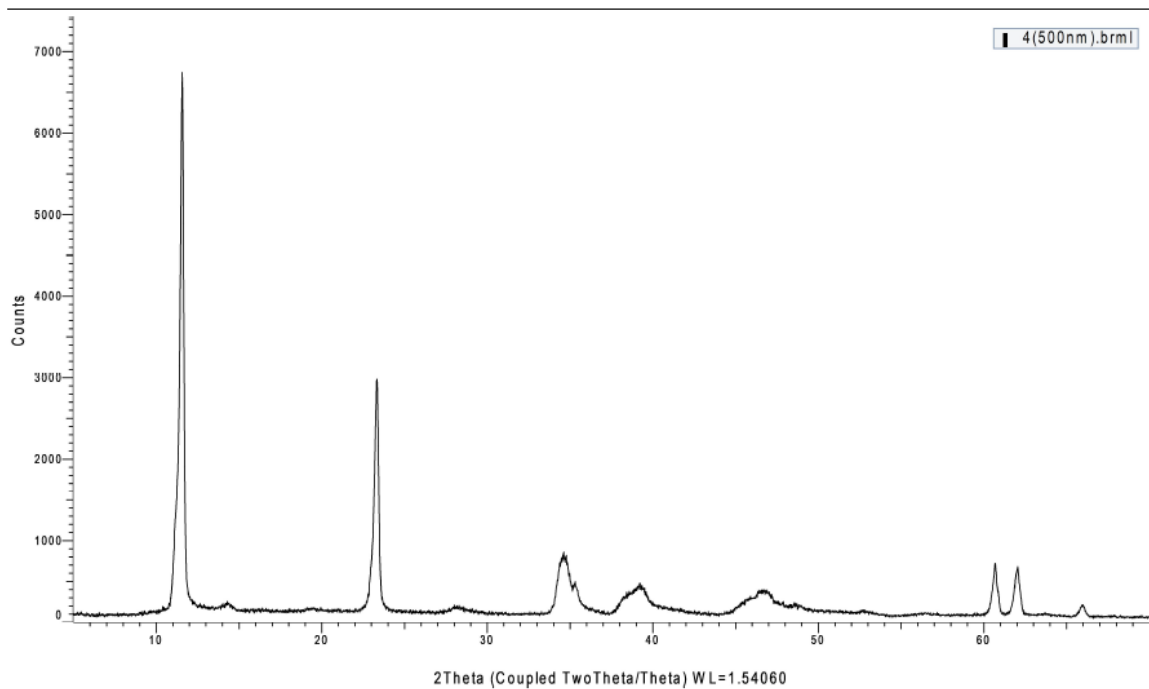
Phụ lục 11: Kết quả phổ nhiễu xạ tia X (XRD) - HT-100



Phụ lục 12: Kết quả phổ nhiễu xạ tia X (XRD) - HT-125



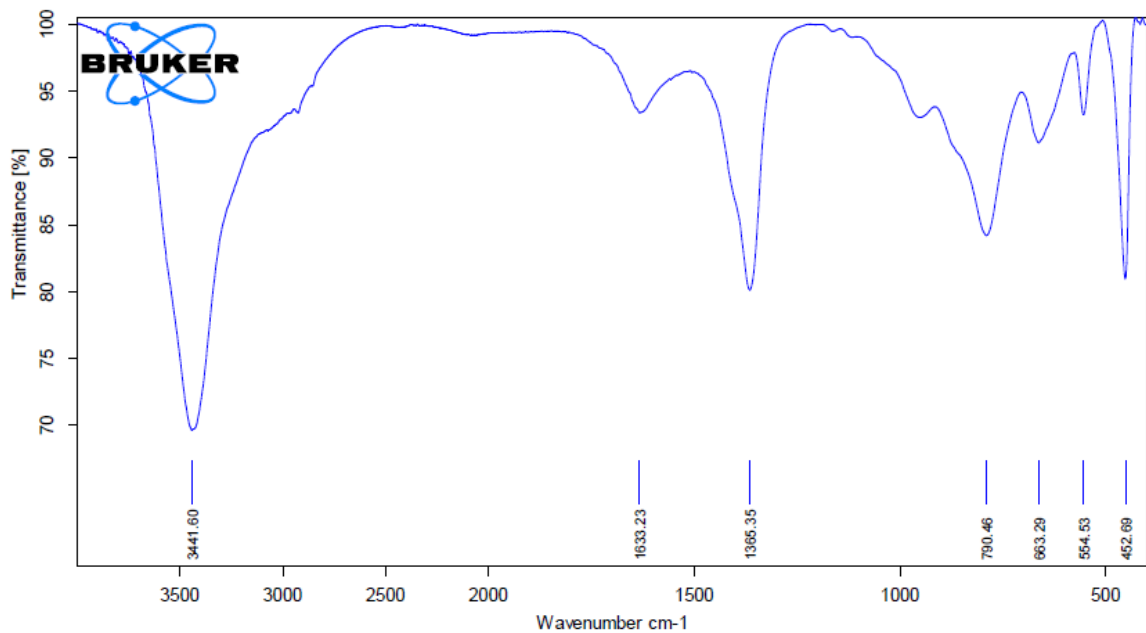
Phụ lục 13: Kết quả phổ nhiễu xạ tia X (XRD) - HT-150



Phụ lục 14: Kết quả phổ hồng ngoại FTIR - HT-80

VIỆN CÔNG NGHỆ HÓA HỌC
TL29, P. THANH LỘC, Q. 12, TP. HCM

Tel: 028.3822228;
Mobile: 0909.312.866



E:\VIEN 2021\PTN 3.2\HT PROJECT\20211115\HT-80 (S96)-1\HT-80 (S96).0

HT-80 (S96)

