## TỔNG HỢP VẬT LIỆU XÚC TÁC QUANG COMPOZIT BỉVO4/Ta2O5/g-C3N4 NHẰM ỨNG DỤNG PHÂN HỦY CÁC CHẤT HỮU CƠ Ô NHIỄM

Đến tòa soạn 30-10-2019

Mai Hùng Thanh Tùng Trường Đại học Công nghiệp Thực phẩm TPHCM, Việt Nam Nguyễn Thị Phương Lệ Chi Trường Đại học Khoa học Tự nhiên, Đại học quốc gia Hà Nội, Việt Nam Nguyễn Thị Diệu Cẩm Trường Đại học Quy Nhơn, Việt Nam

#### SUMMARY

### SYNTHESIS OF BiVO<sub>4</sub>/Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>/g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub> COMPOSITE PHOTOCATALYST APPLYING FOR THE TREATMENT OF POLLUTED ORGANIC COMPOUND

 $BiVO_4/Ta_2O_5/g-C_3N_4$  (BTC) multiphase composite photocatalysts were synthesized by hydrothermal and solid-phase methods for photocatalytic degradation of rhodamine B (RhB) under visible light irradiation. The physical and photophysical properties of the g-C\_3N\_4, BiVO\_4, Ta\_2O\_5 and  $BiVO_4/Ta_2O_5/g-C_3N_4$  hybrid materials were investigated by X-ray diffraction (XRD), ultravioletvisible absorption spectroscopy (UV-Vis), photoluminescent spectroscopy (PL), and transmission electron microscopy (TEM). We also investigated that photocatalytic performance of these BTC materials were highly dependent on the weight ratio of these used precursors. The optimized (NH<sub>2</sub>)<sub>2</sub>CO:BiVO<sub>4</sub>:Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> weight ratio for a dramatic photocatalytic enhancement of the BTC was 4:1:1 (BTC-4).

*Keywords:*  $BiVO_4$ ,  $g-C_3N_4$ ,  $Ta_2O_5$ , visible light, photocatalytic activity, rhodamine B, recombination.

#### 1. ĐẶT VẤN ĐỀ

Gần đây, graphit cacbon nitrua (g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>, một dạng chất bán dẫn polyme hữu cơ không kim loại, có cấu trúc lớp như graphen) và bitmut octovanađat (BiVO<sub>4</sub>) đã thu hút nhiều sự quan tâm nghiên cứu trong việc ứng dụng làm vật liệu xúc tác quang tách nước và phân hủy các chất hữu cơ ô nhiễm trong vùng ánh sáng nhìn thấy [1-9]. Các vật liệu này có lợi thế là năng lượng vùng cấm hẹp (lần lượt khoảng 2,7 và 2,4 eV) [4, 5, 8]. Tuy nhiên, cả g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub> và BiVO<sub>4</sub> tinh khiết đều có tốc độ tái tổ hợp cặp điện tử và lỗ trống quang sinh khá cao, dẫn đến hiệu quả quang xúc tác không thực sự cao trong vùng ánh sáng nhìn thấy. Để khắc phục nhược điểm trên, nhiều nhà khoa học đã nghiên cứu biến tính g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub> và BiVO<sub>4</sub> bằng nhiều tác nhân biến tính khác nhau. Đặc biệt, trong thời gian gần đây, các vật liệu g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub> và BiVO<sub>4</sub> được nghiên cứu lai ghép với các vật liệu bán dẫn khác tạo ra các hệ vật liệu lai ghép thế hệ như  $g-C_3N_4/TiO_2/BiVO_4$ , mới g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/CNT/BiVO<sub>4</sub>, g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/Ag/BiVO<sub>4</sub> nhằm làm giảm sự tái tổ hợp các cặp electron và lỗ trống quang sinh, dẫn đến làm tăng hoạt tính quang xúc tác của các vật liệu lai ghép. Các kết quả nghiên cứu thu được cho thấy, các vật liệu lai ghép thế hê mới đều có hoat tính quang xúc tác cao hơn nhiều so với các hợp phần riêng lẻ trong vùng ánh sáng nhìn thấy [10-13].

