



Original Article

## Synthesis and Characterization of $\alpha\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{g-C}_3\text{N}_4$ Materials for Treatment of Congo Red Dye in Water

Pham Huynh Thanh Trang, Nguyen Hai Trieu, Nguyen Thi Trang,  
Nguyen Thi Nham, Nguyen Minh Viet\*

*VNU University of Science, 334 Nguyen Trai, Thanh Xuan, Hanoi, Vietnam*

Received 12 October 2022

Revised 06 December 2022; Accepted 14 March 2023

**Abstract:** In recent years, the problem of environmental pollution is becoming extremely serious. Especially, environmental pollution caused by textile dyes not only affects living organisms in the water but also affects human health. There are many methods applied to remove dyes in water; in which, photocatalysis has been proven to be an efficient method. The  $\text{g-C}_3\text{N}_4$  is a polymer material with small bandgap energy (about 2,7 eV) as well as chemical and thermal stability in the ambient environment. In this study, the  $\text{g-C}_3\text{N}_4$  material was successfully synthesized from urea calcined at  $550\text{ }^\circ\text{C}$ , and the modified materials  $\alpha\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{g-C}_3\text{N}_4$  were also successfully prepared by hydrothermal method. The synthesized materials were characterized by modern analytical techniques, such as SEM-EDX, XRD, UV-Vis, and FT-IR. The experimental results showed that synthesized materials have high efficiency in removing Congo Red dye in water under visible light irradiation. Especially, the 7%  $\alpha\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{g-C}_3\text{N}_4$  material had the best efficiency of Congo Red treatment, with an efficiency of up to 93.59% at pH 5 after 150 minutes.

**Keywords:**  $\alpha\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{g-C}_3\text{N}_4$ , congo red, visible-light photocatalysis.

\* Corresponding author.

E-mail address: [nguyenminhviet@hus.edu.vn](mailto:nguyenminhviet@hus.edu.vn)

<https://doi.org/10.25073/2588-1140/vnunst.5512>

# Nghiên cứu tổng hợp vật liệu $\alpha\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{g-C}_3\text{N}_4$ ứng dụng để xử lý phẩm màu Congo Red trong nước

Phạm Huỳnh Thanh Trang, Nguyễn Hải Triều, Nguyễn Thị Trang,  
Nguyễn Thị Nhâm, Nguyễn Minh Việt\*

*Trường Đại học Khoa học Tự nhiên, Đại học Quốc gia Hà Nội,  
334 Nguyễn Trãi, Thanh Xuân, Hà Nội, Việt Nam*

Nhận ngày 12 tháng 10 năm 2022

Chỉnh sửa ngày 06 tháng 12 năm 2022; Chấp nhận đăng ngày 14 tháng 3 năm 2023

**Tóm tắt:** Trong những năm gần đây, vấn đề ô nhiễm môi trường đang trở nên vô cùng nghiêm trọng, đặc biệt là ô nhiễm môi trường do thuốc nhuộm gây ra. Nó không chỉ ảnh hưởng đến sinh vật trong nước mà còn ảnh hưởng đến sức khỏe con người. Vì vậy, nhiều phương pháp đã được nghiên cứu và áp dụng để xử lý phẩm nhuộm trong nước, trong đó phương pháp quang xúc tác có hiệu quả cao nhất. Vật liệu  $\text{g-C}_3\text{N}_4$  có ưu điểm là ổn định hóa học và ổn định nhiệt, có năng lượng vùng cấm nhỏ (khoảng 2,7 eV) và có thể hoạt động dưới ánh sáng mặt trời. Trong nghiên cứu này, vật liệu  $\text{g-C}_3\text{N}_4$  được tổng hợp thành công từ urê sau khi nung ở 550 °C và vật liệu biến tính  $\alpha\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{g-C}_3\text{N}_4$  được điều chế thành công bằng phương pháp thủy nhiệt. Các vật liệu tổng hợp được đặc trưng bởi các kỹ thuật phân tích hiện đại như SEM, EDX, XRD, UV-Vis và FT-IR. Kết quả xử lý thu được cũng cho thấy vật liệu sau khi tổng hợp có hiệu suất cao trong việc loại bỏ thuốc nhuộm Congo Red dưới chiếu xạ ánh sáng khả kiến. Vật liệu 7%  $\alpha\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{g-C}_3\text{N}_4$  cho phép xử lý Congo Red tốt nhất, với hiệu suất lên đến 93,59% ở pH = 5 trong 150 phút.

