



PHÁT TRIỂN VẬT LIỆU HẤP PHỤ TỪ TRÁU VÀ BIẾN TÍNH VỚI $\text{Fe}(\text{OH})_3$ ĐỂ LOẠI BỎ As (V) TRONG NƯỚC

Nguyễn Hoàng Lương Ngọc¹

¹Trường Đại học Công nghiệp Thực phẩm TP.HCM

Thông tin chung:

Ngày nhận bài: 28/05/2020

Ngày nhận kết quả bình duyệt:
22/10/2020

Ngày chấp nhận đăng:
03/2022

Title:

Development of rice husk ash absorbent modified by ferric (iii) hydroxide for As (v) removal from aqueous solution

Keywords:

Husk ash, ferric (III) hydroxide, modified adsorption materials, arsenic

Từ khóa:

Trấu, $\text{Fe}(\text{OH})_3$, vật liệu hấp phụ biến tính, As

ABSTRACT

This study aimed to synthesize iron hydroxide coated ash husk (RHA/ $\text{Fe}(\text{OH})_3$) for As (V) removal in aqueous solution. Rice husk ash after heating at 700°C is covered with iron hydroxide with 5% NH_3 precipitate agent. Material characteristics are determined by XRD, EDX, TEM analysis. The results showed that obtained RHA/ $\text{Fe}(\text{OH})_3$ exists in an amorphous form with porous structure and homogeneous surface, forming uniform size spherical particles of about 150 nm. The agglomerated particle adsorption facilitated the capacity of As(V) in aqueous solution, with the initial concentration of 50 mg/L, the adsorption dose of 5 g/L leading to the maximum adsorption efficiency at 92.48%.

TÓM TẮT

Nghiên cứu này trình bày kết quả nghiên cứu tổng hợp vật liệu tro trấu phủ sắt hydroxit ($\text{RHA}/\text{Fe}(\text{OH})_3$) có hoạt tính hấp phụ ion As(V) trong dung dịch nước. Tro trấu sau khi nung ở nhiệt độ 700 °C được phủ sắt hydroxit bằng tác nhân kết tủa NH_3 5%. Các đặc trưng của vật liệu được xác định bằng các phương pháp XRD, EDX, TEM. Kết quả cho thấy, vật liệu tro trấu hấp phụ biến tính $\text{RHA}/\text{Fe}(\text{OH})_3$ tồn tại ở dạng vô định hình, cấu trúc xốp, bề mặt đồng nhất với các hạt hình cầu kích thước đồng đều khoảng 150 nm. Các hạt kết tụ với nhau tạo nhiều tâm hoạt tính giúp làm tăng khả năng hấp phụ ion As(V) trong môi trường nước. Với nồng độ As(V) ban đầu là 50 mg/L, liều lượng vật liệu hấp phụ 5 g/L, hiệu suất hấp phụ cao nhất đạt 92,48%.

1. MỞ ĐẦU

Asen là nguyên tố vi lượng rất cần thiết cho sự sinh trưởng và phát triển của con người và sinh vật, có vai trò quan trọng trong việc trao đổi nuclein và tổng hợp protit (Đỗ Văn Ái và cs., 2003). Tuy nhiên, theo tổ chức y tế thế giới WHO, nếu nồng độ asen trong nước vượt quá 0,01mg/L thì có thể gây nhiễm độc và tác hại xấu

đến sức khỏe con người với các triệu chứng như đau bụng, nôn mửa, đau cơ, suy nhược, phù nề da, trong trường hợp nặng có thể gây ung thư. Tại Bangladesh, sự nhiễm độc nước giếng do asen càng được khẳng định, khi từ năm 1993 tới nay đã có khoảng 35 đến 77 triệu người có nguy cơ bị ngộ độc (Dinesh, 2007). Ở Việt Nam, những vùng bị ô nhiễm nghiêm trọng nhất là Hà Nam, Hà Tây (cũ), Nam Định, Ninh Bình. Trong đó, mức độ ô

niêm asen ở tỉnh Hà Nam là cao nhất so với cả nước (50,2% số giếng khoan ở Hà Nam có nồng độ asen trên 0,05 mg/L) (Đỗ Văn Ái và cs., 2003). Vì vậy đã có nhiều công trình nghiên cứu trong nước cũng như trên thế giới nhằm loại bỏ asen trong nước để đảm bảo sức khỏe con người.

Hiện nay, có nhiều công nghệ xử lý asen đã được nghiên cứu và sử dụng như: sự oxy hóa, sự kết tủa/ làm giàu, sự tách, lọc bằng màng, hấp phụ... Trong đó phương pháp hấp phụ được đánh giá là có hiệu quả cao, an toàn, phổ biến và kinh tế. Hàng loạt chất hấp phụ mới của các công trình nghiên cứu trong và ngoài nước như là tro trấu (Ranjan và cs., 2009), zeolit (Jeon và cs., 2009), bùn đỏ (Altundogan và cs., 2000; Fuhrman và cs., 2004), cacbon hoạt tính (Borah và cs., 2008), sắt hidroxit và oxit (Appelo và cs., 2002; Hlavay và cs., 2005; Gaosheng và cs., 2007), vật liệu nano oxit Fe-Ti, vật liệu oxit Fe-Ti, tương tác giữa vi khuẩn và kim loại... được ứng dụng và phát triển nhằm nâng cao hiệu quả loại bỏ các chất gây ô nhiễm hữu cơ và vô cơ trong nước, đặc biệt là asen. Tuy nhiên, các nghiên cứu sử dụng nguyên liệu là trấu để loại bỏ asen trong dung dịch nước là chưa nhiều.

