



ĐỘNG HỌC VÀ ĐẲNG NHIỆT CỦA QUÁ TRÌNH HẤP PHỤ Cu(II) LÊN VẬT LIỆU Ze-RHM-41

Hoàng Văn Đức*, Lê Thị Diệu Linh

Trường Đại học Sư phạm, Đại học Huế, 34 Lê Lợi, Tp. Huế, Việt Nam

Tóm tắt: Vật liệu mao quản trung bình MCM-41 chứa zeolit (Ze-RHM-41) được tổng hợp bằng phương pháp trực tiếp với nguồn silic (dung dịch natri silicat) chuẩn bị từ tro trấu. Vật liệu tổng hợp được đặc trưng bằng các phương pháp XRD, TEM và EDX. Quá trình hấp phụ ion Cu(II) lên vật liệu Ze-RHM-41 đã được nghiên cứu. Kết quả đặc trưng cho thấy vật liệu Ze-RHM-41 có cấu trúc mao quản trung bình của MCM-41 với tường mao quản được tinh thể hoá bằng zeolit Y. Dung lượng hấp phụ ion Cu(II) của vật liệu Ze-RHM-41 được cải thiện đáng kể và phụ thuộc vào nồng độ Cu(II) ban đầu. Mô hình động học biểu kiến bậc 2 phù hợp với quá trình hấp phụ Cu(II) lên Ze-RHM-41. Mô hình hấp phụ đẳng nhiệt Langmuir phù hợp hơn mô hình đẳng nhiệt Freundlich đối với quá trình hấp phụ Cu(II) lên vật liệu tổng hợp.

Từ khóa: Ze-RHM-41, tro trấu, Cu(II), hấp phụ

1 Mở đầu

Ô nhiễm nguồn nước do các kim loại nặng độc hại từ xả thải là vấn đề môi trường của toàn thế giới. Các kim loại nặng như Cu, Cd, Pb... gây độc đối với con người và các sinh vật khác khi nồng độ của chúng vượt quá tiêu chuẩn cho phép. Đồng là một trong những kim loại nặng được sử dụng rộng rãi trong các ngành công nghiệp khác nhau như dệt may, sản xuất giấy, bột giấy, mạ điện, sản xuất phân bón... [1], nên sự ô nhiễm đồng trong các nguồn nước thải là rất phổ biến. Chính vì vậy vấn đề xử lý dư lượng kim loại nặng trong nước thải nói chung và đồng nói riêng là một nhu cầu cấp thiết. Nhiều phương pháp xử lý khác nhau đã được nghiên cứu như kết tủa hoá học, chiết bằng dung môi, trao đổi ion, thẩm thấu ngược, hấp phụ... [1, 2, 3]. Trong số đó, hấp phụ là phương pháp được sử dụng phổ biến nhờ tính đơn giản, hiệu quả cao và kinh tế. Đến nay, đã có nhiều loại vật liệu hấp phụ khác nhau được công bố như cacbon hoạt tính [1], chitosan [2], kao lanh/zeolit [4], khoáng sét [5], vật liệu mao quản trung bình (MQTB) [3, 6, 7]. Trong số đó, vật liệu MQTB đã nhận được sự quan tâm của nhiều nhà khoa học do có diện tích bề mặt lớn, mao quản đồng đều, trật tự [3]; đặc biệt, sau khi được biến tính bằng các nhóm chức thích hợp, dung lượng hấp phụ kim loại nặng của vật liệu MQTB được cải thiện đáng kể [7].

Trong bài báo này, vật liệu mao quản trung bình MCM-41 với tường mao quản có cấu trúc zeolit (Ze-RHM-41) đã được tổng hợp với nguồn silic tách từ tro trấu, một phụ, phế phẩm

* Liên hệ: hoangvanduc2013@gmail.com

nông nghiệp dồi dào. Động học và đẳng nhiệt của quá trình hấp phụ Cu(II) từ dung dịch nước lên vật liệu Ze-RHM-41 đã được nghiên cứu.

