

PHÁT TRIỂN PHƯƠNG PHÁP XANH, BỀN VỮNG TỔNG HỢP VẬT LIỆU CARBON XỐP TỪ SINH KHỐI TRÊN NỀN GRAPHITIC CARBON NITRIDE ỨNG DỤNG LOẠI BỎ CHẤT Ô NHIỄM HỮU CƠ ĐỘC HẠI

HOANG MINH NAM¹, TRAN DANG KHOA¹, TRAN NGUYEN NGUYEN AN¹, DANG QUOC ANH¹,
BACH GIA THUAN¹, NGUYEN HOANG CHI BAO¹, NGUYEN PHUONG BAO HAN¹, LE NGUYEN BAO NGAN¹,
DOAN THI YEN OANH², NGUYEN NGOC NGHIA¹, NGUYEN DUC CHUNG³, MAI THANH PHONG¹, NGUYEN HUU HIEU^{1,*}

1. Trường Đại học Bách khoa - ĐHQG-HCM

2. Viện Hàn Lâm Khoa học và Công nghệ Việt Nam

3. Trường Đại học Nông lâm, Đại học Huế

*Email: nhhieubk@hcmut.edu.vn

SUMMARY:

DEVELOPMENT OF A GREEN AND SUSTAINABLE METHOD FOR SYNTHESIZING BIOMASS-DERIVED POROUS CARBON DECORATED ON GRAPHITIC CARBON NITRIDE TO REMOVAL OF TOXIC ORGANIC POLLUTANTS

Environmental pollution caused by toxic organic pollutants has become a serious concern for water quality and human health. Vietnam possesses abundant biomass resources, which can be utilized as sustainable and low-cost precursors for advanced carbon-based materials. In this study, biomass-derived porous carbon decorated on graphitic carbon nitride (PC@CN) was successfully synthesized through a green and sustainable approach. The structural, morphological, surface, and optical properties of the prepared materials were analyzed using various characterization techniques. The obtained PC@CN composite exhibited effective photocatalytic degradation toward methylene blue and tetracycline under light irradiation. In addition, radical trapping experiments were conducted to identify the main reactive species involved in the degradation process. These results suggest that PC@CN is a promising and eco-friendly photocatalyst for removing toxic organic pollutants from wastewater.

Keywords: Graphitic carbon nitride, biomass, porous carbon, photodegradation.

I. MỞ ĐẦU

Ô nhiễm môi trường nước do các chất hữu cơ độc hại đang trở thành một vấn đề nghiêm trọng, đặc biệt là sự hiện diện của phẩm nhuộm tổng hợp và kháng sinh trong nước thải[1]. Các hợp chất này thường có cấu trúc bền, khó phân hủy sinh học và có thể gây ảnh hưởng tiêu cực đến hệ sinh thái thủy sinh cũng như sức khỏe con người[2]. Do đó, việc phát triển các vật liệu xử lý ô nhiễm hiệu quả, chi phí thấp và thân thiện với môi trường đang thu hút nhiều sự quan tâm nghiên cứu. Graphitic carbon nitride (CN) là một vật liệu quang xúc tác không kim loại có nhiều

ưu điểm như độ bền hóa học cao, cấu trúc vùng năng lượng phù hợp và khả năng hoạt động dưới chiếu sáng[3]. Tuy nhiên, CN nguyên chất vẫn còn một số hạn chế như diện tích bề mặt thấp, số lượng tâm hoạt tính hạn chế và sự tái tổ hợp nhanh của cặp electron-lỗ trống quang sinh, làm giảm hiệu quả quang phân hủy các chất ô nhiễm hữu cơ[4-6]. Việc kết hợp CN với carbon xốp được xem là một hướng tiếp cận hiệu quả nhằm cải thiện khả năng hấp phụ, tăng cường hấp thụ ánh sáng và thúc đẩy quá trình phân tách điện tích. Trong đó, carbon xốp có nguồn gốc sinh

khối nhận được nhiều sự quan tâm nhờ nguồn nguyên liệu phong phú, chi phí thấp và phù hợp với định hướng phát triển vật liệu bền vững. Nhiều loại phụ phẩm và sinh khối thực vật đã được chuyển hóa thành vật liệu carbon cho các ứng dụng hấp phụ, lưu trữ năng lượng và xử lý môi trường.