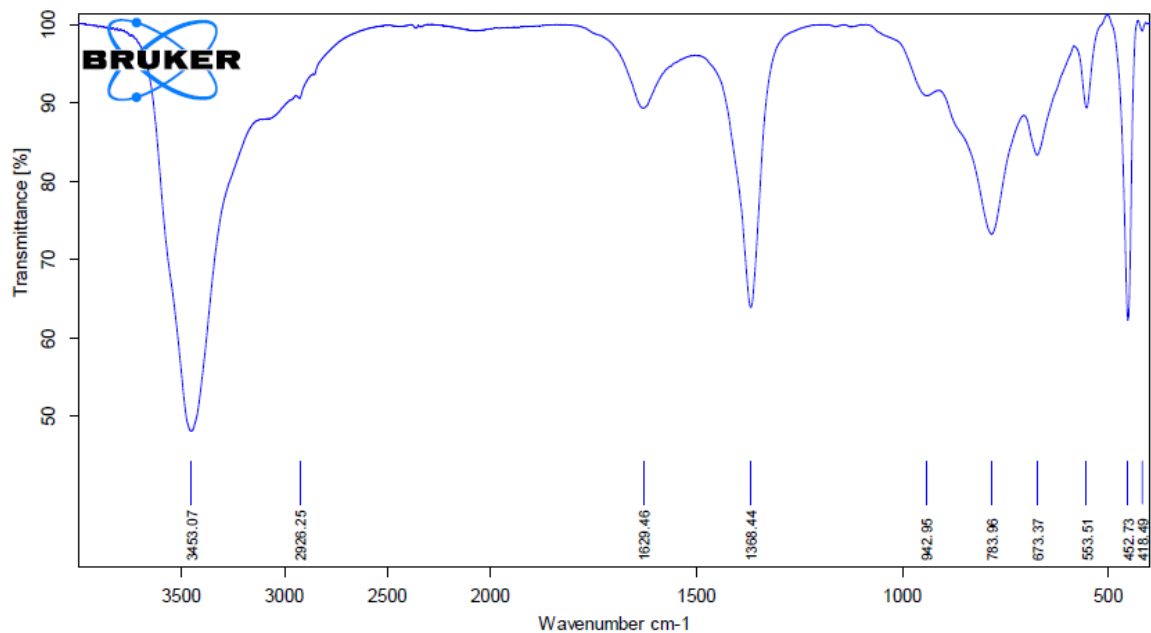
BRUKER - TENSOR 27

11/15/2021

Phụ lục 15: Kết quả phổ hồng ngoại FTIR - HT-100

VIỆN CÔNG NGHỆ HÓA HỌC
TL29, P. THANH LỘC, Q. 12, TP. HCM

Tel: 028.3822228
Mobile: 0909.312.86



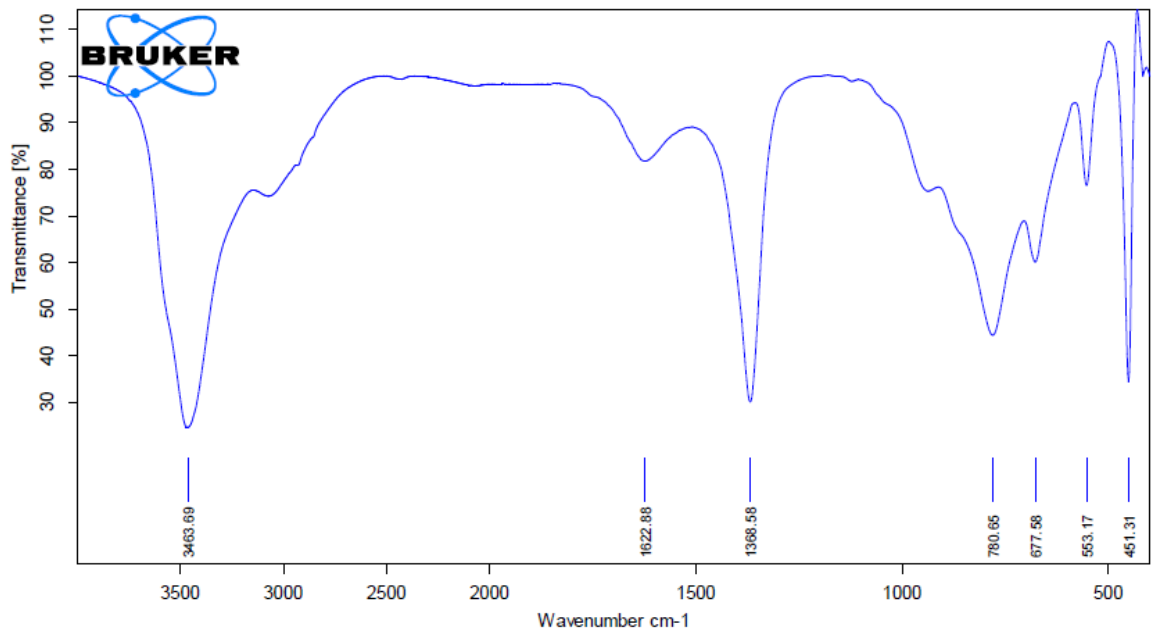
E:\VIEN 2021\PTN 3.2\HT PROJECT\20211115\HT-100 (S91)\HT-100 (S91).0	HT-100 (S91)	BRUKER - TENSOR 27	11/15/2021
--	--------------	--------------------	------------

Page 1/1

Phụ lục 16: Kết quả phổ hồng ngoại FTIR - HT-125

VIỆN CÔNG NGHỆ HÓA HỌC
TL29, P. THANH LỘC, Q. 12, TP. HCM

Tel: 028.3822228
Mobile: 0909.312.86



E:\VIEN 2021\PTN 3.2\HT PROJECT\20211115\HT-125 (S90)\HT-125 (S90).0	HT-125 (S90)	BRUKER - TENSOR 27	11/15/2021
--	--------------	--------------------	------------

Page 1/1

SZ-100

Measurement Results

HT-80.nzt

Measurement Results

Date : Tuesday, November 2, 2021 14:33:57 PM

Measurement Type : Zeta Potential

Sample Name : HT-80

Temperature of the Holder : 24.9 °C

Dispersion Medium Viscosity : 0.897 mPa-s

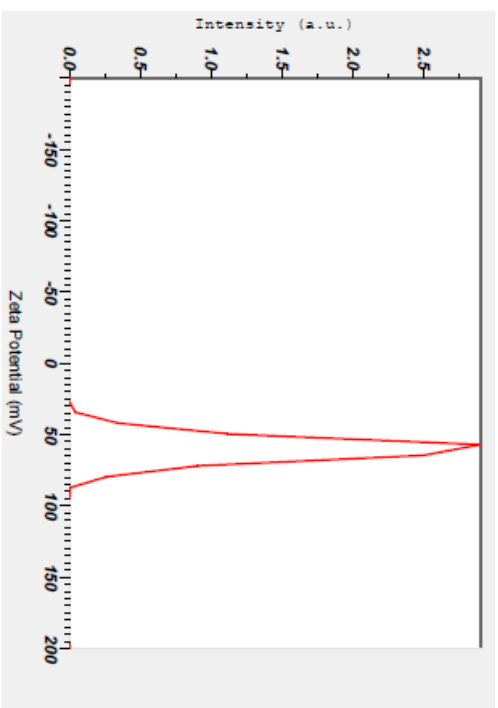
Conductivity : 0.430 mS/cm

Electrode Voltage : 3.3 V

Calculation Results

Peak No.	Zeta Potential	Electrophoretic Mobility
1	60.0 mV	0.000464 cm ² /Vs
2	mV	cm ² /Vs
3	mV	cm ² /Vs

Zeta Potential (Mean) : 60.0 mV

Electrophoretic Mobility Mean : 0.000464 cm²/Vs

Phụ lục 17: Kết quả thế zeta – HT-80

SZ-100

Measurement Results

HT-100.nzt

Measurement Results

Date : Tuesday, November 2, 2021 14:49:18 PM

Measurement Type : Zeta Potential

Sample Name : HT-100

Temperature of the Holder : 24.9 °C

Dispersion Medium Viscosity : 0.897 mPa-s

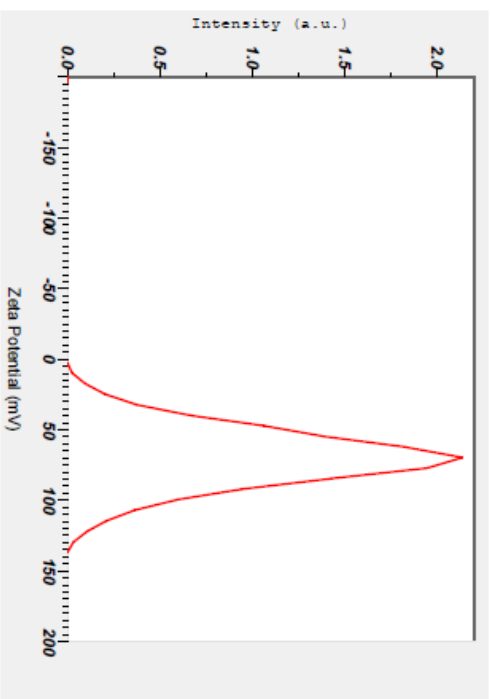
Conductivity : 0.136 mS/cm

Electrode Voltage : 3.4 V

Calculation Results

Peak No.	Zeta Potential	Electrophoretic Mobility
1	99.2 mV	0.000767 cm ² /Vs
2	46.9 mV	0.000362 cm ² /Vs
3	71.0 mV	0.000649 cm ² /Vs

