



Ảnh hưởng của tỉ lệ tiền chất đến đặc trưng cấu trúc và hoạt tính quang xúc tác của vật liệu composite g-C₃N₄/SiO₂

Effect of precursor ratio on the structural characteristics and photocatalytic activity of g-C₃N₄/SiO₂ composite materials

Phan Thị Thùy Trang¹, Nguyễn Tấn Lâm¹, Trịnh Ngọc Đạt², Lê Vũ Trường Sơn²,
Đinh Thanh Khấn², Lê Thị Hòa³, Nguyễn Phi Hùng¹, Nguyễn Thị Lan^{1,*}

¹ Khoa Khoa học Tự nhiên, Trường Đại học Quy Nhơn, Gia Lai, Việt Nam

² Trường Đại học Sư phạm – Đại học Đà Nẵng, Đà Nẵng, Việt Nam

³ Trường Đại học Khoa học – Đại học Huế, Huế, Việt Nam

* Email: nguyenthilan@qnu.edu.vn

ARTICLE INFO

Received: 24/06/2026

Accepted: 30/06/2026

Published: 30/06/2026

Keywords:

CN/SiO₂;

photocatalysis;

Rhodamine B;

visible light; composite

ABSTRACT

In this study, a g-C₃N₄/SiO₂ (CN/SiO₂) composite material was synthesized via a thermal polymerization method using urea as the precursor for g-C₃N₄ and SiO₂ prepared from tetraethyl orthosilicate (TEOS). The effect of the urea/SiO₂ precursor ratio on the structural characteristics and photocatalytic activity of the material was investigated. The synthesized materials were characterized using X-ray diffraction (XRD), Fourier-transform infrared spectroscopy (FT-IR), scanning electron microscopy (SEM), ultraviolet–visible diffuse reflectance spectroscopy (UV-Vis DRS) and photoluminescence (PL) spectroscopy. The results demonstrated the successful formation of the CN/SiO₂ composite, with SiO₂ particles uniformly distributed on the surface of g-C₃N₄ without significantly altering its crystal structure. The CN/SiO₂-30 sample exhibited the lowest photoluminescence intensity, indicating a more effective suppression of photogenerated electron–hole pair recombination compared with the other samples. The photocatalytic activity was evaluated through the degradation of rhodamine B (RhB) under visible-light irradiation. The results showed that the CN/SiO₂-30 sample achieved the highest RhB degradation efficiency, reaching 82.2% after 90 minutes of irradiation, with an apparent reaction rate constant of 0.0193 min⁻¹. In addition, the effects of the initial RhB concentration and solution pH on the photocatalytic process were also investigated.

Giới thiệu chung

Graphitic carbon nitride (g-C₃N₄) là vật liệu bán dẫn không chứa kim loại có năng lượng vùng cấm khoảng

2,7 eV và có khả năng hấp thụ ánh sáng khả kiến hiệu quả. Nhờ đặc tính ổn định nhiệt, ổn định hóa học và dễ tổng hợp, g-C₃N₄ đã thu hút nhiều sự quan tâm trong lĩnh vực quang xúc tác, đặc biệt là xử lý chất ô nhiễm

hữu cơ và tách nước tạo hydro dưới ánh sáng khả kiến [1, 2]. Tuy nhiên, nhược điểm lớn của g-C₃N₄ là diện tích bề mặt riêng thấp và tốc độ tái tổ hợp electron – lỗ trống quang sinh nhanh, làm hạn chế hiệu quả xúc tác quang. Để cải thiện hoạt tính quang xúc tác của g-C₃N₄, nhiều phương pháp đã được nghiên cứu như pha tạp kim loại, phi kim hoặc tạo composite với các vật liệu bán dẫn khác [3-6]. Trong đó, việc kết hợp g-C₃N₄ với SiO₂ là hướng nghiên cứu tiềm năng do SiO₂ có diện tích bề mặt lớn, độ ổn định cao, giá thành thấp và khả năng phân tán tốt. Việc phân bố các hạt SiO₂ trên bề mặt g-C₃N₄ có thể làm tăng diện tích tiếp xúc, hạn chế sự kết tụ của vật liệu và cải thiện khả năng hấp phụ chất ô nhiễm, từ đó nâng cao hiệu quả quang xúc tác [7].

