

Ảnh hưởng của thời gian tổng hợp lên khả năng quang xúc tác của graphite carbon nitride pha tạp kim loại Mg

Đoàn Thị Thúy Phượng^{1*}, Lê Thị Mai Oanh², Đỗ Khắc Thịnh²

¹Khoa Khoa học Cơ bản, Trường Đại học Giao thông Vận Tải, 3 Cầu Giấy, phường Láng, Hà Nội, Việt Nam

²Khoa Vật Lý, Trường Đại học Sư phạm Hà Nội, 136 Xuân Thủy, phường Cầu Giấy, Hà Nội, Việt Nam

Ngày nhận bài 10/9/2025; ngày chuyển phản biện 17/9/2025; ngày nhận phản biện 29/9/2025; ngày chấp nhận đăng 8/10/2025

Tóm tắt:

Trong nghiên cứu này, vật liệu graphite carbon nitride (g-C₃N₄) pha tạp kim loại Mg được tổng hợp thành công bằng phương pháp hóa học đơn giản, với thời gian phản ứng từ 3 đến 18 giờ, kết hợp xử lý nhiệt ở 90°C. Cấu trúc tinh thể và trạng thái hóa học của vật liệu được đặc trưng bằng phổ nhiễu xạ tia X (XRD), phổ Raman và phổ quang điện tử tia X (XPS); trong khi đó, các tính chất quang học được đánh giá thông qua phổ hấp thụ UV-Vis và huỳnh quang (PL). Hiệu suất quang xúc tác được khảo sát thông qua quá trình phân hủy dung dịch hữu cơ Rhodamine B (RhB) dưới sự chiếu sáng của đèn Xenon và ánh sáng mặt trời. Kết quả cho thấy, các mẫu sau khi pha tạp Mg đều thể hiện hoạt tính quang xúc tác cao hơn so với g-C₃N₄ tinh khiết. Sự cải thiện này được cho là do sự hiện diện của ion Mg²⁺ đóng vai trò “tâm bẫy” electron, giúp hạn chế quá trình tái hợp cặp electron - lỗ trống. Đồng thời, việc chèn Mg vào cấu trúc heptazine làm tăng diện tích bề mặt riêng, từ đó nâng cao hiệu quả quang xúc tác của vật liệu.

Từ khóa: graphite carbon nitride pha tạp Mg, quang xúc tác, Rhodamine B.

Chỉ số phân loại: 1.3

Influence of synthesis time on the photocatalytic activity of Mg-doped g-C₃N₄

Thi Thuy Phuong Doan^{1*}, Thi Mai Oanh Le², Do Khắc Thịnh²

¹Faculty of Basic Sciences, University of Transport and Communications, 3 Cau Giay Street, Lang Ward, Hanoi, Vietnam

²Faculty of Physics, Hanoi National University of Education, 136 Xuan Thuy Street, Cau Giay Ward, Hanoi, Vietnam

Received 10 September 2025; revised 29 September 2025; accepted 8 October 2025

Abstract:

*Tác giả liên hệ: Email: phuonthuydoan@utc.edu.vn

In this study, magnesium-doped graphite carbon nitride (Mg-doped g-C₃N₄) materials were successfully synthesised via a simple chemical method, with synthesis durations ranging from 3 to 18 hours, followed by thermal treatment at 90°C. The crystal structure and chemical states of the materials were characterized by X-ray diffraction (XRD), Raman spectroscopy, and X-ray photoelectron spectroscopy (XPS), while the optical properties were evaluated through UV-Vis absorption and photoluminescence (PL) spectra. The photocatalytic performance was investigated through the degradation of an organic Rhodamine B (RhB) solution under illumination with a Xenon lamp and natural sunlight. The results revealed that all Mg-doped samples exhibited superior photocatalytic activity compared with pristine g-C₃N₄. This enhancement is attributed to the presence of Mg²⁺ cations acting as electron “trapping centers,” which suppress the recombination of photogenerated electron-hole pairs. Moreover, the incorporation of Mg into the heptazine framework increases the specific surface area, thereby promoting the overall photocatalytic efficiency of the materials.

Keywords: magnesium-doped graphite carbon nitride, photocatalyst, Rhodamine B.

Classification number: 1.3

1. Mở đầu

Hiện nay, vấn đề ô nhiễm môi trường nói chung, đặc biệt là ô nhiễm nguồn nước nói riêng đang là một trong những mối đe dọa rất lớn đối với cuộc sống của nhân loại. Ở Việt Nam, lượng nước thải khổng lồ chưa qua xử lý của các nhà máy, các làng nghề xả ra môi trường, phần lớn là những chất thải hữu cơ bền, khó bị phân hủy khi không được xử lý triệt để [1-4]. Trong nhiều năm qua, hàng loạt những nỗ lực nghiên cứu đã được triển khai nhằm tìm ra một phương pháp xử lý hiệu quả [5, 6]. Trong số những giải pháp có tính ưu việt cao, phải kể đến việc sử dụng công nghệ quang xúc tác bởi nó sở hữu nhiều ưu điểm như hiệu quả cao, giá thành rẻ và thân thiện với môi trường [7]. Vật liệu g-C₃N₄ là một trong những vật liệu quang xúc tác tiềm năng đang được quan tâm nghiên cứu bởi đây là một chất bán dẫn hữu cơ phi kim loại với độ rộng vùng cấm nhỏ (cỡ 2,7 eV), độ cứng cao, ít độc hại, ổn định về mặt hóa học trong môi trường, diện tích bề mặt riêng lớn, tương thích sinh học và có độ hòa tan vượt trội so với nhiều loại vật liệu khác [8]. Tuy nhiên, theo kết quả nghiên cứu của nhóm Z. Mo và cs (2015) [9], vật liệu g-C₃N₄ tinh khiết có nhược điểm lớn khi triển khai trong lĩnh vực quang xúc tác đó là tốc độ tái tổ hợp điện tử - lỗ trống lớn và hiệu suất lượng tử thấp, chính nguyên nhân này đã làm giảm hiệu quả quang xúc tác của vật liệu. Để tăng hiệu suất quang

