Tạp chí Phát triển Khoa học và Công nghệ – Science of The Earth & Environment 2024, ():1-7

Open Access Full Text Article

Research Article

Ảnh hưởng thống kê của điều kiện hoạt hóa xúc tác Fenton dị thể từ vỏ mít lên quá trình loại bỏ Pentachlorophenol trong nước

Đái Huệ Ngân[1,2], Nguyễn Hoàng Yến Nhi[1,2], Nguyễn Thị Thu Ngân[2,3], Bạch Lê Quỳnh Trang[1,2], Đặng Ngọc Quân[2,3], Ngô Thị Thuận[2,3,*]

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

TÓM TẮT

Việc điều chế và ứng dụng xúc tác Fenton dị thể từ sinh khối cho những hợp chất ô nhiễm bền trong nước đang được quan tâm nhằm hướng tới nền kinh tế tuần hoàn và bảo vệ môi trường. Tuy nhiên, ảnh hưởng thống kê của điều kiện chế tạo xúc tác cho quá trình phân hủy Pentachlorophenol (PCP) trong nước chưa được nghiên cứu. Trong bài nghiên cứu này, điều kiện chế tạo xúc tác Fenton dị thể từ vỏ mít bao gồm nhiệt độ và tỷ lệ xúc tác/than vỏ mít (Fe/JC) được khảo sát bằng phương pháp thực nghiệm kết hợp với mô hình hồi qui bậc 2 nhằm đưa ra thông số tối ưu cho quá trình phân hủy chất hữu cơ bền Pentachlorophenol (PCP) trong nước. Các đặc tính của xúc tác Fe/JC bao gồm hình thái, cấu trúc tinh thể, thành phần các nguyên tố và nhóm chức trên bề mặt lần lượt được phân tích bằng kính hiển vi điện tử quét (SEM), nhiễu xạ tia X (XRD), tán xạ năng lượng tia X (EDS) và quang phổ hồng ngoại (FTIR). Kết quả cho thấy khi khảo sát đơn lẻ yếu tố nhiệt độ từ 100-500°C hoặc tỷ lệ Fe/JC từ 0-20% thì không cho thấy sự ảnh hưởng thống kê của 02 yếu tố này lên hiệu quả xử lý PCP. Tuy nhiên khi dùng mô hình hồi qui thì cho thấy có sự ảnh hưởng kép và bậc 2 của 02 yếu tố này lên hiệu quả xử lý PCP trong nước. Xúc tác Fe/JC cho hiệu quả phân huỷ PCP trong nước khi nhiệt độ nung lớn hơn 298°C và tỷ lệ Fe/JC lớn hơn 12,4%. Xúc tác Fe/JAC có tỷ lệ 20,0% Fe và được nung ở 500°C cho khả năng phân hủy 62,1±3,8% PCP trong nước. Bề mặt xúc tác này có tâm hoạt tính là Fe_2O_3 dạng tròn có kích thước khoảng 500–700 nm phân tán đều trên bề mặt than.

Từ khoá: Xúc tác Fenton dị thể, vỏ mít, Pentachlorophenol, nước thải

[1]*Khoa Hóa học, Trường Đại học Khoa học Tự Nhiên, Việt Nam*

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

[3]*Khoa Kỹ thuật Hóa học và Môi trường, Trường Đại học Quốc tế, Việt Nam*

Liên hệ

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

Khoa Kỹ thuật Hóa học và Môi trường, Trường Đại học Quốc tế, Việt Nam

Email: ntthuan@hcmiu.edu.vn

Lịch sử

- Ngày nhận: 15-4-2024
- Ngày chấp nhận: 25-6-2024
- Ngày đăng:

DOI :

Check for updates

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.

VNUHCM PRESS

ĐẶT VẤN ĐỀ

Pentachlorophenol (PCP) đã được phân loại thành những chất ô nhiễm ưu tiên vào năm 1989 theo tổ chức Y tế thế giới và 2014 theo Hiệp hội Bảo vệ Môi trường Mỹ. PCP là một Chlorophenol có 05 Chloro gắn trên Phenol, được sử dụng là chất diệt khuẩn để bảo quản gỗ và đồ mỹ nghệ. PCP có tính acid mạnh nhất trong số các chlorophenol (pK_a~3.9–4.9). Do tính chất độc hại, khó phân hủy và khả năng tồn tại trong đất, nước, không khí và sinh vật, PCP được liệt kê vào danh sách thuộc nhóm các hợp chất hữu cơ bền (POPs) theo công ước Stokholm năm 2009. Các phương pháp như hấp phụ, keo tụ, sinh học[1–4], dùng điểm siêu tới hạn của nước khi có NaOH[5] đã được sử dụng để loại bỏ PCP trong nước; tuy nhiên phương pháp oxi hoá nâng cao được ứng dụng phổ biến do khả năng chuyển hoá được hầu hết các POP thành các hợp chất nhỏ hoặc khoáng hóa thành CO_2 và H_2O[6]. Trong đó, quá trình Fenton đồng thể là dựa trên phản ứng giữa ion Fe(II) và H_2O_2 ($Fe^{2+} + H_2O_2 \rightarrow Fe^{3+} + {}^{\cdot}OH + OH^-$), tạo ra gốc tự do hydroxyl (${}^{\cdot}OH$). Các gốc tự do này có thể oxi hầu hết các chất hữu cơ khó phân hủy thành những hợp chất ít hoặc không độc và tiến hành ở điều kiện nhiệt độ phòng, áp suất thường. Fenton dị thể là hệ tương tự như đồng thể, tuy nhiên sắt tồn tại ở pha rắn, được gắn trên một chất mang có khả năng hấp phụ và tạo liên kết với xúc tác. Tâm hoạt tính oxit sắt được gắn trên chất mang có diện tích bề mặt riêng cao như đất sét[7], zeolites[8], goethite[9] và carbon hoạt tính[10]. Các tâm hoạt tính oxit sắt có thể tồn tại dưới nhiều dạng như $Fe(OH)_2$, $Fe(OH)_3$, a-Fe_2O_3, g-Fe_2O_3, Fe_3O_4 và α–FeOOH (goethite), Fe(0) tùy vào điều kiện chế tạo. Tâm hoạt tính có thể được chế tạo bằng cách gắn các hạt sắt bằng phương pháp ngâm tẩm, nung ở nhiệt độ từ 200–700°C hoặc tổng hợp bằng phương pháp hoá học như khử muối sắt thành Fe(0) hay ngâm tẩm hoặc đồng kết tủa[7,10,11]. Các nghiên cứu của Nguyen và cộng sự[12] về chế tạo xúc tác từ tính của Fe_3O_4 và Fe_2MnO_4 trên chất mang than hoạt tính (AC) ở 600°C trong 1h và tỷ lệ sắt/AC là 20% cho phản ứng phân hủy metyl cam. Tuy nhiên, nguồn than hoạt tính sử dụng từ than hoạt tính gáo dừa và nung ở nhiệt độ 200-500°C. Chất mang carbon hoạt tính từ nguồn phế phẩm nông nghiệp đang được chú ý do nguồn nhiên liệu phong phú và có thể

