

# NGHIÊN CỨU ẢNH HƯỞNG CỦA NIKEN ĐẾN KHẢ NĂNG ỔN ĐỊNH OXY HÓA CỦA CARBON FELT

## THE EFFECT OF THE NICKEL ON THE OXIDATION STABILITY OF CARBON FELT

Lê Đức Ngưu<sup>1</sup>, Trương Hữu Trí<sup>2\*</sup>

<sup>1</sup>Học viên cao học K40, Kỹ thuật hóa học, Trường Đại học Bách khoa - Đại học Đà Nẵng, Việt Nam

<sup>2</sup>Trường Đại học Bách khoa - Đại học Đà Nẵng, Việt Nam

\*Tác giả liên hệ / Corresponding author: thtri@dut.udn.vn

(Nhận bài / Received: 13/01/2023; Sửa bài / Revised: 07/3/2023; Chấp nhận đăng / Accepted: 08/3/2023)

**Tóm tắt** - Trong nghiên cứu này, nhóm tác giả đã tiến hành khảo sát độ ổn định oxy hóa của carbon felt khi có mặt pha hoạt tính Ni cũng như đồng thời cả Ni và CNFs. Kết quả cho thấy, sự có mặt của Ni đã làm giảm nhiệt độ phân hủy của carbon felt. Sự thay đổi nhiệt độ phân hủy của carbon felt không tuyến tính theo nồng độ pha hoạt tính xúc tác, có xu hướng giảm chậm dần khi nồng độ xúc tác tăng lên. Kết quả về đánh giá ảnh hưởng đồng thời cả Ni và CNFs đến độ ổn định oxy hóa của carbon felt cho thấy, sự có mặt của cả hai tác nhân này đã làm nhiệt độ phân hủy của chất mang giảm đáng kể so với ban đầu và sau khi đưa Ni lên bề mặt. Ngoài ra, độ bền oxy hóa của carbon felt đối với các mẫu nanocomposite C-CNFs được tổng hợp với các nồng độ xúc tác khác nhau cũng có cùng xu hướng thay đổi như carbon felt khi có mặt Ni.

**Từ khóa** - Carbon felt; CNFs; TGA; CVD; nanocomposite

### 1. Giới thiệu chung

Vật liệu carbon felt là sản phẩm công nghiệp được tạo thành từ quá trình carbon hóa và graphite hóa hợp chất polyacrylonitrile ở nhiệt độ cao [1] với nhiều tính chất hóa lý nổi bật như độ bền cơ, bền nhiệt tốt, là vật liệu khá trơ về mặt hóa học, đặc biệt carbon felt có tính mềm dẻo, dễ uốn hay cuộn tròn lại nên dễ dàng thực hiện thao tác vắt, ép, cắt theo bất kỳ hình dạng mong muốn nào. Tuy nhiên, loại vật liệu này có bề mặt riêng rất nhỏ (khoảng 1 m<sup>2</sup>/g) và tính kỵ nước chưa cao [1, 2], những tính chất này sẽ không thuận lợi khi được sử dụng làm chất mang cho xúc tác hay xử lý các sự cố tràn dầu. Vì vậy một số giải pháp đã được đưa ra nhằm giải quyết vấn đề trên, trong đó tổng hợp và đưa carbon nano lên bề mặt carbon felt là một trong những giải pháp mang lại hiệu quả trong việc khắc phục những hạn chế vừa nêu. Carbon nano là loại vật liệu có diện tích bề mặt riêng lớn, có độ bền cơ học, bền nhiệt cao, khá trơ về mặt hóa học [3-6], nhưng loại vật liệu này lại có kích thước rất nhỏ nên có thể dẫn đến một số hạn chế trong quá trình thao tác và sử dụng như gây ra trở lực lớn khi làm chất mang xúc tác trong thiết bị phản ứng tầng cố định hay khó phân tách ra khỏi sản phẩm sau quá trình sử dụng. Vì vậy, việc tổng hợp carbon nano bám lên bề mặt của carbon felt sẽ tạo ra vật liệu carbon nanocomposite có bề mặt riêng đủ lớn và có hình dạng 3D theo mong muốn.

Việc đánh giá các đặc tính sản phẩm sẽ giúp xác định phạm vi và khả năng sử dụng của vật liệu. Đối với vật liệu

**Abstract** - In this study, the authors investigated the oxidation stability of carbon felt in the presence of Ni active phase as well as simultaneously both Ni and CNFs. The results showed that the presence of Ni reduced the decomposition temperature of carbon felt. The change of decomposition temperature of carbon felt was not linear with the growth of concentration of the catalyst active phase and tended to decrease slowly when the catalyst concentration increased. The results of evaluating the simultaneous influence of Ni and CNFs on the oxidation stability of carbon felt showed that the presence of both agents caused the decomposition temperature of the support to decrease significantly compared to the prototype and after decorating Ni on the surface. In addition, the oxidation stability of carbon felt for C-CNFs nanocomposite samples synthesized with different catalyst concentrations also had the same tendency to change as carbon felt in the presence of Ni.

