

TỔNG HỢP VÀ NGHIÊN CỨU VẬT LIỆU Ni/MIL 101 ỨNG DỤNG NHƯ XÚC TÁC ĐIỆN HÓA ĐỐI VỚI ETHANOL

TRẦN THẢO QUỲNH NGÂN

Khoa Công nghệ Hóa học, Trường Đại học Công nghiệp thành phố Hồ Chí Minh
tranthaoquynhngan@iuh.edu.vn

Tóm tắt: Vật liệu MIL 101 được tổng hợp từ vật liệu cơ kim crom được biết đến như vật liệu có độ xốp và diện tích bề mặt lớn. Vật liệu MIL 101 ứng dụng như là vật liệu hỗ trợ cho xúc tác nickel để tăng hoạt tính xúc tác điện hóa được tổng hợp bằng phương pháp thủy nhiệt và nghiên cứu cho phản ứng xúc tác điện hóa của ethanol. Cấu trúc và hình thái của vật liệu MIL 101 và Ni/MIL 101 được nghiên cứu dựa trên các phương pháp phân tích như nhiễu xạ tia X (XRD), phổ hồng ngoại Fourier (FTIR), kính hiển vi điện tử quét (SEM) và phân tích diện tích bề mặt riêng bằng Brunauer-Emmett-Teller (BET). Hiệu quả xúc tác điện hóa của vật liệu MIL 101 và Ni/MIL 101 đối với ethanol được đánh giá dựa vào phương pháp cyclic voltammetry (CV) và chronoamperometry (CA). Vật liệu Ni/MIL 101 được tổng hợp có diện tích bề mặt riêng 916 m² g⁻¹ với kích thước xúc tác hạt nickel là 10-20 nm. Phản ứng oxi hóa điện hóa của ethanol trong vùng điện thế 0,45-0,65 V (Ag/AgCl/ NaCl 3M). Kết quả của nghiên cứu chỉ ra vật liệu Ni/MIL 101 phù hợp cho phản ứng xúc tác điện hóa ethanol và hứa hẹn là vật liệu tiềm năng trong ứng dụng chế tạo cảm biến và pin nhiên liệu từ nguyên liệu là ethanol.

Từ khóa: ethanol, MIL 101, nickel, xúc tác điện hóa.

Ni-ANCHORING ON METAL ORGANIC FRAMEWORK MIL 101 AS A POTENTIAL CATALYST FOR ELECTRO-OXIDATION ETHANOL

Abstract. It is well known that MIL 101 with Cr-based metal-organic framework is a highly porous matrix material for anchoring Ni particle. Ni-anchoring MIL 101 with nano particles were successfully synthesized by hydrothermal reaction for ethanol electro-oxidation reaction. Ni-anchoring MIL 101 nano particle (Ni/MIL 101) was characterized by X-Ray diffraction (XRD), Fourier transform infrared spectroscopy (FTIR) for structure and composition, and scanning electron microscopy (SEM), and transmission electron microscopy morphology (TEM). Ethanol electro-oxidation property of the Ni/MIL 101 catalysts was studied using cyclic voltammetry (CV) and chronoamperometry (CA). Ni-anchoring MIL 101 NP revealed with 916 m² g⁻¹ of BET surface area and 10-20 nm of nano particle size. The electro-oxidation reaction of ethanol on Ni/MIL 101 occurred a pair of redox peaks at voltage of 0,45-0,65 V and 0,15-0,45 V (vs. Ag/AgCl/ NaCl 3M). This result showed that a highly porous three-dimensional structure of Ni/MIL 101 would be a potential catalyst for ethanol electro-oxidation and further fuel cells.

Keywords. Electro-oxidation, catalyst, MIL 101, ethanol.

1. GIỚI THIỆU

Trong suốt các thập niên gần đây, vấn đề năng lượng đang được chú trọng bởi các nhà nghiên cứu trên thế giới do sự cạn kiệt nguyên liệu hóa thạch và các vấn đề về ô nhiễm môi trường [1]. Việc khai thác năng lượng xanh từ những nguồn nguyên liệu hữu cơ đang được đẩy mạnh hiện nay [2]. Hiện nay, pin nhiên liệu sử dụng hydrogen đang được tập trung nghiên cứu do những ưu điểm nổi bật như khả năng dự trữ năng lượng cao. Ethanol được biết là một trong những nguồn nhiên liệu được sử dụng rộng rãi thông qua hệ thống pin nhiên liệu hoạt động ở nhiệt độ thấp PEMFC (proton exchange membrane fuel cell) [3] và AEMFC (anion exchange membrane fuel cell) [4]. Tuy nhiên, việc ứng dụng ethanol như là nhiên liệu xanh gặp nhiều khó khăn như hiệu suất chuyển hóa thấp, phản ứng oxi hóa ethanol gây nhiễm độc vật liệu xúc tác ở điện cực và thời gian sử dụng chưa tối ưu. Vì thế, nghiên cứu vật liệu xúc tác điện hóa cho phản ứng phân hủy ethanol luôn được đề cao và nghiên cứu. Đây cũng được xem là những bước đầu tiên trong nghiên cứu ứng dụng cung cấp năng lượng xanh của nhiên liệu là ethanol.

