

# Nghiên cứu tổng hợp và ảnh hưởng của nồng độ dung dịch đến khả năng hấp phụ Congo Red của vật liệu từ tính graphit tróc nở EG@CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>

Nguyễn Thị Hồng Thắm<sup>1,\*</sup>, Đào Thị Tố Uyên<sup>1</sup>, Đào Huỳnh Phúc<sup>1</sup>, Nguyễn Đình Phúc<sup>2</sup>,  
Triệu Tuấn Anh<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Viện Kỹ thuật Công nghệ cao Nguyễn Tất Thành, Đại Học Nguyễn Tất Thành

<sup>2</sup>Khoa Kỹ thuật Môi trường - Thực phẩm, Đại học Nguyễn Tất Thành

\*nththam@ntt.edu.vn

## Tóm tắt

Trong nghiên cứu này, vật liệu từ tính graphit tróc nở được tổng hợp thành công bằng phương pháp sol – gel. Cấu trúc vật liệu được đánh giá bằng các phương pháp phân tích nhiễu xạ tia X (XRD), kính hiển vi điện tử quét (SEM), quang phổ hồng ngoại chuyển đổi Fourier FT-IR và đường đẳng nhiệt hấp phụ - khử hấp phụ N<sub>2</sub> (BET). Kết quả phân tích XRD cho thấy, tinh thể EG@CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> đã được hình thành với độ tinh thể cao, phù hợp với kết quả phân tích SEM được thể hiện ở sự đồng nhất cấu trúc, sự có mặt các tinh thể có kích thước lớn, bề mặt lớn. Bên cạnh đó, mẫu vật liệu từ tính graphit tróc nở có khả năng hấp phụ Congo Red (RhB) lớn hơn so với mẫu không nạp graphit tróc nở, do chứa nhiều nhóm chức hoạt động bề mặt hơn. Cụ thể, phương pháp định lượng bằng chuẩn độ Boehm đã được sử dụng để xác định hàm lượng các nhóm chức: axit cacboxylic (0,044mmol/g), phenol (0,032mmol/g), lacton (0,020mmol/g) và tổng bazơ (0,0156mmol/g). Mặt khác, nồng độ dung dịch có sự ảnh hưởng rõ rệt đến dung lượng hấp phụ và cao nhất ở nồng độ 60mg/l với thời gian cân bằng hấp phụ là 120 phút đạt được 98,60mg/g.

Nhận 09.08.2019  
Được duyệt 01.11.2019  
Công bố 25.12.2019

Từ khóa  
Graphit tróc nở, từ tính,  
Congo Red, XRD, FT-  
IR, BET, SEM, hấp phụ

© 2019 Journal of Science and Technology - NTTU

## 1 Giới thiệu

Thuốc nhuộm là một thành phần khó xử lý của nước thải dệt nhuộm. Với đặc tính độc hại, có khả năng gây ung thư cao nếu thuốc nhuộm tồn tại trong môi trường nước[1]. Việc tìm ra công nghệ mới để giảm ô nhiễm với chi phí đầu tư thấp nhưng hiệu quả, đáp ứng yêu cầu ngày càng cao của môi trường, đang được quan tâm. Cụ thể, một số chất màu hữu cơ tồn dư trong nước thải dệt nhuộm như Methylene Blue, Congo Red, Acid Red, Methyl Orange, Methyl Red,... có thể gây ảnh hưởng trực tiếp đến đời sống, sức khỏe và sinh hoạt của con người[2,3]. Vì vậy, việc xử lý nước thải ngay tại các nhà máy, khu công nghiệp là vô cùng cần thiết và đòi hỏi sự đầu tư nghiên cứu. Công nghệ xử lý nước thải dệt nhuộm hiện nay thường là keo tụ, fenton đồng thể và sinh học hiếu khí[3,4]. Các công nghệ này, nếu kết hợp với nhau đúng trình tự và vận hành tốt, có thể xử lý độ màu trong nước thải dệt nhuộm nhưng chi phí vận hành, chi phí đầu tư và mức độ

phức tạp trong vận hành rất cao[5]. Các nhà khoa học công nghệ đã tiến hành nhiều công trình nghiên cứu khác nhau theo hướng mới, đáng chú ý là việc chế tạo chất hấp phụ hiệu quả và có khả năng tái sử dụng cao.

