DOI: 10.64302/joshusc.v35n2.1431

NGHIÊN CỨU ĐẲNG NHIỆT VÀ ĐỘNG HỌC HẤP PHỤ CHLORIDE TRONG DUNG DỊCH NƯỚC LÊN VẬT LIỆU CARBON HOẠT TÍNH BIẾN TÍNH

Nguyễn Đức Vũ Quyên*, Hồ Văn Minh Hải, Bùi Thị Hoàng Diễm, Trần Ngọc Tuyền, Đinh Quang Khiếu, Nguyễn Thị Ái Nhung, Nguyễn Thị Thanh Hải, Lê Thị Hòa, Nguyễn Thị Đoan Duyên, Lê Thị Bích Hoa, Nguyễn Đôn Thuận, Trần Ngọc Anh Vũ

Khoa Hóa học, Trường Đại học Khoa học, Đại học Huế

*Email: ndvquyen@hueuni.edu.vn

Ngày nhận bài: 6/7/2026; ngày hoàn thành phản biện: 3/8/2026; ngày duyệt đăng: 01/9/2026

TÓM TẮT

Trong nghiên cứu này, carbon hoạt tính tổng hợp từ lõi ngô được biến tính bằng oxide sắt và sử dụng để hấp phụ chloride trong dung dịch nước. Vật liệu sau khi biến tính được đặc trưng bằng những kỹ thuật phân tích hóa lý hiện đại như nhiễu xạ tia X (XRD), phổ Raman, hiển vi điện tử quét (SEM), hiển vi điện tử truyền qua (TEM), hấp phụ và khử hấp phụ nitrogen (BET). Khả năng hấp phụ chloride của vật liệu được khảo sát theo nồng độ chloride ban đầu và thời gian tiếp xúc. Dữ liệu đẳng nhiệt hấp phụ được mô tả tốt hơn bởi mô hình Langmuir so với Freundlich, với dung lượng hấp phụ cực đại được xác định là 14,16 mg/g. Thời gian đạt cân bằng hấp phụ chloride của vật liệu tăng dần khi nồng độ chloride ban đầu thay đổi từ 50 đến 100 mg/L. Ở nồng độ chloride 50 và 60 mg/L, quá trình hấp phụ chloride phù hợp với mô hình động học bậc nhất biểu kiến, trong khi, ở những nồng độ chloride 70 đến 100 mg/L, mô hình động học bậc hai biểu kiến thể hiện tính thích hợp hơn. Giá trị pHpzc khoảng 7,23 và sự tăng pH dung dịch từ 6,8 lên 7,5 sau hấp phụ phù hợp với vai trò của tương tác tĩnh điện và khả năng trao đổi Cl^- với các nhóm Fe–OH; tuy nhiên, các dữ liệu hiện có chưa đủ để khẳng định duy nhất cơ chế trao đổi ion.

Từ khóa: carbon hoạt tính biến tính, oxide sắt, đẳng nhiệt hấp phụ, động học hấp phụ chloride, lõi ngô, FeO_x/AC.

1. GIỚI THIỆU

Trong bối cảnh nhu cầu phát triển các công nghệ xử lý ô nhiễm theo hướng bền vững ngày càng gia tăng, phương pháp hấp phụ sử dụng vật liệu thân thiện với môi trường đã thu hút nhiều sự quan tâm. So với một số kỹ thuật xử lý khác, hấp phụ có ưu điểm về quy trình vận hành đơn giản, chi phí thấp, hiệu quả tương đối cao và không đòi hỏi các bước tiền xử lý phức tạp. Trong số các vật liệu hấp phụ được nghiên cứu, carbon hoạt tính (AC) được xem là một trong những vật liệu tiềm năng nhờ diện tích bề mặt riêng lớn, hệ mao quản phát triển và tính tương thích sinh học cao. Đáng chú ý, AC có thể được tổng hợp từ nhiều nguồn phụ phẩm nông nghiệp sẵn có như rơm rạ, bã mía, vỏ trấu và các loại sinh khối lignocellulose khác (González-García, 2018), (Bedia và cộng sự, 2018). Trong đó, lõi ngô là nguồn phế phụ phẩm nông nghiệp có trữ lượng dồi dào, cấu trúc tự nhiên phù hợp để chế tạo vật liệu carbon xốp, nhưng hiện vẫn đang được thải ra môi trường không qua xử lý. Vì vậy, việc tận dụng lõi ngô làm tiền chất để chế tạo AC không chỉ góp phần nâng cao giá trị của phế thải nông nghiệp mà còn mở ra khả năng ứng dụng vật liệu này trong lĩnh vực xử lý môi trường (Kaźmierczak, Nowicki, & Pietrzak, 2013).

Mặc dù carbon hoạt tính có nhiều ưu điểm, hiệu quả hấp phụ của vật liệu này phụ thuộc đáng kể vào đặc tính bề mặt sau quá trình hoạt hóa. Thông thường, hoạt hóa bằng acid kết hợp xử lý nhiệt có thể làm gia tăng diện tích bề mặt riêng và phát triển cấu trúc mao quản của AC. Tuy nhiên, quá trình này cũng có khả năng tạo ra hoặc làm tăng mật độ các nhóm chức chứa oxy trên bề mặt, đặc biệt là nhóm hydroxyl và carboxyl. Khi các nhóm chức này bị phân ly trong môi trường nước, bề mặt vật liệu có xu hướng mang điện tích âm, từ đó làm giảm ái lực hấp phụ đối với các anion như Cl^- do lực đẩy tĩnh điện. Hạn chế này cho thấy việc biến tính bề mặt AC là cần thiết nhằm cải thiện khả năng tương tác giữa vật liệu hấp phụ và các ion mang điện tích âm.

