

VẬT LIỆU CARBON ĐƯỢC TỔNG HỢP TỪ GỖ CÂY DÓ BẦU (*AQUILARIA CRASSNA*) VÀ HOẠT TÍNH HẤP PHỤ CHẤT MÀU METHYLENE BLUE

Trần Thanh Minh*, Nguyễn Đăng Đại,
Lê Thùy Trang, Lê Trung Hiếu, Trần Thành Văn

Trường Đại học Khoa học, Đại học Huế

*Email: tranthanhminh@hueuni.edu.vn

Ngày nhận bài: 26/3/2025; ngày hoàn thành phản biện: 29/3/2025; ngày duyệt đăng: 30/3/2025

TÓM TẮT

Chúng tôi đã tiến hành tổng hợp vật liệu carbon từ gỗ cây dó bầu bằng hai phương pháp: nhiệt phân và thủy nhiệt. Các vật liệu được đặc trưng bằng các phương pháp SEM (Scanning Electron Microscopy), XRD (X-ray Powder Diffraction), đẳng nhiệt hấp phụ/giải hấp phụ nitrogen và ứng dụng vật liệu làm chất hấp phụ chất màu methylene blue (MB). Kết quả nghiên cứu cho thấy các mẫu vật liệu tổng hợp theo hai phương pháp nhiệt phân hoặc thủy nhiệt có cấu trúc tương tự nhau, nhưng có sự khác nhau về hình thái. Vật liệu tổng hợp bằng phương pháp nhiệt phân có hình thái không thay đổi nhiều so với nguyên liệu ban đầu, nhưng có hoạt tính hấp phụ MB cao hơn mẫu vật liệu thủy nhiệt và cao hơn mẫu nguyên liệu đầu. Động học hấp phụ MB lên vật liệu nhiệt phân cũng đã được nghiên cứu và cho thấy quá trình hấp phụ là phức tạp, thiên về mô hình hấp phụ bậc hai nhiều hơn.

Từ khóa: dó bầu, vật liệu carbon, hấp phụ, methylene blue.

1. MỞ ĐẦU

Các vấn đề ô nhiễm môi trường như ô nhiễm đất, nước, không khí ngày càng được nhiều quốc gia trên thế giới quan tâm giải quyết. Việt Nam là một nước đang phát triển, với sự phát triển của các ngành công nghiệp mũi nhọn như dệt nhuộm, in ấn, thuộc da,... đã làm gia tăng lượng thuốc nhuộm thải ra môi trường, tác động tiêu cực cho hệ sinh thái và sức khỏe con người, có thể gây ra nhiều bệnh nguy hiểm trong đó có bệnh ung thư ở người [1]. Methylene blue (MB) là một loại thuốc nhuộm được sử dụng khá phổ biến trong công nghiệp dệt nhuộm, có thể gây ra các bệnh về mắt, da, đường hô hấp,... Nồng độ MB trong nước quá cao sẽ cản trở sự hấp thụ oxygen từ không khí vào

nước, do đó cản trở sự sinh trưởng của các động thực vật, gây ra hiện tượng xáo trộn hoạt động của vi sinh vật và ảnh hưởng đến quá trình tự làm sạch của nước [2].

Có nhiều phương pháp hóa lý khác nhau để xử lý phẩm nhuộm trong nước thải như sử dụng màng lọc, thẩm thấu, chất hấp phụ, xúc tác quang hóa, phản ứng Fenton, phân hủy sinh học,... tuy nhiên, một trong những giải pháp thường được đề cập đến là sử dụng chất hấp phụ thân thiện, rẻ tiền để hấp phụ thuốc nhuộm ra khỏi dung dịch.

Vật liệu carbon là một loại vật liệu được nhiều nhà khoa học trên thế giới và Việt Nam quan tâm nghiên cứu những những thập niên gần đây. Từ các hóa chất cơ bản hay các nguồn sinh khối tự nhiên đều có thể dễ dàng tổng hợp ra các loại vật liệu carbon khác nhau như graphene, carbon nano types, carbon dots, than sinh khối,... với giá thành rẻ. Bên cạnh đó, các vật liệu carbon có những tính chất lý hóa rất đặc biệt nên đã được ứng dụng vào nhiều lĩnh vực của đời sống như làm chất phát quang, diode phát quang, pin mặt trời, cảm biến quang học, chất hấp phụ, chất xúc tác quang, cảm biến điện hóa (chất biến tính điện cực để phân tích các chất hóa học), cảm biến sinh học, giám sát sinh học, vận chuyển thuốc,... [3].

Cây dó bầu hiện đang được trồng nhiều ở Việt Nam để khai thác trầm hương từ thân cây và tách lấy tinh dầu trầm hương [4], [5], phần dất gỗ của cây dó bầu không có trầm được sử dụng chủ yếu làm bột sản xuất hương cây hoặc vất bỏ. Chúng tôi nhận thấy rằng gỗ cây dó bầu là nguồn phế phẩm, phụ phẩm chưa từng được nghiên cứu làm tiền chất để tổng hợp vật liệu carbon. Vì vậy, trong nghiên cứu này, chúng tôi tiến hành tổng hợp vật liệu carbon từ dất gỗ cây dó bầu bằng 2 phương pháp phổ biến là nhiệt phân và thủy nhiệt, đồng thời nghiên cứu hoạt tính hấp phụ chất màu MB.

