



Nghiên cứu khả năng xử lý Rhodamine B của hệ vật liệu tổ hợp khung sắt(III)-dicarboxylic trên nền graphene đa lớp mỏng

Study on the removal of Rhodamine B of Iron(III)-dicarboxylic framework/graphene nanoplatelets composites

Phùng Khắc Nam Hồ^{1*}, Nguyễn Thị Hoài Phương¹, Nguyễn Thị Lan Anh², Trần Thị Hằng², Nguyễn Bá Cường³, Nguyễn Việt Thái³

¹*Viện Hóa học và Vật liệu, 17 Hoàng Sâm, Nghĩa Đô, Cầu Giấy, Hà Nội*

²*Đại học Công nghiệp Việt Trì, Số 9 Tiên Sơn, Tiên Cát, Việt Trì, Phú Thọ*

³*Học viện Kỹ thuật Quân sự, 236 Hoàng Quốc Việt, Cổ Nhuế, Bắc Từ Liêm, Hà Nội*

*Email: homyhu@gmail.com

ARTICLE INFO

Received: 23/2/2023

Accepted: 25/4/2023

Published: 30/9/2023

Keywords:

MOFs, GNPs, isotherm, kinetics.

ABSTRACT

In this study, Iron(III)-dicarboxylic framework/graphene nanoplatelets (Fe-BDC/GNPs) composites were synthesized by the ultrasonic method in a water/ethanol mixture solvent. As-prepared composite materials were characterized by XRD, SEM, BET, and laser light scattering techniques. The sorption behaviors of Rhodamine B by the prepared material were studied. The results showed that the material could effectively remove chromogenic organic compounds (RhB) by the adsorption process. The prepared Fe-BDC/GNPs composite revealed high adsorption toward RhB with removal percentage of higher 90% at an RhB initial concentration of 10 ppm after 2 hours. The Freundlich isotherm was more suitable than the Langmuir isotherm and Temkin isotherm for the adsorption process of Rhodamine B onto the synthesized material with $R^2 = 0,9955$. The analytical outputs also revealed that the adsorption kinetics were more accurately represented by the second-order model as both $R^2 = 0,9974$ and $q_{e,cal}$ was approximate to $q_{e,exp}$.

Giới thiệu chung

Thuốc nhuộm hữu cơ được sử dụng rộng rãi trong các ngành công nghiệp khác nhau, chẳng hạn như dệt may, thuốc da, nhựa, giấy, mỹ phẩm, dược phẩm, in ấn,... Tuy nhiên, nhiều loại thuốc nhuộm hữu cơ độc hại, gây ung thư và không thể phân hủy, đã gây ra hàng loạt vấn đề về môi trường, đặc biệt là vấn đề ô nhiễm nguồn nước, đe dọa nghiêm trọng đến sự an

toàn nguồn nước uống của con người. Ví dụ Rhodamine B (RhB) là loại thuốc nhuộm cation thường được sử dụng làm thuốc nhuộm trong ngành sản xuất công nghiệp dệt may cho bông, da và len. Khi con người hoặc động vật sử dụng lâu dài nguồn nước chứa rhodamine B có thể gây ung thư hoặc tử vong [1]. Do đó, làm thế nào để loại bỏ thuốc nhuộm từ nước đã là một vấn đề cấp bách cần được giải quyết. Các phương pháp hiện nay để loại bỏ thuốc nhuộm từ nước thải chủ yếu bao gồm các phương pháp hóa học, vật lý và

<https://doi.org/10.51316/jca.2023.048>

sinh học [2-6]. Trong số này, phương pháp hấp phụ dễ vận hành và thân thiện với môi trường. Vì vậy, nó được coi là một trong những phương pháp hiệu quả nhất để loại bỏ thuốc nhuộm [1].

Vật liệu khung kim loại-hữu cơ (MOFs) là một loại vật liệu đã được nghiên cứu và ứng dụng trong những thập niên vừa qua. Đây là loại vật liệu thuộc họ vật liệu xốp, rỗng. Vật liệu được hình thành nhờ các hợp chất hữu cơ làm cầu nối thông qua các nhóm chức với các tâm kim loại thường là kim loại chuyển tiếp. Vật liệu có cấu trúc tinh thể dạng khung khá linh hoạt và đa dạng, với diện tích bề mặt riêng lớn, và hoàn toàn có thể thay đổi được kích thước, hình dạng lỗ xốp dựa vào sự thay đổi của cấu tử hữu cơ và ion kim loại. Với những đặc điểm đặc trưng này, MOFs đã được nghiên cứu chế tạo và ứng dụng trong nhiều lĩnh vực khác nhau như lưu trữ khí và phân tách khí [7-11], cảm biến [12, 13], xúc tác [14-16], hấp phụ và xúc tác xử lý môi trường [17-20], hấp phụ xử lý thuốc nhuộm [21-23], ... Vật liệu graphene là một trong những vật liệu carbon có cấu trúc hai chiều (2D). Kể từ khi được phát hiện từ năm 2004, vật liệu này đã thu hút được nhiều sự chú ý của các nhà khoa học. Graphene có các tính chất cơ học, hóa học và vật lý đặc biệt nên nó được nghiên cứu sử dụng trong nhiều ứng dụng như trong cảm biến sinh học, vật liệu tổng hợp, hàng dệt thông minh, thiết bị lưu trữ năng lượng, thu và chuyển đổi năng lượng mặt trời [24-27]. Vật liệu graphene cũng là loại vật liệu có diện tích bề mặt lớn nên nó cũng đóng vai trò quan trọng trong tăng cường hiệu quả hấp phụ [28].

