

CHARACTERIZATION AND AMOXICILLIN ADSORPTION OF KOH MODIFIED HYDROCHAR FROM DISTILLED WASTE OF LEMONGRASS

Truong Thi Thao^{1*}, Luong Thi Le Trang^{1,2}

¹TNU - University of Science, ²Trang An Secondary School, Dong Trieu district, Quang Ninh province

ARTICLE INFO		ABSTRACT
Received:	11/9/2023	In this study, we focused on studying the synthesis of hydrochar from distilled waste of lemongrass by hydrothermal method and then was activated by 5 M KOH at room temperature for 24 h (TSHS). The TSHS material was characterized by X-ray diffraction (XRD), scanning electron microscopy (SEM), infrared spectroscopy (IR), and analysis of specific surface (BET). It shows that, the TSHS was in the form of amorphous carbon, rich in organic functional groups, the BET surface area was 24.6 m ² /g. Several factors affecting to the adsorption process of AMO in aqueous media by TSHS were evaluated: pH, initial AMO concentration, the TSHS dosage, the adsorption time. The results showed that: the adsorption was the most effective at pH of 5, adsorption equilibrium was reached at 3 h, the smaller the initial AMO concentration (5 – 10 ppm) and the higher the TSHS dose (3.0 – 5.0 g/L), the adsorption efficiency was about 90%. The experimental adsorption process was consistent with Freundlich isotherm adsorption model and the second-order kinetic model. It means that, the adsorption mechanism terminates both physical adsorption and chemical adsorption.
Revised:	17/10/2023	
Published:	18/10/2023	
KEYWORDS		
Hydrochar		
Lemongrass		
Adsorption		
Amoxicillin		
Freundlich isotherm adsorption		

ĐẶC TRƯNG VÀ KHẢ NĂNG HẤP PHỤ AMOXICILLIN CỦA THAN SINH HỌC THỦY NHIỆT TỪ BÃ CHUNG CÁT TINH DẦU SẢ HOẠT HÓA BẰNG KIỀM

Trương Thị Thảo^{1*}, Lương Thị Lê Trang^{1,2}

¹Trường Đại học Khoa học - ĐH Thái Nguyên, ²Trường THPT Trảng An, huyện Đông Triều, tỉnh Quảng Ninh

THÔNG TIN BÀI BÁO		TÓM TẮT
Ngày nhận bài:	11/9/2023	Nghiên cứu này trình bày kết quả nghiên cứu chế tạo than sinh học từ bã chung cát tinh dầu sả theo phương pháp thủy nhiệt, sau đó được hoạt hóa bằng KOH 5M ở nhiệt độ phòng trong 24 h, nghiên cứu các đặc trưng vật liệu và khả năng hấp phụ amoxicillin (AMO) trong môi trường nước. Các đặc trưng vật liệu được xác định bằng các phương pháp nhiễu xạ tia X (XRD), phương pháp phổ hồng ngoại (IR), kính hiển vi điện tử quét (SEM) và phương pháp phân tích bề mặt riêng (BET). Kết quả cho thấy, nguyên liệu đã bị carbon hóa tốt, giàu các nhóm chức hữu cơ, diện tích bề mặt riêng đạt 24,6 m ² /g. Các yếu tố ảnh hưởng tới khả năng hấp phụ AMO trong môi trường nước của than sinh học sả đã được khảo sát như pH, nồng độ đầu của AMO, hàm lượng than sử dụng, thời gian hấp phụ. Kết quả cho thấy, sự hấp phụ tốt nhất xảy ra tại pH bằng 5, đạt cân bằng hấp phụ sau 3 h, khi nồng độ đầu của AMO càng nhỏ (5 -10 ppm) và lượng than sử dụng đủ lớn (3,0 – 5,0 g/L) thì hiệu suất hấp phụ đạt khoảng 90%. Quá trình thực nghiệm hấp phụ phù hợp với mô hình lý thuyết hấp phụ đẳng nhiệt Freundlich và mô hình động học bậc hai, cho thấy cơ chế hấp phụ có tính trung gian giữa hấp phụ vật lý và hấp phụ hóa học.
Ngày hoàn thiện:	17/10/2023	
Ngày đăng:	18/10/2023	
TỪ KHÓA		
Than sinh học thủy nhiệt		
Sả		
Hấp phụ		
Amoxicillin		
Hấp phụ đẳng nhiệt Freundlich		

DOI: <https://doi.org/10.34238/tnu-jst.8740>

* Corresponding author. Email: Thao.tt@tnus.edu.vn

1. Đặt vấn đề

Amoxicillin (AMO) là một aminopenicillin, một kháng sinh thuộc nhóm beta-lactam, có khả năng diệt một số loại vi khuẩn, đặc biệt là trực khuẩn gram âm, phổ tác dụng rộng, dùng điều trị nhiễm trùng gây ra do các loại vi khuẩn này. AMO do đó là loại kháng sinh được sử dụng khá phổ biến với hiệu quả khá tốt, được bào chế ở nhiều dạng với liều lượng khác nhau. AMO bền trong môi trường acid, được cơ thể hấp thụ tốt. Tuy nhiên, khoảng 43 - 80% liều uống AMO bị thải nguyên dạng ra nước tiểu trong vòng 6 - 8 giờ, 30-40% liều tiêm hoặc uống thải qua phân. Một số thống kê cho thấy AMO trong nước ở mức ng/L tới mg/L [1]. Chứng tỏ, AMO bị thải ra môi trường với lượng khá lớn. Sự có mặt của AMO có thể gây dị ứng nghiêm trọng với các loài nhạy cảm, kể cả người, đồng thời gây ra gen kháng kháng sinh. Độc tính của AMO với một số loài sống dưới nước đã được nghiên cứu cho thấy, liều gây độc LC_{50} cho cá *Oryzias latipes* là 1000 mg/L sau 96 h, hay một loài tảo lục nam là 1,56 $\mu\text{g/L}$ tới 50 mg/L [2]. Do đó, việc loại bỏ dư lượng AMO trong môi trường là vô cùng cần thiết.