Việt Nam có nguồn sinh khối tự nhiên phong phú, trong đó hoa súng là một nguồn nguyên liệu thực vật dễ tìm, có khả năng tận dụng để chuyển hóa thành vật liệu carbon xốp có giá trị [7], [8]. Việc sử dụng hoa súng làm tiền chất không chỉ góp phần khai thác hiệu quả nguồn sinh khối sẵn có mà còn phù hợp với định hướng phát triển vật liệu xanh, bền vững và thân thiện với môi trường. Tuy nhiên, việc sử dụng hoa súng (*Nymphaea rubra*), một nguồn sinh khối phổ biến tại Việt Nam để chế tạo carbon xốp và kết hợp với CN trong hệ quang xúc tác vẫn còn ít được đề cập. Bên cạnh đó, khi hàm lượng carbon tăng, hiệu quả loại bỏ chất ô nhiễm có thể chịu ảnh hưởng đồng thời của quá

trình hấp phụ và quang phân hủy, do đó cần được xem xét để đánh giá phù hợp hoạt tính của vật liệu. Trong nghiên cứu này, vật liệu carbon xốp có nguồn gốc từ hoa súng được tổng hợp và biến tính trên graphitic carbon nitride để tạo thành composite

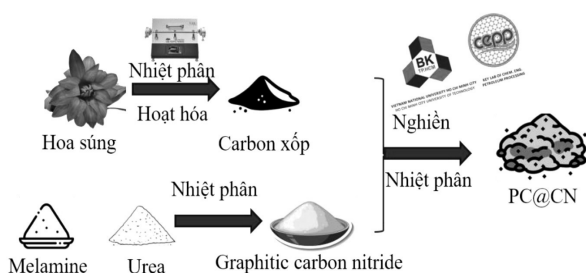
PC@CN bằng phương pháp xanh và bền vững. Các đặc trưng cấu trúc, hình thái, bề mặt và tính chất quang của vật liệu được phân tích bằng các phương pháp phù hợp. Hoạt tính quang xúc tác của PC@CN được đánh giá thông qua quá trình phân hủy methylene blue (MB) và tetracycline (TC) dưới điều kiện chiếu sáng. Bên cạnh đó, các thí nghiệm bắt gốc tự do cũng được thực hiện nhằm xác định các tác nhân hoạt tính chính tham gia vào cơ chế phân hủy. Kết quả nghiên cứu hướng đến việc phát triển vật liệu quang xúc tác thân thiện với môi trường từ nguồn sinh khối hoa súng cho xử lý các chất ô nhiễm hữu cơ trong nước.

II. THỰC NGHIỆM

2.1. Nguyên liệu và hóa chất

Các hóa chất trong nghiên cứu này đều là hóa chất có độ tinh khiết thuộc hàng phân tích mua của hãng Xilong. Hoa súng được thu thập tại phường Sa Đéc, tỉnh Đồng Tháp. Nước cất hai lần được sử dụng trong suốt thí nghiệm.

2.2. Tổng hợp vật liệu



Hình 1. Quy trình tổng hợp vật liệu PC@CN

Quy trình tổng hợp vật liệu được trình bày ở Hình 1. Hoa súng (*Nymphaea rubra*) được rửa sạch bằng nước cất, sấy khô, cắt nhỏ và nhiệt phân ở 800°C trong 1 giờ dưới khí N_2 với tốc độ gia nhiệt 5°C/phút. Sản phẩm thu được được ngâm trong dung dịch $ZnCl_2$ 1g/l trong 24 giờ, sau đó tiếp tục nhiệt phân ở cùng điều kiện và nghiền mịn để thu carbon xốp (PC). CN được tổng hợp từ hỗn hợp melamine/urea với tỷ lệ 1:1 bằng phương pháp nhiệt phân

ở 550°C trong 2 giờ [9, 10]. Cuối cùng, PC và CN được nghiền trộn, sau đó nhiệt phân ở 550°C trong 2 giờ để thu vật liệu xPC@CN, trong đó x là hàm lượng PC tương ứng 1, 2 và 3%.

2.3. Phân tích đặc trưng

Đặc trưng của vật liệu được phân tích bằng các phép phân tích hiện đại bao gồm: FTIR (Alpha-E, Bruker Optik GmbH, Ettlingen, Đức), XRD (D2 Phaser, Bruker, Germany), FE-SEM (Hitachi S4800, USA) và SEM (Jeol-JMS 6490, Japan).

