



KHẢO SÁT KHẢ NĂNG HẤP PHỤ ION CU (II) BẰNG HYDROGEL TRÊN CƠ SỞ POLY(VINYL ALCOHOL)/CHITOSAN/CARBON

Bùi Thị Thảo Nguyên*, Nguyễn Nhị Trự, Hà Thị Trâm Anh, Nguyễn Thị Quỳnh Giao, Huỳnh Thị Ngọc Hân và Nguyễn Đức An

Khoa Công nghệ Vật liệu – Trường Đại học Bách khoa – Đại học Quốc gia Thành phố Hồ Chí Minh

*Người chịu trách nhiệm về bài viết: Bùi Thị Thảo Nguyên (email: btnguyen@hcmut.edu.vn)

Thông tin chung:

Ngày nhận bài: 06/11/2022

Ngày nhận bài sửa: 22/11/2022

Ngày duyệt đăng: 28/11/2022

Title:

Investigation of Cu (II) ion adsorption capacity of Poly(vinyl alcohol)/chitosan/carbon hydrogel

Từ khóa:

Carbon, chitosan, hấp phụ, hydrogel, ion Cu (II), poly(vinyl alcohol)

Keywords:

Adsorption, carbon, chitosan, Cu (II) ion, hydrogel, poly(vinyl alcohol)

ABSTRACT

Với những tính chất vượt trội, hydrogel đã thu hút sự quan tâm của các nhà nghiên cứu trong và ngoài nước bởi khả năng dễ chế tạo và đa dạng các ứng dụng trong nhiều lĩnh vực. Trong nghiên cứu này, hydrogel được tổng hợp trên cơ sở polyvinyl alcohol (PVA), chitosan (CS) và carbon hoạt tính (AC) theo định hướng ứng dụng loại bỏ ion đồng trong nước thải. Các tính chất đặc trưng của hydrogel được khảo sát qua các phương pháp phân tích và đánh giá vật liệu, bao gồm quang phổ hồng ngoại, nhiễu xạ tia X, khả năng trương nước và hấp phụ ion Cu (II). Khả năng trương nước của hydrogel đạt được tối đa là 497.1% khi hàm lượng carbon hoạt tính trong mẫu hydrogel là 2% khối lượng carbon. Các mô hình đẳng nhiệt Langmuir và Freundlich được đưa vào nghiên cứu để đánh giá khả năng hấp phụ ion Cu (II) của hydrogel và các thông số thực nghiệm của quá trình khảo sát hoàn toàn khớp với mô hình. Hydrogel PVA/chitosan/carbon hoạt tính đạt được độ hấp phụ ion Cu (II) tối đa là 212.766 mg/g ở môi trường trung tính.

TÓM TẮT

Abstract – Hydrogels have attracted the attention of domestic and foreign researchers due to their outstanding properties such as simple fabrication and diverse applications in many fields. In this study, hydrogels were synthesized from polyvinyl alcohol (PVA), chitosan (CS), and activated carbon (AC) towards removing copper ions from wastewater. The characteristic properties of hydrogels were investigated by analytical methods, including infrared spectroscopy (FTIR), X-ray diffraction (XRD), water swelling behavior, and Cu (II) ion adsorption capacity. The maximum water swelling capacity of the hydrogel was 497.1% when the active carbon content in the hydrogel sample was 2 wt%. The Langmuir and Freundlich isotherm models were used in the study to evaluate the Cu (II) ion adsorption capacity of the hydrogel and the experimental parameters of the survey process completely matched the model. The PVA/chitosan/active carbon hydrogel achieved a maximum Cu (II) ion adsorption of 212.766 mg/g in neutral medium.

1. GIỚI THIỆU

Ô nhiễm nguồn nước do việc xả thải từ các nhà máy hóa chất ra ngoài môi trường càng ngày càng trở nên nghiêm trọng. Nước thải từ các nhà máy chứa hàm lượng lớn những kim loại nặng như Cd, Cu, Cr, Mn, Hg,...(Bayat et al., 2018). Những kim loại và ion kim loại này tích tụ lại, gây ảnh hưởng nghiêm trọng đến môi trường sống của động thực vật và con người. Nhiều bệnh tật nguy hiểm khó điều trị của con người do nguồn nước ô nhiễm gây ra như: tả, lỵ, thương hàn, nhiễm khuẩn E.coli, các bệnh ngoài da. Nghiêm trọng hơn là việc nhiễm khuẩn từ thuốc trừ sâu, chất phóng xạ trong nguồn nước thải làm tăng nguy cơ bị ung thư (Al-Othman et al., 2012). Để đối phó với vấn đề ô nhiễm nguồn nước, nhiều giải pháp đã được đưa ra như sử dụng màng lọc, phương pháp kết tủa, phương pháp trao đổi ion, phương pháp điện hoá (Cavaco et al., 2007; Lakshminathiraj et al., 2008; Punzi et al., 2015; Gorzin & Bahri, 2018). Tuy nhiên, các phương pháp trên đòi hỏi chi phí năng lượng cao, cần nhiều chất xúc tác, thiết bị phức tạp đồng thời đắt tiền và khó tiến hành trên quy mô lớn (Zhou et al., 2016). Trong khi đó, phương pháp sử dụng hydrogel để xử lý nước thải có nhiều điểm nổi bật như khả năng hấp phụ ion kim loại hiệu quả, cấu trúc hoá học của hydrogel tương đối bền vững, đồng thời tiết kiệm năng lượng sử dụng và chi phí thấp (Kenawy et al., 2014).