Trong bài báo này trình bày một số kết quả nghiên cứu đặc trưng của vật liệu tổ hợp khung sắt(III)-tricarboxylic trên nền graphene đa lớp mỏng Fe-BDC/GNPs và đánh giá khả năng xử lý RhB trong môi trường nước của vật liệu này. Động học và đẳng nhiệt của quá trình hấp phụ RhB lên vật liệu Fe-BDC/GNPs đã được nghiên cứu cụ thể.

Thực nghiệm và phương pháp nghiên cứu

Hoá chất, trang thiết bị

Sắt (III) clorua ($\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$) (Xilong, 99%); Axit benzen đicacboxylic ($\text{C}_6\text{H}_4\text{O}_4$, 99% Macklin); Polietylen glycol (PEG-400, 99% Xilong); Etanol ($\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}$, 96% Đức Giang), graphene đa lớp mỏng (GNPs, công ty VNGraphene).

Thiết bị siêu âm JY99-IIDN (công suất: 50-1800W liên tục); Tủ sấy; Máy ly tâm; Dụng cụ thủy tinh phòng thí nghiệm; cốc nhựa PET; Tủ cản sáng (Dark-box).

Chế tạo vật liệu

Vật liệu được tổ hợp theo các bước sau:

- Cân 0,01 g GNPs cho vào cốc nhựa PET 360 mL và thêm 10 mL PEG400.
- Thêm 50 mL dung dịch FeCl_3 10M (trong H_2O) và siêu âm trong 20 phút.
- Thêm từ từ 100 mL hỗn hợp $\text{C}_6\text{H}_4\text{O}_4$ 6M (trong H_2O) và tiếp tục siêu âm trong 20 phút với công suất siêu âm là 75% Pmax.
- Ly tâm tách sản phẩm rắn thu được sau phản ứng với tốc độ 8.000 vòng/phút trong 10 phút.
- Lọc rửa kết tủa với hỗn hợp etanol và nước cất (tỷ lệ 1:1 về thể tích) 3 lần rồi sấy ở 80 °C trong 4 giờ.
- Bảo quản vật liệu trong bình hút ẩm.

Đánh giá đặc trưng tính chất vật liệu

Hình thái học của vật liệu tổ hợp được xác định theo phương pháp hiển vi điện tử quét SEM trên thiết bị Hitachi S-4800. Thành phần pha của vật liệu tổ hợp được xác định bằng kỹ thuật phổ nhiễu xạ tia X (XRD) trên thiết bị X'Pert Pro. Diện tích bề mặt của vật liệu được xác định bằng phương pháp BET trên thiết bị TriStar II Plus. Kích thước hạt của vật liệu được xác định bằng phương pháp tán xạ laser trên thiết bị đo phân bố cỡ hạt bằng tán xạ laser LA-950V2.

Khảo sát khả năng xử lý hợp chất Rhodamine B

- Các thí nghiệm được tiến hành với tỷ lệ vật liệu Fe-BDC/GNPs so với lượng dung dịch Rhodamine B là 0,1 g/L.
- Vật liệu Fe-BDC/GNPs và dung dịch Rhodamine B được cho vào ống thủy tinh trong suốt, đậy kín bằng nắp chặt, đưa vào tủ cản ánh sáng (dark-box) đóng kín để nghiên cứu khả năng hấp phụ Rhodamine B của vật liệu.
- Sau thời gian cần khảo sát, lọc bỏ vật liệu ra khỏi dung dịch để phân tích nồng độ Rhodamine B bằng phương pháp trắc quang UV-Vis trên thiết bị UV-Vis DV-8200 (Drawell). Phương trình xác định nồng độ Rhodamine B đã được xây dựng như sau:

$$C = 5,6026 \cdot \text{Abs} - 0,1655 \quad (\lambda = 552 \text{ nm}, R^2 = 0,9996) \quad (1)$$

Trong đó:

C là nồng độ của dung dịch Rhodamine B, mg/L.

Abs là cường độ hấp thụ ánh sáng.

<https://doi.org/10.51316/jca.2023.048>

R^2 là hệ số tương quan của phương trình đường chuẩn xây dựng theo thực nghiệm.

Hiệu suất loại bỏ RhB của vật liệu được tính theo công thức:

$$H (\%) = \frac{(C_0 - C_t)}{C_0} \times 100 \quad (2)$$

Dung lượng hấp phụ được tính theo công thức:

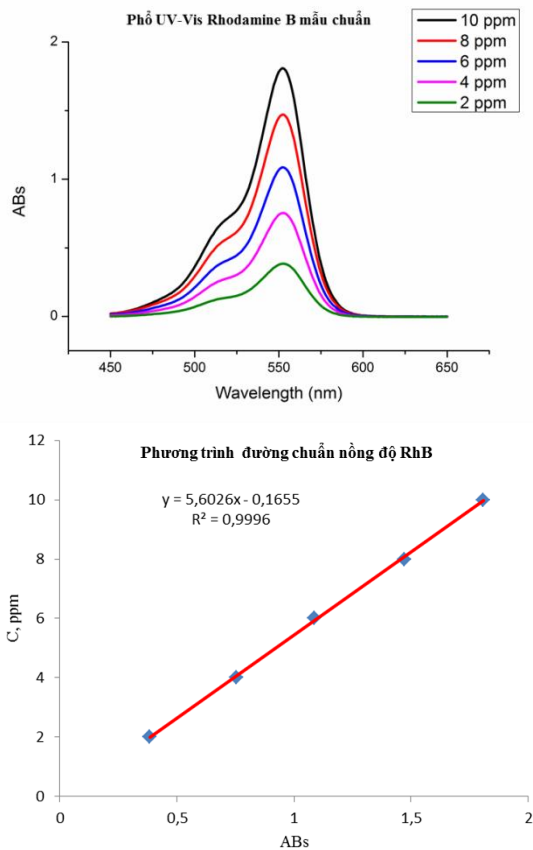
$$q_t = \frac{V \cdot (C_0 - C_t)}{m} \quad (\text{mg/g}) \quad (3)$$

Trong đó:

C_0 , C_t là nồng độ của dung dịch RhB (mg/L) ban đầu và ở thời điểm t.