2. THỰC NGHIỆM

2.1. Tổng hợp vật liệu carbon

Dất gỗ cây dó bầu (*Aquilaria crassna*) trồng tại tỉnh Quảng Bình được thu mua, phơi tự nhiên và sấy khô ở 60 °C, sau đó xay thành bột mịn. Bột được rây với lưới rây có kích thước lỗ 0,15 mm để loại các hạt lớn, phần bột thu được sử dụng để tổng hợp vật liệu, ký hiệu là BT.

Vật liệu carbon (VLCB) được tổng hợp bằng hai phương pháp chính là thủy nhiệt và nhiệt phân, và kết hợp cả hai phương pháp.

+ Phương pháp nhiệt phân: nung nguyên liệu BT ban đầu trong thiết bị lò nung Vulcan 3-550-PD ở 250 °C trong 12 giờ, tốc độ gia nhiệt là 5 °C/phút. Vật liệu được ký hiệu là BT-N.

Ngoài ra, mẫu BT-N được rửa thêm bằng acid 40 mL HCL 0,1M trong 30 phút. Sau đó đem mẫu đi rửa bằng nước cất 2 lần rồi đem sấy ta thu được mẫu BT-N-RA.

+ Phương pháp thủy nhiệt: cho 3 g BT và 100 mL HCl 0,3M vào bình Teflon, rồi cho vào bộ dụng cụ thủy nhiệt và đặt vào tủ sấy ở nhiệt độ 180 °C trong 24 giờ. Tiến hành lọc, rửa vật liệu bằng 150 mL nước cất / 2 lần (khuấy từ hỗn hợp 15 phút, lọc), sấy khô qua đêm ở 110 °C (khoảng 15 giờ). Vật liệu được kí hiệu là BT-TN.

+ VLCB được tổng hợp bằng cách kết hợp hai phương pháp là nhiệt phân sau đó thủy nhiệt và thủy nhiệt sau đó nhiệt phân được kí hiệu lần lượt là BT-N-TN và BT-TN-N.

Cấu trúc tinh thể của các vật liệu được xác định bằng phương pháp nhiễu xạ tia X (XRD) trên máy D8 Advance Bruker (Đức) dùng bức xạ đơn sắc của Cu-K ($\lambda = 1,5406 \text{ \AA}$). Hình thái của các mẫu vật liệu được xác định bằng phương pháp hiển vi điện tử quét (SEM) trên máy Tescan Vega3. Diện tích bề mặt và độ xốp của các mẫu vật liệu được xác định bằng phương pháp hấp phụ/giải hấp phụ nitrogen theo mô hình Brunauer - Emmett - Teller (BET) trên máy Micromeritics TriStar 3000 V6.07 A.

2.2. Khảo sát hoạt tính hấp phụ methylene blue (MB) theo thời gian và nồng độ

Khả năng hấp phụ MB theo thời gian của các mẫu vật liệu được tiến hành khảo sát như sau: Cho 20 mg vật liệu (chất xúc tác) vào cốc 500 mL chứa 200 mL dung dịch MB (10 ppm), 5 mL huyền phù được rút ra ở khoảng thời gian 1, 2, 3, 6, 7, 8, 24, 25 giờ và được ly tâm thời gian 15 phút, tốc độ 6000 vòng/phút để loại bỏ chất xúc tác rắn. Nồng độ MB trong chất lỏng thu được phân tích bằng phương pháp UV-VIS trên máy quang phổ UV-Vis V-630 Jasco (Mỹ) tại bước sóng 664 nm. Dựa vào giá trị hấp thụ đo được và phương trình đường chuẩn biểu diễn mối liên hệ giữa độ hấp phụ (A) và nồng độ C của MB xây dựng trong khoảng nồng độ 0,5 - 10 ppm: $A = 0,1802C - 0.0518$ với $R^2 = 0,9994$, tính được nồng độ MB tại thời điểm tương ứng.

- Hiệu suất loại bỏ MB được tính theo công thức:

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

Trong đó, H là hiệu suất hấp phụ MB, C_0 và C_t là nồng độ ban đầu và tại thời gian t (mg/L).

- Dung lượng hấp phụ là lượng MB bị hấp phụ (mg) trong mỗi gram vật liệu được tính theo công thức:

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

Trong đó, q_t là hàm lượng MB bị hấp phụ (mg/g) ở thời gian t , C_0 và C_t là nồng độ ban đầu và nồng độ ở thời gian t (mg/L) tương ứng. V là thể tích dung dịch (L) và m là khối lượng (g) của vật liệu hấp phụ được sử dụng.

