



Đánh giá khả năng hấp phụ thuốc kháng sinh tetracycline hydrochloric trong nước thải của vật liệu graphene oxit

Assessment of the adsorption capacity tetracycline hydrochloride antibiotic in wastewater of graphene oxide materials

Nguyễn Thu Hương¹, Võ Quang Linh¹, Nguyễn Ngọc Thịnh¹, Lê Diệu Thu¹, Trần Thị Thu Huyền¹, Nguyễn Minh Việt², Lê Văn Dũng³, Trần Vĩnh Hoàng¹, Vũ Anh Tuấn^{1*}

¹Trường Hóa và Khoa học sự sống, Đại học Bách Khoa Hà Nội.

²Khoa Công Nghệ Hóa, Đại học Công Nghiệp Hà Nội.

³Viện Nghiên cứu Khoa học Hậu cần Quân sự, Học viện Hậu cần.

*Email: tuan.vuanh@hust.edu.vn

ARTICLE INFO

Received: 25/4/2023

Accepted: 20/10/2023

Published: 30/3/2024

Keywords:

Adsorbent; graphene oxide; tetracycline; adsorption isotherm; kinetics

ABSTRACT

In this study, Graphene oxide (GO) was synthesized for the treatment of antibiotic residues in the aquatic environment. The characteristics of GO material were analyzed by the XRD, and SEM methods. The GO material was used for the adsorption of tetracycline hydrochloride (TCH) in an aqueous environment. The adsorption equilibration time is 30 min. The factors that affect the adsorption process were investigated including the initial TCH concentration (10-40 mg/L), the GO content (0,1-0,5 g/L), and the pH solution (1-9). The adsorption process of TCH on GO material is consistent with the Freundlich isotherm model. The TCH adsorption process of GO material is exothermic.

1. Giới thiệu chung

Hiện nay, vấn đề ô nhiễm môi trường đã và đang là vấn đề gây nhức nhối, không chỉ riêng Việt Nam mà còn cả các nước trên thế giới. Tình trạng ô nhiễm diễn ra ở hầu hết các môi trường như đất, nước, không khí... Trong đó, ô nhiễm môi trường nước ngày càng trở nên nguy hiểm hơn [1, 2]. Ô nhiễm môi trường nước được chia làm hai loại gồm ô nhiễm môi trường nước có nguồn gốc tự nhiên và ô nhiễm môi trường nước có nguồn gốc nhân tạo. Ngày nay, công nghiệp hóa hiện đại hóa phát triển và dân số tăng đã gây ảnh hưởng rất lớn đến môi trường. Một lượng lớn các chất ô nhiễm hữu cơ được thải ra ngoài môi trường mà chưa qua xử lý dẫn đến tình trạng ô nhiễm môi trường

nước ảnh hưởng trực tiếp đến sức khỏe con người và hệ sinh thái [3]. Kháng sinh là một loại thuốc có khả năng tiêu diệt hoặc kìm hãm sự phát triển của vi khuẩn, từ đó giúp cơ thể con người và động vật chống lại nhiễm trùng. Hiện nay, thuốc kháng sinh được bán và sử dụng tràn lan, không đúng quy định. Không chỉ sử dụng ở người, thuốc kháng sinh còn được sử dụng trong chăn nuôi [4]. Chính vì sử dụng phổ biến và rộng rãi như vậy đã dẫn đến tình trạng dư thừa thuốc kháng sinh trong môi trường nước. Gần đây, ô nhiễm kháng sinh đã được công nhận là ô nhiễm môi trường nước mới nổi, do tác dụng phụ tiềm ẩn của chúng đối với hệ sinh thái và sức khỏe con người [4-6]. Do đó, cần có những phương pháp loại bỏ dư lượng kháng sinh trong môi trường nước. Hiện nay, có rất nhiều phương