Trong số các tác nhân biến tính được quan tâm, oxide sắt được đánh giá là vật liệu phù hợp do có độ ổn định tương đối cao, ít gây ô nhiễm thứ cấp và có khả năng liên kết bền với nền carbon hoạt tính để tạo ra các tâm hấp phụ hoạt tính. Sự hiện diện của oxide sắt trên bề mặt AC có thể tạo thêm các tâm hoạt tính, làm thay đổi điện tích bề mặt và tăng khả năng tương tác với các ion trong dung dịch, đặc biệt, qua đó thúc đẩy quá trình trao đổi ion, tương tác bề mặt hoặc tạo phức với ion Cl^- (Oliveira và cộng sự, 2002). Vì vậy, biến tính AC có nguồn gốc từ lõi ngô bằng oxide sắt là một hướng tiếp cận phù hợp để khảo sát khả năng hấp phụ anion chloride trong nước.

Nồng độ chloride trong các nguồn nước cần xử lý có thể biến thiên rất rộng tùy nguồn phát sinh. Các nghiên cứu gần đây về vật liệu carbon đã khảo sát chloride ở khoảng 500–900 mg/L trong dung dịch mặn tổng hợp (Tarannum và cộng sự, 2024), trong khi nước thải thuộc da có thể có nồng độ chloride ban đầu khoảng 1702 mg/L (Tadess và cộng sự, 2025). Vì vậy, khoảng 50–100 mg/L được lựa chọn trong nghiên cứu

này được xem là vùng nồng độ thấp nhằm khảo sát có hệ thống đặc trưng đẳng nhiệt và động học của vật liệu trong dung dịch NaCl đơn thành phần.

Trong bài báo này, vật liệu AC được tổng hợp từ lõi ngô và biến tính bằng oxide sắt từ muối Mohr bằng phương pháp khá đơn giản và ứng dụng hấp phụ chloride trong dung dịch nước. Nghiên cứu không tập trung xác định dạng tồn tại chính xác của oxide sắt trên bề mặt vật liệu carbon hoạt tính mà sẽ đánh giá đẳng nhiệt và động học hấp phụ chloride của vật liệu trong khoảng nồng độ 50–100 mg/L; đồng thời thảo luận cơ chế khả dĩ trên cơ sở đặc trưng bề mặt, pHpzc, biến thiên pH và mức độ phù hợp của các mô hình; cơ chế hấp phụ cũng đã được dự đoán.

2. THỰC NGHIỆM

2.1. Hóa chất

Lõi ngô ở xã A Lưới, thành phố Huế được sử dụng để tổng hợp AC. Các hóa chất tinh khiết dùng trong nghiên cứu gồm HNO_3 65%, NaOH, muối Mohr $(NH_4)_2Fe(SO_4)_2.6H_2O$, NaCl, khí N_2 được sản xuất ở Trung Quốc.

2.2. Thiết bị

Mẫu được đặc trưng bằng XRD trên máy RINT2000/PC (Rigaku, Nhật Bản) với $\lambda_{CuK\alpha}$ = 1,5406 Å. Phổ Raman được đo trên thiết bị RAM HR800 (Horiba). Ảnh SEM và TEM được thu trên kính hiển vi điện tử S-4800 (Hitachi, Nhật Bản). Diện tích bề mặt riêng BET được xác định bằng máy Micromeritics ASAP 2020. Quá trình tổng hợp và biến tính carbon hoạt tính được tiến hành trong lò nung dưới khí N_2.

2.3. Tổng hợp và biến tính vật liệu carbon hoạt tính

Lõi ngô trước khi được carbon hóa ở 400^{o}C trong môi trường khí N_2 đã được sơ chế bằng cách rửa sạch, cắt nhỏ và phơi khô tự nhiên. Sau đó, carbon lõi ngô được ngâm, khuấy và nấu ở 200^{o}C trong dung dịch NaOH 2 M trong 4 giờ. Vật liệu sau đó được rửa sạch bằng nước cất nhiều lần cho đến pH trung tính, sấy ở 100^{o}C trong 24 giờ và nung hoạt hóa ở 750^{o}C trong môi trường khí N_2 trong 1 giờ. Quá trình hoạt hóa tiếp theo được thực hiện với tác nhân hoạt hóa là dung dịch HNO_3, carbon lõi ngô được ngâm, khuấy trong dung dịch HNO_3 0,1 M trong 4 giờ ở nhiệt độ 80^{o}C. Vật liệu carbon hoạt tính thu được sau khi lọc lấy, rửa sạch chất rắn sau khi ngâm trong dung dịch HNO_3 bằng nước cất cho đến pH trung tính, sấy ở 100^{o}C trong 24 giờ và nung hoạt hóa ở 800^{o}C trong môi trường khí N_2 trong 1 giờ.

Để biến tính bề mặt vật liệu carbon hoạt tính bằng oxide sắt, muối Mohr rắn được trộn đều và nghiền mịn với vật liệu với tỷ lệ khối lượng xác định sao cho hàm lượng Fe trong vật liệu là 4,11%, sau đó hỗn hợp được nung trong môi trường khí N_2 ở 750^{o}C trong 1 giờ với tốc độ gia nhiệt 5^{o}C/phút.

2.4. Các phương pháp thực nghiệm

Để định lượng chloride trong dung dịch nước, phương pháp Mohr được sử dụng với chất chuẩn là dung dịch $AgNO_3$ với chỉ thị màu là K_2CrO_4. Ag^+ phản ứng với Cl^- tạo kết tủa AgCl cho đến khi hết ion Cl^- trong dung dịch, một giọt ion Ag^+ dư tạo kết tủa Ag_2CrO_4 màu đỏ gạch (tín hiệu điểm tương đương).