Trong nhiều thập kỉ, nhiều nghiên cứu trên thế giới đã tập trung vào sự phát triển của vật liệu than chì cho các ứng dụng trong nhiều lĩnh vực khác nhau, từ xúc tác, pin, xử lý môi trường, y sinh cho các thiết bị điện[6,7]. Cấu trúc than chì được xây dựng bởi các lớp carbon, liên kết thông qua tương tác van der Waals yếu, gây ra bởi quỹ đạo  $\pi$  được tối ưu hóa với liên kết cộng hóa trị và kim loại trong mỗi lớp[8]. Than chì có một phạm vi độc đáo của tính chất bao gồm khúc xạ, ổn định kích thước cao, trợ hóa học, điện cao và độ dẫn nhiệt[9]. Tuy nhiên, dạng tự nhiên của than chì thô có phạm vi ứng dụng rất hẹp. Do đó, các phương pháp xử lý hóa học/vật lý khác nhau đã được đề xuất để biến đổi than chì xuất hiện tự nhiên thành các dạng tích cực hơn. Chẳng hạn, than chì tẩy tế bào chết (EG) với khoảng cách xen kẽ mở

rộng được điều chế thông qua xen kẽ hóa học phản ứng và gia nhiệt nhanh ở nhiệt độ cao trong hỗn hợp, hoặc dưới plasma kết hợp, laser chiếu xạ và chiếu xạ vi sóng (MW) đã được tìm thấy để thể hiện khả năng nén cao, khả năng phục hồi, hành vi ổn định nhiệt. EG đã được nghiên cứu rộng rãi cho các ứng dụng như gioăng, cách điện nhiệt, vật liệu tổng hợp chống cháy, cảm biến, chất xúc tác, vật liệu y sinh và chất hấp phụ để loại bỏ các chất ô nhiễm nguy hiểm[10-12].

Những hạt nano từ tính (NPs) có tính chất vật lý và hóa học tốt giống như tính siêu thuận từ, diện tích bề mặt riêng cao[13]. Các hạt nano mang từ tính đã và đang được sử dụng trong nhiều lĩnh vực, đặc biệt trong xử lý nước. Ưu điểm chính của nó là tồn tại trong xử lý một lượng lớn nước thải trong thời gian ngắn và không tạo ra chất bẩn. Hiện tại graphite/Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> và CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> – graphite đã gắn nhóm chức đã và đang được tổng hợp để loại bỏ thuốc nhuộm trong nước[14]. Vì vậy, kỹ thuật chính cho ứng dụng lớn của nó trong lĩnh vực xử lý nước là quá trình tổng hợp vật liệu ferrit từ tính và các chất hấp phụ dựa trên nanocomposit EG-ferrit với độ từ hóa cao, có thể đảm bảo khả năng phân tách chất hấp phụ từ tính cao.

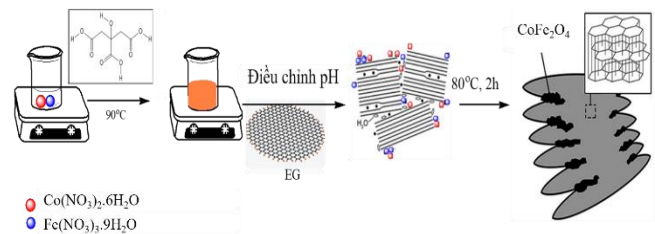
Bên cạnh đó, việc tạo composite với graphite trơn nở giúp ngăn chặn quá trình tái tổ hợp điện tử của Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> và nâng cao hoạt tính xúc tác do sự tương tác giữa Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> và graphen[15]. Trong những năm qua, spinel các loại hạt nano ferrit (NPs) với công thức chung MFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> (M = Mn, Fe, Co, Ni, Cu) đã được sử dụng nhiều trong ứng dụng như lưu trữ từ mật độ cao, xúc tác quang hóa và xử lý môi trường, do đặc tính nổi bật của nó có kích thước nanomet, diện tích bề mặt lớn, siêu thuận từ và độ bão hòa từ cao. Sự thu hồi của vật liệu từ tính MFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> là khá dễ dàng bằng cách sử dụng từ trường cho dung dịch sau phản ứng, do vậy cho hiệu quả chi phí và cho khả năng ứng dụng thực tế. Gần đây, CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> được tìm thấy do có tính năng trong quá trình kích hoạt phản ứng oxi hóa các chất độc hữu cơ[16]. Mặc dù CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> thể hiện hiệu suất xúc tác cao, diện tích bề mặt lớn và tính chất từ độc đáo của vật liệu nano ferrit dẫn đến sự kết hợp kết quả cho xúc tác hiệu quả thấp. Để giải quyết vấn đề này, một số vật liệu cacbon có độ dẫn điện cao và được sử dụng như chất nền cho CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> phân tán lên bề mặt lớn, nâng cao hiệu quả xúc tác. So với các vật liệu cacbon khác như than hoạt tính, than chì, CNTs thì graphite trơn nở được sự chú ý nhiều hơn để hỗ trợ kim loại và oxit kim loại do nó có độ dẫn điện cao, độ bền cơ học, diện tích bề mặt lớn.