pháp xử lý như hấp phụ, oxi hóa nâng cao, phương pháp sinh học và phương pháp điện hóa...[5, 6]. Trong đó, phương pháp oxi hóa nâng cao sử dụng năng lượng mặt trời đã nhận được sự quan tâm, nghiên cứu của các nhà khoa học lớn trong và ngoài nước. Đây được coi là một phương pháp đầy hứa hẹn và tiềm năng vì đã tận dụng được ánh sáng mặt trời - nguồn năng lượng miễn phí, dồi dào và vô tận, sản phẩm của quá trình thân thiện với môi trường. Tetracycline là một kháng sinh phổ rộng được sử dụng rộng rãi trên cả người và động vật. Nhiều nghiên cứu cho thấy đã phát hiện dư lượng chất kháng sinh tetracycline trên tầng nước mặt [7]. Tình trạng này có thể dẫn đến tình trạng kháng kháng sinh của vi khuẩn. Sử dụng và lặp đi lặp lại tetracycline sẽ có hại cho răng, do nó ảnh hưởng đến sự phát triển và hình thành răng, nó có thể gây hiện tượng vàng răng. Nếu phụ nữ có thai sử dụng nguồn nước có chứa tetracycline ảnh hưởng trực tiếp đến thai nhi (tổn thương xương và răng), gây độc gan cho sản phụ, thậm chí gây dị tật bẩm sinh...[8] Vì vậy cần có những phương pháp hiệu quả và thân thiện với môi trường để loại bỏ dư lượng kháng sinh tetracycline trong môi trường nước. Đã từ rất lâu, phạm vi ứng dụng và tiềm năng của graphene đã được bàn luận trong nhiều hội thảo khoa học. Đây là một vật liệu có ứng dụng rộng rãi và rất tiềm năng. Đặc biệt, trong lĩnh vực xử lý nước. Vì nó cấu trúc lớp hai chiều, diện tích bề mặt lớn, thể tích lỗ rỗng và sự hiện diện của các nhóm chức bề mặt [9]. Nước thải có thể được xử lý qua nhiều phương pháp khác nhau như khử muối, lắng, đong, tuyển nổi, hấp phụ, khử trùng... Chắc chắn, phương pháp hấp phụ luôn giữ vai trò quan trọng và nhiều lợi thế hơn so với các phương pháp khác. Đây là một phương pháp dễ vận hành và chi phí tương đối thấp. Để phát huy tiềm năng của graphene và giải quyết vấn đề ô nhiễm chất kháng sinh trong môi trường nước, vật liệu graphene oxit (GO) đã được nghiên cứu tổng hợp trong nghiên cứu này. Khả năng hấp phụ của GO được đánh giá qua hiệu suất hấp phụ chất kháng sinh tetracycline hydrochloric trong môi trường nước.

2. Thực nghiệm và phương pháp nghiên cứu

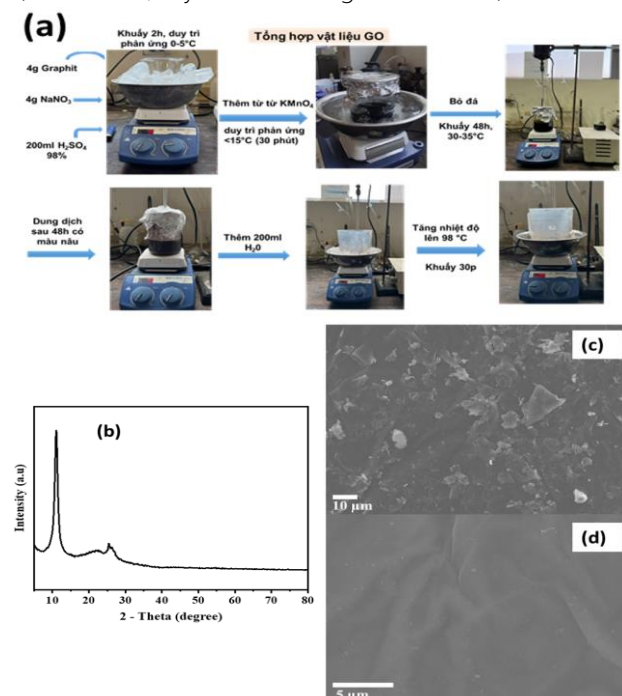
Nguyên liệu và hóa chất

Các vật liệu và hóa chất được sử dụng cho nghiên cứu này: graphit, natri nitrat (NaNO_3), axit sunfuric đặc (H_2SO_4 , 98 %), kali permanganat (KMnO_4), hydrogen

peroxide (H_2O_2) được mua ở Merck. Tetracycline hydrochloric ($\text{C}_{22}\text{H}_{24}\text{N}_2\text{O}_8 \cdot \text{HCl}$, 99%) được mua từ Hefei BoMei Biotechnology Co., Ltd, Trung Quốc. Nước cất được sử dụng trong suốt quá trình tổng hợp vật liệu và đánh giá khả năng hấp phụ chất kháng sinh.