2 Thực nghiệm

2.1 Hoá chất

Các hóa chất sử dụng trong nghiên cứu bao gồm silic (dung dịch thủy tinh lỏng có hàm lượng SiO₂ 10%) điều chế từ tro trấu theo qui trình đã được chúng tôi nghiên cứu trước đây [8], chất định hướng cấu trúc (ĐHCT) cetyl trimetyl amoni bromua (CTAB) (Aldrich), Al(OC₃H₇)₃ (Merck), NaOH (Guangdong) và Cu(CH₃COO)₂.H₂O (Merck).

2.2 Tổng hợp vật liệu

Tổng hợp vật liệu Ze-RHM-41 theo qui trình [9, 10], gồm 3 giai đoạn:

Chuẩn bị mầm zeolit: Cho từ từ 10 mL dung dịch NaAlO₂ 1 M (điều chế từ Al(OC₃H₇)₃ và NaOH) vào 32 mL dung dịch thủy tinh lỏng, khuấy đều và làm già ở nhiệt độ phòng (30 °C) trong 48 giờ, thu được mầm zeolit.

Chuẩn bị dung dịch mầm zeolit: Cho từ từ 28,7 mL dung dịch NaAlO₂ 1 M vào dung dịch 32 mL dung dịch thủy tinh lỏng, sau đó tiếp tục cho 10,5 mL mầm zeolit vào hỗn hợp, khuấy đều. Cho hỗn hợp vào bình teflon, tiến hành kết tinh ở 100 °C trong 12 giờ, thu được dung dịch mầm.

Tổng hợp vật liệu Ze-RHM-41: Hoà tan hoàn toàn 2,192 g CTAB trong 85 mL H₂O, tiếp theo cho từ từ 16,94 mL dung dịch mầm tổng hợp ở trên vào dung dịch CTAB, nhỏ tiếp dung dịch 8,54 mL dung dịch thủy tinh lỏng vào hệ, khuấy mạnh hỗn hợp trong 1 giờ, đưa hỗn hợp về pH = 10,8 bằng dung dịch H₂SO₄ 1 M và tiếp tục khuấy mạnh thêm 1 giờ nữa. Hỗn hợp sau đó được cho vào bình teflon, khuấy nhẹ trong 24 giờ rồi đem thủy nhiệt ở 100 °C trong 48 giờ. Kết tủa được lọc, rửa về pH = 7, sau đó sấy ở 100 °C trong 24 giờ và nung ở 550 °C trong 6 giờ. Vật liệu tổng hợp được kí hiệu là Ze-RHM-41.

Ngoài ra, để so sánh, mẫu MCM-41 với nguồn silic từ tro trấu cũng được tổng hợp. Qui trình như sau: Hoà tan hoàn toàn 2,192 g CTAB trong 85 mL H₂O, sau đó cho từ từ 15,4 mL dung dịch thủy tinh lỏng vào hệ, khuấy mạnh hỗn hợp trong 1 giờ, đưa hỗn hợp về pH = 10,8 bằng dung dịch H₂SO₄ 1M và tiếp tục khuấy mạnh thêm 1 giờ nữa. Hỗn hợp sau đó được cho vào bình teflon, khuấy nhẹ trong 24 giờ rồi đem thủy nhiệt ở 100 °C trong 48 giờ. Kết tủa được lọc, rửa (về pH = 7), sau đó sấy ở 100 °C trong 24 giờ và nung ở 550 °C trong 6 giờ. Vật liệu tổng hợp được kí hiệu là RHM-41.

2.3 Đặc trưng vật liệu và khảo sát khả năng hấp phụ

Phổ XRD được ghi trên máy nhiễu xạ Ronghen VNU-D8 Advance (Bruker, Germany), sử dụng nguồn bức xạ $\text{CuK}\alpha$ với bước sóng $\lambda = 1,5406 \text{ \AA}$, góc quét 2θ thay đổi trong khoảng $1-50^\circ$. Phổ EDX được đo trên máy SEM JED 2300 và ảnh TEM được đo trên thiết bị hiển vi điện tử truyền qua JEM1010-JEOL.