Cũng đã có nhiều phương pháp loại bỏ AMO được nghiên cứu như phân hủy quang [3], kết hợp phân hủy (quang xúc tác, xúc tác, ozon hóa) – siêu âm [4], oxy hóa sinh hóa, hấp phụ [5]. Trong đó, hấp phụ là một phương pháp có nhiều ưu điểm, được nghiên cứu với nhiều loại chất hấp phụ khác nhau: hạt lúa mì, tro vỏ hạnh nhân, vỏ thông, bentonite, graphene oxide, graphene oxide biến tính, than hoạt tính, than hoạt tính biến tính [1], và nhiều loại than sinh học, than sinh học biến tính [6], [7]. Tuy nhiên, chưa có công bố nào sử dụng than sinh học chế tạo từ cây sả làm chất hấp phụ AMO.

Sả là một cây trồng phổ biến ở nhiều nơi, được dùng cho nhiều mục đích như thực phẩm, mỹ phẩm, dược phẩm, trong đó phổ biến nhất là điều chế tinh dầu [8]. Quá trình này để lại một lượng bã sả rất lớn, chủ yếu ủ thành phân bón hay dùng làm chất trồng cây, thậm chí có thể đốt bỏ [9]. Quá trình chưng cất tinh dầu đã loại bỏ một lượng lớn các chất hữu cơ trong lá sả, thành phần còn trong bã sả sau chưng cất tinh dầu chủ yếu là cellulose, rất thuận lợi cho chế tạo than sinh học, một vật liệu hấp phụ tiềm năng.

Vì vậy, trong nghiên cứu này, chúng tôi dùng bã chưng cất tinh dầu sả chế tạo than sinh học theo phương pháp thủy nhiệt, nghiên cứu các đặc trưng cấu trúc của than sinh học thủy nhiệt, đánh giá khả năng hấp phụ AMO trong nước của vật liệu này.

2. Thực nghiệm

2.1. Thiết bị, hóa chất

Các hóa chất được sử dụng là các hóa chất tinh khiết mức độ phân tích: Potassium hydroxide (KOH), amoxicillin AMO ($\text{C}_{16}\text{H}_{19}\text{N}_3\text{O}_5\text{S}$), sodium hydroxide (NaOH), acid hydrochloric (HCl), sodium chloride (NaCl), nước cất, cồn 98°, bã của quá trình chưng cất tinh dầu sả thu từ xưởng chưng cất tinh dầu của Viện Khoa học Sự sống trường Đại học Nông Lâm Thái Nguyên.

Thiết bị thủy nhiệt dung tích 100 mL TOB Reactor của Trung Quốc.

2.2. Tổng hợp và đặc trưng than sinh học sả

Bã chưng cất tinh dầu sả được phơi khô, băm vụn tới kích thước 0,2 – 0,5 cm. Phân tán 6 g vụn lá sả trong 50 mL nước cất, chuyển vào bình Teflon (dung tích 100 mL), đặt vào thiết bị thủy nhiệt, tăng dần nhiệt độ tới 240 °C với tốc độ gia nhiệt 200 °C/h, ủ trong 10 h rồi tắt lò, để nguội tự nhiên về nhiệt độ phòng, rửa sạch nhiều lần bằng nước cất tới nước rửa trong, đem ngâm trong dung dịch KOH 5 M trong 24 h ở nhiệt độ phòng, tách thu lấy phần bột, rửa tới môi trường trung tính thì đem phần bột sấy khô, nghiền mịn, bảo quản trong túi nilon kín đặt trong bình hút ẩm trước khi tiến hành các thí nghiệm tiếp theo (ký hiệu sản phẩm thu được là TSHS).

Các đặc trưng của TSHS được đánh giá đặc trưng bằng thiết bị nhiễu xạ tia X Bruker AXS X-ray (XRD) với bức xạ Cu-K α tại bước sóng $\lambda=0,15406$ nm trong vùng $2\theta = 15 - 60$, thiết bị phổ hồng ngoại IR Spectrum Two của hãng Perkin Elmer (Mỹ) trong dải số sóng 4000 – 400 cm^{-1}

(Trung tâm Thí nghiệm - Trường Đại học Khoa học- Đại học Thái Nguyên), kính hiển vi điện tử quét SEM trên thiết bị Hitachi S-4800 (Nhật Bản) (Viện Khoa học Vật liệu, Viện Khoa học và Công nghệ Việt Nam), phương pháp Brunauer-Emmett-Teller (BET) trên thiết bị TriStar 3000 V6.07 tại Khoa Hóa học, trường Đại học Sư phạm Hà Nội. Điểm đẳng điện được xác định từ thực nghiệm: Pha các dung dịch NaCl 0,1M có pH ban đầu (pH_0) từ 2 đến 10, thêm bột TSHS với nồng độ 1 g/L; lắc đều trong 5h, để yên trong 24h, lọc lấy phần dung dịch, đo lại pH (pH_s). Về đồ thị sự biến thiên pH dung dịch trước và sau thí nghiệm ($\Delta pH = pH_s - pH_0$) theo pH_0 , pH_0 mà tại đó $\Delta pH = 0$ là điểm đẳng điện của vật liệu.

2.3. Đánh giá khả năng hấp phụ Amoxicillin

Trước tiên, xây dựng đường chuẩn xác định nồng độ dung dịch AMO theo phương pháp UV-Vis tại bước sóng 227,5 nm với các dung dịch AMO nồng độ 0,1 tới 50 ppm. Sau đó, khả năng hấp phụ AMO 10 ppm bằng TSHS 1,0 g/L được đánh giá tại các pH khác nhau: 3,5,7,9 sau 3h. pH tại đó TSHS hấp phụ AMX tốt nhất được dùng trong các thí nghiệm tiếp theo.

