

# TĂNG CƯỜNG KHẢ NĂNG CHỐNG CHÁY CỦA POLYURETHANE PHỦ SOL SILICA TỔNG HỢP TỪ NATRI SILICAT

## IMPROVEMENT OF FLAME RETARDANCY OF NANOSILICA COATED POLYURETHANE USING SODIUM SILICATE AS SILICA SOURCE

Phạm Thị Thu Trang<sup>1,2</sup>, Nguyễn Bá Mạnh<sup>1,3</sup>, Lê Hà Giang<sup>1</sup>,  
Phạm Thị Thu Giang<sup>4</sup>, Trịnh Đức Công<sup>1,2</sup>, Vũ Anh Tuấn<sup>1,2,\*</sup>

### TÓM TẮT

Bài báo trình bày về tổng hợp dung dịch sol silica bằng phương pháp trao đổi ion từ nguồn thủy tinh lỏng. Dung dịch sol silica được phủ lên bề mặt vật liệu polyurethane bằng phương pháp nhúng phủ. Vật liệu polyurethane phủ nano silica được đặc trưng bởi các phương pháp hóa lý hiện đại như: FTIR, XRD, EDX, TGA, SEM. Tính chất chống cháy của vật liệu được đánh giá thông qua phương pháp UL-94V và chỉ số oxy giới hạn LOI. Ngoài ra tính chất cơ lý như độ bền kéo đứt, độ bền va đập, độ bền nén cũng được khảo sát và đánh giá. Kết quả cho thấy vật liệu polyurethane phủ nano silica đã tăng cường khả năng khả năng chống cháy của vật liệu polyurethane, chỉ số oxy giới hạn LOI tăng 19,0 lên 31,0% và tính chất cơ lý của vật liệu như độ bền kéo đứt, va đập được cải thiện.

**Từ khóa:** Sol silica; phương pháp nhúng phủ; vật liệu polyurethane phủ nano silica; khả năng chống cháy.

### ABSTRACT

The paper reports the synthesis of silica sol by ion exchange method using sodium silicate as silica source. Nano silica particles are deposited on polyurethane surface by the deep coating method. Nano silica coated polyurethane are characterized by XRD, FTIR, SEM, EDX and TG-DTA. Flame retardance properties of the materials are determined by UL-94 method and the limiting oxygen impact resistance strength and compressive are examined and evaluated. From the obtained results, it revealed that flame retardancy of the materials is improved, LOI value increased from 19% to 31% and the mechanical properties like tensile strength, impact resistance strength are improved

**Keywords:** Silica sol; deep coating method; nano silica coated polyurethane; flame retardancy of the materials.

<sup>1</sup>Viện Hóa học, Viện Hàn lâm Khoa học và Công nghệ Việt Nam

<sup>2</sup>Học viện Khoa học và Công nghệ, Viện Hàn lâm Khoa học và Công nghệ Việt Nam

<sup>3</sup>Trường Đại học Bách khoa Hà Nội

<sup>4</sup>Trường Đại học Công nghiệp Hà Nội

\*Email: vuanhtuan.vast@gmail.com

Ngày nhận bài: 20/01/2020

Ngày nhận bài sửa sau phản biện: 15/6/2020

Ngày chấp nhận đăng: 23/12/2020

### 1. GIỚI THIỆU

Polyurethane (PU) là một trong những loại nhựa polyme quan trọng nhất được tổng hợp từ diisocyanate hoặc