Trong nghiên cứu này, vật liệu từ tính graphite trơn nở EG@CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> được xem là loại vật liệu mới, có cấu trúc đa dạng và có thể được sử dụng để làm chất hấp phụ loại bỏ chất độc môi trường.

## 2 Thực nghiệm

### 2.1 Tổng hợp vật liệu EG@CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>

Quy trình tổng hợp vật liệu nanocomposite EG@CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> được thể hiện trong Hình 1. Cụ thể, hỗn hợp Co(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>.6H<sub>2</sub>O và Fe(NO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>.9H<sub>2</sub>O theo tỉ lệ mol 2:1 được gia nhiệt chậm và khuấy mạnh trên bếp từ đến khi đạt 90°C. Cho dung dịch axit citric nồng độ 0,02M (số mol axit/số mol Fe<sup>3+</sup> là 4:1) vào với tốc độ 1 giọt/giây và để hỗn hợp tự phản ứng ở nhiệt độ 90°C trong 1 giờ. Hỗn hợp được điều chỉnh pH bằng dung dịch NH<sub>3</sub> đến khi thấy vẩn xuất hiện trên bề mặt trong bình phản ứng. Sau đó, EG (tỉ lệ EG/CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> là 3:1) thêm vào từ từ và đảo trộn nhẹ tới khi EG không còn nổi lên trên bề mặt trong 10 phút. Cuối cùng hỗn hợp gel được sấy ở 80°C trong 20 giờ để khô hoàn toàn. Sử dụng lò nung Muffle để tách bóc các lớp graphite một lần nữa.



**Hình 1** Sơ đồ quy trình tổng hợp EG@CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>

Cấu trúc vật liệu được xác định bằng phương pháp phổ nhiễu xạ tia X thực hiện trên máy D8 Advance Bruker, ống phát tia Ronggen với bước sóng  $\lambda = 1,5406 \text{ \AA}$ , góc quét  $2\theta$  thay đổi từ 10 đến 80°. Phương pháp phổ hồng ngoại được thực hiện bằng máy phổ hồng ngoại OPUS Bruker Tensor 27 FT-IR. Phương pháp SEM đo trên máy JSM 7401F. Phương pháp BET được thực hiện trên thiết bị TriStar 3000 V6.07 A

### 2.2 Thí nghiệm hấp phụ

Khả năng hấp phụ của các mẫu vật liệu đã tổng hợp được đánh giá thông qua quá trình hấp phụ Congo Red (CR). CR được lựa chọn cho quá trình hấp phụ vì nó là một chất màu âm, ít bị ảnh hưởng bởi môi trường và bền ở điều kiện thường trong một thời gian dài. Quá trình thực nghiệm được tiến hành như sau: 50mg vật liệu và 100ml CR ở các nồng độ 20, 30, 40, 50 và 60mg/l được cho vào bình tam giác ổn định ở nhiệt độ phòng, hỗn hợp được khuấy trộn bằng khuấy từ với tốc độ là 200 vòng/phút. Dung dịch được lấy ra ở các khoảng thời gian nhất định. Li tâm lấy phần dung dịch, sau đó đưa đi xác định nồng độ CR bằng máy quang phổ UV-Vis Lambda 35 ở bước sóng  $\lambda = 570\text{nm}$ .