Việt Nam là một nước nông nghiệp, việc sử dụng trấu làm vật liệu hấp phụ các chất ô nhiễm trong môi trường nước có thể giải quyết được lượng phế thải hàng năm của nước ta. Sau khi đốt, tro trấu chứa silic đioxit và cacbon hoạt tính ở dạng vô định hình, cấu trúc lỗ xốp có hoạt tính cao, ưa nước, diện tích bề mặt lớn nên chúng có khả năng hấp phụ tốt, tuy nhiên khả năng hấp phụ chưa cao.

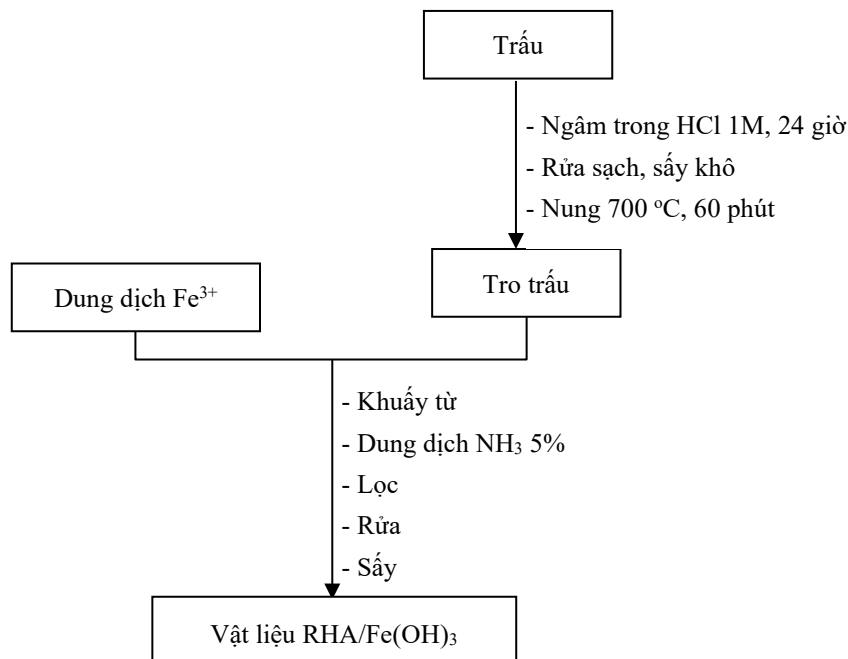
Hiện nay có nhiều phương pháp biến tính để nâng cao khả năng hấp phụ của vật liệu tro trấu, trong đó, sử dụng $\text{Fe}(\text{OH})_3$ để biến tính vật liệu tro trấu có khả năng hấp phụ asen trong môi trường nước rất tốt (Pehlivan và cs., 2013). Sắt là chất phổ biến, rẻ tiền và có sẵn, sau khi phủ $\text{Fe}(\text{OH})_3$ lên tro trấu thì vật liệu tro trấu biến tính có cấu trúc xốp hơn, độ rỗng của vật liệu giảm, các tâm xúc tác FeOOH nằm trong lòng các ống mao quản, các hạt vật liệu đặc khít và liên kết chặt chẽ với nhau làm cho vật liệu có hoạt tính hấp phụ cao hơn.

Bài báo này trình bày kết quả nghiên cứu phát triển vật liệu hấp phụ từ trấu và biến tính với $\text{Fe}(\text{OH})_3$ để loại bỏ As (V) trong dung dịch nước.

2. THỰC NGHIỆM

2.1 Tổng hợp vật liệu tro trấu phủ sắt (III) hydroxit

Vỏ trấu trong nghiên cứu này được thu nhận tại tỉnh Long An được xử lý bằng cách ngâm trong dung dịch HCl 1M trong 24 giờ, sau đó rửa sạch, phơi, sấy khô và nhiệt phân trong lò điện ở nhiệt độ 700 °C, trong 60 phút, thu được tro trấu (RHA). RHA được ngâm trong dung dịch Fe^{3+} 0,1M, khuấy đều hỗn hợp trong 30 phút bằng máy khuấy từ, sử dụng dung dịch NH_3 5% làm tác nhân kết tủa hoàn toàn Fe^{3+} dưới dạng hydroxit bao bọc quanh các hạt tro trấu. Kết tủa được rửa và sấy khô ở 80 °C trong 30 phút, thu được vật liệu hấp phụ biến tính từ tro trấu phủ sắt (III) hydroxit (RHA/ $\text{Fe}(\text{OH})_3$). Quy trình tổng hợp vật liệu RHA/ $\text{Fe}(\text{OH})_3$ được tóm tắt ở Hình 1.



Hình 1. Sơ đồ tổng hợp vật liệu RHA/Fe(OH)₃

Hoạt tính của vật liệu RHA/Fe(OH)₃ được đánh giá thông qua khả năng hấp phụ ion As(V) trong dung dịch nước. Thí nghiệm được tiến hành với 0,5g vật liệu RHA/Fe(OH)₃ trong bình tam giác chứa 100mL dung dịch As(V) nồng độ 50 mg/L, ở pH = 4. Hỗn được lắc đều bằng máy lắc trong 120 phút để quá trình hấp phụ đạt cân bằng. Sau đó hỗn hợp được lọc để tách pha rắn, thu lấy phần dung dịch, xác định nồng độ As(V) trong dung dịch sau hấp phụ. Hiệu suất quá trình hấp phụ được tính theo công thức:

$$H = \frac{(C_o - C_e) \cdot 100}{C_o}$$

Trong đó: C_o và C_e lần lượt là nồng độ của As(V) trong dung dịch trước và sau hấp phụ (mg/L)

2.2 Nội dung nghiên cứu

2.2.1 Khảo sát các yếu tố ảnh hưởng đến vật liệu biến tính

- Khảo sát ảnh hưởng của hàm lượng Fe³⁺

Để khảo sát ảnh hưởng của hàm lượng Fe(OH)₃ quy về Fe₂O₃ các mẫu khảo sát vật liệu RHA/Fe(OH)₃ được tổng hợp sao cho hàm lượng Fe₂O₃ thay đổi từ 5% đến 35%, các mẫu được ký hiệu tương ứng từ A5 đến A10.