Trích dẫn bài báo này: Ngân D H, Nhi N H Y, Ngân N T T, Trang B L Q, Quân D N, Thuận N T. **Ảnh hưởng thống kê của điều kiện hoạt hóa xúc tác Fenton dị thể từ vỏ mít lên quá trình loại bỏ Pentachlorophenol trong nước**. *Sci. Tech. Dev. J. - Sci. Earth Environ.* 2024; ():1-7.

giữ nguyên được các tính chất bề mặt của than hoạt tính từ than đá. Mít là loại trái cây được trồng, sử dụng rộng rãi Việt Nam và vỏ mít thải chiếm gần 50% tổng khối lượng của mít, trong khi đó thành phần có trong vỏ mít được phân tích theo ASTM bao gồm tỷ phần trăm của độ ẩm, tro, chất dễ bay hơi và carbon cố định lần lược là 4.22, 10.19, 50.17 và 35.42%, thích hợp để làm ra chất mang carbon cho xúc tác Fenton dị thể[13]. Tuy nhiên chưa có nghiên cứu nào sử dụng phế phẩm vỏ mít làm chất mang cho xúc tác Fenton để xử lý các chất ô nhiễm hữu cơ. Hơn nữa, hầu hết các nghiên cứu sử dụng phương pháp khảo sát truyền thống bằng cách thay đổi điều kiện của 1 yếu tố và giữ không đổi các yếu tố còn lại. Phương pháp này có thể cho giá trị tối ưu và ảnh hưởng tuyến tính nhưng không cho thông tin về ảnh hưởng tương tác hay ảnh hưởng bậc hai của các yếu tố. Các thông tin này có thể thu thập được khi kết hợp quy hoạch thực nghiệm và đáp ứng bề mặt. Phương pháp đáp ứng bề mặt đã được áp dụng cho việc tối ưu hóa các quá trình Fenton[14,15], tuy nhiên hầu hết các nghiên cứu tập chung vào tối ưu hóa qúa trình xử lý chất ô nhiễm bằng Fenton, chưa ứng dụng phương pháp này vào việc khảo sát ảnh hưởng tương tác và đơn lẻ của nhiệt độ nung và tỷ lệ % Fe/JC trong quá trình điều chế xúc tác lên quá trình phân hủy PCP trong nước. Chính vì vậy, nghiên cứu này tập chung vào khảo sát ảnh hưởng của các yếu tố này lên quá trình phân hủy PCP trong nước với phương pháp thống kê với mục tiêu (1) khảo sát ảnh hưởng tương tác và đơn lẻ của nhiệt độ tạo xúc tác và tỷ lệ Fe/JC; (2) tìm khoảng nhiệt độ và tỷ lệ Fe/JC cho quá trình phân hủy PCP bằng quá trình Fenton dị thể hiệu quả.

PHƯƠNG PHÁP NGHIÊN CỨU

Tổng hợp xúc tác Fe/JC

10,0 g vỏ mít được lấy từ giống mít Thái và thu gom ở chợ địa phương, sấy khô tự nhiên, xay nhỏ, rây 0.1 mm và bán than hóa ở 200°C trong 1 giờ trong môi trường Nitơ với lưu lượng 100 mL min^{-1}. Sau đó, sản phẩm bán than hóa được ngâm tẩm với H_3PO_4 25% và tiếp tục nhiệt phân ở nhiệt độ 545°C trong 15 phút trong môi trường khí N_2 với tốc độ dòng 100 mL min^{-1}; cuối cùng được trung hòa bằng nước đun ở 70°C và nước rửa được liên tục kiểm tra bằng giấy quỳ tím, sấy khô ở nhiệt độ 105°C trong 7h, và cho thành phẩm than vỏ mít (JC). 0,500 g than vỏ mít (JC) được ngâm tẩm với HNO_3 0,017 M và muối $Fe(NO_3)_3$ và $FeCl_2$ với các tỷ lệ sắt ở 0%, 10% và 20%, rồi tiếp tục khuấy ở 30 phút. Hỗn hợp JC và muối sắt được sấy khô ở 105°C trong 24 giờ và tiếp tục nung ở 100, 300 và 500°C trong 15 phút trong điều kiện không có oxy, sau đó được lọc rửa bằng nước cất đến trung hòa và sấy khô tại 105°C, bảo quản kín. Thành phẩm cuối cùng là xúc tác Fenton dị thể, kí hiệu là Fe/JC.

