

Nghiên cứu tổng hợp và đánh giá hoạt tính xúc tác điện hóa đa chức năng của NiCoP dạng cấu trúc tấm nano cho phản ứng tách nước tổng thể

Nguyễn Anh Đức*

*Khoa Điện tử - Viễn thông, Trường Đại học Điện lực,
235 Hoàng Quốc Việt, phường Nghĩa Đô, Hà Nội, Việt Nam*

Ngày nhận bài 29/4/2026; ngày chuyển phản biện 5/5/2026;
ngày nhận phản biện 2/6/2026; ngày chấp nhận đăng 15/6/2026

Tóm tắt:

Các chất xúc tác điện hóa dựa trên kim loại chuyển tiếp giá rẻ có tiềm năng thay thế Pt, Ir và Ru trong điện phân nước nhờ chi phí thấp và nguồn cung ít hạn chế hơn. Tuy nhiên, việc phát triển chất xúc tác đa chức năng hoạt động hiệu quả cho cả phản ứng thoát khí H₂ (HER) và O₂ (OER) vẫn là thách thức. Nghiên cứu này trình bày phương pháp tổng hợp các tấm nano NiCoP trực tiếp trên nền bột Ni ba chiều (NiCoP/NF) để làm chất xúc tác cho quá trình điện phân nước tổng thể trong môi trường kiềm. Hình thái và cấu trúc của vật liệu được xác nhận bằng SEM và XRD. Trong dung dịch KOH 1,0 M, NiCoP/NF thể hiện hoạt tính tốt đối với cả HER và OER, với quá thế lần lượt là 89 (tại mật độ dòng điện 10 mA cm⁻²) và 350 mV (tại mật độ dòng điện 50 mA cm⁻²) so với RHE. Điện cực cũng cho thấy độ bền hoạt động cao trong cả hai phản ứng. Khi sử dụng NiCoP/NF làm chất xúc tác đa chức năng cho điện phân nước tổng thể, hệ chỉ cần điện áp 1,54 V để đạt mật độ dòng 10 mA cm⁻², đồng thời duy trì độ ổn định cao. Kết quả cho thấy, NiCoP/NF là vật liệu triển vọng cho các hệ điện phân nước kiềm hiệu quả và chi phí thấp.

Từ khóa: điện phân nước, kim loại phosphide, năng lượng H₂, tách nước toàn phần, xúc tác đa chức năng.

Chỉ số phân loại: 2.4, 2.9

Synthesis and evaluation of bifunctional electrocatalytic activity of NiCoP nanosheets for overall water splitting

Anh Duc Nguyen*

*Faculty of Electronics and Telecommunications, Electric Power University,
235 Hoang Quoc Viet Street, Nghia Do Ward, Hanoi, Vietnam*

Received 29 April 2026; revised 2 June 2026; accepted 15 June 2026

Abstract:

Low-cost transition-metal-based electrocatalysts are promising alternatives to Pt-, Ir-, and Ru-based catalysts for water electrolysis owing to their lower cost and greater abundance. However, the development of bifunctional electrocatalysts capable of efficiently catalysing both the hydrogen evolution reaction (HER) and the oxygen

*Email: ducna@epu.edu.vn

evolution reaction (OER) remains a significant challenge. Herein, this study reports an effective strategy for synthesising NiCoP nanosheets directly on three-dimensional Ni foam (NiCoP/NF) as a bifunctional electrocatalyst for overall water splitting in alkaline media. The successful formation of the NiCoP/NF nanosheet structure was confirmed by SEM and XRD analyses. In 1.0 M KOH, the as-prepared NiCoP/NF electrode exhibited high catalytic activity toward both HER and OER, requiring overpotentials of 89 and 350 mV versus RHE, respectively, to achieve current densities of 10 and 50 mA cm⁻². The electrode also demonstrated high operational stability for both reactions. Remarkably, when NiCoP/NF was employed as a bifunctional catalyst for overall water splitting, the electrolyser required a low cell voltage of only 1.54 V to reach 10 mA cm⁻² while maintaining high long-term stability. These results highlight NiCoP/NF as a promising electrocatalyst for efficient and low-cost alkaline water electrolysis.

Keywords: bifunctional catalyst, electrocatalyst, H₂ energy, metal phosphide, overall water splitting, water electrolysis.

Classification numbers: 2.4, 2.9

1. Đặt vấn đề

Nhu cầu cấp thiết ngày càng gia tăng do khủng hoảng năng lượng và các vấn đề môi trường toàn cầu đã thúc đẩy nghiên cứu về các mô hình năng lượng sạch và bền vững. Trong bối cảnh đó, hydro (H₂), với mật độ năng lượng cao và đặc tính đốt cháy không phát thải, được xem là một trong những trụ cột quan trọng của hệ thống năng lượng trong tương lai. Phân tách nước bằng phương pháp điện hóa để sản xuất H₂ và O₂ được xem là một trong những chiến lược hiệu quả và có thể mở rộng khả năng lưu trữ và vận chuyển năng lượng, nhờ ưu thế chuyển đổi năng lượng điện thành năng lượng hóa học và dễ dàng tích hợp với các nguồn năng lượng tái tạo như năng lượng mặt trời và gió [1]. Phương pháp điện phân nước thông thường bao gồm hai bán phản ứng là phản ứng thoát khí O₂ (OER) và phản ứng thoát khí H₂ (HER), thường yêu cầu các chất xúc tác để giảm quá thế cần thiết cho quá trình tạo H₂ và O₂ [2]. Hiện nay, các chất xúc tác có hiệu suất cao nhất cho phản ứng điện phân nước vẫn là các vật liệu trên cơ sở các kim loại quý, điển hình như Ru và Ir cho phản ứng OER, cùng với Pt cho phản ứng HER [3]. Tuy nhiên, việc ứng dụng rộng rãi các vật liệu này bị hạn chế nghiêm trọng do trữ lượng khan hiếm và chi phí cao. Trước những thách thức đó, các nhà khoa học gần đây đã tập trung vào việc tìm kiếm và tổng hợp các chất xúc tác điện hóa có chi phí thấp, dễ áp dụng trong công nghiệp, đồng thời có thể nâng cao hiệu suất điện phân và giảm quá thế. Bên cạnh đó, các chất xúc tác dạng bột/hạt truyền thống thường cần sử dụng chất kết dính để cố định lên điện cực, điều này có thể làm suy giảm hoạt tính xúc tác và độ bền của thiết bị [4]. Vì vậy, việc tìm kiếm các điện cực không sử dụng chất kết dính, vừa hiệu quả về chi phí vừa có hoạt tính cao cho cả HER và OER, đang thu hút nhiều sự quan tâm. Các điện cực dạng này còn giúp đơn giản hóa cấu trúc cũng như thiết kế của hệ điện phân tách nước sinh khí H₂.

