

## NGHIÊN CỨU BIẾN TÍNH MỘT SỐ VẬT LIỆU TỰ NHIÊN SỬ DỤNG CHO QUÁ TRÌNH FENTON DỊ THỂ, PHÂN HỦY PHẨM MÀU HỮU CƠ

Vũ Huy Định<sup>1</sup>, Nguyễn Thị Huyền Trang<sup>2</sup>, Trần Thị Thanh Thủy<sup>3</sup>, Đặng Thế Anh<sup>4</sup>  
<sup>1,2,3,4</sup>Trường Đại học Lâm nghiệp

### TÓM TẮT

Các vật liệu tự nhiên bao gồm đất sét, đá ong và cao lanh được biến tính bằng phương pháp ngâm tẩm muối sắt và gia nhiệt vật lý để trở thành xúc tác cho quá trình Fenton dị thể, phân hủy phẩm màu hữu cơ Reactive Yellow 160 (RY160). Các đặc điểm hình thái bề mặt của các vật liệu biến tính được xác định thông qua ảnh hiển vi điện tử quét SEM. Các vật liệu sau khi biến tính được sử dụng cho quá trình Fenton dị thể, phân hủy phẩm màu RY160. Sau khi biến tính các vật liệu tự nhiên có khả năng xúc tác tốt cho quá trình Fenton. Nghiên cứu sự ảnh hưởng của hàm lượng xúc tác, hàm lượng chất oxi hóa, pH, nhiệt độ và thời gian đến hiệu suất xử lý màu được thực hiện nhằm tìm ra điều kiện thích hợp nhất khi thực hiện quá trình xử lý phẩm màu với xúc tác điều chế được. Tại điều kiện thích hợp tìm được, hiệu suất xử lý màu cho phẩm màu RY160 của các vật liệu biến tính là rất cao: đất sét biến tính (Cl-Fe) đạt 97,5%, cao lanh biến tính (Kao-Fe) đạt 96,0%, đá ong biến tính (Lat-Fe) đạt 92,1%.

**Từ khóa:** Cao lanh, đá ong, đất sét, Fenton dị thể, Reactive Yellow 160.

### I. ĐẶT VẤN ĐỀ

Ngành công nghiệp dệt nhuộm có đặc điểm là phát thải những chất khó phân hủy, ảnh hưởng nghiêm trọng và lâu dài đến môi trường. Nước thải ngành dệt nhuộm có thành phần phức tạp, phụ thuộc vào từng giai đoạn và hóa chất sử dụng, nhưng yếu tố chủ yếu làm ảnh hưởng đến chất lượng nước và khả năng truyền ánh sáng là các phẩm màu có chứa hợp chất họ azo (Đặng Trần Phòng, 2008), loại thuốc nhuộm đang dần thay thế các phẩm màu có chứa kim loại trong thành phần. Đặc điểm của các phẩm màu azo này khó phân hủy sinh học, khó lắng đọng, chủ yếu được xử lý bằng phương pháp hấp phụ hoặc tẩy màu bằng chất oxi hóa như ozon hoặc clo (G. Meireles, 2016), tuy nhiên các phương pháp này không triệt để và có nhiều hạn chế. Nghiên cứu các phương pháp mới có khả năng phân hủy các phẩm màu azo là vấn đề cấp thiết, có ý nghĩa lớn với sinh thái môi trường và đảm bảo cuộc sống lâu dài của con người.

Trong những năm gần đây, có nhiều công trình nghiên cứu các phương pháp xử lý phẩm màu azo: Phương pháp hấp phụ, phương pháp sinh học (Đặng Trần Phòng, 2004, 2005), phương pháp oxi hóa nâng cao (Mahsa Dindarsafa, 2017; W. Hajjaji, 2016; Yongjun

Shen, 2016). Trong đó, phương pháp oxi hóa nâng cao sử dụng gốc hydroxyl ( $\text{OH}^\bullet$ ) tạo ra nhờ sự phân hủy  $\text{H}_2\text{O}_2$  khi có mặt ion  $\text{Fe}^{2+}$  đang là một hướng nghiên cứu mới, có nhiều triển vọng và tiềm năng áp dụng vào thực tế nước ta. Với ưu điểm là thế oxi hóa khử cao của  $\text{OH}^\bullet$ , có khả năng oxi hóa không chọn lọc hầu hết các hợp chất hữu cơ độc hại khó phân hủy thành các hợp chất ít độc hơn, dễ phân hủy sinh học hơn hoặc oxi hóa hoàn toàn tạo thành  $\text{CO}_2$  và  $\text{H}_2\text{O}$  (Mahsa Dindarsafa, 2017; W. Hajjaji, 2016; S.Guo, 2016; Yifei Diao, 2018; Maribel Ocampo-Gaspar, 2018; Sanjeev Sangami, 2017).

Với mục đích điều chế ra vật liệu có khả năng xúc tác cho quá trình oxi hóa nâng cao, chúng tôi sử dụng các vật liệu có nguồn gốc thiên nhiên như: đất sét, cao lanh và đá ong, sau đó biến tính chúng, nâng cao hoạt tính xúc tác và áp dụng vào quá trình oxi hoá nâng cao, xử lý phẩm màu.

### II. PHƯƠNG PHÁP NGHIÊN CỨU

#### 2.1. Vật liệu

Đất sét thô được lấy tại khu vực làng gốm Bát Tràng, xã Bát Tràng, thị trấn Gia Lâm, Hà Nội. Cao lanh (Kaolin) có thành phần khoáng vật chủ yếu là kaolinit, được lấy tại mỏ ở xã Dị Nậu, huyện Tam Nông, tỉnh Phú Thọ. Đất sét,

cao lanh được sấy khô ở 80°C, nghiền và rây đến kích thước hạt mịn bằng rây 0,1 mm. Đá ong tự nhiên được lấy tại khu vực làng cổ Đường Lâm, thị xã Sơn Tây, Hà Nội; sau khi rửa sạch bùn đất, được nghiền và rây đến kích thước đồng đều cỡ 0,05 cm, sau đó rửa sạch lại với nước cất hai lần và sấy khô ở 80°C.