polyisocyanate và oligomeric hydroxyl polyol [1]. Polyurethane được ứng dụng rộng rãi trong công nghiệp và đời sống xã hội như nội thất, bao bì, đệm an toàn [2]. Polyurethane có tính cách nhiệt, cách âm tốt, khả năng chịu lực cao, bền hóa chất, có khả năng chống ăn mòn, dễ gia công và dễ kết dính với các loại vật liệu khác [3]. Tuy nhiên, Polyurethane có nhược điểm là tính dễ bắt cháy cao, sinh ra nhiều khói và khí độc trong quá trình cháy gây ảnh hưởng đến môi trường hạn chế phạm vi ứng dụng của vật liệu. Các hợp chất chống cháy chứa halogen, photpho, lưu huỳnh thường được sử dụng làm phụ gia làm giảm khả năng bắt cháy của các loại vật liệu polymer [4, 5]. Tuy nhiên, hiện nay các hợp chất chống cháy chứa halogen đã bị hạn chế sử dụng do quá trình cháy chúng sinh ra nhiều chất độc hại, ảnh hưởng nghiêm trọng đến con người và môi trường [6, 7]. Chất chống cháy có bản chất vô cơ như nanosilica, nano alumino - silica, nano clay thường được sử dụng phân tán lên bề mặt polymer nhằm tạo ra lớp bảo vệ cách nhiệt và chống cháy đồng thời tính chất cơ lý cũng được cải thiện. Trong số các chất chống cháy có hiệu quả, nano silica được quan tâm nghiên cứu và phát triển do vật liệu này thân thiện môi trường, không gây độc hại và có hiệu quả cao trong việc làm chậm hoặc chống cháy [8, 9]. Nano silica thường được tổng hợp từ nguồn silic hữu cơ như tetraorthoethyl silicate (TEOS). Tuy nhiên, do giá thành của TEOS rất cao (2-3 triệu VNĐ/lit) nên việc sử dụng nano silica ở quy mô lớn bị hạn chế, khó cạnh tranh trên thị trường. Trong nghiên cứu này, chúng tôi tổng hợp sol silica bằng phương pháp trao đổi ion từ nguồn nguyên liệu thủy tinh lỏng. Dung dịch sol silica được phủ lên bề mặt polyurethane để tăng cường khả năng chống cháy và tăng tính chất cơ lý của vật liệu. Ảnh hưởng hàm lượng nano silica (thông qua số lần phủ) đến tính năng chống cháy (UL-94, LOI) và tính chất cơ lý của vật liệu được khảo sát và đánh giá.

### 2. THỰC NGHIỆM

**Hóa chất sử dụng:** 4,4'-Diphenylmethane diisocyanate (MDI, 3,996mmol/g) 98% (Merck), dibutyltin dilaurate (DBTDL) 95% (Merck); Tetrahydrofuran (THF) 99% (Merck); glycerol 99% (Merck), và polyethylene glycol 400g/mol (PEG-400) 40% (Merck), Merck; thủy tinh lỏng có tỷ trọng 1,4 - 1,42; hàm lượng SiO<sub>2</sub>: 27% (Merck); kali hidroxit 85%

(Merck), nhựa trao đổi ion Amberlite™ IR120 (Dow chemical) (Merck).

**2.1. Tổng hợp dung dịch sol silica**

Dung dịch sol silica được tổng hợp bằng phương pháp trao đổi ion [10] sử dụng nhựa trao đổi ion Amberlite và thủy tinh lỏng từ là nguồn silic.

Quy trình tổng hợp sol silica gồm những bước sau:

- Bước 1: tạo dung dịch natri silicat bằng cách pha loãng thủy tinh lỏng với nước cất đạt nồng độ khoảng 10% và khuấy trong 30 phút.

- Bước 2: tiến hành trao đổi ion Na<sup>+</sup> với ion H<sup>+</sup> của nhựa trao đổi ion Amberlite để tạo thành dung dịch axit silicic nồng độ 10% SiO<sub>2</sub>.

- Bước 3: đổ dung dịch KOH 0,1M (đã được gia nhiệt đến 80°C) từ từ vào dung dịch axit silicic nồng độ 10% SiO<sub>2</sub> ở trên đã được gia nhiệt ở 80°C và điều chỉnh pH đạt 8 - 10 để tạo sol silica (dạng hoạt động - mới được hình thành)

- Bước 4: Cô đặc sol silica trong điều kiện áp suất chân không, nhiệt độ 90°C cho đến khi thu được sol có hàm lượng SiO<sub>2</sub> khoảng 10% kích thước 3 - 4nm (ở pH = 8,5 - 9).

**2.2. Tổng hợp vật liệu PU**

Polyurethane được tổng hợp từ polyol với disocyanat với sự có mặt của chất tạo xốp và các loại phụ gia khác. PU được tạo ra theo phương pháp đổ khuôn. Tiến hành cân nguyên liệu, hóa chất theo tỷ lệ đơn phối liệu lựa chọn vào 2 cốc riêng biệt. Một cốc đựng MDI, cốc còn lại chứa hỗn polyol và các phụ gia khác, tỷ lệ giữa MDI/polyol là 1/4 về khối lượng. Khuấy trộn kỹ hỗn hợp trong cốc thứ 2, sau đó đổ nhanh cốc thứ nhất chứa MDI và khuấy bằng máy khuấy. Sau khi hỗn hợp 2 cốc được trộn đều, đổ nhanh hỗn hợp vừa khuấy vào khuôn rồi đóng khuôn.