Thí nghiệm đánh giá khả năng hấp phụ chloride trong dung dịch nước của vật liệu AC biến tính được thực hiện trong bình tam giác 100 mL chứa 20 mL dung dịch NaCl nồng độ 50 mg/L (pH khoảng 6,8-7 (Nguyễn Hồ Ngọc Thư và cộng sự, 2025)) được khuấy đều với 0,1 g AC biến tính trong 3 giờ ở 30°C để quá trình hấp phụ đạt cân bằng. Nồng độ chloride được xác định sau quá trình hấp phụ. Hiệu suất hấp phụ được xác định dựa vào công thức (1).

$$H(\%) = \frac{m_{Cl^- \text{ sau hấp phụ}}}{m_{Cl^- \text{ ban đầu}}}.100 \qquad (1)$$

Thí nghiệm đẳng nhiệt và động học hấp phụ được thực hiện ở những nồng độ NaCl ban đầu là 50, 60, 70, 80, 90 và 100 mg/L, 20 mL dung dịch NaCl được khuấy đều với 0,1 g AC biến tính trong 3 giờ 30°C để quá trình hấp phụ đạt cân bằng. Nồng độ chloride được xác định sau quá trình hấp phụ. Các mô hình đẳng nhiệt Langmuir (phương trình (2)) và Freundlich (phương trình (3)) được sử dụng để đánh giá số liệu thực nghiệm (Nguyễn Đức Vũ Quyên và cộng sự, 2024). Dung lượng hấp phụ cực đại (Q_m) của vật liệu AC biến tính đối với chloride được xác định.

$$Q_e = \frac{Q_m.K_L.C_e}{1+K_L.C_e} \quad (2) \qquad Q_e = K_F.C_e^{1/n} \quad (3)$$

Trong đó, C_e là nồng độ cân bằng của Cl^- trong dung dịch sau hấp phụ (mg/L); Q_e là dung lượng hấp phụ Cl^- của vật liệu (mg/g) được tính theo công thức $Q_e = \frac{(C_0-C_e)V}{m}$ (4), trong đó C_0 là

nồng độ ban đầu của Cl^- (mg/L), V và m lần lượt là thể tích dung dịch Cl^- (L) và khối lượng vật liệu (g); Q_m là dung lượng hấp phụ cực đại (mg/g) của vật liệu đối với Cl^-; K_L là hằng số Langmuir; K_F và n là các hằng số Freundlich.

Đối với mỗi nồng độ trên, 250 mL dung dịch dung dịch NaCl 50 mg/L được khuấy đều với vật liệu AC biến tính với liều lượng 5g/L. Cứ mỗi 10 phút, 10 mL hỗn hợp rắn lỏng trong cốc được lấy ra và thực hiện quá trình chuẩn độ dung dịch để xác định nồng độ NaCl còn lại trong dung dịch. Số liệu được xem xét sự phù hợp với các mô hình động học bậc nhất (LFO) (phương trình (5)) và bậc hai (PSO) (phương trình (6)) (Nguyễn Đức Vũ Quyên và cộng sự, 2024).

$$\ln(Q_e - Q_t) = lnQ_e - k_1 t \qquad (5) \qquad \frac{t}{Q_t} = \frac{t}{k_2 Q_e^2} + \frac{t}{Q_e} \qquad (6)$$

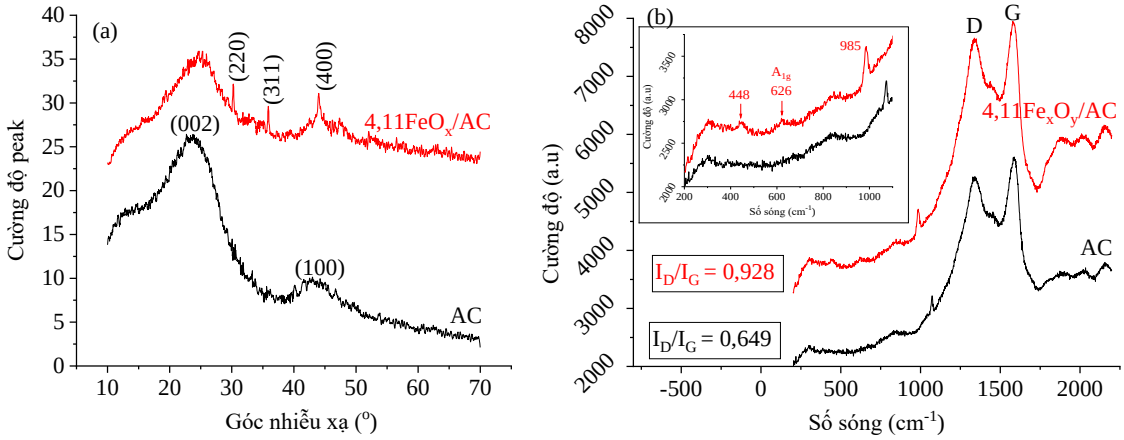
Trong đó k_1 và k_2 lần lượt là hằng số tốc độ bậc nhất và bậc hai.

3. KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN

3.1. Đặc trưng vật liệu AC biến tính (4,11FeOx/AC)

Kết quả phân tích nhiễu xạ tia X được trình bày ở hình 1(a) cho thấy vật liệu AC biến tính có cấu trúc gồm đồng thời hai thành phần: phần nền carbon mang tính vô định hình (các dải nhiễu xạ rộng trong vùng 20-26° và 41-45°, tương ứng với các mặt mạng (002) và (100)) và các pha tinh thể của oxide sắt (góc nhiễu xạ 30,3°; 35,8° và 43,9° gán cho các mặt tinh thể (220), (311) và (400) của oxide sắt có cấu trúc spinel, điển hình là Fe_3O_4 hoặc γ-Fe_2O_3) (Nguyễn Đức Vũ Quyên, Lê Thị Hòa, và Hồ Thị Thùy Dung, 2026). Do các pha này có các vị trí nhiễu xạ gần tương đồng, kết quả XRD hiện tại chưa cho phép phân biệt một cách chắc chắn giữa Fe_3O_4 và γ-Fe_2O_3 cũng như xác định định lượng trạng thái oxi hóa của Fe. Vì vậy, trong nghiên cứu này, pha chứa sắt được ký hiệu chung là FeO_x.

