Vietnam Journal of Catalysis and Adsorption
Tạp chí xúc tác và hấp phụ Việt Nam

https://jca.edu.vn

Biến tính diatomite với Zn hoặc/và Fe và ứng dụng làm chất xúc tác để phân hủy phenol trong hệ phản ứng kiểu Fenton

Modification of diatomite with Zn or/and Fe and its application as a catalyst for phenol decomposition in the Fenton-type reaction system

Phạm Đình Dũ[1], Đinh Quang Khiếu[2], Huỳnh Thanh Danh[2,3,*]

[1] *Trường Đại học Thủ Dầu Một, Bình Dương, Việt Nam*
[2] *Trường Đại học Khoa học, Đại học Huế, thành phố Huế, Việt Nam*
[3] *Trường THPT Giồng Riềng, Kiên Giang, Việt Nam*
** Email: danhht.c3gr@gmail.com*

ARTICLE INFO

Received: 05/03/2024
Accepted: 24/06/2024
Published: 30/06/2025

Keywords:
Zn/Fe-diatomite composite; catalyst; phenol; Fenton system.

ABSTRACT

In this paper, diatomite was modified with Zn or/and Fe by hydrothermal method. The material was characterized by using energy-dispersive X-ray spectroscopy, Fourier-transform infrared spectroscopy, scanning electron microscopy, and nitrogen adsorption-desorption isotherms. The catalytic activity of the material was evaluated through the oxidation reaction of phenol with hydrogen peroxide. The results showed that the diatomite modified with Fe or Zn-Fe mixture has high catalytic activity, and phenol can be completely oxidized on these catalysts to form simple carboxyl acids. The Zn-diatomite composite has almost no catalytic activity in the Fenton-type reaction system, but the simultaneous modification of Zn and Fe on diatomite has increased the durability and reusability of the catalytic material.

Giới thiệu chung

Phenol được biết đến như một trong những đại diện quan trọng nhất của các chất ô nhiễm hữu cơ khó phân hủy vì nó độc hại ngay cả ở nồng độ thấp [1]. Ngoài ra, sự hiện diện của nó trong nước tự nhiên có thể dẫn đến sự hình thành các hợp chất thay thế trong quá trình khử trùng bằng clo (disinfection byproducts, DBPs [2]). Hơn nữa, phenol thường được sử dụng như một chất ô nhiễm mô phỏng cho các nghiên cứu xử lý nước thải tiên tiến, do nó thường xuất hiện trong nước thải công nghiệp như các nguyên liệu thô (ví dụ: từ các ngành công nghiệp hóa dầu, hóa chất và dược phẩm) [3]. Ngoài ra, phenol còn được coi là sản phẩm trung gian trong quá trình oxi hóa các hydrocarbon thơm có khối lượng phân tử lớn hơn [4]. Một lợi thế nữa của quá trình oxi hóa phenol là sự hình thành các dihydroxybenzene, là sản phẩm chính của phản ứng, được sử dụng rộng rãi trong công nghiệp hóa chất [4].

Nhiều phương pháp khác nhau đã được sử dụng để oxi hóa phenol như phương pháp điện hóa, phương pháp oxi hóa bằng O_2, phương pháp oxi hóa dựa trên hệ H_2O_2/xúc tác,... Trong đó, phương pháp oxi hóa dựa trên hệ H_2O_2/xúc tác được xem là những quá trình oxi hóa nâng cao (advanced oxidation processes, AOPs), do quá trình tạo ra gốc hydroxyl ($HO^{\bullet}$) có thế oxi hóa cao ($E° = 2,8\ V_{NHE}$) và có khả năng oxi hóa không chọn lọc hầu hết các hợp chất hữu cơ thành CO_2, H_2O và các ion vô cơ [5]. Trong các quá trình AOPs, quá trình kiểu Fenton dị thể được quan tâm nghiên cứu nhiều nhất, trong đó, các chất xúc tác dị thể có chứa các dạng kim loại khác

https://doi.org/10.62239/jca.2025.019

nhau (chủ yếu là Fe^{3+}) được cố định trên một chất nền và được sử dụng để tạo ra gốc $HO^{\bullet}$ trong điều kiện pH không được kiểm soát [5]. Nhiều chất nền khác nhau đã được sử dụng để gắn kim loại và ứng dụng làm xúc tác trong hệ phản ứng giống Fenton dị thể [5,6], trong đó có diatomite [7,8].

