

ĐẠI HỌC QUỐC GIA HÀ NỘI  
TRƯỜNG ĐẠI HỌC KHOA HỌC TỰ NHIÊN

**Nguyễn Thị Hằng**

**NGHIÊN CỨU HẤP PHỤ LINDAN, DDT TRONG  
MÔI TRƯỜNG NƯỚC SỬ DỤNG VẬT LIỆU  
 $\alpha$ -Al(OH)<sub>3</sub> BIẾN TÍNH BẰNG CHẤT HOẠT ĐỘNG  
BỀ MẶT SDS VÀ CTAB**

Chuyên ngành: Hóa Môi trường

Mã số: 9440112.05

TÓM TẮT LUẬN ÁN TIẾN SĨ HÓA HỌC

**Hà Nội - 2024**

Công trình được hoàn thành tại: Trường Đại học Khoa học  
Tự nhiên - ĐHQGHN

Người hướng dẫn khoa học:

1. GS.TS. Lê Thanh Sơn, Trường Đại học Khoa học Tự nhiên  
- ĐHQGHN ;
2. PGS.TS. Phạm Tiến Đức, Trường Đại học Khoa học Tự nhiên  
- ĐHQGHN.

Phản biện: GS.TS. Vũ Thị Thu Hà, Viện Hóa học Công nghiệp  
Việt Nam

Phản biện: GS.TS. Thái Hoàng, Viện Kỹ thuật Nhiệt đới - Viện  
Hàn lâm KH&CNVN

Phản biện: PGS.TS. Trần Thị Thúy, Trường Hóa và Khoa học sự sống  
– ĐHBKHN

Luận án đã được bảo vệ trước Hội đồng đánh giá luận án tiến sĩ  
hợp tại Trường Đại học Khoa học Tự nhiên - ĐHQGHN vào hồi  
14 giờ 00 ngày 02 tháng 10 năm 2024

Có thể tìm hiểu luận án tại:

- Thư viện Quốc gia Việt Nam
- Trung tâm Thư viện và Tri thức số - ĐHQGHN

## MỞ ĐẦU

### 1. Tính cấp thiết của đề tài

Thuốc bảo vệ thực vật lindan và DDT là những hợp chất hữu cơ khó phân hủy POPs gây ô nhiễm và rất bền trong môi trường. Các hợp chất này có thể tích lũy trong thời gian dài, có thể phát tán vào môi trường nước, gây tích lũy vào các mô mỡ của cơ thể động vật và gây hại tới sức khỏe của con người. Vì vậy, nghiên cứu phát triển các phương pháp xử lý hiệu quả thuốc bảo vệ thực vật trong môi trường nước là rất cần thiết.

Trong số các kỹ thuật được nghiên cứu và phát triển để loại bỏ thuốc trừ sâu, phương pháp hấp phụ có hiệu quả xử lý cao và phù hợp với các nước đang phát triển khi sử dụng các vật liệu có chi phí thấp, dễ dàng chế tạo và an toàn với môi trường.

Nhôm hydroxit,  $\text{Al}(\text{OH})_3$  là vật liệu hấp phụ cơ bản được ứng dụng rộng rãi trong các lĩnh vực liên quan đến công nghiệp và kỹ thuật môi trường. Trong số nhiều pha cấu trúc của nhôm hydroxit,  $\alpha\text{-Al}(\text{OH})_3$  có thể dễ dàng chế tạo với nhiệt độ nung thấp. Tuy nhiên, vật liệu nhôm hydroxit có đặc tính ưa nước nên khả năng xử lý trực tiếp thuốc bảo vệ thực vật kỵ nước như DDT và lindan rất kém. Vì vậy, việc biến tính bề mặt nhôm hydroxit để thay đổi đặc tính kỵ nước tăng cường khả năng xử lý DDT và lindan là rất cần thiết. Nghiên cứu biến tính bề mặt của nhôm hydroxit bằng chất hoạt động bề mặt mang điện âm hoặc dương khác nhau thân thiện với môi trường để tạo thành một vật liệu hấp phụ hiệu năng cao đã rất thành công để xử lý nhiều chất vô cơ và hữu cơ ô nhiễm. Tuy nhiên, chưa có công trình khoa học nào trong và ngoài nước nghiên cứu xử lý DDT và lindan bằng

vật liệu nano  $\alpha\text{-Al(OH)}_3$  được biến tính bằng chất hoạt động bề mặt.

## **2. Mục tiêu nghiên cứu của luận án**

Mục tiêu của luận án là xử lý thành công lindan và DDT bằng phương pháp hấp phụ sử dụng vật liệu nano  $\alpha\text{-Al(OH)}_3$  được biến tính bằng chất hoạt động bề mặt mang điện âm SDS và chất hoạt động bề mặt mang điện dương CTAB.

## **3. Đối tượng và phạm vi nghiên cứu**

- Đối tượng: Hợp chất thuốc bảo vệ thực vật lindan và DDT trong môi trường nước và vật liệu nano  $\alpha\text{-Al(OH)}_3$  được biến tính bằng chất hoạt động bề mặt SDS và CTAB.

- Phạm vi nghiên cứu:

+ Chế tạo, xác định đặc trưng cấu trúc và bề mặt của vật liệu nano  $\alpha\text{-Al(OH)}_3$ ;

+ Biến tính bề mặt vật liệu  $\alpha\text{-Al(OH)}_3$  bằng hấp phụ chất hoạt động bề mặt SDS và CTAB;

+ Tối ưu các điều kiện hấp phụ xử lý lindan và DDT bằng vật liệu  $\alpha\text{-Al(OH)}_3$  biến tính bằng SDS và CTAB.

## **4. Những đóng góp mới của luận án**

### **4.1. Về giá trị khoa học**

Lần đầu tiên xử lý lindan và DDT bằng phương pháp hấp phụ sử dụng vật liệu mới hiệu năng cao nano  $\alpha\text{-Al(OH)}_3$  được biến tính bằng chất hoạt động bề mặt (SDS và CTAB).

**4.2. Về giá trị thực tiễn:** Thành công của luận án mở ra hướng nghiên cứu mới trong việc sử dụng vật liệu hấp phụ biến tính bề mặt bằng chất hoạt động bề mặt để xử lý các hợp chất hữu cơ khó phân hủy không phân cực trong môi trường nước.

## **5. Cấu trúc của luận án**

Cấu trúc của luận án bao gồm phần mở đầu và 3 chương: Phần mở đầu, chương 1 - Tổng quan, chương 2 – Phương pháp nghiên cứu và thực nghiệm, chương 3 – Kết quả và thảo luận, kết luận, danh mục các công trình công bố, phụ lục, tài liệu tham khảo.

## **NỘI DUNG CỦA LUẬN ÁN**

### **CHƯƠNG 1. TỔNG QUAN**

Tổng quan gồm các nội dung sau:

- Tổng quan về các hợp chất hữu cơ khó phân hủy POPs trong đó có lindan và DDT,
- Tổng quan về vật liệu nano  $\alpha\text{-Al(OH)}_3$ .
- Tổng quan về phương pháp hấp phụ sử dụng vật liệu nano  $\alpha\text{-Al(OH)}_3$

### **CHƯƠNG 2. PHƯƠNG PHÁP NGHIÊN CỨU VÀ THỰC NGHIỆM**

#### **2.1. Đối tượng và mục tiêu nghiên cứu**

Đối tượng của luận án hướng đến là xử lý lindan, DDT bằng vật liệu hấp phụ hiệu năng cao.