## 2.2. Phương pháp nghiên cứu

### 2.2.1. Phương pháp biến tính vật liệu

Đất sét, cao lanh và đá ong sau khi sơ chế đều được biến tính bằng phương pháp ngâm tẩm với muối sắt (III) sunfat theo tỉ lệ 1,5 g muối  $Fe_2(SO_4)_3/10$  gam vật liệu thô. Khuấy các hỗn hợp ở tốc độ 120 vòng/phút trong thời gian 2 giờ, sau đó để lắng và sấy trong tủ sấy ở 100°C. Hỗn hợp sau khi sấy được nung trong lò nung ở 500°C trong thời gian 2 giờ, để nguội thu được xúc tác tương ứng là đất sét biến tính (Cla-Fe), cao lanh biến tính (Kao-Fe) và đá ong biến tính (Lat-Fe).

### 2.2.2. Phương pháp khảo sát đặc tính vật liệu

Hình thái bề mặt các vật liệu được xác định bằng kính hiển vi điện tử quét (SEM), quét bề mặt mẫu bằng một chùm tia điện tử hội tụ cao trong điều kiện chân không, các tín hiệu từ mẫu phản xạ lại được thu thập và tạo thành hình ảnh bề mặt mẫu, hiển thị trên màn hình và ảnh quét. Ảnh SEM cung cấp các thông tin về đặc điểm hình dạng bề mặt, hình thái cấu trúc của vật liệu: cỡ hạt, sự kết tinh và vi cấu trúc trên bề mặt của mẫu. Kết quả đo SEM được ghi trên máy *Oxford Microanalysis ISIS 300* tại Đại học Quốc gia Hà Nội.

### 2.2.3. Phương pháp thí nghiệm

Các thí nghiệm khảo sát hoạt tính xúc tác, hiệu suất xử lý phẩm màu khi sử dụng các vật liệu được tiến hành trong dung dịch theo phương pháp mẻ, các hóa chất được bổ sung một lần vào trong cốc phản ứng. Chuẩn bị 200 ml dung dịch phẩm màu RY160, nồng độ 50 ppm (0,05g/l), được pha chế và điều chỉnh pH xác định bằng dung dịch axit sunfuric 1M và natri hidroxit 1M; sau đó tiếp tục được bổ sung xúc tác tương ứng, khuấy trên máy khuấy từ gia nhiệt ở tốc độ 120 vòng/phút và lượng chính xác dung dịch  $H_2O_2$  30% (w/w), thời gian phản ứng được tính từ khi bắt đầu bổ sung dung dịch  $H_2O_2$ . Nồng độ của RY160 được xác định bằng phương pháp đo độ hấp thụ quang ở các mốc thời gian 0, 30, 60, 90 và 120 phút.

Theo dõi sự thay đổi nồng độ phẩm màu trong quá trình xử lý bằng phương pháp phổ hấp thụ phân tử UV-Vis. Dụng cụ chuẩn của RY160 và theo dõi nồng độ phẩm màu ở bước sóng hấp thụ cực đại là 428 nm, trên máy đo HARCH DR3900. Hiệu suất xử lý màu được xác định theo công thức:

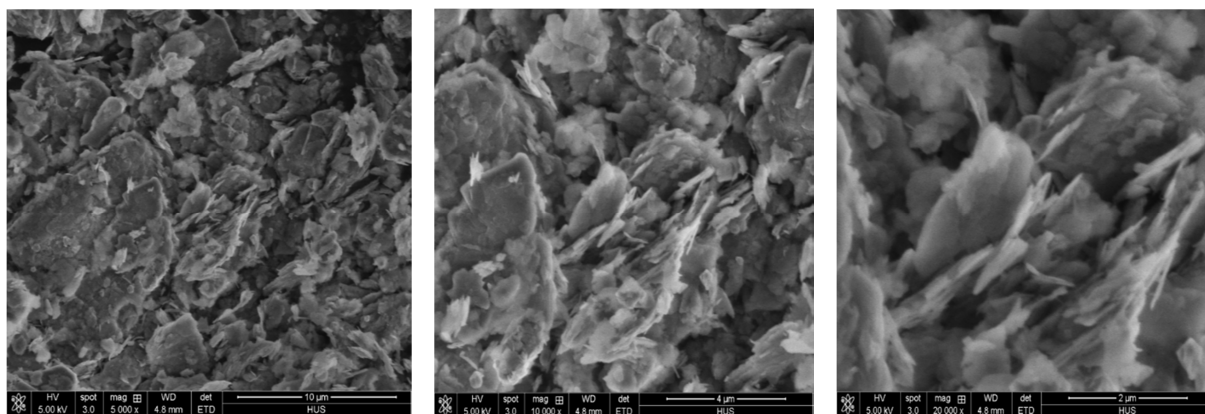
$$H(\%) = \frac{C_o - C_t}{C_o} \times 100$$

Trong đó:  $C_o$ ,  $C_t$  là hàm lượng RY160 trong mẫu trước xử lý (0 phút) và sau xử lý được t phút.