**Key words** - Carbon felt; CNFs; TGA; CVD; nanocomposite

carbon nói chung và carbon nano nói riêng thì độ ổn định nhiệt, ổn định oxy hóa là một trong những đặc tính quan trọng xác định giới hạn làm việc của vật liệu trong điều kiện ở nhiệt độ cao với sự có mặt của oxy. Một số công bố trước đây của cùng nhóm tác giả cho thấy, nhiệt độ phân hủy của vật liệu carbon felt trong môi trường oxy sẽ có xu hướng giảm dần khi có mặt một số kim loại chuyển tiếp như Ni, Fe cùng với vật liệu carbon nano [7-9]. Bên cạnh đó, sự thay đổi độ ổn định oxy hóa của các loại vật liệu carbon như graphite, carbon nano cũng được nghiên cứu và công bố trong kết quả của một số tác giả trên thế giới [10-14]. Tuy nhiên, kết quả từ các công bố này vẫn chưa đi sâu và làm rõ được ảnh hưởng của kim loại, oxide kim loại hay sự có mặt của carbon nano được hình thành trên bề mặt carbon felt đến sự giảm độ ổn định oxy hóa của vật liệu carbon. Nghiên cứu của nhóm tác giả Gregg và cộng sự [10] đã đánh giá sự phân hủy theo nhiệt độ của graphite trước và sau khi đưa kim loại, oxide kim loại lên bề mặt. Kết quả cho thấy rằng, nhiệt độ phân hủy của graphite sau khi có mặt xúc tác thấp hơn so với mẫu ban đầu, và sự khác nhau về loại xúc tác sẽ làm thay đổi mức độ ảnh hưởng lên độ bền oxy hóa của graphite. Tuy nhiên, hiện vẫn chưa có nhiều nghiên cứu để làm rõ vấn đề này và kết quả từ một số nghiên cứu đã được thực hiện trước đó lại không có sự thống nhất về xu hướng. Ở công bố của Chia Ming - Chen cùng cộng sự đã sử dụng hợp kim Mg-Ni ở dạng nano làm xúc tác để tổng hợp carbon nano ống đa lớp (MWCNTs) cho thấy rằng, nhiệt độ phân hủy của MWCNTs

<sup>1</sup> Postgraduate student of Chemical Engineering K40, The University of Danang – University of Science and Technology, Vietnam (Le Duc Ngưu)

<sup>2</sup> The University of Danang – University of Science and Technology, Vietnam (Truong Huu Tri)

có xu hướng tăng lên khi hàm lượng xúc tác sử dụng cho quá trình tổng hợp MWCNTs tăng [11]. Tuy nhiên, một nghiên cứu khác của tác giả Haipeng Li cùng cộng sự về khả năng ổn định oxy hóa của CNTs trong môi trường không khí với việc sử dụng Ni/Al làm xúc tác lại cho thấy, khi hàm lượng pha hoạt tính Ni tăng lên thì độ ổn định oxy hóa giảm xuống. Nhiệt độ bắt đầu phân hủy CNTs khi hàm lượng Ni tăng từ 5% đến 15% khối lượng giảm từ 600°C xuống 550°C [12]. Mặt khác, trong các kết quả về đánh giá đặc tính của CNTs được tổng hợp bằng xúc tác là hợp kim Co-Mo trên chất mang  $Al_2O_3$ , tác giả Ahmed E. Awadallah đã chỉ ra rằng, khi nồng độ Co còn thấp thì việc tăng nồng độ pha hoạt tính xúc tác sẽ giúp khả năng bền oxy hóa của CNTs ổn định hơn, cụ thể khi lượng xúc tác tăng đến 10% Co khối lượng, nhiệt độ bắt đầu phân hủy và nhiệt độ phân hủy hoàn toàn của CNTs là cao nhất trong tất cả các mẫu được khảo sát (lần lượt là 535°C, 660°C). Nhưng khi nồng độ xúc tác vượt quá 10% Co thì CNTs tổng hợp được sẽ kém ổn định hơn, nhiệt độ phân hủy giảm xuống [13]. Các kết quả của nghiên cứu này cũng thể hiện xu hướng thay đổi độ bền oxy hóa theo nồng độ xúc tác tương tự với nghiên cứu của nhóm tác giả M Pérez-Cabero [14].

Trong các nghiên cứu đã được công bố [10-14] cho thấy, kỹ thuật phân tích nhiệt trọng trường là công cụ hữu ích để đánh giá độ ổn định oxy hóa của các loại vật liệu carbon. Do vậy trong bài báo này, nhóm tác giả sử dụng phương pháp phân tích nhiệt trọng trường để nghiên cứu ảnh hưởng của pha hoạt tính xúc tác cũng như sự có mặt của carbon nano sợi trên bề mặt carbon felt lên độ bền oxy hóa của loại vật liệu này.

