

Tạp chí

NGHIÊN CỨU KHOA HỌC VÀ CÔNG NGHỆ QUÂN SỰ



The distribution of the electric scalar potential in a parallel plate due to a voltage difference (-100V and 100V) on the plates.



VIỆN KHOA HỌC VÀ CÔNG NGHỆ QUÂN SỰ

Tạp chí Nghiên cứu Khoa học và Công nghệ quân sự

Xuất bản vào các tháng 2, 4, 6, 8, 10, 12; Số Tiếng Anh vào các tháng 5, 11.

Hội Đồng Biên Tập

Chủ tịch

Nguyễn Minh Tuấn Viện Khoa học và Công nghệ quân sự;

Tổng Biên tập

Nguyễn Mạnh Thắng

Viện Khoa học và Công nghệ quân sự;

Các Ủy viên

Phạm Thị Ngọc Yến Nguyễn Bình Bạch Nhật Hồng Lê Vĩnh Hà Trần Xuân Nam Lê Mỹ Tú Đỗ Ngọc Khuê Nguyễn Đức Hùng Nguyễn Việt Bắc Lê Quốc Hùng Chu Chiến Hữu Ninh Đức Hà Nguyễn Đức Cương Nguyễn Văn Chúc Trần Đức Thuân Nguyễn Trang Minh Phạm Vũ Uy Hồ Quang Quý Nguyễn Mạnh Thắng Bùi Thu Lâm Đoàn Văn Ban Thư ký Đỗ Thành Việt

Đại học Bách khoa Hà Nội; Học viện Công nghệ Bưu chính Viễn thông; Viện Khoa học và Công nghệ quân sự; Viện Khoa học và Công nghệ quân sự; Học viện Kỹ thuật quân sự; Học viện Kỹ thuật Mật mã; Viện Khoa học và Công nghệ quân sự; Viện Khoa học và Công nghệ quân sự; Viện Khoa học và Công nghệ quân sự; Viện Hàn lâm Khoa học và Công nghệ Việt Nam; Viện Khoa học và Công nghệ quân sự; Học viện Kỹ thuật quân sự; Viện Khoa học và Công nghệ quân sự; Viện Khoa học và Công nghệ quân sự; Học viện Kỹ thuật quân sự; Viện Hàn lâm Khoa học và Công nghệ Việt Nam;

Viện Khoa học và Công nghệ quân sự;

Toà soạn: 17 phố Hoàng Sâm, Nghĩa Đô, Cầu Giấy, Hà Nội. Email: <u>contact@jmst.info;</u> Điện thoại: 069.516104; 069.516.172; 098.339.6602

Tạp chí NGHIÊN CỨU KHOA HỌC VÀ CÔNG NGHỆ QUÂN SỰ

MỤC LỤC

NGHIÊN CỨU KHOA HỌC CÔNG NGHỆ

Tên lửa & Thiết bị bay

01	Phạm Ngọc Văn, Vũ Hỏa Tiễn, Cao Hữu Tình, Đỗ Văn Phán Phương pháp giải bài toán xác định tọa độ góc mục tiêu tại thời điểm kích hoạt phần chiến đấu định hướng của tên lửa phòng không.	3 - 15
02	 Đặng Văn Thành, Trần Đức Thuận Xây dựng mô hình điều khiển chuyển động dạng affine cho UAV Tri-rotors. 	16 - 24
03	Phạm Văn Tùng, Lê Tuấn Anh, Hoàng Việt Trung, Đồng Văn Tấn Mô hình động lực học chuyển động của tên lửa phục vụ cho thiết bị huấn luyện. Kỹ thuật điều khiển & Điện tử	25 - 32
04	Trần Xuân Tình, Phạm Tuấn Thành, Trần Văn Tuyên, Đào Sỹ Luật Tổng hợp bộ điều khiển trượt đầu cuối nhanh cho hệ truyền động nhiều động cơ có liên hệ khe hở, ma sát, đàn hồi.	33 - 41
05	Nguyễn Đức Thành, Hoàng Minh Đắc, Nguyễn Việt Phương Điều khiển thiết bị bay có chứa các thành phần tham số bất định trên cơ sở phương pháp thích nghi theo tín hiệu đầu ra.	42 - 48
06	Trần Đức Chuyển, Nguyễn Đức Điển, Trần Ngọc Sơn, Lê Văn Ánh, Đỗ	49 - 60
	Mạnh Đản Xây dựng hệ thống điều khiển vị trí động cơ xoay chiều với cấu trúc biến đổi sử dụng card dSPACE 1104.	
07	Thiều Hữu Cường, Phạm Minh Nghĩa	61 - 70
	Mô hình S-RVoG cải tiên cho ước lượng tham sô rừng trên địa hình dôc sử dụng ảnh PolInSAR.	
08	Bùi Chí Thanh, Phùng Ngọc Anh, Nguyễn Huy Tùng Điều khiển đặc trưng hướng của anten thay đổi thích nghi theo hướng nguồn nhiễu có tính đến cực tiểu sai số đo toa đô góc.	71 - 78
09	Nguyễn Trung Thành, Lê Ngọc Uyên	79 - 89
	Tổng hợp hệ thống tự động bù khử nhiễu tạp tích cực trong điều kiện nhiễu không dừng.	
10	Trần Quang Huy, Nguyễn Văn Hiếu, Đặng Việt Hùng, Trịnh Xuân Long, Lê	90 - 97
	Thị Trang Một số giải pháp tính toán độ sai lệch tín hiệu trong các mô đun thiết bị đo cao vô tuyến PBЭ của tên lửa Kh-35E.	
11	Dang Quoc Vuong	98 - 104
	Modeling of Electrostatic Problem via a Subproblem Finite Element Method.	
12	Lai Thị Vân Quyên, Nguyễn Hồng Vũ, Nguyễn Thế Truyện, Nguyễn Mạnh Thắng, Victor Ivanovich Malyugin, Dmitry Vladimirovich Kiesewetter Thiết kế, chế tạo thiết bị đo kích thước hạt mưa.	105 - 116
	Hóa học & Kỹ thuật môi trường	
13	 Đào Văn Chương, Trần Thị Thanh Hợp, Hoàng Mai Hà, Nguyễn Đức Tuyển, Dương Nghĩa Bang, Ngô Trịnh Tùng Nghiên cứu sử dụng chấm lượng tử CdS chế tạo sensor huỳnh quang xác định Clenbuterol. 	117 - 122