Tổng hợp vật liệu graphene oxide (GO)

Quy trình tổng hợp được tiến hành như sau: 4 g graphit và 4 g NaNO_3 được cho vào cốc chứa 200 mL dung dịch H_2SO_4 98 %, khuấy đều trong 2 h. Phản ứng được duy trì ở 0-5 °C (cốc phản ứng được đặt trong một chậu đựng hỗn hợp nước đá và muối như trong Hình 1(a)). Sau đó, 12 g bột KMnO_4 được thêm từ từ vào hỗn hợp trên và duy trì phản ứng ở nhiệt độ nhỏ hơn 15 °C trong vòng 30 phút. Hỗn hợp này được khuấy tiếp 48 h, ở nhiệt độ 30-35 °C, thu được dung dịch có màu nâu. 200 mL dung dịch nước cất được thêm vào hỗn hợp trên (nhiệt độ tăng nhanh tới 98 °C, có khói trắng thoát ra và dung dịch có màu nâu sáng) và tiếp tục khuấy 30 phút. Để làm nguội hỗn hợp, 400 mL nước cất lại được thêm vào và khuấy đều. Sau đó, 20 mL dung dịch H_2O_2 được thêm vào và khuấy đều. Hỗn hợp này được để lắng qua đêm, rồi đem ly tâm và lọc rửa 5 lần, sấy ở 80 °C trong 72 h thu được GO.



Hình 1: (a) Quy trình tổng hợp, (b) phổ XRD, (c-d) ảnh SEM của vật liệu GO

Đặc trưng vật liệu

Hình thái của vật liệu GO được quang sát qua thiết bị kính hiển vi điện tử quét (SEM JEOL series 7600F) với điện áp landing là 10.0 kV. Phương pháp nhiễu xạ Rơnghen (XRD) được sử dụng để phân tích đặc trưng của vật liệu. Máy nhiễu xạ tia X được trang bị bức xạ Cu K α ($\lambda = 1,54060 \text{ \AA}$) ở 25 °C. Phạm vi 2 θ được quét từ 5 đến 80 ° và máy phát được đặt ở 35 mA và 40 kV.

Thực nghiệm hấp phụ tetracycline hydrochloric bằng vật liệu GO

Để đánh giá hiệu quả hấp phụ tetracycline hydrochloric (TCH) của vật liệu GO, thí nghiệm được bố trí như sau: 0,05 g GO được thêm vào cốc chứa 100 mL dung dịch TCH có nồng độ ban đầu là 20 mg/L và siêu âm cho vật liệu phân tán đều vào dung dịch. Hỗn hợp này được khuấy đều với tốc độ 250 vòng/phút. Sau 30 phút, lấy 5 mL hỗn hợp này ra lọc qua filter và đi đo UV-Vis ở bước sóng 375 nm để xác định nồng độ TCH còn lại. Khả năng hấp phụ cân bằng và tỷ lệ phần trăm loại bỏ TCH được tính theo công thức sau [10]:

$$q_e = (C_0 - C_e) \cdot V/m \quad (1)$$

$$\%R_e = (C_0 - C_t) \cdot 100\%/C_0 \quad (2)$$

Trong đó, C_0 , C_t và C_e tương ứng là nồng độ TCH (mg/L) lúc ban đầu ($t = 0$), sau thời gian t và thời điểm cân bằng hấp phụ (phút). Và m là khối lượng chất xúc tác (g), V là thể tích dung dịch (L).

3. Kết quả và thảo luận

Đặc trưng vật liệu

Kết quả XRD được trình bày trên Hình 1(b). Cực đại nhiễu xạ ở $2\theta = 11,07^\circ$ có thể được gán cho cấu trúc của GO, kết quả này phù hợp với công bố trước đó về GO [11]. Đỉnh nhiễu xạ ở $2\theta = 25,36^\circ$ đặc trưng cho graphit [11]. Dựa vào cường độ peak có thể thấy đặc trưng của graphit hầu như không còn và thay vào đó là đặc trưng của GO. Điều này chứng minh rằng các nhóm chức chứa oxy (-OH, -COOH...) đã được hình thành trong quá trình oxy hóa graphit và chèn vào khoảng không gian giữa các lớp graphit làm tăng khoảng cách giữa các lớp GO là 0.78 nm. Khoảng cách này được tính theo phương trình Bragg:

$$2d\sin\theta = n\lambda \quad (3)$$

Trong đó, d là khoảng cách giữa các mặt phẳng tinh thể, n là bậc phản xạ, λ là bước sóng X-Ray ($\lambda = 0,15406 \text{ nm}$), θ là góc Bragg. Kích thước của vật liệu GO có thể tính theo công thức Scherrer [7]:

$$D = K\lambda/\beta\cos\theta \quad (4)$$

Trong đó, K là hằng số phụ thuộc vào hình dạng tinh thể (thường $K=0,9$), λ là bước sóng tia X (0,15406 nm), θ là góc nhiễu xạ Bragg, β là độ mở rộng vạch của

mẫu ứng với một nửa cường độ cực đại tính bằng radians (FWHM). Từ đó, ta tính được kích thước trung bình của vật liệu GO là 3,73 nm.