## 2. Thực nghiệm

### 2.1. Nguyên liệu

Carbon felt sử dụng trong nghiên cứu này được mua từ công ty Ceramaterials và sử dụng làm chất mang xúc tác. Tiền chất của pha hoạt tính xúc tác được sử dụng là muối Nickel nitrate ( $Ni(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$ ) có độ tinh khiết trên 98,5%, dung dịch acid  $HNO_3$  68% được dùng cho quá trình chức hóa chất mang đến từ công ty hóa chất Xilong, Quảng Châu, Trung Quốc. Ethanol với độ tinh khiết 99,7% được cung cấp bởi công ty cổ phần hóa chất Việt Nam được dùng làm dung môi hòa tan tiền chất xúc tác, làm nguồn cung cấp khí  $H_2$  cho giai đoạn khử xúc tác ở dạng oxide về dạng kim loại và cũng được sử dụng làm nguồn carbon cho quá trình tổng hợp carbon nano sợi.

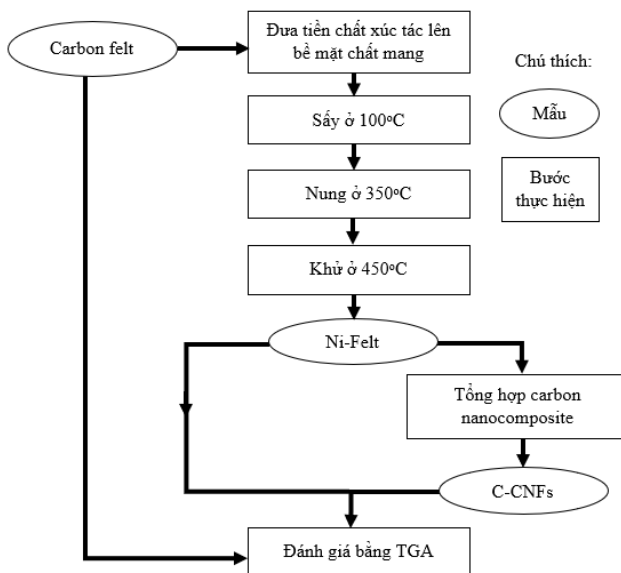
### 2.2. Tổng hợp mẫu nghiên cứu

Để nghiên cứu ảnh hưởng của pha hoạt tính xúc tác và carbon nano sợi lên độ ổn định oxy hóa của carbon felt, các mẫu carbon felt ban đầu, mẫu carbon felt có chứa pha hoạt tính xúc tác và mẫu carbon felt được tổng hợp carbon nano sợi bám trên bề mặt sẽ được đánh giá bằng phương pháp phân tích nhiệt trọng trường. Trong nghiên cứu này, nhóm tác giả sử dụng carbon felt đã được chức hóa bằng dung dịch  $HNO_3$  nhằm tăng khả năng phân tán pha hoạt tính xúc tác [15]. Quá trình tổng hợp mẫu và đánh giá được thực hiện theo quy trình thể hiện trên Hình 1.

Tiền chất xúc tác là muối  $Ni(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$  được hòa tan trong dung môi ethanol để tạo thành dung dịch có nồng độ xác định, tiếp theo dung dịch được đưa lên bề mặt carbon

felt bằng phương pháp tẩm với một lượng được tính toán sao cho Ni (pha hoạt tính xúc tác) là 1% khối lượng trên chất mang là carbon felt. Sau đó, mẫu sẽ được sấy ở 100°C trong 14 h để loại bỏ dung môi và nung ở 350°C nhằm đưa tiền chất xúc tác từ dạng muối nitrate về dạng oxide kim loại, quá trình sấy và nung được thực hiện trong lò nung Nabertherm trong môi trường không khí.

Mẫu sau khi nung được đưa vào hệ thống tổng hợp theo phương pháp kết tụ hóa học trong pha hơi (CVD) gia nhiệt trực tiếp, chi tiết hoạt động của hệ thống được mô tả trong công bố của cùng nhóm tác giả [7]. Sau quá trình đuổi oxy không khí trong hệ thống, thiết bị được gia nhiệt đến nhiệt độ khử xúc tác là 450°C, oxide kim loại được khử bởi  $H_2$  sinh ra từ sự phân hủy ethanol. Tiếp theo, mẫu sẽ được đánh giá trong thiết bị phân tích nhiệt trọng trường. Trong trường hợp nghiên cứu ảnh hưởng đồng thời của Ni và carbon nano sợi lên độ ổn định oxy hóa của carbon felt thì sau khi tiến hành quá trình khử ở 450°C trong hệ thống CVD, thiết bị phản ứng sẽ tiếp tục được gia nhiệt đến nhiệt độ mong muốn và thực hiện tổng hợp carbon nano sợi trên bề mặt carbon felt. Quá trình tổng hợp được tiến hành ở 736°C trong thời gian 1 giờ (các điều kiện được thực hiện theo công bố ở nghiên cứu trước đây của cùng nhóm tác giả [7]). Sản phẩm tổng hợp cũng được phân tích nhiệt trọng trường với cùng điều kiện như đã tiến hành đối với mẫu carbon felt và mẫu carbon felt có chứa Ni.