14	Trần Thị Thanh Quỳnh, Nguyễn Khánh Hoàng Việt, Nguyễn Thị Nhung,	123 - 130
	Tô Lan Anh, Nghiêm Ngọc Hoa, Bùi Trung Hiểu	
	Nghiên cứu thăm dò phát hiện dioxin bằng phương pháp Sandwich ELISA.	
15	Hồ Ngọc Minh, Chu Chiến Hữu, Đỗ Đình Trung	131 - 138
	Chật trám polyuretan trên cở cao su polybutadien có hai nhóm hydroxyl đâu	
	cuối mạch.	
16	Nguyên Hà Trung, Nghiêm Ngọc Hoa, Phạm Kiên Cường	139 - 144
	Khảo sát thành phân hòa học và xác định hoạt tính kháng khuẩn của tính dâu có	
	xạ hương.	
17	Nguyên Văn Hoàng, Phạm Hoài Nam, Trường Đình Tuân, Nguyên Văn Huông	145 - 153
10	Ann hương của chất hoặt động bề mặt đến niệu qua xư lý bụi thân.	
18	Hồ Đình Quang, Lê Thế Tâm, Nguyên Hoa Du, Phan Thị Hông Tuyết,	154 - 161
	Nguyên Thị Ngọc Linn, Nguyên Thị Hiện, Lê Quốc Khann, Nguyên Thị Tu, Nguyễn Thị Vi	
	Trấi ưu hóa quá trình chế tạo hạt nano Co Feo O, sử dụng mạ trận Plackett-	
	Burman và phương phán đán ứng bề mặt	
	Vât K	
10	Vũ Thị Kim Duyân Nguyễn Văn Sĩ Nguyễn Thạnh Hùng	162 170
1)	Máy đo phóng xa đa năng: thiết kế chế tạo và kiểm nghiêm	102 - 170
20	Cao Thi Thanh Hải Vũ Hồng Kỳ Nguyễn Thi Thanh Thủy Nguyễn Thi Huấ	171 - 181
20	Định Hùng Manh. Đỗ Khánh Tùng, Nguyễn Thị Thành Hường, Nguyễn Thị	1/1 - 101
	Ngoc Anh	
	Khả năng điều khiến dị hướng từ theo phương vuông góc trong màng mỏng đa	
	lớp [Co/Pd].	
	Công nghệ thông tin & Cơ sở toán học cho tin học	
21	Đinh Tiến Thành, Võ Tùng Linh	182 - 191
	Một biến thể an toàn chứng minh được của lược đồ chữ ký số EdDSA.	
22	Nguyễn Đức Thụy, Lưu Hồng Dũng	192 - 198
	Lược đồ chữ ký số xây dựng trên tính khó của bài toán logarit rời rạc kết hợp	
	khai căn trên Z _p .	
	Cơ kỹ thuật & Kỹ thuật cơ khí động lực	
23	Nguyễn Khánh Chính, Phạm Vũ Uy	199 - 208
	Mô hình chuyển động lá cánh cánh quay trực thăng ba khớp xét đến tính chất phi	
	tuyển không dừng khí động học.	
24	Nguyễn Hữu Thắng, Nguyễn Trang Minh, Chu Anh Mỳ	209 - 217
	Giải pháp nâng cao chât lượng hệ dân động cơ khí tâm và hướng pháo phòng	
	không 37mm-2N tự động tác chiến ngày và đêm.	
	THÔNG TIN KHOA HỌC CÔNG NGHỆ	
25	Nguyễn Long	218 - 222
	The usage of UAVs and requirements in modern combats.	
26	Nguyễn Thái Học, Phạm Văn Hùng, Nguyễn Thị Duyên, Lê Xuân Hải, Đặng	223 - 237
	Hữu Anh, Bùi Quí Việt	
	Tổng quan về công nghệ IoT và xử lý ảnh trong chăm sóc sức khỏe vật nuôi.	
27	Nguyễn Cảnh Hùng, Đặng Hoàng Minh	238 - 242
	Về một phương pháp xác định mục tiêu văn bản trong tiếng Việt.	

TỐI ƯU HÓA QUÁ TRÌNH CHẾ TẠO HẠT NANO C_{0x}Fe_{3-x}O₄ Sử dụng ma trận plackett-burman Và phường pháp đáp ứng bề mặt

Hồ Đình Quang¹, Lê Thế Tâm^{1,*}, Nguyễn Hoa Du², Phan Thị Hồng Tuyết², Nguyễn Thị Ngọc Linh³, Nguyễn Thị Hiền^{2,4}, Lê Quốc Khánh², Nguyễn Thị Tú¹, Nguyễn Thị Vi¹

Tóm tắt: Trong công trình này, chúng tôi đã tối ưu hóa các thông số cho quá trình tổng hợp hạt nano $Co_xFe_{3-x}O_4$ bằng phương pháp thủy nhiệt sử dụng thiết kế thí nghiệm Plackett-Burman và phương pháp đáp ứng bề mặt (RSM) theo mô hình Box-Behnken. Kết quả cho thấy, nhiệt độ, nồng độ NaOH, tỷ lệ số mol ion Co^{2+}/Fe^{3+} là ba yếu tố có ảnh hưởng mạnh nhất (p < 0.05) lên quá trình tổng hợp hạt nano $Co_xFe_{3-x}O_4$ và tính chất từ của vật liệu thu được. Sau khi sàng lọc, các yếu tố này được tối ru hóa bằng phương pháp đáp ứng bề mặt theo mô hình Box-Behnken, giá trị tối ru cho nhiệt độ nung là 570 °C, nồng độ NaOH là 3M, tỉ lệ số mol ion Co^{2+}/Fe^{3+} là 1:2, khi đó, từ độ bão hòa thu được lớn nhất đạt 63,67 emu/g ở nhiệt độ phòng. Mô hình này được kiểm nghiệm thông qua thực nghiệm, giá trị từ độ bão hòa M_s là 62,14 emu/g và 60,03 emu/g tương ứng với lực kháng từ H_c thấp 11 Oe và 32 Oe. Các đặc trưng của mẫu $Co_xFe_{3-x}O_4$ được khảo sát bằng kỹ thuật từ kế mẫu rung (VSM). Thí nghiệm đa yếu tố theo ma trận Plackett-Burman kết hợp với phương pháp đáp ứng bề mặt theo mô hình Box-Behnken được đánh giá là công cụ phù hợp để tối ưu hóa giá trị các yếu tố ảnh hưởng đến quá trình tổng hợp hạt nano $Co_xFe_{3-x}O_4$.