Thí nghiệm phân hủy PCP trong nước bằng hệ Fe/JC/H2O2

25,0 mg xúc tác vừa điều chế cho phản ứng với 25.00 mL dung dịch PCP có nồng độ 25 mg L^{-1} ở pH3, thêm 100 mL H_2O_2 30%, 50 vòng/phút trong 15 phút, kết thúc phản ứng bằng chỉnh pH với NaOH 1M đến 10[10]. Nồng độ PCP trước và sau phản ứng được phân tích bằng sắc ký lỏng siêu cao áp (UPLC) (Water) có pha tĩnh là cột C18, pha động là 30% acid formic 0,1% và 70% metanol. Dung dịch PCP chuẩn gốc (Sigma Aldrich, 97%) có nồng độ là 1032 mg L^{-1} được pha trong 10% MeOH[16]. Hiệu suất loại bỏ PCP (%) được tính theo công thức sau:

$$H\,(\%) = \frac{(C_0 - C_f)}{C_0} \times 100$$

C_o và C_f (mg L^{-1}) lần lượt là nồng độ ban đầu và sau khi phản ứng Fenton của PCP trong nước

Hình thái, thành phần và cấu trúc của xúc tác Fe/JC

Cấu trúc và thành phần của các mẫu xúc tác được phân tích bằng phương pháp nhiễn xạ tia X (D8 Advance Eco, Bruker, Đức) với điện áp 40 kV, cường độ dòng điện 25 mA, bước sóng CuK_α là 0,154 nm. Nhóm chức của xúc tác được khảo sát bằng phổ hồng ngoại (FTIR) (Perkin Elmer) từ vùng có số sóng 400-4000 cm^{-1}. Bề mặt vật liệu được quan sát dưới kính hiển vi điện tử quét SEM S4800, Hitachi. Phổ tán sắc năng lượng tia X (EDS) khảo sát hàm lượng nguyên tố ghi nhận từ thiết bị EDS H7593 Horiba, England.

KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN

Hình thái, thành phần và cấu trúc của xúc tác Fe/JAC

Hình 1 trình bày hình ảnh bề mặt của than vỏ mít (JC) và các mẫu xúc tác điều chế ở nhiệt độ 500°C với các tỷ lệ phần trăm lần lượt là 0 (JC500Fe0), 10 (JC500Fe10) và 20% (JC500Fe20). Kết quả cho thấy bề mặt JC ban đầu có các lỗ xốp và gồ ghề, khi JC được nung ở 500°C (JC500Fe0) thì các liên kết trên bề mặt than bị đứt gãy xuất hiện càng nhiều góc cạnh, dẫn đến tăng diện tích bề mặt riêng từ 224.11 m^2 g^{-1} đến 318.02 m^2 g^{-1}. Kết quả là khi nung ở cùng nhiệt độ với các mẫu chứa sắt 10% (JC500Fe10), 20% (JC500Fe20) thì có sự tăng hàm lượng sắt tương ứng trên bề mặt với kích thước đa dạng. Lượng Fe tương được giữ lại trong xúc tác Fe/JC được ghi nhận bằng EDS và thể hiện ở Bảng 1

cho thấy phần trăm sắt tăng tương ứng từ 6,3% đến 13,9%, tỷ lệ phần trăm này thấp hơn so với ban đầu từ 31−37%. Tỷ lệ % sắt trong than thấp hơn so với ban đầu cũng được ghi nhận ở những nghiên cứu trước khi điều chế xúc tác Fenton trên nền sinh khối ở cùng một nhiệt độ [17,18]. Điều này có thể giải thích do diện tích bề mặt của than từ sinh khối thấp hơn so với than truyền thống nên khả năng lưu giữ sắt trong than thấp, tuy nhiên cần có những nghiên cứu chuyên sâu về ảnh hưởng của diện tích bề mặt của than hoạt tính từ sinh khối đến khả năng lưu giữ sắt.

Giản đồ XRD được phân tích cho các mẫu xúc tác ở các tỷ lệ Fe/JC khác nhau (JC500Fe0, JC500Fe10 và JC500Fe20) và thể hiện trong Hình 2a. Kết quả cho thấy JC500Fe0 đặc trưng cho than vỏ mít có carbon cấu trúc vô định hình, các mẫu JC500Fe10 và JC500Fe20 hiện diện các đỉnh nhiễu xạ tăng dần của các mặt mạng và tương ứng cấu trúc của g-Fe_2O_3 (JCPDS card No. 39-1346), thể hiện rõ nhất ở tỷ lệ Fe/JC 20%. Các mẫu xúc tác cùng tỷ lệ 20% Fe/JC ở các nhiệt độ nung 100, 300, 500°C tương ứng các mẫu JC100Fe20, JC300Fe20 và JC500Fe20 được khảo sát nhằm cho thấy ảnh hưởng của nhiệt độ lên các nhóm chức và khả năng liên kết giữa các nhóm chức và xúc tác sắt (Hình 2b). Kết quả cho thấy có số sóng của các nhóm chức tương tự nhau với các cường độ khác nhau khi tăng nhiệt độ từ 100 đến 500°C, cụ thể nhóm O-H (3000–3700 cm^{-1}), C=O (1500–1750 cm^{-1}), và C–O (800–1500 cm^{-1}) là ba nhóm chính được thể hiện trên phổ FTIR [17–20]. Dao động C-O có sự khác biệt rõ ở JC500Fe20 so với 2 mẫu còn lại có thể do tại nhiệt độ cao hơn các liên kết của C=O đứt ra tạo thành liên kết đơn C–O hoặc do sự đứt gãy của liên kết C với các nhóm chức khác có trong nền than mít để tạo liên kết C–O. Dao động trong khoảng 500–700 cm^{-1} là số sóng đặc trưng của liên kết Fe−O [19,20] cho thấy đã gắn được Fe lên nền than vỏ mít. Xúc tác JC500Fe20 với tín hiệu đặc trưng rõ nét của đỉnh Fe−O sắc nhọn thể hiện Fe không chỉ được hấp phụ lên bề mặt mà còn tạo liên kết với JC ở nhiệt độ 500°C là tốt nhất.