Khả năng hấp phụ MB ở các nồng độ đầu khác nhau được tiến hành khảo sát như sau: Cho 20 mg vật liệu (chất xúc tác) vào các cốc 500 mL chứa 200 mL dung dịch

MB (5, 10, 15, 20 ppm), 5 mL huyền phù được rút ra sau 24 giờ và tiến hành xác định nồng độ MB trong chất lỏng thu được tương tự như khảo sát thời gian.

2.3. Nghiên cứu động học hấp phụ hấp phụ methylene blue (MB)

Tiến hành hấp phụ MB ở các nồng độ khác nhau (5, 10, 20 mg/L) theo thời gian. Sử dụng các mô hình động học bậc 1 và bậc 2 [6] và phương pháp hồi quy phi tuyến để hồi quy các số liệu thực nghiệm q_t (dung lượng hấp phụ ở các thời gian t) với q_{mh} (dung lượng hấp phụ theo mô hình bậc nhất và bậc 2 ứng với các thời gian t) sao cho sai số giữa chúng là nhỏ nhất, sẽ tính toán được giá trị các tham số R^2 , k , q_e cho các mô hình. Sự trùng khớp giữa số liệu thực nghiệm với mô hình động học nào đó sẽ cung cấp những thông tin về mô hình động học hấp phụ của quá trình này.

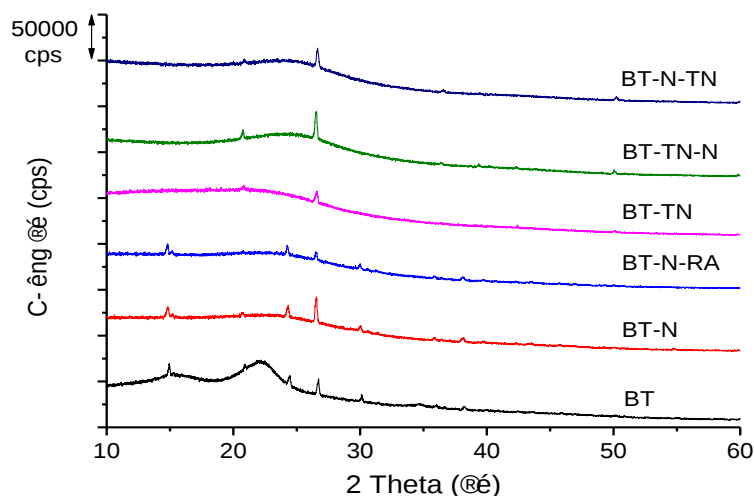
$$\text{- Bậc 1: } q(t) = q_e (1 - e^{-k_1 t})$$