Song song với đó, các vùng tín hiệu trải rộng đặc trưng cho carbon hoạt tính (mặt mạng (002) và (100)) tại các khoảng góc 20-26° và 41-45° vẫn được duy trì so với mẫu AC nguyên bản. Những kết quả này, kết hợp với sự xuất hiện của các đỉnh nhiễu xạ đặc trưng của oxide sắt, cho thấy các hạt FeO_x đã được hình thành và phân bố trên nền carbon hoạt tính.



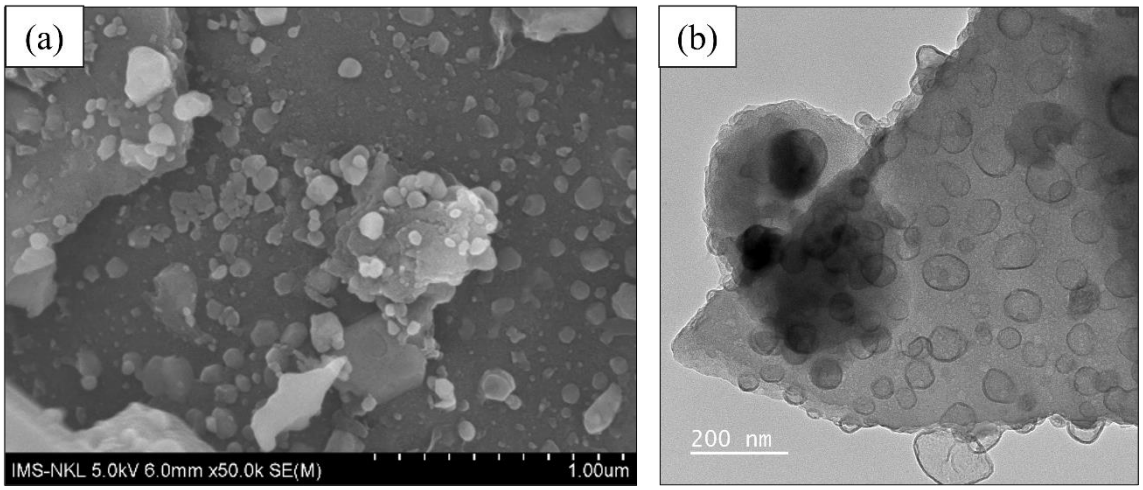
Hình 1. Giản đồ XRD (a) và phổ Raman (b) của vật liệu AC và 4,11FeO_x/AC (Nguyễn Đức Vũ Quyên, Lê Thị Hòa, và Hồ Thị Thùy Dung, 2026).

Bên cạnh kết quả XRD, phổ Raman ở hình 1(b) cung cấp thêm thông tin về sự thay đổi cấu trúc carbon sau khi đưa oxide sắt vào vật liệu. Tỷ lệ cường độ I_D/I_G của FeO_x/AC cao hơn AC nguyên bản, cho thấy mẫu FeO_x/AC có mức độ mất trật tự cao hơn so với AC nguyên bản, cho thấy mức độ mất trật tự tăng và sự hình thành thêm các khuyết tật cục bộ trong cấu trúc carbon sau biến tính (Nguyễn Đức Vũ Quyên, Lê Thị Hòa, và Hồ Thị Thùy Dung, 2026).

Diện tích bề mặt BET của vật liệu AC trước và sau khi biến tính thể hiện sự chênh lệch khá nhiều khẳng định sự có mặt của oxide sắt trên bề mặt AC đã che lấp một số cấu

trúc vi mao quản của vật liệu, do vậy làm giảm diện tích bề mặt BET của vật liệu AC từ 422,61 m^2/g xuống còn 209,77 m^2/g (Nguyễn Đức Vũ Quyên, Lê Thị Hòa, và Hồ Thị Thùy Dung, 2026).

Cấu trúc của bề mặt của vật liệu AC và 4,11FeO_x/AC được làm rõ trong ảnh SEM (hình 2(a)) và TEM (hình 2(b)) của vật liệu. Quan sát cho thấy sự phân bố của các hạt nano FeO_x (kích thước dao động 30-70 nm) trên bề mặt vật liệu AC khá đồng đều, làm tăng tiếp xúc giữa tâm hấp phụ và ion Cl^-, từ đó thúc đẩy hiệu suất hấp phụ Cl^- của các tâm hoạt tính trên bề mặt vật liệu.



Hình 2. Ảnh SEM (a) và TEM (b) của vật liệu 4,11FeO_x/AC
(Nguyễn Đức Vũ Quyên, Lê Thị Hòa, và Hồ Thị Thùy Dung, 2026).

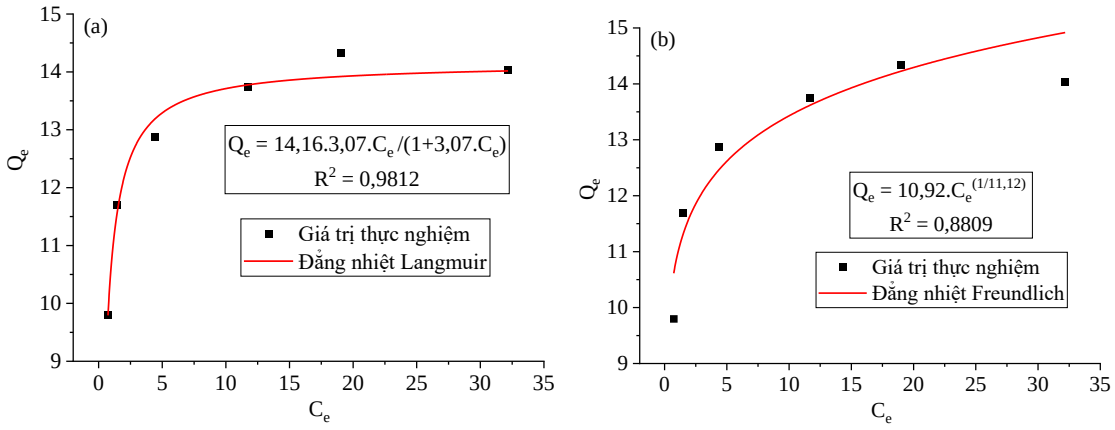
Điểm điện tích không của vật liệu (pH_{PZC}) cũng đã được xác định vào khoảng 7,23 (Nguyễn Hồ Ngọc Thư và cộng sự, 2025).

