



ĐÁNH GIÁ KHẢ NĂNG XỬ LÝ CHẤT KHÁNG SINH TETRACYCLINE TRONG NƯỚC BẰNG THAN HOẠT TÍNH ĐIỀU CHẾ TỪ BÃ CÀ PHÊ

PHẠM TRUNG THẾ¹, HUỖNH THỊ NGỌC HÂN², VŨ NGỌC TOÁN³,
NGUYỄN HUỖNH MINH DUY⁴, HỒ THỊ THANH VÂN¹

¹ Viện Khoa học liên ngành, Trường Đại học Nguyễn Tất Thành

² Khoa Môi trường, Trường Đại học Tài nguyên và Môi trường TP.HCM

³ Viện Công nghệ mới, Hà Nội

⁴ Viện Nghiên cứu ứng dụng và Chuyển giao Công nghệ xanh

Tóm tắt

Tetracycline (TC) là một loại kháng sinh phổ rộng thường được sử dụng trong nuôi trồng thủy sản và chăn nuôi. Sau khi xâm nhập vào các nguồn nước, nó sẽ gây ra mối đe dọa lớn đối với môi trường và sức khỏe con người. Nghiên cứu này trình bày phương pháp điều chế than hoạt tính (AC) từ bã cà phê bằng phương pháp carbon hóa thủy nhiệt (HTC) và đánh giá khả năng hấp phụ kháng sinh TC. Kết quả phân tích đặc tính vật liệu cho thấy quá trình hoạt hóa với KOH đã cải thiện đáng kể cấu trúc của than. Cụ thể, diện tích bề mặt riêng của vật liệu đã tăng từ 23.06 m²/g (đối với HC) lên 976.34 m²/g (đối với AC). Các thí nghiệm hấp phụ theo mẻ đã chứng minh hiệu quả loại bỏ TC của AC. Quá trình hấp phụ đạt hiệu quả cao nhất trong môi trường axit với pH tối ưu là 3, hiệu suất loại bỏ TC đạt gần 92% với liều lượng AC 1.5 g/L. Nghiên cứu đã chứng tỏ, bã cà phê là một nguyên liệu tiên năng, chi phí thấp để sản xuất than hoạt tính hiệu suất cao, mang lại một giải pháp bền vững cho vấn đề xử lý ô nhiễm kháng sinh trong môi trường nước.

Từ khóa: Bã cà phê, carbon hóa thủy nhiệt, tetracycline, than hoạt tính.

Ngày nhận bài: 5/8/2025; *Ngày sửa chữa:* 22/8/2025; *Ngày duyệt đăng:* 5/9/2025.

Evaluation of Tetracycline removal from water using activated carbon synthesized from waste coffee sludge

Abstract

Tetracycline (TC), a broad-spectrum antibiotic, is commonly used in aquaculture and livestock farming. After entering water sources, it poses a significant threat to the environment and human health. This study presents a method for preparing activated carbon (AC) from waste coffee sludge using hydrothermal carbonization (HTC) and evaluates its capacity for TC antibiotic adsorption. The material characterization results indicated that the activation process with KOH significantly improved the carbon structure. Specifically, the specific surface area of the material increased from 23.06 m²/g (for hydrochar, HC) to 976.34 m²/g (for activated carbon, AC). Batch adsorption experiments demonstrated the high efficiency of AC in removing TC. The adsorption process was most effective in an acidic environment with an optimal pH of 3, achieving a TC removal efficiency of nearly 92% with an AC dosage of 1.5 g/L. This research demonstrates that waste coffee sludge is a promising, low-cost raw material for producing high-performance activated carbon, offering a sustainable solution for treating antibiotic pollution in the aquatic environment.

Keywords: Waste coffee sludge, hydrothermal carbonization, tetracycline, activated carbon.

JEL Classifications: Q51, Q53, Q55.

1. GIỚI THIỆU

Tetracycline (TC) là một loại kháng sinh phổ rộng đã được sử dụng rộng rãi trong y học lâm sàng và chăn nuôi, và TC thường được thải ra môi trường thông qua nước thải y tế và nước thải sinh hoạt [1]. Do khả năng phân hủy sinh học kém của TC nên nó có thể tích tụ trong môi trường trong thời gian dài [2]. Nhiều nghiên cứu đã chỉ ra rằng, sau khi xâm nhập vào môi trường nước [3], TC có thể gây ra việc sản xuất các gen kháng kháng sinh, tăng cường khả năng kháng thuốc của vi khuẩn và gây độc tính sinh thái. Điều này sẽ gây nguy

hiểm cho sức khỏe con người và sự ổn định của hệ sinh thái [4]. Do đó, cần có một kỹ thuật hiệu quả để phân hủy TC trong các nguồn nước.

Mặc dù TC được tìm thấy trong nước thải chỉ với 1 ng/L, nhưng sự hiện diện của nó trong nước thải là rất nghiêm trọng đối với các sinh vật sống. Vì lý do này, các nhà nghiên cứu đã sử dụng nhiều kỹ thuật xử lý nước thải khác nhau như phân hủy sinh học [5], công nghệ hấp phụ [6], oxy hóa hóa học, và phân hủy quang xúc tác và phân hủy quang điện xúc tác [7] để xử lý nước thải chứa TC. Công nghệ hấp phụ là một trong

những kỹ thuật được ưa chuộng nhất do tính hiệu quả về chi phí, dễ sử dụng và khả năng hấp phụ cao [8]. Mặt khác, các công nghệ xử lý nước thải thông thường dựa trên bùn hoạt tính gặp nhiều vấn đề vì chúng thể hiện khả năng kháng vi khuẩn. Các công nghệ hấp phụ có khả năng hấp phụ hiệu quả và hiệu suất cao đang được sử dụng. Có nhiều loại chất hấp phụ trong công nghệ hấp phụ như zeolit, graphene, than hoạt tính [9], than hoạt tính từ tính [10], chất hấp phụ tổng hợp [11].

