



Hấp phụ I-ốt (I^-) trong nước bằng vật liệu than sinh học từ vỏ bưởi

Adsorption of Iodide (I^-) from aqueous solution onto biochar derived from pomelo fruit peel

Dương Bích Ngọc^{1,3}, Nguyễn Duy Khôi^{2,3,4}, Hồ Thiên Hoàng⁵, Tôn Thất Lộc^{2,4}, Nguyễn Ngọc An¹, Phạm Nguyễn Kim Tuyến⁶, Huỳnh Bùi Linh Chi⁵, Nguyễn Thị Thúy Nhâm⁷, Hoàng Anh Tuấn⁷, Đinh Văn Phúc^{1,*}

¹Viện Công nghệ Ứng dụng và Phát triển Bền vững, Đại học Nguyễn Tất Thành

²Viện nghiên cứu Khoa học Cơ bản và Ứng dụng, Trường Đại học Duy Tân

³Trung tâm đào tạo Hạt nhân, Viện năng lượng nguyên tử Việt Nam

⁴Khoa Khoa học Tự nhiên, Trường Đại học Duy Tân

⁵Đại học Đồng Nai

⁶Trường Đại học Sài Gòn

⁷Bệnh viện Quân y 175

*Email: dvphuc@ntt.edu.vn

ARTICLE INFO

Received: 01/3/2023

Accepted: 15/4/2023

Published: 30/6/2023

Keywords:

Biochar, pomelo fruit, Iodide (I^-) adsorption, isotherm, kinetic properties.

ABSTRACT

Removing iodide from aqueous solution using biomaterials synthesized from pomelo fruit peel-derived biochar with low costs is a new approach in environmental science and application. The material was characterized by various analytic methods such as XRD, SEM, BET, and FTIR. Additionally, Leuco crystal violet method was used to ascertain the quantity of iodide (I^-) adsorbed and UV-Vis spectroscopy was used to quantify it. The effects of pH (2–11) and interaction duration (3–42 h) on the iodide adsorption were carefully examined. To examine the isotherm and dynamic characteristics of the substance, the Langmuir, Freundlich, pseudo-first-order, pseudo-second-order, and in-diffusion models were applied. The results showed that the maximum adsorption took place at pH 2 for 2520 min and the adsorption followed the intra-diffusion kinetic model as well as the maximum capacity (q_m) derived from the Langmuir equation was 7,06 mg/g at 303 K, this number is higher than the maximum uptake capacity based on experiment findings ($q_e = 1,46$ mg/g).

Giới thiệu chung

¹³¹I là đồng vị iốt phóng xạ được sử dụng phổ biến nhất trong điều trị ung thư biểu mô tuyến giáp ở các bệnh viện tại Việt Nam [1-3]. Cùng với việc sử dụng iốt phóng xạ trong quá trình điều trị ung thư, xử lý nước thải phóng xạ là một trong những vấn đề quan trọng

và cấp bách nhất hiện nay. Trên thực tế, nước thải phóng xạ sau khi điều trị cho bệnh nhân được thu gom và chứa trong các bể chứa ở bệnh viện cho đến khi phân rã. Tuy nhiên, điều này dẫn đến những nguy cơ tiềm ẩn đối với sức khỏe con người do rò rỉ chất phóng xạ từ quá trình lưu trữ và lên men [4]. Để xử lý chất thải này, nhiều phương pháp xử lý đã được thực

<https://doi.org/10.51316/jca.2023.022>

hiện như: hấp phụ [5,6], kết tủa [7,8], trao đổi ion [9,10] và lọc qua màng [11,12]. Trong đó, hấp phụ được xem là một phương pháp kinh tế và thân thiện với môi trường, thu hút sự chú ý của các nhà khoa học trong và ngoài nước [13]. Một số vật liệu xốp nổi bật được sử dụng trong hấp phụ như: Than hoạt tính [14-17], zeolite [18-20], MOF [21-23].

Trong những năm gần đây, đã có một số nghiên cứu xử lý iốt phóng xạ trên một vài vật liệu như than hoạt tính, zeolite, MOF và có một số kết quả nổi bật như: 1,49 Bq/g ^{131}I được loại bỏ bởi vật liệu than hoạt tính Antraxit [24]; 57,77 mg/g I_2 được loại bỏ bởi vật liệu C@ETS-10 [25]; 847 mg/g I^- được loại bỏ bởi vật liệu nanocomposites ($\text{Ag}/\text{Fe}_3\text{O}_4$) [26];... Tuy nhiên, quá trình hoạt hóa hoặc tổng hợp các vật liệu này thường sử dụng nhiều hóa chất đắt tiền và kém thân thiện với môi trường. Bên cạnh đó, các nghiên cứu xử lý iốt phóng xạ dạng lỏng còn ít, đặc biệt là sử dụng vật liệu hấp phụ thân thiện với môi trường như than sinh học.

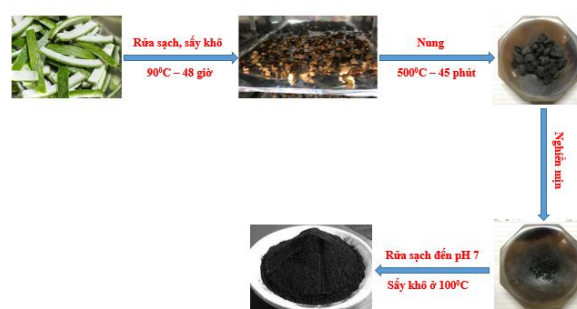
Than sinh học thuộc loại vật liệu xốp, thường được tổng hợp từ phụ phẩm nông nghiệp trong điều kiện không có oxy [27]. Than sinh học cho thấy khả năng tái sử dụng và khả năng hấp phụ tốt đối với các hợp chất độc hại như: Cr(VI) [28], As(V) [29], Pb (II) [30], kháng sinh Tetracycline [31], methylen da cam [32], ... Với iốt phóng xạ, đặc biệt là iốt phóng xạ dạng lỏng, gần như chưa có một công bố nào sử dụng than sinh học làm vật liệu hấp phụ. Điều đó cho thấy việc nghiên cứu hấp phụ iốt phóng xạ lỏng trên vật liệu than sinh học là cần thiết.

