

# Nghiên cứu khả năng hấp phụ chất màu methyl da cam trong dung dịch nước sử dụng vật liệu composite ZnO/chitosan kích thước nano

Nguyễn Ngọc Thịnh<sup>1\*</sup>, Nguyễn Văn Anh<sup>2</sup>, Nguyễn Huy Hoàng<sup>3</sup>

<sup>1</sup>Trường Hóa và Khoa học Sự sống, Đại học Bách khoa Hà Nội, 1 Đại Cồ Việt, phường Bách Khoa, quận Hai Bà Trưng, Hà Nội, Việt Nam

<sup>2</sup>Khoa Kỹ thuật Môi trường, Trường Đại học Thủ đô Hà Nội, 98 Dương Quang Hàm, phường Quan Hoa, quận Cầu Giấy, Hà Nội, Việt Nam

<sup>3</sup>Viện Công nghệ Thông tin, Viện Hàn lâm Khoa học và Công nghệ Việt Nam, 18 Hoàng Quốc Việt, phường Nghĩa Đô, quận Cầu Giấy, Hà Nội, Việt Nam

Ngày nhận bài 27/3/2023; ngày chuyển phản biện 29/3/2023; ngày nhận phản biện 10/12/2023; ngày chấp nhận đăng 2/7/2024

## **Tóm tắt:**

Ngày nay, thuốc nhuộm hữu cơ được sử dụng nhiều trong các ngành công nghiệp như: dệt nhuộm, mỹ phẩm, giấy, cao su... Tuy nhiên, sự phát triển nhanh của các ngành công nghiệp này đã làm tăng đáng kể lượng chất thải chứa thuốc nhuộm hữu cơ thải ra môi trường, do vậy cần có biện pháp xử lý hiệu quả. Trong bài báo này, vật liệu nanocomposite ZnO/chitosan (ZnO/CS) đã được tổng hợp bằng phương pháp đồng kết tủa. Sau khi được tổng hợp thành công, vật liệu nanocomposite ZnO/CS được phân tích đặc trưng bằng các phương pháp phổ nhiễu xạ tia X, kính hiển vi điện tử quét và hiển vi điện tử truyền qua. Kết quả cho thấy, kích thước trung bình của tinh thể nano ZnO khoảng 29,6 nm. Vật liệu nanocomposite ZnO/CS có dạng hạt hình cầu và hình lục giác có kích thước trong khoảng 20-40 nm. Vật liệu tổng hợp đã được sử dụng để loại bỏ chất màu methyl da cam khỏi dung dịch nước. Kết quả cho thấy, thời gian hấp phụ đạt tới cân bằng sau 20-30 phút, kết quả hấp phụ phù hợp với mô hình đẳng nhiệt Freundlich, chứng tỏ quá trình hấp phụ là đa lớp. Vật liệu được chứng minh có khả năng hấp phụ tốt chất màu methyl da cam với dung lượng hấp phụ cực đại đạt 33,90 mg/g, chứng tỏ vật liệu hoàn toàn có khả năng phát triển thêm để tiến tới ứng dụng làm chất hấp phụ chất màu hữu cơ.

**Từ khóa:** hấp phụ, methyl da cam, nanocomposite, ZnO/chitosan.

**Chỉ số phân loại:** 1.4, 2.5, 2.9

## Study on methyl orange adsorption capacity in water-based solutions using nano ZnO/chitosan composite

Ngoc Thinh Nguyen<sup>1\*</sup>, Van Anh Nguyen<sup>2</sup>, Huy Hoang Nguyen<sup>3</sup>

<sup>1</sup>School of Chemistry and Life Science, Hanoi University of Science and Technology, 1 Dai Co Viet Street, Bach Khoa Ward, Hai Ba Trung District, Hanoi, Vietnam

<sup>2</sup>Faculty of Technology and Environment, Hanoi Metropolitan University, 98 Duong Quang Ham Street, Quan Hoa Ward, Cau Giay District, Hanoi, Vietnam

<sup>3</sup>Institute of Information Technology, Vietnam Academy of Science and Technology, 18 Hoang Quoc Viet Street, Nghia Do Ward, Cau Giay District, Hanoi, Vietnam