Than hoạt tính là một giải pháp tiềm năng để xử lý nước thải kháng sinh và loại bỏ các chất ô nhiễm. Tuy nhiên, chi phí của than hoạt tính thương mại cũng cao. Vì lý do này, trong những năm gần đây, các nghiên cứu được thực hiện trong phạm vi quản lý chất thải và tính bền vững, đặc biệt là than sinh học được sản xuất từ nguồn lignocellulose, đã thu hút được sự quan tâm lớn. Than sinh học thu được là kết quả của quá trình phân hủy nhiệt hóa học các vật liệu chứa nhóm chức oxy hóa và nhóm thơm bằng phương pháp nhiệt phân ở nhiệt độ cao (300–900°C), khi có rất ít oxy hoặc không có oxy và có sự hiện diện của các khí trơ như khí nitơ [12]. Trong một số tài liệu, than sinh học được tổng hợp từ rơm rạ [13], bã mía [14], vỏ bưởi [15], bã trà [16] và bã nho [17] đã được thực hiện trong việc nghiên cứu loại bỏ TC.

Có thể thấy, nhiệt phân là phương pháp phổ biến trong sản xuất than sinh học nhờ khả năng chuyển hóa sinh khối thành carbon có diện tích bề mặt cao. Phương pháp này có ưu điểm là quy trình đơn giản, hiệu suất chuyển hóa carbon cao và có thể áp dụng cho nhiều loại nguyên liệu sinh khối khác nhau. Tuy nhiên, phương pháp nhiệt phân đòi hỏi sử dụng nhiều năng lượng do nhiệt độ nhiệt phân khá cao [18]. So với phương pháp nhiệt phân, phương pháp carbon hóa thủy nhiệt (HTC) có ưu điểm lớn về hiệu suất năng lượng và chi phí sản xuất thấp hơn. Bên cạnh đó, quá trình HTC cũng loại bỏ được giai đoạn sấy khô, vì vậy chi phí cũng được giảm đáng kể [18]. Mặt khác, quá trình hoạt hóa sẽ giúp làm tăng diện tích bề mặt và thể tích lỗ xốp của vật liệu carbon. Hoạt hóa hóa học mang lại nhiều ưu điểm, bao gồm yêu cầu nhiệt độ thấp hơn, tạo ra diện tích bề mặt cao hơn và khả năng chuyển hóa nhanh chỉ trong một bước [19]. KOH được xem là một tác nhân hóa học hiệu quả để cải thiện cấu trúc mao quản của than hoạt tính. KOH có khả

năng ức chế sự hình thành nhựa than, giảm nhiệt độ phản ứng hoạt hóa, thúc đẩy tốc độ phân hủy các thành phần phi carbon, đồng thời cải thiện quá trình nhiệt phân. Các nghiên cứu cũng chỉ ra rằng than hoạt tính được hoạt hóa bằng KOH có tỷ lệ các lỗ xốp vi mô cao hơn đáng kể so với than được hoạt hóa bằng $ZnCl_2$ hoặc H_3PO_4 . [20]

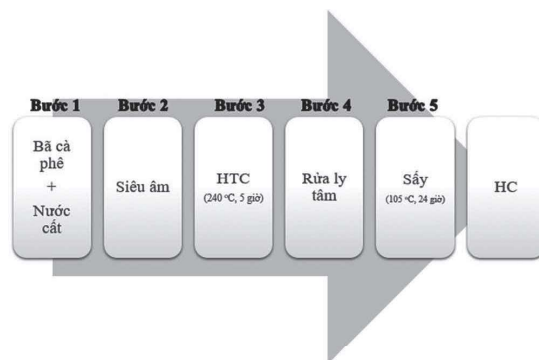
Trong nghiên cứu này, nhóm tác giả đề xuất phương pháp tổng hợp than hoạt tính (AC) có diện tích bề mặt cao bằng cách hoạt hóa hydrochar (HC) được tạo ra thông qua quá trình carbon hóa thủy nhiệt ở nhiệt độ thấp từ nguồn phụ phẩm nông nghiệp bã cà phê và ứng dụng nó trong việc xử lý kháng sinh TC trong nước. Đây là hướng nghiên cứu mới, sử dụng phương pháp carbon hóa thủy nhiệt ở nhiệt độ thấp cho ra sản phẩm than hoạt tính có diện tích bề mặt cao trong khi các nghiên cứu trước đó thường sử dụng phương pháp nhiệt phân ở nhiệt độ rất cao sẽ tốn nhiều năng lượng.

Mặt khác, việc sử dụng nguyên liệu là bã cà phê, một phụ phẩm nông nghiệp dồi dào và chưa được khai thác triệt để tại Việt Nam là hướng tiếp cận mang tính thực tiễn hiệu quả và khoa học cao đã giúp nâng cao giá trị của các phụ phẩm nông nghiệp và hướng đến mô hình kinh tế tuần hoàn tái chế các chất thải, phụ phẩm thành các sản phẩm có giá trị kinh tế, thân thiện môi trường đóng góp quan trọng trong xu thế phát triển vật liệu bền vững hiện nay. Nghiên cứu này không chỉ cung cấp một giải pháp hiệu quả cho việc chuyển đổi bã cà phê thành vật liệu carbon có giá trị cao, mà còn chứng minh tiềm năng của than hoạt tính từ HC được điều chế từ bã cà phê trong việc xử lý ô nhiễm kháng sinh, góp phần vào các giải pháp môi trường bền vững.

