



TẠP CHÍ KHOA HỌC ĐẠI HỌC ĐỒNG THÁP  
Dong Thap University Journal of Science

Chuyên san Khoa học Tự nhiên

ISSN 0866-7675 | e-ISSN 2815-567X



DOI: <https://doi.org/10.52714/dthu.ns.2483.1881>

## TỔNG HỢP VẬT LIỆU COMPOSITE $Fe_2O_3/CoFe_2O_4$ VỚI KÍCH THƯỚC NANO ỨNG DỤNG LÀM ANODE CHO PIN LITHIUM – ION

Ngô Thị Mỹ Dung<sup>1</sup> †, Trần Ngọc Trung<sup>1</sup> †, Phan Anh Huy<sup>1</sup>,  
Nguyễn Tuấn Lợi<sup>2,3</sup> và Ngô Hải Đăng<sup>1,\*</sup>

<sup>1</sup>Khoa Khoa học ứng dụng,  
Trường Đại học Sư phạm Kỹ Thuật Thành phố Hồ Chí Minh, Việt Nam

<sup>2</sup>Viện Khoa học Cơ bản và Ứng dụng,  
Đại học Duy Tân, Thành phố Hồ Chí Minh 70000, Việt Nam

<sup>3</sup>Khoa Kỹ thuật Môi trường và Hoá học,  
Đại học Duy Tân, Thành phố Đà Nẵng 50000, Việt Nam

\*Tác giả liên hệ, Email: [dangnh@hcmute.edu.vn](mailto:dangnh@hcmute.edu.vn)

† Hai tác giả này đã đóng góp như nhau cho công trình này

Lịch sử bài báo

Ngày nhận: 06/6/2025; Ngày nhận chỉnh sửa: 10/10/2025; Ngày duyệt đăng: 19/10/2025

### Tóm tắt

Trong nghiên cứu này, vật liệu nanocomposite  $Fe_2O_3/CoFe_2O_4$  (CFO) được tổng hợp bằng phương pháp đồng kết tủa tại các giá trị pH từ 9 đến 11 và xử lý nhiệt ở  $750^\circ C$  trong 3 giờ. Kết quả XRD xác nhận sự tồn tại của hai pha  $CoFe_2O_4$  và  $Fe_2O_3$ , với mức độ kết tinh tăng khi pH tăng. Ảnh SEM cho thấy kích thước hạt giảm từ ~51 nm xuống còn ~35 nm khi pH tăng và phân bố hạt đồng đều hơn. Khi ứng dụng làm điện cực anot cho pin Li-ion, các điện cực CFO thể hiện dung lượng phóng điện cao và khả năng ổn định sau nhiều chu kỳ. Mẫu CFO pH 10 đạt dung lượng cao nhất ở chu kỳ đầu (969.12 mAh/g) và duy trì 906.97 mAh/g sau 40 chu kỳ, với hiệu suất Coulomb gần 100% từ chu kỳ thứ hai. Sự thay đổi kích thước hạt, mức độ kết tinh và phân bố pha giữa các mẫu ảnh hưởng trực tiếp đến hiệu suất điện hóa. Kết quả cho thấy CFO là vật liệu tiềm năng thay thế than chì thương mại làm anode cho pin lithium-ion.

**Từ khóa:**  $CoFe_2O_4$ ,  $Fe_2O_3$ , Hiệu suất điện hóa, Pin lithium-ion, Vật liệu anot, Vật liệu nanocomposite.

Trích dẫn: Ngô, T. M. D., Trần, N. T., Phan, A. H., Nguyễn, T. L., & Ngô, H. Đ. (2026). Tổng hợp vật liệu composite  $Fe_2O_3/CoFe_2O_4$  với kích thước nano ứng dụng làm anode cho pin lithium – ion. *Tạp chí Khoa học Đại học Đồng Tháp, Online First*, 1-12. <https://doi.org/10.52714/dthu.ns.2483.1881>

Copyright © 2026 The author(s). This work is licensed under a CC BY-NC 4.0 License.

## SYNTHESIS OF THE $Fe_2O_3/CoFe_2O_4$ COMPOSITE NANOMATERIALS FOR APPLICATION AS ANODE IN LITHIUM – ION BATTERIES

Ngo Thi My Dung<sup>1</sup>, Tran Ngoc Trung<sup>1</sup>, Phan Anh Huy<sup>1</sup>,  
Nguyen Tuan Loi<sup>2,3</sup>, and Ngo Hai Dang<sup>1,\*</sup>

<sup>1</sup>Faculty of Applied Sciences, Ho Chi Minh City University of Technology and Education,  
Thu Duc City, Ho Chi Minh City, Vietnam

<sup>2</sup>Institute of Fundamental and Applied Sciences, Duy Tan University,  
Ho Chi Minh City 70000, Vietnam

<sup>3</sup>Faculty of Environmental and Chemical Engineering, Duy Tan University,  
Da Nang City 50000, Vietnam

\*Corresponding author, Email: dangnh@hcmute.edu.vn

† These authors contributed equally to this work

### Article history

Received: 06/6/2025; Received in revised form: 10/10/2025; Accepted: 19/10/2025

### Abstract

In this study,  $Fe_2O_3/CoFe_2O_4$  (CFO) nanocomposites were synthesized by a simple co-precipitation method at pH values from 9 to 11 and heat treated at 750°C for 3 h. XRD results confirmed the existence of two phases  $CoFe_2O_4$  and  $Fe_2O_3$ , with the degree of crystallinity increasing with increasing pH. SEM images showed that the particle size decreased from ~51 nm to ~35 nm with increasing pH and the particle distribution was more uniform. When applied as anode electrodes for Li-ion batteries, CFO electrodes exhibited high discharge capacity and stability after multiple cycles. The CFO\_pH 10 sample achieved the highest capacity at the first cycle (969.12 mAh/g) and maintained 906.97 mAh/g after 40 cycles, with a Coulomb efficiency of nearly 100% from the second cycle. The variation in grain size, crystallinity, and phase distribution between samples directly affects the electrochemical performance. The results show that CFO is a potential material to replace commercial graphite as an anode for lithium-ion batteries.

**Keywords:** Anode Material,  $CoFe_2O_4$ , Electrochemical Performance,  $Fe_2O_3$ , Lithium-Ion Battery, Nanocomposite.

