

Nghiên cứu tổng hợp kẽm undecylenat và đánh giá hiệu quả xử lý nước thải sau phản ứng bằng vật liệu composite MgAl-LDH@AC kết hợp polymer cation

Lê Huỳnh Nhi⁽¹⁾✉, Hoàng Thanh Long⁽¹⁾, Nguyễn Thị Thu Xuân⁽¹⁾, Đoàn Thanh Vân⁽¹⁾, Đinh Thị Vân⁽¹⁾

⁽¹⁾ Chi nhánh Phía Nam, Trung tâm Nhiệt đới Việt - Nga, Tp. Hồ Chí Minh, Việt Nam

✉ Tác giả liên hệ

E-mail: huynhnhtuanan@gmail.com

ORCID: 0009-0009-2439-3623

Trích dẫn bài báo

Lê, H. N., Hoàng, T. L., Nguyễn, T. T. X., Đoàn, T. V., Đinh, T. V. (2026). Nghiên cứu tổng hợp kẽm undecylenat và đánh giá hiệu quả xử lý nước thải sau phản ứng bằng vật liệu composite MgAl-LDH@AC kết hợp polymer cation. *Tạp chí Khoa học và Công nghệ Nhiệt đới*, 15(3), 68-80.
<https://doi.org/10.58334/vrtc.jtst.vol.015.918>

Tóm tắt

Bài báo trình bày kết quả nghiên cứu tổng hợp kẽm undecylenat từ axit undecylenic, natri hydroxyt và kẽm clorua, đạt hiệu suất 98,85% và độ tinh khiết 98,92%, được xác nhận bằng FT-IR và Raman. Nước thải sau phản ứng đồng thời chứa ion kẽm (240,9 mg/L), độ mặn (4,5 ‰) và TOC cao (554,95 mg/L). Để xử lý nước thải này, vật liệu composite MgAl-LDH@AC được tổng hợp thành công bằng phương pháp đồng kết tủa và đặc trưng bằng XRD, SEM. Kết quả cho thấy vật liệu có khả năng loại ion kẽm và làm giảm độ mặn (thông qua việc loại bỏ ion clorua) thông qua cơ chế tương tác hóa học, với quá trình phù hợp mô hình động học giả bậc hai và đẳng nhiệt Langmuir, đạt dung lượng hấp phụ cực đại 82,78 mg/g (ion kẽm) và 29,15 mg/g (ion clorua). Khi kết hợp cation polyacrylamide, hiệu quả xử lý được nâng cao nhờ cơ chế keo tụ - tạo bông, giúp loại bỏ các chất hữu cơ phân tán. Kết quả xử lý nước thải thực tế cho thấy độ mặn của nước thải giảm khoảng 25%, nồng độ ion kẽm giảm xuống 2,08 mg/L (~99,1%), TOC còn 5,85 mg/L (~98,9%) và pH duy trì 6–8; các chỉ số về kim loại nặng, TOC và pH đáp ứng QCVN 40:2025/BTNMT. Kết quả chứng minh hệ MgAl-LDH@AC kết hợp polymer cation có khả năng xử lý đồng thời kim loại, anion và chất hữu cơ trong nước thải phức tạp.

Từ khoá

Cation polyacrylamide; Hấp phụ-trao đổi ion; Kẽm undecylenat; MgAl-LDH@AC; Xử lý nước thải.

Đặt vấn đề

Trong những năm gần đây, kẽm undecylenat (zinc undecylenate) ((C₁₀H₁₉COO)₂Zn) được quan tâm nhờ khả năng kháng nấm hiệu quả, độ an toàn cao và tiềm năng ứng dụng trong dược phẩm cũng như vật liệu chức năng (Hoàng & Nguyễn, 2021; Petrović và cộng sự, 2018; Scott và cộng sự, 2024). Các hướng nghiên cứu hiện đại không chỉ tập trung vào hoạt tính sinh học mà còn nhấn mạnh yêu cầu kiểm soát độ tinh khiết, kích thước hạt và tính chất phân tán nhằm tối ưu hiệu quả ứng dụng. Trong đó, phương pháp tổng hợp từ axit undecylenic (C₁₀H₁₉COOH), ZnCl₂ và NaOH được sử dụng phổ biến do quy trình đơn giản, dễ kiểm soát và có khả năng mở rộng quy mô.

Tuy nhiên, để đảm bảo phản ứng xảy ra hoàn toàn theo hướng tạo thành kẽm undecylenat, ZnCl₂ được sử dụng với hàm lượng dư nhẹ (0,2%). Kết quả của quá trình tổng hợp kẽm undecylenat dẫn đến sự hình thành đáng kể NaCl trong dung dịch sau phản ứng, làm gia tăng độ mặn của nước thải. Sản phẩm kẽm

undecylenat thu được tồn tại chủ yếu dưới dạng các hạt mịn, kỵ nước và có xu hướng phân tán tốt trong hệ dung môi chứa etanol. Trong quá trình lọc, rửa và thu hồi, một lượng nhỏ sản phẩm có thể bị cuốn trôi theo dung dịch rửa và làm tăng hàm lượng chất hữu cơ trong nước thải. Sự tồn tại đồng thời của muối vô cơ và chất hữu cơ phân tán khiến hệ nước thải sau phản ứng trở nên phức tạp và khó xử lý bằng các phương pháp đơn lẻ thông thường.

Mặc dù đã có nhiều nghiên cứu liên quan đến tổng hợp kẽm undecylenat, phần lớn mới chỉ tập trung vào tối ưu điều kiện phản ứng và đặc trưng sản phẩm, trong khi vấn đề phát sinh nước thải và xử lý sau tổng hợp vẫn chưa được quan tâm đầy đủ. Đây là một khoảng trống nghiên cứu đáng chú ý, đặc biệt trong bối cảnh yêu cầu về quy trình “xanh” và giảm thiểu tác động môi trường ngày càng được đặt ra cao hơn trong các hệ tổng hợp hóa học.

Nhiều nghiên cứu đã chỉ ra rằng vật liệu carbon hoạt tính có khả năng giữ các ion kim loại thông qua hấp phụ bề mặt nhờ diện tích riêng lớn và các nhóm chức oxy hóa, đồng thời có thể tương

tác với các hợp chất hữu cơ thông qua cơ chế phân bố – hấp phụ (Acosta-Sánchez và cộng sự, 2026; Dhaouadi và cộng sự, 2021). Song song đó, MgAl-layered double hydroxide (MgAl-LDH) được ghi nhận là vật liệu có cấu trúc lớp mang điện tích dương, trong đó các anion như Cl^- có thể được loại bỏ thông qua cơ chế trao đổi ion với các anion nằm giữa các lớp cấu trúc, một đặc trưng đã được chứng minh rộng rãi trong các hệ LDH chứa kim loại hóa trị II–III (Mo và cộng sự, 2024; Zhao và cộng sự, 2020). Khi kết hợp, composite MgAl-LDH@AC tạo ra hệ vật liệu lai trong đó AC cung cấp mạng mao quản và bề mặt hấp phụ, còn LDH đảm nhiệm vai trò trao đổi anion và cố định các ion vô cơ trong dung dịch.

Bên cạnh các quá trình xử lý của vật liệu MgAl-LDH@AC, polymer cation CPAM (Cationic Polyacrylamide) được sử dụng nhằm tăng cường khả năng loại bỏ các thành phần hữu cơ trong nước thải. Theo Wei và cộng sự (Wei và cộng sự, 2024), CPAM hoạt động như một chất trợ keo tụ - tạo bông, có khả năng thúc đẩy sự kết tụ và lắng của các hạt phân tán, chất hữu cơ và chất rắn lơ lửng trong nước thải. Kẽm undecylenat là muối kim loại của axit undecylenic, trong đó anion undecylenat chứa mạch hydrocarbon dài gồm 11 nguyên tử carbon. Sự hiện diện của mạch hydrocarbon không phân cực làm cho hợp chất này có tính kỵ nước và độ tan rất thấp trong nước. Trong quá trình tổng hợp và thu hồi sản phẩm, một phần các hạt kẽm undecylenat kích thước nhỏ hoặc các cấu tử hữu cơ chứa gốc undecylenat có thể vẫn tồn tại trong nước thải dưới dạng huyền phù hoặc các hệ phân tán keo ổn định. Các tiểu phân này khó bị loại bỏ bằng quá trình lắng tự nhiên và góp phần làm gia tăng giá trị TOC của nước thải.

Khi bổ sung CPAM, các mạch polymer có khối lượng phân tử cao sẽ hấp phụ lên bề mặt các tiểu phân phân tán trong nước thải. Một phần mạch polymer gắn lên bề mặt hạt, trong khi các đoạn mạch còn lại vươn ra môi trường dung dịch và có khả năng liên kết với các hạt khác. Quá trình này làm tăng tần suất va chạm giữa các tiểu phân và thúc đẩy sự hình thành các tập hợp hạt có kích thước lớn hơn. Đồng thời, sự

kết tụ của các hạt hữu cơ phân tán làm giảm độ bền của hệ keo, tạo điều kiện cho các bông cặn phát triển và dễ dàng tách khỏi pha nước bằng lắng hoặc lọc (Wei và cộng sự, 2024).