Received 27 March 2023; revised 10 December 2023; accepted 2 July 2024

## **Abstract:**

Nowadays, organic dyes are widely used in numerous industrial fields such as textile dyeing, cosmetics, paper, rubber, etc. However, the rapid development of these industries has significantly increased the amount of waste containing organic dyes released into the environment, thus, they need to be effectively treated. In this article, ZnO/chitosan nanocomposites (ZnO/CS) were synthesised by the co-precipitation method. After being successfully synthesised, ZnO/CS nanocomposite materials were characterised by X-ray diffraction spectroscopy, scanning electron microscopy and transmission electron microscopy. The results indicate that the average size of ZnO nanocrystals is about 29.6 nm. ZnO/CS nanocomposite materials have spherical and hexagonal particles ranging in size from 20 to 40 nm. The synthesised material was used to remove methyl orange from water-based solutions. The results demonstrate that the equilibrium adsorption time is reached after about 20-30 minutes, the adsorption results are more appropriately described by the Freundlich isotherm model, proving that the adsorption process is multilayer. The material is proven to have a good adsorption capacity of methyl orange with a maximum adsorption capacity of 33.90 mg/g, showing that the material is fully capable of further development to be applied as an adsorbent for organic dyes.

**Keywords:** adsorption, methyl orange, nanocomposite, ZnO/chitosan.

**Classification numbers:** 1.4, 2.5, 2.9

\*Tác giả liên hệ: Email: [thinh.nguyennhoc@hust.edu.vn](mailto:thinh.nguyennhoc@hust.edu.vn)

## 1. Giới thiệu

Ngày nay, thuốc nhuộm hữu cơ được sử dụng nhiều trong các ngành công nghiệp như: dệt nhuộm, mỹ phẩm, giấy, cao su... Tuy nhiên, sự phát triển nhanh của các ngành công nghiệp đó đã làm cho lượng chất thải chứa thuốc nhuộm hữu cơ thải ra môi trường gia tăng đáng kể. Ước tính, khoảng 10-15% lượng thuốc nhuộm sử dụng trong quá trình sản xuất không được hấp thụ hoàn toàn vào sản phẩm cuối cùng mà bị thải trực tiếp ra nguồn nước. Điều này dẫn đến nước thải công nghiệp thường chứa một lượng lớn chất nhuộm làm tăng nhu cầu oxy hóa học (COD), nhu cầu oxy sinh học (BOD), giảm độ xuyên ánh sáng và tầm nhìn [1-3]. Các hợp chất này khi xâm nhập vào nguồn nước có thể gây ô nhiễm nghiêm trọng, ảnh hưởng đến chất lượng nước và làm giảm đa dạng sinh học của hệ sinh thái thủy sinh. Bên cạnh đó, một số thuốc nhuộm hữu cơ có khả năng sinh ra các chất độc hại trong điều kiện nhất định, gây ra các bệnh lý nguy hiểm [1-4]. Trong số các thuốc nhuộm hữu cơ, methyl da cam được chú ý nhiều do tính độc hại cao. Đây là một loại thuốc nhuộm azo với đặc tính ổn định và khó phân hủy, thường được sử dụng trong các ứng dụng công nghiệp và phòng thí nghiệm [4]. Theo báo cáo của E. Forgacs và cs (2004) [5], methyl da cam không chỉ ảnh hưởng đến sức khỏe con người mà còn có thể gây ra ảnh hưởng nghiêm trọng cho môi trường. Khi đi vào cơ thể, methyl da cam có thể gây tổn thương hoặc rối loạn chức năng các cơ quan như gan, thận... Ngoài ra, hợp chất này cũng được ghi nhận là làm giảm khả năng sinh sản và và tăng tỷ lệ tử vong ở các loài thủy sinh, từ đó phá vỡ cân bằng sinh thái [1, 5]. Đặc biệt, khi methyl da cam bị phân hủy không hoàn toàn, nó có thể tạo ra các sản phẩm phân hủy như amin thơm - một nhóm hợp chất có khả năng gây đột biến và là tác nhân gây nhiều ảnh hưởng không tốt tới sức khỏe đã được chứng minh [6]. Do đó, cần có các biện pháp loại bỏ hoặc giảm thiểu tối đa lượng thuốc nhuộm methyl da cam, cũng như thuốc nhuộm hữu cơ trong nước thải trước khi xả chúng ra môi trường.