## 1. Giới thiệu

Trong những năm gần đây, sự phát triển mạnh mẽ của khoa học và công nghệ đã kéo theo nhu cầu sử dụng nhiên liệu hóa thạch ngày càng gia tăng. Tuy nhiên, sự gia tăng này không chỉ tạo áp lực lớn lên nguồn tài nguyên vốn có hạn mà còn kéo theo nhiều hệ lụy về môi trường, đặc biệt là nguy cơ ô nhiễm và biến đổi khí hậu. Để đối phó với thực trạng này, nhiều nghiên cứu đã tập trung vào việc tìm kiếm các nguồn năng lượng tái tạo, đồng thời phát triển những thiết bị lưu trữ năng lượng dựa trên vật liệu thân thiện với môi trường nhưng vẫn đảm bảo hiệu suất hoạt động cao. Trong số các công nghệ lưu trữ năng lượng, pin Lithium-ion (LIB) được quan tâm nhiều nhờ những ưu điểm như mật độ năng lượng cao, điện áp làm việc ổn định, tuổi thọ chu kỳ dài, khả năng sạc nhanh và có thể sử dụng các vật liệu thân thiện với môi trường (Huang & cs., 2014). Tuy nhiên, công nghệ pin Lithium-ion hiện nay vẫn chưa đáp ứng được nhu cầu ngày càng lớn về mật độ năng lượng cho các ứng dụng mới như xe điện hybrid và hệ thống lưu trữ năng lượng quy mô lưới. Nguyên nhân chính là than chì, vật liệu anode đang được sử dụng phổ biến, có dung lượng lý thuyết khá thấp chỉ khoảng  $372 \text{ mAh g}^{-1}$  (Buqa & cs., 2005). Do đó, nhiều nghiên cứu đã hướng đến việc phát triển các vật liệu thay thế để nâng cao khả năng lưu trữ của anode, trong đó nhóm oxit kim loại chuyển tiếp, đặc biệt là ferrite spinel, nhận được sự quan tâm đáng kể.

Trong số các oxit kim loại chuyển tiếp, nhiều vật liệu như  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  (Zhang & cs., 2021),  $\text{MnO}_2$  (Liu & cs., 2016) và  $\text{CoO}$  (Zheng & cs., 2013) đã cho thấy tiềm năng để thay thế than chì nhờ cơ chế phản ứng chuyển đổi. Cơ chế này dựa trên quá trình oxy hóa - khử giữa các oxit kim loại và các  $\text{Li}^+$  trong quá trình sạc và xả. Dung lượng lý thuyết của vật liệu  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  và  $\text{CoO}$  lần lượt đạt 1007 và  $715 \text{ mAh g}^{-1}$ , cao hơn đáng kể so với than chì là  $372 \text{ mAh g}^{-1}$  (Wang & cs., 2015; Wu & cs., 2019; Zhao & cs., 2022). Bên cạnh đó, vật liệu oxit ferrite spinel có công thức tổng quát là  $\text{MFe}_2\text{O}_4$  (M là các ion kim loại chuyển tiếp như Ni, Co, Zn, Cu) ở kích thước nano cũng đã được chứng minh là vật liệu anode tiềm năng cho pin Lithium-ion, nhờ cấu trúc xốp và bền vững, cho phép phản ứng với nhiều ion  $\text{Li}^+$  hơn, giúp dung lượng đạt trên  $900 \text{ mAh g}^{-1}$  (Dong & cs., 2024). Ví dụ như báo cáo của Ying Wang cho thấy nanocomposite  $\text{NiO/NiFe}_2\text{O}_4$  đạt dung lượng lên đến  $1052 \text{ mAh g}^{-1}$  sau 300 chu kỳ, ngoài ra các nghiên cứu về nhóm nanocomposite có gốc Co đã chứng tỏ sự vượt trội khi có độ bền chu kỳ rất tốt cùng với dung lượng cao (Wang & cs., 2019). Cụ thể là nghiên cứu của Hui Xia khi pha tạp 20% khối lượng graphene vào  $\text{CoFe}_2\text{O}_4$  đã tạo ra điện cực nanocomposite có dung lượng nghịch đảo lên đến  $1082 \text{ mAh g}^{-1}$  với độ ổn định tuyệt vời qua các chu kỳ sạc-xả (Xia & cs., 2012), hoặc nghiên cứu của Yun-Ho Jin sử dụng lớp carbon để tăng độ dẫn điện và cải thiện độ bền cho cấu trúc nanocomposite  $\text{CoFe}_2\text{O}_4/\text{C}$  đã ghi nhận dung lượng đạt trên  $700 \text{ mAh g}^{-1}$  sau 200 chu kỳ hoạt động (Jin & cs., 2012), một nghiên cứu đáng chú ý nữa là pha tạp  $\text{Sm}^{3+}$  vào  $\text{CoFe}_2\text{O}_4$  đã tạo ra điện cực có dung lượng đạt  $800 \text{ mAh g}^{-1}$  sau 150 chu kỳ và vẫn duy trì  $778 \text{ mAh g}^{-1}$  sau 400 chu kỳ (Narsimulu & cs., 2020). Những kết quả này cho thấy  $\text{CoFe}_2\text{O}_4$  và các dạng biến tính của nó không chỉ cải thiện đáng kể dung lượng và độ bền chu kỳ mà còn mở ra triển vọng ứng dụng lâu dài, qua đó khẳng định đây là những ứng viên đầy hứa hẹn cho vật liệu anode trong pin Li-ion.

Từ những tiềm năng ở các nghiên cứu trước đây, nghiên cứu này sẽ tiến hành tổng hợp vật liệu composite hai thành phần  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  và  $\text{CoFe}_2\text{O}_4$  (CFO) làm vật liệu anode trong LIB. Nghiên cứu tập trung khảo sát ảnh hưởng của pH trong môi trường kiềm ở mức 9, 10 và 11 lên kích thước hạt, cấu trúc pha và hiệu suất điện hóa của vật liệu composite, sử dụng phương pháp đồng kết tủa làm phương pháp tổng hợp chính.

## 2. Vật liệu và phương pháp nghiên cứu

### 2.1 Quy trình tổng hợp vật liệu composite $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{CoFe}_2\text{O}_4$

Quy trình tổng hợp vật liệu composite  $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{CoFe}_2\text{O}_4$  bằng phương pháp đồng kết tủa được tiến hành như sau: Đầu tiên  $\text{Co}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$  và  $\text{Fe}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$  (Xylong Co. - 98.5%) được lấy theo tỉ lệ mol  $\text{Co}:\text{Fe} = 1:2$ , sau đó cho vào 50ml nước cất và khuấy đều cho đến khi tan hoàn toàn. Dung dịch muối được nhỏ từ từ vào bình cầu đáy tròn ba cổ chứa 100ml nước cất và 100ml ethanol (Xylong Co. - 99.7%), đồng thời khuấy từ ở nhiệt độ 70 - 75°C trong 10 phút. Sau đó, dung dịch được để nguội tự nhiên về nhiệt độ phòng, quá trình khuấy tiếp tục được duy trì. Trong lúc khuấy, dung dịch NaOH 0.5 M (Xylong Co. - 98%) được thêm từ từ vào để điều chỉnh pH đến các giá trị mong muốn (9, 10 và 11). Dung dịch sau đó được để yên trong 30 phút cho kết tủa lắng xuống, rồi tiến hành ly tâm mẫu trong 5 phút với tốc độ 4500 vòng/phút và tiếp tục ly tâm mẫu lần 2, 3 bằng nước cất và ethanol. Cuối cùng các mẫu vật liệu CFO\_9, CFO\_10 và CFO\_11 thu được bằng cách nung các mẫu ở 750°C trong vòng 3 giờ với tốc độ gia nhiệt 10°C/phút trong môi trường không khí, sau đó nghiền mịn để thu được bột vật liệu.

