

# TỔNG HỢP VÀ TÍNH CHẤT CỦA VẬT LIỆU CARBON VÀ CARBON BIẾN TÍNH VỚI SẮT TỪ GỖ CÂY DÓ BẦU *Aquilaria crassna*

Trần Thanh Minh<sup>1\*</sup>, Lê Trung Hiếu<sup>1</sup>, Lê Lâm Sơn<sup>1</sup>, Hồ Xuân Anh Vũ<sup>1</sup>, Mai Văn Trung<sup>2</sup>, Nguyễn Thị Thanh Huyền<sup>3</sup>, Nguyễn Trường Thi<sup>4</sup>

<sup>1</sup> Trường Đại học Khoa học, Đại học Huế, Huế, Việt nam

<sup>2</sup> Trường THPT chuyên Nguyễn Chí Thanh, Lâm Đồng, Việt nam

<sup>3</sup> Trung tâm Hóa học tiên tiến, Viện Nghiên cứu và Phát triển, Đại học Duy Tân, Đà Nẵng, Việt nam

<sup>4</sup> Trường Đại học Công nghiệp Thành Phố Hồ Chí Minh, Hồ Chí Minh, Việt nam

\* Tác giả liên hệ Trần Thanh Minh <tranthanhminh@hueuni.edu.vn>

(Ngày nhận bài: 07-11-2025; Hoàn thành phản biện: 11-12-2025; Ngày chấp nhận đăng: 12-12-2025)

**Tóm tắt.** Vật liệu carbon và vật liệu carbon biến tính với Fe đã được tổng hợp từ dất gỗ cây Dó bầu *Aquilaria crassna* bằng phương pháp nhiệt phân. Các vật liệu được đặc trưng bằng các phương pháp nhiễu xạ tia X, kính hiển vi điện tử quét, phổ tán sắc năng lượng tia X, phổ hồng ngoại biến đổi Fourier, phổ phản xạ khuếch tán từ ngoại – khả kiến và phổ huỳnh quang và so sánh hoạt tính xúc tác quang hóa đối với chất màu methylene blue. Kết quả cho thấy vật liệu carbon khi nung dưới 300 °C có hình thái tương tự nguyên liệu và chưa hình thành pha carbon có trật tự rõ ràng, trong khi nhiệt độ trên 400 °C làm phân hủy mạnh cấu trúc hữu cơ. Vật liệu carbon biến tính với Fe có hình dạng, kích thước và cấu trúc tương tự như vật liệu carbon và Fe (III) đã tạo liên kết phối trí với các nhóm chức chứa oxy trên nền vật liệu. Vật liệu biến tính với Fe cho hiệu quả phân hủy methylene blue cao hơn mẫu chưa biến tính, đạt hiệu suất loại bỏ 85% sau 90 phút hấp phụ và 150 phút chiếu sáng, cho thấy tiềm năng ứng dụng trong xử lý các chất ô nhiễm hữu cơ.

**Từ khóa:** Dó bầu, *Aquilaria crassna*, vật liệu carbon, methylene blue

## Synthesis and properties of carbon materials and iron-modified carbon materials from *Aquilaria crassna* wood

Tran Thanh Minh<sup>1\*</sup>, Le Trung Hieu<sup>1</sup>, Le Lam Son<sup>1</sup>, Ho Xuan Anh Vu<sup>1</sup>, Mai Van Trung<sup>2</sup>,  
Nguyen Thi Thanh Huyen<sup>3</sup>, Nguyen Truong Thi<sup>4</sup>

<sup>1</sup> University of Sciences, Hue University, Hue, Vietnam

<sup>2</sup> Nguyen Chi Thanh Highschool for the gifted, Lamdong, Vietnam

<sup>3</sup> Center for Advanced Chemistry, Institute of Research and Development, Duy Tan University, Danang, Vietnam

<sup>4</sup> Industrial University of Ho Chi Minh City, Hochiminh, Vietnam

\* Correspondence to Tran Thanh Minh <tranthanhminh@hueuni.edu.vn>

(Received: 07 November 2025; Revised: 11 December 2025; Accepted: 12 December 2025)

**Abstract.** Carbon materials and Fe-modified carbon materials were synthesised from *Aquilaria crassna* wood flakes with the pyrolysis method. The obtained materials were characterised with various techniques: X-ray powder diffraction, scanning electron microscopy, energy-dispersive X-ray spectroscopy, Fourier-transform infrared spectroscopy, UV-Vis diffuse reflectance spectroscopy, and

photoluminescence spectroscopy. The photocatalytic activities of the samples were also evaluated through the degradation of methylene blue. The results showed that the carbon materials pyrolysed below 300 °C exhibited morphology and particle size similar to those of the raw material, with a low degree of crystalline phase formation. When the pyrolysis temperature exceeded 400 °C, the materials underwent strong decomposition, and their morphology and particle size changed significantly compared with the precursor. The Fe-modified carbon materials exhibited similar morphology, size, and structure to the unmodified carbon materials, and Fe(III) formed coordination bonds with oxygen-containing functional groups on the carbon surface. A comparison of photocatalytic activity in methylene blue degradation revealed that the Fe-modified carbon material displayed higher photocatalytic activity than the unmodified one, achieving a removal efficiency of 85% after 90 minutes of adsorption and 150 minutes of irradiation.

**Keywords:** Aquilaria crassna, carbon material, methylene blue

## 1 Mở đầu

Vật liệu carbon là một trong số các loại vật liệu đang được nhiều nhà khoa học trong nước và trên thế giới quan tâm nghiên cứu vì chúng có nhiều ưu điểm. Từ các hóa chất hay các nguồn sinh khối tự nhiên và bằng các phương pháp khác nhau có thể dễ dàng tổng hợp ra nhiều loại vật liệu carbon như graphene, carbon dạng nano, chấm carbon và than sinh khối. Ngoài ra, các vật liệu carbon có những tính chất lý hóa rất đặc biệt nên đã được ứng dụng vào nhiều lĩnh vực của đời sống, như làm chất phát quang, diode phát quang, pin mặt trời, cảm biến quang học, chất hấp phụ, chất xúc tác quang, cảm biến điện hóa (chất biến tính điện cực để phân tích các chất hóa học), cảm biến sinh học, giám sát sinh học và dẫn truyền thuốc [1].

Sắt là kim loại phổ biến nhất trong vỏ trái đất, có giá thành thấp và độ tinh thấp hơn so với các kim loại khác như Cu, Ni, và Co. Các ion  $Fe^{3+}$  và  $Fe^{2+}$  có hoạt tính xúc tác cao trong các phản ứng oxy hóa nâng cao, chúng dễ dàng tạo liên kết với nhóm  $-OH$ ,  $-COOH$  và  $-C=O$  trên bề mặt vật liệu carbon như than sinh học (biochar) hay graphene oxide, giúp hạt Fe phân tán tốt, bám ổn định và hạn chế kết tụ [2]. Khi ở dạng  $Fe_3O_4$  với từ tính mạnh, vật liệu có thể được tách thu hồi bằng nam châm một cách hiệu quả. Vì vậy, việc tổng hợp và ứng dụng các vật liệu carbon biến tính với Fe trong công nghiệp hay trong xử lý môi trường

nước sẽ an toàn hơn và mang lại lợi ích kinh tế cao hơn.