3.2. Đẳng nhiệt hấp phụ chloride lên vật liệu 4,11FeO_x/AC

Số liệu thực nghiệm của nghiên cứu đẳng nhiệt hấp phụ chloride lên vật liệu AC biến tính đã được đánh giá ở hai mô hình đẳng nhiệt hấp phụ như ở hình 3. Có thể thấy rằng mô hình Langmuir có hệ số xác định R^2 = 0,9812 (bảng 1), cao hơn rõ rệt so với mô hình Freundlich với R^2 = 0,8809, các giá trị thực nghiệm đa số trùng với đường đẳng nhiệt Langmuir trong khi lệch khỏi đường đẳng nhiệt Freunglich khá nhiều. Do vậy, mô hình Langmuir mô tả quá trình hấp phụ tốt hơn, ủng hộ cho cơ chế hấp phụ đơn lớp ion Cl^- lên bề mặt vật liệu carbon hoạt tính biến tính với dung lượng hấp phụ cực đại khoảng 14,16 (mg/g) (bảng 1). Kết quả cho thấy q_m của 4,11FeO_x/AC thấp hơn một số biochar biến tính HCl được công bố gần đây (Ishaq và cộng sự, 2025) và thấp hơn đáng kể vật liệu từ vỏ cà phê hoạt hóa khi xử lý nước thải thuộc da (Tadess, Gezahegn and Abrha, 2025). Tuy nhiên, do khác biệt về nồng độ ban đầu, pH, liều lượng và nền dung dịch, các giá trị này chỉ mang tính tham khảo và không chứng minh ưu thế tuyệt đối của vật liệu nào.

Bảng 1. Các thông số đẳng nhiệt theo mô hình Langmuir và Freundlich của quá trình hấp phụ Cl^- trên vật liệu 4,11FeO_x/AC

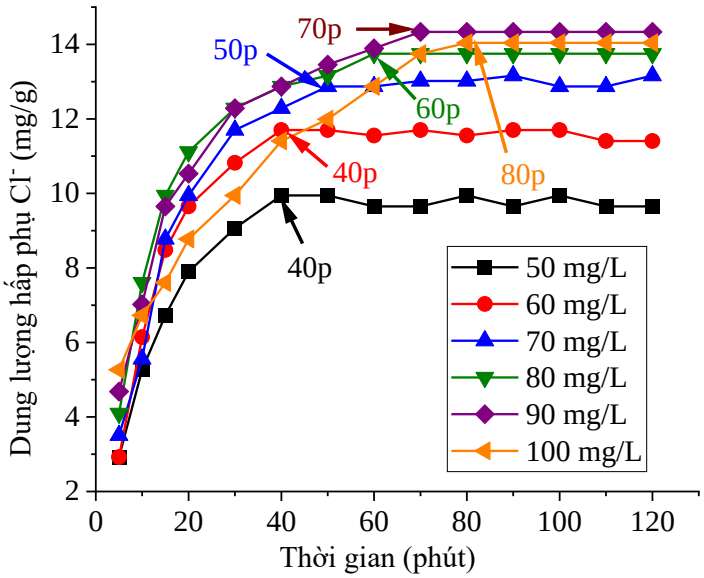
Mô hình Langmuir			Mô hình Freundlich		
q_m (mg/g)	K_L	R^2	n	K_F	R^2
14,16	3,07	0,9812	11,12	10,92	0,8809



Hình 3. Phương trình phi tuyến tính của mô hình đẳng nhiệt Langmuir (a) và Freundlich (b) mô tả hấp phụ Cl^- lên vật liệu 4,11FeO_x/AC.

3.3. Động học hấp phụ chloride lên vật liệu 4,11FeO_x/AC

Hình 4 cho thấy dung lượng hấp phụ Cl^- của vật liệu 4,11FeO_x/AC tăng dần theo thời gian, đặc biệt, tăng nhanh trong 10 phút đầu. Thời gian đạt cân bằng hấp phụ tăng dần theo nồng độ Cl^- ban đầu, 40 phút đối với nồng độ 50 và 60 mg/L; 50; 60; 70 và 80 phút lần lượt đối với nồng độ 70, 80, 90 và 100 mg/L. Sau khi đạt đến trạng thái cân bằng, dung lượng hấp phụ của vật liệu thay đổi gần như không đáng kể.



Hình 4. Ảnh hưởng của thời gian hấp phụ đến dung lượng hấp phụ của vật liệu 4,11FeO_x/AC.

