

THÔNG TIN VỀ LUẬN ÁN TIẾN SĨ

1. Họ và tên nghiên cứu sinh: NGUYỄN THỊ NHƯ
2. Giới tính: Nữ
3. Ngày sinh: 04/5/1986
4. Nơi sinh: Hải Phòng
5. Quyết định công nhận nghiên cứu sinh: 2875/QĐ - ĐHKHTN ngày 07/8/2015 của Hiệu trưởng Trường Đại học Khoa học Tự nhiên - ĐHQGHN.
6. Các thay đổi trong quá trình đào tạo: Không
7. Tên đề tài luận án: “Nghiên cứu phản ứng oxi hóa chọn lọc ancol benzylic với một số oxit kim loại chuyển tiếp mang trên sepiolite”
8. Chuyên ngành: Hóa dầu
9. Mã số: 62440115
10. Cán bộ hướng dẫn khoa học: Hướng dẫn chính: PGS.TS Nguyễn Tiến Thảo
Hướng dẫn phụ : GS.TSKH Ngô Thị Thuận

11. Tóm tắt các kết quả mới của luận án:

- Đã chỉ ra được đặc trưng cấu trúc của sepiolite ảnh hưởng trực tiếp đến hoạt động xúc tác Cr(III) trong phản ứng oxi hóa ancol benzylic thành benzandehit.

+ Tâm Cr(III) trong mao quản được bền vững hóa bởi mao quản và đóng vai trò xúc tác chủ yếu cho oxi hóa chọn lọc ancol benzylic thành benzandehit.

+ Tâm Cr(III) trên bề mặt và miệng mao quản của vật liệu sepiolite có tác dụng phân hủy t-BuOOH thành các gốc tự do t-BuO \cdot hay t-BuOH \cdot và phản ứng oxi hóa BzOH chạy theo cơ chế gốc tự do, không chọn lọc thành benzandehit.

- Kết quả nghiên cứu chỉ ra độ bền hoạt tính của xúc tác Cr₂O₃ được cải thiện khi phân hủy Cr(OH)₃ ở nhiệt độ cao trong các kênh mao quản sepiolite. Việc cố định các hạt nano oxit Cr₂O₃ trong mao quản đã hạn chế quá trình rửa trôi các ion crom và làm tăng độ bền xúc tác.

- Nghiên cứu khảo sát dãy các oxit kim loại chuyển tiếp mang trên chất mang sepiolite đối với phản ứng oxi hóa ancol benzylic. Kết quả tìm ra dãy xúc tác MeO_x-10/sepiolite hoạt động theo trật tự CrO_x-10/sepiolite > CoO_x-10/sepiolite > CuO-10/sepiolite > MnO_x-10/sepiolite > NiO-10/sepiolite đối với phản ứng oxi hóa pha lỏng ancol benzylic. Crom oxit thể hiện hoạt tính cao nhất trong khi niken thể hiện khả năng xúc tác oxi hóa ancol kém nhất ở cùng điều kiện tiến hành phản ứng.

12. Khả năng ứng dụng thực tiễn:

Xúc tác oxit kim loại chuyển tiếp mang trên sepiolite được ứng dụng làm xúc tác cho phản ứng oxi hóa ancol benzylic với t-BuOOH cho kết quả độ chọn lọc sản phẩm benzandehit cao. Sản phẩm này là nguyên liệu quý cho các ngành công nghiệp dược phẩm, hương liệu, thuốc nhuộm, hóa nông, mỹ phẩm và hóa chất.

13. Các hướng nghiên cứu tiếp theo:

Biến tính sepiolite để phân tán oxit kim loại chuyển tiếp khác mang ứng dụng làm xúc

tác cho phản ứng oxi hóa các ankyl benzen.

14. Các công trình công bố liên quan đến luận án:

1. Nguyen Tien Thao, Nguyen Thi Nhu, Kuen-Song Lin (2018), “Liquid phase oxidation of benzyl alcohol to benzaldehyde over sepiolite loaded chromium oxide catalysts”, *Journal of the Taiwan Institute of Chemical Engineers* 83, pp.10–22, IF: 4.22, <https://doi.org/10.1016/j.jtice.2017.11.034> (Danh mục SCI, Q1).
2. Nguyen Tien Thao, Nguyen Thi Nhu (2018), Evaluation of Catalytic Activity of MeOx/sepiolite in Benzyl Alcohol Oxidation, *Journal of Science: Advanced Materials and Devices* 02 (2018) pp.xx-xx (ISI, Scopus)
3. Nguyễn Thị Như, Trần Quyết Thắng, Nguyễn Tiến Thảo (2017), “Hoạt tính xúc tác của CuO/sepiolite trong phản ứng oxi hóa pha lỏng ancol benzylic”, *Tạp chí Xúc tác và Hấp phụ Việt Nam*, 6(2), tr.131-134.
4. Nguyen Thi Nhu, Pham Hoang Giang, Nguyen Tien Thao (2017), “Investigation of oxidation between benzyl alcohol and TBHP on CoO-loading sepiolite – catalysts”, *Vietnam Journal of Chemistry*, 55(4E23), pp.289 – 293. DOI: 10.15625/2525-2321.2017-00534.
5. Nguyen Thi Nhu, Quach Toan Anh, Nguyen Tien Thao (2017), “Oxidation of benzyl alcohol to benzandehit over MnO_x/sepiolite catalysts” , *Vietnam Journal of Chemistry*, 55(6), pp.729-733. DOI: 10.15625/2525-2321.2017-00534.
6. Nguyen Tien Thao, Nguyen Thi Nhu, Ngo Thi Thuan (2018), “Catalytic activity of Cr₂O₃/sepiolite in the oxidation benzyl alcohol”, *Vietnam Journal of Science and Technology*, 56 (3), pp.295-302. DOI: 10.15625/2525-2518/56/3/10930.