Trong xu hướng tổng hợp xanh như hiện nay, việc chuyển hóa nguyên liệu có nguồn gốc tự nhiên thành các sản phẩm có giá trị hơn cho đời sống luôn được nhiều nhà nghiên cứu quan tâm. Cây Dó bầu hiện đang được trồng nhiều ở Việt Nam để khai thác trầm hương từ thân cây và tách lấy tinh dầu trầm hương [3, 4]. Phần gỗ giác của cây Dó bầu không có trầm được sử dụng chủ yếu làm bột sản xuất hương cây hoặc vớt bỏ. Vì vậy, nghiên cứu này sử dụng phế phụ phẩm gỗ cây Dó bầu làm nguyên liệu để tổng hợp vật liệu carbon bằng phương pháp nhiệt phân và biến tính với Fe, đồng thời đặc trưng các tính chất của vật liệu.

## 2 Thực nghiệm

### 2.1 Hóa chất và nguyên liệu

Các hóa chất sử dụng trong nghiên cứu bao gồm Iron(III) nitrate nonahydrate ( $Fe(NO_3)_3 \cdot 9H_2O$ , China), methylene blue ( $C_{16}H_{18}ClN_3S$ , India) và nước cất. Nguyên liệu là phần gỗ giác của cây Dó bầu (*Aquilaria crassna*) trồng tại tỉnh Quảng Bình (cũ), nay là tỉnh Quảng Trị.

## 2.2 Phương pháp

### Tổng hợp vật liệu carbon

Gỗ giác của cây Dó bầu được sấy khô ở 60 °C, sau đó xay thành bột mịn. Bột được rây bằng lưới với kích thước lỗ 0,15 mm để loại các hạt lớn. Phần bột được sử dụng để tổng hợp vật liệu.

Vật liệu carbon được tổng hợp bằng phương pháp nhiệt phân: nung bột nguyên liệu ban đầu trong lò nung vulcan 3-550-PD ở các nhiệt độ từ 250 đến 600 °C và thời gian 1–12 giờ; tốc độ gia nhiệt là 5 °C/phút.

### Tổng hợp vật liệu carbon biến tính với Fe

Hòa tan  $m$  gam  $\text{Fe}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$  ( $m = 2 \div 10$  gam) vào 250 mL nước cất, rồi cho 50 gam bột nguyên liệu vào dung dịch muối thu được và tiến hành khuấy ở tốc độ 500 vòng/phút trong 24 giờ. Sau khi khuấy xong, lọc lấy nguyên liệu đã hấp phụ Fe(III), sấy khô ở 100 °C trong 12 giờ, nung trong lò vulcan 3-550-PD ở 250–600 °C trong 1–12 giờ; tốc độ gia nhiệt là 5 °C/phút và thu được các vật liệu carbon biến tính Fe.

Các ký hiệu: BT là nguyên liệu; CN250, CN300, CN400, CN500 và CN600 là các vật liệu carbon tổng hợp ở nhiệt độ từ 250 đến 600 °C trong 2 giờ; F4/CN250H2, F4/CN300H2, F4/CN500H2, F4/CN600H2; F4/CN250H1; F4/CN250H4; F4/CN250H8; F4/CN250H12; F2/CN250H12, F6/CN250H12, F8/CN250H12, F10/CN250H12 là các mẫu vật liệu carbon biến tính với Fe, tổng hợp ở điều kiện khối lượng muối Fe (III) là  $m = 2 \div 10$  gam (tương ứng với tỷ lệ khối lượng muối/nguyên liệu là 2:50, 4:50, 6:50, 8:50 và 10:50), nhiệt độ nung là 250–600 °C; thời gian nung là 1–12 giờ; FN250H12 là vật liệu  $\text{Fe}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$  nung ở 250 °C trong 12 giờ.

### Xác định tính chất, đặc trưng vật liệu

Cấu trúc tinh thể của các vật liệu được xác định bằng XRD trên thiết bị XRD Smartlab,

Rigaku. Hình thái của các mẫu vật liệu được xác định bằng phương pháp SEM và thành phần nguyên tố được xác định bằng phương pháp EDX trên thiết bị Tescan Vega3. Các nhóm chức trong vật liệu được xác định bằng phổ hồng ngoại ghi trên thiết bị Shimadzu IR Prestige-21 FTIR. Phổ huỳnh quang được ghi bằng thiết bị Fluorolog FL-22 (Horiba, Nhật Bản). Phổ UV-Vis-DRS và phổ hấp thụ UV-Vis được ghi bằng thiết bị quang phổ Cary 5000 UV-Vis.

### Đánh giá hoạt tính xúc tác quang hóa

Hoạt tính xúc tác quang hóa phân hủy MB của các mẫu vật liệu được tiến hành khảo sát như sau: Cho 20 mg chất xúc tác (các vật liệu khảo sát) vào cốc 500 mL chứa 200 mL dung dịch MB (10 ppm). Sau đó đặt cốc vào hệ thống thực hiện phản ứng quang hóa, với đèn chiếu sáng (đèn cao áp Osram 160 W) phía trên. Huyền phù được khuấy trong bóng tối trong  $t$  giờ để đảm bảo cân bằng hấp phụ, sau đó tiến hành chiếu sáng. Trong quá trình hấp phụ trong bóng tối cũng như chiếu sáng, 5 mL huyền phù được rút ra sau mỗi 30 phút và được ly tâm trong 15 phút ở tốc độ 6000 vòng/phút để loại bỏ chất xúc tác rắn. Nồng độ MB trong pha lỏng được xác định bằng phương pháp UV-Vis ở bước sóng  $\lambda = 664$  nm dựa vào phương trình đường chuẩn  $A = 0,1609 \times C + 0,0759$  với  $R^2 = 0,9936$ , trong đó  $A$  là độ hấp thụ và  $C$  là nồng độ MB (ppm) trong dung dịch.

Hiệu suất loại bỏ MB của phản ứng quang hóa được tính theo công thức (1)

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

trong đó  $C_0$  và  $C_t$  (ppm) là nồng độ của MB ban đầu và tại thời điểm  $t$ .

## 3 Kết quả và thảo luận

### 3.1 Vật liệu carbon

Hình ảnh của các mẫu vật liệu và ảnh SEM của chúng tổng hợp từ bột nguyên liệu ban đầu

bằng phương pháp nhiệt phân ở 250, 300, 400, 500 và 600 °C trong 2 giờ được trình bày ở Hình 1 và Hình 2. Có thể thấy nguyên liệu ban đầu (BT) có màu vàng nhạt (Hình 1a), hình dạng không cụ thể với kích thước micro mét và bề mặt khá nhẵn (Hình 2a). Khi nung ở các nhiệt độ khác nhau thì thu được các mẫu vật liệu với màu sắc khác nhau. Các mẫu vật liệu nung ở 250 °C có màu nâu đậm (Hình 1b) và 300 °C có màu đen (Hình 1c); điều

này cho thấy khi nung dưới 300 °C, vật liệu bị carbon hóa dần, nhưng hình dạng, kích thước và bề mặt vật liệu không thay đổi nhiều so với nguyên liệu ban đầu. Tỷ lệ phần trăm khối lượng của vật liệu thu được khi nung ở 250 và 300 °C so với nguyên liệu (Bảng 1) có sự giảm xuống ở mức độ vừa phải (64,2% ở 250 °C và 32,1% ở 300 °C); điều này cho thấy khi nung ở nhiệt độ thấp, sự phân hủy xảy ra chậm.

