

Tổng hợp trực tiếp cacbon mao quản từ tính từ xơ dừa và ứng dụng trong xúc tác phân hủy p-nitrophenol bằng H₂O₂

Nguyễn Minh Hùng^{1,2}, Đỗ Ngọc Hân^{1,2}, Đỗ Ngọc Hằng^{1,2}, Bùi Lê Nam Quang^{1,2}, Lâm Hoa Hùng^{1,2}, Trần Thụy Tuyết Mai^{1,2}, Nguyễn Quang Long^{1,2}, Nguyễn Văn Dũng^{1,2,*}



Use your smartphone to scan this QR code and download this article

TÓM TẮT

Xơ dừa là một nguồn phụ phẩm nông nghiệp dồi dào, sẵn có và ít giá trị sử dụng. Trong nghiên cứu này, xơ dừa đã được sử dụng để tổng hợp vật liệu cacbon mao quản từ tính (MPC) thông qua phương pháp nhiệt phân trực tiếp với sự bổ sung của tiền chất của sắt. Các tính chất của vật liệu tạo thành được xác định bằng các phương pháp hiện đại gồm nhiễu xạ tia X (XRD), ảnh kính hiển vi điện tử quét (SEM), hấp phụ giải hấp nitơ, từ kế mẫu rung (VSM). Các kết quả phân tích cho thấy các hạt Fe₃O₄ và Fe⁰ từ tính đã được hình thành và phân bố trên nền cacbon với độ từ hóa bão hòa đạt 5,3 emu.g⁻¹. Các quá trình than hóa, hoạt hóa và từ hóa đã diễn ra đồng thời trong suốt thời gian nhiệt phân giúp gia tăng đáng kể diện tích bề mặt riêng của MPC từ 18 m²/g lên đến 495 m²/g. Tiếp theo đó, hoạt tính xúc tác của MPC đã được đánh giá thông qua quá trình oxi hóa p-nitrophenol bằng H₂O₂. Tại nồng độ H₂O₂ 540 ppm và MPC 0,20 g/L, 99,9% p-nitrophenol (100 ppm) đã mất màu nhanh chóng sau 90 phút xử lý. Hơn nữa, MPC có thể được tách ra khỏi hỗn hợp sau xử lý bằng từ trường của một thanh nam châm dễ dàng. Như vậy, các kết quả nghiên cứu đã cho thấy cacbon mao quản từ tính được tổng hợp từ xơ dừa bằng phương pháp nhiệt phân một bước hứa hẹn là một vật liệu đa chức năng bởi khả năng thu hồi bằng từ trường và hoạt tính xúc tác tốt trong xử lý p-nitrophenol.

Từ khoá: xơ dừa, nhiệt phân một bước, cacbon mao quản từ tính, oxi hóa xúc tác, p-nitrophenol

¹Khoa Kỹ thuật Hóa học, Trường Đại học Bách Khoa TP.HCM, Việt Nam

²Đại học Quốc gia Thành phố Hồ Chí Minh, Việt Nam

Liên hệ

Nguyễn Văn Dũng, Khoa Kỹ thuật Hóa học, Trường Đại học Bách Khoa TP.HCM, Việt Nam

Đại học Quốc gia Thành phố Hồ Chí Minh, Việt Nam

Email: nvdung@hcmut.edu.vn

Lịch sử

- Ngày nhận: 18-4-2022
- Ngày chấp nhận: 18-10-2022
- Ngày đăng: 15-02-2023

DOI:

<https://doi.org/10.32508/stdjet.v5iS11.988>



Bản quyền

© ĐHQG TP.HCM. Đây là bài báo công bố mở được phát hành theo các điều khoản của the Creative Commons Attribution 4.0 International license.



GIỚI THIỆU CHUNG

Dừa (*Cocos nucifera*) là thực vật một lá mầm thuộc họ cây cọ, sống phổ biến ở các vùng nhiệt đới, dọc bờ biển và các đảo trên 90 quốc gia thuộc 7 châu lục với hơn 11 triệu ha, tập trung nhiều nhất ở khu vực châu Á – Thái Bình Dương^{1,2}. Việt Nam có diện tích dừa đạt 170.000 ha, cung cấp sản lượng trái hơn 1,5 triệu tấn, đứng thứ 6 trên thế giới³. Bên cạnh đó, quá trình sản xuất các sản phẩm từ trái dừa cũng thải ra một lượng vỏ cùng lớp phụ phẩm xơ dừa, chiếm 80 – 85 wt% trái dừa^{4,5}. Đây được xem là một nguồn phụ phẩm nông nghiệp dồi dào, dễ thu gom tại Bến Tre và các tỉnh trồng dừa khác. Hiện nay, xơ dừa chủ yếu được tận dụng để đốt, gây phát thải CO₂ là nguyên nhân hàng đầu gây nên hiệu ứng nhà kính và axit hoá đại dương⁶. Xơ dừa cũng có thể được dùng để giá thể trồng cây, chỉ xơ dừa. Tuy nhiên, nhu cầu thị trường cho các sản phẩm này là khá khiêm tốn so với nguồn phụ phẩm dồi dào đang có.

Than hóa xơ dừa để thu được các vật liệu cacbon xốp (porous carbon – PC) là một lựa chọn thích hợp để tận dụng và nâng cao giá trị của nguồn phụ phẩm này^{5,7}. Các vật liệu cacbon xốp có diện tích bề mặt riêng lớn, thể tích mao quản cao, bề mặt chứa nhiều

nhóm chức, bộ khung cacbon bền cơ, bền nhiệt, bền hóa, ổn định trong khoảng pH rộng^{8–10}, có thể ứng dụng cho nhiều mục đích khác nhau^{8,11}. Tuy nhiên, việc phân riêng PC sau khi sử dụng đòi hỏi quá trình lọc phức tạp. Với sự phát triển của khoa học, thu hồi bằng từ trường là một cách tiếp cận mới. Các hạt từ tính có thể được phân tán lên trên nền cacbon, tạo thành vật liệu cacbon mao quản từ tính – magnetic porous carbon (MPC)^{12,13}.

