

# CHẾ TẠO VẬT LIỆU NANO $Fe_3O_4$ PHÂN TÁN TRÊN VỎ LẠC VÀ ỨNG DỤNG HẤP PHỤ HỢP CHẤT MÀU HỮU CƠ

ĐINH VĂN TẠC - Trường Đại học Sư Phạm - Đại học Đà Nẵng;  
ĐẶNG THỊ MỸ HUỆ - Trường Đại học Kỹ thuật - Y dược Đà Nẵng

## SUMMARY:

### FABRICATION OF MAGNETIC IRON OXIDE NANOPARTICLE / PEANUT SHELL FOR REMOVAL OF COLORED ORGANIC COMPOUNDS

*This paper presents a study on producing adsorbent materials from nano  $Fe_3O_4$  impregnated onto peanut shell and factors affecting on adsorption efficiency some colored organic compounds. The results revealed that  $Fe_3O_4$  / peanut shell exhibited as efficient adsorbent in removing methylene blue and methyl orange from aqueous solution. In addition, the factors affecting the adsorption process, such as adsorption equilibrium time; pH environment; concentration of organic compounds, were addressed. Both Langmuir and Freundlich isotherm models were fitted well equilibrium data. The kinetics of the adsorption follows a pseudo-second order model. Maximum Langmuir adsorption capacities of  $Fe_3O_4$  / peanut shell are  $q_{max}$  (MB) = 153,85 mg/g and  $q_{max}$  (MO) = 176,74 mg/g.*

**Key words:** Modified peanut shell; nano  $Fe_3O_4$ ; adsorbent; methylene blue; methyl orange.

## I. ĐẶT VẤN ĐỀ

Trong những năm gần đây cùng với sự phát triển của nền công nghiệp, các nhà máy khu chế xuất ngày càng tăng. Mỗi năm những nhà máy, khu chế xuất này thải ra một lượng nước thải lớn gây ô nhiễm môi trường. Nước ta là nước có ngành công nghiệp dệt nhuộm phát triển vì vậy hàng năm nước thải của ngành công nghiệp này chiếm một lượng đáng kể. Lượng nước thải này chứa nhiều chất hữu cơ mang màu độc hại, nếu không được xử lý triệt để, sẽ gây ô nhiễm nguồn nước và ảnh hưởng đến sức khỏe con người[1].

Hiện nay, có nhiều phương pháp khác nhau để loại bỏ các chất hữu cơ mang màu ra khỏi môi trường nước như: hấp thụ ngược[2], keo tụ[3], quang phân hủy[4] hoặc

hấp phụ... Trong đó hấp phụ là một trong những phương pháp có nhiều ưu điểm như vật liệu sử dụng làm chất hấp phụ tương đối phong phú, dễ điều chế, chi phí thấp, thân thiện với môi trường. Chính vì vậy đây là vấn đề đã và đang được nhiều nhà khoa học quan tâm, nghiên cứu. Trong lĩnh vực xử lý môi trường, ta có thể sử dụng vật liệu tự nhiên (đá ong[5], quặng sắt, đất bazan...) hay vật liệu chế tạo từ phụ phẩm nông nghiệp như vỏ lạc[6, 7, 8], vỏ trấu[9], thân sen[10]...những loại vật liệu này đều dễ kiếm, có giá thành rẻ và thân thiện với môi trường.

Trong bài báo này, chúng tôi trình bày kết quả nghiên cứu phân tán nano  $Fe_3O_4$  trên vỏ lạc để làm vật liệu hấp phụ xanh methylen (MB) và metyl da cam (MO).

## II. THỰC NGHIỆM

### 2.1. Chế tạo vật liệu hấp phụ

**Biến tính vỏ lạc:** Vỏ lạc sau khi rửa sạch, phơi khô, nghiền mịn, được ngâm trong dung dịch NaOH 0,1M trong 48h, sau đó rửa lại bằng nước cất nhiều lần và ngâm trong dung dịch axit citric 55% trong 48h (vật liệu hấp phụ MO

không qua bước này). Tiếp theo, lọc vật liệu và sấy khô ở 80°C trong 12h rồi nâng nhiệt độ lên 120°C trong 3h để thực hiện phản ứng este hóa xenlulozo bằng axit citric. Vỏ lạc sau biến tính để nguội, ngâm trong nước cất trong 4 h để loại bỏ axit citric, lọc rửa nhiều lần bằng nước cất và sấy ở 60°C trong 6 h.