2. VẬT LIỆU VÀ PHƯƠNG PHÁP NGHIÊN CỨU

2.1. Vật liệu

Bã cà phê được sử dụng trong nghiên cứu được thu thập ở Thành phố Hồ Chí Minh. Chất kháng sinh Tetracycline Hydrochloride $C_{22}H_{24}N_2O_8 \cdot HCl$, chai 25 gram, số Cas: 64-75-5 của hãng Duchefa Hà Lan. Potassium hydroxide (KOH, 85%) được dùng làm tác nhân hoạt hóa, Hydrochloric acid (HCl, 36–38%), Acetone (độ tinh khiết 99.0%) được mua từ Trung Quốc. Nước cất 2 lần, khí N_2 (độ tinh khiết 99.99%) được mua tại Việt Nam. Tất cả các hóa chất được sử dụng được sử dụng một cách trực tiếp mà không cần tinh chế lại.



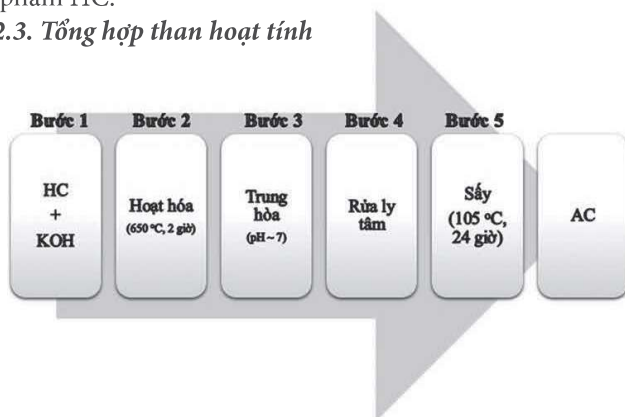
Hình 1. Quy trình tổng hợp HC từ bã cà phê



2.2. Điều chế Hydrochar

Bã cà phê sau khi thu gom sẽ được rửa bằng nước cất và acetone để loại bỏ các tạp chất và được sấy khô ở 80°C trong 24 giờ để loại bỏ độ ẩm. Sau đó bã cà phê sẽ được sàng qua sàng 2x2 mm để đồng nhất kích thước. Hydrochar (HC) được tổng hợp thông qua quá trình HTC bã cà phê. Quy trình chi tiết tổng hợp HC được trình bày trong Hình 1. Cụ thể, một lượng bã cà phê được cân và cho vào teflon 100 mL. Sau đó, thêm vào một lượng nước cất để độ ẩm của hỗn hợp đạt 80%. Tiếp theo, hỗn hợp được khuấy trộn và siêu âm để đạt được trạng thái đồng nhất và tiến hành quá trình thủy nhiệt ở nhiệt độ khoảng 240°C trong các khoảng thời gian 5 giờ. Khi phản ứng kết thúc, autoclave vẫn được để trong lò nung và làm nguội tự nhiên đến khi đạt nhiệt độ phòng. Sau quá trình HTC, hỗn hợp được rửa bằng cách ly tâm với nước cất và acetone và sấy ở 105°C qua đêm thu được sản phẩm HC.

2.3. Tổng hợp than hoạt tính



Hình 2. Quy trình tổng hợp AC từ HC

Hình 2 mô tả quy trình tổng hợp than hoạt tính từ HC của bã cà phê. Đầu tiên, trộn HC với KOH theo tỉ lệ khối lượng HC:KOH nhất định vào một cốc phản ứng bằng gốm. Sau đó, cốc phản ứng được chuyển vào lò nung và được gia nhiệt đến khoảng nhiệt độ 650°C trong 2 giờ dưới môi trường khí trơ. Khi kết thúc phản ứng, mẫu vẫn được để trong lò nung và làm nguội tự nhiên cho đến khi đạt được nhiệt độ phòng. Sau khi lấy mẫu ra khỏi lò nung, AC được trung hòa về pH xấp xỉ 7 bằng dung dịch HCl. Sau đó, hỗn hợp trên được rửa sạch bằng cách ly tâm nhiều lần với nước cất và acetone. Sau quá trình ly tâm, AC được sấy khô ở 105°C trong vòng 24 giờ để loại bỏ độ ẩm và được bảo quản trong tủ hút ẩm.

2.4. Phân tích tính chất vật liệu

Diện tích bề mặt của AC được xác định từ đường đẳng nhiệt hấp phụ/giải hấp nitơ bằng phương pháp Brunauer-Emmett-Teller (BET). Thể tích lỗ xốp và đường kính lỗ xốp được tính toán từ đường đẳng nhiệt giải hấp bằng phương pháp Barrett-Joyner-Halenda (BJH).

Kính hiển vi điện tử quét (SEM, HITACHI S-4800, Japan) được sử dụng để kiểm tra hình thái và cấu trúc bề mặt của AC.

Phổ hồng ngoại biến đổi Fourier. Các nhóm chức năng bề mặt của bã cà phê và AC được nghiên cứu bằng máy quang phổ hồng

ngoại FTIR (FT-IR, PerkinElmer Frontier FT-IR/NIR, Hoa Kỳ) kết hợp với kỹ thuật phản xạ toàn phần suy giảm (ATR). Phổ FT-IR được ghi lại trong khoảng từ 4000 cm⁻¹ đến 500 cm⁻¹.