Như vậy, việc biến tính g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub> và BiVO<sub>4</sub> bằng

các tác nhân biến tính phù hợp sẽ làm giảm sự tái tổ hợp của cặp electron và lỗ trống quang sinh của các vật liệu bán dẫn này dẫn đến gia tăng hiệu quả quang xúc tác của chúng trong vùng ánh sáng nhìn thấy. Trong nghiên cứu này, để khắc phục nhược điểm của từng vật liệu riêng lẻ, chúng tôi tiến hành tổng hợp vật liệu xúc tác quang compozit BiVO<sub>4</sub>/Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>/g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub> nhằm khắc phục những nhược điểm nêu trên, phát huy hiệu quả quang xúc tác của chúng trong vùng ánh sáng nhìn thấy.

### 2. THỰC NGHIỆM

### 2.1. Tổng hợp vật liệu

### 2.1.1. Tổng hợp vật liệu g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub> từ ure

Cho urê vào cối mã não nghiền mịn, sau đó cho vào chén sứ, bọc kín bằng nhiều lớp giấy tráng nhôm (nhằm ngăn cản sự thăng hoa của tiền chất cũng như làm tăng cường sự ngưng kết tạo thành g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>), nung nóng ở 530 °C trong l giờ với tốc độ gia nhiệt 5 °C/phút. Sau đó, lò được để nguội tự nhiên đến nhiệt độ phòng, thu được bôt màu vàng là g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>.

### 2.1.2. Tổng hợp vật liệu BiVO4

5 mmol Bi(NO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>.5H<sub>2</sub>O được hòa tan hoàn toàn trong 10 mL axit nitric, khuấy liên tục trong 30 phút. Đồng thời, 5 mmol NH<sub>4</sub>VO<sub>3</sub> cũng được đem hòa tan hoàn toàn trong 60 mL nước nóng ở 80 °C. Cho dung dịch NH<sub>4</sub>VO<sub>3</sub> vào dung dịch Bi(NO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>, đem siêu âm trong 20 phút và khuấy trong 30 phút. Sau khi hình thành dung dịch huyền phù màu vàng, điều chỉnh giá trị pH đến 9 bằng dung dịch NH<sub>3</sub>.

Hỗn hợp bột nhão được khuấy liên tục trong 2 giờ, đem thủy nhiệt trong bình Teflon ở nhiệt độ 140 °C và duy trì trong 20 giờ. Bột nhão thu được đem ly tâm, rửa bằng nước cất hai lần và ethanol, sấy khô trong không khí ở 60 °C trong 12 giờ. Mẫu bột sau khi sấy đem nung ở 600 °C trong 2 giờ với tốc độ gia nhiệt 5 °C/phút, thu được vật liệu BiVO<sub>4</sub>[14].

### 2.1.3. Tổng hợp vật liệu compozit BiVO4/Ta2O5/g-C3N4

Tiền chất bột  $Ta_2O_5$  (99,9% - Sigma Aldrich) và BiVO<sub>4</sub> được cho vào bình Teflon, quá trình thủy nhiệt được duy trì ở 140 °C trong 2 giờ, sau đó để nguội tự nhiên đến nhiệt độ phòng. Hỗn hợp sau khi thủy nhiệt đem li tâm, rửa sạch bằng nước cất nhiều lần và sấy khô ở nhiệt độ 80 °C trong 12 giờ. Sản phẩm thu được đem nghiền mịn với ure theo tỉ lệ khối lượng (NH<sub>2</sub>)<sub>2</sub>CO : BiVO<sub>4</sub> : Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> là x : 1 : 1, sau đó cho vào chén sứ, bọc kín bằng nhiều lớp giấy tráng nhôm, nung ở 530 °C trong 2 giờ với tốc độ gia nhiệt 5 °C/phút. Sau đó, lò được làm nguội tự nhiên đến nhiệt độ phòng, thu được vật liệu BiVO<sub>4</sub>/Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>/g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>.

### 2.2. Đặc trưng vật liệu

Vật liệu được khảo sát hình ảnh bề mặt bằng phương pháp hiển vi điện tử truyền qua (JEOL TEM-2010F). Thành phần pha được xác định bằng phương pháp nhiễu xạ tia X (D8-Advance 5005). Khả năng hấp thụ ánh sáng của xúc tác được đặc trưng bằng phương pháp phổ phản xạ khuếch tán tử ngoại – khả kiến (3101PC Shimadzu). Đặc trưng khả năng tái tổ hợp của các cặp điện tử và lỗ trống quang sinh trong vật liệu bằng phương pháp huỳnh quang (Horiba fluoromax-4).