Trên cơ sở đó, nghiên cứu không chỉ hướng tới việc tổng hợp thành công kẽm undecylenat có hiệu suất lớn, độ tinh khiết cao mà còn hướng tới xử lý nước thải trong quá trình lọc thu sản phẩm thông qua cơ chế đa tác động đồng thời: vừa xử lý ion Zn^{2+} và giảm độ mặn, vừa giải quyết các hạt mịn trong dung dịch nước thải. Sự kết hợp này được kỳ vọng sẽ mang lại một giải pháp toàn diện, biến quy trình tổng hợp kẽm undecylenat truyền thống thành một hệ thống sản xuất khép kín, bền vững và có hiệu quả kinh tế cao hơn.

Vật liệu và phương pháp nghiên cứu

Vật liệu

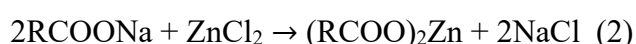
Axit undecylenic (RCOOH) (độ tinh khiết $\geq 98\%$), ZnCl_2 (Xilong, độ tinh khiết $\geq 98\%$), NaOH (Xilong, độ tinh khiết $\geq 98\%$), EDTA 0,05 M, đệm pH=10, NH_3 6 M, H_2SO_4 1,5 M, chỉ thị ETOO, AgNO_3 0,1 N, K_2CrO_4 (Xilong, độ tinh khiết $\geq 99,5\%$), bột than hoạt tính (AC) (Xilong), $\text{AlCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ (Xilong, độ tinh khiết $\leq 100\%$), $\text{MgCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ (Xilong, độ tinh khiết $\geq 98\%$), Na_2CO_3 (Samchun, độ tinh khiết 99%), Cationic Polyacrylamide (CPAM) - CAS: 900305-8).

Tổng hợp Kẽm undecylenat

Hòa tan 1,86 g NaOH bằng 100 mL nước cất, sau đó cho thêm 8,38 g axit undecylenic (RCOOH) và khuấy liên tục trong 30 phút theo tỷ lệ mol giữa $\text{RCOOH} : \text{NaOH} = 1 : 1$.



Hòa tan 3,09 g ZnCl_2 bằng 100 mL nước rồi cho trực tiếp vào dung dịch ban đầu theo tỷ lệ $\text{RCOONa} : \text{ZnCl}_2 = 2 : 1,002$ khuấy trong 30 phút. Sau đó tiến hành lọc, rửa hai lần bằng 400 mL nước cất và tiếp tục rửa bằng 200 mL hỗn hợp $\text{H}_2\text{O} : \text{EtOH} = 4:1$, sấy ở 90°C trong 4 giờ.



Tổng hợp vật liệu MgAl-LDH@AC

Hòa tan muối MgCl_2 và AlCl_3 vào trong 250 mL nước cất theo tỷ lệ mol 3:1, sau đó thêm AC

vào dung dịch sao cho LDH chiếm 25% trên AC. Cho từ từ dung dịch hỗn hợp chứa NaOH và Na_2CO_3 tỷ lệ 9,5 : 0,5 (v:v) đến khi pH = 9 - 10

thì đây kín, khuấy gia nhiệt ở 80 °C trong 7 giờ. Tiến hành lọc, rửa vật liệu đến pH = 7, sấy 80 °C trong 12 giờ.

Khảo sát đặc tính của Kẽm undecylenat và dung dịch nước thải

Mẫu bột kẽm undecylenat được nghiền mịn rồi tiến hành đo FT-IR, Raman dạng bột, và khảo sát nhiệt độ nóng chảy bằng máy đo điểm nóng chảy M560 BUCHI, độ tinh khiết kẽm undecylenat bằng phương pháp chuẩn độ tạo phức với EDTA và chỉ thị ETOO tại pH = 10 (Hoàng & Nguyễn, 2021) theo công thức:

$$X\% = \frac{V_{\text{EDTA}} \cdot C_{\text{EDTA}} \cdot M_{(\text{RCOO})_2\text{Zn}}}{1000 \cdot m_{(\text{RCOO})_2\text{Zn}}} \quad (3)$$

Dung dịch nước thải được thu hồi tiến hành đo pH bằng máy đo pH, tổng lượng Các bon hữu cơ trong nước (TOC) bằng máy phân tích hàm lượng cacbon hữu cơ. Thêm vài giọt axit HNO_3 vào dung dịch nước thải để đo nồng độ Zn^{2+} bằng máy quang phổ hấp thụ nguyên tử AAS, và độ mặn bằng khúc xạ kế quang học.

Khảo sát tính chất vật liệu MgAl-LDH@AC

Khảo sát tính chất vật liệu MgAl-LDH@AC bằng các phương pháp vật lý hiện đại như nhiễu xạ tia X (FT-IR), và kính hiển vi điện tử quét (SEM) từ Viện Nhiệt đới Môi trường.

Khảo sát xử lý loại bỏ Zn^{2+} , độ mặn (Cl^-) trong dung dịch

Khảo sát khả năng loại bỏ Zn^{2+} được tiến hành trong 100 mL dung dịch theo các khảo sát: pH = 4 – 11 với liều lượng MgAl-LDH@AC 1 g/L, nồng độ Zn^{2+} 50 mg/L trong 120 phút ở nhiệt độ thường; liều lượng vật liệu MgAl-LDH@AC từ 0,25 - 1,5 g/L, với nồng độ Zn^{2+} 50 mg/L trong 120 phút ở nhiệt độ thường, trong môi trường pH tự sinh; thời gian tiếp xúc từ 0 - 120 phút, liều lượng MgAl-LDH@AC 1 g/L, nồng độ Zn^{2+} 50 mg/L ở nhiệt độ thường, pH tự sinh; nồng độ Zn^{2+} ban đầu 25 - 150 mg/L, với liều lượng MgAl-LDH@AC 1 g/L trong 120 phút ở

nhiệt độ phòng, pH tự sinh. Sau đó tiến hành đo AAS để xác định nồng độ Zn^{2+} .

Khảo sát làm giảm độ mặn được kiểm tra bởi việc xử lý lượng Cl^- trong dung dịch. Khảo sát làm giảm lượng Cl^- được tiến hành trong 100 mL dung dịch theo các khảo sát: pH = 4 - 11 với liều lượng MgAl-LDH@AC 1 g/L, nồng độ Cl^- 40 mg/L trong 180 phút ở nhiệt độ thường; liều lượng vật liệu MgAl - LDH@AC từ 0,25 - 1,5 g/L, với nồng độ Cl^- 40 mg/L trong 180 phút ở nhiệt độ thường, trong môi trường pH tự sinh; thời gian tiếp xúc 0 - 180 phút, với liều lượng MgAl-LDH@AC 1 g/L, nồng độ Cl^- 40 mg/L ở nhiệt độ thường, pH tự sinh; nồng độ ban đầu Cl^- 20 - 100 mg/L với liều lượng MgAl-LDH@AC 1 g/L trong 180 phút ở nhiệt độ phòng, pH tự sinh. Sau xử lý, mẫu được axit hóa bằng 1 mL HNO_3 0,1 M, điều chỉnh pH = 6,5 bằng NaOH, sau đó định lượng Cl^- bằng phương pháp chuẩn độ Mohr với $\text{AgNO}_3/\text{K}_2\text{CrO}_4$.

Các kết quả dung để xác định điều kiện tối ưu, mô hình động học và đường đẳng nhiệt hấp phụ để làm rõ cơ chế tương tác của vật liệu MgAl-LDH@AC.

Khảo sát xử lý mẫu nước thải thực tế

Cho liều lượng 10 g/L MgAl-LDH@AC vào 100 mL dung dịch nước thải tiến hành khuấy từ 0 - 120 phút ở nhiệt độ phòng, sau đó thêm CPAM với liều lượng 10 mg/L khuấy nhanh 2 phút, khuấy chậm 30 phút, sau đó lọc nước trong. Tiến hành khảo sát pH, TOC, Zn^{2+} , độ mặn của dung dịch sau xử lý.

Tuyên bố đạo đức nghiên cứu: Nghiên cứu này được thực hiện dưới sự cho phép và phê duyệt của chủ nhiệm đề tài. Các hoạt động nghiên cứu được triển khai theo đúng phạm vi, nội dung và mục tiêu của đề tài nghiên cứu khoa học đã được phê duyệt.