Trong nghiên cứu này, vật liệu composite CN/SiO₂ được tổng hợp bằng phương pháp nung nhiệt với các tỉ lệ tiền chất khác nhau. Ảnh hưởng của tỉ lệ tiền chất đến cấu trúc, tính chất quang học và hoạt tính quang xúc tác của vật liệu được khảo sát thông qua phản ứng phân hủy RhB dưới ánh sáng khả kiến. Đồng thời, ảnh hưởng của nồng độ ban đầu RhB và pH dung dịch đến hiệu quả xử lý cũng được đánh giá.

Thực nghiệm và phương pháp nghiên cứu

Thực nghiệm

Hóa chất

TEOS (tetraethyl orthosilicate, ≥99,5%), urea (≥99,0%), CTAB (hexadecyltrimethylammonium bromide, ≥99,0%), ethanol (≥99,5%), NH₃ (≥99,0%) và Rhodamine B (RhB, ≥99,0%) được mua từ Sigma-Aldrich và sử dụng trực tiếp mà không qua tinh chế thêm.

Tổng hợp vật liệu

Tổng hợp g-C₃N₄: Cho m gam urea vào chén sứ có nắp đậy kín và nung ở 550 °C trong 1 giờ với tốc độ gia nhiệt 10 °C/phút. Sau khi nung, sản phẩm được rửa bằng nước cất đến trung tính, sấy ở 80 °C trong 12 giờ và ký hiệu là CN.

Tổng hợp SiO₂: Hòa tan 0,16 g CTAB vào 50 mL nước cất, sau đó thêm 15 mL ethanol và 1 mL dung dịch NH₃. Hỗn hợp được khuấy trong 30 phút. Tiếp theo, nhỏ từ từ 1 mL TEOS vào dung dịch và tiếp tục khuấy trong 24 giờ. Chất rắn thu được được ly tâm, rửa bằng nước cất và ethanol nhiều lần, sau đó sấy ở 60 °C trong 24 giờ để thu SiO₂.

Tổng hợp composite CN/SiO₂: Trộn đều 0,1 g SiO₂ với m gam urea (m = 1; 3; 5), nghiền mịn và nung ở 550 °C trong 1 giờ trong môi trường khí Ar. Sản phẩm sau nung

được rửa đến trung tính, sấy ở 80 °C trong 12 giờ và ký hiệu tương ứng là CN/SiO₂-10, CN/SiO₂-30 và CN/SiO₂-50.

Phương pháp đặc trưng vật liệu

Giản đồ nhiễu xạ tia X (XRD) được ghi trên máy Bruker D8 Advance sử dụng bức xạ CuKα (λ = 1,540 Å). Phổ hồng ngoại FT-IR được đo trên máy PerkinElmer GX. Hình thái bề mặt vật liệu được khảo sát bằng kính hiển vi điện tử quét SEM (Nova Nano SEM 450). Phổ UV-Vis DRS được ghi trên máy Shimadzu UV-2600. Phổ phát quang PL được sử dụng để đánh giá khả năng tái tổ hợp electron – lỗ trống quang sinh.

Khảo sát hoạt tính quang xúc tác

Cho 0,1 g vật liệu vào 100 mL dung dịch RhB có nồng độ 10 mg/L. Hỗn hợp được khuấy trong bóng tối 60 phút để đạt cân bằng hấp phụ – giải hấp phụ trước khi chiếu sáng bằng đèn LED 30 W. Mẫu dung dịch được lấy định kỳ mỗi 10 phút và xác định nồng độ RhB bằng phương pháp UV-Vis tại bước sóng 553 nm.