#### 2.3. Thí nghiệm phân hủy RhB

Cho 0,1 g xúc tác và 200 mL dung dịch RhB 10 mg/L vào cốc 250 mL, dùng giấy bạc bọc kín cốc sau đó khuấy đều cốc trên máy khuấy từ trong 2 giờ để cho quá trình hấp phụ - giải hấp phụ cân bằng. Gỡ giấy bạc và tiếp tục khuấy đều cốc hở dưới điều kiện ánh sáng đền led (220V - 30W). Sau thời gian nhất định, dung dịch RhB được lấy đem ly tâm (tốc độ 6000 vòng/phút trong 15 phút), nồng độ RhB còn lại được xác định bằng phương pháp trắc quang ở bước sóng 553 nm trên máy UV – Vis (CE-2011).

### 3. KÉT QUẢ VÀ THẢO LUẬN 3.1. Đặc trưng vật liệu

Để xác định các hợp phần có trong vật liệu tổng hợp, các vật liệu  $g-C_3N_4$ ,  $BiVO_4$ ,  $Ta_2O_5$  và  $BiVO_4/Ta_2O_5/g-C_3N_4$  được đặc trưng bằng phương pháp nhiễu xạ tia X, kết quả được trình bày ở Hình 1.



Hình 1. Giản đồ nhiễu xạ tia X của vật liệu g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>, BiVO<sub>4</sub>, Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> và BTC-4

Từ giản đồ nhiễu xạ tia X ở Hình 1 của các vật liệu g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>, BiVO<sub>4</sub> và g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/BiVO<sub>4</sub> cho thấy, trên giản đồ nhiễu xạ tia X của vật liệu g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub> xuất hiện đỉnh nhiễu xạ có cường độ mạnh ở vị trí 20 bằng 27,401° là do sự sắp xếp của các hệ thống liên hợp thơm, tượng ứng với mặt tinh thể (002), đỉnh nhiễu xạ có cường độ rất thấp ở 2θ bằng 13,012° là do sự sắp xếp tuần hoàn các đơn vị tri-s-triazin trong mặt phẳng tinh thể (001) (Theo thẻ chuẩn JCPDS: 87-1526) [15, 16]. Giản đồ nhiễu xa tia X của vật liệu BiVO4 có hai đỉnh nhiễu xạ rõ nét, đỉnh nhiễu xạ có cường độ mạnh nhất ở vị trí 28,82° tương ứng với mặt tinh thể (112), đỉnh có cường độ thấp hơn ở vị trí 30,60° tương ứng với mặt phẳng (004). Bên cạnh đó còn có sự xuất hiện của các đỉnh có cường độ thấp ở các vị trí 34,51°; 48,43°; 54,20° và 60,21° tương ứng với mặt tinh thể (200), (024), (116), (026) (theo thẻ chuẩn JCPDS: 75-2480) ứng với cấu trúc scheelite monoclinic (s-m) của BiVO<sub>4</sub> [17]. Đối với Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>, trên giản đồ XRD của vật liệu xuất hiên ba đỉnh có cường đô manh tai vi trí 20 lần lượt là 22,9°, 28,4° và 36,7°. Trong khi đó, giản đồ XRD của vật liệu BiVO<sub>4</sub>/Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>/g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub> xuất hiên các đỉnh nhiễu xa đặc trưng cho cả ba hợp phần vật liệu g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>, BiVO<sub>4</sub> và Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>. Điều này chứng tỏ vật liệu lai ghép g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/BiVO<sub>4</sub> đã được điều chế thành công.

Để đánh giá khả năng hấp thụ bức xạ của các hợp phần BiVO<sub>4</sub>, g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>, Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> và các vật liệu BTC-x, các mẫu vật liệu được đặc trưng bằng phương pháp phổ phản xạ khuếch tán tử ngoạikhả kiến, kết quả được trình bày ở Hình 2.