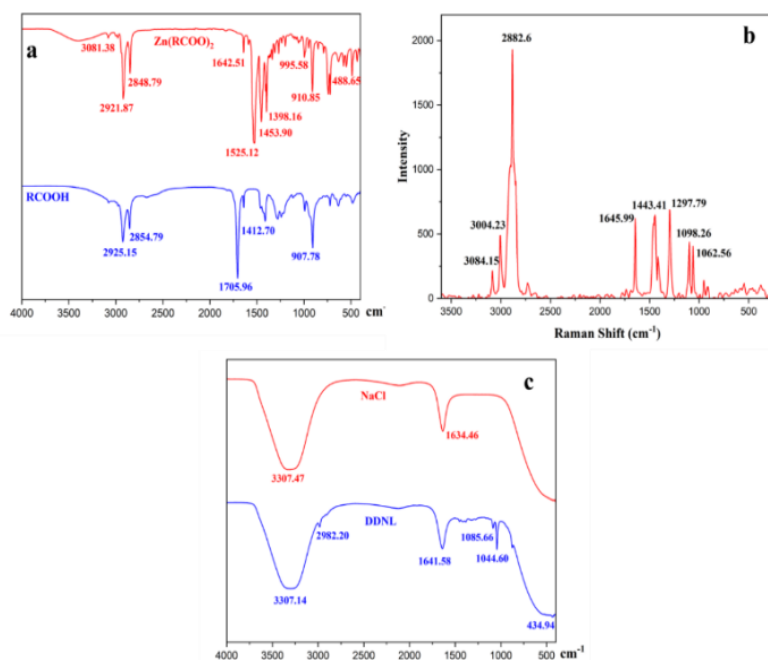
Kết quả

Đặc trưng của Kẽm undecylenat và dung dịch nước thải

Kết quả phân tích FT-IR và Raman của kẽm undecylenat (Hình 1a,b) cho thấy sự xuất hiện các dao động đặc trưng của nhóm carboxylat, với các dải hấp thụ tại khoảng 1645,21 và

1435,19 cm^{-1} , đồng thời phổ Raman ghi nhận các tín hiệu nổi bật tại 1645,93; 1434,31 và 1287,79 cm^{-1} . Các dao động liên quan đến liên kết C–H của mạch hydrocarbon cũng được ghi nhận trong vùng 2921,87–2854,79 cm^{-1} . Đối với nước thải sau phản ứng (DDLN), phổ FT-IR xuất hiện các dải hấp thụ tại 3377,14; 1645,88;

1055,60 và 444,94 cm^{-1} , phản ánh sự hiện diện của các nhóm chức và thành phần còn tồn tại trong pha nước. Nhìn chung, các kết quả phổ đặc trưng đã xác nhận sự hình thành của kẽm undecylenat, đồng thời cho thấy nước thải sau phản ứng vẫn chứa một số thành phần hữu cơ và vô cơ cần được tiếp tục xử lý.



Hình 1. Phổ FT-IR và Raman của kẽm undecylenat (a,b), phổ FT-IR của nước thải (DDLN) sau phản ứng (c)

Bảng 1. Các giá trị khảo sát kẽm undecylenat và nước thải sau phản ứng

Hiệu suất (%)	Nhiệt độ nóng chảy ($^{\circ}\text{C}$)	pH dung dịch	Nồng độ Zn^{2+} (mg/L)	Độ mặn (‰)	TOC (mg/L)
98,85	117,5	4,7	240,9	4,50	554,95

*TOC là tổng lượng Cacbon hữu cơ trong mẫu dung dịch

Bảng 2. Khảo sát độ tinh khiết của kẽm undecylenat thu được

Số lần thử	Khối lượng kẽm undecylenat (g)	Nồng độ EDTA (mol/L)	Thể tích EDTA (mL)	Độ tinh khiết kẽm undecylenat (%)	SD	RSD (%)
1	0,2160	0,05	9,90	98,98	0,24	0,24
2	0,2234	0,05	10,25	99,09		
3	0,2180	0,05	9,95	98,57		
4	0,2178	0,05	10,00	99,16		
5	0,2186	0,05	10,00	98,79		
Trung bình				98,92		

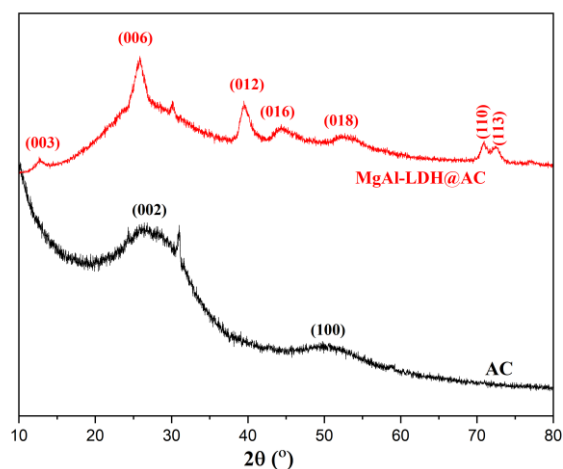
SD là độ lệch chuẩn của phép đo; *RSD là độ lệch chuẩn tương đối của phép đo

Kết quả khảo sát được trình bày trong Bảng 1 và Bảng 2 cho thấy quá trình tổng hợp kẽm undecylenat đạt hiệu suất 98,85%, với nhiệt độ nóng chảy của sản phẩm đạt 117,5°C. Nước thải sau phản ứng có pH 4,7, nồng độ Zn^{2+} đạt 240,9 mg/L, độ mặn 4,50‰ và hàm lượng TOC 554,95 mg/L. Kết quả đánh giá độ tinh khiết của kẽm undecylenat thông qua 5 lần thử cho giá trị trong khoảng 98,57–99,16%, với độ tinh khiết trung bình đạt 98,92%. Đồng thời, giá trị SD = 0,24 và RSD = 0,24% cho thấy kết quả phân tích có độ lặp lại tốt. Nhìn chung, các kết quả khảo sát cho thấy sản phẩm kẽm undecylenat thu được có hiệu suất và độ tinh khiết cao, trong khi nước thải sau phản ứng vẫn chứa hàm lượng Zn^{2+} và TOC đáng kể.

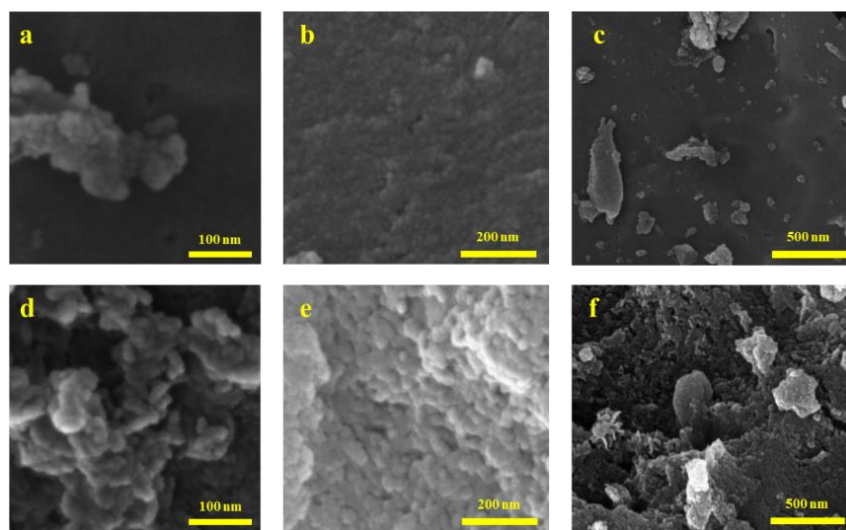
Tính chất vật liệu MgAl-LDH@AC

Kết quả phân tích XRD (Hình 2) cho thấy than hoạt tính (AC) có các đỉnh nhiễu xạ đặc trưng tại khoảng $2\theta = 26^\circ$ và 43° , tương ứng với các mặt phẳng (002) và (100). Sau khi biến tính, vật liệu MgAl-LDH@AC xuất hiện thêm các đỉnh đặc trưng của cấu trúc LDH tại các vị trí (003), (006), (012), (015), (018), (110) và (113), cho thấy sự hình thành và hiện diện của

pha MgAl-LDH trên nền AC. Đồng thời, ảnh SEM (Hình 3) cho thấy AC có bề mặt tương đối không đồng nhất và cấu trúc xốp, trong khi vật liệu MgAl-LDH@AC xuất hiện các cụm hạt dạng phiến phân bố trên bề mặt. Nhìn chung, kết quả XRD và SEM cho thấy MgAl-LDH đã được kết hợp thành công với than hoạt tính, tạo thành vật liệu composite MgAl-LDH@AC có cấu trúc và hình thái bề mặt khác biệt so với AC ban đầu.



Hình 2. Phổ XRD của than hoạt tính (AC) và vật liệu MgAl-LDH@AC



Hình 3. Ảnh chụp SEM của AC (a, b, c) và MgAl-LDH@AC (d, e, f)

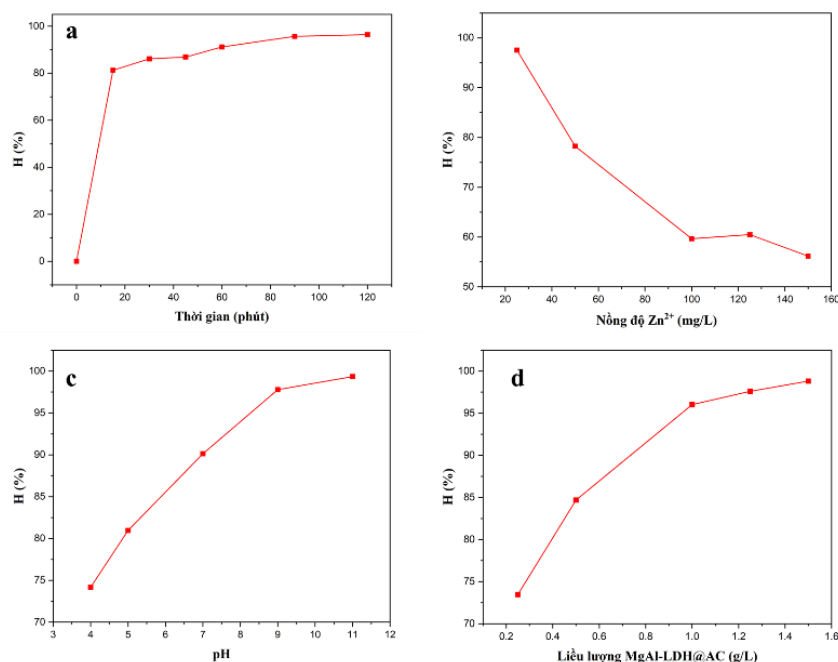
Kết quả xử lý loại bỏ Zn^{2+} , Cl^- trong dung dịch

