

ẢNH HƯỞNG CỦA NHIỆT ĐỘ PHÂN HỦY CÁC MUỐI ĐẾN THÀNH PHẦN VÀ HÌNH THÁI BỀ MẶT ĐIỆN CỰC Ti/SnO₂-Sb₂O₃/PbO₂

Chu Thị Thu Hiền¹, Trần Trung¹, Vũ Thị Thu Hà^{2*}, Nguyễn Ngọc Phong³

¹Trường Đại học Sư phạm và Kỹ thuật Hưng Yên, Dân Tiến, Khoái Châu, Hưng Yên

²Viện Hóa học, Viện Hàn lâm KHCNVN, 18 Hoàng Q. Việt, Cầu Giấy, Hà Nội

³Viện Khoa học Vật liệu, Viện Hàn lâm KHCNVN, 18 Hoàng Q. Việt, Cầu Giấy, Hà Nội

*Email: havt@ich.vast.ac.vn

Đến Tòa soạn: 24/5/2014; Chấp nhận đăng: 24/10/2014

TÓM TẮT

Các điện cực với lớp phủ trung gian SnO₂ - Sb₂O₃ trên nền Ti/SnO₂-Sb₂O₃/PbO₂ được chế tạo bằng phương pháp hủy nhiệt. Nhóm tác giả đã khảo sát cấu trúc, hình thái bề mặt và độ bền của lớp phủ này. Kết quả thu được cho thấy khi nung ở 370 °C, hình thành lớp SbO₂ còn khi nung ở 550 °C, thấy xuất hiện Sn và Sb trong lớp sản phẩm. Ở nhiệt độ nung 420 °C và 480 °C, quan sát thấy lớp Sb₂O₃ mà không còn kim loại Sn và Sb trong sản phẩm nữa. Tuy nhiên, ở nhiệt độ 480 °C, cường độ pic Sb₂O₃ xuất hiện rõ hơn so với nung ở nhiệt độ 420 °C và đây là nhiệt độ tối ưu để thu được lớp phủ SnO₂ - Sb₂O₃ tốt nhất. Kết quả đo đường cong phân cực cho thấy thời gian sống của điện cực này lên tới 290 giờ trong khi mẫu nung ở 370 °C, 420 °C, 550 °C thì thời gian sống của chúng là 115, 270 và 230 giờ tương ứng.

Từ khóa: phân hủy nhiệt, điện cực titan trơ, thời gian sống của điện cực, hình thái bề mặt.

1. GIỚI THIỆU

Anốt trơ trên cơ sở hỗn hợp ôxit kim loại thường được chế tạo từ kim loại nền và lớp phủ hoạt hóa điện hóa. *Kim loại nền* là các kim loại có khả năng thụ động, bền hóa học và điện hóa dưới tác dụng của dòng anốt như titan hoặc tantali. *Lớp phủ hoạt hóa* là lớp hỗn hợp ôxit kim loại trong đó có ôxit kim loại chuyển tiếp dẫn điện, có chức năng cung cấp dòng điện đến bề mặt tiếp giáp điện cực-dung dịch và giữ cho các phản ứng anốt theo yêu cầu xảy ra. Gần đây một số điện cực biến tính bao gồm hỗn hợp hai hoặc ba oxit cũng đã được nghiên cứu Ti-Ta₂O₅-IrO₂ [1], Ti/RuO₂-Nb₂O₅ [2], Ti/SnO₂-RuO₂-IrO₂ [3] và hiệu suất điện hóa đã được tăng lên.

Theo [3], màng mỏng SnO₂ cho nhiều lợi thế như dẫn điện tốt, có khả năng chống ăn mòn cao. Một lớp SnO₂ xen giữa lớp PbO₂ và nền Ti cũng có thể nâng cao tính dẫn điện của các điện cực và cải thiện đặc tính xúc tác. SnO₂ tinh khiết là một chất bán dẫn dạng n [3 - 6]. Dạng ôxit này thể hiện một điện trở suất cao tại nhiệt độ phòng và vì vậy không thể được dùng như một vật liệu điện cực, tuy nhiên, độ dẫn của SnO₂ có thể cải thiện đáng kể bằng cách bổ sung thêm B, Bi,

F, P và Sb [4, 5, 7]. Trong lĩnh vực điện hóa, chất bổ sung chủ yếu cho SnO_2 là Sb [5,7]. Carmem và các cộng sự [8] đã nghiên cứu quá trình oxy hóa các chất ô nhiễm trên điện cực $\text{Ti/SnO}_2\text{-Sb}_2\text{O}_5$, kết quả chỉ ra hiệu suất dòng điện nhận được cao hơn 5 lần so với Pt. Comminellis [9] đã xác định được hiệu suất dòng điện trên điện cực $\text{SnO}_2\text{-Sb}_2\text{O}_5$ là 58 % với 71 % phenol bị tiêu hủy trong khi giá trị hiệu suất dòng điện trên các điện cực PbO_2 , IrO_2 , RuO_2 , và Pt là 18, 17, 14 và 13 % tương ứng. Cũng trên vật liệu điện cực này, Zanta và các cộng sự [8,10] đã nghiên cứu sự oxy hóa của p – chlorophenol và kết quả là tới 75 % chất ô nhiễm bị tiêu hủy. Chen đã so sánh sự phá hủy của các tạp chất khác nhau đạt được giá trị hiệu suất dòng điện phân từ 11 - 50 % và hiệu suất loại bỏ chất ô nhiễm 22 - 65 % tại các giá trị điện lượng riêng khác nhau trong quá trình oxy hóa [6, 11].