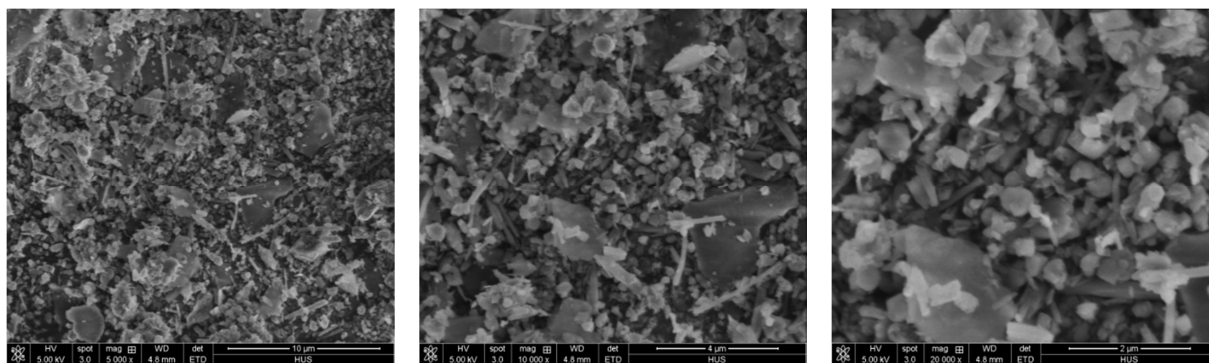
## III. KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN

### 3.1. Hình thái vật liệu biến tính

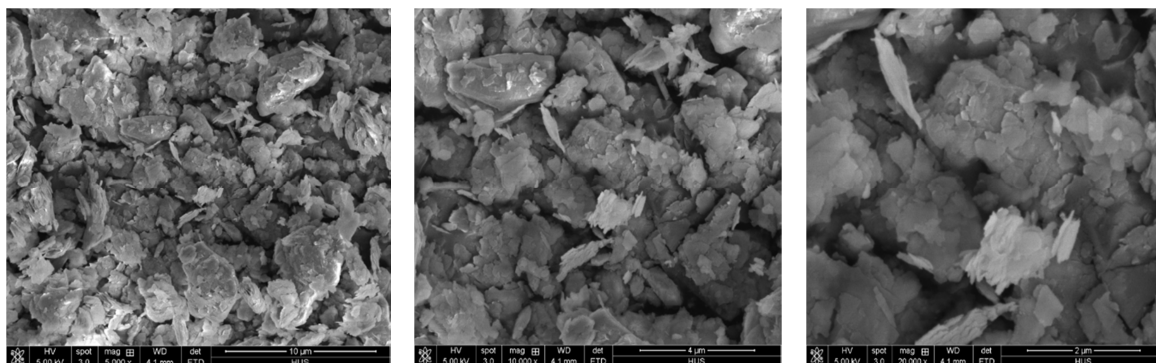
Đặc điểm hình thái bề mặt của vật liệu Cla-Fe, Kao-Fe và Lat-Fe được phân tích trên ảnh SEM, kết quả thể hiện ở hình 1, 2 và 3.



Hình 1. Ảnh SEM của mẫu Cla-Fe ở kích thước phóng đại 5000, 10000 và 20000 lần



Hình 2. Ảnh SEM của mẫu Kao-Fe ở kích thước phóng đại 5000, 10000 và 20000 lần

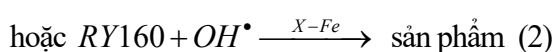
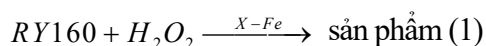


Hình 3. Ảnh SEM của mẫu Lat-Fe ở kích thước phóng đại 5000, 10000 và 20000 lần

Các mẫu vật liệu đất sét (Ewa Koszela-Marek, 2015) và cao lanh (Fawei Jiang, 2015) có bề mặt tương đối mịn, tuy nhiên sau quá trình biến tính, bề mặt vật liệu có sự thay đổi, có các mảnh nhỏ xuất hiện ở kích thước cỡ 0,2 - 0,5 μm. Đối với ảnh SEM của mẫu đá ong, kết quả cho thấy bề mặt đá ong sau biến tính Lat-Fe tương đối đặc khít, trái ngược với ảnh SEM thô có cấu trúc xốp (Mitali Sarkar, 2006), điều này có thể giải thích do sự có mặt của các mảnh nhỏ muối sắt sau khi nung đã phân hủy trở thành oxit sắt, lấp đầy các lỗ xốp của đá ong. Các mảnh nhỏ xuất hiện này sẽ là trung tâm kích hoạt cho phản ứng Fenton dị thể.

### 3.2. Các yếu tố ảnh hưởng tới hiệu suất của quá trình xử lý phẩm màu

Quá trình Fenton dị thể được dựa trên phản ứng cơ bản sau:

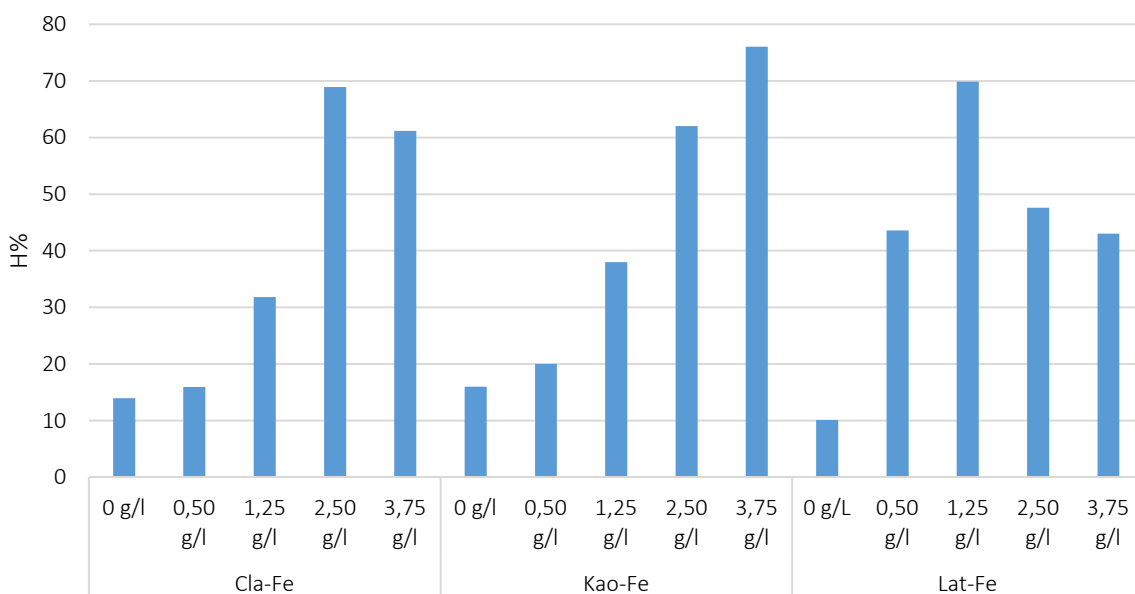


Trong đó: X-Fe là vật liệu biến tính Cla-Fe, Kao-Fe và Lat-Fe, sản phẩm là các hợp chất trung gian không màu hoặc sản phẩm khoáng hóa.

Quá trình xử lý phẩm màu hữu cơ phụ thuộc vào các yếu tố: nồng độ phẩm màu, hàm lượng vật liệu biến tính, nồng độ chất oxy hoá. Ngoài các yếu tố trên, các yếu tố khác của môi trường phản ứng như pH, nhiệt độ dung dịch và sự có mặt của các ion vô cơ cũng làm ảnh hưởng tới hiệu suất của quá trình xử lý. Sự ảnh hưởng của các yếu tố đến quá trình xử lý lần lượt được khảo sát nhằm tìm ra điều kiện tối ưu nhất cho quá trình xử lý.

#### 3.2.1. Ảnh hưởng của hàm lượng vật liệu biến tính

Trong cơ chế phản ứng Fenton dị thể, hiệu quả xử lý ảnh hưởng mạnh bởi hàm lượng xúc tác, nhân tố cơ bản gây ra hoạt tính xúc tác là sắt. Ảnh hưởng của hàm lượng hệ xúc tác hay vật liệu biến tính được khảo sát tại các giá trị 0 g/l, 0,50 g/l, 1,25 g/l, 2,5 g/l và 3,75 g/l trong điều kiện cố định pH = 2 đối với Cla-Fe và Kao-Fe, pH = 7 đối với Lat-Fe, nồng độ H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> 2,45 mM, thời gian xử lý 120 phút. Tiến hành thí nghiệm với các giá trị pH, hàm lượng H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> được chọn trên cơ sở đã được khảo sát một số thí nghiệm thăm dò, nhằm tìm ra điều kiện ban đầu phù hợp.



**Hình 4. Ảnh hưởng của hàm lượng vật liệu biến tính**  
 ( $[H_2O_2] = 2,45 \text{ mM}$ ,  $pH 2$  hoặc  $7$ ,  $t^\circ = 30^\circ C$ )

Kết quả thí nghiệm (thể hiện ở hình 4) cho thấy: khi tiến hành phản ứng không có bổ sung chất vật liệu biến tính, hiệu quả quá trình xử lý thấp vì đây là phản ứng oxi hóa phẩm màu thông thường của  $H_2O_2$  trong môi trường axit; với đất sét hiệu suất chỉ đạt 14,0%; với cao lanh đạt 16,0% và đá ong đạt 10,1%. Từ đây cho thấy ý nghĩa của việc sử dụng vật liệu biến tính cho quá trình phản ứng, khi có mặt ion sắt ở pha dị thể,  $H_2O_2$  phân hủy tạo ra gốc  $OH^\bullet$  là tác nhân chính oxi hóa các chất hữu cơ trong nước (Fenton H.J.H, 1894).

Khi tăng hàm lượng vật liệu biến tính từ 0 g/l đến 3,75 g/l, hiệu suất quá trình xử lý có xu hướng tăng dần khi hàm lượng chất xúc tác tăng lên. Với vật liệu Kao-Fe, hiệu quả xử lý tăng dần khi tăng lượng Kao-Fe, đạt giá trị lớn nhất 76,0% tại giá trị 3,75 g/l, đây là giá trị hàm lượng vật liệu biến tính tương đối lớn, do đó không tiếp tục tăng giá trị hàm lượng lên cao hơn nữa. Với hệ xúc tác Cla-Fe, hiệu suất lớn nhất đạt giá trị 69,9% tại hàm lượng 2,5 g/l, sau đó tiếp tục tăng hàm lượng Cla-Fe lên nữa thì hiệu suất phản ứng giảm còn 61,2%. Hiện tượng này tương tự xảy ra với Lat-Fe, hiệu suất cao nhất khi hàm lượng Lat-Fe là 1,25 g/l, đạt 69,9%; sau đó tiếp tục tăng hàm lượng lên 2,5 g/l và 3,75 g/l thì hiệu suất giảm xuống 47,6% và 43,0%. Điều này có thể giải

thích do cơ chế của quá trình Fenton dị thể như sau (Mahsa Dindarsafa, 2017; M. Dükkanci, 2010; Sergio Navalon, 2010; Hao Zhang, 2014):



Trong đó:  $X-Fe$  là Cla-Fe, Kao-Fe, Lat-Fe

Từ cơ chế trên, khi tăng hàm lượng vật liệu xúc tác, hiệu suất phản ứng sẽ tăng theo phản ứng (3), (4) và (5), do sự tăng nồng độ gốc  $OH^\bullet$  trong dung dịch. Tuy nhiên, khi hàm lượng vật liệu xúc tác tăng quá cao, hiệu suất phản ứng sẽ giảm do sự tiêu thụ gốc  $OH^\bullet$  của xúc tác theo phản ứng (6) và (7).