**Tổng hợp nano Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>** bằng phương pháp đồng kết tủa [11] từ dung dịch FeCl<sub>2</sub> 0,05 M + FeCl<sub>3</sub> 0,1M bằng cách thêm từ từ dung dịch NH<sub>3</sub> đậm đặc 25%. Kết tủa được lọc rửa nhiều lần bằng nước cất sau đó sấy khô ở nhiệt độ 40°C trong 12h.

**Tổng hợp vật liệu vô lạc phủ nano Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>**: Khuấy đều 160ml dung dịch FeCl<sub>2</sub> 0,05M + FeCl<sub>3</sub> 0,1M bằng máy khuấy từ gia nhiệt ở 80°C trong 15 phút. Nhỏ từ từ 25ml dung dịch NH<sub>3</sub> 25% ở 80°C trong 30 phút. Thêm 5g vô lạc biến tính và tiếp tục khuấy trong 30 phút ở 80°C. Làm nguội hỗn hợp đến nhiệt độ phòng rồi lọc rửa nhiều lần bằng nước cất. Sấy chất rắn thu được ở 40°C trong 20h được vật liệu vô lạc phủ nano Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>.

Vật liệu sau khi tổng hợp được xác định các đặc trưng hóa lý bằng phương pháp nhiễu xạ tia X, phổ IR, chụp ảnh TEM, SEM.

Điểm đẳng điện của vật liệu (pH<sub>i</sub>) được xác định bằng cách cho 0,2g vật liệu vào 100ml dung dịch NaCl 0,1M có pH = 2 - 12. Xác định lại pH của dung dịch sau 48 h. Từ đồ thị phụ thuộc của ΔpH vào pH xác định được pH<sub>i</sub>.

## 2. Hấp phụ MB và MO

Cho 0,03 g vật liệu vào 25ml dung dịch MB và MO có nồng độ C mg/L. Khuấy bằng máy khuấy từ trong t phút, tốc độ 200 vòng/phút. Sau khi hấp phụ, lọc lấy dung dịch và xác định nồng độ hợp chất màu bằng phương pháp đo quang.

Hiệu suất quá trình hấp phụ và dung lượng hấp phụ được tính theo công thức:

$$H = \frac{C_0 - C_t}{C_0} \cdot 100\% \text{ và } q = \frac{(C_0 - C_t)V}{m}$$

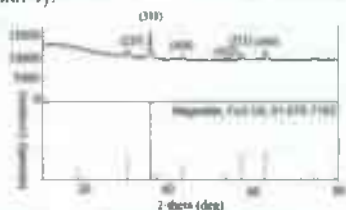
trong đó: C<sub>0</sub>; C<sub>t</sub> lần lượt là nồng độ dung dịch trước và sau khi hấp phụ (mg/l); H là hiệu suất hấp phụ (%); q là dung lượng hấp phụ (mg/g); V: thể tích dung dịch (l); m: khối lượng vật liệu hấp phụ (g).

Các yếu tố ảnh hưởng đến quá trình hấp phụ được khảo sát bao gồm pH dung dịch (pH = 2-8), thời gian hấp phụ (t = 30 + 180 phút) và nồng độ đầu các chất màu (C = 50-300 ppm).

## III. KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN

### 1. Đặc trưng lý hóa của vật liệu

Phân tích giản đồ nhiễu xạ tia X của nano oxit sắt từ cho thấy, có xuất hiện các pic đặc trưng tại góc 2θ là 30,4°; 35,8°; 43,5°; 54,1°; 57,4° và 62,7° tương ứng với các mạng (220), (311), (400), (422), (511) và (440) thuộc cấu trúc spinel đảo của tinh thể Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> (dữ liệu JCPDS 01-076-7165) (Hình 1).



Hình 1. Giản đồ XRD của nano Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>

Kết quả chụp ảnh TEM cho thấy, vật liệu Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> có dạng hình cầu, kích thước cỡ 10-20 nm, nhưng dính với nhau thành từng đám (Hình 2).



Hình 2. Ảnh TEM của nano Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>

Ảnh chụp SEM cho thấy, bề mặt vô lạc có hình dạng xốp, nhiều hốc, rãnh, trong khi Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> gồm nhiều tinh thể nhỏ, hơi xốp. Sau khi phân tán Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> lên vô lạc, bề mặt vô lạc trở nên nhám hơn với các tinh thể nhỏ bám lên trên bề mặt (Hình 3).



