

# Tổng hợp và nghiên cứu tính chất của composite $\text{PbO}_2\text{-SnO}_2$ trên nền thép không gỉ

Phạm Thị Tốt<sup>1</sup>, Phan Thị Bình<sup>2</sup>, Mai Thị Thanh Thùy<sup>2\*</sup>

<sup>1</sup>Khoa Công nghệ Dệt May, Trường Đại học Công nghiệp và Thương mại Hà Nội, xã Thuận An, Hà Nội, Việt Nam

<sup>2</sup>Viện Hóa học, Viện Hàn lâm Khoa học và Công nghệ Việt Nam, 18 Hoàng Quốc Việt, phường Nghĩa Đô, Hà Nội, Việt Nam

Ngày nhận bài 23/12/2024; ngày chuyển phân biện 25/12/2024; ngày nhận phân biện 29/1/2025; ngày chấp nhận đăng 5/2/2025

## Tóm tắt:

Composite  $\text{PbO}_2\text{-SnO}_2$  được tổng hợp thành công bằng phương pháp quét thế tuần hoàn (CV) trên nền thép không gỉ (SS) trong dung dịch  $\text{Pb}(\text{NO}_3)_2$  0,5 M;  $\text{HNO}_3$  0,1 M;  $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2$  0,05 M;  $\text{C}_2\text{H}_6\text{O}_2$  0,1 M và  $\text{SnO}_2$  với hàm lượng từ 500 đến 2500 mg/l. Khi hàm lượng  $\text{SnO}_2$  trong dung dịch là 1500 mg/l, vật liệu composite có tính chất điện hóa tốt nhất. Cấu trúc hình thái học bề mặt và thành phần các nguyên tố có trong composite được nghiên cứu thông qua các phương pháp kính hiển vi điện tử quét (SEM), nhiễu xạ tia X (XRD) và tán xạ năng lượng tia X (EDX). Đặc tính điện hóa của điện cực SS/ $\text{PbO}_2\text{-SnO}_2$  được nghiên cứu trong dung dịch  $\text{H}_2\text{SO}_4$  0,5 M bằng phương pháp CV và phép đo đường cong phân cực I-E. Điện cực composite này được sử dụng làm anot cho quá trình xử lý metyl da cam (MO) ở điều kiện phù hợp với thời gian xử lý khác nhau. Hiệu suất của quá trình xử lý MO cao, đạt trên 90% sau 30 phút. Động học của quá trình xử lý MO tuân theo mô hình động học của phản ứng bậc 1 với độ tuyến tính  $R^2=0,9736$ .

Từ khóa: composite  $\text{PbO}_2\text{-SnO}_2$ , tính chất điện hóa, xử lý metyl da cam.

Chỉ số phân loại: 2.4, 2.5

## Synthesis and characterisation of $\text{PbO}_2\text{-SnO}_2$ composite on a stainless steel substrate

Thi Tot Pham<sup>1</sup>, Thi Binh Phan<sup>2</sup>, Thi Thanh Thuy Mai<sup>2\*</sup>

<sup>1</sup>Faculty of Textile Technology, Hanoi Industrial and Trade University, Thuan An Commune, Hanoi, Vietnam

<sup>2</sup>Institute of Chemistry, Vietnam Academy of Science and Technology, 18 Hoang Quoc Viet Street, Nghia Do Ward, Hanoi, Vietnam

Received 23 December 2024; revised 29 January 2025; accepted 5 February 2025

## Abstract:

A  $\text{PbO}_2\text{-SnO}_2$  composite was successfully synthesised by cyclic voltammetry (CV) on stainless steel (SS) substrate in an electrolyte containing 0.5 M  $\text{Pb}(\text{NO}_3)_2$ , 0.1 M  $\text{HNO}_3$ , 0.05 M  $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2$ , 0.1 M  $\text{C}_2\text{H}_6\text{O}_2$ , and  $\text{SnO}_2$  with concentrations ranging from 500 to 2500 mg/l. This composite exhibited the best electrochemical properties when the  $\text{SnO}_2$  concentration in the solution was 1500 mg/l. The surface morphology and elemental composition of the composite were determined by scanning electron microscopy (SEM), X-ray diffraction (XRD), and energy-dispersive X-ray spectroscopy (EDX). The electrochemical properties of the SS/ $\text{PbO}_2\text{-SnO}_2$  electrode were investigated in 0.5 M  $\text{H}_2\text{SO}_4$  using CV and potentiodynamic polarisation I-E methods. The obtained SS/ $\text{PbO}_2\text{-SnO}_2$  composite electrode was used as an anode for the electrochemical removal of methyl orange (MO) from aqueous solution under suitable conditions with different treatment times. The removal efficiency of MO was high, exceeding 90% after 30 minutes of treatment. The kinetics of MO removal followed a first-order reaction model with a linearity of  $R^2=0.9736$ .

Keywords: electrochemical properties, methyl orange removal,  $\text{PbO}_2\text{-SnO}_2$  composite.

