

## NGHIÊN CỨU TỔNG HỢP VÀ KHẢ NĂNG HẤP PHỤ XANH METHYLENE CỦA MIL-100(Fe)

Trần Vĩnh Thiện\*  
Nguyễn Thị Mai Trinh\*\*

### Tóm tắt

Bài báo trình bày việc tổng hợp vật liệu mao quản trung bình sắt (III) carboxylate MIL-100(Fe) từ  $FeSO_4$ , trimesic acid ( $H_3BTC$ ) bằng phương pháp thủy nhiệt. Sản phẩm tổng hợp được đặc trưng bằng XRD, TEM, BET, FT-IR và TGA. Kết quả nghiên cứu sử dụng vật liệu MIL-100(Fe) tổng hợp được làm chất hấp phụ loại bỏ thuốc nhuộm trong nước cho thấy quá trình hấp phụ xanh methylene (MB) vào vật liệu tổng hợp được tuân theo quy luật động học biểu kiến bậc hai và phù hợp với mô hình Langmuir với dung lượng hấp phụ MB cao đến  $344,828 \text{ mg.g}^{-1}$ . Dung lượng hấp phụ cao của vật liệu là do bề mặt riêng cao đến  $1657,37 \text{ m}^2.\text{g}^{-1}$  và cấu trúc lỗ xốp thích hợp. Điều này cho thấy tiềm năng to lớn trong việc ứng dụng vật liệu MIL-100(Fe) để loại bỏ các loại thuốc nhuộm trong nước thải.

**Từ khóa:** MIL-100(Fe), hấp phụ, xanh methylene.

### Abstract

#### A study on the synthesis of MIL-100(Fe) and its adsorption capacity for methylene blue

In this work, mesoporous iron (III) carboxylate [MIL-100(Fe)] was synthesized via the reaction of ferrous sulfate, trimesic acid ( $H_3BTC$ ), and HF-free during hydrothermal reaction. The synthesized samples were characterized by XRD, TEM, BET, FT-IR and TGA. MIL-100(Fe) is synthesized and applied as an adsorbent to remove dye from aqueous solution in view of assessing the adsorption isotherms, kinetics. The adsorption isotherms were adequately fitted with the Langmuir model and the kinetic data were followed by the pseudo-second-order model. The maximum adsorption capacity of MIL-100(Fe) for methylene blue (MB) reached  $344,828 \text{ mg.g}^{-1}$ . The high adsorption capacity could be attributed to high surface area and suitable pore structure. These structures indicated that MIL-100(Fe) exhibited great potential to remove types of dyes in wastewater.

**Keywords:** MIL-100(Fe), adsorption, methylene blue

### 1. Đặt vấn đề

Với sự phát triển ngày càng mạnh mẽ của các hoạt động sản xuất của ngành in và nhuộm, gần 10.000 loại thuốc nhuộm đã được sản xuất, và hơn 700.000 tấn thuốc nhuộm đang có mặt trên thị trường thế giới,

khoảng 100 tấn thuốc nhuộm được thải ra dưới dạng nước thải của các ngành đó [1], có thể gây ra một mối đe dọa nghiêm trọng tiềm ẩn đối với cơ thể con người và môi trường sinh thái, đặc biệt là ở các quốc gia đang phát triển như Việt Nam. Nước thải ngành dệt chứa nhiều loại chất ô nhiễm khác nhau, song các nhà nghiên cứu đã chỉ ra rằng, chất nhuộm là nguồn chính gây ô nhiễm nguồn nước.

\* TS, Trường Đại học Phú Yên

\*\* HVCH, Trường Đại học Quy Nhơn

Đa phần các chất nhuộm đều là các hợp chất hữu cơ độc hại, khó phân hủy. Sau khi đi vào môi trường, chúng sẽ tồn tại rất lâu hoặc chỉ phân hủy một phần thành các tác nhân gây đột biến đối với sinh vật thủy sinh, gây hại đối với người và động vật, vì vậy việc loại bỏ chất màu khỏi nước thải dệt nhuộm đã và đang là vấn đề rất đáng quan tâm.

Là một MOFs điển hình, vật liệu MIL-100(Fe) (MIL: Material Institute Lavoisier) hiện đang thu hút được sự quan tâm đặc biệt của các nhà khoa học trong nước và trên thế giới với những ưu điểm về cấu trúc, đặc biệt diện tích bề mặt riêng cao, độ bền hóa học đặc biệt, nhiều tâm kim loại hoạt động...[1]. Với những đặc tính hấp dẫn này, MIL-100(Fe) có khả năng hấp phụ các hợp chất hữu cơ khó phân hủy từ nước thải công nghiệp, ứng dụng hấp phụ các kim loại nặng...[2]

Trong nghiên cứu này, chúng tôi tiến hành tổng hợp và sử dụng MIL-100(Fe) làm chất hấp phụ thuốc nhuộm xanh methylen (MB) và nghiên cứu cơ chế hấp phụ, đẳng nhiệt và động học hấp phụ của MB trên MIL-100(Fe).