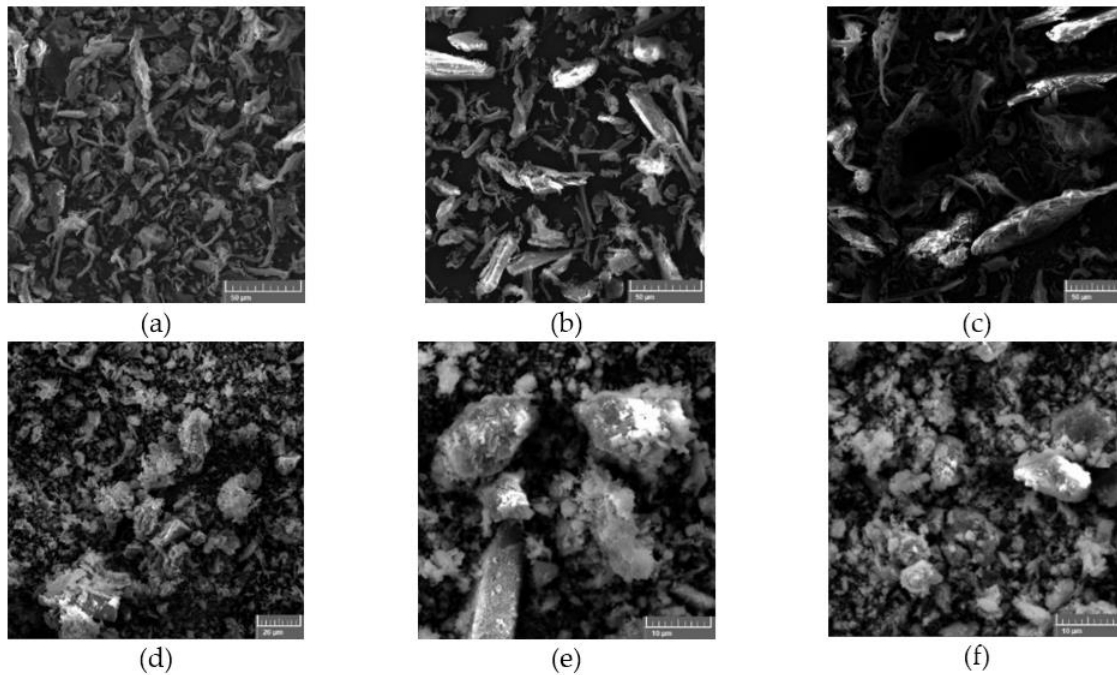


**Hình 1.** Hình ảnh của bột nguyên liệu (a) và các mẫu vật liệu nung ở các nhiệt độ 250 (b), 300 (c), 400 (d), 500 (e) và 600 °C (f)

Khi nung ở trên 400 °C, hình dạng (Hình 2d–2f) của vật liệu đã có sự biến đổi và bề mặt trở nên sần sùi, gồm nhiều hạt nhỏ với kích thước nanomet kết dính với nhau; điều này cho thấy nguyên liệu đầu đã có sự phân hủy mạnh; bộ khung carbon của các hợp chất có trong vật liệu bị phá vỡ. Mẫu vật liệu nung ở 400 °C (Hình 1d) có màu lông chuột, là hỗn hợp không đồng nhất; điều này cho thấy điều kiện nung chưa phù hợp để phân hủy nguyên liệu. Mẫu vật liệu nung ở 500 và 600 °C (Hình 1e và 1f) không còn màu đen như mẫu nung ở 300 °C mà có màu vàng nhạt, đồng thời tỷ lệ phần trăm khối lượng của vật liệu thu được so với nguyên liệu (Bảng 1) lần lượt là

2,4% và 2,1%; điều này cho thấy vật liệu có khả năng đã bị khoáng hóa.

Sự phân hủy nguyên liệu đầu ở các nhiệt độ khác nhau cũng thể hiện rõ ở sự biến đổi phần trăm khối lượng nguyên tố C và O trong các mẫu vật liệu (Bảng 2). Khi nung ở nhiệt độ thấp (250 và 300 °C), quá trình phân hủy nguyên liệu chưa xảy ra mạnh, chủ yếu làm mất các nhóm chứa oxygen (như OH), nên phần trăm khối lượng của C có xu hướng tăng lên, còn phần trăm khối lượng của O có xu hướng giảm xuống sau khi nung. Tổng phần trăm C và O vẫn chiếm tỷ lệ cao trong vật liệu (98,5–98,8%), gần bằng tổng phần trăm trong nguyên liệu đầu 98,9%.



**Hình 2.** Ảnh SEM của bột nguyên liệu (a) và các mẫu vật liệu nung ở các nhiệt độ 250 (b), 300 (c), 400 (d), 500 (e) và 600 °C (f)

**Bảng 1.** Tỷ lệ phần trăm khối lượng các mẫu vật liệu thu được so với nguyên liệu

STT	Nhiệt độ nung (°C)	Vật liệu	Tỷ lệ khối lượng (%)
1	250	CN250	64,2
2	300	CN300	32,1
3	400	CN400	2,8
4	500	CN500	2,4
5	600	CN600	2,1

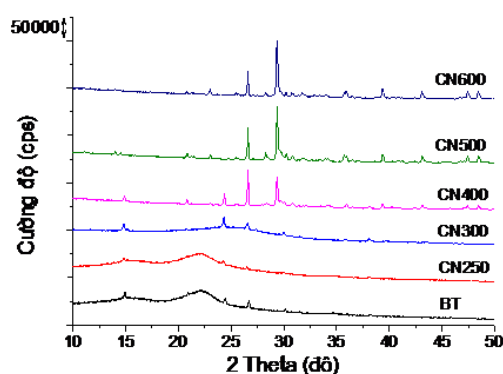
Khi nung ở trên 400 °C, bộ khung hữu cơ bị phân hủy mạnh và có sự chuyển hóa thành hợp chất bay hơi, nên phần trăm khối lượng của C giảm đi rất nhiều, thấp hơn phần trăm khối lượng của O, và tổng phần trăm của C và O chỉ chiếm dưới 71,0%, phần còn lại là của một số nguyên tố khác (như K, Ca, Mg, Al, Si, P, S), cho thấy nguyên liệu đã bị khoáng hóa.