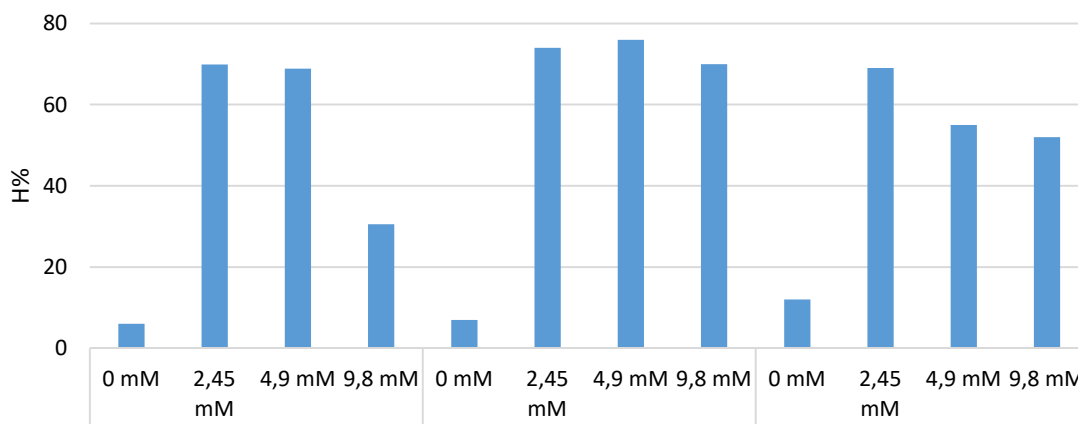
Giá trị hàm lượng vật liệu biến tính phù hợp được lựa chọn để tiến hành các thí nghiệm tiếp theo là: Cla-Fe là 2,50 g/l, Kao-Fe là 3,75 g/l và Lat-Fe là 1,25 g/l. Kết quả cho thấy trong điều kiện khảo sát thì Lat-Fe cho hiệu quả xử lý cao trong khi hàm lượng xúc tác là nhỏ nhất, điều này có thể do đặc điểm bề mặt xốp của đá ong, dễ dàng cố định các phân tử RY160 trên bề mặt, để quá trình xử lý diễn ra thuận lợi.

### 3.2.2. Ảnh hưởng nồng độ hidropeoxit

Trong hệ phản ứng Fenton, nồng độ  $H_2O_2$  là một yếu tố ảnh hưởng mạnh đến hiệu quả xử lý

và chi phí cho quá trình xử lý do ảnh hưởng mạnh tới quá trình hình thành và tiêu thụ gốc OH<sup>•</sup>. Ảnh hưởng của hàm lượng H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> được khảo sát tại các nồng độ 0 mM, 2,45 mM, 4,9

mM và 9,8 mM, với hàm lượng xúc tác đã được lựa chọn ở trên, các điều kiện thí nghiệm còn lại giữ cố định.

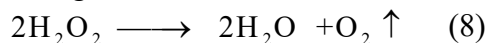


**Hình 5. Ảnh hưởng của nồng độ H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>**  
 ([Cla-Fe] = 2,5 g/l, [Kao-Fe] = 3,75 g/l, [Lat-Fe] = 1,25 g/l, pH 2, t<sup>o</sup> = 30<sup>o</sup>C)

Kết quả thí nghiệm (hình 5) cho thấy khi không sử dụng chất oxi hóa là H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>, hiệu suất xử lý thấp, đều đạt dưới 12% với cả 3 mẫu vật liệu biến tính. Kết quả này do các mẫu vật liệu tự nhiên là đất sét, cao lanh và đá ong hấp phụ kém, các phân tử RY160 lại có kích thước cồng kềnh, quá trình xử lý chỉ là hấp phụ vật lý. Ngoài ra, một kết quả đáng chú ý ở đây là đá ong có khả năng hấp phụ cao nhất trong ba loại vật liệu, tuy rằng hiệu quả không cao do kích thước của các phân tử phẩm màu và kích thước các lỗ xốp của đá ong.

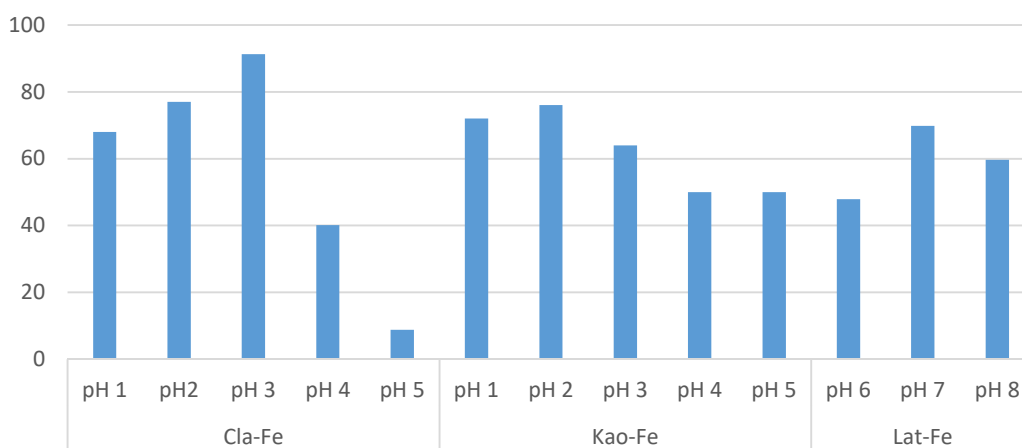
Khi tăng nồng độ H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> từ 0 mM đến 9,8 mM, hiệu suất xử lý của các vật liệu có đặc điểm chung là tăng đến giá trị cực đại, sau đó giảm dần; với Cla-Fe, hiệu suất đạt 69,9% tại 2,45 mM, Kao-Fe đạt hiệu suất lớn nhất 76,0%

tại giá trị 4,9 mM và Lat-Fe đạt 69,9% tại 2,45 mM. Điều này có thể giải thích qua các phản ứng cơ bản (3), (4) và (5); mặt khác sự giảm hiệu suất do H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> bị phân hủy dây chuyền theo phản ứng:



Như vậy, hiệu suất xử lý phụ thuộc vào tỉ lệ [xúc tác]/[H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>] với cả 3 loại xúc tác khảo sát, hàm lượng xúc tác và nồng độ H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> quá cao hay quá thấp đều làm giảm hiệu suất phản ứng, điều này phù hợp với các kết quả nghiên cứu trước đây (Bento Natálya, 2016; Mahsa Dindarsafa, 2017; W. Hajjaji, 2016; S.Guo, 2016; Hao Zhang, 2014; Sanjeev Sangami, 2017). Giá trị nồng độ phù hợp của H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> với xúc tác Cla-Fe và Lat-Fe là 2,45 mM, Kao-Fe là 4,9 mM.

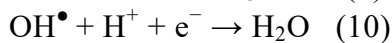
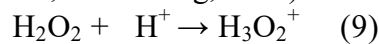
**3.2.3. Ảnh hưởng của pH**



**Hình 6. Ảnh hưởng của pH**

pH là một trong những yếu tố ảnh hưởng mạnh mẽ đến cả hiệu suất và tốc độ của quá trình Fenton (Đào Sỹ Đức, 2013; Đỗ Bình Minh, 2012; Phạm Thị Minh, 2013; Maribel Ocampo-Gaspar, 2018). Thông thường, các quá trình Fenton diễn ra thuận lợi trong môi trường axit, điều này phù hợp với Cla-Fe và Kao-Fe, tuy nhiên các thử nghiệm ban đầu cho thấy Lat-Fe có khả năng xúc tác cho phản ứng Fenton ở khoảng pH trung tính, do đó, pH được khảo sát trong khoảng giá trị pH thấp với Cla-Fe và Kao-Fe, pH trung tính với Lat-Fe. Các điều kiện được cố định:  $[H_2O_2] = 2,45$  mM,  $[Cla-Fe] = 2,5$  g/l,  $[Kao-Fe] = 3,75$  g/l,  $[Lat-Fe] = 1,25$  g/l,  $t^o = 30^oC$ .

Kết quả thí nghiệm ở hình 6 cho thấy pH có ảnh hưởng mạnh tới hiệu quả xử lý. Đối với Cla-Fe và Kao-Fe, hiệu quả xử lý cao tại các giá trị pH thấp, hiệu suất xử lý của Cla-Fe đạt cao nhất 91% khi pH 3 và Kao-Fe cao nhất 76,0% khi pH 2. Khi tăng giá trị pH, hiệu suất xử lý giảm mạnh. Điều này có thể giải thích qua các phản ứng sau (Behnajady M.A, 2007; Sun J.H, 2007; Hao Zhang, 2014):



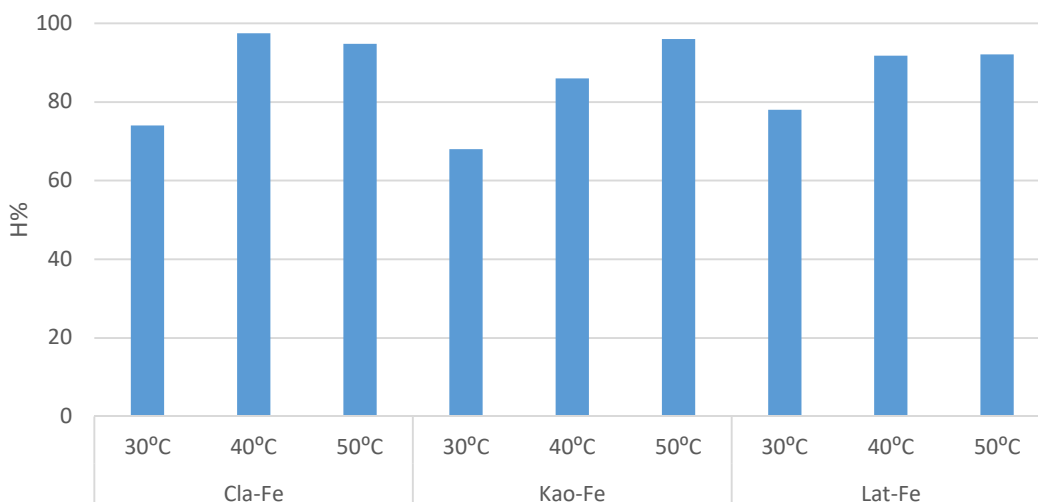
Ở  $pH < 2$ , hiệu quả xử lý giảm là do các phản ứng (9) xảy ra,  $H_2O_2$  có thể bền hóa do tồn tại dưới dạng solvat hóa ( $H_3O_2^+$ ), ion này

khi được hình thành sẽ làm giảm khả năng phản ứng với các ion sắt. Bên cạnh đó khi tiến hành ở pH thấp hơn 2, các gốc  $OH^\bullet$  có thể bị tiêu thụ bởi ion  $H^+$  (10).