Nhiều nghiên cứu đã tập trung vào việc phát triển các chất xúc tác thay thế không sử dụng các kim loại quý, có nguồn dồi dào trong tự nhiên, nhằm ứng dụng cho quá trình điện phân nước, bao gồm các oxit kim loại chuyển tiếp, (oxy)hydroxide, phosphide, chalcogenide, carbide và các vật liệu lai [5-7]. Trong số đó, các phosphide kim loại chuyển tiếp như Ni_2P và CoP đã được nghiên cứu rộng rãi như những ứng cử viên tiềm năng thay thế cho chất xúc tác kim loại quý nhờ đặc tính dẫn điện tốt, hoạt tính xúc tác cao, độ bền tốt và chi phí thấp [8]. Hoạt tính xúc tác của các phosphide kim loại chuyển tiếp được cho là từ sự tương tác tối ưu giữa nguyên tử P và các chất trung gian phản ứng, tạo ra các vị trí hoạt động thuận lợi cho quá trình hấp phụ proton [9]. Tuy nhiên, các phosphide kim loại đơn pha vẫn thể hiện hiệu suất kém hơn so với các chất xúc tác có nguồn gốc từ các kim loại quý [10]. Gần đây, NiCoP đã nổi lên như một chất xúc tác hiệu quả cho phản ứng HER nhờ hoạt tính cao và độ dẫn điện tốt [11]. Sự phối hợp ở cấp độ nguyên tử giữa Ni và Co cho phép điều chỉnh cấu trúc điện tử của các vị trí xúc tác, trong khi việc pha tạp P mang lại tính dẫn điện kiểu kim loại cho vật liệu [12]. Nhiều dạng cấu trúc nano NiCoP khác nhau như tấm nano (nanosheets) [13], thanh/dây nano (nanorods/nanowires) [14], nón nano (nanocones) [15], khối lập phương nano (nanocubes) [16], ống nano (nanotubes) [17] và hạt nano [18] đã được tổng hợp bằng các phương pháp khác nhau và cho thấy hiệu suất xúc tác nâng cao đáng kể. Mặc dù hiệu suất điện xúc tác của NiCoP đã được chứng minh trong nhiều nghiên cứu, việc phát triển các điện cực tự đỡ (self-supported) có khả năng kết hợp đồng thời diện tích bề mặt hoạt động lớn, khả năng vận chuyển điện tích nhanh và độ ổn định cơ học cao vẫn là một hướng tiếp cận đầy hứa hẹn. Trong bối cảnh đó, các nền dẫn điện ba chiều như bột Ni đã thu hút nhiều sự quan tâm nhờ cấu trúc xốp liên thông, độ dẫn điện cao và khả năng đóng vai trò trực tiếp như bộ thu dòng. Đặc biệt, việc trực tiếp phát triển các tấm nano NiCoP trên nền bột Ni không chỉ loại bỏ nhu cầu sử dụng chất kết dính mà còn tạo ra cấu trúc phân cấp 3D với diện tích bề mặt riêng lớn, khả năng vận chuyển điện tích nhanh và khuếch tán chất phản ứng thuận lợi. Cấu trúc tấm nano siêu mỏng giúp tối đa hóa số lượng vị trí hoạt động, trong khi khung xốp ba chiều của bột Ni đóng vai trò như một bộ thu dòng hiệu quả và bền cơ học. Do đó, việc tích hợp các tấm nano NiCoP trực tiếp trên bột Ni được kỳ vọng sẽ mang lại hiệu suất điện xúc tác tốt cho cả quá trình HER và OER, thông qua hiệu ứng cộng hưởng giữa cấu trúc nano hai chiều và nền dẫn điện ba chiều.

Trong báo cáo này, tác giả đã phát triển các tấm nano NiCoP trực tiếp trên nền bột Ni (NiCoP/NF) thông qua phương pháp thủy nhiệt, kèm theo quá trình phosphide hóa. Vật liệu NiCoP sau khi tổng hợp được đánh giá hình thái, cấu trúc, đồng thời đánh giá đặc điểm điện hóa và hoạt tính xúc tác đối với phản ứng tách nước toàn phần nhằm đánh giá hiệu quả hiệp đồng của vật liệu.

2. Hóa chất và phương pháp nghiên cứu

2.1. Hóa chất

Nickel(II) nitrate hexahydrate ($\text{Ni}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, 98%), cobalt(II) nitrate hexahydrate ($\text{Co}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, 98%), urea (NH_2CONH_2 , 99%), sodium hypophosphite monohydrate ($\text{NaH}_2\text{PO}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$, 99%) và ammonium fluoride (NH_4F , 98%) được mua từ Sigma-Aldrich.

Potassium hydroxide (KOH, 85%) được từ Macklin. Nước khử ion (DI) được sử dụng trong suốt các thí nghiệm. Tất cả các hóa chất được sử dụng mà không cần tinh chế thêm.

2.2. Phương pháp tổng hợp vật liệu NiCoP dạng tấm nano

Tấm nano NiCoP trên nền bột Ni (NF) 3D được tổng hợp bằng phương pháp thủy nhiệt và quá trình phosphide hóa. Trước tiên, CoNi-LDH (hydroxide lớp kép, layered double hydroxides) được tổng hợp bằng cách hoà tan 0,058 g $\text{Ni}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ (0,2 mmol), 0,058 g $\text{Co}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ (0,2 mmol), 0,06 g NH_2CONH_2 (1,0 mmol) và 0,0223 g NH_4F (0,6 mmol) trong 50 ml nước khử ion, sau đó khuấy trong 30 phút để thu được dung dịch đồng nhất. Dung dịch này được cho vào bình phản ứng thủy nhiệt bằng thép không gỉ lõi Teflon (100 ml), cùng với miếng NF (2 cm×5 cm) đã được lần lượt làm sạch bằng acid HCl, ethanol và acetone, sau đó gia nhiệt ở 120°C trong 12 giờ. Sau khi phản ứng hoàn tất, mẫu được để nguội tự nhiên về nhiệt độ phòng, sau đó được lấy ra, rửa sạch bằng nước khử ion và sấy khô qua đêm ở 60°C.

Tiếp theo, mẫu NiCo-LDH/NF và 1,5 g $\text{NaH}_2\text{PO}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$ được đặt vào hai thuyền sứ riêng biệt tại hai vị trí khác nhau trong lò nung ống, trong đó $\text{NaH}_2\text{PO}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$ được bố trí ở phía đầu nguồn khí đi vào. Quá trình xử lý nhiệt được thực hiện ở 350°C trong 2 giờ với tốc độ gia nhiệt 5°C/phút dưới dòng khí Ar. Sau đó, vật liệu thu được sau khi để nguội đến nhiệt độ phòng được ký hiệu là NiCoP/NF. Để so sánh, các tấm nano Ni-LDH/NF cũng được tổng hợp theo quy trình tương tự như NiCo-LDH/NF, ngoại trừ việc không sử dụng muối $\text{Co}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$.

2.3. Đặc trưng cấu trúc vật liệu

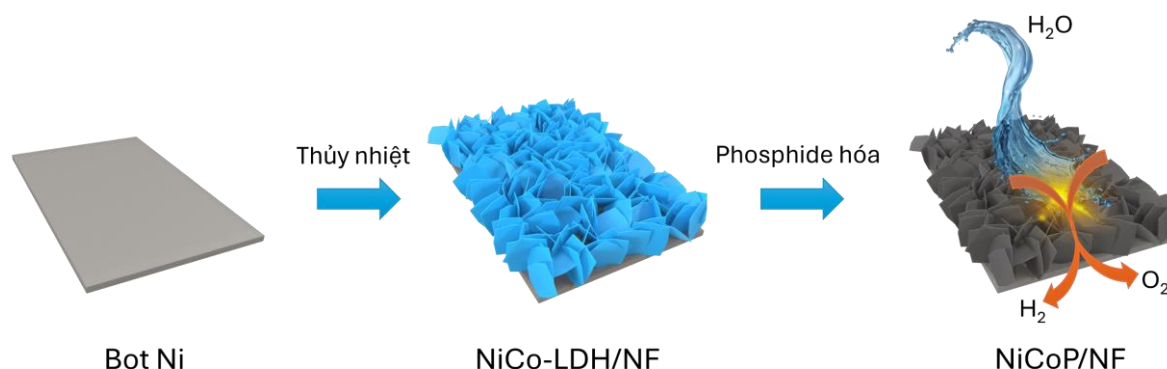
Hình thái và cấu trúc vi mô của các chất xúc tác được tổng hợp đã được quan sát trên kính hiển vi điện tử quét (SEM, model JSM-IT800, JEOL). Các pha tinh thể được xác định bằng kỹ thuật đo nhiễu xạ tia X (XRD, Bruker D8 Advance, $K\alpha$ -Cu: 1,5406Å).