**Bảng 2.** Tỷ lệ phần trăm khối lượng của một số nguyên tố trong các mẫu vật liệu

Vật liệu	BT	CN250	CN300	CN400	CN500
C	56,70	59,49	60,24	26,93	20,60
O	42,26	39,45	38,35	44,15	49,05
K	0,38	0,45	0,47	12,63	12,47
Ca	0,31	0,44	0,47	10,85	11,75
Mg	0,10	0,10	0,12	2,17	1,69
Al	0,01	0,00	0,11	0,28	0,33
Fe	0,10	0,00	0,10	0,69	0,71
Zn	0,10	0,02	0,00	0,16	0,15
Si	0,04	0,02	0,10	0,50	1,51
P	0,00	0,00	0,00	0,98	1,01
S	0,00	0,02	0,03	0,66	0,72
Tổng	100	100	100	100	100

Hình 3 cho thấy giản đồ XRD của bột nguyên liệu ban đầu có các đỉnh với hình dạng giống giản đồ XRD của cellulose [5]. Điều này cho thấy bột nguyên liệu đầu (gỗ giác của cây Dó bầu) chứa thành phần chính là cellulose. Khi nung ở 250 °C trong 2 giờ thì nguyên liệu đã có sự phân hủy và mất khoảng 36% khối lượng, nhưng XRD không thay đổi nhiều so với XRD của nguyên liệu đầu; điều này cho thấy thành phần chính cellulose không bị phân hủy nhiều, mà thành phần bị phân hủy có khả năng là lignin và hemicellulose (thường có trong gỗ tự nhiên) với độ bền nhiệt kém hơn so với cellulose (cellulose bị phân hủy ở nhiệt độ từ 300 °C trở lên) [6]. Do đó, tỷ lệ phần trăm khối lượng của vật liệu thu được so với nguyên liệu giảm không nhiều. Khi nung ở nhiệt độ cao từ 300 °C trở lên, tỷ lệ phần trăm khối lượng của vật liệu thu được giảm nhiều hơn (Bảng 1); điều này cho thấy cellulose đã có sự phân hủy nhiều hơn; vật liệu bị carbon hóa dần (Hình 1c) và giản đồ XRD thu được đã có sự thay đổi rõ ràng hơn so với nguyên liệu đầu. Trên giản đồ XRD của mẫu CN300 (Hình 3) xuất hiện các đỉnh nhiễu xạ tại  $2\theta \approx 14,9, 20,7, 24,3$  và  $26,6^\circ$ , đặc trưng cho vật liệu carbon. Đỉnh tại  $2\theta \approx 14,9^\circ$  cho thấy vật liệu vẫn còn có tàn dư cellulose trong nguyên liệu chưa bị phân hủy hết [7]. Đỉnh tại  $2\theta \approx 20,7^\circ$  cho thấy trong vật liệu có sự xuất hiện của carbon vô định hình ở mức độ trật tự kém [8]. Đỉnh tại  $2\theta \approx 26,5^\circ$  đặc trưng cho mặt phẳng tinh thể (002) của graphite nhưng với cường độ thấp; điều này cho thấy mức độ kết tinh chưa cao [9, 10]. Đỉnh tại  $2\theta \approx 24,3^\circ$ , đặc trưng cho carbon, cho thấy có sự tách lớp lớn hơn bình thường, thường thấy trong graphene oxide dạng khử (RGO), graphene oxide bị khử chưa hoàn toàn, turbostratic carbon (các lớp graphene bị lệch xoay, không trật tự) hoặc các vật liệu carbon có khoảng cách liên lớp nở rộng do sự oxy hóa tạo nhóm nguyên tử chứa oxygen hoặc các nhóm chức, làm giãn khoảng cách giữa các lớp [11]. Vật liệu CN300 được tổng hợp từ sinh khối tự nhiên (vật

liệu hữu cơ) bằng phương pháp nhiệt phân ở nhiệt độ thấp, nên quá trình carbon hóa thường tạo ra turbostratic carbon (giữa graphite trật tự và carbon vô định hình) [12]. Ngoài ra, sự nhiệt phân xảy trong môi trường có oxygen nên cũng sẽ có sự oxy hóa tạo thành nhóm nguyên tử chứa oxygen. Đỉnh có góc  $2\theta$  rộng trong khoảng  $20\text{--}30^\circ$  là đặc trưng rất phổ biến cho carbon vô định hình hoặc turbostratic carbon với tinh thể nhỏ, có sự lệch nhau giữa các lớp graphene, thường thấy ở than hoạt tính và than sinh học carbon hóa ở nhiệt độ thấp [10]. Theo Siburian và cộng sự [13], đỉnh tại  $26,6^\circ$  đặc trưng cho graphite; đỉnh với góc  $2\theta$  rộng trong khoảng  $20\text{--}30^\circ$  và đỉnh tại  $24,3^\circ$  đặc trưng cho các graphene nanosheet vừa có cấu trúc tinh thể, vừa vô định hình. Sự xuất hiện đồng thời các đỉnh ở  $20,7, 24,3$  và  $26,6^\circ$  ở mẫu CN300 (trùng tự với tổ hợp các đỉnh  $20,1, 23,9$  và  $26,4^\circ$  ở tài liệu [13], đặc trưng cho graphene oxide nhưng không liên kết hoàn toàn với các nguyên tử oxygen [13]. Như vậy, sự phân tích các đỉnh nhiễu xạ đặc trưng cho vật liệu carbon cho thấy vật liệu CN300 mà chúng tôi tổng hợp được đã có sự hình thành và tồn tại nhiều pha carbon: graphite với mức độ tinh thể chưa cao, graphene nanosheet, turbostratic carbon với kích thước tinh thể nhỏ, graphene oxide không liên kết hoàn toàn với các nguyên tử oxygen và carbon vô định hình. Ngoài ra, trong vật liệu vẫn còn tàn dư của cellulose chưa phân hủy hết.



Hình 3. Giản đồ XRD của nguyên liệu đầu và các mẫu vật liệu

Trên giản đồ XRD của các mẫu nung ở 400 °C trở lên xuất hiện nhiều đỉnh cao nhọn, cho thấy đã có sự hình thành pha tinh thể rõ ràng. Ở nhiệt độ này, nguyên liệu đã bị khoáng hóa (đã phân tích ở trên), do đó các đỉnh cao nhọn đặc trưng cho các oxide hoặc các muối vô cơ của một số kim loại có trong nguyên liệu đầu, ví dụ đỉnh tại 29° đặc trưng cho CaCO<sub>3</sub> (ICDD card No. 01-075-0649) và đỉnh tại 26,6° đặc trưng cho SiO<sub>2</sub> (quartz) (ICDD card No. 01-070-7344).

Mẫu vật liệu nung ở 400 °C không được đồng đều và có sự trộn lẫn giữa 2 màu đen và xám (Hình 1d), nên chúng tôi lựa chọn các nhiệt độ 250, 300, 500 và 600 °C để tiếp tục nghiên cứu biến tính với Fe.

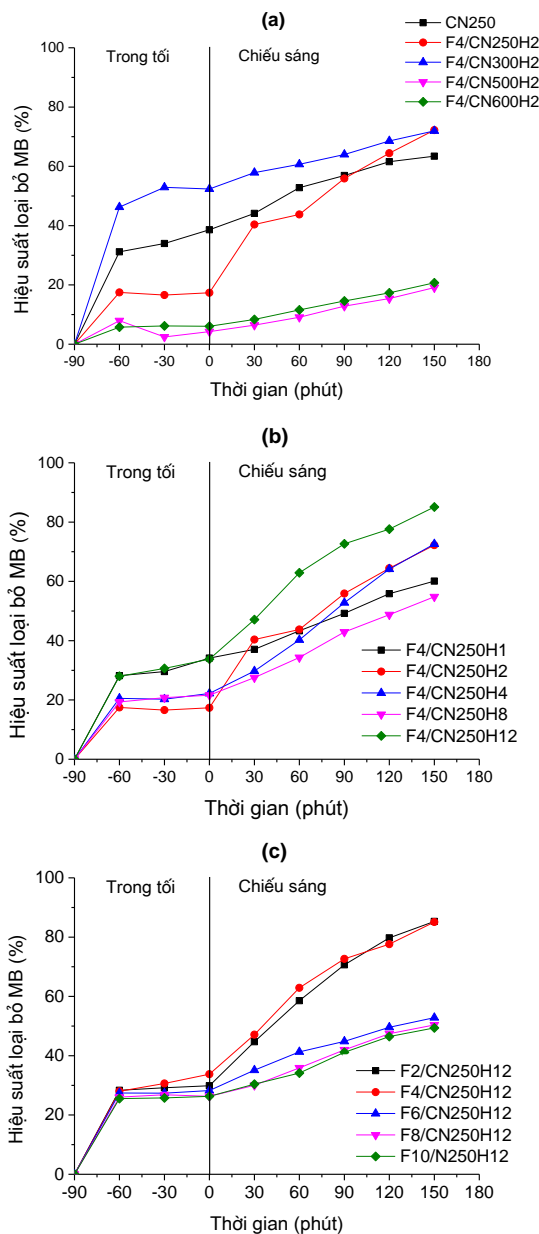
### 3.2 Vật liệu carbon biến tính với Fe