- Khảo sát nhiệt độ sấy

Để khảo sát ảnh hưởng của nhiệt độ sấy vật liệu sau khi phủ Fe(OH)₃, tro trấu sau khi nung ở 700 °C trong 60 phút, được tổng hợp sao cho hàm lượng Fe₂O₃ đạt nồng độ đã được xác định ở thí nghiệm trên. Mẫu sau khi phủ Fe(OH)₃ được sấy ở các nhiệt độ khác nhau từ 80 °C đến 200 °C trong thời gian 30 phút và được ký hiệu tương ứng theo nhiệt độ nung lần lượt từ B80 đến B200.

Từ kết quả khảo sát các yếu tố, hàm lượng phủ và nhiệt độ sấy trong quá trình điều chế vật liệu mẫu được tổng hợp ở điều kiện thích hợp nhất và được phân tích để xác định các tính chất đặc trưng, sau đó được sử dụng để khảo sát các yếu tố ảnh hưởng đến quá trình hấp phụ asen.

2.2.2 Nghiên cứu quá trình hấp phụ asen trong nước lên vật liệu tro trấu phủ sắt (III) hidroxit

- Ảnh hưởng của pH đến hiệu suất hấp phụ asen

Để khảo sát pH thích hợp cho quá trình hấp phụ asen trong dung dịch nước, dãy dung dịch asen có nồng độ 50 mg/L được chuẩn bị ở pH khác nhau từ 1÷14. Thí nghiệm được tiến hành với 0,5g vật

liệu RHA/Fe(OH)₃ trong 100 mL dung dịch đã chuẩn bị. Hỗn hợp được lắc đều trong 120 phút, sau đó được lọc để tách pha rắn lấy phần dung dịch thu được để tiến hành xác định nồng độ asen còn lại.

- Ảnh hưởng của liều lượng vật liệu đến hiệu suất hấp phụ asen

Để nghiên cứu ảnh hưởng của lượng vật liệu đến khả năng hấp phụ asen trong dung dịch nước, thí nghiệm được tiến hành với 1-10g vật liệu trong bình 100 mL dung dịch asen có nồng độ 50 mg/L, ở pH = 4. Hỗn hợp được lắc đều trong 120 phút, sau đó được lọc để tách pha rắn lấy phần dung dịch thu được tiến hành xác định nồng độ asen còn lại.

- Ảnh hưởng của vật liệu hấp phụ đến hiệu suất hấp phụ asen

Thí nghiệm được tiến hành với vật liệu RHA và vật liệu RHA/Fe(OH)₃ cùng khối lượng là 5g được cho vào bình chứa 100 mL dung dịch asen có nồng độ 50 mg/L, ở pH = 4. Hỗn hợp được lắc đều trong 120 phút. Khi quá trình hấp phụ đạt cân bằng thì hỗn hợp được lọc loại bỏ pha rắn, thu lấy phần dung dịch và xác định nồng độ asen sau hấp phụ bằng phương pháp đo AAS.

- Nghiên cứu đẳng nhiệt hấp phụ asen trong dung dịch nước

Thí nghiệm được tiến hành với 1-10g vật liệu trong chứa 100 mL dung dịch asen có nồng độ 50 mg/L, ở pH = 4. Hỗn hợp được lắc đều trong 120 phút. Khi quá trình hấp phụ đạt cân bằng thì hỗn hợp được lọc loại bỏ pha rắn, thu lấy phần dung dịch và xác định nồng độ asen sau hấp phụ bằng phương pháp đo AAS. Trong nghiên cứu này, mô hình đẳng nhiệt hấp phụ Freundlich và Langmuir được sử dụng để mô tả quá trình hấp phụ.

Trong đó, dung lượng hấp phụ asen được tính theo công thức:

$$q_e = \frac{(C_o - C_e).V}{m}$$

V: thể tích dung dịch (V = 100 mL = 0,1 L), m: liều lượng vật liệu hấp phụ (mg)

Với phương pháp đồ thị, phương trình Langmuir tại thời điểm cân bằng:

$$\frac{C_e}{q_e} = \frac{C_e}{q_m} + \frac{1}{Kq_m}$$

Từ số liệu thực nghiệm, phương trình biểu diễn mối quan hệ giữa C_e/q_e theo C_e được xây dựng. Nếu quá trình hấp phụ tuân theo mô hình đẳng nhiệt Langmuir thì phương trình có dạng đường thẳng y = a.x + b. Từ các hệ số a, b, hệ số K và dung lượng hấp phụ cực đại q_m được xác định.

Dạng tuyến tính của phương trình Freundlich tại thời điểm cân bằng:

$$\ln q_e = \ln K + \frac{1}{n} \ln C_e$$

q_e là dung lượng hấp phụ tại thời điểm cân bằng (mg/g).