Hà Nội, ngày 04 tháng 9 năm 2018

Người hướng dẫn luận án

Nghiên cứu sinh

PGS.TS Nguyễn Tiến Thảo

Nguyễn Thị Như

INFORMATION ON DOCTORAL THESIS

1. Full name: **NGUYEN THI NHU**
2. Sex: Female
3. Date of birth: 04/5/1986
4. Place of birth: Hai Phong
5. Admission decision number: No 2875/QĐ-ĐHKHTN dated on 07/8/2015 by Rector of VNU University of Science.
6. Changes in academic process: None
7. Official thesis title: “Investigation of the selective oxidation of benzyl alcohol on sepiolite supported transition metal oxides”
8. Major: Petrochemistry
9. Code: 62440115
10. Supervisors: 1) Assoc. Prof. Dr. Nguyen Tien Thao
2) Prof. Dr. Sc. Ngo Thi Thuan

11. Summary of the new findings of the thesis

The structure of sepiolite and the nature of transition metal oxides have strongly affected the catalytic activity in the oxidation reaction of benzyl alcohol.

+ Cr (III) ions in sepiolite tunnels are stabilized and play an important role in the selective oxidation of benzyl alcohol to benzaldehyde.

+ Cr (III) species on the surface and in the open tunnels of sepiolite decompose *t*-BuOOH into *t*-BuO[•] or *t*-BuOH[•] radicals and the oxidation reaction of benzyl alcohol occurs in a free radical mechanism.

The catalytic stability of Cr₂O₃ catalyst is enhanced by the decomposition of Cr(OH)₃ at higher temperature in tunnels and channels of sepiolite. The deposition of Cr₂O₃ oxide nanoparticles in the channels and tunnels leads to stabilize the catalytic stability during oxidation process. The reaction mechanism of benzyl alcohol oxidation on Cr/sepiolite catalysts was postulated.

Comparative activity of MeO_x-10/sepiolite catalyst series in the oxidation of benzyl alcohol has been performed. The results show that the catalytic activity exhibits in the order of CrO_x-10/sepiolite > CoO_x-10/sepiolite > CuO-10/sepiolite > MnO_x-10/sepiolite > NiO-10/sepiolite for oxidation of liquid phase benzyl alcohol under the same preparation and reaction conditions. The chromium oxide exhibited the highest activity while nickel oxide exhibited the lowest oxidation catalytic activity in the present report.

12. Practical applicability, if any:

Transition metal oxides-supported sepiolite catalysts would be used as a catalyst for the oxidation of benzyl alcohol with *t*-BuOOH resulting in a high selectivity of benzaldehyde. This product is a valuable chemical for pharmaceutical industries, aromatics, dyes, agrochemicals, cosmetics and chemicals.

13. Further research directions, if any:

Developing the study denatured sepiolite and then using denatured sepiolite as the carrier for transition metal oxides to investigate the oxidation reaction of alkyl benzene.

14. Thesis-related publications:

1. Nguyen Tien Thao, Nguyen Thi Nhu, Kuen-Song Lin (2018), “Liquid phase oxidation of benzyl alcohol to benzaldehyde over sepiolite loaded chromium oxide catalysts”, *Journal of the Taiwan Institute of Chemical Engineers* 83, 10–22, IF: 4.22, <https://doi.org/10.1016/j.jtice.2017.11.034> (SCI, Q1)
2. Nguyen Tien Thao, Nguyen Thi Nhu (2018), Evaluation of Catalytic Activity of MeOx/sepiolite in Benzyl Alcohol Oxidation, *Journal of Science: Advanced Materials and Devices*, 02 (2018) pp.xx-xx (ISI, Scopus)
3. Nguyễn Thị Như, Trần Quyết Thắng, Nguyễn Tiến Thảo (2017), “Hoạt tính xúc tác của CuO/sepiolite trong phản ứng oxi hóa pha lỏng ancol benzylic”, *Tạp chí Xúc tác và Hấp phụ Việt Nam*, T6. (No2), Tr.131-134, 2017.
4. Nguyen Thi Nhu, Pham Hoang Giang, Nguyen Tien Thao (2017), “Investigation of oxidation between benzyl alcohol and TBHP on CoO-loading sepiolite – catalysts”, *Vietnam Journal of Chemistry*, 55(4E23) 289 – 293. DOI: 10.15625/2525-2321.2017-00534
5. Nguyen Thi Nhu, Quach Toan Anh, Nguyen Tien Thao (2017), “Oxidation of benzyl alcohol to benzandehit over MnO_x/sepiolite catalysts” , *Vietnam Journal of Chemistry*, 55(6) 729-733. DOI: 10.15625/2525-2321.2017-00534
6. Nguyen Tien Thao, Nguyen Thi Nhu, Ngo Thi Thuan (2018), “Catalytic activity of Cr₂O₃/sepiolite in the oxidation benzyl alcohol”, *Vietnam Journal of Science and Technology*, 56 (3) (2018) 295-302. DOI: 10.15625/2525-2518/56/3/10930.

Hanoi, September 4th, 2018

Supervisor

PhD Student

Assoc. Prof. Dr. Nguyen Tien Thao

Nguyen Thi Nhu