Vì thế, nếu sử dụng vật liệu $\text{SnO}_2\text{-Sb}_2\text{O}_3$ làm chất nền của lớp phủ và PbO_2 làm chất dẫn điện thì có thể giảm được đáng kể hàm lượng kim loại quý trong lớp phủ và cải thiện được đặc tính xúc tác của điện cực.

Có nhiều phương pháp có thể chế tạo lớp phủ oxit hoạt hóa trong đó có *phương pháp phân hủy nhiệt* lớp dung dịch muối phủ. Đây là một kỹ thuật đơn giản nhưng hiệu quả, tính chất lớp phủ tốt, diện tích bề mặt thực cao (tăng độ hoạt hóa) [12, 13]. Tuy nhiên, cấu trúc và hình thái học của lớp phủ phụ thuộc nhiều vào nhiệt độ nung và vật liệu ban đầu để tạo oxit cũng như phụ thuộc vào bản chất của vật liệu nền. Bài báo tập trung vào việc nghiên cứu sự ảnh hưởng của nhiệt độ phân hủy các muối SnCl_4 , SbCl_3 tới thành phần và cấu trúc bề mặt điện cực hệ $\text{Ti/SnO}_2\text{-Sb}_2\text{O}_3$, làm tiền đề cho việc chế tạo điện cực sử dụng trong điện phân xử lý nước thải chứa độc chất hữu cơ.

Đặc trưng của bề mặt và các lớp bên trong của màng mỏng được nghiên cứu bằng kính hiển vi điện tử quét (SEM), nhiễu xạ X-ray (XRD). Các đặc tính điện hóa của các điện cực này đã được nghiên cứu bởi phân cực dòng không đổi.

2. THỰC NGHIỆM

2.1. Chế tạo điện cực $\text{Ti/Sb}_2\text{O}_3\text{-SnO}_2/\text{PbO}_2$

Anot $\text{Ti/Sb}_2\text{O}_3\text{-SnO}_2$ được chế tạo bằng phương pháp phân hủy nhiệt. Trước khi phủ các oxit kim loại, nền Ti tan được làm sạch dầu mỡ và tẩy hóa học trong dung dịch axit oxalic (15%). Dung dịch để tạo lớp phủ oxit kim loại được chuẩn bị từ các muối SbCl_3 , SnCl_4 , $\text{Pb(NO}_3)_2$, dung dịch axit HCl (35,5 %), dung môi isopropanol và một số phụ gia khác với thành phần dung dịch 6,0g SnCl_4 ; 1,2 g SbCl_3 , được hòa tan trong 4 ml HCl đậm đặc và 26 ml isopropanol.

Bề mặt các mẫu Ti sau khi được xử lý bề mặt được quét dung dịch phủ nêu trên nhiều lần và làm khô dưới bóng đèn ở nhiệt độ 50 – 70 °C trong 10 phút, tiếp theo được polyme hóa ở 130°C trong 15 phút, sau đó nung trong lò có nhiệt độ 300 °C trong 15 phút. Các bước này được lặp lại từ 10 - 12 lần cho đến khi đạt được chiều dày mong muốn. Lớp cuối cùng được nung ở các nhiệt độ 370 °C, 420°C, 480 °C, 550 °C trong 60 phút tạo điều kiện cho SnO_2 và Sb_2O_3 hình thành trên nền Ti. Như vậy, sau quá trình này ta thu được mẫu điện cực $\text{Ti/SnO}_2\text{-Sb}_2\text{O}_3$.

Lớp phủ PbO_2 được kết tủa ở chế độ dòng tĩnh trên mẫu điện cực $\text{Ti/SnO}_2\text{-Sb}_2\text{O}_3$ bằng cách anot hóa trong dung dịch chứa PbO bão hòa trong 140 g/l NaOH với thời gian là 120 phút tại 40 °C, mật độ dòng anot là 20 mA/cm², sau đó tiếp tục kết tủa PbO_2 từ dung dịch chứa $\text{Pb(NO}_3)_2$ 35 % với thời gian là 120 phút ở 40 °C, mật độ dòng là 80 mA/cm². Điện cực catot là một lồng thép không gỉ đường kính 6 cm.

2.2 Các phương pháp khảo sát đặc trưng điện cực

Điện cực sau khi được chế tạo, hình thái bề mặt và thành phần của các lớp phủ được khảo sát bằng phương pháp SEM trên thiết bị JSM-6499 (Jeol) tại Trung tâm Đánh giá Hư hỏng Vật Liệu (COMFA), Viện Khoa học Vật liệu, Viện Hàn lâm Khoa học và Công nghệ Việt Nam.

