

Hà Nội, ngày tháng năm

THÔNG TIN VỀ LUẬN ÁN TIẾN SĨ

1. Họ và tên nghiên cứu sinh: Trịnh Lê Thiện
2. Giới tính: Nam
3. Ngày sinh: 08/10/1994
4. Nơi sinh: TP. Hồ Chí Minh
5. Quyết định công nhận nghiên cứu sinh: Quyết định số 3484/QĐ-ĐHKHTN ngày 15/12/2021 của Trường Đại học Khoa học Tự nhiên, Đại học Quốc gia Hà Nội
6. Các thay đổi trong quá trình đào tạo (nếu có):
7. Tên đề tài luận án: Nghiên cứu tổng hợp màng xúc tác chứa một số kim loại oxide/UiO-66-NO₂ trên nền polymer để xử lý chất hữu cơ độc hại.
8. Chuyên ngành: Hóa dầu
9. Mã số: 9520301.02
10. Cán bộ hướng dẫn khoa học: CBHD1: GS. TS. Lê Thanh Sơn, CBHD2: TS. Trịnh Xuân Đại.
11. Tóm tắt các kết quả mới của luận án:

Luận án được thực hiện với mục tiêu cốt lõi là khắc phục những hạn chế kỹ thuật của xúc tác quang dạng bột truyền thống, đặc biệt là khó khăn trong công đoạn thu hồi vật liệu và hiện tượng tái hợp nhanh của cặp điện tử - lỗ trống. Để giải quyết thách thức này, nghiên cứu tập trung phát triển các hệ vật liệu lai dị thể hoạt động hiệu quả dưới ánh sáng khả kiến, đồng thời tối ưu hóa quy trình cố định chúng lên nền polymer để tạo ra thể hệ màng lọc xúc tác quang có độ bền cao, hướng tới ứng dụng bền vững trong xử lý nước thải.

Về mặt công nghệ chế tạo, luận án đã xây dựng thành công quy trình tổng hợp mới để tích hợp hệ vật liệu composite bán dẫn trên cơ sở kim loại oxide (CuO, Fe₂O₃, MnO₂) và khung hữu cơ kim loại chức năng hóa (UiO-66-NO₂) vào cấu trúc màng mỏng Polyamide (PA) trên nền Polysulfone (PSf). Các vật liệu tổng hợp được không chỉ sở hữu diện tích bề mặt riêng lớn (460 - 908 m²/g) với năng lượng vùng cấm hẹp (2,1 - 2,25 eV), mà còn được phân tán và cố định chắc chắn

trong lớp màng chọn lọc. Cách tiếp cận này giúp tạo ra màng xúc tác dạng TFC (thin-film composite) với hoạt tính cao, bề mặt ổn định, giải quyết triệt để bài toán tách và thu hồi xúc tác sau xử lý.

Đóng góp quan trọng nhất của luận án là việc cung cấp một đánh giá so sánh hệ thống về hiệu quả và độ bền vận hành giữa các hệ màng biến tính kim loại oxide khác nhau. Kết quả thực nghiệm khẳng định sự ưu việt của hệ màng chứa CuO và Fe_2O_3 với hiệu suất loại bỏ xanh methylen đạt trên 99%, đồng thời duy trì hoạt tính ổn định (trên 97%) sau nhiều chu kỳ tái sử dụng. Ngược lại, hệ màng chứa MnO_2 tuy thể hiện khả năng xử lý đáng kể ngay cả ở tải lượng ô nhiễm cao, nhưng lại bộc lộ hạn chế lớn về độ bền khi hiệu suất suy giảm nhanh chóng qua các lần tái sinh. Nguyên nhân được xác định là do tính oxy hóa mạnh của MnO_2 đã gây ra các tác động tiêu cực lên cấu trúc nền polymer hữu cơ. Đây là phát hiện có giá trị khoa học cao, giúp định hướng việc lựa chọn vật liệu xúc tác phù hợp cho các ứng dụng thực tiễn.

Về cơ sở khoa học, nghiên cứu đã làm sáng tỏ cơ chế hoạt động của hệ vật liệu thông qua các mô hình động học và thực nghiệm bắt gốc tự do. Quá trình quang xúc tác trên màng tuân theo mô hình động học giả bậc một, trong đó sự hình thành của các gốc tự do $\cdot\text{O}_2^-$ và $\cdot\text{OH}$ đóng vai trò chủ đạo. Việc kết hợp thành công giữa MOFs và kim loại oxide để hình thành cấu trúc dị thể đã được chứng minh là giải pháp hiệu quả giúp thúc đẩy quá trình phân tách và hạn chế sự tái hợp của cặp điện tử - lỗ trống, từ đó nâng cao hiệu suất lượng tử tổng thể.