Hình 4a cho thấy hiệu suất loại bỏ MB của các mẫu vật liệu biến tính với Fe, nung ở 250 °C (F4/CN250H2) và 300 °C (F4/CN300H2) là tương đương nhau (đạt trên 70% sau 90 phút hấp phụ và 150 phút chiếu sáng), cao hơn các mẫu vật liệu nung ở nhiệt độ cao hơn và cũng cao hơn mẫu chưa biến tính (CN250). Đặc biệt, mẫu biến tính nung ở 250 °C, mặc dù có khả năng hấp phụ thấp hơn mẫu nung ở 300 °C và mẫu chưa biến tính CN250, nhưng có khả năng loại bỏ MB khi chiếu sáng mạnh hơn, tức là có hoạt tính quang hóa cao hơn.

Ngoài ra, mẫu vật liệu biến tính với Fe khi nung ở 300 °C mà chúng tôi thu được là hỗn hợp không đồng nhất của bột màu đen và đỏ nâu (Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>). Vì vậy, nhiệt độ 250 °C được lựa chọn để tiếp tục khảo sát thời gian tổng hợp vật liệu biến tính với Fe.

Hình 4b cho thấy hiệu suất loại bỏ MB của mẫu vật liệu nung ở 250 °C trong 12 giờ (F4/CN250H12) đạt 85%, đồng thời cho hoạt tính xúc tác quang cao. Kết quả này cho thấy khi kéo dài thời gian nung ở 250 °C, sản phẩm thu được đã có sự hình thành các pha vật liệu carbon rõ

ràng hơn (Hình 6) nên hoạt tính xúc tác cao hơn. Thời gian nung 12 giờ được lựa chọn để tiếp tục khảo sát tỷ lệ các chất đầu.



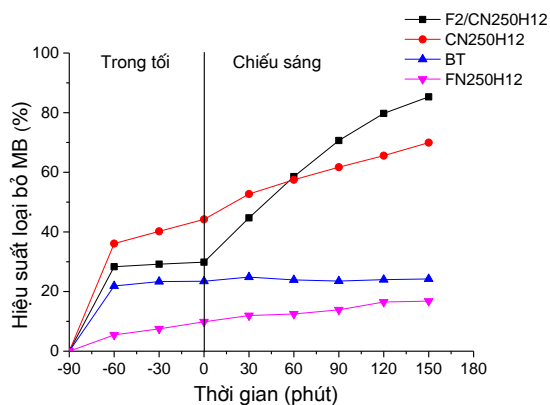
**Hình 4.** Hiệu suất loại bỏ MB của các mẫu vật liệu carbon biến tính với Fe(III) ở các điều kiện khác nhau về nhiệt độ nung (a), thời gian nung (b) và tỷ lệ các chất đầu (c) (Điều kiện: 20 mg vật liệu, 200 mL dung dịch MB 10 ppm)

Hình 4c cho thấy hiệu suất loại bỏ MB của mẫu vật liệu F2/CN250H12 (tỷ lệ 2:50) và F4/CN250H12 (tỷ lệ 4:50) có hiệu suất loại bỏ MB cũng như hoạt tính xúc tác quang tương đương

nhau và cao hơn các mẫu còn lại. Trong trường hợp này, tỷ lệ  $m_{\text{muối}}/m_{\text{nguyên liệu}} = 2:50$ , được ưu tiên lựa chọn vì đỡ tiêu tốn muối Fe(III), cũng như sự thuận lợi sau này khi tiếp tục bổ sung thêm ion kim loại khác. Tỷ lệ này cũng khá nhỏ, do đó chúng tôi cũng không tiếp tục khảo sát tỷ lệ nhỏ hơn.

Như vậy, điều kiện thích hợp để chúng tôi tổng hợp vật liệu carbon biến tính với ion Fe(III) là tỷ lệ  $m_{\text{muối}}/m_{\text{nguyên liệu}} = 2:50$ , nhiệt độ nung 250 °C, thời gian nung 12 giờ.

Để đánh giá lại khả năng loại bỏ MB và hoạt tính xúc tác quang hóa của mẫu vật liệu F2/CN250H12, chúng tôi đã làm thí nghiệm so sánh hoạt tính xúc tác quang hóa với mẫu nguyên liệu, mẫu vật liệu carbon nung từ nguyên liệu (CN250H12) và mẫu vật liệu nung từ muối Fe(NO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>.9H<sub>2</sub>O (FN250H12) trong cùng điều kiện. Kết quả được trình bày trên Hình 5.

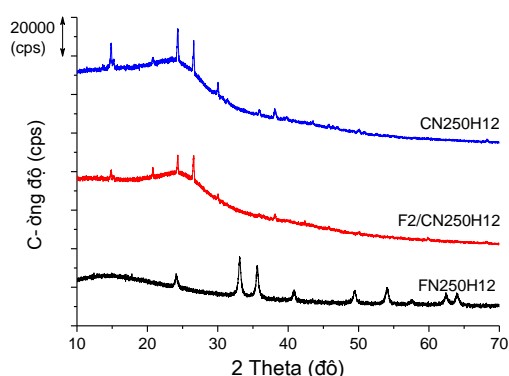


**Hình 5.** Hiệu suất loại bỏ MB của nguyên liệu BT và các mẫu vật liệu F2/CN250H12, CN250H12, FN250H12 tổng hợp ở điều kiện nung 250 °C, 12 giờ (Điều kiện: 20 mg vật liệu, 200 mL dung dịch MB 10 ppm)

Có thể thấy mẫu vật liệu carbon biến tính với Fe (F2/CN250H12) có khả năng hấp phụ loại bỏ MB thấp hơn vật liệu chưa biến tính; điều này có thể do sự biến tính với Fe lên bề mặt đã làm giảm bớt số tâm hấp phụ của vật liệu carbon nền. Tuy nhiên, vật liệu biến tính lại có hoạt tính xúc tác quang hóa cao hơn, do vậy đã làm tăng khả năng loại bỏ MB. Ngoài ra, khả năng loại bỏ MB của vật

liệu biến tính cũng cao hơn rất nhiều so với nguyên liệu BT và vật liệu thu được khi nung với muối Fe(III) trong cùng điều kiện.

Chúng tôi tiến hành đặc trưng mẫu vật liệu biến tính F2/CN250H12 và các mẫu vật liệu thành phần được tổng hợp trong cùng điều kiện là CN250H12 và FN250H12 nhằm phân tích vật liệu cũng như giải thích các vấn đề liên quan đến hoạt tính vật liệu.