**Từ khóa:**  $\alpha\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{g-C}_3\text{N}_4$ , Congo Red, xúc tác quang.

## 1. Mở đầu

Ngành công nghiệp dệt nhuộm là một trong những ngành công nghiệp có bề dày truyền thống ở nước ta và giữ vị trí quan trọng trong nền kinh tế quốc gia. Song song với những ứng dụng to lớn của phẩm nhuộm là những tác động tiêu cực do độc tính của nước thải dệt nhuộm ảnh hưởng đến môi trường và sức khỏe.

Sự thất thoát thuốc nhuộm trong quá trình nhuộm đã dẫn đến 10-15% thuốc nhuộm không được sử dụng chảy trực tiếp vào nguồn nước và có thể cảm nhận rõ sự ô nhiễm thông qua độ màu của nước. Thuốc nhuộm azo là một trong các loại thuốc nhuộm có độc tính cao, điển hình là Congo Red (CR) được biết đến là một chất gây ung thư. Các sinh vật trong nước khi phơi nhiễm lâu dài với những thuốc nhuộm này có thể gây ra những ảnh hưởng xấu đến cơ thể

như: tổn hại đến di truyền, khả năng sinh sản và thậm chí là tử vong [1, 2]. Do đó, tìm ra phương pháp xử lý phẩm nhuộm CR trong nước là một vấn đề cấp thiết.

Đứng trước tình trạng đáng báo động từ ô nhiễm phẩm màu đem đến rất nhiều thách thức cũng như là cơ hội nghiên cứu, tìm hiểu cho các nhà khoa học trong việc tìm ra phương pháp phù hợp, kinh tế để xử lý phẩm nhuộm. Một số phương pháp đã được ứng dụng để xử lý loại bỏ phẩm nhuộm trong nước như: phương pháp keo tụ, phương pháp hấp phụ, phương pháp oxy hóa,... Tuy nhiên, các phương pháp trên vẫn tồn tại một số hạn chế như: chi phí đắt đỏ, khả năng xử lý không cao,... Để khắc phục những hạn chế này, việc xử lý phẩm nhuộm bằng phương pháp xúc tác quang đang nhận được nhiều sự quan tâm do hiệu quả về chi phí, hiệu suất cao và đặc biệt rất thân thiện với môi trường. Thời gian gần đây, vật liệu bán dẫn không kim loại graphitic carbon nitride ( $\text{g-C}_3\text{N}_4$ ) rất được quan tâm. Vật liệu này cho

\* Tác giả liên hệ.

Địa chỉ email: nguyeminhviet@hus.edu.vn

<https://doi.org/10.25073/2588-1140/vnunst.5512>

thấy hiệu quả xúc tác quang cao trong vùng ánh sáng khả kiến, năng lượng vùng cấm tương đối hẹp (khoảng 2,7 eV) và bền. Bên cạnh đó có thể thấy rằng, vật liệu g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub> với diện tích bề mặt nhỏ, số lượng tâm phản ứng tiếp xúc thấp và hiệu suất tái tổ hợp của các electron và lỗ trống quang sinh cao, điều này hạn chế ứng dụng trong các lĩnh vực xúc tác quang và phân tích điện hóa [3]. Chính vì vậy, một trong những giải pháp cải tiến được đưa ra là biến tính vật liệu nhằm giảm tốc độ tái tổ hợp electron và lỗ trống quang sinh, tăng diện tích bề mặt chất xúc tác, từ đó nâng cao hiệu quả hoạt tính xúc tác của vật liệu [4, 5].

$\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> là vật liệu bán dẫn loại n có năng lượng vùng cấm hẹp ( $E_g = 2,1$  eV), có khả năng phản ứng tốt với ánh sáng khả kiến, tính chất hóa học ổn định, thân thiện với môi trường, giá thành rẻ và có rất nhiều trên trái đất [6, 9-11]. Hiện nay, vật liệu  $\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> đã được ứng dụng cho nhiều lĩnh vực như siêu tụ điện, pin, cảm biến, chất hấp phụ và xúc tác quang. Mặc dù vậy nhưng các electron và lỗ trống quang sinh của  $\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> lại dễ dàng tái tổ hợp với nhau dẫn đến khả năng quang xúc tác kém, điều này hạn chế ứng dụng của chúng trong xúc tác quang. Do đó, việc biến tính, kết hợp  $\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> với vật liệu khác là cần thiết để tăng hiệu quả xúc tác quang của vật liệu. Các vật liệu tổng hợp được đặc trưng bởi các kỹ thuật phân tích hiện đại như SEM, EDX, XRD, UV-Vis và FT-IR.