### 2.3 Thí nghiệm chuẩn độ Boehm

Các nhóm chức có tính axit và bazơ trên vật liệu graphite trơn nở được xác định một cách định lượng bằng phương pháp chuẩn độ Boehm. Trong phương pháp này 0,025 gam graphite trơn nở được ngâm trong 25ml các dung dịch NaOH 0,01M; Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> 0,01M; NaHCO<sub>3</sub> 0,01M và HCl 0,01M trong 48 giờ. Tiến hành gạn lọc và xác định nồng độ dung dịch sau ngâm

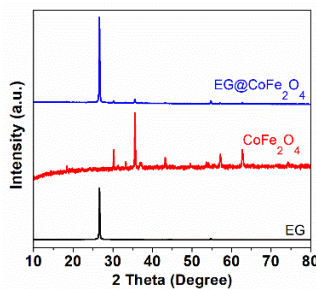
bằng phương pháp chuẩn độ thể tích. Từ sự chênh lệch nồng độ trước và sau khi ngâm sẽ tính được lượng chất phản ứng với các nhóm chức trên vật liệu. Cụ thể ở đây, NaOH được coi là trung hòa các nhóm cacboxylic, lacton, phenol; Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> trung hòa các nhóm cacboxylic và lacton; cuối cùng NaHCO<sub>3</sub> trung hòa nhóm cacboxylic. Các nhóm có tính bazơ được trung hòa bởi HCl. Kết quả được trình bày trong Bảng 1.

**Bảng 1** Kết quả chuẩn độ Boehm

Mẫu	Lượng nhóm chức (mmol/g)				
	Cacboxyl	Phenol	Lacton	Axitt tổng	Bazơ tổng
CoFe <sub>2</sub> O <sub>4</sub>	0	0	0	0	0
EG@CoFe <sub>2</sub> O <sub>4</sub>	0,020	0,044	0,032	0,096	0,156

### 3 Kết quả và thảo luận

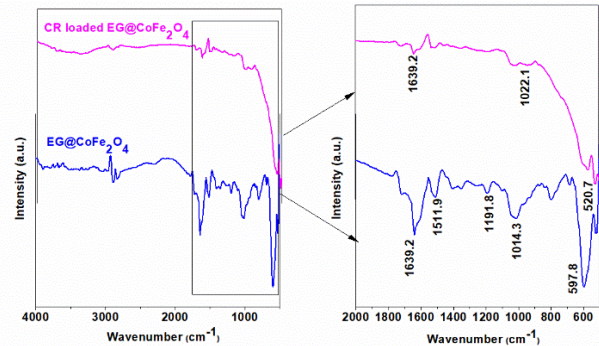
**3.1 Kết quả đặc trưng cấu trúc của vật liệu EG@CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>**  
 Cấu trúc tinh thể của các vật liệu nanocomposite đầu tiên được đặc trưng bởi phương pháp nhiễu xạ tia X với phổ đồ được thể hiện trong Hình 2. Peak đặc trưng của vật liệu graphit trơn nỡ EG tại 26,6°, hoàn toàn phù hợp với các nghiên cứu về vật liệu này trước đó. Điều này, chứng tỏ EG đã được tổng hợp thành công [17]. Theo đó, một đỉnh cực đại ở 26,6° một lần nữa lặp lại ở vị trí không đổi trong phổ của EG @ CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> đã xác nhận rằng EG đã được tổng hợp thành công trong CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>. Cụ thể, các peak trên phổ đồ đặc trưng cho EG@CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> tại các góc 2θ 30,11°, 35,57°, 54,31°, 57,11°, 62,61° [18-21].