V là thể tích dung dịch RhB (L).

m là khối lượng vật liệu Fe-BDC/GNPs (g).



Hình 1: Phổ UV-Vis và phương trình đường chuẩn RhB.

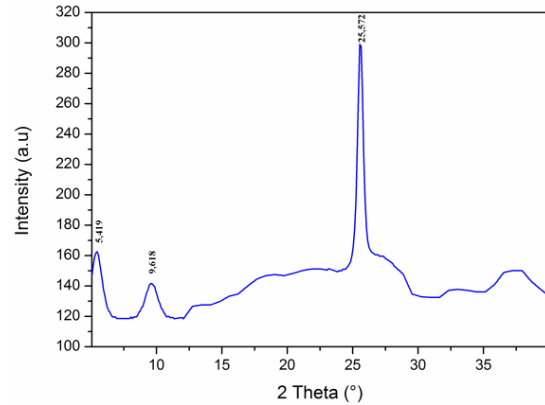
- Khả năng hấp phụ và động học hấp phụ RhB của vật liệu được nghiên cứu ở nồng độ dung dịch 10 mg/L.

- Đẳng nhiệt hấp phụ RhB của vật liệu được nghiên cứu ở nhiệt độ phòng và nồng độ RhB trong dải từ 10 đến 50 mg/L (10,087; 19,831; 29,165; 38,321; 49,581 mg/L).

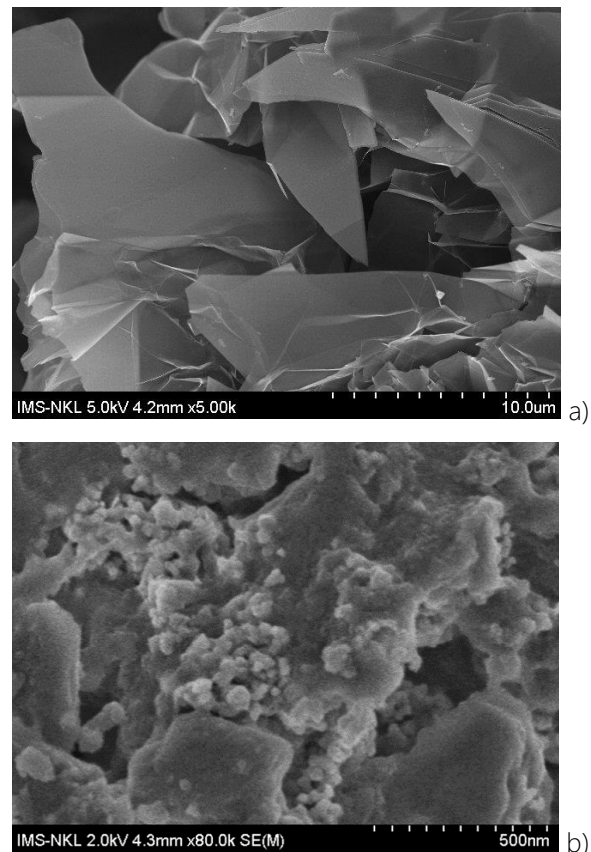
Kết quả và thảo luận

Đặc trưng tính chất của vật liệu tổ hợp Fe-BDC/GNPs

Trên hình 2 là giản đồ nhiễu xạ tia X (XRD) của vật liệu Fe-BDC/GNPs tổ hợp được. Từ giản đồ có thể quan sát thấy, sau khi tổ hợp xuất hiện peak 25,572 ° đặc trưng của GNPs đã được công bố trong tài liệu [26], và xuất hiện các peak ở 5,419 ° và 9,618 ° đặc trưng cho vật liệu khung cơ kim Fe-BDC [20].



Hình 2: Giản đồ nhiễu xạ tia X của vật liệu Fe-BDC/GNPs.

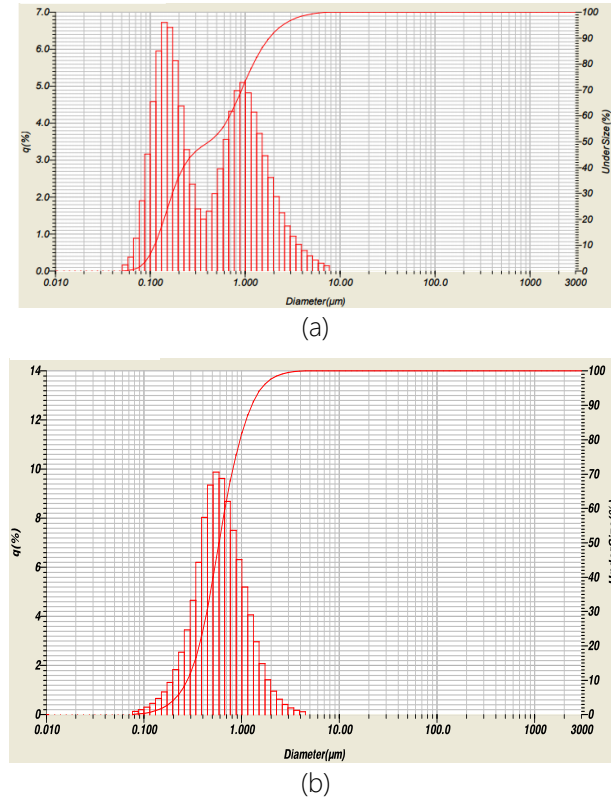


Hình 3: Ảnh SEM của GNPs (a) và vật liệu Fe-BDC/GNPs (b).

