

## THÔNG TIN VỀ LUẬN ÁN TIẾN SĨ

1. Họ và tên nghiên cứu sinh: NGUYỄN LONG TUYẾN
2. Giới tính: Nam
3. Ngày sinh: 13/02/1980
4. Nơi sinh: Phú Thọ
5. Quyết định công nhận nghiên cứu sinh: Số 3972/QĐ-ĐHKHTN ngày 24/11/2016 của Hiệu trưởng Trường Đại học Khoa học Tự Nhiên.
6. Các thay đổi trong quá trình đào tạo: Văn bản gia hạn số 567/QĐ-ĐHKHTN ngày 14/2/2020 và số 318/QĐ-ĐHKHTN ngày 01/2/2021 của Hiệu trưởng Trường Đại học Khoa học Tự Nhiên.
7. Tên đề tài luận án: Chế tạo và nghiên cứu một số tính chất của vật liệu nano tổ hợp oxit kim loại sắt và mangan/graphene.
8. Chuyên ngành: Vật lý chất rắn
9. Mã số: 9440130.02
10. Cán bộ hướng dẫn khoa học: Hướng dẫn 1: PGS. TS. Phạm Quốc Triệu  
Hướng dẫn 2: TS. Nguyễn Ngọc Đình

11. Tóm tắt các kết quả mới của luận án:

- Chế tạo vật liệu tổ hợp đa thành phần  $\text{Fe}_x\text{O}_y/\text{graphene}$  và  $\text{MnO}_x/\text{graphene}$  sử dụng phương pháp điện hóa plasma, ứng dụng trong quang xúc tác xử lý môi trường và làm điện cực siêu tụ.

- Vật liệu tổ hợp oxit sắt, oxit mangan/graphen được minh chứng giúp tăng cường hiệu suất phân hủy xanh methylen và khả năng điện hóa của vật liệu so với vật liệu không chứa graphen.

- Sự kết hợp đồng thời nhiều thành phần như graphen, thành phần quang xúc tác và  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  để tạo thành vật liệu tổ hợp đa tính năng vừa có hiệu suất hấp thụ quang xúc tác lớn, vừa có khả năng thu hồi từ tốt, ứng dụng trong xử lý môi trường.

12. Khả năng ứng dụng thực tiễn:

Nghiên cứu này định hướng chế tạo vật liệu tổ hợp đa thành phần sử dụng phương pháp điện hóa plasma. Phương pháp điện hóa plasma kết hợp đồng thời quá trình đồng kết tủa của các hạt nano ô xít trong môi trường kiềm với quá trình bóc tách graphen thông qua sự điện kế của các ion. Năng lượng plasma giúp “gắn kết” các hạt nano ô xít với màng graphen thông qua các nhóm chức chứa oxy tạo thành vật liệu tổ hợp đa thành phần dựa trên graphen. Phương pháp này đáp ứng tốt các yêu cầu như dễ thực hiện, xảy ra ở điều kiện thường, phản ứng nhanh, thiết bị đơn giản và ít gây ô nhiễm thứ cấp. Mặt khác, phương pháp này có thể áp dụng để chế tạo nhiều loại vật liệu tổ hợp dựa trên graphen với các thành phần ô xít khác nhau.

Vật liệu tổ hợp đa thành phần nhằm tận dụng tính chất ưu việt của từng thành phần đã được định hướng ứng dụng trong nhiều lĩnh vực khác nhau. Với vật liệu tổ hợp đa thành phần dựa trên graphen, màng graphen đóng vai trò một “nền” chứa các hạt nano. Vật liệu tổ hợp đa thành phần dựa trên graphene được coi như một phương pháp hữu hiệu để giảm sự kết tụ của các hạt nano trong dung dịch, và làm tăng diện tích tiếp xúc giữa điện cực và chất điện phân. Do độ linh động hạt tải lớn, màng graphen cũng đóng vai trò tăng khả năng truyền dẫn điện tích. Sự kết hợp nhiều thành phần vật liệu dạng ô xít tạo ra liên kết dị thể thuận lợi cho quá trình quang xúc tác phân hủy chất ô nhiễm. Mặt khác, sự kết hợp graphen được minh chứng giúp tăng cường hiệu suất phân hủy và khả năng điện hóa của vật liệu so với vật liệu không chứa graphen.

