

## THÔNG TIN LUẬN ÁN TIẾN SĨ

Tên đề tài: *Vật Liệu Nền Đa Chức Năng  $Ti_xW_{1-x}O_2$  ( $x = 0.5; 0.6; 0.7; 0.8$ ) Cho Platinum Để Cải Thiện Hoạt Tính Và Khả Năng Chống Ngộ Độc CO Cho Pin Nhiên Liệu Sử Dụng Trực Tiếp Alcohol*

Chuyên ngành: **Kỹ Thuật Hóa Học**

Mã số: **62520301**

Họ tên NCS: **Phạm Quốc Hậu**

Người hướng dẫn: **1: PGS. TS. Hồ Thị Thanh Vân**

**2: PGS. TS. Nguyễn Trường Sơn**

Cơ sở đào tạo: **Trường Đại Học Bách Khoa, Đại Học Quốc Gia TP. Hồ Chí Minh**

*Những đóng góp chính của luận án*

Mục tiêu chung của luận án là tổng hợp và phát triển vật liệu xúc tác điện hóa có hoạt tính và độ bền xúc tác cao cho phản ứng oxi hóa alcohol thông qua sự kết hợp của việc sử dụng vật liệu nền không carbon và điều chỉnh hình thái, cấu trúc của xúc tác Pt và hợp kim PtCo để thúc đẩy sự thương mại hóa của pin nhiên liệu sử dụng trực tiếp alcohol. Hướng nghiên cứu hiệu quả này dựa trên cơ sở chuyển electron từ vật liệu nền đa chức năng  $Ti_xW_{1-x}O_2$  sang xúc tác Pt, dẫn tới việc giảm lực hấp phụ mạnh của các hợp chất trung gian trên bề mặt xúc tác Pt trong quá trình oxi hóa alcohol. Cùng với đó, cấu trúc Pt dạng sợi (1D) có thể tạo điều kiện cho sự chuyển electron dẫn tới sự cải thiện động học và hoạt tính xúc tác. Sau đây là những đóng góp và điểm mới của luận án:

- Vật liệu nền cấu trúc nano  $Ti_xW_{1-x}O_2$  ( $x = 0.5; 0.6; 0.7; 0.8$ ) được tổng hợp bằng phương pháp dung nhiệt một giai đoạn sử dụng tiền chất vô cơ mà không sử dụng bất kỳ chất hoạt động bề mặt hoặc giai đoạn nung sau phản ứng để thu được vật liệu nền có kích thước hạt nhỏ và ít bị kết tụ. Sự ảnh hưởng của lượng W pha tạp lên hoạt tính xúc tác điện hóa của Pt/W-doped  $TiO_2$  được xác định bởi nhiều phương pháp phân tích hiện đại khác nhau. Sự pha tạp một lượng W thích hợp vào mạng lưới cấu trúc  $TiO_2$  có thể tăng đáng kể cả độ dẫn điện và diện tích bề mặt riêng của vật liệu W-doped  $TiO_2$ . Trong số vật liệu xúc tác tổng hợp, vật liệu xúc

tác Pt/Ti<sub>0.7</sub>W<sub>0.3</sub>O<sub>2</sub> thể hiện hiệu quả xúc tác cao nhất cho phản ứng oxi hóa ethanol.

- Lần đầu tiên, vật liệu xúc tác 1D Pt dạng sợi được gắn thành công trên vật liệu nền Ti<sub>0.7</sub>W<sub>0.3</sub>O<sub>2</sub> bằng phương pháp khử hóa học đơn giản tại nhiệt độ phòng mà không sử dụng chất hoạt động bề mặt. Phương pháp này có thể tránh được sự hấp thụ mạnh của các phân tử hữu cơ trên bề mặt xúc tác bởi việc sử dụng chất hoạt động bề mặt, do đó có thể cải thiện hiệu quả xúc tác. Xúc tác Pt hình thành trên bề mặt Ti<sub>0.7</sub>W<sub>0.3</sub>O<sub>2</sub> có dạng sợi với chiều dài khoảng 40 nm và đường kính khoảng 5 nm. Điều này có thể giải thích là do tốc độ khử rất chậm của axit formic trong thời gian dài, đây là điều kiện thích hợp cho sự phát triển xúc tác Pt theo mặt tinh thể (111) bởi năng lượng bề mặt thấp nhất. Ngoài ưu điểm của cấu trúc 1D Pt, sự chuyển electron từ vật liệu nền Ti<sub>0.7</sub>W<sub>0.3</sub>O<sub>2</sub> sang xúc tác 1D Pt NWs được chứng minh bằng phương pháp XPS dẫn tới sự cải thiện hoạt tính xúc tác cho cả phản ứng oxi hóa methanol và ethanol. Hơn nữa, xúc tác 1D Pt NWs/Ti<sub>0.7</sub>W<sub>0.3</sub>O<sub>2</sub> thể hiện độ bền xúc tác ấn tượng với sự suy giảm hoạt tính oxi hóa ethanol khoảng 12.65%, so với sự suy giảm lớn (45.36%) của xúc tác truyền thống Pt NPs/C.
- Đặc biệt, hợp kim 1D Pt<sub>3</sub>Co dạng sợi cũng đã được tổng hợp thành công trên bề mặt vật liệu nền Ti<sub>0.7</sub>W<sub>0.3</sub>O<sub>2</sub> bằng phương pháp khử hóa học tại nhiệt độ phòng mà không cần sử dụng chất tạo khung hoặc chất định hướng cấu trúc. Sự hình thành hợp kim PtCo có thể gây ra biến dạng nén trong mạng tinh thể Pt và sự chuyển điện tử từ Co sang Pt do sự khác nhau về độ âm điện của Pt và Co, dẫn đến giảm sự hấp phụ của các hợp chất trung gian và tăng các vị trí hoạt động của xúc tác Pt. Kết quả nghiên cứu chỉ ra rằng vật liệu xúc tác 1D Pt<sub>3</sub>Co NWs/Ti<sub>0.7</sub>W<sub>0.3</sub>O<sub>2</sub> thể hiện khả năng chống ngộ độc CO vượt trội so với xúc tác Pt NPs/C với thế bắt đầu oxi hóa CO<sub>ads</sub> thấp được chứng minh bằng phương pháp CO-stripping. Nghiên cứu này có thể mở ra định hướng để tổng hợp vật liệu xúc tác hiệu quả có thể thay thế vật liệu xúc tác truyền thống trong nhiều lĩnh vực khác nhau.

Tập thể hướng dẫn

Nghiên cứu sinh

PGS. TS. Hồ Thị Thanh Vân

PGS. TS. Nguyễn Trường Sơn

Phạm Quốc Hậu