Diatomite là một loại đá trầm tích với tỷ trọng thấp, cỡ hạt nhỏ, bao gồm chủ yếu là silica vô định hình ($SiO_2 \cdot nH_2O$) có nguồn gốc từ tảo cát (diatoms). Cấu trúc của diatomite bao gồm một loạt các hình dạng khác nhau và đặc trưng bởi độ xốp cao (lên đến 80%), diện tích bề mặt riêng tương đối cao hơn so với các khoáng tự nhiên khác, và thay đổi tuỳ theo nguồn gốc của nó, thông thường từ 1,0 đến 51 m^2/g, và có nhiều nhóm hydroxyl trên bề mặt [7,8,9]. Đồng thời, nguồn diatomite trong tự nhiên lớn, giá thành thấp và là loại vật liệu thân thiện với môi trường [8].

Trong bài báo này, vật liệu diatomite biến tính với Zn hoặc/và Fe được điều chế bằng phương pháp thủy nhiệt và ứng dụng làm chất xúc tác trong hệ phản ứng kiểu Fenton để phân hủy phenol trong dung dịch nước. Ảnh hưởng của nhiệt độ đến hiệu suất phân hủy phenol, độ bền và khả năng tái sử dụng vật liệu đã được khảo sát.

Thực nghiệm và phương pháp nghiên cứu

Vật liệu và phương pháp đặc trưng

Diatomite được lấy từ mỏ Tuy An (tỉnh Phú Yên). Diatomite thô được loại bỏ các tạp chất hữu cơ bằng phương pháp rửa và sa lắng nhiều lần với nước, lọc, sấy khô ở 100 °C, sau đó cất giữ trong bì kín để sử dụng cho các thí nghiệm tiếp theo.

$Zn(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$ (Fisher, Belgium), $FeCl_3 \cdot 6H_2O$ (Merck, Germany), C_6H_5OH (Merck, Germany) và H_2O_2 30% (w/v) (Fisher, Korea) là những hóa chất tinh khiết và được sử dụng mà không cần tinh chế thêm.

Hàm lượng các nguyên tố có trong mẫu được phân tích bằng phương pháp phổ tán xạ năng lượng tia X (EDX) trên máy JEOL (JED-2300 AnalysisStation). Ảnh hiển vi điện tử quét (SEM) được quan sát bằng máy S-4800 10.0kV. Diện tích bề mặt riêng được xác định bằng phương pháp Brunauer-Emmett-Teller (S_{BET}) từ dữ liệu đẳng nhiệt hấp phụ-khử hấp phụ nitrogen ở 77 K trên máy Tristar 3000. Trước khi đo, các mẫu được xử lý nhiệt với N_2 ở 200 °C trong 5 giờ. Đặc trưng của các nhóm chức trên bề mặt vật liệu được ghi bằng phổ FT-IR trên máy Jasco FT/IR-4600 (Japan), mẫu được phân tán trên nền KBr. Sắc ký lỏng hiệu năng cao (HPLC) được thực hiên trên máy UFLC Shimadzu (Japan). Điều kiện thực nghiệm: detector SPD-20A quét ở bước sóng 254 nm, cột C18, hệ dung môi acetonitrin/methanol/nước với tỉ lệ 1/1/8 về thể tích, tốc độ pha động 1 mL/phút.

Biến tính diatomite với Zn hoặc/và Fe

Qui trình biến tính diatomite với kim loại kẽm được thực hiện theo các bước sau đây:

Bước 1: Pha dung dịch zinc nitrate bằng cách lấy 2,975 g $Zn(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$ hòa tan trong 30 mL nước cất. Sau đó, đun sôi 150 mL nước cất, nhỏ từ từ (nhỏ giọt) dung dịch zinc nitrate vào để tạo ra hệ keo $Zn(OH)_2$.

Bước 2: Cân 2,0 g diatomite cho vào hệ keo ở bước 1.

Bước 3: Cho toàn bộ hỗn hợp trên vào bình Teflon bọc thép (dung tích 200 mL) và đặt ở 100 °C trong 6 giờ. Để nguội bình phản ứng (bình Teflon), lọc lấy sản phẩm rắn, rửa nhiều lần bằng nước cất, sấy khô ở 100 °C thu được Zn-diatomite, kí hiệu Zn-Dia(5).

Qui trình biến tính diatomite với kim loại sắt, hoặc hỗn hợp sắt và kẽm, cũng được thực hiện theo các bước như trên với tiền chất $FeCl_3 \cdot 6H_2O$, hoặc hỗn hợp $FeCl_3 \cdot 6H_2O$ và $Zn(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$, được sử dụng ở Bước 1. Các mẫu được kí hiệu tương ứng là Fe-Dia(5) và Fe-Zn-Dia(5-5). Ở đây, số 5 biểu thị tỉ lệ mmol kim loại/g diatomite khô được đưa vào ban đầu.