$$\text{- Bậc 2: } q(t) = \frac{q_e^2 k_2 t}{1 + q_e k_2 t}$$

3. KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN

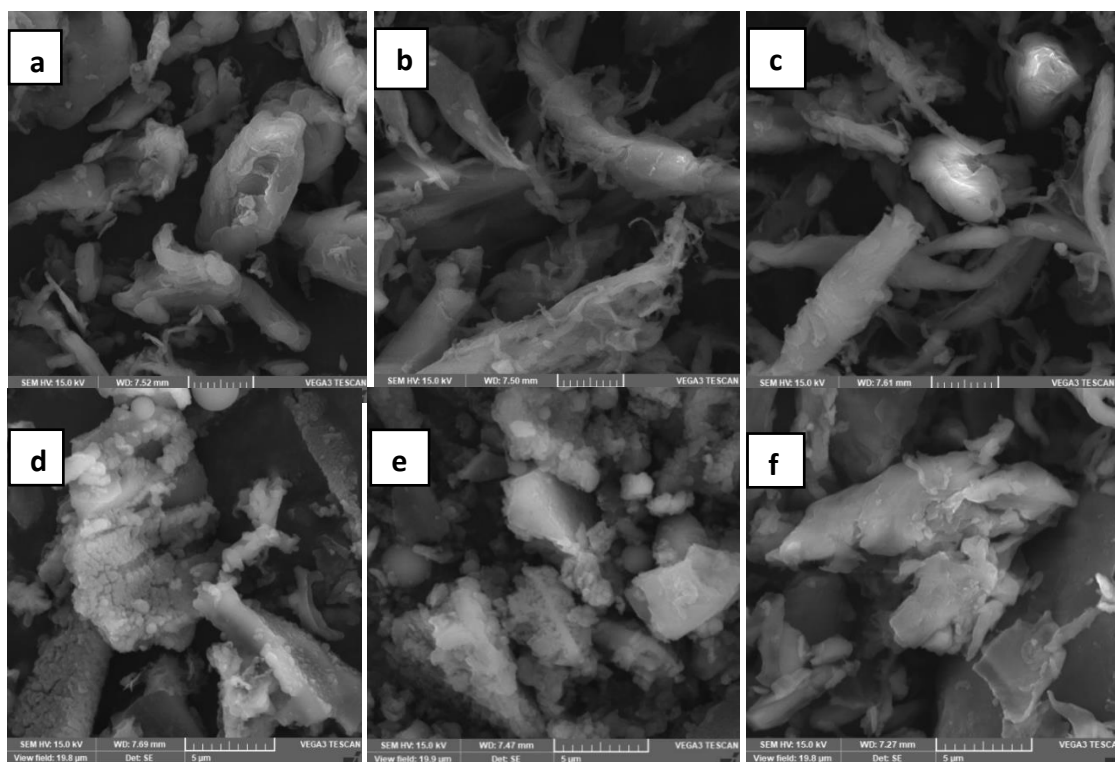
3.1. Tổng hợp vật liệu carbon

Giản đồ XRD các mẫu vật liệu tổng hợp được trình bày ở hình 1. Kết quả cho thấy bột nguyên liệu ban đầu có hình dạng giống giản đồ XRD của cellulose ở công trình nghiên cứu của nhóm tác giả Hui [7]. Điều này cho thấy bột nguyên liệu đầu (dát gỗ cây dó bầu) có chứa thành phần chính là cellulose. Các tổ hợp peak 20,7; 21,3; 26,7 cũng tương tự tổ hợp peak 20,1; 23,9; 26,4 đặc trưng cho graphene oxide không được kết nối hoàn toàn với oxygen [8]. XRD của các mẫu vật liệu thu được sau khi nhiệt phân hoặc thủy nhiệt có peak rộng từ 20-30 độ đặc trưng cho các tấm nano graphene [8] (thể hiện rõ nhất ở mẫu BT-TN-N và BT-N-TN) và đa số vẫn có các đỉnh đặc trưng cho graphene oxide không được kết nối hoàn toàn với oxygen [8]. Các tấm graphite có thể được hình thành từ thành phần cellulose và lignin thường có mặt trong gỗ cây. Theo tài liệu của nhóm tác giả Siburian (2018) [8], peak 26,7° đặc trưng cho carbon graphite. Ngoài ra vùng peak 26,7° và peak 20,7° cũng có thể là peak của SiO₂ theo thư viện phổ.



Hình 1. Giảm đồ XRD của nguyên liệu đầu và các mẫu vật liệu sau khi nhiệt phân và thủy nhiệt.

Ảnh SEM ở hình 2 cho thấy nguyên liệu ban đầu (BT) có hình dạng không cụ thể với kích thước vài μm và bề mặt nhẵn, các mẫu vật liệu tổng hợp bằng phương pháp nhiệt phân (BT-N, BT-N-RA) có hình dạng, kích thước và bề mặt không thay đổi nhiều so với nguyên liệu ban đầu. Trong gỗ tự nhiên, ngoài thành phần chính là cellulose, thường có lignin và hemicellulose. Độ bền nhiệt của lignin và hemicellulose kém hơn so với cellulose (cellulose bị phân hủy ở nhiệt độ từ $300\text{ }^{\circ}\text{C}$ trở lên) [9], nên khi nung ở $250\text{ }^{\circ}\text{C}$, chủ yếu là lignin và hemicellulose và một phần cellulose bị phân hủy, nên hình dạng của nguyên liệu ban đầu ít thay đổi. Trong khi đó mẫu vật liệu BT-TN tổng hợp bằng phương pháp thủy nhiệt với môi trường acid đã có sự thay đổi hình dạng so với nguyên liệu và bề mặt bị sần sùi, gồm nhiều hạt nhỏ có kích thước khoảng 500 nm kết dính với nhau, điều này có thể được giải thích do tác dụng của nhiệt độ cao, trong môi trường acid, mạch polymer của cellulose bị phân cắt thành những đoạn mạch ngắn và sau đó bị phân hủy bởi nhiệt độ cao nên tạo ra được các hạt kích thước nhỏ.



Hình 2. Ảnh SEM của nguyên liệu BT (a), các mẫu vật liệu tổng hợp bằng phương pháp nhiệt phân BT-N (b), nhiệt phân có rửa acid BT-N-RA (c), thủy nhiệt với môi trường acid BT-TN (d), thủy nhiệt rồi nung BT-TN-N (e) và nung rồi thủy nhiệt BT-N-TN (f).

Mẫu vật liệu BT-TN-N do thực hiện quá trình thủy nhiệt trước nên hình dạng và kích thước cũng tương tự mẫu BT-TN, trong khi đó mẫu BT-N-TN do tiến hành quá trình nung trước, nguyên liệu đã bị phân hủy không còn cấu trúc ban đầu của cellulose nên khi tiến hành tiếp giai đoạn thủy nhiệt quá trình cắt mạch hầu như không xảy ra nên hình dạng và kích thước lại tương tự với các mẫu nung và giống nguyên liệu ban đầu.