Tiếp theo, khả năng hấp phụ AMO của TSHS được tiến hành ở các nồng độ TSHS khác nhau (0,5; 1,0; 2,0; 3,0; 5,0 g/L), các nồng độ AMO khác nhau (5, 10, 15, 20, 30, 50 ppm) tại các thời gian hấp phụ khác nhau (10, 30, 60, 90, 120, 180, 240 phút). Dữ liệu hấp phụ được dùng tính toán hiệu suất hấp phụ AMO (H) và dung lượng hấp phụ (q) của TSHS theo các công thức:

$$H = \frac{C_0 - C_t}{C_0} \times 100\% \quad (\%) \quad (1)$$

$$q = \frac{C_0 - C_t}{m} V \quad (\text{mg/g}) \quad (2)$$

Với C_0 , C_t lần lượt là nồng độ AMO (mg/L) trong dung dịch trước và sau thời gian hấp phụ t (phút). m là khối lượng vật liệu hấp phụ (g); V là thể tích dung dịch làm việc (L).

Dữ liệu hấp phụ được xử lý toán học theo các mô hình hấp phụ đẳng nhiệt (Langmuir, Freundlich, Temkin) và động học hấp phụ (Giả phản ứng bậc 1, giả phản ứng bậc 2).

3. Kết quả và thảo luận

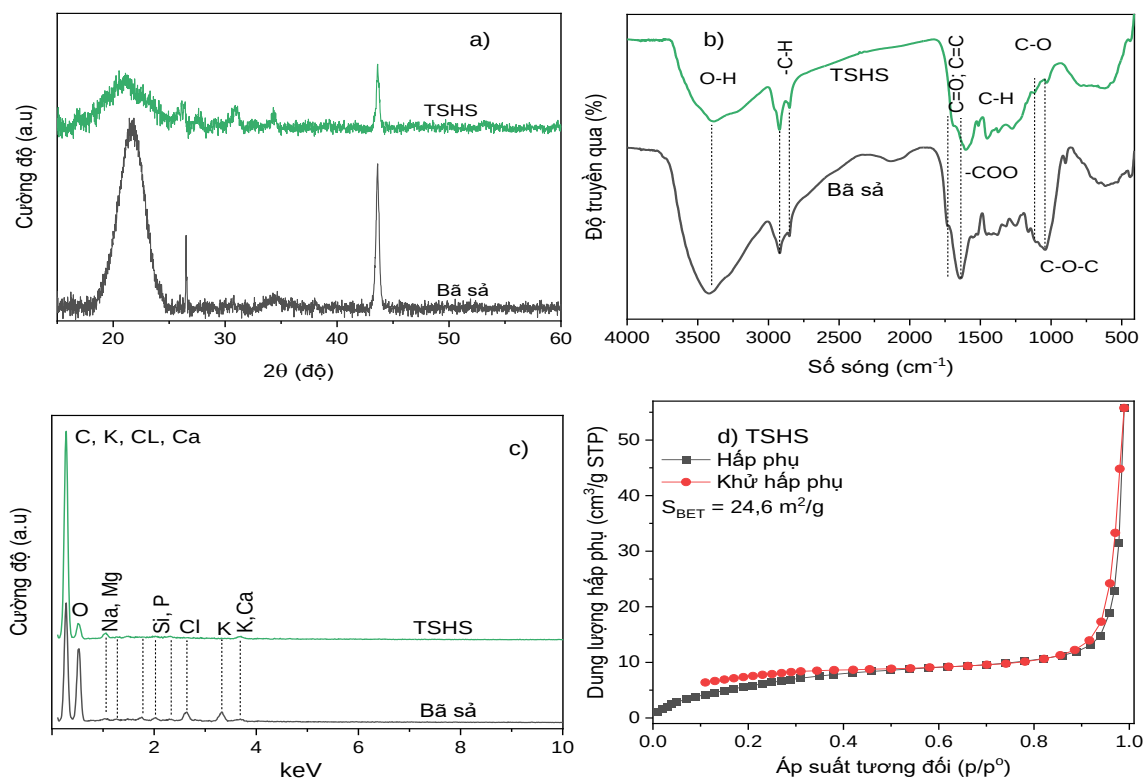
3.1. Đặc trưng vật liệu

Cấu trúc pha, thành phần nguyên tố, đặc trưng liên kết, đặc trưng hấp phụ khử hấp phụ N_2 của TSHS được thể hiện trong hình 1.

Từ hình 1a cho thấy: bã sả sau quá trình chưng cất tinh dầu gồm một số đỉnh đặc trưng tại $2\theta = 21,7^\circ$; $26,5^\circ$; $34,4^\circ$ và $43,6^\circ$. Trong đó, đỉnh nhiễu xạ tại $2\theta = 21,7^\circ$ đặc trưng cho cấu trúc cellulose, các đỉnh nhiễu xạ tại $2\theta = 26,5^\circ$ và $43,6^\circ$ đặc trưng cho C graphite ứng với các mặt phẳng mạng tinh thể (002) và (100) chứng tỏ quá trình chưng cất tinh dầu đã chuyển hóa một phần carbon trong sả một phần về dạng graphite, còn lại là trong cellulose; và đỉnh nhiễu xạ $2\theta = 34,4^\circ$ đặc trưng cho Si, một thành phần vốn có lượng nhỏ trong cây trồng nói chung [10], [11]. Sau quá trình thủy nhiệt, phổ XRD của vật liệu đã thay đổi, đỉnh nhiễu xạ tại $21,7^\circ$ đã dịch chuyển về góc 2θ nhỏ hơn ($21,2^\circ$), giảm mạnh cường độ và mở rộng chân phổ, đỉnh nhiễu xạ tại $2\theta = 43,6^\circ$ cũng giảm cường độ, đỉnh nhiễu xạ tại $26,7^\circ$ đã dịch chuyển về $26,1^\circ$ và cũng giảm đáng kể cường độ, tăng đáng kể độ rộng phổ, điều này chứng tỏ mức độ chuyển hóa carbon từ dạng cellulose và tinh thể graphite về dạng vô định hình tăng, đồng thời xuất hiện một số đỉnh nhiễu xạ tại $2\theta = 27,5^\circ$; $31,0^\circ$ và $34,4^\circ$. Các đỉnh này được cho là của Silicon, S và calcite [11], [12].