## 2. Thực nghiệm

### 2.1. Tổng hợp vật liệu

MIL-100(Fe) được tổng hợp theo phương pháp thủy nhiệt [2]. Hỗn hợp phản ứng được trộn theo tỉ lệ  $1\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O} : 0,67\text{H}_3\text{BTC} : 3\text{HF} : 1,2\text{HNO}_3 : 280\text{H}_2\text{O}$  trong bình phản ứng Teflon, được khuấy ở  $80^\circ\text{C}$  trong 60 phút, sau đó đặt vào trong tủ sấy gia nhiệt đến  $150^\circ\text{C}$  trong 24h. Hỗn hợp dung dịch sau phản ứng được lọc tách kết tủa, và tiến hành tinh chế với nước cất ở  $80^\circ\text{C}$  trong 3h và etanol ở  $70^\circ\text{C}$  trong 1h. Cuối cùng, sấy sản phẩm trong máy lọc hút chân không qua đêm ở  $80^\circ\text{C}$ . Trước mỗi lần sử dụng, kích hoạt MIL-100(Fe) ở  $150^\circ\text{C}$ .

### 2.2. Đặc trưng vật liệu

- Nhiễu xạ tia X (XRD) của vật liệu được ghi trên máy D8 Advance, Brucker–Germany với tia phát xạ  $\text{CuK}\alpha$ , bước sóng  $\lambda = 1,5406 \text{ \AA}$ , công suất 40 kV, cường độ 40 mA.

- Đẳng nhiệt hấp phụ – khử hấp phụ  $\text{N}_2$  (BET) được thực hiện ở  $77,350\text{K}$  trên máy Micromeritics TriStar 3000. Mẫu được hoạt hóa ở  $150^\circ\text{C}$  trong chân không trong 5 giờ trước khi đo.

- Ảnh hiển vi điện tử truyền qua (TEM) được thực hiện trên máy JEOL JEM-1400.

- Phân tích nhiệt TGA được thực hiện trên máy Universal V4.5A TA.

- Phổ hồng ngoại FT-IR được ghi trên máy Thermo Nicolet NEXUS 670.

### 2.3. Đánh giá khả năng hấp phụ

Các thí nghiệm nghiên cứu hấp phụ phẩm nhuộm MB tiến hành trong bóng tối ở nhiệt độ  $30^\circ\text{C}$ . Nồng độ MB được xác định bằng phương pháp UV-Vis trên máy Spectrophotometer UV 2502 (Labomed – Mỹ) ở  $\lambda_{\text{max}}$  của phẩm nhuộm MB (665 nm).

#### 2.3.1. Xác định điểm đẳng điện của MIL-100(Fe)

Cho vào 8 bình tam giác (dung tích 50 mL) 25 mL dung dịch NaCl 0,01M và 0,01 gam MIL-100(Fe). Giá trị pH ban đầu của dung dịch ( $\text{pH}_i$ ) được điều chỉnh nằm trong khoảng 1 đến 10 bằng dung dịch HCl và NaOH. Đậy kín và lắc bằng máy lắc trong 24h. Sau đó để lắng, lọc sạch huyền phù bằng giấy lọc, đo lại giá trị pH gọi là  $\text{pH}_f$ . Đồ thị biểu diễn mối quan hệ sự khác nhau giữa các giá trị pH ban đầu và sau cùng ( $\Delta\text{pH} = \text{pH}_f - \text{pH}_i$ ) theo  $\text{pH}_i$  là đường cong cắt trục hoành tại  $\Delta\text{pH} = 0$  cho ta giá trị pH đẳng điện ( $\text{pH}_{\text{e.i.p}}$ ).

#### 2.3.2. Đẳng nhiệt hấp phụ

Cho lần lượt 5; 10; 15; 20; 25; 30; 35 và

40 mg MIL-100(Fe) vào một loạt 8 bình tam giác (dung tích 100 mL) chứa 50 mL dung dịch phẩm nhuộm MB 30 mg.L<sup>-1</sup>, pH = 7,5, đậy kín trong bóng tối, lắc bằng máy lắc trong 24h để đảm bảo đạt cân bằng hấp phụ. Sau đó, li tâm để loại bỏ chất hấp phụ và xác định nồng độ MB trong dung dịch.