Trong các nghiên cứu gần đây của chúng tôi, than sinh học từ vỏ bưởi đã được sử dụng để loại bỏ hiệu quả các chất màu hữu cơ cũng như ion kim loại nặng như: methylen xanh và Cr(III) [33], Pb(II) và Cd(II) [34]. Điều đó cho thấy than sinh học từ vỏ bưởi có khả năng hấp phụ tốt và có thể ứng dụng hấp phụ I^- trong dung dịch nước. Trong nghiên cứu này, than sinh học tổng hợp từ vỏ bưởi được sử dụng làm vật liệu hấp phụ iốt (I^-) giả định trong nước, nhằm đánh giá khả năng hấp phụ và định hướng xử lý iốt phóng xạ có trong nước thải bệnh viện. Các đặc trưng của vật liệu sẽ được phân tích bằng các phương pháp như: XRD, SEM và BET, và FTIR. Ngoài ra, ảnh hưởng của pH và thời gian hấp phụ cũng sẽ được khảo sát trong nghiên cứu này.

Thực nghiệm và phương pháp nghiên cứu

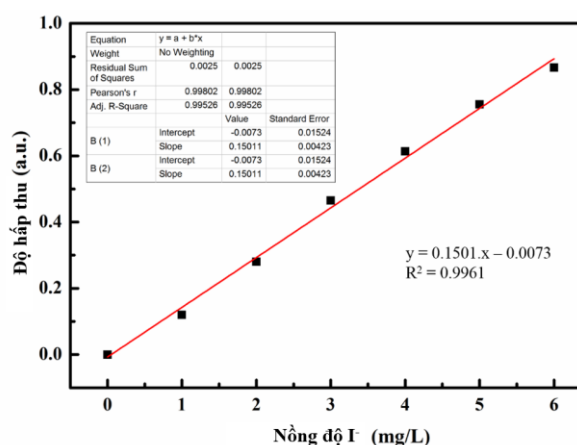
Xử lý nguyên liệu và tổng hợp than sinh học

Vỏ bưởi sau khi thu gom từ làng bưởi Tân Triều (tỉnh Đồng Nai, Việt Nam) được rửa sạch bằng nước cất, sau đó cắt thành từng miếng nhỏ có kích cỡ khoảng 2 cm × 2 cm và được sấy khô ở 90 °C trong 48 giờ. Than sinh học từ vỏ bưởi được tổng hợp theo quy trình của tác giả Hashem và cộng sự với một ít thay đổi [35]. Cụ thể, vỏ bưởi sau khi sấy khô được nung trong môi trường yếm khí ở nhiệt độ 500 °C trong 45 phút. Sau đó vật liệu được nghiền mịn và rửa sạch với nước cất đến pH trung tính. Vật liệu được sấy khô qua đêm ở 100 °C và gia nhiệt, rút chân không ở nhiệt độ thích hợp để thực hiện quá trình hoạt hóa, thu được than sinh học. Quá trình tổng hợp vật liệu than sinh học từ vỏ bưởi được thể hiện trong Hình 1.



Hình 1: Sơ đồ tổng hợp vật liệu than sinh học từ vỏ bưởi

Xây dựng đường chuẩn I^- và phương pháp thực hiện hấp phụ I^-



Hình 2: Đường chuẩn I^- từ 0 đến 6 mg/L

Đường chuẩn phân tích I^- được thực hiện theo công bố trước đó [36] và được thể hiện trong Hình 2. Quá trình hấp phụ I^- được thực hiện như sau: 0,1 g than sinh học được cho vào lọ thủy tinh chứa 50 mL dung dịch KI nồng độ 5 mg/L (với dung tích tối đa của lọ là 100 ml) và được khuấy trên máy khuấy từ 10 điểm. Sau khi hấp phụ, hỗn hợp được lọc để loại bỏ hoàn toàn vật liệu,

phần dung dịch được tiến hành xử lý và phân tích UV-Vis. Quá trình hấp phụ được thực hiện ở 303 K, và ảnh hưởng của pH (2-11) cũng như thời gian hấp phụ (3-42 giờ) đã được khảo sát.

Nồng độ của I⁻ trong dung dịch trước và sau hấp phụ được xác định bằng phương pháp "Leuco crystal violet" (LCV) [36]. Cụ thể, đong 25 mL dung dịch KI (5 mg/L) vào bình định mức 100 mL có nút đậy. Sau đó, thêm lần lượt 1,0 mL dung dịch đệm citric và 0,5 mL KHSO₅; lắc đều và để yên khoảng 1 phút để tạo ra dung dịch iốt (I₂). Tiếp theo thêm 1,0 mL chất chỉ, lắc đều và pha loãng thành 100 mL. Cuối cùng, dung dịch sẽ được đo bằng máy quang phổ tử ngoại – khả kiến (UV-Vis) JASCO V-730 ở bước sóng 592 nm. Khả năng hấp phụ q_e (mg/g) và hiệu quả hấp phụ (% loại bỏ) được tính toán theo công thức (1) và (2):

$$q_e = \frac{C_o - C_e}{m} \times V \quad (1)$$

$$\% \text{ loại bỏ} = \frac{C_o - C_e}{C_o} \quad (2)$$

Với:

C_o và C_e (mg/L) là nồng độ I⁻ trước và sau hấp phụ;

V (mL) là thể tích dung dịch I⁻ hấp phụ;

m (g) là khối lượng vật liệu hấp phụ.