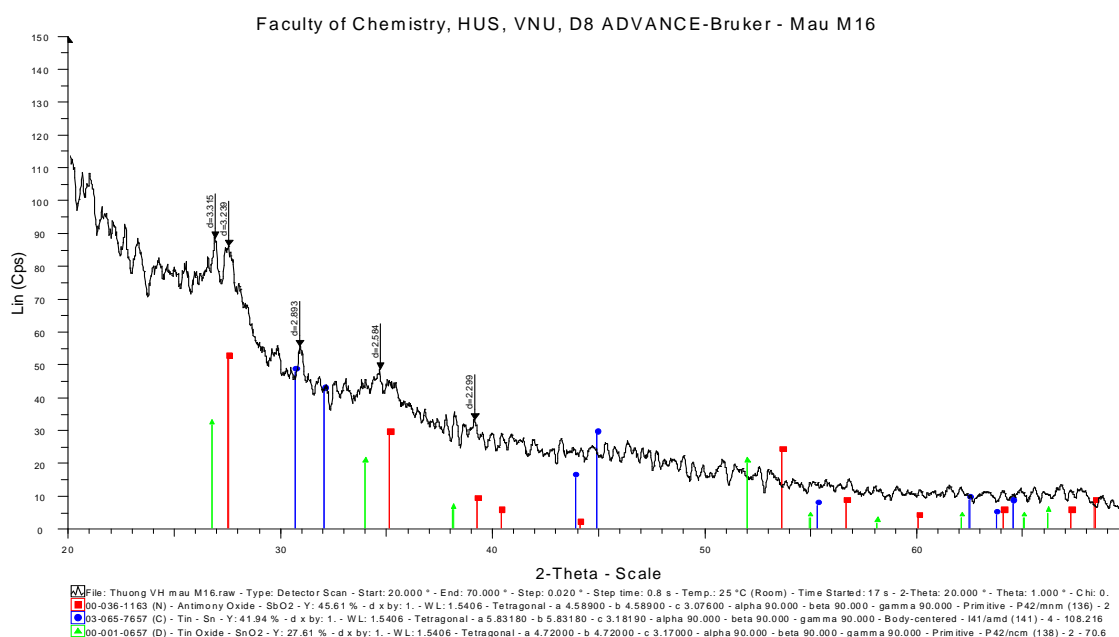
Cấu trúc tinh thể của lớp phủ và thành phần được nghiên cứu bằng XRD trên thiết bị D8 – Advance 5005 tại Khoa Hóa học, Đại học Khoa học Tự nhiên, Đại học Quốc gia Hà Nội.

Các thông số điện hóa của các điện cực được nghiên cứu với hệ 3 điện cực. Điện cực làm việc $\text{Ti/SnO}_2\text{-Sb}_2\text{O}_3/\text{PbO}_2$, điện cực đối là một lồng thép không gỉ có đường kính 6 cm, khoảng cách giữa hai điện cực được khống chế là 3 cm; điện cực so sánh là điện cực calomel bão hòa. Thiết bị đo potentiogalvanostat PGS-HH10 được chế tạo tại Viện Hóa học, Viện Hàn lâm Khoa học và Công nghệ Việt Nam.

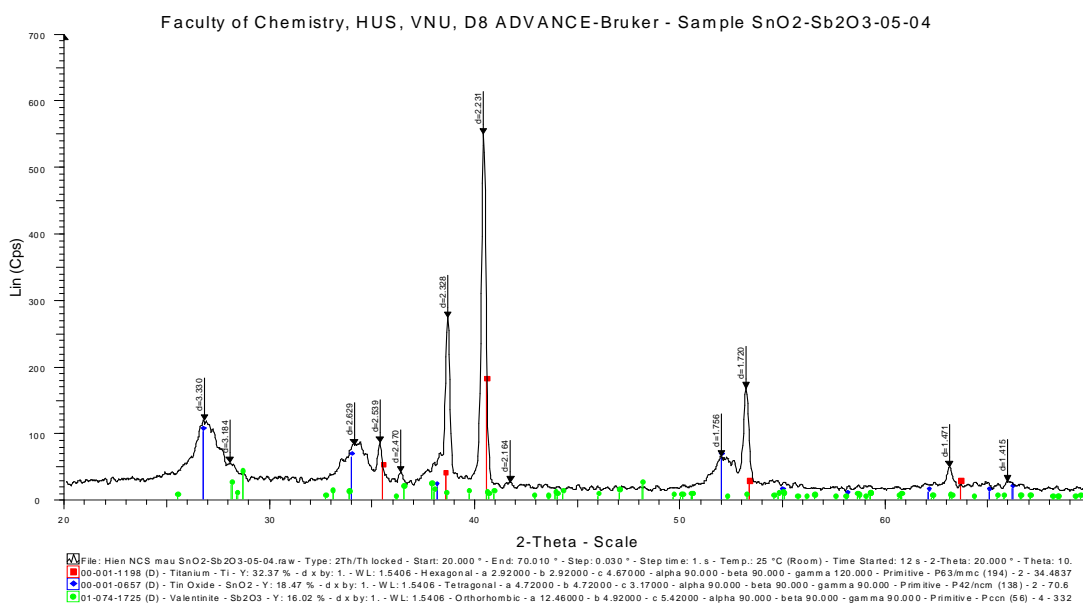
3. KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN

3.1. Ảnh hưởng của nhiệt độ nung đến cấu trúc và hình thái bề mặt mẫu

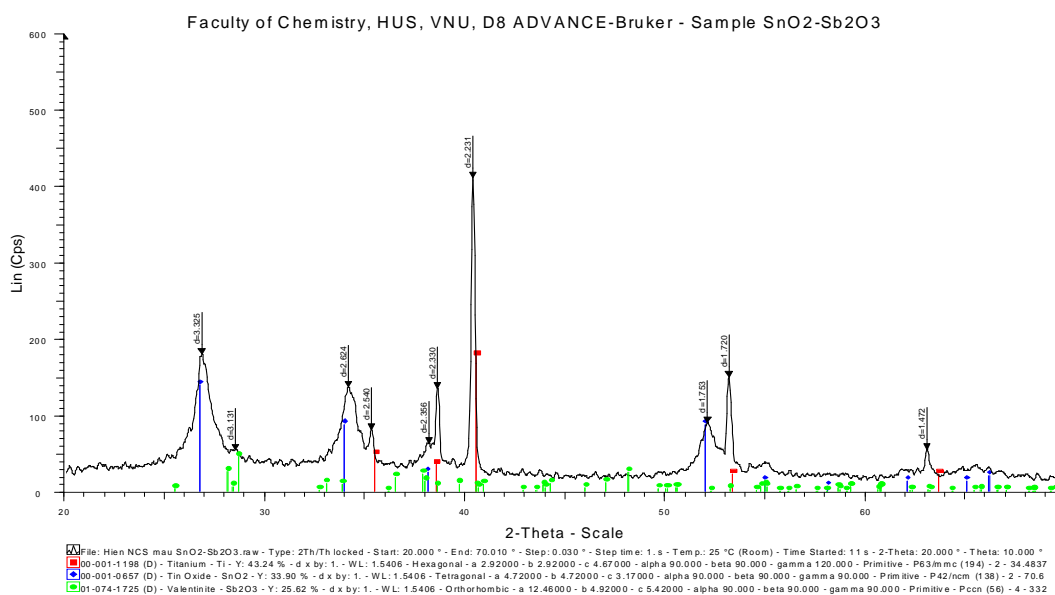
Hình 1, 2, 3, 4 biểu thị kết quả nhiễu xạ tia X (XRD-X ray diffraction) của các mẫu thử nghiệm để tạo lớp phủ $\text{SnO}_2\text{-Sb}_2\text{O}_3$ khi nung mẫu ở các nhiệt độ khác nhau: 370, 420, 480, 550 °C.



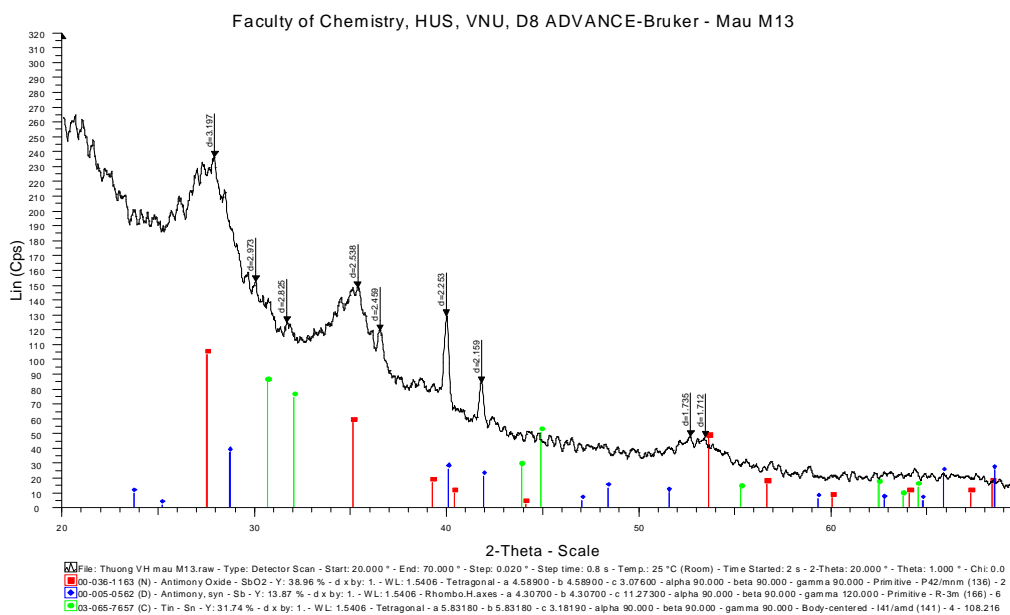
Hình 1. Phổ nhiễu xạ tia X của lớp phủ trung gian tạo thành ở nhiệt độ nung 370 °C.



Hình 2. Phổ đồ XRD của lớp phủ trung gian tạo thành ở nhiệt độ nung 420 °C.



Hình 3. Phổ đồ XRD của lớp phủ trung gian tạo thành ở nhiệt độ nung 480 °C.