Classification numbers: 2.4, 2.5

\*Tác giả liên hệ: Email: thuytmai@ich.vast.vn

## 1. Đặt vấn đề

Sự phát triển của khoa học và công nghệ ngày càng tạo ra nhiều loại thuốc nhuộm mới với các ưu điểm nổi bật như: độ bền màu cao, màu sắc đa dạng và dễ nhuộm trên nhiều loại vật liệu. Tuy nhiên, việc xử lý thuốc nhuộm dư thừa trong quá trình sản xuất trước khi thải ra môi trường là một vấn đề cần được chú trọng hiện nay. Nếu thuốc nhuộm không được xử lý trước khi thải ra ngoài môi trường, sẽ gây ảnh hưởng nghiêm trọng đến hệ sinh thái, đời sống của các loài thủy sinh và sức khỏe con người [1, 2].

Một trong các nhóm thuốc nhuộm quan trọng và được sử dụng phổ biến hiện nay là thuốc nhuộm chứa nhóm mang màu azo (-N=N-), nhóm thuốc nhuộm này được sử dụng từ lâu và chiếm tới gần 50% tổng sản lượng thuốc nhuộm hiện nay [3, 4]. Trong nhóm thuốc nhuộm azo thì metyl da cam (MO) là một loại thuốc nhuộm điển hình, chất này dễ hòa tan trong nước và khó xử lý bằng phương pháp sinh học [5, 6]. Vì vậy, việc nghiên cứu để tìm ra phương pháp xử lý MO phù hợp là rất cần thiết. Hiện nay, có nhiều phương pháp để xử lý thuốc nhuộm trong nước thải như phương pháp điện hóa, quang hóa, hấp phụ, xử lý vi sinh [5-9]. Trong đó, phương pháp điện hóa có nhiều ưu điểm như xử lý được ở nhiệt độ và áp suất thường, hiệu quả xử lý cao và không tạo ra chất thải thứ cấp. Vật liệu anot là một yếu tố quan trọng ảnh hưởng lớn đến khả năng xử lý MO cũng như các chất hữu cơ độc hại trong nước thải. Để đạt được hiệu quả xử lý cao thì vật liệu anot phải trơ, kích thước ổn định, dẫn điện tốt, có hoạt tính xúc tác điện hóa và quá thế thoát oxy cao [10].

Chì dioxit ( $\text{PbO}_2$ ) là một oxit điển hình có khả năng dẫn điện tốt, có quá thế thoát oxy cao, chịu được hóa chất vì vậy mà  $\text{PbO}_2$  thường được sử dụng làm vật liệu anot trong các quá trình xử lý điện hóa [11]. Để tăng hoạt tính điện hóa và độ bền của  $\text{PbO}_2$ , nhiều nghiên cứu đã pha tạp thêm các oxit kim loại khác để tạo thành các composite như:  $\text{Co}_3\text{O}_4$ - $\text{PbO}_2$  [12],  $\text{PbO}_2$ - $\text{TiO}_2$  [13],  $\text{PbO}_2$ - $\text{AgO}$  [14],  $\text{PbO}_2$ - $\text{Mn}_3\text{O}_4$  [15],  $\text{PbO}_2$ - $\text{SnO}_2$  [16, 17]...

W. Wang và cs (2020) [16] đã nghiên cứu tổng hợp composite  $\text{PbO}_2$ - $\text{SnO}_2$  bằng phương pháp điện phân dòng không đổi tại mật độ dòng 20 mA/cm<sup>2</sup>. Composite  $\text{PbO}_2$ - $\text{SnO}_2$  sau khi tổng hợp được sử dụng làm anot xúc tác cho quá trình oxy hoá m-nitrophenol. Kết quả cho thấy, sự có mặt của  $\text{SnO}_2$  trong composite đã tăng quá thế thoát oxy, cải thiện được quá trình tạo gốc hydroxyl và tăng khả năng xúc tác [16]. Nghiên cứu tương tự cũng tổng hợp composite  $\text{PbO}_2$ - $\text{SnO}_2$  bằng phương pháp điện phân dòng không đổi và sử dụng composite làm anot xúc tác cho quá trình phân hủy 3-chlorophenol [17]. Trong nghiên cứu này, các tác giả tiến hành tổng hợp composite  $\text{PbO}_2$ - $\text{SnO}_2$  bằng phương pháp

quét thể tuần hoàn trên nền thép không gỉ, nghiên cứu tính chất của composite và ứng dụng composite này làm anot cho quá trình xử lý MO bằng phương pháp điện hóa.

## 2. Hóa chất và phương pháp nghiên cứu, tổng hợp

### 2.1. Hóa chất

Sử dụng các hóa chất tinh khiết dùng trong phân tích:  $\text{HNO}_3$  (65-68%),  $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2$  (>99%),  $\text{NaOH}$  (>96%), MO (>99%),  $\text{C}_2\text{H}_6\text{O}_2$  (99%) của hãng Xilong (Trung Quốc) và bột nano  $\text{SnO}_2$  (10-20 nm) (>99%) của hãng Dongguan (Trung Quốc) và  $\text{Pb}(\text{NO}_3)_2$  (99,5%) của hãng Merck (Đức).