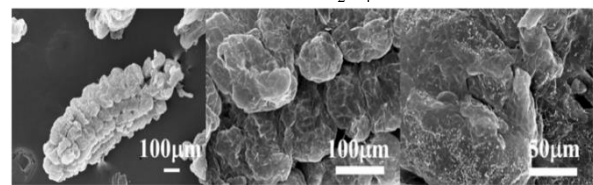
**Hình 2** Giản đồ XRD của EG@CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>

Phổ FT-IR của EG@CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> thể hiện các nhóm chức trên phổ đồ Hình 3. Về mặt lý thuyết, các nhóm hydroxy (-OH) và amin (-NH) có thể được gán cho một dải rộng ở 3400cm<sup>-1</sup> [22]. Các nhóm aldehy xetone/axit/este (C = O) được xác nhận ở khoảng 1730cm<sup>-1</sup> và 1639cm<sup>-1</sup> với cường độ mạnh [23,24]. Ngoài ra, các vùng ở vòng 1520cm<sup>-1</sup> và 1195cm<sup>-1</sup> được qui cho sự tồn tại tương ứng của các liên kết C=C và C-O [25,26]. Mặt khác, sự xuất hiện vùng peak ở 1076cm<sup>-1</sup> có thể do rượu gây ra [27]. Ngoài các đỉnh chính trong EG@CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>, phổ của EG@CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> được hấp phụ CR cũng được trình bày trong Hình 3. Rõ ràng, sự xuất hiện của peak ở vùng 1200-1025cm<sup>-1</sup> có tầm quan trọng đối với liên kết C-N [28]. Trong khi đó, các peak ở vùng 1350-1150cm<sup>-1</sup> đặc trưng cho việc hấp thụ các nhóm -SO<sub>3</sub> và ở

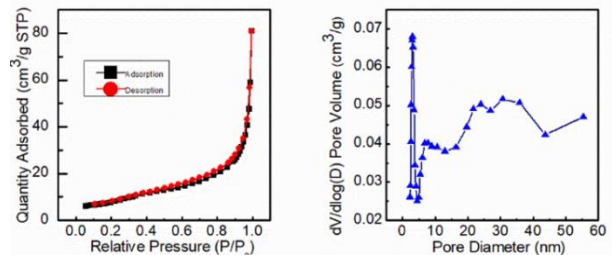
khoảng 1000-750cm<sup>-1</sup> cho các rung động vòng các hợp chất thơm. Tóm lại, qua phổ đồ FT-IR của EG@CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> cho thấy một loạt các liên kết hóa học rất phù hợp để hấp phụ.



**Hình 3** Phổ FT-IR của EG@CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> và CR loaded EG@CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>



**Hình 4** Ảnh SEM của vật liệu EG@CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>



**Hình 5** Đường đẳng nhiệt hấp phụ /giải hấp N<sub>2</sub> (a) và phân bố kích thước lỗ rỗng (b) của EG@CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>

SEM thể hiện hình thái cấu trúc bề mặt và kích thước trung bình của các hạt nanocomposite EG@CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> (Hình 4). Kết quả SEM cho thấy cấu trúc đồng nhất, bề mặt lớn, ổn định của vật liệu EG@CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>.

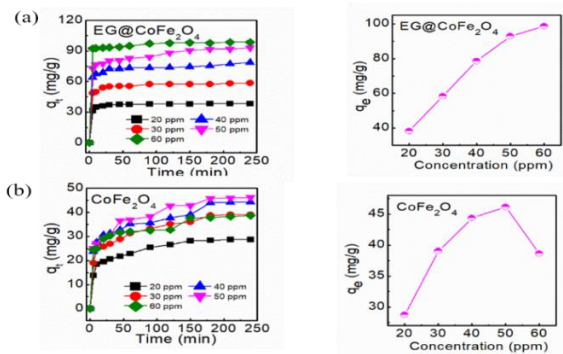
Phương pháp phân tích bề mặt BET (Brunauer-Emmett-Teller) là phương pháp đo đơn lớp hấp phụ - giải hấp phụ đẳng nhiệt khí nitơ, được sử dụng rộng rãi nhất để xác định diện tích bề mặt vật liệu. Kết quả phân tích BET cho thấy, diện tích bề mặt của EG@CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> phù hợp để hấp phụ màu CR (29,11m<sup>2</sup>/g).