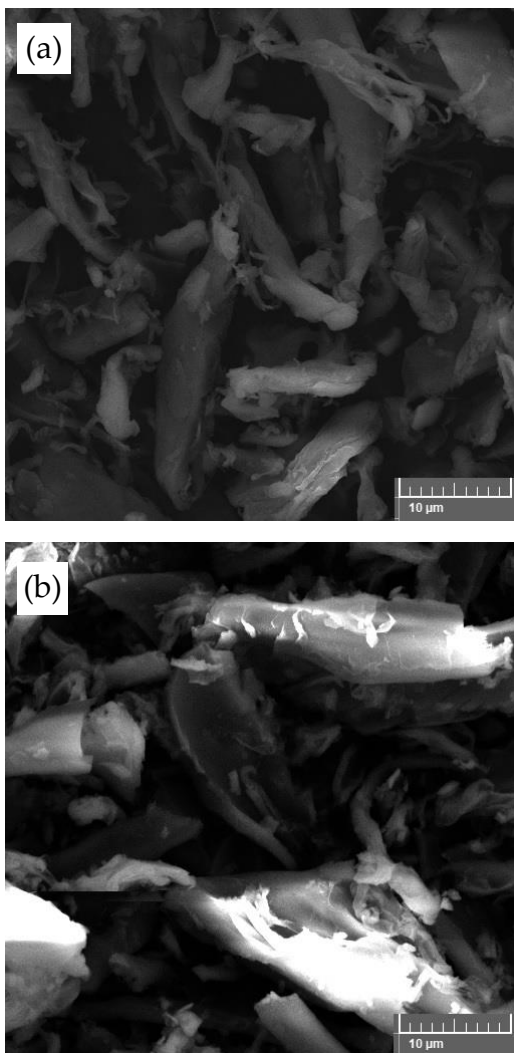
**Hình 6.** Giản đồ XRD của các mẫu vật liệu CN250H12, FN250H12 và F2/CN250H12

Trên giản đồ XRD của mẫu F2/CN250H12 và CN250H12 (Hình 6) cũng như của mẫu vật liệu CN300 xuất hiện các đỉnh nhiễu xạ ở  $2\theta \approx 14,9, 20,7, 24,3$  và  $26,5^\circ$  và đỉnh có góc  $2\theta$  rộng từ 20 đến  $30^\circ$ . Điều đó cho thấy trong vật liệu F2/CN250H12 và CN250H12 tổng hợp được đã có sự hình thành và tồn tại nhiều pha carbon như đã phân tích ở mẫu vật liệu CN300: graphite, graphene nanosheet và turbostratic carbon với kích thước tinh thể nhỏ và graphene oxide không liên kết hoàn toàn với các nguyên tử oxygen và carbon vô định hình.

Trên giản đồ XRD của mẫu FN250H12 xuất hiện đỉnh nhiễu xạ ở  $2\theta \approx 24,1, 33,1, 35,6$  và  $40,9^\circ$ , tương ứng với các mặt phẳng (012), (104), (110), (113), đặc trưng cho  $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$  (hematite) (ICCD No.01-072-0469) [14–16]. Tuy nhiên, trên giản đồ XRD của F2/CN250H12 chưa thấy rõ sự xuất hiện của các đỉnh này, có thể do hàm lượng Fe(III) đưa

vào vật liệu chưa đủ lớn để thiết bị phát hiện tín hiệu.

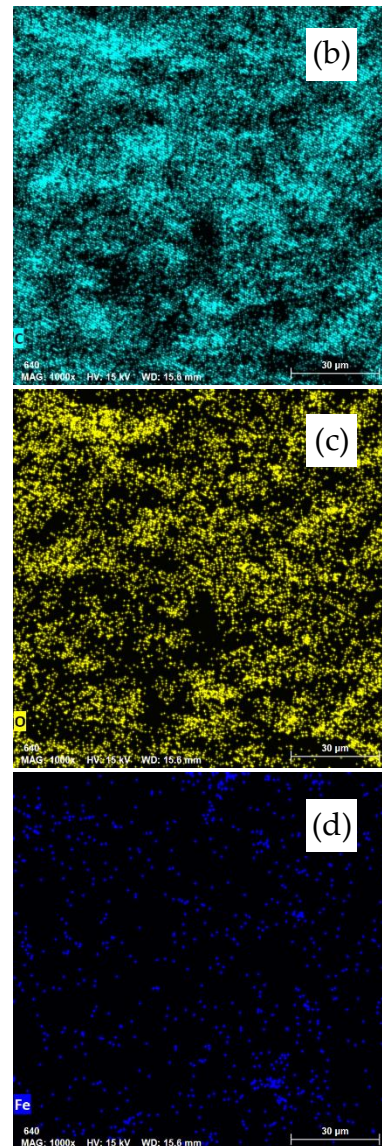
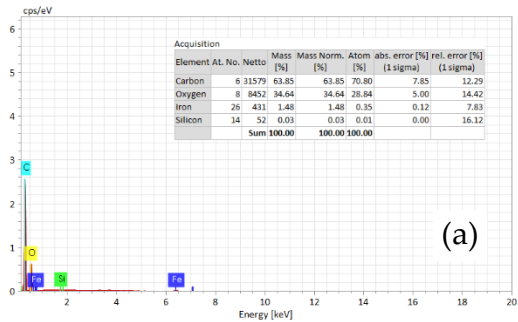
Ảnh SEM trên Hình 7 cho thấy các mẫu vật liệu CN250H12 và F2/CN250H12 thu được có kích thước hạt vào khoảng vài micromet, tương tự như nguyên liệu ban đầu. Kết hợp với kết quả XRD, có thể thấy các tấm nano graphene trên các vật liệu CN250H12 và F2/CN250H12 đã hình thành trên các hạt lớn micromet này.



Hình 7. Ảnh SEM của các mẫu vật liệu CN250H12 (a) và F2/CN250H12 (b)

Giản đồ EDX trên Hình 8 cho thấy thành phần các nguyên tố trong vật liệu F2/CN250H12 như dự đoán bao gồm 63,85% carbon, 34,64% oxygen, 1,48% iron và 0,03 % silicon. EDX-mapping cho thấy sự phân bố đồng đều của các

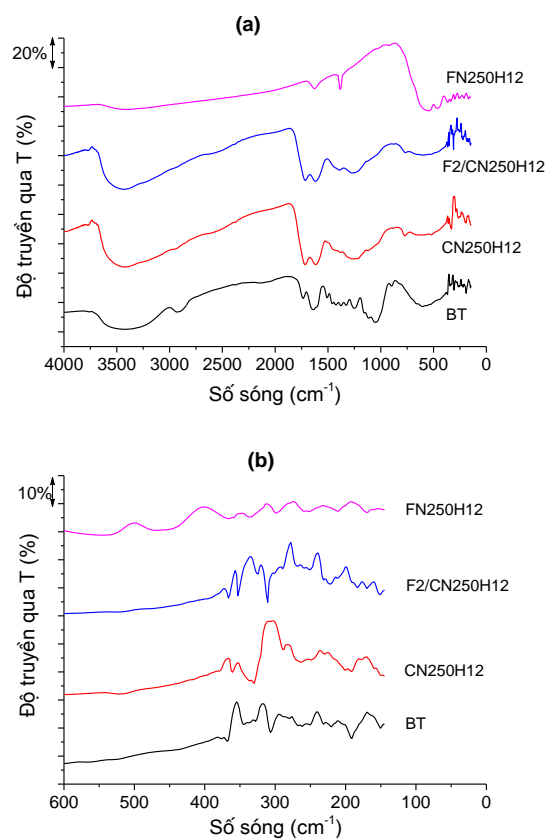
nguyên tố Fe trên bề mặt vật liệu, chứng tỏ đã đưa thành công nguyên tố Fe lên bề mặt vật liệu carbon. Kết hợp với kết quả XRD, có thể thấy Fe(III) trong vật liệu tồn tại ở dạng  $\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.