Khảo sát phản ứng oxi hoá phenol sử dụng hydrogen peroxide

Hoạt tính xúc tác của vật liệu được khảo sát đối với phản ứng oxi hóa phenol trong dung dịch nước sử dụng H_2O_2 trong bình cầu hai cổ có gắn sinh hàn hồi lưu. Trong mỗi thí nghiệm, 0,1 g chất xúc tác được khuấy trộn với 100 mL dung dịch phenol nồng độ 1,0 g/L và 2 mL H_2O_2 30% ở nhiệt độ xác định (30–70 °C). Sau mỗi khoảng thời gian xác định, 5 mL dung dịch được lấy ra, lọc để loại bỏ chất xúc tác, nồng độ của phenol còn lại được xác định bằng phương pháp HPLC.

Độ chuyển hoá phenol, α (%), được tính như sau:

$$\alpha\ (\%) = \frac{S_0 - S_t}{S_0} \times 100 \quad (1)$$

Trong đó, S_0 và S_t là diện tích peak phenol tương ứng với thời điểm ban đầu và thời điểm t.

Kết quả và thảo luận

Tính chất đặc trưng của vật liệu

Thành phần hóa học của diatomite và các mẫu diatomite biến tính với Zn hoặc/và Fe được phân tích bằng EDX. Kết quả liệt kê ở Bảng 1 cho thấy Si là

https://doi.org/10.62239/jca.2025.019

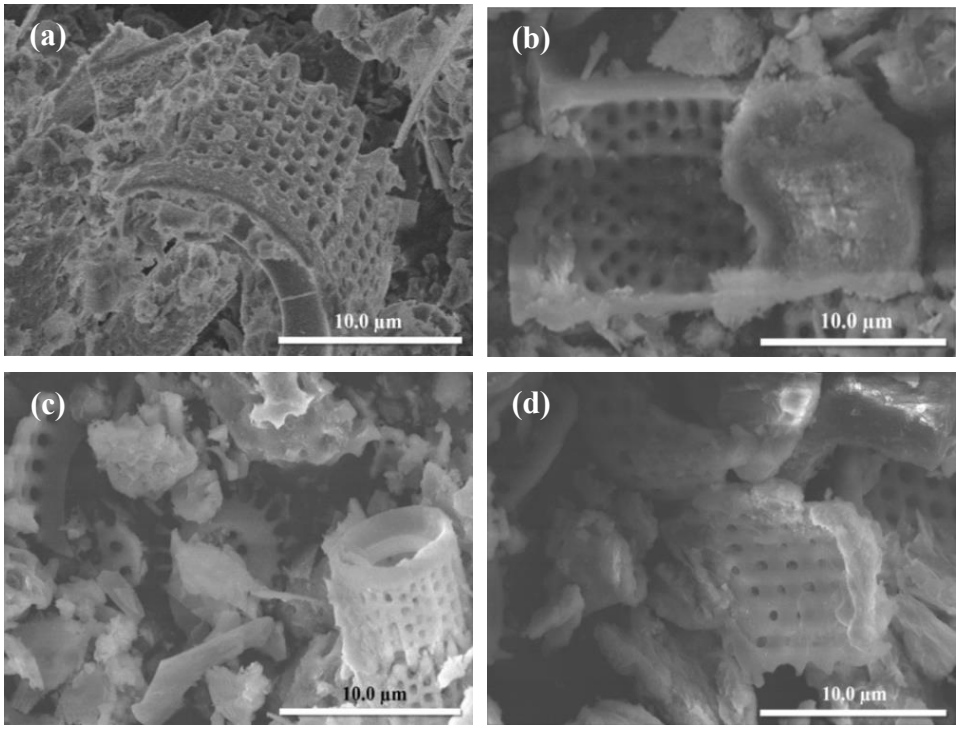
nguyên tố chính trong khoáng diatomite (36,07%). Ngoài ra, khoáng diatomite còn có một ít nguyên tố Al (3,14%) và một số hợp chất hữu cơ với hàm lượng nguyên tố C chiếm 3,66%. Đối với các mẫu diatomite biến tính với Zn hoặc/và Fe, kết quả phân tích cho thấy sự xuất hiện của nguyên tố Fe, Zn (ngoài các nguyên tố tương tự như trong mẫu diatomite) và một lượng nhỏ nguyên tố Mg, Cl. Theo kết quả phân tích và công bố trong tài liệu [10], diatomite Phú Yên có chứa hàm lượng sắt khá lớn (4,5%) và một số nguyên tố khác với hàm lượng thấp hơn, như Ti, Ca, K, Mg. Sự khác nhau về kết quả này có thể là do sự phân bố không đồng đều của các tạp chất trong khoáng, cũng có thể do hàm lượng quá thấp (dưới giới hạn định lượng của thiết bị). Sự xuất hiện của nguyên tố Cl có lẽ là từ các tiền chất biến tính. Nguyên tố Fe, Zn tồn tại trong các mẫu diatomite biến tính chứng minh rằng vật liệu composite trên nền diatomite chứa Zn, Fe, hoặc đồng thời Fe-Zn đã được điều chế thành công.