2.3 Vật liệu và hóa chất

Fe(NO₃)₃.9H₂O (Trung Quốc), NH₃ (1:10) (Trung Quốc), HCl đặc (Trung Quốc), H₂SO₄ đặc (Trung Quốc), NaOH (Trung Quốc), NaCl (Trung Quốc), KCl (Trung Quốc), quỳ tím (Việt Nam), dung dịch As (V) (Merck).

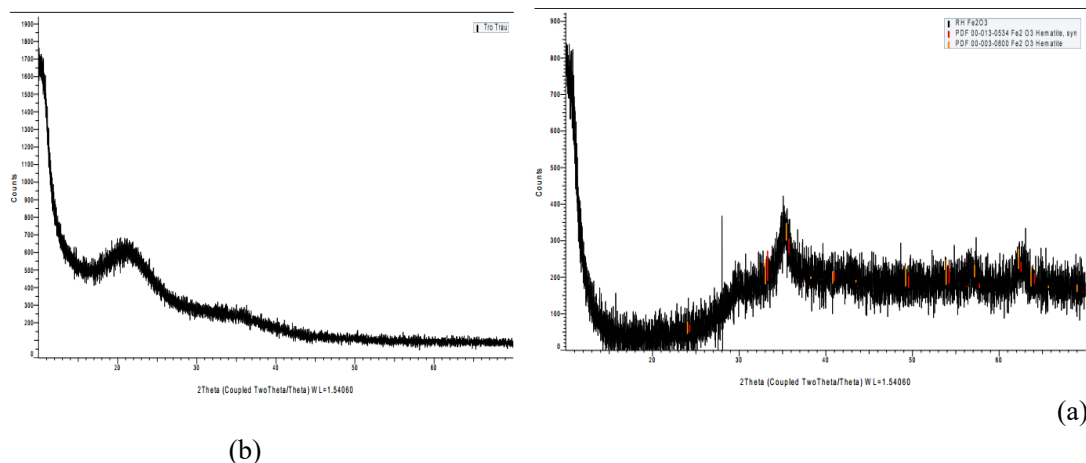
Ảnh TEM được chụp trên kính hiển vi điện tử truyền qua JEM1010 (JEOL-Nhật Bản). Phổ tán sắc năng lượng tia X (EDX) được ghi trên thiết bị JED-2300 Analysis Station. Thành phần pha tinh thể của sản phẩm được xác định bằng nhiễu xạ tia X (XRD) trên thiết bị D5005 (Siemens, Đức) với bức xạ CuKα (λ = 1,5406Å).

Nồng độ As (V) trong dung dịch nước được đo bằng máy quang phổ hấp thụ nguyên tử AA-6800 SHIMADZU (Nhật Bản).

3. KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN

3.1 Đặc tính vật liệu hấp phụ và vật liệu hấp phụ biến tính được tổng hợp từ vỏ trấu

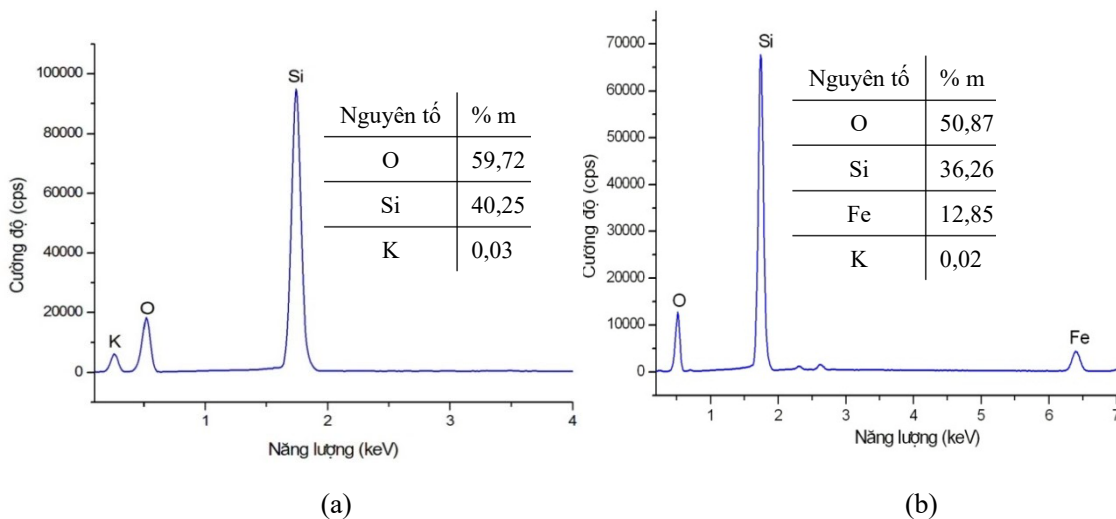
3.1.1 Thành phần pha của vật liệu



Hình 2. Giải đồ XRD mẫu vật liệu tro trấu (RHA) (a) RHA/Fe(OH)₃ 15% Fe₂O₃ (b)

Hình 2 trình bày giải đồ nhiễu xạ tia X của tro trấu (a) và vật liệu RHA/Fe(OH)₃ (b). Thành phần pha chủ yếu của tro trấu và vật liệu RHA/Fe(OH)₃ là pha vô định hình. Trên hình 2(a) chỉ xuất hiện pic nhiễu xạ có cường độ nhỏ tại 22,5°, đây là pic đặc trưng của pha cristobalite (α - SiO₂). Khi phủ Fe(OH)₃ lên tro trấu để tổng hợp vật liệu thì hình

2(b) xuất hiện pic nhiễu xạ có cường độ 35,5° nhưng không xuất hiện pic đặc trưng của Fe(OH)₃, điều này cũng có thể là do lúc này Fe(OH)₃ có dạng cấu trúc vô định hình chứng tỏ một phần nhỏ SiO₂ vô định hình của RHA khi nung đã chuyển sang dạng tinh thể hoặc vi tinh thể.