Phương pháp truyền thống để tổng hợp MPC đòi hỏi hai giai đoạn: than hóa sinh khối tạo PC và phân tán các hạt từ tính lên nền PC. Phương pháp này tuy có thể thực hiện được nhưng phức tạp, tốn thời gian và năng lượng. Thêm nữa, các hạt từ tính có thể che lấp các mao quản cacbon, làm giảm khả năng ứng dụng của vật liệu¹⁴. Để khắc phục những nhược điểm này, phương pháp nhiệt phân một bước (one-pot) tổng hợp trực tiếp MPC từ hỗn hợp sinh khối và tiền chất từ tính đã được đề xuất gần đây^{13,15–18}. Các báo cáo cho thấy phương pháp mới này không chỉ tiện lợi mà còn giúp phân tán các hạt từ tính tốt hơn và hoạt hóa cải thiện đáng kể hệ thống mao quản của MPC^{15,19}. Trong các hạt từ tính, sắt oxit và sắt kim loại được quan tâm nghiên cứu nhiều nhất vì những ưu điểm

Trích dẫn bài báo này: Hùng N M, Hân D N, Hằng D N, Quang B L N, Hùng L H, Mai T T T, Long N Q, Dũng N V. Tổng hợp trực tiếp cacbon mao quản từ tính từ xơ dừa và ứng dụng trong xúc tác phân hủy p-nitrophenol bằng H₂O₂. *Sci. Tech. Dev. J. - Eng. Tech.*; 5(S11):120-127.

như từ tính mạnh, dễ tổng hợp, nguyên liệu rẻ tiền^{20,21}. Bên cạnh đó, một số báo cáo cũng chỉ ra rằng các hạt từ tính trên nền tảng của sắt có hoạt tính xúc tác tốt cho các quá trình oxy hóa nâng cao các chất hữu cơ độc hại trong môi trường nước^{15,22}.

p-Nitrophenol (PNP) là một hóa chất tổng hợp, được sử dụng chủ yếu trong sản xuất các loại thuốc bảo vệ thực vật, sơn, chất dẻo. Sự hiện diện của PNP và các chất tương tự trong môi trường đã trở thành mối quan tâm lớn trong những năm gần đây vì số lượng ngày càng tăng, tính chất độc hại và tác dụng phụ trên các vùng bị ảnh hưởng^{23,24}. Theo cơ quan bảo vệ môi trường Hoa Kỳ, PNP được xếp vào nhóm chất gây ô nhiễm ưu tiên vì tác hại tiềm tàng của nó đối với thủy sinh, thực vật và con người ngay cả ở nồng độ thấp. Do đó, PNP cần được xử lý trước khi thải ra môi trường^{16,25}. Trong nghiên cứu này, PNP được lựa chọn làm đối tượng để đánh giá hoạt tính xúc tác oxy hóa của các hạt từ tính trên MPC.

THỰC NGHIỆM VÀ PHƯƠNG PHÁP NGHIÊN CỨU

Nguyên liệu và hoá chất

Xơ dừa được lấy từ xã Mỹ Nhơn, huyện Ba Tri, tỉnh Bến Tre. Nguyên liệu được rửa sạch với nước cất và sấy khô 105 °C trong 18 giờ trước khi nghiền thành bột với kích thước trong khoảng 0,25 mm – 0,50 mm. Các hoá chất được sử dụng trực tiếp mà không qua bất kỳ quá trình tinh chế nào khác.

Tổng hợp cacbon mao quản từ tính

Xơ dừa được tẩm với tiền chất sắt FeCl₃, khuấy liên tục trong 15 giờ ở nhiệt độ phòng và sấy khô ở 105 °C trong 18 giờ. Sau đó, 2,00 g hỗn hợp được nung dưới dòng N₂ ở các nhiệt độ khác nhau. Các mẫu sản phẩm được kí hiệu là Fe_RMPC_T-t với R là tỷ lệ khối lượng FeCl₃/xơ dừa (R g/100 g), T là nhiệt độ nhiệt phân (T = 500 °C, 600 °C, 700 °C), t là thời gian nung (1 giờ, 2 giờ, 4 giờ).

Đặc trưng của cacbon mao quản từ tính

Nhiều xạ tia X (XRD) của các mẫu MPC được đo bằng thiết bị D8 Advance X-ray diffractometer (điện cực đồng λ = 1,5418 Å), góc quét 2θ = 5 – 70°. Ảnh SEM được chụp bằng máy FE-SEM S-4800. Từ tính của vật liệu được xác định bằng thiết bị từ kế mẫu rung (VSM). Hấp phụ và giải hấp nitơ được tiến hành tại 77 K bằng máy NOVA 2200e. Trước khi đo, các mẫu được hoạt hoá ở 300 °C trong 3 giờ. Diện tích bề mặt riêng được tính theo phương trình BET.

Xử lý p-nitrophenol bằng vật liệu cacbon từ tính mao quản

500 mL dung dịch p-nitrophenol với nồng độ 100 ppm được cho vào bình thủy tinh 600 mL có khuấy từ. Sau đó, 0,100 g MPC được thêm vào bình để khảo sát khả năng hấp phụ của vật liệu với PNP. Sau 10 phút hấp phụ, quá trình xúc tác được bắt đầu khi H₂O₂ được thêm vào hỗn hợp. Tại các thời điểm khác nhau, mẫu được lấy và lọc bỏ xúc tác. Mẫu sau đó được cho vào dung dịch chứa Na₂S₂O₃ và NaOH để loại bỏ H₂O₂ thừa. Nồng độ của PNP được phân tích bằng máy UV-Vis Spectronic Genesys 2 PC tại bước sóng 400 nm. Các thông số ảnh hưởng đến quá trình xử lý bao gồm nồng độ H₂O₂, điều kiện tổng hợp (tỷ lệ FeCl₃/xơ dừa, thời gian nhiệt phân, nhiệt độ nhiệt phân) được khảo sát.

KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN

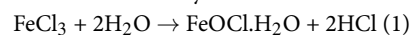
Hiệu suất tổng hợp cacbon mao quản từ tính

Hiệu suất tổng hợp MPC được trình bày trong Bảng 1. Hiệu suất được tính từ tỷ lệ khối lượng của MPC thu được và hỗn hợp trước khi nung. Khi nhiệt độ nhiệt phân được tăng từ 500 °C lên 700 °C, hiệu suất tổng hợp giảm từ 46% còn 33%. Tương tự, khi thời gian nhiệt phân được kéo dài từ 1 giờ lên 4 giờ, hiệu suất giảm từ 49% còn 38%. Các quá trình than hóa xơ dừa và hoạt hóa làm giảm khối lượng MPC có thể được thúc đẩy khi nhiệt độ được tăng hoặc thời gian được kéo dài. Ngược lại, khi tỷ lệ FeCl₃/xơ dừa tăng dần, hiệu suất tổng hợp tăng, có thể do sự hình thành các oxit sắt và sự mất đi cacbon do hoạt hóa.

Nhiều xạ tia X của cacbon mao quản từ tính

Hình 1 trình bày nhiều xạ tia X của các mẫu MPC được tổng hợp ở các nhiệt độ khác nhau. Đường nền bị nhiễu có thể do các pha vô định hình của vật liệu. Sự xuất hiện các peak ở 2θ = 30,2; 35,7; 43,1; 53,5; 57,0 và 62,8° thể hiện được các mặt (220), (311), (400), (422), (511) và (531) của mạng tinh thể Fe₃O₄¹⁷. Bên cạnh đó, một peak tại 2θ = 45,1° đặc trưng cho cấu trúc lập phương tâm khối của tinh thể Fe⁰²¹.

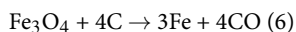
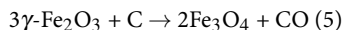
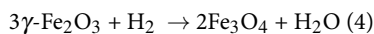
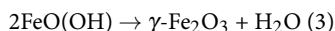
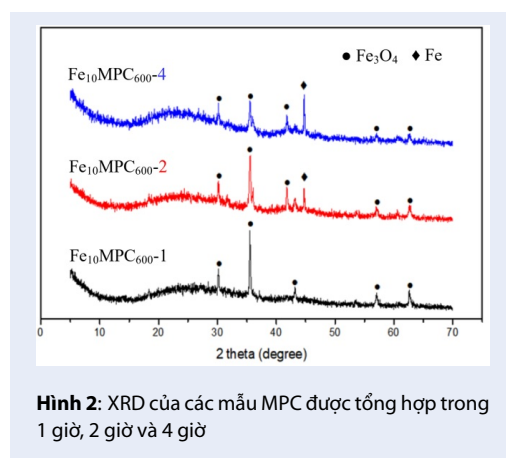
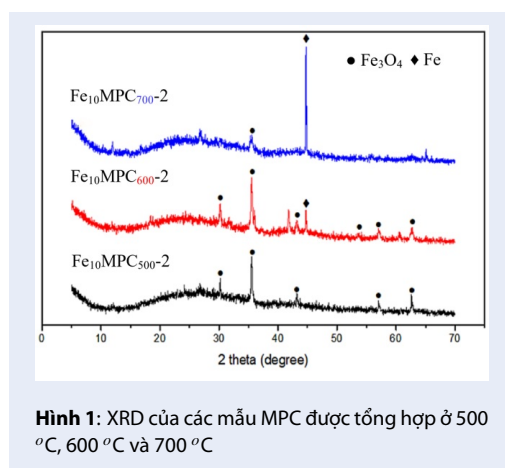
Khi nhiệt độ được tăng từ 500 °C đến 700 °C, cường độ các peak nhiễu xạ của Fe₃O₄ thấp đi, nhưng cường độ của peak đặc trưng cho Fe⁰ tăng dần. Điều đó cho thấy nhiệt độ nhiệt phân ảnh hưởng đáng kể đến sự hình thành các sản phẩm của sắt trên bề mặt vật liệu¹³. Theo tác giả Zhang và các cộng sự¹⁸, quá trình hình thành vật liệu dưới tiền chất FeCl₃ và nguyên liệu sinh khối có thể xảy ra như sau:



Bảng 1: Hiệu suất tổng hợp MPC

Yếu tố khảo sát		Ký hiệu mẫu	Hiệu suất (%)*
Nhiệt độ (°C)	500	Fe ₁₀ MPC ₅₀₀ -2	47
	600	Fe ₁₀ MPC ₆₀₀ -2	46
	700	Fe ₁₀ MPC ₇₀₀ -2	34
Thời gian (giờ)	1	Fe ₁₀ MPC ₆₀₀ -1	49
	2	Fe ₁₀ MPC ₆₀₀ -2	45
	4	Fe ₁₀ MPC ₆₀₀ -4	38
FeCl ₃ /xơ dừa (g/100 g)	10	Fe ₁₀ MPC ₆₀₀ -2	45
	15	Fe ₁₅ MPC ₆₀₀ -2	47
	20	Fe ₂₀ MPC ₆₀₀ -2	50
	40	Fe ₄₀ MPC ₆₀₀ -2	58

*Hiệu suất tổng hợp là tỉ lệ khối lượng của MPC thu được và hỗn hợp trước khi nung



Như vậy, nhiệt độ càng cao thì có thể càng làm tăng tốc độ phản ứng (6), khử Fe₃O₄ về Fe⁰.