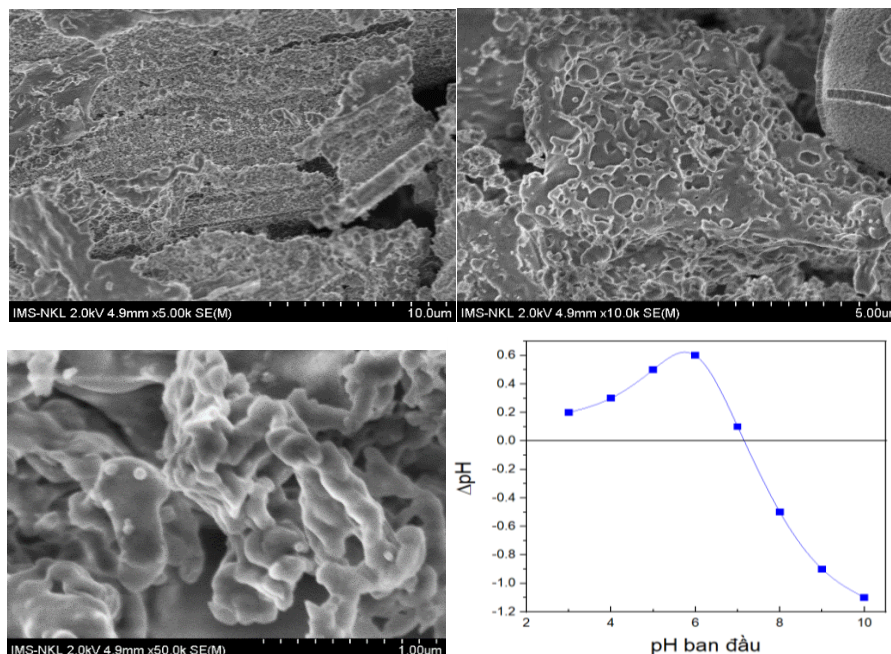
Hình 1b cho thấy, than sinh học thủy nhiệt còn giữ lại được hầu hết các nhóm chức, các liên kết hữu cơ chính trong cấu trúc bã chưng cất tinh dầu sả. Các đỉnh hấp thụ đặc trưng như vùng $3200-3600 \text{ cm}^{-1}$ của liên kết O-H; vùng $2700-2900 \text{ cm}^{-1}$ của liên kết C-H, C-C của $C(sp^3)$, vùng $1000-1300 \text{ cm}^{-1}$ của liên kết C-O và C-O-C [13] không thay đổi, tuy nhiên, các đỉnh đặc trưng cho liên kết của nhóm carboxyl $-COO$, $C=O$ và $C=C$ vùng $1600-1800 \text{ cm}^{-1}$ có sự dịch chuyển nhẹ sau quá trình thủy nhiệt, đồng thời vai phổ tại vùng $2000-2200 \text{ cm}^{-1}$ đặc trưng cho liên kết ba

giữa C với C hoặc C với N [14] trong bã chưng cất tinh dầu sả đã biến mất trong sản phẩm sau thủy nhiệt chứng tỏ các liên kết này đã bị phá hủy.



Hình 1. Một số đặc trưng cấu trúc của than sinh học thủy nhiệt bã sả

a) Giảm nhiễu xạ tia X; b) Phổ hồng ngoại; c) Phổ tán sắc năng lượng EDX; d) Giảm độ BET



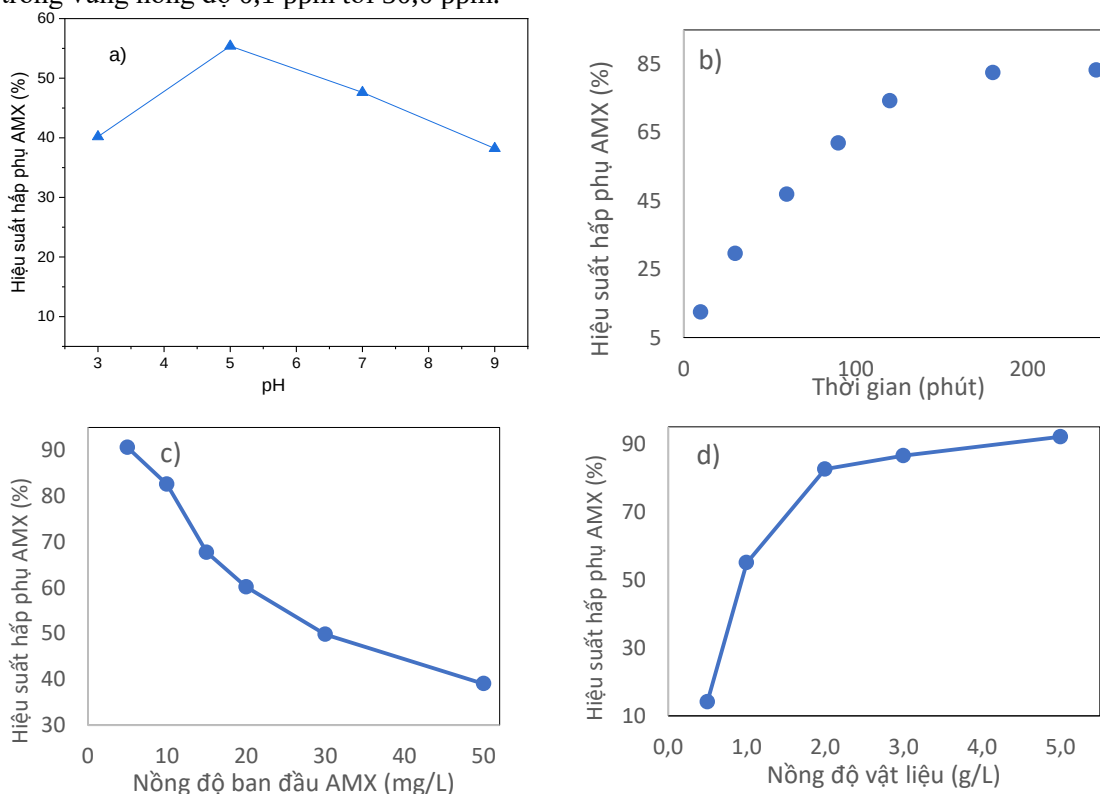
Hình 2. Ảnh SEM của than sinh học thủy nhiệt sả ở các độ phóng đại khác nhau và đồ thị xác định điểm đẳng điện