2.4. Đặc trưng điện hóa

Tất cả các thí nghiệm điện hóa trong nghiên cứu này được thực hiện trên hệ điện hóa BioLogic VSP-300 potentiostat. Các phép đo phản ứng HER và phản ứng OER được tiến hành trong cấu hình ba điện cực, sử dụng dung dịch KOH 1,0 M làm chất điện giải. Điện cực làm việc là mẫu NF đã phủ xúc tác trực tiếp. Thanh than chì và điện cực Hg/HgO lần lượt đóng vai trò là điện cực đối và điện cực tham chiếu. Các đường cong phân cực được quét với tốc độ quét 5 mV s⁻¹ và được hiệu chỉnh sụt áp iR. Giá trị điện trở dung dịch (R_s) được xác định từ phổ trở kháng điện hóa (EIS) và được sử dụng để hiệu chỉnh điện thế theo phương trình $E_{\text{corrected}} = E_{\text{RHE}} - iR$. Toàn bộ giá trị điện thế được chuyển đổi về thang điện thế hydro thuận nghịch (RHE), theo phương trình $E_{\text{RHE}} = E_{\text{Hg/HgO}} + 0,098 + 0,059 \times \text{pH}$. Phổ EIS được đo trong dải tần số từ 0,1 Hz đến 100 kHz. Giá trị C_{dl} được đo bằng cách phân tích đường cong CV ở tốc độ quét khác nhau. Bằng cách biểu diễn đồ thị $\Delta J/2$ (trong đó $\Delta J = J_a - J_c$, với J_a và J_c lần lượt là dòng điện anot và catot) tại điện thế 1,08 V (so với RHE) theo tốc độ quét (v), giá trị điện dung lớp kép (C_{dl}) được xác định theo phương trình: $C_{\text{dl}} = \Delta J/2v$.

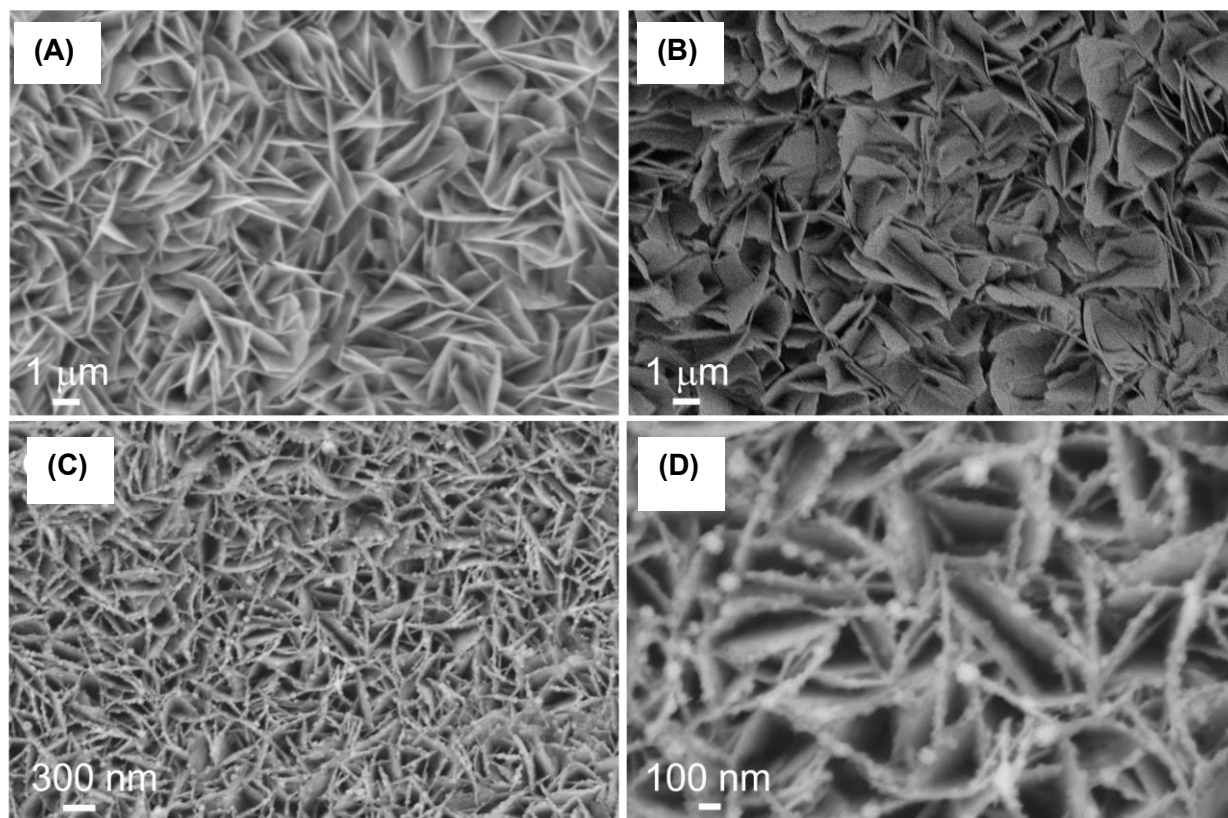
3. Kết quả và bàn luận

Hình 1 minh họa sơ đồ quy trình tổng hợp các tấm nano NiCoP/NF. Bột Ni được sử dụng làm khung đỡ 3D để hình thành tiền chất NiCo đồng nhất thông qua phương pháp thủy nhiệt đơn giản. Sau đó, vật liệu NiCoP/NF được tổng hợp bằng quá trình phosphide hóa tiền chất NiCo, sử dụng NaH_2PO_2 làm nguồn cung cấp P ở 350°C trong 2 giờ.

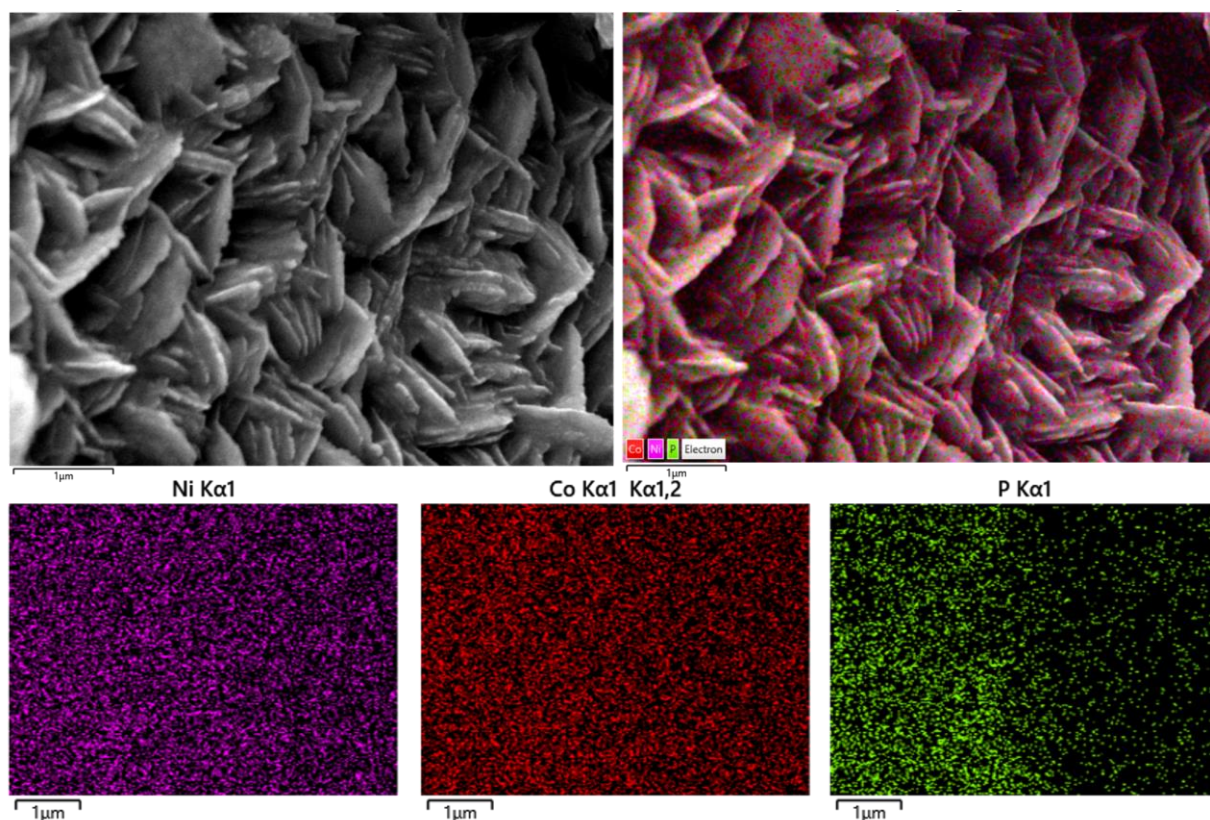


Hình 1. Quy trình tổng hợp các tấm nano NiCoP/NF từ tiền chất NiCo-LDH/NF.

