

**ĐẠI HỌC THÁI NGUYÊN  
TRƯỜNG ĐẠI HỌC KHOA HỌC**

---

**VŨ MINH PHƯƠNG**

**PHÂN TÍCH CẤU TRÚC, THÀNH PHẦN CỦA VẬT  
LIỆU LAI LDH-ZEOLITE VÀ ĐÁNH GIÁ KHẢ  
NĂNG HẤP PHỤ Cr VÀ Pb CỦA VẬT LIỆU NÀY**

**LUẬN VĂN THẠC SĨ HÓA HỌC**

**THÁI NGUYÊN - 2020**

ĐẠI HỌC THÁI NGUYÊN  
TRƯỜNG ĐẠI HỌC KHOA HỌC

---

VŨ MINH PHƯƠNG

**PHÂN TÍCH CẤU TRÚC, THÀNH PHẦN CỦA VẬT  
LIỆU LAI LDH-ZEOLITE VÀ ĐÁNH GIÁ KHẢ  
NĂNG HẤP PHỤ Cr VÀ Pb CỦA VẬT LIỆU NÀY**

*Chuyên ngành:* Hóa phân tích

*Mã số:* 8.44.01.18

**LUẬN VĂN THẠC SĨ HÓA HỌC**

**Người hướng dẫn khoa học: TS. NGUYỄN ĐÌNH VINH  
TS. LƯU TRỌNG LƯ'**

**THÁI NGUYÊN - 2020**

## LỜI CẢM ƠN

Trong quá trình học tập và nghiên cứu hoàn thành luận văn tốt nghiệp, tôi đã nhận được sự động viên, giúp đỡ quý báu của nhiều đơn vị và cá nhân. Đầu tiên, tôi xin chân thành bày tỏ lòng biết ơn đến quý Thầy Cô tham gia giảng dạy lớp Hóa học khóa 12, quý Thầy Cô công tác tại Phòng Sau Đại học Trường Đại học Khoa học - Đại học Thái Nguyên.

Đặc biệt, tác giả xin bày tỏ lòng tri ân sâu sắc đến TS. Nguyễn Đình Vinh và TS. Lưu Trọng Lư, đã hết lòng giúp đỡ và hướng dẫn tận tình chỉ bảo tôi trong suốt quá trình chuẩn bị, nghiên cứu và hoàn thành luận văn.

Tôi cũng xin cảm ơn sự giúp đỡ của các bạn bè đồng nghiệp, gia đình, người thân đã giúp đỡ tôi rất nhiều khi thực hiện luận văn này.

Dù đã có nhiều cố gắng trong quá trình thực hiện, song chắc chắn rằng luận văn này sẽ không thể tránh khỏi thiếu sót. Tôi rất mong nhận được sự góp ý của quý Thầy Cô và các bạn đồng nghiệp để luận văn được bổ sung hoàn thiện hơn.

*Xin trân trọng cảm ơn!*

*Thái Nguyên, tháng 7 năm 2020*

***Tác giả***

**Vũ Minh Phương**

# MỤC LỤC

<b>MỞ ĐẦU</b>	<b>1</b>
<b>CHƯƠNG 1: TỔNG QUAN</b>	<b>3</b>
1.1. Zeolite tự nhiên	3
1.1.1. Cấu trúc của zeolite tự nhiên	3
1.1.2. Ứng dụng của zeolite tự nhiên trong xử lý môi trường	3
1.2. Vật liệu layered double hydroxide (LDH)	4
1.2.1. Cấu trúc và tính chất của vật liệu LDH	4
1.2.2. Các phương pháp tổng hợp vật liệu LDH	5
1.3. Ô nhiễm kim loại nặng và các phương pháp xử lý	6
1.3.1. Ô nhiễm Cr(VI) và ảnh hưởng của nó đến sức khỏe con người	6
1.3.2. Ô nhiễm Pb và ảnh hưởng của nó đến sức khỏe con người	8
1.3.3. Các phương pháp xử lý kim loại nặng	9
1.4. Tình hình nghiên cứu trong và ngoài nước	11
1.4.1. Những nghiên cứu ngoài nước tiến hành cùng hướng nghiên cứu	11
1.4.2. Những nghiên cứu trong nước tiến hành cùng hướng nghiên cứu	12
1.5. Các phương pháp phân tích vật liệu và kim loại nặng	13
1.5.1. Phương pháp nhiễu xạ tia X (XRD)	13
1.5.2. Phương pháp phổ hồng ngoại (FT-IR)	14
1.5.3. Phương pháp hiển vi điện tử quét (SEM)	14
1.5.4. Phương pháp tử ngoại – khả kiến (UV-Vis)	15
1.5.5. Phương pháp tán xạ năng lượng tia X (EDX)	15
1.5.6. Phương pháp phổ hấp thụ nguyên tử (AAS)	16
<b>CHƯƠNG 2: THỰC NGHIỆM</b>	<b>17</b>
2.1. Hóa chất và thiết bị	17
2.1.1. Hóa chất	17
2.1.2. Thiết bị	17
2.2. Tổng hợp vật liệu	17
2.2.1. Tổng hợp vật liệu LDH	17
2.2.2. Tổng vật liệu LDH-zeolite bằng phương pháp in-situ	18
2.2.3. Tổng vật liệu LDH-zeolite bằng phương pháp ex-situ	18
2.3. Phương pháp phân tích cấu trúc vật liệu	18
2.3.1. Phương pháp phân tích thành phần pha	18
2.3.2. Phương pháp phân tích cấu trúc bề mặt	19
2.3.3. Phương pháp phân tích cấu trúc và thành phần hóa học	19
2.3.4. Phương pháp phân tích cấu trúc lỗ xốp và diện tích bề mặt	19
2.4. Phương pháp phân tích hàm lượng Cr(VI) và Pb(II) trong dung dịch	19
2.4.1. Phân tích hàm lượng Cr(VI)	19
2.4.2. Phân tích hàm lượng Pb(II)	21