Hình 4 cho thấy hiệu suất loại bỏ Zn^{2+} của vật liệu MgAl-LDH@AC chịu ảnh hưởng rõ rệt bởi thời gian tiếp xúc, nồng độ Zn^{2+} ban đầu, pH và liều lượng vật liệu. Hiệu suất loại bỏ Zn^{2+} tăng nhanh trong 15 phút đầu, đạt khoảng 81%, sau đó tiếp tục tăng và đạt 95,68–96,44% sau 90–120 phút. Khi nồng độ Zn^{2+} ban đầu tăng từ 25

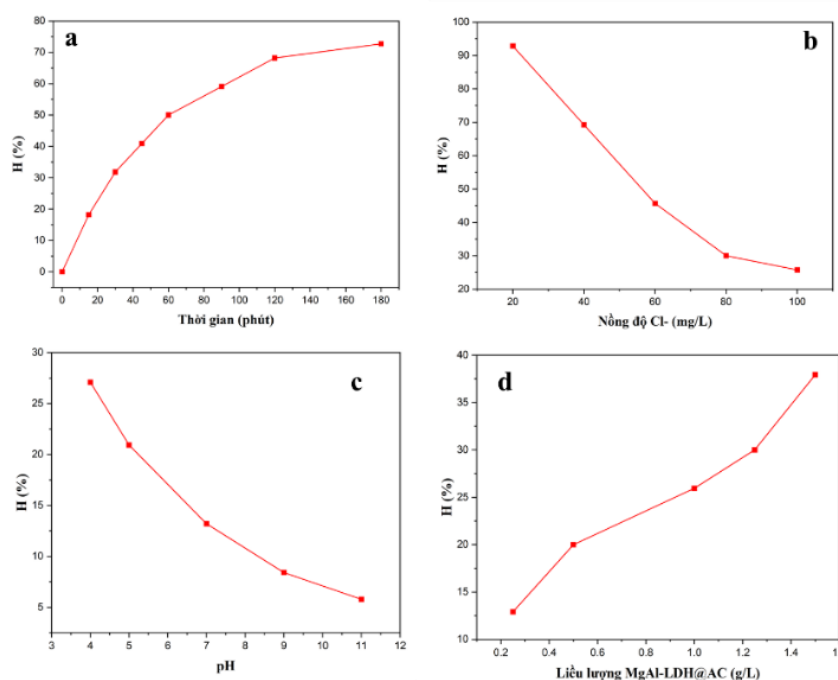
lên 150 mg/L, hiệu suất loại bỏ giảm từ 97,53% xuống 56,16%. Ngược lại, hiệu suất tăng theo pH, từ 74,16% tại pH 4 lên 99,35% tại pH 11. Đồng thời, khi tăng liều lượng MgAl-LDH@AC từ 0,25 lên 1,5 g/L, hiệu suất loại bỏ Zn^{2+} tăng từ 73,46% lên 98,8%, trong đó hiệu suất đã đạt trên 96% tại liều lượng 1,0 g/L. Nhìn chung, các điều kiện khảo sát cho thấy vật liệu MgAl-

LDH@AC có khả năng loại bỏ Zn^{2+} hiệu quả, đặc biệt tại thời gian tiếp xúc từ 90 phút, môi

trường pH kiềm và liều lượng vật liệu từ khoảng 1,0 g/L trở lên.



Hình 4. Đồ thị hiệu suất loại bỏ Zn^{2+} trong dung dịch từ 0 - 120 phút (a), nồng độ Zn^{2+} từ 25 – 150 mg/L(b), pH môi trường thay đổi từ 4 - 11 (c) và theo liều lượng MgAl-LDH@AC từ 0,25 – 1,5 g/L (d)



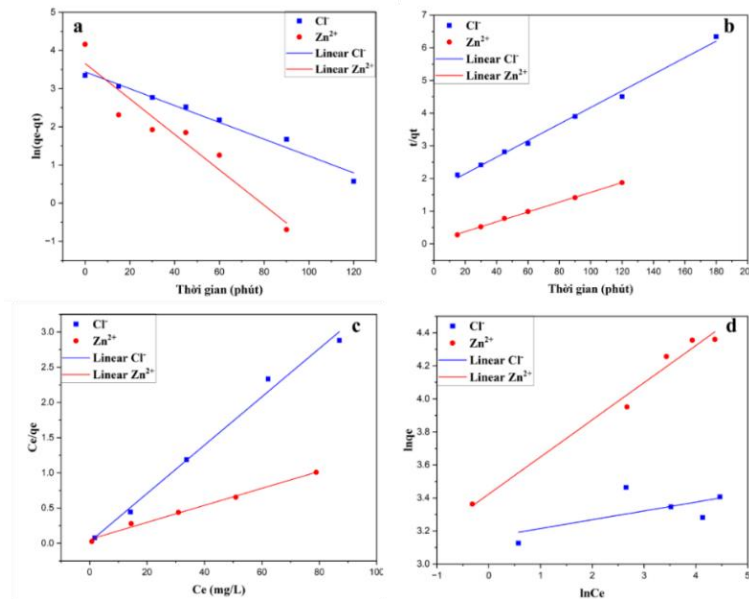
Hình 5. Đồ thị hiệu suất loại bỏ Cl^- trong dung dịch từ 0 – 180 phút (a), nồng độ Cl^- từ 20 – 100 mg/L(b), pH môi trường từ 4 - 11 (c) và theo liều lượng MgAl-LDH@AC từ 0,25 – 1,5 g/L (d)

Hình 5 cho thấy hiệu suất loại bỏ Cl^- của vật liệu MgAl-LDH@AC chịu ảnh hưởng bởi các điều kiện khảo sát. Hiệu suất loại bỏ Cl^- tăng dần theo thời gian và đạt khoảng 72,72% sau 180 phút. Khi nồng độ Cl^- ban đầu tăng từ 20 lên 100 mg/L, hiệu suất giảm từ 92,85% xuống

25,75%. Bên cạnh đó, hiệu suất loại bỏ Cl^- giảm dần khi pH tăng từ 4 đến 11, từ khoảng 27% xuống 5,7%, trong khi tăng liều lượng MgAl-LDH@AC từ 0,25 lên 1,5 g/L giúp hiệu suất tăng từ 12,9% lên 37,9%.

Kết quả mô hình hóa động học và đẳng nhiệt hấp phụ được trình bày trong Hình 6 và Bảng 3. Đối với cả Zn^{2+} và Cl^- , mô hình động học giả bậc 2 có hệ số tương quan cao hơn mô hình giả bậc 1, với R^2 lần lượt đạt 0,99903 và 0,99481. Về đẳng nhiệt hấp phụ, mô hình Langmuir phù hợp tốt hơn đối với cả Zn^{2+} và

Cl^- , với giá trị R^2 đạt 0,9921 và 0,9848, tương ứng với dung lượng hấp phụ cực đại 82,78 mg/g đối với Zn^{2+} và 29,15 mg/g đối với Cl^- . Nhìn chung, các kết quả cho thấy quá trình loại bỏ Zn^{2+} và Cl^- trên vật liệu MgAl-LDH@AC có sự phù hợp tốt với mô hình động học giả bậc 2 và đẳng nhiệt Langmuir.



Hình 6. Đồ thị các mô hình động học: mô hình động học giả bậc 1 (a), mô hình động học giả bậc 2 (b) và mô hình đường đẳng nhiệt hấp phụ: Langmuir (c), Freundlich (d) của Zn^{2+} , Cl^- đối với vật liệu MgAl-LDH@AC

Bảng 3. Đại lượng các mô hình trong xử lý loại bỏ Zn^{2+} , Cl^- trên MgAl-LDH@AC

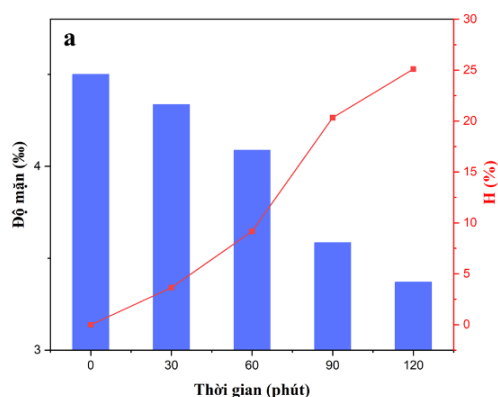
Mô hình	Đại lượng	Zn^{2+}	Cl^-
Mô hình động học giả bậc 1 $\ln(q_e - q_t) = \ln(q_e) - k_1 t$	k_1 (1/min)	0,04644	0,02203
	q_e (mg/g)	38,802	31,085
	R^2	0,91561	0,97815
Mô hình động học giả bậc 2 $\frac{t}{qt} = \frac{1}{k_2 \cdot qe^2} + \frac{1}{qe} \cdot t$	k_2 (g/(mg.min))	0,0030	0,000392
	q_e (mg/g)	66,58	39,45
	R^2	0,99903	0,99481
Langmuir $\frac{Ce}{qe} = \frac{1}{q_{max}} \cdot Ce + \frac{1}{q_{max} \cdot K_L}$	K_L (L/mg)	0,2179	1,623
	q_{max} (mg/g)	82,78	29,15
	R^2	0,99247	0,991
Freundlich $\ln q_e = \frac{1}{n} \cdot \ln C_e + \ln K_F$	K_F (mg/g).(L/mg) ^{1/n}	30,68	23,62
	n	4,45	18,8
	R^2	0,98092	0,4048