Kết quả chụp SEM trên hình 3 cho thấy sự hình thành tinh thể Fe-BDC (với kích thước khoảng 50 nm) bám

<https://doi.org/10.51316/jca.2023.048>

trên bề mặt của các tấm GNPs (kích thước khoảng 500-600 nm) với hình thái tinh thể bát diện chính là hình thái tinh thể của Fe-BDC nguyên bản. Các kết quả này cũng khẳng định sự hình thành vật liệu tổ hợp Fe-BDC/GNPs khi sử dụng phương pháp siêu âm để chế tạo.

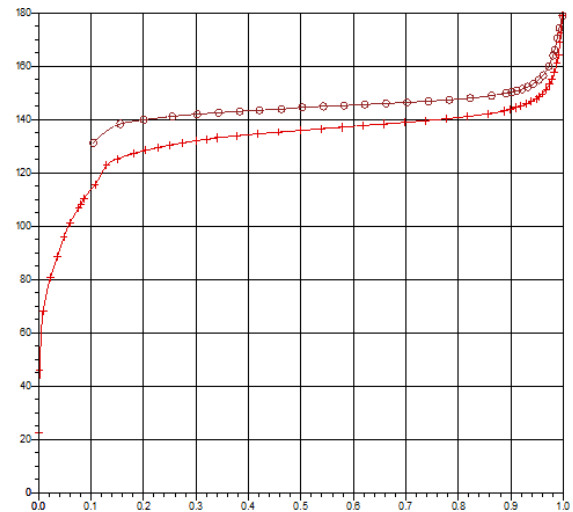


Hình 4: Giản đồ phân bố cỡ hạt của GNPs (a), và vật liệu tổ hợp Fe-BDC/GNPs (b)

Kết quả xác định phân bố cỡ hạt của vật liệu graphene GNPs ban đầu và vật liệu Fe-BDC/GNPs được chỉ ra ở hình 4. Từ kết quả cho thấy vật liệu GNPs ban đầu có 2 vùng kích thước hạt ở khoảng 150 nm và xấp xỉ 1 μm. Sau khi sử dụng sóng siêu âm và tổ hợp với vật liệu Fe-BDC, GNPs gần như tiếp tục được tách các lớp ra thành các phiến mỏng có kích thước nhỏ hơn. Vật liệu tổ hợp thu được có kết quả chụp SEM thể hiện trên hình 4(b) cho thấy vật liệu đã được đồng đều hóa về kích thước và phân bố. Vật liệu tổ hợp có kích thước hạt trung bình khoảng 600 nm. Kết quả này tương đối phù hợp với kết quả chụp ảnh SEM. Ở kích thước này đảm bảo được khả năng tiếp xúc của vật liệu với nước thải giúp tăng hiệu quả xử lý. Khả năng xử lý nước thải này sẽ được trình bày ở phần sau. Ngoài ra, việc siêu âm liên tục trong quá trình xác định sự phân bố cỡ hạt cũng cho thấy vật liệu tổ hợp Fe-BDC/GNPs đã được hình thành mà không bị tách rời riêng rẽ.

Diện tích bề mặt của vật liệu Fe-BDC/GNPs được xác định bằng phương pháp BET. Giản đồ hấp phụ đẳng

nhệt N₂ của vật liệu được thể hiện trong hình 5. Diện tích bề mặt của vật liệu được xác định là S_{BET} = 526,432 m²/g. Với đặc trưng này, vật liệu có khả năng hấp phụ cao đối với nhiều đối tượng khác nhau như các hợp chất hữu cơ, các ion tồn tại trong môi trường nước hoặc các hợp chất tồn tại ở trạng thái khí và hơi. Các khảo sát tiếp theo về khả năng hấp phụ để đánh giá hiệu quả xử lý hợp chất RhB trong nước của vật liệu.

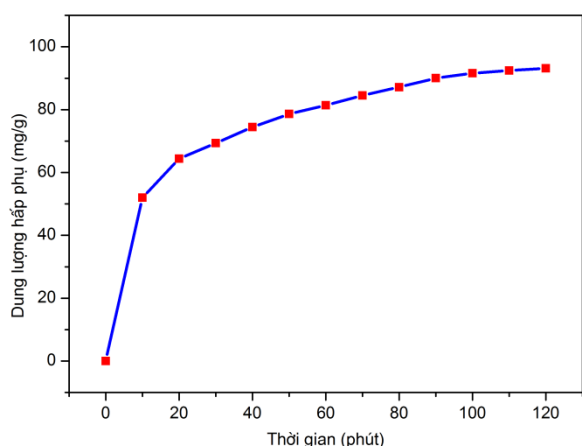


Hình 5: Giản đồ hấp phụ đẳng nhiệt N₂ của vật liệu Fe-BDC/GNPs.

Khả năng xử lý hợp chất hữu cơ có màu RhB của Fe-BDC/GNPs

Bảng 1: Hiệu quả xử lý RhB theo cơ chế hấp phụ của vật liệu tổ hợp Fe-BDC/GNPs .

t (phút)	C _t (mg/L)	H (%)
0	10,0865	0
10	4,887	51,55
20	3,6494	63,82
30	3,1512	68,76
40	2,641	73,82
50	2,2257	77,93
60	1,9454	80,71
70	1,6332	83,81
80	1,3702	86,42
90	1,0838	89,25
100	0,9269	90,81
110	0,8425	91,65
120	0,7733	92,33



Hình 6: Dung lượng hấp phụ RhB theo thời gian của vật liệu Fe-BDC/GNPs.

Khả năng và cơ chế loại bỏ hợp chất RhB của vật liệu Fe-BDC/GNPs được khảo sát và dự đoán thông qua các thí nghiệm hấp phụ. Điều kiện thí nghiệm được xác định bao gồm: tỷ lệ vật liệu so với lượng dung dịch RhB là 0,1 g/L, nồng độ dung dịch RhB ban đầu là 10 mg/L. Kết quả quá trình hấp phụ (tiến hành trong điều kiện không chiếu sáng) được trình bày tại bảng 1 và hình 6.