Khả năng hấp phụ của vật liệu tổng hợp được đánh giá qua sự hấp phụ ion Cu(II) từ dung dịch nước. Cho 0,25 g Ze-RHM-41 hoặc RHM-41 vào cốc chứa 250 mL dung dịch Cu(II) (C_0 mg/L) ở nhiệt độ phòng (30°C), khuấy đều ở tốc độ 400 vòng/phút. Theo thời gian trích mẫu, ly tâm, lấy dung dịch và xác định nồng độ Cu(II) bằng phương pháp AAS. Dung lượng hấp phụ (DLHP) được tính theo công thức:

$$q_t = \frac{V(C_0 - C_t)}{m} \text{ (mg/g)},$$

trong đó C_0 và C_t là nồng độ Cu(II) (mg/L) ban đầu và ở thời điểm t ; V là thể tích của dung dịch (L); m là khối lượng Ze-RHM-41 hoặc RHM-41 (g).

3 Kết quả và thảo luận

3.1 Một số đặc trưng của vật liệu tổng hợp

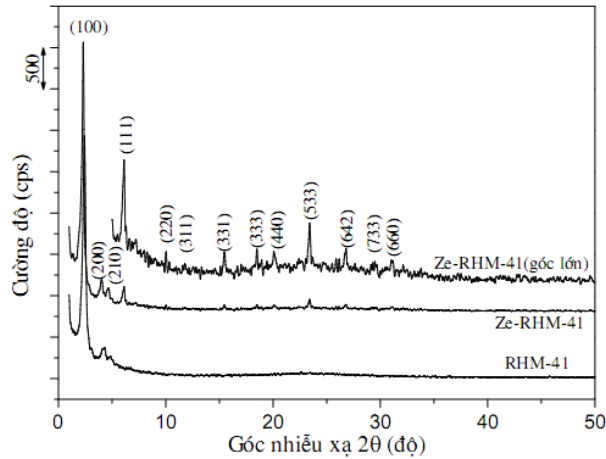
Hình 1 là giản đồ XRD của các mẫu RHM-41 và Ze-RHM-41. Từ kết quả này có thể thấy trên giản đồ của vật liệu RHM-41 xuất hiện các pic ở vùng góc nhỏ ($2\theta < 5^\circ$) đặc trưng cho vật liệu MQTB MCM-41. Các pic đều có cường độ lớn, rõ ràng, sắc, nhọn, chứng tỏ vật liệu thu được có độ trật tự cao; ở vùng góc lớn ($2\theta > 5^\circ$), không xuất hiện pic đặc trưng nào và điều này chứng tỏ vật liệu RHM-41 có tường mao quản vô định hình [10]. Trên giản đồ của Ze-RHM-41 vẫn xuất hiện các pic đặc trưng cho vật liệu MQTB MCM-41 ở góc nhỏ. Ngoài ra, trên giản đồ này còn xuất hiện các pic đặc trưng cho zeolit Y ở vùng góc lớn [11], chứng tỏ tường mao quản của vật liệu Ze-RHM-41 đã được zeolit hoá bằng zeolit Y. Kết quả này cũng tương tự như kết quả của Jiang và Wang [9, 11] khi sử dụng các chất đầu là natri silicat (kao lạnh) và zeolit Y để tinh thể hoá tường mao quản MCM-41.

Mẫu Ze-RHM-41 cũng được đặc trưng bằng phổ EDX và thành phần của vật liệu được trình bày ở Bảng 1. Kết quả EDX cho thấy thành phần của vật liệu là Si, O, Al, Na và C (có thể bị lẫn của nền đo). Tỷ lệ mol Si/Al trong mẫu tính theo EDX là 8,79 lớn hơn một ít so với tỷ lệ ban đầu trong thành phần gel là 6. Điều này có thể là do Al khó đi vào mạng cấu trúc hơn so với Si. Tuy nhiên, tỷ lệ này cũng cho thấy zeolit hình thành là zeolit Y [12], phù hợp với kết quả XRD.