Hình thái của vật liệu được xác định từ kính hiển vi điện tử quét SEM. Ảnh SEM cho thấy tiền chất Ni-LDH/NF và NiCo-LDH/NF có cấu trúc tấm nano đan xen, được sắp xếp đồng đều và mọc thẳng đứng trên bề mặt bột Ni (hình 2A, 2B). Sau quá trình phosphide hóa, hình thái tấm nano của vật liệu vẫn được bảo toàn (hình 2C). Ở độ phân giải cao hơn có thể thấy rằng bề mặt vật liệu NiCoP/NF trở nên thô ráp hơn so với tiền chất NiCo-LDH/NF ban đầu. Điều này có thể cho thấy rằng quá trình phosphide hóa đã diễn ra hiệu quả mà không làm ảnh hưởng đến cấu trúc hình thái của vật liệu. Hơn nữa, phân tích phổ tán xạ tia X năng lượng (EDS) trong hình 3 cho thấy sự phân bố đồng đều của Ni, Co và P trên vùng được khảo sát. Kết quả này chứng minh đã tổng hợp thành công vật liệu NiCoP/NF. Cấu trúc tấm nano được phát triển trên nền bột Ni 3D được dự đoán mang lại diện tích bề mặt hoạt động lớn, giúp gia tăng số lượng vị trí hoạt động, đồng thời tạo điều kiện thuận lợi cho sự tiếp xúc với dung dịch điện ly.

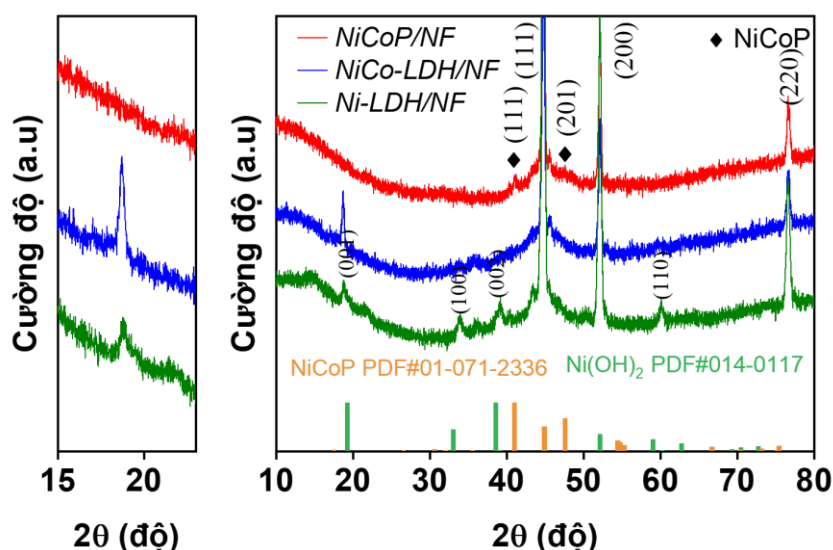


Hình 2. Ảnh SEM ở độ phân giải khác nhau của vật liệu (A) Ni-LDH/NF, (B) NiCo-LDH/NF và (C-D) NiCoP/NF.



Hình 3. Ảnh SEM và bản đồ phân bố các nguyên tố trong cấu trúc (EDX-elemental colour mapping).

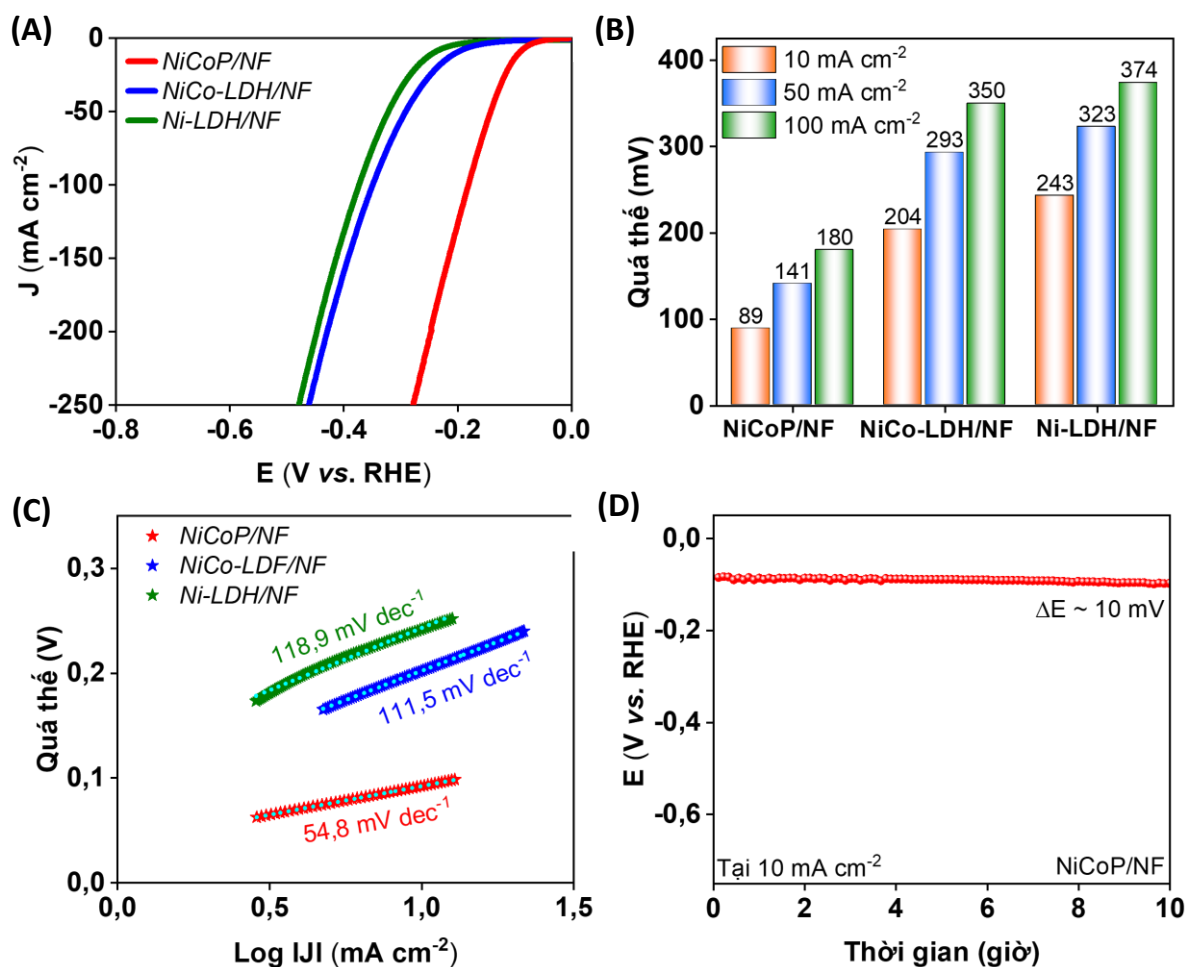
Cấu trúc tinh thể của vật liệu được đánh giá thông qua phân tích nhiễu xạ tia X (XRD), như trình bày trong hình 4. Giản đồ XRD của tất cả các mẫu đều hiển thị ba đỉnh nhiễu xạ đặc trưng tại góc 2θ tại $44,7^\circ$, $52,0^\circ$ và $76,7^\circ$, phù hợp với vị trí xuất hiện các đỉnh nhiễu xạ của Ni kim loại qua đó xác nhận sự hiện diện của bột Ni [19]. Đối với mẫu tiền chất Ni-LDH/NF, các đỉnh nhiễu xạ tại $18,8^\circ$, $33,8^\circ$, $39,0^\circ$ và $60,1^\circ$ tương ứng với các mặt phẳng (001), (100), (002) và (110) của pha $\text{Ni}(\text{OH})_2$ (PDF# 014-0117). Khi pha tạp Co vào cấu trúc Ni-LDH, cường độ các đỉnh nhiễu xạ tại $33,8^\circ$, $39,0^\circ$ và $60,1^\circ$ suy giảm đáng kể, trong khi đỉnh tại $18,8^\circ$ vẫn được quan sát rõ. Đáng chú ý, sự dịch chuyển của đỉnh này về phía góc 2θ thấp hơn cho thấy sự giãn nở mạng tinh thể, qua đó chứng minh sự pha tạp Co thành công vào cấu trúc Ni-LDH [20]. Sau quá trình phosphide hóa tiền chất NiCo-LDH, vật liệu NiCoP/NF xuất hiện các đỉnh nhiễu xạ đặc trưng tại $41,0^\circ$ và $47,3^\circ$, tương ứng với các mặt phẳng (111) và (201) của pha NiCoP (PDF #71-2336) [21]. Đồng thời, các đỉnh đặc trưng của Ni-LDH và NiCo-LDH biến mất hoàn toàn, cho thấy sự chuyển pha hoàn toàn sang NiCoP. Kết quả này khẳng định sự chuyển đổi thành công từ tiền chất hydroxide sang pha phosphide NiCoP thông qua quá trình phosphide hóa.