Hiệu suất phân hủy RhB của các vật liệu được xác định theo công thức:

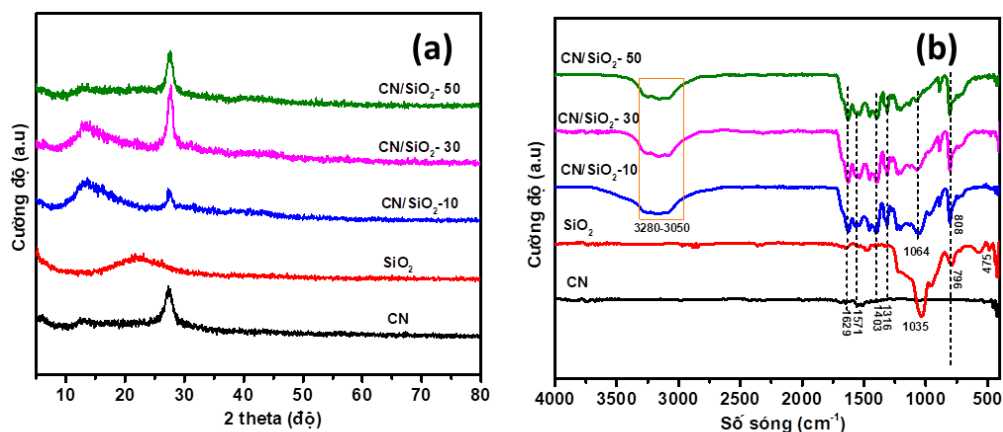
$$H = \frac{C_o - C_t}{C_o} \times 100\%$$

trong đó, C_o là nồng độ đầu của RhB tại thời điểm đạt cân bằng hấp phụ – giải hấp phụ và C_t là nồng độ RhB tại từng thời điểm khảo sát.

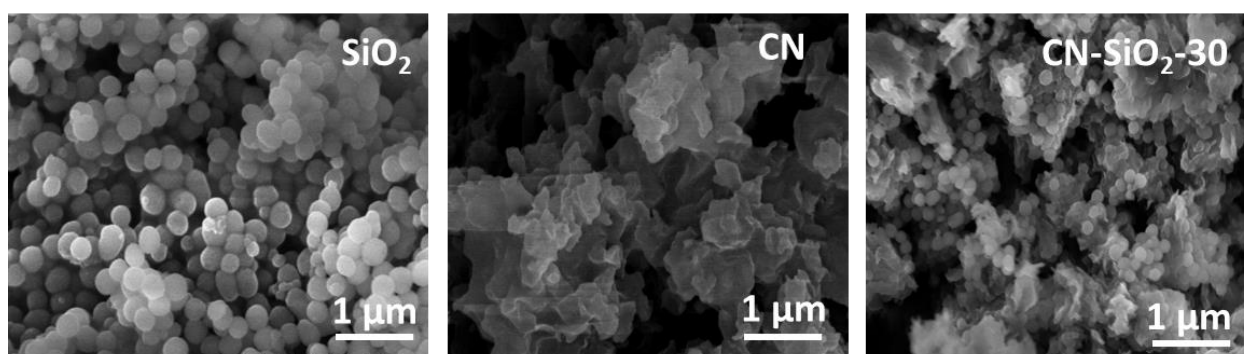
Kết quả và thảo luận

Giản đồ XRD của các mẫu CN, SiO₂ và CN/SiO₂-x được trình bày ở Hình 1a. Đối với SiO₂, xuất hiện một đỉnh rộng tại 2θ ≈ 22° đặc trưng cho cấu trúc vô định hình của silica [8]. Trong các mẫu composite CN/SiO₂-x, hai đỉnh đặc trưng của g-C₃N₄ tại khoảng 13,0° và 27,4° tương ứng với các mặt tinh thể (100) và (002) vẫn được duy trì. Điều này cho thấy sự hình thành composite không làm thay đổi đáng kể cấu trúc tinh thể của g-C₃N₄.

Phổ FT-IR của các mẫu được trình bày ở Hình 1b. Đối với SiO₂, đỉnh hấp thụ sắc nét tại 475; 796 và 1035 cm⁻¹ được gán cho dao động biến dạng Si-O-Si, dao động biến dạng Si-OH và dao động hóa trị không đối xứng Si-O-Si. Trong các mẫu composite xuất hiện thêm các dải hấp thụ đặc trưng của g-C₃N₄ như đỉnh tại 808 cm⁻¹ của vòng triazine và các dải trong vùng 1200–1650 cm⁻¹ tương ứng với dao động của liên kết C–N và C=N. Dải rộng nằm ở 3050 – 3280 cm⁻¹ được quy cho dao động hóa trị O-H của H₂O hấp phụ trên bề mặt vật liệu. Các kết quả này chứng minh sự hình thành thành công của vật liệu composite CN/SiO₂ [9].



