

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

NGUYỄN CÔNG TOÀN

**TỔNG HỢP VẬT LIỆU COMPOZIT Cu-Ti-HYDROTANXIT
VÀ ỨNG DỤNG LÀM XÚC TÁC XỬ LÝ METYLEN XANH,
RHODAMIN-B TRONG MÔI TRƯỜNG NƯỚC**

LUẬN VĂN THẠC SĨ HÓA HỌC

THÁI NGUYÊN - 2019

ĐẠI HỌC THÁI NGUYÊN
TRƯỜNG ĐẠI HỌC SƯ PHẠM

NGUYỄN CÔNG TOÀN

**TỔNG HỢP VẬT LIỆU COMPOZIT Cu-Ti-HYDROTANXIT
VÀ ỨNG DỤNG LÀM XÚC TÁC XỬ LÝ METYLEN XANH,
RHODAMIN-B TRONG MÔI TRƯỜNG NƯỚC**

Ngành: HÓA PHÂN TÍCH
Mã số: 8.44.01.18

LUẬN VĂN THẠC SĨ HÓA HỌC

Người hướng dẫn khoa học: TS. VŨ VĂN NHƯỢNG

THÁI NGUYÊN – 2019

LỜI CAM ĐOAN

Tôi xin cam đoan đây là công trình nghiên cứu của riêng tôi dưới sự hướng dẫn của TS. Vũ Văn Nhượng các số liệu, kết quả nêu trong luận văn này là trung thực và chưa từng được ai công bố trong bất kỳ công trình nào khác.

Thái Nguyên, tháng 05 năm 2019

Tác giả

Nguyễn Công Toàn

LỜI CẢM ƠN

Em xin bày tỏ lòng biết ơn sâu sắc tới TS. Vũ Văn Nhượng đã tận tình hướng dẫn, động viên, giúp đỡ và tạo điều kiện thuận lợi cho em trong quá trình làm đề tài luận văn.

Tôi xin chân thành cảm ơn Quý thầy cô trong Khoa Hóa học – Trường ĐHSP - ĐHTN, Phòng thí nghiệm Hóa Phân tích, Công nghệ - môi trường đã tận tình giúp đỡ và tạo mọi điều kiện thuận lợi để tôi hoàn thành đề tài này.

Tôi xin trân trọng cảm ơn Ban Giám hiệu, Ban Chủ Nhiệm khoa Hóa học, Trường Đại học Sư phạm - Đại học Thái Nguyên đã tạo điều kiện cho tôi được học tập và hoàn thành bản luận văn.

Cuối cùng, tôi xin chân thành cảm ơn bố mẹ, anh chị, gia đình và bạn bè đồng nghiệp những người luôn động viên, chia sẻ mọi khó khăn cùng tôi trong suốt quá trình học tập và thực hiện luận văn.

Thái Nguyên, tháng 5 năm 2019

Học viên cao học

Nguyễn Công Toàn

MỤC LỤC

Lời cam đoan	i
Lời cảm ơn	ii
Mục lục	iii
Danh mục các từ viết tắt của luận văn	iv
Danh mục các bảng	iv
Danh mục các hình	v
MỞ ĐẦU	1
Chương 1: TỔNG QUAN	3
1.1. Giới thiệu về vật liệu hydrotanxit	3
1.1.1. Thành phần, cấu trúc của hydrotanxit.....	3
1.1.2. Tính chất	5
1.1.3. Ứng dụng của hydrotanxit	6
1.2. Phương pháp điều chế hydrotanxit và các yếu tố ảnh hưởng	7
1.2.1. Phương pháp điều chế hydrotanxit	7
1.2.2. Các yếu tố ảnh hưởng đến phương pháp điều chế hydrotanxit	8
1.3. TiO ₂ và TiO ₂ biến tính	9
1.3.1. Những tính chất của TiO ₂ và TiO ₂ biến tính liên quan tới quá trình oxi hóa tiên tiến (AOPs)	9
1.4. Giới thiệu về metylen xanh và rhodamin-B.....	11
1.4.1. Rhodamin-B.....	11
1.4.2. Metylen xanh	12
1.5. Tổng quan về nước thải dệt nhuộm	13
1.5.1. Các nguồn phát sinh nước thải dệt nhuộm công nghiệp.....	13
1.5.2. Các loại thuốc nhuộm thường dùng ở Việt Nam.....	13
1.5.3. Các phương pháp xử lý nước thải dệt nhuộm công nghiệp.....	14
1.6. Tổng quan về vật liệu Cu-Ti/hydrotanxit	15
Chương 2. THỰC NGHIỆM	17
2.1. Hóa chất - dụng cụ	17
2.1.1. Hóa chất	17
2.1.2. Dụng cụ.....	17
2.2. Tổng hợp vật liệu xúc tác	17