Hình 2. Phổ hấp thụ UV-Vis mẫu rắn của vật liệu g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>, BiVO<sub>4</sub>, Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> và BTC-x

Kết quả ở Hình 2 cho thấy, phổ hấp thụ UV-Vis của vật liệu Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> chỉ hấp thụ ánh sáng trong vùng tử ngoại, trong khi đó BiVO4 và g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub> có đỉnh và bờ hấp thụ đều nằm ở vùng ánh sáng khả kiến. Đối với các mẫu vật liệu compozit BTC-x đều có sự dịch chuyển về vùng ánh sáng khả kiến manh hơn so với các hợp phần BiVO<sub>4</sub>, g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub> và Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> riêng lẻ. Điều này, chứng tỏ vật liệu thu được có khả năng hoạt động mạnh trong vùng ánh sáng khả kiến. Trong đó, vật liêu BTC-4 ứng với tỉ lê khối lượng (NH<sub>2</sub>)<sub>2</sub>CO : BiVO<sub>4</sub> : Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> là 4:1 :1 có khả năng hấp thụ ánh sáng khả kiến mạnh nhất trong vùng khảo sát. Kết quả này cho phép dự đoán, các vật liệu compozit BTC-x có hoat tính quang xúc tác cao trong vùng ánh sáng khả kiến, hứa hẹn tiềm năng ứng dụng làm vật liệu xúc tác quang phân hủy các chất hữu cơ ô nhiễm trong môi trường nước dưới nguồn bức xa mặt trời tự nhiên.

Giá trị năng lượng vùng cấm của các mẫu vật liệu  $BiVO_4$ ,  $g-C_3N_4$ ,  $Ta_2O_5$  và BTC-x được trình bày ở Bảng 1.

Bảng 1. Giá trị năng lượng vùng cấm của các vật liệu BiVO4, g-C<sub>3</sub>N4, Ta<sub>2</sub>O5 và BTC-x

Vật liệu	iệu Năng lượng vùng cấm (eV)				
g-C <sub>3</sub> N <sub>4</sub>	2,71				
BiVO <sub>4</sub>	2,18				
Ta <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	3,92				
BTC-2	2,51				
BTC-3	2,46				
BTC-4	2,40				
BTC-5	2,44				

Kết quả ở Bảng 1 cho thấy, các vật liệu compozit  $BiVO_4/Ta_2O_5/g-C_3N_4$  tổng hợp được có giá trị năng lượng vùng cấm khoảng từ 2,40 – 2,50 eV. Điều này cho thấy tiềm năng ứng dụng các vật liệu compozit BTC-x để phân hủy các chất hữu cơ ô nhiễm ngay trong vùng ánh sáng nhìn thấy.

Ånh vi cấu trúc và sự phân bố các nguyên tố của vật liệu compozit BTC-4 tổng hợp được trình bày ở Hình 3. Các kết quả phân tích TEM thu được cho thấy, vật liệu Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>, g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub> và BiVO<sub>4</sub> đã được lai ghép thành công tạo thành một hệ vật liệu dị thể ba thành phần. Trong hệ vật liệu lai ghép này, các hạt Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> và BiVO<sub>4</sub> phân bố trên pha nền g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>. Các hạt CBTC-4 tổng hợp có kích thước trung bình khoảng 100 nm.



Hình 3. Ảnh TEM và sự phân bố các nguyên tố trong vật liệu compozit CBTC-4

#### 3.2. Hoạt tính quang xúc tác

Để đánh giá hoạt tính quang xúc tác của các vật liệu compozit tổng hợp được theo phương pháp thủy nhiệt kết hợp nhiệt pha rắn, chúng tôi thực hiện thí nghiệm phân hủy RhB trên các vật liệu compozit tổng hợp. Sau khi khuấy hỗn hợp vật liệu xúc tác và dung dịch RhB trong bóng tối 2 giờ để quá trình hấp phụ-giải hấp phụ đạt trạng thái cân bằng, quá trình khảo sát hoạt tính quang xúc tác được tiến hành. Kết quả được trình bày ở Bảng 2.