Hình 1: Giải đồ nhiễu xạ tia X (a) và phổ IR (b) của các mẫu vật liệu CN, SiO₂, CN/SiO₂-x (với x = 10; 30; 50)



Hình 2: Ảnh SEM của các vật liệu SiO₂; CN và composite CN/SiO₂-30

Hình thái và cấu trúc vi mô của SiO₂, CN và CN/SiO₂ đã được nghiên cứu bằng kính hiển vi điện tử quét SEM (Hình 2). Ảnh SEM cho thấy SiO₂ có dạng hạt cầu trong khi g-C₃N₄ có cấu trúc dạng lớp. Trong mẫu CN/SiO₂-30, các hạt SiO₂ được phân tán khá đồng đều trên bề mặt các lớp g-C₃N₄, giúp hạn chế sự kết tụ và làm tăng diện tích tiếp xúc của vật liệu.

Phổ hấp thụ UV-Vis DRS của SiO₂, CN và các mẫu composite CN/SiO₂ được trình bày trong Hình (3a). Có thể nhận thấy SiO₂ tinh khiết chỉ hấp thụ mạnh trong vùng tử ngoại và hầu như không hấp thụ trong vùng ánh sáng khả kiến do có năng lượng vùng cấm rất lớn, vì vậy vật liệu không thể được kích thích dưới ánh sáng khả kiến [10].

Đối với mẫu CN, phổ hấp thụ kéo dài từ vùng tử ngoại đến khoảng 450–470 nm, đặc trưng cho sự chuyển điện tử từ vùng hóa trị (VB) lên vùng dẫn (CB). Khả năng hấp thụ này xuất phát từ cấu trúc liên hợp π của mạng heptazine, tạo nên năng lượng vùng cấm khoảng 2,7 eV và cho phép vật liệu hoạt động dưới ánh sáng khả kiến [1, 10].

Sau khi kết hợp với SiO₂, các mẫu composite CN/SiO₂ vẫn duy trì đặc tính hấp thụ của CN nhưng cường độ hấp thụ thay đổi theo hàm lượng SiO₂. Điều này cho thấy SiO₂ chủ yếu đóng vai trò là chất mang, trong khi sự

tương tác giữa hai pha đã góp phần điều chỉnh cấu trúc điện tử và khả năng thu nhận ánh sáng của vật liệu [10, 11]. Trong các mẫu composite, CN/SiO₂-30 có cường độ hấp thụ cao nhất và mép hấp thụ có xu hướng dịch nhẹ về vùng bước sóng dài hơn so với CN. Hiện tượng dịch đỏ cho thấy sự hình thành giao diện dị thể giữa CN và SiO₂ đã làm tăng khả năng khai thác ánh sáng khả kiến, đồng thời cải thiện hiệu quả truyền và tách điện tích quang sinh. Khi hàm lượng SiO₂ tăng lên 50%, cường độ hấp thụ giảm so với mẫu CN/SiO₂-30. Nguyên nhân có thể là do lượng SiO₂ dư thừa làm giảm tỷ lệ pha hoạt động quang CN và che phủ một phần bề mặt hấp thụ ánh sáng, từ đó làm giảm khả năng thu nhận photon của vật liệu. Nhìn chung, khả năng hấp thụ ánh sáng của các mẫu có xu hướng theo thứ tự: CN/SiO₂-30 > CN/SiO₂-50 ≈ CN/SiO₂-10 > CN >> SiO₂, chứng tỏ tỷ lệ phối trộn thích hợp giữa CN và SiO₂ có vai trò quan trọng trong việc nâng cao tính chất quang học của composite [10, 11].