**2.3. Tổng hợp vật liệu sol silica/PU**

Chuẩn bị mẫu PU có kích thước 60x40 mm và dày 5 mm. Cho mẫu PU vào 50 ml dung dịch sol silica 10% rung siêu âm 2 phút. Mẫu sol silica/PU được sấy khô ở 80°C trong 1 giờ. Ký hiệu mẫu sol silica/PU-1. Các mẫu sol silica/PU-3, sol silica/PU-5 và sol silica/PU-7 được thực hiện tương tự với số lần lặp lại.

**2.4. Các phương pháp đặc trưng vật liệu**

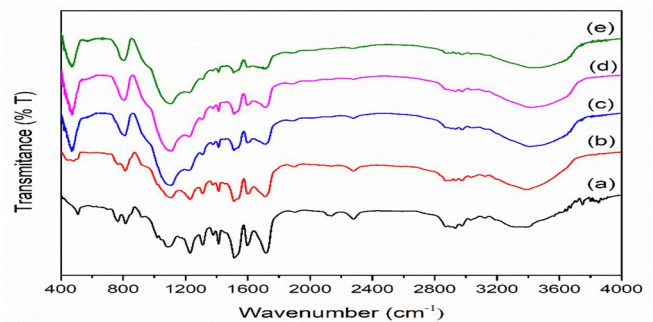
Các mẫu vật liệu được đặc trưng bằng phương pháp nhiễu xạ tia X ở 10 - 80° (D8 ADVANCE, Bruker, Đức) sử dụng Cu K<sub>α1</sub> bức xạ đồng (λ = 0,154nm), tốc độ quét 3°min<sup>-1</sup>. Phổ hồng ngoại FTIR được phân tích trên máy JASCO(USA) - FT/IR-4100. Hình thái của nanocomposite được quan sát bằng kính hiển vi SEM S-4800 (Hitachi, Nhật Bản), hoạt động ở điện áp gia tốc 200kV. Phân tích quang phổ tia X phân tán năng lượng (EDX) được đo trên JED-2300 với lớp phủ vàng. Phân tích nhiệt TGA được đo trên máy phân tích nhiệt vi sai Labsys evo TG-DTA 1600 (Setaram - Pháp). Khả năng chống cháy của phân liệu sol silica được phân tích bằng các chỉ số oxy giới hạn (LOI) (Đo tại trường Đại học Bách khoa Hà Nội) được xác định dựa trên các chuẩn: ASTM D2863, BS ISO4589-2, khả năng bắt cháy UL-94 theo tiêu chuẩn ASTM D635 và ASTM D568 và

các tính chất cơ lý: độ bền nén (theo tiêu chuẩn ASTM D1621, trên máy đo kéo nén đa năng zwick Z2.5 Viện Kỹ thuật nhiệt đới, Viện Hàn lâm Khoa học và Công nghệ Việt Nam, mẫu đo có độ dày 5cm kích thước 10 inch), độ bền va đập (theo tiêu chuẩn ASTM D256, trên thiết bị đánh giá độ bền va đập Izod và Charpy 402D-Z2, Viện Kỹ thuật nhiệt đới, Viện Hàn lâm Khoa học và Công nghệ Việt Nam, mẫu đo có độ dày 3 - 5mm, chiều rộng 13mm và chiều dài 65mm, độ bền kéo (theo tiêu chuẩn ASTM D882, trên máy phân tích cơ lý đa năng Gotech AI-7000M, Viện Hoá học, Viện Hàn lâm Khoa học và Công nghệ Việt Nam, mẫu thành hình mác chèo kích thước: 25 x 110mm).

**3. KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN**

**3.1. Phổ hồng ngoại FTIR**

Giản đồ phổ hồng ngoại FTIR vật liệu PU và sol silica/PU được thể hiện ở hình 1.