Bång 2.	Hiệu su	ất xử lý	, RhB	trên d	các vạ	ật liệu
$g-C_3N_{4,}$	BiVO <sub>4</sub> ,	$Ta_2O_5$	và BT	C-x s	au 90	) phút

0	-
Vật liệu	Hiệu suất (%)
g-C <sub>3</sub> N <sub>4</sub>	44,92
BiVO <sub>4</sub>	39,24
Ta <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	13,89
BTC-2	46,25
BTC-3	60,67
BTC-4	90,27
BTC-5	73,57

Kết quả ở Bảng 2 chỉ ra rằng, khi so sánh bốn mẫu vật liệu compozit BTC-x tổng hợp ở bốn tỉ lê khối lượng (NH<sub>2</sub>)<sub>2</sub>CO : BiVO<sub>4</sub> : Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> khác nhau gồm BTC-2, BTC-3, BTC-4, BTC-5, thì vật liệu BTC-4 có hoạt tính xúc tác phân hủy RhB cao nhất trong vùng khảo sát. Cụ thể, sau 90 phút chiếu sáng, vật liệu BTC-4 đạt hiệu suất 90,27%. Trong khi đó, các vật liệu BTC-2, BTC-3 và BTC-5 lần lượt đạt 46,25%, 60,67% và 73,53%. Kết quả thực nghiệm cũng chỉ ra rằng, các vật liệu compozit đều thể hoạt tính xúc tác cao hơn so với các vật liệu g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub> (Hiệu suất 44,92%), BiVO<sub>4</sub> (Hiệu suất 39,24%) và Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> (Hiệu suất 13,89%) riêng lẻ. Điều này hoàn toàn phù hợp với nhược điểm về tốc độ tái tổ hợp nhanh của cặp electron – lỗ trống quang sinh của các vật liệu g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>, BiVO<sub>4</sub> riêng lẻ và nhược điểm không hoạt động được của Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> trong vùng ánh sáng nhìn thấy.

Do cả vật liệu g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub> và BiVO<sub>4</sub> đều có năng lượng vùng cấm hẹp nên bị kích hoạt bởi ánh sáng trong vùng nhìn thấy. Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> không bị kích hoat bởi ánh sáng nhìn thấy do có giá tri năng lượng vùng cấm lớn. Khi chiếu ánh sáng trong vùng nhìn thấy thì có sự kích hoạt làm phân tách cặp điện tử - lỗ trống trong vật liệu g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub> và BiVO<sub>4</sub>. Các điện tử từ vùng hóa trị g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub> chuyển đến vùng dẫn và tham gia phản ứng với  $O_2$  hòa tan trong nước sinh ra gốc  $O_2^{\bullet}$  ngay tại vùng dẫn của g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>, một phần điện tử từ vùng dẫn của g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub> sẽ di chuyển đến vùng dẫn của Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> và tại đây xảy ra phản ứng với  $O_2$  hòa tan trong nước sinh ra gốc  $O_2^{\bullet}$  làm hạn chế sự tái tổ hợp của các cặp điện tử và lỗ trống quang sinh, đồng thời làm tăng sự hình thành gốc O2<sup>•-</sup>. Trong khi đó, khi bị kích hoạt bởi ánh sáng nhìn thấy, điện tử từ vùng hóa trị của BiVO<sub>4</sub> bị tách ra, di chuyển đến vùng dẫn và sau đó chuyển xuống vùng hóa trị g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>. Do đó, quá trình tái tổ hợp của electron quang sinh và lỗ trống quang sinh được hạn chế tối đa do quá trình di chuyển của các electron quang sinh giữa các vật liệu lai ghép g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>, BiVO<sub>4</sub> và Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>. Lỗ trống ở vùng hóa trị của BiVO<sub>4</sub> phản ứng với H<sub>2</sub>O tạo ra gốc HO<sup>•</sup> [11]. Cơ chế phản ứng có thể mô tả một cách đơn giản nhất (Hinh 6) như sau:  $g-C_3N_4 + hv \rightarrow e_{CB}^-(g-C_3N_4) + h_{VB}^+(g-C_3N_4)$   $BiVO_4 + hv \rightarrow e_{CB}^-(BiVO_4) + h_{VB}^+(BiVO_4)$   $e_{CB}^-(g-C_3N_4, Ta_2O_5) + O_2 \rightarrow O_2^{\bullet}$   $O_2^{\bullet} + 2H^+ e^- \rightarrow H_2O_2$   $H_2O_2 + e^- \rightarrow OH^{\bullet} + OH^$   $h_{VB}^+(BiVO_4) + H_2O \rightarrow HO^{\bullet} + H^+$   $RhB + OH^{\bullet} \rightarrow CO_2 + H_2O$ 4. KÉT LUÂN