Hình 1(c-d) cho thấy bề mặt của vật liệu GO như một tấm thảm mỏng và nhàu. Các tấm GO mỏng sắp xếp ngẫu nhiên tạo thành một chất rắn lộn xộn như trong. Bề mặt vật liệu GO lượn sóng được sắp xếp ngẫu nhiên, có hiện tượng bong tróc như trong. Vật liệu GO quan sát được có cấu trúc phân lớp riêng biệt với bề mặt phẳng, các tấm graphene cũng đã được thể hiện thông qua các nếp gấp.

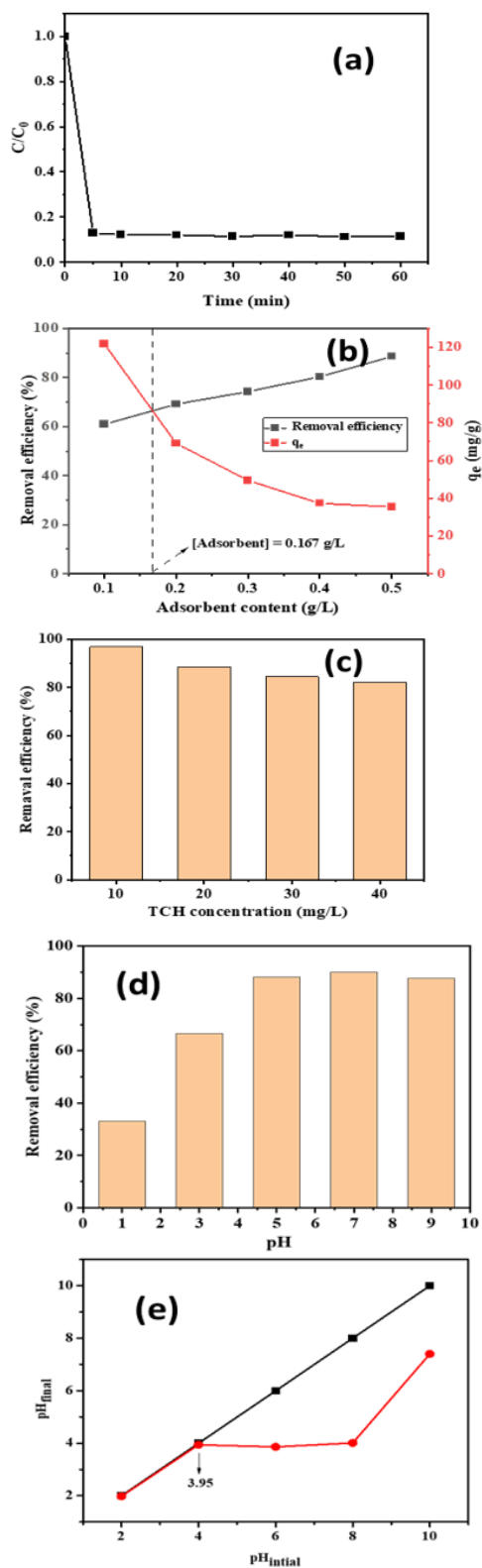
Khảo sát thời gian cân bằng hấp phụ của vật liệu GO

Trong nghiên cứu này, thí nghiệm được tiến hành với $[TCH] = 20 \text{ mg/L}$, $[GO] = 0,5 \text{ g/L}$, thời gian khảo sát từ 0 đến 60 phút. Hình 2(a) cho thấy sau 5 phút vật liệu GO đã hấp phụ được 87,07 % dung dịch TCH 20 mg/L. Sau 30 phút, hiệu suất tăng lên 88,57 %. Từ 30 đến 60 phút hiệu suất hấp phụ gần như không đổi, có thể khẳng định trạng thái cân bằng hấp phụ đã được thiết lập. Từ đó, 30 phút được chọn làm mốc thời gian cân bằng hấp phụ được áp dụng cho các nghiên cứu tiếp theo.

Các yếu tố ảnh hưởng đến khả năng hấp phụ TCH của vật liệu GO

Ảnh hưởng của hàm lượng vật liệu GO: Để nghiên cứu ảnh hưởng của hàm lượng GO đến hiệu suất hấp phụ TCH, thí nghiệm được nghiên cứu ở điều kiện $[TCH] = 20 \text{ mg/L}$, nhiệt độ phòng (25 °C), $[GO] = 0,1 - 0,5 \text{ g/L}$. Kết quả của nghiên cứu này được trình bày ở Hình 2(b).