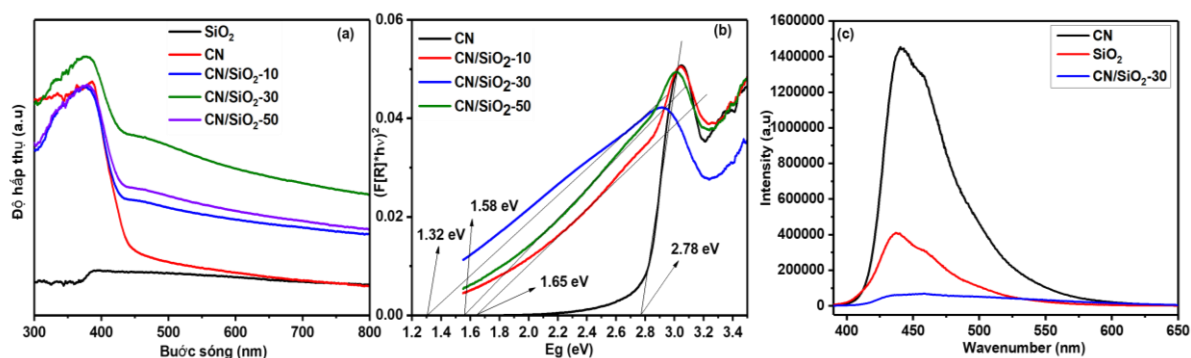
Năng lượng vùng cấm của các mẫu được xác và kết quả thể hiện trên Hình (3b) cho thấy mẫu CN có năng lượng vùng cấm khoảng 2,7 eV, phù hợp với các giá trị đã được công bố đối với g-C₃N₄ và giải thích khả năng hấp thụ ánh sáng đến vùng khả kiến của vật liệu [1, 10]. Sau khi kết hợp với SiO₂, năng lượng vùng cấm của các mẫu

composite giảm nhẹ, trong đó mẫu CN/SiO₂-30 có giá trị nhỏ nhất. Sự thu hẹp vùng cấm được cho là kết quả của tương tác điện tử tại giao diện CN/SiO₂, tạo điều kiện thuận lợi cho quá trình kích thích electron dưới ánh sáng khả kiến và thúc đẩy sự tách cặp electron-lỗ trống quang sinh [10, 11].

Band gap nhỏ hơn đồng nghĩa với việc vật liệu cần năng lượng photon thấp hơn để kích thích electron từ vùng hóa trị lên vùng dẫn, nhờ đó mở rộng vùng hấp thụ sang bước sóng dài hơn và tăng hiệu quả sử dụng ánh sáng mặt trời trong quá trình quang xúc tác [10, 12].

Đối với mẫu CN/SiO₂-50, năng lượng vùng cấm tăng nhẹ trở lại so với CN/SiO₂-30. Điều này có thể được giải thích bởi hàm lượng SiO₂ quá lớn làm giảm tỷ lệ pha bán dẫn CN trong composite, khiến hiệu quả điều chỉnh cấu trúc vùng năng lượng không còn tối ưu [10, 11].

Kết quả xác định năng lượng vùng cấm hoàn toàn phù hợp với phổ hấp thụ UV-Vis DRS. Mẫu CN/SiO₂-30 vừa có cường độ hấp thụ ánh sáng mạnh nhất vừa có năng lượng vùng cấm nhỏ nhất, cho thấy đây là tỷ lệ phối trộn tối ưu để tăng khả năng hấp thụ ánh sáng, thúc đẩy quá trình tạo và tách điện tích quang sinh, từ đó dự kiến mang lại hoạt tính quang xúc tác cao nhất [10-12].