2.3. Các phương pháp nghiên cứu đặc trưng cấu trúc vật liệu	20
2.3.1. Phương pháp nhiễu xạ tia X (XRD)	20
2.3.2. Phương pháp hiển vi điện tử truyền qua (TEM).....	20
2.3.3. Phương pháp phổ tán xạ năng lượng tia X (EDS)	21
2.3.4. Phương pháp đẳng nhiệt hấp phụ-giải hấp phụ nitơ (BET).....	21
2.3.5. Phương pháp phổ hấp thụ mẫu rắn (UV-Vis DRS).....	21
2.4. Khảo sát khả năng hấp phụ và phân hủy rhodamin-B, metylen xanh trên các mẫu vật liệu tổng hợp.....	22
2.4.1. Xây dựng đường chuẩn xác định nồng độ rhodamin-B và metylen xanh trong nước theo phương pháp phổ hấp thụ phân tử UV-Vis	22
2.4.2. Khảo sát khả năng hấp phụ, phân hủy rhodamin-B và metylen xanh của các vật liệu tổng hợp	23
Chương 3. KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN	27
3.1. Đặc trưng cấu trúc vật liệu xúc tác	27
3.1.1. Kết quả phân tích gián đo nhiễu xạ tia X (XRD) của các mẫu vật liệu.....	27
3.1.2. Kết quả phân tích phổ EDX của vật liệu	28
3.1.3. Kết quả phân tích đường đẳng nhiệt hấp phụ, giải hấp phụ nitơ (BET).....	30
3.1.4. Kết quả phân tích phổ UV-Vis DRS của các mẫu vật liệu tổng hợp	31
3.2. Kết quả khảo sát hoạt tính hấp phụ, quang xúc tác của các mẫu vật liệu tổng hợp dưới ánh sáng đèn LED công suất 30W	32
3.2.1. Kết quả khảo sát khả năng hấp phụ rhodamin-B, metylen xanh của các mẫu vật liệu tổng hợp	32
3.2.2. Khảo sát khả năng phân hủy quang hóa rhodamin-B, MB của các mẫu vật liệu tổng hợp	36
3.2.3. Kết quả khảo sát ảnh hưởng của pH môi trường đến khả năng xử lý MB và Rh-B của các mẫu vật liệu tổng hợp.....	43
3.3. Kết quả ứng dụng xúc tác để xử lý nước thải dệt nhuộm chiếu còi	46
KẾT LUẬN	49
DANH MỤC CÔNG TRÌNH KHOA HỌC CỦA TÁC GIẢ LIÊN QUAN ĐẾN LUẬN VĂN	50
TÀI LIỆU THAM KHẢO	51

DANH MỤC CÁC TỪ VIẾT TẮT CỦA LUẬN VĂN

Chữ viết tắt	Tên tiếng Việt	Tên tiếng Anh
H	Hydrotanxit	Hydrotalcite
AOPs	Quá trình oxy hóa nâng cao	Advanced Oxidation Processes
BET		Brunauer – Emmett - Teller
XRD	Giản đồ nhiễu xạ rơnghen	X-ray diffraction
UV-Vis DRS	Phổ phản xạ khuếch tán UV-Vis	Untraviolet-visible spectrum
SEM	Kính hiển vi điện tử quét	Scan electron microscopy
TEM	Kính hiển vi điện tử truyền qua	Transmission electron microscopy
TIOT	Tetraisopropyl octotitanat	Tetraisopropyl orthotitante

DANH MỤC CÁC BẢNG

Bảng 2.1. Các mẫu vật liệu tổng hợp hydrotanxit và Cu-Ti/hydrotanxit	19
Bảng 2.2. Sự phụ thuộc của độ hấp thụ quang phân tử theo nồng độ Rh-B và MB....	22
Bảng 3.1. Thành phần % khối lượng, nguyên tử của các nguyên tố trong mẫu phân tích	29
Bảng 3.2. Hiệu suất hấp phụ MB 20ppm trong nước của các mẫu H, CuTiH-n.....	33
Bảng 3.3. Hiệu suất hấp phụ MB 20ppm trong nước của các mẫu H500, CuTiH500-n.....	34
Bảng 3.4. Hiệu suất hấp phụ MB 50ppm trong nước của 4 mẫu CuTiH-0,3 – CuTiH-0,6 và 4 mẫu CuTiH500-0,3 – CuTiH500-0,6	35
Bảng 3.5. Độ chuyển hóa Rh-B 10ppm trên các mẫu vật liệu H, CuTiH-n, mẫu trắng	36
Bảng 3.6. Độ chuyển hóa Rh-B 10ppm trên các mẫu vật liệu H500, CuTiH500-n và mẫu trắng	37
Bảng 3.7. Độ chuyển hóa MB 10ppm trên các mẫu H, CuTiH-0,05 – 0,3	38
Bảng 3.8. Độ chuyển hóa MB 10ppm trên các mẫu H500, CuTiH500-0,05 – 0,3	39
Bảng 3.9. Độ chuyển hóa MB 35ppm trên các mẫu CuTiH-0,05 – 0,6	40
Bảng 3.10. Độ chuyển hóa MB 35ppm trên các mẫu CuTiH500-0,05 – 0,6	41
Bảng 3.11. Độ chuyển hóa MB 35, 50, 100 ppm trên các mẫu CuTiH-0,5 và CuTiH500-0,5.....	42
Bảng 3.12. Độ chuyển hóa Rh-B 10ppm trên các mẫu CuTiH-0,05 tại các giá trị pH ban đầu khác nhau	44
Bảng 3.13. Độ chuyển hóa MB 10ppm trên các mẫu CuTiH-0,05 tại các giá trị pH ban đầu khác nhau	44
Bảng 3.14. Hiệu xuất phân hủy chất màu trong nước thải sau khi xử lý và sau khi tái sử dụng lần thứ nhất trên mẫu CuTiH-0,05.....	47