Ta thấy rằng khi hàm lượng GO tăng từ 0,1 đến 0,5 g/L thì hiệu suất hấp phụ tăng đáng kể từ 33,07 đến 88,57 %. Điều này có thể được giải thích như sau: khi hàm lượng GO tăng dẫn đến vị trí hoạt động có sẵn của vật liệu GO nên hiệu suất hấp phụ tăng. Tuy nhiên, khi hàm lượng GO tăng lên thì giá trị q_e giảm. Với hàm lượng vật liệu GO là 0,1 g/L, giá trị q_e đạt cao nhất là 121,87 mg/g và hiệu suất chỉ đạt 33,07 %. Nhưng khi hàm lượng vật liệu GO tăng lên 0,5 g/L, hiệu suất tăng cao đạt 88,57 % và giá trị q_e giảm, chỉ đạt 35,43 mg/g. Như vậy để tối ưu về mặt hiệu suất loại bỏ TCH thì hàm lượng vật GO là 0,5 g/L là tối ưu nhất. Ngược lại, với hàm lượng 0,1 g/L là tối ưu nhất về mặt dung lượng hấp phụ. Có thể xác định được tại hàm lượng vật liệu GO là 0,167 g/L là điều kiện tốt nhất để tối ưu cả về mặt hiệu suất loại bỏ TCH và dung lượng hấp phụ. Trong nghiên cứu này, hàm lượng vật liệu GO được chọn để sử dụng trong các nghiên cứu tiếp theo là 0,5 g/L.



Hình 2: (a) Khảo sát thời gian cân bằng hấp phụ TCH của vật liệu GO, (b) ảnh hưởng của hàm lượng GO đến hiệu suất hấp phụ, (c) ảnh hưởng của nồng độ TCH đến hiệu suất hấp phụ, (d) ảnh hưởng của pH dung dịch TCH ban đầu đến hiệu suất hấp phụ và (e) đồ thị xác định $pHPZC$ của vật liệu GO

Ảnh hưởng nồng độ ban đầu của dung dịch TCH: Kết quả ở Hình 2(c) cho thấy rằng sự hấp phụ TCH của vật liệu GO giảm khi nồng độ ban đầu của dung dịch TCH tăng lên. Với nồng độ ban đầu là 10 mg/L, hiệu suất hấp phụ đạt 96,91 % sau 30 phút. Khi nồng độ ban đầu của dung dịch TCH tăng dần từ 10 đến 40 mg/L thì hiệu suất hấp phụ giảm dần từ 96,91 đến 82,07 %. Điều này có thể được giải thích như sau: khi nồng độ TCH ban đầu tăng dẫn đến mật độ các phân tử TCH trong dung dịch tăng, chúng cạnh tranh các vị trí hoạt động có sẵn trên bề mặt của vật liệu GO dẫn đến hiệu suất hấp phụ giảm.

Ảnh hưởng của pH dung dịch TCH ban đầu: pH luôn là một yếu tố quan trọng trong quá trình xử lý nước thải, đặc biệt là quá trình hấp phụ. Để nghiên cứu ảnh hưởng của pH dung dịch TCH ban đầu đến khả năng hấp phụ của vật liệu GO, pH được nghiên cứu trong khoảng từ 1 đến 9, [TCH] = 20 mg/L, [GO] = 0,5 g/L, ở nhiệt độ phòng (25 °C). Tại pH = 1, hiệu suất hấp phụ thấp đạt 33,07 % sau 30 phút. Khi pH tăng lên 3 thì hiệu suất hấp phụ tăng lên 66,57 %. Tại pH = 5, 9, hiệu suất hấp phụ gần như bằng nhau (~88 %). Hiệu suất hấp phụ đạt cao nhất (89,98 %) ở pH = 7 (Hình 2(d)). Như vậy, điều kiện pH thuận lợi cho quá trình hấp phụ chất kháng sinh TCH của vật liệu GO là pH = 7. Tetracycline hydrochloride có ba pK_a nên có thể tồn tại ở ba dạng khác nhau tùy thuộc vào pH dung dịch. Khi pH dưới 4, TCH tồn tại dưới dạng cation (TCH_3^+), do sự proton hóa của nhóm dimethyl-ammonium. Ở độ pH trong khoảng từ 3,5 đến 7,5, TCH tồn tại dưới dạng zwitterion (TCH_2^0), do mất một proton từ nhóm phenolic diketone. Ở pH trên 7,5, TCH tồn tại dưới dạng anion (TCH^- hoặc TC_2^-) do mất proton từ hệ thống tri-cacbonyl và gốc phenolic di-ketone [12]. Ngoài ra, tính chất điện tích bề mặt của chất hấp phụ cũng phụ thuộc vào độ pH. Giá trị $pHPZC$ của GO đã được nghiên cứu đạt 3,95 như trong Hình 2(e); cho thấy khi $pH < 3,95$, bề mặt chất hấp phụ tích điện dương, $pH > 3,95$ bề mặt chất hấp phụ tích điện âm. Do đó, ở môi trường axit mạnh ($pH = 1$ và 3), bề mặt chất hấp phụ sẽ hấp phụ kém các cation TCH_3^+ , tương tự, ở môi trường bazơ ($pH = 9$), hiệu suất hấp phụ giảm do lực đẩy tĩnh điện giữa bề mặt tích điện âm của GO và TCH. Mặt khác, ở môi trường trung tính ($pH = 7$), hiệu suất hấp phụ tốt nhất, xấp xỉ 90%, điều này có thể được giải thích do lực đẩy tĩnh điện không quá lớn giữa bề mặt tích điện âm của GO và TCH_2^0 nên không gây cản trở khả năng hấp phụ của vật liệu.