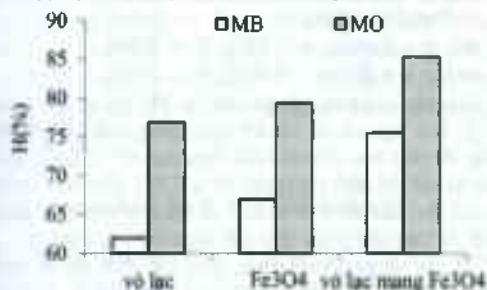
Hình 3. Ảnh SEM của vô lạc (a); Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> (b) và vô lạc phủ nano Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> (c)

Kết quả xác định điểm đẳng điện của vật liệu cho thấy, pH<sub>i</sub> (vô lạc phủ Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>) = 4,5 < pH<sub>i</sub> (Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>) = 5,5 < pH<sub>i</sub> (vô lạc) = 5,8.

Như vậy sự phân tán Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> trên bề mặt vô lạc làm giảm đáng kể pH<sub>i</sub> của cả 2 vật liệu ban đầu. Điều này gợi ý rằng các hạt nano Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> có thể không đơn thuần phủ lên trên bề mặt vô lạc mà có khả năng đã tạo liên kết với các nhóm chức của vô lạc.

## 2. Thăm dò khả năng hấp phụ của vật liệu

Vật liệu hấp phụ sau khi chế tạo được đem thử khả năng hấp phụ chất màu hữu cơ. Hiệu suất hấp phụ MB và MO (150 ppm) sau 120 phút được trình bày ở Hình 4.



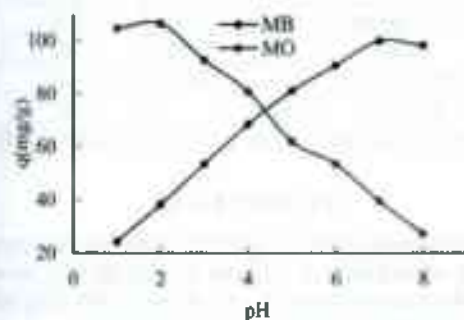
Hình 4. Hiệu suất hấp phụ MB và MO

Kết quả thăm dò cho thấy cả 3 loại vật liệu: vỏ lạc biến tính, nano Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> và vỏ lạc phủ Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> đều có khả năng hấp phụ tốt cả MB lẫn MO. Trong đó vỏ lạc cho hiệu suất hấp phụ thấp nhất và vỏ lạc phủ Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> cho hiệu suất hấp phụ cao nhất, đạt hơn 75% đối với MB và 85% đối với MO. Điều này có thể được giải thích là do các tinh thể Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> khi phân tán vào trong các hang hốc của vỏ lạc, không những làm tăng diện tích bề mặt của vật liệu mà bản thân các tinh thể sẽ đóng vai trò là các tâm hấp phụ nên làm tăng khả năng hấp phụ của vỏ lạc.

## 3. Khảo sát quá trình hấp phụ MB và MO

### 3.1. Ảnh hưởng của pH

Kết quả thực nghiệm cho thấy, pH môi trường ảnh hưởng khác nhau đến khả năng hấp phụ MB và MO của vật liệu vỏ lạc mang Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> (Hình 5). Đối với MB tăng pH từ 1 đến 7 dung lượng hấp phụ tăng mạnh, sau đó gần như không đổi, trong khi đối với MO dung lượng hấp phụ đạt cực đại tại pH = 2.



Hình 5: Ảnh hưởng của pH đến dung lượng hấp phụ MB và MO

Như đã biết, trong môi trường nước MB tồn tại ở dạng cation, còn MO tồn tại chủ yếu ở dạng anion khi pH > 4,4.

khi pH < 3,1 MO bị proton hóa và tồn tại chủ yếu ở dạng trung hòa. Trong môi trường pH > pH<sub>1</sub> = 4,5 vật liệu bị deproton hóa và mang điện tích âm nên quá trình hấp phụ cation MB diễn ra thuận lợi hơn so với quá trình hấp phụ anion MO. Do vậy dung lượng hấp phụ MB của vật liệu cao hơn dung lượng hấp phụ MO. Ngược lại trong môi trường pH < pH<sub>1</sub> vật liệu bị proton hóa và mang điện tích dương, tương tác đẩy cản trở quá trình hấp phụ cation MB nên dung lượng hấp phụ MB trong môi trường axit nhỏ. MO trong khoảng chuyển màu pH 3- 4 tồn tại ở cả dạng anion và dạng trung hòa, do vậy quá trình hấp phụ tương đối thuận lợi. Tuy nhiên khi pH < 2 quá trình proton hóa diễn ra mạnh mẽ cản trở quá trình hấp phụ nên dung lượng hấp phụ MO có xu hướng giảm dần.