2.5. Thí nghiệm hấp phụ theo mẻ để loại bỏ Tetracycline

Các thí nghiệm hấp phụ theo mẻ được thực hiện để đánh giá khả năng xử lý TC của AC tổng hợp được. Nồng độ TC được nghiên cứu ở 10ppm; 15ppm; 20ppm; 25ppm; 30ppm; 35ppm; 40ppm; 45ppm; 50ppm. Phương pháp phân tích UV-Vis ở bước sóng 358.5 nm sẽ được sử dụng để xác định nồng độ TC ban đầu và còn lại trong dung dịch. Phương trình đường chuẩn nồng độ TC sẽ có dạng:

$$A = a.C + b$$

Trong đó, A là mật độ quang, C (mg/L) là nồng độ của TC.

Cho một lượng AC có liều lượng 0.5 g/L, 1.0 g/L và 1.5 g/L vào bình Erlenmeyer 250 ml chứa 200 ml dung dịch TC. Phản ứng được thực hiện ở nhiệt độ phòng với pH được điều chỉnh ở 3, 5, 7, 9, 11. Phản ứng diễn ra trên máy lắc ngang với tốc độ lắc 150 vòng/phút. Trong một khoảng thời gian nhất định, sẽ rút một lượng dung mẫu ra và lọc qua giấy lọc, xác định nồng độ TC trong dung dịch lọc bằng phương pháp phân tích UV-Vis ở bước sóng 358.5 nm.

Hiệu suất loại bỏ TC và dung lượng hấp phụ được xác định theo công thức:

Hiệu quả loại bỏ (%):

$$R = \frac{C_0 - C_e}{C_0} \times 100$$

Dung lượng hấp phụ (mg/g):

$$q_e = \frac{(C_0 - C_e).V}{m}$$

Trong đó, C₀ (mg/L) và C_e (mg/L) lần lượt là nồng độ TC ban đầu và nồng độ TC tại thời điểm cân bằng, V (L) là thể tích dung dịch, m (g) là khối lượng AC.

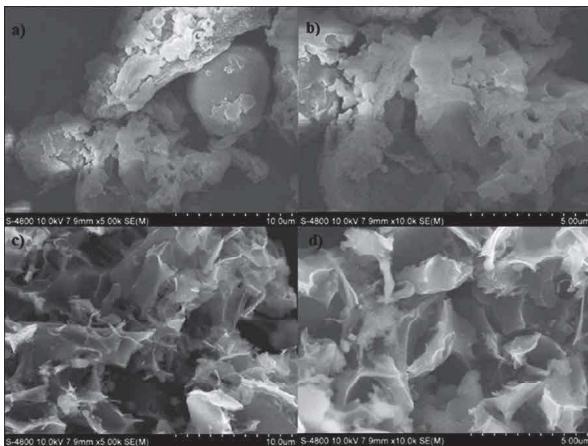
3. KẾT QUẢ VÀ BÀN LUẬN

3.1. Kết quả tính chất của HC và AC tổng hợp được

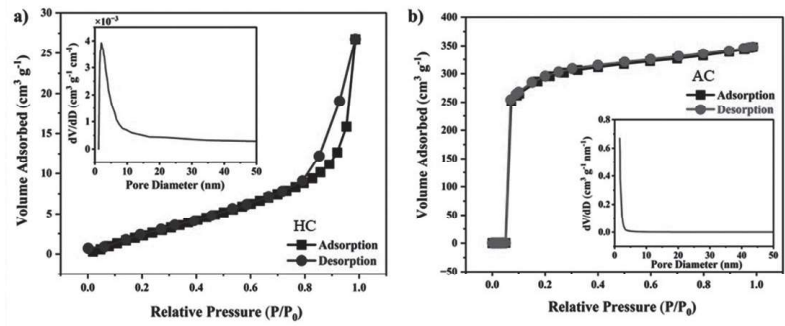
Diện tích bề mặt và kích thước lỗ rỗng của HC và AC được xác định bằng các thí nghiệm hấp phụ - giải hấp N₂ bằng phương pháp đo BET (Brunauer-Emmett-Teller) [21]. Hình 3 biểu thị đường đẳng nhiệt hấp phụ - giải hấp N₂ của HC và AC tổng hợp được.

Kết quả đẳng nhiệt hấp phụ/giải hấp N_2 của các mẫu HC và AC trong Hình 3 và Bảng 1 cho thấy, sự phát triển của diện tích bề mặt, đường kính và thể tích lỗ xốp của bã cà phê sau khi HTC và hoạt hóa. Thông qua phương trình BET, diện tích bề mặt của HC được xác định là 23.06 m^2/g và của AC là 976.34 m^2/g sau khi hoạt. Kết quả thu được có thể là do phản ứng mạnh giữa KOH và ma trận carbon. Điều này làm mở rộng các lỗ xốp vốn có của HC và phát triển hơn nữa hệ thống lỗ xốp. Do đó, kích thước và thể tích lỗ xốp tăng lần lượt từ 2.01 lên 2.19 nm và từ 0.047 lên 0.535 cm^3/g . Đường kính lỗ rỗng cho thấy vật liệu AC có dạng vi mô ($2\text{ nm} < D_{micropore} < 50\text{ nm}$). [22]

Tiếp đến, kết quả phân tích SEM trong Hình 4 góp phần đánh giá rõ hơn về hình thái bề mặt của HC và AC tổng hợp. Kết quả cho thấy những thay đổi mạnh về cấu trúc hình thái sau quá trình HTC và hoạt hóa hóa học. Sau quá trình HTC, bề mặt HC có khá đặc và ít lỗ xốp, bề mặt hơi gồ ghề và nhám (Hình 4a, b). Sự thay đổi này là do sự phân hủy các thành phần hữu cơ trong cấu trúc CS như cellulose, hemicellulose và lignin thông qua quá trình thủy nhiệt. Sau khi hoạt hóa bằng KOH, bề mặt AC (Hình 4c, d) phát triển cấu trúc xốp lớn hơn, điều này góp phần làm tăng diện tích bề mặt.