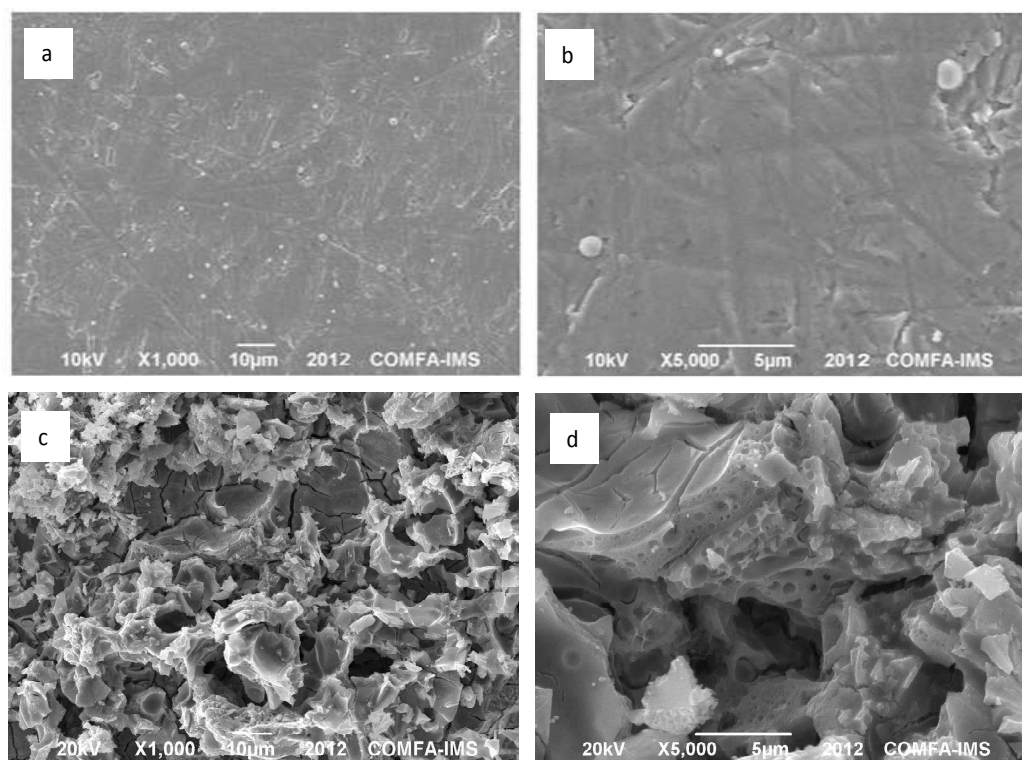


Hình 4. Phổ đồ XRD của lớp phủ trung gian tạo thành ở nhiệt độ nung 550 °C

Kết quả thu được cho thấy mẫu thử nghiệm ở các nhiệt độ nung khác nhau đối với thành phần lớp phủ trung gian đều cho các pic điển hình của SnO₂. Khi mẫu nung ở 370 °C, sản phẩm lớp phủ có thành phần là các oxit antimon SbO₂ (Hình 1), khi mẫu nung ở 550 °C, sản phẩm bề mặt mẫu có thiếc (Sn) và antimon (Sb) kim loại xuất hiện (Hình 4), trong khi các mẫu được nung ở 420 °C (Hình 2) và 480 °C (Hình 3) trên bề mặt mẫu xuất hiện thành phần oxit Sb₂O₃, không pic nào của kim loại Sn hoặc Sb được quan sát thấy. Điều này cho thấy khi nung ở nhiệt độ không quá cao thì Sn, Sb đều tồn tại dưới dạng ôxit. Tuy nhiên khi mẫu được nung ở 480 °C (Hình 3) cường độ pic điển hình của Sb₂O₃ hiển thị rõ ràng hơn so với khi mẫu được nung ở nhiệt độ 420 °C (Hình 2).

Kết quả nhiễu xạ tia X của mẫu điện cực titan được phủ một lớp mỏng SnO₂-Sb₂O₃ bằng phương pháp phân hủy nhiệt tại nhiệt độ là 480 °C (Hình 3) xuất hiện các pic điển hình tại các giá trị 2θ bằng 26,8; 34; 38,2; 52; 55; 58; 62; 65,1; 66,2 đặc trưng cho SnO₂, điều đó chứng tỏ rằng SnCl₄ đã bị phân hủy nhiệt thành SnO₂. Đồng thời, trên hình 3 cũng thể hiện các đỉnh pic tại các giá trị 2θ bằng 25,5; 28; 29; 33; 33,9; 36; 36,5; 39,5; 41 của Sb₂O₃. Trên giản đồ này vẫn còn xuất hiện một số đỉnh pic của Ti tại các giá trị 2θ bằng 35,5; 38,5; 41; 53,5; 63,5 nhưng với cường độ yếu điều này đã chứng minh được rằng hai loại oxit SnO₂-Sb₂O₃ này đã được hòa tan lẫn vào nhau và tạo thành một dung dịch rắn trên bề mặt điện cực, tuy nhiên lớp phủ này có những vết nứt làm hở nền, kết quả này phù hợp với ảnh SEM trên Hình 5.

Hình 5a,b là hình ảnh bề mặt của vật liệu nền Titan sau khi được xử lý bề mặt và nung ở 480 °C, kết quả chụp SEM chỉ ra bề mặt hầu như không bị nứt nẻ và có những đám hạt tinh thể phân bố đều trên bề mặt, có thể là do nung ở nhiệt độ cao, làm xuất hiện oxit titan trên bề mặt. Trong khi đó, như thể hiện trên Hình 5c, d (có độ phóng đại khác nhau) hình thái bề mặt điện cực có lớp phủ SnO₂-Sb₂O₃ thay đổi rõ rệt, xuất hiện các vết nứt nẻ và rỗ xốp, khả năng phân tán cao. Các vết nứt được tạo thành là do sức căng cơ học giữa nền titan và lớp phủ trong quá trình phân hủy nhiệt, mặc dù vết nứt còn phụ thuộc vào các yếu tố khác như: thành phần lớp phủ, nhiệt độ nung, chiều dày lớp phủ...



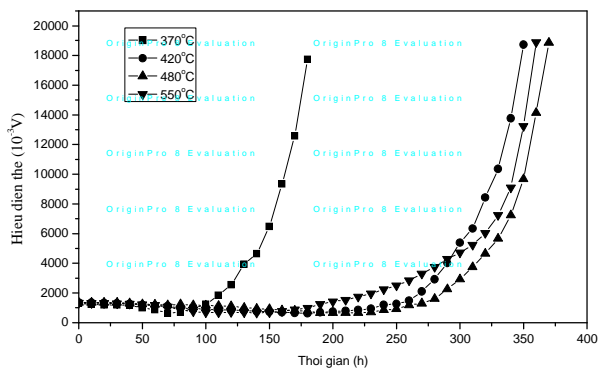
Hình 5. Hình ảnh bề mặt SEM
a, b) Vật liệu nền Titan sau khi xử lí bề mặt
c, d) lớp phủ $\text{SnO}_2\text{-Sb}_2\text{O}_3$ trên nền Titan, sau khi nung ở 480°C trong 60 phút.