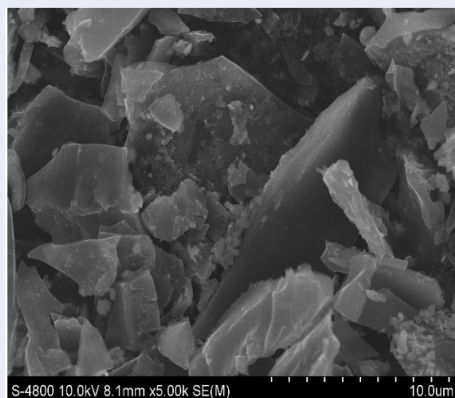
Ảnh hưởng của thời gian nhiệt phân đến sự hình thành cấu trúc của MPC được thể hiện ở Hình 2. Khi thời gian được tăng từ 1 giờ đến 4 giờ, cường độ các peak nhiễu xạ của Fe₃O₄ giảm nhưng cường độ peak của Fe⁰ tăng. Tương tự như nhiệt độ, thời gian nhiệt phân lâu hơn có thể dẫn đến lượng Fe₃O₄ bị khử về Fe⁰ bởi nền carbon càng nhiều. Khuynh hướng chuyển hóa cấu trúc tinh thể phù hợp với hiệu suất tổng hợp đã trình bày trước đó.

Các tính chất khác của carbon mao quản từ tính

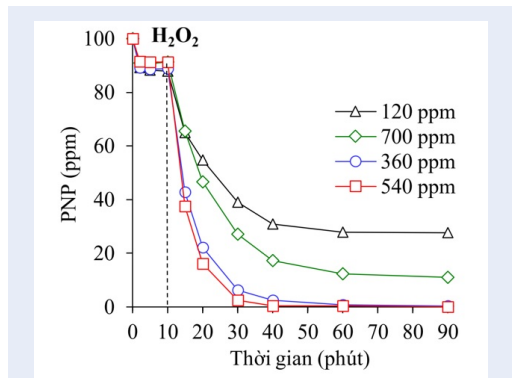
Bảng 2: Diện tích bề mặt riêng của các mẫu MPC

Mẫu	S _{BET} (m ² /g)
Fe ₁₀ MPC ₆₀₀ -2	18
Fe ₁₅ MPC ₆₀₀ -2	42
Fe ₂₀ MPC ₆₀₀ -2	405
Fe ₄₀ MPC ₆₀₀ -2	495

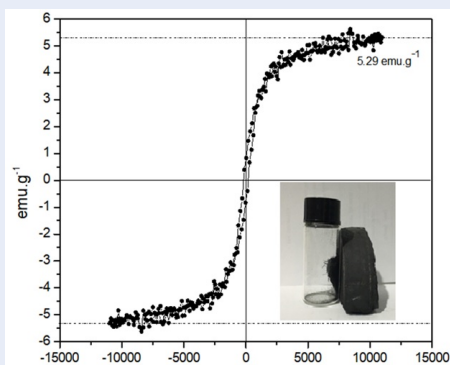
Bảng 2 cho thấy khi hàm lượng FeCl₃ tẩm lên xơ dừa tăng, MPC được hoạt hóa nhiều hơn, dẫn đến sự hình thành các mao quản trong vật liệu, làm tăng diện tích bề mặt riêng. Như vậy, quá trình tổng hợp MPC có thể gom thành ba nhóm phản ứng chính diễn ra đồng thời: than hóa tạo carbon, từ hóa tạo các hạt từ tính và hoạt hóa mở rộng hệ thống mao quản.



Hình 3: Ảnh SEM của Fe₁₀MPC₆₀₀₋₂



Hình 5: Ảnh hưởng của nồng độ H₂O₂ đến khả năng mất màu PNP bằng xúc tác MPC



Hình 4: Đường cong từ hoá của Fe₁₀MPC₆₀₀₋₂

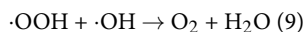
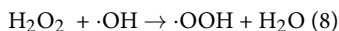
Ảnh SEM ở Hình 3 cho thấy bột mịn MPC thu được là các mảnh không đồng nhất. Quá trình nghiền, than hóa cùng hoạt hóa trong quá trình tổng hợp có thể là nguyên nhân phân mảnh MPC.

Các mẫu MPC đều có từ tính và có thể bị hút dễ dàng bằng một thanh nam châm (Hình 4). Khảo sát từ kế mẫu rung cho thấy mẫu Fe₁₀MPC₆₀₀₋₂ có tính chất siêu thuận từ²⁰ với độ từ hóa bão hòa đạt 5,3 emu.g⁻¹. Theo tác giả Liu và các cộng sự²¹, cả Fe₃O₄ và Fe⁰ đều có từ tính mạnh, thuận lợi cho quá trình phân riêng bằng từ trường.

Ảnh hưởng của nồng độ H₂O₂ đến quá trình xử lý p-nitrophenol bằng xúc tác MPC

Trong quá trình oxy hóa nâng cao, H₂O₂ là nguồn cung cấp các gốc tự do ·OH cho phản ứng oxy hóa²³. Theo lý thuyết, lượng H₂O₂ cần cho việc phân hủy hoàn toàn 100 ppm PNP là 342 ppm^{13,14}. Do đó, nồng độ H₂O₂ trong khoảng 120 – 700 ppm được tiến hành khảo sát (Hình 5).