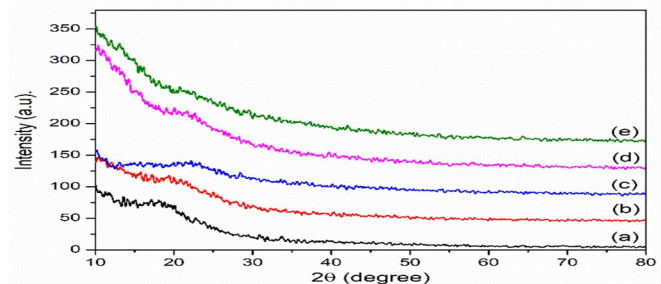


Hình 1. Phổ hồng ngoại FTIR mẫu PU và vật liệu sol silica/PU

(a) PU ban đầu; (b) sol silica/PU-1; (c) sol silica/PU-3; (d) sol silica/PU-5; (e) sol silica/PU-7

Giản đồ FTIR hình 1 cho thấy, vật liệu PU có các dao động liên kết của nhóm N-H ở 3415 - 3419cm<sup>-1</sup>, đỉnh peak ở dao động 1646cm<sup>-1</sup> đặc trưng cho dao động của nhóm C = O. Sau khi phủ lớp sol silica lên bề mặt PU xuất hiện các dao động ở 803 - 813cm<sup>-1</sup> đặc trưng cho dao động của nhóm Si-O-Si bất đối xứng và tần số dao động ở 466 - 467cm<sup>-1</sup> đặc trưng cho dao động nhóm Si-O-Si đối xứng. Hơn nữa, dao động ở 3415 - 3419cm<sup>-1</sup> rộng hơn và lớn hơn so với mẫu PU ban đầu [11]. Liên kết hydro là tương tác quan trọng nhất trong polyurethan và có xu hướng ảnh hưởng đến tính chất vĩ mô của lớp phủ [12].

**3.2. Kết quả nhiễu xạ tia X (XRD)**



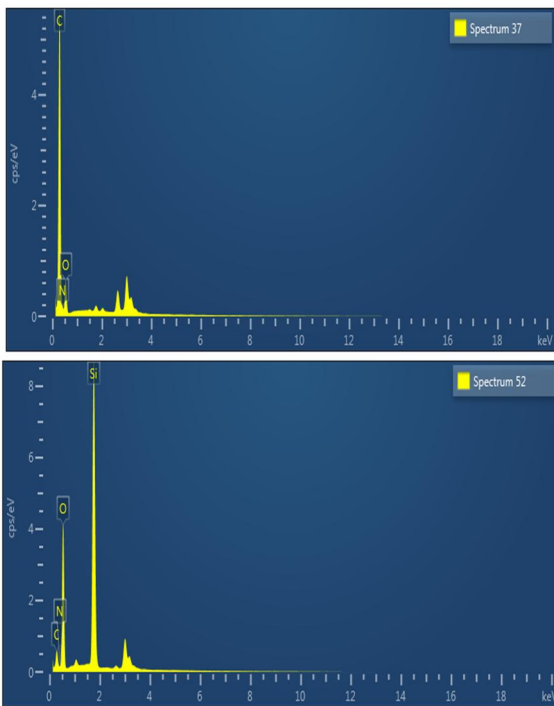
Hình 2. Giản đồ XRD của vật liệu PU và sol silica/PU

(a) PU ban đầu; (b) sol silica/PU-1; (c) sol silica/PU-3; (d) sol silica/PU-5; (e) sol silica/PU-7

Giản đồ XRD hình 2 cho thấy, mẫu PU ban đầu xuất hiện peak ở  $2\theta = 19,8^\circ$  tương ứng với  $d = 0,47\text{nm}$ , đặc trưng cho cấu trúc tinh thể nhỏ và sự sắp xếp một phần các phân đoạn chuỗi PU [11]. Kết quả XRD vật liệu sol silica/PU không thấy sự xuất hiện peak ở  $2\theta \sim 19^\circ$ , điều này được giải thích bởi vật liệu sol silica đã phủ và che lấp bề mặt mẫu PU. Hơn nữa, cấu trúc pha của vật liệu sol silica tồn tại ở dạng vô định hình.

**3.3. Kết quả phổ tán xạ tia X (EDX)**

Để xác định thành phần hóa học trong mẫu polyurethan và vật liệu sol silica, nghiên cứu tiến hành phân tích tán xạ năng lượng tia X (EDX).