Để xử lý thuốc nhuộm hữu cơ, các nhà nghiên cứu đã sử dụng một số các phương pháp sinh học, hóa học và vật lý, ví dụ như: xử lý hiếu khí hoặc kỵ khí, đông tụ, keo tụ, oxy hóa hóa học, phân hủy xúc tác quang, phân hủy điện hóa học, phương pháp lọc màng và hấp phụ... [1, 4, 5]. Trong số những phương pháp trên, hấp phụ là một trong những phương pháp phổ biến để loại bỏ thuốc nhuộm vì dễ thực hiện và hiệu quả cao [2-5]. Trong thời gian gần đây, vật liệu có kích thước nano (1-100 nm) thường được lựa chọn nghiên cứu làm chất hấp phụ nhờ có nhiều ưu điểm vượt trội hơn so với các vật liệu hấp phụ truyền thống do có diện

tích bề mặt riêng rất lớn. K.O. Iwuozor và cs (2021) [7] đã thống kê được khoảng 240 nghiên cứu đã xuất bản về khả năng xử lý loại bỏ thuốc nhuộm methyl da cam trong môi trường nước và nhấn mạnh rằng, các hạt nano và chất hấp phụ tổng hợp dựa trên polyme (sinh học) là những vật liệu được nghiên cứu thường xuyên sử dụng cho mục đích này [1, 7]. Trong số đó, chitosan (CS), một loại polyme sinh học tự nhiên có nguồn gốc từ chitin, không độc hại, có thể phân hủy sinh học, được coi là một trong những chất hấp phụ phù hợp nhất và linh hoạt nhất về mặt chức năng vì nó chứa các nhóm hydroxyl (-OH) và amin (-NH<sub>2</sub>) [1]. Để tăng cường khả năng hấp phụ, tính chọn lọc cũng như độ bền cơ học của CS các nhà nghiên cứu thường kết hợp nó với các vật liệu bán dẫn kích thước nano như TiO<sub>2</sub>, CdS, ZnO... để tạo thành các nanocomposite. Các nanocomposite vật liệu bán dẫn trên nền CS có ưu điểm nổi bật là giá rẻ, ít ảnh hưởng tới môi trường và cho hiệu suất xử lý cao [1, 8]. Trong bài báo này, vật liệu nanocomposite ZnO/CS đã được tổng hợp bằng phương pháp đồng kết tủa. Vật liệu tổng hợp đã được sử dụng để xử lý loại bỏ chất màu methyl da cam khỏi dung dịch nước.

## 2. Thí nghiệm và phương pháp nghiên cứu

### 2.1. Tổng hợp nanocomposite ZnO/CS

Nghiên cứu sử dụng các hóa chất tinh khiết dùng trong phân tích. Quy trình tổng hợp mẫu được tiến hành như đã công bố trước đây [8] với một số thay đổi, cụ thể: hòa tan hoàn toàn 12,75 g muối Zn(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>.6H<sub>2</sub>O vào 100 ml dung dịch CS (nồng độ 0,2%), khuấy đều hỗn hợp ở 80°C trong thời gian 30 phút bằng máy khuấy từ. Sau đó, dung dịch NaOH 0,1 M được thêm từ từ vào hỗn hợp cho tới khi pH của hỗn hợp đạt tới giá trị pH=10. Khuấy tiếp tục hỗn hợp phản ứng trong 120 phút tại cùng nhiệt độ nêu trên. Kết tủa tạo thành được tách bằng máy ly tâm Hettich Mikro 22R. Sau đó, kết tủa được làm sạch bằng cách rửa với nước cất cho đến pH trung tính. Sản phẩm thu được sấy qua đêm (khoảng 8 giờ) ở nhiệt độ 60°C. Vật liệu đã được làm khô sẽ được nghiền nhỏ với cối mã não.

### 2.2. Đặc trưng tính chất của vật liệu

Vật liệu nanocomposite ZnO/CS đã tổng hợp được đặc trưng bằng nhiều thiết bị phân tích hóa lý hiện đại như: thiết bị nhiễu xạ tia X (Bruker D8 - Trường Đại học Khoa học Tự nhiên, Đại học Quốc gia Hà Nội), thiết bị hiển vi điện tử quét, thiết bị hiển vi điện tử truyền qua (JEOL JEM-1010 - Viện Vệ sinh Dịch tễ Trung ương). Nồng độ chất màu methyl da cam được đo bằng thiết bị quang phổ tử ngoại khả kiến (UV-Vis) (Agilent 8453) tại Trường Hóa và Khoa học Sự sống, Đại học Bách khoa Hà Nội.