Kết quả xử lý nước thải thực tế

Hình 7 cho thấy các thông số ô nhiễm trong nước thải giảm dần theo thời gian xử lý bằng hệ MgAl-LDH@AC kết hợp với CPAM. Độ

mặn giảm từ 4,50‰ xuống 3,37‰ sau 120 phút, trong khi hiệu suất loại bỏ tương ứng tăng dần theo thời gian. Đồng thời, nồng độ Zn^{2+} giảm nhanh từ 240,9 mg/L xuống 2,08 mg/L, tương ứng với hiệu suất loại bỏ gần

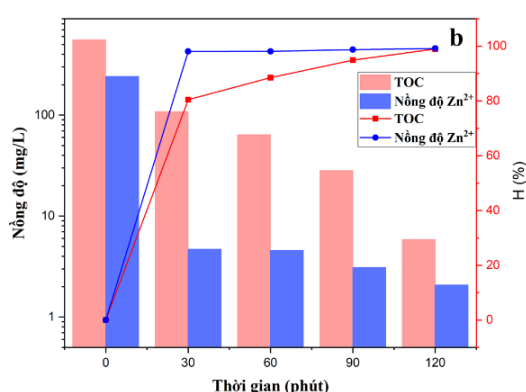
100%, và hàm lượng TOC cũng giảm đáng kể xuống còn 5,85 mg/L. Kết quả tại Bảng 4 cho thấy nước thải sau xử lý có pH trong khoảng 6–8. Nhìn chung, hệ MgAl-LDH@AC kết hợp với CPAM cho thấy khả năng xử lý hiệu quả Zn^{2+} và các chất hữu cơ trong nước thải, đồng thời góp phần làm giảm độ mặn của dung dịch.



Bảng 4. Các giá trị khảo sát nước thải sau xử lý bằng MgAl-LDH@AC và CPAM

pH dung dịch	Nồng độ Zn^{2+} (mg/L)	Độ mặn (%)	TOC (mg/L)
6-8	2,08	3,37	5,85

*TOC là tổng lượng Cacbon hữu cơ trong mẫu dung dịch



Hình 7. Đồ thị quá trình xử lý nước thải bằng MgAl-LDH@AC và CPAM theo thời gian xử lý: (a) Độ mặn và hiệu suất loại bỏ tương ứng, (b) Nồng độ TOC, Zn^{2+} và hiệu suất loại bỏ tương ứng

Thảo luận

Đặc điểm của Kẽm undecylenat và dung dịch nước thải

Phổ FT-IR tại Hình 1a cho thấy sự chuyển hóa rõ rệt từ axit undecylenic (RCOOH) sang muối kẽm undecylenat Zn(RCOO)_2 thông qua sự thay đổi đặc trưng của nhóm carboxylic. Đối với mẫu axit undecylenic (RCOOH), phổ xuất hiện dải hấp thụ mạnh tại $1705,96 \text{ cm}^{-1}$, đặc trưng cho dao động kéo giãn C=O của nhóm COOH tự do. Đồng thời, các đỉnh tại $2925,15 \text{ cm}^{-1}$ và $2854,79 \text{ cm}^{-1}$ tương ứng với dao động kéo giãn bất đối xứng và đối xứng của liên kết aliphatic CH_2 trong mạch hydrocarbon dài của undecylenic acid. Ngoài ra, đỉnh tại $1412,70 \text{ cm}^{-1}$ được gán cho dao động biến dạng của nhóm CH_2 , trong khi tín hiệu tại $907,78 \text{ cm}^{-1}$ liên quan đến dao động ngoài mặt phẳng của liên kết vinyl terminal ($=\text{CH}_2$), xác nhận sự hiện diện của nối đôi chưa bão hòa trong cấu trúc undecylenic acid (Baharuddin và cộng sự, 2018; Hoàng & Nguyễn, 2021; Petrović và cộng sự, 2018).

Sau phản ứng phổ FT-IR của Zn(RCOO)_2 thay đổi đáng kể, chứng minh sự hình thành muối carboxylat kẽm. Cụ thể, đỉnh dao động C=O đặc trưng của nhóm COOH tại $1705,96 \text{ cm}^{-1}$ đã biến mất hoàn toàn và thay thế bằng dải hấp thụ

mới tại $1642,51 \text{ cm}^{-1}$, được quy cho dao động kéo giãn bất đối xứng của nhóm carboxylat phối trí Zn-COO^- . Đồng thời, tín hiệu tại $1453,90 \text{ cm}^{-1}$ và $1398,16 \text{ cm}^{-1}$ được gán cho dao động kéo giãn đối xứng của COO^- và dao động biến dạng CH_2 của mạch hydrocarbon. Sự xuất hiện của cặp dao động COO^- thay cho đỉnh C=O của acid tự do là bằng chứng đặc trưng chứng minh quá trình khử proton và tạo muối carboxylat kim loại đã xảy ra. Khoảng chênh lệch giữa dao động bất đối xứng và đối xứng của COO^- cho thấy nhóm carboxylat có xu hướng phối trí với Zn^{2+} theo dạng bridging hoặc ionic coordination đặc trưng của zinc carboxylate (Baharuddin và cộng sự, 2018).

Ngoài ra, các đỉnh tại $3081,38 \text{ cm}^{-1}$; $2921,87 \text{ cm}^{-1}$ và $2848,79 \text{ cm}^{-1}$ lần lượt tương ứng với dao động kéo giãn $=\text{C-H}$ và CH_2 aliphatic, cho thấy mạch hydrocarbon không bị phá hủy sau phản ứng tạo muối. Các tín hiệu tại $995,58 \text{ cm}^{-1}$ và $910,85 \text{ cm}^{-1}$ tiếp tục xuất hiện, chứng minh nối đôi của undecylenat vẫn được bảo toàn. Đỉnh hấp thụ vùng thấp tại $488,65 \text{ cm}^{-1}$ được cho là liên quan đến dao động Zn-O trong liên kết Zn-carboxylate , tiếp tục củng cố sự hình thành Zn(RCOO)_2 (Hoàng & Nguyễn, 2021). Sự biến mất hoàn toàn của đỉnh C=O acid tại $1705,96 \text{ cm}^{-1}$ cùng với sự xuất hiện đặc trưng của các dao động COO^- và Zn-O là bằng chứng

phổ hồng ngoại thuyết phục chứng minh undecylenic acid đã phản ứng với Zn^{2+} để tạo thành kẽm undecylenat. Kết quả này phù hợp với các nghiên cứu trước đây về muối carboxylat kim loại và zinc undecylenate đã được công bố (Baharuddin và cộng sự, 2018; Hoàng & Nguyễn, 2021).

Phổ Raman của sản phẩm (Hình 1b) ghi nhận các đỉnh đặc trưng tại $2882,6\text{ cm}^{-1}$ (dao động kéo giãn C–H của mạch aliphatic), 1646 cm^{-1} (dao động liên kết đôi C=C), cùng với các dải trong vùng $1443,41$ và $1297,79\text{ cm}^{-1}$ liên quan đến dao động biến dạng của nhóm $-\text{CH}_2$ và $-\text{CH}_3$. Ngoài ra, các đỉnh trong vùng $1098\text{--}1062\text{ cm}^{-1}$ được gán cho dao động kéo giãn C–O của nhóm carboxylat liên kết với Zn^{2+} , trong khi các tín hiệu yếu hơn ở vùng dưới 800 cm^{-1} có thể liên quan đến dao động của khung Zn–O–C. Sự xuất hiện đồng thời và rõ ràng của các dải dao động này cho thấy cấu trúc hữu cơ của gốc undecylenat được bảo toàn sau phản ứng, đồng thời xác nhận sự hình thành liên kết với ion kẽm (Hoàng & Nguyễn, 2021).

Đối với nước thải sau phản ứng (Hình 1c), phổ FT-IR của dung dịch (DDNL) được so sánh với mẫu NaCl đối chứng nhằm xác định sự hiện diện của muối vô cơ trong hệ. Các dải hấp thụ tại $3307,92$ và $1641,58\text{ cm}^{-1}$ xuất hiện ở cả hai mẫu, đặc trưng cho dao động của nước. Sự tương đồng về nền phổ giữa DDNL và NaCl cho thấy sự tồn tại của lượng muối hòa tan đáng kể, chủ yếu là NaCl hình thành trong quá trình phản ứng. Bên cạnh đó, các đỉnh tại $1085,66$ và $1044,60\text{ cm}^{-1}$ cùng với dải tại $434,94\text{ cm}^{-1}$ chỉ xuất hiện trong mẫu DDNL, có thể liên quan đến dao động của nhóm chức hữu cơ và liên kết Zn–O trong cấu trúc kẽm undecylenat. Điều này cho thấy một phần các hạt kẽm undecylenat kích thước nhỏ đã không được giữ lại hoàn toàn trong quá trình lọc mà tồn tại dưới dạng phân tán trong dung dịch.