Hình 4. Ảnh SEM của HC (a, b) và AC (c, d)



Hình 3. Kết quả phân tích BET của HC (a) và AC (b)

Bảng 1. Các thông số của HC và AC từ dữ liệu phân tích BET

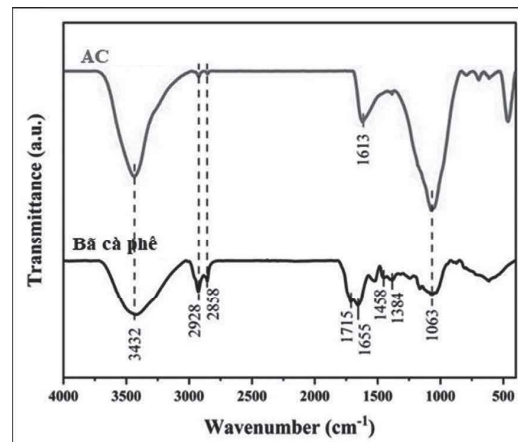
Tên mẫu	Diện tích bề mặt (m^2/g)	Kích thước lỗ xốp (nm)	Thể tích lỗ rỗng (m^3/g)
HC	23.06	2.01	0.047
AC	976.34	2.19	0.535

Dựa vào kết quả FT-IR của bã cà phê và AC trong Hình 5 ta có thể thấy, sự hiện diện trong phổ của bã cà phê giữa 3200 và 3600 cm^{-1} được cho là do dao động kéo giãn O-H trong các phân tử cellulose, hemicellulose và lignin [23]. Các dải sóng tại 2928 và 2858 cm^{-1} tương ứng với các dao động kéo giãn của nhóm CH_3 và CH_2 trong hydrocarbon bão hòa [24]. Đặc điểm của nhóm carbonyl trong phổ của bã cà phê được thấy ở 1715 cm^{-1} (O=C-O) và 1653 cm^{-1} (C=O), cho thấy sự hiện diện của lignin [25]. Các dải này gần như biến mất hoặc giảm trong phổ AC do quá trình HTC và hoạt hóa hóa học. Bên cạnh đó, các dao động kéo giãn của nhóm C=C trong vòng thơm được quan sát thấy ở 1613 cm^{-1} , đúng như dự kiến. Sự hấp thụ mạnh quan sát được trong vùng 1000-1200 cm^{-1} tương ứng với chế độ kéo dài C-O thơm của C-OH và nhóm carboxyl [26]. Những kết quả này chỉ ra rằng quá trình HTC và hoạt hóa dẫn đến sự giảm nồng độ các nhóm cacbon chứa oxy trên bề mặt AC.

3.2. Kết quả nghiên cứu xử lý Tetracycline của than hoạt tính từ bã cà phê

3.2.1. Ảnh hưởng của pH

Độ pH đã được nghiên cứu là có tác động đến các đặc tính bề mặt của vật liệu và quá trình hình thành các gốc tự do, do đó ảnh hưởng rất lớn đến



Hình 5. Phổ FT-IR của bã cà phê và AC



việc loại bỏ các chất ô nhiễm [27]. Giá trị pH được khảo sát trong nghiên cứu này là 3, 5, 7, 9, 11. Phản ứng diễn ra ở nhiệt độ phòng với nồng độ TC ban đầu là 30ppm, liều lượng AC thêm vào là 1.0 g/L và phản ứng hấp phụ được diễn ra trong 60 phút.

Kết quả từ Hình 6 cho thấy các giá trị pH khác nhau ảnh hưởng đáng kể đến hiệu suất hấp phụ TC của AC. Sự gia tăng pH được quan sát thấy trong quá trình nhiệt phân do sự hình thành cacbonat trong quá trình này, và người ta quan sát thấy rằng quá trình hấp phụ bắt đầu giảm khi pH tăng [28]. Từ kết quả cho thấy, hiệu quả xử lý TC của AC đạt hơn 85% ở pH 3 sau đó hiệu quả xử lý sẽ giảm dần khi tăng giá trị pH. Qua đó có thể thấy pH 3 được xem là giá trị tối ưu cho quá trình hấp phụ TC của AC.

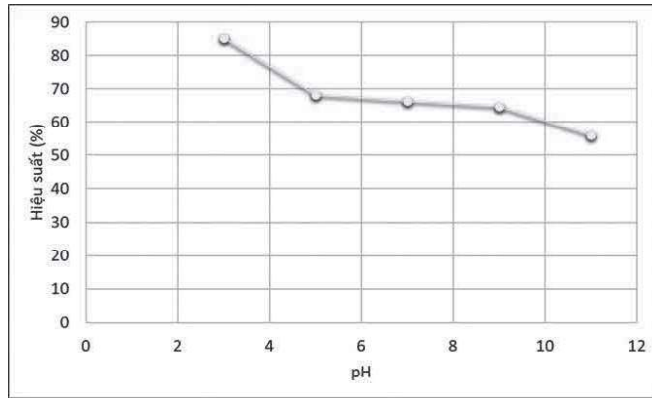
3.2.2. Ảnh hưởng của liều lượng AC

Liều lượng chất hấp phụ là một trong những thông số hiệu quả trong quá trình hấp phụ. Người ta nhận thấy rằng, khi tăng liều lượng chất hấp phụ thì tải ion của vật liệu sẽ tăng lên và tăng hiệu hấp phụ [29].