Ảnh SEM của diatomite (Hình 1a) cho thấy cấu trúc chính của diatomite Phú Yên có dạng hình trụ tròn đường kính khoảng 5–7 μm với nhiều mao quản nhỏ trên bề mặt. Bên cạnh đó, còn có nhiều mảnh nhỏ với hình dạng không xác định, đây có lẽ là những mảnh vỡ của các cấu trúc trên. Sự biến tính diatomite với Zn hoặc/và Fe hầu như không ảnh hưởng đến cấu trúc của vật liệu (Hình 1b–d). Ảnh SEM của các mẫu này cho thấy có các vùng sáng trên bề mặt của vật liệu, các vùng này có thể được tạo ra bởi nguyên tố Fe hoặc Zn (do có nguyên tử khối lớn).

Bảng 1: Thành phần nguyên tố có trong các mẫu vật liệu

Mẫu	Phần trăm theo khối lượng*							
	C	O	Al	Si	Mg	Cl	Fe	Zn
Diatomite	3,66	56,86	3,41	36,07	–	–	–	–
Zn-Dia(5)	3,80	56,61	3,92	35,44	–	–	–	0,22
Fe-Dia(5)	7,09	40,63	3,85	24,28	0,15	1,74	22,25	–
Fe-Zn-Dia(5-5)	3,98	52,99	2,22	34,42	–	0,47	5,50	0,43
Fe-Dia(5) thu hồi	6,32	51,20	3,39	31,98	–	–	7,12	–
Fe-Zn-Dia(5-5) thu hồi	8,66	48,04	4,60	26,31	–	0,20	11,92	0,28

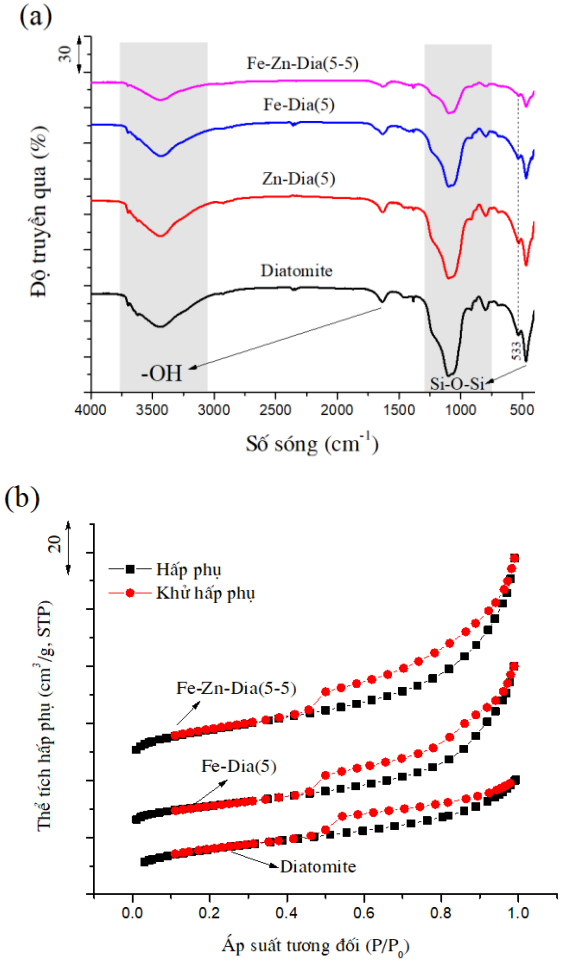
Giá trị trung bình của 3 vùng phân tích.



Hình 1: Ảnh SEM: a) Diatomite, b) Zn-Dia(5), c) Fe-Dia(5), và d) Fe-Zn-Dia(5-5)

https://doi.org/10.62239/jca.2025.019

Các đỉnh hấp thụ đặc trưng trên phổ FT-IR của diatomite và các mẫu diatomite biến tính là tương tự nhau (Hình 2a). Peak hấp thụ tại 1100, 797 và 470 cm^{-1} đặc trưng cho các dao động của liên kết Si–O–Si. Các peak nằm trong vùng 3700–3200 cm^{-1} và tại 1637 cm^{-1} đặc trưng cho dao động của liên kết O–H, gồm Si–OH, Me–OH (Me là kim loại) và H_2O hấp phụ tự do. Peak tại 533 cm^{-1} được quy cho dao động hóa trị của liên kết Me–O [8,9]. Điều đáng chú ý là cường độ của các peak hấp thụ này trên các mẫu diatomite biến tính thấp hơn so với diatomite ban đầu, trong đó, mẫu Fe-Zn-Dia(5-5) có cường độ các đỉnh hấp thụ thấp nhất. Nguyên nhân của vấn đề này được cho là do sự tương tác hóa học giữa các nhóm silanol bề mặt với các oxide [9].