2.4. Khảo sát khả năng quang xúc tác

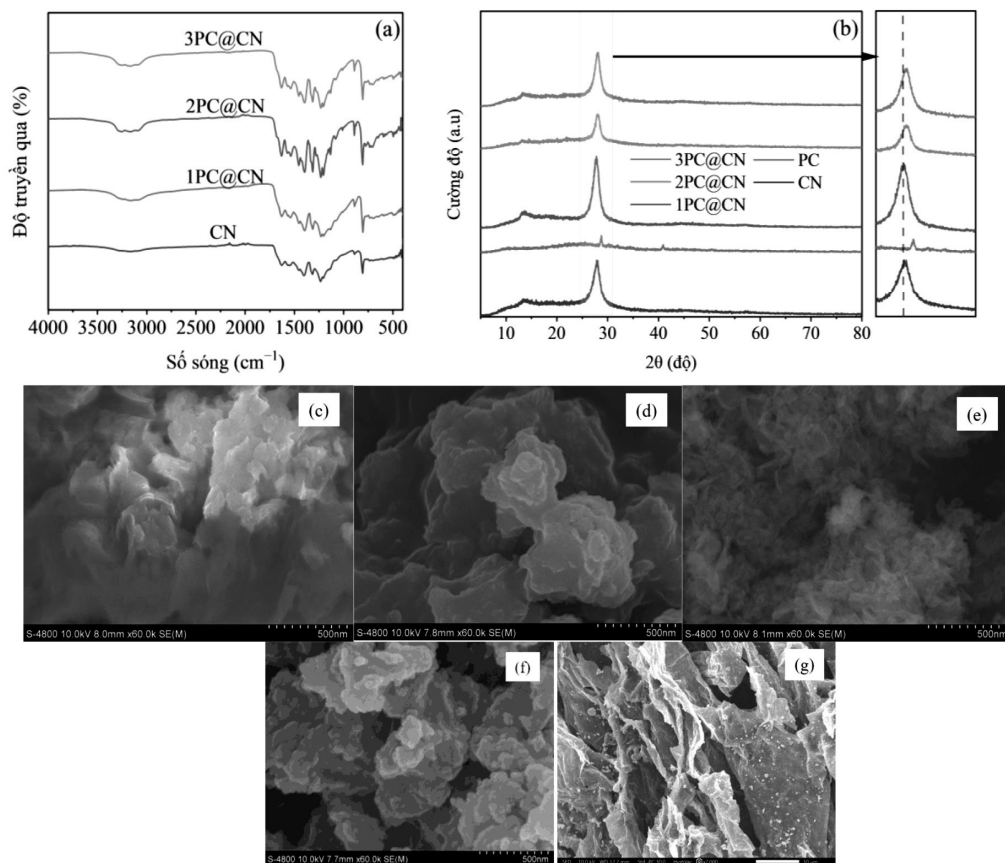
Hoạt tính quang xúc tác của các vật liệu được đánh giá thông qua quá trình phân hủy MB và TC dưới chiếu sáng đèn LED 50W ($\lambda > 395nm$). Trong mỗi thí nghiệm, 20mg vật liệu được phân tán vào 50ml dung dịch MB hoặc TC 10ppm, sau đó khuấy trong tối 30 phút để đạt cân bằng hấp phụ–giải hấp trước khi chiếu sáng. Trong quá trình phản ứng, 3 mL dung dịch được lấy theo từng khoảng thời gian, lọc bỏ xúc tác và đo độ hấp thụ bằng UV–Vis tại bước sóng đặc trưng của MB và TC. Ngoài ra, ảnh hưởng của pH đến khả năng quang phân hủy chất ô nhiễm cũng được khảo sát sử dụng NaOH và HCl 0.01M được điều chỉnh bằng bút đo pH HANNA HI98103.

III. KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN

3.1. Đặc trưng của vật liệu

Phổ FTIR (Hình 2a) của các mẫu xPC@CN cho thấy sự xuất hiện đầy đủ các dao động đặc trưng của CN, bao gồm vùng dao động C–N/C=N của khung heptazine và đỉnh đặc trưng của vòng tri-s-triazine, chứng tỏ cấu trúc nền CN vẫn được duy trì sau khi kết hợp với PC. Giản đồ XRD (Hình

2b) ghi nhận đỉnh nhiễu xạ đặc trưng của mặt mạng (002) của CN tại vùng $27\text{--}28^\circ$, tuy nhiên đỉnh này có sự dịch chuyển nhẹ ở các mẫu xPC@CN. Sự thay đổi này cho thấy PC đã tương tác với cấu trúc lớp của CN, làm ảnh hưởng đến khoảng cách lớp và mức độ xếp chồng $\pi\text{--}\pi$, qua đó xác nhận sự hình thành thành công composite xPC@CN.



Hình 2. (a) Phổ FTIR, (b) giản đồ XRD; ảnh FE-SEM của (c) CN, (d) 1PC@CN, (e) 2PC@CN, (f) 3PC@CN; và (g) ảnh SEM của PC

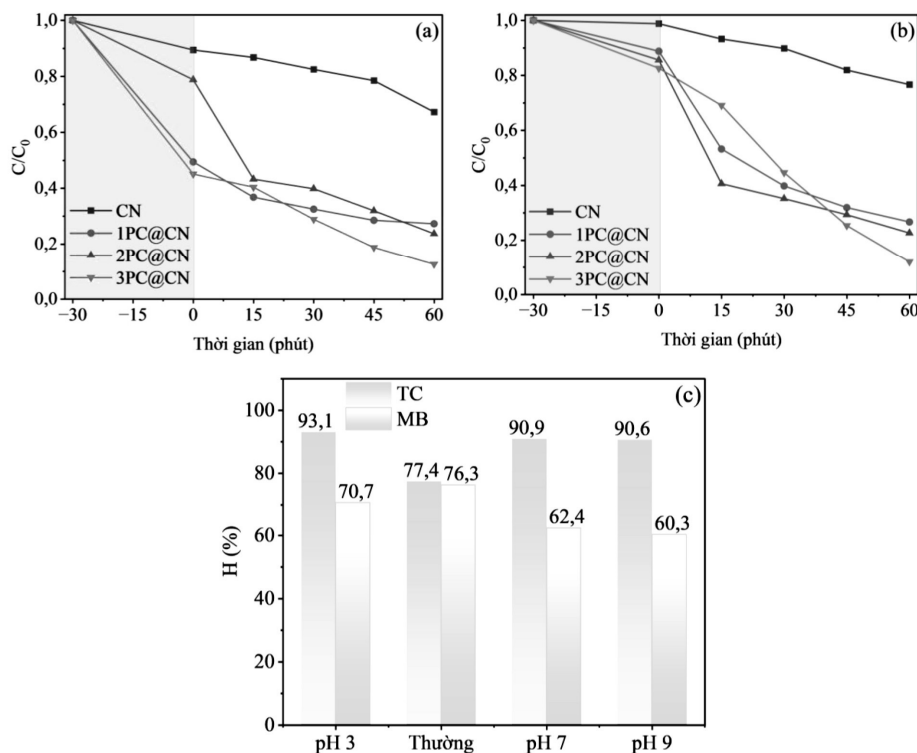
Như trình bày trong Hình 2c, ảnh FE-SEM cho thấy CN có dạng các lớp mỏng xếp chồng và kết tụ với nhau, làm hạn chế diện tích bề mặt tiếp xúc. Trong khi đó, PC thể hiện cấu trúc xốp, gồ ghề và không đồng nhất (Hình 2g). Sau khi kết hợp PC với CN, cấu trúc xếp chồng của CN được giảm đáng kể, các lớp CN được tách rời tốt hơn và bề mặt vật liệu trở nên xốp hơn (Hình 2d-f). Sự cải thiện hình thái này có thể tạo thêm các vị trí hoạt tính, tăng khả năng hấp phụ chất ô nhiễm và hỗ trợ quá trình quang xúc tác.