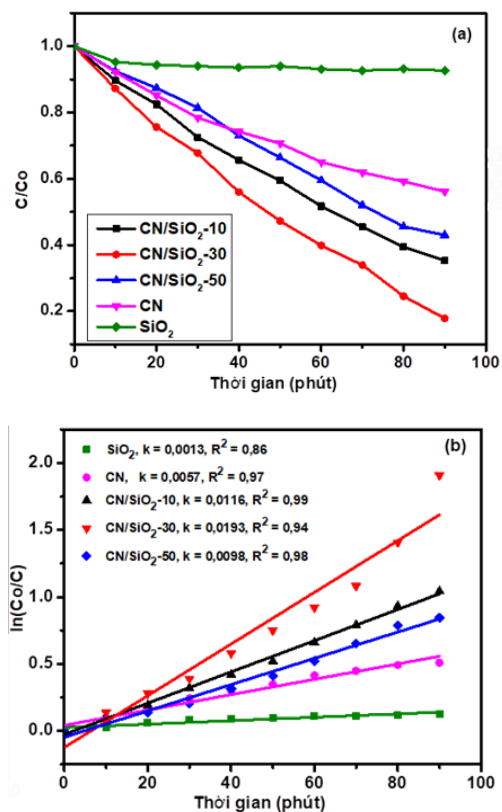
Hình 3: Phổ UV-Vis DRS (a), năng lượng vùng cấm được xác định theo hàm Kubelka-Munk (b) và Phổ PL (c) của các mẫu vật liệu SiO₂, CN, CN/SiO₂-x (với x = 10; 30; 50)

Phổ phát quang (PL) của tất cả các mẫu được thể hiện trong Hình 3c. Kết quả phổ PL cho thấy cường độ phát quang của mẫu CN/SiO₂-30 thấp hơn đáng kể so với CN và SiO₂ tinh khiết. Điều này chứng tỏ sự tái tổ hợp electron – lỗ trống quang sinh bị hạn chế hiệu quả hơn trong vật liệu composite. Sự cải thiện khả năng tách điện tích quang sinh là nguyên nhân quan trọng giúp nâng cao hoạt tính quang xúc tác của mẫu composite [13].

Khảo sát hoạt tính quang xúc tác của các vật liệu

Kết quả sự thay đổi giá trị C/Co theo thời gian của các mẫu vật liệu CN/SiO₂-x được trình bày ở Hình 4. Kết quả phân hủy RhB của các mẫu vật liệu được trình bày ở Hình 4a. Sau 90 phút chiếu sáng, các mẫu composite đều cho hiệu quả phân hủy cao hơn so với các vật liệu đơn lẻ. Trong đó, mẫu CN/SiO₂-30 cho hiệu suất phân hủy RhB cao nhất đạt 82,2%, trong khi CN/SiO₂-10, CN/SiO₂-50, CN, và SiO₂ đạt lần lượt khoảng 64,72%, 57,04%, 64,7% và 7,9%.

Kết quả này có thể được giải thích do sự phân bố đồng đều của SiO₂ trên bề mặt g-C₃N₄ giúp tăng khả năng hấp phụ RhB, đồng thời hạn chế sự tái tổ hợp electron – lỗ trống quang sinh. Ngoài ra, diện tích bề mặt lớn hơn của composite cũng góp phần tăng số lượng tâm hoạt động quang xúc tác.



Hình 4: Hiệu quả quang xúc tác (a) và mô hình động học Langmuir-Hinshelwood (b) của các mẫu vật liệu CN, SiO₂ và CN/SiO₂-x (với x = 10; 30; 50)

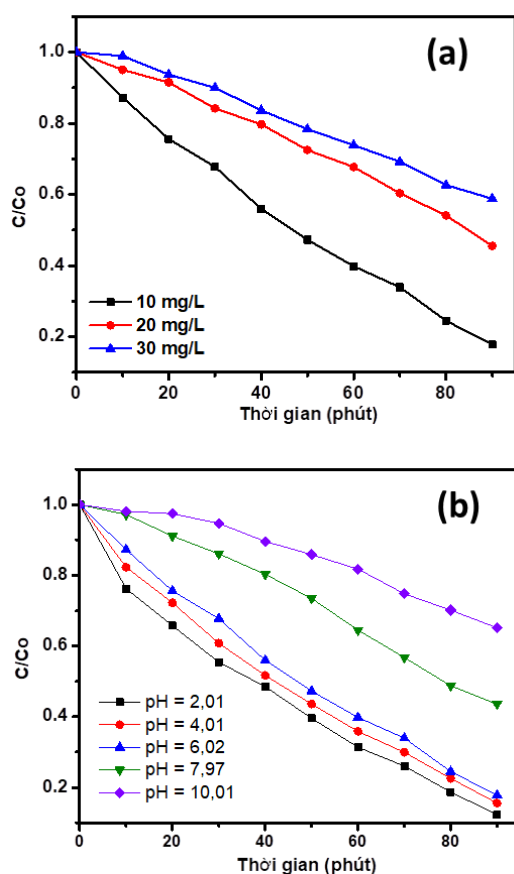
Động học phản ứng được khảo sát theo mô hình Langmuir–Hinshelwood. Kết quả tính toán hằng số tốc độ được trình bày trong Bảng 1.