Bảng 1. Tỷ lệ phần trăm khối lượng của các mẫu vật liệu tổng hợp được so với nguyên liệu

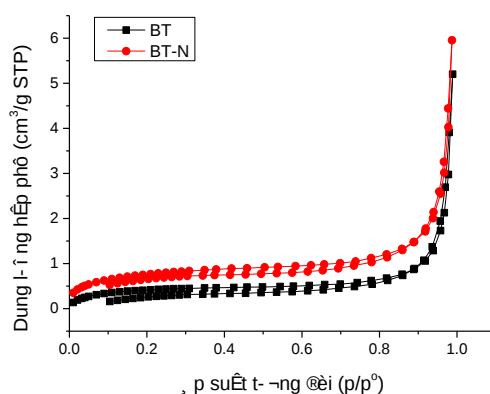
STT	Kí hiệu mẫu	Khối lượng ban đầu (g)	Khối lượng sau khi tổng hợp (g)	Tỷ lệ phần trăm (%)
1	BT-N	3	1,4496	48,3
2	BT-N-RA	3	1,2360	41,2
3	BT-TN	3	0,9714	31,5
4	BT-TN-N	3	0,7812	26,0
5	BT-N-TN	3	0,9360	31,2

Kết quả bảng 1 cho thấy tỷ lệ phần trăm khối lượng của các mẫu vật liệu tổng hợp được theo các phương pháp khác nhau so với nguyên liệu đều dưới 50%, phương pháp nhiệt phân cho tỷ lệ phần trăm là 48,3%, cao hơn so với phương pháp thủy nhiệt là 31,5%. Tỷ lệ phần trăm cũng cho thấy sự phù hợp với kết quả ảnh SEM. Phương pháp thủy nhiệt nhờ quá trình thủy phân cellulose trong môi trường acid thành các đoạn mạch ngắn nên giúp quá trình phân hủy diễn ra thuận lợi hơn, vì vậy sự mất khối lượng sẽ nhiều hơn.

Bảng 2. Khả năng loại bỏ MB của các mẫu vật liệu tổng hợp

STT	Kí hiệu mẫu	Thời gian (giờ)	Nồng độ MB (ppm)	Hiệu suất hấp phụ H (%)	Dung lượng hấp phụ q (mg/g)
1	BT	24	9,84	37,45	36,86
2	BT-N	24	10,94	74,30	81,26
3	BT-N-RA	24	8,07	75,28	60,75
4	BT-TN	24	9,84	27,10	26,68
5	BT-TN-N	24	8,97	40,05	35,94
6	BT-N-TN	24	9,84	35,76	35,20

Kết quả bảng 2 cho thấy hiệu suất và dung lượng hấp phụ MB của mẫu BT-N và BT-N-RA cao hơn mẫu nguyên liệu BT, trong khi đó các mẫu vật liệu có sử dụng phương pháp thủy nhiệt để tổng hợp cho hiệu quả hấp phụ lại thấp hơn (dù hình dạng sản phẩm có những thay đổi so với nguyên liệu ban đầu) và thực tế quá trình hấp phụ của các mẫu BT-TN, BT-TN-N và BT-N-TN đã đạt cân bằng tương ứng ở các thời gian 2 giờ, 5 giờ và 1 giờ. Như vậy, mẫu BT-N là mẫu vật liệu cho hiệu suất và dung lượng hấp phụ cao nhất, lần lượt là 74,30% và 81,26 mg/g sau 24 giờ, và phương pháp tổng hợp cũng đơn giản nhất nên chúng tôi chọn mẫu vật liệu này để tiến hành nghiên cứu khả năng hấp phụ chất màu MB.



Hình 3. Đẳng nhiệt hấp phụ và khử hấp phụ N_2 của nguyên liệu BT và vật liệu tổng hợp BT-N.

Hình 3 cho thấy mẫu BT-N và nguyên liệu BT đều có đường đẳng nhiệt hấp phụ và khử hấp phụ thuộc kiểu II, là vật liệu mao quản có mao quản lớn $d > 50$ nm. Và diện tích bề mặt riêng S_{BET} của BT-N và BT lần lượt là 2,79 và 1,55 m²/g. Sau khi nhiệt phân nguyên liệu thì vật liệu BT-N thu được vẫn giữ được cấu trúc ban đầu của nguyên liệu, và sự phân hủy một số thành phần trong nguyên liệu cũng đã làm tăng diện tích bề mặt riêng so với nguyên liệu ban đầu, nhờ vậy mà khả năng hấp phụ MB của vật liệu BT-N cũng tăng lên so với nguyên liệu BT.

3.2. Nghiên cứu khả năng hấp phụ MB của vật liệu tổng hợp BT-N

3.2.1. Ảnh hưởng của thời gian đến khả năng hấp phụ

Sự biến đổi về hiệu suất và dung lượng hấp phụ theo thời gian ứng với nồng độ đầu của MB 10 mg/L trình bày ở bảng 5 cho thấy hiệu suất hấp phụ và dung lượng hấp phụ có khuynh hướng tăng dần theo thời gian hấp phụ nhưng tốc độ hấp phụ không đồng đều và có sự thay đổi tùy thời điểm. Vật liệu hấp phụ tốt MB giờ đầu tiên và tăng chậm từ giờ thứ 2 đến giờ 6, hiệu suất chỉ đạt 44,2% sau 6 giờ hấp phụ. Sau đó, vật liệu lại hấp phụ nhanh ở giờ thứ 7 và tăng chậm ở những giờ tiếp theo. Sau 26 giờ hấp phụ, hiệu suất hấp phụ MB đạt 79,71% và dung lượng hấp phụ là 87,17 mg/g và cho thấy quá trình hấp phụ cũng gần đạt trạng thái cân bằng. Kết quả này cũng phù hợp với quá trình hấp phụ thông thường của vật liệu, thường xảy ra 2 pha: hấp phụ bề mặt (hấp phụ mạnh) ở giai đoạn đầu và hấp phụ mao dẫn (hấp phụ nhẹ) ở giai đoạn sau. Sau 24 giờ, vật liệu có hiện tượng giải hấp phụ. Thời gian 24 giờ được chọn để khảo sát ảnh hưởng của nồng độ đến khả năng hấp phụ.