Kết quả trong Bảng 1 và Bảng 2 cho thấy quá trình tổng hợp kẽm undecylenat đạt hiệu suất cao (98,85%), qua kiểm tra độ tinh khiết kẽm undecylenat thu được là 98,92% với độ tinh khiết cao $\text{SD} = 0,24$ và $\text{RSD} = 0,24\%$, chứng tỏ phản ứng giữa ZnCl_2 và acid undecylenic diễn ra gần như hoàn toàn; việc sử dụng lượng ZnCl_2 dư nhẹ (0,2%) góp phần đảm bảo chuyển hóa triệt để tiền chất, phù hợp với các đặc trưng phổ

FT-IR và Raman đã phân tích. Tuy nhiên, nước thải sau phản ứng vẫn chứa hàm lượng Zn^{2+} đáng kể ($240,9\text{ mg/L}$), cho thấy một phần kẽm tồn tại dưới dạng hòa tan; đồng thời, độ mặn (4,50 ‰) phản ánh sự hiện diện của lượng lớn muối hòa tan, chủ yếu là NaCl hình thành từ phản ứng giữa muối RCOONa và ZnCl_2 . Bên cạnh đó, giá trị TOC đạt $554,95\text{ mg/L}$ cho thấy vẫn còn các hợp chất hữu cơ trong dung dịch, phù hợp với các tín hiệu hấp thụ quan sát được trên phổ FT-IR của nước thải.

Tính chất vật liệu MgAl-LDH@AC

Hình 2 cho thấy phổ nhiễu xạ tia X (XRD) của than hoạt tính (AC) và vật liệu tổ hợp MgAl-LDH@AC. Đối với mẫu AC, phổ xuất hiện hai đỉnh nhiễu xạ rộng tại khoảng $2\theta = 25 - 30^\circ$ và $2\theta = 50 - 55^\circ$, tương ứng với các mặt phẳng tinh thể (002) và (100) đặc trưng của carbon vô định hình hoặc carbon có mức độ graphit hóa thấp. Các đỉnh có cường độ thấp và độ rộng lớn chứng tỏ cấu trúc carbon chủ yếu ở trạng thái bán tinh thể với sự sắp xếp không hoàn hảo của các lớp graphenic, phù hợp với đặc trưng của than hoạt tính có diện tích bề mặt cao và cấu trúc xốp phát triển (Yanuar và cộng sự, 2019).

Sau khi biến tính bằng MgAl-LDH, phổ XRD của MgAl-LDH@AC xuất hiện thêm các đỉnh nhiễu xạ đặc trưng tại khoảng $2\theta = 12,5^\circ, 26^\circ, 39,5^\circ, 44,5^\circ, 52,5^\circ, 71^\circ$ và $72,5^\circ$, được gán lần lượt cho các mặt tinh thể (003), (006), (012), (016), (018), (110) và (113) của cấu trúc hydrotalcite điển hình (Alhumaimess và cộng sự, 2020; Beyranvand và cộng sự, 2019). Sự hiện diện của các đỉnh này chứng minh pha MgAl-LDH đã được hình thành thành công trên nền AC. Đỉnh (003) xuất hiện rõ nét phản ánh cấu trúc lớp đặc trưng của LDH cùng khoảng cách xen lớp tương đối đồng đều. Đồng thời, cường độ các đỉnh của LDH không quá sắc nhọn mà có xu hướng mở rộng cho thấy kích thước tinh thể nhỏ và độ kết tinh trung bình, điều thường gặp ở các vật liệu LDH tổng hợp bằng phương pháp đồng kết tủa.

Ngoài ra, đỉnh (002) của AC trong vật liệu composite giảm cường độ đáng kể và trở nên khó phân biệt sau khi gắn LDH, cho thấy các lớp MgAl-LDH đã phủ lên bề mặt carbon hoạt tính hoặc tương tác mạnh với nền carbon. Điều này góp phần hạn chế sự sắp xếp trật tự của các

lớp graphitic trong AC. Sự kết hợp giữa cấu trúc lớp của LDH và mạng carbon xốp của AC được kỳ vọng sẽ tạo ra nhiều tâm hoạt động bề mặt hơn, đồng thời cải thiện khả năng khuếch tán chất hấp phụ cũng như hiệu suất truyền electron của vật liệu composite.

Ảnh SEM trong Hình 3 tiếp tục xác nhận sự thay đổi hình thái bề mặt sau khi hình thành composite MgAl-LDH@AC. Đối với mẫu AC (Hình 3a–c), bề mặt vật liệu tương đối không đồng nhất với sự hiện diện của các hạt carbon kết tụ và cấu trúc xốp dạng khối đặc trưng. Bề mặt AC có độ nhám tương đối thấp và xuất hiện các vùng phẳng xen kẽ với các cụm hạt kích thước nano–submicron, phù hợp với đặc điểm của than hoạt tính sau quá trình carbon hóa và hoạt hóa (Yanuar và cộng sự, 2019).

Trong khi đó, ảnh SEM của MgAl-LDH@AC (Hình 3d–f) cho thấy bề mặt vật liệu trở nên gồ ghề và phát triển nhiều cụm hạt dạng tấm/lớp kết tụ đặc trưng của LDH. Các hạt MgAl-LDH phân bố tương đối đồng đều trên nền AC và tạo thành cấu trúc phân cấp với độ nhám cao hơn đáng kể so với mẫu AC ban đầu. Ở độ phóng đại lớn, có thể quan sát thấy các miền hạt nano liên kết chặt chẽ, hình thành mạng lưới xếp lớp chồng lên nhau, đây là đặc trưng phổ biến của vật liệu hydrotalcite (Alhumaimess và cộng sự, 2020; Beyranvand và cộng sự, 2019). Đồng thời, cấu trúc xốp của AC vẫn được duy trì sau quá trình biến tính, cho thấy sự hình thành LDH không làm phá hủy hoàn toàn mạng carbon nền.

Sự kết hợp giữa kết quả XRD và SEM chứng minh MgAl-LDH đã được neo phủ thành công lên bề mặt than hoạt tính, tạo thành vật liệu composite có cấu trúc phân cấp và diện tích bề mặt phát triển. Cấu trúc này có tiềm năng tăng cường số lượng tâm hấp phụ hoạt động, cải thiện khả năng khuếch tán ion/chất ô nhiễm và nâng cao hiệu suất ứng dụng của vật liệu trong hấp phụ hoặc cảm biến điện hóa.

Xử lý loại bỏ Zn^{2+} , độ mặn (Cl) trong dung dịch

Hình 4 cho thấy hiệu suất loại bỏ Zn^{2+} của vật liệu MgAl-LDH@AC phụ thuộc mạnh vào điều kiện vận hành. Cụ thể, ở (a) hiệu suất tăng nhanh trong 15 phút đầu (81%) và đạt cân bằng sau 90–120 phút (95,68–96,44%), phản ánh quá

trình loại bỏ diễn ra nhanh ở giai đoạn đầu nhờ nhiều tâm hoạt động, sau đó chậm dần do khuếch tán nội hạt và bão hòa bề mặt. Ở (b), khi nồng độ Zn^{2+} tăng từ 20 lên 150 mg/L, hiệu suất giảm đáng kể (từ 97,53% xuống 56,16%) do số lượng vị trí hấp phụ hữu hạn. Ngược lại, ở (c), hiệu suất tăng theo pH từ 4–11 (74,16–99,35%) và đạt tối ưu trong khoảng pH 9–11 (98–100%), cho thấy môi trường kiềm thuận lợi cho việc bắt giữ Zn^{2+} nhờ giảm cạnh tranh H^+ và tăng tương tác tĩnh điện, nhưng ở pH < 7 vật liệu vẫn có thể xử lý trên 70% nồng độ Zn^{2+} .

Bên cạnh đó, (d) cho thấy khi tăng liều lượng vật liệu từ 0,25 lên 1,5 g/L, hiệu suất tăng từ 73,46% lên 98,8% do số lượng tâm hấp phụ và khả năng trao đổi ion tăng lên, tuy nhiên mức tăng không còn đáng kể sau khoảng 1,0 g/L. Tổng thể, các xu hướng này chứng minh quá trình loại bỏ Zn^{2+} là kết quả của sự phối hợp giữa hấp phụ bề mặt và trao đổi ion trên nền MgAl-LDH@AC.

Hình 5 cho thấy hiệu suất loại bỏ Cl^- của vật liệu MgAl-LDH@AC có xu hướng phụ thuộc rõ rệt vào thời gian và nồng độ ban đầu. Ở (a), hiệu suất tăng dần theo thời gian, từ gần 0% ban đầu lên khoảng 72,72% sau 180 phút, trong đó giai đoạn 0–60 phút tăng nhanh nhất, cho thấy quá trình hấp phụ/trao đổi ion diễn ra mạnh ở giai đoạn đầu, sau đó chậm lại do giảm dần số tâm hoạt động khả dụng. Ngược lại, ở (b), khi nồng độ Cl^- tăng từ 20 lên 100 mg/L, hiệu suất giảm mạnh từ 92,85% xuống còn 25,75%, phản ánh sự cạnh tranh vị trí hấp phụ và giới hạn về số lượng lớp LDH có thể trao đổi anion.