Vi vậy pH môi trường phù hợp cho quá trình hấp phụ MB và MO của vỏ lạc mang Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> lần lượt là pH = 7 và pH = 2.

### 3.2. Động học của quá trình hấp phụ

Động học của quá trình hấp phụ MB và MO bởi vỏ lạc mang Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> được đánh giá thông qua hai mô hình động học biểu kiến bậc nhất và bậc hai [12]:

$$\ln(q_e - q_t) = \ln q_e - k_1 t$$

$$\frac{t}{q_t} = \frac{1}{k_2 q_e^2} + \frac{t}{q_e}$$

Trong đó, q<sub>e</sub> và q<sub>t</sub> là dung lượng hấp phụ ở thời điểm cân bằng và ở thời điểm t (mg/g); k<sub>1</sub>, k<sub>2</sub> là hằng số tốc độ của quá trình hấp phụ biểu kiến bậc 1 (phút<sup>-1</sup>) và bậc 2 (g mg<sup>-1</sup> phút<sup>-1</sup>).

Để đánh giá mức độ phù hợp của các mô hình động học đối với số liệu thực nghiệm, xác định sai số trung bình tương đối:

$$ARE(\%) = \frac{|q_{e,calc} - q_{e,exp}|}{q_{e,exp}} \cdot 100\%$$

Trong đó, q<sub>e,calc</sub>, q<sub>e,exp</sub> là dung lượng hấp phụ cân bằng theo tính toán và theo thực nghiệm.

Từ số liệu về ảnh hưởng của thời gian đến dung lượng hấp phụ của vật liệu xây dựng đồ thị mô tả động học hấp phụ biểu kiến bậc 1 và bậc 2 (Hình 6).

Hồi quy tuyến tính thu được các phương trình:

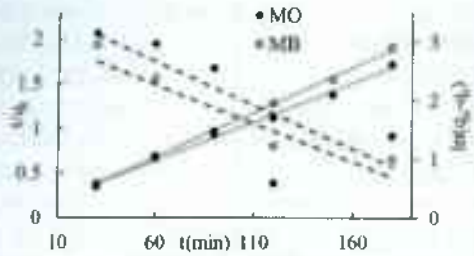
$$\text{Bậc 1 (MB): } y = -0,0132x + 3,0615, R^2 = 0,840$$

$$\text{Bậc 2 (MB): } y = 0,00998x + 0,08264, R^2 = 0,999$$

$$\text{Bậc 1 (MO): } y = -0,0149x + 3,5609, R^2 = 0,615$$

$$\text{Bậc 2 (MO): } y = 0,0087x + 0,1148, R^2 = 0,994$$

Từ các giá trị độ dốc và đoạn cắt với trục tung của các đường tuyến tính, xác định các giá trị k<sub>1</sub>, k<sub>2</sub>, q<sub>e,calc</sub> và ARE (Bảng 1).



Hình 6. Đồ thị mô tả động học hấp phụ biểu kiến bậc 1 (- - -) và bậc 2 (....) của quá trình hấp phụ MB và MO

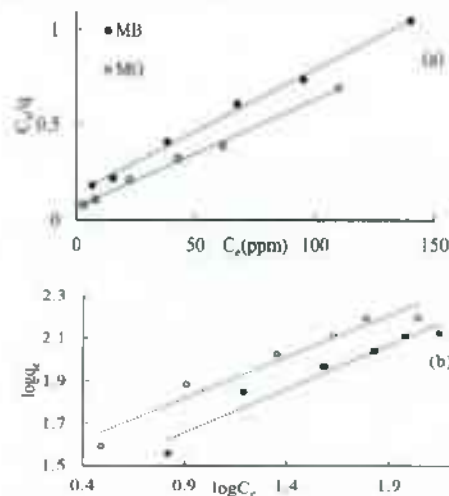
Bảng 1: Các tham số của phương trình động học biểu kiến bậc 1 và bậc 2