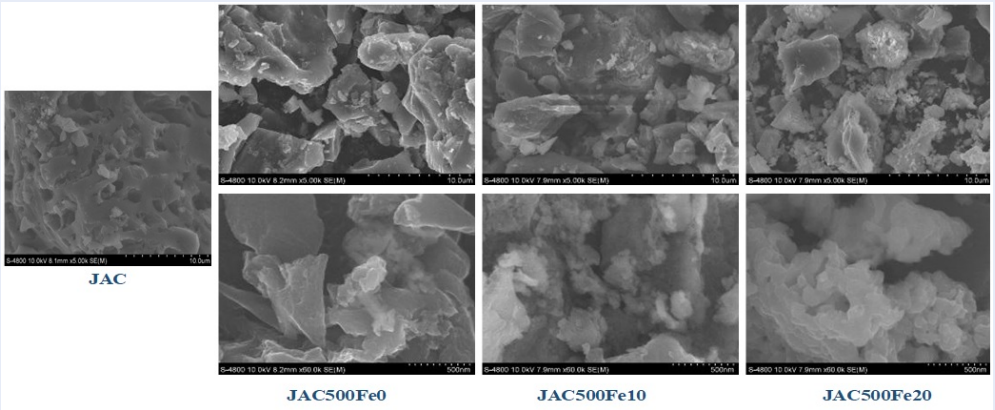
Ảnh hưởng thống kê của nhiệt độ và tỷ lệ Fe/JC lên hiệu suất loại bỏ PCP trong nước

Hiệu suất loại bỏ PCP sau phản ứng Fenton ở các tỷ lệ Fe/JC (%) và nhiệt độ khác nhau với độ lặp 9 lần được xử lý thống kê với RStudio (version 4.3.1) và thể hiện ở Hình 3. Kết quả ở Hình 3a cho thấy không có sự khác biệt thống kê giữa các nhiệt độ khác nhau trong cùng một tỷ lệ Fe/JC và ngược lại (p-value>0,05). Vì vậy, phương trình hồi quy cần được phát triển để đánh giá ảnh hưởng của các yếu tố này lên khả năng phân hủy PCP trong nước. Kết quả của mô hình hồi qui được thể hiện ở Bảng 2 và cho thấy yếu tố như tương tác của nhiệt độ và tỷ lệ sắt/JC (Fe/JC), yếu tố bậc 2 của nhiệt độ và tỷ lệ Fe/JC cho các giá trị kiểm định Pr(>t)<0.05. Từ đó, hiệu suất loại bỏ PCP được biểu diễn dưới dạng phương trình hồi quy bậc 2 như sau:

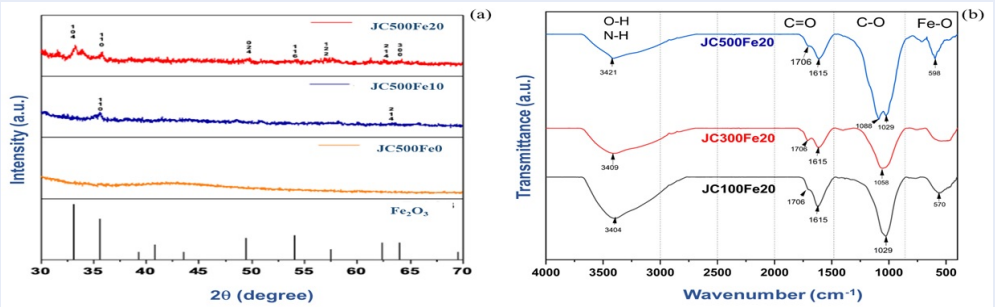
Y=57,895-4,826 (Nhiệt độ×tỷ lệ Fe/JC) + 9,837 (Nhiệt độ)^2+ 6,191 (Tỷ lệ Fe/JC)^2 (1)

Sự tương thích về hiệu suất loại bỏ PCP trong nước giữa mô hình hồi qui và thực nghiệm được kiểm tra và thể hiện trong Hình 3b. Kết quả của R^2=0.746 (p-value<0.05) cho thấy phương trình hồi quy (1) tương thích với thực nghiệm và phương trình có thể được sử dụng để giải thích ảnh hưởng của các yếu tố lên hiệu suất loại bỏ PCP trong nước.

Kết quả Hình 3c cho thấy xu hướng giảm hiệu suất loại bỏ PCP khi tăng nhiệt độ từ 100°C lên 298°C, tuy nhiên khi nhiệt độ tăng từ 298°C lên 500°C thì hiệu suất phân huỷ PCP tăng, có thể do sự hình thành pha của tâm hoạt tính và tăng khả năng liên kết Fe với JC, dẫn đến xúc tác Fe/JC bền hơn. Điều này cũng đã được ghi nhận bằng phổ FTIR ở Hình 2b. Ảnh hưởng của nhiệt độ nung lên khả năng phân hủy các chất hữu cơ được cho rằng do sự hình thành pha của tâm hoạt tính rõ ràng và tăng khả năng liên kết tâm xúc tác sắt với bề mặt than hoạt tính ở trong khoảng nhiệt độ thích hợp [12,18]. Nhiệt độ trong nghiên cứu này được tính từ phương trình hồi quy (1) là 298°C, là nhiệt độ thấp nhất cho hiệu suất loại bỏ PCP, vì vậy điều kiện nhiệt độ nung phải lớn hơn 298°C cho quá trình điều chế xúc tác Fenton dị thể cho việc loại bỏ PCP trong nước. Tương tự đối với tỷ lệ Fe/JC, khi tăng tỷ lệ Fe/JC từ 0,0 đến khoảng 10,0% thì thấy hiệu suất giảm nhưng hiệu suất PCP bắt đầu tăng khi tỷ lệ này tăng từ 10,0% đến 20,0%. Tỷ lệ Fe/JC thấp nhất trong xúc tác được tính từ phương trình hồi quy (1) là 12,4% thì quá trình loại bỏ PCP trong nước bằng quá trình Fenton bắt đầu hiệu quả. Điều này có thể giải thích khi tỷ lệ Fe/JC nhỏ hơn 12,4%, quá trình hao hụt sắt từ 30 đến 36% (Bảng 1) dẫn đến không đủ lượng xúc tác sắt cho quá trình Fenton. Tỷ lệ này tương ứng với lượng sắt tương đối trong than là 3,72-4,46% xúc tác còn lại trong xúc tác Fe/JC theo ước lượng của kết quả EDS. Kết quả này phân tích này tương đồng với các nghiên cứu về Fenton dị thể trên nền than hoạt tính từ sinh khối và cho hiệu quả xử lý chất hữu cơ như chất màu trong nước ở điều kiện nung tương tự với 5,06%, 14,99% [17]; 9,9 wt % [18]. Sự ảnh hưởng đồng thời của nhiệt độ nung và tỉ lệ giữa Fe và JC đến hoạt tính của vật liệu Fe/JC có thể được giải thích dựa trên tốc độ phản ứng và nhiệt động học. Nhiệt độ và lượng sắt hấp phụ trên JC đồng thời tăng dẫn đến tăng tốc độ phản ứng của quá trình hình thành các tâm hoạt tính và liên kết hóa học của tâm hoạt tính với JC. Điều này