Ảnh hưởng của pH và liều lượng vật liệu được thể hiện ở (c) và (d). Cụ thể, hiệu suất giảm dần khi pH tăng từ 4 (27%) lên 11 (5,7%), cho thấy môi trường axit thuận lợi hơn cho việc loại bỏ Cl^- , có thể do bề mặt vật liệu mang điện tích dương mạnh hơn, tăng khả năng hút anion. Trong khi đó, ở (d), khi tăng liều lượng MgAl-LDH@AC từ 0,25 lên 1,5 g/L, hiệu suất tăng từ 12,9% lên 37,9%, chứng tỏ số lượng vị trí trao đổi anion tăng theo khối lượng vật liệu, tuy nhiên hiệu quả tổng thể vẫn thấp hơn so với Zn^{2+} , cho thấy cơ chế loại bỏ Cl^- chủ yếu là trao đổi anion trong lớp LDH và kém hiệu quả hơn so với hấp phụ cation kim loại.

Hình 6 (a–b) thể hiện các mô hình động học hấp phụ của Zn^{2+} và Cl^- trên vật liệu MgAl-LDH@AC . Kết quả bảng 3 cho thấy mô hình động học giả bậc hai (Hình 4b) có độ phù hợp cao hơn rõ rệt so với mô hình động học giả bậc một (Hình 4a), thể hiện qua hệ số tương quan R^2 của Zn^{2+} (0,99903) và Cl^- (0,99481) đều tiệm cận 1, trong khi ở mô hình giả bậc một đạt 0,91561 và 0,97815. Điều này chứng tỏ quá trình xử lý chủ yếu liên quan đến cơ chế hóa học, bao gồm tương tác bề mặt, trao đổi ion và liên kết với các tâm hoạt động. Đồng thời, giá trị q_e tính toán theo mô hình giả bậc hai (Zn^{2+} : 66,58 mg/g; Cl^- : 39,45 mg/g) phù hợp hơn với thực nghiệm, củng cố thêm nhận định về cơ chế hấp phụ và trao đổi ion chi phối.

Hình 6 (c–d) và giá trị ở bảng 3 trình bày các mô hình đẳng nhiệt hấp phụ, trong đó mô hình Langmuir (Hình 4c) cho độ tương thích cao hơn so với Freundlich (Hình 4d), với hệ số R^2 lần lượt là 0,99247 (Zn^{2+}) và 0,991 (Cl^-). Điều này cho thấy quá trình xử lý diễn ra phần lớn trên bề mặt đồng nhất và hình thành lớp đơn phân tử. Tuy nhiên, với quá trình xử lý Zn^{2+} hệ số R^2 của Freundlich tương đối cao (0,98092) cho thấy quá trình xử lý cũng có thể hình thành lớp đa phân tử trên bề mặt. Dung lượng hấp phụ cực đại q_{max} đạt 82,78 mg/g đối với Zn^{2+} và 29,15 mg/g đối với Cl^- , chứng tỏ vật liệu có ái lực mạnh hơn với ion kim loại so với anion. Trong khi đó, mô hình Freundlich chỉ phù hợp với Zn^{2+} ($R^2 = 0,98092$) nhưng không phù hợp với Cl^- ($R^2 = 0,4048$), cho thấy hấp phụ Cl^- không diễn ra trên bề mặt không đồng nhất mà chủ yếu bị chi phối bởi cơ chế trao đổi ion trong cấu trúc lớp LDH.

Xử lý nước thải thực tế

Hình 7 thể hiện diễn biến các thông số ô nhiễm trong quá trình xử lý nước thải bằng hệ vật liệu MgAl-LDH@AC kết hợp CPAM theo thời gian. Ở Hình 7a, độ mặn của dung dịch giảm liên tục từ khoảng 4,50 ‰ xuống còn 3,37 ‰ (~ 25%) sau 120 phút, trong khi hiệu suất loại bỏ tăng dần theo thời gian. Giai đoạn 0–90 phút ghi nhận tốc độ giảm nhanh nhất, cho thấy quá trình trao đổi anion Cl^- trên cấu trúc lớp của LDH diễn ra mạnh mẽ khi số tâm hoạt động còn dồi dào. Sau 90 phút, tốc độ giảm chậm lại, phản

ánh sự tiệm cận trạng thái cân bằng do các vị trí trao đổi dần bị chiếm giữ.

Đối với các thông số ô nhiễm hữu cơ và kim loại (Hình 7b), nồng độ Zn^{2+} giảm rất nhanh chỉ sau 30 phút đầu, từ giá trị ban đầu cao xuống mức thấp và gần như ổn định ở các thời điểm tiếp theo. Xu hướng này cho thấy cơ chế hấp phụ và trao đổi ion đối với Zn^{2+} xảy ra nhanh từ 240,9 mg/L giảm xuống còn 2,08 mg/L (~99,1%), chủ yếu trên bề mặt và trong mao quản của vật liệu MgAl-LDH@AC . Trong khi đó, TOC giảm mạnh theo thời gian, đặc biệt sau khi bổ sung CPAM, từ hàng trăm mg/L xuống 5,85 mg/L (~98,9%). Sự suy giảm sâu của TOC không chỉ đến từ hấp phụ trên AC mà còn do cơ chế keo tụ – tạo bông, trong đó polymer cation đóng vai trò trung hòa điện tích bề mặt và tạo cầu nối giữa các hạt hữu cơ kỵ nước phân tán, giúp hình thành các bông cặn có kích thước lớn và dễ dàng tách khỏi dung dịch.

Kết quả trong Bảng 4 cho thấy chất lượng nước thải sau xử lý được cải thiện rõ rệt và đạt trạng thái ổn định. Dung dịch có pH duy trì trong khoảng 6–8, chứng tỏ hệ MgAl-LDH@AC kết hợp CPAM không gây biến động mạnh về môi trường axit–kiềm, qua đó không cần bổ sung bước điều chỉnh pH sau xử lý. Nồng độ Zn^{2+} giảm xuống còn 2,08 mg/L cho thấy quá trình hấp phụ và trao đổi ion không chỉ hiệu quả ở giai đoạn đầu mà còn duy trì khả năng xử lý ở vùng nồng độ thấp. Đồng thời, TOC giảm mạnh xuống 5,854 mg/L từ giá trị ban đầu cao, phản ánh vai trò quan trọng của CPAM trong cơ chế keo tụ – tạo bông, giúp loại bỏ hiệu quả các hợp chất hữu cơ hòa tan và phân tán.

Mặc dù độ mặn chỉ giảm xuống 3,37 ‰ và chưa được loại bỏ hoàn toàn, kết quả này phù hợp với giới hạn trao đổi anion của cấu trúc LDH và không làm phát sinh độ mặn thứ cấp trong quá trình xử lý. Do đó, để đáp ứng yêu cầu về độ mặn dưới 1‰, cần kết hợp thêm bước pha loãng theo tỷ lệ thể tích giữa nước thải : nước = 1 : 3,5 trước khi thải ra môi trường.

Tổng thể, các thông số về kim loại nặng, TOC sau xử lý đều đáp ứng QCVN 40:2025/BTNMT ($\text{Zn} \leq 5$ mg/L, $\text{TOC} \leq 40$ mg/L) và đạt pH trung tính, cho thấy hệ vật liệu MgAl-LDH@AC kết hợp CPAM có tiềm năng xử lý hiệu quả nước

thải chứa đồng thời kim loại, hợp chất hữu cơ và khả năng ứng dụng thực tế đối với nước thải có thành phần phức tạp.

Kết luận

Nghiên cứu đã tổng hợp thành công kẽm undecylenat với hiệu suất cao (98,85%) và độ tinh khiết đạt 98,92%, đồng thời xác nhận cấu trúc bằng FT-IR và Raman. Tuy nhiên, quá trình tổng hợp phát sinh nước thải chứa Zn^{2+} , Cl^- và các hợp chất hữu cơ phân tán với nồng độ cao, đòi hỏi giải pháp xử lý đồng bộ. Vật liệu composite MgAl-LDH@AC được tổng hợp thành công bằng phương pháp đồng kết tủa, trong đó sự hình thành cấu trúc LDH trên nền than hoạt tính được xác nhận bằng XRD và SEM. MgAl-LDH@AC cho thấy khả năng loại bỏ hiệu quả Zn^{2+} và Cl^- thông qua cơ chế tương tác hóa học, phù hợp với mô hình động học giả bậc hai và đẳng nhiệt Langmuir, với dung lượng cực đại lần lượt đạt 82,78 mg/g và 29,15 mg/g, từ đó thể hiện khả năng loại bỏ kim loại nặng và làm giảm nồng độ muối trong dung dịch. Khi kết hợp với CPAM, hiệu quả xử lý được nâng cao đáng kể nhờ cơ chế keo tụ – tạo bông, giúp loại bỏ hiệu quả các chất hữu cơ phân tán. Kết quả xử lý thực tế cho thấy Zn^{2+} giảm xuống 2,08 mg/L (~99,1%), TOC đạt 5,85 mg/L (~98,9%) và pH duy trì 6–8, đều đáp ứng QCVN 40:2025/BTNMT. Mặc dù độ mặn chưa được loại bỏ hoàn toàn chỉ khoảng 25% do giới hạn trao đổi ion của LDH nên cần thêm bước pha loãng trước khi đưa ra môi trường. Nhìn chung, sự kết hợp MgAl-LDH@AC và polymer cation tạo ra hệ xử lý đa cơ chế, có tiềm năng ứng dụng trong xử lý nước thải phức tạp theo hướng bền vững và khép kín.