Kết quả thí nghiệm cho thấy tốc độ mất màu PNP nhanh nhất ở 540 ppm. Khi lượng H₂O₂ tăng thì số gốc ·OH được sinh ra nhiều hơn, dẫn đến việc tăng tốc độ oxy hóa. Tuy nhiên, lượng quá dư H₂O₂ có thể thúc đẩy một số phản ứng suy giảm số gốc tự do ·OH²⁶:



Ảnh hưởng của nhiệt độ tổng hợp MPC đến khả năng xử lý p-nitrophenol

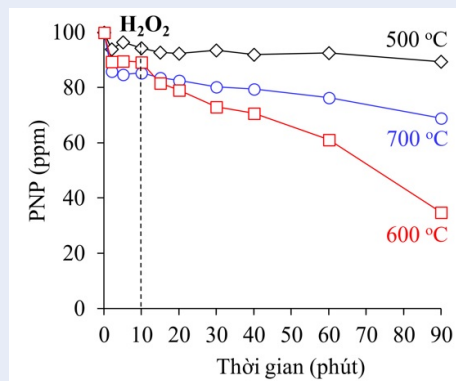
Hình 6 và Bảng 3 trình bày khả năng hấp phụ và hoạt tính xúc tác xử lý PNP bằng các mẫu MPC được tổng hợp ở 500, 600 và 700 °C. Khi nhiệt độ nhiệt phân càng tăng thì quá trình hoạt hóa có thể diễn ra nhanh hơn, làm tăng diện tích bề mặt và thể tích mao quản của MPC²⁷, từ đó giúp cải thiện dung lượng hấp phụ PNP.

Tốc độ mất màu PNP phụ thuộc vào các tâm xúc tác trên bề mặt MPC. Ở nhiệt độ 500 °C, các tinh thể Fe₃O₄ có thể chưa được hoàn thiện. Nhưng ở 700 °C, các oxit bị khử thành Fe⁰ giảm hiệu quả xúc tác. Nhiệt độ tổng hợp 600 °C đem lại hoạt tính xúc tác tốt nhất.

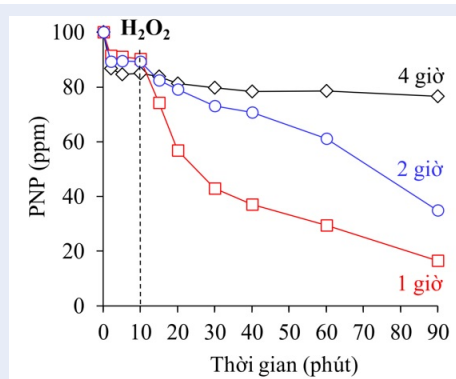
Ảnh hưởng của thời gian tổng hợp MPC đến khả năng xử lý p-nitrophenol

Ảnh hưởng của thời gian tổng hợp đến khả năng hấp phụ và hoạt tính xúc tác của các mẫu MPC trong xử lý PNP được biểu diễn trên Hình 7. Cũng giống nhiệt độ nhiệt phân, khi thời gian nhiệt phân kéo dài thì diện tích bề mặt và thể tích mao quản của MPC có thể tăng dần²⁷, giúp cải thiện dung lượng hấp phụ PNP của MPC (Bảng 3).

Thời gian nhiệt phân càng kéo dài, hiệu quả phân hủy PNP càng giảm. Theo kết quả XRD trước đó, thời gian

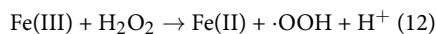
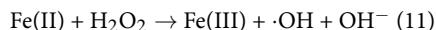
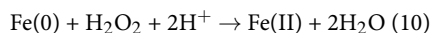


Hình 6: Ảnh hưởng của nhiệt độ tổng hợp MPC đến khả năng mất màu PNP



Hình 7: Ảnh hưởng của thời gian tổng hợp MPC đến khả năng mất màu PNP

niệt phân càng dài thì các pha tinh thể Fe_3O_4 chuyển thành Fe^0 càng tăng. Theo như các phản ứng (10) đến (12), các tâm $Fe(II)$ và $Fe(III)$ có thể tương tác trực tiếp H_2O_2 tạo $\cdot OH$ nhưng Fe^0 cần đòi hỏi quá trình oxi hóa lên $Fe(II)$ trong môi trường axit²⁸. Như vậy, lượng Fe^0/Fe_3O_4 càng tăng có thể làm chậm tốc độ tạo $\cdot OH$.

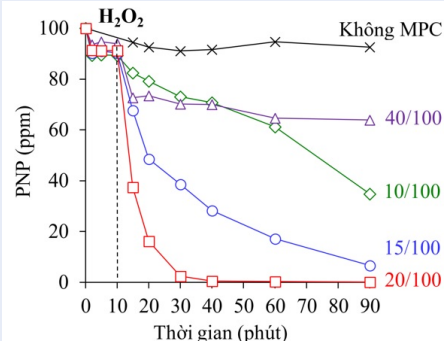


Ảnh hưởng của tỉ lệ $FeCl_3$ /xơ dừa đến hoạt tính xúc tác của MPC trong xử lý p-nitrophenol

Như được trình bày trên Bảng 3, dung lượng hấp phụ PNP giảm khi tăng tỉ lệ $FeCl_3$ /xơ dừa. PNP là chất hữu cơ nên có thể tương tác tốt với nền carbon hơn là tinh thể ion của Fe_3O_4 và tinh thể kim loại của Fe. Việc tăng tỉ lệ $FeCl_3$ /xơ dừa có thể làm giảm hàm

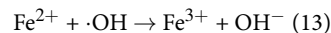
lượng carbon trong MPC, dẫn đến giảm dung lượng hấp phụ.

Về hoạt tính xúc tác, PNP gần như không bị mất màu bởi tác nhân oxi hóa H_2O_2 khi thiếu xúc tác MPC (Hình 8). Khi thay đổi tỉ lệ $FeCl_3$ /xơ dừa trong quá trình tổng hợp MPC, hoạt tính xúc tác của các mẫu vật liệu thu được cũng thay đổi theo.