### 2.2. Tổng hợp vật liệu composite $\text{PbO}_2$ - $\text{SnO}_2$ trên nền thép không gỉ

Composite  $\text{PbO}_2$ - $\text{SnO}_2$  được tổng hợp trên nền thép không gỉ đã được đánh bóng bằng giấy nhám, xử lý làm sạch trong dung dịch  $\text{K}_2\text{Cr}_2\text{O}_7 + \text{H}_2\text{SO}_4$  (98%) và loại bỏ hoàn toàn tạp chất còn lại bằng phương pháp điện hóa trong dung dịch  $\text{NaOH}$  60 g/l với tốc độ quét 200 mV/s trong 5 chu kỳ từ -700 đến 500 mV. Sau đó, composite  $\text{PbO}_2$ - $\text{SnO}_2$  được tổng hợp bằng phương pháp quét thể tuần hoàn với tốc độ quét 50 mV/s, 300 chu kỳ trong khoảng điện thế từ 1200 đến 1700 mV. Thành phần dung dịch tổng hợp:  $\text{Pb}(\text{NO}_3)_2$  0,5 M;  $\text{HNO}_3$  0,1 M;  $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2$  0,05 M,  $\text{C}_2\text{H}_6\text{O}_2$  0,1 M và nano  $\text{SnO}_2$  với hàm lượng từ 500 đến 2500 mg/l. Phương pháp tổng hợp và các thông số trong thí nghiệm được lựa chọn dựa theo kết quả nghiên cứu đã được công bố trước đây của chúng tôi [9, 18].

### 2.3. Nghiên cứu tính chất vật liệu

Phương pháp SEM được sử dụng để nghiên cứu hình thái học của composite, nhiễu xạ tia X (XRD) và EDX được sử dụng để nghiên cứu cấu trúc và thành phần các nguyên tố trong composite.

Tính chất điện hóa của composite được nghiên cứu trên thiết bị IM6 của hãng Zahner Elektrik (Đức) sử dụng hệ 3 điện cực: điện cực đối (Pt tấm), điện cực so sánh (Ag/AgCl, KCl bão hòa), điện cực nghiên cứu là SS/ $\text{PbO}_2$ - $\text{SnO}_2$ .

### 2.4. Nghiên cứu xử lý metyl da cam

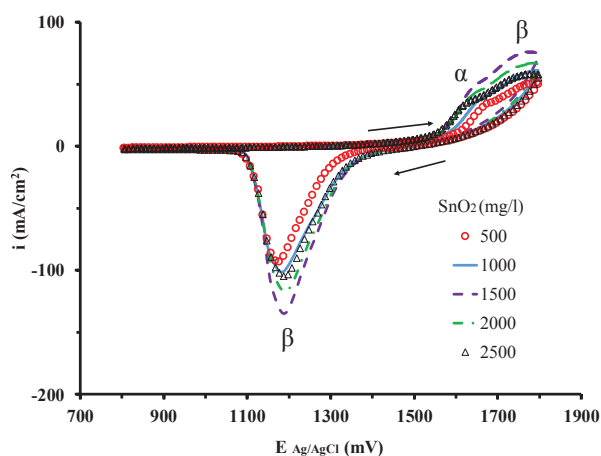
Metyl da cam được xử lý bằng phương pháp điện hóa trên hệ 3 điện cực: tấm Pt là điện cực đối, Ag/AgCl, KCl là điện cực so sánh và SS/ $\text{PbO}_2$ - $\text{SnO}_2$  là điện cực làm việc. Điều kiện xử lý MO tương tự như công bố trước đây của nhóm nghiên cứu [9]: nồng độ MO 50 mg/l, pH dung dịch là 6, mật độ dòng điện 1,75 mA/cm<sup>2</sup> với thời gian từ 10 đến 60 phút. Dung dịch MO sau khi xử lý được phân tích UV-Vis trên thiết bị Perkin Elmer Lambda 35 (Mỹ) để xác định hiệu suất xử lý. Hiệu suất quá trình xử lý MO được xác định theo phương trình sau:

$$H = \frac{(C_0 - C_t)}{C_0} * 100 \quad (1)$$

trong đó:  $C_0$  là nồng độ MO ban đầu,  $C_t$  là nồng độ MO tại thời gian xử lý t.

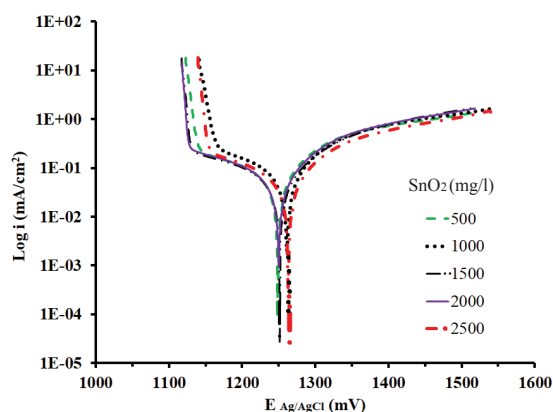
### 3. Kết quả và bàn luận

#### 3.1. Nghiên cứu tính chất điện hóa của composite $PbO_2-SnO_2$



Hình 1. Phổ quét thế tuần hoàn của điện cực SS/PbO<sub>2</sub>-SnO<sub>2</sub> trong dung dịch H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> 0,5 M khi thay đổi hàm lượng SnO<sub>2</sub>.