Từ khóa: Hạt nano Co_xFe_{3-x}O₄; Thủy nhiệt; Ma trận Plackett-Burman; Phương pháp đáp ứng bề mặt (RSM); Từ độ bão hòa M_s.

1. MỞ ĐÂU

Các hat nano từ ferit có cấu trúc spinel (MFe₂O₄, trong đó, M là các kim loai hóa tri hai) đã được quan tâm nghiên cứu của các nhà khoa học trên thế giới bởi khả năng ứng dung của chúng trong lĩnh vực điện tử chẳng han như ghi từ, bộ nhớ,... [1]. Bên canh đó, các nghiên cứu ứng dụng trong y sinh của hệ vật liệu này ở kích thước nano mét cũng đã được chú ý như dẫn truyền thuốc, tách chiết tế bào, nhiệt tri điều tri ung thư, và làm tăng độ tương phản ảnh chụp cộng hưởng từ (MRI) [2-4]. Trong họ vật liệu spinel, hệ hạt $Fe_{3}O_{4}$ thường được lựa chon để tiến hành nghiên cứu in-vitro và in-vivo ứng dung trong lĩnh vực y sinh, do khả năng dễ chế tạo và tính tương thích sinh học cao đối với cơ thể sống. Tuy nhiên, vật liêu Fe₃O₄ có nhược điểm là nhiệt đô Curie (T_c=823 K) rất cao so với nhiệt đô cần để tiêu diệt tế bào ung thư trong phương pháp nhiệt từ trị [5]. Vì vậy, gần đây các nhà nghiên cứu tập trung tìm kiếm các vật liệu thay thế để có nhiệt độ T_c phù hợp (tượng ứng trong khoảng 42-46 °C). Hệ hạt nano CoFe₂O₄ cũng chiếm một tỷ lệ lớn trong các nghiên cứu về hạt nano từ, vì chúng có hằng số dị hướng cao (lực kháng từ lớn), dẫn đến hệ vật liệu này có từ trễ lớn hơn các hạt nano ferrit spinel khác cùng kích thước. Đây là một lý do làm tăng giá trị công suất hấp thụ (SLP) cho phương pháp nhiệt từ trị trong ứng dụng y sinh. Theo công bố của nhóm tác giả Amiri [7], các hạt nano CoFe₂O₄ siêu thuận từ có thể ứng dung trong y sinh tương tư các hat nano Fe₃O₄.

Phân tích những ưu điểm, nhược điểm, thiếu sót của các kết quả đã nghiên cứu về hệ vật liệu ferit spinel cho thấy tính chất của vật liệu nano CoFe_2O_4 phụ thuộc vào kích thước hạt và sự sắp xếp các ion tron hai phân mạng cũng như các yếu tố trong quá trình chế tạo [8]. Do đó, việc nghiên cứu chế tạo và khảo sát tính chất của vật liệu này cho đến hiện nay vẫn đang là vấn đề rất được quan tâm. Để tối ưu hóa quá trình chế tạo vật liệu, sàng lọc

các yếu tố chính ảnh hưởng lớn đến tính chất vật liệu là rất quan trọng. Trong đó, cách đơn giản và thuận tiện nhất là tối ưu từng yếu tố và giữ nguyên các yếu tố còn lại. Tuy nhiên, cách làm này rất tốn thời gian, hóa chất, hao mòn thiết bị và không xác định được sự tác động qua lại giữa các yếu tố trong quá trình tổng hợp vật liệu. Từ đó, người ta đề xuất một phương pháp hiệu quả hơn, chi phí thấp, cho thấy sự tương tác qua lại giữa các yếu tố, đồng thời dự đoán được các giá trị tối ưu cho từng yếu tố là thiết kế thí nghiệm Plackett-Burman. Phương pháp này đã được sử dụng để tối ưu hóa quá trình tổng hợp các phân tử nano Bạc [9], nano Vàng [10]. Ngoài ra, các yếu tố ảnh hưởng đến quá trình tổng hợp được tối ưu bằng phương pháp đáp ứng bề mặt (RSM) theo mô hình Box-Behnken để tìm được bộ thông số tối ưu áp dụng cho thực nghiệm [11].

Trong công trình này, chúng tôi tối ưu hóa các yếu tố ảnh hưởng đến quá trình chế tạo hạt nano $\text{Co}_x\text{Fe}_{3-x}\text{O}_4$ phương pháp thủy nhiệt bằng cách sử dụng thiết kế thí nghiệm Plackett-Burman và phương pháp đáp ứng bề mặt theo mô hình Box-Behnken để thu được hạt nano từ tính có giá trị từ độ bão hòa cực đại.

2. THỰC NGHIỆM

2.1. Hóa chất

Các hóa chất dùng để tổng hợp mẫu gồm mẫu $\text{Co}_x\text{Fe}_{3-x}\text{O}_4$ là các sản phẩm thương mại của hãng Merck, Sigma-Aldrich dạng tinh khiết phân tích bao gồm: FeCl₃.6H₂O, CoCl₂.4H₂O, NaOH, axeton (CH₃)₂CO. Môi trường trơ được tạo bởi khí nitơ sạch 99,99%, nước cất đề ion.