Hình 8: Ảnh hưởng của tỉ lệ khối lượng $FeCl_3$ /xơ dừa (R g/100 g) trong tổng hợp MPC đến khả năng mất màu PNP

Khi tỉ lệ khối lượng $FeCl_3$ /xơ dừa tăng từ 10/100 lên 15/100, tốc độ mất màu PNP cải thiện đáng kể từ 65,2% lên 93,3%. Ở tỷ lệ 20/100, kết quả cho thấy PNP mất màu gần như hoàn toàn (99,6%) sau 30 phút oxi hóa. Việc tăng tỷ lệ $FeCl_3$ /xơ dừa có thể tăng tỉ lệ tâm xúc tác sắt trong MPC, giúp tăng hoạt tính xúc tác oxi hóa. Tuy nhiên, khi tỷ lệ $FeCl_3$ /xơ dừa tăng đến 40/100 thì hiệu quả mất màu PNP có sự suy giảm đáng kể. Theo một số báo cáo, lượng sắt dư có thể thúc đẩy phản ứng triệt tiêu nhóm $\cdot OH$ ^{29,30}:



KẾT LUẬN

Trong nghiên cứu này, vật liệu carbon mao quản từ tinh đã được tổng hợp tiện lợi từ nguồn phụ phẩm xơ dừa và tiền chất sắt $FeCl_3$ thông qua phương pháp nhiệt phân một giai đoạn. Vật liệu thu được không những có diện tích bề mặt riêng cao do được hoạt hóa mà còn có từ tính mạnh (độ từ hóa 5,3 emu.g⁻¹) từ các hạt oxit sắt từ Fe_3O_4 và sắt kim loại Fe^0 có trong cấu trúc. Trong khảo sát tiềm năng ứng dụng, carbon mao quản từ tinh đã chứng tỏ là một vật liệu đa chức năng gồm khả năng hấp phụ trực tiếp p-nitrophenol (đạt 76 mg/g), xúc tác oxi hóa p-nitrophenol bằng H_2O_2 (mất màu đến 99,9%), và khả năng phân riêng bằng từ trường.

Bảng 3: Khả năng hấp phụ và hoạt tính xúc tác của MPC với PNP

Xúc tác	H ₂ O ₂ (ppm)	Hấp phụ (tại 10 phút)		Oxi hóa (tại 90 phút)	
		PNP (ppm)	Dung lượng hấp phụ (mg/g)	PNP (ppm)	PNP mất màu (%)
Fe ₂₀ MPC ₆₀₀ -2	120	91,3	44	27,9	72,1
	360			0,8	99,2
	540			0,1	99,9
	700			12,3	87,7
Fe ₁₀ MPC ₅₀₀ -2	540	94,3	28	89,4	10,6
Fe ₁₀ MPC ₆₀₀ -2		89,3	54	34,9	65,2
Fe ₁₀ MPC ₇₀₀ -2		84,8	76	66,9	31,1
Fe ₁₀ MPC ₆₀₀ -1	540	90,3	48	16,5	83,5
Fe ₁₀ MPC ₆₀₀ -2		89,3	54	34,9	65,2
Fe ₁₀ MPC ₆₀₀ -4		85,0	75	76,6	23,4
Fe ₁₀ MPC ₆₀₀ -2	540	89,3	54	0,4	65,2
Fe ₁₅ MPC ₆₀₀ -2		90,3	48	6,7	93,3
Fe ₂₀ MPC ₆₀₀ -2		91,3	44	0,1	99,9
Fe ₄₀ MPC ₆₀₀ -2		94,0	30	63,9	36,1

LỜI CẢM ƠN

Nghiên cứu được tài trợ bởi Đại học Quốc gia Thành phố Hồ Chí Minh (ĐHQG-HCM) trong khuôn khổ Đề tài mã số C2021-20-23. Chúng tôi xin cảm ơn Trường Đại học Bách khoa, ĐHQG-HCM đã hỗ trợ cho nghiên cứu này.

XUNG ĐỘT LỢI ÍCH

Các tác giả cam đoan không có bất kỳ xung đột lợi ích nào trong bài nghiên cứu này.

ĐÓNG GÓP CỦA TÁC GIẢ

- Tác giả Nguyễn Minh Hùng tiến hành một số thí nghiệm phân tích tính chất vật liệu và viết bản thảo.
- Tác giả Đỗ Ngọc Hàn tổng hợp cacbon mao quản từ tính và xác định hoạt tính xúc tác oxi hóa p-nitrophenol.
- Tác giả Đỗ Ngọc Hằng hỗ trợ xác định hoạt tính xúc tác oxi hóa p-nitrophenol.
- Tác giả Bùi Lê Nam Quang hỗ trợ kiểm tra hoạt tính xúc tác, chỉnh sửa hình ảnh trong bản thảo.
- Tác giả Lâm Hoa Hùng hỗ trợ phương pháp xác định hoạt tính xúc tác oxi hóa p-nitrophenol.
- Tác giả Trần Thụy Tuyết Mai hỗ trợ xác định một số tính chất vật liệu.
- Tác giả Nguyễn Quang Long hỗ trợ lên ý tưởng và xác định một số tính chất vật liệu.

- Tác giả Nguyễn Văn Dũng lên ý tưởng, chỉnh sửa bản thảo và chịu trách nhiệm chung cho nghiên cứu này.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