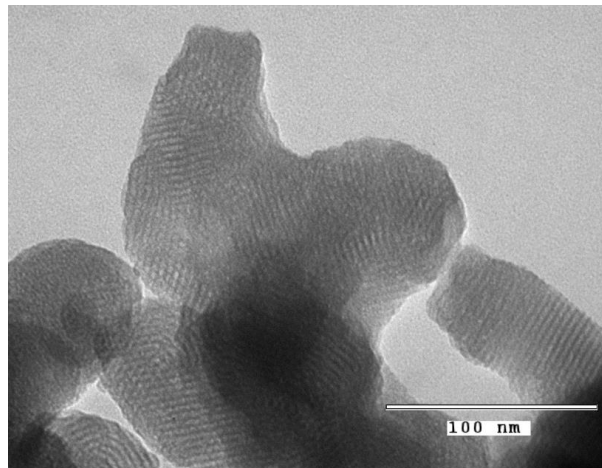
Bảng 1. Thành phần hoá học của vật liệu Ze-RHM-41

Nguyên tố	O	Si	Na	Al	C
% nguyên tử	69,48	21,8	3,01	2,48	3,23

Cấu trúc mao quản trung bình của vật liệu tổng hợp được đặc trưng bằng phương pháp hiển vi điện tử truyền qua (TEM). Kết quả ảnh TEM ở Hình 2 cho thấy Ze-RHM-41 có cấu tạo gồm các ống mao quản trung bình với đường kính khoảng 25–30 Å xếp song song với nhau. Kết quả này khẳng định tính trật tự của vật liệu xác định từ giản đồ XRD.



Hình 1. Giản đồ XRD của mẫu RHM-41, Ze-RHM-41 và Ze-RHM-41 góc lớn

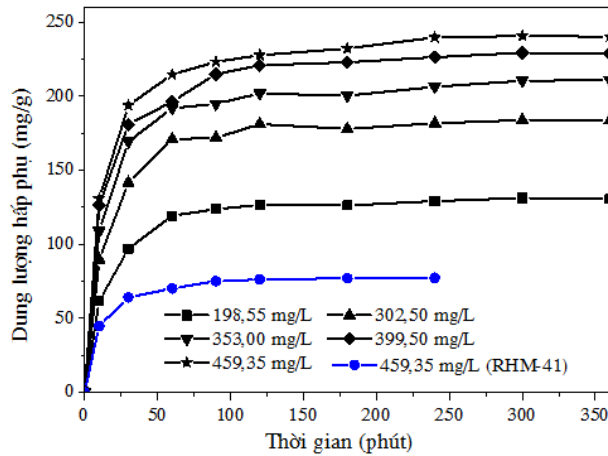


Hình 2. Ảnh TEM của vật liệu Ze-RHM-41

3.2 Khảo sát sự hấp phụ Cu(II) của vật liệu Ze-RHM-41

Dung lượng hấp phụ của vật liệu Ze-RHM-41 theo thời gian với các nồng độ Cu(II) ban đầu khác nhau từ 198,55 mg/L đến 459,35 mg/L và của RHM-41 với nồng độ Cu(II) đầu 459,35 mg/L được trình bày trên Hình 3. Kết quả cho thấy khả năng hấp phụ ion Cu(II) của Ze-RHM-41 đã được cải thiện đáng kể. Ze-RHM-41 có DLHP lớn hơn nhiều so với RHM-41 (gấp khoảng

3 lần, 240,85 mg/g so với 77,1 mg/g). Điều này có thể liên quan đến sự có mặt của các tinh thể zeolit trên tường mao quản của Ze-RHM-41. Như đã biết, zeolit hình thành do nhôm thay thế cho một số nguyên tử silic trong mạng lưới tinh thể của silic oxit. Vì nhôm có hoá trị 3 thay cho silic có hoá trị 4, nên mạng lưới zeolit dư điện tích âm. Các điện tích âm này được trung hoà bằng ion Na⁺ (do mẫu được tổng hợp trong môi trường NaOH). Khi thực hiện quá trình hấp phụ, một phần ion Cu(II) sẽ trao đổi với ion Na⁺ trên mạng tinh thể, do đó, làm tăng DLHP [4, 12]. Kết quả cũng cho thấy DLHP của Ze-RHM-41 tăng từ 131,3 mg/g đến 240,85 mg/g khi nồng độ ban đầu của dung dịch Cu(II) tăng từ 198,55 mg/L đến 459,35 mg/L và quá trình hấp phụ xảy ra nhanh ở trong khoảng 90 phút đầu (đạt hơn 90% so với DLHP hấp phụ cân bằng), sau đó quá trình xảy ra chậm lại và đạt cân bằng sau 300 phút. Việc tăng nồng độ ban đầu của dung dịch Cu(II) làm tăng DLHP được cho là nồng độ dung dịch tăng đã làm tăng động lực hấp phụ. Bên cạnh đó, sự tăng nồng độ cũng làm tăng sự tương tác của ion Cu(II) với các tâm hấp phụ [13].