Hình 3. Phổ tán xạ tia X của PU ban đầu và sol silica/PU

Dựa vào bảng 1 và hình 3 phổ tán xạ năng lượng tia X cho thấy, mẫu PU có thành phần chủ yếu là các nguyên tố C, N, O (cacbon chiếm 23,93% khối lượng và 16,48% nguyên tử; oxi chiếm 57,47% khối lượng và 63,51% nguyên tử; nito chiếm 18,61% khối lượng và 20,02% nguyên tử) các thành phần chính này đặc trưng cho cấu tạo hình thành của mẫu PU. Sau khi phủ lớp sol silica lên bề mặt PU xuất hiện thêm silic. Hơn nữa, khi tăng số lần phủ sol silica lên bề mặt PU thì hàm lượng silic tăng đáng kể tăng từ 5,26% lên 20,92 và 30,21 sau 1, 5 và 7 lần phủ sol silica đồng thời hàm lượng O, C, N trong thành phần vật liệu giảm mạnh.

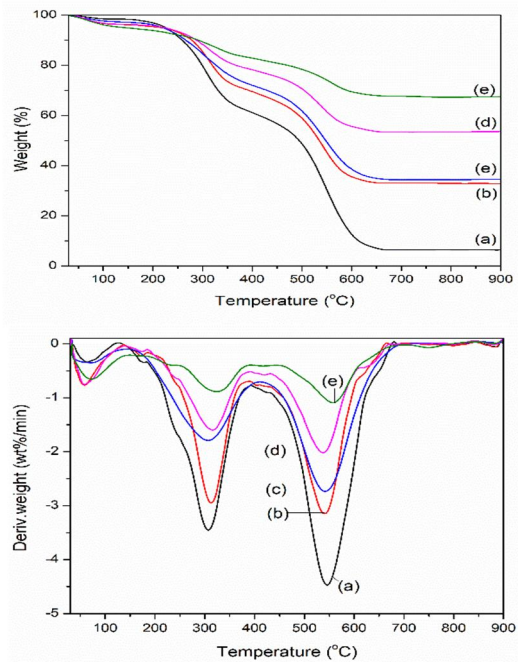
Bảng 1. Thành phần % khối lượng của mẫu PU và sol silica/PU

Nguyên tố	PU <sub>đ</sub>	Sol silica/PU-1	Sol silica/PU-3	Sol silica/PU-5	Sol silica/PU-7
O	57,47	50,91	41,95	41,61	52,47
C	23,93	23,64	33,58	16,93	10,85
N	18,61	20,07	14,54	20,54	6,47
Si	0	5,26	9,93	20,92	30,21

**3.4. Phân tích nhiệt (TGA)**

Các phép đo TGA đã được thực hiện để đánh giá độ ổn định nhiệt của vật liệu PU và sol silica được thể hiện ở hình 4.

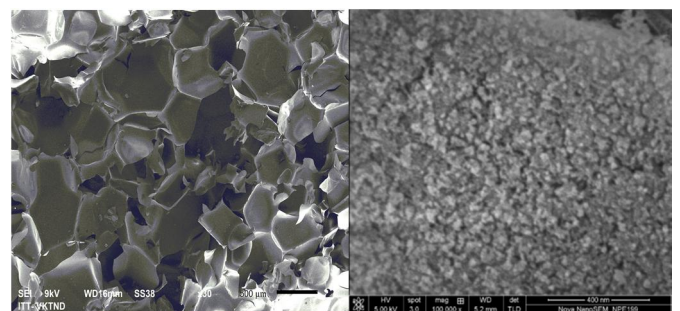
Giản đồ TGA vật liệu PU và sol silica hình 4 cho thấy tất cả các mẫu xuất hiện các giai đoạn giảm khối lượng mẫu. Giai đoạn đầu từ nhiệt độ phòng đến 150°C là do sự bay hơi hơi nước và sự hóa hơi của dung môi. Giai đoạn thứ hai từ 250 - 600°C được quy cho sự phân hủy polymer, do sự phá vỡ liên kết carbon-carbon giữa các liên kết lignin hóa lỏng và urethane (sự phân hủy các liên kết urethane với việc loại bỏ carbon dioxide). Ở khoảng 600°C trên đường cong, khối lượng còn lại là phần khối lượng của hạt nano silica vì sự phân hủy và bay hơi của PU ở giai đoạn 250 - 600°C. Mẫu ban đầu trọng lượng mẫu mất 93%, trong khi đó mẫu sol silica/PU với 1, 3, 5, 7 lần phủ thì trọng lượng mất đi lần lượt là 67%, 65%, 47% và 30%. Cường độ peak ở 532 - 538°C của các mẫu sol silica/PU giảm, cho thấy phản ứng cháy tỏa nhiệt bị khống chế. Như vậy, khi tăng số lần phủ lớp sol silica lên bề mặt PU thì hàm lượng silica phủ lên càng cao, khối lượng mất đi do phân hủy nhiệt, cháy giảm hẳn [13, 14].