Zeta Potential (Mean) : 69.4 mV

Electrophoretic Mobility Mean : 0.000536 cm²/Vs

Phụ lục 18: Kết quả thế zeta – HT-100

SZ-100

Measurement Results

HT-125.nzt

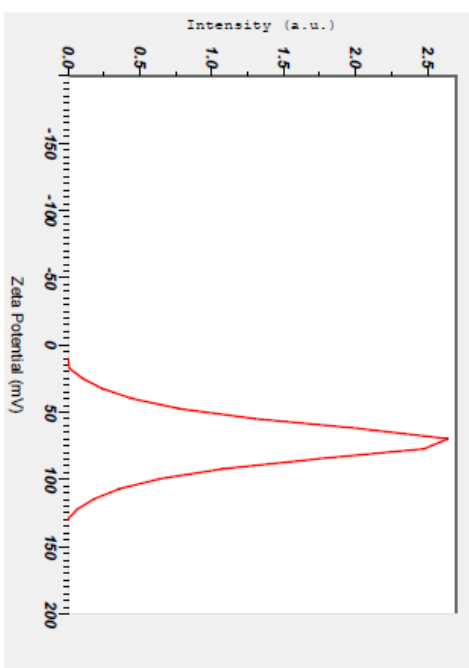
Measurement Results

Date	Tuesday, November 2, 2021 15:09:22 PM
Measurement Type	: Zeta Potential
Sample Name	: HT-125
Temperature of the Holder	: 25.0 °C
Dispersion Medium Viscosity	: 0.895 mPa·s
Conductivity	: 0.147 mS/cm
Electrode Voltage	: 3.3 V

Calculation Results

Peak No.	Zeta Potential	Electrophoretic Mobility
1	72.1 mV	0.000558 cm ² /Vs
2	--- mV	--- cm ² /Vs
3	--- mV	--- cm ² /Vs

Zeta Potential (Mean)	: 72.1 mV
Electrophoretic Mobility Mean	: 0.000558 cm ² /Vs



Phụ lục 19: Kết quả thể zeta – HT-125

Measurement Results

HT-150 (S99).nzt

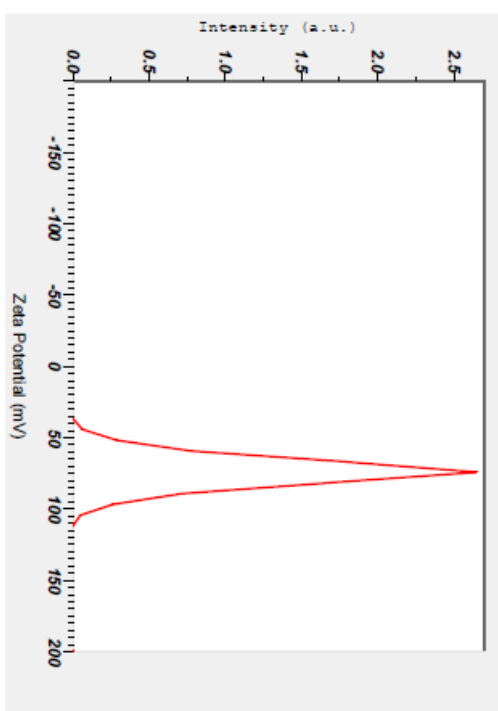
Measurement Results

Date	Tuesday, November 2, 2021 15:34:59 PM
Measurement Type	Zeta Potential
Sample Name	HT-150 (599)
Temperature of the Holder	24.9 °C
Dispersion Medium Viscosity	0.897 mPa·s
Conductivity	0.274 mS/cm
Electrode Voltage	3.3 V

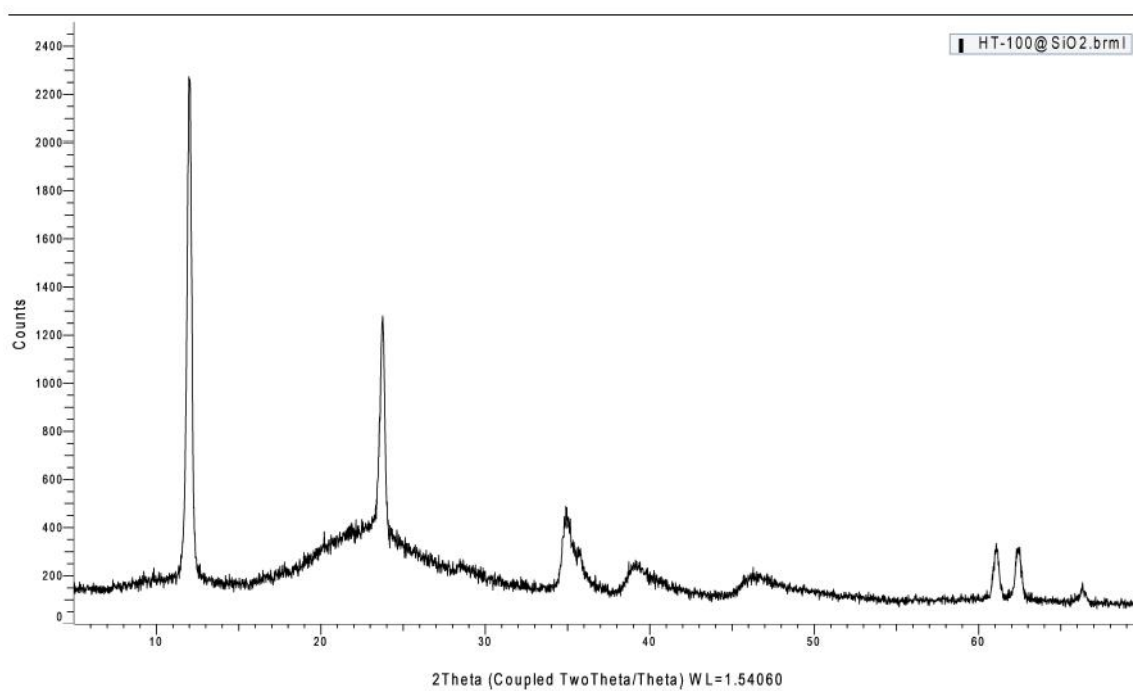
Calculation Results

Peak No.	Zeta Potential	Electrophoretic Mobility
1	73.9 mV	0.00057 cm ² /Vs
2	--- mV	--- cm ² /Vs
3	--- mV	--- cm ² /Vs