xúc tác của vật liệu g-C₃N₄, đã có rất nhiều công bố nghiên cứu như pha tạp nguyên tố đất hiếm như Nd, Y [10, 11], kim loại chuyển tiếp như Fe, Co [12, 13], hay kim loại nhóm kiềm thổ như Mg [14] v.v., với mục đích tạo ra các tâm bắt điện tử, từ đó tăng thời gian tồn tại của cặp quang - điện tử, giảm tốc độ tái hợp của cặp quang điện tử - lỗ trống. Trong số đó, các công bố chủ yếu là nghiên cứu về ảnh hưởng của nồng độ tạp chất lên việc cải thiện hiệu suất quang xúc tác của vật liệu g-C₃N₄ [15]. Tuy nhiên, ảnh hưởng của quy trình công nghệ chế tạo đến tính chất quang xúc tác của vật liệu Mg pha tạp g-C₃N₄ chưa được quan tâm nghiên cứu. Bộ số liệu tối ưu về quy trình chế tạo như thời gian xử lý nhiệt, nhiệt độ v.v. sẽ đóng một vai trò quan trọng trong việc làm chủ công nghệ chế tạo vật liệu. Do đó, báo cáo này tập trung vào nghiên cứu tối ưu ảnh hưởng của quy trình chế tạo vật liệu thông qua sự thay đổi thời gian tổng hợp vật liệu Mg pha tạp g-C₃N₄ với nồng độ 10% nhằm tăng hiệu suất quang xúc tác của vật liệu nền g-C₃N₄.

2. Thực nghiệm

2.1. Tổng hợp vật liệu g-C₃N₄

Vật liệu g-C₃N₄ được tổng hợp từ hợp chất hữu cơ urê có công thức hóa học (NH₂)₂CO, nguồn gốc xuất xứ từ Trung Quốc. Sử dụng phương pháp nhiệt phân urê trong không khí: Cho urê vào cốc sứ dung tích 50 ml và bọc kín bằng giấy bạc, sau đó cho vào lò nung nóng trong không khí ở nhiệt độ 550°C trong thời gian 2 giờ. Sản phẩm thu được sau khi làm nguội tự nhiên tới nhiệt độ phòng quan sát được ở dạng bột, xốp và có màu vàng nhạt.

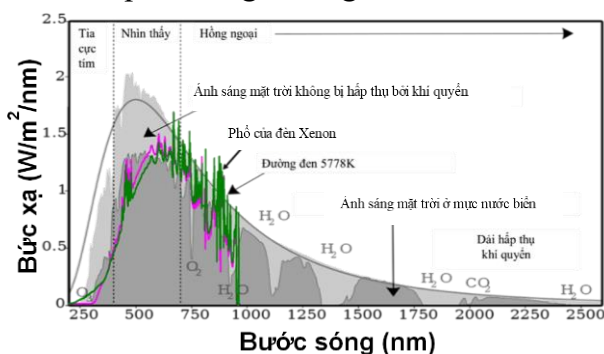
2.2. Tổng hợp vật liệu g-C₃N₄ pha tạp kim loại Mg

Vật liệu Mg pha tạp g-C₃N₄ được chế tạo bằng phương pháp nhiệt phân đơn giản dựa trên nguồn vật liệu g-C₃N₄ được chế tạo ở mục 2.1 và nguồn tạp Mg từ muối magnesium nitrate hexahydrate (Mg(NO₃)₂.6H₂O). Quy trình chế tạo vật liệu được thể hiện theo các bước sau: Trước tiên, cho 0,5 g bột g-C₃N₄ vào 50 ml nước cất và khuấy từ trong nửa giờ, sau đó được xử lý siêu âm trong 1 giờ thu được dung dịch (I). Cân một lượng muối Mg(NO₃)₂.6H₂O tương ứng với tỷ phần 10% cho thêm vào dung dịch (I) khuấy từ dưới điều kiện gia nhiệt 90°C trong thời gian x giờ, sản phẩm thu được dung dịch (II). Trong đó, thời gian khuấy từ x lần lượt là 3 giờ, 6 giờ, 9 giờ, 12 giờ, 15 giờ và 18 giờ. Dem hỗn hợp dung dịch (II) tiến hành lọc rửa 3 lần trong môi trường cồn ethanol. Mẫu thu được sau khi lọc rửa được đem sấy khô trong không khí ở 70°C trong 24 giờ. Sau đó, mẫu được làm nguội tự nhiên ở nhiệt độ phòng thí nghiệm, sản phẩm thu được là mẫu bột g-C₃N₄ pha tạp chất Mg 10% khuấy từ trong x giờ và được kí hiệu là gCN-Mg-xh trong các hình vẽ chú thích mô tả kết quả.

2.3. Đánh giá hoạt tính quang xúc tác

Đưa 0,06 g mẫu gCN-Mg-xh vào vào cốc chứa 30 ml nước cất, khuấy từ trong 30 phút ở nhiệt độ phòng. Sau đó, nhỏ thêm vào 30 ml dung dịch RhB nồng độ 20 ppm để thu được dung dịch hỗn hợp RhB nồng độ 10 ppm. Dung dịch được khuấy từ trong điều kiện không có ánh sáng trong thời gian 30 phút để đảm bảo quá trình hấp phụ RhB của mẫu gCN-Mg-xh được bão hòa. Tiếp theo, dung dịch được chiếu sáng dưới đèn xenon trong thời gian 80 phút hoặc dưới ánh sáng mặt trời trong thời gian 60 phút. Cứ sau khoảng thời gian 15 phút hoặc 20 phút, 2 ml dung dịch lại được lấy ra để tiến hành ly tâm lọc bỏ chất kết tủa. Dung dịch RhB sau khi ly tâm lọc rửa thành phần gCN-Mg-xh được đo độ hấp thụ để xác định nồng độ RhB còn lại trong mẫu sau khi xử lý quang xúc tác, từ đó đánh giá được hiệu suất quang xúc tác của vật liệu đối với các mẫu có thời gian xử lý nhiệt khác nhau. Quy trình đánh giá hiệu suất quang xúc tác được thực hiện tại Phòng thí nghiệm thuộc Trung tâm Khoa học và Công nghệ Nano, Trường Đại học Sư phạm Hà Nội.