Trên hình 1 là kết quả phổ quét thế tuần hoàn của điện cực SS/PbO<sub>2</sub>-SnO<sub>2</sub> trong dung dịch H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> 0,5 M tại chu kỳ 30 với tốc độ quét thế 100 mV/s ở khoảng thế từ 800 đến 1800 mV. Quan sát hình 1 thấy được hai peak oxy hóa tại 1650 và 1760 mV là của dạng α và β-PbO<sub>2</sub>, peak khử tại 1190 mV của β-PbO<sub>2</sub> về PbSO<sub>4</sub> [16, 17]. Khi hàm lượng SnO<sub>2</sub> trong dung dịch tổng hợp tăng từ 500 lên 1500 mg/l, thì chiều cao peak oxy hóa và peak khử đều tăng (trương ứng từ 50,07 lên 74,49 mA/cm<sup>2</sup> và từ 93,42 lên 134,75 mA/cm<sup>2</sup>), như vậy, hoạt tính điện hóa của điện cực đã tăng theo hàm lượng SnO<sub>2</sub>. Tuy nhiên, khi tiếp tục tăng hàm lượng SnO<sub>2</sub> lên 2500 mg/l, thì hoạt tính điện hóa lại giảm, do chiều cao peak oxy hóa và peak khử đều giảm (trương ứng từ 74,49 xuống 57,61 mA/cm<sup>2</sup> và từ 134,75 xuống 104,88 mA/cm<sup>2</sup>). Nguyên nhân là do SnO<sub>2</sub> trong dung dịch đã làm thay đổi cấu trúc của PbO<sub>2</sub> làm cho cấu trúc tinh thể xốp hơn nên tăng diện tích làm việc. Tuy nhiên, khi hàm lượng SnO<sub>2</sub> trong dung dịch lớn hơn 1500 mg/l, thì độ dẫn điện giảm do SnO<sub>2</sub> là chất bán dẫn kém dẫn điện. Như vậy, với hàm lượng SnO<sub>2</sub> trong dung dịch là 1500 mg/l thì vật liệu composite PbO<sub>2</sub>-SnO<sub>2</sub> có hoạt tính điện hóa tốt nhất. Đường cong phân cực I-E dạng logarit của điện cực SS/PbO<sub>2</sub>-SnO<sub>2</sub> trong dung dịch H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> 0,5 M với hàm lượng SnO<sub>2</sub> khác nhau được thể hiện ở hình 2.



Hình 2. Đường cong phân cực I-E dạng logarit của điện cực SS/PbO<sub>2</sub>-SnO<sub>2</sub> trong dung dịch H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> 0,5 M với hàm lượng SnO<sub>2</sub> khác nhau khi tổng hợp vật liệu composite.

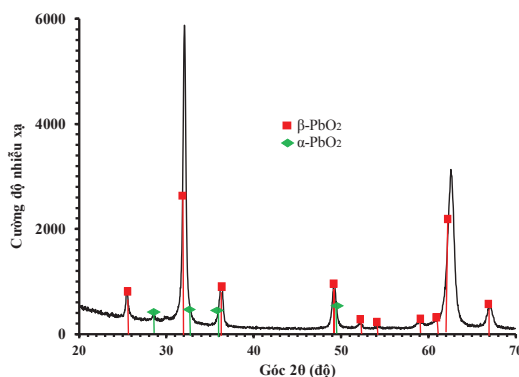
Bảng 1. Các thông số động học mật độ dòng trao đổi  $i_0$  và điện thế  $E_0$  xác định được từ hình 2.

| Hàm lượng SnO <sub>2</sub> (mg/l) | $i_0$ (μA/cm <sup>2</sup> ) | $E_0$ (mV) |
|-----------------------------------|-----------------------------|------------|
| 500                               | 60,51±0,05                  | 1249±9     |
| 1000                              | 64,05±0,02                  | 1262±8     |
| 1500                              | 65,12±0,04                  | 1251±8     |
| 2000                              | 63,69±0,06                  | 1249±5     |
| 2500                              | 59,45±0,03                  | 1262±8     |

Kết quả bảng 1 cho thấy, khi hàm lượng SnO<sub>2</sub> trong dung dịch tổng hợp tăng từ 500 lên 1500 mg/l thì  $i_0$  tăng từ 60,51 lên 65,12 μA/cm<sup>2</sup>, chứng tỏ hoạt tính điện hóa tăng. Nhưng khi tiếp tục tăng lượng SnO<sub>2</sub> lên 2500 mg/l thì  $i_0$  lại giảm từ 65,12 xuống 59,45 μA/cm<sup>2</sup>. Như vậy, hàm lượng SnO<sub>2</sub> 1500 mg/l là phù hợp nhất để tổng hợp composite. Kết quả này phù hợp với kết quả khảo sát phổ quét thế tuần hoàn ở trên.