## 2.2 Đặc điểm vật liệu

Một số thiết bị chuyên dụng đã được sử dụng để phân tích vật liệu bột CFO. Phương pháp nhiễu xạ tia X (XRD, Bruker-AXS-D8, Bruker) đã được sử dụng để xác định thành phần pha của vật liệu CFO. Cấu trúc và hình thái của vật liệu được kiểm tra bằng kính hiển vi điện tử quét (SEM, S-4800, Hitachi).

## 2.3 Đo lường điện hóa

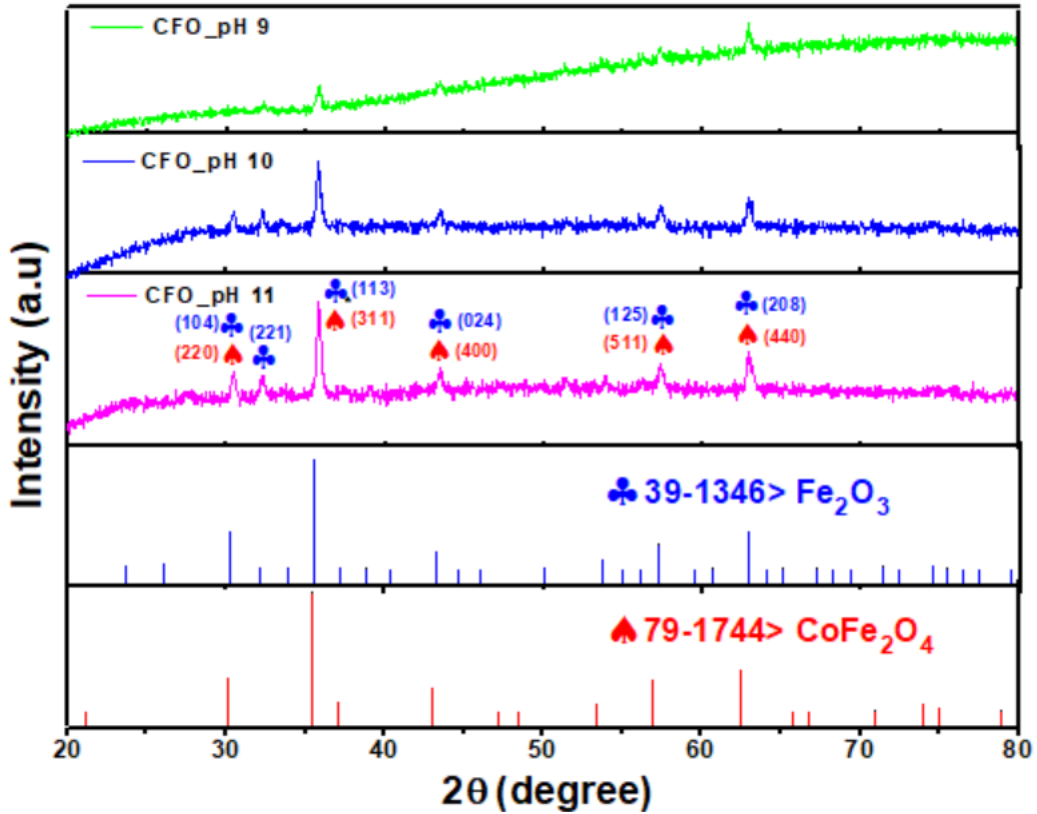
Các điện cực CFO được chế tạo bằng cách sử dụng kỹ thuật cắt lưỡi dao để tạo thành hình tròn, áp dụng các hỗn hợp gồm vật liệu bột CFO đã làm trước đó, Super P và chất kết dính poly(axit acrylic) trong ethanol với tỷ lệ khối lượng là 70:15:15, rồi đem đi phủ lên lá đồng. Sau đó, các điện cực điện sấy khô ở 75°C trong vòng 1 giờ để cho dung môi bay hơi. Tiếp theo các điện cực được đem đi cắt thành các mảnh tròn có đường kính 1.5 cm và lắp ráp thành hình đồng xu bên trong glovebox. Các thành phần được lắp ráp bao gồm anode, màng ngăn, chất điện giải và điện cực đối diện, cụ thể là sử dụng điện cực CFO, Celgard 2400, dung dịch  $\text{LiPF}_6$  1M trong hỗn hợp etylen cacbonat và diethyl cacbonat theo tỷ lệ 1:1, cùng với lá lithium.

Các phép đo điện hóa cho điện cực CFO được thực hiện bằng cách sử dụng thiết bị Arbin Instruments (hãng Arbin, model: LBT20084). Các phép đo CV được thực hiện trong phạm vi điện thế từ 0.01 V đến 3.00 V (so với  $\text{Li}/\text{Li}^+$ ) với tốc độ 0.3  $\text{mV s}^{-1}$  trong 3 chu kỳ đầu tiên. Quá trình tuần hoàn được đánh giá ở mật độ dòng điện là 0.1  $\text{A g}^{-1}$ , trải dài trên phạm vi điện áp từ 0.01 V đến 3.00 V ( $\text{Li}/\text{Li}^+$ ) và phương pháp đo dung lượng phóng/sạc của LIB hoạt động ổn định qua các chu kỳ.