## 2. Thục nghiệm

### 2.1. Hóa chất sử dụng

HCl, NH<sub>3</sub>, Congo Red, ethanol, FeCl<sub>3</sub>.6H<sub>2</sub>O, Fe(NO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>.9H<sub>2</sub>O, KCl, NaOH, (NH<sub>2</sub>)<sub>2</sub>CO. Tất cả các hóa chất sử dụng đều đạt độ tinh khiết > 99% và có nguồn gốc Sigma-Aldrich.

### 2.2. Bố trí thí nghiệm và phương pháp thí nghiệm

#### 2.2.1. Tổng hợp g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>

g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub> tinh khiết được tổng hợp bằng cách nung urê ở nhiệt độ cao. Cụ thể, 5 gam bột urê được cho vào cốc sứ, bọc kỹ bằng giấy bạc, và nung ở nhiệt độ 550 °C trong 3 h. Sau đó vật

liệu được làm nguội tự nhiên đến nhiệt độ phòng. Sản phẩm thu được là chất bột màu vàng (g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>).

#### 2.2.2. Tổng hợp $\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>

Vật liệu  $\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub> được tổng hợp theo 2 phương pháp khác nhau (1 $\alpha$ -Fe-CN và 2 $\alpha$ -Fe-CN). Tổng hợp vật liệu 1 $\alpha$ -Fe-CN:

Lấy 1,365 gam FeCl<sub>3</sub>.6H<sub>2</sub>O được hoà tan trong 3,5 ml nước và 50 ml ethanol trên máy khuấy từ. Tiếp đó, cho từ từ 4 gam natri acetat vào hỗn hợp trên. Sau đó, chuyển dung dịch thu được vào bình thủy nhiệt ở 180 °C trong 12 h rồi để nguội về nhiệt độ phòng. Sản phẩm thu được đem ly tâm nhiều lần với nước và ethanol rồi làm khô trong 12 h ở 60 °C thu được  $\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.

Lấy 0,15 gam g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub> đã tổng hợp ở mục 2.2.1 cho vào 25ml ethanol, tiến hành rung siêu âm sau đó đem đi khuấy từ. Dùng một lượng Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> sao cho tỷ lệ khối lượng Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub> thu được sau phản ứng là 3%, 5%, 7%, 10%, 15% được thêm vào huyền phù ở tốc độ chậm và khuấy liên tục để đảm bảo hỗn hợp dung dịch đồng nhất. Đem hỗn hợp đi thủy nhiệt ở 180 °C trong 4 h. Cuối cùng, các sản phẩm được làm nguội đến nhiệt độ phòng rồi rửa nhiều lần và sấy khô ở 180 °C trong 12 h. Các mẫu với tỷ lệ khác nhau được ký hiệu là (x%)-1 $\alpha$ -Fe-CN.

Lấy 4,04g Fe(NO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>.9H<sub>2</sub>O, thêm 50 ml nước cất. Điều chỉnh pH dung dịch về giá trị 9 bằng dung dịch NH<sub>3</sub>. Sau khi khuấy, chuyển dung dịch vào bình thủy nhiệt và duy trì ở 20 °C trong 10 h. Sau đó, sản phẩm được rửa nhiều lần bằng nước cất và ethanol ta thu được  $\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.

Dùng 0,5 g của g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub> thêm vào 50 ml dung dịch Fe(NO<sub>3</sub>)<sub>3</sub> được pha với nồng độ khác nhau sao cho tỷ lệ khối lượng Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub> thu được sau phản ứng là 0,25:1; 0,3:1; 0,35:1 và 0,4:1 (với ký hiệu (y%)-2 $\alpha$ -Fe-CN). Điều chỉnh pH dung dịch về giá trị 9. Sau khi khuấy trong 2 h, chuyển dung dịch vào bình thủy nhiệt và duy trì ở nhiệt độ 120 °C trong 10 h. Sau đó, sản phẩm được rửa nhiều lần bằng

nước cất và ethanol, làm khô trong tủ sấy ở nhiệt độ 60 °C.