#### 3.2. Nghiên cứu cấu trúc hình thái học của composite $PbO_2-SnO_2$

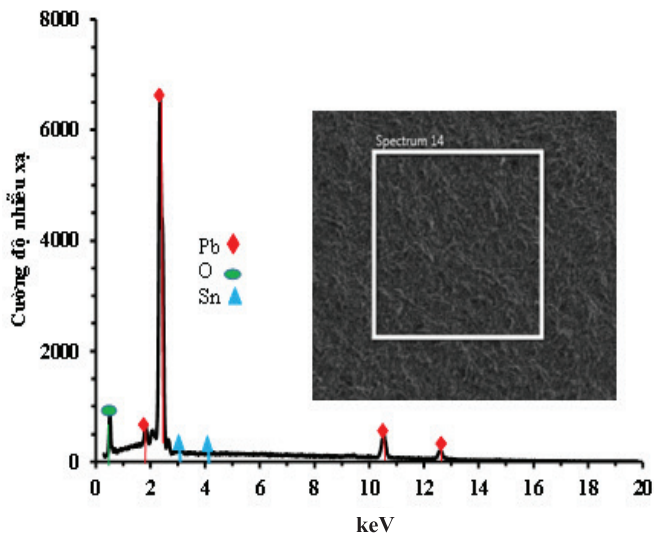
##### 3.2.1. Giản đồ nhiễu xạ tia X



Hình 3. Giản đồ nhiễu xạ tia X của composite PbO<sub>2</sub>-SnO<sub>2</sub>.

Kết quả hình 3 cho thấy, xuất hiện rõ các peak đặc trưng cho dạng thù hình  $\beta$ - $\text{PbO}_2$  tại các góc  $2\theta$ , khoảng  $25,5^\circ$ ;  $32^\circ$ ;  $36,5^\circ$ ;  $49,5^\circ$ ;  $52,5^\circ$ ;  $54,5^\circ$ ;  $61,5^\circ$ ;  $62,5^\circ$  và  $67,5^\circ$ . Tuy nhiên, một số peak đặc trưng cho dạng thù hình  $\alpha$ - $\text{PbO}_2$  tại các góc  $2\theta$  gần  $28,5^\circ$ ;  $32,5^\circ$ ;  $48^\circ$  không rõ ràng và không quan sát thấy sự xuất hiện các peak đặc trưng của  $\text{SnO}_2$ , điều này là do  $\text{SnO}_2$  có kích thước rất nhỏ (10-20 nm) và lượng ít nên không tạo được các đỉnh nhiễu xạ rõ ràng [16].

### 3.2.2. Phổ tán xạ năng lượng tia X



Hình 4. Phổ tán xạ năng lượng tia X của composite  $\text{PbO}_2$ - $\text{SnO}_2$ .

Trên hình 4 thể hiện phổ tán xạ năng lượng tia X của vật liệu composite  $\text{PbO}_2$ - $\text{SnO}_2$ . Kết quả cho thấy rõ các peak đặc trưng cho Pb, O, Sn [17]. Điều này chứng tỏ sự có mặt

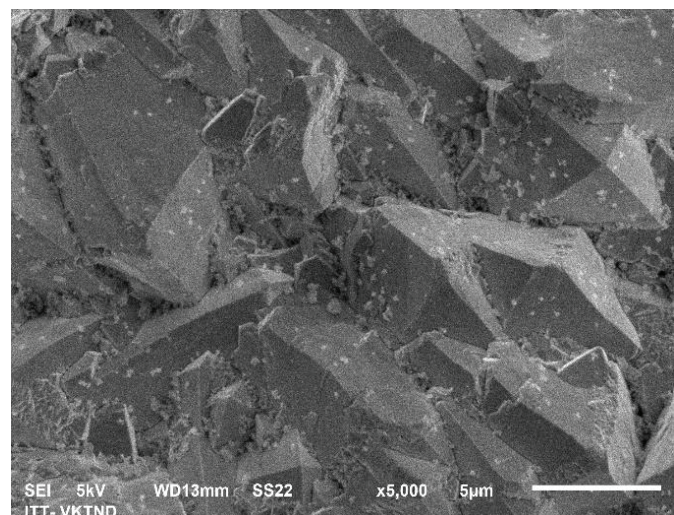
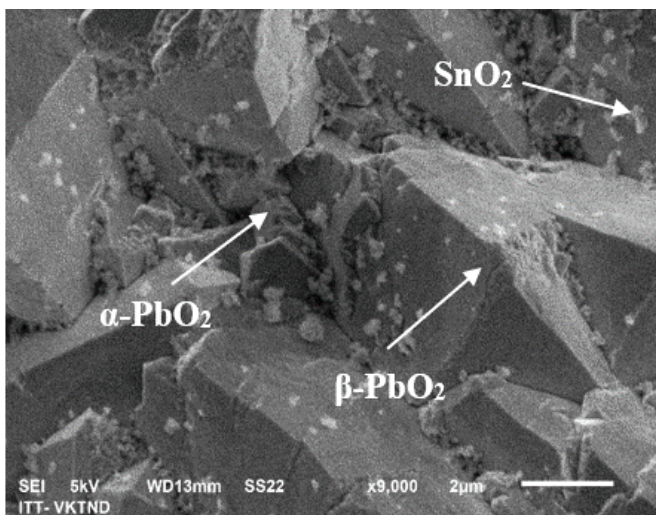
của  $\text{SnO}_2$  trong composite. Như vậy, có thể khẳng định đã tổng hợp thành công vật liệu composite  $\text{PbO}_2$ - $\text{SnO}_2$  bằng phương pháp quét CV.