2.5. <i>Đánh giá khả năng hấp phụ Cr(VI) và Pb(II) của vật liệu</i>	23
<b>CHƯƠNG 3: KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN</b>	<b>24</b>
3.1. <i>Tổng hợp và phân tích cấu trúc tinh thể của vật liệu LDH-zeolite</i>	24
3.2. <i>Ảnh hưởng của phương pháp tổng hợp đến khả năng hấp phụ Cr(VI) và Pb(II) của vật liệu</i>	28
3.3. <i>Cấu trúc và thành phần hóa học của vật liệu</i>	30
3.4. <i>Kết quả phân tích diện tích bề mặt và kích thước lỗ xốp</i>	32
3.5. <i>Động học của quá trình hấp phụ</i>	34
3.6. <i>Đường đẳng nhiệt hấp phụ</i>	37
3.7. <i>Nghiên cứu khả năng hấp phụ đồng thời hai kim loại</i>	40
<b>KẾT LUẬN</b>	<b>42</b>
<b>TÀI LIỆU THAM KHẢO</b>	<b>I</b>

## DANH MỤC CÁC HÌNH

Hình 3. 1. Giảm đồ XRD của LDH, zeolite và LDH-zeolite tổng hợp bằng phương pháp in-situ và ex-situ .....	25
Hình 3. 2. Sự phụ thuộc của kích thước tinh thể LDH trong vật liệu LZ vào hàm lượng LDH và phương pháp tổng hợp .....	26
Hình 3. 3. Sơ đồ mô tả cơ chế hình thành LZ trong phương pháp in-situ và ex-situ .....	27
Hình 3. 4. Ảnh SEM của LDH (A), ZEO (B) và LZ3-EX (C) và LZ3 (D) .....	28
Hình 3. 5. Sự hấp phụ Cr(VI) và Pb(II) trên LDH, ZEO và LDH-zeolite với hàm LDH khác nhau.....	30
Hình 3. 6. Phổ FT-IR của LDH, ZEO và LZ3 .....	31
Hình 3. 7. Phổ EDX của LDH, ZEO và LZ3.....	32
Hình 3. 8. Các đường đẳng nhiệt hấp phụ/giải hấp phụ nitơ của LDH, ZEO và LZ3 .....	33
Hình 3. 9. Mô hình động học của quá trình hấp phụ Cr(VI) và Pb(II) trên LZ3 .....	36
Hình 3. 10. Các đường đẳng nhiệt hấp phụ và dữ liệu thực nghiệm của quá trình hấp phụ Cr(VI) và Pb(II) trên LZ3. ....	39

## DANH MỤC CÁC BẢNG

Bảng 2.1. Hóa chất sử dụng trong đề tài.....	17
Bảng 2.2. Các thiết bị sử dụng trong đề tài.....	17
Bảng 2.3. Điều kiện tổng hợp vật liệu LDH, LZ và LZ-EX.....	18
Bảng 3. 1. Thành phần hóa học của LDH, ZEO và LZ3 .....	32
Bảng 3. 2. Diện tích bề mặt, diện tích vi mao quản và kích thước lỗ xốp của LDH, zeolite LZ3.....	34
Bảng 3. 3. Các thông số tính toán từ các mô hình .....	36
Bảng 3. 4. Các thông số tính toán từ các mô hình đường đẳng nhiệt.....	39
Bảng 3. 5. Hiệu quả loại bỏ và khả năng hấp phụ đồng thời Cr(VI) và Pb(II) của LZ3 .....	41