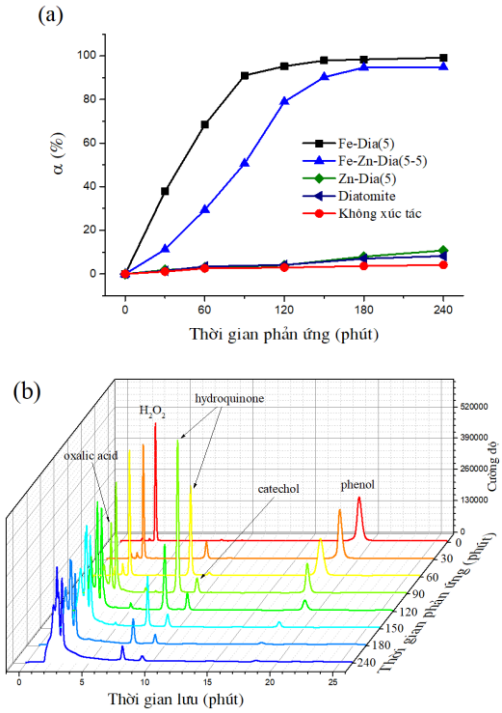


Hình 2: a) Phổ FT-IR của diatomite và các mẫu diatomite biến tính với Zn hoặc/và Fe; b) Đường đẳng nhiệt hấp phụ-khử hấp phụ nitrogen của diatomite, Fe-Dia(5) và Fe-Zn-Dia(5-5)

Đường đẳng nhiệt hấp phụ-khử hấp phụ nitrogen của diatomite, Fe-Dia(5) và Fe-Zn-Dia(5-5) đều thuộc loại II và vòng trễ loại H3 (Hình 2b), chỉ ra sự tồn tại của các cấu trúc đại mao quản với kích thước và/hoặc hình dạng không đồng đều [11]. Diatomite có diện tích bề mặt riêng lớn (55,4 m^2/g). Sự biến tính diatomite với sắt làm giảm diện tích bề mặt của vật liệu (S_{BET} của mẫu Fe-Dia(5) là 40,0 m^2/g), trong khi đó, sự biến tính vật liệu với đồng thời Fe-Zn lại làm tăng diện tích bề mặt (S_{BET} của mẫu Fe-Zn-Dia(5-5) là 63,2 m^2/g).

Đánh giá hoạt tính xúc tác của vật liệu

Độ chuyển hóa phenol theo thời gian phản ứng trên các mẫu vật liệu khác nhau được trình bày ở Hình 3a. Có thể thấy rằng phenol rất bền và hầu như không bị phân hủy bởi H_2O_2 khi không có mặt chất xúc tác. Với sự có mặt của diatomite hoặc Zn-Dia(5) thì độ chuyển hóa của phenol cũng rất thấp (chỉ đạt 8–10% sau 240 phút phản ứng), chỉ ra rằng Zn-Dia(5) và diatomite hầu như không có hoạt tính xúc tác. Với sự có mặt của mẫu Fe-Dia(5) thì độ chuyển hóa phenol tăng lên rất nhanh, đạt được xấp xỉ 91% ở 90 phút và >99% sau 240 phút phản ứng. Độ chuyển hóa cũng đạt được 95% sau 240 phút phản ứng trên Fe-Zn-Dia(5-5). Tuy nhiên, tốc độ chuyển hóa phenol xảy ra chậm hơn so với sự có mặt của mẫu Fe-Dia(5). Nguyên nhân có thể là do hàm lượng sắt trên bề mặt vật liệu của mẫu Fe-Zn-Dia(5-5) thấp hơn so với mẫu Fe-Dia(5) (Bảng 1). Điều này chứng tỏ sắt được phân bố trên bề mặt diatomite đã đóng vai trò như các tâm xúc tác trong hệ phản ứng kiểu Fenton [6,7,8].