Hình 3a và b trình bày khả năng quang phân hủy MB và TC của các vật liệu. Sau 60 phút chiếu sáng, CN đạt hiệu suất phân hủy MB và TC lần lượt là 32,75 và 23,33%. Khi kết hợp với PC, hiệu suất phân hủy MB của 1PC@

CN, 2PC@CN và 3PC@CN đạt 72,75; 76,33 và 87,50%, tương ứng, trong khi hiệu suất phân hủy TC lần lượt đạt 73,33; 77,37 và 88,08%. Sự cải thiện này có thể liên quan đến cấu trúc xốp và bề mặt gồ ghề của PC, giúp tăng khả năng tiếp xúc và làm giàu các phân tử chất ô nhiễm gần bề mặt quang xúc tác. Đồng thời, sự phân bố của PC trong cấu trúc CN góp phần hạn chế sự xếp chồng của các lớp CN và tạo thêm các vùng tiếp xúc giữa hai thành phần. Mạng carbon liên hợp của PC cũng có thể đóng vai trò tiếp nhận và vận chuyển electron quang sinh, từ đó hạn chế sự tái tổ hợp electron-lỗ trống và tăng khả năng tham gia phản ứng của các hạt tải điện.

Mặc dù 3PC@CN cho hiệu suất loại bỏ tổng cao nhất, mẫu này đã làm giảm nồng độ MB và TC trong giai đoạn hấp phụ tối thiểu lần lượt là 54,94 và 17,37%, cho thấy sự đóng góp đáng kể của quá trình hấp phụ ban đầu, đặc biệt đối với MB. Do đó, hiệu suất ghi nhận của 3PC@CN không hoàn toàn phản ánh riêng quá trình quang phân hủy mà là kết quả đồng thời của hấp phụ và quang xúc tác. Trong khi

đó, 2PC@CN vẫn duy trì hiệu suất xử lý tương đối cao đối với cả MB và TC với hàm lượng PC thấp hơn và mức độ phụ thuộc vào hấp phụ ban đầu thấp hơn. Vì vậy, 2PC@CN được lựa chọn là mẫu có thành phần phù hợp hơn khi xét đến sự cân bằng giữa hàm lượng PC, khả năng hấp phụ và hiệu quả quang phân hủy.



Hình 3. Hiệu suất phân hủy (a) MB và (b) TC của vật liệu; (c) ảnh hưởng của pH đến hiệu suất quang phân hủy MB của vật liệu

Hình 3c cho thấy pH có ảnh hưởng rõ đến hiệu suất phân hủy MB và TC. Đối với TC, hiệu suất phân hủy tại pH 3, điều kiện thường (không hiệu chỉnh), pH 7 và pH 9 lần lượt đạt 93,1; 77,4; 90,9 và 90,6%. Trong khi đó, hiệu suất phân hủy MB tương ứng đạt 70,7; 76,3; 62,4 và 60,3%. Kết quả cho thấy TC duy trì hiệu suất phân hủy cao trong cả môi trường acid, trung tính và kiềm nhẹ, trong khi MB đạt hiệu suất cao nhất ở điều kiện thường và giảm khi điều chỉnh pH. Sự khác biệt này có thể liên quan đến trạng thái ion hóa của chất ô nhiễm, điện tích bề mặt vật liệu và sự hình thành các tác nhân oxy hóa trong từng môi trường pH.

IV. KẾT LUẬN

Trong nghiên cứu này, đã tổng hợp thành công vật liệu PC@CN từ carbon xốp có nguồn gốc hoa súng và

graphitic carbon nitride. Kết quả FTIR, XRD, FE-SEM và SEM xác nhận sự hình thành composite, trong đó PC ảnh hưởng đến cấu trúc xếp lớp của CN, hỗ trợ tách lớp và cải thiện hình thái bề mặt. Các mẫu xPC@CN cho hiệu suất phân hủy MB và TC cao hơn CN tinh khiết, sau 60 phút chiếu sáng, 2PC@CN đạt 76,33% đối với MB và 77,37% đối với TC, trong khi 3PC@CN đạt hiệu suất tổng cao hơn nhưng có lượng hấp phụ ban đầu cao. Kết quả khảo sát pH cho thấy môi trường phản ứng ảnh hưởng đến hiệu quả quang phân hủy của vật liệu. Nhìn chung, PC@CN là vật liệu quang xúc tác có tiềm năng ứng dụng trong xử lý các chất ô nhiễm hữu cơ trong nước. Các nghiên cứu trong tương lai cần tập trung làm rõ cơ chế phản ứng, đánh giá độ bền tái sử dụng và mở rộng khảo sát trên các chất ô nhiễm khác cũng như mẫu nước thực tế.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