Trong số những vật liệu hấp phụ, carbon hoạt tính, chitosan là những vật liệu có tiềm năng dồi dào, dễ chế tạo, giá thành thấp và đã được sử dụng nhiều trong các nghiên cứu hấp phụ. Carbon hoạt tính có diện tích bề mặt lớn, ổn định hoá học, khả năng hấp phụ nổi bật và được ứng dụng hiệu quả trong việc loại bỏ chất hữu cơ và các phức chất ô nhiễm ra khỏi nguồn nước (Vineeth et al., 2020). Khả năng hấp phụ ion kim loại của carbon hoạt tính phụ thuộc vào diện tích bề mặt riêng và độ xốp của carbon (Gorzin & Ghoreyshi, 2013; Chedly et al., 2017). Để tăng khả năng hấp phụ ion kim loại, nhiều nghiên cứu hướng đến việc chế tạo composite nhằm kết hợp carbon hoạt tính với những hợp chất khác như CoFe_2O_4 _AC (Abdeen et al., 2015), goethite_AC (Adebayo et al., 2020), MOF_AC (Muñoz-Senmache et al., 2020).

Trong những năm gần đây, chất hấp phụ chitosan đã thu hút nhiều sự quan tâm nghiên cứu bởi những đặc tính như thân thiện môi trường, dễ phân hủy sinh học, hấp phụ kim loại và ion kim loại tốt, đồng thời giá thành rẻ, nguồn vật liệu dồi dào, dễ tổng hợp. Nhờ các nhóm chức phân cực trên bề mặt như nhóm amin ($-\text{NH}_2$) và nhóm hydroxyl ($-\text{OH}$), chitosan thuận lợi tương tác với các ion kim loại ô nhiễm trong nguồn nước để hấp phụ và trao đổi ion dễ dàng như các ion Cu^{2+} , Cd^{2+} , Pb^{2+} . Do đó, việc kết hợp carbon hoạt tính và chitosan tạo nên composite kết hợp vật liệu vô cơ và hữu cơ, tăng cường khả năng hấp phụ ion kim loại, cụ thể là ion Cu (II) là định hướng mà nghiên cứu này hướng đến.

Chitosan và carbon hoạt tính sẽ tạo thành cấu trúc hydrogel trong môi trường axit. Để tăng tính ổn định hoá học và tăng cường cơ tính cho hydrogel, poly(vinyl alcohol) (PVA) được đưa vào cấu trúc của hydrogel. PVA là polymer có tính tương thích sinh học cao, dễ phân hủy và có khả năng trương nước tốt (Li et al., 2015). PVA có chứa các nhóm chức hydroxyl ($-\text{OH}$) nên dễ dàng hình thành liên kết hydro với nhóm amin của chitosan nên tăng cường cơ tính cho hydrogel. Ngoài ra, trong nghiên cứu này, glyoxal được sử dụng như tác nhân đóng rắn để khâu mạch PVA và chitosan để tạo cấu trúc bền vững cho hydrogel. Hydrogel trên cơ sở poly(vinyl alcohol), chitosan, AC, được tổng hợp và được khảo sát các tính chất qua các phương pháp phân tích như FTIR, XRD, UV-vis. Ngoài ra hydrogel được đánh giá khả năng trương nước và khả năng hấp phụ ion Cu (II). Hiệu quả đóng rắn của glyoxal cũng được khảo sát nhằm tạo ra hydrogel có khả năng hấp phụ tốt. Các mô hình hấp phụ đẳng nhiệt Langmuir và Freundlich được đưa vào quá trình nghiên cứu để khảo sát độ hấp phụ tối đa của hydrogel.

Chitosan và carbon hoạt tính sẽ tạo thành cấu trúc hydrogel trong môi trường axit. Để tăng tính ổn định hoá học và tăng cường cơ tính cho hydrogel, poly(vinyl alcohol) (PVA) được đưa vào cấu trúc của hydrogel. PVA là polymer có tính tương thích sinh học cao, dễ phân hủy và có khả năng trương nước tốt (Li et al., 2015). PVA có chứa các nhóm chức hydroxyl ($-\text{OH}$) nên dễ dàng hình thành liên kết hydro với nhóm amin của chitosan nên tăng cường cơ tính cho hydrogel. Ngoài ra, trong nghiên cứu này, glyoxal được sử dụng như tác nhân đóng rắn để khâu mạch PVA và chitosan để tạo cấu trúc bền vững cho hydrogel. Hydrogel trên cơ sở poly(vinyl alcohol), chitosan, AC, được tổng hợp và được khảo sát các tính chất qua các phương pháp phân tích như FTIR, XRD, UV-vis. Ngoài ra hydrogel được đánh giá khả năng trương nước và khả năng hấp phụ ion Cu (II). Hiệu quả đóng rắn của glyoxal cũng được khảo sát nhằm tạo ra hydrogel có khả năng hấp phụ tốt. Các mô hình hấp phụ đẳng nhiệt Langmuir và Freundlich được đưa vào quá trình nghiên cứu để khảo sát độ hấp phụ tối đa của hydrogel.

2. VẬT LIỆU VÀ PHƯƠNG PHÁP

2.1. Hóa chất

PVA ($M_w = 125\ 000$ g/mol, độ thủy phân 98-99%) và chitosan ($M_w = 5000$ g/mol, độ deacetyl 80%) được mua từ hãng Himedia, Ấn Độ. Carbon Ketjenblack EC-600JD và glyoxal được mua từ hãng Wako, Nhật Bản. Các hóa chất khác với độ tinh khiết > 99% được mua từ hãng Xilong, Trung Quốc.