Từ kết quả trình bày ở bảng 1 và hình 6 cho thấy rõ vật liệu Fe-BDC/GNPs có khả năng hấp phụ mạnh đối với hợp chất hữu cơ mang màu là RhB. Trong giai đoạn đầu khả năng hấp phụ tương đối nhanh, sau 10 phút, trong điều kiện khảo sát, hiệu quả hấp phụ RhB của vật liệu đã đạt trên 50% tại phạm vi nồng độ khảo sát là 10 mg/L. Hiệu quả hấp phụ đạt trên 90 % chỉ sau 2 giờ. Như vậy có thể thấy vật liệu này có khả năng loại bỏ RhB theo cơ chế hấp phụ do khả năng lôi kéo và lưu giữ mạnh của vật liệu đối với hợp chất hữu cơ mang màu như RhB.

Động học của quá trình hấp phụ RhB lên vật liệu Fe-BDC/GNPs

Động học quá trình hấp phụ được đánh giá thông qua 2 mô hình động học biểu kiến là bậc nhất:

$$\ln(q_e - q_t) = \ln(q_e) - k_1 t \quad (4)$$

và bậc hai [30]:

$$\frac{t}{q_t} = \frac{1}{k_2 q_e^2} + \frac{t}{q_e} \quad (5)$$

Trong đó:

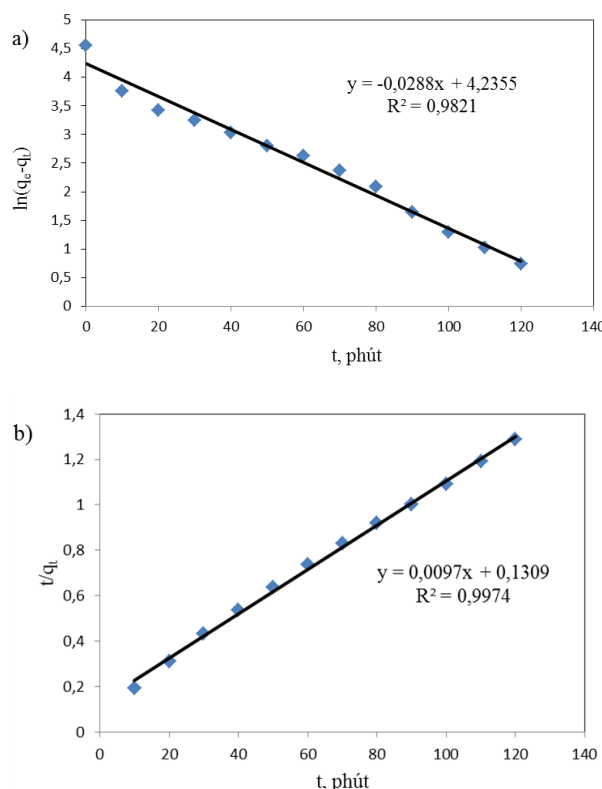
q_e là dung lượng hấp phụ tại thời điểm cân bằng (mg/g);

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

k_1 là hằng số tốc độ hấp phụ biểu kiến bậc nhất (ph^{-1});

k_2 là hằng số tốc độ hấp phụ biểu kiến bậc hai (g/mg.ph).

Từ số liệu thực nghiệm về sự thay đổi dung lượng hấp phụ theo thời gian, hồi qui tuyến tính các giá trị $\ln(q_e - q_t)$ theo t theo phương trình (4) đối với mô hình biểu kiến bậc nhất, và các giá trị (t/q_t) theo t theo phương trình (5) của mô hình biểu kiến bậc 2 (hình 7). Dựa trên các giá trị độ dốc và đoạn cắt với trục tung của các đường tuyến tính, sẽ tính được các hằng số động học k_1 và k_2 . Mức độ tuyến tính của các giá trị thực nghiệm theo mô hình được đánh giá bằng hệ số tin cậy R^2 . Kết quả các tham số động học và hệ số tin cậy được trình bày ở Bảng 2.



Hình 7: Động học biểu kiến bậc nhất (a) và bậc hai (b) của quá trình hấp phụ RhB lên vật liệu Fe-BDC/GNPs

Bảng 2: Các thông số của phương trình động học biểu kiến hấp phụ RhB lên vật liệu Fe-BDC/GNPs.

Mô hình động học	Thông số	Giá trị
Mô hình biểu kiến bậc 1	k_1 (ph^{-1})	0,0288
	$q_{e,cal}$ (mg/g)	69,10
	$q_{e,exp}$ (mg/g)	95,22
	R^2	0,9821
Mô hình biểu kiến bậc 2	k_2 (g/mg.ph)	0,00072
	$q_{e,cal}$ (mg/g)	103,09
	$q_{e,exp}$ (mg/g)	95,22
	R^2	0,9974

Từ kết quả ở bảng 2 có thể thấy rằng hệ số tin cậy R^2 của mô hình động học biểu kiến bậc hai lớn hơn so với của mô hình biểu kiến bậc nhất và gần với đơn vị. Ngoài ra, giá trị dung lượng hấp phụ cân bằng tính theo phương trình động học biểu kiến bậc hai ($q_{e,cal}$) gần với giá trị dung lượng hấp phụ tính từ thực nghiệm ($q_{e,exp}$) hơn nhiều so với giá trị dung lượng hấp phụ tính theo phương trình động học biểu kiến bậc nhất. Từ đó có thể cho rằng mô hình động học biểu kiến bậc hai mô tả quá trình hấp phụ RhB phù hợp hơn mô hình biểu kiến bậc nhất.