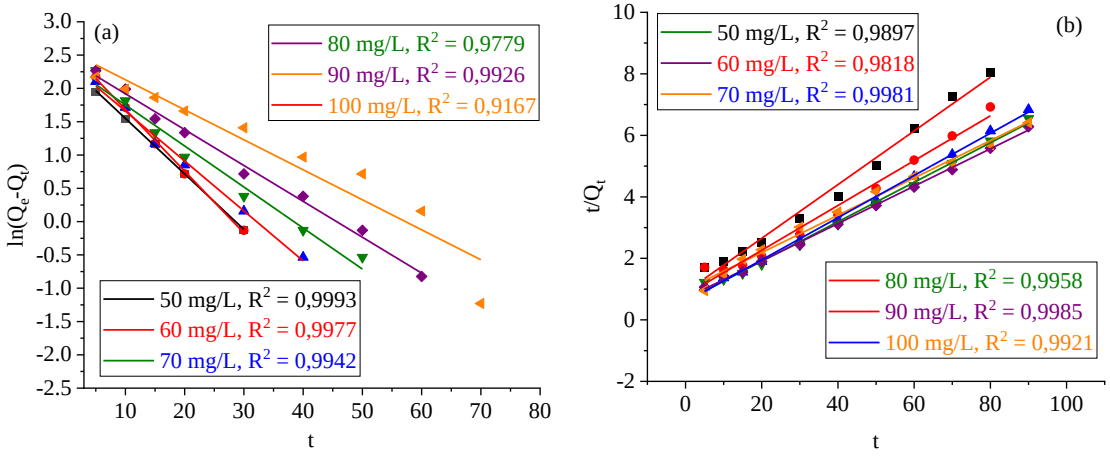
Bản chất động học của quá trình hấp phụ được đánh giá thông qua phương trình động học bậc nhất và bậc hai như trình bày ở hình 5. Có thể nhận thấy, ở nồng độ Cl^- ban đầu 50 mg/L, phương trình PFO có hệ số xác định (0,9993) cao hơn PSO (0,9897), đồng thời Q_e dự đoán bởi phương trình PFO gần Q_e thực nghiệm hơn. Tại nồng độ 60 mg/L, phương trình PFO vẫn có R^2 cao hơn so với phương trình PSO (0,9977 so với 0,9818), nhưng Q_e dự đoán bởi PSO (11,455 mg/g) lại gần Q_e thực nghiệm (11,700 mg/g) hơn so với Q_e của PFO (13,628 mg/g). Như vậy, tại 60 mg/L, hai tiêu chí R^2 và độ gần của Q_e cho kết luận không hoàn toàn đồng nhất; vì thế quá trình hấp phụ Cl^- ở nồng độ này không tuân theo một cách tuyệt đối vào một mô hình duy nhất.

Trong khoảng nồng độ Cl^- từ 70 đến 100 mg/L, giá trị hệ số xác định có khuynh hướng ngược lại, tức là phương trình PSO có R^2 cao hơn phương trình PFO. Điều này ủng hộ cho sự hấp phụ vật lý ở nồng độ Cl^- thấp (50, 60 mg/L), trong khi, quá trình hấp phụ hóa học như trao đổi ion, tạo phức bề mặt, hoặc tương tác mạnh giữa ion Cl^- và các nhóm chức/tâm FeO_x trên vật liệu là cơ chế ưu thế chiếm ưu thế ở vùng nồng độ Cl^- cao hơn từ 80 đến 100 mg/L (Simonin, 2016).

Việc thảo luận cơ chế được xem xét thêm từ điện tích bề mặt và biến thiên pH. Với pH_{PZC} khoảng 7,23 (Nguyễn Hồ Ngọc Thư và cộng sự, 2025), ở pH ban đầu 6,8–7,0 bề mặt 4,11FeO_x/AC có xu hướng mang điện tích dương nhẹ, thuận lợi cho tương tác tĩnh điện với Cl^-. Sau hấp phụ, pH tăng từ 6,8 lên 7,5 ở thí nghiệm NaCl 50 mg/L, liều lượng vật liệu 5 g/L (Nguyễn Đức Vũ Quyên, Lê Thị Hòa, và Hồ Thị Thùy Dung, 2026). Sự tăng pH này phù hợp với khả năng Cl^- thay thế nhóm –OH tại các tâm Fe–OH và giải phóng OH^-, có thể biểu diễn theo cân bằng bề mặt:

$$AC–Fe–OH + Cl^- \rightleftharpoons AC–Fe–Cl + OH^-.$$

Tuy vậy, sự khẳng định chắc chắn cơ chế vẫn chưa được chứng minh do hạn chế của nghiên cứu là không thực hiện đặc trưng FT-IR của vật liệu trước và sau hấp phụ Cl^-. Do vậy kết luận phù hợp hơn là quá trình có thể đồng thời chịu ảnh hưởng của tương tác tĩnh điện, chuyển khối/khuếch tán và khả năng trao đổi tại các tâm FeO_x.



Hình 5. Phương trình tuyến tính của mô hình động học bậc nhất (a) và bậc hai (b) mô tả hấp phụ Cl^- lên vật liệu 4,11FeO_x/AC.

Bảng 2 cho thấy khi nồng độ chloride ban đầu tăng từ 50 đến 90 mg/L, giá trị Q_e thực nghiệm tăng từ 9,945 lên 14,333 mg/g. Xu hướng này phù hợp với sự gia tăng động lực chuyển khối khi chênh lệch nồng độ giữa dung dịch và bề mặt vật liệu tăng. Tuy nhiên, tại nồng độ 100 mg/L, Q_e thực nghiệm giảm nhẹ xuống 14,040 mg/g, cùng với sự tiệm cận giá trị dung lượng cực đại từ mô hình Langmuir, kết quả này cho thấy bề mặt vật liệu có thể đã tiến gần đến trạng thái bão hòa, hoặc số vị trí hấp phụ còn trống không còn đủ để tiếp tục làm tăng dung lượng hấp phụ rõ rệt.