2.2. Biến tính bề mặt carbon Ketjenblack EC-600JD

Đầu tiên, mẫu carbon được ngâm trong dung dịch HCl 6M ở 60°C trong 2 giờ để loại bỏ các tạp chất. Sau đó mẫu được lọc, rửa với nước cất đến khi pH 7. Kế tiếp mẫu được sấy để loại bỏ ẩm ở nhiệt độ 110°C. Bước tiếp theo, lấy mẫu carbon đã được sấy khô đem đi chức hoá bề mặt bằng dung dịch HNO_3 6M ở 70°C trong lò vi sóng Sharp R-205VN(S), công suất sử dụng 180W. Sau thời gian 2 giờ, mẫu được lấy ra, đem lọc rửa sạch đến trung hoà. Sau đó mẫu được sấy khô qua đêm ở nhiệt độ 110°C (Bui et al., 2018).

2.3. Tổng hợp hydrogel PVA/CS/AC

Chitosan được ngâm vào dung dịch acid acetic 1% qua đêm ở nhiệt độ phòng và sau đó được khuấy trên bếp từ gia nhiệt để được dung dịch đồng nhất. Đồng thời, PVA cũng được cho vào nước cất, khuấy và gia nhiệt ở 80°C cho đến khi PVA tan hết để được dung dịch đồng nhất. Sau đó cho carbon vào dung dịch PVA, tiếp tục khuấy để carbon phân tán đều vào dung dịch. Hạ nhiệt độ dung dịch xuống mức dưới 60°C, cho dung dịch chitosan vào và khuấy đều dung dịch. Kế tiếp cho chất đóng rắn chitosan vào và tiếp tục khuấy để glyoxal đồng nhất với hỗn hợp. Sau đó tiến hành đổ khuôn và đóng rắn mẫu ở nhiệt độ 80°C.

2.4. Phương pháp phân tích và đánh giá tính chất

2.4.1. Quang phổ hồng ngoại biến đổi Fourier (FTIR)

Phương pháp quang phổ hồng ngoại FTIR được sử dụng để định tính nhóm chức đặc trưng của các phân tử polymer chitosan, PVA và các nhóm chức phân cực trên bề mặt carbon biến tính trong các mẫu chitosan, PVA/CS, PVA/CS/AC. Thiết bị được sử dụng là Frontier FTIR/NIR tại Viện khoa học vật liệu thành phố Hồ Chí Minh, Việt Nam. Quét trong phạm vi 4000 – 450 cm⁻¹ với bước quét là 0.2 mm/s.

2.4.2. Nhiễu xạ tia X (XRD)

Cấu trúc của các mẫu PVA, PVA/CS, PVA/CS/AC được phân tích bằng phương pháp nhiễu xạ tia X (XRD) với thiết bị EMPYREAN, góc nhiễu xạ từ 5 – 80°, bước quét là 0.026 mm/s.

2.4.3. Khảo sát độ trương nước

Hydrogel sau khi tổng hợp được cắt thành mẫu có kích thước 1x1 cm và khối lượng W_e . Sau đó mẫu được ngâm trong nước cất ở nhiệt độ phòng. Sau thời gian Δt , mẫu được lấy ra và lau sạch bề mặt bằng vải khô rồi cân lại khối lượng mẫu W_s (ASTM D570-98). Công thức tính tỷ lệ trương nước được tính như sau (Song et al., 2020):

$$SR = \frac{W_s - W_e}{W_e} \times 100\% \quad (1)$$

2.4.4. Khả năng hấp phụ ion Cu (II)

Thí nghiệm khảo sát độ hấp phụ ion Cu (II) được tiến hành bằng cách ngâm mẫu hydrogel trong dung dịch CuSO₄ ở nhiệt độ phòng trong 24h với nồng độ ion Cu(II) thay đổi trong khoảng 60 – 220 mg/L. Sau quá trình hấp phụ, nồng độ ion Cu(II) trong dung dịch được xác định với sự hỗ trợ của máy quang phổ UV-vis (UV/UV-NIR Horiba Dual-FL). Lượng hấp

phụ được tính dựa vào công thức như sau (Peng et al., 2019):

$$q = \frac{(C_0 - C) \cdot V}{m} \quad (2)$$

Trong đó, C_0 và C (mg/L) lần lượt là nồng độ ban đầu và nồng độ cân bằng của ion Cu(II) trong dung dịch ngâm mẫu. V (L) là thể tích của dung dịch CuSO₄ và m (g) là khối lượng của hydrogel làm chất hấp phụ.

Đánh giá khả năng hấp phụ ion Cu(II) của hydrogel với các nồng độ dung dịch ban đầu khác nhau được khảo sát với mô hình đẳng nhiệt Langmuir (3) và Freundlich (4) (Yan et al., 2019).

$$\frac{C}{q} = \frac{C}{q_\infty} + \frac{1}{bq_\infty} \quad (3)$$

$$\ln q = \frac{1}{n} \ln C + \ln K \quad (4)$$

Trong đó q_∞ (mg/g) là dung lượng hấp phụ cực đại và b (L/mg) là hằng số Langmuir liên quan đến năng lượng hấp phụ. K (mg/g) là hằng số Freundlich liên quan đến khả năng hấp phụ của vật liệu và $1/n$ là hệ số Freundlich.