3.2.2. Ảnh hưởng của nồng độ đến khả năng hấp phụ

Bảng 3. Hiệu suất và dung lượng hấp phụ MB ở các nồng độ khác nhau sau 24 giờ của vật liệu

Nồng độ (mg/L)	H (%)	q (mg/g)
5	95,81	55,68
10	74,30	81,26
15	60,96	83,87
20	46,77	94,01

Kết quả ở bảng 3 cho thấy trong khoảng nồng độ MB khảo sát từ 5 đến 20 mg/L, khi nồng độ tăng thì dung lượng hấp phụ cũng tăng lên (từ 55,68 đến 94,01 mg/g) nhưng hiệu suất đồng thời lại giảm (từ 95,81% còn 46,77%). Cùng 1 lượng chất hấp phụ, khi nồng độ của MB tăng thì sự khuếch tán MB vào vật liệu sẽ tăng nên dung lượng hấp phụ sẽ tăng (và nhanh đạt trạng thái bão hòa), tuy nhiên tỷ lệ MB bị hấp phụ so với MB có trong dung dịch lại không lớn bằng trường hợp nồng độ loãng (do hạn chế bởi số tâm hấp phụ), nên hiệu suất hấp phụ lại giảm.

Bảng 4 cho thấy với thời gian hấp phụ là 25 giờ thì khả năng hấp phụ MB trong dung dịch nước của vật liệu tổng hợp được từ gỗ cây dó bầu trong công trình này là khá tốt (dung lượng hấp phụ 97,1 mg/g) so với một số vật liệu đã công bố trước đây. Do đó, vật liệu có thể cần thêm những nghiên cứu khác trong vấn đề hấp phụ để được đánh giá toàn diện hơn.

Bảng 4. So sánh số liệu hấp phụ MB với các nghiên cứu khác

STT	Vật liệu hấp phụ (VLHP)	q (mg/g)	pH	Thời gian (giờ)	Tài liệu tham khảo
1	Bột vỏ ngô	3,963	7	2	[2]
2	Bột lõi ngô	5,924	7	2	[2]
3	Than hoạt tính có nguồn gốc từ mía và biến tính bằng zeolite	51	7	1	[10]
4	Vật liệu màng graphene oxide/polyvinyl alcohol	3,5	7	1,5	[11]
5	Vật liệu composite tổng hợp từ phụ phẩm bã mía	4,53	8	24	[12]
6	Than hoạt tính tổng hợp từ cây Rumex abyssinicus	384	9	1	[13]
7	Vật liệu điều chế từ mụn dừa	166,36	8	0.667	[14]
8	Vật liệu từ gỗ cây dó bầu	97,1	7	25	Tài liệu này

3.3. Nghiên cứu động học hấp phụ MB

Bảng 5. Hiệu suất và dung lượng hấp phụ theo thời gian ở các nồng độ MB khác nhau

Thời gian (giờ)	Nồng độ MB (mg/L)					
	5		10		20	
	H (%)	q (mg/g)	H (%)	q (mg/g)	H (%)	q (mg/g)
1	42.50	24.70	34.15	37.35	20.74	41.68
2	45.82	26.63	37.36	40.86	21.15	42.51
3	60.45	35.13	40.03	43.78	26.97	54.21
6	67.05	38.97	44.20	48.34	29.13	58.56
7	73.58	42.76	64.56	70.60	33.57	67.47
8	77.45	45.01	67.36	73.67	33.04	66.40

24	93.91	54.57	74.30	81.26	46.77	94.01
25	95.63	55.58	71.88	78.61	48.30	97.08
26	95.81	55.68	79.71	87.18	47.91	96.31

Sử dụng phương pháp hồi quy phi tuyến để hồi quy các số liệu thực nghiệm q_t (dung lượng hấp phụ ở các thời gian t) ở bảng 5 với q_{mh} , kết quả các tham số thu được theo các mô hình được trình bày ở bảng 6.