Hình 4. Giản đồ nhiễu xạ tia X (XRD) của Ni-LDH/NF, NiCo-LDH/NF và NiCoP/NF ảnh bên trái là mô tả phần phóng to góc 2θ ($15-22^\circ$).

Hoạt tính xúc tác cho phản ứng HER của vật liệu xúc tác được đánh giá trong dung dịch KOH 1,0 M bằng cấu hình ba điện cực tiêu chuẩn. Hình 5A trình bày các đường cong phân cực thu được từ phép đo quét thế tuyến tính (LSV) với tốc độ quét 5 mV s^{-1} . Điện cực NiCoP/NF thể hiện quá thế thấp, chỉ 89 mV (so với RHE) tại mật độ dòng điện 10 mA cm^{-2} , vượt trội so với các mẫu đối chứng như NiCo-LDH/NF (204 mV) và Ni-LDH/NF (243 mV), cho thấy hoạt tính HER được cải thiện rõ rệt. Cụ thể, NiCoP/NF yêu cầu các quá thế lần lượt là 89 , 141 và 180 mV để đạt mật độ dòng điện 10 , 50 và 100 mA cm^{-2} (hình 5B), chứng tỏ khả năng xúc tác hiệu quả ở mật độ dòng điện cao. Để làm rõ động học phản ứng, các đường Tafel lập từ đường cong phân cực LSV như thể hiện trong hình 5C. NiCoP/NF cho thấy độ dốc Tafel nhỏ, đạt $54,8 \text{ mV dec}^{-1}$, thấp hơn so với các mẫu NiCo-LDH/NF ($111,5 \text{ mV dec}^{-1}$)

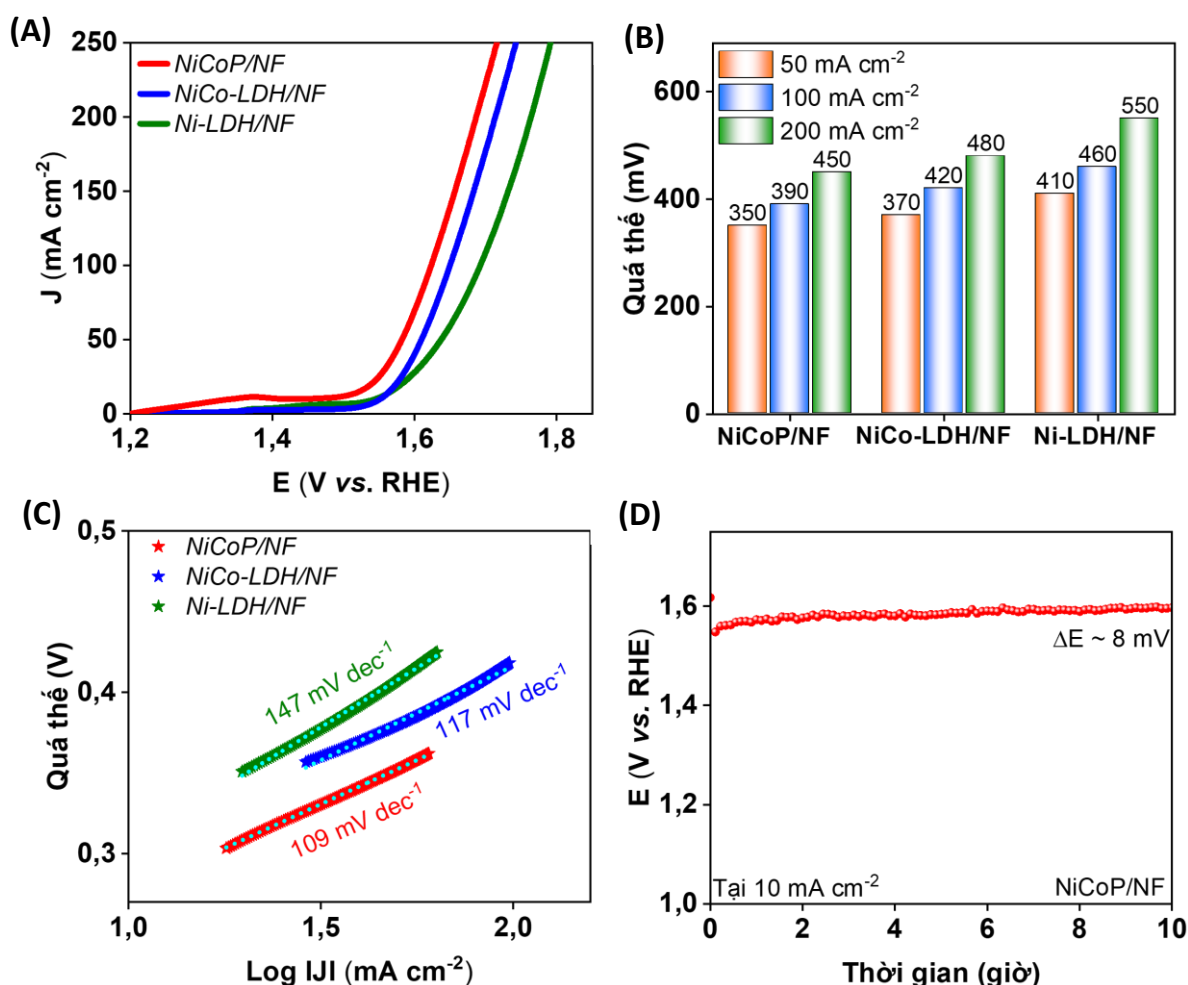
và Ni-LDH/NF (118,9 mV dec⁻¹), cho thấy động học HER được cải thiện đáng kể. Bên cạnh đó, độ bền hoạt động xúc tác là một tiêu chí quan trọng để đánh giá tiềm năng ứng dụng thực tiễn. Kết quả đo thể theo thời gian (hình 5D) cho thấy, điện cực NiCoP/NF có thể vận hành ổn định ở 10 mA cm⁻² trong hơn 10 giờ, với mức suy giảm chỉ khoảng 10 mV, khẳng định độ ổn định điện hóa vượt trội của vật liệu.