- [1]. Q. D. Ho, V. D. Lai, Q. A. Nguyen, D. N. Vu, T. K. L. Dang, and D. D. La, “Green synthesis of g-C₃N₄/CeO₂ nanocomposites for enhanced photocatalytic degradation of organic dye under simulated sunlight”, *Diam. Relat. Mater.*, vol. 157, p. 112484, 2025, doi: <https://doi.org/10.1016/j.diamond.2025.112484>.
- [2]. M. raj S. Nivetha et al., “Construction of SnO₂/g-C₃N₄ an effective nanocomposite for photocatalytic degradation of amoxicillin and pharmaceutical effluent”, *Environ. Res.*, vol. 209, p. 112809, 2022, doi: <https://doi.org/10.1016/j.envres.2022.112809>.
- [3]. S. Liu, T. Ye, Y. Liu, H. Cheng, and X. Liu, “Graphitic-carbon nitride nanosheets as a new inorganic filler for improving energy storage density of PVDF-based dielectric composites”, *J. Mater. Sci. Mater. Electron.*, vol. 31, no. 16, pp. 13063–13069, 2020, doi: [10.1007/s10854-020-03856-z](https://doi.org/10.1007/s10854-020-03856-z).
- [4]. S. Cao, N. Zhou, F. Gao, H. Chen, and F. Jiang, “All-solid-state Z-scheme 3,4-dihydroxybenzaldehyde-functionalized Ga₂O₃/graphitic carbon nitride photocatalyst with aromatic rings as electron mediators for visible-light photocatalytic nitrogen fixation”, *Appl. Catal. B Environ.*, vol. 218, pp. 600–610, 2017, doi: <https://doi.org/10.1016/j.apcatb.2017.07.013>.
- [5]. F. Zhang et al., “Single tungsten atom steered band-gap engineering for graphitic carbon nitride ultrathin nanosheets boosts visible-light photocatalytic H₂ evolution”, *Chem. Eng. J.*, vol. 424, p. 130004, 2021, doi: <https://doi.org/10.1016/j.cej.2021.130004>.
- [6]. C. V. Reddy, K. R. Reddy, R. R. Zairov, B. Cheolho, J. Shim, and T. M. Aminabhavi, “g-C₃N₄ nanosheets functionalized yttrium-doped ZrO₂ nanoparticles for efficient photocatalytic Cr(VI) reduction and energy storage applications”, *J. Environ. Manage.*, vol. 315, p. 115120, 2022, doi: <https://doi.org/10.1016/j.jenvman.2022.115120>.
- [7]. P. M. Tu et al., “Nipa palm shell-derived magnetic carbon aerogel for absorbents and storage energy”, *J. Non. Cryst. Solids*, vol. 615, p. 122424, 2023, doi: <https://doi.org/10.1016/j.jnoncrysol.2023.122424>.
- [8]. D. T. Phong et al., “Facile synthesis of corn stalks-derived carbon aerogels: Characterization, adsorption of ciprofloxacin and energy storage applications”, *Surfaces and Interfaces*, vol. 39, p. 102991, Jul. 2023, doi: [10.1016/J.SURFIN.2023.102991](https://doi.org/10.1016/J.SURFIN.2023.102991).
- [9]. T. Dang Khoa et al., “Synthesis of tin selenide nanoparticles using Polygonum avicular extract decorated on graphitic carbon nitride for enhancing photodegradation of amoxicillin trihydrate and photoproduction of hydrogen peroxide”, *Mater. Chem. Phys.*, vol. 329, p. 130032, 2025, doi: <https://doi.org/10.1016/j.matchemphys.2024.130032>.
- [10]. T. D. Khoa et al., “Green synthesis of gold quantum dots using Eryngium foetidum leaf extract decorated on selenium/graphitic carbon nitride composite for photoproduction of hydrogen peroxide: Characterization, toxicity evaluation, DFT studies, and mechanism”, *Sci. Total Environ.*, vol. 1002, p. 180574, 2025, doi: <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2025.180574>. ❖

Nghiên cứu được tài trợ bởi Đại học Quốc gia Thành phố Hồ Chí Minh (ĐHQG-HCM) trong khuôn khổ Chương trình mã số NCM2025-20-01.