### 2.3.3. Động học hấp phụ

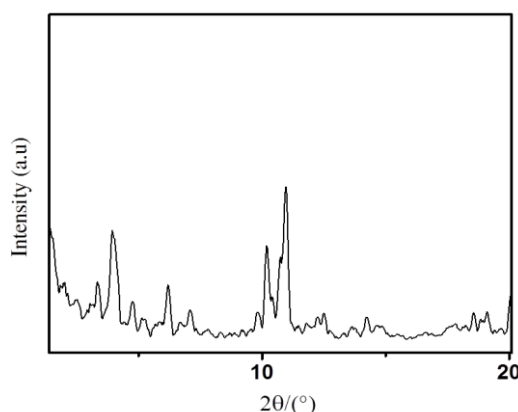
*Ảnh hưởng của nồng độ đầu:* ở 30°C: Chuẩn bị 8 bình tam giác (dung tích 100 mL), cho vào mỗi bình 0,05 gam vật liệu MIL-100(Fe) và 250 mL dung dịch MB với nồng độ 20; 30 và 40 mg.L<sup>-1</sup>, pH = 7,5 khuấy hỗn hợp bằng máy khuấy từ để vật liệu phân bố đều trong hỗn hợp. Ở từng khoảng thời gian xác định, dung dịch được lấy ra, li tâm để loại bỏ chất hấp phụ và xác định nồng độ MB.

*Ảnh hưởng của pH:* Chuẩn bị 8 bình tam giác (dung tích 100 mL): cho vào mỗi bình 0,01 gam MIL-100(Fe) và 50 mL dung dịch phẩm nhuộm MB (40mg.L<sup>-1</sup>) có pH khác nhau trong khoảng pH từ 1 đến 12. pH được điều chỉnh bằng dung dịch NaOH và HCl đậm đặc, đậy kín trong bóng tối, lắc bằng máy lắc trong 24h để đảm bảo đạt cân bằng hấp phụ. Sau đó li tâm để loại bỏ chất hấp phụ và xác định nồng độ MB.

## 3. Kết quả và thảo luận

### 3.1. Đặc trưng vật liệu

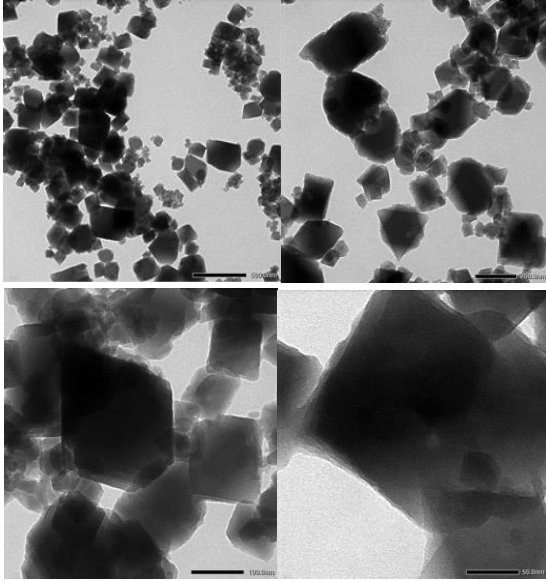
Hình 1 trình bày giản đồ XRD của mẫu MIL-100(Fe) tổng hợp được.



**Hình 1.** Giản đồ XRD của MIL-100(Fe)

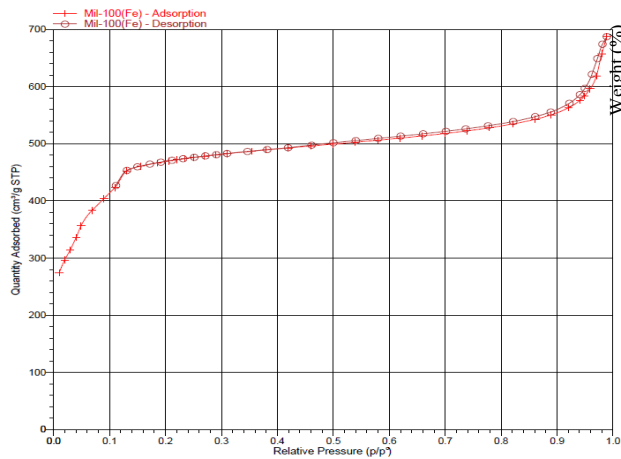
Có thể thấy rằng giản đồ có tất cả các peak đặc trưng ở 2,09°, 3,40°, 4,03°, 4,83°, 5,29°, 5,94°, 6,32°, 10,33°, và 11° trên đều phù hợp với các công bố trước đây [2], [3], [4], trong đó có các peak ở khoảng 10°–12° là những peak đặc trưng nhất của MIL-100(Fe), một cacboxylate sắt (III) được xây dựng từ các trime với sự phân bố bát diện có đỉnh chung  $\mu_3\text{-O}$  [5]. Các peak có cường độ cao cho thấy độ kết tinh của mẫu cao.