Thông thường, vật liệu quang xúc tác được thu hồi qua các quá trình ly tâm hoặc lọc. Thu hồi bằng các phương pháp này thường tốn thời gian, tổn hao vật liệu trong quá trình thu hồi. Sự kết hợp thêm thành phần  $Fe_3O_4$  trong vật liệu tổ hợp đa thành phần đảm bảo thu hồi dễ dàng bằng nam châm, do vậy không gây nhiễm bẩn thứ cấp. Đặc biệt, sự kết hợp đồng thời nhiều thành phần như graphen, thành phần quang xúc tác và  $Fe_3O_4$  để tạo thành vật liệu tổ hợp đa tính năng vừa có khả năng quang xúc tác, vừa có khả năng thu hồi từ ứng dụng trong xử lý môi trường hiện nay vẫn còn là vấn đề mới ở trong nước. Số lượng các công trình nghiên cứu về họ vật liệu này còn rất hạn chế. Ảnh hưởng của thời gian phóng điện plasma, lượng vật liệu xúc tác cũng được đánh giá. Các nghiên cứu về điện hóa cũng được thực hiện thêm để đánh giá khả năng ứng dụng.

Hệ vật liệu tổ hợp graphen/ô xít kim loại được định hướng ứng dụng trong quang xúc tác xử lý môi trường và làm điện cực siêu tụ. Các kết quả đạt được là bước đầu tiên trong nghiên cứu chế tạo vật liệu đa thành phần bằng phương pháp điện hóa plasma. Các hệ thống vật liệu với các thành phần oxit khác nhau đang được phát triển để cải thiện hiệu suất phân hủy quang xúc tác hoặc điện hóa của vật liệu.

### 13. Các hướng nghiên cứu tiếp theo:

Các nghiên cứu của luận án là bước đầu tiên trong nghiên cứu chế tạo vật liệu tổ hợp graphen/ ô xít kim loại định hướng ứng dụng trong quang xúc tác xử lý môi trường và sử dụng làm điện cực siêu tụ bằng phương pháp điện hóa plasma. Các kết quả này sẽ được phát triển hơn nữa với các thành phần ô xít khác có đặc tính tốt kết hợp graphen để tăng cường hiệu suất của vật liệu.

Sự kết hợp graphene và vật liệu nano có thể được nghiên cứu cho các ứng dụng cảm biến độ nhạy cao.

14. Các công trình công bố liên quan đến luận án:

[1]. Nguyễn Long Tuyên, Phạm Quốc Triệu, Nguyễn Ngọc Đình, Hà Xuân Linh, Phan Ngọc Hồng, Phan Ngọc Minh, Đặng Văn Thành (2020), "Chế tạo vật liệu tổ hợp graphene/Mn<sub>3</sub>O<sub>4</sub> bằng phương pháp hóa siêu âm kết hợp plasma ứng dụng cho quang xúc tác phân hủy thuốc nhuộm da cam trong nước", *Vietnam J. Chem.* 58 (6E12), 196-200.

[2]. Nguyễn Long Tuyên, Phạm Quốc Triệu, Nguyễn Ngọc Đình, Nguyễn Quốc Dũng, Lê Trọng Lư, Phan Ngọc Minh, Nguyễn Đình Dũng, Nguyễn Tuấn Hồng, Phan Ngọc Hồng (2020), "Nghiên cứu chế tạo vật liệu tổ hợp Mn<sub>3</sub>O<sub>4</sub>/graphen bằng phương pháp điện hóa plasma dưới sự hỗ trợ của siêu âm định hướng ứng dụng làm điện cực cho siêu tụ", *Vietnam J. Chem.* 58 (5E12), 265-269.

[3]. Nguyễn Long Tuyên, Phạm Quốc Triệu, Nguyễn Ngọc Đình, Nguyễn Thành Trung (2021), "Chế tạo vật liệu composite graphene/MnO<sub>2</sub> bằng phương pháp điện hóa có sự hỗ trợ của plasma ứng dụng trong quang xúc tác phân hủy thuốc nhuộm cam trong nước", *Proceeding of Advances in Optics, Photonics, Spectroscopy & Applications XI*.