Hình 3: a) Độ chuyển hóa phenol trong điều kiện không có xúc tác và trên các mẫu xúc tác khác nhau; b) Sắc ký đồ HPLC của dung dịch phản ứng oxi hóa phenol bởi H_2O_2 trên xúc tác Fe-Zn-Dia(5-5) (Điều kiện phản ứng: 100 mL phenol 1 g/L; 2 mL H_2O_2 30%, 0,1 g chất xúc tác; nhiệt độ phản ứng 50 °C)

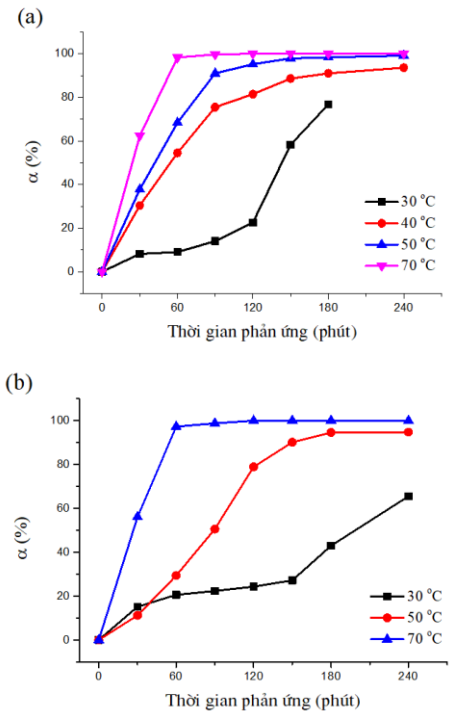
https://doi.org/10.62239/jca.2025.019

Hình 3b trình bày sắc ký đồ HPLC của dung dịch phản ứng oxi hóa phenol bởi H_2O_2 trên Fe-Zn-Dia(5-5). Theo thời gian phản ứng, trong dung dịch tồn tại một số sản phẩm khác ngoài phenol và H_2O_2, bao gồm hydroquinone, catechol, oxalic acid,... (các sản phẩm được xác định dựa vào công bố của Khieu và cộng sự [6]). Có thể thấy rằng cường độ của peak hydroquinone (ở thời gian lưu khoảng 8 phút) tăng lên đáng kể so với các sản phẩm khác. Điều này chỉ ra rằng sản phẩm trung gian chính của quá trình oxi hóa phenol trên chất xúc tác này là hydroquinone, sau đó, mở vòng để tạo thành các carboxyl acid có số carbon thấp hơn. Sau 90 phút, cường độ peak của cả hydroquinone và catechol cũng giảm dần tương tự phenol, và còn lại rất ít sau 240 phút phản ứng, chứng tỏ các chất này đã bị phân hủy gần hết. Kết quả này chứng tỏ Fe-Zn-Dia(5-5) có hoạt tính xúc tác rất cao, có thể xúc tác để phân hủy hoàn toàn phenol tạo thành các carboxyl acid đơn giản, hay có thể khoáng hóa hoàn toàn để tạo thành CO_2 và H_2O.

Khảo sát phản ứng oxi hóa phenol trên xúc tác Fe-Dia(5) và Fe-Zn-Dia(5-5)

Ảnh hưởng của nhiệt độ phản ứng

Độ chuyển hóa phenol trên Fe-Dia(5) và Fe-Zn-Dia(5-5) trong khoảng nhiệt độ phản ứng 30–70 °C được trình bày ở Hình 4.



Hình 4: Độ chuyển hóa phenol ở các nhiệt độ phản ứng khác nhau: a) Xúc tác Fe-Dia(5), b) Xúc tác Fe-Zn-Dia(5-5) (Điều kiện phản ứng: 100 mL phenol 1 g/L; 2 mL H_2O_2 30%, 0,1 g chất xúc tác)

Ở 30 °C, độ chuyển hóa phenol xảy ra chậm, chỉ đạt khoảng 20% sau 120–150 phút phản ứng trên cả hai mẫu xúc tác. Sau đó, độ chuyển hóa phenol tăng nhanh và đạt được 76,7% ở 180 phút trên Fe-Dia(5) và 65,6% ở 240 phút trên Fe-Zn-Dia(5-5). Khi tăng nhiệt độ phản ứng từ 30 đến 50 °C thì độ chuyển hóa phenol tăng nhanh, chỉ ra rằng nhiệt độ có ảnh hưởng đáng kể đến tốc độ phản ứng. Hình 4 cũng cho thấy độ chuyển hóa phenol trên Fe-Dia(5) tăng nhanh hơn so với trên Fe-Zn-Dia(5-5). Kết quả tương tự đã quan sát thấy ở Hình 3a. Tuy nhiên, tốc độ chuyển hóa phenol trên cả hai xúc tác đều tăng mạnh và xảy ra tương tự nhau ở nhiệt độ phản ứng 70 °C, độ chuyển hóa đạt 97–99% sau 60 phút phản ứng. Độ chuyển hóa phenol đạt được tương tự như công bố của Son và cộng sự [7] khi thực hiện trên xúc tác F-diatomite hay FM-diatomite, nhưng nhiệt độ phản ứng trong nghiên cứu này thấp hơn đáng kể (70 °C so với 90 °C).