2.2. Phương pháp tổng hợp hạt nano Co_xFe_{3-x}O₄

Hạt nano $\text{Co}_x\text{Fe}_{3-x}\text{O}_4$ đã được tổng hợp bằng phương pháp thủy nhiệt. Các muối được pha vào nước cất với tỷ lệ ion Co^{2+} : Fe^{3+} được thay đổi. Tiếp theo, l6 ml dung dịch các muối được nhỏ từ từ vào 60 ml dung dịch NaOH có nồng độ thay đổi, trong quá trình nhỏ giọt có sử dụng máy khuấy với tốc độ (vòng/phút) được thay đổi ở từng thí nghiệm trong khí quyển N₂ được đưa vào liên tục trong thời gian phản ứng. Hỗn hợp trên được cho vào bình phản ứng làm bằng thép không gỉ và giữ ở nhiệt độ 120 °C đến 200 °C trong 3 đến 20 giờ. Bình phản ứng được để nguội tự nhiên đến nhiệt độ phòng, sản phẩm được thu nhận bằng nam châm vĩnh cửu đặt ở đáy cốc để các hạt $\text{Co}_x\text{Fe}_{3-x}\text{O}_4$ lắng xuống. Hạt $\text{Co}_x\text{Fe}_{3-x}\text{O}_4$ được rửa sạch bằng nước cất đề ion đến khi pH=7, rồi tiếp tục rửa bằng axeton 2-3 lần. Cuối cùng, hạt $\text{Co}_x\text{Fe}_{3-x}\text{O}_4$ thu được đem sấy khô ở nhiệt độ 80 °C trong 10 giờ.

2.3. Đặc trưng vật liệu

Từ độ bão hòa của mẫu hạt nano $\text{Co}_x\text{Fe}_{3-x}O_4$ được đo trên hệ từ kế mẫu rung (VSM) ở nhiệt độ phòng tại phòng Vật lý vật liệu từ và siêu dẫn, Viện Khoa học vật liệu, Viện Hàn lâm Khoa học và Công nghệ Việt Nam. Hệ từ kế mẫu rung có độ nhạy 10⁻⁴ emu, hoạt động tốt trong khoảng nhiệt độ từ 77 K đến 1000 K và từ trường -12 kOe đến 12 kOe.

2.4. Thiết kế thí nghiệm và xử lý số liệu

2.4.1. Thiết kế thí nghiệm Plackett-Burman và mô hình Box-Behnken

Quá trình tổng hợp hạt nano $\text{Co}_x\text{Fe}_{3-x}\text{O}_4$ bằng phương pháp thủy nhiệt chịu ảnh hưởng của 11 yếu tố là nhiệt độ thủy nhiệt, nồng độ Fe^{3+} , tỉ lệ $\text{Co}^{2+}/\text{Fe}^{3+}$, thời gian thủy nhiệt, nồng độ NaOH, tốc độ khuấy, thời gian khuấy, tốc độ sục khí N₂, nhiệt độ khuấy trộn hỗn hợp phản ứng, pH hỗn hợp sau phản ứng và nhiệt độ nung mẫu. Chúng tôi thiết kế thí nghiệm Plackett-Burman với 11 yếu tố (bảng 1) ở 2 mức độ thấp nhất (-1) và cao nhất (+1) trong 12 lô thí nghiệm (bảng 2) để sàng lọc các yếu tố có ảnh hưởng lớn nhất đến tính chất từ thông qua giá trị từ độ bão hòa M_s.

Các yếu tố có hệ số ảnh hưởng lớn với độ tin cậy cao (p < 0.05) sẽ được đưa vào mô hình tối

ưu hóa sử dụng phương pháp đáp ứng bề mặt theo mô hình thiết kế Box-Behnken [11]. Trong nghiên cứu này, ba yếu tố chính ảnh hưởng lớn nhất đến quá trình tổng hợp hạt nano $Co_xFe_{3-x}O_4$ được nghiên cứu ở 3 mức (-1, 0, +1) (bảng 3) với 15 thí nghiệm (có 3 thí nghiệm ở tâm).

Hàm đáp ứng được chọn là giá trị từ độ bão hòa Ms (emu/g). Mô hình tối ưu hóa được biểu diễn bằng phương trình bậc 2 theo công thức (1) [12,13]:

 $Y = b_0 + b_1 x_1 + b_2 x_2 + b_3 x_3 + b_{11} x_1^2 + b_{22} x_2^2 + b_{33} x_3^2 + b_{12} x_1 x_2 + b_{23} x_2 x_3 + b_{13} x_1 x_3$ (1) trong đó, b₁, b₂, b₃ là các hệ số bậc 1; b₁₁, b₂₂, b₃₃ là các hệ số bậc 2; b₁₂, b₁₃, b₂₃ là các hệ số tương tác của từng cấp yếu tố; x₁, x₂, x₃ là các biến độc lập.

2.4.2. Xử lý số liệu

Số liệu thực nghiệm được xử lý bằng phần mềm thống kê Design-Expert 7.1 để tính toán các hệ số của phương trình hồi quy, bề mặt đáp ứng và tối ưu hóa với hàm mong đợi.

V.	Yếu tố	Ν	Aức	Mức độ ảnh hưởng		
Ky hiệu	Tên yếu tố	Thấp (-1)	Cao (+1)	Ånh hưởng	Prob>F	
\mathbf{X}_1	Nhiệt độ thủy nhiệt (°C)	120	200	5,28 ^b	Not significant	
X_2	Nồng độ Fe ³⁺ (M)	0,1	0,25	4,18 ^b	> 0,05	
X ₃	T_{1}^{i} lệ Co^{2+} : Fe^{3+}	0,3	0,8	17,28 ^a	0,0030	
X_4	Thời gian thủy nhiệt (h)	3	20	-4,17 ^b	> 0,05	
X_5	Nồng độ NaOH (M)	0,5	4	9,88 ^a	0,0429	
X ₆	Tốc độ khuấy mẫu (vòng/phút)	200	700	-5,69 ^b	> 0,05	
X ₇	Thời gian khuấy (phút)	20	60	-3,44 ^b	> 0,05	
X_8	Thời gian sục khí (phút)	10	30	-1,89 ^b	> 0,05	
X9	Nhiệt độ khuấy trộn (°C)	50	90	0,24 ^b	> 0,05	
X ₁₀	Nhiệt độ nung mẫu (°C)	300	600	0,96 ^a	0,0285	
X ₁₁	Tốc độ nhỏ giọt dung dịch vào NaOH (giọt/giây)	1	5	4,94 ^b	> 0,05	

Bảng 1. Các biến trong ma trận Plackett-Burman và hệ số ảnh hưởng của chúng.