Các mô hình đẳng nhiệt và động học hấp phụ

Các mô hình đẳng nhiệt và động học được ứng dụng để ước tính khả năng và xu hướng hấp phụ I⁻ bởi vật liệu than sinh học từ vỏ bưởi bao gồm: mô hình động học biểu kiến bậc 1, bậc 2; mô hình khuếch tán nội hạt; mô hình đẳng nhiệt Langmuir và mô hình đẳng nhiệt Freundlich [32]. Cụ thể:

Mô hình động học biểu kiến bậc 1

Mô hình động học biểu kiến bậc 1 giả định rằng tỷ lệ chiếm chỗ của các chất bị hấp phụ trên các vị trí hấp phụ tỷ lệ thuận với số lượng của các vị trí không bị chiếm, chủ yếu dùng để mô phỏng các phản ứng ở trạng thái cân bằng [32].

$$q_t = q_e(1 - e^{-k_1 t}) \quad (3)$$

Trong đó

q_e và q_t (mg/g) là dung lượng hấp phụ tại thời điểm cân bằng và thời điểm t;

k₁ (phút⁻¹) là hằng số tốc độ hấp phụ bậc nhất biểu kiến.

Mô hình động học biểu kiến bậc 2

Mô hình động học biểu kiến bậc 2 giả định rằng quá trình hấp phụ là một phản ứng hóa học trên cơ sở chuyển và chia sẻ điện tử. Nó có thể được sử dụng để dự đoán toàn bộ quá trình hấp phụ [32]

$$q_t = \frac{q_e^2 \cdot k_2 \cdot t}{1 + k_2 \cdot q_e \cdot t} \quad (4)$$

Trong đó

q_e và q_t (mg/g) là dung lượng hấp phụ tại thời điểm cân bằng và thời điểm t;

k₂ (phút⁻¹) là hằng số tốc độ hấp phụ bậc hai biểu kiến. Từ các phương trình trên, có thể xác định được giá trị thực nghiệm của q theo t và tính được hằng số tốc độ hấp phụ biểu kiến k₁, k₂. Giá trị của hằng số tốc độ biểu kiến là một trong các thông số để so sánh giữa các chất hấp phụ đối với cùng một chất bị hấp phụ.

Mô hình khuếch tán nội hạt

Mô hình khuếch tán nội hạt được áp dụng để mô tả quá trình khuếch tán của chất bị hấp phụ bên trong các lỗ xốp của chất hấp phụ. Nó cũng có thể được sử dụng để xác định bước kiểm soát tốc độ của quá trình hấp phụ.

$$q_t = k_{id} \cdot t^{1/2} + C \quad (5)$$

Trong đó

k_{id} (mg/g.phút^{1/2}) là hằng số tốc độ khuếch tán trong hạt ở giai đoạn i;

C (mg/g) là giao điểm của dòng đối với giai đoạn i tương ứng.

Mô hình đẳng nhiệt Langmuir

Mô hình Langmuir là một mô hình lý tưởng cho sự hấp phụ đơn lớp với giả thiết rằng sự phân bố các vị trí là đồng nhất ở đó quá trình hấp phụ có năng lượng hoạt hóa bằng nhau.

$$q_e = \frac{q_m \cdot K_L \cdot C_e}{1 + K_L \cdot C_e} \quad (6)$$

Trong đó: q_e và q_m (mg/g) là dung lượng hấp phụ và dung lượng hấp phụ tối đa của chất hấp phụ theo Langmuir;

C_e (mg/L) là nồng độ của dung dịch hấp phụ. Hệ số càng lớn chứng tỏ khả năng hấp phụ càng mạnh;

K_L là hằng số cân bằng hấp phụ Langmuir.

Dựa vào mô hình đẳng nhiệt Langmuir, có thể xác định được khả năng hấp phụ tối đa trên bề mặt đơn lớp

của vật liệu. Từ giá trị K_L có thể xác định hằng số tách S_L thông qua biểu thức (7).

$$S_L = \frac{1}{1 + K_L \cdot C_0} \quad (7)$$

Giá trị S_L sẽ cho biết sự thuận lợi của quá trình hấp phụ. Với $S_L = 0$, quá trình hấp phụ là một chiều; $S_L > 1$, quá trình hấp phụ là không thuận lợi; $0 < S_L < 1$, quá trình hấp phụ là thuận lợi và $S_L = 1$, quá trình hấp phụ là tuyến tính.

Mô hình đẳng nhiệt Freundlich

Mô hình đẳng nhiệt Freundlich được sử dụng để mô tả cho sự hấp phụ đa lớp với giả thiết rằng sự phân bố các vị trí là không đồng nhất.

$$q_e = K_F \cdot C_e^{\frac{1}{n}} \quad (8)$$

Trong đó

K_F là hằng số cân bằng hấp phụ Freundlich;

n là hệ số của mô hình Freundlich.

Khi $0 < \frac{1}{n} < 1$: quá trình hấp phụ diễn ra ở khoảng nồng độ nghiên cứu; $\frac{1}{n} = 1$: mô hình đẳng nhiệt Freundlich là tuyến tính, chứng tỏ quá trình hấp phụ là không thuận nghịch; $\frac{1}{n} > 1$ thì quá trình hấp phụ không diễn ra.