Hình 8. EDX (a) và bản đồ phân bố nguyên tố C (b), O (c) và Fe (d) trong mẫu vật liệu F2/CN250H12 khi phân tích bằng EDX-mapping

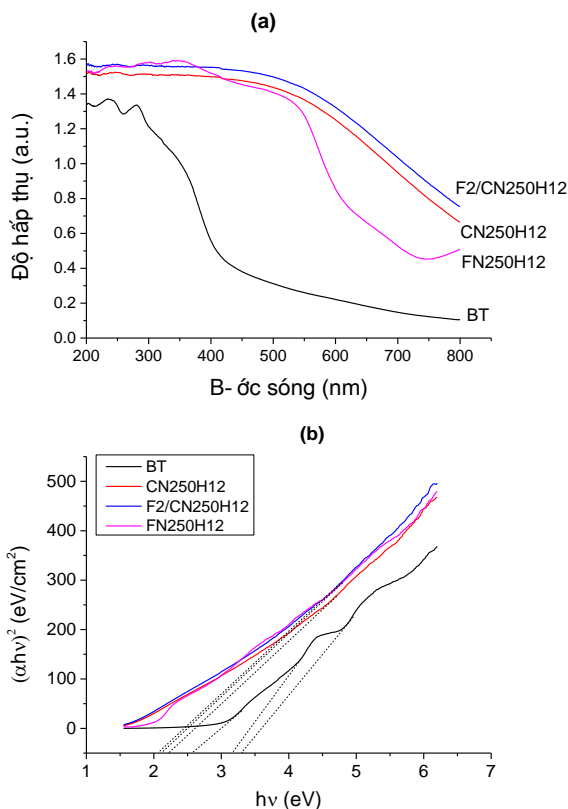
Phổ hồng ngoại (Hình 9) một lần nữa cho thấy mẫu FN250H12 thu được sau khi nung với muối  $\text{Fe}(\text{NO}_3)_3$  là  $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ . Phổ hồng ngoại của mẫu FN250H12 có các dải hấp thụ tại số sóng 544 và  $469\text{ cm}^{-1}$ , đặc trưng cho dao động của liên kết Fe–O trong hematite [16]. Ngoài ra, các dải hấp thụ tại  $3412$  và  $1628\text{ cm}^{-1}$  đặc trưng cho dao động của liên kết O–H trong nước hấp phụ hoặc nhóm hydroxyl [17]. Dải hấp thụ tại  $1383\text{ cm}^{-1}$  có thể đặc trưng cho dao động của  $\text{COO}^-$ ,  $\text{CO}_3^{2-}$  hoặc  $\text{NO}_3^-$  trên bề mặt [18]. Cả ba mẫu BT, CN250H12 và F2/CN250H12 đều có các dải hấp thụ ở vùng  $3420\text{ cm}^{-1}$  chân rộng và vùng  $1616\text{--}1631$ , đặc trưng cho liên kết O–H tạo liên kết hydrogen của nhóm OH alcohol, COOH hoặc nước hấp phụ [17]. Mẫu nguyên liệu BT có dải hấp thụ ở  $2929\text{ cm}^{-1}$  đặc trưng cho liên kết H–C $_{\text{sp}^3}$  [19], có nhiều đỉnh ở vùng  $1400\text{--}1460\text{ cm}^{-1}$  với cường độ yếu, đặc trưng cho dao động biến dạng của liên kết O–H (của nhóm C–OH) và vùng  $1000\text{--}1300\text{ cm}^{-1}$  đặc trưng cho liên kết C–O của nhóm C–OH [20–22]. Tuy nhiên, ở các mẫu vật liệu sau nung như CN250H12 và F2/CN250H12 không thấy xuất hiện các đỉnh này, mà xuất hiện dải hấp thụ tại  $1715\text{--}1717\text{ cm}^{-1}$ , đặc trưng cho liên kết C=O. Điều đó chứng tỏ sau khi nung, bộ khung carbon của các chất hữu cơ trong nguyên liệu đầu đã bị phân hủy và các chất hữu cơ trong nguyên liệu cũng bị oxi hóa, hình thành các nhóm C=O hoặc COOH [18]. Mẫu CN250H12 có dải hấp thụ ở số sóng  $1379,1\text{ cm}^{-1}$ , đặc trưng cho nhóm  $\text{COO}^-$  (hoặc  $\text{CO}_3^{2-}$ ) với cường độ yếu và dải hấp thụ ở  $1120,6\text{ cm}^{-1}$  (rõ), đặc trưng cho liên kết C–OH hoặc C–O, cho thấy trong vật liệu CN250H12 có sự hình thành nhóm COOH nhiều hơn nhóm  $\text{COO}^-$ . Trong khi đó, mẫu F2/CN250H12 cũng có các dải hấp thụ tương tự với sự thay đổi về vị trí số sóng cũng như cường độ so với CN250H12, cụ thể xuất hiện dải hấp thụ ở  $1389\text{ cm}^{-1}$ , đặc trưng cho nhóm  $\text{COO}^-$  (hoặc  $\text{CO}_3^{2-}$ ) với cường độ mạnh hơn và dải hấp thụ ở  $1120,6\text{ cm}^{-1}$ , đặc trưng cho liên kết C–OH hoặc C–O với cường độ rất yếu; điều này cho

thấy trong vật liệu F2/CN250H12 không có nhiều nhóm COOH, mà chủ yếu ở dạng  $\text{COO}^-$ , có sự tương tác với Fe(III) tạo liên kết phối trí [18]. Dao động đặc trưng cho mạng tinh thể vật rắn ở vùng số sóng thấp của F2/CN250H12 cũng đã có sự khác biệt so với mẫu FN250H12 và CN250H12, cho thấy có sự gia tăng lượng  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  trên bề mặt vật liệu hữu cơ và sự tương tác giữa vật liệu hữu cơ với Fe cũng đã làm thay đổi cấu trúc của vật liệu hữu cơ cũng như cấu trúc  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  khi ở dạng riêng lẻ.



**Hình 9.** Phổ hồng ngoại FT-IR của BT, CN250H12, F2/CN250H12 và FN250H12 trong vùng số sóng từ 0 đến  $4000\text{ cm}^{-1}$  (a) và giãn rộng vùng  $0\text{--}600\text{ cm}^{-1}$  (b)

Từ phổ UV-Vis DRS (Hình 10a) có thể thấy các mẫu vật liệu đều có khả năng hấp thụ ánh sáng khả kiến. Mẫu F2/CN250H12 có cường độ hấp thụ cao hơn mẫu nguyên liệu BT và mẫu vật liệu chưa biến tính CN250H12.