### 2.3. Phương pháp phân tích tính chất đặc trưng của vật liệu

Hình thái bề mặt vật liệu được quan sát sử dụng kính hiển vi điện tử quét (SEM) JEOL JSM-IT100 (Nhật Bản). Cấu trúc tinh thể của các thành phần trong mẫu được phân tích bằng máy đo nhiễu xạ tia X (XRD) Rigaku MiniFlex 600 (Nhật Bản). Các nhóm chức trên bề mặt vật liệu được xác định sử dụng máy quang phổ hồng ngoại Fourier JASCO FTIR 4600 (Nhật Bản). Thông tin về các nguyên tố cùng với tỉ phần của từng nguyên tố có mặt trong mẫu vật liệu được phân tích bằng phổ tán xạ năng lượng tia X (EDX). Phổ IR cung cấp thông tin về thành phần và cấu trúc phân tử của vật liệu.

### 2.4. Quá trình khảo sát khả năng xử lý phẩm màu Congo Red của vật liệu

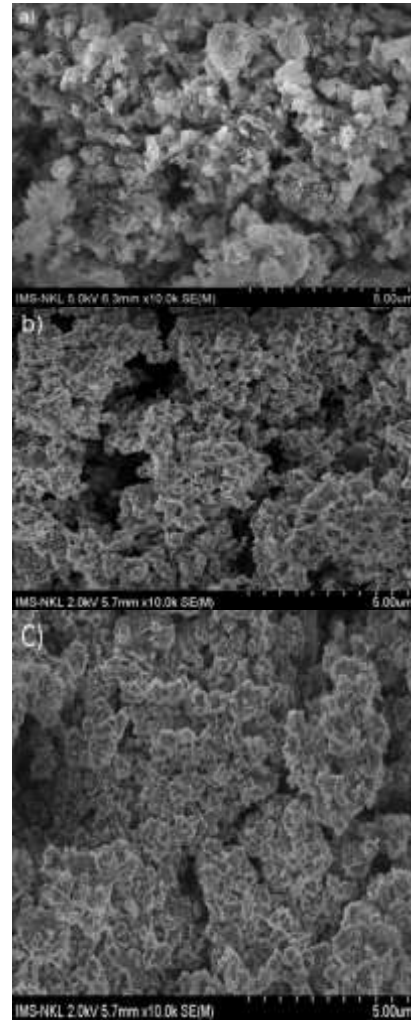
Quy trình khảo sát: 0,05 g các loại vật liệu được khuấy với 100 mL dung dịch phẩm CR với nồng độ đầu 60 ppm. Đầu tiên cho các dung dịch trên được khuấy trong điều kiện không có ánh sáng 30 phút, lấy 10 ml dung dịch đi lọc và đem đi đo quang. Tiếp theo, khuấy liên tục trong điều kiện có ánh sáng 120 phút bởi đèn compact (hãng Rạng Đông- 36W) và hệ phản ứng được giữ ổn định nhiệt độ để loại bỏ ảnh hưởng do nhiệt từ bóng đèn tỏa ra. Sau đó, tiến hành lọc và lấy phần dung dịch đo quang ở bước sóng cực đại 498 nm để xác định nồng độ trước và sau khi xử lý.

## 3. Kết quả và thảo luận

### 3.1. Đặc trưng vật liệu

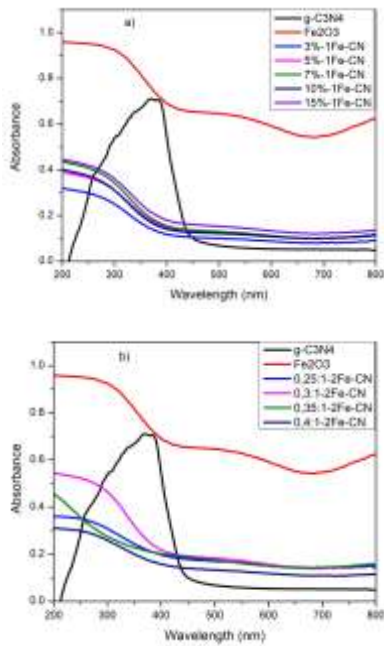
Hình thái bề mặt của vật liệu được đặc trưng bởi kỹ thuật hiển vi điện tử quét SEM (Hình 1). Từ ảnh SEM b (mẫu vật liệu được tổng hợp theo cách 1) và c (mẫu vật liệu được tổng hợp theo cách 2), có thể thấy sự xuất hiện của các hạt  $\alpha\text{Fe}_2\text{O}_3$  trên bề mặt của các tấm  $\text{g-C}_3\text{N}_4$ . Kích cỡ các hạt đều nhau, điều này thuận lợi cho quá trình trao đổi điện tử và các lỗ trống quang sinh trong vật liệu. Có thể nhận

thấy rõ ràng quá trình biến tính không làm ảnh hưởng tới mạng tinh thể của vật liệu nền.