Các phương pháp phân tích vật liệu

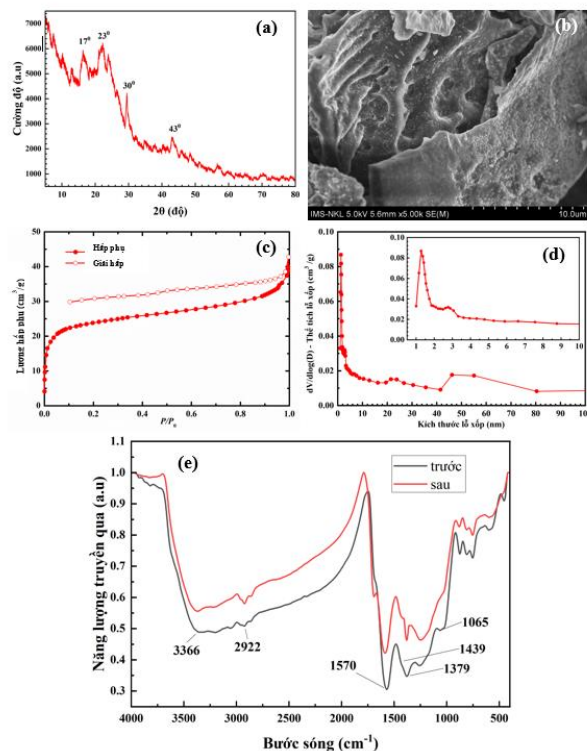
Độ xốp của vật liệu được đo trên thiết bị Tristar-3030 Micromeritics (Mỹ) thông qua phương pháp đẳng nhiệt hấp phụ – giải hấp N_2 được thực hiện ở 77 K. Giản đồ XRD được đo trên máy đo nhiễu xạ Shimadzu XRD-6000 (Nhật Bản) với tấm chắn Ni (0,2 mm) bức xạ $CuK\alpha$ ($\lambda = 1.5401 \text{ \AA}$) hoạt động ở công suất 40 kV và cường độ dòng 30 mA với bước nhảy $0,02^\circ/\text{giây}$ và góc quét 2θ từ $5^\circ - 80^\circ$. Hình thái của vật liệu được đo trên thiết bị SEM, Hitachi, S-4800, Tokyo (Nhật Bản). Các nhóm chức đặc trưng được phân tích bằng phương pháp FTIR trên máy PerkinElmer Frontier (Mỹ) ở số sóng 500-4000 cm^{-1} .

Kết quả và thảo luận

Các đặc trưng hóa lý của vật liệu than sinh học tổng hợp từ vỏ bưởi

Kết quả phân tích XRD, SEM, BET-BJH, và FTIR của vật liệu than sinh học được trình bày trong Hình 3. Giản đồ XRD (Hình 3a) cho thấy đã tổng hợp thành công vật

liệu than sinh học từ vỏ bưởi với các đỉnh nhiễu xạ lần lượt ở 17° , 23° , 30° và 43° . Kết quả này phù hợp với công bố trước đó của nhóm nghiên cứu [30], cũng như một số công bố khác [32,37]. Ngoài ra, các đỉnh nhiễu xạ đặc trưng ở 23° và 43° có hình dạng sắc, nhọn cho thấy vật liệu có độ kết tinh cao hơn so với một số công bố khác, thường các đỉnh này có dạng tù theo kiểu dải rộng.



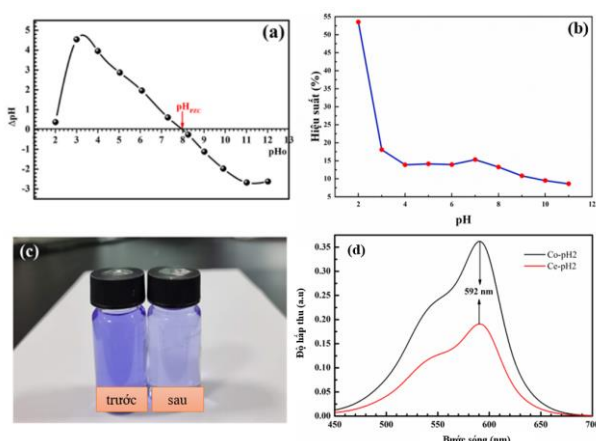
Hình 3: Giản đồ XRD (a); SEM (b), BET-BJH (c,d) và phổ FT-IR (e) của vật liệu than sinh học từ vỏ bưởi

Ảnh SEM (Hình 3b) cho thấy vật liệu than sinh học tổng hợp từ vỏ bưởi có dạng các tấm xốp, bề mặt khá gồ ghề. Kết quả này phù hợp với nghiên cứu của nhóm tác giả Bing Zhang và cộng sự (2018) [32]. Kết quả đẳng nhiệt hấp phụ - giải hấp N_2 ở 77 K và kết quả phân bố mao quản của vật liệu than sinh học từ vỏ bưởi được thể hiện trong Hình 3c và 3d. Kết quả cho thấy phần lớn sự hấp phụ xảy ra trong khoảng áp suất tương đối 0,1 – 0,9. Thể tích hấp phụ tăng nhanh được quan sát thấy ở khoảng áp suất tương đối thấp ban đầu (P/P_0), cho thấy có sự tồn tại của các lỗ xốp nhỏ. Khi thay đổi áp suất tương đối, cả hai đường cong hấp phụ và giải hấp đều tuân theo mô hình đẳng nhiệt loại IV, đây là đặc trưng của vật liệu mesopore [38-40]. Vật liệu thu được có diện tích bề mặt khoảng 8,0 m^2/g . Sự phân bố kích thước lỗ xốp của vật liệu được xác định bằng phương pháp Barrett-Joyner-Halenda (BJH)

với kích thước lỗ xốp trung bình khoảng 2,24 nm và thể tích lỗ xốp khoảng 0,0068 cm³/g.