### 3.2.3. Ảnh kính hiển vi điện tử quét

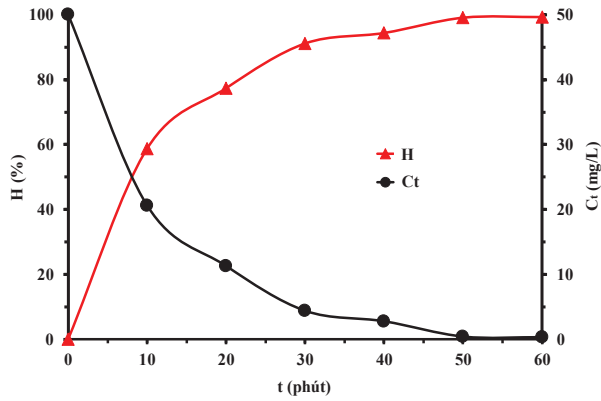
Ảnh SEM của composite  $\text{PbO}_2$ - $\text{SnO}_2$  được thể hiện trên hình 5. Trong hình thấy xuất hiện các tinh thể lớn hình tứ diện ( $\beta$ - $\text{PbO}_2$ ) xen kẽ với các tinh thể nhỏ ( $\alpha$ - $\text{PbO}_2$ ), như vậy, vật liệu  $\text{PbO}_2$  tổng hợp được tồn tại ở cả hai dạng thù hình [16, 17]. Trên bề mặt tinh thể và phân tiếp giáp giữa các tinh thể  $\text{PbO}_2$  xuất hiện các hạt tinh thể nhỏ là  $\text{SnO}_2$ .

### 3.3. Nghiên cứu xử lý methyl da cam bằng phương pháp điện hóa sử dụng anot composite $\text{PbO}_2$ - $\text{SnO}_2$

Dung dịch MO ban đầu có nồng độ 50 mg/l được xử lý bằng phương pháp dòng không đổi trên điện cực anot  $\text{PbO}_2$ - $\text{SnO}_2$  với mật độ dòng 1,75 mA/cm<sup>2</sup> trong điều kiện pH=6 (hình 6). Kết quả cho thấy, ở giai đoạn đầu của quá trình xử lý (30 phút đầu tiên) hiệu suất xử lý tăng nhanh và đạt khoảng 90%, đồng thời nồng độ MO trong dung dịch cũng giảm nhanh xuống còn dưới 5 mg/l. Sau 30 phút xử lý, hiệu suất xử lý tăng chậm và gần như không đổi sau thời gian 50 phút, nồng độ MO trong dung dịch cũng giảm chậm và đạt dưới 1 mg/l sau 50 phút. Điều này có thể giải thích như sau: ở giai đoạn đầu của quá trình xử lý, lượng MO

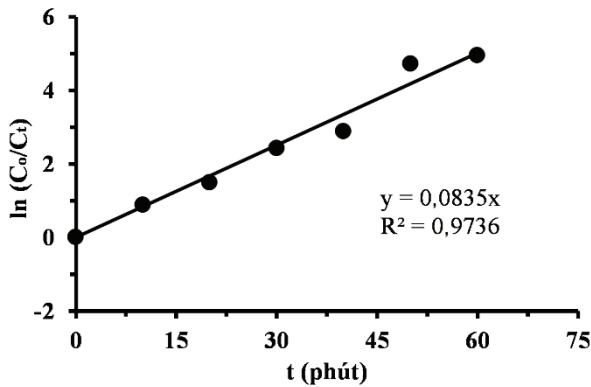


Hình 5. Ảnh kính hiển vi điện tử quét của composite  $\text{PbO}_2$ - $\text{SnO}_2$ .

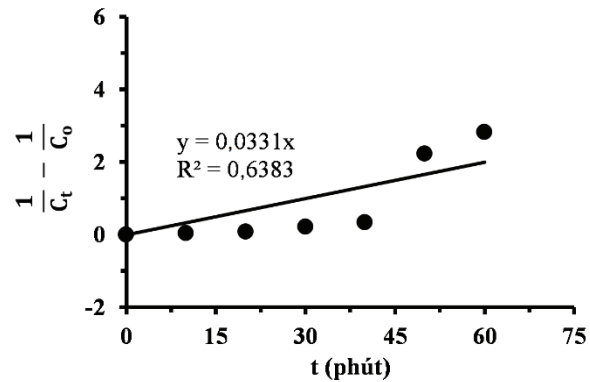


Hình 6. Hiệu suất và nồng độ methyl da cam còn lại theo thời gian xử lý ( $i=1,75 \text{ mA/cm}^2$ ,  $C_o=50 \text{ mg/l}$ , pH6).