Hình 1: Ảnh SEM của các mẫu xúc tác trên JAC ở nhiệt độ nung 500oC với các tỷ lệ Fe/JAC (%) khác nhau



Hình 2: Giản đồ XRD của xúc tác ở các tỷ lệ 0, 10, 20% Fe/JC ở 500°C (a) và phổ FTIR của xúc tác ở nhiệt độ 100, 300, 500°C (b).

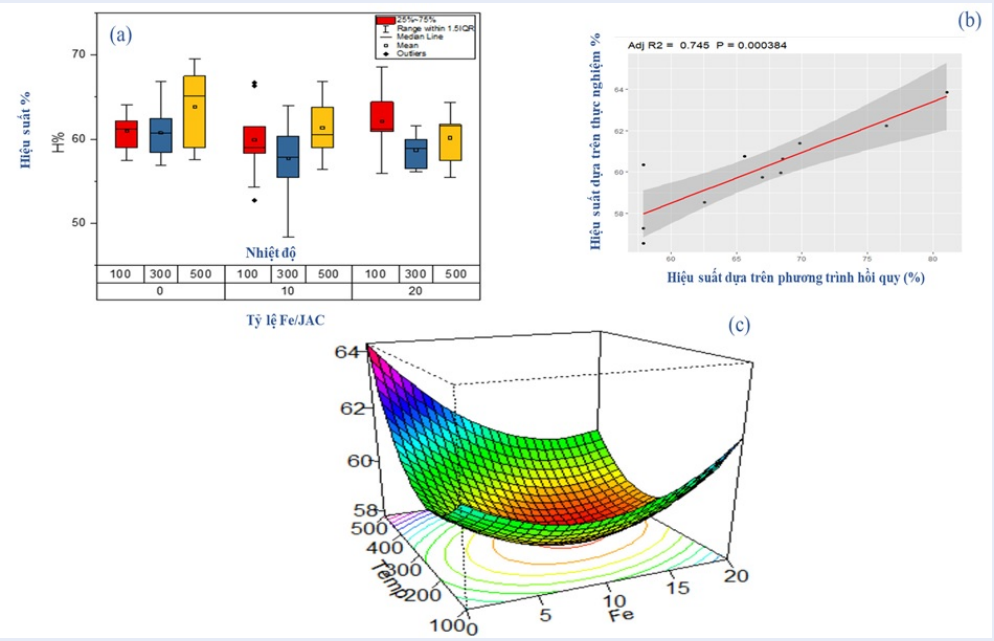
Bảng 1: Thành phần khối lượng (%) trong các mẫu xúc tác nung ở 500°C

Thành phần nguyên tố	% Khối lượng		
	JC500Fe0	JC500Fe10	JC500Fe20
C	68,8	54,4	39,6
O	26,9	31,8	37,7
Fe	0,0	6,3	13,9

Bảng 2: Kết quả mô hình hồi qui

	Hệ số hồi quy	Sai số	Giá trị t	Pr(>|t|)
Hệ số chặn	57,89553	0,61108	94,7423	< 2,2e-16 ***
hiệt độ	0,78659	0,97263	0,8087	0,420735
Tỷ lệ Fe/JC	1,53365	0,97263	-1,5768	0,118234.
Nhiệt độ × tỷ lệ Fe/JC	4,82624	2,38244	-2,0258	0,045656 *
(Nhiệt độ)2	9,83665	2,99369	3,2858	0,001435 **
(Tỷ lệ Fe/JC)2	6,19095	2,99369	2,0680	0,041417 *

*Kí hiệu đặc trưng cho mức ý nghĩa thống kê 0 '***' , 0.001 '**', 0.01 '*', 0.05 '.' , 0.1 ' ' 1*



Hình 3: Biểu đồ hộp cho hiệu suất loại bỏ PCP ở các điều kiện nhiệt độ và tỷ lệ Fe/JC khác nhau (a); Bề mặt đáp ứng 3D của hiệu suất PCP với các tỷ lệ Fe/JC và nhiệt độ khác nhau (b); Đồ thị tương quan giữa thực nghiệm và hồi quy (c).

được thể hiện ở việc tăng cường độ peak theo nhiệt độ của số sóng 500–700 cm^{-1} trong Hình 2b. Tuy nhiên, cần tiến hành các nghiên cứu sâu hơn về nhiệt động lực học để khẳng định thêm về kết luận này.

Khảo sát lượng sắt tan trong dung dịch

Hiệu suất loại bỏ PCP bằng Fenton dị thể phụ thuộc vào lượng sắt tan trong dung dịch và sắt có trên bề mặt xúc tác Fenton. Vì vậy, lượng sắt tan trong dung dịch của xúc tác JC500Fe20 được phân tích và thể hiện trong Hình 4. Kết quả cho thấy hiệu quả loại bỏ PCP trong nước đạt 62,1±3,8% với lượng sắt tan trong dung dịch dưới tiêu chuẩn (2 mg L^{-1}). Kết quả hiệu suất loại bỏ PCP được thể hiện trong Hình 4 còn cho thấy hệ xúc tác H_2O_2+ Fe/JC cho hiệu suất cao hơn nhiều so với oxi hóa học bởi H_2O_2 và hấp phụ bởi Fe/JC. Điều này cho thấy quá trình loại bỏ PCP được thực hiện với quá trình oxi hóa Fenton dị thể.