^a Có ý nghĩa ở độ tin cậy $\alpha = 0.05$;

^b Không có ý nghĩa ở độ tin cậy α =0,05.

Bảng 2. Ma trận thiết kế thí nghiệm Plackett-Burman.

Thí					(Các bi	iến					M _s (em	u/g)
nghiệm	X ₁	X ₂	X ₃	X ₄	X 5	X ₆	X ₇	X ₈	X9	X ₁₀	X ₁₁	Thực nghiệm	Mô hình
1	+1	-1	+1	-1	-1	-1	+1	+1	+1	-1	+1	29,6	29,52
2	+1	+1	-1	+1	-1	-1	-1	+1	+1	+1	-1	36,1	36,38
3	-1	+1	+1	-1	+1	-1	-1	-1	+1	+1	+1	16,53	16,52
4	+1	-1	+1	+1	-1	+1	-1	-1	-1	+1	+1	13,87	13,96
5	+1	+1	-1	+1	+1	-1	+1	-1	-1	-1	+1	39,67	39,92
6	+1	+1	+1	-1	+1	+1	-1	+1	-1	-1	-1	12,16	12,01
7	-1	+1	+1	+1	-1	+1	+1	-1	+1	-1	-1	34,35	34,88
8	-1	-1	+1	+1	+1	-1	+1	+1	-1	+1	-1	16,02	16,2
9	-1	-1	-1	+1	+1	+1	-1	+1	+1	-1	+1	42,89	43,66
10	+1	-1	-1	-1	+1	+1	+1	-1	+1	+1	-1	40.78	40,46
11	-1	+1	-1	-1	-1	+1	+1	+1	-1	+1	+1	42,17	42,62
12	-1	-1	-1	-1	-1	-1	-1	-1	-1	-1	-1	9,36	9,16

3. KẾT QUẢ, THẢO LUẬN

3.1. Phân tích sự có ý nghĩa của mô hình với thực nghiệm

Kết quả mô phỏng bằng phần mềm Design expert 7.1 để tính toán các hệ số ảnh hưởng của từng yếu tố lên từ độ bão hòa M_s của hạt nano từ $Co_xFe_{3-x}O_4$, được thể hiện trong bảng 1. Kết quả cho thấy, các yếu tố có hệ số ảnh hưởng dương và đạt giá trị lớn sẽ ảnh hưởng nhiều hơn ở mức cao tới từ độ bão hòa. Ngược lại, các yếu tố có hệ số ảnh hưởng âm và nhỏ thì ảnh hưởng nhiều hơn ở mức thấp đến kết quả thí nghiệm.

Số liệu trong bảng 1 cũng cho thấy, nồng độ NaOH, tỉ lệ số mol ion $\text{Co}^{2+}/\text{Fe}^{3+}$ và nhiệt độ có ảnh hưởng nhiều nhất đến giá trị từ độ bão hòa M_s của mẫu với mức ý nghĩa $\alpha = 0,05$. Do đó, 3 yếu tố là nồng độ NaOH, tỉ lệ số mol ion $\text{Co}^{2+}/\text{Fe}^{3+}$, nhiệt độ nung được lựa chọn để tối ưu hóa sử dụng phương pháp đáp ứng bề mặt theo mô hình thiết kế Box-Behnken.

Ngoài ra, các kết quả tính toán từ mô hình thu được giá trị từ độ bão hòa M_s (emu/g) thay đổi từ 9,16 emu/g đến 43,66 emu/g (thể hiện trong bảng 2). Kết quả này cũng gần đúng với giá trị từ độ bão hòa đo được của các mẫu thực nghiệm biến thiên từ 9,36 emu/g đến 42,89 emu/g, thấp nhất ở thí nghiệm thứ 12 và cao nhất ở thí nghiệm 9.

Quá trình thực nghiệm được thực hiện theo mô hình Box-Behnken dựa trên các yếu tố ảnh hưởng lớn nhất đến giá trị M_s của hạt nano từ $Co_xFe_{3-x}O_4$. Kết quả thực nghiệm và tính toán mô hình được thể hiện trong bảng 3, 4 và hình 1, 2.

Bảng 3. Bộ tham số các yếu tố dùng để tối ưu hóa sử dụng phương pháp đáp ứng bề mặt theo mô hình Box-Behnken.

Vá., 4á	Tân	Dham vi	Mức				
reuto	I en	r nậm vi	-1	0	+1		
X_1	Tỉ lệ Co^{2+} : Fe ³⁺	0,5 - 0,8	0,5	0,65	0,8		
X_2	Nồng độ NaOH (M)	0,5 - 4	0,5	2,25	4		
X ₃	Nhiệt độ nung mẫu (°C)	300 - 600	300	450	600		

Thí nghiôm		Biến		M _s (emu/g)		
1 m ngmęm	X ₁	X ₂	X ₃	Thực nghiệm	Mô hình	
1	-1	-1	0	29,44	26,62	
2	+1	-1	0	45,76	44,90	
3	1	+1	0	31,26	31,08	
4	+1	+1	0	49,80	49,36	
5	-1	0	-1	36,28	36,45	
6	+1	0	-1	55,32	54,73	
7	-1	0	+1	40,07	43,57	
8	+1	0	+1	59,97	61,85	
9	0	-1	-1	39,65	41,75	
10	0	+1	-1	43,56	46,21	
11	0	-1	1	47,26	48,87	
12	0	+1	+1	55,37	53,33	
13	0	0	0	60,06	58,70	
14	0	0	0	61,50	58,70	
15	0	0	0	58,85	58,70	

Bảng 4. Quá trình thực nghiệm theo mô hình Box- Behnken.