Hình 1. Quy trình tổng hợp mẫu nghiên cứu và đánh giá độ bền oxy hóa của các mẫu

### 2.3. Khảo sát ảnh hưởng của nồng độ xúc tác đến độ ổn định oxy hóa của carbon felt

Qua những phân tích đã được đề cập ở phần giới thiệu có thể thấy, với sự khác nhau về hàm lượng xúc tác thì độ ổn định oxy hóa của vật liệu carbon cũng sẽ thay đổi. Tuy nhiên, các kết quả đã được công bố vẫn còn có sự khác nhau về xu hướng thay đổi nhiệt độ phân hủy của vật liệu. Do đó, ở nghiên cứu này, nhóm tác giả đã tiến hành khảo sát xu hướng thay đổi nhiệt độ phân hủy của vật liệu theo nồng độ pha hoạt tính xúc tác. Các mẫu carbon felt có hàm lượng pha hoạt tính 3%, 5%, 7% và 10% khối lượng cũng được tổng hợp theo các bước ở quy trình được thể hiện trên Hình 1. Sau quá

trình tổng hợp, mẫu sản phẩm sẽ được phân tích nhiệt trọng trường để đánh giá độ ổn định oxy hóa.

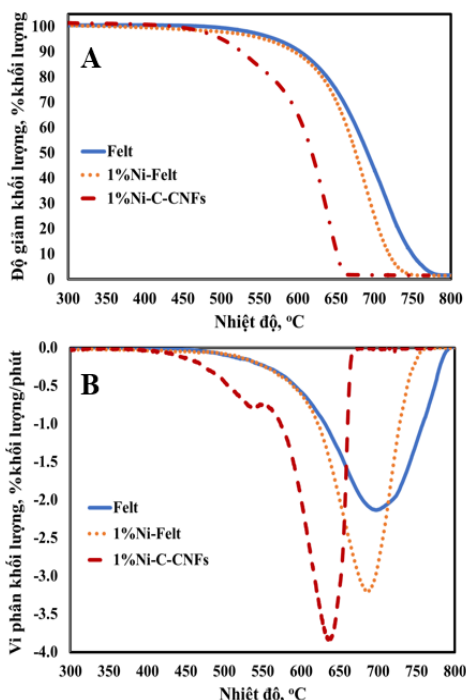
## 2.4. Phương pháp đánh giá

Trong nghiên cứu này, phương pháp phân tích nhiệt trọng trường (TGA) được sử dụng nhằm khảo sát sự thay đổi nhiệt độ phân hủy của chất mang carbon felt trước và sau khi đưa pha hoạt tính xúc tác lên bề mặt cũng như của vật liệu nanocomposite thu được sau khi tổng hợp. Thiết bị được sử dụng là máy phân tích nhiệt STA 6000 PerkinElmer với điều kiện khảo sát từ nhiệt độ môi trường đến 800 °C, tốc độ gia nhiệt 3 °C/phút trong môi trường oxy với lưu lượng 20 ml/phút, khối lượng mẫu sử dụng cho mỗi lần phân tích nằm trong khoảng 4-5 mg.

## 3. Kết quả và thảo luận

### 3.1. Đánh giá ảnh hưởng của pha hoạt tính xúc tác lên độ ổn định oxy hóa của carbon felt

Để nghiên cứu ảnh hưởng của pha hoạt tính xúc tác lên độ ổn định oxy hóa của carbon felt, mẫu carbon felt có chứa 1% khối lượng Ni (ký hiệu 1%Ni-Felt), mẫu carbon nanocomposite với 1% khối lượng Ni (ký hiệu 1%Ni-C-CNFs) và carbon felt ban đầu không chứa pha hoạt tính xúc tác (ký hiệu Felt) được phân tích TGA với các điều kiện đã được trình bày ở mục 2.4, kết quả phân tích được thể hiện trên Hình 2.