**2.3. Nghiên cứu khả năng hấp phụ chất màu methyl da cam của vật liệu nano ZnO/CS**

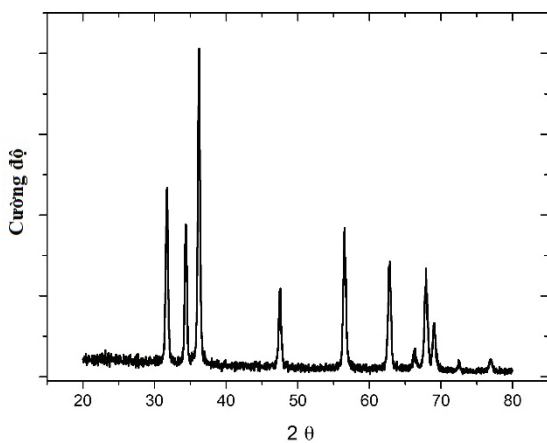
Quá trình hấp phụ methyl da cam lên vật liệu nanocomposite ZnO/CS được khảo sát theo quy trình sau: cân chính xác 0,05 g nanocomposite ZnO/CS, chuyển lượng chất hấp phụ đã cân vào bình phản ứng có chứa 50 ml dung dịch methyl da cam có các nồng độ khác nhau (5, 10, 20 và 30 mg/l). Hỗn hợp phản ứng được lắc liên tục bằng máy lắc ngang. Lượng mẫu 5 ml được lấy ra sau những khoảng thời gian khác nhau được ly tâm (6000 vòng/phút). Sau đó, nồng độ chất màu methyl da cam còn lại được xác định bằng phương pháp so màu trên máy UV-Vis tại bước sóng 464 nm. Sau khi đo nồng độ methyl da cam, dung dịch lấy ra được rót lại vào hỗn hợp phản ứng ban đầu [9]. Dưới đây là công thức được sử dụng để tính lượng methyl da cam hấp phụ tức thời lên vật liệu đã tổng hợp ( $q_t$ , mg/l):

$$q_t = \frac{(C_0 - C_t)V}{W} \tag{1}$$

trong đó:  $C_0$  là nồng độ chất bị hấp phụ methyl da cam ở thời điểm ban đầu,  $C_t$  (mg/l) là nồng độ methyl da cam tại thời điểm t, V (l) là thể tích dung dịch methyl da cam và W (g) là khối lượng chất hấp phụ nanocomposite ZnO/CS.

**3. Kết quả và bàn luận**

Hình 1 trình bày giản đồ nhiễu xạ tia X của vật liệu nano ZnO/CS. Có thể thấy, chỉ có một pha tinh thể duy nhất, các peak đều trùng với các peak tương ứng với ZnO tinh thể lục phương wurtzite theo thẻ dữ liệu chuẩn JCPDS (36-1451) [10]. Điều này chứng minh, sản phẩm chứa thành phần tinh thể ZnO tinh khiết và không còn pha tinh thể nào khác.



Hình 1. Phổ nhiễu xạ tia X của nano ZnO/CS.

Bảng 1 thể hiện các thông số của phổ nhiễu xạ tia X của vật liệu nano ZnO/CS sử dụng phần mềm X'Pert HighScore khi so sánh với phổ chuẩn của tinh thể ZnO, các vị trí peak đặc trưng và cường độ tương đối của các peak trong vật liệu đều khá tương đồng với phổ chuẩn. Kích thước nhỏ của tinh thể được chứng tỏ qua sự mở rộng của các peak thu được.

Bảng 1. So sánh các thông số của mẫu nano ZnO/CS và mẫu chuẩn.