Mục tiêu của đề tài luận án là chế tạo thành công vật liệu mới nano  $\alpha\text{-Al(OH)}_3$  được biến tính bằng chất hoạt động bề mặt mang điện âm SDS và chất hoạt động bề mặt mang điện dương CTAB để hấp phụ xử lý lindan và DDT. Nghiên cứu trong luận án cũng tiến hành tối ưu các điều kiện để xử lý lindan, DDT bằng phương pháp hấp phụ sử dụng  $\alpha\text{-Al(OH)}_3$  biến tính bằng SDS và CTAB.

#### **2.2. Nội dung nghiên cứu**

- Chế tạo, xác định đặc trưng cấu trúc và bề mặt của vật liệu nano  $\alpha$ -Al(OH)<sub>3</sub>, bằng các phương pháp: nhiễu xạ tia X (XRD), phổ hồng ngoại biến đổi Fourier (FT-IR), kính hiển vi điện tử truyền qua (TEM), kính hiển vi điện tử quét (SEM), phương pháp Brunauer - Emmet-Teller (BET), phổ tán xạ năng lượng tia X (EDX), đo thế zeta ( $\zeta$ ).
- Biến tính bề mặt vật liệu nano  $\alpha$ -Al(OH)<sub>3</sub> bằng hấp phụ chất hoạt động bề mặt SDS và CTAB.
- Tối ưu các điều kiện hấp phụ xử lý lindan và DDT bằng vật liệu nano  $\alpha$ -Al(OH)<sub>3</sub> biến tính bằng SDS và CTAB.
- Nghiên cứu cơ chế hấp phụ của lindan và DDT trên vật liệu  $\alpha$ -Al(OH)<sub>3</sub> biến tính trên cơ sở hấp phụ đẳng nhiệt, phổ FT- IR và phép đo thế  $\zeta$ .
- Đánh giá khả năng tái sử dụng của vật liệu nano  $\alpha$ -Al(OH)<sub>3</sub> biến tính bằng SDS và CTAB.

### **2.3. Hóa chất và dụng cụ thí nghiệm**

#### **2.3.1. Hóa chất**

- Chất chuẩn lindan 1,2,3,4,5,6-hexachlorocyclohexane.
- Chất chuẩn DDT (CAS 50-29-3).
- Natri dodecyl sulfate (SDS).
- Cetyltrimethyl amonium bromide (CTAB).
- Các hóa chất tinh khiết khác.

#### **2.3.2. Thiết bị và dụng cụ thí nghiệm**

- Hệ thiết bị sắc ký khí với máy dò bắt electron (GC-ECD) Scion 456 GC.
- Thiết bị đo phổ hồng ngoại biến đổi Fourier FT-IR Jasco 4600.
- Thiết bị đo thế zeta (Zetaziser nano, Malvern, Anh).

- Thiết bị nhiễu xạ Ronghen XRD, D8 Advance, Bruker, Đức.
- Thiết bị Hitachi S4800, Tokyo, Japan đo SEM.
- Thiết bị TriStar 3000, Norcross, A, USA đo BET.

### 2.3.3. Phương pháp nghiên cứu

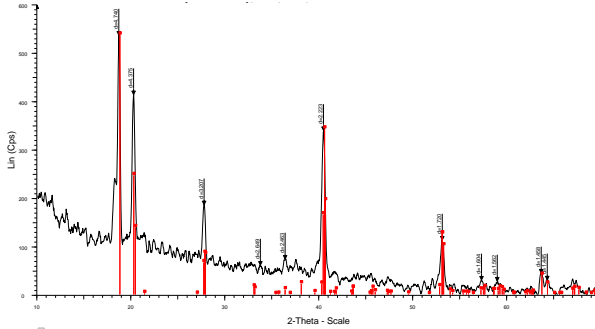
- Phương pháp tổng hợp vật liệu: Chế tạo vật liệu nano  $\alpha$ -Al(OH)<sub>3</sub> bằng phương pháp kết tủa, chế tạo vật liệu nano  $\alpha$ -Al(OH)<sub>3</sub> biến tính bề mặt bằng hấp phụ với chất hoạt động bề mặt SDS và CTAB.
- Phương pháp đặc trưng vật liệu: XRD, FT-IR, TEM, SEM, BET, phép đo thế zeta.
- Phương pháp nghiên cứu hấp phụ lindan hoặc DDT trên vật liệu hấp phụ đã biến tính bề mặt.

## CHƯƠNG 3. KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN

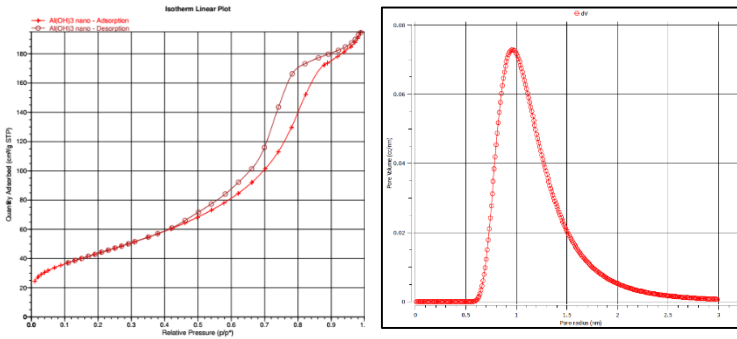
### 3.1. Xác định đặc trưng của vật liệu nano nhôm hydroxit

Giải đồ XRD chỉ ra các đỉnh nhọn đặc trưng cho thành phần pha Bayerite  $\alpha$ -Al(OH)<sub>3</sub> xuất hiện với cường độ cao tại  $2\theta = 18,8^\circ$ ;  $20,5^\circ$ ;  $27,9^\circ$ ;  $40,7^\circ$  và  $53,2^\circ$ . Cấu trúc pha của Al(OH)<sub>3</sub> thu được trong nghiên cứu này cũng phù hợp với kết quả nghiên cứu đã công bố về dạng pha alpha được hình thành khi trung hòa muối nhôm trong dung dịch kiềm.

Diện tích bề mặt riêng của  $\alpha$ -Al(OH)<sub>3</sub> được xác định theo phương pháp BET tính toán trên cơ sở quá trình hấp phụ và giải hấp N<sub>2</sub> và biểu đồ phân bố mao quản của  $\alpha$ -Al(OH)<sub>3</sub>. Diện tích bề mặt riêng của vật liệu nhôm hydroxit là khoảng 159,2 m<sup>2</sup>/g, thể tích lỗ xốp 0,3 cm<sup>3</sup>/g, kích thước lỗ xốp 7,4 nm và kích thước mao quản là 1,7 nm, kích thước mao quản trung bình là 97,4 nm.



**Hình 3.1:** Giải đồ XRD của vật liệu chế tạo

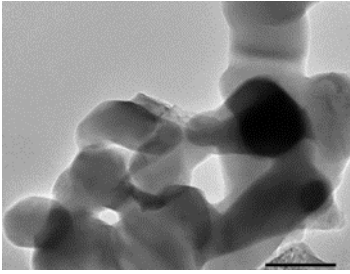


**Hình 3.2:** Đường đẳng nhiệt hấp phụ và giải hấp của N<sub>2</sub> trên vật liệu nano  $\alpha$ -Al(OH)<sub>3</sub>

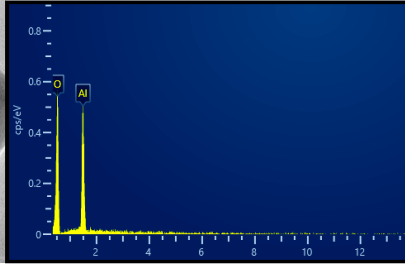
**Hình 3.3:** Phân bố mao quản của vật liệu nano  $\alpha$ -Al(OH)<sub>3</sub>

Kết quả ảnh chụp TEM của vật liệu  $\alpha$ -Al(OH)<sub>3</sub> cho thấy các hạt vật liệu có dạng hình cầu. Đường kính trung bình của các hạt vật liệu khoảng 30 nm.