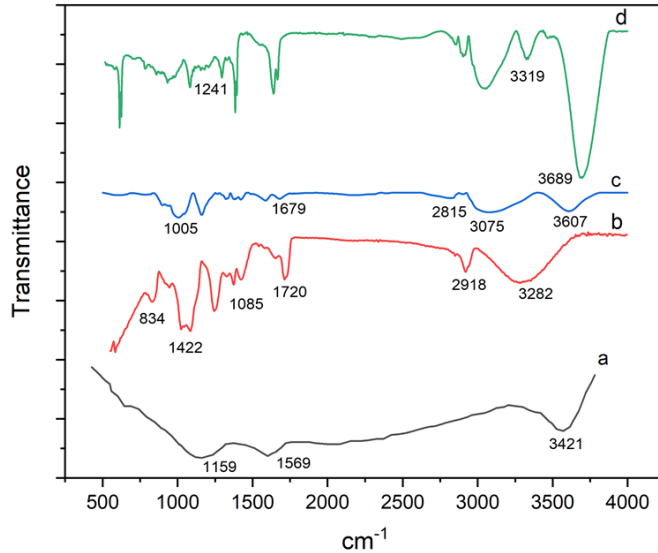
3. KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN

3.1. Đánh giá nhóm chức đặc trưng của mẫu

Theo Hình 1a, phổ hồng ngoại của carbon biến tính thể hiện các đỉnh hấp thụ đặc trưng cho các nhóm chức phân cực gắn trên bề mặt carbon. Đỉnh 3421 cm⁻¹ tương ứng với nhóm chức -OH, đỉnh 1569 cm⁻¹ tương ứng với nhóm chức C=O và đỉnh 1159 cm⁻¹ tương ứng cho nhóm C-O (Bui et al., 2018). Theo Hình 1b, phổ PVA với các đỉnh 3282, 2918, 1720, 1085, 1422, 834 cm⁻¹ lần lượt đặc trưng cho các nhóm -OH, -CH₂, C=O, C-O, C-H, C-C trên phân tử PVA (Zhang et al., 2009). Theo Hình 1c, phổ hồng ngoại của mẫu chitosan có đỉnh hấp thụ tại 3607 cm⁻¹ đặc trưng cho nhóm -OH, đỉnh hấp thụ tại 3075 cm⁻¹ đặc trưng cho sự uốn cong -NH₂ (amide II), đỉnh hấp thụ 2815 cm⁻¹ đặc trưng cho nhóm -CH₂ dao động kéo dãn do vòng pyranose gây ra, đỉnh hấp thụ 1679 cm⁻¹ và 1005 cm⁻¹ lần lượt đặc trưng cho nhóm C=O kéo dài (amides) và liên kết C-H trong phân tử chitosan (Yang et al., 2005; Krishnaveni & Ragunathan, 2015). Khi so sánh phổ FTIR của mẫu chitosan (Hình 1c) với phổ FTIR của PVA/CS/AC (Hình 1d) thấy rằng khi thêm chitosan vào PVA thì các peak ở vị trí 3689 cm⁻¹ của nhóm chức -OH trong PVA và chitosan được tăng cường rõ trên màng PVA/CS/AC (Zhang et al., 2009; Choo et al., 2016). Có thể giải thích điều này là do sự tương tác giữa các nhóm -OH với nhau và nhóm -OH với NH₂ làm peak bị dịch chuyển sang 3689 cm⁻¹

¹ trong khi peak -OH ở PVA là 3282 cm^{-1} và ở chitosan là 3607 cm^{-1} . Vị trí 3319 cm^{-1} của nhóm -NH₂ trong mẫu PVA/CS/AC có sự dịch chuyển so với peak 3075 cm^{-1} của mẫu chitosan nguyên chất ban đầu (Nowruzzi et al., 2020). Điều này chứng tỏ

có sự liên kết giữa các nhóm chức của chitosan với PVA và glyoxal với nhau. Ngoài ra, có sự gia tăng cường độ tại đỉnh 1241 cm^{-1} biểu diễn cho các liên kết chéo C-O-C, hình thành bởi phản ứng đóng rắn của glyoxal (Yang et al., 2005).

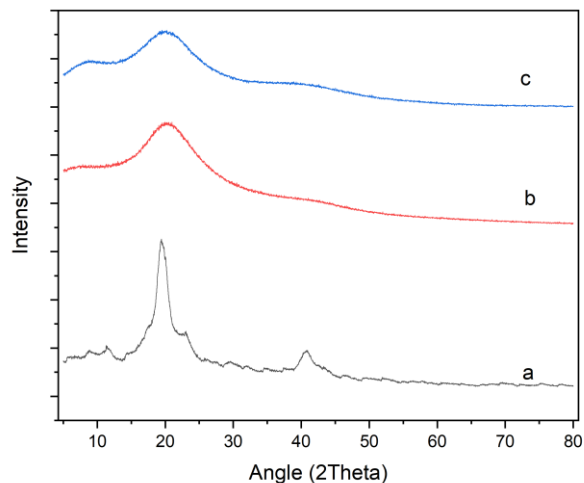


Hình 1. Phổ hồng ngoại FTIR của AC (a), PVA (b), CS (c) và PVA/CS/AC (d)

3.2. XRD

Trên giản đồ XRD của mẫu PVA nguyên chất (Hình 2a), thấy xuất hiện 2 peak nhiễu xạ đặc trưng nằm trong vùng khoảng 19-20° và 40-41° (Abdeen et al., 2015). Các peak này đặc trưng cho bản chất bán tinh thể của màng PVA, cấu trúc này là do các liên kết giữa các phân tử và liên kết hydro nội phân tử.