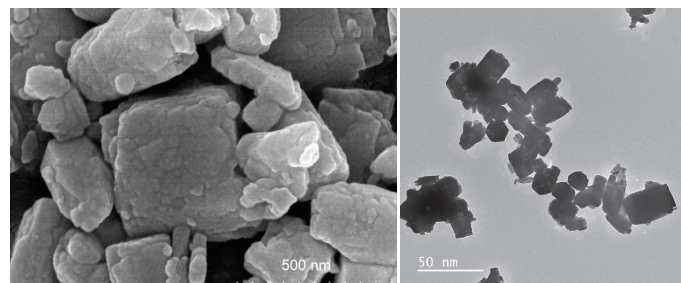
JCPDS (36-1451)		Nano ZnO/CS		
2 $\theta$	%I	2 $\theta$	%I	FWHM
31,76	57	31,75	56,01	0,2362
34,42	44	34,31	40,21	0,18
<b>36,25</b>	<b>100</b>	<b>36,22</b>	<b>100</b>	<b>0,2952</b>
47,53	23	47,58	24,57	0,2066
56,60	32	56,55	45,8	0,2362
62,86	29	62,82	32,1	0,4133
67,96	22	67,82	25,74	0,3542
69,09	16	69,02	14,47	0,1771

Công thức Scherer được dùng để tính kích thước tinh thể của vật liệu:

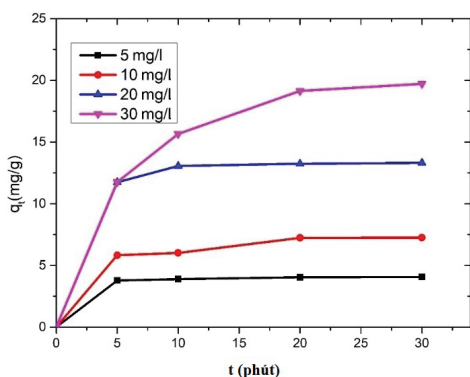
$$D = \frac{k\lambda}{\beta \cos\theta} \tag{2}$$

trong đó: D là kích thước tinh thể,  $k=0,94$ , bước sóng  $\lambda$  của tia X - 0,154 nm, độ rộng peak  $\beta$  tại vị trí nửa chiều cao (FWHM) [10]. Từ giản đồ nhiễu xạ tia X (hình 1) và các thông số trong bảng 1 có thể thấy, peak tại vị trí góc 2  $\theta$  là 36,22° là peak có cường độ lớn nhất (100%). Do đó, nhóm tác giả sử dụng peak này để tính kích thước của tinh thể nano ZnO. Theo đó, kích thước tinh thể tính theo công thức Scherer của vật liệu ZnO là 29,6 nm.

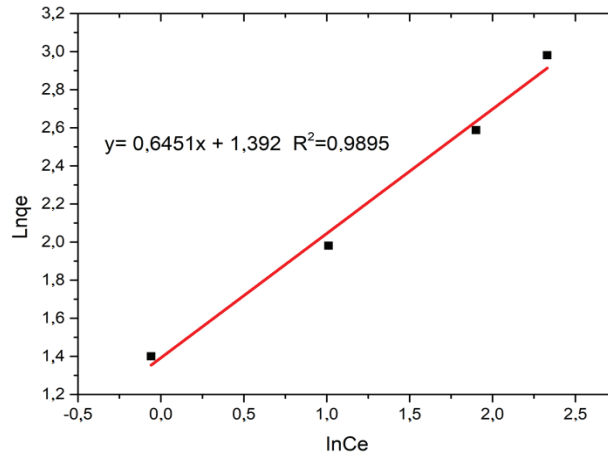
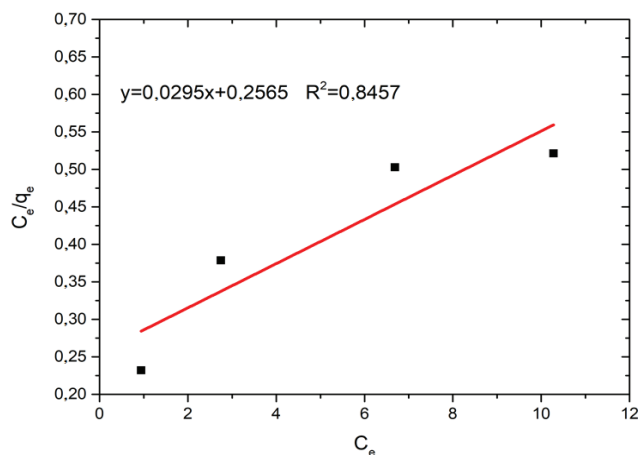
Kích thước cũng như hình thái hạt của vật liệu nano ZnO/CS, được xác định bằng phương pháp kính hiển vi điện tử quét (FESEM) và kính hiển vi điện tử truyền qua (TEM) (hình 2). Theo kết quả thu được, vật liệu nano ZnO/CS bao gồm các hạt hình cầu và các hạt hình lục giác có kích thước 20-40 nm. Trong một số nghiên cứu khác, khi sử dụng nguyên liệu đầu là muối  $Zn(CH_3COO)_2$  thì sản phẩm nano ZnO thu được sẽ có dạng hình que là chủ yếu [11, 12]. Điều này có thể giúp kiểm soát hình dạng của vật liệu theo mong muốn, tùy theo các yêu cầu khác nhau. Tuy nhiên, cơ chế cụ thể chính xác thì cần các nghiên cứu sâu hơn.