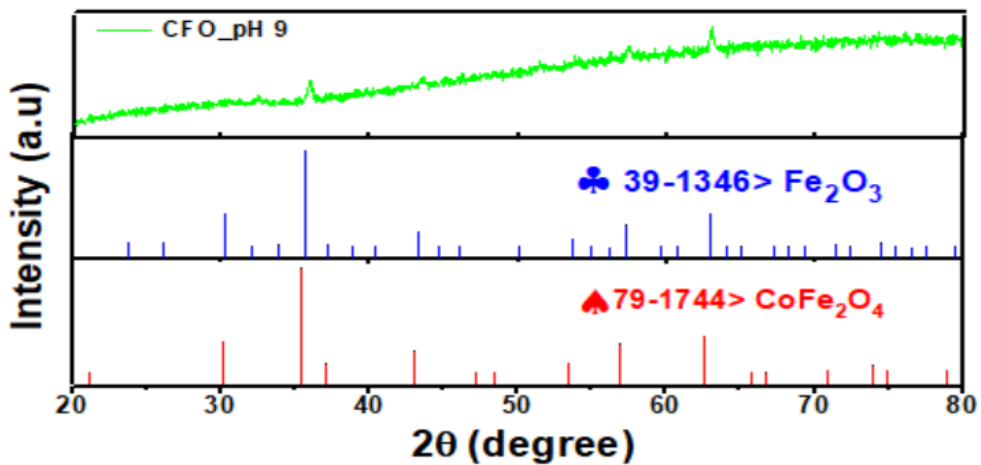
## 3. Kết quả và thảo luận

Phổ XRD ở hình 1a biểu diễn cấu trúc tinh thể của các mẫu vật liệu CFO được tổng hợp ở các giá trị pH khác nhau CFO\_pH 9, 10, 11 cho thấy cả ba mẫu đều chứa hai pha tinh thể là  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  và  $\text{CoFe}_2\text{O}_4$ . Tại hình 1b, mẫu pH 9 có nền nhiễu xạ cao, các đỉnh nhiễu xạ yếu và không rõ ràng, điều này cho thấy rằng tinh thể chưa phát triển tốt, mức độ kết tinh thấp, có thể vẫn còn tạp chất hoặc cấu trúc vô định hình chiếm ưu thế. Trong khi đó, ở hình 1c và 1d, các mẫu CFO\_pH 10 và 11 xuất hiện các đỉnh nhiễu xạ rõ ràng và sắc nét hơn. Các đỉnh tại 30.2°, 32.1°, 35.6° và 62.9° tương ứng với các mặt phẳng (220), (221), (311) và (440) thể hiện sự hiện diện của pha  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ , trong khi đó các đỉnh tại 30.1°, 35.4°, 56.9° và 62.5° gắn với các mặt phẳng (104), (113), (125) và (208) đặc trưng cho pha  $\text{CoFe}_2\text{O}_4$ . Đặc biệt, mẫu CFO\_pH 10 cho thấy có nhiều đỉnh trùng khớp tốt với mẫu chuẩn 79-1744, chứng tỏ mẫu có độ kết tinh tốt và cấu trúc spinel của  $\text{CoFe}_2\text{O}_4$  hình thành rõ rệt. Còn ở CFO\_pH 11 cũng có các đỉnh nhiễu xạ sắc nét, đồng thời xuất hiện thêm một số đỉnh phù hợp với mẫu chuẩn 39-1346, cho thấy sự gia

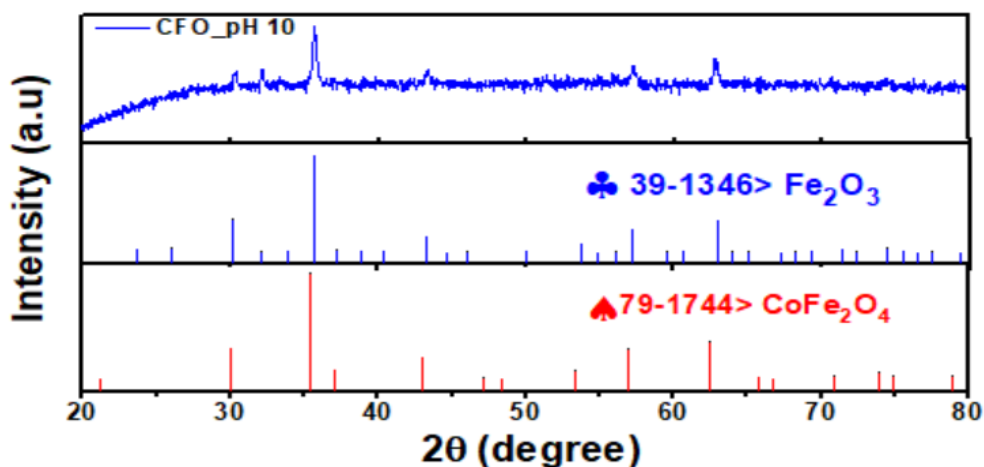
tăng hàm lượng  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  trong sản phẩm. Đỉnh tại  $35.6^\circ$  của CFO\_pH 11 trở nên nhọn và rõ rệt hơn so với các đỉnh của CFO\_pH 10 và CFO\_pH 9, phản ánh sự chiếm ưu thế của pha  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  khi tăng pH. Sự thay đổi này khẳng định rằng pH có ảnh hưởng đáng kể đến động học kết tinh và tỉ lệ pha trong hệ vật liệu composite  $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{CoFe}_2\text{O}_4$ .



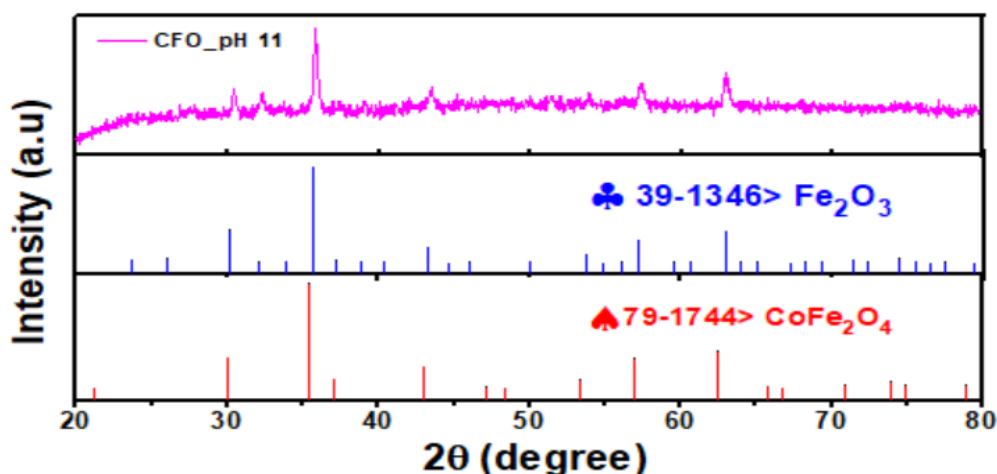
Hình 1 a. Kết quả XRD của các mẫu CFO\_pH 9, CFO\_pH 10, CFO\_pH 11 và các đỉnh chuẩn của  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  và  $\text{CoFe}_2\text{O}_4$ .



Hình 1 b. Kết quả XRD của mẫu CFO\_pH 9 và các đỉnh chuẩn của  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  và  $\text{CoFe}_2\text{O}_4$ .



Hình 1 c. Kết quả XRD của mẫu CFO\_pH 10 và các đỉnh chuẩn của  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  và  $\text{CoFe}_2\text{O}_4$ .