Đã tổng hợp thành công vật liệu compozit BiVO<sub>4</sub>/Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>/g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub> bằng phương pháp thủy nhiệt kết hợp với nhiệt pha rắn. Vật liệu compozit tổng hợp được có khả năng hấp thụ ánh sáng khả kiến mạnh hơn so với từng hợp phần BiVO<sub>4</sub> Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> và g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub> riêng lẻ. Kết quả khảo sát sự phân hủy RhB trên các vật liệu tổng hợp cho thấy, hiệu suất phân hủy RhB trênvật liệu compozit BTC-4 đạt 90,27% sau 90 phút xử lý, giá trị này cao hơn so với hiệu quả phân hủy RhB trên vật liệu BiVO<sub>4</sub>, g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub> và Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> trong vùng ánh sáng khả kiến do hạn chế sự tái tổ hợp của cặp điện tử và lỗ trống quang sinh trong vật liệu compozit.

Lời cảm ơn: Nghiên cứu này được tài trợ bởi Trường Đại học Công nghiệp Thực phẩm TPHCM.

### TÀI LIỆU THAM KHẢO

1. M. F. RidhwanSamsudin, S.Sufian, B. H. Hameed "Epigrammatic progress and perspective on the photocatalytic properties of BiVO<sub>4</sub>-based photocatalyst in photocatalytic water treatment technology": A review, *J. Mol. Liq.*, 268, 438-459 (2018).

**2.** X. Liang, J. Lin, X. Cao, W. Sun, J. Yang, B. Ma and Y. Ding, "Enhanced photocatalytic activity of BiVO<sub>4</sub> coupled with iron-based complexes for water oxidation under visible light irradiation", *Chem. Commun.*, 55, 2529-2532, (2019).

3. F.Q. Zhou, J.C. Fan, Q.J. Xu, Y.L. Min, "BiVO<sub>4</sub> nanowires decorated with CdS nanoparticles as Z-scheme photocatalyst with enhanced H<sub>2</sub> generation", *Applied Catalysis B: Environmental*, 201, 77-83 (2017).

4. M.F.R. Samsudin, S. Sufian, B.H. Hameed, "Epigrammatic progress and perspective on the photocatalytic properties of BiVO<sub>4</sub>-based photocatalyst in photocatalytic water treatment technology", *A review, Journal of Molecular Liquids*, 268, 438-459 (2018).

5. M. Wu, Y. Gong, T. Nie, J. Zhang, R. Wang, H. Wang and B. He, "Template-free synthesis of nanocage-like  $g-C_3N_4$  with high surface area and nitrogen defects for enhanced photocatalytic H<sub>2</sub> activity", *J. Mater. Chem. A*, 7, 5324-5332, (2019).

6. K. D. Williams, A. Kivviro, О. "Photocatalytic Applications of Heterostructure Graphitic Carbon Nitride: Pollutant Degradation, Hydrogen Gas Production (water splitting), and  $CO_2$ Reduction", Nanoscale Research Letters, 14, 234-251, (2019).

L. Kong, X. Zhang, C. Wang, J. Xu, X. Du,
L. Li, "Ti<sup>3+</sup> defect mediated g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/TiO<sub>2</sub> Z-scheme system for enhanced photocatalytic redox performance", *Applied Surface Science*, 448, 288-296 (2018).

8. J. Xu, H. T. Wu, X. Wang, B. Xue, Y. X. Li and Y. Cao, "A new and environmentally benign precursor for the synthesis of mesoporous g  $C_3N_4$  with tunable surface area", *Phys. Chem. Chem. Phys.*, *15*, 4510–4517, (2013).

9. R. Yin, H. Sun, J. An, Q. Luo, D. Wang, H. Sun, Y. Li, X. Li, "SnO<sub>2</sub>/g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub> photocatalyst with enhanced visible-light photocatalytic activity" *J Mater Sci.*, 49, 6067–6073, (2014).

10. F. Chen, Q. Yang, Y. Wang, J. Zhao, D. Wang, X. Li, Z. Guo, H. Wang, Y. Deng, C. Niu, G. Zeng, "Novel ternary heterojunction photcocatalyst of Ag nanoparticles and g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub> nanosheets co modified BiVO<sub>4</sub> for wider spectrum visible-light photocatalytic degradation of refractory pollutant", *Applied Catalysis B: Environmental*, 205, 133 - 147 (2017).