Hình 1c cho thấy, trong bã chưng cất tinh dầu sả ngoài thành phần nguyên tố chính là C, O thì còn có mặt nhiều nguyên tố với hàm lượng nhỏ như K, Na, Ca, Mg, Cl, P, Si. Sau quá trình thủy nhiệt, phổ EDS cho thấy thành phần C tăng trong khi các thành phần khác giảm mạnh hoặc không xác định được, điều đó cho thấy quá trình Carbon hóa xảy ra hiệu quả, một số nguyên tố thành phần trong bã sả đã được thủy nhiệt và rửa trôi. Phương pháp BET đã xác định được than sinh học thủy nhiệt bã chưng cất tinh dầu sả có diện tích bề mặt riêng đạt 24,6 m²/g. Đây là giá trị tương đương hoặc tương đối lớn so với một số than sinh học thủy nhiệt khác [15] – [17].

Đặc điểm hình thái của than sinh học thủy nhiệt bã chưng cất tinh dầu sả được nghiên cứu qua ảnh SEM (hình 2) cho thấy: bã chưng cất tinh dầu của lá sả sau quá trình thủy nhiệt 10 h ở 240°C từ các phiến lá mảnh đã hình thành bề mặt rỗ dày đặc, phiến lá sả ban đầu hình thành cấu trúc lớp xếp, ở độ phóng đại 50.0k lần còn cho thấy, vật liệu có dạng các phiến nhỏ, mỏng, rộng 1-2 μm, dài 2-4 μm chồng lệch lên nhau. Cấu trúc này cho phép TSHS có độ xốp lớn, rất phù hợp làm vật liệu hấp phụ. Kết quả nghiên cứu điểm đẳng điện cho thấy, điện tích điểm không của vật liệu ở pH = 7,2. Như vậy trong môi trường acid, bề mặt vật liệu tích điện dương còn trong môi trường base thì bề mặt vật liệu tích điện âm.

3.2. Khả năng hấp phụ AMO của than sinh học thủy nhiệt bã chưng cất tinh dầu sả

Trước hết, chúng tôi đã tiến hành xây dựng đường chuẩn xác định nồng độ AMO trong dung dịch bằng phương pháp phổ hấp thụ phân tử UV-Vis, trong vùng nồng độ AMO từ 0,1 ppm đến 50,0 ppm, kết quả thu được đường chuẩn có phương trình $y = 0,0221x + 0,0089$ với $R^2 = 0,9998$. Phương trình này phù hợp để xác định nồng độ AMO từ độ hấp thụ của dung dịch nghiên cứu trong vùng nồng độ 0,1 ppm tới 50,0 ppm.



Hình 3. Một số yếu tố ảnh hưởng tới hiệu suất hấp phụ AMO

Tiếp theo, ảnh hưởng của pH tới khả năng hấp phụ AMO 10 mg/L của TSHS 1 g/L sau 3 h được biểu diễn ở hình 3a. Khi pH tăng từ 3 tới 5, hiệu suất hấp phụ tăng nhưng khi pH tiếp tục tăng tới 7 và 9 thì hiệu suất hấp phụ giảm dần, chứng tỏ pH 5 là môi trường cho quá trình hấp

phụ tốt nhất. AMO là thuộc hợp chất tạp chức, có ba giá trị pK_a lần lượt là 2,7; 7,4 và 9,6; tuy nhiên khả năng phân li tới bậc 3 là rất yếu. Như vậy, tại vùng pH thấp ($pH < 2,7$), AMO ở dạng proton hóa tích điện dương, trong vùng pH 2,7-7,4, nhóm carbonyl bắt đầu phân li H^+ chuyển cho nhóm amin tạo thành dạng lưỡng điện, tuy nhiên ở pH 3 sự phân ly này chưa đáng kể nhưng tới 7 thì sự phân li làm biến dạng nhóm β -lactam, do đó tại $pH = 5$, AMO tồn tại ở dạng lưỡng điện tích ổn định (âm ở nhóm $-COO^-$ và tích điện dương ở nhóm $-NH_3^+$) trong khi bề mặt vật liệu tích điện dương, thuận lợi cho hấp phụ tại nhóm chức $-COO$. Hơn nữa, khi pH tiếp tục tăng, độ phân li H^+ tăng lên độ điện âm của AMO tiếp tục tăng, điện tích âm bề mặt TSHS cũng tăng dần nên hấp phụ cũng giảm là phù hợp. Điều này cũng cho thấy, sự hấp phụ xảy ra có yếu tố của tương tác tĩnh điện (hấp phụ vật lý).