Kết quả FT-IR của vật liệu được thể hiện trong Hình 3e. Cụ thể, dải hấp thụ ở 3366 cm⁻¹ tương ứng với các dao động kéo dài của nhóm hydroxyl trên bề mặt [41,42] trong phân tử cellulose cũng như nhóm cacboxylic của phân tử pectin. Đỉnh ở 1570 cm⁻¹ có thể là liên kết với dao động kéo dài của liên kết C=C, liên kết này cũng có thể được gán cho liên kết C=C vòng thơm [43]. Trong khi đỉnh tại 2922 và 1379 cm⁻¹ chỉ ra sự tồn tại của dao động biến dạng của liên kết C-H trong nhóm methyl [44,45]. Bên cạnh đó, đỉnh 1065 cm⁻¹ chỉ ra dao động kéo dài của liên kết C-O trong cấu trúc lignin trong khi đỉnh nằm ở 1439 cm⁻¹ là đặc trưng của dao động kéo dài của C-O từ nhóm hydroxyl [41,45]. Như vậy, dựa trên các kết quả phân tích XRD, BET, FTIR, và SEM có thể khẳng định rằng đã tổng hợp thành công vật liệu than sinh học từ vỏ bưởi.

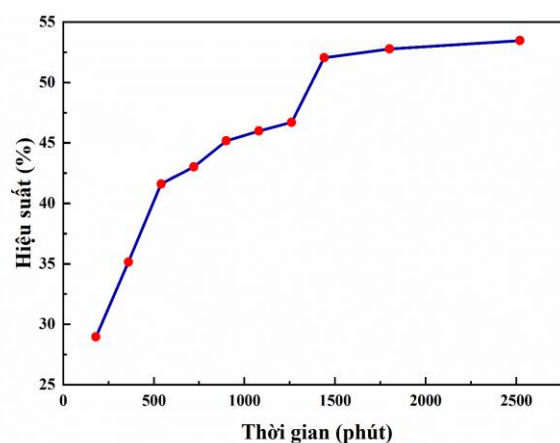
Ảnh hưởng của pH và thời gian tương tác đến quá trình hấp phụ I⁻



Hình 4: Đồ thị điểm đẳng điện của than sinh học từ vỏ bưởi theo nghiên cứu đã được công bố của tác giả Đinh Văn Phúc [30] (a); ảnh hưởng của pH đến khả năng hấp phụ KI (b); màu của dung dịch trước và sau hấp phụ (sau khi tạo phức với chỉ thị) (c) và phổ UV-Vis đo ở 592 nm, pH = 2,0 của mẫu trước và sau khi hấp phụ (d)

Trong nghiên cứu này, phương pháp thêm muối được sử dụng để xác định điểm đẳng điện (pH_{pzc}) của vật liệu. pH_{pzc} được tính toán tại thời điểm mà sự khác biệt giữa các giá trị pH đầu và sau (ΔpH) bằng 0 khi pH thay đổi [46]. Tại điểm đẳng điện (pH_{pzc}) thường được sử dụng để xác định điện tích bề mặt và cơ chế hấp phụ của chất hấp phụ. Nếu pH_{dung dịch} < pH_{pzc}, bề mặt chất hấp phụ tích điện dương, thuận lợi cho sự hấp phụ ion âm gây ra bởi lực hút tĩnh điện. Trong khi đó, nếu

pH_{dung dịch} > pH_{pzc}, sự hấp phụ ion dương được ưu tiên do điện tích bề mặt chất hấp phụ là điện tích âm [47]. Hình 4a cho thấy giá trị pH_{pzc} của than sinh học từ vỏ bưởi là 8,0 [30]. Ảnh hưởng của pH đến quá trình hấp phụ I⁻ được thể hiện trong Hình 4b. Kết quả cho thấy hiệu quả hấp phụ cao nhất ở pH 2,0 và giảm dần khi giá trị pH tăng (3,0 – 11,0). Điều này có thể được dự đoán rằng khi giá trị pH_{dung dịch} < pH_{pzc}, bề mặt của vật liệu lúc này mang điện tích dương, thuận lợi cho quá trình hấp phụ ion âm I⁻. Do đó, ở pH thấp, hiệu suất hấp phụ của vật liệu tăng mạnh. Khi tăng lên pH = 3, điện tích dương của bề mặt giảm, đồng thời nồng độ OH⁻ tăng, làm tăng tính hấp phụ cạnh tranh với I⁻, do đó khả năng hấp phụ giảm mạnh. Tuy nhiên, quá trình hấp phụ trong dung dịch nước là một quá trình phức tạp và có thể xảy ra thông qua nhiều cơ chế khác nhau. Hình 4c thể hiện màu của dung dịch đã tạo phức giữa I₂ và chỉ thị Leuco Crystal Violet (LCV) đối với mẫu dung dịch KI trước và sau khi hấp phụ. Kết quả này cho thấy trong mẫu sau hấp phụ, nồng độ KI giảm đáng kể, dẫn đến lượng I₂ được tạo ra ít, do đó mặc dù cùng thêm một lượng chất chỉ thị như nhau (1,0 mL) nhưng mẫu sau hấp phụ có màu tím nhạt hơn rất nhiều so với mẫu trước hấp phụ. Để kiểm chứng điều đó, 02 mẫu này được phân tích UV-Vis ở bước sóng 592 nm (là bước sóng của hợp chất tạo thành giữa I₂ và chỉ thị LCV). Kết quả được thể hiện trong Hình 4d cho thấy độ hấp thụ của mẫu sau hấp phụ (C_e-pH2) giảm đáng kể so với trước hấp phụ (C_e-pH12). Kết quả này phù hợp với màu sắc dung dịch được trình bày trong Hình 4c và cũng cho thấy vật liệu than sinh học từ vỏ bưởi có khả năng hấp phụ tốt KI trong dung dịch nước ở giá trị pH 2.