Những năm gần đây, xu hướng ứng dụng vật liệu nano như xúc tác điện hóa cho các hợp chất hữu cơ đang được đào sâu nghiên cứu. Vật liệu mới có khả năng tăng hiệu suất xúc tác, độ xốp cao, khả năng dẫn điện tốt đồng thời giảm giá thành sản xuất luôn được chú trọng. M.R. Tarasevich và đồng nghiệp [5] đã làm rõ những vấn đề quan trọng trong động học của phản ứng xúc tác điện hóa ethanol với hợp kim RuNi từ những năm 2005, nghiên cứu này làm tiền đề cho hàng loạt những kết quả sau đó. Trong nghiên cứu này, carbon black XC 72 được sử dụng như hợp chất hỗ trợ tăng khả năng xúc tác và tính dẫn điện của RuNi. Năm 2007, Swapan Kumar Bhattacharya và đồng nghiệp [6] công bố kết quả của Pt-Ru trên chất hỗ trợ Ni đối với phản ứng oxi hóa ethanol trong môi trường kiềm. Thành phần Ru ảnh hưởng lớn phản ứng oxi hóa ethanol, và đạt kết quả cao nhất ở 32-47 % Ru. Sau đó, Keith Scott và đồng nghiệp [7] làm việc với vật liệu Pd-Ni với sự hỗ trợ của carbon nanofiber được sử dụng trong phản ứng điện hóa ethanol. Vật liệu nano Pd-Ni có kích thước 4nm phân tán đều trên carbon nanofiber. Kết quả thu được cao hơn 4 lần so với trường hợp Pd/C. Gần đây, Hector D. Abruna và đồng nghiệp [8] công bố kết quả của cấu trúc nano lập phương của Pt/Sn cho hiệu quả xúc tác oxi hóa điện hóa cao đối ethanol trong môi trường axit. Nanocube Pt/Sn nâng hiệu quả xúc tác điện hóa cao gấp 6 lần so với nano Pt và hơn 3 lần so với hợp chất Pt/Sn. Sự thay đổi cấu trúc vật liệu cũng được tìm hiểu trong quá trình tham gia phản ứng. Không có sự thay đổi nào được ghi nhận sau 5000 vòng quét thế tuần hoàn (CV) trong môi trường axit cho phản ứng oxi hóa ethanol.

Trong giới hạn nghiên cứu này, hoạt tính xúc tác của nickel cải thiện đáng kể nhờ sự hỗ trợ của vật liệu cơ kim MIL 101 có độ xốp cao. Vật liệu cơ kim MIL 101 được tổng hợp bằng phương pháp thủy nhiệt với crom tham gia vào quá trình hình thành tinh thể. Nano nickel được kết tủa trên bề mặt MIL101 thông qua phản ứng khử của NaBH_4 và H_3NBH_4 . Hình thái, cấu trúc và tính chất của vật liệu nguyên cứu được khảo sát bằng các phương pháp: XRD, FTIR, SEM và BET. Tính chất xúc tác điện hóa của vật liệu nghiên cứu được kiểm tra bằng phương pháp quét thế tuần hoàn - CV và CA.

2. THỰC NGHIỆM

2.1 Hóa chất

Axit terephthalic $\text{C}_6\text{H}_4(\text{CO}_2\text{H})_2$ (H_2BDC) (98%), HF (40%), $\text{Cr}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ (99%), $\text{C}_{17}\text{H}_{35}\text{CO}_2\text{H}$ (>98,5%), NH_4F (>98%), $\text{Ni}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ (99,99%), NaBH_4 (>98%) và H_3NBH_3 (97%) sử dụng trong nguyên cứu được cung cấp bởi Aldrich sigma (Mỹ) và MWCNT (98%) được sản xuất bởi Bioneer (Mỹ).