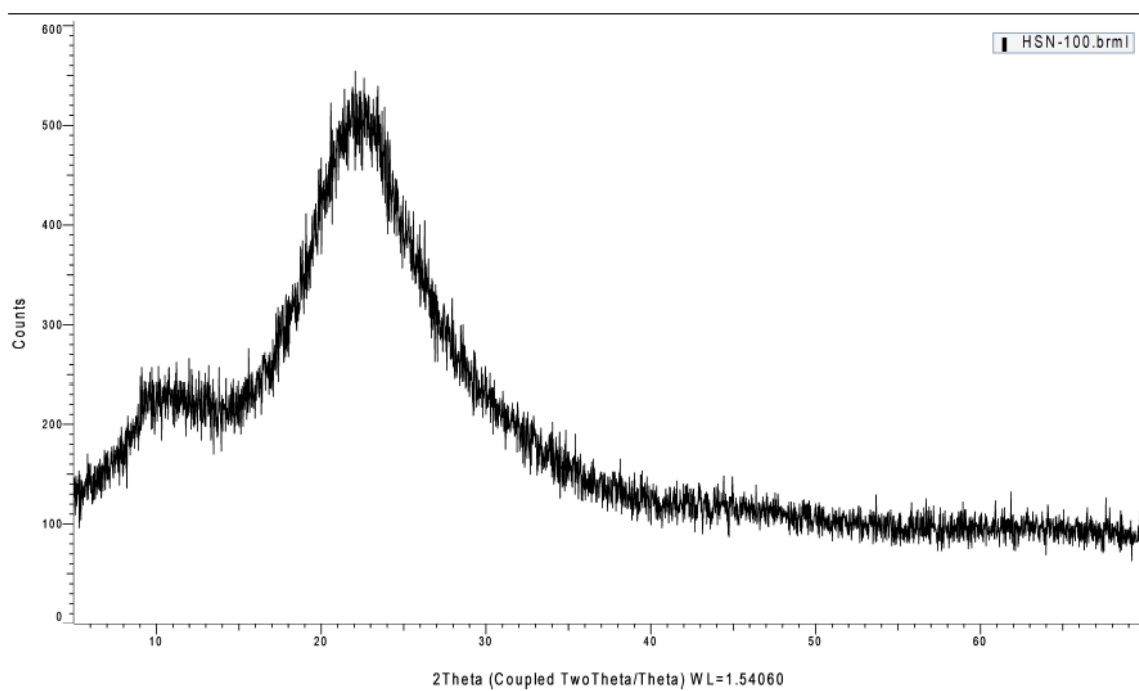
Zeta Potential (Mean)	: 73.9 mV
Electrophoretic Mobility Mean	: 0.000571 cm ² /Vs



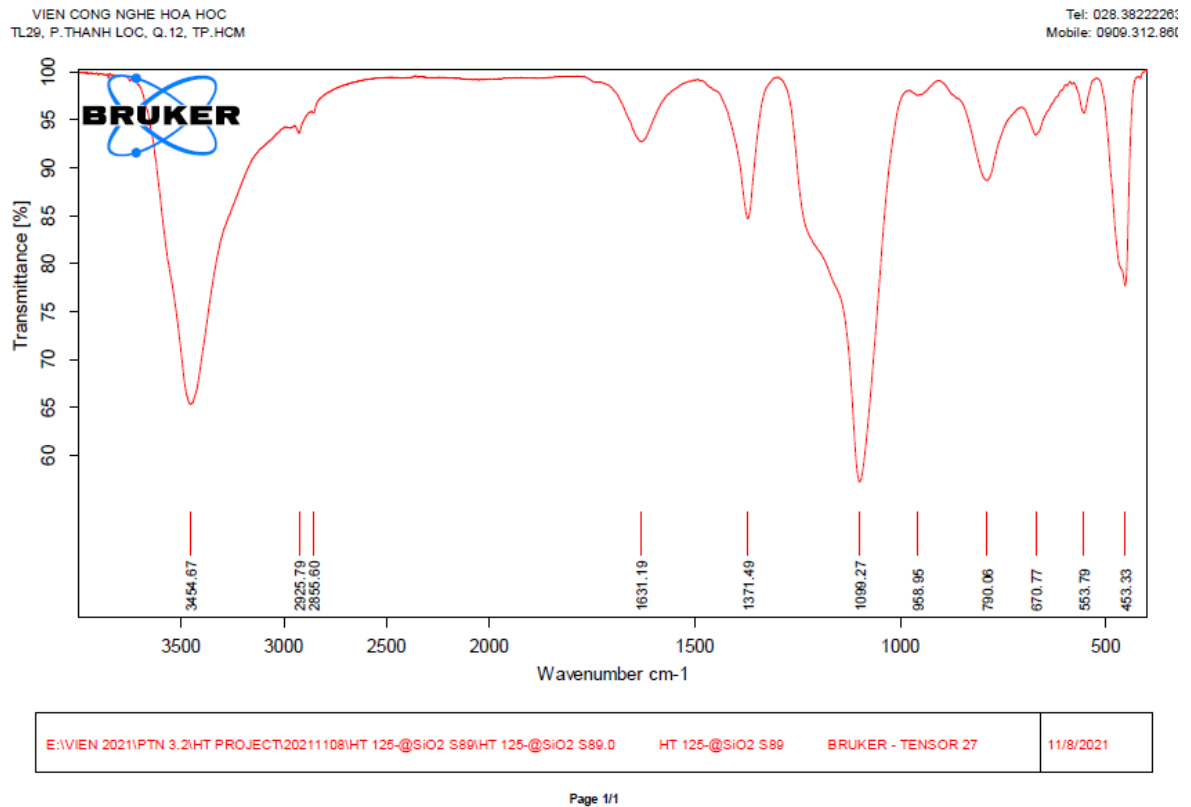
Phụ lục 20: Kết quả thế zeta – HT-150

Phụ lục 21: Kết quả phổ nhiễu xạ tia X (XRD) - HT125@SiO₂

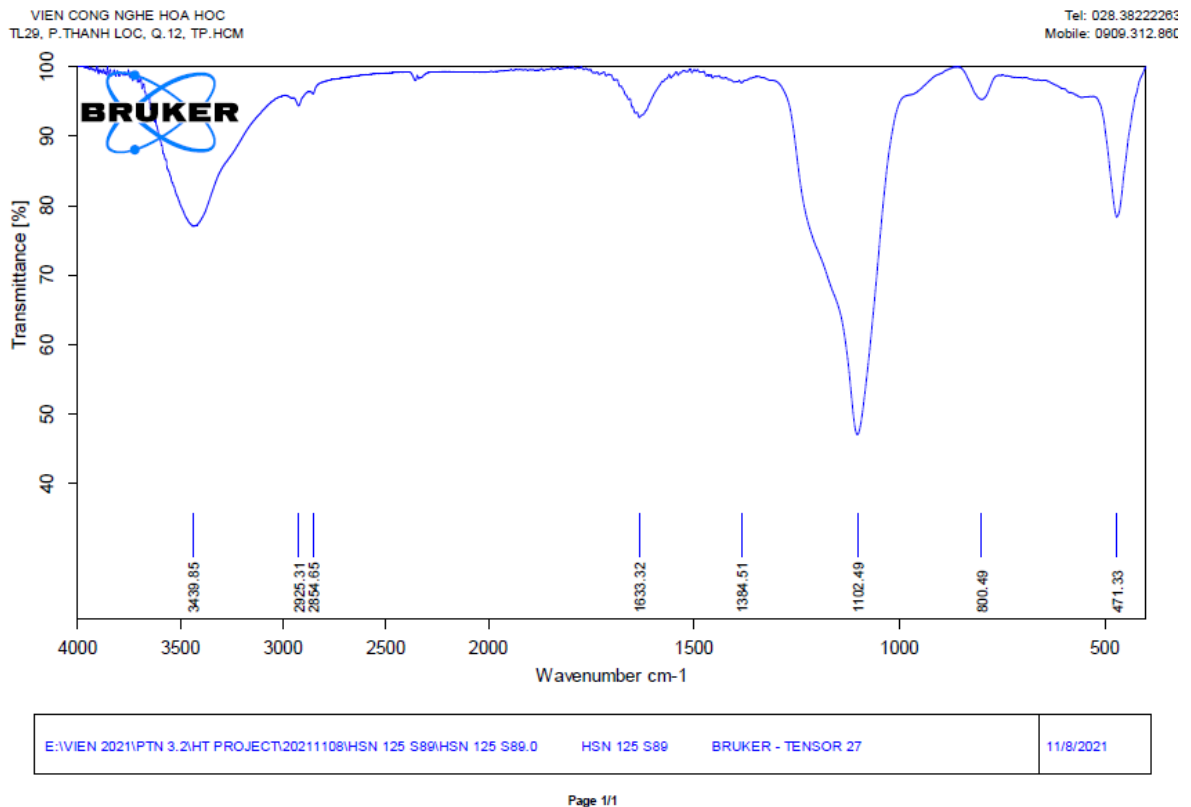
Phụ lục 22: Kết quả phổ nhiễu xạ tia X (XRD) – HSN-125