Hình thái của MIL-100(Fe) được đặc trưng bằng phương pháp hiển vi điện tử truyền qua (TEM). Kết quả được trình bày ở hình 2 cho thấy kích thước hạt quan sát được tăng dần từ 50 nm đến 500 nm. Kết quả ở hình 2 cho thấy rằng MIL-100(Fe) tổng hợp được có các hạt hình bát diện, phù hợp với các kết quả đã công bố trước đây [2], [3], [4]. Các bát diện phân tán, bề mặt ít bị kết tụ, bề mặt tinh thể quan sát rõ ràng, dự đoán vật liệu có diện tích bề mặt cao và độ kết tinh cao. Tuy nhiên, trên bề mặt hạt vẫn còn có một số dị vật, có thể là do sự hiện diện của các tạp chất còn sót lại sau quá trình tinh chế, như acid trimesic không phản ứng trong các lỗ xốp, các cation hoặc anion từ muối kim loại, bên cạnh đó là một lượng các pha vô định hoặc tinh thể tạp chất [6].



**Hình 2.** Ảnh TEM của MIL-100(Fe)

Đường đẳng nhiệt hấp phụ – khử hấp phụ  $N_2$  của MIL-100(Fe) được trình bày ở hình 3.

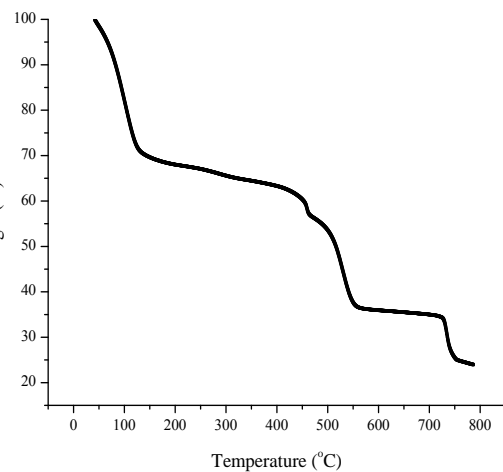


**Hình 3.** Đường đẳng nhiệt hấp phụ - khử hấp phụ  $N_2$  của MIL-100(Fe)

Kết quả hình 3 chỉ ra rằng đường cong đẳng nhiệt thuộc kiểu IV theo phân loại của IUPAC, chứng tỏ vật liệu có cấu trúc mao quản trung bình. Từ kết quả nghiên cứu đẳng nhiệt tính được diện tích bề mặt riêng,  $S_{BET}$  của vật liệu MIL-100(Fe) tổng hợp được là  $1657,37 \text{ m}^2/\text{g}$ , khá cao và thể tích lỗ xốp của vật liệu là  $0,65 \text{ cm}^3/\text{g}$ .

Độ bền nhiệt của MIL-100(Fe) được nghiên cứu bằng phương pháp phân tích

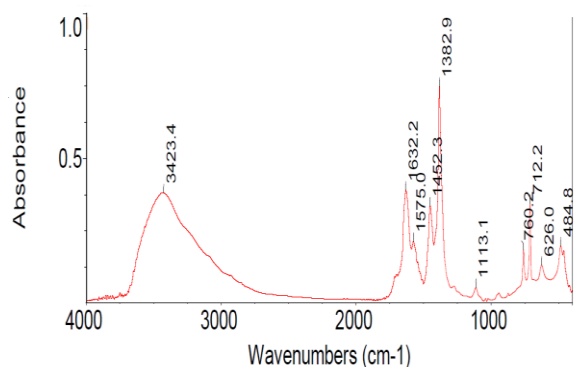
nhệt TGA, kết quả được trình bày ở hình 4 cho thấy rằng có 3 quá trình mất khối lượng từ  $42^\circ\text{C}$  đến  $787^\circ\text{C}$ . Từ  $42^\circ\text{C}$  đến  $100^\circ\text{C}$ , là sự giải phóng các phân tử nước tự do bên trong các lỗ xốp với độ giảm khối lượng là 17,8%. Từ  $150^\circ\text{C}$  đến  $400^\circ\text{C}$ , có thể là các phân tử nước tương tác với các trime sắt tương ứng với độ giảm khối lượng khoảng 6,33%. Từ  $400^\circ\text{C}$  đến  $787^\circ\text{C}$ , là quá trình đốt cháy acid trimesic, bắt đầu xuất hiện quá trình phân hủy MIL-100(Fe), tương ứng với độ giảm khối lượng khoảng 39,34%. Do đó, độ bền của MIL-100(Fe) có thể lên đến  $400^\circ\text{C}$ .