(A)



(B)



Hình 7. Đồ thị  $\ln(C_o/C_t)$  (A) và đồ thị  $\frac{1}{C_t} - \frac{1}{C_o}$  (B) theo thời gian xử lý MO trên điện cực SS/PbO<sub>2</sub>-SnO<sub>2</sub>.

trong dung dịch nhiều nên khả năng oxy hóa để phân hủy MO cao, vì vậy, hiệu suất xử lý cũng tăng nhanh nhưng sau một thời gian xử lý thì lượng MO còn lại trong dung dịch rất ít, nên khi tăng thời gian xử lý thì hiệu suất xử lý cũng không tăng nhiều, vì lúc này chủ yếu xảy ra quá trình điện phân nước.

Động học quá trình phân hủy một chất hữu cơ nói chung có thể theo động học của phản ứng bậc 1 (Phương trình 2) [19-21] hoặc động học của phản ứng bậc 2 (Phương trình 3) [21].

$$\ln \left[ \frac{C_o}{C_t} \right] = kt \quad (2)$$

$$\left( \frac{1}{C_t} - \frac{1}{C_o} \right) = kt \quad (3)$$

trong đó:  $C_o$  (mg/l) là nồng độ chất hữu cơ ban đầu và  $C_t$  (mg/l) là nồng độ chất hữu cơ sau thời gian xử lý  $t$  (phút);  $k$  là hằng số tốc độ phản ứng.

Từ kết quả thu được của đồ thị  $\ln(C_o/C_t)$  theo thời gian (hình 7A) và đồ thị (theo thời gian (hình 7B)), có thể xác định được hằng số tốc độ phản ứng và giá trị  $R^2$ . Kết quả cho thấy, độ tuyến tính theo phản ứng bậc 1 khá cao (đạt 0,9736), trong khi theo phản ứng bậc 2 thì thấp (chỉ đạt 0,6383). Do vậy, động học của quá trình xử lý MO tuân theo động học của phản ứng bậc 1 là phù hợp.

#### 4. Kết luận

Composite PbO<sub>2</sub>-SnO<sub>2</sub> được tổng hợp thành công trên nền thép không gỉ bằng phương pháp CV. Kết quả cho thấy, PbO<sub>2</sub> tồn tại ở cả hai dạng thù hình  $\alpha$  và  $\beta$  xen kẽ nhau.

Các hạt nano SnO<sub>2</sub> bám đều trên bề mặt tinh thể PbO<sub>2</sub> và ở khe giữa các tinh thể. Với hàm lượng SnO<sub>2</sub> là 1500 mg/l thì vật liệu composite có chiều cao peak oxy hóa khử cao nhất và mật độ dòng trao đổi lớn nhất nên có hoạt tính điện hóa tốt nhất. Vật liệu composite được sử dụng làm anot cho quá trình xử lý MO với hiệu suất khá cao đạt trên 90% sau 30 phút xử lý. Động học của quá trình xử lý MO tuân theo động học của phản ứng bậc 1 với độ tuyến tính đạt 0,9736.

#### TÀI LIỆU THAM KHẢO

[1] X. Wang, J. Jiang, W. Gao (2022), "Reviewing textile wastewater produced by industries: Characteristics, environmental impacts, and treatment strategies", *Water Sci. Technol.*, **85**(7), pp.2076-2096, DOI: 10.2166/wst.2022.088.

[2] S. Sudarshan, S. Harikrishnan, G. RathiBhuvaneshwari, et al. (2022), "Impact of textile dyes on human health and bioremediation of textile industry effluent using microorganisms: Current status and future prospects", *J. Appl. Microbiol.*, **134**(2), pp.1-23, DOI: 10.1093/jambio/txac064.