Từ nồng độ Cl^- ban đầu 50 đến 60 mg/L, hằng số tốc độ bậc nhất k_1 và bậc hai k_2 đều có xu hướng tăng, có thể là do ở nồng độ 60 mg/L, chênh lệch nồng độ giữa dung dịch và bề mặt vật liệu lớn hơn so với 50 mg/L, sự chênh lệch này làm tăng động lực khuếch tán của ion Cl^- từ dung dịch đến các tâm hấp phụ trên bề mặt carbon hoạt tính biến tính FeO_x. Khi số tâm hấp phụ còn đủ nhiều và chưa bị bão hòa, việc tăng nồng độ ban đầu giúp tăng tần suất va chạm giữa ion Cl^- và bề mặt vật liệu, làm quá trình hấp phụ diễn ra nhanh hơn.

Sự giảm dần của các hằng số tốc độ k_1 và k_2 khi nồng độ Cl^- ban đầu tăng từ 70 đến 100 mg/L cho thấy tốc độ hấp phụ biểu kiến của quá trình giảm ở vùng nồng độ cao, phù hợp với việc số lượng tâm hấp phụ còn trống trên bề mặt vật liệu 4,11FeO_x/AC giảm dần khi nồng độ chloride tăng và trở lực chuyển khối/khuếch tán trở nên đáng kể hơn khi bề mặt tiến gần trạng thái bão hòa, làm tăng sự cạnh tranh giữa các ion Cl^- đối với các vị trí hấp phụ. Do đó, mặc dù dung lượng hấp phụ cân bằng Q_e vẫn tăng hoặc gần như ổn định, tốc độ đạt cân bằng lại giảm, chứng tỏ bề mặt vật liệu có xu hướng tiến gần đến trạng thái bão hòa hấp phụ.

Ở vùng nồng độ 70–100 mg/L, mô hình bậc nhất dự đoán Q_e thấp hơn thực nghiệm, cho thấy mô hình này chưa phản ánh đầy đủ khả năng hấp phụ thực tế của vật liệu ở nồng độ cao. Ngược lại, mô hình bậc hai dự đoán Q_e cao hơn thực nghiệm, cho

thấy mô hình này mô tả xu hướng động học tốt hơn nhưng có xu hướng đánh giá cao dung lượng cân bằng.

Từ các kết quả trên, có thể khẳng định sự thay đổi nồng độ chloride làm thay đổi động học biểu kiến của hệ 4,11FeO_x/AC và ở vùng nồng độ cao, quá trình hấp phụ Cl^- trên vật liệu 4,11FeO_x/AC không còn là quá trình hấp phụ vật lý đơn giản. Quá trình này có thể bao gồm đồng thời khuếch tán, tương tác bề mặt, trao đổi ion và tương tác với các tâm FeO_x. Tuy nhiên, do vật liệu tiến gần đến trạng thái bão hòa, dung lượng hấp phụ thực tế thấp hơn so với giá trị dự đoán bởi mô hình bậc hai.

Bảng 2. Các tham số của phương trình động học bậc nhất và bậc hai mô tả quá trình hấp phụ Cl^- trên vật liệu 4,11FeO_x/AC

Nồng độ Cl^- ban đầu (mg/L)	Phương trình động học bậc nhất			Phương trình động học bậc hai			Q_e thực nghiệm (mg/g)
	Q_e *(mg/g)*	k_1 (1/phút)	R^2	Q_e (mg/g)	k_2 *(L/mg.phút)*	R^2	
50	10,831	0,0833	0,9993	13,723	0,0069	0,9897	9,945
60	13,628	0,0927	0,9977	11,455	0,0095	0,9818	11,700
70	11,114	0,0749	0,9942	14,571	0,0081	0,9981	12,870
80	10,668	0,0616	0,9779	15,567	0,0067	0,9958	13,748
90	11,679	0,0539	0,9926	16,450	0,0053	0,9985	14,333
100	13,196	0,0450	0,9167	16,471	0,0038	0,9921	14,040

Giới hạn của nghiên cứu là các thí nghiệm hiện tại được thực hiện trên dung dịch NaCl đơn thành phần, sự ảnh hưởng của các anion khác như sulfate, carbonate để nghiên cứu có thể hướng đến ứng dụng trong trong môi trường nước lợ hoặc nước nhiễm mặn. Bên cạnh đó, khả năng tái sử dụng vật liệu cũng đang được tập trung nghiên cứu tiếp theo, do đó, kết luận về độ bền tái sử dụng hoặc tính chọn lọc chloride trong nền nước lợ/nước mặn thực chưa được xác định. Đây là các nội dung cần được thực hiện ở giai đoạn nghiên cứu tiếp theo trước khi đánh giá khả năng ứng dụng thực tế của vật liệu.

4. KẾT LUẬN

Vật liệu carbon hoạt tính biến tính oxide sắt (4,11FeO_x/AC) đã được tổng hợp và ứng dụng để hấp phụ chloride trong dung dịch nước. Kết quả đặc trưng vật liệu cho thấy oxide sắt được phân bố trên nền carbon hoạt tính. Quá trình hấp phụ chloride phù hợp tốt với mô hình đẳng nhiệt Langmuir hơn Freundlich, với dung lượng hấp phụ cực

đại đạt 14,16 mg/g, cho thấy hấp phụ có xu hướng xảy ra theo dạng đơn lớp. Kết quả động học cho thấy ở nồng độ Cl^- thấp 50–60 mg/L, quá trình hấp phụ phù hợp hơn với mô hình động học bậc nhất biểu kiến, trong khi ở nồng độ cao 70–100 mg/L, mô hình động học bậc hai biểu kiến mô tả tốt hơn. pH_{PZC} khoảng 7,23 và sự tăng pH từ 6,8 lên 7,5 sau hấp phụ phù hợp với tương tác tĩnh điện và khả năng trao đổi Cl^- tại các tâm Fe–OH. Sự thiếu hụt nghiên cứu khả năng tái sử dụng của vật liệu và sự cạnh tranh của các anion đồng tồn tại chính là cơ sở cho các nghiên cứu tiếp theo trên nền nước thực và đánh giá độ bền vật liệu.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

[1]. González-García, P. (2018*). Activated carbon from lignocellulosic precursors: A review of the synthesis methods, characterization techniques and applications.* Renewable and Sustainable Energy Reviews, 82, 1393–1414.