[4]. Nguyen L.T., Pham Q.T., Nguyen N.D., Nguyen T.T., Dang V.T. (2022), "Synthesis of MnO<sub>2</sub>/Graphene Nanocomposites using Plasma Electrolysis Method for Photocatalytic Degradation of Methyl Orange Dye in Water", *VNU Journal of Science: Mathematics-Physics* Vol. 38 (2). <https://doi.org/10.25073/2588-1124/vnumap.4679>

[5]. Tuyen N.L., Toan T.Q., Hung N.B., Trieu P.Q., Dinh N.N., Do D.B., Van Thanh D., Nguyen V.-T. (2023), "Simultaneous precipitation and discharge plasma processing for one-step synthesis of  $\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>/graphene visible light magnetically separable photocatalysts", *RSC advances* Vol. 13 (11), pp. 7372-7379. Doi: 10.1039/D2RA06844C.

Ngày tháng năm 2023

**Người hướng dẫn luận án**

**Nghiên cứu sinh**

**Hướng dẫn 2**

**Hướng dẫn 1**

**TS. Nguyễn Ngọc Đình**

**PGS. TS. Phạm Quốc Triệu**

## INFORMATION ON DOCTORAL THESIS

1. Full name: NGUYEN LONG TUYEN

2. Sex: Male

3. Date of birth: 13/02/1980

4. Place of birth: Phu Tho

5. Admission decision number: No. 3972/QĐ-ĐHKHTN dated 24/11/2016, by Rector of VNU University of Science.

6. Changes in academic process: Extension decisions number 567/QĐ-ĐHKHTN dated 14/2/2020 and 318/QĐ-ĐHKHTN dated 01/2/2021 by Rector of VNU University of Science.

7. Official thesis title: Fabrication and investigation of some properties of iron and manganese metal oxides/graphene composite nanomaterials

8. Major: Solid State Physics

9. Code: 9440130.02

10. Supervisors: Supervisors 1: Assoc. Prof. Dr. Pham Quoc Trieu

Supervisors 2: Dr. Nguyen Ngoc Dinh

11. Summary of the new findings of the thesis

- Fabrication of  $\text{Fe}_x\text{O}_y/\text{graphene}$  and  $\text{MnO}_x/\text{graphene}$  multicomponent composite materials using plasma electrochemical method, applied in photocatalysts for environmental treatment and as supercapacitor electrodes.
- The iron oxide, manganese oxide/graphene composites materials have been shown to enhance the MB decomposition efficiency and the electrochemical properties compared with the non-graphene materials.
- Simultaneous combination of many components such as graphene, photocatalyst and  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  to form a multi-functional composite material with both high photocatalytic absorption efficiency and good magnetic recovery, applications in environmental treatment.

12. Paratical applicability, if any:

The research's aims is to fabricate multi-component composite materials using plasma electrochemical method. The plasma electrochemical method combines the co-precipitation of oxide nanoparticles in an alkaline environment with the chemical exfoliate graphene through the interstitial filling of ions. The plasma energy helps "bind" the oxide nanoparticles to the graphene film through oxygen-containing functional groups to form a graphene-based multicomponent composite material. This approach corresponds the requirements for easy operation, happening in normal conditions, quick reaction, simple equipment, and little

secondary pollution. On the other hand, this approach may be used to create a wide range of graphene-based composites with varying oxide components.

Multi-component composite materials to take advantage of the superior properties of each component have been applied in many different fields. With graphene-based multicomponent composites, the graphene film serves as a "substrate" containing the oxide nanoparticles. Graphene-based multicomponent composites are considered to be an effective method for reducing nanoparticle aggregation in solution and increasing the range of contact between the electrode and the electrolyte. Due to the large carrier mobility, the graphene film also plays a role in increasing the charge transfer capacity. The combination of many oxide materials creates heterogeneous bonds that are favorable for the photocatalytic degradation of pollutants. On the other hand, compared to non-graphene materials, it has been demonstrated that the combination of graphene improves the material's degrading performance and electrochemical properties.