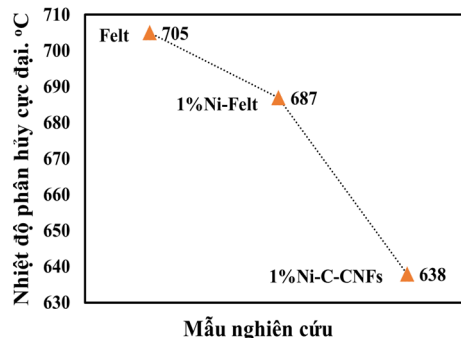
**Hình 2.** Giản đồ TGA của các mẫu nghiên cứu; Độ giảm khối lượng (A) và vi phân khối lượng (B) theo nhiệt độ

Từ kết quả được thể hiện ở giản đồ Hình 2A về độ giảm khối lượng của mẫu có thể thấy, sự có mặt của Ni đã làm giảm nhiệt độ phân hủy của carbon felt so với mẫu không có mặt Ni. Cụ thể, carbon felt khi không có Ni duy trì độ ổn định oxy hóa đến khoảng 550°C trước khi bắt đầu phân hủy nhanh, đối với mẫu 1% Ni-Felt thì bắt đầu phân hủy nhanh ở nhiệt độ  $\geq 525^\circ\text{C}$  (các giá trị nhiệt độ bắt đầu phân hủy nhanh được ghi nhận bằng phương pháp xác định giao điểm các tiếp tuyến của đường mất mát khối lượng theo

công bố của tác giả H. Zhang [16]). Đối với nhiệt độ mà tại đó vật liệu bị phân hủy hoàn toàn, kết quả cũng cho thấy, mẫu không có pha hoạt tính xúc tác sẽ bị phân hủy ở nhiệt độ cao hơn, tại xấp xỉ 780°C, trong khi đó mẫu có Ni sẽ phân hủy hoàn toàn ở nhiệt độ khoảng 750°C. Quan sát giản đồ vi phân khối lượng Hình 2B cho thấy kết quả tương tự, nhiệt độ mà tại đó tốc độ phân hủy của mẫu đạt giá trị cực đại (gọi tắt là nhiệt độ phân hủy cực đại) của carbon felt khi không có mặt Ni là 705°C, giá trị này là 687°C đối với mẫu 1% Ni-Felt. Các kết quả thu được ở nghiên cứu này là hoàn toàn phù hợp với xu hướng trong nghiên cứu được công bố của tác giả Gregg và cộng sự [10].

Thực tế sự có mặt của Ni sẽ thúc đẩy phản ứng oxy hóa carbon, tuy vậy hiện vẫn chưa có những nghiên cứu một cách đầy đủ và rõ ràng về cơ chế tác động của những loại xúc tác này. Theo một số tác giả [17-19] cho thấy, chính quá trình các phân tử kim loại chuyển tiếp hình thành dạng oxide trung gian và sau đó sẽ bị khử thông qua việc oxy hóa các phân tử carbon xung quanh có thể là cơ chế để giải thích sự ảnh hưởng của xúc tác đến độ bền oxy hóa của vật liệu carbon. Ở một nghiên cứu khác đề cập về cơ chế oxy hóa của graphite, tác giả G. R. Hennig [20] cho rằng, chất xúc tác không chỉ đẩy nhanh một trong các bước phản ứng của quá trình oxy hóa thông thường mà còn ảnh hưởng đến một số giai đoạn, hoặc có thể bỏ qua nó trong chuỗi phản ứng bằng cách hình thành các cầu nối kim loại-oxy-carbon. Đây cũng có thể là một trong những cơ chế để giải thích tác dụng của xúc tác thúc đẩy khả năng phân hủy của vật liệu.

Quan sát kết quả từ giản đồ Hình 2B cho thấy, mẫu 1%Ni-C-CNFs có hai peak với nhiệt độ phân hủy cực đại khác nhau. Theo kết quả công bố của cùng nhóm tác giả [9], CNFs được tổng hợp thường có mức độ graphite hóa thấp hơn, mức độ khuyết tật trong cấu trúc lớn hơn so với carbon felt nên độ ổn định oxy hóa thấp hơn. Do đó, tại đường vi phân khối lượng của mẫu 1% Ni-C-CNFs, peak ở nhiệt độ thấp tương ứng với CNFs hình thành trong quá trình tổng hợp, còn peak có nhiệt độ phân hủy cực đại cao tương ứng với carbon felt. Nhiệt độ bắt đầu phân hủy nhanh và nhiệt độ phân hủy hoàn toàn của mẫu 1%Ni-C-CNFs cũng giảm rất mạnh so với carbon felt ban đầu và sau khi đưa Ni lên bề mặt (lần lượt là 482°C và 660°C). Để thấy rõ hơn về ảnh hưởng của Ni cũng như đồng thời cả Ni và CNFs trên bề mặt carbon felt, nhiệt độ phân hủy cực đại của các mẫu được biên thị trên Hình 3.



**Hình 3.** Sự thay đổi nhiệt độ phân hủy cực đại của các mẫu nghiên cứu

Từ kết quả ở Hình 3 cho thấy, khi đưa Ni lên bề mặt carbon felt, nhiệt độ phân hủy cực đại của carbon felt đã

giảm đi 18°C, từ 705°C xuống 687°C, trong trường hợp có mặt Ni và carbon nano sợi, giá trị nhiệt độ này giảm đi 67°C, từ 705°C xuống 638°C. Với kết quả thu được có thể khẳng định sự có mặt đồng thời của Ni và CNFs trên bề mặt carbon felt đã làm giảm mạnh độ ổn định oxy hóa của carbon felt so với khi chỉ có mặt Ni.