3.2. Ảnh hưởng của nhiệt độ nung tới độ bền của anốt $\text{Ti/SnO}_2\text{-Sb}_2\text{O}_3/\text{PbO}_2$

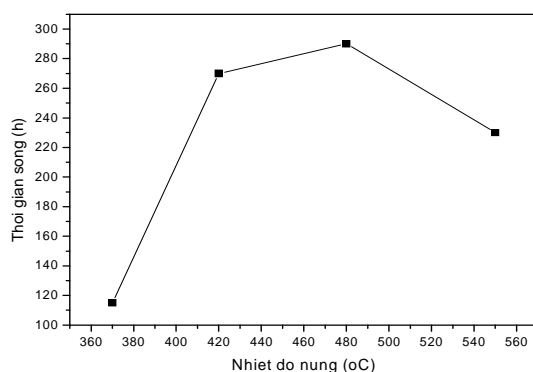
Phương pháp phân cực dòng không đổi được sử dụng để đánh giá độ bền điện hóa của anốt $\text{Ti/SnO}_2\text{-Sb}_2\text{O}_3/\text{PbO}_2$ chế tạo được. Các phép đo dòng ổn định được thực hiện trong dung dịch H_2SO_4 1M ở mật độ dòng 500 A/cm^2 nhằm đánh giá độ bền của điện cực hay là thời gian sống của điện cực. Sự giảm độ hoạt hóa của điện cực là do khi điện cực bị phân cực anốt ở mật độ dòng cao thì lớp PbO_2 bị hòa tan dần dần đến sự giảm độ dẫn của lớp ôxit, không phải là do việc tạo thành lớp TiO_2 cách điện. Trong quá trình đo dòng ổn định, PbO_2 trong hỗn hợp ôxit sẽ bị hòa tan dần dần, điện thế giảm dần cho đến khi điện cực trở nên không dẫn điện và điện thế sẽ tăng vọt lên.

Điện cực anốt được phân cực ở mật độ dòng cao 500 A/cm^2 nên tốc độ thoát ôxy lớn, việc đo thế điện cực anốt bị ảnh hưởng của các bọt khí ôxy trên bề mặt anốt, điện thế đo được thường không ổn định. Để giải quyết vấn đề này hiệu điện thế của hệ nghiên cứu đã được khảo sát.

Sự phụ thuộc hiệu điện thế của hệ đo vào thời gian dưới sự phân cực dòng ổn định 500 mA/cm^2 được biểu diễn trên Hình 6a.



b)



a)

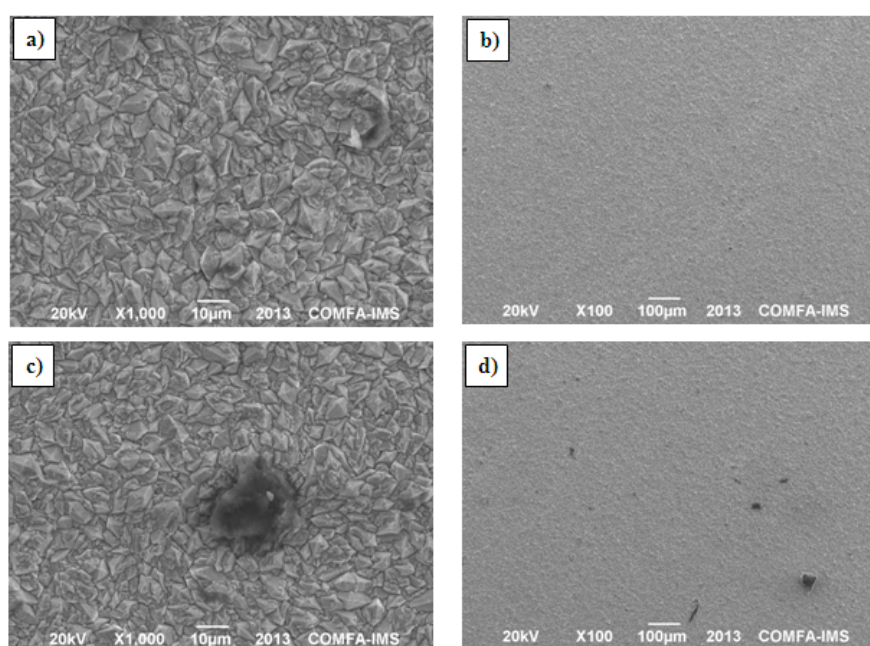
Hình 6. Sự phụ thuộc hiệu điện thế của hệ đo vào thời gian phân cực của anốt Ti/SnO₂-Sb₂O₃/PbO₂ được nung ở các nhiệt độ khác nhau. Mật độ dòng phân cực 500 mA/cm² trong H₂SO₄ 1M ở 28 °C.

Kết quả trên Hình 6a cho thấy đối với điện cực có lớp phủ SnO₂-Sb₂O₃ được tạo thành khi nung các muối ở nhiệt độ 370 °C thì điện thế giảm dần dần (từ 1298 mV đến 645 mV), sau khoảng thời gian 110 giờ, giá trị thế tăng vọt, đó là do lớp phủ bị phá hủy và dưới tác động của dòng anốt trên bề mặt điện cực tạo thành lớp TiO₂. Do diện tích bề mặt hoạt động giảm, mật độ dòng tăng dần, dẫn đến điện thế anốt tăng.