Typically, the photocatalytic material is recovered through centrifugation or filtration processes. Recovery by these methods is often time-consuming and wastes material during the recovery process. The presence of  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  in the multicomponent composite provides simple recovery by magnets, resulting in no secondary contamination. In particular, the combination of many components such as graphene, photocatalyst and  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  at the same time to form a multifunctional composite material with both good photocatalytic ability and magnet recovery ability, applied in environmental treatment and is still a new problem in the country. The quantity of investigations on this material family is very limited. The effect of plasma discharge time, amount of catalyst material was also evaluated. Further electrochemical studies were also performed to evaluate applicability.

The graphene/metal oxide composite material system is oriented for application in photocatalysts for environmental treatment and as supercapacitor electrodes. The obtained results are the first step in the research to fabricate multi-component materials by plasma electrochemical method. Materials systems with varied oxide components are being developed to improve the photocatalytic or electrochemical degradation performance of the materials.

### 13. Further research directions, if any

The research of the thesis is the first step in the research and fabrication of graphene/metal oxide composites by plasma electrochemical method, which is applied in photocatalysts for environmental treatment and as supercapacitor electrodes. These results will

be further developed with other well-characterized oxide components incorporating graphene to enhance the material's performance.

The combination of graphene and nanomaterials can be investigated for high-sensitivity sensing applications.

#### 14. Thesis-related publications:

[1]. Nguyễn Long Tuyên, Phạm Quốc Triệu, Nguyễn Ngọc Đình, Hà Xuân Linh, Phan Ngọc Hồng, Phan Ngọc Minh, Đặng Văn Thành (2020), "Chế tạo vật liệu tổ hợp graphen/Mn<sub>3</sub>O<sub>4</sub> bằng phương pháp hóa siêu âm kết hợp plasma ứng dụng cho quang xúc tác phân hủy thuốc nhuộm da cam trong nước", *Vietnam J. Chem.* 58 (6E12), 196-200.

[2]. Nguyễn Long Tuyên, Phạm Quốc Triệu, Nguyễn Ngọc Đình, Nguyễn Quốc Dũng, Lê Trọng Lư, Phan Ngọc Minh, Nguyễn Đình Dũng, Nguyễn Tuấn Hồng, Phan Ngọc Hồng (2020), "Nghiên cứu chế tạo vật liệu tổ hợp Mn<sub>3</sub>O<sub>4</sub>/graphen bằng phương pháp điện hóa plasma dưới sự hỗ trợ của siêu âm định hướng ứng dụng làm điện cực cho siêu tụ", *Vietnam J. Chem.* 58 (5E12), 265-269.

[3]. Nguyễn Long Tuyên, Phạm Quốc Triệu, Nguyễn Ngọc Đình, Nguyễn Thành Trung (2021), "Chế tạo vật liệu composite graphene/MnO<sub>2</sub> bằng phương pháp điện hóa có sự hỗ trợ của plasma ứng dụng trong quang xúc tác phân hủy thuốc nhuộm cam trong nước", *Proceeding of Advances in Optics, Photonics, Spectroscopy & Applications XI*.

[4]. Nguyen L.T., Pham Q.T., Nguyen N.D., Nguyen T.T., Dang V.T. (2022), "Synthesis of MnO<sub>2</sub>/Graphene Nanocomposites using Plasma Electrolysis Method for Photocatalytic Degradation of Methyl Orange Dye in Water", *VNU Journal of Science: Mathematics-Physics* Vol. 38 (2). <https://doi.org/10.25073/2588-1124/vnumap.4679>

[5]. Tuyen N.L., Toan T.Q., Hung N.B., Trieu P.Q., Dinh N.N., Do D.B., Van Thanh D., Nguyen V.-T. (2023), "Simultaneous precipitation and discharge plasma processing for one-step synthesis of  $\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>/graphene visible light magnetically separable photocatalysts", *RSC advances* Vol. 13 (11), pp. 7372-7379. Doi: 10.1039/D2RA06844C.

Date:

**Supervisor**

**PhD Student**

**Dr. Nguyen Ngoc Dinh**

**Assoc. Prof. Dr. Pham Quoc Trieu**