## DANH MỤC CÁC KÝ HIỆU VIẾT TẮT

<b>Ký hiệu</b>	<b>Tên đầy đủ</b>
ZEO	Zeolite
UV-Vis	Tử ngoại khả kiến
SEM	Hiển vi điện tử quét
XRD	Nhiễu xạ tia X
LDH	Layered double hydroxide
LZ	Layered double hydroxide –zeolite
EDX	Tán xạ năng lượng tia X

## MỞ ĐẦU

Nước bị ô nhiễm bởi các kim loại nặng đang ngày càng trở nên nghiêm trọng và là một vấn đề toàn cầu. Cùng với sự phát triển của các ngành công nghiệp như khai khoáng, luyện kim, dầu mỏ, sơn... lượng phát thải các kim loại nặng vào nước tăng nhanh. Nước thường bị ô nhiễm bởi các kim loại nặng như chì (Pb), asen (As), crom (Cr), cadimi (Cd)..., là những kim loại có độc tính cao chúng thường tồn tại trong nước dưới dạng các hợp chất vô cơ, có độ linh động lớn. Chúng đều không có khả năng phân hủy bằng hóa học hoặc sinh học và có ảnh hưởng nghiêm trọng và lâu dài đến hệ sinh thái, chất lượng nguồn nước và sức khỏe của con người.

Các phương pháp phổ biến ứng dụng để xử lý các kim loại nặng trong nước bao gồm phương pháp hóa học, điện hóa, lọc, và hấp phụ.. Trong đó, phương pháp hấp phụ có nhiều ưu điểm như thời gian xử lý ngắn, vật liệu sử dụng đa dạng, không gây phát thải thứ cấp.

Zeolite là khoáng vật alumosilicat và khá phổ biến trong tự nhiên. Cấu trúc của zeolit được hình thành từ các đơn vị tứ diện  $\text{SiO}_4$  nối với nhau, trong đó một phần ion  $\text{Si}^{4+}$  được thay thế bởi ion  $\text{Al}^{3+}$  dẫn đến sự thiếu hụt điện tích dương. Sự thiếu hụt này sẽ được bổ sung bằng các ion dương như  $\text{Na}^+$ ,  $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{K}^+$ ... trong các khoảng trống của tinh thể. Với diện tích bề mặt lớn, dung lượng trao đổi cation cao và khả năng sàng lọc phân tử, zeolite được ứng dụng trong nhiều lĩnh vực khác nhau như xử lý môi trường, công nghiệp, y học và trong nông nghiệp. Zeolite được nghiên cứu nhiều trong việc xử lý các ion kim loại nặng trong nước, trong đất. Đối với ion dương, zeolite tỏ ra rất hiệu quả, tuy nhiên đối với dạng anion thì cần phải biến tính thì mới tăng hiệu quả xử lý.

Vật liệu LDH thuộc loại vật liệu cấu trúc nano hai chiều. LDH có cấu trúc giống với brucite, trong đó các ion  $2+$  nằm ở các hốc trống bát diện. Một phần ion  $2+$  được thay thế bởi ion  $3+$  tạo nên điện tích dương cho phiến. Các điện tích dương này sẽ được bù trừ bởi các anion nằm giữa các phiến. Các anion này có khả năng thay thế bởi các anion khác điều này làm cho LDH có khả năng hấp phụ được các kim loại nặng dạng anion như asenit, asenat, cromat... nên LDH được nghiên cứu nhiều trong xử lý môi trường.

Thông thường, các loại vật liệu hiện nay chỉ hoặc là xử lý được cation hoặc chỉ xử lý được anion điều này sẽ dẫn đến sự khó khăn trong quá trình xử lý kim loại nặng như tăng giai đoạn xử lý, khó kiểm soát được quy trình... Do đó việc nghiên cứu chế tạo vật liệu có khả năng xử lý đồng thời cả hai dạng tồn tại của các kim loại nặng đang là vấn đề thu hút được nhiều nhà khoa học quan tâm. Với việc kết hợp hai loại vật liệu có độ bền cao, có khả năng xử lý cả cation và anion, vật liệu lưỡng cực LDH/Zeolite hứa hẹn sẽ là loại vật liệu đáp ứng được yêu cầu của thực tiễn. Từ đó chúng tôi lựa chọn đề tài **“Phân tích cấu trúc, thành phần của vật liệu lai LDH - zeolite và đánh giá khả năng hấp phụ Cr và Pb của vật liệu này”**.

Nội dung của luận văn sẽ tập trung vào một số mục tiêu sau:

- Tổng hợp vật liệu lai LDH-zeolite bằng phương pháp in-situ và ex-situ.
- Phân tích thành phần pha, cấu trúc và thành phần hóa học, hình thái học, cấu trúc xốp của vật liệu.
- Đánh giá khả năng hấp phụ Cr(VI) và Pb(II) của vật liệu LDH-zeolite.