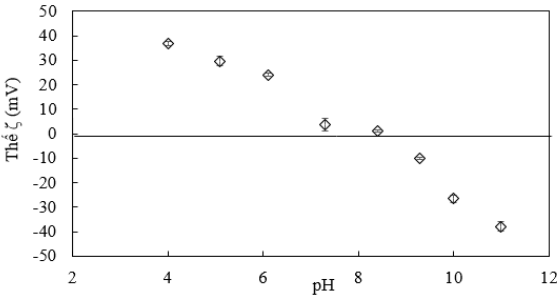
Phổ SEM-EDX của  $\alpha$ -Al(OH)<sub>3</sub> cho thấy tính toán tỉ lệ khối lượng thu được tỉ lệ phần trăm trọng lượng của Al và O lần lượt là 66,3 và 33,7%. Các giá trị này gần với lượng tỉ lệ giữa Al và O trong phân tử nhôm hydroxit, do vậy  $\alpha$ -Al(OH)<sub>3</sub> tổng hợp được có độ tinh khiết cao.



**Hình 3.6:** Ảnh TEM của  $\alpha\text{-Al(OH)}_3$  với độ phân giải 200 nm



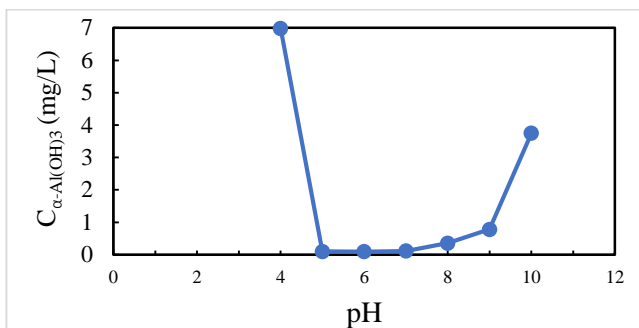
**Hình 3.7:** Ảnh SEM-EDX của  $\alpha\text{-Al(OH)}_3$



**Hình 3.8.**  
Thế  $\zeta$  của vật liệu  $\alpha\text{-Al(OH)}_3$

Kết quả đo thế  $\zeta$  của vật liệu nano  $\alpha\text{-Al(OH)}_3$  trên Hình 3.8 cho thấy trong khoảng pH 4-11 với nền chất điện ly NaCl 10 mM điểm không mang điện (PZC) của vật liệu  $\alpha\text{-Al(OH)}_3$  bằng 8,0. Tức là, bề mặt của  $\alpha\text{-Al(OH)}_3$  âm ở pH > 8,0 và dương ở pH < 8,0. Kết quả này tương tự như các nghiên cứu đã công bố trước đó.

Kết quả ảnh hưởng pH tới độ tan của vật liệu  $\alpha\text{-Al(OH)}_3$  (Hình 3.9) tăng kể cả khi tăng hay giảm pH. Ở pH thấp (pH 4), độ tan của nhôm hydroxit là lớn nhất đạt 6,98 mg/L. Tại pH 6, độ tan của  $\alpha\text{-Al(OH)}_3$  là nhỏ nhất, dưới 1 mg/L.



**Hình 3.9:** Ảnh hưởng của pH tới độ tan của vật liệu  $\alpha\text{-Al(OH)}_3$

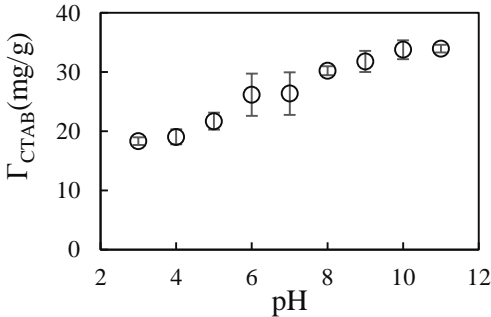
### 3.2. Ảnh hưởng của pH và lực ion lên sự hấp phụ của chất HĐBM trên vật liệu nano $\alpha\text{-Al(OH)}_3$

#### 3.2.1. Ảnh hưởng của pH lên sự hấp phụ của chất hoạt động bề mặt trên vật liệu nano $\alpha\text{-Al(OH)}_3$

Luận án nghiên cứu ảnh hưởng của pH tới sự hấp phụ của chất hoạt động bề mặt trên vật liệu  $\alpha\text{-Al(OH)}_3$  trong khoảng pH từ 4 đến 11.

Tại pH 3 và 4, dung lượng hấp phụ của CTAB rất nhỏ do lực đẩy tĩnh điện giữa vật liệu  $\alpha\text{-Al(OH)}_3$  mang điện tích dương mạnh và các cation  $\text{CTA}^+$ . Dung lượng hấp phụ của CATB lên  $\alpha\text{-Al(OH)}_3$  tăng khi tăng pH dung dịch từ 4-10 do giảm lực đẩy tĩnh điện trong khoảng pH từ 4-6, trong khi đó tại pH 6-7 bề mặt của  $\alpha\text{-Al(OH)}_3$  trung hòa điện tích. Trong khoảng pH từ 8-10, khả năng hấp phụ của CTAB tăng cao do bề mặt của  $\alpha\text{-Al(OH)}_3$  mang điện âm trong khi đặc tính điện tích của CTAB không phụ thuộc pH. Do đó, hấp phụ CTAB trên bề mặt vật liệu  $\alpha\text{-Al(OH)}_3$  do lực hút tĩnh điện giữa cation  $\text{CTAB}^+$  và bề mặt mang điện âm

của  $\alpha\text{-Al(OH)}_3$ . Tại pH 11, dung lượng hấp phụ của CTAB thay đổi không đáng kể so với pH 10. Do vậy, pH 10 được lựa chọn là pH tối ưu cho quá trình hấp phụ của CTAB lên bề mặt vật liệu  $\alpha\text{-Al(OH)}_3$ .



**Hình 3.10:** Ảnh hưởng của pH đến khả năng hấp phụ của CTAB lên bề mặt vật liệu nano  $\alpha\text{-Al(OH)}_3$

### 3.2.2. Ảnh hưởng của lực ion lên sự hấp phụ của chất hoạt động bề mặt trên vật liệu nano $\alpha\text{-Al(OH)}_3$

#### 3.2.2.1. Mô hình Langmuir và Freundlich

Ảnh hưởng của lực ion tới hấp phụ SDS và CTAB trên  $\alpha\text{-Al(OH)}_3$  được đánh giá thông qua hấp phụ đẳng nhiệt tại các nồng độ muối nền khác nhau.