Sau khi tổng hợp, ảnh XRD của PVA/CS và PVA/CS/AC (Hình 2b, 2c) vẫn thể hiện các đỉnh tinh thể đặc trưng, tuy nhiên cường độ đỉnh có phần bị yếu đi. Thể hiện qua việc các peak tù hơn và ít sắc nét hơn. Điều này chỉ ra rằng các nhóm amino và hydroxyl trong chitosan tạo phức với hydroxyl của PVA dẫn đến cấu trúc vô định hình của phức hợp polymer.

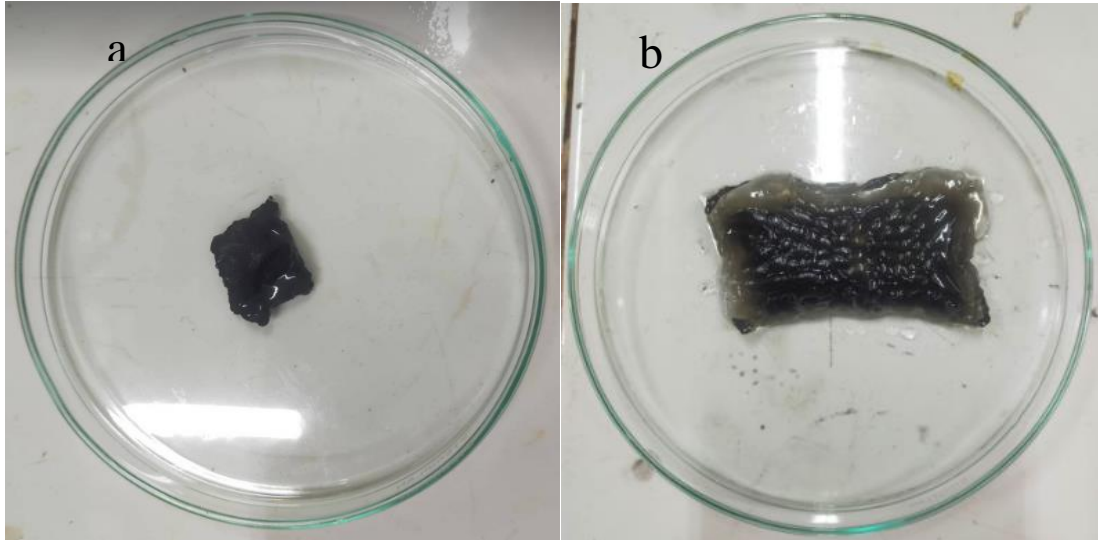


Hình 2. Giản đồ nhiễu xạ tia X của các mẫu PVA (a), PVA/CS (b), PVA/CS/AC (c)

3.3. Khảo sát tỷ lệ trương nước của mẫu

Trong thử nghiệm trương nước này, mẫu hydrogel thử trương là các mẫu được tổng hợp lần lượt với khối lượng carbon biến tính cho vào lần lượt là 2% (M2), 5% (M5), 10% (M10) so với khối lượng

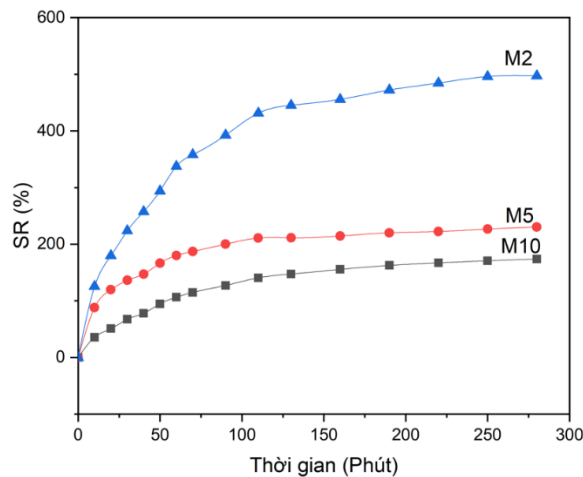
PVA trong mẫu. Sau khi trương nước, mẫu tăng khối lượng đáng kể, và mẫu sau trương có màu nhạt hơn so với mẫu ban đầu. Có thể quan sát sự thay đổi hình dạng và màu sắc của mẫu M2 trước và sau khi trương ở Hình 3.



Hình 3. Mẫu hydrogel M2 trước (a) và sau (b) khi ngâm trương nước 24 giờ

Sự thay đổi tỷ lệ trương nước của các mẫu khác nhau được thể hiện trong Hình 3. Trong khi mẫu M2 có tỷ lệ trương nước lớn nhất, khoảng 497.1%, mẫu M5 và mẫu M10 có tỷ lệ trương nước thấp hơn, tương ứng khoảng 230% và 174%. Điều này cho thấy sự sụt giảm tỷ lệ trương nước có liên quan đến

việc tăng lượng carbon. Lượng carbon tăng dẫn đến tỷ lệ trương nước giảm. Điều này có thể giải thích rằng do hạt carbon đã phân tán vào trong lỗ xốp có trong hydrogel, làm cản trở sự khuếch tán của các phân tử nước vào mạng hydrogel khiến cho khả năng trương nở thể tích của hydrogel giảm.