Bảng 6. Các tham số động học của các mô hình bậc nhất và bậc hai

Nồng độ	5 mg/L ($q_{e,tn} = 55,7$ mg/g)			10 mg/L ($q_{e,tn} = 87,2$ mg/g)			20 mg/L ($q_{e,tn} = 97,1$ mg/g)		
	R^2	k_1	q_e	R^2	k_1	q_e	R^2	k_1	q_e
Bậc 1	0,820	0,334	52,41	0,833	0,287	80,21	0,752	0,236	91,92
Bậc 2	0,939	0,008	58,33	0,888	0,0047	89,07	0,872	0,0033	102,50

Ở các nồng độ khác nhau, mô hình tương tác hấp phụ hóa học theo cả 2 mô hình đều không thực sự có độ tin cậy cao ($R^2 < 0,99$), tuy nhiên mô hình bậc hai cho mối quan hệ tuyến tính với hệ số tin cậy cao hơn bậc nhất, đồng thời dung lượng hấp phụ cân bằng q_e tính toán từ phương trình động học bậc hai gần với $q_{e,tn}$ hơn mô hình bậc nhất, nên có thể kết luận quá trình hấp phụ MB lên vật liệu tổng hợp BT-N là một quá trình phức tạp, khuynh hướng thiên về mô hình hấp phụ bậc hai nhiều hơn.

4. KẾT LUẬN

Từ phế phụ phẩm là dất gỗ cây dó bầu, bằng phương pháp nhiệt phân và thủy nhiệt với môi trường acid, đã tổng hợp vật liệu carbon có hình dạng khối và kích thước vài μm tương tự với sinh khối ban đầu, có chứa cấu trúc tấm nano graphene và một phần ở dạng graphene oxide. Vật liệu tổng hợp bằng phương pháp thủy nhiệt với môi trường acid có bề mặt sần sùi gồm các hạt kích thước khoảng 500 nm kết dính với nhau. Mẫu vật liệu carbon tổng hợp bằng phương pháp nhiệt phân là vật liệu mao quản có mao quản lớn $d > 50$ nm, có diện tích bề mặt riêng $S_{\text{BET}} = 2,79$ m²/g, có khả năng hấp phụ MB tốt hơn so với mẫu nguyên liệu mẫu vật liệu tổng hợp thủy nhiệt. Dung lượng hấp phụ cân bằng đạt khoảng 97,1 mg/g sau 25 giờ khi nồng độ đầu của MB là 20 mg/L. Quá trình hấp phụ MB lên vật liệu tổng hợp bằng phương pháp nhiệt phân là một quá trình phức tạp, trong đó sự tương tác hấp phụ thiên về mô hình hấp phụ bậc hai nhiều hơn.

LỜI CẢM ƠN

Nghiên cứu này được tài trợ bởi đề tài nghiên cứu khoa học sinh viên Trường Đại học Khoa học có mã số ĐHKH2024B-13 và đề tài khoa học và công nghệ cấp Đại học Huế có mã số DHH2023-01-211.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

- [1]. M. M. Hassan, and C. M. Carr (2018). A critical review on recent advancements of the removal of reactive dyes from dyehouse effluent by ion-exchange adsorbents, *Chemosphere*.
- [2]. Dương Thị Bích Ngọc, Nguyễn Thị Mai Lương, Nguyễn Thị Thành (2013). Nghiên cứu khả năng hấp phụ thuốc nhuộm Methylen xanh của vật liệu hấp phụ chế tạo từ lõi ngô và vỏ ngô, *Tạp chí Khoa học và Công nghệ Lâm nghiệp* (2), tr. 077-081.
- [3]. M. J. Molaei (2019). A review on nanostructured carbon quantum dots and their applications in biotechnology, sensors, and chemiluminescence, *Talanta*, Vol. 196, pp. 456-478.
- [4]. Nguyễn Thị Thùy Trang (2007). Khảo sát thành phần hóa học thân cây dó bầu *Aquilaria crassna* Pierre., Luận văn Thạc sĩ Hóa học, Trường đại học Khoa học tự nhiên, TP. Hồ Chí Minh.
- [5]. A. Lata (2007). Investigation of seed longevity and viability and cutting propagation for *Aquilaria crassna*, *Literature Review, Postgraduate Diploma of Research Methods, James Cook University, Cairns*.
- [6]. E. D. Revellame, D. L. Fortela, W. Sharp, R. Hernandez, and M. E. Zappi (2020). Adsorption kinetic modeling using pseudo-first order and pseudo-second order rate laws: A review, *Cleaner Engineering and Technology*, Vol. 1, pp. 100032.
- [7]. H. Zhang, Y. Xu, Y. Li, Z. Lu, S. Cao, M. Fan, L. Huang, and L. Chen (2017). Facile cellulose dissolution and characterization in the newly synthesized 1, 3-diallyl-2-ethylimidazolium acetate ionic liquid, *Polymers*, Vol. 9 (10), pp. 526.
- [8]. H. S. Rikson Siburian, Crystina Simanjuntak (2018). *New Route to Synthesize of Graphene Nano Sheets*, pp. 183.
- [9]. A. Hornung, F. Stenzel, and J. Grunwald (2021). Biochar — just a black matter is not enough, *Biomass Conversion and Biorefinery*, pp. 1-12.
- [10]. F. Mohamed, M. Shaban, S. K. Zaki, M. S. Abd-Elsamie, R. Sayed, M. Zayed, N. Khalid, S. Saad, S. Omar, and A. M. Ahmed (2022). Activated carbon derived from sugarcane and modified with natural zeolite for efficient adsorption of methylene blue dye: experimentally and theoretically approaches, *Scientific Reports*, Vol. 12 (1), pp. 18031.
- [11]. Lê Diệu Thư, Trần Vĩnh Hoàng (2021). Khảo sát khả năng hấp phụ xanh metylen của vật liệu màng graphen oxit/polyvinyl alcohol, *JST: Engineering and Technology for Sustainable Development*, Vol. 31 (1), pp. 028-032.
- [12]. Lương Huỳnh Vũ Thanh, Hồ Hữu Lợi, Lê Phước Pha, Đặng Huỳnh Giao, Cao Lưu Ngọc Hạnh (2023). Đánh giá khả năng hấp phụ methylene blue trong nước của vật liệu composite tổng hợp từ phụ phẩm bã mía, *Tạp chí Khoa học Trường Đại học Cần Thơ*, Tập 59, Tr. 109-118.