Dựa vào các kết quả thu được trong nghiên cứu này bao gồm sự hình thành pha hoạt tính Fe_2O_3, sự liên kết giữa JC và sắt, sắt tan trong dung dịch trong quá trình loại bỏ PCP, quá trình phân hủy PCP trong nước có thể được minh họa như trong Hình 5:

Các gốc tự do $^{\cdot}OH/HO_2^{\cdot}$ có thể sinh ra từ: (1) sắt tan từ xúc tác JC500Fe20 ở pH3; (2) xúc tác JC500Fe20 phản ứng với H_2O_2 theo các phản ứng sau đây:

1. Sắt tan từ JC500Fe20 trong môi trường axit:

Fe_2O_3@JCà$Fe^{3+}{}_{(aq)}$+ H_2O_2à$Fe^{2+}{}_{(aq)}$+ $HO_2^{\cdot}$ + H^+

$Fe^{2+}{}_{(aq)}$ + H_2O_2 à $Fe^{3+}{}_{(aq)}$ + $^{\cdot}OH$ + H^+

1. Xúc tác JC500Fe20 phản ứng với H2O2:

Fe_2O_3@JC + H_2O_2à Fe_2O_3@JC-Fe^{2+}+$HO_2^{\cdot}$+ H^+

Fe_2O_3@JC-Fe^{2+} + H_2O_2à $Fe^{3+}{}_{(aq)}$ + $^{\cdot}OH$ + H^+

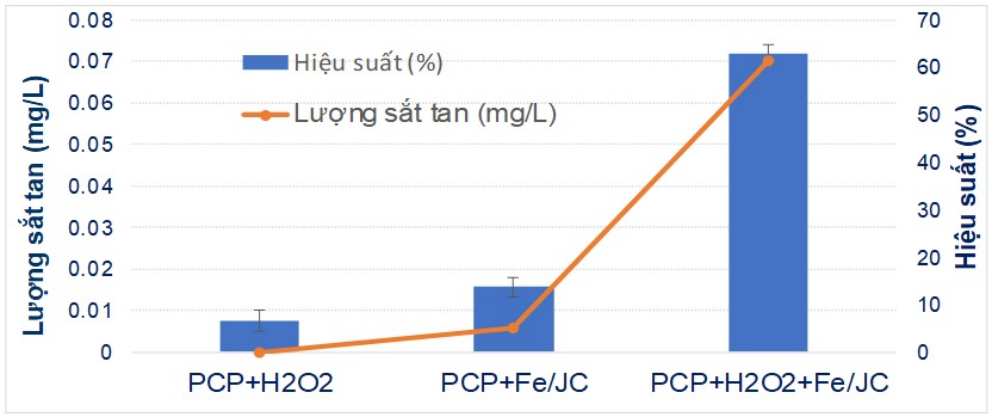
Các gốc tự do $^{\cdot}OH/HO_2^{\cdot}$ sẽ tiếp tục phản ứng với PCP để thành các chất ít độc hơn hoặc khoáng hóa thành CO_2 và H_2O theo phản ứng sau đây:

$^{\cdot}OH/^{\cdot}O_2$ + PCP à các chất ít độc hơn PCP hoặc CO_2 + H_2O.

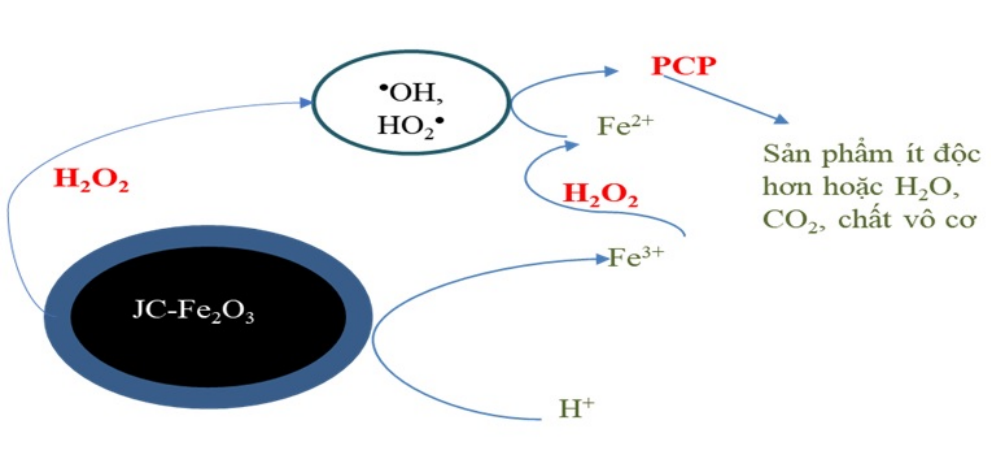
Các gốc tự do$^{\bullet}OH/HO_2^{\bullet}$ sẽ tiếp tục phản ứng với PCP để có thể hình thành các chất ít độc hơn hoặc khoáng hóa thành CO_2 và H_2O. Tuy nhiên, việc đo đạc các sản phẩm ít độc hơn bằng GC/MS hoặc khả năng khoáng hóa bằng TOC cần được thực hiện để làm rõ cơ chế phản ứng bằng xúc tác Fenton từ vỏ mít.

KẾT LUẬN

Mô hình hồi quy bậc 2 được sử dụng để khảo sát ảnh hưởng của các yếu tố cho tương tác và đơn lẻ bậc hai của nhiệt độ nung và tỷ lệ Fe/JC có ảnh hưởng thống kê lên quá trình loại bỏ PCP trong nước trong nghiên cứu này. Điều kiện nhiệt độ nung xúc tác từ 100 đến 500°C và tỷ lệ Fe/JC từ 0 đến 20% được sử dụng để khảo sát. Kết quả hiệu suất phân hủy PCP trên cơ chế



Hình 4: Hiệu quả loại bỏ PCP trong nước và lượng sắt tan trong dung dịch với H_2O_2, Fe/JC và JC500Fe20+H_2O_2



Hình 5: Quá trình loại bỏ PCP trong nước và lượng sắt tan trong dung dịch với JC500Fe20+H_2O_2.