Phổ phát xạ của đèn Xenon được chúng tôi khảo sát bằng máy quang phổ Ocean Optic tại Khoa Vật lý, Trường Đại học Sư phạm Hà Nội trong khoảng bước sóng từ 200 đến 1000 nm. Kết quả so sánh phổ của đèn Xenon với quang phổ mặt trời được trình bày trên hình 1 cho thấy hình dáng của phổ đèn Xenon tương tự quang phổ của ánh sáng mặt trời khi đi qua khí quyển. Đỉnh phổ có cường độ lớn và rộng nhất ở bước sóng khoảng 600 nm nằm trong vùng ánh sáng nhìn thấy. Chúng tôi thấy rằng phổ của đèn Xenon có ít thành phần tử ngoại hơn so với phổ của ánh sáng mặt trời, vì vậy, nếu ánh sáng đèn Xenon có thể kích thích phản ứng quang xúc tác thì ánh sáng mặt trời cũng sẽ cho kết quả tương đương.



Hình 1. Quang phổ mặt trời và quang phổ đèn Xenon (đường màu hồng là phổ đèn Xenon sau khi đã cắt UV).

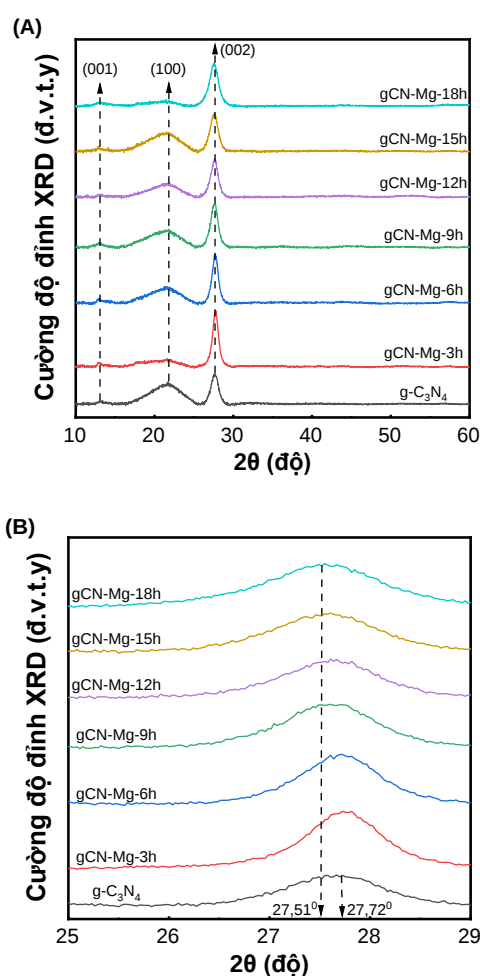
2.4. Các phép phân tích

Kết quả ảnh hưởng của thời gian xử lý nhiệt đến hiệu suất quang xúc tác của vật liệu sẽ được lý giải thông qua ảnh hưởng của cấu trúc, hình thái bề mặt, đặc trưng liên kết cũng như các đặc trưng quang học của vật liệu Mg pha tạp g-C₃N₄. Cấu trúc tinh thể

của vật liệu được xử dụng phương pháp nhiễu xạ tia X trên máy SIEMMENS D5005 Bruker - Germany ở nhiệt độ phòng với bức xạ $\text{Cu } K_{\alpha}$ với bước sóng $\lambda = 1,5406 \text{ \AA}$, tại Viện Khoa học Vật liệu thuộc Viện Hàn lâm Khoa học và Công nghệ Việt Nam; phổ tán xạ Raman được thực hiện trên hệ Labram HR 800 và phổ tán xạ năng lượng tia X (XPS) được thực hiện trên máy ESCALab 250 với nguồn tia X đơn sắc của $\text{Al } K_{\alpha}$ (1486,6 eV), tại Trường Đại học Ewha Womans, Hàn Quốc; phổ huỳnh quang của vật liệu được ghi nhận trong khoảng bước sóng 400-800 nm với nguồn kích thích laser 355 nm và phổ hấp thụ UV-Vis được thực hiện trên máy Jasco - V670. Các phép đo về quang học này được thực hiện tại Khoa Vật lý, Trường Đại học Sư phạm Hà Nội.

3. Kết quả và bàn luận

3.1. Giảm đồ nhiễu xạ tia X



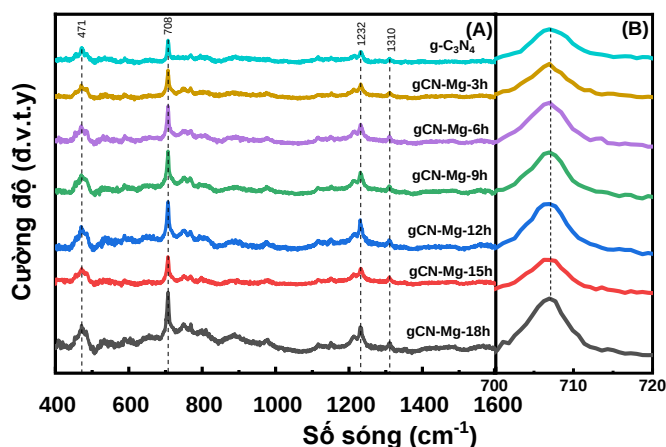
Hình 2. Giảm đồ nhiễu xạ tia X của hệ mẫu g-CN-Mg-xh theo các thời gian khác nhau trong khoảng góc 2θ (A) 10° - 60° và (B) 25° - 29° .