Hình 3. Dung lượng hấp phụ của Ze-RHM-41 theo thời gian ở các nồng độ Cu(II) ban đầu khác nhau

Động học quá trình hấp phụ đã được đánh giá thông qua 2 mô hình động học biểu kiến là bậc nhất

$$\ln(q_e - q_t) = \ln(q_e) - k_1 t \tag{1}$$

và bậc hai [1, 13].

$$\frac{t}{q_t} = \frac{1}{k_2 q_e^2} + \frac{t}{q_e} \tag{2}$$

trong đó q_e là DLHP tại thời điểm cân bằng (mg/g); q_t là DLHP hấp phụ tại thời điểm t (mg/g); k_1 là hằng số tốc độ hấp phụ biểu kiến bậc nhất (ph^{-1}); k_2 là hằng số tốc độ hấp phụ biểu kiến bậc hai (g/mg.ph)

Dựa vào số liệu thực nghiệm về ảnh hưởng của nồng độ dung dịch Cu(II) ban đầu (Hình 3), hồi qui tuyến tính các giá trị $\ln(q_e - q_t)$ theo t theo phương trình (1) đối với mô hình biểu kiến bậc nhất, và các giá trị $(1/q_t)$ theo t theo phương trình (2) của mô hình biểu kiến bậc 2. Từ các giá trị độ dốc và đoạn cắt với trục tung của các đường tuyến tính, sẽ tính được các hằng số động học k_1 và k_2 . Mức độ tuyến tính của các giá trị thực nghiệm theo mô hình được đánh giá bằng hệ số tin cậy R^2 . Kết quả các tham số động học và hệ số tin cậy được trình bày ở Bảng 2.

Bảng 2. Một số tham số của phương trình động học biểu kiến hấp phụ Cu(II) trên Ze-RHM-41

Nồng độ (mg/L)	Động học bậc 1			Động học bậc 2			
	R^2	k_1 (ph^{-1})	$q_{e,cal}^1$ (mg/g)	R^2	$k_2 \times 10^4$ (g/mg.ph)	$q_{e,cal}^2$ (mg/g)	$q_{e,exp}^2$ (mg/g)
198,55	0,846	0,0137	41,61	0,9996	7,2	135,14	131,30
302,50	0,765	0,0145	51,13	0,9996	5,9	188,68	184,00
353,00	0,8351	0,0118	58,14	0,9996	5,3	212,77	210,50
399,50	0,9335	0,0145	76,71	0,9998	4,3	238,10	229,50
459,35	0,9338	0,0174	97,55	0,9998	4,2	250,00	240,85

Ghi chú: $q_{e,cal}$ là giá trị DLHP cân bằng tính theo phương trình động học; $q_{e,exp}$ là giá trị DLHP cân bằng tính từ nồng độ đầu và nồng độ cân bằng.