**Bảng 3.2:** Các thông số và hệ số tương quan ( $R^2$ ) từ các mô hình hấp phụ của SDS trên bề mặt của  $\alpha\text{-Al(OH)}_3$  tại pH 4

Mô hình	Thông số			
	Langmuir	Nồng độ muối	$q_{\text{max}}$	$K_L$
10 mM		1.250	0,000213	0,0231
100 mM		2.500	0,000134	0,0085
Freundlich	Nồng độ muối	$K_F$	$n_F$	$R^2$
	10 mM	6,6481	1,6353	0,9159
	100 mM	1,4171	1,2800	0,9136

**Bảng 3.3:** Các thông số và hệ số tương quan ( $R^2$ ) từ các mô hình hấp phụ của CTAB trên bề mặt của  $\alpha\text{-Al(OH)}_3$  tại pH 10

Mô hình	Thông số			
Langmuir	Nồng độ muối	$q_{\max}$	$K_L$	$R^2$
	1 mM	0,1042	13.707,29	0,7237
	10 mM	0,1075	3.875,79	0,6812
	50 mM	0,0912	4,566,67	0,7517
Freundlich	Nồng độ muối	$K_F$	$n_F$	$R^2$
	1 mM	32938,2	1,4256	0,8215
	10 mM	51380,7	1,1986	0,9834
	50 mM	14467,7	1,1418	0,9498

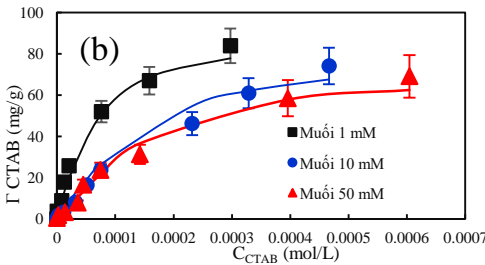
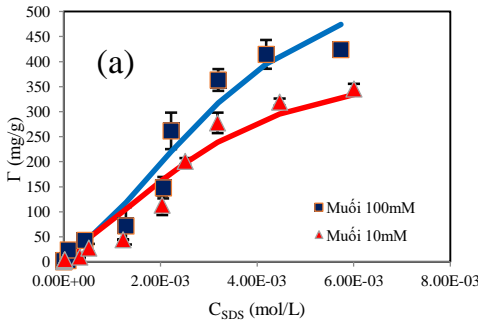
Hệ số tương quan  $R^2$  nhỏ cho thấy mô hình Langmuir không phù hợp để mô tả quá trình hấp phụ đẳng nhiệt của SDS lên bề mặt vật liệu  $\alpha\text{-Al(OH)}_3$ . Giá trị  $R^2 > 0,91$  thu được trên đồ thị mô tả bằng mô hình Freundlich cho thấy quá trình hấp phụ của SDS lên vật liệu  $\alpha\text{-Al(OH)}_3$  có thể là đơn lớp. Giá trị  $K_F$  đặc trưng cho dung lượng hấp phụ thay đổi tương ứng. Theo đó, dung lượng hấp phụ của SDS trên vật liệu  $\alpha\text{-Al(OH)}_3$  giảm khi tăng nồng độ muối NaCl từ 10 mM đến 100 mM. Kết quả này cho thấy không những lực tương tác tĩnh điện giữa SDS lên bề mặt  $\alpha\text{-Al(OH)}_3$  mà còn các lực tương tác không tĩnh điện có vai trò quan trọng quá trình hấp phụ.

Mô hình hấp phụ đẳng nhiệt Langmuir và Freundlich của CTAB trên vật liệu  $\alpha\text{-Al(OH)}_3$  được thể hiện tại Bảng 3.3. Từ giá trị hệ số tương quan  $R^2$  cho thấy các phương trình thu được trên đồ thị Langmuir là không phù hợp. Do vậy, việc áp dụng mô hình

Langmuir để mô quá quá trình hấp phụ đẳng nhiệt của CTAB trên bề mặt vật liệu  $\alpha\text{-Al(OH)}_3$  mang điện tích âm là không phù hợp.

### 3.2.2.2. Mô hình 2 bước hấp phụ

Kết quả thực nghiệm và lý thuyết giá trị hấp phụ vật liệu biến tính trên bề mặt  $\alpha\text{-Al(OH)}_3$  được tính toán bằng mô hình 2 bước hấp phụ và thể hiện tại Hình 3.15. Dung lượng hấp phụ tăng khi tăng nồng độ của muối NaCl chứng tỏ tương tác chính giữa các phân tử hấp phụ và vật liệu  $\alpha\text{-Al(OH)}_3$  là tương tác tĩnh điện.

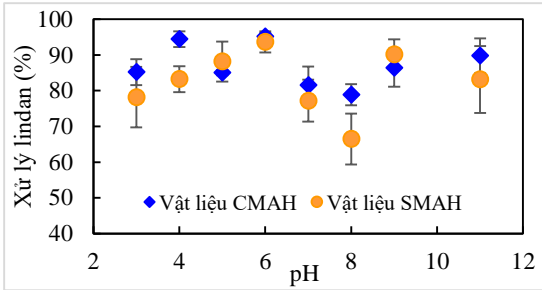


**Hình 3.15:** Đường đẳng nhiệt hấp phụ của chất hoạt động bề mặt anion SDS trên  $\alpha\text{-Al(OH)}_3$  mang điện dương tại pH =4 (hình a) và cation CTAB trên  $\alpha\text{-Al(OH)}_3$  mang âm tại pH =10 (hình b) tại các nồng độ muối nền khác nhau

## 3.4. Nghiên cứu các điều kiện tối ưu xử lý lindan bằng hấp phụ trên vật liệu $\alpha\text{-Al(OH)}_3$ khi biến tính với SDS và CTAB

### 3.4.1. Khảo sát ảnh hưởng của pH

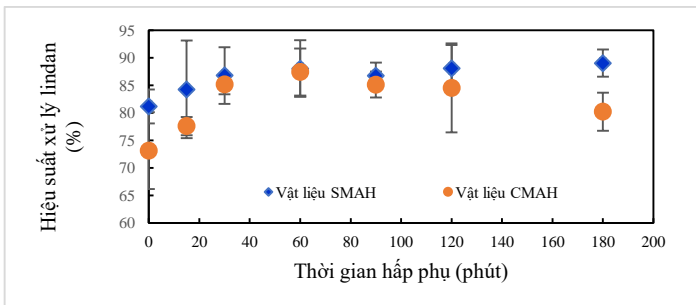
Kết quả tại Hình 3.17 cho thấy pH phù hợp để hấp phụ xử lý lindan bằng 2 vật liệu biến tính với chất HĐBM là pH = 6 với hiệu suất lần lượt đạt 93,68% và 95,17% khi sử dụng các vật liệu biến tính SMAH và CMAH.



**Hình 3.17:** Ảnh hưởng của pH tới khả năng xử lý lindan bằng vật liệu SMAH và CMAH

### 3.4.2. Khảo sát ảnh hưởng của thời gian hấp phụ

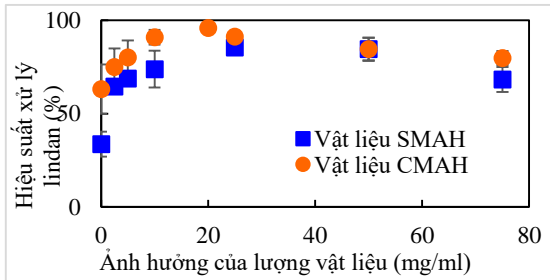
Kết quả cho thấy hiệu suất xử lý lindan tăng khi tăng thời gian hấp phụ từ 0 đến 60 phút. Sau 60 phút, hiệu suất xử lý thay đổi không đáng kể khi hấp phụ lindan bằng vật liệu SMAH và CMAH. Do vậy, thời gian hấp phụ tối ưu là 60 phút để xử lý lindan bằng vật liệu SMAH và CMAH.