Ảnh hưởng của thời gian khuấy từ đến độ kết tinh của mẫu Mg pha tạp g-C₃N₄ với hàm lượng 10% được thể hiện trên hình 2A. Từ giảm đồ nhiễu xạ tia X có thể nhận thấy các mẫu đều xuất hiện các đỉnh nhiễu xạ tại các vị trí góc là $2\theta=13,11^\circ$, $2\theta=21,69^\circ$ và $2\theta=27,61^\circ$; phù hợp với thẻ chuẩn JCPDS số 01-087-1526 của vật liệu g-C₃N₄. Qua đó

cho thấy các mẫu vật liệu sau khi chế tạo kết tinh tốt với pha cấu trúc lục giác. Đỉnh ở vị trí $13,11^\circ$ phù hợp với kết quả nhiễu xạ trên mặt phẳng (001), có cường độ yếu, đặc trưng cho khoảng cách giữa các mặt phẳng graphite trong tinh thể g- C_3N_4 [12, 16]. Đỉnh ở vị trí $27,61^\circ$ là kết quả nhiễu xạ trên mặt phẳng (002), có cường độ mạnh, đặc trưng cho khoảng cách của các đơn vị heptazine trên một mặt graphite [12, 16]. Từ giản đồ nhiễu xạ tia X của các mẫu gCN-Mg-xh không thấy có sự xuất hiện thêm của các đỉnh nhiễu xạ mới, lạ, chứng tỏ các mẫu chế tạo không xuất hiện các pha thứ cấp hình 2B, biểu diễn sự phóng đại đỉnh nhiễu xạ tia X vị trí góc 2θ từ 25° đến 29° cho thấy, vị trí của đỉnh nhiễu xạ (002) dịch nhẹ về phía góc 2θ bé. Kết quả này thể hiện rõ ràng nhất khi thời gian khuấy từ thay đổi từ 9 giờ đến 18 giờ. Cũng trên hình 2B cho thấy sự dịch đỉnh của mẫu gCN-Mg-9h là khác biệt nhất so với mẫu gCN-Mg-xh ($x = 3, 6h$). Sự dịch nhẹ vị trí đỉnh nhiễu xạ có thể được giải thích là do các ion Mg^{2+} xen vào không gian giữa các đơn vị heptazine, tạo các liên kết yếu với các nguyên tử N, gây ảnh hưởng tới cấu trúc tinh thể g- C_3N_4 .

3.2. Phổ tán xạ Raman

Ảnh hưởng của thời gian khuấy trong quá trình phân tán ion Mg^{2+} vào cấu trúc g- C_3N_4 đến dao động mạng tinh thể của vật liệu nền được thể hiện trong hình 3A, trong đó phổ tán xạ Raman được ghi nhận với số sóng $400-1600\text{ cm}^{-1}$. Phổ tán xạ Raman cho thấy các mẫu gCN-Mg-xh đều xuất hiện các mode dao động có cường độ lớn ứng với các số sóng 471 cm^{-1} , 708 cm^{-1} , 1232 cm^{-1} , 1310 cm^{-1} . Kết quả này phù hợp với sự xuất hiện các mode dao động của vật liệu g- C_3N_4 tinh khiết [17].



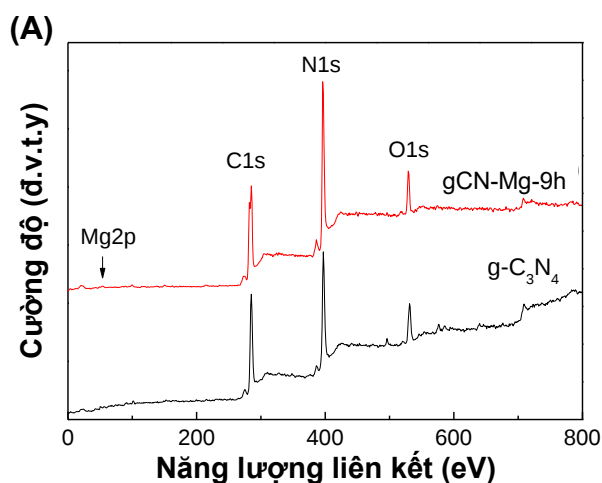
Hình 3. Phổ tán xạ Raman của hệ mẫu g-CN-Mg-xh theo các thời gian khác nhau trong khoảng số sóng (A) $400-1600\text{ cm}^{-1}$ và (B) $700-720\text{ cm}^{-1}$.

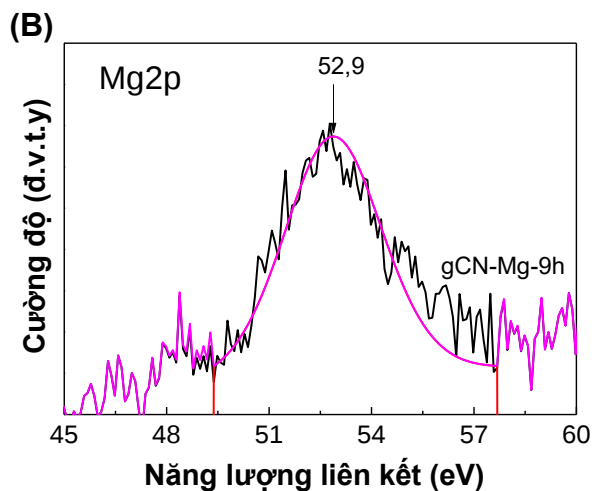
Ngoài ra, khi thay đổi thời gian khuấy từ, các mẫu chế tạo được không thấy xuất hiện đỉnh mới. Điều này chứng tỏ rằng các mẫu chế tạo được là tương đối đồng đều về cấu trúc. Đỉnh có cường độ lớn tại vị trí số sóng 708 cm^{-1} đặc trưng cho dao động của các