- [13]. J. Fito, M. Abewaa, A. Mengistu, K. Angassa, A. D. Ambaye, W. Moyo, and T. J. S. R. Nkambule (2023). Adsorption of methylene blue from textile industrial wastewater using activated carbon developed from *Rumex abyssinicus* plant, Vol. 13 (1), pp. 5427.
- [14]. Lương Huỳnh Vũ Thanh, Cao Lưu Ngọc Hạnh, Đặng Huỳnh Giao, Trần Thị Bích Quyên, Phạm Thị Hồng Quyên (2022). Đánh giá khả năng loại bỏ methylene blue của vật liệu hấp phụ được điều chế từ mụn dừa bằng phương pháp Hummers cải tiến, *Tạp chí Khoa học Đại học Cần Thơ*, Tập 58 (2), Tr. 59-101.

CARBON MATERIALS SYNTHETIZED FROM AQUILARIA CRASSNA WOOD AND ADSORPTION ACTIVITY OF METHYLENE BLUE

**Tran Thanh Minh*, Nguyen Dang Dai,
Le Thuy Trang, Le Trung Hieu, Tran Thanh Van**

University of Sciences, Hue University

*Email: tranthanhhminh@hueuni.edu.vn

ABSTRACT

We have synthesized carbon materials from *Aquilaria crassna* wood using pyrolysis and hydrothermal. The materials were characterized by SEM (Scanning Electron Microscopy), XRD (X-ray Powder Diffraction), and nitrogen adsorption/desorption isotherms and applied as adsorbents for methylene blue (MB). The research results showed that the material samples synthesized by the two methods of pyrolysis or hydrothermal have similar structures but have different shapes. The material synthesized by pyrolysis has the same shape and size as the original material but has higher MB adsorption activity than the hydrothermal material sample and higher than the original material sample. The kinetics of MB adsorption onto the pyrolyzed material were also studied, showing that the adsorption process is complicated and more inclined towards the second-order adsorption model.

Keywords: *Aquilaria crassna*, carbon material, adsorption, methylene blue.



Trần Thanh Minh sinh năm 1980. Ông tốt nghiệp cử nhân ngành Hóa học năm 2002, thạc sĩ chuyên ngành Hóa hữu cơ năm 2007, nhận học vị tiến sĩ năm 2021 tại Đại học Khoa học, Đại học Huế. Hiện nay, ông công tác Khoa Hóa, Trường Đại học Khoa học, Đại học Huế.

Lĩnh vực nghiên cứu: Các hợp chất hữu cơ và vật liệu.



Nguyễn Đăng Đại sinh năm 2003. Hiện nay, ông là sinh viên lớp Công nghệ kỹ thuật hóa học K45, Trường Đại học Khoa học, Đại học Huế.

Lĩnh vực nghiên cứu: Tổng hợp vật liệu và ứng dụng.



Lê Thùy Trang sinh năm 1989. Bà tốt nghiệp Thạc sĩ Hóa học năm 2014 tại Khoa Hóa, Đại học Khoa học, Đại học Huế. Hiện nay, bà là nghiên cứu viên, Phòng Đào tạo Đại học và công tác sinh viên, Trường Đại học Khoa học, Đại học Huế.

Lĩnh vực nghiên cứu: Hóa học các hợp chất tự nhiên có hoạt tính sinh học



Lê Trung Hiếu sinh năm 1987. Ông tốt nghiệp Tiến sĩ Hóa hữu cơ năm 2018 tại Trường Đại học Khoa học, Đại học Huế. Ông hiện là giảng viên của Khoa Hóa học, Trường Đại học Khoa học, Đại học Huế.

Lĩnh vực nghiên cứu: Hóa học các hợp chất tự nhiên có hoạt tính sinh học, phân tích hợp chất hữu cơ.



Trần Thành Văn sinh năm 1980 tại Tỉnh Quảng Bình. Ông Tốt nghiệp Đại học ngành Vật Lý năm 2004 và nhận bằng Thạc sĩ chuyên ngành Vật lý chất rắn năm 2014 tại trường Đại học Khoa học Huế. Hiện nay, ông công tác tại Khoa Điện, Điện tử và Công nghệ vật liệu, Trường Đại học Khoa Học, Đại học Huế.

Lĩnh vực nghiên cứu: Điện tử và Công nghệ vật liệu.