Hình 4. Giản đồ TGA về độ ổn định nhiệt của vật liệu PU và sol silica

**3.5. Hiển vi điện tử quét (SEM)**

Hình thái học vật liệu sol silica/PU được thể hiện ở hình 5.



Hình 5. Ảnh SEM vật liệu sol silica/PU

Ảnh SEM vật liệu sol silica/PU cho thấy các hạt sol silica được lấp đầy trên bề mặt PU. Các hạt silica có dạng hình cầu, phân bố tương đối đồng đều, có kích thước 30 - 40nm. Để ý rằng sol silica có kích thước hạt nhỏ cỡ 3 - 4nm, sự hình thành hạt nano silica kích thước 30 - 40nm là do sự cụm các hạt nano silica trên bề mặt PU.

**3.6. Kết quả phân tích UL-94 và chỉ số oxy giới hạn LOI**

Bảng 2. Kết quả phân tích UL-94 và chỉ số oxy giới hạn LOI

Mẫu	UL- 94	LOI (%)
PU ban đầu	V-2	19,0
Sol silica/PU-1	V-1	19,7
Sol silica/PU-3	V-0	23,7
Sol silica/PU-5	V-0	28,5
Sol silica/PU-7	V-0	31,0

Bảng 2 kết quả phân tích LOI cho thấy mẫu PU có chỉ số LOI đạt 19% và thử nghiệm đốt dọc - ngang UL-94 thì tốc độ cháy rất nhanh và cháy hoàn toàn. Sau khi phủ lớp sol silica lên bề mặt PU chỉ số chống cháy LOI tăng từ 19,0% lên 31% sau 7 lần phủ sol silica và giá trị UL-94 tăng từ V2 lên V-0. Như vậy, khi tăng số lần phủ lớp sol silica lên bề mặt PU thì các trị số UL-94 và LOI đều tăng. Điều này được giải thích bởi sự lấp đầy, che phủ của các chất chống cháy nano silica ở gần lớp bề mặt PU hình thành lớp bảo vệ cách nhiệt ức chế sự cháy của PU xấp xỉ khi tiếp xúc với ngọn lửa

**3.7. Tính chất cơ lý của vật liệu**

Tính chất cơ lý của mẫu PU và vật liệu Sol silica/PU được thể hiện ở bảng 3

Bảng 3. Độ bền cơ lý của vật liệu PU và Sol silica/PU

Tên mẫu	Kéo đứt (MPa)	Va đập (KJ/m <sup>2</sup> )	Nén (N/m <sup>2</sup> )
PUbd	0,28	0,278	4,20
Sol silica/PU-1	0,30	0,277	1,94
Sol silica/PU-3	0,38	0,250	1,27
Sol silica/PU-5	0,35	0,145	1,09
Sol silica/PU-7	0,31	0,128	0,98

Độ bền kéo của vật liệu sol silica/PU tăng đáng kể so với mẫu PU. Sự tăng cường độ bền kéo và độ bền va đập có thể lý giải là do sự hiện diện của các hạt nano silica cản trở chuyển động phân đoạn của chuỗi PU thông qua các liên kết silicon-oxy giữa các hạt nano silica và ma trận PU [12]. Điều này cũng được giải thích cho độ bền nén giảm của vật liệu PU phủ nano silica.

**4. KẾT LUẬN**

Từ kết quả thu được, một số kết luận có thể rút ra một số kết luận như sau: Đã tổng hợp thành công dung dịch sol silica từ nguồn thủy tinh lỏng; Đã chế tạo thành công vật liệu PU phủ nano silica với với kích thước hạt 30 - 40nm bằng phương pháp trao đổi ion và độ phân tán cao; Vật liệu PU phủ nano silica dẫn đến hiệu quả là tăng độ bền nhiệt và khả năng chống cháy. Thật vậy, chỉ số LOI tăng từ 19,0% lên 31% và phân loại UL-94 tăng từ V-2 lên V-0; Ngoài ra tính chất cơ lý như độ bền kéo đứt, độ bền va đập cũng được cải thiện. Kết quả này mở ra triển vọng ứng dụng chế tạo vật liệu polyme chịu nhiệt và khả năng chống cháy cao.