**3.2 Kết quả đánh giá ảnh hưởng của thời gian và nồng độ dung dịch đến khả năng hấp phụ của vật liệu**

Hình 6 trình bày kết quả đánh giá sự ảnh hưởng của thời gian và nồng độ dung dịch đến khả năng hấp phụ của EG@CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>. Xu hướng chung của vật liệu từ tính graphit trơn nỡ là sự khử màu xảy ra nhanh chóng ở 30 phút đầu tiên, sau đó từ từ và đạt đến trạng thái cân bằng. Việc kéo dài thời gian hấp phụ ở những thời gian tiếp theo làm khả năng hấp phụ tăng không đáng kể. Có thể giải thích rằng,

việc khử màu nhanh chóng ở thời điểm đầu nhờ “tay bắt” gốc màu của các nhóm chức trên bề mặt vật liệu. Chính vì vậy, càng kéo dài thời gian, khả năng hấp phụ lại tăng không đáng kể do sự suy giảm tương tác giữa nhóm chức bề mặt vật liệu và ion màu.

Ảnh hưởng của nồng độ ban đầu (20, 30, 40, 50 và 60 mg/l) đối với trạng thái cân bằng hấp phụ của CR được trình bày trong Hình 6. Rõ ràng, sự tăng nồng độ ban đầu của CR làm tăng khả năng hấp phụ. Do đó, việc tăng nồng độ giúp hấp phụ CR vào EG@CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> dễ dàng hơn trong khi khả năng hấp phụ CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> đạt dung lượng thấp hơn nhiều. Chính vì thế, vật liệu graphite tróc nở gắn từ tính có thể được sử dụng làm chất hấp phụ ở nồng độ cao hơn so với CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> từ tính.



**Hình 6** Ảnh hưởng của thời gian và nồng độ đến sự hấp phụ CR của: a) EG@CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> b) CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>

### 3.3 Kết quả chuẩn độ Boehm

Từ Bảng 1 nhận thấy trên bề mặt vật liệu từ tính của graphite tróc nở chứa một lượng nhất định các nhóm chức có tính axit và bazơ, trong đó lượng nhóm có tính bazơ lớn hơn so với nhóm chức axit. Ngoài ra, nhóm nghiên cứu còn tiến hành một phản ứng so sánh với vật liệu CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>. Kết quả chỉ ra rằng, trên vật liệu này không chứa các nhóm chức axit và bazơ. Điều này phần nào giải thích được rằng, khi gắn từ tính vào vật liệu graphite tróc nở sẽ giúp vật liệu này có khả năng hấp phụ nhờ xuất hiện các nhóm chức trên bề mặt.

## 4 Kết luận

Đã tổng hợp thành công vật liệu từ tính graphite tróc nở EG@CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> bằng phương pháp sol – gel và đánh giá đặc trưng cấu trúc vật liệu bằng XRD, FT-IR, BET và SEM. Kết quả chỉ ra rằng, vật liệu có độ tinh thể cao, đồng nhất, diện tích bề mặt riêng lớn, phù hợp cho ứng dụng hấp phụ màu Congo Red. Đồng thời, hiệu quả hấp phụ màu Congo Red được đánh giá qua sự ảnh hưởng của thời gian và nồng độ dung dịch. Theo đó, thời gian hấp phụ đạt cân bằng là 120 phút ở nồng độ 60mg/l với dung lượng hấp phụ đạt 98,60mg/g.

### Lời cảm ơn

Nghiên cứu này được tài trợ bởi Quỹ Phát triển Khoa học và Công nghệ Trường Đại học Nguyễn Tất Thành, mã số đề tài 2019.01.20/HĐ-NCKH.