Động học hấp phụ

Phương trình bậc nhất và bậc hai được sử dụng để nghiên cứu động học của quá trình hấp phụ chất kháng sinh TCH trên vật liệu GO.

Phương trình bậc nhất:

$$\ln(q_e - q_t) = \ln q_e - k_1 \cdot t \quad (5)$$

Phương trình bậc hai:

$$t/q_t = 1/(k_2 q_e^2) + t/q_e \quad (6)$$

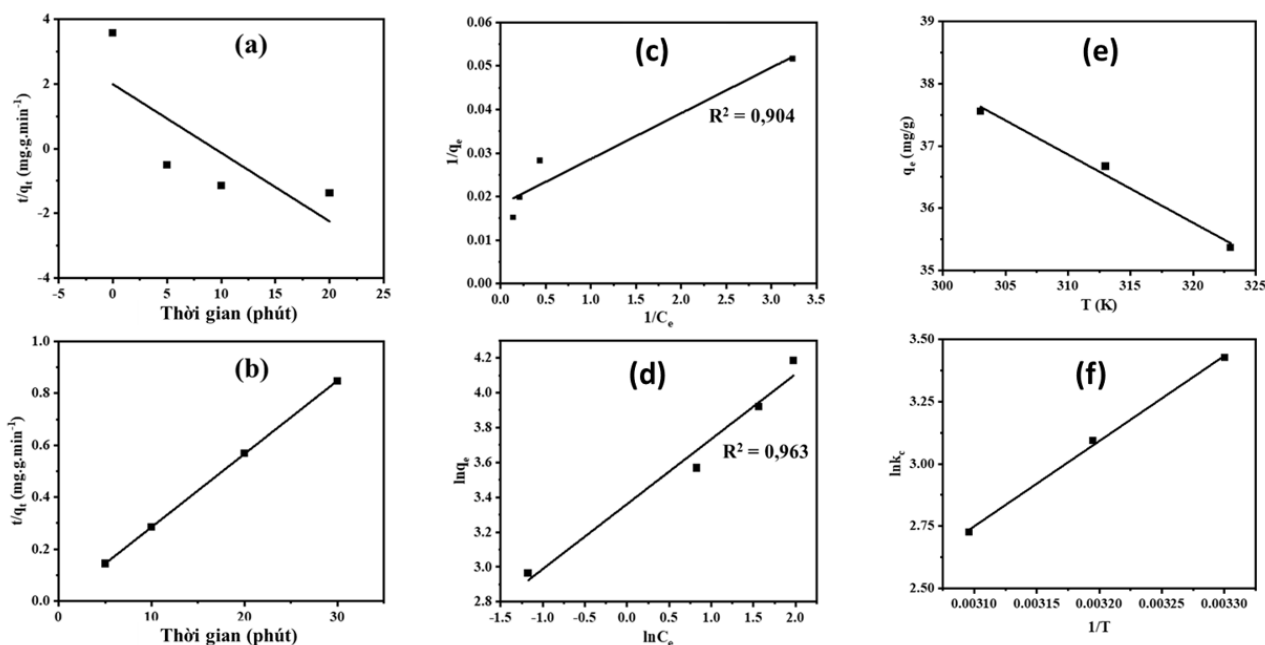
Trong đó q_t , q_e là lượng TCH hấp phụ tại thời điểm t và tại thời điểm cân bằng (mg/g). k_1 , k_2 lần lượt là các hằng số tốc độ của hai phương trình.

Hình 3(a-b) thể hiện phương trình động học bậc nhất và bậc hai của quá trình hấp phụ chất kháng sinh TCH của vật liệu GO. Có thể thấy hệ số hồi quy (R^2) của phương trình bậc nhất và bậc hai lần lượt là 0,408 và

0,999. Giá trị q_e (35,714 mg/g) tính theo phương trình bậc hai gần với giá trị q_e (35,43 mg/g) tính từ thực nghiệm (Bảng 1). Điều này chỉ ra rằng mô hình động học bậc hai phù hợp với quá trình hấp phụ TCH trên GO hơn.