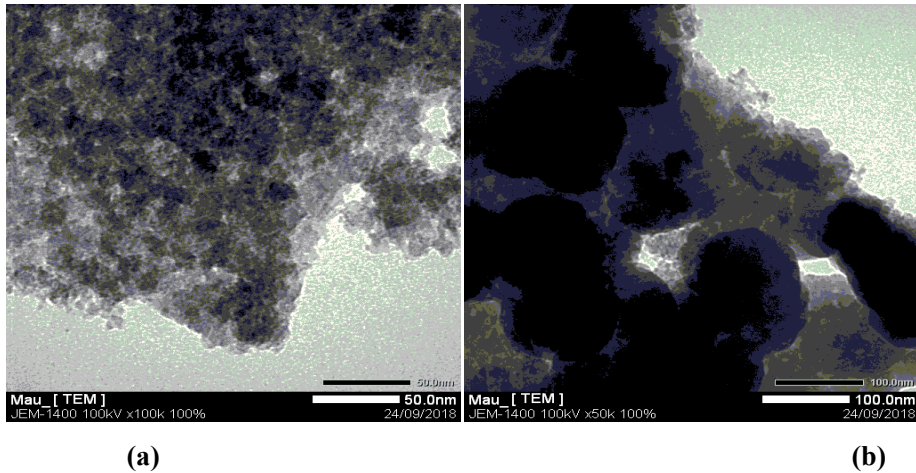
Hình 3. Giải đồ EDX mẫu tro trấu (RHA) (a), vật liệu RHA/Fe(OH)₃ 15% Fe₂O₃ (b)

Giải đồ EDX của tro trấu và vật liệu RHA/Fe(OH)₃ được biểu diễn ở hình 3. Trên hình 3(a) cho thấy xuất hiện các pic đặc trưng của Si, O, ngoài ra còn có mặt K, hình 3(b) xuất hiện các pic đặc trưng của Si và Fe, ngoài ra còn có mặt O. Kết quả này phù hợp với hàm lượng Fe₂O₃ khi tổng

hợp vật liệu là 15%. Điều này chứng tỏ Fe(OH)₃ được phủ lên tro trấu rất đồng đều.

3.1.2 Hình thái và kích thước hạt của vật liệu

Hình ảnh TEM của mẫu tro trấu (RHA) và mẫu vật liệu RHA/Fe(OH)₃ với điều kiện thích hợp được trình bày ở hình 4.



Hình 4. Ảnh TEM của tro trấu (a) và vật liệu RHA/Fe(OH)₃ 15% Fe₂O₃ (b)

Hình 4 cho thấy hạt tro trấu có cấu trúc rỗng xốp, kích thước hạt khoảng 150 nm, các hạt khá đồng đều và liên kết với nhau tạo thành hệ thống mao quản chằng chịt. Sau khi phủ Fe(OH)₃ lên tro trấu thì vật liệu RHA/Fe(OH)₃ có cấu trúc xốp, độ rỗng của vật liệu giảm do các phân tử Fe(OH)₃ đã nằm

trong lòng các ống mao quản, các hạt vật liệu đặc khít và liên kết chặt chẽ với nhau, cho thấy vật liệu biến tính có khả năng hấp phụ cao.

3.2 Ảnh hưởng của điều kiện tổng hợp đến khả năng hấp phụ As của vật liệu

3.2.1 Ảnh hưởng hàm lượng Fe₂O₃

Bảng 1. Hiệu suất hấp phụ arsen của vật liệu RHA/Fe(OH)₃ có hàm lượng Fe₂O₃ khác nhau

Ký hiệu mẫu	Hàm lượng Fe ₂ O ₃ (%)	C _e (mg/L)	H (%)
A5	5	26,395	47,21
A10	10	15,035	69,93
A15	15	0,595	98,81
A20	20	0,510	98,98
A25	25	0,465	99,07
A30	30	0,440	99,12
A35	35	0,425	99,15

Bảng 1 cho thấy hiệu suất tăng mạnh khi tăng hàm lượng Fe₂O₃ từ 5% đến 15% thì hiệu suất hấp phụ arsen tăng mạnh từ 47,21% đến 98,81%. Tiếp tục tăng hàm lượng Fe₂O₃ thì hiệu suất hấp phụ arsen thay đổi không đáng kể. Điều này có thể được giải thích là do liều lượng Fe₂O₃ tăng lên

đã phủ lên bề mặt của tro trấu đã làm bít một phần hệ thống mao quản làm cho hiệu suất hấp phụ thay đổi không đáng kể. Có thể thấy rằng vật liệu RHA/Fe(OH)₃ có khả năng hấp phụ arsen rất tốt, chọn hàm lượng Fe₂O₃ để phủ lên vật liệu RHA là 15%.