Hình 5. (A) Đường cong phân cực của Ni-LDH/NF, NiCo-LDH/NF và NiCoP/NF cho quá trình HER; (B) Biểu đồ so sánh quá thế tại 10, 50 và 100 mA cm⁻²; (C) Độ dốc Tafel của Ni-LDH/NF, NiCo-LDH/NF và NiCoP/NF; (D) Kiểm tra độ ổn định của vật liệu NiCoP/NF ở mật độ dòng HER không đổi 10 mA cm⁻².

Đối với phản ứng OER, các đường phân cực LSV trong hình 6A cho thấy, NiCoP/NF thể hiện hoạt tính vượt trội, đạt 50 mA cm⁻² tại quá thế khoảng 350 mV (so với RHE), tốt hơn so với các mẫu đối chứng như NiCo-LDH/NF (370 mV) và Ni-LDH/NF (410 mV). Cụ thể, điện cực NiCoP/NF yêu cầu các quá thế lần lượt là 350, 390 và 450 mV để đạt mật độ dòng điện 50, 100 và 200 mA cm⁻² (hình 6B), cho thấy khả năng xúc tác OER hiệu quả. Ngoài ra, NiCoP/NF thể hiện độ dốc Tafel thấp nhất, đạt 109 mV dec⁻¹, nhỏ hơn đáng kể so với các mẫu NiCo-LDH/NF (117 mV dec⁻¹) và Ni-LDH/NF (147 mV dec⁻¹), kết quả này cho thấy động học phản ứng OER được cải thiện rõ rệt (hình 6C). Độ bền hoạt động của điện cực NiCoP/NF được đánh giá ở 10 mA cm⁻² trong hơn 10 giờ. Kết quả cho thấy điện áp chỉ tăng

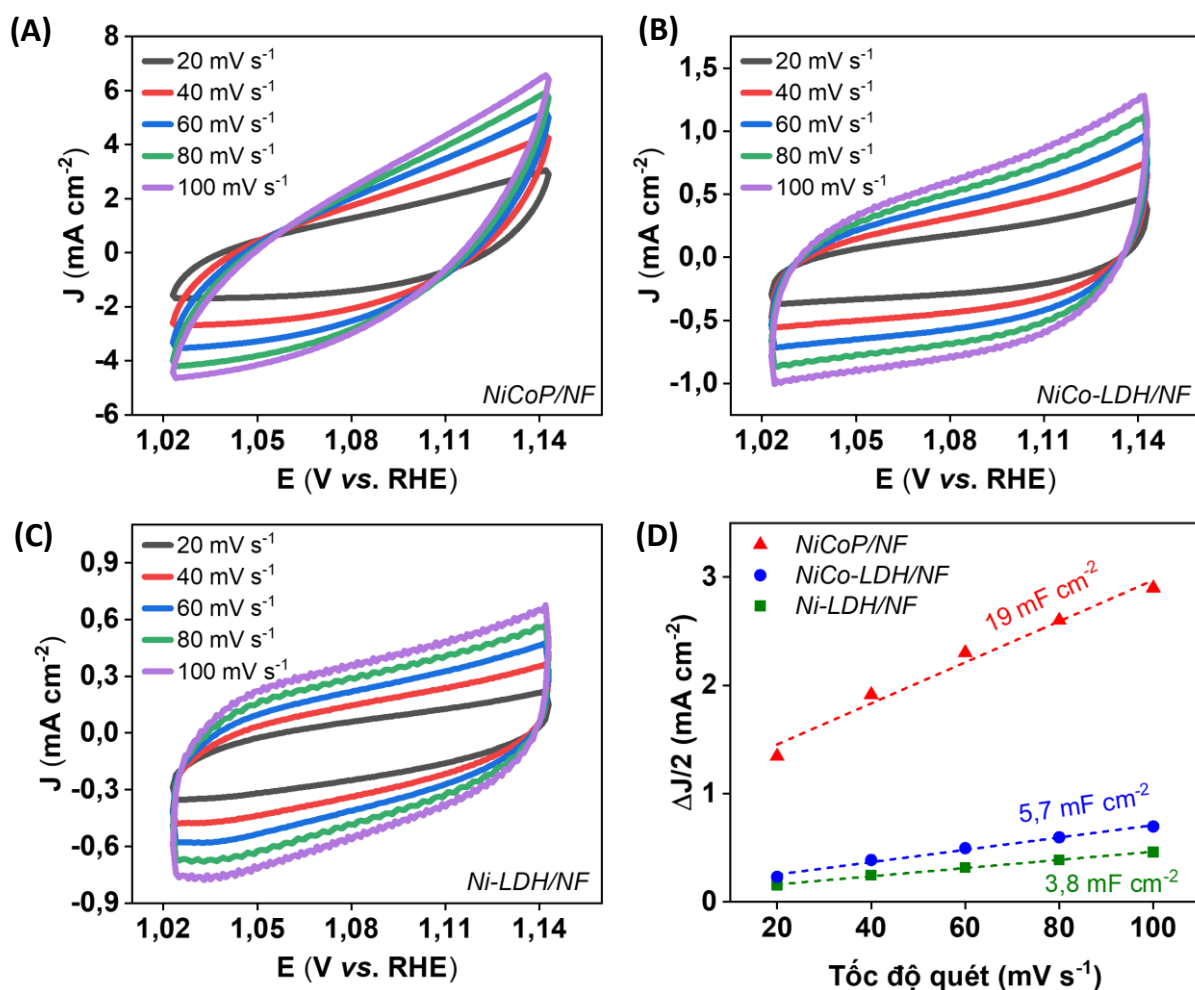
không đáng kể theo thời gian (khoảng 8 mV), khẳng định khả năng ổn định điện hóa vượt trội của vật liệu (hình 6D).



Hình 6. (A) Đường cong phân cực của Ni-LDH/NF, NiCo-LDH/NF và NiCoP/NF cho quá trình OER; (B) Bảng so sánh quá thế tại 10, 50 và 100 mA cm⁻²; (C) Độ dốc Tafel của Ni-LDH/NF, NiCo-LDH/NF và NiCoP/NF; (D) Kiểm tra độ ổn định của vật liệu NiCoP/NF ở mật độ dòng OER không đổi 10 mA cm⁻².

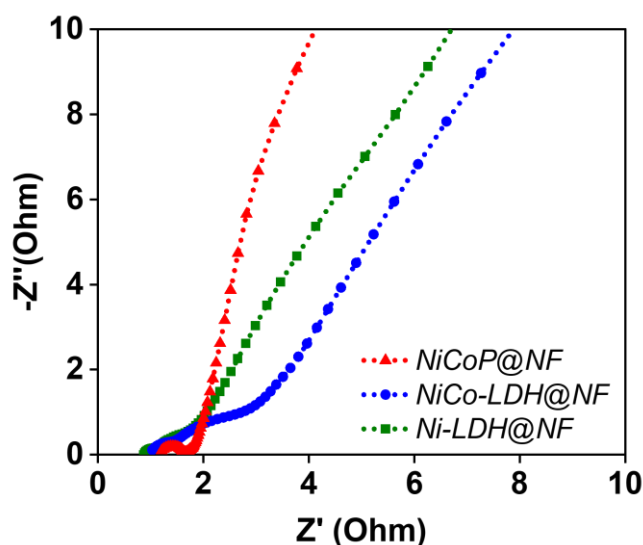
Để làm rõ vai trò của cấu trúc tấm nano phát triển trên nền bột Ni 3D trong việc gia tăng diện tích bề mặt hoạt động cho các quá trình điện xúc tác, chúng tôi sử dụng phương pháp điện dung lớp kép (C_{dl}) nhằm ước lượng diện tích bề mặt điện hóa (ECSA) của các mẫu [22]. Giá trị C_{dl} được xác định thông qua phép đo quét thế tuần hoàn trong khoảng điện thế từ 1,02 đến 1,14 V (so với RHE). Khoảng điện thế này được lựa chọn nhằm tránh sự ảnh hưởng của điện dung giả phát sinh từ các quá trình oxy hóa - khử trên bề mặt điện cực [23]. Các đường cong CV của các mẫu trong vùng được trình bày trong hình 7A-7C. Kết quả xác định điện dung lớp kép C_{dl} cho thấy, vật liệu NiCoP/NF có giá trị C_{dl} đạt 19,0 mF cm⁻², cao hơn đáng kể so với các mẫu đối chứng như NiCo-LDH/NF (5,7 mF cm⁻²) và Ni-LDH/NF (3,8 mF cm⁻²) (hình 7D). Giá trị C_{dl} cao của NiCoP/NF cho thấy số lượng vị trí hoạt động điện hóa tăng đáng kể. Kết quả này phù hợp với quá trình chuyển pha từ hydroxide sang phosphide, trong đó cấu trúc tấm nano vẫn được duy trì sau quá trình phosphide hóa, đồng