1. Nayar NM. The coconut: phylogeny, origins, and spread. Academic Press; 2017; Available from: <https://doi.org/10.1016/B978-0-12-809778-6.00005-X>.
2. Coconut statistical year book 2020. International Coconut Community; 2022. p. 278;.
3. Hiệp hội dừa Bến Tre. Việt Nam: diện tích và sản lượng dừa đến năm 2020 [cited 25/3/2022]; Available from: <http://congthuongbentre.gov.vn/viet-nam-dien-tich-va-san-luong-dua-den-nam-2020.html>.
4. Bolivar-Telleria M, Turbay C, Favarato L, Carneiro T, de BIASI RS, Fernandes AAR et al. Second-generation bioethanol from coconut husk. *BioMed Res Int*. 2018;2018:4916497; PMID: 30363680. Available from: <https://doi.org/10.1155/2018/4916497>.
5. Bhatnagar A, Vilar VJP, Botelho CMS, Boaventura RAR. Coconut-based biosorbents for water treatment - a review of the recent literature. *Adv Colloid Interface Sci*. 2010;160(1-2):1-15; PMID: 20656282. Available from: <https://doi.org/10.1016/j.cis.2010.06.011>.
6. Daneshvar E, Wicker RJ, Show P-L, Bhatnagar A. Biologically mediated carbon capture and utilization by microalgae towards sustainable CO₂ biofixation and biomass valorization - a review. *Chem Eng J*. 2022;427:130884; Available from: <https://doi.org/10.1016/j.cej.2021.130884>.
7. Wang J, Xu Y, Yan M, Ren B, Dong X, Miao J et al. Preparation and application of biomass-based porous carbon with S, N, Zn, and Fe heteroatoms loading for use in supercapacitors. *Biomass Bioenergy*. 2022;156:106301; Available from: <https://doi.org/10.1016/j.biombioe.2021.106301>.

8. Ahmad M, Rajapaksha AU, Lim JE, Zhang M, Bolan N, Mohan D et al. Biochar as a sorbent for contaminant management in soil and water: a review. *Chemosphere*. 2014;99:19-33;PMID: 24289982. Available from: <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2013.10.071>.
9. Nguyen DV, Nguyen TTT, Tran-Thuy T-M, Lam HH, Nguyen LQ. Activation of ordered mesoporous carbon nitride prepared via soft-template for CO₂ adsorption. *IOP Conf S Earth Environ Sci*. 2021;947(1):012034; Available from: <https://doi.org/10.1088/1755-1315/947/1/012034>.
10. Nguyen VNT, Dang TH, Bien TC, Ngo AT, Nguyen DV, Nguyen LQ. Porous carbon from local coconut shell char by CO₂ and H₂O activation in the presence of K₂CO₃. *AlP Conf Proc*. 2017;1878(1):020011; Available from: <https://doi.org/10.1063/1.5000179>.
11. Zhang Z, Zhu Z, Shen B, Liu L. Insights into biochar and hydrochar production and applications: a review. *Energy*. 2019;171:581-98; Available from: <https://doi.org/10.1016/j.energy.2019.01.035>.
12. Li M, Liu H, Chen T, Dong C, Sun Y. Synthesis of magnetic biochar composites for enhanced uranium(VI) adsorption. *Sci Total Environ*. 2019;651(1):1020-8; PMID: 30266047. Available from: <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2018.09.259>.
13. Yang J, Zhao Y, Ma S, Zhu B, Zhang J, Zheng C. Mercury removal by magnetic biochar derived from simultaneous activation and magnetization of sawdust. *Environ Sci Technol*. 2016;50(21):12040-7; PMID: 27723318. Available from: <https://doi.org/10.1021/acs.est.6b03743>.
14. Tan XF, Liu YG, Gu YL, Xu Y, Zeng GM, Hu XJ et al. Biochar-based nano-composites for the decontamination of wastewater: a review. *Bioresour Technol*. 2016;212:318-33; PMID: 27131871. Available from: <https://doi.org/10.1016/j.biortech.2016.04.093>.
15. Nguyen HM, Nguyen LT, Nguyen LTK, Lam HH, Tran-Thuy T-M, Nguyen LQ et al. Facile preparation of lotus seedpod-derived magnetic porous carbon for catalytic oxidation of Ponceau 4R. *IOP Conf Ser: Earth Environ Sci*. 2021;947(1):012019; Available from: <https://doi.org/10.1088/1755-1315/947/1/012019>.
16. Nguyen DV, Do HN, Do HN, Nguyen LQ. One-step preparation of rice husk-based magnetic biochar and its catalytic activity for p-nitrophenol degradation. *Chem Eng Trans*. 2020;78:379-84; Available from: <https://doi.org/10.3303/CET2078064>.
17. Jung KW, Choi BH, Jeong TU, Ahn KH. Facile synthesis of magnetic biochar/Fe₃O₄ nanocomposites using electro-magnetization technique and its application on the removal of acid orange 7 from aqueous media. *Bioresour Technol*. 2016;220:672-6; PMID: 27638463. Available from: <https://doi.org/10.1016/j.biortech.2016.09.035>.
18. Zhang S, Su Y, Zhu S, Zhang H, Zhang Q. Effects of pretreatment and FeCl₃ pre-load of rice husk on synthesis of magnetic carbon composites by pyrolysis for supercapacitor application. *J Anal Appl Pyrol*. 2018;135:22-31; Available from: <https://doi.org/10.1016/j.jaap.2018.09.026>.
19. Bedia J, Peñas-Garzón M, Gómez-Avilés A, Rodríguez JJ, Belver C. 'Review on activated carbons by chemical activation with FeCl₃'; *C. Vol.* 6(2). p. 21; 2020 [online]; Available from: <https://doi.org/10.3390/c6020021>.
20. Laurent S, Saei AA, Behzadi S, Panahifar A, Mahmoudi M. Superparamagnetic iron oxide nanoparticles for delivery of therapeutic agents: opportunities and challenges (in eng). *Expert Opin Drug Deliv*. 2014;11(9):1449-70; PMID: 24870351. Available from: <https://doi.org/10.1517/17425247.2014.924501>.
21. Liu Y, Sohi SP, Liu S, Guan J, Zhou J, Chen J. Adsorption and reductive degradation of Cr(VI) and TCE by a simply synthesized zero valent iron magnetic biochar. *J Environ Manage*. 2019;235:276-81; PMID: 30685583. Available from: <https://doi.org/10.1016/j.jenvman.2019.01.045>.
22. Wan D, Li W, Wang G, Lu L, Wei X. Degradation of p-nitrophenol using magnetic Fe₀/Fe₃O₄/coke composite as a heterogeneous Fenton-like catalyst. *Sci Total Environ*. 2017;574:1326-34; PMID: 27519319. Available from: <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2016.08.042>.
23. Zhang A, Wang N, Zhou J, Jiang P, Liu G. Heterogeneous Fenton-like catalytic removal of p-nitrophenol in water using acid-activated fly ash. *J Hazard Mater*. 2012;201-202:68-73; PMID: 22169244. Available from: <https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2011.11.033>.
24. Zhang B, Li F, Wu T, Sun D, Li Y. Adsorption of p-nitrophenol from aqueous solutions using nanographite oxide. *Colloids Surf A Physicochem Eng Aspects*. 2015;464:78-88; Available from: <https://doi.org/10.1016/j.colsurfa.2014.10.020>.
25. Rodrigues CSD, Soares OSGP, Pinho MT, Pereira MFR, Madeira LM. p-nitrophenol degradation by heterogeneous Fenton's oxidation over activated carbon-based catalysts. *Appl Cat B*. 2017;219:109-22; Available from: <https://doi.org/10.1016/j.apcatb.2017.07.045>.
26. Yu L, Yang X, Ye Y, Wang D. Efficient removal of atrazine in water with a Fe₃O₄/MWCNTs nanocomposite as a heterogeneous Fenton-like catalyst. *RSC Adv*. 2015;5(57):46059-66; Available from: <https://doi.org/10.1039/C5RA04249F>.
27. Xiong X, Yu IKM, Cao L, Tsang DCW, Zhang S, Ok YS. A review of biochar-based catalysts for chemical synthesis, bio-fuel production, and pollution control. *Bioresour Technol*. 2017;246:254-70; PMID: 28712780. Available from: <https://doi.org/10.1016/j.biortech.2017.06.163>.
28. Rodriguez J, Ochando-Pulido JM, Martinez-Ferez A. The effect of pH in tannery wastewater by Fenton vs. heterogeneous Fenton process. *Chem Eng Trans*. 2019;73:205-10.
29. Wang N, Zheng T, Zhang G, Wang P. A review on Fenton-like processes for organic wastewater treatment. *J Environ Chem Eng*. 2016;4(1):762-87; Available from: <https://doi.org/10.1016/j.jece.2015.12.016>.
30. Cui K, Yi H, Zhou ZJ, Zhuo QF, Bing YX, Guo QW et al. Fenton oxidation kinetics and intermediates of nonylphenol ethoxylates. *Environ Eng Sci*. 2014;31(5):217-24; PMID: 24868141. Available from: <https://doi.org/10.1089/ees.2013.0308>.