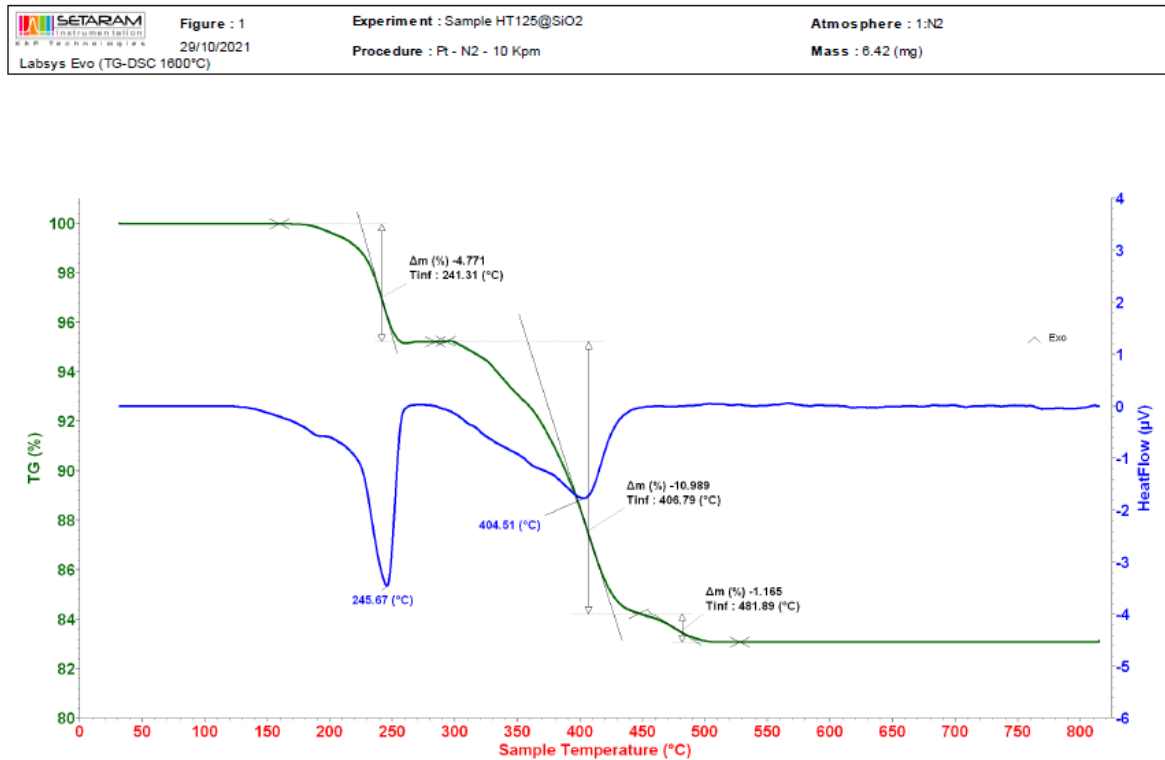


Phụ lục 23: Kết quả phổ hồng ngoại FTIR - HT125@SiO₂

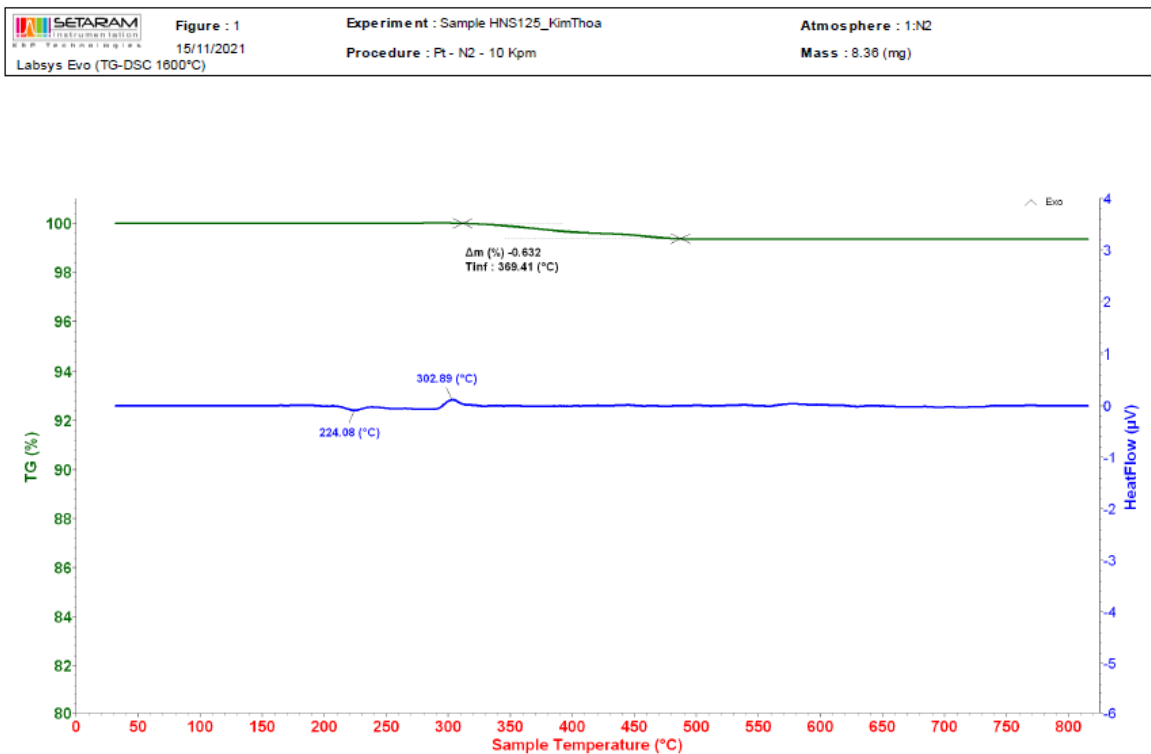


Phụ lục 24: Kết quả phổ hồng ngoại FTIR – HSN-125