Hình 1. Ảnh SEM của các vật liệu a)  $\text{g-C}_3\text{N}_4$ , b)  $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{g-C}_3\text{N}_4$  7%, c) 0,3:1  $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{g-C}_3\text{N}_4$ .

Có thể thấy khi pha tạp, năng lượng vùng cấm của vật liệu xúc tác có thay đổi. So với vùng cấm của  $\text{g-C}_3\text{N}_4$ , vùng cấm của vật liệu  $\alpha\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{g-C}_3\text{N}_4$  giảm đi nhiều do vùng cấm của  $\alpha\text{Fe}_2\text{O}_3$  là 2,10 eV (Bảng 1 và Hình 2). Khi năng lượng vùng cấm giảm xuống, khả năng tái tổ hợp của electron và lỗ trống quang sinh giảm xuống, như vậy hiệu suất quá trình xúc tác quang tốt hơn. Như vậy, vật liệu  $\alpha\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{g-C}_3\text{N}_4$  đã được mở rộng sang vùng khả kiến, năng lượng vùng cấm giảm, mang lại hiệu quả xử lý phẩm màu trong nước cao hơn.



Hình 2. Phổ UV-Vis của các mẫu vật liệu a) (x%)-1 $\alpha$ Fe-CN, b) (y%)-2 $\alpha$ Fe-CN.

Bảng 1. Năng lượng vùng cấm của các vật liệu đã tổng hợp

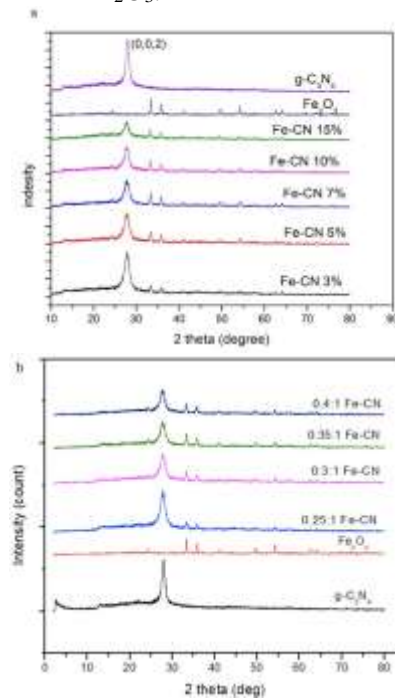
Vật liệu	E <sub>g</sub> (eV)
g-C <sub>3</sub> N <sub>4</sub>	2,68
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	2,10
0,25:1 Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /g-C <sub>3</sub> N <sub>4</sub>	2,22
0,3:1 Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /g-C <sub>3</sub> N <sub>4</sub>	2,14
0,35:1 Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /g-C <sub>3</sub> N <sub>4</sub>	2,18
0,4:1 Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /g-C <sub>3</sub> N <sub>4</sub>	2,32
3% Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /g-C <sub>3</sub> N <sub>4</sub>	2,24
5% Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /g-C <sub>3</sub> N <sub>4</sub>	2,20
7% Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /g-C <sub>3</sub> N <sub>4</sub>	2,09
10% Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /g-C <sub>3</sub> N <sub>4</sub>	2,11
15% Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /g-C <sub>3</sub> N <sub>4</sub>	2,26

Nhìn chung, các mẫu vật liệu có màu tương tự nhau, để xác định cấu trúc và độ tinh khiết, các mẫu được đo nhiễu xạ tia X và kết quả được trình bày trong Hình 3.

Trong giản đồ XRD của g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>, có một pic tại vị trí góc 2 $\theta$  = 27,3 °C biểu thị cho mặt phẳng

(002) của vật liệu g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>, pic này cho ta thấy cấu trúc xếp chồng của g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub> tương tự như graphit. Ngoài ra, còn 1 pic nhiễu xạ nhỏ hơn tại góc 13,1 °C thể hiện cho mặt phẳng (100), pic này cho biết sự có mặt của cấu trúc tri-s-triazine của g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>.