Kết quả của luận án mang lại ý nghĩa thực tiễn to lớn, mở ra triển vọng áp dụng công nghệ màng xúc tác quang trong xử lý nước thải dệt nhuộm và công nghiệp hóa chất. Với ưu điểm về độ bền cơ học, khả năng hoạt động trong vùng ánh sáng khả kiến và không yêu cầu quy trình thu hồi phức tạp, các hệ màng CuO và $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{UiO-66-NO}_2/\text{TFC-PA}$ hoàn toàn phù hợp để triển khai trong các hệ thống lọc dòng chảy liên tục, góp phần giảm thiểu chi phí vận hành và thúc đẩy các giải pháp công nghệ "xanh" bảo vệ môi trường.

12. Các hướng nghiên cứu tiếp theo:

- Tiến hành khảo sát xử lý trên các mẫu nước thải thực tế.

- Nghiên cứu khảo sát khả năng tách lọc của màng.
- Nghiên cứu mở rộng quy mô, ứng dụng hệ màng vào thực tiễn.

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

- **Thien Le Trinh**, Ngoc Thi Phung, Son Thanh Le, Dai Xuan Trinh, “Fabrication of CuO/UiO-66-NO₂/TFC-PA catalytic film for the removal of organic contaminant”, *Chemical Engineering Research and Design*, Vol. 199, pp. 497-506, 2023.
- **Trịnh Lê Thiện**, Lê Thanh Sơn, Trịnh Xuân Đại, “Nghiên cứu tổng hợp vật liệu xúc tác dạng màng Fe₂O₃/UiO-66-NO₂/TFC-PA ứng dụng xử lý chất hữu cơ trong nước”, *Tạp chí Xúc tác và Hấp phụ Việt Nam*, Vol. 12, pp. 75-82, 2023.
- **Trịnh Lê Thiện**, Đinh Thị Hiên, Phùng Thị Ngọc, Lê Thanh Sơn, Trịnh Xuân Đại, “Nghiên cứu tổng hợp vật liệu xúc tác quang CuO/UiO-66-NO₂ ứng dụng xử lý chất hữu cơ trong nước”, *Tạp chí Phân tích Hóa, Lý và Sinh học Việt Nam*, Vol. 29, pp. 71-77, 2023.
- Lê Hồng Nhung, Cao Thị Thúy, Nguyễn Xuân Tân, **Trịnh Lê Thiện**, Lê Thanh Sơn, Trịnh Xuân Đại, “Tổng hợp hạt nano từ tính UiO-66-NO₂/Fe₃O₄ ứng dụng để hấp phụ chất màu hữu cơ trong nước”, *Tạp chí Xúc tác và Hấp phụ Việt Nam*, Vol. 13, pp. 69-73, 2024.

Hà Nội, ngày 16 tháng 12 năm 2025

TM. Tập thể hướng dẫn
(Ký và ghi rõ họ tên)

Nghiên cứu sinh
(Ký và ghi rõ họ tên)



Trịnh Lê Thiện

INFORMATION ON DOCTORAL THESIS

1. Full name: Trinh Le Thien
2. Sex: Male
3. Date of birth: 08-10-1994
4. Place of birth: Ho Chi Minh City
5. Admission decision number 3484/QĐ-ĐHKHTN dated 15/12/2021 by
University of Science, Vietnam National University, Hanoi
6. Changes in academic process
7. Official thesis title: Synthesis of catalysts containing several types of metal oxides UiO-66-NO₂ on polymer substrates for the treatment of toxic organic substances.
8. Major: Petrochemical
9. Code: 9520301.02
10. Supervisors: Prof PhD Le Thanh Son and PhD Trinh Xuan Dai
11. Summary of the new findings of the thesis

The primary objective of this thesis is to address the technical limitations associated with traditional powdered photocatalysts, specifically the challenges regarding catalyst recovery and the rapid recombination of electron-hole pairs. To overcome these obstacles, the research focuses on developing heterojunction material systems that operate effectively under visible light, while simultaneously optimizing their immobilization onto a polymer matrix. The ultimate goal is to generate a class of high-durability photocatalytic membranes oriented towards sustainable wastewater treatment applications.