**Hình 3.18:** Ảnh hưởng của thời gian hấp phụ tới khả năng xử lý lindan bằng vật liệu SMAH và CMAH

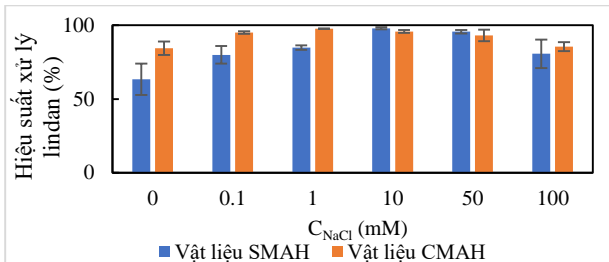
### 3.4.3. Khảo sát ảnh hưởng của lượng vật liệu hấp phụ

Hiệu suất xử lý lindan bằng vật liệu SMAH tăng khi lượng vật liệu tăng từ 0 đến 25 mg/L, bằng vật liệu CMAH tăng từ 0 đến 20 mg/L. Vì vậy, 25 mg/mL và 20 mg/mL lần lượt là lượng vật liệu tối ưu để hấp phụ lindan khi sử dụng vật liệu SMAH và CMAH, với hiệu suất xử lý tương ứng là 85,37% và 95,82%.



**Hình 3.19:** Ảnh hưởng của lượng vật liệu  $\alpha$ -Al(OH)<sub>3</sub> tới hiệu suất xử lý lindan

### 3.4.4. Khảo sát ảnh hưởng của lực ion đến hiệu quả xử lý lindan bằng hấp phụ trên vật liệu SMAH và CMAH



**Hình 3.20:** Ảnh hưởng của nồng độ muối nền đến hiệu suất xử lý lindan

Kết quả cho thấy hiệu suất xử lý lindan đạt cao nhất ở nồng độ muối 10 mM với hiệu suất lên đến 97,88% khi sử dụng vật liệu biến tính SMAH. Tương tự, hiệu suất xử lý lindan đạt tối ưu ở nồng độ muối 1 mM với hiệu suất lên đến 97,66% khi sử dụng vật liệu biến tính CMAH.

### 3.4.5. Đường đẳng nhiệt hấp phụ của lindan trên vật liệu SMAH và CMAH

#### 3.4.5.1. Mô hình hấp phụ Langmuir, Freundlich

**Bảng 3.10:** Các thông số và hệ số tương quan ( $R^2$ ) từ các mô hình hấp phụ của lindan lên bề mặt của vật liệu CMAH

Mô hình	Thông số			
Langmuir	Nồng độ muối	$q_{max}$	$K_L$	$R^2$
	1 mM	400	0,0013	0,1078
	10 Mm	370	0,0016	0,0645
Freundlich	Nồng độ muối	$K_F$	$n_F$	$R^2$
	1 mM	0,7338	1,1443	0,9812
	10 Mm	0,5317	1,0712	0,8681

Từ các hệ số tương quan  $R^2$  có thể thấy hấp phụ của lindan hấp phụ trên vật liệu CMAH và SMAH không phải hấp phụ đơn lớp.

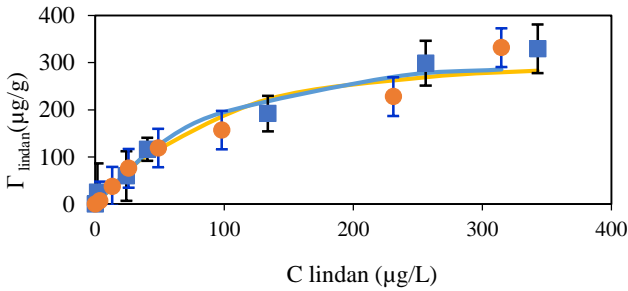
**Bảng 3.11:** Các thông số và hệ số tương quan ( $R^2$ ) từ các mô hình hấp phụ của lindan lên bề mặt của vật liệu SMAH

Mô hình	Thông số			
Langmuir	Nồng độ muối	$q_{max}$	$K_L$	$R^2$
	1 mM	1250	0,0002	0,4757
	10 Mm	2500	0,0001	0,1085
Freundlich	Nồng độ muối	$K_F$	$n_F$	$R^2$
	1 mM	0,0030	0,4989	0,8799
	10 Mm	0,1640	0,7418	0,7635

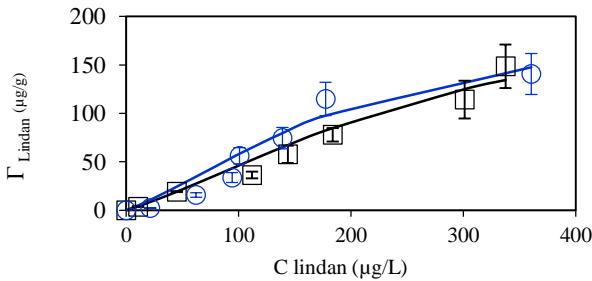
#### 3.4.5.2. Mô hình 2 bước hấp phụ đẳng nhiệt

Kết quả thực nghiệm trên Hình 3.22 cho thấy cho thấy sự hấp phụ lindan ít phụ thuộc vào nồng độ NaCl. Nồng độ muối cao làm giảm tương tác tĩnh điện giữa bề mặt mang điện và các ion

mang điện trái dấu. Vì lindan có đặc tính kỵ nước cao, nên các tương tác không tĩnh điện như tương tác kỵ nước có thể là lực tương tác chính thúc đẩy sự hấp phụ. Tại hai nồng độ NaCl là 1 và 10 mM, dung lượng hấp phụ cực đại của lindan khác nhau không đáng kể. Nói cách khác, hấp phụ lindan chịu ảnh hưởng chủ yếu của lực tương tác kỵ nước giữa phân tử lindan và phần lõi của lớp mixen kép kỵ nước của SDS trên bề mặt vật liệu hấp phụ.



**Hình 3.23:** Hấp phụ của lindan trên nano  $\alpha\text{-Al(OH)}_3$  biến tính bằng SDS ở các nồng độ muối nền khác nhau



**Hình 3.24:** Hấp phụ của lindan trên nano  $\alpha\text{-Al(OH)}_3$  biến tính bằng CTAB ở các nồng độ muối nền khác nhau.

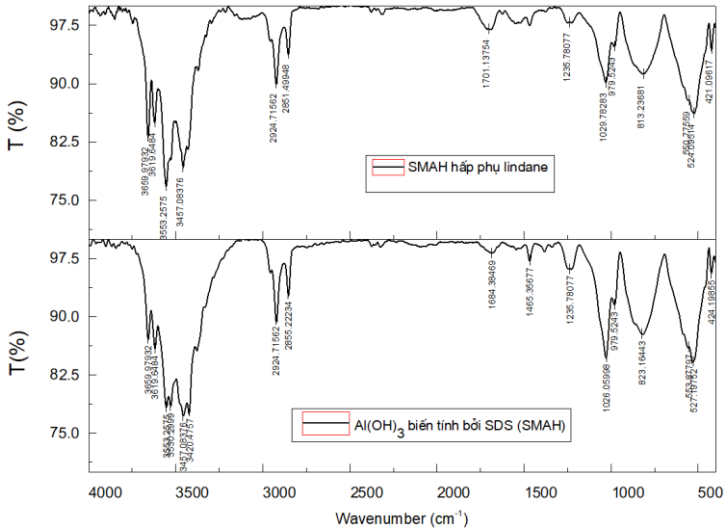
Kết quả thực nghiệm trên Hình 3.24 cho thấy, dung lượng hấp phụ lindan giảm khi tăng cường độ ion ở nồng độ muối thấp. Tuy nhiên, dung lượng hấp phụ của lindan tăng lên khi nồng độ muối tăng từ 1 đến 10 mM với nồng độ của lindan lớn hơn 200  $\mu\text{g/L}$ .