3.2.2 Ảnh hưởng nhiệt độ sấy

Bảng 2. Hiệu suất hấp phụ arsen của vật liệu sấy ở các nhiệt độ khác nhau

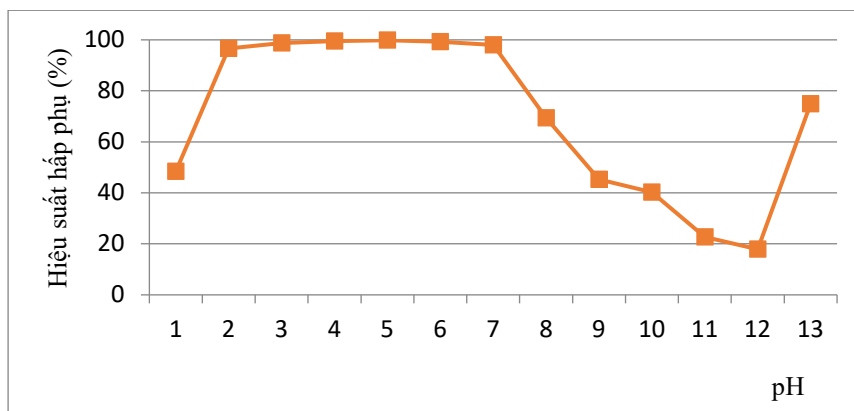
Ký hiệu mẫu	Nhiệt độ sấy °C	C _e (mg/L)	H (%)
B80	80	0,590	98,82
B100	100	0,725	98,55
B120	120	0,985	98,03
B140	140	1,120	97,76
B160	160	1,445	97,11
B180	180	1,775	96,54
B200	200	1,880	96,24

Kết quả cho thấy trong khoảng nhiệt độ sấy từ 80 đến 120 °C, hiệu suất hấp phụ gần như không thay đổi đáng kể. Khi tăng nhiệt độ sấy từ 140 đến 200 °C hiệu suất hấp phụ giảm, có thể một phần SiO₂ ở dạng vô định hình chuyển sang tinh thể, làm giảm diện tích bề mặt cũng như các trung tâm hoạt động dẫn đến khả năng hấp phụ kém. Do đó chọn nhiệt độ thích hợp để sấy vật liệu sau khi tổng hợp là 80 °C.

3.3 Nghiên cứu quá trình hấp phụ As lên vật liệu hấp phụ biến tính RHA/Fe(OH)₃

3.3.1 Ảnh hưởng của pH đến hiệu suất hấp phụ arsen

Hình 5 cho thấy khi tăng pH từ 1 đến 2 thì hiệu suất hấp phụ tăng mạnh từ 48,48% lên 96,59%. Giá trị pH thay đổi từ 2 đến 7 thì hiệu suất của quá trình hấp phụ arsen trong nước tăng lên thay đổi không đáng kể. Nhưng khi pH tăng từ 7 lên 12 thì hiệu suất hấp phụ giảm mạnh từ 97,04% xuống 17,88%. Do đó điều kiện pH thích hợp để vật liệu hấp phụ tốt arsen trong nước là 4, trong môi trường axit để lớp sắt (III) hydroxit không bị hòa tan làm ảnh hưởng đến khả năng hấp phụ ion arsen trong dung dịch nước, điều này phù hợp với nghiên cứu của Pehlivan và cs. (2013).



Hình 5. Ảnh hưởng của pH đến hiệu suất hấp phụ arsen trong nước

Giá trị pH đóng vai trò quan trọng trong quá trình loại bỏ các ion As (V) ra khỏi dung dịch nước. Cơ chế loại bỏ As (V) trong dung dịch được giải thích

theo “Định luật Cu-lông” và quá trình hình thành các phức chelat giữa các ion As (V) với các nhóm tích điện trên bề mặt chất hấp phụ. Ở pH thấp

hơn, mật độ điện tích dương trên các vị trí bề mặt tăng lên dẫn đến lực hút tĩnh điện giữa các nhóm (FeOH_2^+) và As (V) tăng lên, làm tăng sự hấp phụ đối với các ion As (V) của H_3AsO_4 . Ngược lại, khi tăng độ pH, lực đẩy tĩnh điện tăng do giảm điện tích dương các vị trí hấp phụ. Hơn nữa, lực hút tĩnh điện giữa các nhóm bề mặt tích điện dương (FeOH_2^+) và As (V) của H_2AsO_4^- và HAsO_4^{2-} giảm, cản trở hình thành các phức chất bề mặt dẫn đến khả năng hấp phụ thấp hơn.

3.3.2 Ảnh hưởng của liều lượng vật liệu đến

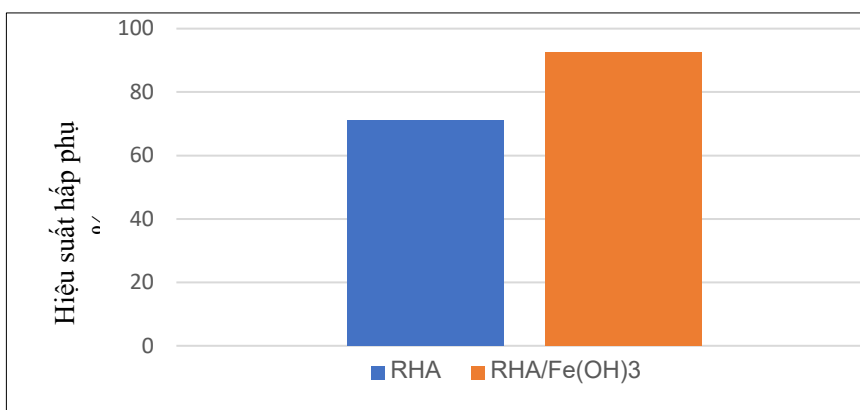
Bảng 3. Ảnh hưởng của liều lượng vật liệu đến hiệu suất hấp phụ arsen trong dung dịch nước