Hình 2. Ảnh kính hiển vi điện tử quét (trái) và kính hiển vi điện tử truyền qua (phải) của mẫu vật liệu nanocomposite ZnO/CS.



Hình 3. Sự phụ thuộc của dung lượng hấp phụ methyl da cam lên vật liệu nanocomposite ZnO/CS vào thời gian.



Hình 4. Đường đẳng nhiệt Langmuir (trái) và Freundlich (phải) hấp phụ methyl da cam đối với vật liệu nanocomposite ZnO/CS.

Như đã biết, nồng độ ban đầu của methyl da cam ( $C_0$ ) và thời gian hấp phụ có khả năng ảnh hưởng tới khả năng hấp phụ của vật liệu. Nhóm tác giả đã khảo sát ảnh hưởng này và biểu diễn kết quả thu được trong hình 3. Kết quả cho thấy, trong 5 phút đầu tiên, dung lượng hấp phụ tăng khá nhanh, sau đó giảm dần và đạt tới trạng thái cân bằng sau khoảng 20 phút. Ngoài ra, khi tăng  $C_0$  thì dung lượng hấp phụ methyl da cam cũng tăng lên tương ứng (hình 3).

Hai mô hình đường đẳng nhiệt hấp phụ Langmuir (biểu diễn sự hấp phụ đơn lớp) và Freundlich (biểu diễn sự hấp phụ đa lớp) là các mô hình được sử dụng phổ biến trong các nghiên cứu về quá trình hấp phụ đẳng nhiệt. Do vậy, trong nghiên cứu này, nhóm tác giả đã dùng 2 mô hình trên để kiểm chứng sự hấp phụ của methyl da cam lên vật liệu đã tổng hợp được. Dưới đây là những phương trình dạng tuyến tính tương ứng với hai mô hình hấp phụ Langmuir và Freundlich [7, 9]:

$$\frac{C_e}{q_e} = \frac{C_e}{q_m} + \frac{1}{q_m \cdot K_L} \quad (3)$$

$$\ln q_e = \ln K_F + \frac{1}{n} \ln C_e \quad (4)$$

trong đó:  $q_e$  (mg/g) là dung lượng hấp phụ methyl da cam ở trạng thái cân bằng;  $q_m$  (mg/g) là dung lượng hấp phụ methyl da cam cực đại theo lý thuyết;  $C_e$  (mg/l) là nồng độ methyl da cam ở trạng thái cân bằng;  $K_L$  (l/mg) là hằng số Langmuir;  $K_F$  ((mg/g).(l/mg)<sup>1/n</sup>) là hằng số Freundlich.

Hình 4 thể hiện đồ thị tuyến tính của đường hấp phụ đẳng nhiệt Langmuir và Freundlich của methyl da cam lên vật liệu nano ZnO/CS. Từ những đường đồ thị này, những thông số của quá trình hấp phụ như  $q_m$ ,  $K_L$  và  $K_F$  được tính toán và biểu diễn trong bảng 2. Từ kết quả thu được, có thể thấy, quá trình hấp phụ đẳng nhiệt methyl da cam tuân theo phương trình đẳng nhiệt hấp phụ Freundlich với hệ số tương quan  $R^2$  là 0,9895, lớn hơn so với hệ số tương quan phương trình Langmuir ( $R^2=0,8457$ ). Do đó, quá trình hấp phụ diễn ra theo cơ chế đa lớp.