Trên giản đồ XRD của  $\alpha$ Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> có thể thấy rõ ràng các pic tại góc 24,3 °C; 33,4 °C; 35,7 °C; 40,9 °C; 54,2 °C; 62,5 °C và 64,1 °C. Các pic này thể hiện các mặt (1 0 2), (1 0 4), (1 1 0), (1 1 3), (2 0 2), (0,2,4), (1 1 6), (2 1 6) và (3 0 0) cho thấy cấu trúc tinh thể hình thoi, đặc trưng của tinh thể  $\alpha$ Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.

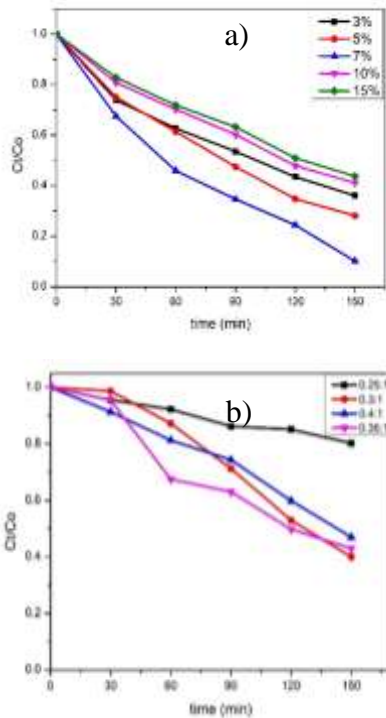


Hình 3. Phổ XRD của vật liệu a) (x%)-1 $\alpha$ Fe-CN, b) (y%)-2 $\alpha$ Fe-CN.

### 3.2. Khả năng xúc tác quang của vật liệu

Hiệu suất xúc tác quang được khảo sát bằng khả năng phân hủy quang hóa của CR dưới ánh sáng khả kiến. Hình 4 cho thấy tất cả các tỉ lệ phối trộn đều cho hiệu suất cao hơn so với vật liệu g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub> tinh khiết. Trong số các vật liệu được tổng hợp theo 2 cách thì vật liệu  $\alpha$ Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub> 7% tổng hợp theo cách 1 cho hiệu suất xúc tác cao nhất (89,88%) sau 120 phút chiếu sáng. Trong khi đó, vật liệu tổng hợp theo cách hai cho hiệu suất cao nhất chỉ đạt

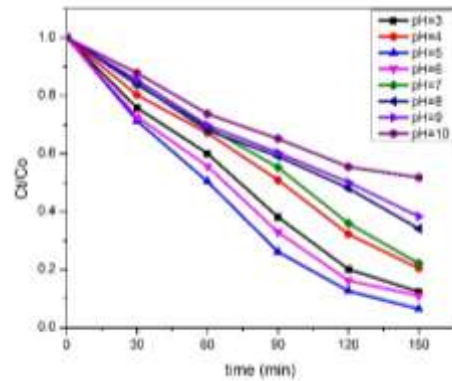
60% với tỉ lệ trộn 0.3:1  $\alpha\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{g-C}_3\text{N}_4$ . Do vậy, vật liệu  $\alpha\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{g-C}_3\text{N}_4$  7% được sử dụng để thực hiện các nghiên cứu tiếp theo.



Hình 4. Ảnh hưởng của tỉ lệ phối trộn tổng hợp vật liệu  $\alpha\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{g-C}_3\text{N}_4$  đến khả năng xử lý phẩm màu CR.

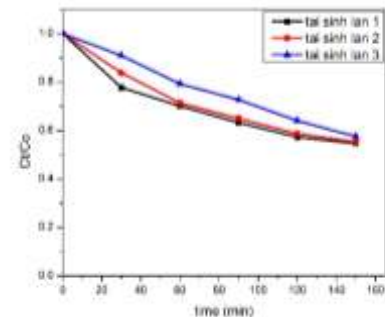
- a) Vật liệu (x%)-1 $\alpha\text{Fe-CN}$ ,  
b) Vật liệu (y%)-2 $\alpha\text{Fe-CN}$ .