Đẳng nhiệt của quá trình hấp phụ RhB lên vật liệu Fe-BDC/GNPs

Đẳng nhiệt của quá trình hấp phụ RhB được đánh giá qua ba mô hình hấp phụ:

- Mô hình Langmuir thường được sử dụng để mô tả sự hấp phụ đơn lớp trên bề mặt hấp phụ đồng nhất. Phương trình Langmuir được mô tả theo phương trình [30, 31]:

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

Trong đó q_m là dung lượng hấp phụ cực đại (mg/g); q_e là dung lượng hấp phụ tại thời điểm cân bằng (mg/g); C_e là nồng độ chất bị hấp phụ tại thời điểm cân bằng (mg/L); K_L là hằng số hấp phụ Langmuir (L/mg) đặc trưng cho ái lực của tâm hấp phụ.

Với mức độ hấp phụ được đánh giá qua hệ số tách hay thông hệ số cân bằng R_L

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

Giá trị R_L xác định theo công thức (7) cho thấy sự phù hợp của mô hình với thực nghiệm nếu R_L nằm trong khoảng từ 0 ÷ 1 [27, 28].

- Mô hình đẳng nhiệt Freundlich [28]:

$$\ln q_e = \ln K_F + \frac{1}{n} \ln C_e \quad (8)$$

Trong đó K_F (L/g) và $1/n$ là các hằng số của phương trình đẳng nhiệt Freundlich. $1/n$ là hằng số Freundlich liên quan đến sự hấp phụ, nếu n nằm trong khoảng 1 ÷ 10 thì sự hấp phụ diễn ra thuận lợi [28].

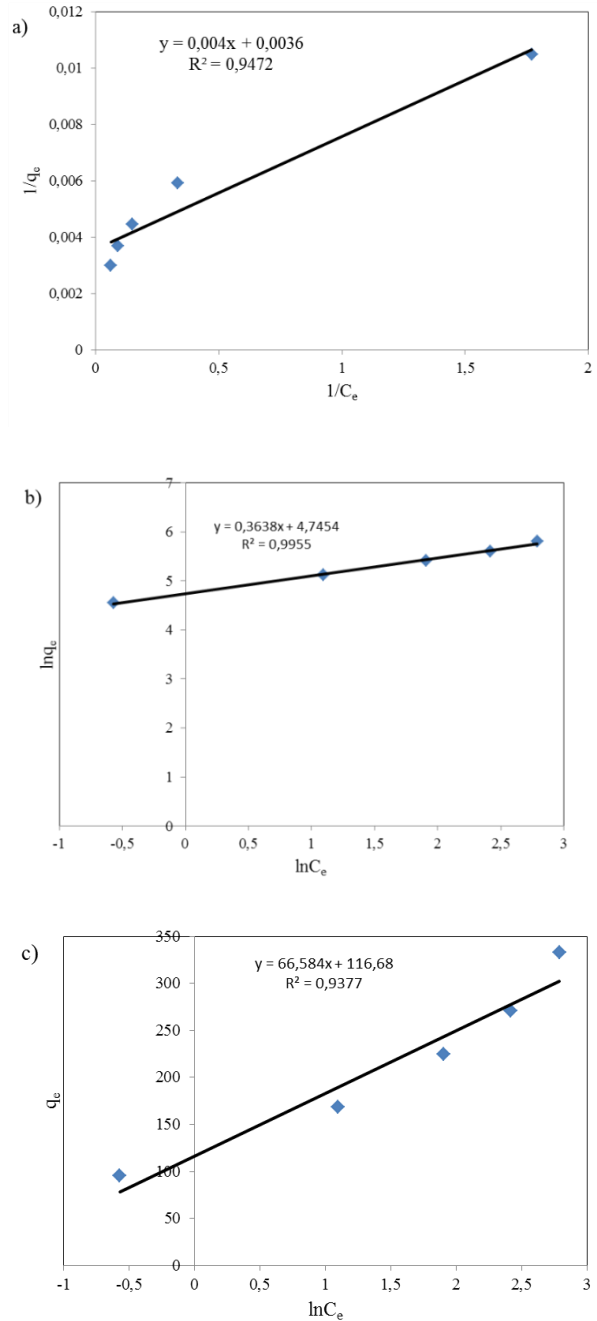
- Và mô hình đẳng nhiệt Temkin mô tả sự hấp phụ diễn ra trên bề mặt không đồng nhất [30]:

$$q_e = B \ln A + B \ln C_e \quad (9)$$

Trong đó $B=RT/b$, b (J/mol) là hằng số Temkin liên quan đến nhiệt hấp phụ, R (8,314 J/mol.K) là hằng số

khí, T (K) là nhiệt độ tuyệt đối; A là hằng số đẳng nhiệt Temkin (L/g);

Từ kết quả thực nghiệm, ta xây dựng được các đường hồi quy tuyến tính giữa $1/C_e$ với $1/q_e$ (mô hình Langmuir), giữa $\ln C_e$ với $\ln q_e$ (mô hình Freundlich) và giữa $\ln C_e$ với q_e (mô hình Temkin) (hình 8).



Hình 8: Đồ thị đẳng nhiệt hấp phụ RhB của vật liệu Fe-BDC/GNPs theo các mô hình hấp phụ đẳng nhiệt: Langmuir (a), Freundlich (b), Temkin (c).

Từ các giá trị độ dốc và đoạn cắt của trục tung sẽ tính được các giá trị tham số của các phương trình đẳng nhiệt, và các tham số liên quan khác. Kết quả được trình bày trong bảng 3, bảng 4.