Từ kết quả ở Bảng 2 có thể thấy rằng các hệ số tin cậy của mô hình động học biểu kiến bậc hai lớn hơn nhiều so với của mô hình bậc nhất và gần với đơn vị. Ngoài ra, giá trị DLHP cân bằng tính theo phương trình động học ($q_{e,cal}^2$) và giá trị DLHP cân bằng tính từ nồng độ đầu và nồng độ cân bằng ($q_{e,exp}^2$) của mô hình động học bậc hai là tương đương nhau, trong khi kết quả này đối với mô hình động học bậc nhất lại khác nhau rất lớn. Từ đó có thể cho rằng mô hình động học biểu kiến bậc hai mô tả quá trình hấp phụ Cu(II) phù hợp hơn so với mô hình biểu kiến bậc nhất. Kết quả này cũng tương đồng với kết quả của các công trình nghiên cứu sự hấp phụ ion Cu(II) lên các vật liệu khác nhau như cacbon [1, 14], chitosan [2], cao lanh/zeolit [4], MQTB [6]... Tuy nhiên, kết quả ở Bảng 2 cũng cho thấy giá trị k_2 không phải là hằng số đối với nồng độ mà giảm khi nồng độ đầu của Cu(II) tăng. Điều này cho thấy sự hấp phụ Cu(II) lên Ze-RHM-41 là một quá trình phức tạp và chịu ảnh hưởng của nhiều yếu tố, đặc biệt là cấu trúc của chất hấp phụ [6]. Như đã biết, vật liệu hấp phụ Ze-RHM-41 là loại vật liệu mao quản nên quá trình hấp phụ không chỉ xảy ra trên bề mặt ngoài mà cả trên bề mặt bên trong mao quản. Khi nồng độ đầu của Cu(II) tăng lên sẽ có sự cạnh tranh giữa các ion trong quá trình dịch chuyển vào trong mao quản (ảnh hưởng của khuếch tán trong). Kết quả là tốc độ di chuyển của ion

Cu(II) vào trong mao quản và hấp phụ lên bề mặt mao quản sẽ không tăng theo kịp với sự tăng của nồng độ đầu, điều này dẫn đến tốc độ quá trình hấp phụ tăng chậm lại khi nồng độ tăng lên và do đó kéo theo sự giảm của hằng số k_2 [6].

Đẳng nhiệt của quá trình hấp phụ ion Cu(II) cũng được đánh giá qua hai mô hình hấp phụ phổ biến là mô hình đẳng nhiệt Langmuir

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

với mức độ hấp phụ được đánh giá qua hệ số tách hay thông số cân bằng R_L

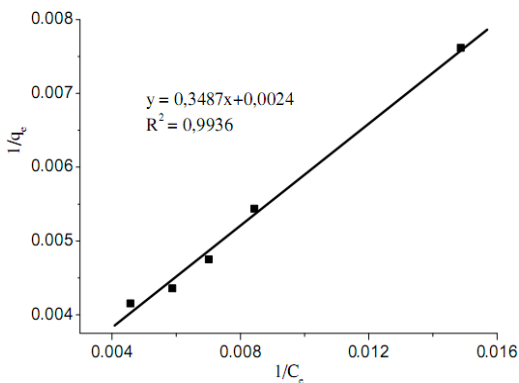
$$R_L = \frac{1}{1 + K_L C_0} \quad (4)$$

và đẳng nhiệt Freundlich [2, 5].

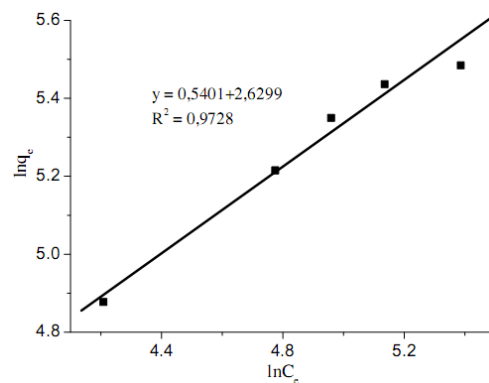
$$\ln q_e = \ln K_F + \frac{1}{n} \ln C_e \quad (5)$$

trong đó q_m là DLHP cực đại (mg/g); q_e là DLHP tại thời điểm cân bằng (mg/g); C_e là nồng độ chất bị hấp phụ tại thời điểm cân bằng (mg/L); K_L là hằng số hấp phụ Langmuir (L/mg) đặc trưng cho ái lực của tâm hấp phụ; K_F (L/g) và $1/n$ là các hằng số của phương trình đẳng nhiệt Freundlich.

Đồ thị biểu diễn sự phụ thuộc của $1/q_e$ vào $1/C_e$ đối với mô hình Langmuir được trình bày trên Hình 4, và đồ thị biểu diễn sự phụ thuộc của $\ln q_e$ vào $\ln C_e$ đối với mô hình Freundlich được trình bày trên Hình 5.