[2]. Bedia, J., Peñas-Garzón, M., Gómez-Avilés, A., Rodriguez, J.J., Belver, C. (2018). *A Review on the synthesis and characterization of biomass-derived carbons for adsorption of emerging contaminants from water.* C—Journal of Carbon Research, 4(4), 63.

[3]. Kaźmierczak, J., Nowicki, P., Pietrzak, R. (2013). *Sorption properties of activated carbons obtained from corn cobs by chemical and physical activation.* Adsorption, 19, 273–281.

[4]. Oliveira, L.C.A., Rios, R.V.R.A., Fabris, J.D., Garg, V.K., Sapag, K., Lago, R.M. (2002). *Activated carbon/iron oxide magnetic composites for the adsorption of contaminants in water.* Carbon, 40(12), 2177–2183.

[5]. Tarannum, S., Abir, M.N., Mita, A.F., Banik, B.K., Hoque, M.A., & Kabir, M.I. (2024). *Adsorption of chloride ions from aqueous solution using activated carbon obtained by chemical activation of jute stick*. In Proceedings of the 6th International Conference on Advances in Civil Engineering, Lecture Notes in Civil Engineering, 368, 25–34.

[6]. Tadess, N.D., Gezahegn, G.Y., & Abrha, Y.H. (2025). *Adsorption of TDS and chloride ions from partially treated tannery wastewater using activated coffee husk*. Discover Materials, 5, 8.

[7]. Nguyễn Đức Vũ Quyên, Trần Ngọc Tuyền, Đinh Quang Khiếu, Đặng Xuân Tín, Bùi Thị Hoàng Diễm, Nguyễn Thị Ái Nhung, Nguyễn Thị Thanh Hải, Đặng Thị Ngọc Hoa, Hồ Thị Thùy Dung. (2024). *Tổng hợp carbon hoạt tính từ phế thải nông nghiệp và ứng dụng hấp phụ hiệu quả kháng sinh ciprofloxacin trong dung dịch nước*. Tạp chí Phát triển Khoa học và Công nghệ – Natural Sciences, 7(51), 104-116.

[8]. Nguyễn Đức Vũ Quyên, Lê Thị Hòa, Hồ Thị Thùy Dung. (2026). *Ảnh hưởng của điều kiện biến tính bề mặt carbon hoạt tính bằng oxide sắt đến đặc trưng và khả năng hấp phụ chloride trong dung dịch nước của vật liệu biến tính*. Tạp chí KH&CN Trường Đại học Khoa học, Đại học huế, 33(2), 13-24.

[9]. Ishaq, M., Chhipa, R.C., Sharma, A., Ali, G. (2025). *Evaluation of adsorption isotherms and kinetics of chloride ion in water using biochar derived from locally available agro-waste*. Environmental Research and Technology, 8(2), 288–296.

[10]. Simonin, J.P. (2016). *On the comparison of pseudo-first order and pseudo-second order rate laws in the modeling of adsorption kinetics.* Chemical Engineering Journal, 300, 254–263.

[11]. Nguyễn Hồ Ngọc Thư, Phan Thị Uyên Phương, Nguyễn Hòa Hưng, Bùi Thị Hoàng Diễm, Nguyễn Đức Vũ Quyên. (2025). *Biến tính bề mặt vật liệu carbon hoạt tính tổng hợp từ lõi ngô bằng oxide sắt và ứng dụng giảm độ mặn của nước biển, nước lợ*. Tạp chí KH&CN Trường Đại học Khoa học, Đại học huế, 31(2), 15-28.

ADSORPTION ISOTHERM AND KINETIC STUDIES OF CHLORIDE REMOVAL FROM AQUEOUS SOLUTION USING MODIFIED ACTIVATED CARBON

Nguyen Duc Vu Quyen*, Ho Van Minh Hai, Bui Thi Hoang Diem, Tran Ngoc Tuyen, Dinh Quang Khieu, Nguyen Thi Ai Nhung, Nguyen Thi Thanh Hai, Le Thi Hoa, Nguyen Thi Doan Duyen, Le Thi Bich Hoa, Nguyen Don Thuan, Tran Ngoc Anh Vu

Faculty of Chemistry, University of Sciences, Hue University

*Email: ndvquyen@hueuni.edu.vn

ABSTRACT

In this study, activated carbon synthesized from corncobs was modified with iron oxide and used for the adsorption of chloride from aqueous solution. The modified material was characterized using modern physicochemical analytical techniques, including X-ray diffraction (XRD), Raman spectroscopy, scanning electron microscopy (SEM), transmission electron microscopy (TEM), and nitrogen adsorption–desorption analysis (BET). The chloride adsorption capacity of the material was investigated as a function of the initial chloride concentration and contact time. The adsorption isotherm data were better described by the Langmuir model than by the Freundlich model, with a maximum adsorption capacity of about 14.16 mg/g. The time required to reach chloride adsorption equilibrium increased as the initial chloride concentration varied from 50 to 100 mg/L. At chloride concentrations of 50 and 60 mg/L, the chloride adsorption process fitted the pseudo-first-order kinetic model, whereas at chloride concentrations from 70 to 100 mg/L, the pseudo-second-order kinetic model was more applicable. The pH_{PZC} of approximately 7.23 and the increase in solution pH from 6.8 to 7.5 after adsorption are consistent with electrostatic attraction and possible Cl^- exchange at Fe–OH sites; however, these observations alone are insufficient to establish ion exchange as the unique adsorption mechanism.

Keywords*:* activated carbon, iron oxide, adsorption isothermal, chloride adsorption kinetic, corn-cob, FeO_x/AC.