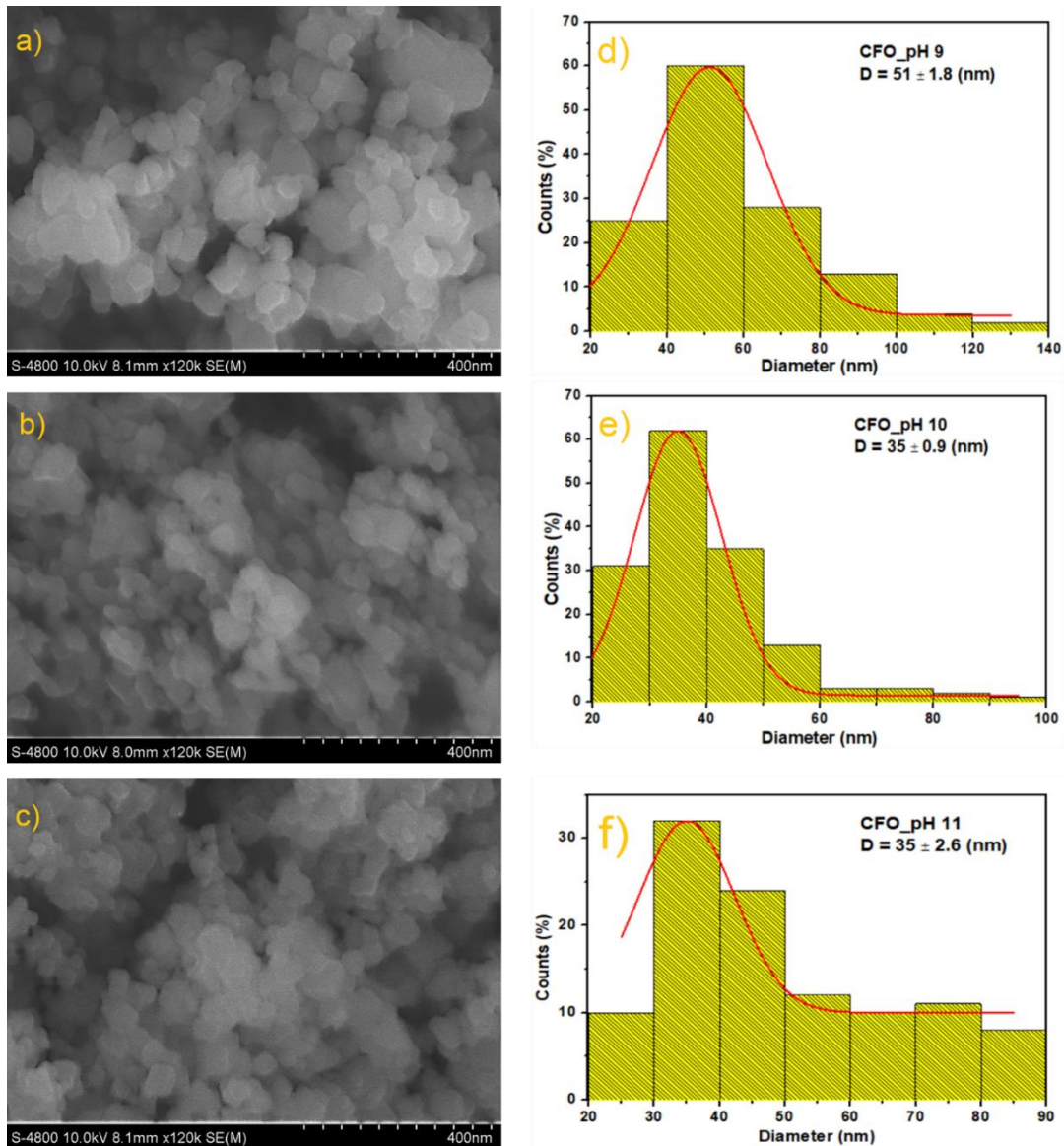


Hình 1 d. Kết quả XRD của mẫu CFO\_pH 11 và các đỉnh chuẩn của  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  và  $\text{CoFe}_2\text{O}_4$ .

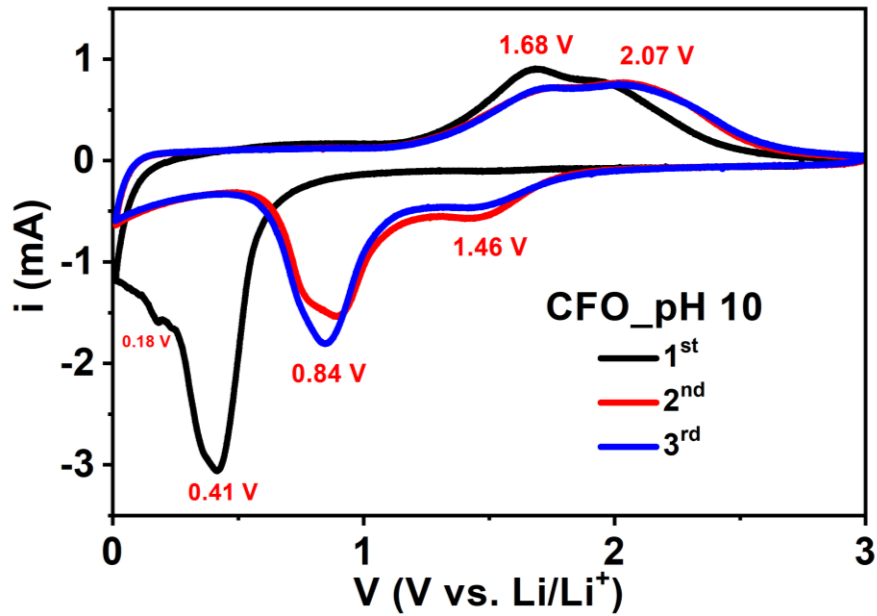
Hình thái của vật liệu CFO được tổng hợp ở pH 9 đến 11 và phân tích bằng ảnh SEM mô tả trong hình 2 (a-c). Bên cạnh đó là sơ đồ phân bố kích thước hạt được tạo ra từ kết quả SEM được minh họa trong hình 2 (d-f). Ở pH 9 hạt có kích thước nano, phân bố không đồng đều và có xu hướng kết tụ rõ rệt với kích thước trung bình khoảng 51 nm. Khi tăng giá trị pH lên 10, 11 kích thước hạt vật liệu nhỏ xuống rõ rệt khoảng 35 nm. Từ dữ liệu ảnh SEM và biểu đồ phân bố kích thước hạt cho thấy rằng nồng độ pH trong quá trình phản ứng ảnh hưởng lớn đến kích thước hạt khi tăng pH từ 9 lên 11. Sự biến đổi về kích thước hạt có thể bắt nguồn từ sự khác biệt trong tốc độ tạo mầm và quá trình phát triển tinh thể khi pH tăng (Ruiz-Agudo & cs., 2015; Safi & cs., 2015).

Các đường cong voltammogram tuần hoàn (CV) của vật liệu điện cực  $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{CoFe}_2\text{O}_4$  trong ba chu kỳ đầu tiên với tốc độ quét là  $0.3 \text{ mV s}^{-1}$  trong phạm vi điện áp từ 0.01 đến 3.00 V (so với  $\text{Li}/\text{Li}^+$ ) được thể hiện trong hình 3. Quan sát cho thấy đường cong CV ở lần quét thế đầu tiên khác biệt so với các chu kỳ tiếp theo. Ở chu kỳ đầu, xuất hiện một đỉnh cathodic rõ, nhọn ở 0.41 V tương ứng với quá trình khử  $\text{Co}^{2+}$  và  $\text{Fe}^{3+}$  về trạng thái kim loại và đi kèm với sự chèn ion  $\text{Li}^+$  vào cấu trúc tinh thể của vật liệu, tạo thành các sản phẩm Co, Fe và  $\text{Li}_2\text{O}$ , và cũng như hợp chất trung gian  $\text{Li}_x\text{Fe}_2\text{O}_3$  bị khử thành Fe (Wang & cs., 2016; Wang & cs., 2012),