Hình 1. Đường cong từ độ bão hòa của mẫu hạt $Co_x Fe_{3-x}O_4$ ở các nồng độ NaOH (a), tỉ lệ số mol ion Co^{2+}/Fe^{3+} (b) và ở nhiệt độ nung (c) khác nhau.

<u>Ghi chú</u>: Các mẫu M2, M13, M3 tương ứng với nồng độ NaOH lần lượt là 0,5M; 2,25M và 4M; các mẫu M1, M15, M4 tương ứng với tỉ lệ số mol ion Co^{2+}/Fe^{3+} lần lượt là 0,5; 0,65 và 0,8; và các mẫu M5, M14, M7 tương ứng với nhiệt độ nung lần lượt là 300 °C, 450 °C và 600 °C.

Số liệu bảng 2 cho thấy, giá trị từ độ bão hòa của mẫu hạt $Co_xFe_{3-x}O_4$ đạt cực đại bằng 61,85 (emu/g) tại thí nghiệm 8 (M8) với tỉ lệ số mol ion Co^{2+}/Fe^{3+} là 0,8; nồng độ NaOH đạt 2,25M và nhiệt độ nung mẫu là 600 °C.

Trong khi đó, các kết quả thực nghiệm cho thấy, các mẫu hạt nano $\text{Co}_x\text{Fe}_{3-x}\text{O}_4$ đạt giá trị từ độ bão hòa cực đại 61,50 (emu/g) tại thí nghiệm số 14 (M14) với tỉ lệ số mol ion $\text{Co}^{2+}/\text{Fe}^{3+}$ là 0,65, nồng độ NaOH đạt 2,25M và nhiệt độ nung mẫu là 450 °C.



Hình 2. Đồ thị bề mặt đáp ứng biểu diễn sự tác động của cặp yếu tố (AB), (AC), (BC) và mức độ mong muốn đến giá trị M_s của hạt.

Nghiên cứu khoa học công nghệ

Hình 2 thể hiện sự tương tác của từng cặp yếu tố dựa trên bề mặt đáp ứng và mức độ mong muốn, đã xác định được giá trị tối ưu của từng yếu tố làm cho hàm đáp ứng cực tiểu. Mô hình dự đoán giá trị từ độ bão hòa M_s (emu/g) đạt cực đại tại nhiệt độ nung mẫu (570 °C), nồng độ NaOH (3M) và tỉ lệ Co^{2+}/Fe^{3+} (0,5), và giá trị từ độ bão hòa M_s thu được là 63,67 emu/g. Trong khi đó, mẫu hạt nano $Co_xFe_{3-x}O_4$ được chế tạo từ thực nghiệm với bộ thông số tối ưu trên đạt giá trị từ độ bão hòa lần lượt là 62,14 emu/g và 60,03 emu/g tương ứng với lực kháng từ H_c thấp 11 Oe (mẫu M_opt đường màu đỏ) và 32 Oe (mẫu M_opt đường màu xanh) (hình 3).



Hình 3. Đường cong từ độ bão hòa của hạt $Co_x Fe_{3-x}O_4$ thực nghiệm.

Số liệu bảng 5 cho thấy kết quả phân tích sự phù hợp và có ý nghĩa của mô hình với thực nghiệm. Sự có ý nghĩa của các hệ số hồi quy được kiểm định bởi chuẩn F, với các giá trị p < 0,05 cho biết các hệ số hồi quy có ý nghĩa. Như vậy, bảng 5 cho thấy giá trị trị "Model- F-value" là 38,17. Kết quả phân tích ANOVA cho thấy giá trị R² là 0,9857 (R-Squared) ở bảng 3 gần bằng 1 và giá trị R² hiệu chỉnh là 0,9598 chứng tỏ giá trị từ độ bão hòa thu được từ thực nghiệm gần với dự đoán của mô hình. Tỷ lệ tín hiệu so với nhiễu là 18,582 > 4 chỉ ra rằng tín hiệu đã đầy đủ.

Từ các giá trị phân tích có nghĩa trên, giá trị hàm mong đợi được phần mềm DX7 đưa ra được biểu diễn theo phương trình (2):

 $Y = 60,14 + 9,14A + 2,23B + 3,56C + 0,56AB + 0,053AC + 1,05BC - 9,73A^2 - 11,34B^2 - 2,34C^2$ (2) trong đó, Y là giá trị từ độ bão hòa mong đợi; A, B, C lần lượt là nồng độ NaOH, tỉ lệ số mol ion Co²⁺/Fe³⁺ và nhiệt độ nung.

Yếu tố	Giá trị F	Giá trị p prob > F	
Mô hình	38,17	$0,0004^{a}$	Tin cậy
А	144,96	<0,0001 ^a	Tin cậy
В	8,66	0,0321ª	Tin cậy
С	22,02	$0,0054^{\rm a}$	Tin cậy
AB	0,27	0,6274	Không đáng kể
AC	0,0024	$0,9629^{a}$	Không đáng kể
BC	0,96	$0,3732^{a}$	Không đáng kể
A^2	75,78	0,0003 ^a	Tin cậy
\mathbf{B}^2	102,97	0,0003 ^a	Tin cậy
C^2	4,37	0,0909	Không đáng kể
	D ²	0.0057	0.500

Bảng 5. Kết quả phân tích ANOVA tối ưu quá trình tổng hợp các yếu tố.

 $R^2 = 0.9857; R^2_{hi\hat{e}u chinh} = 0.9598$

4. KÉT LUÂN

Tối ưu hóa các điều kiện tổng hợp hạt nano $Co_xFe_{3-x}O_4$ bằng phương pháp thủy nhiệt là một điều vô cùng quan trọng, giúp chúng ta tiết kiệm thời gian, chi phí nghiên cứu và đạt

được kết quả mong đợi tốt nhất. Từ 11 yếu tố ban đầu có ảnh hưởng đến sự hình thành hạt nano $\text{Co}_x\text{Fe}_{3-x}\text{O}_4$ đã sàng lọc và chọn được 3 yếu tố có ảnh hưởng lớn nhất đến từ độ bão hòa của mẫu thu được là nồng độ NaOH (3M), tỉ lệ số mol ion $\text{Co}^{2+}/\text{Fe}^{3+}$ (0,5) và nhiệt độ nung mẫu (570 °C). Kết quả thực nghiệm đã thu được giá trị từ độ bão hòa M_s là 62,14 emu/g và 60,03 emu/g tương ứng với lực kháng từ H_c thấp 11 Oe và 32 Oe. Đồng thời, công cụ thiết kế thí nghiệm tối ưu đa yếu tố của Plackett-Burman và mô hình tối ưu hóa sử dụng phương pháp đáp ứng bề mặt được xem là những công cụ mạnh giúp cho việc sàng lọc và tối ưu hóa các yếu tố thí nghiệm để đạt hàm đáp ứng cực đại.