Đối với xúc tác Lat-Fe, hiệu quả xử lý đạt tốt ở khoảng giá trị pH trung tính, đạt hiệu suất cao nhất 70% tại pH 7. Cần lưu ý rằng, các kết quả nghiên cứu ở hình 6 cũng cho thấy các mức pH 7, 8 và 9 cũng gần tương đương nhau và hiệu quả xử lý cao ( $> 60%$ ). Khoảng pH này rất thích hợp vì hạn chế khả năng hòa tan kim loại từ vật liệu ra dung dịch, đây cũng là điều kiện đặc biệt hơn cả sự mong đợi; vì thực tế các quá trình Fenton thường tiến hành ở môi trường axit và do đó làm tăng quá trình hòa tan vật liệu rắn. Điều này có thể giải thích qua sự kết hợp giữa cơ chế hấp phụ trên bề mặt đá ong do bề mặt xốp, diện tích bề mặt lớn, sau đó các phân tử phẩm màu bị oxi hóa theo cơ chế Fenton đã nêu ở trên. Như vậy, giá trị pH phù hợp của Lat-Fe là 7, Cla-Fe là 3 và Kao-Fe là 2.

### 3.2.4. Ảnh hưởng của nhiệt độ

Các quá trình xử lý nước thải có bản chất là các quá trình hoá học, nhiệt độ là yếu tố ảnh hưởng lớn đến tốc độ quá trình xử lý. Trong những điều kiện tối ưu về hàm lượng xúc tác, nồng độ  $H_2O_2$  và pH, nhiệt độ được khảo sát trong khoảng  $30^o - 50^oC$ .



Hình 7. Ảnh hưởng của nhiệt độ

Kết quả thí nghiệm (hình 7) cho thấy khi nhiệt độ tăng, hiệu suất xử lý RY160 có xu hướng tăng khi nhiệt độ từ  $30^oC$  lên  $40^oC$  và  $50^oC$ . Hiệu suất xử lý đều đạt trên 90% ở nhiệt

độ  $50^oC$  đối với cả ba loại vật liệu biến tính. Kết quả này có thể giải thích đơn giản do khi tăng nhiệt độ thì tốc độ phản ứng tăng, độ linh động của các ion sắt trên bề mặt vật liệu tăng,

sự kết hợp này làm tăng tốc độ hình thành gốc OH<sup>•</sup> (Behnajady M.A, 2007; Sun J.H, 2007; Amir Reza Khataee, 2014). Như vậy, khi yêu cầu tốc độ xử lý cao, thời gian xử lý ngắn, có thể tăng nhiệt độ tiến hành xử lý.

#### **IV. KẾT LUẬN**

Các vật liệu thiên nhiên là đất sét, cao lanh và đá ong có thể dễ dàng biến tính bằng quy trình ngâm tẩm với muối sắt, sau đó gia nhiệt. Các vật liệu biến tính được sử dụng cho phản ứng Fenton dị thể, chuyển hoá và loại bỏ phẩm màu hữu cơ RY160 trong nước. Ở điều kiện tối ưu của đất sét biến tính là [Cla-Fe] = 2,5 g/l, [H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>] = 2,45 mM, pH 3 và nhiệt độ 40°C, hiệu suất xử lý đạt 97,5%; điều kiện tối ưu của cao lanh biến tính là [Kao-Fe] = 3,75 g/l, [H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>] = 4,9 mM, pH 2 và nhiệt độ 50°C, hiệu suất xử lý đạt 96,0%; điều kiện tối ưu của đá ong biến tính là [Lat-Fe] = 1,25 g/l, [H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>] = 2,45 mM, pH 7 và nhiệt độ 40 - 50°C, hiệu suất xử lý đạt 92,1%. Trong 3 loại vật liệu khảo sát, đá ong biến tính thể hiện các ưu điểm về lượng vật liệu sử dụng ít hơn, lượng H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> tiêu tốn ít và đặc biệt là khoảng pH trung tính. Các vật liệu tự nhiên có đặc điểm thân thiện môi trường mà giá thành thấp, sau khi biến tính có hoạt tính xúc tác tốt, có triển vọng sử dụng cho các quá trình xử lý chất hữu cơ khó phân huỷ.

#### **TÀI LIỆU THAM KHẢO**

1. Đào Sỹ Đức, Vũ Thế Ninh (2013). Phân hủy phẩm nhuộm Reactive Blue 182 bằng kỹ thuật Fenton dị thể sử dụng tro bay biến tính/H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>. *Tạp chí Phát triển Khoa học và Công nghệ*, 16(T3), 13-21.

2. Đỗ Bình Minh và cộng sự (2012). Đặc điểm phản ứng oxi hóa phân hủy một số hợp chất nitrophenol độc hại nhiễm trong môi trường nước bằng nhân Fenton. *Tạp chí Nghiên cứu Khoa học và Công nghệ Quân sự*, 21, 98-106.

3. Phạm Thị Minh (2013). *Nghiên cứu đặc điểm của quá trình khoáng hóa một số hợp chất hữu cơ họ Azo trong nước thải dệt nhuộm bằng phương pháp Fenton điện hóa*. Luận án tiến sĩ hóa học, Viện kỹ thuật nhiệt đới, Viện Hàn lâm và Khoa học Công nghệ Việt Nam.

4. Đặng Trần Phòng (2004). *Sinh thái môi trường trong dệt nhuộm*. Nhà xuất bản Khoa học và Kỹ thuật, Hà Nội.

5. Đặng Trần Phòng, Trần Hiếu Huệ (2005). *Xử lý nước cấp và nước thải dệt nhuộm*. Nhà xuất bản Khoa học và Kỹ thuật, Hà Nội.

6. Đặng Trần Phòng (2008). *Sổ tay sử dụng thuốc*

*nhuộm*, Tập 1: Thuốc nhuộm châu Á. Nhà xuất bản Khoa học và Kỹ thuật, Hà Nội.

7. Đặng Trần Phòng (2014). *Sổ tay sử dụng thuốc nhuộm*, Tập 2: Nhuộm Len và Len pha. Nhà xuất bản Khoa học và Kỹ thuật, Hà Nội.