Hình 4. Tỷ lệ trương nước của các mẫu hydrogel có hàm lượng carbon khác nhau

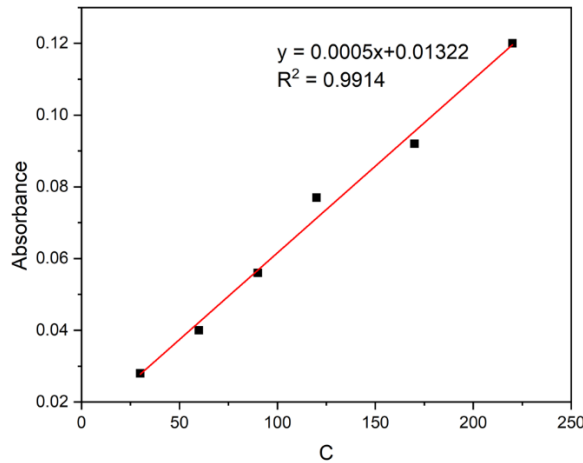
3.4. Khảo sát khả năng hấp phụ ion Cu(II)

Mẫu sử dụng để khảo sát là mẫu M2. Tiến hành ngâm mẫu vào dung dịch CuSO₄ ở 5 nồng độ ion Cu

(II) khác nhau 60 mg/L , 90 mg/L, 120 mg/L, 170 mg/L, 220 mg/L. Dung dịch sau khi ngâm được đo UV-vis để xác định độ hấp thụ ở bước sóng 635 nm. Nồng độ của dung dịch được xác định dựa trên mối

quan hệ giữa độ hấp thụ và nồng độ theo đường chuẩn (Hình 5). Độ hấp phụ ion Cu (II) của hydrogel được xác định theo công thức (2). Mô hình đẳng

nhật Langmuir and Freundlich được sử dụng để khảo sát quá trình hấp phụ ion Cu (II) của hydrogel.



Hình 5. Đường chuẩn thể hiện mối quan hệ giữa nồng độ và độ hấp thụ quang của dung dịch CuSO₄ tại bước sóng 635 nm

Bảng 1. Độ hấp phụ Cu²⁺ của hydrogel PVA/Chitosan/Carbon

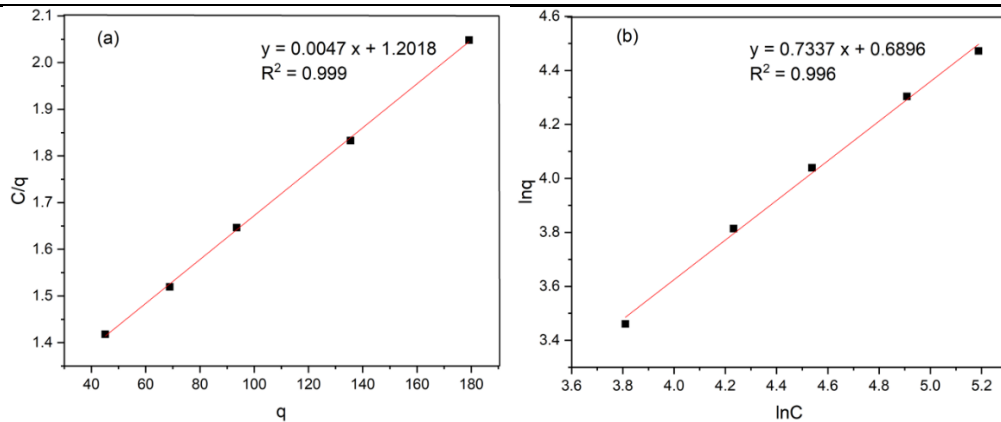
Nồng độ Cu ²⁺ ban đầu C ₀ (mg/L)	Nồng độ Cu ²⁺ sau khi bị hấp phụ C (mg/L)	Độ hấp phụ q (mg/g)
60	45.2	31.8
90	68.8	45.3
120	93.5	56.8
170	135.5	73.9
220	179.2	87.5

Bảng 1 cho thấy lượng ion Cu (II) được hấp phụ vào hydrogel tăng theo nồng độ ban đầu của ion Cu (II). Độ hấp phụ tăng từ 31.8 mg/g đến 87.5 mg/g

khi nồng độ ban đầu của ion Cu (II) tăng từ 60 mg/g đến 220 mg/g.

Bảng 2. Các hệ số của phương trình đẳng nhiệt Langmuir và Freundlich

Langmuir			Freundlich		
q _∞ (mg/g)	b (l/mg)	R ²	1/n	K	R ²
212.766	0.003911	0.999	0.7337	1.9929	0.996



Hình 6. Phương trình đẳng nhiệt Langmuir (a) và Freundlich (b)