- [3] H.T. Cao (1995), *Chemistry of Dyes*, Science and Technics Publishing House, 304pp (in Vietnamese).
- [4] R. Al-Tohamy, S.S. Ali, F. Li, et al. (2022), “A critical review on the treatment of dye-containing wastewater: Ecotoxicological and health concerns of textile dyes and possible remediation approaches for environmental safety”, *Ecotoxicol. Environ. Saf.*, **231**, DOI: 10.1016/j.ecoenv.2021.113160.
- [5] M.M. Haque, M.A. Haque, M.K. Mosharaf, et al. (2021), “Decolorization, degradation and detoxification of carcinogenic sulfonated azo dye methyl orange by newly developed biofilm consortia”, *Saudi. J. Biol. Sci.*, **28**, pp.793-804, DOI: 10.1016/j.sjbs.2020.11.012.
- [6] R. Kishor, D. Purchase, G.D. Saratale, et al. (2021), “Degradation mechanism and toxicity reduction of methyl orange dye by a newly isolated bacterium *Pseudomonas aeruginosa* MZ520730”, *J. Water Process Eng.*, **43**, DOI: 10.1016/j.jwpe.2021.102300.
- [7] Y.W. Yao, L.H. Cui, Y. Li, et al. (2015), “Electrocatalytic degradation of methyl orange on PbO<sub>2</sub>-TiO<sub>2</sub> nanocomposite electrodes”, *Int. J. Environ. Res.*, **9**, pp.1357-1364, DOI: 10.22059/ijer.2015.1028.
- [8] N.A. Youssef, S.A. Shaban, F.A. Ibrahim, et al. (2016), “Degradation of methyl orange using Fenton catalytic reaction”, *Egypt. J. Petrol.*, **25(3)**, pp.317-321, DOI: 10.1016/j.ejpe.2015.07.017.
- [9] P.T. Tot, M.T.T. Thuy, P.T. Binh (2022), “Removal of methyl orange from aqueous solution by electrochemical process using stainless steel/PbO<sub>2</sub>-TiO<sub>2</sub> stable electrode”, *Desalin. Water Treat.*, **266**, pp.202-211, DOI: 10.5004/dwt.2022.28646.
- [10] Y. Jiang, H. Zhao, J. Liang, et al. (2021), “Anodic oxidation for the degradation of organic pollutants: Anode materials, operating conditions and mechanisms. A mini review”, *Electrochim. Commun.*, **123**, DOI: 10.1016/j.elecom.2020.106912.
- [11] M.R. Samarghandi, A. Ansari, A. Dargahi, et al. (2021), “Enhanced electrocatalytic degradation of bisphenol A by graphite/ $\beta$ -PbO<sub>2</sub> anode in a three-dimensional electrochemical reactor”, *J. Environ. Chem. Eng.*, **9(5)**, DOI: 10.1016/j.jece.2021.106072.
- [12] X. Wang, Q. Wu, H. Ma, et al. (2019), “Fabrication of PbO<sub>2</sub> tipped Co<sub>3</sub>O<sub>4</sub> nanowires for efficient photoelectrochemical decolorization of dye (reactive brilliant blue KN-R) wastewater”, *Sol. Energy Mater. Sol. Cells*, **191**, pp. 381-388, DOI: 10.1016/j.solmat.2018.12.005.
- [13] Y. Wang, N. Yu, M. Xing, et al. (2024), “Photoelectrocatalysis degradation of P-aminophenol using PbO<sub>2</sub>-TiO<sub>2</sub> heterojunction electrode: Catalytic, theoretical calculating and mechanism”, *J. Environ. Chem. Eng.*, **12(5)**, DOI: 10.1016/j.jece.2024.113304.
- [14] W. Liu, J.G. Jiang, G.Y. Shi, et al. (2007), “Toxicity assessment of cyanide and tetramethylene disulfotetramine (Tetramine) using luminescent bacteria *Vibrio-qinghaiensis* and PbO<sub>2</sub> electrochemical sensor”, *Chin. J. Chem.*, **25(2)**, pp.203-207, DOI: 10.1002/cjoc.200790041.
- [15] Y. Dan, H. Lin, X. Liu, et al. (2012), “Porous quasi three-dimensional nano-Mn<sub>3</sub>O<sub>4</sub>+PbO<sub>2</sub> composite as supercapacitor electrode material”, *Electrochim. Acta*, **83**, pp.175-182, DOI: 10.1016/j.electacta.2012.07.126.
- [16] W. Wang, X. Duan, X. Sui, et al. (2020), “Surface characterization and electrochemical properties of PbO<sub>2</sub>/SnO<sub>2</sub> composite anodes for electrocatalytic oxidation of m-nitrophenol”, *Electrochim. Acta*, **335**, DOI: 10.1016/j.electacta.2020.135649.
- [17] X. Duan, X. Sui, W. Wang, et al. (2019), “Fabrication of PbO<sub>2</sub>/SnO<sub>2</sub> composite anode for electrochemical degradation of 3-chlorophenol in aqueous solution”, *Appl. Surf. Sci.*, **494**, pp.211-222, DOI: 10.1016/j.apsusc.2019.07.161.
- [18] P.T. Tot, M.T.T. Thuy, N.T. Duyen, et al. (2020), “Synthesis and characterization of PbO<sub>2</sub> on stainless steel substrate”, *Journal of Science*, **69**, pp.27-34 (in Vietnamese).
- [19] M.M. Mahmoudi, R. Khaghani, A. Dargahi, et al. (2020), “Electrochemical degradation of diazinon from aqueous media using graphite anode: Effect of parameters, mineralisation, reaction kinetic, degradation pathway and optimisation using central composite design”, *Int. J. Environ. Anal. Chem.*, **102(8)**, pp.1709-1734, DOI: 10.1080/03067319.2020.1742893.
- [20] A. Dargahi, M.R. Samarghandi, A. Shabanloo, et al. (2021), “Statistical modeling of phenolic compounds adsorption onto low-cost adsorbent prepared from aloe vera leaves wastes using CCD-RSM optimization: Effect of parameters, isotherm and kinetic studies”, *Biomass Convers. Biorefinery*, **13**, pp.7859-7873, DOI: 10.1007/s13399-021-01601-y.
- [21] V.N. Tran (2006), *Physical Chemistry*, Education Publishing House, 293pp (in Vietnamese).