**Hình 4.** Giảm đồ phân tích nhiệt TGA của MIL-100(Fe)

Trong phổ FT-IR của MIL-100(Fe) được trình bày tại hình 5, có thể thấy dao động mạnh và rộng ở  $3423 \text{ cm}^{-1}$  là của nhóm (OH), các dao động ở  $1632 \text{ cm}^{-1}$ ,  $1575 \text{ cm}^{-1}$  tương ứng với các dao động  $\nu_{as}(\text{C}=\text{O})$ ,  $\nu_s(\text{C}=\text{O})$  trong nhóm cacboxyl và ở  $1383 \text{ cm}^{-1}$  là dao động  $\nu(\text{C}-\text{C})$  chứng tỏ sự có mặt của liên kết dicarboxylate trong khung MIL-100(Fe). Các dao động ở  $760 \text{ cm}^{-1}$  và  $712 \text{ cm}^{-1}$  tương ứng với dao động của C-H trong vòng benzen. Dao động ở  $485 \text{ cm}^{-1}$  đặc trưng cho liên kết Fe-O. Từ những dữ liệu trên cho thấy rằng vật liệu đã tổng hợp được xây dựng từ các tâm kim loại

và cầu nối là phối tử cacboxylate. Dao động  $\nu(\text{C}=\text{O})$  trong nhóm acid ( $-\text{COOH}$ ) ở  $1710-1720\text{ cm}^{-1}$  đặc trưng cho  $\text{H}_3\text{BTC}$  nhưng đây là dao động yếu, cho thấy quá trình tinh chế tốt đã loại bỏ  $\text{H}_3\text{BTC}$  dư trong mẫu MIL-100(Fe). Trong giai đoạn tinh chế, có thể có sự trao đổi các anion cacboxylate với anion fluoride  $\text{F}^-$  và loại bỏ acid hữu cơ dư từ các lỗ xốp thông qua việc hòa tan trong nước nóng [7].



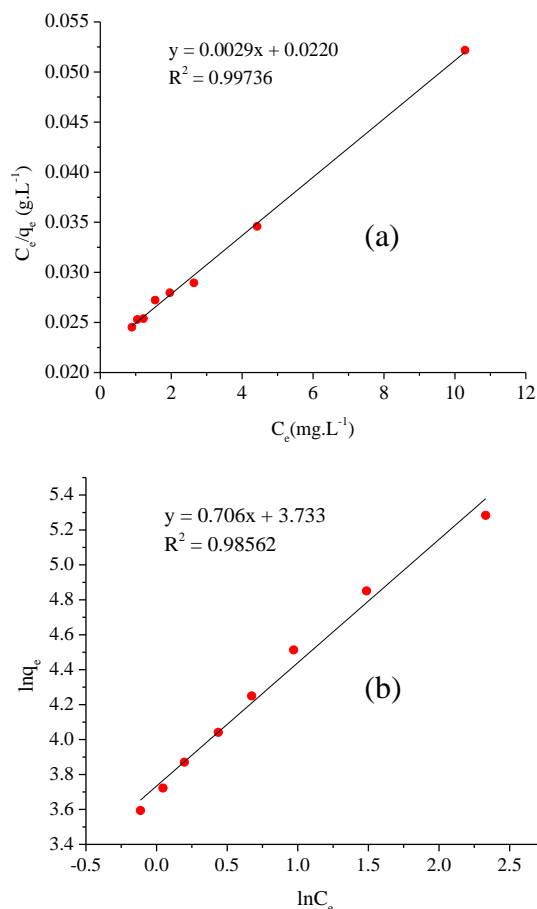
**Hình 5.** Phổ FT-IR của MIL-100(Fe)

### 3.2. Khảo sát hấp phụ phẩm nhuộm MB

MIL-100(Fe) sở hữu hai bộ lồng khác nhau ( $25^\circ\text{A}$  và  $29^\circ\text{A}$ ) với các cửa sổ mao quản trung bình (đường kính  $5,5^\circ\text{A}$  và  $8,6^\circ\text{A}$ ), nhiều tâm sắt acid Lewis, kích thước lỗ xốp thích hợp, diện tích bề mặt cao [8]. Nhờ những đặc tính này, MIL-100(Fe) có lợi thế lớn cho quá trình hấp phụ phẩm nhuộm MB. Quá trình hấp phụ xảy ra thông qua tương tác tĩnh điện, đó là lực tương tác chính giữa phân tử MB và MIL-100(Fe). Phản ứng trao đổi bề mặt xảy ra cho đến khi các vị trí nhóm chức trên bề mặt đã hoàn toàn bị chiếm và ở đó các phân tử phẩm nhuộm MB được khuếch tán vào mạng lưới khung MIL-100(Fe), tạo ra các tương tác tĩnh điện [2].