	Mô hình	k	R <sup>2</sup>	q <sub>e,cal</sub>	ARE (%)
MB	Bậc 1	0,0132	0,8399	21,36	78,00
	Bậc 2	0,012	0,9985	100,20	3,19
MO	Bậc 1	0,0149	0,6151	35,19	67,71
	Bậc 2	0,0075	0,9935	114,94	5,45

Thực nghiệm cho thấy, đối với cả MB và MO mô hình động học biểu kiến bậc hai có các hệ số tin cậy (R<sup>2</sup>) gần bằng 1 và sai số trung bình tương đối nhỏ. Từ đó có thể cho rằng mô hình động học biểu kiến bậc hai mô tả quá trình hấp phụ phù hợp hơn so với mô hình biểu kiến bậc nhất. Hằng số tốc độ hấp phụ bậc hai của MB lớn hơn của MO chứng tỏ quá trình hấp phụ MB trên vỏ lạc mang Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> diễn ra nhanh hơn so với MO.

### 3.3. Phương trình hấp phụ đẳng nhiệt

Từ các số liệu thực nghiệm về ảnh hưởng của nồng độ đầu MB và MO đến dung lượng hấp phụ của vật liệu, khảo sát cân bằng hấp phụ theo mô hình đẳng nhiệt hấp phụ Langmuir và Freundlich (Hình 7).



Hình 7. Đồ thị hấp phụ đẳng nhiệt Langmuir (a) và Freundlich (b) của vỏ lạc mang Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> đối với MB và MO

Các phương trình hồi quy tuyến tính thu được:

+ Theo Langmuir:

$$MB: y = 0,0065x + 0,1419, R^2 = 0,996$$

$$MO: y = 0,0057x + 0,0675, R^2 = 0,995$$

+ Theo Freundlich:

$$MB: y = 0,4119x + 1,2871, R^2 = 0,945$$

$$MO: y = 0,3917x + 1,4665, R^2 = 0,946$$

Như vậy quá trình hấp phụ MB và MO bởi vỏ lạc mang Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> phù hợp với cả hai mô hình đẳng nhiệt. Tuy nhiên mức độ phù hợp với mô hình Freundlich (R<sup>2</sup> ≈ 0,95) kém hơn so với mô hình Langmuir (R<sup>2</sup> ≈ 0,99). Điều này chứng tỏ các tâm hấp phụ trên bề mặt vật liệu này tương đối đồng nhất và hiện tượng hấp phụ đơn lớp chiếm ưu thế hơn.

Từ các phương trình đẳng nhiệt xác định giá trị dung lượng hấp phụ cực đại q<sub>max</sub>; hằng số Langmuir K<sub>L</sub>; K<sub>F</sub> hằng số Freundlich và hệ số dị thể n như Bảng 2.

Bảng 2: Các tham số đẳng nhiệt dạng tuyến tính

	q <sub>max</sub> , mg/g	K <sub>L</sub>	K <sub>F</sub>	1/n
MB	153,85	0,0046	19,37	0,41
MO	176,74	0,0084	29,28	0,39

Kết quả tính toán theo mô hình Langmuir cho thấy, dung lượng hấp phụ cực đại của vật liệu đối với MO bằng 176,74mg/g lớn hơn đáng kể so với q<sub>max</sub> đối với MB (153,85mg/g). So sánh với các loại vật liệu được chế tạo từ các phụ phẩm nông nghiệp khác và vỏ lạc được biến tính bằng phương pháp khác, khả năng hấp phụ của vỏ lạc phủ nano Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> đối với MB và MO nhìn chung tốt hơn đáng kể (Bảng 3).

Bảng 3: Dung lượng hấp phụ cực đại MB và MO theo mô hình Langmuir của các loại vật liệu

Vật liệu	q <sub>max</sub> , mg/g		Tài liệu
	MB	MO	
Đá ong	55,56	66,67	[5]
Tro trấu		33,5	[9]
Thân cây sen	109,89	31,55	[10]
Vỏ lạc		40,81	[6]
PANI-Vỏ lạc		250,00	[7]
PN-Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub>	32,5		[8]
Vỏ lạc phủ nano Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub>	153,85	176,74	Trong bài báo này

## IV. KẾT LUẬN

Bằng phương pháp đồng kết tủa có thể thu được nano Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> với kích thước từ 10-20nm. Sự phân tán Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> lên vỏ lạc khiến cho bề mặt vật liệu trở nên nhám hơn, đồng thời làm giảm đáng kể điểm đẳng điện của vật liệu.