Hình 6a chỉ ra rằng thời gian sống của điện cực (khoảng thời gian đến khi điện thế của điện cực tăng vọt) không phụ thuộc rõ ràng vào nhiệt độ nung (trừ điện cực được nung ở 370 °C). Thời gian sống của các điện cực được tạo thành khi nung ở các nhiệt độ 420 °C, 480 °C, 550 °C lần lượt là 270, 290 giờ và 230 giờ. Khi nung mẫu ở nhiệt độ 370 °C, lớp phủ của điện cực vẫn bị phân tách và cho thời gian sống ngắn nhất (chỉ khoảng 115 giờ). Quan sát điện cực cho thấy bề mặt không được chắc, rỗ xốp và có nhiều khuyết tật. Trong trường hợp này, nguyên nhân có thể là do sự phân rã cơ học do sự thoát khí trong các lỗ xốp gây nên. Còn khi nung ở các nhiệt độ cao hơn thì thời gian sống tăng dần là do sự khuếch tán và tạo liên kết giữa các nguyên tử kim loại và nguyên tử oxi ở hai lớp khuếch tán vào nhau làm giảm bớt, thu hẹp bề mặt phân chia các lớp oxit. Tuy vậy, việc nung ở nhiệt độ cao hơn cũng không đảm bảo thu được lớp phủ chắc hơn. Khi nung ở nhiệt độ cao hơn (550 °C) hệ số giãn nở nhiệt giữa các nguyên tử kim loại và các nguyên tử oxi giữa các lớp giảm đi do đó thời gian sống của điện cực giảm. Kết quả thể hiện trên

Hình 6b. Từ các kết quả thu được, cho thấy mẫu được nung ở 480 °C cho thời gian sống của dài nhất, bằng 290 giờ.

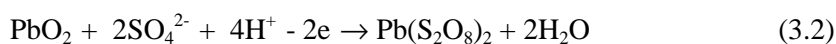
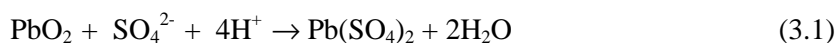
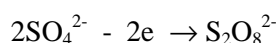
Sau khi thử nghiệm dòng không đổi ở 500 mA/cm², trạng thái bề mặt của các anốt hệ Ti/SnO₂-Sb₂O₃/PbO₂ ở các nhiệt độ nung 370 °C, 420 °C, 550 °C cho kết quả tương tự nhau, lớp phủ hầu như bị hòa tan hết, trên bề mặt anốt xuất hiện màu tím xanh (trong khi PbO₂ có màu đen) và bột đen xuất hiện ở đáy bình thử nghiệm, các hạt tinh thể bị ăn mòn dần và có những đám bị bong tách khỏi nền titan. Khi điện thế bắt đầu tăng dần, độ hoạt hóa giảm, chứng tỏ lớp ôxit dẫn điện SnO₂-Sb₂O₃ bị phá hủy và lớp TiO₂ cách điện được tạo thành trên bề mặt nền titan. Riêng đối với bề mặt điện cực anốt Ti/SnO₂-Sb₂O₃/PbO₂ có lớp phủ SnO₂-Sb₂O₃ được tạo thành khi nung ở 480°C, sau quá trình thử nghiệm, bề mặt mẫu vẫn còn lớp phủ, nền titan không xuất hiện. Kết quả này cũng được ghi nhận bằng hình ảnh SEM của mẫu điện cực sau khi đã phân cực ở mật độ dòng không đổi 500 mA/cm² (Hình 7).



Hình 7. Ảnh SEM của bề mặt điện cực Ti/SnO₂-Sb₂O₃/PbO₂ có lớp phủ SnO₂-Sb₂O₃ được tạo thành khi nung ở 480 °C trước (a, b) và sau khi phân cực (c,d) ở mật độ dòng không đổi 500 mA/cm² trong 370 giờ.

Khi kết thúc thí nghiệm (sau 370 giờ), điện thế của anốt tăng đến giá trị rất cao, nền titan bị ăn mòn lỗ và dẫn đến sự bong tách các hạt ôxit. Trong thời gian thử nghiệm lớp ôxit hầu như còn nguyên vẹn, khi kết thúc thí nghiệm, lớp ôxit vẫn tồn tại trên bề mặt mẫu, tuy nhiên, do sự liên kết kém nên chúng dễ bị bong tróc khi có tác động cơ học từ bên ngoài.

Sự phân tách ở trên cho thấy ngoài quá trình sunphat hóa chuyển PbO₂ thành Pb(SO₄)₂ còn có quá trình oxi hóa SO₄²⁻ thành S₂O₈²⁻ theo phương trình:



và quá trình thoát oxi từ nước:



xảy ra tại bề mặt lớp oxit làm lớp oxit này bị phân rã, đồng thời quá trình đó cũng có thể xảy ra ngay tại bề mặt phân cách kim loại nền Titan và các lớp oxit tạo thành TiO_2 . Đó chính là lí do dẫn đến lớp oxit mất khả năng bám dính và dễ dàng bị bong tách sau khi phân cực ở dòng không đổi với mật độ dòng cao và trong thời gian dài.