Hình 4. Đồ thị đẳng nhiệt Langmuir hấp phụ Cu(II) trên vật liệu Ze-RHM-41



Hình 5. Đồ thị đẳng nhiệt Freundlich hấp phụ Cu(II) trên vật liệu Ze-RHM-41

Từ các giá trị độ dốc và đoạn cắt của trục tung sẽ tính được các giá trị tham số của các phương trình đẳng nhiệt (Bảng 3). Thay giá trị vào (4) sẽ tính được các thông số cân bằng R_L (Bảng 4).

Bảng 3. Các giá trị tham số của phương trình đẳng nhiệt Langmuir và Freundlich

Đẳng nhiệt Langmuir			Đẳng nhiệt Freundlich		
K_L (L/mg)	q_m (mg/g)	R^2	K_F (L/g)	n	R^2
$8,37 \cdot 10^{-4}$	416,67	0,9936	13,873	1,85	0,9728

Bảng 4. Giá trị thông số cân bằng R_L ở các nồng độ đầu khác nhau

Nồng độ (mg/L)	198,55	302,50	353,00	399,50	459,35
R_L	0,8775	0,8246	0,8012	0,7807	0,7559

Kết quả ở Bảng 3 cho thấy, đẳng nhiệt Langmuir và Freundlich đều có hệ số tin cậy R^2 rất cao ($> 0,97$); ngoài ra, các thông số cân bằng (R_L) (Bảng 4) đối với đẳng nhiệt Langmuir nằm trong phạm vi $0 < R_L < 1$ và giá $1/n = 0,54$ (Bảng 3) đối với mô hình Freundlich nằm trong khoảng 0–1 [5], nên có thể cho rằng quá trình hấp phụ Cu(II) vừa tuân theo đẳng nhiệt Langmuir vừa tuân theo đẳng nhiệt Freundlich. Tuy nhiên, đẳng nhiệt hấp phụ Langmuir phù hợp hơn so với đẳng nhiệt Freundlich khi hệ số tin cậy của nó cao hơn (0,9936 so với 0,9728). Kết quả này cũng tương tự kết quả của Mobasherpour và cộng sự khi nghiên cứu sự hấp phụ Cu(II) từ dung dịch nước lên vật liệu cacbon ống có tường đa lớp [13], Ahmad và cộng sự khi hấp phụ Cu(II) bằng chitosan biến tính [2], Sdiri và đồng nghiệp trong nghiên cứu hấp phụ Cu và Zn bằng khoáng sét tự nhiên [5]. Kết quả ở Bảng 3 cũng cho thấy dung lượng hấp phụ cực đại đối với Cu(II) đạt giá trị cao là 416 mg/g ở 30 °C. Giá trị DLHP của vật liệu trong nghiên cứu này lớn hơn so với các vật liệu của một số tác giả khác như chitosan biến tính (142,85 mg/g ở 25 °C) [2]; cacbon hoạt tính (39,46 mg/g ở 35 °C) [1]. Mặc dù sự so sánh chỉ có tính tương đối do điều kiện nghiên cứu khác nhau, nhưng điều này cũng cho thấy triển vọng hấp phụ ion Cu(II) của vật liệu Ze-RHM-41.

4 Kết luận

Vật liệu mao quản trung bình MCM-41 với tường mao quản được tinh thể hoá bằng zeolit Y (Ze-RHM-41) tổng hợp trong nghiên cứu này có cấu trúc MQTB trật tự, mao quản được phân bố đồng đều với kích thước nằm trong khoảng 25–30 Å. Vật liệu tổng hợp thể hiện khả năng hấp phụ rất cao đối với ion Cu(II), dung lượng hấp phụ cực đại có thể đạt đến 416 mg/g ở 30 °C. Sự hấp phụ xảy ra tuân theo cả hai mô hình đẳng nhiệt Langmuir và Freundlich, trong đó mô hình Langmuir mô tả quá trình hấp phụ hợp lý hơn. Tốc độ hấp phụ tuân theo phương

trình động học bậc 2 biểu kiến. Các kết quả cho thấy Ze-RHM-41 là vật liệu có triển vọng trong hấp phụ để xử lý Cu(II) trong nước.