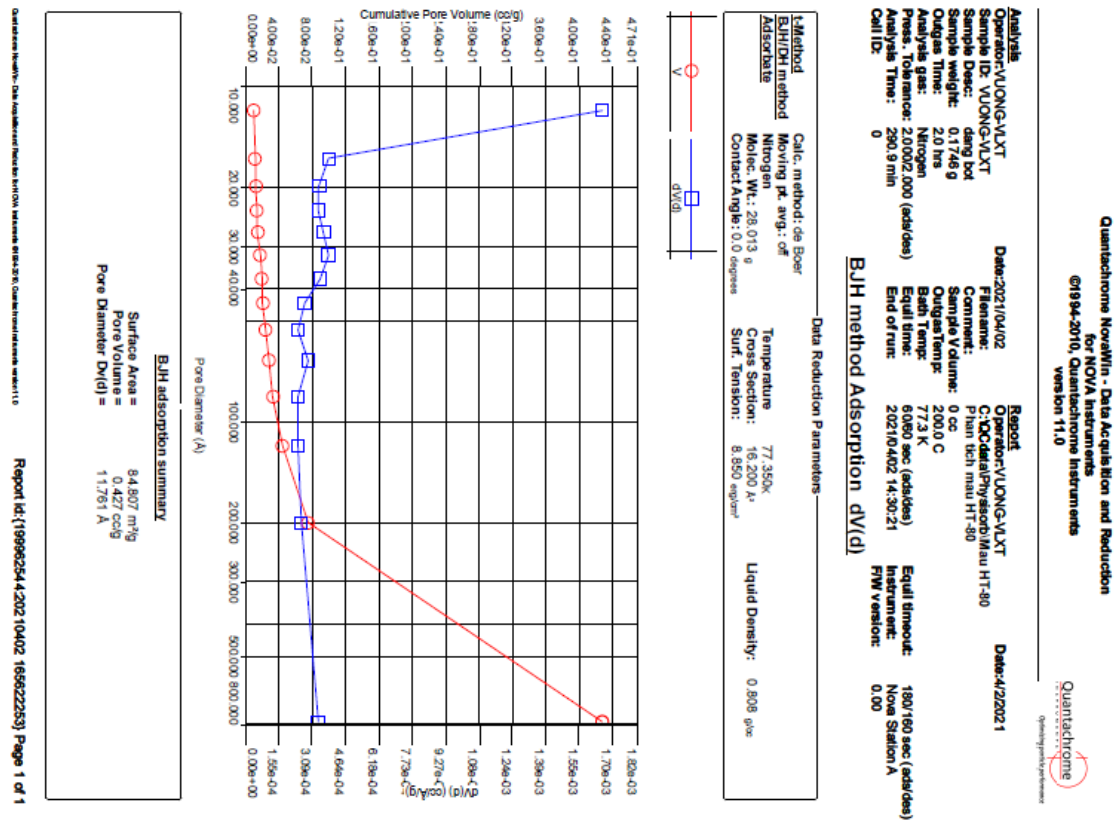


Phụ lục 25: Kết quả phân tích nhiệt khối lượng (TG-DSC)-HT125@SiO₂

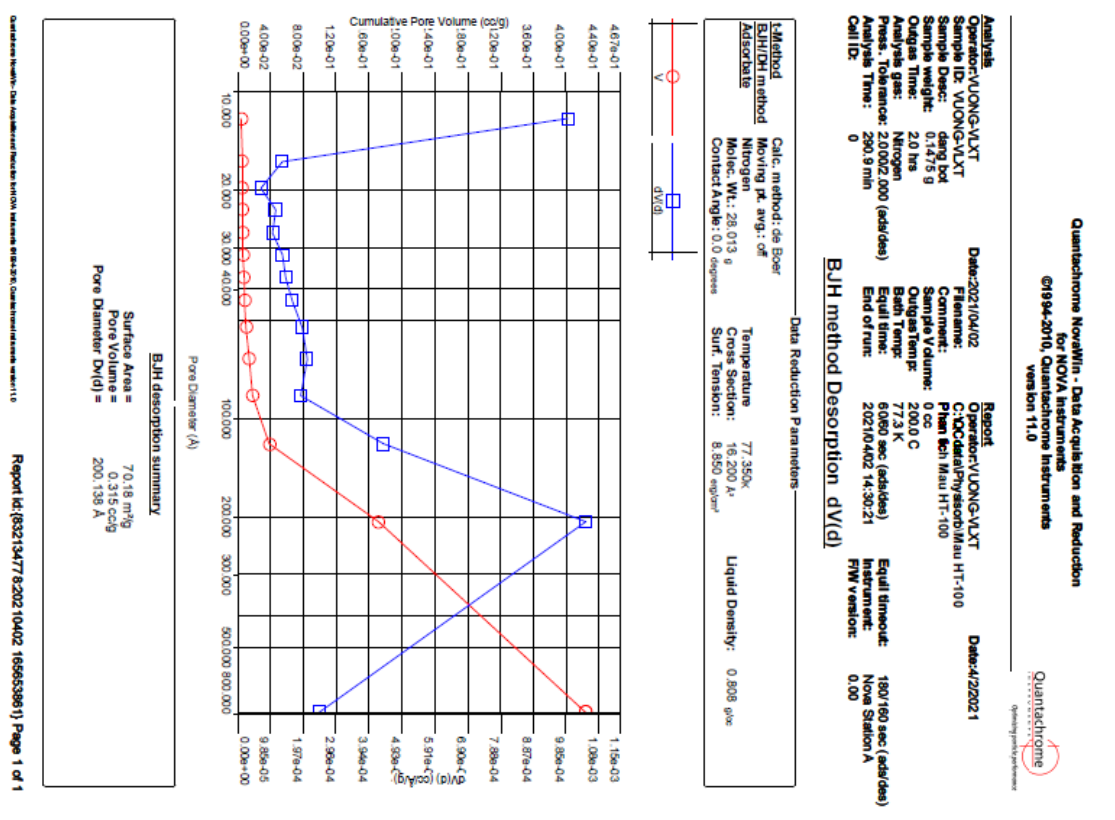
Phụ lục 26: Kết quả phân tích nhiệt khối lượng (TG-DSC)-HSN-125