2.2 Tổng hợp MIL 101

Vật liệu cơ kim MIL101 được tổng hợp dựa trên phản ứng thủy nhiệt đã được công bố trong một số báo cáo trước đó [1,9,10] Đầu tiên, một hỗn hợp gồm $\text{C}_6\text{H}_4(\text{CO}_2\text{H})_2$, (H_2BDC), HF, $\text{Cr}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ and $\text{C}_{17}\text{H}_{35}\text{CO}_2\text{H}$ được hòa tan hoàn toàn trong 100 ml nước cất. Hỗn hợp này được khuấy đều đến khi đạt dung dịch trong suốt. Dung dịch vừa tạo thành được cho vào 100 ml teflon autoclave và tham gia vào phản ứng thủy nhiệt ở 220°C trong 8 giờ. Sau khi phản ứng kết thúc, sản phẩm được loại bỏ axit terephthalic dư bằng cách xử lý trong dung môi ethanol ở 80°C trong 24 giờ. Sau đó, sản phẩm tạo thành được xử lý trong dung dịch NH_4F ở 70 °C trong 24 giờ. Bột màu xanh của vật liệu MIL 101 được hình thành sau khi sấy khô trong chân không ở nhiệt độ 70 °C.

2.3 Tổng hợp Ni/MIL 101

Để tổng hợp nano nickel/MIL101, hỗn hợp NaBH_4 và H_3NBH_3 theo tỉ lệ (1:1) được sử dụng như là tác nhân khử. Ban đầu, cho 100 mg MIL 101 vào 10 ml 0,2 M $\text{Ni}(\text{NO}_3)_2$, khuấy đều đến khi tạo thành hỗn hợp đồng nhất. 20mg hỗn hợp NaBH_4 và H_3NBH_3 được cho vào 10ml MIL 101 và $\text{Ni}(\text{NO}_3)_2$ vừa tạo thành để thực hiện phản ứng khử. Kết tủa đen Ni/MIL 101 được hình thành liên

tục trong 1 giờ ở nhiệt độ 0 °C. Hạt kết tủa nano màu đen tách ra bằng phương pháp ly tâm và sấy trong môi trường chân không để thu được vật liệu Ni/MIL 101.

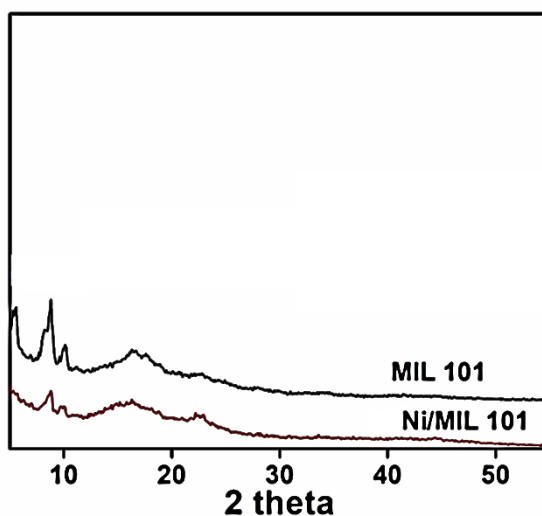
Vật liệu nano Ni/MIL 101 vừa tạo thành được kiểm tra tính chất xúc tác cho phản ứng điện hóa ethanol. Để chuẩn bị cho việc kiểm tra tính chất xúc tác, một hỗn hợp xúc tác được tạo thành bằng cách cho Ni/MIL 101 phân tán trong dimethyl formamide và nafion 117,5% như là chất kết dính. Hỗn hợp đồng nhất Ni/MIL101 được hình thành bằng cách khuấy đều, sau đó nhò lên giấy carbon (TGP-H-60 Toray) và làm khô trong môi trường không khí trước khi thực hiện quá trình xúc tác. Dung dịch điện hóa ethanol cho quá trình điện hóa được pha từ 20 – 500 mM ethanol trong 0,1 M KOH cho việc kiểm tra xúc tác điện cực trong hệ ba điện cực.