<https://doi.org/10.51316/jca.2023.048>

Bảng 3: Các giá trị tham số của các phương trình đẳng nhiệt

Mô hình	Tham số	Giá trị
Langmuir	q_m (mg/g)	277,78
	K_L (L/mg)	0,9
	R^2	0,9472
Freundlich	K_F ($\text{mg}^{1-1/n} \cdot \text{g}^{-1} \cdot \text{L}^{1/n}$)	115,05
	n	2,7488
	R^2	0,9955
Temkin	A (L/g)	5,7683
	B	66,584
	b (J/mol)	37,21
	R^2	0,9377

Bảng 4: Giá trị thông số cân bằng R_L ở các nồng độ RhB ban đầu khác nhau

Nồng độ (mg/L)	R_L
10,087	0,0992
19,831	0,0531
29,165	0,0367
38,321	0,0282
49,581	0,0219

Từ bảng 3 cho thấy dung lượng hấp phụ cực đại theo mô hình Langmuir được tính toán đạt 277,78 mg/g ở mức cao so với các vật liệu xốp hiện nay [20, 32].

Từ kết quả trên hình 8, bảng 3, bảng 4 cho thấy, 3 mô hình hấp phụ đẳng nhiệt Langmuir, Freundlich, Temkin đều mô tả khá tốt dữ liệu thực nghiệm. Điều này được thể hiện ở hệ số tin cậy R^2 của cả 3 mô hình rất cao ($R^2 = 0,93 \div 0,99$). Các thông số cân bằng (R_L) trong bảng 4 đối với đẳng nhiệt Langmuir nằm trong phạm vi $0 < R_L < 1$, và giá trị $n=2,7488$ trong bảng 3 đối với mô hình đẳng nhiệt Freundlich nằm trong khoảng $1 < n < 10$, điều này cũng chứng tỏ sự phù hợp của các mô hình này với số liệu thực nghiệm. Tuy nhiên đẳng nhiệt hấp phụ Freundlich phù hợp nhất trong 3 mô hình khi so sánh hệ số tin cậy R^2 (hệ số tin cậy R^2 của mô hình đẳng nhiệt Freundlich bằng 0,9955, cao nhất trong 3 mô hình và gần bằng đơn vị), chứng tỏ cơ chế hấp phụ trên bề mặt dị thể, bề mặt không đồng nhất, hấp phụ đa lớp, điều này cũng phù hợp với đặc trưng vật liệu tổng hợp được.

Kết luận

Đã tổng hợp thành công vật liệu Fe-BDC/GNPs bằng phương pháp siêu âm. Vật liệu tổng hợp có dạng tinh Fe-BDC với hình thái bát diện bao bọc hoặc liên kết với các tấm GNPs đa lớp mỏng. Kích thước trung bình vật liệu tổ hợp Fe-BDC/GNPs là 580 nm. Vật liệu có khả năng xử lý RhB theo cơ chế là hấp phụ. Ở nồng độ RhB 10 mg/L, hiệu quả xử lý RhB ở của vật liệu đã đạt trên 50% chỉ sau 10 phút, và đạt trên 90% chỉ sau 2 giờ trong điều kiện khảo sát của nồng độ chất màu là 10 mg/L và tỷ lệ chất hấp phụ với dung dịch xử lý là 0,1 g/lít. Dung lượng hấp phụ cực đại theo mô hình Langmuir được tính toán đạt 277,78 mg/g ở mức cao so với các vật liệu xốp hiện nay. Nghiên cứu động học cho thấy các kết quả thực nghiệm phù hợp với mô hình hấp phụ biểu kiến bậc 2 (với $R^2 = 0,9974$) và giá trị $q_{e,cal}$ gần với giá trị $q_{e,exp}$. Bên cạnh đó, dữ liệu hấp phụ đẳng nhiệt thực nghiệm của RhB trên vật liệu Fe-BDC/GNPs cho thấy sự phù hợp với cả ba mô hình đẳng nhiệt Langmuir, Freundlich, Temkin, trong đó phù hợp nhất với mô hình đẳng nhiệt Freundlich với hệ số tin cậy ($R^2 = 0,9955$) cao nhất.

Lời cảm ơn

Kết quả nghiên cứu này được thực hiện và nhận tài trợ của Phòng Vật liệu Vô cơ, Viện Hoá học học- Vật liệu.

Tài liệu tham khảo

- Xiao-Cheng Du, Ji-Hua Zhu, Zheng-Jun Quan and Xi-Cun Wang, *New J. Chem.*, 45 (2021) 3448–3453. <https://doi.org/10.1039/D0NJ05750A>
- Mohamed A. Hassaan, Ahmed El Nemr, *International Journal of Photochemistry and Photobiology*, 2(3) (2017) 85–93. <https://doi.org/10.11648/j.ijpp.20170203.13>.
- S S Hutagalung, I Muchlis, and K Khotimah, *Mater. Sci. Eng.* 722(2020) 012032(1-9). <https://doi.org/10.1088/1757-899X/722/1/012032>
- Q. Chen, Q. He, M. Lv, Y. Xu, H. Yang, X. Liu and F. Wei, *Appl. Surf. Sci.*, 327 (2015) 77–85. <https://doi.org/10.1016/j.apsusc.2014.11.103>
- Naresh Yadav Donkadokula, Anand Kishore Kola, Iffat Naz, Devendra Saroj, *Rev Environ Sci Biotechnol*, 19 (2020) 543–560. <https://doi.org/10.1007/s11157-020-09543-z>
- Krzysztof Piaskowski, Renata Świdarska-ąbrowska, Paweł K Zarzycki, *J AOAC Int.*, 101(5) <https://doi.org/10.51316/jca.2023.048>