**Hình 10.** Phổ UV-Vis DRS (a) và đồ thị Tauc (b) của BT, CN250H12, F2/CN250H12 và FN250H12

Các giá trị năng lượng vùng cấm  $E_g$  tính theo đồ thị Tauc (Hình 10b) được trình bày trong Bảng 3.  $E_g$  của vật liệu biến tính F2/CN250H12 có sự giảm nhẹ so với vật liệu chưa biến tính CN250H12 và cũng giảm nhiều so với của nguyên liệu BT. Sự thay đổi này cho thấy khi biến tính Fe lên vật liệu carbon và CN250H12, do sự kết hợp của Fe(III) ở dạng  $Fe_2O_3$  với các nhóm chức chứa oxygen trên nền vật liệu carbon đã làm thay đổi mức năng lượng và khả năng hấp thụ photon của vật liệu. Sự giảm  $E_g$  sau khi biến tính với Fe cho thấy vật liệu biến tính có tiềm năng cao hơn trong các ứng dụng quang xúc tác dưới ánh sáng khả kiến.

**Bảng 3.** Năng lượng vùng cấm  $E_g$  của BT, CN250H12, F2/CN250H12 và FN250H12

Vật liệu	$E_g$ (eV)
BT	3,30, 3,20, 2,60
CN250H12	2,25
F2/CN250H12	2,15
FN250H12	2,10

## 4 Kết luận

Nhiệt độ thích hợp để tổng hợp vật liệu carbon từ gỗ giác của cây Dó bầu là 300 °C trở xuống. Vật liệu carbon thu được ở điều kiện này có hình thái tương tự nguyên liệu và chưa hình thành pha carbon với trật tự rõ ràng. Đối với vật liệu carbon biến tính với Fe, điều kiện tổng hợp thích hợp để thu được hiệu quả quang xúc tác phân hủy MB cao là 250 °C và 12 giờ phản ứng. Hiệu suất loại bỏ MB đạt 85% sau 90 phút hấp phụ và 150 phút chiếu sáng. Vật liệu có hình dạng và kích thước tương tự với nguyên liệu ban đầu, có sự hình thành nhiều pha carbon với mức độ trật tự chưa cao như graphite, graphene nanosheet và graphene oxide và không liên kết hoàn toàn với các nguyên tử oxygen. Fe biến tính lên vật liệu carbon tồn tại ở dạng  $\alpha-Fe_2O_3$  và tương tác với các nhóm chức chứa oxygen (như COO-) trên nền vật liệu carbon bằng liên kết phối trí.

## Lời cảm ơn

Nghiên cứu này được tài trợ bởi đề tài khoa học và công nghệ cấp Đại học Huế có mã số DHH2023-01-211.

## Tài liệu tham khảo

- Molaei MJ. A review on nanostructured carbon quantum dots and their applications in biotechnology, sensors, and chemiluminescence. *Talanta*. 2019;196:456-478.
- Xiao B, Jia J, Wang W, Zhang B, Ming H, Ma S, et al. A review on magnetic biochar for the removal of

- heavy metals from contaminated soils: Preparation, application, and microbial response. *Journal of Hazardous Materials Advances*. 2023;10:100254.
3. Trang NTT. Khảo sát thành phần hóa học thân cây Dó bầu *Aquilaria crassna* Pierre [Luận văn Thạc sĩ]. TP. Hồ Chí Minh: Trường đại học Khoa học tự nhiên; 2007.
  4. Lata A. Investigation of seed longevity and viability and cutting propagation for *Aquilaria crassna* Literature Review. 2008.
  5. Zhang H, Xu Y, Li Y, Lu Z, Cao S, Fan M, et al. Facile cellulose dissolution and characterization in the newly synthesized 1, 3-diallyl-2-ethylimidazolium acetate ionic liquid. *Polymers*. 2017;9(10):526.
  6. Hornung A, Stenzel F, Grunwald J. Biochar—just a black matter is not enough. *Biomass Conversion and Biorefinery*. 2024;14(5):5889-5900.
  7. Al-Swadi HA, Al-Farraj AS, Al-Wabel MI, Ahmad M, Usman AR, Ahmad J, et al. Impacts of kaolinite enrichment on biochar and hydrochar characterization, stability, toxicity, and maize germination and growth. *Scientific Reports*. 2024;14(1):1259.
  8. Chakraborty S, Aktay N, Alptekin FM, Celiktaş MS, Dunford NT. Effect of Process Parameters and Biomass Type on Properties of Carbon Produced by Pyrolysis. *Biomass*. 2025;5(3):52.
  9. Ain QT, Haq SH, Alshammari A, Al-Mutlaq MA, Anjum MN. The systemic effect of PEG-nGO-induced oxidative stress in vivo in a rodent model. *Beilstein journal of nanotechnology*. 2019;10(1):901-911.
  10. Girgis BS. X-ray diffraction patterns of activated carbons prepared. 2007;8(2):95-100.
  11. Wang R, Wang Y, Xu C, Sun J, Gao L. Facile one-step hydrazine-assisted solvothermal synthesis of nitrogen-doped reduced graphene oxide: reduction effect and mechanisms. *RSC advances*. 2013;3(4):1194-1200.
  12. Su DS, Zhang J, Schlögl R. Turbostratic carbon: Structure and reactivity. *Carbon*. 2015;84:239-258.
  13. Siburian R, Sihotang H, Raja SL, Supeno M, Simanjuntak C. New route to synthesize of graphene nano sheets. *Oriental journal of chemistry*. 2018;34(1):182.
  14. Hải HVM, Quyên NĐV, Diễm BTH, Tín ĐX, Khiếu ĐQ, Cường NV. Tổng hợp vật liệu có cấu trúc xốp 3d  $\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> trên cơ sở khung hữu cơ kim loại. *Tạp chí Khoa học và công nghệ - Trường Đại học Khoa học, Đại học Huế*. 2022;02:4-5.
  15. Zainuri M. Hematite from Natural Iron Stones as Microwave Absorbing Material on X-Band Frequency Ranges. *IOP Conference Series: Materials Science and Engineering*. 2017;196(1):012008.
  16. Cornell RM, Schwertmann U. *The iron oxides: structure, properties, reactions, occurrences and uses*. New York: John Wiley & Sons; 2003.
  17. Serna CJ, RenDón JL. Infrared spectra of iron oxide hydroxides. *Journal of the Chemical Society, Faraday Transactions 1: Physical Chemistry in Condensed Phases*. 1983;79(4):1041-1049.
  18. Zaki MI, Knözinger H. Surface carbonate species on metal oxides: Infrared characterization. *Journal of the Chemical Society, Faraday Transactions 1: Physical Chemistry in Condensed Phases*. 1987;83(1):239246.
  19. Wang X, He X, Wang X. FTIR analysis of the functional group composition of coal tar residue extracts and extractive residues. *Applied Sciences*. 2023;13(8):5162.
  20. Silverstein RM, Webster FX, Kiemle DJ. *Spectrometric Identification of Organic Compounds*. 8 ed. Hoboken. New York: John Wiley & Sons; 2014.
  21. Pavia DL, Lampman GM, Kriz GS. *Introduction to Spectroscopy*. 5 ed. Boston: Cengage Learning; 2015.
  22. Coates J. *Interpretation of Infrared Spectra, A Practical Approach*. *Encyclopedia of Analytical Chemistry*. Chichester: John Wiley & Sons. 2000;12:10815-10837.