Kí hiệu mẫu	Liều lượng vật liệu hấp phụ (g/L)	C_e (mg/L)	Hiệu suất (%)
L1	1	35,09	29,82
L2	2	24,72	50,56
L3	3	12,9	74,20
L4	4	6,19	87,62
L5	5	3,76	92,48
L6	6	2,01	95,98
L7	7	1,87	96,26
L8	8	1,59	96,82
L9	9	0,83	98,34
L10	10	0,47	99,06

hiệu suất hấp phụ arsen

Kết quả khảo sát ảnh hưởng của liều lượng vật liệu đến hiệu suất hấp phụ arsen trong nước được trình bày ở bảng 3, khi tăng liều lượng vật liệu từ 1 g/L đến 5 g/L thì hiệu suất của quá trình hấp phụ arsen trong nước tăng mạnh từ 29,54% lên 92,48%. Nhưng khi tăng liều lượng vật liệu lên 6 g/L đến 10 g/L thì hiệu suất hấp phụ của vật liệu thay đổi không đáng kể. Do đó chọn liều lượng vật liệu thích hợp để tiến hành hấp phụ arsen trong nước là 5 g/L.

3.3.2 Ảnh hưởng của vật liệu hấp phụ đến hiệu suất hấp phụ arsen



Hình 6. Ảnh hưởng của vật liệu hấp phụ đến hiệu suất hấp phụ arsen trong dung dịch nước

Kết quả khảo sát ảnh hưởng của vật liệu hấp phụ đến hiệu suất hấp phụ arsen trong nước được trình bày ở hình 6. Hiệu suất hấp phụ arsen của vật liệu RHA đạt 71,14% cho thấy vật liệu RHA (đóng vai trò là chất mang trong nghiên cứu này) cũng cho hoạt tính hấp phụ arsen tương đối tốt. Hiệu suất

hấp phụ arsen của vật liệu RHA/Fe(OH)3 cao gấp gần 1,3 lần so với vật liệu RHA. Khả năng hấp phụ của vật liệu RHA/Fe(OH)3 cao hơn có thể được giải thích là do sự tồn tại đồng thời và liên kết các tâm hấp phụ và sự tương tác điện từ giữa hydroxyt sắt và chất mang RHA.

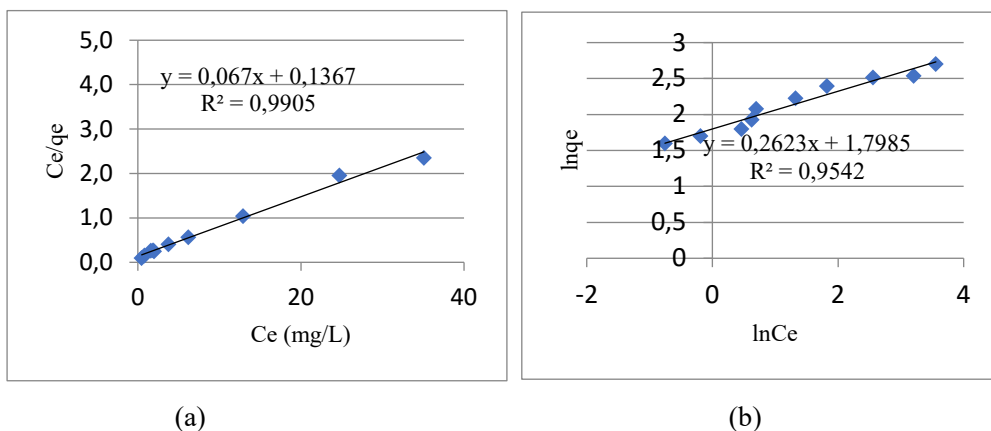
3.4 Nghiên cứu đẳng nhiệt quá trình hấp phụ arsen

Bảng 4. Dung lượng hấp phụ arsen của vật liệu RHA/Fe(OH)₃ trong dung dịch nước

STT	Liều lượng vật liệu hấp phụ (g/L)	C ₀ (mg/L)	C _e (mg/L)	q _e (mg/g)
1	1	50	35,09	14,91
2	2	50	24,72	12,64
3	3	50	12,9	12,37
4	4	50	6,19	10,95
5	5	50	3,76	9,24
6	6	50	2,01	7,99
7	7	50	1,87	6,87
8	8	50	1,59	6,05
9	9	50	0,83	5,46
10	10	50	0,47	4,95

Nghiên cứu đẳng nhiệt quá trình hấp phụ As (V) trong dung dịch nước thông qua dung lượng hấp phụ của vật liệu RHA/Fe(OH)₃ được trình bày ở bảng 4.

Phương trình đẳng nhiệt hấp phụ theo các mô hình của Langmuir và Freundlich xây dựng từ kết quả hấp phụ trên được trình bày ở hình 7.



Hình 7. Mô hình đẳng nhiệt hấp phụ Langmuir-2 (a) và đẳng nhiệt hấp phụ Freundlich (b) của vật liệu RHA/Fe(OH)₃ đối với arsen trong nước ở nhiệt độ thường

Xây dựng các phương trình hồi quy tuyến tính và tính toán được các tham số đẳng nhiệt hấp phụ và trình bày ở bảng 5.