thời bề mặt vật liệu trở nên thô ráp hơn như quan sát trong ảnh SEM. Sự thay đổi này góp phần làm tăng diện tích bề mặt điện hóa, tạo điều kiện cho nhiều vị trí hoạt động hơn và từ đó nâng cao hiệu suất xúc tác.



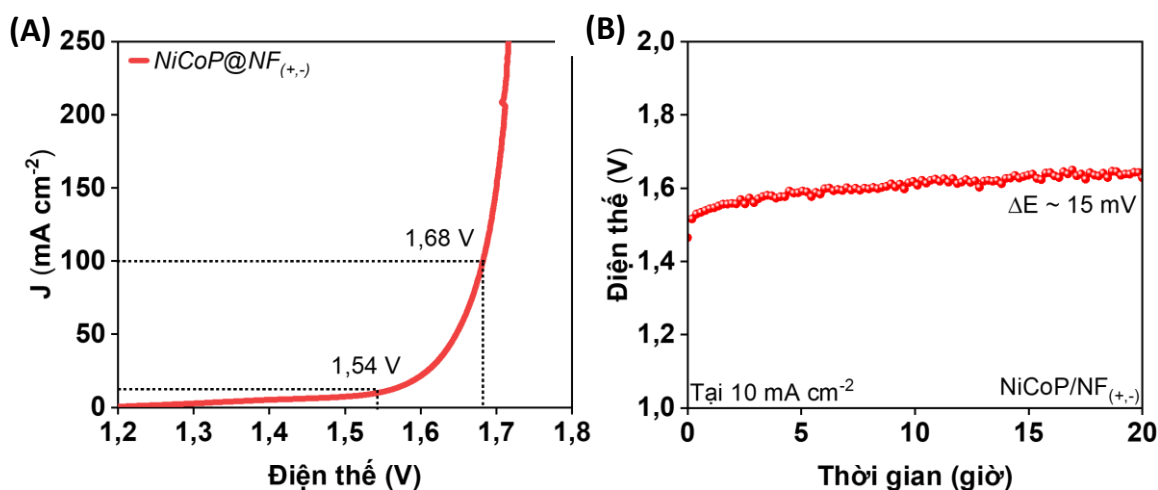
Hình 7. Đường CV ở các tốc độ quét khác nhau (A) NiCoP/NF (B) NiCo-LDH/NF và (C) Ni-LDH/NF, (D) Giá trị C_{dl} của các mẫu tương ứng.

Kết quả đo EIS của các vật liệu được biểu diễn trong hình 8. Có thể thấy, vật liệu NiCoP/NF có phần bán nguyệt nhỏ nhất trong phổ Nyquist so với các mẫu đối chứng. Đường kính bán nguyệt này phản ánh điện trở chuyển điện tích (R_{ct}) tại bề mặt điện cực, do đó cho thấy quá trình truyền electron giữa điện cực và chất điện giải diễn ra thuận lợi hơn. Điều này chứng tỏ vật liệu NiCoP/NF có động học chuyển điện tích nhanh, giúp thúc đẩy quá trình hấp phụ và chuyển hóa các chất trung gian phản ứng, từ đó cải thiện hoạt tính điện xúc tác đối với cả phản ứng HER và OER. Kết quả này phù hợp với các giá trị điện thế quá mức thấp và độ dốc Tafel nhỏ quan sát được đối với điện cực NiCoP/NF.



Hình 8. Phổ Nyquist của vật liệu Ni-LDH/NF, NiCo-LDH/NF và NiCoP/NF.

Chúng tôi cũng khảo sát khả năng ứng dụng của chất xúc tác NiCoP/NF như cả điện cực anot và catot trong hệ điện phân nước hai điện cực. Như thể hiện trong hình 9A, hệ NiCoP/NF_(+, -) thể hiện hiệu suất điện hóa ấn tượng, chỉ yêu cầu điện áp tế bào 1,54 V và 1,68 V để đạt mật độ dòng điện lần lượt là 10 và 100 mA cm⁻². Kết quả này cũng vượt trội hơn một số kim loại phosphide trong cùng một điều kiện so sánh tại 10 mA cm⁻², như (Ni,Co)₂P NF (1,54 V) [24], NiCoP/NF (1,55 V) [25], NiCoP NR@NS (1,57 V) [26], NiCoP/NiO (1,71 V) [27]. Ngoài ra, NiCoP/NF_(+, -) còn cho thấy độ bền vượt trội khi vận hành liên tục ở mật độ dòng 10 mA cm⁻² trong hơn 20 giờ, với khoảng chênh lệch thế khoảng 15 mV (hình 9B).



Hình 9. (A) Đường cong phân cực LSV của hệ NiCoP/NF_(+, -) trong phản ứng tách nước toàn phần; (B) Độ bền tương ứng của hệ NiCoP/NF_(+, -).

4. Kết luận

Trong nghiên cứu này, vật liệu xúc tác NiCoP dạng tấm nano đã được chế tạo thành công trực tiếp trên nền NF bằng phương pháp thủy nhiệt kết hợp với quá trình phosphide hóa.

Các kết quả đánh giá cho thấy, vật liệu này có hiệu quả xúc tác điện hóa cao cho cả hai phản ứng HER và OER trong môi trường kiềm. Nhờ cấu trúc phân cấp đặc biệt, trong đó các tấm nano mọc trực tiếp trên nền Ni, vật liệu tạo ra mật độ vị trí hoạt động cao và tăng cường hiệu quả vận chuyển điện tích, từ đó nâng cao hiệu suất điện xúc tác. Cụ thể, điện cực NiCoP/NF thể hiện hoạt tính tốt đối với cả HER và OER, với quá thế tương ứng là 89 mV tại mật độ dòng điện 10 mA cm^{-2} và 350 mV tại mật độ dòng điện 50 mA cm^{-2} (so với RHE). Khi được sử dụng làm chất xúc tác cho quá trình điện phân nước tổng thể, hệ NiCoP/NF_(+,-) chỉ cần điện áp cell 1,54 V để đạt 10 mA cm^{-2} , đồng thời duy trì độ bền ổn định trong 20 giờ. Nghiên cứu này đề xuất phương pháp hiệu quả để tổng hợp chất xúc tác dựa trên phosphide kim loại chuyển tiếp, hướng đến sản xuất hydro xanh qua điện phân nước.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