Vỏ lạc biến tính, nano Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>, vỏ lạc mang nano Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> đều có khả năng hấp phụ tốt MB và MO, trong đó vỏ lạc mang Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> có khả năng hấp phụ tốt nhất.

pH môi trường giúp vật liệu hấp phụ MB và MO tốt nhất lần lượt là 7 và 2. Sự hấp phụ các MB và MO bởi vỏ lạc phủ nano  $Fe_3O_4$  tuân theo mô hình động học biểu kiến bậc 2 và được mô tả bằng cả hai mô hình hấp phụ đẳng nhiệt Langmuir và Freundlich. Dung lượng hấp phụ cực đại của vỏ lạc phủ nano  $Fe_3O_4$  theo mô hình Langmuir:  $q_{max}$  (MB) = 153,85mg/g;  $q_{max}$  (MO) = 176,74mg/g, lớn hơn đáng kể so với các loại vật liệu hấp phụ được chế tạo từ các phụ phẩm nông nghiệp khác.

### TÀI LIỆU THAM KHẢO

- [1] Bộ Tài nguyên và Môi trường, *Báo cáo hiện trạng môi trường quốc gia giai đoạn 2016 – 2020*, Nhà xuất bản Dân Trí, 2021.
- [2] Haigang Li, Yanwen Lin, Yunbai Luo, "Relating organic fouling of reverse osmosis membranes to adsorption during the reclamation of secondary effluents containing methylene blue and rhodamine B", *Journal of Hazardous Materials* 192(2), 2011, 490-9, DOI:10.1016/j.jhazmat.2011.05.044
- [3] Phan Kiêm Hào, Nguyễn Xuân Hoàn, Lê Huy Bá, Nghiên cứu xử lý màu nước thải dệt nhuộm hoạt tính bằng keo tụ - tạo bông với sắt sunphat/zeolite, *Tạp chí Khoa học Công nghệ và Thực phẩm*, 18 (1), 2019, 83-90.
- [4] Ngô Ngọc Thọ, Nguyễn Thành Tài, Hồ Đức Duy, Nguyễn Thị Thủy, xử lý metylen xanh bằng xúc tác quang Ag-TiO<sub>2</sub>-SiO<sub>2</sub> phủ trên bì thủy tinh, *Tạp chí Khoa học Công nghệ và Thực phẩm*, 20(3), 2020, 125-136.
- [5] Ngô Thị Mai Việt, "Nghiên cứu khả năng hấp phụ metylen xanh và metyl da cam của vật liệu đá ong biến tính", *Tạp chí phân tích Hóa, Lý và Sinh học*, 20(4), 2015, 303-310.
- [6] S. Boumchita, "Application of peanut shell as a low-cost adsorbent for the removal of anionic dye from aqueous solutions", *Journal of materials and Environmental Science*, V.8, I.7, 2017, 2353-2364.
- [7] Bùi Minh Quý, "Nghiên cứu loại bỏ metyl da cam trong nước bằng vật liệu hấp phụ composit polyaniline-vỏ lạc", *Tạp chí khoa học và công nghệ*, 169(09), 2017, 51-55.
- [8] Aaron Albert Aryee, "Application of magnetic peanut husk for methylene blue adsorption in batch mode", *Desalination and Water Treatment*, 194, 2020, 269-279.
- [9] Phan Phước Toàn, "Đặc trưng và khả năng hấp phụ metyl da cam của tro trâu hoạt hóa", *Tạp chí Khoa học trường ĐH Cần Thơ*, 42, 2016, 50-57.
- [10] Vũ Thị Hậu, "Nghiên cứu khả năng hấp phụ xanh metylen, metyl da cam của vật liệu hấp phụ chế tạo từ thân cây sen", *Tạp chí Khoa học và công nghệ*, 169(09), 2017, 151-157.
- [11] Vũ Thị Duyên, Phạm Thị Ni Na, Đinh Văn Tạc, "Chế tạo vật liệu nano  $Fe_3O_4$  phân tán trên xơ dừa để hấp phụ ion kim loại nặng trong môi trường nước", *Tạp chí Khoa học Xã hội, Nhân văn & Giáo dục*, tập 9, số 4, 2019, 20-25.
- [12] Chang Y. P., "Preparation and characterization of  $Fe_3O_4$ /graphene nanocomposite and investigation of its adsorption performance for aniline and p-chloroaniline", *Appl. Surf. Sci.*, 261, 2012, 504-509. ❖

Phản biện: TS ĐỖ HUY HOÀNG