Phương trình hấp thụ đẳng nhiệt Freundlich cho quá trình hấp thụ Cu^{2+} của hydrogel là: $y = 0.7337 x + 0.6896$, có hệ số tương quan lớn $R^2 = 0.996$ (Hình 6b). Từ phương trình này tính được các hệ số đặc trưng của phương trình Freundlich: $1/n = 0.7337$ và $K = 1.9929$ (Bảng 2). Khi xét mô hình đẳng nhiệt Langmuir, hệ số tương quan $R^2 = 0.999$ gần với 1 (Hình 6a), chứng tỏ số liệu thực nghiệm khớp với mô hình Langmuir. Điều này thể hiện rằng ion Cu (II) đã hấp phụ đơn lớp lên bề mặt của hydrogel (Amin, 2009). Qua phương trình đẳng nhiệt Langmuir, độ hấp phụ ion Cu(II) tối đa cũng xác định được với giá trị là 212.766 mg/g (bảng 2). Kết quả này khá nổi bật khi so sánh với các nghiên cứu trước đó về hấp phụ ion Cu(II). Hấp phụ bằng carbon hoạt tính thì độ hấp phụ ion Cu(II) tối đa khoảng 104 mg/g (Demiral & Güngör, 2016; Huang et al., 2019), hấp phụ bằng amiang trắng thì độ hấp phụ tối đa khoảng 90 mg/g (Liu et al., 2013), và hấp phụ bằng hydrogel PVA-chitosan thì độ hấp phụ tối đa khoảng 65 mg/g (Song et al., 2020).

TÀI LIỆU THAM KHẢO

- Abdeen, Z., Mohammad, S.G., & Mahmoud, M.S. (2015). Adsorption of Mn (II) ion on polyvinyl alcohol/chitosan dry blending from aqueous solution. *Environmental Nanotechnology, Monitoring & Management*, 3, 1-9.
- Adebayo, G. B., Adebayo, H. I., & Fauzeeyat, S. (2020). Adsorption of Cr(VI) ions onto goethite, activated carbon and their composite: kinetic and thermodynamic studies, *Applied Water Science*, 10, 213.
- Al-Othman, Z.A., Ali, R., & Naushad, M. (2012). Hexavalent chromium removal from aqueous medium by activated carbon prepared from peanut shell: adsorption kinetics, equilibrium and thermodynamic studies, *Chemical Engineering Journal*, 184, 238-247.
- Amin, N. K. (2009). Removal of Direct Blue-106 Dye from Aqueous Solution Using New Activated Carbons Developed from Pomegranate Peel: Adsorption Equilibrium and Kinetics. *Journal of Hazardous Materials*, 165(1), 52-62.
- ASTM International. (2018). Standard Test Method for Water Absorption of Plastics (ASTM D570-98). DOI: 10.1520/D0570-98R18.
- Bayat, M., Javanbakht V., & Esmaili J. (2018). Synthesis of zeolite/nickel ferrite/sodium alginate bionanocomposite via a co-precipitation technique for efficient removal of water-soluble methylene blue dye, *International journal of biological macromolecules* 116, 607-619.
- Bui, T. T. N., Doan, T. K. B., La T. H., Nguyen, N. T., Hoang, X. T., & Nguyen, T. M. A. (2018). Modification of Ketjenblack EC-600JD carbon as filler in cathode material for lithium-ion battery. *Vietnam Journal Chemistry*, 56(6E2), 262-266.
- Cavaco S. A., Fernandes, S., Quina, M. M., & Ferreira, M. L. (2007). Removal of chromium from electroplating industry effluents by ion exchange resins, *Journal of Hazardous Materials*, 144, 634-638.
- Chedly, J., Soares, S., Montebault, A., Boxberg, V.Y., Ravaille, V. M. Veron, Mouffle, C., Benassy, M. N., Taxi, J., David, L., & Nothiaset, F. (2017). Physical chitosan micro hydrogels as scaffolds for spinal cord injury restoration and axon regeneration. *Biomaterials*, 138, 91-107.
- Choo, K. W., Ching, Y. C., Chuah, C. H., Sabariah, J., & Liou, N. S. (2016). Preparation and characterization of polyvinyl alcohol-chitosan composite films reinforced with cellulose nanofiber. *Materials*, 9, 644.
- Demiral, H., & Güngör, C. (2016). Adsorption of copper(II) from aqueous solutions on activated carbon prepared from grape bagasse, *Journal of Cleaner Production*, 124, 103 – 113.
- Gorzin, F., & Bahri, R. M. (2018). Adsorption of Cr(VI) from aqueous solution by adsorbent

4. KẾT LUẬN

Trong nghiên cứu này, màng hydrogel PVA/CS/AC với chất đóng rắn là glyoxal đã được tổng hợp thành công. Khả năng trương nước của hydrogel đã được khảo sát, kết quả cho thấy mẫu M2 với hàm lượng 2% carbon có khả năng trương nước tốt nhất trong những mẫu được khảo sát, tỷ lệ trương nước lên đến 497.1%. Trong thí nghiệm hấp phụ ion Cu (II), mô hình đẳng nhiệt Langmuir và Freundlich đã được sử dụng để đánh giá khả năng hấp phụ ion đồng. Độ hấp phụ ion Cu (II) của hydrogel đạt giá trị tối đa là 212.766 mg/g. Dựa vào kết quả này có thể kết luận rằng hydrogel trên cơ sở PVA/CS/AC có khả năng hấp phụ ion đồng từ nước với độ hấp phụ cao. Do đó, chất hấp phụ này có tính ứng dụng cao và dự kiến sẽ được tiến hành khảo sát trực tiếp với mẫu nước thải của nhà máy.

LỜI CẢM ƠN

Chúng tôi xin cảm ơn Khoa Công nghệ Vật liệu, Trường Đại học Bách Khoa, Đại học Quốc gia Thành phố Hồ Chí Minh đã hỗ trợ cho nghiên cứu này.