Độ bền và khả năng tái sử dụng vật liệu

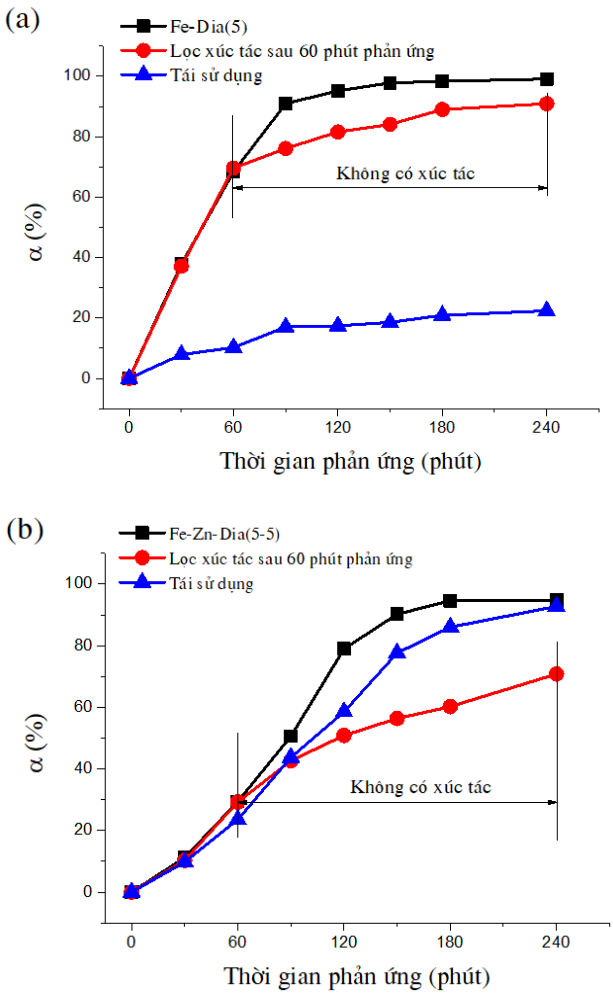
Để kiểm tra độ bền của vật liệu, một thí nghiệm lọc được tiến hành bằng cách tiếp tục theo dõi dung dịch sau khi lọc chất xúc tác ra khỏi hệ phản ứng. Nếu kim loại trong vật liệu bị rửa trôi vào dung dịch thì lúc này phản ứng sẽ trở thành hệ Fenton đồng thể [6,7], nghĩa là độ chuyển hóa phenol vẫn tăng rất nhanh sau khi loại bỏ vật liệu. Chất xúc tác sau khi sử dụng cũng được thu hồi và sử dụng lại nhằm đánh giá khả năng tái sử dụng. Các kết quả đánh giá độ bền và khả năng tái sử dụng của vật liệu được trình bày ở Hình 5.

Kết quả theo dõi dung dịch sau khi lọc vật liệu ra khỏi hệ phản ứng cho thấy độ chuyển hóa phenol vẫn tăng trong cả hai hệ xúc tác, tuy nhiên, tốc độ chuyển hóa xảy ra chậm hơn so với sự có mặt của chất xúc tác ban đầu. Nguyên nhân của vấn đề này có thể là do một phần sắt/ kẽm trong vật liệu đã rửa trôi vào dung dịch và hệ phản ứng chuyển thành kiểu Fenton đồng thể. Mặt khác, sự thể hiện này cũng có thể là do gốc $HO^{\bullet}$ tồn tại trong hệ phản ứng, nên phản ứng dây chuyền vẫn tiếp tục xảy ra mà không cần sự có mặt của chất xúc tác. Cả hai nguyên nhân này đều có thể làm tăng độ chuyển hóa phenol sau khi lọc chất xúc tác.

Kết quả kiểm tra khả năng tái sử dụng vật liệu cho thấy độ chuyển hóa phenol giảm mạnh trên xúc tác Fe-Dia(5) thu hồi, sau 240 phút phản ứng độ chuyển hóa phenol chỉ đạt 22,3% (so với 99,1% trên mẫu xúc tác ban đầu). Ngược lại, trên xúc tác Fe-Zn-Dia(5-5) thu hồi, độ chuyển hóa phenol vẫn xảy ra nhanh và xấp xỉ so với mẫu vật liệu ban đầu, độ chuyển hóa phenol đạt 92,8% (so với 94,8% trên mẫu xúc tác ban đầu).