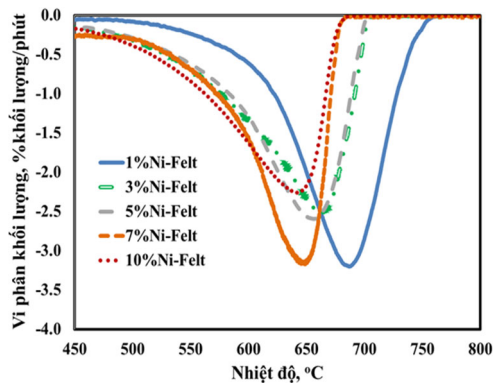
**3.2. Ảnh hưởng của nồng độ xúc tác đến khả năng ổn định oxy hóa của carbon felt**

Nhằm đánh giá ảnh hưởng của nồng độ pha hoạt tính xúc tác, quy trình được bày trên Hình 1 được sử dụng để tổng hợp các mẫu Ni trên bề mặt carbon felt với nồng độ từ 3% đến 10% khối lượng và được ký hiệu lần lượt là 3%Ni-Felt, 5%Ni-Felt, 7%Ni-Felt và 10%Ni-Felt. Bảng 1 thể hiện kết quả khảo sát sự thay đổi nhiệt độ phân hủy của carbon felt theo nồng độ pha hoạt tính Ni.

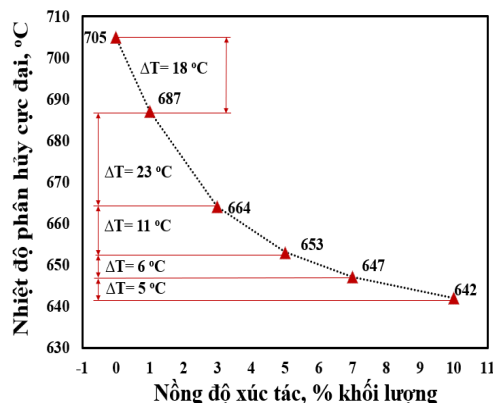
**Bảng 1.** Sự thay đổi nhiệt độ phân hủy của carbon felt theo nồng độ xúc tác Ni

Mẫu	Nhiệt độ, °C	Nhiệt độ bắt đầu phân hủy	Nhiệt độ phân hủy hoàn toàn
1%Ni-Felt		525	750
3%Ni-Felt		508	724
5%Ni-Felt		496	702
7%Ni-Felt		481	680
10%Ni-Felt		478	674

Từ các kết quả được trình bày ở Bảng 1 có thể thấy, nhiệt độ bắt đầu phân hủy cũng như nhiệt độ phân hủy hoàn toàn của carbon felt giảm dần khi nồng độ xúc tác Ni tăng từ 1% đến 10% khối lượng.



**Hình 4.** Giản đồ vi phân khối lượng của carbon felt có xúc tác Ni với sự thay đổi nồng độ pha hoạt tính



**Hình 5.** Sự thay đổi nhiệt độ phân hủy cực đại của carbon felt theo nồng độ Ni

Hình 4 thể hiện gián đồ vi phân khối lượng của các mẫu được khảo sát. Từ các đường vi phân khối lượng ở Hình 4 có thể thấy, kết quả thu được tương tự như kết quả về nhiệt độ bắt đầu phân hủy và nhiệt độ phân hủy cực đại của carbon felt, khi nồng độ pha hoạt tính xúc tác tăng thì nhiệt độ phân hủy cực đại giảm. Tuy nhiên, mức độ giảm này không tuyến tính theo khối lượng Ni trên bề mặt. Hình 5 thể hiện sự thay đổi nhiệt độ phân hủy cực đại theo hàm lượng Ni trên bề mặt carbon felt.

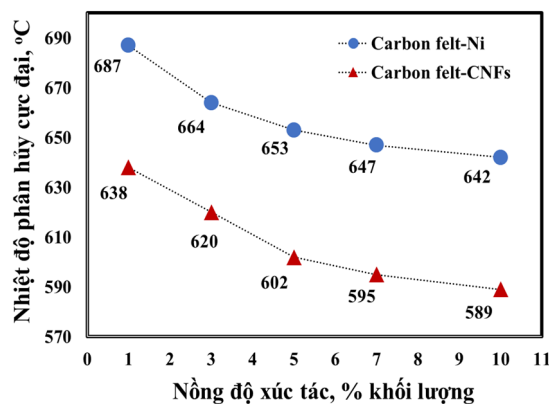
Quan sát đồ thị cho thấy, khi hàm lượng Ni càng lớn thì mức độ giảm trên 1% khối lượng Ni sẽ giảm dần. Cụ thể, 1% khối lượng Ni ban đầu làm giảm 18°C, 2% khối lượng tiếp theo làm giảm 23°C (trung bình 11,5°C với 1% khối lượng Ni). Xu hướng này cũng tương tự đối với nồng độ Ni cao hơn.