Bảng 1: Các thông số động học của quá trình hấp phụ TCH trên vật liệu GO

$q_{e, \text{exp}}$ (mg/g)		35,43
Phương trình bậc nhất	$q_{e, \text{cal}}$ (mg/g)	7,260
	k_1 (min^{-1})	0,211
	R^2	0,408
Phương trình bậc hai	$q_{e, \text{cal}}$ (mg/g)	35,714
	k_2 (g/mg.min)	0,028
	R^2	0,999



Hình 3: (a) Đồ thị động học bậc nhất và (b) đồ thị động học bậc hai, (c) đường hấp phụ đẳng nhiệt Langmuir và (d) Freundlich của TCH trên vật liệu GO, (e) ảnh hưởng của nhiệt độ đến khả năng hấp phụ của TCH trên GO và (f) biểu đồ Van't hoff

Đẳng nhiệt hấp phụ

Kết quả xác định nồng độ cân bằng C_e của quá trình hấp phụ TCH trên vật liệu GO được thể hiện ở Bảng 2. Dựa vào mô hình đẳng nhiệt hấp phụ Langmuir và Freundlich xây dựng mối quan hệ giữa q_e và C_e và kết quả được trình bày trong Hình 3(c-d). Kết quả cho thấy mô hình đẳng nhiệt Freundlich có hệ số hồi quy ($R^2 = 0,963$) cao hơn so với mô hình của Langmuir ($R^2 = 0,904$). Do đó, quá trình hấp phụ TCH trên GO tuân theo mô hình đẳng nhiệt Freundlich.

Bảng 2: Đẳng nhiệt hấp phụ của vật liệu GO.

C_o (mg/L)	C_e (mg/L)	q_e (mg/g)	m (g)	V (L)
10	0,309	19,382	0,05	0,1
20	2,286	35,428	0,05	0,1
30	4,793	50,414	0,05	0,1
40	7,173	65,654	0,05	0,1

Nhiệt động hấp phụ

Bảng 3: Các thông số nhiệt động của quá trình hấp phụ TCH trên vật liệu GO

Nhiệt độ (K)	$\ln k_c$	ΔG° (kJ.mol ⁻¹)	ΔH° (kJ.mol ⁻¹)	ΔS° (J.mol ⁻¹ .K ⁻¹)
303	3,425	-8,628	-26,177	-57,920
313	3,093	-8,048		
323	2,726	-7,320		

Quá trình hấp phụ TCH được tiến hành ở các nhiệt độ 30, 40 và 50 °C để nghiên cứu các đặc tính nhiệt động học hấp phụ của quá trình. Các thông số nhiệt động như năng lượng tự do tiêu chuẩn (ΔG°), entropy tiêu chuẩn (ΔS°), entany tiêu chuẩn (ΔH°) được tính theo các phương trình sau [13]:

$$\Delta G^\circ = -RT \ln k_c \quad (7)$$

$$k_c = q_e/C_e \quad (8)$$

$$\ln k_c = (-\Delta H^\circ/RT) + (\Delta S^\circ/R) \quad (9)$$

Trong đó R là hằng số khí (8,314 J.mol⁻¹.K⁻¹), T là nhiệt độ tuyệt đối (K). C_e (mg/L), q_e (mg/g), lần lượt là nồng độ cân bằng và lượng hấp phụ cân bằng. k_c là hằng số cân bằng. Các thông số nhiệt động được trình bày trong Bảng 3. Đồ thị và biểu đồ Van't Hoff được thể hiện ở Hình 3(e-f). Tại các nhiệt độ khác nhau, ΔG° đều có giá trị âm, điều này chứng minh rằng quá trình hấp phụ TCH của vật liệu GO là quá trình tự phát. TCH của vật liệu GO xảy ra thuận lợi và hiệu quả hơn. Khi tăng nhiệt độ, các phân tử TCH chuyển từ pha rắn sang pha lỏng do tính di động của chúng ngày càng tăng. Do đó, lượng thuốc kháng sinh TCH hấp phụ sẽ giảm. Giá trị ΔH° âm (-26,177 kJ.mol⁻¹) cho thấy quá trình hấp phụ TCH của vật liệu GO là quá trình tỏa nhiệt và giá trị ΔS° âm (-57,920 J.mol⁻¹.K⁻¹) cho thấy mức độ tự do của các tiểu phân trong hệ. Khi nhiệt độ tăng thì giá trị ΔG° tăng, điều này cho thấy ở nhiệt độ thấp quá trình hấp phụ