4. KẾT LUẬN

Từ các kết quả về hình thái học và tính chất điện cực khi phân cực ở dòng không đổi theo thời gian, có thể kết luận rằng tại nhiệt độ nung mẫu $480\text{ }^\circ\text{C}$, lớp phủ $\text{SnO}_2\text{-Sb}_2\text{O}_3$ và điện cực $\text{Ti/SnO}_2\text{-Sb}_2\text{O}_3/\text{PbO}_2$ có độ bền tốt nhất. Thời gian sống của điện cực khi nung ở $480\text{ }^\circ\text{C}$ lên tới 290 giờ, trong khi thời gian sống của các điện cực nung ở $370\text{ }^\circ\text{C}$, $420\text{ }^\circ\text{C}$, $550\text{ }^\circ\text{C}$ là 115, 270 giờ và 230 giờ tương ứng.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

1. Miller B., Chen A. C. - Effect of concentration and temperature on electrochemical oscillations during sulfide oxidation on $\text{Ti/Ta}_2\text{O}_5\text{-IrO}_2$ electrodes, *Electrochimica Acta* **50** (2005) 2203–2212.
2. Terezo J. and Pereira E. C. - Preparation and characterization of $\text{Ti/RuO}_2\text{-Nb}_2\text{O}_5$ electrodes obtained by polymeric precursor method, *Electrochimica Acta* **44** (25) (1999) 4507-4513.
3. Makgae M. E., et al. - Preparation and surface characterization of $\text{Ti/SnO}_2\text{-RuO}_2\text{-IrO}_2$ thin films as electrode material for the oxidation of phenol, *Materials Chemistry and Physics* **92** (2–3) (2005) 559-564.
4. Song S., et al. - Mechanism of the anodic oxidation of 4-chloro-3-methyl phenol in aqueous solution using $\text{Ti/SnO}_2\text{-Sb/PbO}_2$ electrodes, *J Hazard Mater* **175** (1-3) (2010) 614-21.
5. Shuang Song, et al. - Electrochemical degradation of azo dye C.I. Reactive Red 195 by anodic oxidation on $\text{Ti/SnO}_2\text{-Sb/PbO}_2$ electrodes, *Electrochimica Acta* **55** (11) (2010) 3606-3613.
6. Chen X., Chen G. - Stable $\text{Ti/RuO}_2\text{-Sb}_2\text{O}_5\text{-SnO}_2$ electrodes for O_2 evolution, *Electrochim. Acta* **50** (2005) 4155 - 4159.
7. Kelly L. Meaney and Sasha Omanovic - $\text{Sn}_{0.86}\text{-Sb}_{0.03}\text{-Mn}_{0.10}\text{-Pt}_{0.01}\text{-oxide/Ti}$ anode for the electro-oxidation of aqueous organic wastes, *Materials Chemistry and Physics* **105** (2–3) (2007) 143-147.
8. Carmem L P., Zanta S., et al. - Electrochemical oxidation of p-chlorophenol on $\text{SnO}_2\text{-Sb}_2\text{O}_5$ based anodes for wastewater treatment, *Journal of Applied Electrochemistry* **33** (12) (2003) 1211-1215.
9. Comminellis Ch. and Pulgarin C. - Electrochemical oxidation of phenol for wastewater treatment using SnO_2 , anodes, *Journal of Applied Electrochemistry* **23** (2) (1993) 108-112.

10. Zanta C. L. P. S., Michaud P. A., Comminellis C., De Andrade A. R., and Boodts J. F. C. - Electrochemical oxidation of p-chlorophenol on SnO₂-Sb₂O₅ based anodes for wastewater treatment, in Journal of Applied Electrochemistry, vol. **33**, num. 12 (2003) 1211-1215.
11. Brian Adams, Min Tian and Aicheng Chen - Design and electrochemical study of SnO₂-based mixed oxide electrodes, Electrochimica Acta **54** (5) (2009) 1491-1498.
12. Nguyễn Đình Triệu - Các phương pháp phân tích vật lí và hóa lí, NXB Khoa học và Kỹ thuật, Hà Nội, Tập 1, 2001.
13. Nguyễn Ngọc Phong - Nghiên cứu chế tạo điện cực anot trợ titan phủ hỗn hợp ôxít kim loại, Tạp chí Khoa học và Công nghệ **41** (2003) 30.

ABSTRACT

INFLUENCE OF THERMAL DECOMPOSITION OF SALTS ON COMPOSITION AND SURFACE MORPHOLOGY OF Ti/SnO₂-Sb₂O₃/PbO₂ ELECTRODES

Chu Thi Thu Hien¹, Tran Trung¹, Vu Thi Thu Ha² and Nguyen Ngoc Phong³

¹*University of Pedagogy and Technique of Hung Yen, Dan Tien, Khoai Chau, Hung Yen*

²*Institute of Chemistry – Vietnam Academy of Science and Technology*

³*Institute of Materials Science - Vietnam Academy of Science and Technology*

Email: havt@ich.vast.ac.vn

Intermediate coating of SnO₂ - Sb₂O₃ on Ti/SnO₂-Sb₂O₃/PbO₂ electrodes was prepared by a thermal decomposition technique. The structure, surface morphology and durability of the layers were investigated. The results showed that, with the sample heated at 370 °C, SbO₂ was formed while at 550 °C tin (Sn) and antimony (Sb) metals appeared. At temperatures of 420 °C and 480 °C, a Sb₂O₃ layer was observed, and Sn and/or Sb metal was not found. However, when the sample was heated at 480 °C, the peak intensity of Sb₂O₃ was obviously clearer than that at a temperature of 420 °C. The best layer of SnO₂ - Sb₂O₃ was obtained after heating of 480°C. Data from polarization technique showed that the lifetime of this electrode was up to 290 hours, while the electrodes heated at 370 °C, 420 °C, 550 °C had lifetimes of 115, 270 hours and 230 hours respectively.

Keywords: thermal decomposition, titanium noble electrode, lifetime of electrode, surface morphology.