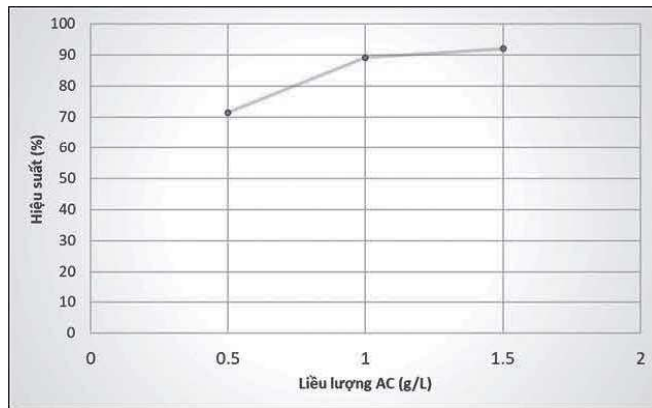
Ảnh hưởng của liều lượng chất hấp phụ được thể hiện trong Hình 7. Kết quả cho thấy tỷ lệ loại bỏ TC tăng khi tăng lượng chất hấp phụ. Khi liều lượng AC tăng từ 0.5 g/L lên 1.5 g/L, hiệu suất hấp phụ tăng từ 71.46% đến 92%. Điều đó có thể thấy ở liều lượng AC tối ưu là 1.5 g/L. Trong nhiều nghiên cứu, nồng độ chất hấp phụ là một trong những thông số hiệu quả trong quá trình hấp phụ. Ví dụ, Hasan và cộng sự đã báo cáo trong nghiên cứu của họ rằng bằng cách tăng lượng chất hấp phụ ở giá trị pH tối ưu cho thấy khả năng tải ion của vật liệu tăng lên do dòng khối và nồng độ dung dịch trong khối lượng và chất hấp phụ được hấp phụ tại giao diện có hiệu quả trong quá trình này [30]. Tuy nhiên, vì trong điều kiện thực hiện thí nghiệm theo mẻ với nồng độ TC ban đầu thấp nếu sử dụng liều lượng AC quá cao thì quá trình hấp phụ sẽ rất nhanh đạt đến trạng thái cân bằng, và khó xác định được động học hấp phụ. Qua đó, nhóm nghiên cứu sẽ chọn liều lượng AC 0.5 g/L cho các thí nghiệm tiếp theo.

3.2.3. Ảnh hưởng của nồng độ TC ban đầu

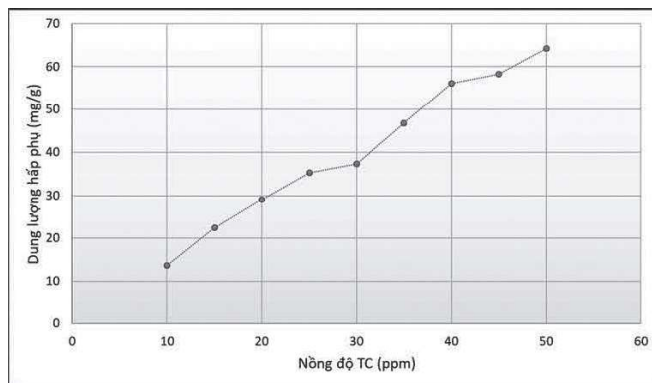
Hình 8 mô tả ảnh hưởng của nồng độ TC ban đầu đến hiệu quả xử lý của AC tổng hợp được. Có thể thấy, khi nồng độ TC tăng từ 10 ppm lên 50 ppm thì dung lượng hấp phụ sẽ tăng từ 13.68 mg/g lên 64.27 mg/g. Điều đó cho thấy khi nồng độ chất ô nhiễm TC quá ít sẽ dẫn đến sự tương tác giữa các phân tử chất ô nhiễm và bề mặt AC bị hạn chế, do đó hiệu quả hấp phụ sẽ không cao. [30]



Hình 6. Đồ thị ảnh hưởng của pH đến hiệu quả xử lý TC



Hình 7. Ảnh hưởng của liều lượng AC đến hiệu quả xử lý TC



Hình 8. Ảnh hưởng của nồng độ TC ban đầu

3.2.4. Ảnh hưởng của thời gian phản ứng

Sự hấp phụ TC của AC tại các thời điểm khác nhau được thực hiện bằng cách thay đổi thời gian hấp phụ từ 15 đến 135 phút. Hình 9 cho thấy, ảnh hưởng của thời gian tiếp xúc đến sự hấp phụ TC trên AC.

Có thể thấy, việc loại bỏ TC tăng nhanh trong 100 phút đầu tiên. Lý do cho tốc độ hấp phụ ban đầu là TC có thể dễ dàng tiếp cận các nhóm chức năng có sẵn trên bề mặt của chất hấp phụ [31]. Khi thời gian hấp phụ tăng lên trên 120 phút, quá trình hấp phụ chậm lại khi các nhóm chức năng



lấp đầy bề mặt hấp phụ và cuối cùng dừng lại. Do bề mặt hấp phụ và ít vị trí hấp phụ hơn, hiệu suất loại bỏ vẫn không đổi khi thời gian hấp phụ tiếp tục tăng [32]. Có thể thấy, thời gian hiệu quả nhất để loại bỏ TC là 100 phút.