Fenton dị thể có hiệu quả khi thực hiện nung ở nhiệt độ từ 298°C đến 500°C và tỷ lệ Fe/JC từ 12,4 đến 20%. Thực nghiệm cho thấy trong các xúc tác chế tạo, mẫu JC500Fe20 có khả năng liên kết với sắt cao nhất với tỷ phần khối lượng là 13,9% Fe/JC ở điều kiện nung 500°C và có bề mặt vật liệu với lỗ xốp lớn và tâm hoạt tính là g-Fe_2O_3, kích thước hạt tròn khoảng 500–700 nm, phân tán trên bề mặt than vỏ mít và cho hiệu quả phân hủy PCP đạt khoảng 62,1±3,8%. Các kết quả của nghiên cứu cho thấy xúc tác dị thể Fenton từ sắt trên than hoạt tính vỏ mít thể hiện hoạt tính phân hủy PCP và có khả năng ứng dụng vào thực tiễn.

LỜI CẢM ƠN

Nghiên cứu này được tài trợ bởi Đại học Quốc gia Thành phố Hồ Chí Minh (ĐHQG-HCM) trong khuôn khổ đề tài mã số B2022-28-07.

XUNG ĐỘT LỢI ÍCH

Các tác giả đồng ý không có bất kỳ xung đột lợi ích nào liên quan đến các kết quả đã công bố

ĐÓNG GÓP CỦA TÁC GIẢ

Đái Huệ Ngân, Nguyễn Hoàng Yến Nhi viết bản thảo, phân tích số liệu. Nguyễn Hoàng Yến Nhi, Nguyễn Thị Thu Ngân và Bạch Lê Quỳnh Trang: thực hiện các thí nghiệm khảo sát. Đăng Ngọc Quân: thực hiện phân tích các mẫu thí nghiệm. Ngô Thị Thuận: hình thành ý tưởng, định hướng và lên kế hoạch nghiên cứu; chỉnh sửa bản thảo.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

1. Garbou AM, Clausen CA, Yestrebsky CL. Comparative study for the removal and destruction of pentachlorophenol using activated magnesium treatment systems. Chemosphere. 2017;166:267-274;PMID: 27700993. Available from: https://

doi.org/10.1016/j.chemosphere.2016.09.139.

2. Rahmani AR, Jorfi S, Asgari G, Zamani F, Almasi H, Masoumi Z. A comparative study on the removal of pentachlorophenol using copper-impregnated pumice and zeolite. J Environ Chem Eng. 2018;6(2):3342-3348;Available from: https://doi.org/10.1016/j.jece.2018.05.014.
3. Long M, Ilhan ZE, Xia S, Zhou C, Rittmann BE. Complete dechlorination and mineralization of pentachlorophenol (PCP) in a hydrogen-based membrane biofilm reactor (MBfR). Water Res. 2018;144:134-144;PMID: 30025265. Available from: https://doi.org/10.1016/j.watres.2018.06.071.
4. Chen Y, Lin CJ, Fu S, Zhan H. Effect of oxygen availability on the removal efficiency and sludge characteristics during pentachlorophenol (PCP) biodegradation in a coupled granular sludge system. Water Sci Technol. 2010;61(7):1885-1893;PMID: 20371948. Available from: https://doi.org/10.2166/wst.2010.265.
5. Prabowo B, Veriansyah B, Kim JD. Hydrothermal decomposition of pentachlorophenol in subcritical and supercritical water with sodium hydroxide addition. J Environ Sci. 2007;19(6):663-666;PMID: 17969637. Available from: https://doi.org/10.1016/S1001-0742(07)60111-9.
6. Yu L, Yang X, Ye Y, Peng X, Wang D. Silver nanoparticles decorated anatase TiO_2 nanotubes for removal of pentachlorophenol from water. J Colloid Interface Sci. 2015;453:100-106;PMID: 25982935. Available from: https://doi.org/10.1016/j.jcis.2015.04.057.
7. Thuan NT, Khoi TT, Chi NTM, Vinh NN. Removal of methyl orange by heterogeneous fenton process using iron dispersed on alumina pillared bentonite pellet. Sci Technol Dev J. 2020;23(2);Available from: https://doi.org/10.32508/stdj.v23i2.2139.
8. Shen C, Ma J, Liu W, Wen Y, Rashid S. Selective conversion of organic pollutant p-chlorophenol to formic acid using zeolite Fenton catalyst. Chemosphere. 2016;161:446-453;PMID: 27459155. Available from: https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2016.07.038.
9. Ortiz De La Plata GB, Alfano OM, Cassano AE. Decomposition of 2-chlorophenol employing goethite as Fenton catalyst. I. Proposal of a feasible, combined reaction scheme of heterogeneous and homogeneous reactions. Appl Catal B Environ. 2010;95(1-2):1-13;Available from: https://doi.org/10.1016/j.apcatb.2009.12.005.
10. Le STT, Ngo TT, Khanitchaidecha W, Nakaruk A. Synthesis of iron/GAC catalyst for wastewater treatment using heterogeneous Fenton reaction. Bull Mater Sci. 2015;38(4):1039-1042;Available from: https://doi.org/10.1007/s12034-015-0939-3.
11. Cheng R, Cheng C, Liu G, Zheng X, Li G, Li J. Removing pentachlorophenol from water using a nanoscale zero-valent iron/H_2O_2 system. Chemosphere. 2015;141:138-143;PMID: 26184790. Available from: https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2015.06.087.
12. Nguyen TD, Phan NH, Do MH, Ngo KT. Magnetic Fe_2MO_4 (M: Fe, Mn) activated carbons: Fabrication, characterization and heterogeneous Fenton oxidation of methyl orange. J Hazard Mater. 2011;185(2-3):653-661;PMID: 20952129. Available from: https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2010.09.068.
13. Brahma R, Ray S. In-depth analysis on potential applications of jackfruit peel waste: A systematic approach. Food Chem Adv. 2022;1:100119;Available from: https://doi.org/10.1016/j.focha.2022.100119.
14. Assila O, Barros O, Fonseca AMF, Parpot P, Soares OSGP, Pereira MFR, et al. Degradation of pollutants in water by Fenton-like oxidation over LaFe-catalysts: Optimization by experimental design. Microporous Mesoporous Mater. 2023;349:112422;Available from: https://doi.org/10.1016/j.micromeso.2022.112422.
15. Assila O, Vilaça N, Bertão AR, Fonseca AM, Parpot P, Soares OSGP, et al. Optimization of iron-ZIF-8 catalysts for degradation of tartrazine in water by Fenton-like reaction. Chemosphere. 2023;339:139634;.
16. Doan TV, Le VX, To HT, Ngo TT. Investigation of a clean up procedure for chlorophenols in soil by ultrasonic and solid phase extraction. Sci Technol Dev J Nat Sci. 2019;2(2):118-124;Available from: https://doi.org/10.32508/stdjns.v2i2.744.
17. Rubeena KK, Reddy PHP, Laiju AR, Nidheesh PV. Iron impregnated biochars as heterogeneous Fenton catalyst for the degradation of acid red 1 dye. J Environ Manage. 2018;226:320-328;PMID: 30125811. Available from: https://doi.org/10.1016/j.jenvman.2018.08.055.
18. Shin J, Bae S, Chon K. Fenton oxidation of synthetic food dyes by Fe-embedded coffee biochar catalysts prepared at different pyrolysis temperatures: A mechanism study. Chem Eng J. 2021;421:129943;Available from: https://doi.org/10.1016/j.cej.2021.129943.
19. Liu X, Yin H, Lin A, Guo Z. Effective removal of phenol by using activated carbon supported iron prepared under microwave irradiation as a reusable heterogeneous Fenton-like catalyst. J Environ Chem Eng. 2017;5(1):870-876;Available from: https://doi.org/10.1016/j.jece.2017.01.010.
20. Yang Q, Wang X, Luo W, Sun J, Xu Q, Chen F, et al. Effectiveness and mechanisms of phosphate adsorption on iron-modified biochars derived from waste activated sludge. Bioresour Technol. 2018;247:537-544;PMID: 28972907. Available from: https://doi.org/10.1016/j.biortech.2017.09.136.