Để mô tả quá trình hấp phụ đẳng nhiệt của MIL-100(Fe) đối với phẩm nhuộm MB, chúng tôi sử dụng hai mô hình: Langmuir và Freundlich. Hình 6 trình bày các đường đẳng

nhật dạng tuyến tính theo hai mô hình trên.



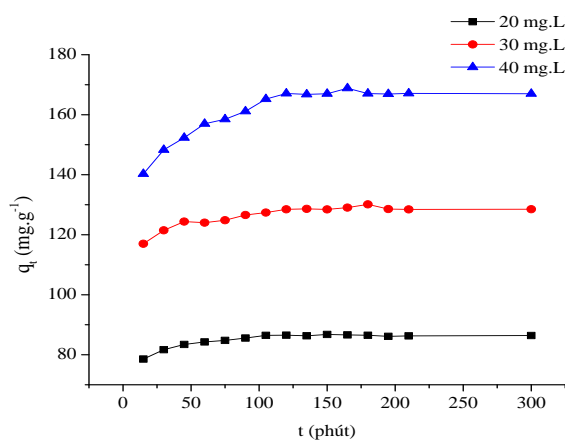
**Hình 6.** Dạng tuyến tính của mô hình đẳng nhiệt hấp phụ Langmuir (a) và Freundlich (b) của quá trình hấp phụ MB trên MIL-100(Fe)

Giá trị hệ số tương quan ( $R^2$ ) của đường thẳng được xác định cao cho thấy rằng dữ liệu hấp phụ đẳng nhiệt của MIL-100(Fe) tương thích tốt với mô hình Langmuir. Điều này có nghĩa là quá trình hấp phụ xảy ra tại các vị trí liên kết trên bề mặt chất xúc tác (tạo thành đơn lớp trên bề mặt chất hấp phụ), khẳng định bản chất của quá trình hấp phụ này là hấp phụ hóa học.

Từ phương trình Langmuir, tính được dung lượng hấp phụ MB cực đại của MIL-100(Fe) ( $q_m = 344,828\text{ mg.g}^{-1}$ ) là khá cao. Dung lượng hấp phụ cao của MIL-100(Fe) có thể được lý giải là do

chúng sở hữu cấu trúc lỗ xốp thích hợp và diện tích bề mặt cao. Với sự gia tăng diện tích bề mặt của MIL-100(Fe), nhiều tâm acid Lewis và điện tích âm trên bề mặt sẽ được tiếp xúc, thuận lợi cho tương tác tĩnh điện và tương tác giữa các tâm acid Lewis của MIL-100(Fe) và base Lewis  $-N(CH_3)_2$  của phân tử MB, dẫn đến cải thiện khả năng hấp phụ.

Ảnh hưởng của nồng độ dung dịch MB ban đầu đến dung lượng hấp phụ MB trên MIL-100(Fe) trong khoảng nồng độ 20 – 40  $mg.L^{-1}$  được thể hiện ở hình 7.



**Hình 7.** Ảnh hưởng của nồng độ ban đầu đến dung lượng hấp phụ trên MIL-100(Fe)

Kết quả cho thấy, dung lượng hấp phụ trên vật liệu hấp phụ tăng khi nồng độ MB

**Bảng 1.** Các tham số động học của các mô hình khác nhau

$C_o$ ( $mg.L^{-1}$ )	$q_e (exp)$ ( $mg.g^{-1}$ )	Mô hình động học bậc nhất			Mô hình động học bậc hai		
		$q_e (cal)$ ( $mg.g^{-1}$ )	$k_1.10^{-3}$ ( $phút^{-1}$ )	$R^2$	$q_e (cal)$ ( $mg.g^{-1}$ )	$k_2.10^{-3}$ ( $g.mg^{-1}.phút^{-1}$ )	$R^2$
20	86,454	11,290	27,40	0,98294	87,032	7,69	0,99994
30	128,483	15,305	23,00	0,91760	129,870	3,98	0,99986
40	167,084	44,892	25,80	0,88902	172,414	1,43	0,99969

được thiết lập trên cơ sở giả thiết rằng hấp

tăng. Ban đầu tỉ lệ số phân tử phẩm nhuộm với các tâm hoạt động trên bề mặt vật liệu thấp nên khi tăng nồng độ sẽ làm tăng sự tương tác giữa các phân tử phẩm nhuộm và chất hấp phụ [9]. Ngoài ra, khi tăng nồng độ ban đầu sẽ làm tăng động lực (driving force) của quá trình truyền khối của MB từ dung dịch vào bề mặt chất hấp phụ, do đó làm tăng dung lượng hấp phụ phẩm nhuộm [10].