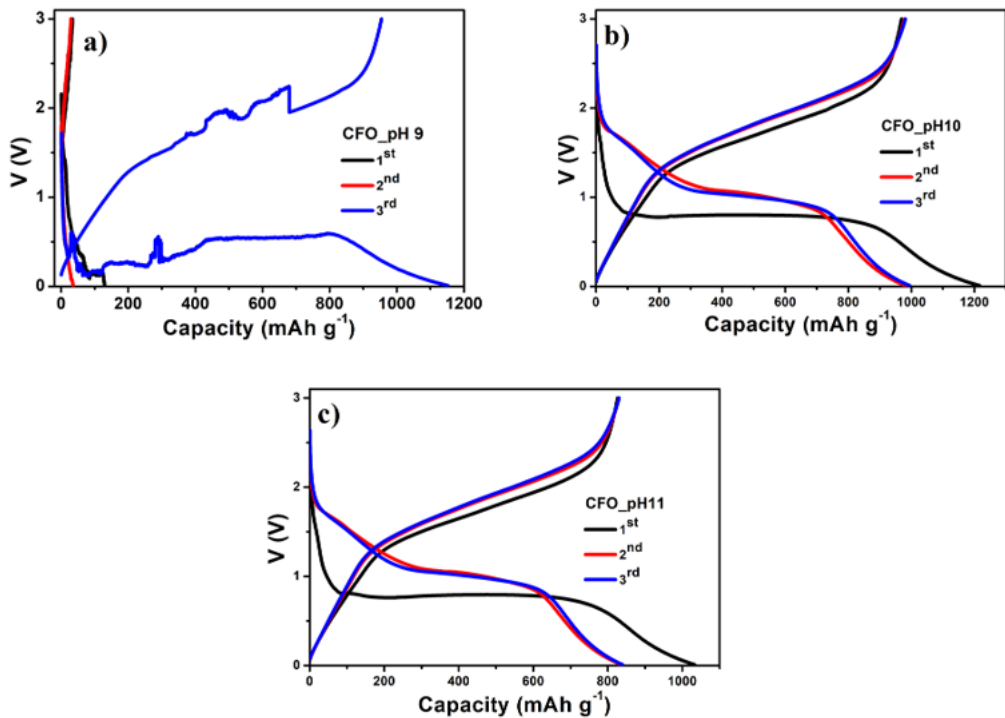
đỉnh này đồng thời cho là sự phân hủy chất điện phân hữu cơ tạo lớp xen kẽ chất điện phân rắn (SEI) trên bề mặt điện cực, bên cạnh đó có một đỉnh yếu ở 0.18 V liên quan đến quá trình hình thành SEI và phản ứng giữa điện cực với chất điện phân ở chu kỳ đầu (Bui & cs., 2025; Zhang & cs., 2019). Lớp SEI chủ yếu hình thành ở chu kỳ đầu nên trong các chu kỳ tiếp theo, đỉnh 0.41 V không còn giữ nguyên vị trí mà dịch chuyển thành hai đỉnh là 0.84 V và 1.46 V, Sự dịch chuyển này còn có thể do hiện tượng phân cực điện cực và các phản ứng không thuận nghịch với chất điện phân trong quá trình nạp/xả (Li & cs., 2010; Wang & cs., 2016). Trong lần quét anodic, các đỉnh oxy hóa đều xuất hiện ở mức 1.68 V và 2.07 V qua cả ba chu kỳ, được cho là thể oxy hóa đặc trưng cho quá trình oxy hóa kim loại Fe thành  $Fe_2O_3$  đối với đỉnh 1.68 V và Co thành CoO đối với đỉnh 2.07 V (Bui & cs., 2025; Wang & cs., 2016). Các đỉnh anodic này dần ổn định về vị trí và cường độ ở các chu kỳ tiếp theo, cho thấy tính thuận nghịch dần được cải thiện sau vài chu kỳ điện hóa ban đầu.



Hình 2. (a-c) Ảnh SEM của các mẫu CFO\_pH 9, CFO\_pH 10, CFO\_pH 11. (d-f) Biểu đồ phân bố kích thước hạt của các mẫu CFO\_pH 9, CFO\_pH 10, CFO\_pH 11.



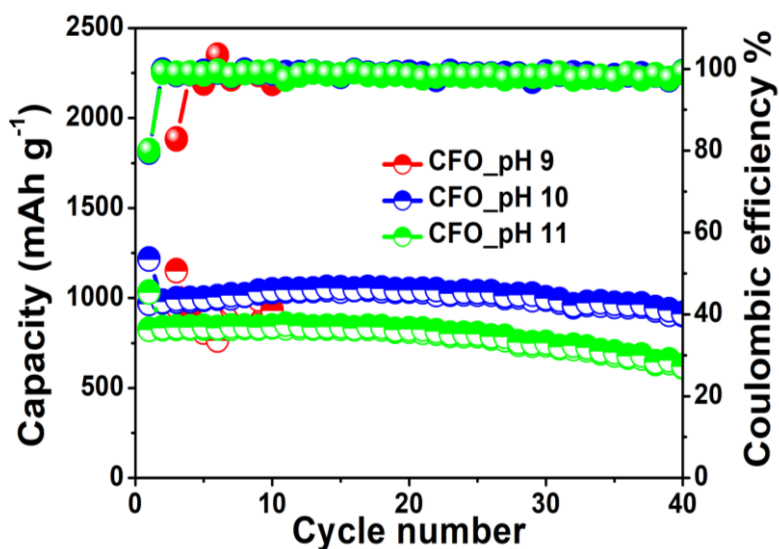
Hình 3. Kết quả xác định đường cong quét thế vòng tuần hoàn của vật liệu  $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{CoFe}_2\text{O}_4$



Hình 4. (a-c) Đường cong sạc/xả của các điện cực CFO\_9, CFO\_10, và CFO\_11 trong ba chu kỳ đầu tiên

Được đo dưới một dòng điện không đổi, đồ thị điện thế theo dung lượng phản ánh hiệu suất lưu trữ năng lượng và khả năng hồi phục của ba mẫu CFO\_9, CFO\_10, và CFO\_11 hoạt động trong ba chu kỳ. Trong số đó, mẫu CFO\_9 đã thể hiện sự khác biệt rõ rệt nhất về tín hiệu so với hai mẫu CFO\_10 và CFO\_11. Cụ thể, đường cong sạc/xả của mẫu CFO\_9 tại chu kỳ