Science & Technology Development Journal – Science of The Earth & Environment 2024, ():1-1

Open Access Full Text Article

Research Article

Statistical Effect Of Activation Condition for Heterogeneous Fenton Catalyst Derived From Jackfruit Peel Waste on Pentachlorophenol Removal in Water

Dai Hue Ngan[1,2], Nguyen Hoang Yen Nhi[1,2], Nguyen Thi Thu Ngan[2,3], Bach Le Quynh Trang[1,2], Dang Ngoc Quân[2,3], Ngo Thi Thuan[2,3,*]

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

[1]*Faculty of Chemistry, University of Science, 4th Ward, District 5, Ho Chi Minh City, Vietnam.*

[2]*Vietnam National University, Linh Trung Ward, Thu Duc City, Ho Chi Minh City, Vietnam.*

[3]*School of Chemical and Environmental Engineering, International University,Quarter 6, Linh Trung Ward, Thu Duc City, Ho Chi Minh City, Vietnam.*

Correspondence

Ngo Thi Thuan, Vietnam National University, Linh Trung Ward, Thu Duc City, Ho Chi Minh City, Vietnam.

School of Chemical and Environmental Engineering, International University,Quarter 6, Linh Trung Ward, Thu Duc City, Ho Chi Minh City, Vietnam.

Email: ntthuan@hcmiu.edu.vn

History

- Received: 15-4-2024
- Accepted: 25-6-2024
- Published Online:

DOI :

Check for updates

ABSTRACT

Application of heterogeneous Fenton catalyst based activated carbon derived from biomass for persistent organic pollutant's removal in wastewater has been considered a promising treatment approach toward circular economy and environmental protection. However, statistical evaluation on preparation conditions for a catalyst derived from jackfruit peel applied for Pentachlorophenol (PCP) degradation in water has not been investigated yet. This study investigated statistically single and the combined effect of temperature and ratio between iron and activated carbon produced from jackfruit peel (Fe/JAC) on capability of PCP degradation in water. Physio-chemical characteristics of Fe/JAC catalyst including surface morphology, crystal structure, element contribution and surface functional groups were analyzed with methods of Scanning Electron Microscopy (SEM), X-ray Diffraction (XRD), Energy Dispersive X-ray Spectroscopy (EDS) and Fourier Transform Infrared Spectroscopy (FTIR), respectively. The results revealed that synergetic and quadratic effects of temperature and Fe/JAC ratio were statistical contributors on the PCP degradation in water. The results of the quadratic model indicated effective degradation of PCP in water when temperature and Fe/JAC ratio were from 298°C to 500 and 12.4 to 20.0%, respectively. The Fenton catalytic properties for PCP decomposition in the best conditions of 20%Fe/JAC at 500°C has large pores with the active sites of Fe_2O_3 with size ranged from 500 to 700 nm and oxygen functional groups.

Key words: Heterogeneous Fenton catalyst, biomass, Pentachlorophenol, wastewater

Cite this article : Ngan D H, Nhi N H Y, Ngan N T T, Trang B L Q, Quân D N, Thuan N T. **Statistical Effect Of Activation Condition for Heterogeneous Fenton Catalyst Derived From Jackfruit Peel Waste on Pentachlorophenol Removal in Water**. *Sci. Tech. Dev. J. - Sci. Earth Environ.* 2024; ():1-1.