4. KẾT LUẬN

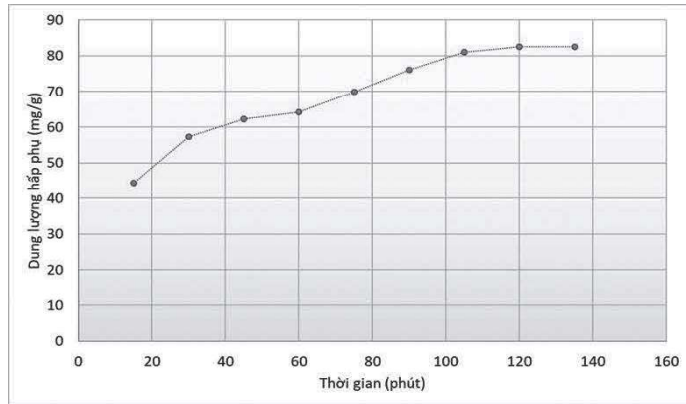
Nghiên cứu đã tổng hợp thành công than hoạt tính (AC) từ bã cà phê bằng phương pháp thủy nhiệt kết hợp hoạt hóa hóa học với KOH. Quá trình này đã chứng tỏ hiệu quả vượt trội trong việc cải thiện các đặc tính cấu trúc của vật liệu. Về đặc tính vật liệu, AC được tổng hợp có cấu trúc vi mô, hệ thống lỗ xốp phát triển mạnh, thể hiện qua diện tích bề mặt riêng lớn đạt 976.34 m²/g và tổng thể tích lỗ xốp là 0.535 cm³/g. Sự thay đổi này là yếu tố then chốt giúp nâng cao khả năng hấp phụ của vật liệu. AC từ bã cà phê cho thấy khả năng loại bỏ TC khỏi dung dịch nước rất hiệu quả. Các điều kiện tối ưu cho quá trình hấp phụ đã được xác định, bao gồm pH 3, liều lượng AC 1.5 g/L và quá trình hấp phụ đạt trạng thái cân bằng sau 100 phút. Nghiên cứu này khẳng định tiềm năng của việc tận dụng bã cà phê để tạo ra vật liệu carbon có giá trị ứng dụng cao. Than hoạt tính được điều chế không chỉ có hiệu suất hấp phụ kháng sinh TC tốt mà còn mở ra hướng đi bền vững, góp phần giải quyết đồng thời bài toán quản lý chất thải nông nghiệp và xử lý ô nhiễm môi trường.

Trong các giai đoạn tiếp theo của nghiên cứu, đẳng nhiệt hấp phụ và động học hấp phụ loại bỏ TC sẽ được nghiên cứu nhằm làm rõ bản chất của quá trình hấp phụ và nhả hấp. Mặt khác, việc nghiên cứu ứng dụng AC được điều chế từ bã cà phê để xử lý chất ô nhiễm trên mẫu nước thải thực tế cũng sẽ được nghiên cứu thực hiện để tăng tính ứng dụng của vật liệu.

Lời cảm ơn: Bài báo có sự hỗ trợ một phần từ nghiên cứu đề tài cấp Bộ Tài nguyên và Môi trường (nay là Bộ NN&MT) mã số TNMT.885.07. Nhóm tác giả xin cảm ơn Trường Đại học Nguyễn Tất Thành, TP.HCM, Trường Đại học Tài nguyên và Môi trường TP.HCM đã hỗ trợ cho nghiên cứu này■

TÀI LIỆU THAM KHẢO

1. Yue, Yan, Congcong Shen, and Yuan Ge, "Biochar accelerates the removal of tetracyclines and their intermediates by altering soil properties," *Journal of Hazardous Materials*, vol. 380, p. 120821, 2019.
2. Ao, Xiuwei, et al, "Degradation of tetracycline by medium pressure UV-activated



Hình 9. Ảnh hưởng của thời gian đến hiệu quả xử lý TC

peroxymonosulfate process: influencing factors, degradation pathways, and toxicity evaluation," *Chemical Engineering Journal*, vol. 361, pp. 1053-1062., 2019.

3. Hayati, Bagher, and Niyaz Mohammad Mahmoodi, "Modification of activated carbon by the alkaline treatment to remove the dyes from wastewater: mechanism, isotherm and kinetic," *Desalination and water treatment*, vol. 47.1, pp. 322-333, 2012.

4. Mahmoodi, Niyaz Mohammad, Bagher Hayati, and Mokhtar Arami, "Textile dye removal from single and ternary systems using date stones: kinetic, isotherm, and thermodynamic studies," *Journal of Chemical & Engineering Data*, vol. 55.11, pp. 4638-4649, 2010.

5. Gómez-Pacheco CV, Sánchez-Polo M, Rivera-Utrilla J, López-Peñalver J (2011), "Tetracycline removal from waters by integrated technologies based on ozonation and biodegradation," *Chem Eng J*, vol. 178, pp. 115-121.

6. Kanmaz N, Buğdaycı M, Demirçivi P (2023), "Investigation on structural and adsorptive features of BaO modified zeolite powders prepared by ball milling technique: removal of tetracycline and various organic contaminants," *Microporous Mesoporous Mater*, vol. 354, p. 112566.