Kết quả nghiên cứu ảnh hưởng đồng thời Ni và CNFs trên bề mặt carbon felt với các nồng độ Ni khác nhau được trình bày trên Bảng 2. Các mẫu nanocomposite được tổng hợp theo quy trình Hình 1 và được ký hiệu lần lượt là 1% Ni-C-CNFs, 3% Ni-C-CNFs, 5% Ni-C-CNFs, 7% Ni-C-CNFs, 10% Ni-C-CNFs. Kết quả thu được cũng cho thấy, khi có mặt đồng thời cả Ni và CNFs thì nhiệt độ bắt đầu phân hủy và phân hủy hoàn toàn sẽ giảm đi rất nhiều so với khi carbon felt chỉ chứa Ni.

**Bảng 2.** Sự thay đổi nhiệt độ phân hủy của C-CNFs sau tổng hợp theo nồng độ Ni

Mẫu	Nhiệt độ, °C	Nhiệt độ bắt đầu phân hủy	Nhiệt độ phân hủy hoàn toàn
1%Ni-C-CNFs		482	660
3%Ni-C-CNFs		461	640
5%Ni-C-CNFs		433	610
7%Ni-C-CNFs		415	605
10%Ni-C-CNFs		400	597

Tương tự, giá trị nhiệt độ phân hủy cực đại của carbon felt khi có mặt đồng thời Ni và CNFs cũng được biểu diễn thông qua đồ thị Hình 6. Kết quả cho thấy sự thay đổi nhiệt độ phân hủy cực đại của carbon felt đối với các mẫu có chứa Ni và đồng thời Ni, CNFs với các hàm lượng pha hoạt tính khác nhau.



**Hình 6.** Sự thay đổi nhiệt độ phân hủy cực đại của carbon felt theo hàm lượng Ni và đồng thời Ni, CNFs

Quan sát kết quả được thể hiện ở Bảng 2 và Hình 6 cho thấy, khi có mặt đồng thời cả Ni và CNFs trên bề mặt, các giá trị nhiệt độ phân hủy (nhiệt bắt đầu phân hủy, nhiệt độ

phân hủy hoàn toàn, nhiệt độ phân hủy cực đại) của carbon felt đều giảm xuống và có cùng xu hướng thay đổi như đối với carbon felt trước khi đưa CNFs lên bề mặt. Khi giá trị hàm lượng Ni còn thấp, nhiệt độ phân hủy có xu hướng giảm nhanh, nồng độ càng cao thì nhiệt độ phân hủy có xu hướng giảm chậm lại.

#### 4. Kết luận

Kết quả nghiên cứu đã làm rõ được ảnh hưởng của Ni đến khả năng ổn định oxy hóa của vật liệu carbon felt. Trong khoảng nồng độ được khảo sát, các kết quả cho thấy, sự có mặt của Ni đã làm giảm độ bền oxy hóa của carbon felt. Khi hàm lượng Ni càng lớn thì nhiệt độ phân hủy càng giảm, tuy nhiên mức độ giảm không tuyến tính theo hàm lượng Ni sử dụng, khi hàm lượng Ni càng lớn thì mức độ giảm của nhiệt độ phân hủy carbon felt càng nhỏ lại. Bên cạnh đó, CNFs hình thành trong quá trình tổng hợp vật liệu nanocomposite C-CNFs cũng ảnh hưởng đến độ bền của chất mang. So với trước khi có CNFs, nhiệt độ phân hủy của carbon felt giảm đi đáng kể khi có mặt đồng thời pha hoạt tính xúc tác và CNFs trên bề mặt. Tuy nhiên, phạm vi của nghiên cứu vẫn chưa đi sâu vào việc đánh giá mức độ ảnh hưởng theo hàm lượng CNFs được tạo thành trên bề mặt đến khả năng ổn định oxy hóa của carbon felt. Do đó, cần có những nghiên cứu để giải quyết vấn đề này, từ đó làm cơ sở cho những đánh giá tiếp theo về khả năng và giới hạn ứng dụng của vật liệu carbon felt nói riêng cũng như những loại vật liệu 3D khác nói chung khi được sử dụng trong môi trường làm việc ở nhiệt độ cao.