- (2018) 1371–1384.
<https://doi.org/10.5740/jaoacint.18-0051>
7. Elena V. Butyrskaya, *Materials Today Communications*, 33 (2022) 104327.
<https://doi.org/10.1016/j.mtcomm.2022.104327>
 8. Suh M. P., Park H. J., Prasad T.K., Lim D. W., *Chemistry Review*, 112(2) (2012) 782–835.
<https://doi.org/10.1021/cr200274s>
 9. Yabing He, Wei Zhou, Guodong Qian and Banglin Chen., *Chem. Soc. Rev.*, 43 (2014) 5657–5678.
<https://doi.org/10.1039/C4CS00032C>
 10. Gu. Z. Y., Yang C. X., Chang N., Yan X. P, *Acc. Chem. Res.*, 45 (2012) 734–745.
<https://doi.org/10.1021/ar2002599>
 11. Han-Lun Hung, Tomoya Iizuka, Xuepeng Deng, Qiang Lyu, Cheng-Hsun Hsu, Noriyoshi Oe, Li-Chiang Lin, Nobuhiko Hosono, Dun-Yen Kang, *Separation and Purification Technology*, 310 (2023) 123115. <https://doi.org/10.1016/j.seppur.2023.123115>
 12. Jaymin Parikh, Brij Mohan, Keyur Bhatt, Nihal Patel, Siddhant Patel, Amish Vyas, Krunal Modi, *Microchemical Journal*, 184 Part A (2023) 108156.
<https://doi.org/10.1016/j.microc.2022.108156>
 13. Wen Niu, Kaijin Kang, Yi Ou, Yanqiao Ding, Bingsheng Du, Xuezheng Guo, Yiling Tan, Wei Hu, Chao Gao, Yong He, Yongcai Guo, *Sensors & Actuators: B. Chemical*, 381 (2023) 133347.
<https://doi.org/10.1016/j.snb.2023.133347>
 14. Lien T. L. N., Chi V. N., Giao H. D., Ky K. A. L., Nam T. S. P., *Journal of Molecular Catalysis A: Chemical*, 349 (2011) 28–35.
<https://doi.org/10.1016/J.MOLCATA.2011.08.011>
 15. Nurul Wafa Othman, Hasmira Radde, Perng Yang Puah, Yee Soon Ling, Pak Yan Moh, *Journal of the Chinese Chemical Society*, 66(1) (2018) 81–88.
<https://doi.org/10.1002/jccs.201800216>
 16. A. Dhakshinamoorthy, A. M. Asiri, H. García, *Trends in chemistry*, 2(5) (2020) 454–466.
<https://doi.org/10.1016/j.trechm.2020.02.004>
 17. Somayeh Norouzbahari, Zohreh Mehri Lighvan, Ali Ghadimi, Behrouz Sadatnia, *Fuel*, 339 (2023) 127463.
<https://doi.org/10.1016/j.fuel.2023.127463>
 18. Y. Xie, S. Lyu, Y. Zhang, Ch. Cai, *Materials*, 15(21) (2022) 7727. <https://doi.org/10.3390/ma15217727>
 19. Joon Yeob Lee, Jeong-Hak Choi, *Journal of Environmental Science International*, 27(7) (2018) 611–620.
<https://doi.org/10.5322/JESI.2018.27.7.611>
 20. Nguyen Thi Hoai Phuong, Dao Xuan Truong, Ha Thi Thanh Duong, Le Thanh Bac, Pham Trung Kien, Nguyen Viet Tung, Ninh Duc Ha, *Vietnam J. Chem.*, 58(5E12) (2020) 322–328.
 21. Enamul Haque, Ji Eun Lee, In Tae Jang, Young Kyu Hwang, Jong-San Chang, Jonggeon Jegal, Sung Hwa Jung, *J. Hazard. Mater.* 181 (2010) 535–542.
<https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2010.05.047>
 22. Enamul Haque, Jong Won Jun, Sung Hwa Jung, *J. Hazard. Mater.* 185 (2011) 507–511.
<https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2010.09.035>
 23. Haochi Liu, Xiaohui Ren, Ligang Chen, *J. Ind. Eng. Chem.* 34 (2016) 278–285.
<https://doi.org/10.1016/j.jiec.2015.11.020>
 24. Y. Kopelevich, P. Esquinazi, *Adv. Mater.* 19 (24) (2007) 4559–4563.
<https://doi.org/10.1002/adma.200702051>
 25. S. Morozov, K. Novoselov, M. Katsnelson, F. Schedin, D. Elias, J. Jaszczak, et al., *Phys. Rev. Lett.* 100 (1) (2008) 016602–(1-4).
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.100.016602>
 26. M.A. Ahsan, V. Jabbari, M.T. Islam, R.S. Turley, N. Dominguez, H. Kim, et al., *Sci. Total Environ.* 673 (2019) 306–317.
<https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2019.03.219>
 27. L. De Marchi, C. Pretti, B. Gabriel, P.A.A.P. Marques, R. Freitas, V. Neto, *Sci. Total Environ.* 631–632 (2018) 1440–1456.
<https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2018.03.132>
 28. C.H. Nguyen, R.-S.-S. Juang, *J. Ind. Eng. Chem.* 76 (2019) 296–309.
<https://doi.org/10.1016/j.jiec.2019.03.054>
 29. Truong Ngoc Tuan, Tran Van Chinh, Nguyen Hoang Tuan, Nguyen Thi Hoai Phuong, *Vietnam Journal of Science and Technology*, 56 (2018) 1-10.
<https://doi.org/10.15625/2525-2518/56/2A/12621>
 30. Hongxu Guo, Fan Lin, Jianhua Chen, Feiming Li and Wen Weng, *Appl. Organometal. Chem.*, 29 (2015) 12–19. <https://doi.org/10.1002/aoc.3237>
 31. Z. Movasaghi, B. Yan, C. Niu, *Industrial Crops & Products*, 127 (2019) 237–250.
<https://doi.org/10.1016/j.indcrop.2018.10.051>
 32. Gang Cheng, Feifan Xu, Jinyan Xiong, Fan Tian, Jie Ding, Florian J. Stadler, Rong Chen, *Advanced Powder Technology*, 27 (2016) 1949–1962.
<https://doi.org/10.1016/j.apt.2016.06.026>