

**ĐẠI HỌC THÁI NGUYÊN
TRƯỜNG ĐẠI HỌC SƯ PHẠM**

VILAYKONE PHAKAXOUM

**CHẾ TẠO VẬT LIỆU BENTONIT/ Fe_3O_4 XÓP BẰNG
PHƯƠNG PHÁP HÓA SIÊU ÂM ỨNG DỤNG HẤP PHỤ
METHYLENE XANH TRONG NƯỚC**

LUẬN VĂN THẠC SĨ HÓA HỌC

THÁI NGUYÊN - 2020

ĐẠI HỌC THÁI NGUYÊN
TRƯỜNG ĐẠI HỌC SƯ PHẠM

VILAYKONE PHAKAXOUM

**CHẾ TẠO VẬT LIỆU BENTONIT/Fe₃O₄ XỐP BẰNG
PHƯƠNG PHÁP HÓA SIÊU ÂM ỨNG DỤNG HẤP PHỤ
METHYLENE XANH TRONG NƯỚC**

Ngành: Hóa Vô Cơ
Mã ngành: 8.44.01.13

LUẬN VĂN THẠC SĨ HÓA HỌC

Người hướng dẫn khoa học: TS. NGUYỄN QUỐC DŨNG

THÁI NGUYÊN - 2020

LỜI CAM ĐOAN

Tôi xin cam đoan: Đề tài: ***“Chế tạo vật liệu bentonit/Fe₃O₄ bằng phương pháp hóa siêu âm ứng dụng trong hấp phụ methylene xanh trong nước”*** là do bản thân tôi thực hiện. Các số liệu, kết quả trong đề tài là trung thực. Nếu sai sự thật tôi xin chịu trách nhiệm.

Thái Nguyên, tháng 09 năm 2020

Tác giả luận văn

Vilaykone PHAKAXOUM

LỜI CẢM ƠN

Trước hết, em xin được tỏ lòng biết ơn sâu sắc đến **TS. Nguyễn Quốc Dũng**, người đã tận tình động viên, giảng dạy, chỉ bảo, hướng dẫn và định hướng cho tôi trong suốt quá trình học tập và thực hiện luận văn. Em xin gửi lời cảm ơn các thầy, cô giáo trong Khoa Hóa học, các thầy cô Phòng Đào tạo, các thầy cô trong Ban Giám hiệu trường Đại học Sư phạm - Đại học Thái Nguyên đã giảng dạy, tạo điều kiện và giúp đỡ em trong quá trình học tập thời gian qua.

Em cũng xin gửi lời cảm ơn chân thành tới PGS.TS. Đặng Văn Thành, Bộ môn Vật lý - Lý sinh, Trường Đại học Y - Dược đã cho phép em sử dụng cơ sở vật chất và trang thiết bị trong quá trình thực hiện thực nghiệm.

Cuối cùng, tôi cảm ơn gia đình, bạn bè, các đồng nghiệp đã động viên giúp đỡ tôi hoàn thành luận văn này.

Mặc dù đã có nhiều cố gắng, song luận văn khó tránh khỏi những thiếu sót, rất mong nhận được sự góp ý và giúp đỡ của Hội đồng khoa học và Quý thầy cô, anh chị em đồng nghiệp và bạn bè.

Em xin trân trọng cảm ơn!

Thái Nguyên, tháng 8 năm 2020

Tác giả

Vilaykone PHAKAXOUM

MỤC LỤC

LỜI CAM ĐOAN	i
LỜI CẢM ƠN.....	ii
MỤC LỤC	iii
DANH MỤC CÁC KÍ HIỆU VÀ CHỮ VIẾT TẮT	v
DANH MỤC CÁC BẢNG	vi
DANH MỤC CÁC HÌNH	vii
MỞ ĐẦU	1
Chương 1. TỔNG QUAN	3
1.1. Giới thiệu về vật liệu bentonit/ Fe_3O_4	3
1.1.1. Bentonit.....	3
1.1.2. Vật liệu Fe_3O_4	3
1.1.3. Phương pháp hóa siêu âm.....	5
1.2. Phương pháp xử lý nguồn nước bị ô nhiễm	6
1.3. Mô hình hấp phụ đẳng nhiệt.....	9
1.3.1. Đẳng nhiệt Langmuir.....	10
1.3.2. Đường đẳng nhiệt Freundlich.....	10
1.3.3. Đường đẳng nhiệt Dubinin-Radushkevich	11
1.4. Tình hình nghiên cứu trong và ngoài nước	11
1.4.1. Tình hình nghiên cứu ngoài nước.....	11
1.4.2. Tình hình nghiên cứu trong nước	14
Chương 2. THỰC NGHIỆM	16
2.1. Dụng cụ, hóa chất	16
2.2. Tổng hợp Bentonit/ Fe_3O_4	16
2.3. Khảo sát tính chất tính chất vật lý, đặc điểm bề mặt của vật liệu	18
2.3.1. Phương pháp sử dụng kính hiển vi điện tử quét.....	18
2.3.2. Phương pháp nhiễu xạ tia X	18