https://doi.org/10.62239/jca.2025.019

Mẫu Fe-Dia(5) và Fe-Zn-Dia(5-5) thu hồi cũng được phân tích EDX. Kết quả cho thấy hàm lượng nguyên tố sắt trong mẫu Fe-Dia(5) thu hồi là 7,12% (so với ban đầu là 22,25%, Bảng 1); Còn trong mẫu Fe-Zn-Dia(5-5) thu hồi, hàm lượng nguyên tố sắt và kẽm tương ứng là 11,92% và 0,28 (so với ban đầu là 5,50% và 0,43%, Bảng 1). Hàm lượng kim loại sắt trong mẫu Fe-Zn-Dia(5-5) thu hồi tăng lên là do sự phơi bày khi một phần kẽm bị rửa trôi vào dung dịch, do đó, mẫu này vẫn có hoạt tính xúc tác cao. Ngược lại, nguyên nhân làm giảm mạnh hoạt tính xúc tác của mẫu Fe-Dia(5) thu hồi là do sắt trong vật liệu đã bị rửa trôi khá lớn. Sự rửa trôi của các kim loại là do môi trường pH thấp (khoảng 2,5–3) của dung dịch sau phản ứng được tạo ra bởi các acid hữu cơ từ quá trình oxi phenol [6].



Hình 5: Thí nghiệm kiểm tra sự rửa trôi của sắt hoặc kẽm trong vật liệu và khả năng tái sử dụng xúc tác: a) Xúc tác Fe-Dia(5), b) Xúc tác Fe-Zn-Dia(5-5) (Điều kiện phản ứng: 100 mL phenol 1 g/L; 2 mL H_2O_2 30%, 0,1 g chất xúc tác; nhiệt độ phản ứng 50 °C)

Kết luận

Sự biến tính diatomite với Zn hoặc/và Fe không ảnh hưởng nhiều đến hình thái và diện tích bề mặt riêng của diatomite. Diện tích bề mặt riêng của Fe-Dia(5) và Fe-Zn-Dia(5-5) tương ứng là 40,0 và 63,2 m^2/g, và của diatomite ban đầu là 55,4 m^2/g. Diatomite và Zn-Dia(5) hầu như không có hoạt tính xúc tác trong phản ứng oxi hóa phenol bởi H_2O_2. Trong khi đó, các composite có chứa kim loại sắt đều có hoạt tính xúc tác cao. Phenol có thể bị phân hủy hoàn toàn tạo thành các carboxyl acid đơn giản trên xúc tác Fe-Dia(5) và Fe-Zn-Dia(5-5) ở nhiệt độ 50–70 °C. Việc biến tính ditomite với kim loại kẽm không làm tăng hoạt tính xúc tác của vật liệu nhưng làm tăng độ bền và khả năng tái sử dụng của mẫu Fe-Zn-Dia(5-5). Do đó, có thể ứng dụng composite này trong lĩnh vực xúc tác để phân hủy các chất ô nhiễm hữu cơ trong dung dịch nước.

Tài liệu tham khảo

1. F. Mijangos, F. Varona, N. Villota, Environ. Sci. Technol. 40 (2006) 5538–5543. https://doi.org/10.1021/es060866q
2. R.M. Liou, S.H. Chen, M.Y. Hung, C.S. Hsu, J.Y. Lai, Chem. 59 (2005) 117–125. https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2004.09.080
3. A. Rey, M. Faraldos, J.A. Casas, J.A. Zazo, A. Bahamonde, J.J. Rodriguez, Appl. Catal. B: Environ. 86(1-2) (2009) 69–77. https://doi.org/10.1016/j.apcatb.2008.07.023
4. H.C. Jeong, I.W. Shim, K.Y. Choi, J.K. Lee, J.N. Park, C.W. Lee, Korean J. Chem. Eng. 22 (2005) 657–660. https://doi.org/10.1007/BF02705778
5. A.D. Bokare, W. Choi, J. Hazard. Mater. 275 (2014) 121–135. https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2014.04.054
6. D.Q. Khieu, D.T. Quang, T.D. Lam, N.H. Phu, J.H. Lee, J.S. Kim, J. Incl. Phenom. Macrocycl. Chem. 65 (2009) 73–81. https://doi.org/10.1007/s10847-009-9624-8
7. B.H.D. Son, V.Q. Mai, D.X. Du, N.H. Phong, N.D. Cuong, D.Q. Khieu, Journal of Porous Materials 24 (2017) 601–611. https://doi.org/10.1007/s10934-016-0296-7
8. D. Dai, H. Liang, D. He, H. Potgieter, M. Li, Journal of Sol-Gel Science and Technology (2021). https://doi.org/10.1007/s10971-020-05452-3
9. N. Caliskan, A.R. Kul, S. Alkan, E.G. Sogut, I. Alacabey, J. Hazard. Mater. 193 (2011) 27–36. https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2011.06.058
10. P.D. Du, H.T. Danh, Adsorption Science & Technology (2021). https://doi.org/10.1155/2021/1014354
11. G. Leofanti, M. Padovan, G. Tozzola, B. Venturelli, Catalysis Today 41 (1998) 207-219. https://doi.org/10.1016/S0920-5861(98)00050-9