Ở nồng độ lindan dưới 200  $\mu\text{g/L}$ , dung lượng hấp phụ cao hơn tại nồng độ muối cao. Kết quả cho thấy một giao điểm chung (CIP) xuất hiện trên các đường đẳng nhiệt, chứng tỏ tương tác tĩnh điện đóng vai trò quan trọng đối với sự hấp phụ lindan trên CMAH tại nồng độ thấp. Xu hướng này khác với đường đẳng nhiệt hấp phụ lindan trên SMAH trong đó sự hấp phụ không phụ thuộc vào lực ion. Hình 3.24 cũng cho thấy rằng mô hình hai bước có thể biểu diễn đường đẳng nhiệt hấp phụ lindan tại các nồng độ muối khi sử dụng tham số được trình bày trong Bảng 3.10. Các tham số của đường đẳng nhiệt hấp phụ lindan theo mô hình hai bước tại 10 mM cao hơn so với 1 mM, cho thấy rằng các tham số này hữu ích để đánh giá ảnh hưởng của lực ion hay nồng độ muối đến quá trình hấp phụ lindan trên vật liệu CMAH.

### **3.4.6. Đánh giá cơ chế hấp phụ**

#### **3.4.6.1. Đánh giá sự thay đổi nhóm chức bề mặt bằng phổ hồng ngoại**

Kết quả đo tại Hình 3.25 cho thấy phổ FT-IR của vật liệu SMAH xuất hiện pic chân rộng mạnh ở khoảng  $3500\text{ cm}^{-1}$ , đặc trưng cho dao động của nhóm -OH, tương tự như vật liệu  $\alpha\text{-Al(OH)}_3$  (Hình 3.4). Tuy nhiên, các đỉnh nhọn đối xứng và không đối xứng ứng với giao động của  $-\text{CH}_2-$  tại các số sóng 2924,71 và  $2855,22\text{ cm}^{-1}$  xuất hiện với cường độ mạnh trong phổ FT-IR của SMAH, chứng tỏ rằng sự tương tác kỵ nước đã xuất hiện trên bề mặt nano  $\alpha\text{-Al(OH)}_3$ . Ngoài ra, đỉnh hấp thụ mạnh của nhóm sunfat trong phân tử SDS ở khoảng  $1226,73\text{ cm}^{-1}$  bị giảm mạnh cường độ và chuyển dịch sang số sóng dài hơn  $1235,78\text{ cm}^{-1}$  trong phổ FT-IR của SMAH.

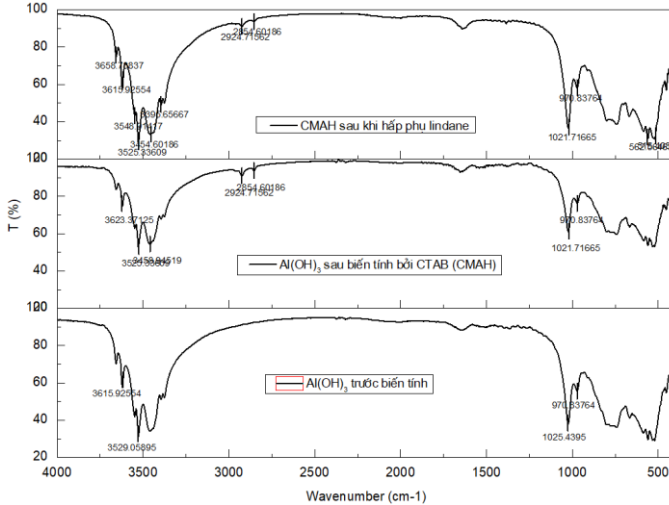


**Hình 3.25:** Phổ FT-IR của vật liệu nano nhôm hydroxit biến tính bởi chất hoạt động bề mặt SDS (vật liệu SMAH) và vật liệu SMAH sau khi hấp phụ lindan

Sau khi hấp phụ lindan, các đỉnh hấp thụ ở 1029,99 và 555,77 cm<sup>-1</sup> đặc trưng cho giao động biến dạng của Al-O, và các đỉnh đặc trưng cho nhóm alkyl bị giảm cường độ trong khi đỉnh pic đặc trưng cho nhóm sunfat ở khoảng 1235,78 cm<sup>-1</sup> vẫn xuất hiện, chứng tỏ rằng sự hấp phụ lindan trên SMAH chủ yếu do sự tương tác giữa phân tử lindan kỵ nước và gốc alkyl của các mixen kép của SDS trên bề mặt vật liệu hấp phụ.

Kết quả tại Hình 3.26 cho thấy: Phổ IR của vật liệu  $\alpha$ -Al(OH)<sub>3</sub> trước biến tính cho thấy các các đỉnh nhọn ở 3615,93 cm<sup>-1</sup> và 3529,06 cm<sup>-1</sup> đặc trưng cho giao động -OH, các đỉnh nhọn ở 1025,44 cm<sup>-1</sup> và 970,84 cm<sup>-1</sup> đặc trưng cho giao động của liên kết Al-O. Sau khi  $\alpha$ -Al(OH)<sub>3</sub> được biến tính bởi CTAB, xuất hiện các đỉnh nhọn đối xứng và không đối xứng ứng với giao động của -

CH<sub>2</sub>- ở các số sóng 2924,71 và 2854,60 cm<sup>-1</sup> xuất hiện với cường độ cao trong phổ FT-IR của CMAH, chứng tỏ tương tác kỵ nước xuất hiện trên bề mặt nhôm hydroxit.

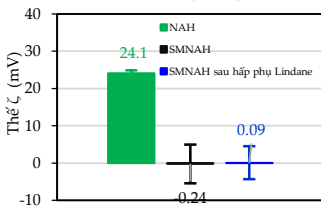


**Hình 3.26:** Phổ IR của vật liệu nhôm hydroxit trước và sau khi biến tính bởi SDS (vật liệu SMAH) CTAB (vật liệu CMAH) Sau khi CMAH hấp phụ lindan, các đỉnh hấp thụ ở 1021,72 và 970,83 cm<sup>-1</sup> đặc trưng cho giao động biến dạng của Al-O, và các đỉnh đặc trưng cho nhóm alkyl không bị giảm cường độ, chứng tỏ rằng sự hấp phụ lindan trên CMAH là do sự tương tác giữa phân tử lindan kỵ nước và gốc alkyl của các mixen kép của CTAB trên bề mặt vật liệu hấp phụ.