11. Z. Zhao, W. Zhang, X. Shen, T. Muhmood, M. Xia, W. Lei, F. Wang, M. AsimKhan, "Preparation of g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/TiO<sub>2</sub>/BiVO<sub>4</sub> composite and its application in photocatalytic degradation of pollutant from TATB production under visible light irradiation", Journal of Photochemistry and Photobiology A: Chemistry, 358, 246-255, (2018).

12. N. Bacho, "Engineering Nanostructure of g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/CNT/BiVO<sub>4</sub> Z-Scheme Heterostructure for Photocatalytic Degradation of Phenol", *Research Communication in Engineering Science & Technology*, 1, 6-7, (2018).

13. X. Lin, D. Xu, Y. Xi, R. Zhao, L. Zhao, M. Song, H. Zhai, G. Che, L. Chang, "Construction of leaf-like g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/Ag/BiVO<sub>4</sub> nanoheterostructures with enhanced photocatalysis performance under visible-light irradiation", *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 513, 117-124 (2017).

14. H. M. Fan, D. J. Wang, L. L. Wang, H. Y. Li, P. Wang, T. F. Jiang, T. F. Xie. "Hydrothermal synthesis and photoelectric properties of BiVO<sub>4</sub> with different morphologies: an efficient visible-light photocatalyst", *Appl. Surf. Sci.*, 257, 7758–7762, (2011).

15. X. C. Wang, K. Maeda, A. Thomas A, K.

Takanabe, G. Xin, J. M Carlsson, K. Domen, M. Antonietti, "A metal-free polymeric photocatalyst for hydrogen production from water under visible light", *Nat Mater*, 8, 76–80 (2009).

16. F. Jiang, T. T Yan, H. Chen, A. W Sun, C. M Xu, X. Wang, "A g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>–CdS composite catalyst with high visible-light-driven catalytic activity and photostability for methylene blue degradation", *Appl Surf Sci*, 295, 164–172 (2014).

17. R. Sharma, Uma, S. Singh, A. Verma, M. Khanuja. Visible light induced bactericidal and photocatalytic activity of hydrothermally synthesized BiVO<sub>4</sub> nano-octahedrals, *Journal of Photochemistry & Photobiology B: Biology*, 162, 266-272, (2016).

# NGHIÊN CỨU CHIẾT TÁCH VÀ XÁC ĐỊNH THÀNH PHÀN....... Tiếp theo Tr 39

3. http://tinhdautram.vn/cac-giong-tramsanxuat-lay-tinh-dau-o-vietnam

4. http://tinhdautunhien.net/store/tinh-dau-tram
5. Võ Văn Chi, Vũ Văn Chuyên, Phan Nguyên

Hồng, Trần Hợp, "*Cây cỏ thường thấy ở Việt* Nam", tập 1, NXB KHKT Hà Nội, (1973).

6. Nguyễn Văn Đàn, Ngô Ngọc Khuyến, "Hợp chất thiên nhiên dùng làm thuốc", NXB y học Hà Nội, (1999).

 7. Trần Tứ Hiếu, "Các phương pháp phân tích công cụ - Phần 3" NXB KHKT Hà Nội, (2007).

8. Đỗ Tất Lợi, "*Tinh dầu Việt Nam*", NXB Y học TP HCM, (1985).

 Đỗ Tất Lợi, "Những cây thuốc và vị thuốc", NXB KHKT Hà Nội, (1992). 10. Lê Ngọc Thạch, "*Tinh dầu*", NXB ĐHQG Hà Nội, (2003).

11.https://www.thaythuoccuaban.com/vithuoc/ caytram

12. Dược điển Việt Nam, NXB Y học.

 Lê Thị Anh Đào (chủ biên) – Đặng Văn Liếu – "*Thực hành hóa hữu co*", NXB ĐHSP, (2005).

14. http://thaoduocthientam.com/thanh-

phanhoa-hoc-cua-dau-tram-hue

15. Những cây thuốc và vị thuốc Việt Nam – NXB Y học, (2006).

16. Tiêu chuẩn chứng nhận chất lượng Bộ Y tế: 7551/2012/YT-CNTC.