Lời cảm ơn: Nhóm tác giả cảm ơn sự tài trợ về kinh phí của đề tài mã số: B2019-TDV-03 (L.T.T).

TÀI LIỆU THAM KHẢO

- C. Rath, K. K. Sahu, S. Anand, S. K. Date, N. C. Mishra, R. P. Das, "Preparation and characterization of nanosize Mn-Zn ferrite," Journal of Magnetism and Magnetic Materials, Vol. 202 (1), pp. 77 - 84, (1999).
- [2]. B. E. Kashevsky, V. E. Agabekov, S.B. Kashevsky, K. A. Kekalo, E. Y. Manina, I. V. Prokhorov, V. S. Ulashchik, "Study of cobalt ferrite nanosuspensions for low-frequency ferromagnetic hyperthermia," Particuology, Vol. 6(5), pp. 322 333, (2008).
- [3]. A. K. Gupta, M. Gupta, "Synthesis and surface engineering of iron oxide nanoparticles for biomedical applications," Biomaterials, Vol. 26 (18), pp. 3995 4021, (2005).
- [4]. W. Zheng, F. Gao, H. Gu, "Magnetic polymer nanospheres with high and uniform magnetite content," Journal of Magnetism and Magnetic Materials, Vol. 288, pp. 403 410, (2005).
- [5]. D.S. Nikam, S.V. Jadhav, V.M. Khot, M.R. Phadatare, S.H. Pawar, "Study of AC magnetic heating characteristics of $Co_{0.5}Zn_{0.5}Fe_2O_4$ nanoparticles for magnetic hyperthermia therapy," Journal of Magnetism and Magnetic Materials, Vol. 349, pp. 208-213, (2014).
- [6]. L.D. Tung, V. Kolesnichenko, D. Caruntu, N.H. Chou, C. J. O'Connor, L. Spinu, "Magnetic properties of ultrafine cobalt ferrite particles," Journal of Applied Physics, Vol. 93 (10), pp. 7486 - 7488, (2003).
- [7]. S. Amiri, H. Shokrollahi, "The role of cobalt ferrite magnetic nanoparticles in medical science," Materials Science and Engineering: C, Vol. 33(1), pp. 1-8, (2013).
- [8]. N. El-A. E-Naggar, A. Mohamedin, S. S. Hamza, A. Sherief, "Extracellular Biofabrication, Characterization, and Antimicrobial Efficacy of Silver Nanoparticles Loaded on Cotton Fabrics Using Newly Isolated Streptomyces sp. SSHH-1E," Journal of Nanomaterials, Vol. 2016, ID 3257359, pp. 1-17, (2016).
- [9]. S. Chowdhury, F. Yusof, M. O. Faruck, N. Sulaiman, "Process Optimization of Silver Nanoparticle Synthesis Using Response Surface Methodology," Procedia Engineering, Vol. 18(2016), pp. 992 – 999, (2016).
- [10].S. K. R. Adena, M. Upadhyay, H. Vardhan, B. Mishra, "Development, optimization, and in vitro characterization of dasatinib-loaded PEG functionalized chitosan capped gold nanoparticles using Box-Behnken experimental design," Drug Development and Industrial Pharmacy, Vol. 44 (3), pp. 493 - 501, (2018).
- [11]. M. G. Ekpenyong, S. P. Antai, A. D. Asitok, B. O. Ekpo, "Plackett-Burman Design and Response Surface Optimization of Medium Trace Nutrients for Glycolipopeptide Biosurfactant Production", Iranian biomedical journal, Vol. 21(4), pp. 249 – 260, (2017).
- [12]. M. Edrissi, H.A. Hosseinabadi, "Synthesis of coral-like and spherical nanoparticles of barium titanate using factorial and Taguchi experimental design," Materialwiss.

Nghiên cứu khoa học công nghệ

Werkst., Vol. 41, pp. 154-160, (2010).

[13].S.C. Jagdale, S. Patil, B.S. Kuchekar, "Application of design of experiment for floating drug delivery of tapentadol hydrochloride" Comput. Math. Methods Med,. Vol. 2013, pp. 625729, (2013).

ABSTRACT

OPTIMIZATION OF SYNTHESIS CONDITIONS FOR Co_xFe_{3-x}O₄ NANOPARTICLES USING PLACKETT-BURMAN DESIGN AND RESPONSE SURFACE METHODOLOGY (RSM)

In this paper, we optimize the parameters for hydrothermal $Co_x Fe_{3-x}O_4$ nanoparticles synthesis using the Plackett-Burman experimental design and the Box-Behnken design with response surface methodology (RSM). Our results showed that the temperature (°C), the NaOH concentration (M) and the $Co^{2+/}Fe^{3+}$ ion molar ratio were identified as significant factors. After screening, these factors were subsequently optimized using the Box-Behnken design with response surface methodology. These optimal levels were found out temperature (570 °C), NaOH concentration (3M) and ion molar ratio $Co^{2+/}Fe^{3+}$ (1:2) in which the highest saturation obtained 63.67 emu/g at room temperature. This model was tested experimentally, the saturation magnetization (M_s) was 62.14 emu/g and 60.03 emu/g corresponding with the low magnetic force (H_c) of 11 Oe and 32 Oe. The magnetic properties of the samples were characterized by the vibrating sample magnetometer (VSM). Our results also indicated that the Plackett-Burman experimental design and the Box-Behnken design with response surface methodology are a suitable tool in order to optimize the parameters for hydrothermal $Co_x Fe_{3-x}O_4$ nanoparticles synthesis.