Ảnh hưởng của thời gian hấp phụ được nghiên cứu với dung dịch AMO 10 ppm nồng độ TSHS 2 g/L thể hiện trên hình 3b. Khi thời gian hấp phụ tăng dần từ 0 tới 180 phút, hiệu suất hấp phụ tăng nhanh, khi thời gian kéo dài từ 180 tới 240 phút thì hiệu quả hấp phụ tăng không đáng kể, chứng tỏ quá trình hấp phụ đã đạt tới cân bằng ở khoảng 180 phút. Như vậy việc nghiên cứu hiệu quả hấp phụ sau 3 h là phù hợp. Tiếp theo, hiệu quả hấp phụ tại pH 5 sau 3 h khi dùng TSHS 2 g/L với nồng độ đầu AMO khác nhau hoặc hấp phụ AMO 10 mg/L bởi TSHS nồng độ khác nhau biểu diễn trên hình 3c và 3d. Dễ dàng nhận thấy, khi nồng độ đầu AMO giảm, nồng độ vật liệu hấp phụ TSHS tăng thì hiệu suất hấp phụ tăng và ngược lại. Thông thường, nồng độ chất phản ứng tăng thì tốc độ phản ứng tăng theo chiều thuận, do đó khi nồng độ vật liệu tăng hiệu suất hấp phụ tăng là hợp lý, do phần bề mặt trống tăng, số vị trí tâm hấp phụ lớn, thuận lợi cho quá trình hấp phụ xảy ra. Tuy nhiên, khi nồng độ chất bị hấp phụ giảm, thì khoảng cách giữa các phân tử chất bị hấp phụ tăng, tương tác đẩy giữa chúng giảm làm tăng khả năng va chạm với các tâm hấp phụ, do đó khả năng bị hấp phụ tăng. Ở nồng độ đầu AMO 50 ppm, dung lượng hấp phụ cân bằng (q_e) đạt 9,84 mg/g, than sinh học thủy nhiệt bã cà phê hấp phụ kháng sinh sulfonamide cũng có dung lượng hấp phụ cực đại (q_{max}) xấp xỉ giá trị này [18].

Các dữ kiện thực nghiệm này được dùng tính dung lượng hấp phụ và xử lý số liệu theo các lý thuyết về mô hình hấp phụ và động học hấp phụ. Lý thuyết quá trình hấp phụ được nghiên cứu theo các mô hình hấp phụ đẳng nhiệt Langmuir, Freundlich và Temkin, theo các phương trình sau:

$$\frac{C_e}{q_e} = \frac{1}{K_L \cdot q_{max}} + \frac{C_e}{q_{max}} \quad (3)$$

$$\log(q_e) = \log(K_F) + \frac{1}{n} \log(C_e) \quad (4)$$

$$q_e = \beta \cdot \log K_T + \beta \cdot \log C_e \quad (5)$$

Trong đó K_L (L/mg), K_F (L/mg) và K_T (L/mg) lần lượt là hằng số hấp phụ theo mô hình đẳng nhiệt Langmuir, Freundlich và Temkin. n là một hằng số trong phương trình Freundlich, β là một hằng số trong phương trình Temkin, C_e là nồng độ chất bị hấp phụ tại cân bằng hấp phụ. Kết quả thể hiện trên hình 4 cho thấy, hệ số tương quan R^2 theo mô hình Freundlich là lớn nhất, chứng tỏ quá trình hấp phụ tuân theo lý thuyết hấp phụ Freundlich, nghĩa là quá trình tương tác của chất bị hấp phụ lên bề mặt vật liệu hấp phụ là tương tác vật lý, quá trình hấp phụ hình thành đa lớp hấp phụ [19].

Để nghiên cứu động học quá trình hấp phụ 20 ppm AMO bằng TSHS 2g/L, dữ liệu thực nghiệm được mô hình hóa theo các phương trình động học sau:

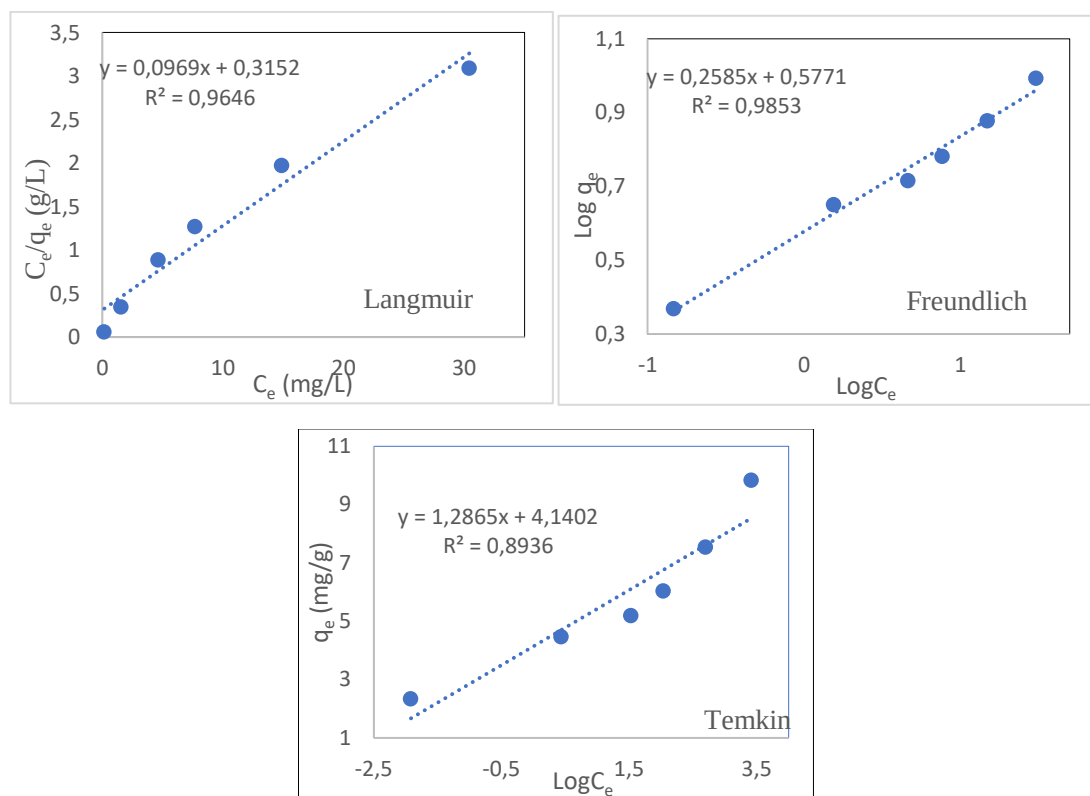
Động học giả phản ứng bậc 1:

$$\log(q_e - q_t) = \log q_e - k_1 t \quad (6)$$

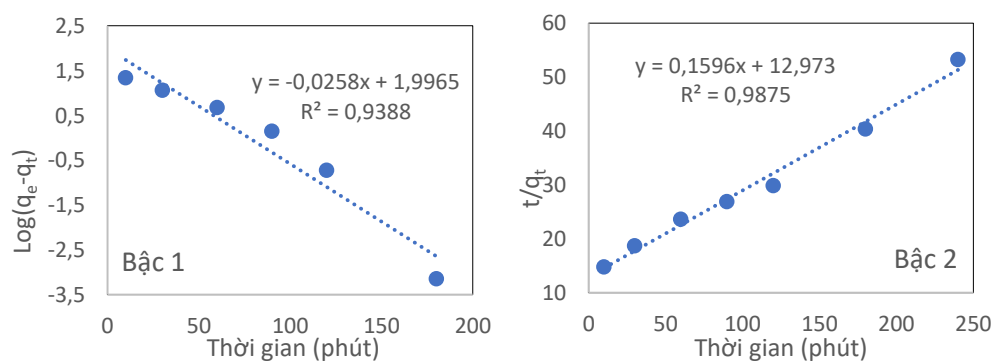
Động học giả phản ứng bậc 2:

$$\frac{t}{q_t} = \frac{1}{k_2 \cdot q_e^2} + \frac{t}{q_e} \quad (7)$$

Kết quả thu được trên hình 5.



Hình 4. Mô hình hóa dữ liệu thực nghiệm theo các lý thuyết hấp phụ



Hình 5. Mô hình hóa dữ liệu thực nghiệm theo các mô hình động học giả phản ứng

Từ hình 5 cho thấy: Hệ số tương quan của dữ liệu thực nghiệm theo mô hình bậc 2 ($R^2=0,9875$) lớn hơn theo mô hình bậc 1 ($R^2=0,9388$). Hơn nữa, dung lượng hấp phụ cân bằng tính theo mô hình động học bậc 2 là 6,27 mg/g còn theo mô hình động học bậc 1 thu được lên tới 99,19 mg/g so với dung lượng hấp phụ cân bằng thực nghiệm là 6,04 mg/g. Các kết quả này chứng tỏ quá trình hấp phụ thực nghiệm phù hợp với mô hình lý thuyết động học phản ứng bậc 2. Như vậy, bản chất tương tác giữa chất bị hấp phụ AMO và vật liệu hấp phụ có khuynh hướng là tương tác hóa học [12].

4. Kết luận

Trong nghiên cứu này, than sinh học đã được điều chế bằng phương pháp thủy nhiệt 6 g bã chưng cất tinh dầu sả trong 50 mL nước cất ở 240°C trong 10 h, sau đó được hoạt hóa bằng KOH đặc ở nhiệt độ phòng trong 24 h. Trong than có Carbon ở dạng vô định hình, thành phần hóa học

chính ngoài C còn có O và một số nguyên tố khác, than có cấu trúc xốp, gồm các phiến mỏng, có diện tích bề mặt riêng 24,6 m²/g. Than có khả năng hấp phụ AMO, hiệu quả đạt 90% ở vùng nồng độ nhỏ (5 -10 ppm), dung lượng hấp phụ cân bằng khi nồng độ đầu AMO 50 ppm đạt 9,84 mg/g. Quá trình hấp phụ tuân theo lý thuyết hấp phụ đẳng nhiệt Freundlich và mô hình động học giả phản ứng bậc hai, tương tác giữa chất hấp phụ và vật liệu hấp phụ gồm cả tương tác vật lý và tương tác hóa học. Các kết quả này là những cơ sở ban đầu cho thấy, than sinh học thủy nhiệt bã chưng cất tinh dầu sả có tiềm năng hấp phụ dư lượng kháng sinh amoxicillin trong nước, hiệu quả có thể cải thiện nếu tiếp tục biến tính bề mặt, nâng cao chất lượng than.