Qua các thí nghiệm đã khảo sát thì vật liệu  $\alpha\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{g-C}_3\text{N}_4$  7% đã được sử dụng để khảo sát hoạt tính xúc tác quang với các pH lần lượt từ 3 đến 10. Khả năng xử lý của vật liệu được thể hiện trên Hình 5. Kết quả thu được cho thấy giá trị pH có ảnh hưởng đến khả năng phân hủy CR của vật liệu  $\alpha\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{g-C}_3\text{N}_4$ . Trong 30 phút hấp phụ thì nồng độ giảm không đáng kể so với quá trình chiếu sáng (chỉ đạt được hiệu suất khoảng 16%), điều đó có nghĩa là quá trình hấp phụ đối với vật liệu trên là không đáng kể mà yếu tố chính để nồng độ phẩm nhuộm CR giảm là do quá trình xúc tác quang. Đồ thị cho thấy hiệu suất xúc tác quang khá cao trong khoảng pH từ 3 đến 6, trong đó cao nhất là ở điều kiện pH = 5, với hiệu suất đạt 93,59% sau 120 phút chiếu sáng.



Hình 5. Ảnh hưởng của pH đến khả năng xử lý phẩm màu của vật liệu 1 $\alpha\text{Fe-CN}$ .

Tính ổn định của vật liệu xúc tác quang  $\alpha\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{g-C}_3\text{N}_4$  trong quá trình phân hủy phẩm nhuộm là một yếu tố quan trọng đối với các ứng dụng thực tiễn. Trong nghiên cứu này, các thí nghiệm tái sinh  $\alpha\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{g-C}_3\text{N}_4$  đã được thực hiện để đánh giá độ ổn định của vật liệu xúc tác quang đã được tổng hợp đối với sự phân hủy quang của phẩm nhuộm CR dưới sự chiếu xạ của ánh sáng khả kiến. Các điều kiện phản ứng như pH, tỷ lệ phối trộn và nồng độ phẩm màu tối ưu như đã trình bày trong các phần trước đã được áp dụng. Sau mỗi chu kỳ tái sinh, vật liệu xúc tác quang được thu thập bằng cách loại bỏ dung dịch CR còn lại, rửa bằng nước cất, ly tâm và làm khô vật liệu ở 80 °C trong tủ sấy. Vật liệu xúc tác sau đó được tái sử dụng cho các thử nghiệm phân hủy quang học tiếp theo. Sau hai lần tái sinh, vật liệu cho thấy khả năng xúc tác xử lý phẩm nhuộm khá thấp (42%). Như vậy, vật liệu được chế tạo có chỉ có khả năng tái sinh 2 hoặc 3 lần.



Hình 6. Khả năng tái sinh của vật liệu 1 $\alpha\text{Fe-CN}$ .

Bảng 2 so sánh hiệu quả khả năng quang xúc tác xử lý phẩm màu Congo Red của vật liệu trong nghiên cứu này với một số vật liệu khác đã được công bố trước đây. Kết quả cho thấy vật liệu  $\alpha\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{g-C}_3\text{N}_4$  trong nghiên cứu này cho hiệu quả xử lý cao, có tiềm năng ứng dụng trong thực tế.

Bảng 2. Một số kết quả phân hủy CR bằng chất xúc tác quang

STT	Vật liệu xúc tác quang	Hiệu suất	Tác giả
1	Hạt nano ZnO	94% (xử lý 10 ppm CR)	[7]
2	EG@CoFe <sub>2</sub> O <sub>4</sub>	87,46% (xử lý 58,2 ppm CR)	[8]
3	EG@NiFe <sub>2</sub> O <sub>4</sub>	86,9% (xử lý 42,25 ppm CR)	[8]
4	$\alpha\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{g-C}_3\text{N}_4$	93,59% (xử lý 60 ppm CR)	Nghiên cứu này

#### 4. Kết luận

Trong nghiên cứu này vật liệu g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub> đã được tổng hợp thành công từ ure bằng phương pháp nung, vật liệu  $\alpha\text{Fe}_2\text{O}_3$  đã được tổng hợp thành công bằng phương pháp thủy nhiệt và mẫu vật liệu composite  $\alpha\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{g-C}_3\text{N}_4$  được tổng hợp bằng phương pháp thủy nhiệt từ Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> và g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>. Quá trình khảo sát hoạt tính xúc tác quang phân hủy phẩm nhuộm của vật liệu  $\alpha\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{g-C}_3\text{N}_4$  (trong điều kiện tối ưu) cho thấy hiệu quả xử lý phẩm màu CR với nồng độ 60 ppm đạt hiệu suất cao nhất khi sử dụng vật liệu  $\alpha\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{g-C}_3\text{N}_4$  tại pH=5, hiệu suất xử lý đạt 93,59% sau 150 phút chiếu sáng. Mặc dù đây mới là các nghiên cứu thử nghiệm nhưng những lợi ích về môi trường, kinh tế cùng tiềm năng xử lý độ màu trong nước thải là rất hứa hẹn.