- prepared from paper mill sludge: Kinetics and thermodynamics studies, *Adsorption Science & Technology*, 36(1-2), 149-169.
- Gorzin, F., & Ghoreyshi, A. A. (2013). Synthesis of a new low-cost activated carbon from activated sludge for the removal of Cr (VI) from aqueous solution: Equilibrium, kinetics, thermodynamics and desorption studies, *Korean Journal of Chemical Engineering*, 30(8), 1594 – 1602.
- Huang, M., Wang, C. & Liu, S. (2019). Adsorption of Cu and Ni Ions from Aqueous Solutions by Commercial Activated Carbon and the Reutilization in Glass Coloration. *Journal of Wuhan University of Technology-Mater. Sci. Ed*, 34, 41–46.
- Kenawy, E. R., Elbadawy, A. K., Mohamed, S. M. E., & Mahmoud, A. E. M. (2014). Physically crosslinked poly(vinyl alcohol)- hydroxyethyl starch blend hydrogel membranes: Synthesis and characterization for biomedical applications. *Arabian Journal of Chemistry*, 7, 372 – 380.
- Krishnaveni, B. & Rangunathan, R. (2015). Extraction and Characterization of Chitin and Chitosan from *F. solani* CBNR BKRR, Synthesis of their Bionanocomposites and Study of their Productive Application, *Journal of Pharmaceutical Sciences and Research*, 7(4), 197-205.
- Lakshminathiraj, P., Raju, B. G., Basariya, R. M., Parvathy, S., & Prabhakar, S. (2008). Removal of Cr (VI) by electrochemical reduction, *Separation and Purification Technology*, 60(1), 96-102.
- Li, L., Wang, Z., Ma, P., Bai, H., Dong, W., & Chen, M. (2015). Preparation of polyvinyl alcohol/chitosan hydrogel compounded with graphene oxide to enhance the adsorption properties for Cu (II) in aqueous solution. *Journal of Polymer Research*, 22, 150-160.
- Liu, K., Zhu, B., Feng, Q., Wang, Q., Duan, T., Ou, L., Zhang, G., Lu, Y. (2013). Adsorption of Cu(II) ions from aqueous solutions on modified chrysotile: Thermodynamic and kinetic studies. *Applied Clay Science*, 80-81, 38–45.
- Muñoz-Senmache, C. J., Kim, S., Arrieta-Perez, R. R., Park, M. C., Yeomin Yoon, Y., & Hernandez-Maldonado, J. A. (2020). Activated Carbon–Metal Organic Framework Composite for the Adsorption of Contaminants of Emerging Concern from Water, *ACS Applied Nano Materials*, 3(3), 2928-2940.
- Muslim, A., Ellysa, & Said, D. S. (2017). Cu(II) Ion Adsorption Using Activated Carbon Prepared from *Pithecellobium Jiringa* (Jengkol) Shells with Ultrasonic Assistance: Isotherm, Kinetic and Thermodynamic Studies, *Journal of Engineering Technology*, 49(4), 472-490.
- Nowruzi, R., Heydari, M., & Javanbakht, V. (2020). Synthesis of a chitosan/polyvinyl alcohol/activate carbon biocomposite for removal of hexavalent chromium from aqueous solution, *International Journal of Biological Macromolecules*, 147, 209-216.
- Peng, Q. L., Zhou, Y., Lu, W., Zhu, W., Li, Y., Chen, K., Zhang, G., Xu, J., & Deng, Z. (2019). Characterization of a novel polyvinyl alcohol/chitosan porous hydrogel combined with bone marrow mesenchymal stem cells and its application in articular cartilage repair. *BMC Musculoskeletal Disord*, 2019, 20(1), 257-265.
- Punzi, M., Nilsson, F., Anbalagan, A., Svensson, B., Jonsson, K., Mattiasson, B., Jonstrup, M. (2015). Combined anaerobic-ozonation process for treatment of textile wastewater: removal of acute toxicity and mutagenicity. *Journal of Hazardous Materials*, 292, 52–60.
- Song, Q., Gao, J., Lin, Y., Zhang, Z., & Xiang, Y. (2020). Synthesis of cross-linking chitosan-PVA composite hydrogel and adsorption of Cu (II) ions. *Water Science & Technology*, 81, 1063–1070.
- Vineeth, S. K., Gadhav, R. V., & Gadekar, P. T. (2020). Glyoxal Cross-Linked Polyvinyl Alcohol Microcrystalline Cellulose Blend as a Wood Adhesive with Enhanced Mechanical, Thermal and Performance Properties, *Materials International*, 2(3), 0277-0285.
- Yan, E., Cao, M., Jiang, J., Gao, J., Jiang, C., Ba, X., Yang, X., & Zhang, D. (2019). A novel adsorbent based on magnetic Fe₃O₄ contained polyvinyl alcohol/chitosan composite nanofibers for chromium (VI) removal. *Solid State Sciences*, 72, 94-102.
- Yang, Q., Dou, F., Liang, B., & Shen, Q. (2005). Studies of cross-linking reaction on chitosan fiber with glyoxal. *Carbohydrate Polymers*, 59, 205–210.
- Zhang, Y., Zhu, C. P., & Edgren, D. (2009). Crosslinking Reaction Of Poly(Vinyl Alcohol) With Glyoxal. *Journal of Polymer Research. Journal of polymer research*, 17, 725–730.
- Zhou, J., Wang, Y., Wang, J., Qiao, W., Long, D., & Ling, L. (2016). Effective removal of hexavalent chromium from aqueous solutions by adsorption on mesoporous carbon microspheres, *Journal of colloid and interface science*, 462, 200-207.