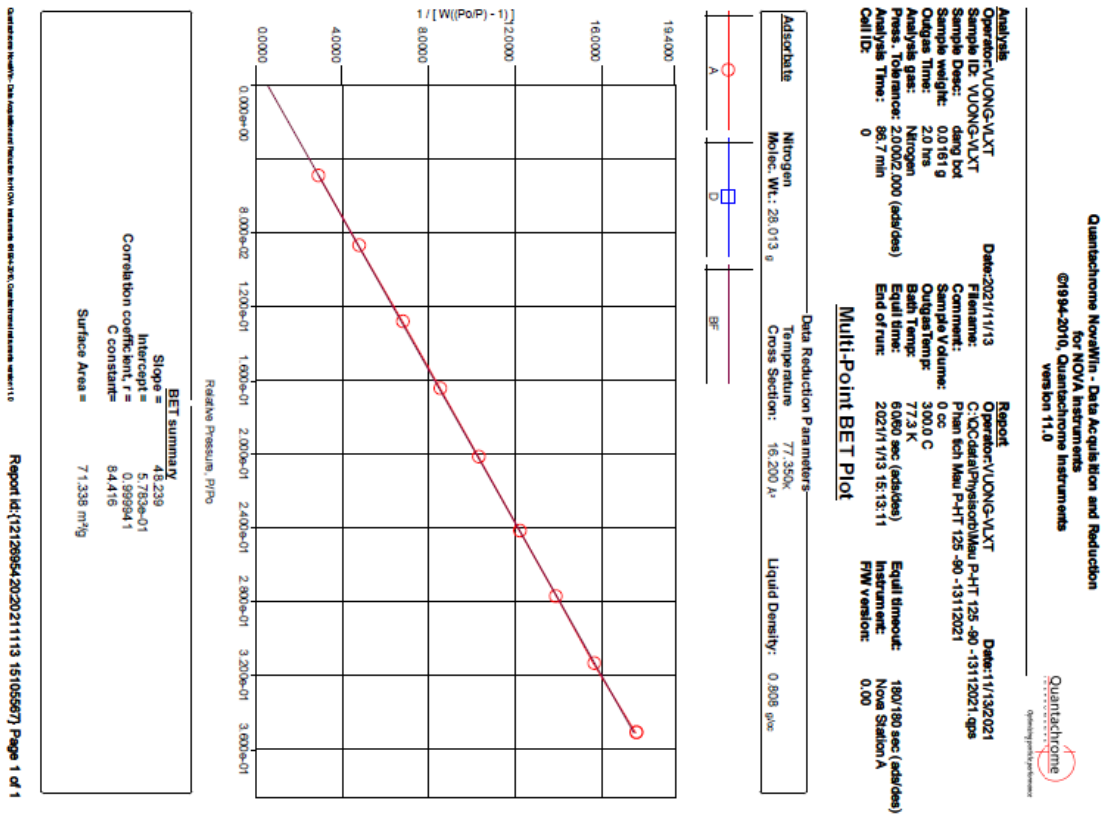
Phụ lục 27: Thê Zeta của HT-80



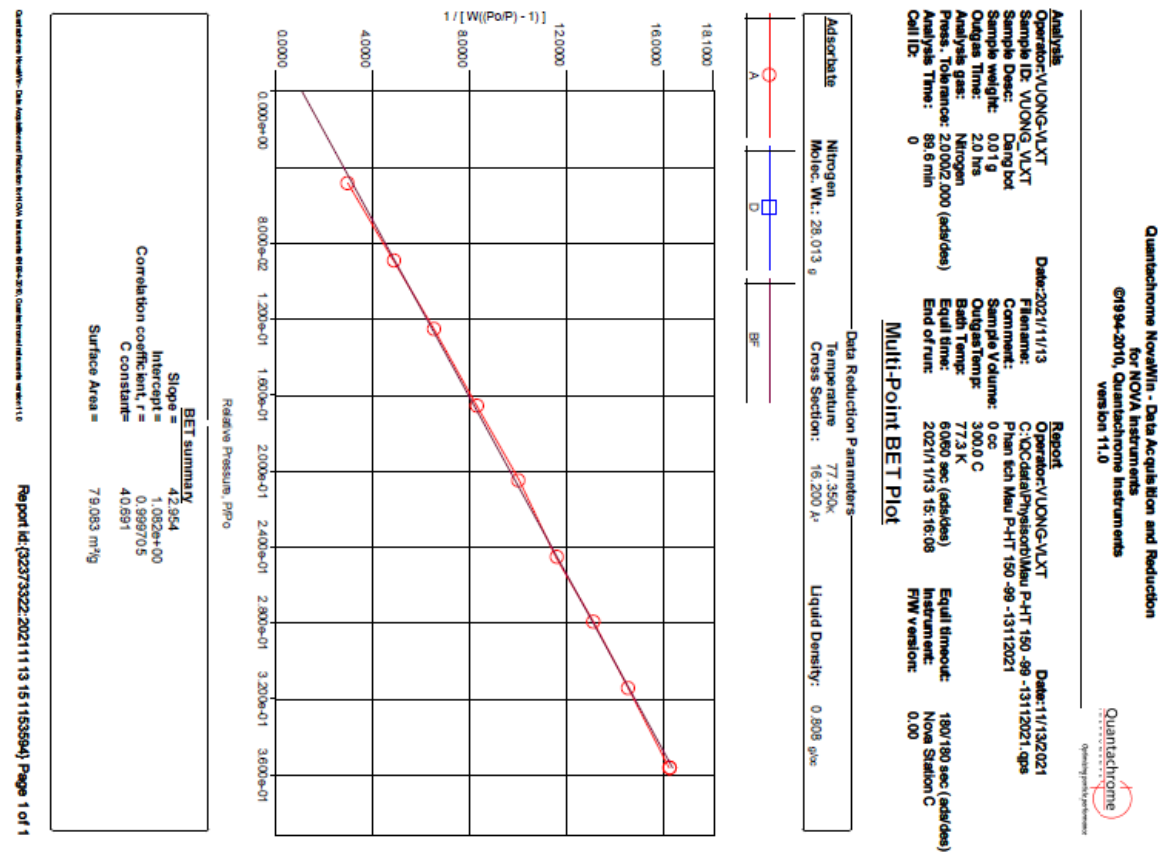
Phụ lục 28: Thê Zeta của HT-100



Phụ lục 29: Thê Zeta của HT-125



Phụ lục 30: Thê Zeta của HT-150



SZ-100

Measurement Results

HT-125@SIO2 ZETA.nzt

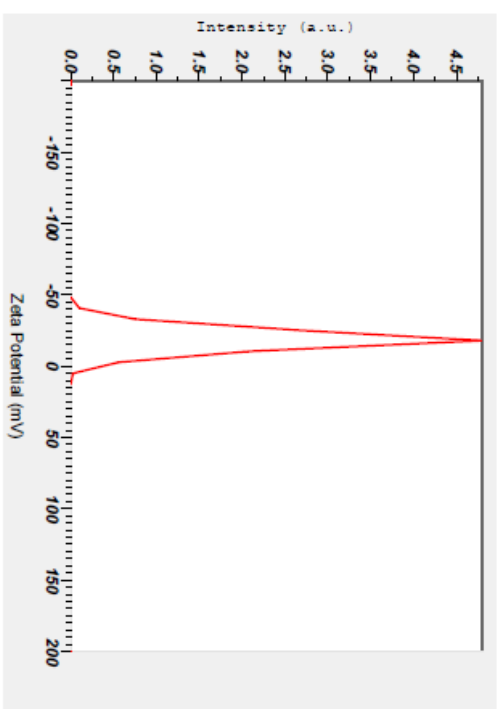
Measurement Results

Date	Tuesday, November 2, 2021 16:33:14 PM
Measurement Type	: Zeta Potential
Sample Name	: HT-125@SiO2
Temperature of the Holder	: 24.9 °C
Dispersion Medium Viscosity	: 0.897 mPa-s
Conductivity	: 0.725 mS/cm
Electrode Voltage	: 3.3 V

Calculation Results

Peak No.	Zeta Potential	Electrophoretic Mobility
1	-18.7 mV	-0.000144 cm ² /Vs
2	--- mV	--- cm ² /Vs
3	--- mV	--- cm ² /Vs

Zeta Potential (Mean)	: -18.7 mV
Electrophoretic Mobility Mean	: -0.000144 cm ² /Vs

Phụ lục 31: Thế Zeta của HT125@SiO₂

SZ-100

Measurement Results

HSN 107-0.5.nzt

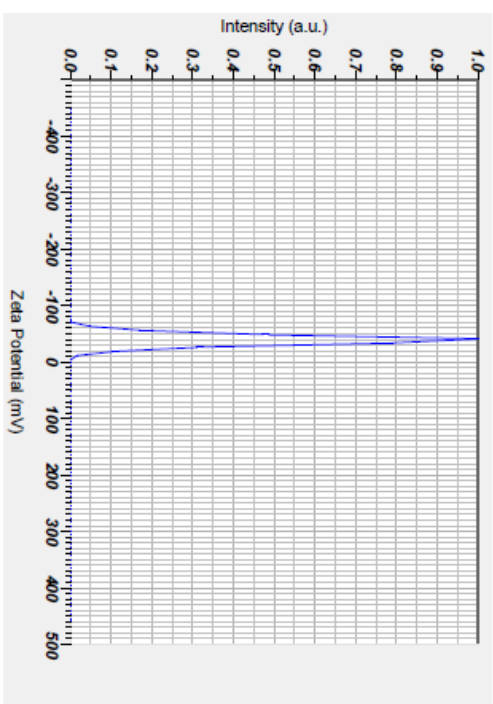
Measurement

Date	Friday, May 27, 2022 3:13:56 AM
Measurement Type	• Zeta Potential
Sample Name	• HSN 107 - 0.5
Temperature of the Holder	• 25.0 °C
Dispersion Medium	• 0.895 mPa-s
Viscosity	• 0.220 mSt/cm
Conductivity	• 3.4 V
Electrode Voltage	

Calculation Results

Peak No.	Zeta Potential	Electrophoretic Mobility
1	-38.9 mV	-0.000302 cm ² /Vs
2	--- mV	--- cm ² /Vs
3	--- mV	--- cm ² /Vs

Zeta Potential (Mean)	: -38.9 mV
Electrophoretic Mobility Mean	: -0.000302 cm ² /Vs