2.4 Đặc tính của vật liệu

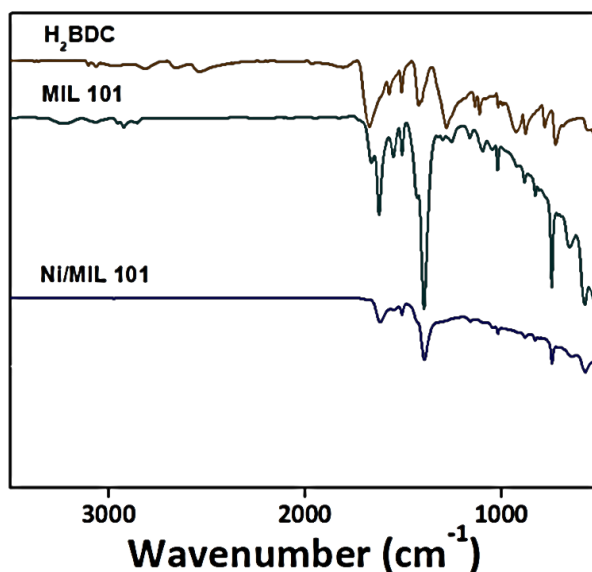
Tính chất của mẫu được xác định bằng các phương pháp như nhiễu xạ tia X (XRD; Rigaku DMAX), phổ hồng ngoại Fourier (FTIR; JASCO FT-IR 300E), và kính hiển vi điện tử quét (SEM; Hitachi S-4700, Japan). Đặc tính xốp và diện tích bề mặt của vật liệu được khảo sát bằng phương pháp hấp phụ nitơ ở nhiệt độ -196 °C trên máy micromeritics ASAP 2020. Tính chất điện hóa của mẫu được nghiên cứu bằng phương pháp cyclic voltammetry (CV) trên thiết bị potentiostat-galvanostat (VSP, bio-logic) với hệ 3 điện cực. Hệ 3 điện cực sử dụng cho phương pháp nghiên cứu gồm: điện cực làm việc với mẫu được gắn lên giấy cacbon và được khống chế trong diện tích hoạt động 5x5 mm; điện cực Pt và điện cực Ag/AgCl. Dung dịch sử dụng cho quá trình khảo sát điện hóa là dung dịch kiềm KOH 0,1 M.

3. KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN

Hình 1 thể hiện kết quả giản đồ nhiễu xạ tia X của mẫu MIL 101 và Ni/MIL 101. Giản đồ nhiễu xạ tia X đạt được của các mẫu MIL 101 phù hợp với kết quả của $\text{Cr}_3\text{F}(\text{H}_2\text{O})_2\text{O}[(\text{O}_2\text{C})\text{C}_6\text{H}_4(\text{CO}_2)]_3 \cdot n\text{H}_2\text{O}$ ($n = \sim 25$) (CCDC No. 605510) đã được công bố [11]. Các peak ở vị trí 2θ là 5,2°, 8,4°, 9,5° và 16,5° tương tự với vị trí peak chuẩn của MIL 101 [12]. Mặc khác, giản đồ nhiễu xạ tia X của mẫu MIL 101 không thể hiện bất kì peak của H₂BDC, điều này chứng tỏ rằng, mẫu thu được đã hoàn toàn tạo liên kết của cấu trúc cơ kim (MOF) thông qua phản ứng thủy nhiệt. Kết quả XRD của mẫu Ni/MIL 101 tương tự như MIL 101, điều này chứng minh rằng các hạt nickel chỉ phủ lên cấu trúc MIL 101 mà không ảnh hưởng đến cấu trúc vô định hình của MIL 101 đạt được. Phổ XRD của Ni/MIL 101 không ghi nhận peak của nickel, như vậy, mẫu Ni/MIL 101 tổng hợp trong điều kiện này có kích thước nano hình thành đơn lớp bám trên bề mặt MIL 101 [11]. Sự hiện diện của nano nickel được chứng minh bằng phương pháp phân tích khác được trình bày ở hình 3(D).