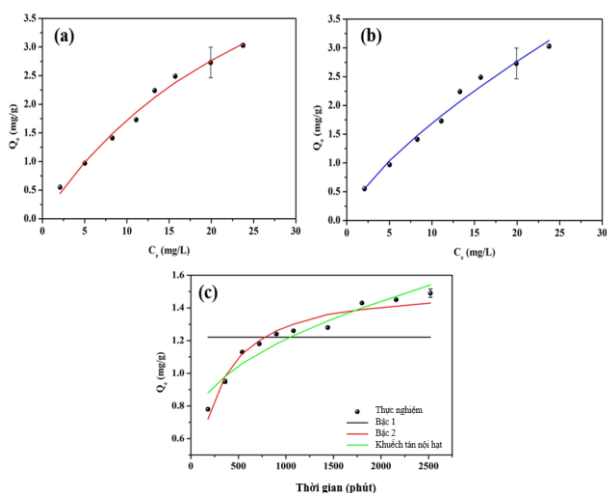
Hình 5: Ảnh hưởng của thời gian hấp phụ đối với khả năng loại bỏ KI

Để xác định thời gian cân bằng cho quá trình hấp phụ KI trên vật liệu than sinh học từ vỏ bưởi, ảnh hưởng của thời gian hấp phụ từ 180 phút (3 giờ) đến 2520

phút (42 giờ) đã được khảo sát và kết quả được thể hiện trong Hình 5. Có thể thấy rằng, trong khoảng 180 phút đầu đến 540 phút, khoảng hơn 41% KI được hấp phụ. Tiếp theo đó, khả năng hấp phụ của vật liệu tăng từ khoảng 41% đến khoảng 52% khi thời gian hấp phụ được tăng lên đáng kể từ 540 đến 1440 phút. Sau 1440 phút, quá trình hấp phụ gần như có khuynh hướng cân bằng. Có thể thấy hiệu suất hấp phụ tăng rất chậm khi tăng thời gian hấp phụ từ 1440 phút (24 giờ) lên 2520 phút (42 giờ). Do đó, chúng tôi chọn 2520 phút (42 giờ) là điều kiện cân bằng của quá trình hấp phụ KI trên than sinh học từ vỏ bưởi ở pH 2 và nhiệt độ 303 K.

Nghiên cứu đẳng nhiệt và động học quá trình hấp phụ

Để hiểu rõ hơn về nhiệt động học của quá trình hấp phụ KI trên vật liệu than sinh học, các mô hình đẳng nhiệt Langmuir và Freundlich được sử dụng để phân tích các kết quả hấp phụ. Đồ thị của các mô hình và các thông số tương ứng được thể hiện thông qua Hình 6 a,b và Bảng 1. Kết quả dữ liệu thực nghiệm cho thấy rằng mô hình Langmuir phù hợp hơn với quá trình hấp phụ dựa trên giá trị hệ số tương quan R^2 ($R^2 = 0,988$) cao hơn so với các mô hình Freundlich. Dung lượng hấp phụ cực đại đơn lớp được xác định từ mô hình đẳng nhiệt Langmuir là 7,06 mg/g. Giá trị S_L của mô hình Langmuir có thể được sử dụng như một tham số để đánh giá quá trình hấp phụ là thuận lợi ($0 < S_L = 0,85 < 1$).



Hình 6: Mô hình đẳng nhiệt: Langmuir (a), Freundlich (b) và các mô hình động học (c)

Đồ thị của các mô hình động học được thể hiện trong Hình 6c và các tham số động học được tính bằng phương pháp phi tuyến được liệt kê trong Bảng 1. Kết quả tính toán từ các mô hình động học cho thấy mô hình động học bậc 2 mô tả tốt nhất quá trình hấp phụ

lốt bởi vật liệu than sinh học do có giá trị R^2 lớn nhất và các giá trị RMSE và χ^2 là nhỏ nhất. Giá trị C tính được từ mô hình khuếch tán nội hạt là 0,664, giá trị này khác 0, nên có thể dự đoán, quá trình hấp phụ lốt bởi vật liệu than sinh học xảy ra theo nhiều cơ chế khác nhau.

Bảng 1: Các tham số của mô hình đẳng nhiệt và động học ở nhiệt độ 303 K

Mô hình động học	Tham số	
Động học biểu kiến bậc 1	C_o (mg/L)	5,47
	$q_{e (exp)}$ (mg/g)	1,49
	$q_{e (cal)}$ (mg/g)	1,22
	k_1 (min ⁻¹)	1,00
	RMSE	0,226
	R^2	0,000
Động học biểu kiến bậc 2	χ^2	0,447
	$q_{e (cal)}$ (mg/g)	1,55
	k_2 (g.mg ⁻¹ .min ⁻¹)	0,003
	RMSE	0,041
Mô hình khuếch tán nội hạt	R^2	0,958
	χ^2	0,016
	k_{id}	0,018
	C	0,644
Mô hình Langmuir	RMSE	0,052
	R^2	0,934
	χ^2	0,029
	K_L (L/mg)	0,0323
	q_m (mg/g)	7,06
Mô hình Freundlich	RMSE	0,097
	R^2	0,988
	χ^2	0,049
	S_L	0,85
	n	1,40
Mô hình Freundlich	K_F [(mg/g).(L/mg) ^{1/n}]	0,33
	RMSE	0,108
	R^2	0,9847
	χ^2	0,04