**TÀI LIỆU THAM KHẢO**

[1]. Pascault J. P., Sautereau H., Verdu J., Williams R. J. J., 2002. *Glass transition and transformation diagrams in thermosetting polymers*. Thermosetting Polymers, New York, p. 4.

[2]. A. Shokuhi Rad, M. Ardjmsnd, 2009. *Use and Effect of Si/Silica Nano Materials in Polyurethane's Structure*. Asian Journal of Chemistry Vol. 21, No. 5, 3313-3333.

[3]. R. Sharad Mahajan, D. Rahul Rajopadhye, 2013. *Transportation noise and vibration-sources, prediction, and control*. IJSCE., vol.3, pp. 151- 155.

[4]. Vladimir Benin, Bastien Gardelle, Alexander B. Morgan, 2014. *Heat release of polyurethanes containing potential flame retardant based on boron and phosphorous chemistries*. Polymer Degradation and Stability., vol. 106, pp. 108-121.

[5]. Jing Jin, Quan-xiao Dong, Zhong-jun Shu, Wan-jin Wang, Kui HE, 2014. *Flame retardant properties of polyurethane/expandable graphite composite*. Procedia Engineering., vol. 71, pp. 304-309.

[6]. S. Bocchini, G. Camino, 2010. *Halogen - Containing Flame Retardants*. in Fire Retardancy of Polymeric Materials, 2nd ed. C. A. Wilkie, A. B. Morgan Ed. United States of America, CRC Press - Taylor & Francis Group, pp. 75-100.

[7]. L. S. Yu, I. Hamerton, 2002. *Recent developments in the chemistry of halogen-free flame retardant polymers: nitrogen containing flame retardants*. Prog. Polym. Sci. Vol. 27, pp. 1661-1712.

[8]. Long Yan, Zhisheng Xu, Xinghua Wang, 2017. *Influence of nano-silica on the flame retardancy and smoke suppression properties of transparent intumescent fire-retardant coatings*. Progress in Organic Coatings, Volume 112, Pages 319-329.

[9]. Heng Zhan, Junliang Lu, Hongyan Yang, Heng Yang, Jinyan Lang, Qinqin Zhang, 2019. *Synergistic Flame-Retardant Mechanism of Dicyclohexenyl Aluminum Hypophosphite and Nano-Silica*. Polymers, Published: 19.

[10]. Cheng Liu H., Xi Wang J., Mao Y., San Chen R., 1993. *The preparation and growth of colloidal particles of concentrated silica sols colloids surfaces a physicochem. Eng. asp.* 714: 7-13

[11]. Chunhua Wang, Chunfeng Ma, Changdao Mu, Wei Lin, 2017. *Tailor-made zwitterionic polyurethane coatings: microstructure, mechanical property and their antimicrobial performance*. SC Adv., 2017,7, 27522-27529.

[12]. C. M. Brunette, S. L. Hsu, W. J. Macknight, 1982. *Hydrogen-bonding properties of hard-segment model compounds in polyurethane block copolymers*. Macromolecules, 1982, 15, 71 - 77.

[13]. Xiaodong Hong, Wei Dong, Shaobin Yang, Boyuan Mu, Bing Liang, 2015. *Study on structure and performance of reactive silicate reinforced polyurethane composite*. Polymer engineering and science.

[14]. Graziella Trovati, Edgar Ap Sanches, Salvador Claro Neto, Yvonne P. Mascarenhas, Gilberto O. Chierice, 2009. *Characterization of polyurethane resins by FTIR, TGA, and XRD*. Applied polymer.

**AUTHORS INFORMATION**

**Pham Thi Thu Trang<sup>1,2</sup>, Nguyen Ba Manh<sup>1,3</sup>, Le Ha Giang<sup>1</sup>, Pham Thi Thu Giang<sup>4</sup>, Trinh Duc Cong<sup>1,2</sup>, Vu Anh Tuan<sup>1,2</sup>**

<sup>1</sup>Institute of Chemistry, VAST

<sup>2</sup>Graduate University of Science and Technology, VAST

<sup>3</sup>Hanoi University of Science and Technology

<sup>4</sup>Hanoi University of Industry