Thông tin tài trợ: Nghiên cứu này được thực hiện với sự hỗ trợ kinh phí từ nhiệm vụ “Nghiên cứu phát triển quy trình công nghệ chế tạo sản phẩm Bột khử mùi hôi chân BKM.VN”.

Tuyên bố về đóng góp của tác giả: Lê Huỳnh Nhi: Lên ý tưởng nghiên cứu, thực hiện các phép khảo sát và đánh giá đặc trưng của vật liệu MgAl-LDH@AC, phân tích kết quả, hoàn thiện và hiệu chỉnh bản thảo bài báo; Nguyễn Thị Thu Xuân: Đánh giá chất lượng kẽm undecylenat, xây dựng và biên soạn phần phương pháp tổng hợp vật liệu; Đinh Thị Vân: Tổng hợp số liệu nghiên cứu, biên soạn phần mở đầu; Hoàng Thanh Long: Nghiên cứu tài liệu, biên soạn phần mở đầu, xử lý và xây dựng phổ Raman và phổ XRD của mẫu kẽm undecylenat; Đoàn Thanh Vân:

Xử lý và xây dựng phổ XRD, ảnh SEM của vật liệu MgAl-LDH@AC.

Tuyên bố về khả năng tiếp cận dữ liệu nghiên cứu: Dữ liệu hỗ trợ cho các kết quả của nghiên cứu này có thể được cung cấp bởi tác giả liên hệ theo yêu cầu hợp lý.

Tuyên bố về việc sử dụng GenAI: Nhóm tác giả tuyên bố rằng các công cụ AI chỉ được sử dụng nhằm hỗ trợ chỉnh sửa ngôn ngữ, diễn đạt và định dạng bản thảo. AI không được sử dụng để tạo nội dung khoa học. Toàn bộ dữ liệu, kết quả nghiên cứu, phân tích và diễn giải trong bài báo đều do các tác giả trực tiếp thực hiện và kiểm chứng. Nhóm tác giả hoàn toàn chịu trách nhiệm về tính chính xác và nội dung của bản thảo.

Tuyên bố về xung đột lợi ích: Chúng tôi không có bất kỳ lợi ích tài chính cạnh tranh hoặc mối quan hệ cá nhân nào được biết là có thể ảnh hưởng đến công trình nghiên cứu được báo cáo trong bài báo này.

Tài liệu tham khảo

- Acosta-Sánchez, V., Pérez-Labrá, M., Reyes-Pérez, M., Juárez-Tapia, J. C., Romero-Serrano, J. A., Hernández-Ramírez, A., Reyes-Cruz, V. E., Martínez-Soto, J. & Barrientos-Hernández, F. R. (2026). Physicochemical characterization of activated carbon and isothermal analysis of its adsorption capacity for Cu^{2+} , Ni^{2+} , and Zn^{2+} . In *TMS Annual Meeting & Exhibition* (pp. 275–287). Springer Nature Switzerland. https://doi.org/10.1007/978-3-032-13600-8_27
- Alhumaimess, M. S., Alsohaimi, I. H., Hassan, H., El-Sayed, M. Y., Alshammari, M. S., Aldosari, O. F., Alshammari, H. M. & Kamel, M. M. (2020). Synthesis of ionic liquid intercalated layered double hydroxides of magnesium and aluminum: A greener catalyst of Knoevenagel condensation. *Journal of Saudi Chemical Society*, 24(3), 321–333. <https://doi.org/10.1016/j.jscs.2020.01.006>
- Baharuddin, A. A., Ang, B. C., Hussein, N. A. A., Andriyana, A., & Wong, Y. H. (2018). Mechanisms of highly stabilized ex-situ oleic acid-modified iron oxide nanoparticles functionalized with 4-pentynoic acid. *Materials Chemistry and Physics*, 203, 212–222. <https://doi.org/10.1016/j.matchemphys.2017.09.051>
- Beyranvand, N. S., Samiey, B., & Tehrani, A. D. (2019). Adsorption mechanism of Congo red on Mg–Al-layered double hydroxide nanocompound. *Acta Chimica Slovenica*, 66(2), 443–454. <https://doi.org/10.17344/acsi.2018.4920>
- Dhaouadi, F., Sellaoui, L., Reynel-Ávila, H. E., Landín-Sandoval, V., Mendoza-Castillo, D. I., Jaime-Leal, J. E., Lima, E. C., Bonilla-Petriciolet, A., & Lamine, A. B. (2021). Adsorption mechanism of Zn^{2+} , Ni^{2+} , Cd^{2+} , and Cu^{2+} ions by carbon-based adsorbents: interpretation of the adsorption isotherms via physical modelling. *Environmental Science and Pollution Research International*, 28(24), 30943–30954. <https://doi.org/10.1007/s11356-021-12832-x>

- Hoàng, T. L. & Nguyễn, T. D. (2021). Tổng hợp và đánh giá đặc trưng của kẽm undecylenat có độ tinh khiết cao. *Journal of Military Science and Technology*, (76), 112-119. <https://doi.org/10.54939/1859-1043.j.mst.76.2021.112-119>
- Mo, W., He, C., Yang, Y., Cheng, B., Yang, J., & Huang, Y. (2024). Adsorption behavior of Mg–Al layered double hydroxide on Pb(II), Zn(II), Cd(II), and As(V) coexisting in aqueous solution. *Materials Today Sustainability*, 27, Article 100861. <https://doi.org/10.1016/j.mtsust.2024.100861>
- Petrović, M., Bonvin, D., Hofmann, H., & Mionić Ebersold, M. (2018). Fungicidal PMMA–Undecylenic Acid Composites. *International Journal of Molecular Sciences*, 19(1), 184. <https://doi.org/10.3390/ijms19010184>
- Scott, L. N., Fiume, M., Zhu, J., Bergfeld, W. F., Belsito, D. V., Hill, R. A., Klaassen, C. D., Liebler, D. C., Marks, J. G., Jr, Shank, R. C., Slaga, T. J., Snyder, P. W., & Heldreth, B. (2024). Safety Assessment of Zinc Salts as Used in Cosmetics. *International Journal of Toxicology*, 43(2_suppl), 5S-69S. <https://doi.org/10.1177/10915818241227124>
- Wei, Z., Long, W., Li, S., Zhao, Y., Yu, S., & Zhou, F. (2024). Preparation of Cationic Polyacrylamide Suspension and Its Application in Oilfield Wastewater Treatment. *Polymers*, 16(1), 151. <https://doi.org/10.3390/polym16010151>
- Yanuar, H., Asmi, S., Farma, R., Awitdrus, Taer, E., & Mardhiansyah, M. (2019). Growth of palladium thin film deposited on stainless steel current electrodes by wet chemical method for activated carbon supercapacitor and their electrochemical properties. *Journal of Nano- and Electronic Physics*, 11(5), 05006. [https://doi.org/10.21272/jnep.11\(5\).05006](https://doi.org/10.21272/jnep.11(5).05006)
- Zhao, X. J., Zhu, Y. Q., Xu, S. M., Liu, H. M., Yin, P., Feng, Y. L., & Yan, H. (2020). Anion exchange behavior of M^{II}Al layered double hydroxides: a molecular dynamics and DFT study. *Physical Chemistry Chemical Physics: PCCP*, 22(35), 19758–19768. <https://doi.org/10.1039/d0cp02537b>

Abstract

Study on the synthesis of zinc undecylenate and evaluation of post-reaction wastewater treatment efficiency using MgAl-LDH@AC composite combined with cationic polymer

This study presents the results of synthesizing zinc undecylenate from undecylenic acid, sodium hydroxide, and zinc chloride, achieving a yield of 98,85% and a purity of 98,92%, confirmed by FT-IR and Raman spectroscopy. The post-reaction wastewater simultaneously contained zinc ions (240,9 mg/L), high salinity (4,5 ‰), and high TOC (554,95 mg/L). To treat this wastewater, a MgAl-LDH@AC composite was successfully synthesized via the co-precipitation method and characterized by XRD and SEM analyses. The results demonstrated that the material effectively removed zinc ions and reduced salinity through chloride ion removal via chemical interaction mechanisms, with a process conforming to a quasi-secondary kinetic model and Langmuir isotherm, achieving a maximum adsorption capacity of 82,78 mg/g (zinc ions) and 29,15 mg/g (chloride ions). When combined with cationic polyacrylamide, the treatment efficiency was enhanced by the coagulation-flocculation mechanism, helping to remove dispersed organic matter. Actual wastewater treatment results showed that the salinity of the wastewater decreased by approximately 25%, the zinc ion concentration decreased to 2,08 mg/L (~99,1%), TOC to 5,85 mg/L (~98,9%), and the pH was maintained at 6–8; the heavy metal, TOC, and pH indicators met QCVN 40:2025/BTNMT standards. The results demonstrate that the MgAl-LDH@AC system combined with cationic polymer is capable of simultaneously treating metals, anions, and organic matter in complex wastewater.

Keywords: Adsorption – ion exchange; Cationic polymer; MgAl-LDH@AC; Wastewater treatment; Zinc undecylenate.