đơn vị heptazine [10]. Dao động của các đơn vị heptazine chính là dao động của các liên kết N-(C)₃. Tuy nhiên, khi phân tích kỹ các đỉnh tán xạ ứng với số sóng 708 cm⁻¹, chúng tôi nhận thấy vị trí đỉnh đặc trưng này có sự khác nhau theo thời gian khuấy từ trong quá trình chế tạo vật liệu Mg pha tạp g-C₃N₄ thể hiện trên hình 3B với số sóng được ghi nhận trong khoảng từ 700-720 cm⁻¹. Khi thời gian khuấy từ tăng đến 9, 12, 15, 18 giờ, các mẫu này có sự dịch không đáng kể về phía số sóng nhỏ. Các mẫu có thời gian khuấy từ là 3 giờ và 6 giờ thì không quan sát thấy có sự dịch đỉnh. Từ các kết quả trên chúng tôi cho rằng, thời gian khuấy từ có ảnh hưởng đến sự phân tán các cations tạp chất Mg²⁺ trong mạng tinh thể g-C₃N₄. Do đó, ảnh hưởng của tạp chất cations Mg²⁺ trong mạng tinh thể g-C₃N₄ khiến cho các dao động của đơn vị heptazine khác nhau và phụ thuộc vào thời gian khuấy. Điều đó cho thấy, quá trình cations Mg²⁺ pha tạp vào vật liệu g-C₃N₄ có thể phụ thuộc vào giới hạn về thời gian khuấy từ trong quá trình chế tạo mẫu. Nói cách khác, thời gian khuấy từ cao chưa đảm bảo quá trình pha tạp là tối ưu và chất lượng mẫu kết tinh sau pha tạp sẽ tốt hơn, hay hiệu quả quang xúc tác sẽ cao hơn.

3.3. Phổ quang điện tử tia X

Để tìm hiểu thêm về thành phần hóa học của các mẫu chế tạo được làm cơ sở giải thích hiệu suất quang xúc tác của vật liệu, chúng tôi tiến hành phép đo phổ XPS của mẫu gCN-Mg-9h và mẫu g-C₃N₄ tinh khiết. Từ đồ thị hình 4 ta thấy, các nguyên tử C, N và O là những thành phần chủ yếu trong các mẫu. Đỉnh C1s trên phổ XPS của các mẫu ứng với năng lượng khoảng 285 eV đặc trưng cho liên kết C-C, C=N, N-C=N. Đỉnh N1s ứng với mức năng lượng khoảng 400 eV đặc trưng cho các liên kết đơn và liên kết đôi: C-N=C, N-(C)₃, C-N-H [18]. Từ phép phân tích phổ XPS của mẫu gCN-Mg-9h, đỉnh phổ đặc trưng cho mức năng lượng 2p của Mg có cường độ bé được tìm thấy ở vị trí khoảng 53 eV. Với mức Mg2p ở vị trí này, chúng tôi nhận định rằng, tạp chất Mg tồn tại trong mẫu gCN-Mg-9h dưới dạng cations Mg²⁺.



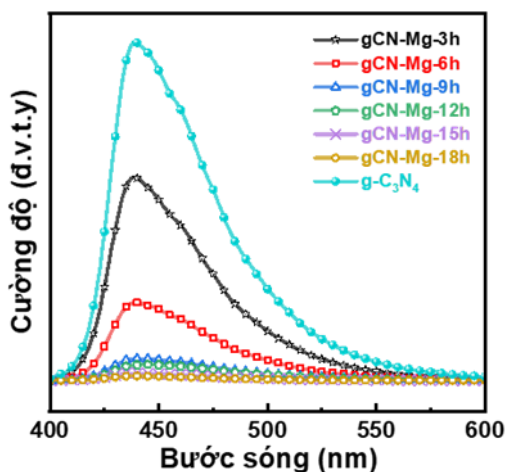


Hình 4. (A) Phổ XPS của mẫu gCN-Mg-9h và mẫu g-C₃N₄ tinh khiết; (B) Phổ XPS đặc trưng của trạng thái Mg2p của mẫu gCN-Mg-9h.

Kết quả này được cho là do sự tương tác của C1s và N1s với Mg2p. Kết quả này phù hợp với các kết quả phân tích về cấu trúc đã trình bày ở trên (XRD, Raman).

3.4. Phổ huỳnh quang

Khi electron hấp thụ photon có năng lượng phù hợp, nó sẽ bật ra để tạo một lỗ trống. Thời gian sống của cặp quang - điện tử - lỗ trống này khá nhỏ, chúng sẽ tái hợp lại với nhau và phát xạ ra photon. Cường độ huỳnh quang của vật liệu với cùng công suất chiếu xạ ánh sáng kích thích sẽ cho thông tin quan trọng về khả năng tái hợp của cặp quang - điện tử - lỗ trống. Hay nói cách khác, bằng cách so sánh cường độ đỉnh phát xạ huỳnh quang có thể dự đoán về hiệu suất quang xúc tác của các mẫu từ việc so sánh tốc độ tái hợp cặp quang - điện tử - lỗ trống [19].

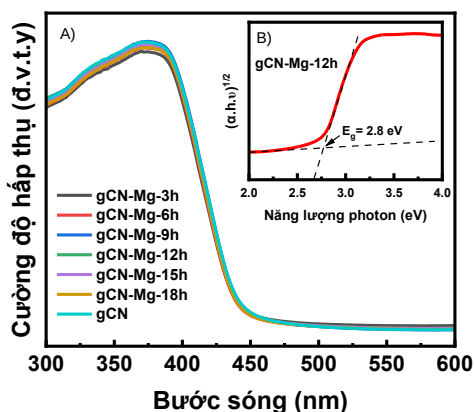


Hình 5. Phổ huỳnh quang của hệ mẫu gCN-Mg-xh theo thời gian.