Hình 7 cũng cho thấy rằng, quá trình hấp phụ MB xảy ra nhanh trong giai đoạn đầu từ 0 – 50 phút và dần đạt cân bằng, thời gian cần thiết để đạt trạng thái cân bằng là khoảng 120 phút.

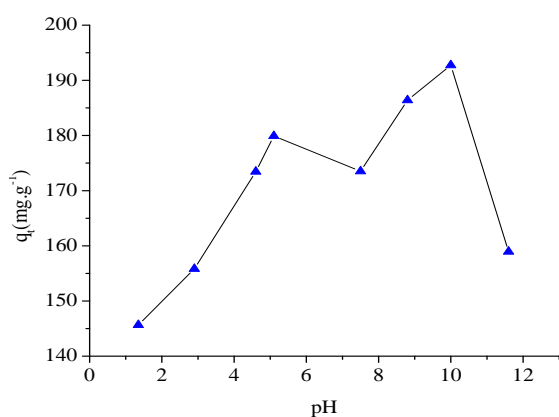
Động học hình thức của quá trình hấp phụ phẩm nhuộm MB trên MIL-100(Fe) được phân tích bằng hai mô hình động học cổ điển là mô hình động học bậc một biểu kiến và động học bậc hai biểu kiến, kết quả thể hiện qua bảng 1.

Kết quả tính toán cho thấy mô hình bậc hai biểu kiến cho mối quan hệ tuyến tính với hệ số tương quan cao ( $R^2 > 0,99$ ) đối với tất cả các nồng độ khảo sát, tham số  $q_e$  tính toán từ mô hình gần với  $q_e$  thực nghiệm hơn là mô hình động học bậc nhất biểu kiến nên có thể kết luận rằng mô hình hấp phụ bậc hai biểu kiến phù hợp cho quá trình hấp phụ phẩm nhuộm MB trên MIL-100(Fe).

phụ hóa học là giai đoạn quyết định tốc độ hấp phụ nên mô hình này cũng có tên gọi là

mô hình hấp phụ hóa học biểu kiến bậc hai, vì vậy quá trình hấp phụ MB trên MIL-100(Fe) mang bản chất hóa học.

Một trong những tham số quan trọng để điều khiển quá trình hấp phụ là pH. Ảnh hưởng của pH đến quá trình hấp phụ MB trên MIL-100(Fe) được nghiên cứu trong khoảng pH 1 – 12, kết quả thể hiện ở hình 8. Có thể thấy dung lượng hấp phụ MB của chất hấp phụ tăng lên khi pH nằm khoảng 1 đến 5,5 và 7,8 đến 10,5, giảm nhẹ trong khoảng 5,5 đến 7,8 và giảm mạnh khi pH tăng lên cao trên 10. Khả năng hấp phụ MB của MIL-100(Fe) được giải thích bằng tương tác giữa các tâm acid Lewis của MIL-100(Fe) và base Lewis  $-N(CH_3)_2$  của



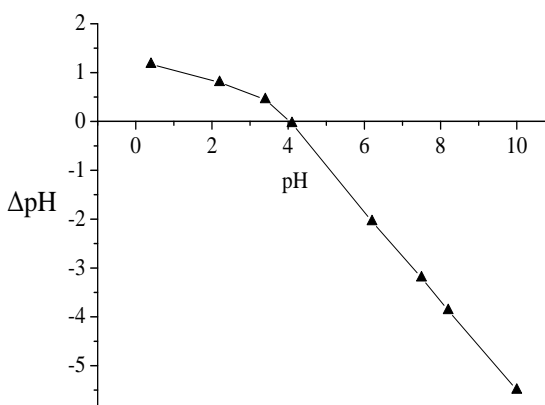
**Hình 8.** Ảnh hưởng của pH đến quá trình hấp phụ MB trên MIL-100(Fe)

#### 4. KẾT LUẬN

Đã tổng hợp thành công vật liệu MIL-100(Fe) bằng phương pháp thủy nhiệt từ  $Fe^{2+}$  và  $H_3BTC$ . Vật liệu tổng hợp được có diện tích bề mặt BET là  $1657,37 \text{ m}^2 \cdot \text{g}^{-1}$ , và thể tích lỗ xốp vật liệu là  $0,65 \text{ cm}^3 \cdot \text{g}^{-1}$ . Động học hấp phụ phẩm nhuộm MB vào MIL-100(Fe) tuân theo mô hình hấp phụ hóa học bậc hai và đẳng nhiệt hấp phụ tương thích tốt với mô hình Langmuir có

phân tử MB. Ngoài ra, khả năng tạo tương tác  $\pi-\pi$  giữa các vòng benzene trong phân tử MB với MIL-100(Fe) có thể sẽ làm tăng khả năng hấp phụ.