DANH MỤC CÁC HÌNH VẼ, ĐỒ THỊ

Hình 1.1. Khoáng sét hydrotanxit (HT).....	3
Hình 1.2. Cấu trúc hydrotanxit (HT)	4
Hình 1.3. Cơ chế hình thành cặp $e^- - h^+$ gây ra bởi ánh sáng trong hạt chất bán dẫn TiO ₂ với sự có mặt của chất ô nhiễm nước (P)	9
Hình 1.4. Cơ chế đề xuất phân hủy RhB trên vật liệu Ag-TiO ₂ /SBA-15	10
Hình 2.1. Đồ thị đường chuẩn xác định nồng độ Rh-B và MB trong nước	22
Hình 2.2. Ảnh nước thải (A) và nước thải sau khi pha loãng 30 lần (B)	25
Hình 3.1. Giảm độ nhiễu xạ tia X (XRD) của các mẫu vật liệu tổng hợp, các mẫu không nung (A); (B): các mẫu nung ở 500°C.....	27
Hình 3.2. Ảnh TEM của hai mẫu vật liệu H (A), CuTiH-0,05 (B)	28
Hình 3.3. Phổ EDX của hai mẫu vật liệu H và CuTiH-0,05	29
Hình 3.4. Đường đẳng nhiệt hấp phụ, giải hấp phụ N ₂ của ba mẫu vật liệu H (A), CuTiH-0,05 (B) và CuTiH-0,5 (C) và các đường chồng phổ của 3 mẫu (D).....	30
Hình 3.5. Phổ UV-Vis DRS của các mẫu vật liệu tổng hợp, (A): các mẫu không nung; (B): các mẫu nung ở 500°C	31
Hình 3.6. Phổ UV-Vis của Rh-B sau 105 phút hấp phụ trên mẫu CuTiH-0,05 (A) và CuTiH500-0,1 (B).....	32
Hình 3.7. Phổ UV-Vis của MB 10ppm sau 120 phút hấp phụ trên mẫu CuTiH- 0,05 (A) và CuTiH500-0,1 (B).....	33
Hình 3.8. Hiệu suất hấp phụ MB 20ppm theo thời gian trên các mẫu H, CuTiH-n (A) và H500, CuTiH500-n (B)	34
Hình 3.9. Hiệu suất hấp phụ MB 50ppm theo thời gian trên các mẫu CuTiH-0,3 – CuTiH-0,6 (A) và CuTiH500-0,3 – CuTiH500-0,6 (B)	35
Hình 3.10. Độ chuyển hóa rhodamin-B trên các mẫu vật liệu tổng hợp H, CuTiH-n (A) và H500, CuTiH500-n (B) và mẫu trắng (không có xúc tác, chỉ có H ₂ O ₂)	37
Hình 3.11. Độ chuyển hóa MB trên các mẫu vật liệu tổng hợp H, CuTiH-0,05 – 0,3, mẫu trắng (A) và H500, CuTiH500-0,05 – 0,3, mẫu trắng (B).....	39

Hình 3.12. Độ chuyển hóa MB trên các mẫu vật liệu tổng hợp CuTiH-0,05 - 0,6 (A) và CuTiH500-0,05 - 0,6 (B).....	41
Hình 3.13. Độ chuyển hóa MB nồng độ 35, 50 và 100ppm trên 2 mẫu vật liệu CuTiH-0,5 (A) và CuTiH500-0,5 (B).....	42
Hình 3.14. Đồ thị so sánh hoạt tính xúc tác của mẫu vật liệu CuTiH-0,05 đối với Rh-B và MB nồng độ 10ppm trong nước.....	43
Hình 3.15. Độ chuyển hóa Rh-B 10ppm (A), MB 10ppm (B) trên mẫu vật liệu CuTiH-0,05 tại các giá trị pH ban đầu khác nhau.....	45
Hình 3.16. Phổ UV-Vis của mẫu nước thải dệt nhuộm chiếu cói pha loãng 20 lần ở các giá trị pH ban đầu khác nhau.....	46
Hình 3.17. Độ chuyển hóa chất màu trong nước thải theo thời gian chiếu sáng (A) và đồ thị so sánh hoạt tính xúc tác của vật liệu sau lần tái sử dụng lần thứ nhất (B).....	48
Hình 3.18. Phổ UV-Vis của nước thải sau 450 phút chiếu sáng (A) và màu của nước thải sau quá trình xử lý (B).....	48