Ảnh hưởng của thời gian khuấy từ phân tán cations Mg²⁺ trong nền vật liệu g-C₃N₄ được thể hiện qua phổ huỳnh quang của vật liệu trên hình 5. Phổ huỳnh quang của hệ mẫu gCN-Mg-xh là một dải rộng từ 400 nm đến 550 nm. Vị trí đỉnh của các mẫu pha tạp có xu hướng dịch về phía bước sóng ngắn. Cường độ đỉnh của các mẫu cũng có sự

khác nhau và giảm so với mẫu tinh khiết. Các mẫu gCN-Mg-xh ($x=3, 6h$) có sự dịch đỉnh và cường độ đỉnh giảm dần so với mẫu g-C₃N₄ tinh khiết. Tuy nhiên, khi thời gian là $x = 9, 12, 15, 18$ giờ, các mẫu gCN-Mg-xh có sự dịch đỉnh mạnh nhất và cường độ đỉnh phát xạ suy yếu rõ rệt nhất. Điều này cho thấy việc thay đổi thời gian khuấy từ có khả năng làm tăng hiệu suất quang xúc tác của hệ gCN-Mg-xh và chỉ cần khuấy từ trong 9 giờ, cường độ đỉnh huỳnh quang đã giảm rõ rệt nhất. Sự dập tắt huỳnh quang của vật liệu dự đoán mẫu gCN-Mg-9h sẽ cho hiệu suất quang xúc tác tốt nhất khi tốc độ tái hợp cặp quang - điện tử - lỗ trống là thấp nhất.

3.5. Phổ hấp thụ UV-Vis



Hình 6. Phổ hấp thụ UV-Vis của hệ mẫu gCN-Mg-xh.

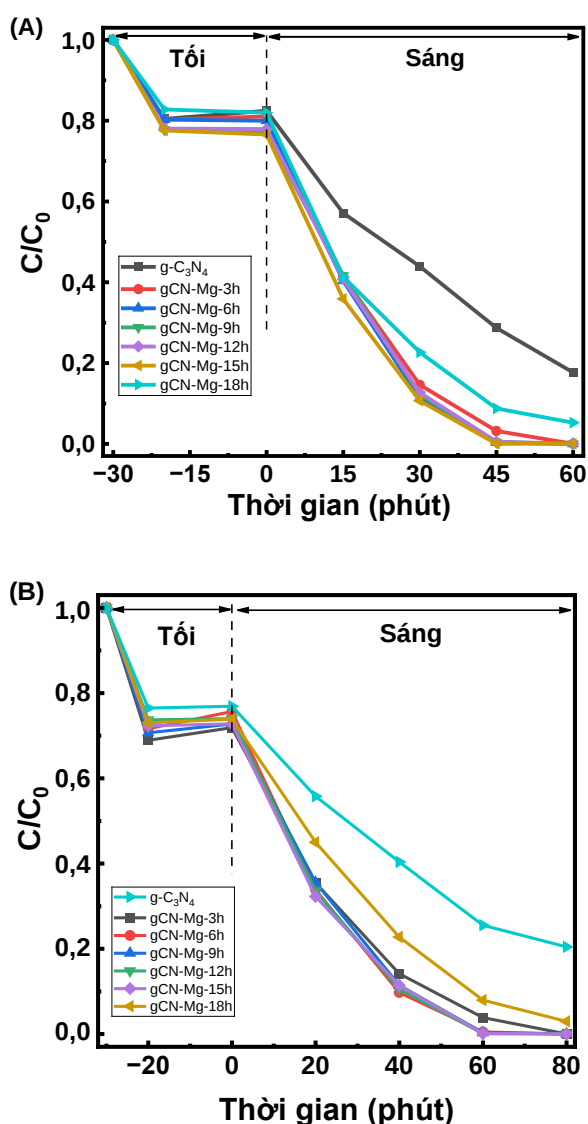
Phổ hấp thụ UV-Vis của các mẫu gCN-Mg-xh được biểu diễn trên hình 6. Kết quả cho thấy, tất cả các mẫu có bờ hấp thụ trong khoảng bước sóng từ 375 nm đến 450 nm. Dựa trên vị trí của bờ hấp thụ, có thể dự đoán rằng bước sóng của ánh sáng kích thích quá trình chuyển mức điện tử nằm trong vùng tử ngoại hoặc cận tử ngoại. Sử dụng phương pháp Wood-Tauc để xác định độ rộng vùng cấm của vật liệu và ước lượng được giá trị đạt khoảng 2,8 eV. Cũng theo hình 6, bờ hấp thụ của các mẫu gCN-Mg-xh và mẫu g-C₃N₄ gần như trùng nhau, điều này cho thấy việc pha tạp chất Mg vào g-C₃N₄ kèm theo sự thay đổi thời gian khuấy từ hầu như không làm thay đổi bề rộng vùng cấm của vật liệu.

3.6. Kết quả xử lý quang xúc tác

Khi tiếp xúc với ánh sáng liên tục từ đèn xenon hoặc ánh sáng Mặt trời, vật liệu g-C₃N₄ thể hiện hoạt tính quang xúc tác đáng kể trong quá trình phân hủy RhB. Dưới tác động của bức xạ có năng lượng photon bằng hoặc lớn hơn vùng cấm (cỡ 2,7 eV), electron trong vùng hóa trị (VB) được kích thích chuyển lên vùng dẫn (CB), để lại lỗ trống quang sinh trong VB. Các electron ở CB có thể tham gia phản ứng khử với O₂ hòa tan, hình thành gốc superoxide ($\cdot O_2^-$), sau đó tiếp tục chuyển hóa thành (HO₂ $\cdot$), H₂O₂ và gốc hydroxyl ($\cdot OH$) có tính oxy hóa mạnh. Đồng thời, các lỗ trống (h^+) tại VB có

khả năng trực tiếp oxy hóa phân tử RhB hoặc phản ứng với $\text{H}_2\text{O}/\text{OH}^-$ để tạo ra thêm ($\cdot\text{OH}$), qua đó thúc đẩy quá trình phân hủy. Sự kết hợp đồng thời của các tác nhân oxy hóa mạnh ($\cdot\text{O}_2^-$, $\cdot\text{OH}$, h^+) dẫn đến phá vỡ cấu trúc vòng thơm và các nhóm chức hữu cơ trong RhB, cuối cùng khoáng hóa thành CO_2 , H_2O và các sản phẩm vô cơ nhỏ hơn [12].