Phụ lục 32: Thế Zeta của HSN-0,5

Measurement Results

HSN 107-0.75.nzt

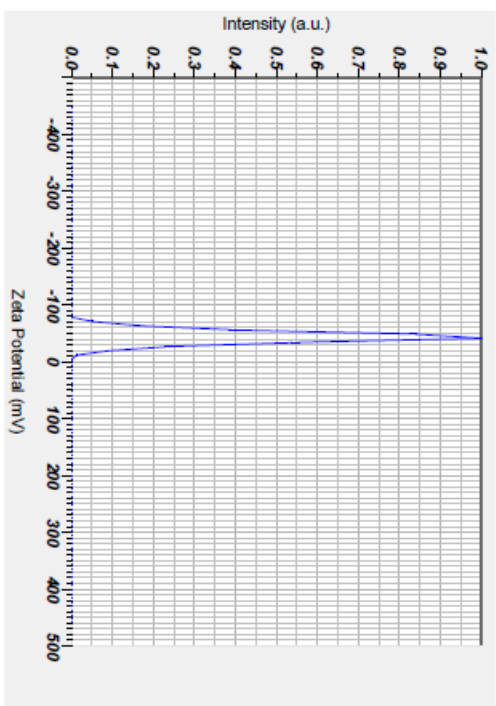
Measurement

Date	Friday, May 27, 2022 3:25:36 AM
Measurement Type	Zeta Potential
Sample Name	HSN 107 - 0.75
Temperature of the Holder	25.2 °C
Dispersion Medium Viscosity	0.892 mPa·s
Conductivity	0.206 mS/cm
Electrode Voltage	3.4 V

Calculation Results

Peak No.	Zeta Potential	Electrophoretic Mobility
1	-43.6 mV	-0.000339 cm ² /Vs
2	--- mV	--- cm ² /Vs
3	--- mV	--- cm ² /Vs

Zeta Potential (Mean) : -43.6 mV

Electrophoretic Mobility Mean : -0.000339 cm²/Vs

Measurement Results

HSN 107-1.0.nzt

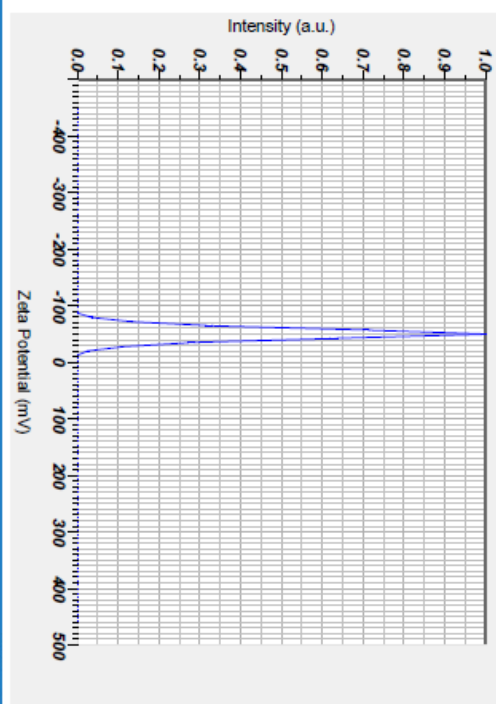
Measurement

Date	Friday, May 27, 2022 3:34:37 AM
Measurement Type	• Zeta Potential
Sample Name	• HSM 107 - 1.0
Temperature of the Holder	• 25.0 °C
Dispersion Medium Viscosity	• 0.894 mPa·s
Conductivity	• 0.207 mS/cm
Electrode Voltage	• 3.4 V

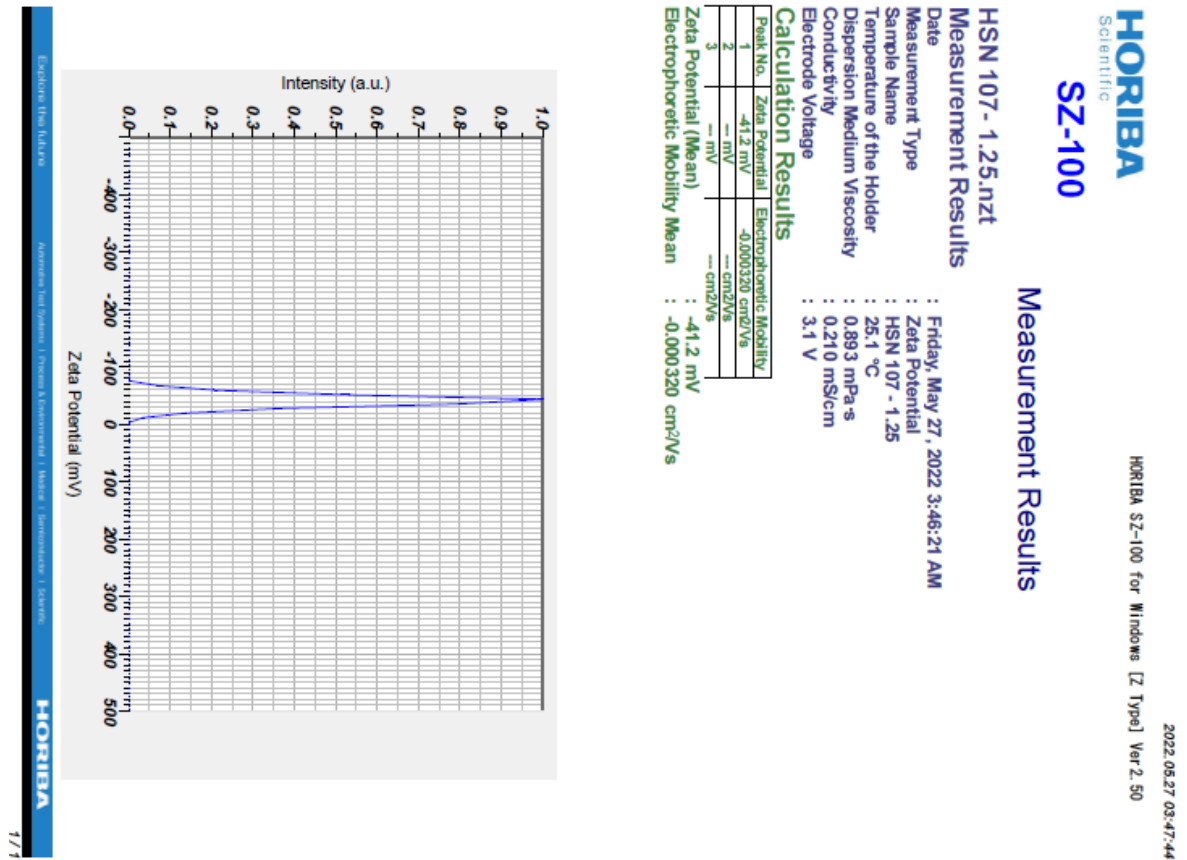
Calculation Results

Peak No.	Zeta Potential	Electrophoretic Mobility
1	-50.4 mV	-0.000390 cm ² /Vs
2	-- mV	-- cm ² /Vs
3	-- mV	-- cm ² /Vs

Electrochemical Methods	Mean	Standard Deviation
Zeta Potential (mV)	-50.4	1.2
Electrochemical Impedance Spectroscopy (EIS)	0.000200	0.000050

Electrophoretic Mobility Mean : -0.000390 cm²/Vs

Phụ lục 35: Thế Zeta của HSN-1,25



Phụ lục 36: Kết quả phổ nhiễu xạ tia X (XRD) – HSN-125 phá lỗi ở pH 2,5