Regarding synthesis technology, the thesis has successfully established a novel synthesis protocol to integrate semiconductor composite systems based on metal oxides (CuO, Fe₂O₃, MnO₂) and functionalized metal-organic frameworks (UiO-66-NO₂) into the structure of a Polyamide (PA) thin-film supported by a Polysulfone (PSf) substrate. The synthesized materials not only possess large specific surface areas (460 - 908 m²/g) with narrow band gap energies (2.1 - 2.25 eV) but are also well-dispersed and firmly immobilized within the selective layer. This approach facilitates the creation of thin-film

composite (TFC) photocatalytic membranes exhibiting high activity and surface stability, thoroughly resolving the issue of post-treatment catalyst separation and recovery.

The most significant contribution of this study is the systematic comparative assessment of the efficiency and operational durability among different metal oxide-modified membrane systems. Experimental results confirm the superiority of the membranes containing CuO and Fe₂O₃, achieving Methylene Blue removal efficiencies exceeding 99%, while maintaining stable activity (> 97%) after multiple reuse cycles. Conversely, although the MnO₂-containing membrane demonstrated significant treatment capability even at high pollutant loads, it revealed a major limitation regarding durability, with efficiency declining rapidly across regeneration cycles. This degradation was attributed to the strong intrinsic oxidizing property of MnO₂, which exerted detrimental effects on the organic polymer matrix structure. This finding is of high scientific value, providing critical guidance for the selection of appropriate catalytic materials for practical applications.

Regarding the scientific basis, the study elucidated the operating mechanism of the material systems through kinetic models and radical scavenging experiments. The on-membrane photocatalytic process was found to follow the pseudo-first-order kinetic model, in which the formation of superoxide ($\bullet\text{O}_2^-$) and hydroxyl ($\bullet\text{OH}$) radicals plays a dominant role. The successful combination of MOFs and metal oxides to form heterojunction structures was proven to be an effective solution to promote charge separation and suppress electron-hole pair recombination, thereby enhancing the overall quantum efficiency.

The findings of this thesis offer immense practical significance, opening up promising prospects for the application of photocatalytic membrane technology in the treatment of textile dyeing and chemical industry wastewater. With advantages in mechanical strength, visible-light activity, and the elimination of complex recovery processes, the CuO and Fe₂O₃/UiO-66-NO₂/TFC-PA membrane systems are highly suitable for deployment in continuous flow

filtration systems, contributing to minimizing operational costs and promoting "green" technology solutions for environmental protection.

12. Further research directions

- Conduct treatment performance assessments on real wastewater samples.
- Investigate the filtration and separation capabilities of the membrane.
- Research the scalability and practical implementation of the membrane system.

13. Thesis-related publications

- **Thien Le Trinh**, Ngoc Thi Phung, Son Thanh Le, Dai Xuan Trinh, "Fabrication of CuO/UiO-66-NO₂/TFC-PA catalytic film for the removal of organic contaminant", Chemical Engineering Research and Design, Vol. 199, pp. 497-506, 2023.
- **Thien Le Trinh**, Son Thanh Le, Dai Xuan Trinh, "Synthesis of Fe₂O₃/UiO-66-NO₂/TFC-PA catalytic membrane for the treatment of organic compounds in water", Vietnam Journal of Catalysis and Adsorption, Vol. 12, pp. 75-82, 2023.
- **Thien Le Trinh**, Hien Thi Dinh, Ngoc Thi Phung, Son Thanh Le, Dai Xuan Trinh, "Synthesis of CuO/UiO-66-NO₂ photocatalytic material applied for organic matter treatment in water", Vietnam Journal of Analytical Sciences, Vol. 29, pp. 71-77, 2023.
- Nhung Hong Le, Thuy Thi Cao, Tan Xuan Nguyen, **Thien Le Trinh**, Son Thanh Le, Dai Xuan Trinh, "Synthesis of magnetic UiO-66-NO₂/Fe₃O₄ nanoparticles for adsorption of organic dyes in water", Vietnam Journal of Catalysis and Adsorption, Vol. 13, pp. 69-73, 2024.

Hanoi, December 16, 2025

**On behalf of the academic
supervisors**

PhD. Student



Trinh Le Thien