đầu được ghi nhận dung lượng thấp, nhưng kể từ chu kỳ thứ ba khả năng lưu trữ năng lượng lên tới gần  $1200 \text{ mAh g}^{-1}$ . Đáng chú ý hơn nữa, tín hiệu của CFO\_9 lại không thể hiện độ dốc rõ ràng mà lại có những đỉnh nhiễu xuất hiện. Đây là một hiện tượng xuất hiện ở các vật liệu có các cấu trúc bị khuyết tật, kích thước hạt không đồng đều, và tồn tại các pha phụ hoặc vô định hình (Zhang & cs., 2019). Tại nồng độ pH = 9, mẫu CFO có thể đã hình thành các vị trí khuyết tật oxy, đóng vai trò như một vị trí tâm hoạt động mới. Tuy nhiên, trong các phản ứng lưu trữ lithium ban đầu, các vị trí khuyết tật này có thể nằm sâu bên trong cấu trúc vật liệu, do đó mà tại các chu kỳ đầu mẫu đạt được dung lượng rất thấp. Trong quá trình sạc/xả ở các chu kỳ kế tiếp đã thúc đẩy sự tái cấu trúc bề mặt, tạo điều kiện cho các vị trí khuyết tật xuất hiện tiếp xúc được với các ion  $\text{Li}^+$ , từ đó mà dung lượng đã tăng lên đáng kể (Zhang & cs., 2019). Bên cạnh đó, trên đường cong sạc/xả của CFO\_9 đã ghi nhận được sự xuất hiện các đỉnh nhiễu, cho thấy sự liên quan đến hiện tượng giả điện dung, khi ion  $\text{Li}^+$  không chỉ hoạt động trên bề mặt như truyền thống mà chèn vào luôn các vị trí khuyết tật trong cấu trúc (Zhang & cs., 2019). Kết quả là, tốc độ phản ứng lưu trữ ion được gia tăng, dẫn đến sự hình thành các đường không có độ dốc rõ ràng. Ngược lại, cả hai mẫu CFO\_10 và CFO\_11, đều biểu diễn đường cong sạc/xả rõ rệt và ổn định qua từng chu kỳ, cho thấy ở nồng độ pH cao, cấu trúc tinh thể ít khuyết tật và hạt có kích thước đồng đều. Ngoài ra, khoảng chênh lệch giữa điện áp của đường cong sạc/xả cũng không quá lớn, cho thấy mẫu tổng hợp có thể sử dụng cho các ứng dụng thực tế. Tương tự như các nghiên cứu về các điện cực anode trước đây, cả hai mẫu CFO\_10 và CFO\_11 đều đạt được dung lượng cao trong chu kỳ đầu, chứng tỏ có sự hình thành của lớp SEI. Theo đó, khi phản ứng khử diễn ra giữa điện cực và điện phân, ngoài các pha trung gian như Co hay  $\text{Li}_2\text{O}$  hình thành thì lớp polymer hữu cơ SEI cũng hình thành theo (Dong & cs., 2015; Li & cs., 2010). Quá trình này làm tiêu hao các ion  $\text{Li}^+$  và electron, tạo điều kiện cho điện cực đạt được dung lượng lớn, nhưng không thể thu hồi ở các chu kỳ sau (Li & cs., 2010). Dựa trên các dữ liệu từ hình a và hình b, có thể thấy rằng mẫu CFO\_10 tối ưu hơn CFO\_11 do dung lượng ở các chu kỳ sau vẫn giữ ở mức cao khoảng  $1000 \text{ mAh g}^{-1}$ , so với dung lượng khoảng  $800 \text{ mAh g}^{-1}$  của CFO\_11. Hơn thế nữa, độ trễ áp thấp chứng tỏ phản ứng thuận nghịch cũng diễn ra dễ dàng với các đường cong ổn định rõ ràng. Như vậy, với nồng độ pH = 10, mẫu composite sẽ đạt được dung lượng cao và ổn định, không bị suy giảm qua các chu kỳ phản ứng.



Hình 5. Dung lượng và hiệu suất Coulombic của các điện cực CFO\_9, 10 và 11

Để làm nổi bật hơn về hiệu suất lưu trữ của các điện cực CFO tổng hợp ở các giá trị pH khác nhau, hình 5 thể hiện sự thay đổi dung lượng theo số chu kỳ và hiệu suất Coulomb (CE)

với 40 chu kỳ ở  $0,1 \text{ A g}^{-1}$ . Trong đó, mẫu CFO\_pH 9 ở chu kỳ đầu cho ra dung lượng khá tốt ở mức  $954.4 \text{ mAh g}^{-1}$ , thấp hơn so với mẫu CFO\_pH 10 ( $969.12 \text{ mAh g}^{-1}$ ) và cao hơn CFO\_pH 11 ( $826.32 \text{ mAh g}^{-1}$ ). Trong khi dung lượng của mẫu CFO\_pH 9 có xu hướng dao động ở những chu kỳ đầu thì dung lượng của hai mẫu còn lại là CFO\_pH 10 và CFO\_pH 11 khá ổn định, thay đổi không đáng kể ở những chu kỳ tiếp theo. Tuy nhiên, ở chu kỳ 29, hai mẫu có xu hướng giảm dần và sau 40 chu kỳ mẫu CFO\_pH 10 vẫn duy trì tốt dung lượng ở mức  $906.97 \text{ mAh g}^{-1}$  tương ứng với khả năng lưu trữ là 93.6%, trong khi CFO\_pH 11 giảm mạnh còn  $616.24 \text{ mAh g}^{-1}$  với khả năng lưu trữ 74.6% thấp hơn mẫu CFO\_pH 10 nhưng vẫn thể hiện khả năng lưu trữ dung lượng ổn định qua nhiều chu kỳ. Đáng chú ý, hiệu suất Coulomb (CE) của các mẫu CFO\_pH 10 và CFO\_pH 11 đều tăng nhanh và đạt gần 100% ngay từ chu kỳ thứ 2, cho thấy khả năng chuyển hóa thuận nghịch tốt của vật liệu, tuy nhiên mẫu CFO\_pH 9 có hiệu suất Coulomb dao động mạnh từ khoảng 82% đến 103%, phản ánh sự kém ổn định và khả năng đảo ngược không đồng đều so với hai mẫu còn lại. Tổng thể cho thấy, mẫu CFO\_pH 10 không chỉ có dung lượng ban đầu cao mà còn đảm bảo tính ổn định vượt trội sau nhiều chu kỳ, khẳng định ưu thế của vật liệu được tổng hợp tại mức pH này.

## 5. Kết luận

Trong nghiên cứu này, vật liệu nanocomposite  $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{CoFe}_2\text{O}_4$  được tổng hợp thành công bằng phương pháp đồng kết tủa ở các điều kiện pH dung dịch từ 9 đến 11. Các tính chất của vật liệu CFO như, ảnh SEM cho thấy khi tăng pH từ 9 lên 11, kích thước hạt giảm từ 51 nm xuống còn ~35 nm và phân bố kích thước trở nên đồng đều hơn. Kết quả XRD xác nhận sự hiện diện của hai pha  $\text{CoFe}_2\text{O}_4$  và  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  trong các mẫu, với mức độ kết tinh tăng dần khi pH tăng. Trong đó, mẫu CFO\_pH 10 thể hiện dung lượng sạc/xả cao nhất ngay từ chu kỳ đầu tiên, đạt  $969.12 \text{ mAh g}^{-1}$  và giữ dung lượng ổn định sau 40 chu kỳ ( $906.97 \text{ mAh g}^{-1}$ ) với hiệu suất Coulomb gần 100% từ chu kỳ thứ hai trở đi, cho thấy đây là điều kiện tối ưu để tổng hợp vật liệu với hiệu năng tốt cho điện cực anode pin lithium-ion. Từ những kết quả trên cho thấy rằng vật liệu nanocomposite CFO\_pH 10 có thể đóng vai trò là vật liệu hoạt động hiệu quả cho anode trong pin lithium-ion hiệu suất cao.