TÀI LIỆU THAM KHẢO/ REFERENCES

- [1] I. Anastopoulos, I. Pashalidis, A. G. Orfanos, I. D. Manariotis, T. Tatarchuk, L. Sellaoui, A. Bonilla-Petriciolet, A. Mittal, and A. Nunez-Delgado, "Removal of caffeine, nicotine and amoxicillin from (waste) waters by various adsorbents. A review," *Journal of Environmental Management*, vol. 261, 2020, Art. no. 110236, doi: 10.1016/j.jenvman.2020.110236.
- [2] Y. El-Nahal and N. El-Dahdouh, "Toxicity of Amoxicillin and Erythromycin to Fish and Mosquitoes," *Ecotoxicology and Environmental contamination*, vol. 10, no. 1, pp. 13-21, 2015, doi: 10.5132/eec.2015.01.03.
- [3] A. Fawzy, H. Mahanna, and M. Mossad, "Effective photocatalytic degradation of amoxicillin using MIL-53(Al)/ZnO composite," *Environmental Science and Pollution Research*, vol. 29, pp. 68532-68546, 2022, doi: 10.1007/s11356-022-20527-0.
- [4] R. Kidak and Ş. Doğan, "Medium-high frequency ultrasound and ozone based advanced oxidation for amoxicillin removal in water," *Ultrasonics Sonochemistry*, vol. 40, Part B, pp. 131-139, 2018, doi: 10.1016/j.ultsonch.2017.01.033.
- [5] D. A. Palacio, B. F. Urbano, and B. L. Rivas, "Water-soluble polymers with the ability to remove amoxicillin as emerging pollutant from water," *Environmental Technology & Innovation*, vol. 23, 2021, Art. no. 101589, doi:10.1016/j.eti.2021.101589.
- [6] L. Du, S. Ahmad, L. Liu, L. Wang, and J. Tang, "A review of antibiotics and antibiotic resistance genes (ARGs) adsorption by biochar and modified biochar in water," *Science of The Total Environment*, vol. 858, Part 2, 2023, Art. no. 159815, doi: 10.1016/j.scitotenv.2022.159815.
- [7] Y. Zhou, S. Y. Leong, and Q. Li, "Modified biochar for removal of antibiotics and antibiotic resistance genes in the aqueous environment: A review," *Journal of Water Process Engineering*, vol. 55, 2023, Art. no. 104222, doi: 10.1016/j.jwpe.2023.104222.
- [8] M.A. Ranjah, M. Waseem, F. Taj, and I. Ashraf, "Lemongrass (*Cymbopogon citratus*): a valuable ingredient for functional foods," *International Journal of Food and Allied Sciences*, vol. 4, no. 2, pp. 11-19, 2021, doi:10.21620/ijfaas.2018211-19.
- [9] M. Thanh and T. Lam, "Growing lemongrass and distilling lemongrass essential oil using new technology helps people develop economically," June 13, 2020. [Online]. Available: <https://maythucphamkag.com/trong-sa-chung-cat-tinh-dau-sa-cong-nghe-moi-phat-trien-kinh-te>. [Accessed August, 15, 2023].
- [10] W. Tu, Y. Liu, Z. Xie, M. Chen, L. Ma, G. Du, and M. Zhu, "A novel activation-hydrochar via hydrothermal carbonization and KOH activation of sewage sludge and coconut shell for biomass wastes: Preparation, characterization and adsorption properties," *Journal of Colloid and Interface Science*, vol. 593, pp. 390-407, 2021, doi: 10.1016/j.jcis.2021.02.133.
- [11] F. Teng, Y. Zhang, D. Wang, M. Shen, and D. Hu, "Iron-modified rice husk hydrochar and its immobilization effect for Pb and Sb in contaminated soil," *Journal of Hazardous Materials*, vol. 398, 2020, Art. no. 122977, doi: 10.1016/j.jhazmat.2020.122977.
- [12] K. Nadarajah, E. R. Bandala, Z. Zhang, S. Mundree, and A. Goonetilleke, "Removal of heavy metals from water using engineered hydrochar: Kinetics and mechanistic approach," *Journal of Water Process Engineering*, vol. 40, 2021, Art. no. 101929, doi: 10.1016/j.jwpe.2021.101929.
- [13] Suhas, V. K. Gupta, P. J. M. Carrott, R. Singh, N. Chaudhary, and S. Kushwaha, "Cellulose: A review as natural, modified and activated carbon adsorbent," *Bioresource Technology*, vol. 216, pp. 1066-1076, 2016, doi: 10.1016/j.biortech.2016.05.106
- [14] L. G. Wade, *Organic Chemistry*, 5th Edition, Whitman College. Pearson Education Inc., 2003.
- [15] J. Deng, X. Li, X. Wei, Y. Liu, J. Liang, N. Tang, B. Song, X. Chen, and X. Cheng, "Sulfamic acid

- modified hydrochar derived from sawdust for removal of benzotriazole and Cu (II) from aqueous solution: Adsorption behavior and mechanism," *Bioresource Technology*, vol. 290, 2019, Art. no. 121765, doi: 10.1016/j.biortech.2019.121765.
- [16]O. Kazak and A. Tor, "In situ preparation of magnetic hydrochar by co-hydrothermal treatment of waste vinasse with red mud and its adsorption property for Pb(II) in aqueous solution," *Journal of Hazardous Materials*, vol. 393, 2020, Art. no. 122391, doi: 10.1016/j.jhazmat.2020.122391.
- [17]T. Liu, Z. Chen, Z. Lib, H. Fu, G. Chen, T. Fengb, and Z. Chen, "Preparation of magnetic hydrochar derived from iron-rich *Phytolacca acinosa* Roxb. for Cd removal," *Science of the Total Environment*, vol. 769, 2021, Art. no. 145159, doi: 10.1016/j.scitotenv.2021.145159.
- [18]X. Zhang, Y. Zhang, H. H. Ngo, W. Guo, H. Wen, D. Zhang, C. Li, and L. Qi, "Characterization and sulfonamide antibiotics adsorption capacity of spent coffee grounds based biochar and hydrochar," *Science of the Total Environment*, vol. 716, 2020, Art. no. 137015, doi: 10.1016/j.scitotenv.2020.137015.
- [19]S. Rasam, M. K. Moraveji, A. Soria-Verdugo, and A. Salimi, "Synthesis, characterization and absorbability of *Crocus sativus* petals hydrothermal carbonized hydrochar and activated hydrochar," *Chemical Engineering & Processing: Process Intensification*, vol. 159, Art. no. 108236, 2021, doi: 10.1016/j.cep.2020.108236.