Bảng 1: Hằng số tốc độ phản ứng quang xúc tác của các mẫu vật liệu

Mẫu	Hằng số tốc độ k (phút ⁻¹)	Hệ số tương quan R ²
CN	0.0057	0.97
SiO ₂	0.0013	0.86
CN/SiO ₂ -10	0.0116	0.99
CN/SiO ₂ -30	0.0193	0.94
CN/SiO ₂ -50	0.0098	0.98

Mẫu CN/SiO₂-30 có hằng số tốc độ lớn nhất, điều này cho thấy vật liệu này là tối ưu cho quá trình tổng hợp vật liệu composite quang xúc tác.

Ảnh hưởng của nồng độ ban đầu dung dịch RhB được tiến hành trong khoảng từ 10 mg/L đến 30 mg/L. Kết quả được thể hiện trên Hình 5.



Hình 5: Ảnh hưởng của nồng độ ban đầu và pH đến quá trình quang phân hủy RhB của mẫu CN/SiO₂-30

Khi tăng nồng độ RhB từ 10 lên 30 mg/L, hiệu suất phân hủy giảm từ 82,2% xuống còn 41,19%. Nguyên nhân là do ở nồng độ cao, các phân tử RhB hấp phụ nhiều trên

bề mặt xúc tác, che phủ các tâm hoạt động và cản trở sự tiếp xúc của ánh sáng với bề mặt vật liệu. Đồng thời, sự gia tăng độ màu của dung dịch cũng làm giảm khả năng xuyên sâu của photon vào hệ phản ứng [14, 15].

pH là một trong những yếu tố ảnh hưởng đến quá trình quang xúc tác của vật liệu khi được sử dụng vào trong thực tế. Thí nghiệm được tiến hành trong những điều kiện pH khác nhau, cụ thể pH = 2,01; 4,01; 6,02; 7,97 và 10,01. Môi trường pH được điều chỉnh ngay từ ban đầu bằng các dung dịch HCl 0,1M và NaOH 0,1M và đo đặc trên máy đo pH HANA HI2211. Kết quả được trình bày ở Hình 5b.

Hình 5b cho thấy, trong vùng acid, hiệu quả phân hủy của RhB đạt 87,8% và 84,3% sau 90 phút chiếu sáng tại các pH = 2,01 và 4,01. Khi pH tăng dần về môi trường trung tính pH = 6,02, hiệu suất phân hủy có giảm không đáng kể còn 82,2%. Vật liệu có sự giảm hoạt tính khi đi vào môi trường base khi hiệu suất giảm rõ rệt xuống 56,5% ở pH = 7,97 và chỉ còn 34,8% khi tăng lên đến pH kiềm mạnh (pH = 10,01). Như vậy, vật liệu có khả năng hoạt động mạnh trong vùng pH khá rộng và phù hợp với môi trường acid. Điều này có thể là do trong môi trường acid, điện tích bề mặt của chất xúc tác quang bị ảnh hưởng. Hơn thế nữa, sự hình thành gốc hydroxyl ($\cdot\text{OH}$) trong môi trường acid nhiều và dễ dàng hơn nên quá trình quang phân hủy xảy ra nhanh. Ngược lại trong môi trường base, các gốc hydroxyl ($\cdot\text{OH}$) tạo ra khó hơn nên làm giảm quá trình quang phân hủy chất màu [16].