Kết luận

Trong nghiên cứu này, vật liệu than sinh học từ vỏ bưởi đã được tổng hợp thành công và phân tích đầy đủ các đặc trưng của vật liệu bằng các phương pháp như: XRD, SEM, BET-BJH, và FTIR. Vật liệu được ứng dụng để hấp phụ I^- trong dung dịch nước. Kết quả cho thấy sự hấp phụ I^- trên than sinh học từ vỏ bưởi chịu ảnh hưởng bởi pH của dung dịch và thời gian hấp phụ. Các nghiên cứu về đẳng nhiệt và động học cho thấy rằng việc loại bỏ I^- bởi vật liệu than sinh học tuân theo mô hình đẳng nhiệt Langmuir và mô hình động học biểu kiến bậc 2. Theo kết quả thực nghiệm, dung lượng hấp phụ cực đại được xác định là 1,46 mg/g ở điều kiện pH 2,0, $C_0 = 5$ mg/L và $t = 2520$ phút (42 giờ).

Lời cảm ơn

Nghiên cứu này được tài trợ bởi Sở Khoa học và Công nghệ Thành phố Hồ Chí Minh trong đề tài mã số 54/2021/HĐ-QKHCN và hỗ trợ về trang thiết bị, cơ sở vật chất từ Trường Đại học Nguyễn Tất Thành.

Tài liệu tham khảo

- W.H. Beierwaltes, The treatment of thyroid carcinoma with radioactive iodine, *Seminars in Nuclear Medicine*. Elsevier, 1978, p. 79.
- R. Blumhardt, E.A. Wolin, W.T. Phillips, U.A. Salman, R.C. Walker, B.C. Stack, D.J.E.-R.C. Metter, *Endocrine-Related Cancer* 21 (2014) R473.
- M. Schlumberger, M. Brose, R. Elisei, S. Lebouleux, M. Luster, F. Pitoia, F. Pacini, *The Lancet Diabetes endocrinology* 2 (2014) 356.
- I. Benes, W. Muller-Duysing, F. Heinzel, Process for the removal of radioactive iodine from a liquid, especially urine, and apparatus to carry out the process. Google Patents, 1980.
- T. Kubota, S. Fukutani, T. Ohta, Y. Mahara, *Journal of Radioanalytical Nuclear Chemistry* 296 (2013) 981.
- B. Zheng, X. Liu, J. Hu, F. Wang, X. Hu, Y. Zhu, X. Lv, J. Du, D. Xiao, *Journal of hazardous materials* 368 (2019) 81.
- Y. Liu, P. Gu, L. Jia, G. Zhang, *Journal of hazardous materials* 302 (2016) 82.
- Y. Liu, P. Gu, Y. Yang, L. Jia, M. Zhang, G. Zhang, *Separation Purification Technology* 171 (2016) 221.
- R.A. Rahman, H. Ibrahim, Y.-T. Hung, *Water* 3 (2011) 551.
- P. Singare, R. Lokhande, *Ionics* 18 (2012) 351.
- S. Mushtaq, S.-J. Yun, J.E. Yang, S.-W. Jeong, H.E. Shim, M.H. Choi, S.H. Park, Y.J. Choi, J. Jeon, *Environmental Science: Nano* 4 (2017) 2157.
- H.E. Shim, J.E. Yang, S.-W. Jeong, C.H. Lee, L. Song, S. Mushtaq, D.S. Choi, Y.J. Choi, J. Jeon, *Nanomaterials* 8 (2018) 660.
- J. Huve, A. Ryzhikov, H. Nouali, V. Lalia, G. Augé, T.J.J.R.a. Daou, *RSC advances* 8 (2018) 29248.
- A.H. Jawad, A. Saud Abdulhameed, L.D. Wilson, S.S.A. Syed-Hassan, Z.A. Allothman, M. Rizwan Khan, *Chinese Journal of Chemical Engineering* 32 (2021) 281.
<https://10.1016/j.cjche.2020.09.070>
- G.Z. Kyzas, G. Bomis, R.I. Kosheleva, E.K. Efthimiadou, E.P. Favvas, M. Kostoglou, A.C. Mitropoulos, *Chemical Engineering Journal* 356 (2019) 91.
<https://10.1016/j.cej.2018.09.019>
- S.A. Patil, U.P. Suryawanshi, N.S. Harale, S.K. Patil, M.M. Vadiyar, M.N. Luwang, M.A. Anuse, J.H. Kim, S.S. Kolekar, *International Journal of Environmental Analytical Chemistry* 102 (2020) 8270.
<https://10.1080/03067319.2020.1849648>
- A. Yazidi, M. Atrous, F. Edi Soetaredjo, L. Sellaoui, S. Ismadji, A. Erto, A. Bonilla-Petriciolet, G. Luiz Dotto, A. Ben Lamine, *Chemical Engineering Journal* 379 (2020).
<https://10.1016/j.cej.2019.122320>
- J. Szerement, A. Szatanik-Kloc, R. Jarosz, T. Bajda, M. Mierzwa-Hersztek, *Journal of Cleaner Production* 311 (2021).
<https://10.1016/j.jclepro.2021.127461>
- K. Kordatos, S. Gavela, A. Ntziouni, K.N. Pistiolas, A. Kyritsi, V. Kasselouri-Rigopoulou, *Microporous and Mesoporous Materials* 115 (2008) 189.
<https://10.1016/j.micromeso.2007.12.032>
- J. Madhu, A. Santhanam, M. Natarajan, D. Velauthapillai, *RSC Adv* 12 (2022) 23221.
<https://10.1039/d2ra04052b>
- M. Forghani, A. Azizi, M.J. Livani, L.A. Kafshgari, *Journal of Solid State Chemistry* 291 (2020).
<https://10.1016/j.jssc.2020.121636>
- J. Li, H. Wang, X. Yuan, J. Zhang, J.W. Chew, *Coordination Chemistry Reviews* 404 (2020).
<https://10.1016/j.ccr.2019.213116>
- A. Ghosh, G. Das, *Microporous and Mesoporous Materials* 297 (2020).
<https://10.1016/j.micromeso.2020.110039>