8. Behnajady M.A. et al. (2007). A kinetic model for the decolorization of C.I. Acid Yellow 23 by Fenton process. *Journal of Hazardous Materials*, 148(1-2), 98-102.

9. Natálya I. Bento et al. (2016). Composites based on PET and red mud residues as catalyst for organic removal from water. *Journal of Hazardous Materials*, 314, 304-311.

10. Mahsa Dindarsafa et al. (2017). Heterogeneous sono-Fenton-like process using martite nanocatalyst prepared by high energy planetary ball milling for treatment of a textile dye. *Ultrasonics Sonochemistry*, 34, 389-399.

11. Fenton H. J. H, M.A (1894). Oxidation of tartaric acid in the presence of iron. *Journal of the Chemical Society, Transactions*, 65, 899-910.

12. W. Hajjaji et al (2016). Aqueous Acid Orange 7 dye removal by clay and red mud mixes. *Applied Clay Science*, 126, 197-206.

13. M. Dükkanci et al. (2010). Heterogeneous Fenton-like degradation of Rhodamine 6G in water using CuFeZSM-5 zeolite catalyst prepared by hydrothermal synthesis. *Journal of Hazardous Materials*, 181, 343-350.

14. Sheng Guo et al. (2016). Graphene modified iron sludge derived from homogeneous Fenton process as an efficient heterogeneous Fenton catalyst for degradation of organic pollutants. *Microporous and Mesoporous Materials*, 238, 62-68.

15. Sergio Navalon et al. (2010). Heterogeneous Fenton catalysts based on clays, silicas and zeolites. *Applied Catalysis B: Environmental*, 99(1-2), 1-26.

16. Jian-Hui Sun et al. (2007). A kinetic study on the degradation of *p*-nitroaniline by Fenton oxidation process. *Journal of Hazardous Materials*, 148 (1-2), 172-177.

17. Yongjun Shen et al. (2017). Mechanism and dynamic study of reactive red X-3B dye degradation by ultrasonic-assisted ozone oxidation process. *Ultrasonics Sonochemistry*, 38, 681-692.

18. Hao Zhang et al. (2014). Mechanism of red mud combined with Fenton's reagent in sewage sludge conditioning. *Water Research*, 59, 239-247.

19. Hao Zhang et al. (2014). Mechanism of red mud combined with Fenton's reagent in sewage sludge conditioning. *Water Research*, 59, 239-247.

20. Fawei Jiang et al. (2015). A new method for determining the aspect ratio of kaolinite by image-resistance combination. *Materials Letters*, 159, 90-93.

21. Amir Reza Khataee & Shahram Ghanbari Pakdehi (2014). Removal of sodium azide from aqueous

solution by Fenton-like process using natural laterite as a heterogeneous catalyst: Kinetic modeling based on nonlinear regression analysis. *Journal of the Taiwan Institute of Chemical Engineers*, 45(5), 2664-2672.

22. Ewa Koszela-Marek (2015). Sem investigations of clay subjected to 200 MPa pressure. *Procedia Earth and Planetary Science*, 15, 791-796.

23. Maribel Ocampo-Gaspar et al. (2018). Sizing the Fenton's catalyst. *Journal of Photochemistry and Photobiology A: Chemistry*, 353, 527-535.

24. Sanjeev Sangami & Basavaraju Manu (2017). Synthesis of green iron nanoparticles using Laterite and their application as a Fenton-Like catalyst for the degradation of herbicide Ametryn in water. *Environmental Technology & Innovation*, 8, 150-163.

25. Mitali Sarkar et al. (2006). Use of laterite for the removal of fluoride from contaminated drinking water. *Journal of Colloid and Interface Science*, 302(2), 432-441.

## **DECOLORIZATION OF ORGANIC DYE (REACTIVE YELLOW 160) BASE ON NATURAL MATERIALS: CLAY, KAOLIN AND LATERITE**

**Vu Huy Dinh<sup>1</sup>, Nguyen Thi Huyen Trang<sup>2</sup>,  
Tran Thi Thanh Thuy<sup>3</sup>, Dang The Anh<sup>4</sup>**  
*<sup>1,2,3,4</sup> Vietnam National University of Forestry*

### **SUMMARY**

In this study, some natural materials include clay, laterite, and kaolin were impregnated by iron (III) sulfate and bake at high temperature (500°C), which became Cla-Fe, Kao-Fe and Lat-Fe catalysts. These modified materials are used as heterogeneous Fenton catalysts for the degradation of Reactive Yellow 160 (RY160), one of the most important active azo dyes in the dyeing industry. Catalysts were characterized by scanning electron microscope (SEM), the structure of these materials is presented to highlight the advantages and benefits in surface with respect to their use as catalysts. After the denatured processes, the effect of catalysts dosage, hydro peroxide concentration, pH, operating temperature and treatment time... on the Reactive Yellow 160 decolonization was investigated. The experimental results showed that under the optimal condition, the decolonization of Reactive Yellow 160 using hydrogen peroxide (H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>) can be activated by Cla-Fe, Kao-Fe, and Lat-Fe catalysts, which apply on heterogeneous Fenton process achieved 97.5% ([Cla-Fe] = 2.5 g/l, [H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>] = 2.45 mM, pH 3, 40°C), 96.0% ([Kao-Fe] = 3.75 g/l, [H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>] = 4.9 mM, pH 2, 50°C), 92.1% ([Lat-Fe] = 1.25 g/l, [H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>] = 2.45 mM, pH 7, 50°C) within 120 minutes, respectively, reactive solutions were effectively colorless.

**Keywords:** Clay, heterogeneous fenton, kaolin, laterite, Reactive Yellow 160.

**Ngày nhận bài** : 15/6/2018  
**Ngày phản biện** : 29/7/2018  
**Ngày quyết định đăng** : 03/8/2018