Kết luận

Vật liệu composite CN/SiO₂ đã được tổng hợp thành công bằng phương pháp nung nhiệt sử dụng urea và SiO₂ làm tiền chất. Kết quả đặc trưng vật liệu cho thấy các hạt SiO₂ phân bố trên bề mặt g-C₃N₄ mà không làm thay đổi đáng kể cấu trúc tinh thể của vật liệu nền. Mẫu CN/SiO₂-30 cho hoạt tính quang xúc tác tốt nhất với hiệu suất phân hủy RhB đạt 82,2% sau 90 phút chiếu sáng khả kiến và hằng số tốc độ phản ứng đạt 0,0193 phút⁻¹. Ngoài ra, hiệu quả xử lý RhB bị ảnh hưởng đáng kể bởi nồng độ ban đầu và pH dung dịch. Kết quả nghiên cứu cho thấy vật liệu composite CN/SiO₂ có tiềm năng ứng dụng trong xử lý các chất ô nhiễm hữu cơ bằng phương pháp quang xúc tác.

Tài liệu tham khảo

1. X. Wang, K. Maeda, A. Thomas, K. Takanabe, G. Xin, J.M. Carlsson, K. Domen, M. Antonietti, *Nat. Mater.*, 8 (2009) 76-80. <https://doi.org/10.1038/nmat2317>

2. S. Martha, A. Nashim, K. Parida, J. Mater. Chem. A, 1 (2013) 7816-7824. <https://doi.org/10.1039/C3TA10851A>
3. Y. He, J. Cai, T. Li, Y. Wu, Y. Yi, M. Luo, Ind. Eng. Chem. Res., 51 (2012) 14729-14737. <https://doi.org/10.1021/ie301774e>
4. S. Yan, S. Lv, Z. Li, Z. Zou, Dalton Trans., 39 (2010) 1488-1491. <https://doi.org/10.1039/B914110C>
5. G. Liu, P. Niu, C. Sun, S.C. Smith, Z. Chen, G.Q. Lu, H.M. Cheng, J. Am. Chem. Soc., 132 (2010) 11642-11648. <https://doi.org/10.1021/ja103798k>
6. X. Chen, J. Zhang, X. Fu, M. Antonietti, X. Wang, J. Am. Chem. Soc., 131 (2009) 11658-11659. <https://doi.org/10.1021/ja903923s>
7. A. Allahresani, M.A. Nasser, A. Nakhaei, Res. Chem. Intermed., 43 (2017) 6367-6378. <https://doi.org/10.1007/s11164-017-2994-4>
8. Y. Liang, J. Ouyang, H. Wang, W. Wang, P. Chui, K. Sun, Appl. Surf. Sci., 258 (2012) 3689-3694. <https://doi.org/10.1016/j.apsusc.2011.12.006>
9. F.-Y. Chen, M.-K. He, Y.-B. Tang, C.-Y. He, K.-K. Shu, M.-Y. Li, Desalin. Water Treat., 196 (2020) 247-255. <https://doi.org/10.5004/dwt.2020.26046>
10. W.J. Ong, L.L. Tan, Y.H. Ng, S.T. Yong, S.P. Chai, Chem. Rev., 116 (2016) 7159-7329. <https://doi.org/10.1021/acs.chemrev.6b00075>
11. J. Low, J. Yu, M. Jaroniec, S. Wageh, A.A. Al-Ghamdi, Adv. Mater., 29 (2017) 1601694. <https://doi.org/10.1002/adma.201601694>
12. X. Li, J. Yu, M. Jaroniec, X. Chen, Chem. Rev., 119 (2019) 3962-4179. <https://doi.org/10.1021/acs.chemrev.8b00400>
13. J. Li, C. Wang, Y. Ma, K. Li, Y. Mei, RSC Adv., 13 (2023) 13142-13155. <https://doi.org/10.1039/D3RA01850D>
14. M. Muruganandham, N. Sobana, M. Swaminathan, J. Hazard. Mater., 137 (2006) 1371-1376. <https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2006.03.030>
15. M. Salehi, H. Hashemipour, M. Mirzaee, Am. J. Environ. Eng., 2 (2012) 1-7. <https://doi.org/10.5923/j.ajee.20120201.01>
16. K. Prakash, P.S. Kumar, P. Latha, K. Saravanakumar, S. Karuthapandian, J. Inorg. Organomet. Polym. Mater., 28 (2018) 268-278. <https://doi.org/10.1007/s10904-017-0715-5>