24. C.-C. Chien, Y.-P. Huang, W.-C. Wang, J.-H. Chao, Y.-Y. Wei, *CLEAN - Soil, Air, Water* 39 (2011) 103. <https://10.1002/clel.201000012>
25. S.U. Nandanwar, K. Coldsnow, A. Porter, P. Sabharwall, D. Eric Aston, D.N. McIlroy, V. Utgikar, *Chemical Engineering Journal* 320 (2017) 222. <https://10.1016/j.cej.2017.03.020>
26. M.R. Zia, M.A. Raza, S.H. Park, N. Irfan, R. Ahmed, J.E. Park, J. Jeon, S. Mushtaq, *Nanomaterials (Basel)* 11 (2021). <https://10.3390/nano11030588>
27. S.P. Sohi, *Science* 338 (2012) 1034. <https://10.1126/science.1225987>
28. A. Shakya, T. Agarwal, *Journal of Molecular Liquids* 293 (2019). <https://10.1016/j.molliq.2019.111497>
29. R. Senthilkumar, D.M. Reddy Prasad, L. Govindarajan, K. Saravanakumar, B.S. Naveen Prasad, *Int J Phytoremediation* 22 (2020) 279. <https://10.1080/15226514.2019.1658710>
30. V.-P. Dinh, D.-K. Nguyen, T.-T. Luu, Q.-H. Nguyen, L.A. Tuyen, D.D. Phong, H.A.T. Kiet, T.-H. Ho, T.T.P. Nguyen, T.D. Xuan, P.T. Hue, N.T.N. Hue, *Materials Chemistry and Physics* 285 (2022). <https://10.1016/j.matchemphys.2022.126105>
31. D. Cheng, H.H. Ngo, W. Guo, S.W. Chang, D.D. Nguyen, X. Zhang, S. Varjani, Y. Liu, *Sci Total Environ* 720 (2020) 137662. <https://10.1016/j.scitotenv.2020.137662>
32. B. Zhang, Y. Wu, L. Cha, *Journal of Dispersion Science and Technology* 41 (2019) 125. <https://10.1080/01932691.2018.1561298>
33. V.P. Dinh, T.D. Huynh, H.M. Le, V.D. Nguyen, V.A. Dao, N.Q. Hung, L.A. Tuyen, S. Lee, J. Yi, T.D. Nguyen, L.V. Tan, *RSC Adv* 9 (2019) 25847. <https://10.1039/c9ra04296b>
34. V.P. Dinh, T.D. Xuan, N.Q. Hung, T.T. Luu, T.T. Do, T.D. Nguyen, V.D. Nguyen, T.T.K. Anh, N.Q. Tran, *Environ Sci Pollut Res Int* 28 (2021) 63504. <https://10.1007/s11356-020-10176-6>
35. M.A. Hashem, M. Hasan, M.A. Momen, S. Payel, M.S. Nur-A-Tomal, *Environmental and Sustainability Indicators* 5 (2020). <https://10.1016/j.indic.2020.100022>
36. E.W. Rice, L. Bridgewater, *Standard methods for the examination of water and wastewater*, American public health association Washington, DC, 2012.
37. T. Zhang, P. Li, C. Fang, R.F. Jiang, S.B. Wu, H.Y. Nie, *Advanced Materials Research* 726-731 (2013) 1679. <https://10.4028/www.scientific.net/AMR.726-731.1679>
38. L.M. Ferreira, R.R. de Melo, A.S. Pimenta, T.K.B. de Azevedo, C.B. de Souza, *Biomass Conversion and Biorefinery* 12 (2020) 1181. <https://10.1007/s13399-020-00660-x>
39. K.V. Kumar, S. Gadipelli, B. Wood, K.A. Ramisetty, A.A. Stewart, C.A. Howard, D.J.L. Brett, F. Rodriguez-Reinoso, *Journal of Materials Chemistry A* 7 (2019) 10104. <https://10.1039/c9ta00287a>
40. M. Thommes, K. Kaneko, A.V. Neimark, J.P. Olivier, F. Rodriguez-Reinoso, J. Rouquerol, K.S.W. Sing, *Pure and Applied Chemistry* 87 (2015) 1051. <https://10.1515/pac-2014-1117>
41. Y. Liu, X. Liu, W. Dong, L. Zhang, Q. Kong, W. Wang, *Sci Rep* 7 (2017) 12437. <https://10.1038/s41598-017-12805-6>
42. M.M. Hamed, H.E. Rizk, I.M. Ahmed, *Journal of Molecular Liquids* 249 (2018) 361. <https://10.1016/j.molliq.2017.11.049>
43. V.K. Rajak, S. Kumar, N.V. Thombre, A. Mandal, *Chemical Engineering Communications* 205 (2018) 897. <https://10.1080/00986445.2017.1423288>
44. M. Elkady, H. Shokry, H. Hamad, *Materials (Basel)* 13 (2020). <https://10.3390/ma13112498>
45. Z. Azizi Haghghat, E. Ameri, *Desalination and Water Treatment* 57 (2015) 9813. <https://10.1080/19443994.2015.1033475>
46. A.M. Cardenas Peña, J.G. Ibáñez Cornejo, R.C. Vásquez Medrano, *Int. J. Electrochem. Sci.* 7 (2012) 6142.
47. N. Fiol, I. Villaescusa, *Environmental Chemistry Letters* 7 (2009) 79.