Tài liệu tham khảo

1. Demiral H., Güngör C. (2016), Adsorption of copper(II) from aqueous solutions on activated carbon prepared from grape bagasse, *Journal of Cleaner Production*, 124, 103–113.
2. Ahmad M., Manzoor K., Venkatachalam P., Ikram S. (2016), Kinetic and thermodynamic evaluation of adsorption of Cu(II) by thiosemicarbazide chitosan, *International Journal of Biological Macromolecules*, 92, 910–919.
3. Enshirah Da'na (2017), Adsorption of heavy metals on functionalized-mesoporous silica: A review, *Micropor. Mesopor. Mater.*, 247, 145–157.
4. El-Eswed B., Alshaaer M., Yousef R. I., Hamadneh I., Khalili F. (2012), Adsorption of Cu(II), Ni(II), Zn(II), Cd(II) and Pb(II) onto Kaolin/Zeolite Based- Geopolymers, *Adv. Mater. Phys. Chem.*, 2, 119–125.
5. Sdiri A. T., Higashi T., Jamoussi F. (2014), Adsorption of copper and zinc onto natural clay in single and binary systems, *Int. J. Environ. Sci. Technol.*, 11, 1081–1092.
6. Da'na E., Silva N. D. (2011), Abdelhamid Sayari, Adsorption of copper on amine-functionalized SBA-15 prepared by co-condensation: Kinetics properties, *Chem. Eng. J.*, 166, 454–459.
7. Wongsakulphasatch S., Kiatkittipong W., Saiswat J., Oonkhanond B., Striolo A., Assabumrungrat S. (2014), The adsorption aspect of Cu²⁺ and Zn²⁺ on MCM-41 and SDS-modified MCM-41, *Inorganic Chemistry Communications*, 46, 301–304.
8. Hoàng Văn Đức, Nguyễn Thị Anh Thu (2014), Nghiên cứu tổng hợp vật liệu mao quản trung bình SBA-15 với nguồn silic từ tro trấu, *Tạp chí Xúc tác và Hấp phụ*, 3(2), 10–16.
9. Jiang T., Qi L., Ji M., Ding H., Li Y., Tao Z., Zhao Q. (2012), Characterization of Y/MCM-41 composite molecular sieve with high stability from Kaolin and its catalytic property, *Applied Clay Science*, 62–63, 32–40.
10. Huo Q., Margolese D. I. and Stucky G. D. (1996), Surfactant control of phases in the synthesis of Mesoporous silica-based Materials, *Chem. Mater.*, 8, 1147–1160.
11. Wang Y., Cui D., Li Q. (2011), Synthesis, characterization and influence parameters on the over growth of micro/mesoporous Y-zeolite-MCM-41 composite material under acidic conditions, *Micropor. Mesopor. Mater.*, 142, 503–510.
12. Mai Tuyên (2004), *Xúc tác zeolit trong hoá dầu*, Nxb. KH & KẾT TINH, Hà Nội.
13. Mobasherpour I., Salahi E., Ebrahimi M. (2014), Thermodynamics and kinetics of adsorption of Cu(II) from aqueous solutions onto multi-walled carbon nanotubes, *Journal of Saudi Chemical Society*, 18, 792–801.

KINETICS AND ISOTHERMS OF Cu(II) ADSORPTION ONTO Ze-RHM-41 MATERIAL

Hoang Van Duc*, Le Thi Dieu Linh

HU – University of Education, 34 Le Loi, Hue City, Vietnam

Abstract: A zeolite-containing MCM-41 mesoporous material (Ze-RHM-41) was synthesized using the direct method with a sodium silicate solution prepared from rice husk ash as a silica source. The synthesized material was characterized using XRD, TEM, and EDX techniques. The sorption behaviors of Cu(II) ions onto the material were studied. The results showed the presence of mesoporous MCM-41 and microporous Y type molecular sieves in the material with its highly ordered hexagonal mesostructures. The adsorption capacity of the synthesized material for Cu(II) ions was significantly improved and influenced by the Cu(II) initial concentration. The pseudo-second-order kinetic model could fit the rate equation of Cu(II) adsorption onto the Ze-RHM-41 solids. The Langmuir isotherm is more suitable than the Freundlich isotherm for the adsorption of the Cu(II) ions onto the synthesized material.

Keywords: Ze-RHM-41, rice husk ash, Cu(II), adsorption