#### TÀI LIỆU THAM KHẢO

- [1] H. Zhang, N. Chen, C. Sun, and X. Luo, "Investigations on physicochemical properties and electrochemical performance of graphite felt and carbon felt for iron-chromium redox flow battery". *International Journal of Energy Research*, vol. 44, no. 5, pp. 3839-3853, 2020.
- [2] H. Ba *et al.*, "Carbon felt monoliths coated with a highly hydrophobic mesoporous carbon phase for the continuous oil sorption/filtration from water". *Advanced Sustainable Systems*, vol. 2, no. 7, pp. 1800040, 2018.
- [3] K. P. D. jong and J. W. Geus, "Carbon Nanofibers: Catalytic Synthesis and Applications". *Catalysis Reviews Science and Engineering*, vol. 42, p.481-510, 2000.
- [4] N. Lichao and J. Zhong, "Carbon nanofibers and their composites: a review of synthesizing, properties and applications". *Materials*, vol. 7, no. 5, pp. 3919-3945, 2014.
- [5] E. Mayhew and V. Prakash, "Thermal conductivity of individual carbon nanofibers". *Carbon*, vol. 62, p.493-500, 2013.
- [6] T. Ozkan, M. Naraghi, and I. Chasiotis, "Mechanical properties of vapor grown carbon nanofibers". *Carbon*, vol. 48, pp. 239-244, 2010.
- [7] L. D. Nguu, N. D. Lam, and T. H. Tri, "Synthesis of nanocomposite C-CNFs and investigation of the effect of catalytic amount on product characteristics". *Journal of Chemistry and Application*, No. 1B(60B), pp. 45-50, 2022.
- [8] L. D. Nguu, N. D. Lam, and T. H. Tri, "Synthesis of C-CNTs and investigation of the effect of temperature on product characteristics". *University of Danang – Journal of Science and Technology*, vol. 20, no. 3, pp. 18-22, 2022.
- [9] T. H. Tri, N. D. Lam, T. N. Ngoc, B. T. L. huong, L. D. Nguu, and D. T. Hy, "Synthesis of carbon nano-fiber on carbon felt's surface using LPG". *University of Danang – Journal of Science and Technology*, vol. 17, no. 5, pp. 63-67, 2019.
- [10] G. S. B. McKee and K. S. Vecchio, "Thermogravimetric Analysis of Synthesis Variation Effects on CVD Generated Multiwalled Carbon Nanotubes". *J. Phys. Chem. B*, vol. 110, pp. 1179-1186, 2006.
- [11] C.-M. Chen, Y.-M. Dai, J. G. Huang, and J.-M. Jehng, "Intermetallic catalyst for carbon nanotubes (CNTs) growth by thermal chemical vapor deposition method". *Carbon*, vol. 44, pp. 1808-1820, 2006.
- [12] H. Li, N. Zhao, C. He, C. Shi, X. Du, and J. Li, "Thermogravimetric analysis and TEM characterization of the oxidation and defect sites of carbon nanotubes synthesized by CVD of methane". *Materials Science and Engineering A*, vol. 473, pp. 355-359, 2008.
- [13] A. E. Awadallah, A. A. Aboul-Enein, and A. K. Aboul-Gheit, "Effect of progressive Co loading on commercial Co-Mo/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> catalyst for natural gas decomposition to COx-free hydrogen production and carbon nanotubes". *Energy Conversion and Management*, vol. 77, pp. 143-151, 2014.
- [14] M. Pérez-Cabero, I. Rodríguez-Ramos, and A. Guerrero-Ruiz, "Characterization of carbon nanotubes and carbon nanofibers prepared by catalytic decomposition of acetylene in a fluidized bed reactor". *Journal of Catalysis*, vol. 215, pp. 305-316, 2003.
- [15] D. T. Hy, L. D. Nguu, P. H. Linh, N. D. Lam, and T. H. Tri, "Influence of acidic treatment on carbon felt's surface to performance and characterization of nanocomposite C-CNF". *Vietnam Journal of Chemistry*, vol. 57, no. 6E12, pp. 151-157, 2019.
- [16] H. Zhang, Y. Chen, G. Zeng, H. Huang, Z. Xie, and X. Jie, "The thermal properties of controllable diameter carbon nanotubes synthesized by using AB5 alloy of micrometer magnitude as catalyst". *Materials Science and Engineering A*, vol. 464, pp. 17-22, 2007.
- [17] J. M. Thomas, "Microscopic Studies of Graphite Oxidation". *In Chemistry and Physics of Carbon*, vol. 1, pp. 121, 1965.
- [18] S. R. Kelemen, "The reaction of carbon and water as catalyzed by a nickel surface". *Applied Surface Science*, vol. 28, pp. 439-474, 1987.
- [19] Z. J. Pan and R. T. Yang, "Catalytic Behavior of Transition Metal Oxide in Graphite Gasification by Oxygen, Water, and Carbon Dioxide". *Journal of catalysis*, vol. 130, no. 1, pp. 161-172, 1991.
- [20] G. R. Hennig, "Catalytic oxidation of graphite". *J. Inorg. Nucl Chem*, vol. 24, pp. 1129 - 1137, 1962.