## Tài liệu tham khảo

- Barakat, M.A., Adsorption and photodegradation of Procion yellow H-EXL dye in textile wastewater over TiO<sub>2</sub> suspension. *Journal of Hydro-environment Research*, 2011. 5(2): p. 137-142.
- Chinwetkitvanich, S., M. Tuntoolvest, and T. Panswad, Anaerobic decolorization of reactive dyebath effluents by a two-stage UASB system with tapioca as a co-substrate. *Water Research*, 2000. 34(8): p. 2223-2232.
- Faisal Ibney Hai, Kazuo Yamamoto, and Kensuke Fukushi, Hybrid Treatment Systems for DyeWastewater. *Critical Reviews in Environmental Science and Technology*, 2007. 37: p. 315-377.
- Arslan-Alaton, I., G. Tureli, and T. Olmez-Hanci, Treatment of azo dye production wastewaters using Photo-Fenton-like advanced oxidation processes: Optimization by response surface methodology. *Journal of Photochemistry and Photobiology A: Chemistry*, 2009. 202(2–3): p. 142-153.
- Gogate, P.R. and A.B. Pandit, A review of imperative technologies for wastewater treatment I: oxidation technologies at ambient conditions. *Advances in Environmental Research*, 2004. 8(3–4): p. 501-551.
- Kumar, P., et al., Decolorization and COD reduction of dyeing wastewater from a cotton textile mill using thermolysis and coagulation. *Journal of Hazardous*
- Tawfik, A., D.F. Zaki, and M.K. Zahran, Degradation of reactive dyes wastewater supplemented with cationic polymer (Organo Pol.) in a down flow hanging sponge (DHS) system. *Journal of Industrial and Engineering Chemistry*, 2014. 20(4): p. 2059-2065.
- El-Gohary, F. and A. Tawfik, Decolorization and COD reduction of disperse and reactive dyes wastewater using chemical-coagulation followed by sequential batch reactor (SBR) process. *Desalination*, 2009. 249(3): p. 1159-1164.

9. Lu, X., et al., Treatment of wastewater containing azo dye reactive brilliant red X-3B using sequential ozonation and upflow biological aerated filter process. *Journal of Hazardous Materials*, 2009. 161(1): p. 241-245.
10. de Souza, S.M.d.A.G.U., K.A.S. Bonilla, and A.A.U. de Souza, Removal of COD and color from hydrolyzed textile azo dye by combined ozonation and biological treatment. *Journal of Hazardous Materials*, 2010. 179(1–3): p. 35-42.
11. Spagni, A., et al., Treatment of a simulated textile wastewater containing the azo-dye reactive orange 16 in an anaerobic-biofilm anoxic-aerobic membrane bioreactor. *International Biodeterioration & Biodegradation*, 2010. 64(7): p. 676-681.
12. Zhang, J., et al., Reduction of acute toxicity and genotoxicity of dye effluent using Fenton-coagulation process. *Journal of Hazardous Materials*, 2014. 274: p. 198-204.
13. Goei, R. and T.-T. Lim, Ag-decorated TiO<sub>2</sub> photocatalytic membrane with hierarchical architecture: Photocatalytic and anti-bacterial activities. *Water Research*, 2014. 59: p. 207-218.
14. Juang, Y., et al., A hybrid electrochemical advanced oxidation/microfiltration system using BDD/Ti anode for acid yellow 36 dye wastewater treatment. *Separation and Purification Technology*, 2013. 120: p. 289-295.
15. Liu, Y., et al., Effects of an electric field and zero valent iron on anaerobic treatment of azo dye wastewater and microbial community structures. *Bioresource Technology*, 2011. 102(3): p. 2578-2584.
16. S. Stankovich, D.A. Dikin, R.D. Piner, K.A. Kohlhaas, A. Kleinhammes, Y. Jia, Y. Wu, S.T. Nguyen, R.S. Ruoff, Synthesis of graphene-based nanosheets via chemical reduction of exfoliated graphite oxide, *Carbon N. Y.* 45 (2007) 1558–1565.
17. Fujun Liu, 1 Sophie Laurent, 1 Alain Roch, 1 Luce Vander Elst, 1 and Robert N.Muller1, B. 1 Department of General, Organic and Biomedical Chemistry, NMR and Molecular Imaging Laboratory, University of Mons, 7000 Mons, and B. C. should be addressed to R. N. M. robert.muller@umons.ac.be. R. 2 Center for Microscopy and Molecular Imaging (CMMI), Académie Wallonie, Bruxelles, 6041 Charleroi-Gosselies, “Size-Controlled Synthesis of CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> Nanoparticles Potential Contrast Agent for MRI and Investigation on Their.”
18. O. Isakin et al., “Ultrasound-assisted one-pot syntheses of ZnO nanoparticles that are homogeneously adsorbed on exfoliated graphite and a simplified method to determine the graphite layer thickness in such composites,” *J. Mater. Sci.*, vol. 53, no. 9, pp. 6586–6601, 2018.
19. a S. K. J. and A. N. G. Chella Santhosh, a Pratap Kollu, b Sathiyathan Felix, “CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> and NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> @ graphene adsorbents for heavy metal ions – Kinetic and Thermodynamic analysis.” 2015.
20. A. C. K. Maaz, Arif Mumtaz+, S.K. Hasanain, “Synthesis and Magnetic Properties of Cobalt Ferrite (CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>) Nanoparticles Prepared by Wet Chemical Route.”
21. Sivakumar P, Ramesh R, Ramanand A, Ponnusamy S and Muthamizhchelvan C 2011 Preparation and properties of nickel ferrite (NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>) nanoparticles via sol-gel auto-combustion method *Mater. Res. Bull.* 46 2204–7
22. Rahmayeni, Zulhadjri, Jamarun N, Emriadi and Arief S 2016 Synthesis of ZnO-NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> magnetic nanocomposites by simple solvothermal method for photocatalytic dye degradation under solar light *Orient. J. Chem.* 32 1411–9
23. Kasapoğlu N, Baykal A, Toprak M S, Köseoğlu Y and Bayrakdar H 2007 Synthesis and characterization of NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> nano-octahedrons by EDTA-assisted hydrothermal method *Turkish J. Chem.* 31 659–66
24. Ameer S and Gul I H 2016 Influence of reduced graphene oxide on effective absorption bandwidth shift of hybrid absorbers *PLoS One* 11
25. Anon Third-Order Nonlinear Optical Properties of NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> Nanoparticles by Z-scan Technique Authors:
26. L. Shao, Z. Ren, G. Zhang, L. Chen, Facile synthesis, characterization of a MnFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>/activated carbon magnetic composite and its effectiveness in tetracycline removal, *Mater. Chem. Phys.* 135 (2012) 16–24.
27. Zhang, Y., et al., A built-in zero valent iron anaerobic reactor to enhance treatment of azo dye wastewater. *Water Sci Technol*, 2011. 63(4): p. 741-6.
28. A.Y. Hu and D.C. Stuckey, Treatment of dilute wastewaters using a novel submerged anaerobic membrane bioreactor. *Journal of Environmental Engineering*, 2006. 132: p. 190-198.