Việc đánh giá hiệu suất quang xúc tác của hệ mẫu gCN-Mg-xh được thực hiện dưới ánh sáng mặt trời (trong khoảng từ 12 giờ đến 13 giờ ngày 30/07/2025), với điều kiện nhiệt độ môi trường là 36°C , cường độ ánh sáng đo được trong khoảng thời gian thực nghiệm có giá trị trung bình khoảng 37665 lx, kết quả được trình bày trên hình 7A. Ta thấy thời gian khuấy từ trong quy trình phân tán cations Mg^{2+} trong g- C_3N_4 có sự ảnh hưởng rõ rệt đến hiệu suất quang xúc tác của vật liệu khi so sánh với vật liệu nền g- C_3N_4 .



Hình 7. Hiệu suất quang xúc tác của hệ mẫu gCN-Mg-xh. (A) dưới ánh sáng Mặt Trời, (B) dưới ánh sáng đèn Xenon.

Kết quả nghiên cứu cho thấy các mẫu gCN-Mg-xh với thời gian $x = 6, 9, 12, 15$

giờ có hiệu suất quang xúc tác tương đương nhau và cao hơn hẳn so với mẫu tinh khiết. Chỉ sau 45 phút chiếu sáng bằng ánh sáng mặt trời tự nhiên, dung dịch RhB đã được các mẫu này khử hoàn toàn. Riêng mẫu gCN-Mg-3h, hiệu suất chỉ đạt tới 95% và mẫu gCN-Mg-18h hiệu suất lại giảm xuống còn khoảng 90% sau 45 phút chiếu sáng. Kết quả về hiệu suất của hai mẫu này phù hợp với kết quả phân tích cấu trúc từ phổ tán xạ Raman (không thấy sự dịch đỉnh của hai mẫu này). Trong khi đó, mẫu tinh khiết g-C₃N₄ chỉ đạt hiệu suất khoảng 70%. Sự bất thường này được cho là có một giới hạn về thời gian khuấy từ khi chế tạo mẫu. Kết quả trên cũng được chúng tôi kiểm tra lại bằng cách xử lý quang xúc tác của hệ mẫu dưới sự chiếu sáng của đèn Xenon. Kết quả kiểm tra được trình bày trên hình 7B. So sánh hai kết quả này có thể thấy sự phù hợp giữa hai cách thí nghiệm được thể hiện tương đối rõ. Kết quả trên hình 7B cho thấy, các mẫu gCN-Mg-xh (x=9, 12, 15h) thể hiện hiệu suất quang xúc tác tốt nhất sau 60 phút chiếu sáng dưới đèn Xenon, dung dịch RhB đã được các mẫu trên khử hoàn toàn. Tuy nhiên, đối với mẫu đối chứng gCN-Mg-3h, hiệu suất đạt khoảng 95% và với mẫu gCN-Mg-18h, hiệu suất lại giảm xuống còn khoảng 90%. Như vậy, khác với kết quả trên hình 7A, thời gian khử hoàn toàn là 45 phút. Điều này cho rằng, hiệu suất quang xúc tác bị ảnh hưởng mạnh bởi cường độ ánh sáng chiếu tới trong quá trình quang xúc tác. Khi xử lý quang xúc tác dưới ánh sáng mặt trời, chúng tôi đo được thông lượng ánh sáng tại thời điểm làm thí nghiệm là 37665 lx, lớn hơn thông lượng sáng đèn Xenon (34450 lx). Do vậy, hiệu suất quang xúc tác của các mẫu trong hệ có sự khác nhau như trên. Từ sự khác nhau về hiệu suất quang xúc tác của các mẫu có thời gian khác nhau và các phép phân tích về cấu trúc, tính chất quang nêu trên, chúng tôi cho rằng khi thời gian khuấy từ là 9 giờ thì hệ mẫu cho hiệu quả quang xúc tác hiệu quả nhất.

4. Kết luận

Nghiên cứu đã chế tạo thành công vật liệu g-C₃N₄ pha tạp kim loại Mg 10% và thay đổi thời gian gia nhiệt bằng phương pháp hóa học đơn giản. Từ giản đồ XRD và sự dịch đỉnh nhiễu xạ của các mẫu gCN-Mg-xh cho thấy nguyên tố Mg có trong thành phần mẫu làm thay đổi không đáng kể đến cấu trúc tinh thể của g-C₃N₄. Từ phổ huỳnh quang, chúng tôi dự đoán khi thời gian khuấy từ 9 giờ trở đi, các mẫu có khả năng cho hiệu suất quang xúc tác cao nhất. Kết quả phổ tán xạ Raman và phổ XPS cho thấy các ion tạp chất khi được pha tạp vào vật liệu sẽ xen kẽ vào các vị trí trống giữa các đơn vị heptazine trong vật liệu g-C₃N₄, tham gia liên kết yếu với các nguyên tử C, N ở gần, dẫn đến sự thay đổi nhỏ các dao động của các liên kết cơ bản trong cấu trúc mạng tinh thể g-C₃N₄, kết quả này phù hợp với giản đồ XRD và phổ huỳnh quang. Hiệu suất quang xúc tác của vật liệu g-C₃N₄ đã được cải thiện đáng kể khi thay đổi thời gian chế tạo từ 3 đến 18 giờ khi pha tạp 10% Mg. Mẫu gCN-Mg-xh (x=9, 12, 15h) có hiệu suất quang xúc tác tốt

nhất phân hủy 100% RhB sau 45 phút chiếu ánh sáng tự nhiên của mặt trời và sau 60 phút chiếu sáng bằng đèn Xenon và hiệu suất cao hơn hẳn so với mẫu g-C₃N₄ tinh khiết. Từ các kết quả nêu trên, chúng tôi cho rằng thời gian chế tạo để mẫu cho hiệu suất cao là $x=9h$. Kết quả nghiên cứu này cho thấy, giải pháp pha tạp nguyên tố kim loại Mg 10% trong vật liệu nền g-C₃N₄ và lựa chọn thời gian chế tạo phù hợp là lựa chọn tối ưu để làm tăng hiệu suất quang xúc tác. Từ đó, hệ vật liệu chế tạo được sẽ có tiềm năng ứng dụng trong thực tiễn.