2.3.3. Phương pháp phổ hồng ngoại hấp thụ	18
2.3.4. Phương pháp phổ UV-Vis	19
2.3.5. Phương pháp BET xác định diện tích bề mặt riêng.....	19
2.3.6. Phương pháp từ kế mẫu rung.....	20
2.4. Nghiên cứu khả năng hấp phụ MB theo phương pháp hấp phụ tĩnh.....	21
Chương 3. KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN.....	23
3.1. Hình thái, cấu trúc của vật liệu	23
3.1.1. Hình thái bề mặt	23
3.1.2. Cấu trúc của vật liệu	24
3.1.3. Tính chất bề mặt và cấu trúc mao quản của vật liệu	25
3.1.4. Tính chất từ của vật liệu	26
3.2. Đường chuẩn xác định nồng độ của MB	29
3.3. Nghiên cứu khả năng hấp phụ của vật liệu theo phương pháp hấp phụ tĩnh	30
3.3.1. Điểm đẳng điện của vật liệu	30
3.3.2. Ảnh hưởng của pH.....	31
3.3.3. Ảnh hưởng của thời gian hấp phụ	33
3.3.4. Ảnh hưởng của khối lượng vật liệu.....	35
3.3.5. Ảnh hưởng của nồng độ MB ban đầu.....	36
3.3.6. Ảnh hưởng của nhiệt độ	38
3.3. Khảo sát một số mô hình đẳng nhiệt hấp phụ	39
3.3.1. Mô hình đẳng nhiệt hấp phụ Langmuir	40
3.3.2. Mô hình đẳng nhiệt hấp phụ Freundlich	41
KẾT LUẬN.....	43
CÔNG TRÌNH CÔNG BỐ CÓ LIÊN QUAN ĐẾN ĐỀ TÀI	44
TÀI LIỆU THAM KHẢO.....	45
PHỤ LỤC	

DANH MỤC CÁC KÍ HIỆU VÀ CHỮ VIẾT TẮT

Tên tiếng việt	Tên tiếng Anh	Viết tắt
Bentonite	Bentonite	BO
Brunauer, Emmett and Teller	Brunauer, Emmett and Teller	BET
Bentonit/Fe ₃ O ₄	Bentonite/Fe ₃ O ₄	BFC
Hiển vi điện tử quét	Scanning Electron Microscope	SEM
Hồng ngoại hấp thụ	Fourier-transform infrared	FTIR
Methylene xanh	Methylene blue	MB
Nhiễu xạ tia X	X-ray Diffraction	XRD
Tử ngoại - khả kiến	Ultraviolet-Visible	UV-Vis

DANH MỤC CÁC BẢNG

Bảng 3.1.	Thông số tính chất bề mặt và cấu trúc mao quản	26
Bảng 3.2.	Số liệu ảnh về ảnh hưởng của pH đến dung lượng hấp phụ.....	32
Bảng 3.3.	Ảnh hưởng của thời gian hấp phụ	34
Bảng 3.4.	Ảnh hưởng của khối lượng vật liệu đến khả năng hấp phụ.....	35
Bảng 3.5.	Sự phụ thuộc hiệu suất, dung lượng hấp phụ vào nồng độ đầu.....	37
Bảng 3.6.	Sự phụ thuộc hiệu suất hấp phụ vào nhiệt độ hấp phụ	38
Bảng 3.7.	Các thông số từ thực nghiệm theo các mô hình hấp phụ Langmuir và Freundlich	42
Bảng 3.8.	So sánh q_{\max} của BFC và một số vật liệu hấp phụ khác	42