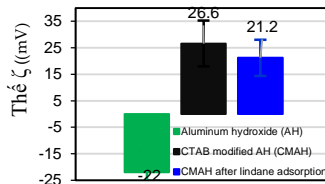
### 3.4.6.2. Đánh giá sự thay đổi điện tích bề mặt vật liệu hấp phụ bằng thế zeta

Tại pH 6,0, thế  $\zeta$  của nano nhôm hydroxit (NAH) là dương ( $\zeta = +24,1$  mV). Sau khi biến tính bằng SDS ở nồng độ cao, vật liệu SMAH với có sự tồn tại của lớp mixen kép trên bề mặt nên điện

tích bề mặt của SMAH âm rất nhỏ với  $\zeta = -0,24$  mV. Kết quả này chỉ ra rằng tương tác kỵ nước của mixen kép chứa gốc alkyl trong SDS mạnh. Tuy nhiên, sau khi hấp phụ lindan với sự gia tăng tính kỵ nước, điện tích bề mặt của SMAH thay đổi không đáng kể ( $\zeta = +0,09$  mV). Những thay đổi thế  $\zeta$  và thay đổi về nhóm chức bề mặt từ kết quả phổ FT-IR chỉ ra rằng sự hấp phụ lindan vào SMAH chủ yếu do các tương tác kỵ nước, trong khi lực tương tác tĩnh điện là không đáng kể. Khi hấp phụ lindan ở pH= 6, điện tích bề mặt bớt âm điện hơn so với vật liệu đã biến tính bằng SDS. Kết quả này hoàn toàn phù hợp với hấp phụ đẳng nhiệt của lindan trên vật liệu  $\alpha$ -Al(OH)<sub>3</sub> biến tính bằng SDS.



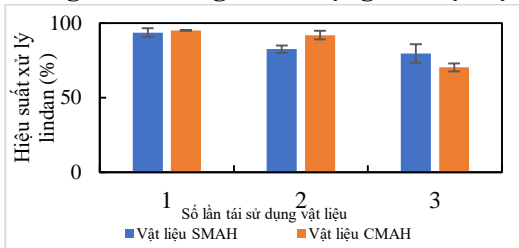
**Hình 3.29** Thế zeta của vật liệu nano nhôm hydroxit (NAH) được biến tính bằng SDS (SMAH), và sau khi hấp phụ lindan



**Hình 3.30:** Thế zeta của vật liệu nano nhôm hydroxit (NAH) được biến tính bằng CTAB (CMAH), và sau khi hấp phụ lindan

Tại pH = 10 là  $\zeta = -22$  mV. Sau khi hấp phụ CTAB ở cường độ ion thấp, CMAH được hình thành với điện tích dương cao ( $\zeta = +26,6$  mV). Sự đảo chiều điện tích trong trường hợp này tương tự như sự hấp phụ CTAB trên nanosilica. Tuy nhiên, sau khi hấp phụ lindan, điện tích bề mặt của CMAH giảm đi với  $\zeta = +21,2$  mV mặc dù lindan là một chất kỵ nước.

### 3.4.6.3. Đánh giá khả năng tái sử dụng của vật liệu hấp phụ

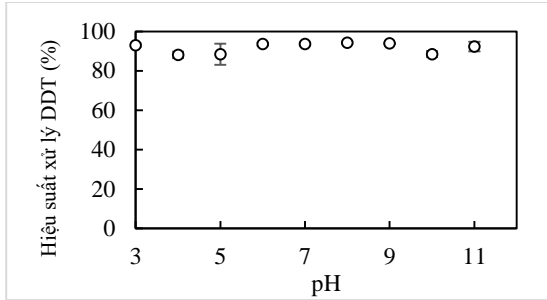


**Hình 3.32:** Hiệu suất loại bỏ lindan bằng vật liệu hấp phụ SMAH và CMAH sau ba lần tái sử dụng

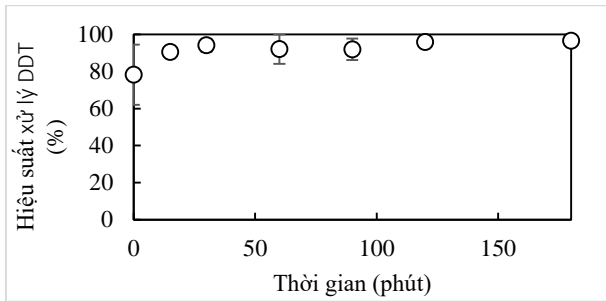
Kết quả đánh giá khả năng tái sử dụng của vật liệu CMAH và SMAH sau khi đã hấp phụ lindan, thí nghiệm tiến hành giải hấp vật liệu bằng dung dịch NaOH 2M. Kết quả tại Hình 3.32 cho thấy qua 3 lần tái sử dụng vật liệu, hiệu quả xử lý lindan bằng SMAH và CMAH tương ứng vẫn đạt trên 79% và 70%.

### 3.5. Nghiên cứu các điều kiện tối ưu xử lý DDT bằng hấp phụ trên vật liệu $\alpha\text{-Al(OH)}_3$ biến tính bởi SDS

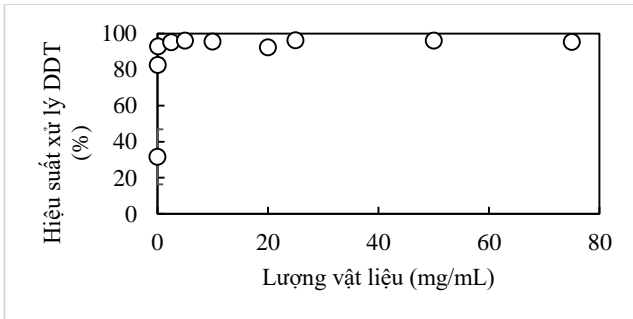
**3.5.1. Nghiên cứu ảnh hưởng của pH, thời gian hấp phụ, lượng vật liệu hấp phụ, cường độ ion đến quá trình xử lý DDT**  
Điều kiện tối ưu để xử lý DDT bằng vật liệu  $\alpha\text{-Al(OH)}_3$  biến tính với SDS là: Thời gian hấp phụ 30 phút; lượng vật liệu hấp phụ 25,0 mg/mL và pH = 8,0. Khi áp dụng các điều kiện hấp phụ tối ưu, hiệu suất xử lý DDT đạt tối đa 96,14%.



**Hình 3.34:** Ảnh hưởng của pH đến hiệu suất xử lý DDT bằng SMAH

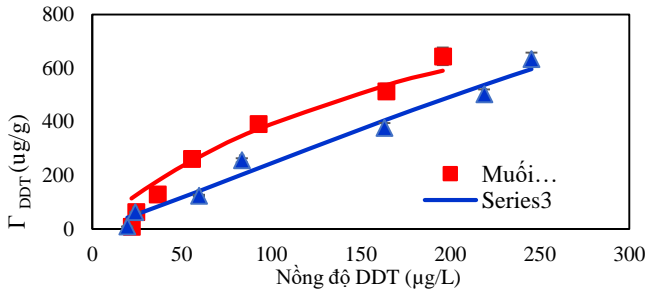


**Hình 3.35:** Ảnh hưởng của thời gian hấp phụ DDT lên vật liệu SMAH



**Hình 3.36:** Ảnh hưởng của lượng vật liệu đến hiệu suất xử lý DDT bằng vật liệu SMAH

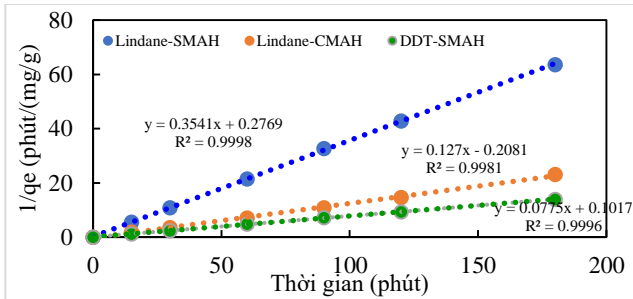
### 3.5.2. Đường đẳng nhiệt của DDT trên vật liệu SMAH