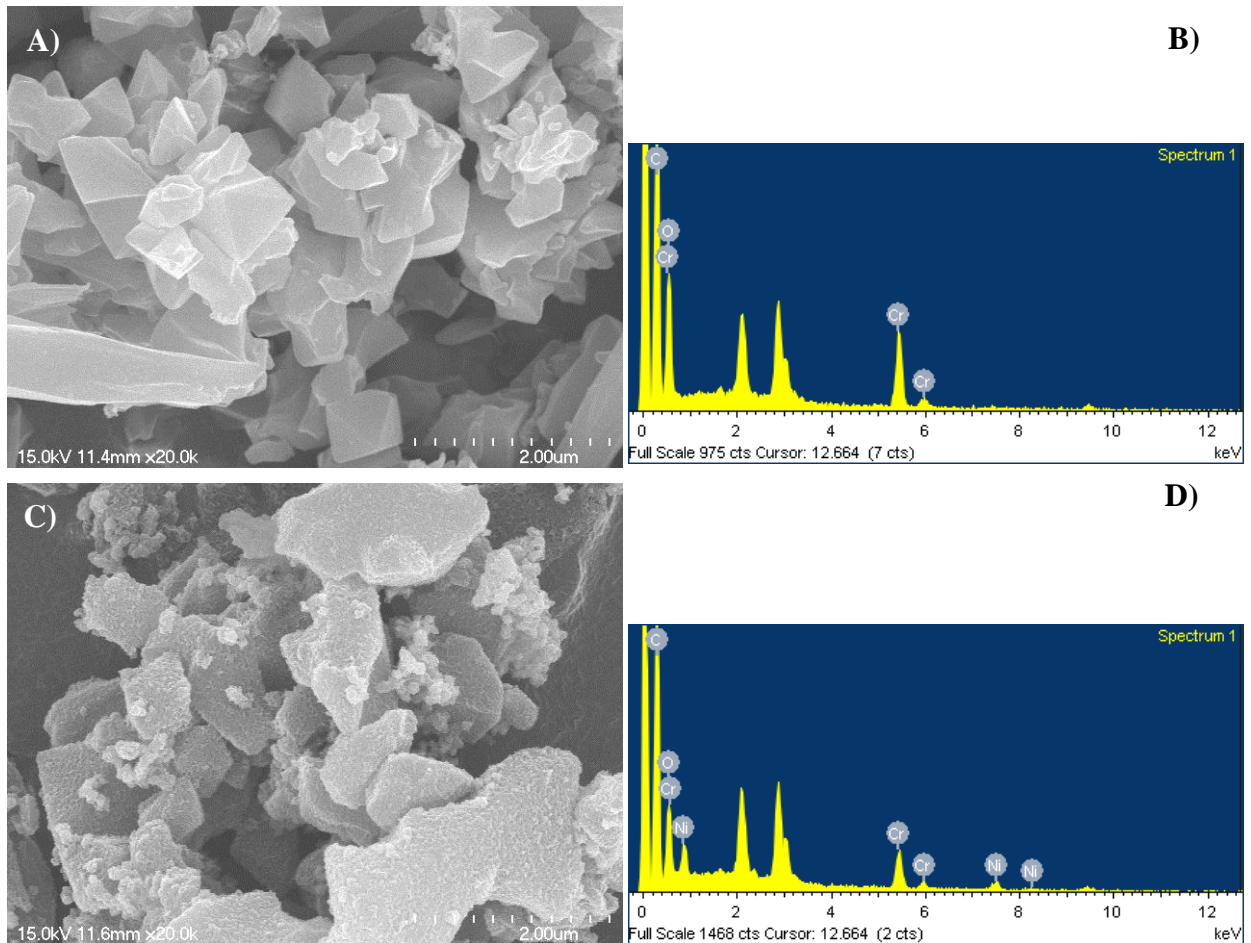
Hình 1: Phổ XRD của MIL 101 và Ni/MIL 101



Hình 2: Phổ FTIR của H₂BDC, MIL 101, Ni/MIL 101

Phổ FTIR của mẫu MIL 101 và MIL 101 có gắn nano nickel được so sánh cùng với terephthalic axit được miêu tả ở hình 2. Từ kết quả FTIR có được, cấu trúc tinh khiết của Cr-MIL 101 đạt được dựa trên phương pháp tổng hợp được nghiên cứu và phù hợp với những kết quả công bố khác [12]. Phổ FTIR của MIL 101 thể hiện những peak nằm trong vùng 1400-1600 cm⁻¹ đặc trưng cho các liên kết C=C của vòng thơm. Những peak ở 1017 và 754 cm⁻¹ là của dao động δ (C-H) và γ (C-H) của vòng thơm. Peak nhọn ở vị trí 1630 cm⁻¹ thể hiện dao động của nhóm C=O trong -COO [13]. Peak ở vị trí 605 cm⁻¹ cho thấy liên kết Cr-O trong cấu trúc Cr-MIL 101, thêm vào đó việc giảm cường độ peak 1720 cm⁻¹ ở H₂BDC trong MIL 101 cũng là một minh chứng của mất đi liên kết O-H trong nhóm -COOH của H₂BDC [14]. Trong trường hợp phủ nickel xúc tác (Ni/MIL 101), sự xuất hiện của nano nickel trên bề mặt MIL 101 đã che phủ các peak FTIR thể hiện rõ ràng trong tinh thể MIL 101. Như vậy, trong điều kiện đã nghiên cứu, MIL 101 và Ni/MIL 101 đã được tổng hợp thành công.