 $\label{eq:keywords: Nanoparticle Co_xFe_{3-x}O_4; Hydrothemal; Plackett-Burman matrix; Response surface methodology (RSM); Saturation magnetization (M_s).$

Nhận bài ngày 14 tháng 02 năm 2020 Hoàn thiện ngày 04 tháng 3 năm 2020 Chấp nhận đăng ngày 10 tháng 4 năm 2020

Địa chỉ: ¹Công nghệ Hóa Sinh – Môi trường, Trường Đại học Vinh;
²Viện Sư phạm Tự nhiên, Trường Đại học Vinh;
³Trường Đại học Khoa học - Đại học Thái Nguyên;
⁴Trường THPT Hương Sơn – Hà Tĩnh.
^{*}Email của tác giả đai diên: tamlt@vinhuni.edu.vn.

THỂ LỆ VIẾT VÀ GỬI BÀI

1. *Tác giả* phải cam kết nội dung của bài gửi đăng là kết quả riêng, chưa công bố và chưa gửi đăng ở bất kỳ tạp chí nào khác.

2. Bài gửi đăng phải được viết bằng tiếng Việt hoặc tiếng Anh, Nga, viết cẩn thận, đúng văn phạm, được đánh máy rõ ràng trên máy vi tính, chừa lề trên 4 cm, dưới 2,86 cm, phải 3.86cm, trái 3 cm và được in trên một mặt của giấy khổ A4 và được sao thành hai bản (gửi kèm theo bản điện tử về địa chỉ contact@imst.info). Bài giới thiệu tổng quan không quá 10 trang; công trình nghiên cứu và triển khai ứng dụng không quá 6 trang; những thông báo, thông tin, giới thiệu không quá 2 trang.

3. Nội dung trình bày như sau (tìm File mẫu trong trang Web: WWW/jmst.info/):

- Tên bài báo: NGHIÊN CỨU... (TIMES NEW ROMAN_B_13), căn giữa dòng;

- Tên tác giả: Nguyễn Văn A, Trần Ngọc B, .. (Times New Roman-10), căn giữa dòng;

- Tóm tắt: Trong bài báo, một số nghiên cứu ... (Abstract-Times New Roman-11);

- Từ khóa: Chuyên ngành, lĩnh vực KHCN, vấn đề quan tâm, ... (Times New Roman_9)

- Mục chính: 1. MỞ ĐÂU,..., 5. KÊT LUẬN, TÀI LIỆU THAM KHẢO (TIMES NEW ROMAN B_12), căn giữa dòng;

- Mục nhỏ : 1.2. Cơ sở lý thuyết (Times New Roman_12_B), căn lề trái;

- Tiểu muc : 1.2.1. Những nguyên lý cơ bản (Times New Roman_12_Italic), căn trái;

- Nội dung : Xuất phát từ nguyên lý hoạt động... (Times New Roman_12), căn hai lề; Xuống dòng lùi vào 0.5 cm;

- Tài liệu tham khảo, trích dẫn phải có đủ các thông tin sau:

- Sách: Họ tên tác giả (hoặc chủ biên), "Tên sách", Nhà xuất bản, năm xuất bản, trang.

- Tạp chí: Họ tên tác giả, "Tên bài báo," Tên tạp chí, tập, số, năm, trang.

- Báo cáo tại hội nghị: Họ tên tác giả, "Tên báo cáo", Tên tuyển tập, nơi và thời gian tổ chức hội nghị, trang.

Luận văn (đề tài): Họ tên tác giả, "Tên luận văn (đề tài)", Nơi bảo vệ, năm, trang.
 Địa chỉ : Viện KH-CN quân sự (Times New Roman _10), căn lề trái, đặt cuối bài.

4. Ngoài tóm tắt bằng tiếng Việt, bài viết phải có phần **Title (TIMES NEW ROMAN_B_12)** và *Abstract (Times New Roman_I_12)* bằng tiếng Anh. Bài viết bằng tiếng Anh, Nga ... phải có đầu đề và tóm tắt bằng tiếng Việt. Phần tóm tắt cần cung cấp lượng thông tin cần thiết để qua đó người đọc có thể hiểu được nội dung chính của bài viết (từ 100 đến 200 từ). Sau phần tóm tắt có nhóm từ khoá (Keywords) liên quan đến lĩnh vực khoa học công nghệ mà bài báo quan tâm.

5. *Các hình vẽ* phải rõ nét và chuẩn xác. Nếu bài có ảnh thì không quá 3 ảnh. Hình và ảnh phải được chú thích đầy đủ, sử dụng thủ tục *Group* để liên kết hình và lời chú giải cho hình.

6. Trình bày công thức và ký hiệu toán học bằng thủ tục MathType. Số công thức căn lề phải.

7. Nội dung liên quan tới việc bảo mật thông tin phải được thủ trưởng đơn vị chủ quản phê duyệt cho đăng bằng văn bản gửi kèm theo bài báo.

8. Tạp chí không đăng những bài không theo đúng những thể thức được nói trên và những bài không được sự nhất trí của phản biện. Toà soạn không trả lại bài không được đăng và không có trách nhiệm giải thích lý do cho người gửi.

9. Thư, bài gửi cho Tạp chí và mọi giao dịch với Tòa soạn theo địa chỉ:

Toà soạn **Tạp chí Nghiên cứu Khoa học và Công nghệ quân sự**

17 Hoàng Sâm, Nghĩa Đô, Cầu Giấy, Hà Nội.

Diện thoại: 069.516.104; 069.516.172; 098.339.6602.

E-mail: contact@jmst.info

In 900 cuốn, khổ 19 x 27 tại Công ty Cổ phần in Sao Việt. Giấy phép hoạt động báo chí số 220/GP-BTTTT (25/02/2011) và số 470/GP-BTTTT (17/10/2016) của Bộ Thông tin và Truyền thông. ISSN 1859 - 1043.

In xong và nộp lưu chiểu Quý II năm 2020.