## Research on synthesis and effects of solution concentration of Magnetic Exfoliated Graphite Material - EG@CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> on Congo Red Dye Adsorption

Nguyen Thi Hong Tham<sup>1,\*</sup>, Dao Thi To Uyen<sup>1</sup>, Dao Huynh Phuc<sup>1</sup>, Nguyen Dinh Phuc<sup>2</sup>, Trieu Tuan Anh<sup>2</sup>

<sup>1</sup> Nguyen Tat Thanh Hi-Tech Institute, Nguyen Tat Thanh University

<sup>2</sup> Faculty of Environmental and Food Engineering, Nguyen Tat Thanh University

\*nththam@ntt.edu.vn

**Abstract** In this study, the magnetic Exfoliated Graphite Material EG@CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> was successfully synthesized through sol-gel method. The characterization of EG@CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> was assessed by X-ray diffraction analysis (XRD), Scanning electron microscope (SEM), Fourier- transform infrared spectroscopy (FT-IR) and N<sub>2</sub> adsorption/desorption isothermal measurement (BET). The results show that EG@CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> was formed with high crystallization, which is quite homogenous. In addition, CR adsorption of EG@CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> is higher than CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> without EG decoration. In particular, the quantity method by Boehm titration was used to identify the contents of functional groups: Carboxylic acid (0.044mmol/g), phenol (0.032mmol/g), lactone (0.020mmol/g) and total base (0.0156mmol/g) on the surface of EG@CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>. Adsorption capacity is the highest at the concentration of 60mg/l with the adsorption equilibrium time of 120 minutes, achieving 98.60mg/g.

**Keywords** Exfoliated Graphite Material, magnetic, Congo Red, XRD, FT-IR, BET, SEM, adsorb