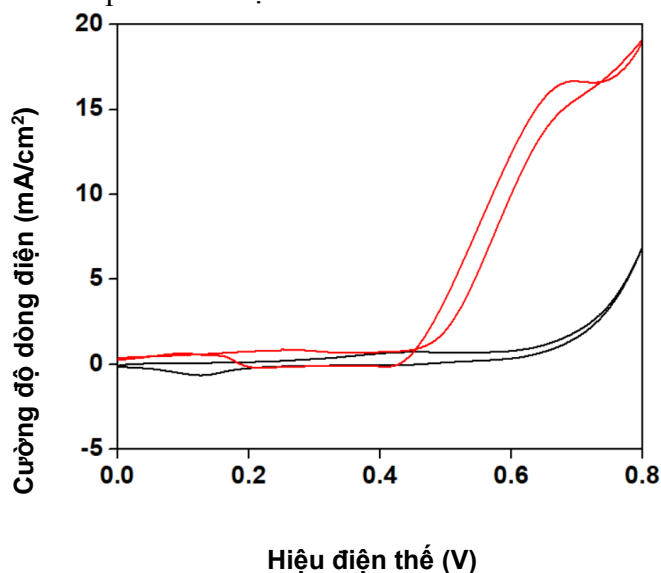
Hình thái của vật liệu MIL 101 và MIL 101 có gắn nano nickel được thể hiện như trên hình 3. Hình 3A cho thấy cấu trúc vô định hình của vật liệu MIL 101 được hình thành, kích thước của vật liệu được tổng hợp không đồng nhất trong khoảng 1-2 μm . Bên cạnh đó, kết quả EDS (hình 3B) của vật liệu MIL 101 cho thấy cấu trúc được tổng hợp là hợp chất cơ kim của crom và axit terephthalic, kết quả này hoàn toàn phù hợp với các cấu trúc đã công bố của vật liệu MIL 101 [15]. Độ xốp của vật liệu MIL 101 và Ni/MIL 101 được kiểm tra bằng phương pháp phân tích BET hấp thụ khí nitrogen ở -196K. Kết quả phân tích BET của vật liệu MIL 101 có diện tích bề mặt riêng và độ xốp lần lượt là 1731 m² g⁻¹ và 0,40 cm³ g⁻¹. Như vậy, vật liệu MIL 101 có độ xốp cao và diện tích bề mặt riêng lớn là một trong những ưu thế cho việc hỗ trợ vật liệu xúc tác trong việc tăng khả năng tiếp xúc với ethanol cũng như số lượng tâm xúc tác. Nickel được phủ lên bề mặt xốp của MIL 101 bằng phương pháp khử với tác nhân NaBH₄ và H₃NBH₃. Kích thước của vật liệu Ni/MIL 101 được ghi nhận nhỏ hơn MIL 101 thể hiện trên hình 3C. Đồng thời, nano nickel phủ trên bề mặt vô định hình của vật liệu cơ kim MIL 101 được quan sát trên hình 3C. Thêm vào đó, sự hiện diện của nano nickel được ghi nhận bên cạnh sự có mặt của vật liệu cơ kim MIL 101 minh chứng qua kết quả EDS trong hình 3D. Diện tích bề mặt riêng và độ xốp của vật liệu Ni/MIL 101 được ghi nhận lần lượt là 916 m² g⁻¹ và 0,22 cm³ g⁻¹ do ảnh hưởng của nano nickel kết tủa trên bề mặt vật liệu xốp MIL 101. Dựa vào kết quả đạt được, vật liệu Ni/MIL 101 hứa hẹn là vật liệu tiềm năng cho ứng dụng là vật liệu xúc tác với diện tích bề mặt và tâm hoạt động lớn.