#### Lời cảm ơn

Nghiên cứu này được tài trợ bởi đề tài Nghị định thư mã số NĐT.75.CHN/19 với Trường Đại học An Huy, Trung Quốc.

#### Tài liệu tham khảo

- [1] J. T. Spadaro, L. Isabelle, V. Renganathan, Hydroxyl Radical Mediated Degradation of Azo Dyes: Evidence for Benzene Generation, *Environmental Science and Technology*, Vol. 28, 1994, pp. 1389-1393.
- [2] H. Zollinger, *Color Chemistry: Syntheses, Properties, and Applications of Organic Dyes and Pigments*, John Wiley & Sons, 2003.
- [3] J. Zhang, Q. Wang, Y. Jin, D. Huang, C. Qiliang, Z. Guangtian, Nitrogen-rich Carbon Nitride Hollow Vesels: Synthesis, Characterization, and Their Properties, *J. Phys. Chem. B*, Vol. 114, No. 29, 2010, pp. 9429-9434, <https://doi.org/10.1021/jp1004729c>.
- [4] E. G. Gillam, Synthesis of Nitrogen-rich Carbon Nitride Networks from an Energetic Molecular Azide Precursor, *Chem, Mater*, Vol. 12, No. 12, 2000, pp. 3906-3912, <https://doi.org/10.1021/cm000570y>.
- [5] X. Waet, M. Kazuhiko, T. Arne, T. Kazuhiro, X. Gang, J. M. Carlsson, D. Kazunari, A. Markus, A Metal-free Polymeric Photocatalyst for Hydrogen Production from Water Under Visible Light, *Nat, Mater*, Vol. 8, No. 1, 2009, pp. 76-80, <https://doi.org/10.1038/nmat2317>.
- [6] F. Zhang, H. Yang, X. Xie, L. Li, L. Zhang, Controlled Synthesis and Gas-sensing Properties of Hollow Sea Urchin-like  $\alpha\text{Fe}_2\text{O}_3$  Nanostructures and  $\alpha\text{Fe}_2\text{O}_3$  Nanocubes, *Sensors Actuators, B Chem.*, Vol. 141, No. 2, 2009, pp. 381-389.
- [7] N. N. Thanh, N. N. Thinh, N. V. Anh, In Situ Synthesis and Characterization of ZnO/Chitosan Nanocomposites as an Adsorbent for Removal of Congo Red from Aqueous Solution, *Advances in Polymer Technology*, Vol. 2020, 2020, pp. 3892694, <https://doi.org/10.1155/2020/3892694>.
- [8] P. V. Thinh, Research on Synthesizing Magnetic Materials Based on Vietnamese Graphite, Applied in Environmental Treatment of Organic Color Pollution (Congo Red), Thesis Desertation, Nguyen Tat Thanh University, 2019.
- [9] A. K. Jaspreet, K. Rajput, A Prompt Electrochemical Monitoring Platform for Sensitive and Selective Determination of

- Thiamethoxam using  $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{g-C}_3\text{N}_4/\text{MSB}$  Composite Modified Glassy Carbon Electrode, *J. Food Compos. Anal.*, Vol. 115, 2023, pp. 105033.
- [10] C. Harak, S. Mardikar, V. Gulavani, A. Yengantiwar, V. Salve, P. More, V. Pandit, S. Balgude, Superior Photoelectrochemical Performance of  $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{g-C}_3\text{N}_4$  Heterostructure Synthesized by Chemical Precipitation Method, *Mater. Today: Proc.*, Vol. 53, 2022, pp. 134-138.
- [11] X. Zhou, H. Liu, S. Liu, L. Zhang, T. Wang, C. Wang, D. Su, Constructing Efficient  $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3/\text{g-C}_3\text{N}_4/\text{HNTs}$ -loaded Heterojunction Photocatalysts for Photocatalytic Oxidative Desulfurization: Influencing Factors, Kinetics, and Mechanism, *Fuel*, Vol. 332, 2023, pp. 126147.