LỜI CẢM ƠN

Nghiên cứu này được tài trợ bởi Trường Đại học Giao thông Vận tải trong đề tài mã số T2025-CB-004. Nhóm tác giả xin trân trọng cảm ơn.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

[1] V.T. Doan, C.C. Le, H.V.T. Le, et al. (2025), “Comprehensive statistical analysis for characterizing water quality assessment in the Mekong Delta: Trends, variability, and key influencing factors”, *Sustainability*, **17(12)**, DOI: 10.3390/su17125375.

[2] T.M.T. Le, T.N.S. Truong, P.D. Nguyen, et al. (2023), “Evaluation of microplastic removal efficiency of wastewater-treatment plants in Vietnam”, *Environmental Technology & Innovation*, **19**, DOI: 10.1016/j.eti.2022.102994.

[3] D.K. Chi (2022), “Pollution in craft villages in Vietnam and proposed environmental protection solutions for the period 2021-2025”, *Environment Magazine*, **1**, pp.61-66 (in Vietnamese).

[4] L.T. Mai, N.V. Son (2022), “Current situation of water pollution caused by industrial dyes and evaluation of current treatment technologies”, *Environmental Science Journal*, **17(2)**, pp.34-42 (in Vietnamese).

[5] U.Z. Zakariyya, S.K. Kuan, G. Abdurrahman, et al. (2023), “A review on superior advanced oxidation and photocatalytic degradation techniques for perfluorooctanoic acid (PFOA) elimination from wastewater”, *Environmental Research*, **221**, DOI: 10.1016/j.envres.2023.115326.

[6] A. Kaleem, H.R. Ghosh, S.M. Ahuja (2020). “A review on photocatalytic remediation of environmental pollutants and H₂ production through water splitting: A sustainable approach”, *Environmental Technology & Innovation*, **19**, DOI: 10.1016/j.eti.2020.100893.

- [7] N.T.T. Loan, D.T.T. Hoai, N.Q. Hai (2020), “Synthesis, structural characteristics, properties, and photocatalytic activity for methylene blue degradation of La³⁺-doped CoFe₂O₄ spinel nanoparticles”, *Journal of Analytical Chemistry, Physics and Biology*, **25(2)**, pp.7-13.
- [8] X. Li, G. Huang, X. Chen, et al. (2021), “A review on graphitic carbon nitride (g-C₃N₄) based hybrid membranes for water and wastewater treatment”, *Science of the Total Environment*, **792**, DOI: 10.1016/j.scitotenv.2021.148462.
- [9] Z. Mo, X. She, Y. Li, et al. (2015), “Synthesis of g-C₃N₄ at different temperatures for superior visible/UV photocatalytic performance and photoelectrochemical sensing of MB solution”, *RSC Advances*, **55**, pp.101552-101553, DOI: 10.1039/C5RA19586A.
- [10] D.T.T. Phuong, L.T.M. Oanh (2022a), “Study on fabrication and photocatalytic activity of rare-earth-metal-doped g-C₃N₄ with Nd”, *Journal of Analytical Chemistry, Physics and Biology*, **28(4)**, pp.222-225.
- [11] D.T.T. Phuong, N.X. Tuyen (2022b). “Study on fabrication and photocatalytic activity of rare-earth-metal-doped g-C₃N₄ with Y”, *In Proceedings of The 23rd Conference on Teaching and Basic Science Research Solutions, University of Transport and Communications*, pp.277-282 (in Vietnamese).
- [12] N.V. Minh, L.T.M. Oanh, P.D. Chung, et al. (2020), “Fe-doped g-C₃N₄: High-performance photocatalysts in Rhodamine B decomposition”, *Polymers (Basel)*, **12(9)**, pp.1-13, DOI: 10.3390/polym12091963.
- [13] P.W. Chen, K. Li, Y.X. Yu, et al. (2017), “Cobalt-doped graphitic carbon nitride photocatalysts with high activity for hydrogen evolution”, *Applied Surface Science*, **392**, pp.608-615, DOI: 10.1016/j.apsusc.2016.09.086.
- [14] Q. Deng, Q. Li (2017), “Facile preparation of Mg-doped graphitic carbon nitride composites as a solid base catalyst for Knoevenagel condensations”, *Journal of Materials Science*, **53(1)**, pp.506-515, DOI: 10.1007/s10853-017-1534-3.
- [15] X. Dong, S. Zhang, H. Wu, et al. (2019), “Facile one-pot synthesis of Mg-doped g-C₃N₄ for photocatalytic reduction of CO₂”, *RSC Advances*, **9(49)**, pp.28894-28901, DOI: 10.1039/C9RA07573D.

- [16] K.M. Abdullah, I.F. Teixeira, M.J. Li, et al. (2016), “Graphitic carbon nitride catalysed photoacetalization of aldehyde/ketones under ambient conditions”, *Chemical Communications*, **13**, pp.2272-2275, DOI: 10.1039/C5CC08344C.
- [17] C. Fan, J. Miao, G. Xu, et al. (2017), “Graphitic carbon nitride nanosheets obtained by liquid stripping as efficient photocatalysts under visible light”, *RSC Advances*, **7(59)**, pp.37185-37193, DOI: 10.1039/C7RA05732F.
- [18] Y. Wang, H. Wang, F. Chen, et al. (2017), “Facile synthesis of oxygen-doped carbon nitride hollow microsphere for photocatalysis”, *Applied Catalysis B: Environmental*, **206**, pp.417-425, DOI: 10.1016/j.apcatb.2017.01.041.
- [19] T. Sun, H.Y. Jiang, C.C. Ma, et al. (2016), “Ag/g-C₃N₄ photocatalysts: Microwave-assisted synthesis and enhanced visible-light photocatalytic activity”, *Catalysis Communications*, **79**, pp.45-48, DOI: 10.1016/j.catcom.2016.03.004.