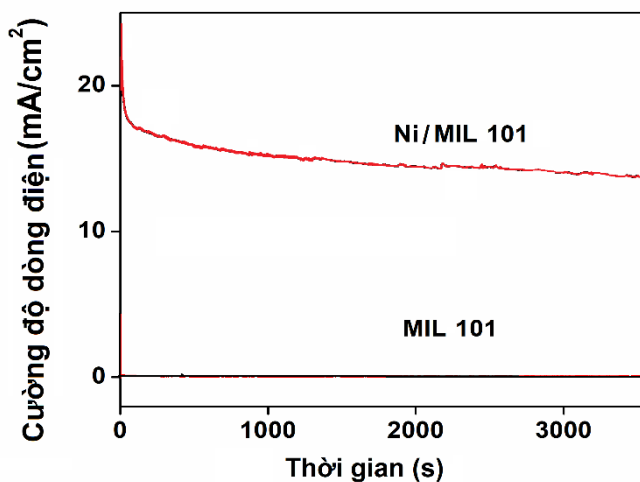
Hình 3: Hình SEM và kết quả EDS của mẫu MIL 101 (A và B) và Ni/MIL 101 (C và D)

Hoạt tính xúc tác của vật liệu Ni/MIL 101 đối với ethanol được xác định bằng phương pháp phân tích điện hóa dùng 3 điện cực trong môi trường kiềm. Trong nghiên cứu này, phân tích điện hóa CV khi nghiên cứu phản ứng xúc tác điện hóa ethanol trong môi trường kiềm được thực hiện trong hiệu điện thế tuần hoàn 0,0-0,8 V. Bên cạnh đó, vật liệu MIL 101 và Ni/MIL 101 được phân tích CA ở hiệu điện thế 0,55V để nghiên cứu hoạt tính xúc tác của cả hai vật liệu đối với ethanol trong thời gian 1 giờ. Hình 4 là kết quả CV của mẫu Ni/MIL 101 thu được khi thực hiện phản ứng xúc tác điện hóa với sự xuất hiện và không có sự xuất hiện của 100 mM ethanol trong môi trường kiềm. Từ kết quả thu được có thể kết luận rằng vật liệu Ni/MIL 101 có khả năng xúc tác đối với ethanol hiệu quả. Trong sự hiện diện của ethanol, xúc tác nickel chuyển hóa tuần hoàn Ni^{2+}/Ni^{3+} trong môi trường kiềm ở hiệu điện thế là 0,45-0,65 V và 0,15-0,45V, hiện tượng này được tìm thấy tương tự như trong các phản ứng xúc tác điện hóa của nickel [11,16,17]. Một tín hiệu điện hóa ghi nhận rõ rệt khi xuất hiện ethanol là cường độ dòng điện tăng $17,4 \text{ mA/cm}^2$, điều này chứng tỏ rằng quá trình phản ứng oxi hóa điện hóa ethanol giải phóng electron. Mặt khác, tín hiệu dòng điện của vật liệu Ni/MIL 101 đối với trường hợp không có sự hiện diện của ethanol được ghi nhận là không đáng kể (đường màu đen). Khi kiểm tra tính chất xúc tác của vật liệu MIL 101 và Ni/MIL 101 trong cùng điều kiện 100 mM ethanol bằng phương pháp CA trong 1 giờ (hình 5), tín hiệu điện hóa cũng cho thấy vật liệu Ni/MIL 101 cho khả năng xúc tác tốt đối với phản ứng oxi hóa điện hóa ethanol. Trong 1 giờ phản ứng và dưới tác dụng của hiệu điện thế 0,55 V, phản ứng oxi hóa điện hóa diễn ra ổn định trên bề mặt điện cực làm việc với xúc tác vật liệu Ni/MIL 101 và duy trì cường độ dòng điện tại $16,2 \text{ mA cm}^{-2}$. Hiện tượng trái ngược ghi nhận đối với vật liệu MIL 101, cường độ dòng điện xuất hiện trong hệ này tồn tại duy nhất tuân theo định luật Ohm với giá trị $\sim 0 \text{ mA}$

cm^{-2} . Tất cả những kết quả có được mở ra một triển vọng cho việc ứng dụng vật liệu MIL 101 như vật liệu hỗ trợ tăng khả năng xúc tác của vật liệu Ni/MIL 101 đối với phản ứng oxi hóa điện hóa ethanol. Điều này cũng là tiền đề cho việc chế tạo cảm biến ethanol cũng như ứng dụng vật liệu Ni/MIL 101 trong sản xuất pin nhiên liệu ethanol.



Hình 4: Kết quả CV của mẫu Ni/MIL 101 trong dung dịch KOH 0.1M với sự hiện diện của 100 mM ethanol (màu đỏ) không có sự hiện diện ethanol (màu đen).



Hình 5: Kết quả CA của mẫu MIL 101 (màu đen) và Ni/MIL 101 (màu đỏ) trong dung dịch KOH 0,1M với sự hiện diện của 100 mM ethanol và hiệu điện thế 0,55 V.