Như vậy, theo tính toán của nhóm tác giả khi sử dụng mô hình Langmuir, dung lượng hấp phụ cực đại của methyl da cam trên nanocomposite ZnO/CS là 33,90 (mg/g). Nhóm tác giả đã tiến hành so sánh kết quả thu được với những kết quả nghiên cứu trên nhiều loại vật liệu của các bài báo tương tự, đã được xuất bản của các tác giả khác (bảng 3). Theo đó, dung lượng hấp phụ cực đại methyl da cam của vật liệu nanocomposite ZnO/CS thu được trong bài báo này tương đối tốt, chứng tỏ vật liệu nanocomposite ZnO/CS này có tiềm năng phát triển và ứng dụng trong xử lý ô nhiễm thuốc nhuộm hữu cơ.

Bảng 2. Các thông số mô hình hấp phụ đẳng nhiệt Langmuir và hấp phụ đẳng nhiệt Freundlich.

Hấp phụ Langmuir			Hấp phụ Freundlich		
$q_m$ (mg/g)	$K_L$ (l/mg)	$R^2$	$K_F$ (mg/g).(l/mg) <sup>1/n</sup>	1/n	$R^2$
33,90	0,18434	0,8457	131,871	0,35186	0,9895

**Bảng 3. So sánh khả năng xử lý methyl da cam với một số vật liệu hấp phụ khác.**

Loại vật liệu	$q_m$ (mg/g)	Tài liệu
CS-polyaniline-copper(II) oxide	9,22	[1]
CS schiff/Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> nanocomposite	16,00	[1]
CS/diatomic	26,50	[13]
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /mesoporous carbon	35,12	[14]
LDH/Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub> /polyvinyl alcohol	19,59	[14]
CS sinh khối	29	[15]
Màng CS	8,41	[16]
Tro đáy	3,61	[17]
Đậu nành đã khử dầu	16,66	[17]
Gel CS	23,10	[18]
ZnO/CS nanocomposite	33,90	Nghiên cứu này

#### 4. Kết luận

Trong bài báo này, vật liệu nano ZnO/CS đã được tổng hợp thành công bằng phương pháp đồng kết tủa. Vật liệu nano ZnO/CS sau khi tổng hợp được phân tích đặc trưng bằng các phương pháp phổ nhiễu xạ tia X, FESEM và TEM. Kết quả cho thấy, kích thước trung bình của tinh thể nano ZnO khoảng 29,6 nm. Kết quả hình ảnh SEM, TEM cho thấy, vật liệu nano ZnO/CS có dạng hạt hình cầu và lục giác với kích thước trong khoảng 20-40 nm. Vật liệu tổng hợp đã được sử dụng để xử lý loại bỏ chất màu methyl da cam khỏi dung dịch nước. Thời gian hấp phụ đạt cân bằng sau khoảng 20-30 phút và phù hợp với mô hình đẳng nhiệt Freundlich. Vật liệu được chứng minh có khả năng hấp phụ tốt chất màu methyl da cam với dung lượng hấp phụ cực đại là 33,90 mg/g, chứng tỏ vật liệu hoàn toàn có tiềm năng phát triển để ứng dụng làm chất hấp phụ chất màu hữu cơ.

#### TÀI LIỆU THAM KHẢO

[1] G. Priyadarshi, N.P. Raval, M.H. Trivedi (2022), "Microwave-assisted synthesis of cross-linked CS-metal oxide nanocomposite for methyl orange dye removal from unary and complex effluent matrices", *International Journal of Biological Macromolecules*, **219**, pp.53-67, DOI: 10.1016/j.ijbiomac.2022.07.239.

[2] M. Behera, J. Nayak, S. Banerjee, et al. (2021), "A review on the treatment of textile industry waste effluents towards the development of efficient mitigation strategy: An integrated system design approach", *J. Environ. Chem. Eng.*, **9(4)**, DOI: 10.1016/J.JECE.2021.105277.

[3] S. Madhav, A. Ahamad, P. Singh, et al. (2018), "A review of textile industry: Wet processing, environmental impacts, and effluent treatment methods", *Environ. Qual. Manag.*, **27(3)**, pp.31-41, DOI: 10.1002/TQEM.21538.

[4] P. Zhao, R. Zhang, J. Wang (2017), "Adsorption of methyl orange from aqueous solution using CS/diatomite composite", *Water Sc. Technol.*, **75(7-8)**, pp.1633-1642, DOI: 10.2166/wst.2017.034.