**Lời cảm ơn:** Công trình này thuộc đề tài sinh viên SV2025 của trường Đại học Sư phạm Kỹ thuật Thành phố Hồ Chí Minh.

## Tài liệu tham khảo

- Bui, H. T., Tran, T. G., Tran, N. T., Ngo, T. M. D., Ngo, H. D., Pham, L. T., Van Tran, M., Nguyen, D. L. T., Bui, T. N. T., & Nguyen, T. L. (2025). Fabrication of  $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{CoFe}_2\text{O}_4$  pH-controlled nanocomposites as novel anodes for lithium-ion batteries. *Journal of Materials Science: Materials in Electronics*, 36(2), 135. <https://doi.org/10.1007/s10854-024-14177-w>
- Buqa, H., Goers, D., Holzapfel, M., Spahr, M. E., & Novák, P. (2005). High rate capability of graphite negative electrodes for lithium-ion batteries. *Journal of the Electrochemical Society*, 152(2), A474. <https://doi.org/10.1149/1.1851055>
- Dong, L., Wang, Z., Mi, C., Zhao, W., Qin, C., Luo, C., & Wang, Z. (2024). Defect-rich hierarchical porous spinel  $\text{MFe}_2\text{O}_4$  (M = Ni, Co, Fe, Mn) as high-performance anode for lithium ion batteries. *Materials Today Chemistry*, 35, 101853. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.mtchem.2023.101853>
- Dong, Y., Chui, Y.-S., Yang, X., Ma, R., Lee, J.-M., & Zapien, J. A. (2015). Facile Synthesis of Hollow Mesoporous  $\text{CoFe}_2\text{O}_4$  Nanospheres and Graphene

- Composites as High-Performance Anode Materials for Lithium-Ion Batteries. *ChemElectroChem*, 2(7), 1010-1018. <https://doi.org/10.1002/celc.201500046>
- Huang, G., Zhang, F., Zhang, L., Du, X., Wang, J., & Wang, L. (2014). Hierarchical NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>/Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> nanotubes derived from metal organic frameworks for superior lithium ion battery anodes [10.1039/C4TA00200H]. *Journal of Materials Chemistry A*, 2(21), 8048-8053. <https://doi.org/10.1039/C4TA00200H>
- Jin, Y.-H., Seo, S.-D., Shim, H.-W., Park, K.-S., & Kim, D.-W. (2012). Synthesis of core/shell spinel ferrite/carbon nanoparticles with enhanced cycling stability for lithium ion battery anodes. *Nanotechnology*, 23(12), 125402. <https://doi.org/10.1088/0957-4484/23/12/125402>
- Li, Z. H., Zhao, T. P., Zhan, X. Y., Gao, D. S., Xiao, Q. Z., & Lei, G. T. (2010). High capacity three-dimensional ordered macroporous CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> as anode material for lithium ion batteries. *Electrochimica Acta*, 55(15), 4594-4598. <https://doi.org/10.1016/j.electacta.2010.03.015>
- Liu, S., Liu, X., Zhao, J., Tong, Z., Wang, J., Ma, X., Chi, C., Su, D., Liu, X., & Li, Y. (2016). Three dimensional hierarchically porous crystalline MnO<sub>2</sub> structure design for a high rate performance lithium-ion battery anode. *RSC Advances*, 6(88), 85222-85229. <https://doi.org/10.1039/C6RA16430G>
- Narsimulu, D., Rao, B. N., Nagaraju, G., Yu, J. S., & Satyanarayana, N. (2020). Enhanced energy storage performance of nanocrystalline Sm-doped CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> as an effective anode material for Li-ion battery applications. *Journal of Solid State Electrochemistry*, 24(1), 225-236. <https://doi.org/10.1007/s10008-019-04484-2>
- Ruiz-Agudo, C., Putnis, C. V., Ruiz-Agudo, E., & Putnis, A. (2015). The influence of pH on barite nucleation and growth. *Chemical Geology*, 391, 7-18. <https://doi.org/10.1016/j.chemgeo.2014.10.023>
- Safi, R., Ghasemi, A., Shoja-Razavi, R., & Tavousi, M. (2015). The role of pH on the particle size and magnetic consequence of cobalt ferrite. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 396, 288-294. <https://doi.org/10.1016/j.jmmm.2015.08.022>
- Wang, J., Zhang, H., Lv, X., Nie, K., Gao, X., Zhong, J., & Sun, X. (2016). Self-supported ultrathin mesoporous CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>/CoO nanosheet arrays assembled from nanowires with enhanced lithium storage performance. *Journal of Materials Science*, 51(14), 6590-6599. <https://doi.org/10.1007/s10853-016-9902-y>
- Wang, Y., Su, D., Ung, A., Ahn, J.-h., & Wang, G. (2012). Hollow CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> nanospheres as a high capacity anode material for lithium ion batteries. *Nanotechnology*, 23(5), 055402. <https://doi.org/10.1088/0957-4484/23/5/055402>
- Wang, Y., Wu, S., Wang, C., Wang, Y., & Han, X. (2019). Morphology controllable synthesis of NiO/NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> hetero-structures for ultrafast lithium-ion battery. *Frontiers in Chemistry*, 6, 654. <https://doi.org/10.3389/fchem.2018.00654>

- Wang, Y., Yang, L., Hu, R., Sun, W., Liu, J., Ouyang, L., Yuan, B., Wang, H., & Zhu, M. (2015). A stable and high-capacity anode for lithium-ion battery: Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> wrapped by few layered graphene. *Journal of Power Sources*, 288, 314-319. <https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2015.04.076>
- Wu, N., Shen, J., Sun, L., Yuan, M., Shao, Y., Ma, J., Liu, G., Guo, D., Liu, X., & He, Y.-B. (2019). Hierarchical N-doped graphene coated 1D cobalt oxide microrods for robust and fast lithium storage at elevated temperature. *Electrochimica Acta*, 310, 70-77. <https://doi.org/10.1016/j.electacta.2019.04.115>
- Xia, H., Zhu, D., Fu, Y., & Wang, X. (2012). CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>-graphene nanocomposite as a high-capacity anode material for lithium-ion batteries. *Electrochimica Acta*, 83, 166-174. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.electacta.2012.08.027>
- Zhang, C., Chen, Z., Wang, H., Nie, Y., & Yan, J. (2021). Porous Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Nanoparticles as Lithium-Ion Battery Anode Materials. *ACS Applied Nano Materials*, 4(9), 8744-8752. <https://doi.org/10.1021/acsanm.1c01312>
- Zhang, J., Jiang, H., Zeng, Y., Zhang, Y., & Guo, H. (2019). Oxygen-defective Co<sub>3</sub>O<sub>4</sub> for pseudo-capacitive lithium storage. *Journal of Power Sources*, 439, 227026. <https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2019.227026>
- Zhao, L., Ding, B., Qin, X.-Y., Wang, Z., Lv, W., He, Y.-B., Yang, Q.-H., & Kang, F. (2022). Revisiting the Roles of Natural Graphite in Ongoing Lithium-Ion Batteries. *Advanced Materials*, 34(18), 2106704. <https://doi.org/10.1002/adma.202106704>
- Zheng, X., Shen, G., Li, Y., Duan, H., Yang, X., Huang, S., Wang, H., Wang, C., Deng, Z., & Su, B.-L. (2013). Self-templated synthesis of microporous CoO nanoparticles with highly enhanced performance for both photocatalysis and lithium-ion batteries [10.1039/C2TA00536K]. *Journal of Materials Chemistry A*, 1(4), 1394-1400. <https://doi.org/10.1039/C2TA00536K>