4. KẾT LUẬN

Thông qua nghiên cứu, vật liệu MIL 101 có độ xốp và bề mặt riêng lớn đã được tổng hợp thành công trong điều kiện khảo sát. Các kết quả XRD, SEM, FTIR và BET cho thấy vật liệu tổng hợp là MIL 101 và nano Ni/MIL 101 có diện tích bề mặt riêng lần lượt là 1731 và $916 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1}$. Khi sử dụng Ni/MIL 101 như xúc tác điện hóa cho phản ứng oxi hóa ethanol, tín hiệu cường độ dòng điện lớn hơn $17,4 \text{ mA/cm}^2$ so với trường hợp không xuất hiện ethanol và phản ứng này duy trì ổn định trong 1 giờ trong điều kiện ổn định. Kết quả nghiên cứu là tiền đề của việc ứng dụng vật liệu Ni/MIL 101 trong chế tạo cảm biến và pin với nhiên liệu ethanol, đang là vấn đề đang được quan tâm trên toàn thế giới trong việc thay thế các nhiên liệu hóa thạch đang cạn kiệt dần.

REFERENCES

- [1] H. Li, Z. Zhu, F. Zhang, S. Xie, H. Li, P. Li, X. Zhou, *ACS Catal.*, pp. 1604–1612, 2011.
- [2] C. and S.S. Rayment, *Introduction to Fuel Cell Technology*, University of Notre Dame, 2003.
- [3] W. Zhou, Z. Zhou, S. Song, W. Li, G. Sun, P. Tsiakaras, Q. Xin, *Appl. Catal. B*. vol. 46, pp. 273–285, 2003.
- [4] M.Z.F. Kamarudin, S.K. Kamarudin, M.S. Masdar, W.R.W. Daud, *Int. J. Hydrog. Energy*. vol. 38, pp. 9438–9453, 2013.
- [5] M.R. Tarasevich, Z.R. Karichev, V.A. Bogdanovskaya, E.N. Lubnin, A. V. Kapustin, *Electrochem. Commun.* vol. 7, pp. 141–146, 2005.
- [6] J. Bagchi, S.K. Bhattacharya, *J. Power Sources*. vol. 163, pp. 661–670, 2007.
- [7] T. Maiyalagan, K. Scott, *J. Power Sources*. vol. 195, pp. 5246–5251, 2010.
- [8] R. Rizo, R.M. Arán-Ais, E. Padgett, D.A. Muller, M.J. Lázaro, J. Solla-Gullón, J.M. Feliu, E. Pastor, H.D. Abruña, *J. Am. Chem. Soc.* vol. 140, pp. 3791–3797, 2018.
- [9] Z. Zhao, R. Liang, Z. Li, Z. Shi, *J. Mater. Chem.* vol. 2, pp. 13509–13512, 2014.
- [10] D. Jiang, A.D. Burrows, K.J. Edler, *Cryst.Eng.Comm.* vol. 13, pp. 6916, 2013.
- [11] T. -Q. -N. Tran, H.S. Gil, G. Das, B.H. Kim, H.H. Yoon, *Korean Chem. Eng. Res.* vol. 57, pp. 387–391, 2019.
- [12] S.A. El-Hakam, S.E. Samra, S.M. El-Dafrawy, A.A. Ibrahim, R.S. Salama, A.I. Ahmed, *RSC Adv.* vol. 8, pp. 20517–20533, 2018.
- [13] T. -A. Vu, G. -H. Le, C. -D. Dao, L. -Q. Dang, K. -T. Nguyen, P. -T. Dang, H. -T. -K. Tran, Q. -T. Duong, T. -V. Nguyen, G. -D. Lee, *RSC Adv.* vol. 40, pp. 41185–41194, 2014.
- [14] D.L. Pavia, G.M. Lampman, G.S. Kriz, *Introduction to spectroscopy*, 3rd ed., Harcourt College, New York, 2001.
- [15] L. Bromberg, Y. Diao, H. Wu, S.A. Speakman, T.A. Hatton, *Chem. Mater.* vol. 24, pp. 1664–1675, 2012.
- [16] T. -Q. -N. Tran, S. Won, B. Ju, H. Hee, *J. Electroanal. Chem.* vol. 818, pp. 76–83, 2018.
- [17] T. -Q. -N. Tran, G. Das, H.H. Yoon, *Sensor. Actuat B- Chem.* vol. 243, pp. 78–83, 2017.

Ngày nhận bài: 14/08/2020

Ngày chấp nhận đăng: 08/01/2021