[5] E. Forgacs, T. Cserháti, G. Oros (2004), "Removal of synthetic dyes from wastewaters: A review", *Environment International*, **30(7)**, pp.953-971, DOI: 10.1016/j.envint.2004.02.001.

[6] T. Robinson, G. McMullan, R. Marchant, et al. (2001), "Remediation of dyes in textile effluent: A critical review on current treatment technologies with a proposed alternative", *Bioresource Technology*, **77(3)**, pp.247-255, DOI: 10.1016/S0960-8524(00)00080-8.

[7] K.O. Iwuozor, J.O. Ighalo, E.C. Emenike, et al. (2021), "Adsorption of methyl orange: A review on adsorbent performance", *Curr. Res. Green Sustain. Chem.*, **4**, DOI: 10.1016/j.crgsc.2021.100179.

[8] N.T. Nguyen, N.T. Nguyen, V.A. Nguyen (2020), "In situ synthesis and characterization of ZnO/CS nanocomposite as an adsorbent for the removal of Congo red from aqueous solution", *Advances in Polymer Technology*, DOI: 10.1155/2020/3892694.

[9] M. Blachnio, T.M. Budnyak, A.D. Marczewska, et al. (2018), "CS-silica hybrid composites for removal of sulfonated azo dyes from aqueous solutions", *Langmuir*, **34(6)**, pp.2258-2273, DOI: 10.1021/acs.langmuir.7b04076.

[10] L.S. Vázquez, M. Cotto, C. Morant, et al. (2017), "Facile synthesis of ZnO nanoparticles and its photocatalytic activity in the degradation of 2-phenylbenzimidazole-5-sulfonic acid", *Journal of Photochemistry and Photobiology A: Chemistry*, **332**, pp.331-336, DOI: 10.1016/j.jphotochem.2016.09.010.

[11] N.N. Thanh, N.T. Tung, N.V. Anh, et al. (2022), "Removal of congo red dye from aqueous solution using nano ZnO/CS composite", *Vietnam Journal of Catalysis and Adsorption*, **11(4)**, pp.57-62, DOI: 10.51316/jca.2022.070 (in Vietnamese).

[12] C.C. Lin, Y.Y. Li (2009), "Synthesis of ZnO nanowires by thermal decomposition of zinc acetate dihydrate", *Materials Chemistry and Physics*, **113(1)**, pp.334-337, DOI: 10.1016/j.matchemphys.2008.07.070.

[13] S. Chen, Y. Huang, X. Han, et al. (2018), "Simultaneous and efficient removal of Cr(VI) and methyl orange on LDHs decorated porous carbons", *Chemical Engineering Journal*, **352**, pp.306-315, DOI: 10.1016/j.cej.2018.07.012.

[14] Y. Xiao, J.M. Hill (2017), "Impact of pore size on Fenton oxidation of methyl orange adsorbed on magnetic carbon materials: Trade-off between capacity and regenerability", *Environ. Sci. Technol.*, **51(8)**, pp.4567-4575, DOI: 10.1021/acs.est.7b00089.

[15] A.D. Khalaji, E.A.L. Maldonado (2024), "CS/polyvinyl acetate/manganese ferrite as an eco-friendly adsorbent for separation of methyl orange dye from aqueous solution", *Results in Chemistry*, **8**, DOI: 10.1016/j.rechem.2024.101612.

[16] A.S. Ismail, M.S.A. Darwish, E.A. Ismail (2017), "Synthesis and characterization of hydrophilic CS-polyvinyl acetate blends and their sorption performance in binary methanol-water mixture", *Egypt. J. Pet.*, **26(1)**, pp.17-22, DOI: 10.1016/J.EJPE.2016.02.006.

[17] J. Kameliya, N.S. Leel, G.S. Mukeshchandra, et al. (2024), "Rapid removal of methyl orange from aqueous media by modified Mg-Al layered double hydroxides", *Journal of The Indian Chemical Society*, **101(10)**, DOI: 10.1016/j.jics.2024.101355.

[18] D.T.M. Phuong, L.H. Viet, N.X. Loc (2023), "Adsorption capacity of methyl orange using CS hydrogel beads extracted from *Penaeus monodon* shrimp shell waste", *CTU Journal of Science*, **59(2)**, pp.27-38, DOI: 10.22144/ctu.jvn.2023.061 (in Vietnamese).