**Hình 3.38:** Hấp phụ của DDT trên vật liệu SMAH ở các nồng độ muối nền khác nhau. Các điểm biểu diễn kết quả thực nghiệm trong khi các đường là mô tả bằng mô hình 2 bước hấp phụ. Ở hai nồng độ NaCl là 1 và 10 mM, dung lượng hấp phụ tối đa của DDT khác nhau khá đáng kể. Tuy nhiên, giá trị  $k_1$  ở 1 mM NaCl nhỏ hơn so với ở 100 mM. Nói cách khác, hấp phụ DDT chịu ảnh hưởng chính của lực tương tác kỵ nước giữa phân tử DDT không ưa nước và phần lõi của lớp mixen kép kỵ nước của SDS trên bề mặt vật liệu hấp phụ.

### 3.5.3. Động học của quá trình hấp phụ

Các kết quả tính toán chỉ ra rằng mô hình giả bậc 2 phù hợp hơn so với mô hình giả bậc 1 thể hiện thông qua giá trị  $R^2$ . Giá trị  $R^2 > 0,99$  ở mô hình giả bậc 2 ở tất cả các thí nghiệm hấp phụ lindan trên vật liệu biến tính SMAH và CMAH cũng như hấp phụ DDT trên vật liệu SMAH. Trong khi đó, giá trị  $R^2$  lần lượt bằng 0,5018; 0,7988; 0,3158 trong mô hình động học giả bậc 1 đối với quá trình hấp phụ lindan trên SMAH, CMAH và DDT trên SMAH.



**Hình 3.41:** Mô hình động học giả bậc 2 của quá trình hấp phụ lindan và DDT lên vật liệu hấp phụ biến tính bề mặt SMAH và CMAH

## KẾT LUẬN

### 1. Đã chế tạo thành công vật liệu

- Vật liệu  $\alpha\text{-Al(OH)}_3$  có kích thước nano, được xác định đặc trưng bằng các phương pháp XRD, FT-IR, TEM, SEM, EDX, BET, và thế zeta. Vật liệu nano  $\text{Al(OH)}_3$  có cấu trúc pha alpha, chứa các nhóm chức đặc trưng Al-OH và OH, diện tích bề mặt riêng 154,4  $\text{m}^2/\text{g}$ , điểm không mang điện 8,0.

- Vật liệu mới SMAH và CMAH chế tạo bằng cách hấp phụ SDS và CTAB trên bề mặt nano  $\alpha\text{-Al(OH)}_3$ .

### 2. Đã nghiên cứu xử lý lindan và DDT bằng phương pháp hấp phụ sử dụng vật liệu nano $\alpha\text{-Al(OH)}_3$ biến tính bề mặt bằng SDS

- Điều kiện tối ưu để xử lý lindan bằng vật liệu  $\alpha\text{-Al(OH)}_3$  biến tính bằng SDS là: Thời gian hấp phụ 60 phút, lượng vật liệu hấp phụ 25,0 mg/mL và pH = 6,0, lực ion NaCl 10 mM. Khi áp dụng các điều kiện hấp phụ tối ưu, hiệu suất xử lý lindan đạt tối đa 93,68%.

- Điều kiện tối ưu để xử lý DDT bằng vật liệu  $\alpha\text{-Al(OH)}_3$  biến tính với SDS là: Thời gian hấp phụ 30 phút, lượng vật liệu hấp phụ 25,0 mg/mL và pH = 8,0, lực ion NaCl 0,1 mM. Khi áp dụng các điều kiện hấp phụ tối ưu, hiệu suất xử lý DDT đạt tối đa 96,14%.

- Áp dụng thành công mô hình 2 bước hấp phụ để mô tả quá trình hấp phụ đẳng nhiệt của Lindan, DDT trên vật liệu nano  $\alpha\text{-Al(OH)}_3$  biến tính bằng SDS tại các nồng độ muối NaCl khác nhau.

- Cơ chế hấp phụ trên cơ sở phân tích đặc điểm hấp phụ đẳng nhiệt và đánh giá sự thay đổi điện tích bề mặt thông qua đo phổ FT-IR, thay đổi điện tích bề mặt bằng đo thế zeta của vật liệu  $\alpha\text{-Al(OH)}_3$  sau khi biến tính bằng SDS và sau khi hấp phụ lindan và DDT là do mixen kép của SDS trên bề mặt tương tác kỵ nước với phân tử lindan và DDT.

### **3. Đã nghiên cứu xử lý lindan bằng phương pháp hấp phụ sử dụng vật liệu nano $\alpha\text{-Al(OH)}_3$ biến tính bề mặt bằng CTAB**

- Điều kiện tối ưu để xử lý lindan bằng vật liệu nano  $\alpha\text{-Al(OH)}_3$  biến tính bề mặt bằng CTAB là: Thời gian hấp phụ 60 phút; lượng vật liệu hấp phụ 20,0 mg/mL và pH = 6,0, lực ion 10 mM NaCl. Khi áp dụng các điều kiện hấp phụ tối ưu, hiệu suất xử lý lindan đạt tối đa 97,66%.

- Cơ chế hấp phụ trên cơ sở phân tích đặc điểm hấp phụ đẳng nhiệt và đánh giá sự thay đổi điện tích bề mặt thông qua đo phổ FT-IR, thay đổi điện tích bề mặt bằng đo thế zeta của vật liệu  $\alpha\text{-Al(OH)}_3$  biến tính với CTAB và sau khi hấp phụ lindan là do sự hình thành mixen kép của CTAB trên bề mặt và lực tương tác kỵ nước với phân tử lindan.

**DANH MỤC CÔNG TRÌNH KHOA HỌC CỦA TÁC GIẢ  
LIÊN QUAN ĐẾN LUẬN ÁN**

**2. Thi Hang Nguyen**, Thi Thuy Linh Nguyen, Tien Duc Pham and Thanh Son Le (2020), “Removal of Lindane from Aqueous Solution Using Aluminum Hydroxide Nanoparticles with Surface Modification by Anionic Surfactant”, *Polymers*, 12(4), 960 (SCIE-Q1, IF 5.0).

<https://doi.org/10.3390/polym12040960>

**2. Thi Hang Nguyen**, Thi Thuy Linh Nguyen, Truong Chinh Nguyen, Thuy Hau Doan, Quang Huong Le, Quang Minh Bui, Thanh Son Le, Tien Duc Pham (2023), “Adsorption behavior of cationic surfactant onto aluminum hydroxide nanoparticles and application in lindane removal”, *Materials Today Communications* 34, 105266 (SCIE-Q2, IF 3.8).

<https://doi.org/10.1016/j.mtcomm.2022.105266>

**3. Thi Hang Nguyen**, Duy Tung Vu, Minh Ngoc Nguyen, Thi Anh Huong Nguyen, Thanh Son Le, Tien Duc Pham (2024), “Adsorptive removal of organochloride pesticides in water using surfactant modified aluminum hydroxide nanoparticles”, *Vietnam Journal of Catalysis and Adsorption*, 13(1), 140-144.

<https://doi.org/10.62239/jca.2024.004>