Kết quả xác định điểm đẳng điện của MIL-100(Fe) theo phương pháp điều chỉnh pH được thể hiện qua hình 9, theo đó điểm đẳng điện của MIL-100(Fe) là 4. Kết quả này cho thấy khi pH tăng, bề mặt của khung MIL-100(Fe) tích điện âm cùng với sự tồn tại các anion như  $F^-$  và  $OH^-$  sẽ tạo ra tương tác tĩnh điện với điện tích dương của phân tử MB, tạo thuận lợi cho quá trình hấp phụ, do đó tương tác tĩnh điện đóng vai trò quan trọng trong quá trình hấp phụ.



**Hình 9.** Kết quả xác định điểm đẳng điện của MIL-100(Fe)

nghĩa là quá trình hấp phụ MB vào MIL-100(Fe) chủ yếu là hấp phụ hóa học và gần như tạo thành đơn lớp trên bề mặt chất hấp phụ. Dung lượng hấp phụ MB cực đại của MIL-100(Fe) ( $q_m = 344,828 \text{ mg} \cdot \text{g}^{-1}$ ) khá lớn, mở ra triển vọng ứng dụng vật liệu MIL-100(Fe) được chế tạo từ nguồn nguyên liệu sắt thân thiện với môi trường, giá rẻ trong lĩnh vực xử lý nước thải của công nghiệp dệt nhuộm.

#### TÀI LIỆU THAM KHẢO

- [1] Yaoyao Jia, Qing Jin, Yan Li,\* Yuxiu Sun,\* Jianzhong Huo and Xiaojun Zhao (2015), “Investigation of the adsorption behaviour of different types of dyes on MIL-100(Fe) and their removal from natural water”, *Anal. Methods*, 7, pp.1463 – 1470.
- [2] Fangchang Tan , Min Liu , Keyan Li , Yiren Wang , Junhu Wang, Xinwen Guo, Guoliang Zhang, Chunshan Song (2015), “Facile synthesis of size-controlled MIL-100(Fe) with excellent adsorption capacity for methylene blue”. *Chemical Engineering Journal*, 281, pp. 360–367.
- [3] Guoqiang Song, Zhiqing Wang, Liang Wang, Guoru Li, Minjian Huang, Fengxiang Yin, (2014), “Preparation of MOF(Fe) and its catalytic activity for oxygen reduction reaction in an alkaline electrolyte”, *Chinese Journal of Catalysis*, 35, pp. 185–195.
- [4] Fumin Zhang, Jing Shi, Yan Jin, Yanghe Fu, Yijun Zhong, Weidong Zhu, (2015), “Facile synthesis of MIL-100(Fe) under HF-free conditions and its application in the acetalization of aldehydes with diols ”, *Chemical Engineering Journal*, 259, pp. 183–190.
- [5] Patricia Horcajada, Suzy Surblé, Christian Serre, Do-Young Hong, You- Kyong Seo, Jong-San Chang, Jean-Marc Grenèche, Irene Margiolaki , Gérard Férey, (2007), “Synthesis and catalytic properties of MIL-100(Fe), an iron (III) carboxylate with large pores”, *Chemical Communications*, 0 , pp. 2820 - 2822.
- [6] Xianghui Li, Weilin Guo\*, Zhonghua Liu, Ruiqin Wang, Hua Liu (2016), “Fe-based MOFs for efficient adsorption and degradation of acid orange 7 in aqueous solution via persulfate activation”, *Applied Surface Science*, 369, pp. 130–136.
- [7] Jing Shi, Shengtao Hei, Huanhuan Liu, Yanghe Fu, Fumin Zhang, Yijun Zhong, and Weidong Zhu (2013), “Synthesis of MIL-100(Fe) at Low Temperature and Atmospheric Pressure ”, *Journal of Chemistry*, Volume 2013 (2013), Article ID 792827, 4 pages.
- [8] Shan Huang, Kai-Li Yang, Xiao-Fang Liu, Hu Pan, Heng Zhang and Song Yang, (2017), “MIL–100(Fe)–catalyzed efficient conversion of hexoses to lactic acid”, *The Royal Society of Chemistry*, 7, pp. 5621 – 5627.
- [9] 10. Mohammadi N., Khani H., Gupta V. K., Amereh E., Agarwal S. (2011), “Adsorption process of methyl orange dye onto mesoporous carbonmaterial–kinetic and thermodynamic studies”, *J. Colloid Interface Sci.*, 362(2), pp. 457- 462.
- [10] 11.Vadivelan V., Kumar K. V. (2005), “Equilibrium, kinetics, mechanism, and process design for the sorption of methylene blue onto rice husk”, *J. Colloid Interface Sci.*, 286(1), pp. 90-100.