Direct synthesis of magnetic porous carbon from coconut husk and its application in catalytic degradation of p-nitrophenol by H₂O₂

Hung Minh Nguyen^{1,2}, Han Ngoc Do^{1,2}, Hang Ngoc Do^{1,2}, Quang Le Nam Bui^{1,2}, Hung Hoa Lam^{1,2}, Tuyet Mai Tran-Thuy^{1,2}, Long Quang Nguyen^{1,2}, Dung Van Nguyen^{1,2,*}



Use your smartphone to scan this QR code and download this article

¹Faculty of Chemical Engineering, Ho Chi Minh City University of Technology (HCMUT), 268 Ly Thuong Kiet Street, District 10, Ho Chi Minh City, Vietnam

²Vietnam National University Ho Chi Minh City, Linh Trung Ward, Thu Duc District, Ho Chi Minh City, Vietnam

Correspondence

Dung Van Nguyen, Faculty of Chemical Engineering, Ho Chi Minh City University of Technology (HCMUT), 268 Ly Thuong Kiet Street, District 10, Ho Chi Minh City, Vietnam

Vietnam National University Ho Chi Minh City, Linh Trung Ward, Thu Duc District, Ho Chi Minh City, Vietnam

Email: nvdung@hcmut.edu.vn

History

- Received: 18-4-2022
- Accepted: 18-10-2022
- Published: 15-2-2023

DOI : <https://doi.org/10.32508/stdjet.v5iS11.988>



Copyright

© VNUHCM Press. This is an open-access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution 4.0 International license.



ABSTRACT

Coconut husk is an abundant, available and underutilized agricultural residue. In this study, coconut husk was utilized to synthesize magnetic porous carbon (MPC) via direct pyrolysis with additional iron precursor. The properties of the obtained material were determined by X-ray diffraction (XRD), scanning electron microscopy (SEM) images, nitrogen adsorption-desorption isotherm and vibrating sample magnetometer (VSM). The results showed that magnetic particles of Fe₃O₄ and Fe⁰ were formed over the carbon base with a saturation magnetization of 5.3 emu.g⁻¹. Simultaneous carbonization, activation, and magnetization processes improved S_{BET} of MPC from 18 m²/g to 495 m²/g. Subsequently, the catalytic activity of MPC was explored for the oxidation of p-nitrophenol by H₂O₂. At 540 ppm H₂O₂, 0.20 g/L MPC, 99.9% p-nitrophenol (100 ppm) was decolorized after 90 min of treatment. Moreover, MPC could be easily removed from treated solutions by a magnet bar. Overall, the findings proved that the magnetic porous carbon prepared from one-step pyrolysis of coconut husk might be a promising multi-functional material due to its magnetic recoverability and efficient catalytic activity in p-nitrophenol treatment.

Key words: coconut husk, one-pot pyrolysis, magnetic porous carbon, catalytic oxidation, p-nitrophenol

Cite this article : Nguyen H M, Do H N, Do H N, Bui Q L N, Lam H H, Tran-Thuy T M, Nguyen L Q, Nguyen D V. **Direct synthesis of magnetic porous carbon from coconut husk and its application in catalytic degradation of p-nitrophenol by H₂O₂.** *Sci. Tech. Dev. J. – Engineering and Technology;* 2022, 5(S11):120-127.