DANH MỤC CÁC HÌNH

Hình 1.1.	Mô hình lõi vỏ của một hạt nano từ [41].....	4
Hình 1.2.	Công thức cấu tạo của MB	8
Hình 2.1.	Sơ đồ minh họa thiết bị cho quá trình chế tạo BFC, ảnh nhỏ là ảnh chụp quá trình chế tạo với 1: pipet chứa dung dịch Fe^{3+} và Fe^{2+} , 2: hỗn hợp bentonit và NaOH, 3: que khuấy.....	17
Hình 2.2.	Sơ đồ khối của tủ kế mẫu rung	21
Hình 3.1.	Ảnh SEM của các vật liệu (a) BO, (b) Fe_3O_4 và (c) BFC	23
Hình 3.2.	Giản đồ nhiễu xạ tia X của Fe_3O_4 , BO và BFC	24
Hình 3.3.	Phổ IR của BO, BFC, Fe_3O_4	24
Hình 3.4.	Đường đẳng nhiệt hấp phụ - khử hấp phụ N_2 (a) của BO và BFC (b) Fe_3O_4	25
Hình 3.5.	Đường cong từ trễ của vật liệu Fe_3O_4 , Bentonit/ Fe_3O_4 (1:5), Bentonit/ Fe_3O_4 (1:2), Bentonit/ Fe_3O_4 (2:1).....	27
Hình 3.6.	Mô hình mô tả cơ chế hình thành vật liệu BFC	28
Hình 3.1.	Đường chuẩn xác định nồng độ MB	30
Hình 3.8.	Xác định điểm đẳng điện của vật liệu BFC	31
Hình 3.9.	Ảnh hưởng của pH đến dung lượng hấp phụ MB	32
Hình 3.10.	Sự phụ thuộc dung lượng hấp phụ vào thời gian hấp phụ	34
Hình 3.11.	Ảnh hưởng của khối lượng vật liệu đến dung lượng hấp phụ MB	36
Hình 3.12.	Ảnh hưởng của nồng độ dung dịch MB ban đầu đến hiệu suất và dung lượng hấp phụ của vật liệu BFC.....	37
Hình 3.13.	Ảnh hưởng của nhiệt độ vật liệu đến dung lượng hấp phụ MB	39
Hình 3.14.	Đường đẳng nhiệt Langmuir hấp phụ MB của BFC.....	39
Hình 3.15.	Sự phụ thuộc Ce vào C_e trong mô hình hấp phụ đẳng nhiệt Langmuir	40
Hình 3.16.	Sự phụ thuộc $logq_e$ vào $logC_e$ trong mô hình hấp phụ đẳng nhiệt Freundlich	41

MỞ ĐẦU

Methylene xanh hay Methylene blue (MB) nói riêng và các phẩm màu họ azo nói chung là những hợp chất hữu cơ thường được sử dụng rộng rãi trong phòng thí nghiệm, các ngành dệt may, in ấn, sản xuất giấy, v.v. MB có thể gây kích ứng cho da và mắt khi tiếp xúc trực tiếp, có chứa thành phần nhuộm anion có thể gây tổn thương cho màng sừng và màng kết khi tiếp xúc với mắt. Đặc biệt, khi xâm nhập vào cơ thể qua đường ăn uống, chuyển hóa thành các amin thơm bằng vi sinh đường ruột và thậm chí có thể dẫn tới ung thư đường ruột. Do đó, nghiên cứu loại bỏ MB khỏi nước trước khi thải ra môi trường là nhiệm vụ thiết yếu và cấp bách.

Các phương pháp truyền thống thường sử dụng để xử lý nước thải chứa MB là phương pháp keo tụ, trao đổi ion, điện phân, tách chiết, quang xúc tác, kết tủa hóa học và hấp phụ. Trong đó, hấp phụ sử dụng vật liệu có nguồn gốc tự nhiên đang ngày càng được nhiều nhà khoa học quan tâm do có nhiều ưu điểm về giá thành, hiệu suất cao, khả năng tái sử dụng, quy trình xử lý đơn giản, không gây ô nhiễm môi trường.

Bentonite là nhóm sét có nguồn gốc tự nhiên có khả năng hấp thụ nước cao khiến nó bị trương nở và có chung cấu trúc thành phần lớp smectite. Để nâng cao tính hấp phụ, nó thường được biến tính bằng các phương pháp như: hoạt hóa bằng axit vô cơ, các dung dịch muối có chứa ion kim loại, bằng kiềm, bằng nhiệt, hoạt hóa bằng chất hữu cơ hoặc biến tính với các axit để tạo cấu trúc xốp thông qua các phản ứng thay thế. Ưu điểm bentonite khi được biến tính là diện tích bề mặt và thể tích mao quản lớn nên tính chất hấp phụ và xúc tác được cải thiện đáng kể so với bentonit chưa biến tính. Tuy nhiên, hạn chế của các vật liệu này là sau khi hấp phụ rất khó tách ra để tái sử dụng. Thêm vào đó, do bề mặt ưa nước và khả năng trương nở cao nên nó hấp phụ yếu các hợp chất hữu cơ ô nhiễm như MB. Ngoài ra, quá trình hoạt hóa lại tạo ra chất thải thứ cấp và các yêu cầu đặc biệt trong quá trình chế tạo. Một trong các biện pháp