Bảng 5. Các tham số của phương trình đẳng nhiệt dạng tuyến tính

Mô hình đẳng nhiệt	Phương trình	Các tham số	r ²
Langmuir	$\frac{C_e}{q_e} = \left(\frac{1}{q_m}\right) \times C_e + \left(\frac{1}{K \times q_m}\right)$	$q_m = 14,92$ $K = 0,49$	0,9905
Freundlich	$\ln q_e = \ln K + \frac{1}{n} \ln C_e$	$K = 6,04$ $n = 3,812$	0,9542

Kết quả thực nghiệm cho thấy mô hình đẳng nhiệt hấp phụ Langmuir-2 có hệ số tương quan $r^2 = 0,9905$ lớn hơn so với mô hình đẳng nhiệt hấp phụ Freundlich có hệ số tương quan $r^2 = 0,9542$. Do đó, có thể thấy mô hình đẳng nhiệt hấp phụ Langmuir-2 mô tả tốt hơn mô hình đẳng nhiệt Freundlich đối với quá trình hấp phụ asen trong dung dịch nước khi dùng vật liệu tro trấu phủ $\text{Fe}(\text{OH})_3$. Kết quả này phù hợp với nghiên cứu của Pehlivan và cs. (2013). Dung lượng hấp phụ cực đại của mẫu tro trấu phủ sắt (III) hidroxit bằng 14,92 mg/g. Theo mô hình này, quá trình hấp phụ asen lên vật liệu RHA/ $\text{Fe}(\text{OH})_3$ là đơn lớp, tiểu phân bị hấp phụ liên kết với bề mặt tại những trung tâm xác định, mỗi trung tâm chỉ hấp phụ một tiểu phân, bề mặt tro trấu là đồng nhất, năng lượng hấp phụ đối với các tiểu phân là như nhau, không phụ thuộc vào sự có mặt của các tiểu phân hấp phụ ở trên các trung tâm bên cạnh.

KẾT LUẬN

Vật liệu RHA/ $\text{Fe}(\text{OH})_3$ được tổng hợp thành công bằng cách nung vỏ trấu ở 700 °C, thời gian lưu 60 phút, hàm lượng $\text{Fe}(\text{OH})_3$ phủ lên bề mặt tro trấu (quy về Fe_2O_3) là 15%, nhiệt độ sấy vật liệu ở 80 °C có khả năng hấp phụ tốt nhất asen hàm lượng 50 mg/L và đạt hiệu suất hấp phụ 92,48% với liều lượng 5 g/L. Vật liệu thu được có kích thước hạt đồng đều, cấu trúc xốp, thành phần pha chủ yếu là SiO_2 và Fe_2O_3 dạng vô định hình. Quá trình hấp phụ asen tuân theo mô hình hấp phụ đẳng nhiệt Langmuir-2 với hằng số $K = 0,490$ và $r^2 = 0,9905$. Dung lượng hấp phụ cực đại của vật liệu tro trấu phủ sắt (III) hidroxit là 14,92 mg/g.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

- Appelo, C.A.J., Van Der Weijden, M. J. J., Tournassat, C., & Charlet, L. (2002). Surface Complexation of Ferrous Iron and Carbonate on Ferrihydrite and the Mobilization of Arsenic. *Environmental Science and Technology*, 36, 3096 - 3103.
- Altundogan, S.H., & Bildik, M. (2000). Arsenic removal from aqueous solutions by adsorption on red mud. *Waste Management*, 20, 761 - 767.
- Borah, D., Satokawa, S., & Kojima, T. (2008). Surface-modified carbon black for As(V) removal. *Journal of Colloid and Interface Science*, 319, 53 - 62.
- Dinesh, M., Charles, U., & Pittman J. (2007). Arsenic removal from water/wastewater using adsorbents - A critical review. *Journal of Hazardous Materials*, 142, 1 - 53.
- Đỗ Văn Ái., Mai Trọng Nhuận., & Nguyễn Khắc Vinh. (2003). *Nhiễm độc asen: Một vấn đề sức khoẻ môi trường với quy mô toàn cầu*. Báo cáo hội thảo - Ô nhiễm Asen: Hiện trạng, tác động đến sức khoẻ con người và giải pháp phòng ngừa. UNICEF CERWASS. Hà Nội
- Fuhrman, H., Tjell J.C., & Mcconchie D. (2004). Adsorption of arsenic from water using activated neutralized red mud. *Environmental Science and Technology*, 38, 2428 - 2434.
- Ganvir, V., & Das, K. (2011). Removal of fluoride from drinking water using aluminum hydroxide coated rice husk ash. *Journal of Hazardous Materials*, 18, 1287 -1294.
- Gaosheng, Z., Jiuhui, Q., & Huijuan, L. (2007). Preparation and evaluation of a novel Fe-Mn binary oxide adsorbent for effective arsenite removal. *Water research*, 41, 1921 - 1928.
- Hlavay, J., & Polyák, K. (2005). Determination of surface properties of iron hydroxide-coated alumina adsorbent prepared for removal of arsenic from drinking water. *Journal of Colloid and Interface Science*, 284, 71 - 77.
- Jeon, C.S., Baek, K., Park, J.K., Oh, Y.K., & Lee, S.D., (2009). Adsorption characteristics of As(V) on iron-coated zeolite. *Journal of Hazardous Materials*, 163, 804-808.
- Pehlivan, E., Tran, T.H., Ouédraogo, W.K.I., Schmidt, C., Zachmann, D., & Bahadir, M. (2013). Removal of As(V) from aqueous solutions by iron coated rice husk. *Fuel Processing Technology*, 106, 511 - 517.
- Ranjan, Tala M., & Hasan S.H. (2009). Biosorption of arsenic from aqueous solution using agricultural residue “rice polish”. *Journal of Hazardous Materials*, 16, 1050 - 1059.