4. Kết luận

Đã tổng hợp thành công vật liệu GO, có khả năng hấp phụ chất kháng sinh TCH trong môi trường nước. Kết quả nghiên cứu cho thấy khả năng hấp phụ TCH của vật liệu GO là khá cao đạt hiệu suất xấp xỉ 88,57 % với nồng độ đầu của TCH là 20 mg/L với thời gian hấp phụ là 30 phút. Các yếu tố ảnh hưởng đến quá trình hấp phụ của TCH trên GO thích hợp là nồng độ đầu của TCH là 20 mg/L, pH = 7,0, hàm lượng GO là 0,5 g/L. Quá trình hấp phụ TCH của vật liệu GO tuân theo phương trình động học bậc hai và tuân theo mô hình đẳng nhiệt hấp phụ Freundlich với dung lượng hấp phụ cực đại là $q_{max} = 65,654$ mg/g. Quá trình hấp phụ chất kháng sinh TCH của vật liệu GO là tỏa nhiệt. Quá

trình này diễn ra thuận lợi và hiệu quả ở nhiệt độ thấp. Kết quả này mở ra triển vọng ứng dụng vật liệu GO trong lĩnh vực xử lý môi trường nước.

Lời cảm ơn

Nguyễn Thu Hương được tài trợ bởi Chương trình học bổng đào tạo thạc sĩ, tiến sĩ trong nước của Quỹ Đổi mới sáng tạo Vingroup (VINIF), mã số VINIF.2023.ThS.061. Nghiên cứu này được Bộ Giáo dục và Đào tạo Việt Nam tài trợ theo đề tài khoa học công nghệ với mã số CT2022.04.BKA.01.

Tài liệu tham khảo

- Bao, K. A. Maruya, S. A. Snyder, and E. Y. Zeng, *Environmental Pollution* 163 (2012) 100-108. <https://doi.org/10.1016/j.envpol.2011.12.022>
- B. Moss, *Philosophical Transactions of The Royal Society B*, 363(1491) (2008) 659-666. <https://doi.org/10.1098/rstb.2007.2176>
- R. P. Schwarzenbach, T. Egli, T. B. Hofstetter, U. Von Gunten, and B. Wehrli, *Annual Review of Environment and Resources*, 35 (2010) 109-136. <https://doi.org/10.1146/annurev-environ-100809-125342>
- H. Phan, S. Managaki, N. Nakada, H. Takada, A. Shimizu, D. Anh, P. Viet, S. Suzuki, *Science of The Total Environment*, 409(15) (2011) 2894-2901. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2011.04.030>
- R. Hao, X. Xiao, X. Zuo, J. Nan, and W. Zhang, *J. Hazard. Mater.*, 209 (2012) 137-145. <https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2012.01.006>
- C.-Y. Pei, Y.-G. Chen, L. Wang, W. Chen, and G.-B. Huang, *Appl. Surf. Sci.*, 535 (2021) 147682. <https://doi.org/10.1016/j.apsusc.2020.147682>
- T. H. Nguyen and A.-T. Vu, *Bulletin of Chemical Reaction Engineering & Catalysis*, 17(4) (2022) 786-797. <https://doi.org/10.9767/bcrec.17.4.16090.786-797>
- Y. Yan, J. H. Liu, R. S. Li, Y. F. Li, C. Z. Huang, and S. J. Zhen, *Anal. Chim. Acta*, 1063 (2019) 144-151. <https://doi.org/10.1016/j.aca.2019.02.047>
- G. Z. Kyzas, E. A. Deliyanni, and K. A. Matis, *Journal of Chemical Technology and Biotechnology* 89(2) (2014) 196-205. <https://doi.org/10.1002/jctb.4220>
- H. Mac Van and A.-T. Vu, *Vietnam Journal of Catalysis and Adsorption* 9(4) (2020) 93-99. <https://doi.org/10.51316/jca.2020.076>
- K. Krishnamoorthy, M. Veerapandian, K. Yun, and S.-J. Kim, *Carbon* 53 (2013) 38-49. <https://doi.org/10.1016/j.carbon.2012.10.013>
- Y. Zhao, X. Gu, S. Gao, J. Geng, and X. Wang, *Geoderma*, 183 (2012) 12-18. <https://doi.org/10.1016/j.geoderma.2012.03.004>
- H. R. Mahmoud, S. M. Ibrahim, and S. A. El-Molla, *Advanced Powder Technology*, 27(1) (2016) 223-231. <https://doi.org/10.1016/j.apt.2015.12.006>