- [1] C. Anand, B. Chandrara, P. Nithiya, et al. (2025), "Green hydrogen for a sustainable future: A review of production methods, innovations, and applications", *Int. J. Hydrogen Energy*, **111**, pp.319-341, DOI: 10.1016/j.ijhydene.2025.02.257.
- [2] C. Huang, P. Qin, Y. Luo, et al. (2022), "Recent progress and perspective of cobalt-based catalysts for water splitting: Design and nanoarchitectonics", *Mater. Today Energy*, **23**, DOI: 10.1016/j.mtener.2021.100911.
- [3] L. Yan, Y.H. Chen, J.C. Xie, et al. (2025), "Optimizing heterointerface of NiCoP-Co/MXene with regulated charge distribution via built-in electric field for efficient overall water-splitting", *Rare Metals*, **44**, pp.1067-1083, DOI: 10.1007/s12598-024-02950-z.
- [4] H. Zhang, X. Li, A. Hähnel, et al. (2018), "Bifunctional heterostructure assembly of NiFe LDH nanosheets on NiCoP nanowires for highly efficient and stable overall water splitting", *Adv. Funct. Mater.*, **28**(14), DOI: 10.1002/adfm.201706847.
- [5] Y. Wen, F. Pan, Q. Zheng, et al. (2023), "Polymetallic sulfide nanosheet arrays with composite structure as a highly efficient oxygen evolution electrocatalyst", *J. Colloid Interface Sci.*, **635**, pp.494-502, DOI: 10.1016/j.jcis.2022.12.135.
- [6] L. Zhang, C. Han, Z. Ye, et al. (2024), "Mo-doped CoFe-layered double hydroxides as an efficient bifunctional electrocatalyst for overall water splitting: Effects of different molybdenum additions on catalytic performance", *Int. J. Hydrogen Energy*, **93**(11), pp.355-363, DOI: 10.1016/j.ijhydene.2024.10.420.
- [7] Y. Zhang, Q. Fu, B. Song, et al. (2022), "Regulation strategy of transition metal oxide-based electrocatalysts for enhanced oxygen evolution reaction", *Accounts of Materials Research*, **3**(10), pp.1088-1100, DOI: 10.1021/accountsmr.2c00161.
- [8] B. An, X. Li, L. Li, et al. (2026), "Review and perspective on the rational design and structural modulation of transition metal phosphides for efficient electrocatalytic water splitting", *Coord. Chem. Rev.*, **550**, DOI: 10.1016/j.ccr.2025.217406.

- [9] Y. Lin, Z. Wang, J. Li, et al. (2026), "Strengthening the electrocatalytic hydrogen evolution process by structure design and atomic-level regulation of transition metal phosphides", *Small*, **22**(3), DOI: 10.1002/sml.202509589.
- [10] H. Wu, C. Feng, L. Zhang, et al. (2021), "Non-noble metal electrocatalysts for the hydrogen evolution reaction in water electrolysis", *Electrochemical Energy Reviews*, **4**(3), pp.473-507, DOI: 10.1007/s41918-020-00086-z.
- [11] Z. Fang, L. Peng, Y. Qian, et al. (2018), "Dual tuning of Ni–Co–A (A = P, Se, O) nanosheets by anion substitution and holey engineering for efficient hydrogen evolution", *J. Am. Chem. Soc.*, **140**(15), pp.5241-5247, DOI: 10.1021/jacs.8b01548.
- [12] H. Liang, A.N. Gandi, D.H. Anjum, et al. (2016), "Plasma-assisted synthesis of NiCoP for efficient overall water splitting", *Nano Lett.*, **16**(12), pp.7718-7725, DOI: 10.1021/acs.nanolett.6b03803.
- [13] L. Xie, Q. Liu, Y. Luo, et al. (2017), "Bimetallic NiCoP nanosheets array for high-performance urea electro-oxidation and less energy-intensive electrolytic hydrogen production", *ChemistrySelect*, **2**(31), pp.10285-10289, DOI: 10.1002/slct.201702071.
- [14] Y. Li, Z. Jiang, J. Huang, et al. (2017), "Template-synthesis and electrochemical properties of urchin-like NiCoP electrocatalyst for hydrogen evolution reaction", *Electrochim. Acta*, **249**, pp.301-307, DOI: 10.1016/j.electacta.2017.08.036.
- [15] J. Li, G. Wei, Y. Zhu, et al. (2017), "Hierarchical NiCoP nanocone arrays supported on Ni foam as an efficient and stable bifunctional electrocatalyst for overall water splitting", *J. Mater. Chem. A*, **5**(28), pp.14828-14837, DOI: 10.1039/c7ta03947f.
- [16] Y. Li, J. Liu, C. Chen, et al. (2017), "Preparation of NiCoP hollow quasi-polyhedra and their electrocatalytic properties for hydrogen evolution in alkaline solution", *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **9**(7), pp.5982-5991, DOI: 10.1021/acsami.6b14127.
- [17] L. Yan, L. Cao, P. Dai, et al. (2017), "Metal-organic frameworks derived nanotube of nickel-cobalt bimetal phosphides as highly efficient electrocatalysts for overall water splitting", *Adv. Funct. Mater.*, **27**(40), DOI: 10.1002/adfm.201703455.
- [18] C. Wang, J. Jiang, T. Ding, et al. (2016), "Monodisperse ternary NiCoP nanostructures as a bifunctional electrocatalyst for both hydrogen and oxygen evolution reactions with excellent performance", *Advanced Materials Interfaces*, **3**(4), DOI: 10.1002/admi.201500454.
- [19] Y. Dong, Y. Li, D. Li, et al. (2025), "High mass-loading NiCo-LDH@MnCoP nanostructures on Ni foam as an advanced cathode for aqueous supercapacitors", *Journal of Electroanalytical Chemistry*, **981**, DOI: 10.1016/j.jelechem.2025.118972.
- [20] S. Singh, N.M. Shinde, Q.X. Xia, et al. (2017), "Tailoring the morphology followed by the electrochemical performance of NiMn-LDH nanosheet arrays through

controlled Co-doping for high-energy and power asymmetric supercapacitors", *Dalton Trans.*, **46(38)**, pp.12876-12883, DOI: 10.1039/c7dt01863k.

[21] X. Lv, X. Li, C. Yang, et al. (2020), "Large-size, porous, ultrathin NiCoP nanosheets for efficient electro/photocatalytic water splitting", *Adv. Funct. Mater.*, **30(16)**, DOI: 10.1002/adfm.201910830.

[22] C. Cheng, W. Ao, H. Ren, et al. (2023), "Amorphous versus crystalline CoS x anchored on CNTs as heterostructured electrocatalysts toward hydrogen evolution reaction", *Science China Materials*, **66(4)**, pp.1383-1388, DOI: 10.1007/s40843-022-2290-9.

[23] Y. Zhang, L. Gao, E.J.M. Hensen, et al. (2018), "Evaluating the stability of Co2P electrocatalysts in the hydrogen evolution reaction for both acidic and alkaline electrolytes", *ACS Energy Lett.*, **3(6)**, pp.1360-1365, DOI: 10.1021/acsenerylett.8b00514.

[24] L. Ji, Y. Wei, P. Wu, et al. (2021), "Heterointerface engineering of Ni2P-Co2P nanoframes for efficient water splitting", *Chem. Mater.*, **33(23)**, pp.9165-9173, DOI: 10.1021/acs.chemmater.1c02609.

[25] H.S. Hu, Y. Li, Y.R. Shao, et al. (2021), "NiCoP nanorod arrays as high-performance bifunctional electrocatalyst for overall water splitting at high current densities", *J. Power Sources*, **484**, DOI: 10.1016/j.jpowsour.2020.229269.

[26] J.G. Wang, W. Hua, M. Li, et al. (2018), "Structurally engineered hyperbranched NiCoP arrays with superior electrocatalytic activities toward highly efficient overall water splitting", *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **10(48)**, pp.41237-41245. DOI: 10.1021/acsami.8b11576.

[27] X. Hu, J. Fan, R. Wang, et al. (2023), "Vacancies and interfaces engineering of core-shell heterostructured NiCoP/NiO as trifunctional electrocatalysts for overall water splitting and zinc-air batteries", *Green Energy & Environment*, **8(2)**, pp.601-610, DOI: 10.1016/j.gee.2021.11.003.