7. Zeng J, Xie W, Guo Y, Zhao T, Zhou H, Wang Q, Li H, Guo Z, Xu BB, Gu H (2024), "Magnetic field facilitated electrocatalytic degradation of tetracycline in wastewater by magnetic porous carbonized phthalonitrile resin," *Appl Catal B*, vol. 340, p. 123225.

8. Sağlam S, Türk FN, Arslanoğlu H (2024), "Synthesis of magnetic activated carbon from industrial waste: characterization, tetracycline removal and interpretation of its mechanism," *Biomass Convers Biorefinery*, vol. 1, pp. 1-15.

9. Arslanoğlu H (2019), "Direct and facile synthesis of highly porous low cost carbon from potassium-rich wine stone and their application for high-performance removal," *J Hazard Mater*, vol. 374, p. 238-247.

10. Yang X, Wang B, Cheng F (2024), "Adsorption performance on tetracycline by novel magnetic adsorbent derived from hydrochar of low-rank coal and sewage sludge," *Sep Purif Technol*, vol. 330, p. 125482.

11. Kubra KT, Hasan MM, Hasan MN, Salman MS, Khaleque MA, Sheikh MC, Rehan AI, Rasee AI, Waliullah RM, Awual



- ME, Hossain MS, Alsukaibi AKD, Alshammari HM, Awual MR (2023), "The heavy lanthanide of thulium(III) separation and recovery using specific ligand-based facial composite adsorbent," *Colloids Surf A: Physicochem Eng Aspects*, vol. 667, p. 131415.
12. Chandra S, Bhattacharya J (2019), "Influence of temperature and duration of pyrolysis on the property heterogeneity of rice straw biochar and optimization of pyrolysis conditions for its application in soils," *J Clean Prod*, vol. 215, p. 1123–1139.
13. Dai J, Meng X, Zhang Y, Huang Y (2020a), "Effects of modification and magnetization of rice straw derived biochar on adsorption of tetracycline from water," *Biores Technol*, vol. 311, p. 123455.
14. Cai Y, Liu L, Tian H, Yang Z, Luo X (2019), "Adsorption and desorption performance and mechanism of tetracycline hydrochloride by activated carbon-based adsorbents derived from sugar cane bagasse activated with $ZnCl_2$," *Molecules*, vol. 24(24), p. 4534.
15. Yu H, Gu L, Chen L, Wen H, Zhang D, Tao H (2020), "Activation of grapefruit derived biochar by its peel extracts and its performance for tetracycline removal," *Biores Technol*, vol. 316, p. 123971.
16. Li B, Zhang Y, Xu J, Xie Z, Tang J, Li X, Fan S (2021), "Simultaneous carbonization, activation, and magnetization for producing tea waste biochar and its application in tetracycline removal from the aquatic environment," *J Environ Chem Eng*, vol. 9(4), p. 105324.
17. Onat B, Türk FN, Arslanoğlu H (2023), "Synthesis of high porous carbon from grape marc-vinasse mixture: investigation on tetracycline and ciprofloxacin removal performance and adsorption mechanisms," *Biomass Convers Biorefinery*, vol. 1, pp. 1-13.
18. V. M. Ortiz-Martínez, L. Gómez-Coma, A. Ortiz, and I. Ortiz (2020), "Overview on the use of surfactants for the preparation of porous carbon materials by the sol-gel method: applications in energy systems," *Reviews in Chemical Engineering*, vol. 36 no.7, pp. 771-787.
19. J. Chen, L. Zhang, G. Yang, Q. Wang, R. Li, and L. A. Lucia, (2017), "Preparation and characterization of activated carbon from hydrochar by phosphoric acid activation and its adsorption performance in prehydrolysis liquor," *BioResources*, vol. 12, pp. 5928-5941.
20. T. S. Hui and M. A. A. Zaini, (2015), "Potassium hydroxide activation of activated carbon: a commentary," *Carbon letters*, vol. 16, pp. 275-280.
21. E.P. Barrett, L.G. Joyner, P.P. Halenda (1951), "The determination of pore volume and area distributions in porous substances. I. Computations from nitrogen isotherms," *J. Am. Chem. Soc*, vol. 73, pp. 373-380.
22. A. Kumar, C. J. Verma, M. K. Singh, and R. Prakash (2022), "Porous carbon from conducting polymers for electrochemical applications," *Conjugated Polymers for Next-Generation Applications: Elsevier*, pp. 147-180.
23. S. Lv, C. Li, J. Mi, and H. Meng (2020), "A functional activated carbon for efficient adsorption of phenol derived from pyrolysis of rice husk, KOH-activation and EDTA-4Na-modification," *Applied surface science*, vol. 510, p. 145425.
24. M. P. Chavhan, V. Slovák, H. Siddiqi, and M. Mucha (2024), "Pyrolysis of household coffee vis-à-vis waste: A detailed insight into physicochemical properties, kinetics, and thermodynamics study," *Chemical Engineering Journal Advances*, vol. 17, p. 100587.
25. Aouay, Feryelle, et al (2024), "Activated carbon prepared from waste coffee grounds: Characterization and adsorption properties of dyes," *Materials*, vol. 17.13, p. 3078.
26. N. Czerwinska, C. Giosuè, I. Matos, S. Sabbatini, M. L. Ruello, and M. Bernardo (2024), "Development of activated carbons derived from wastes: coffee grounds and olive stones as potential porous materials for air depollution," *Science of The Total Environment*, vol. 914, p. 169898.
27. Wu, S.; Hu, Y.H (2021), "A comprehensive review on catalysts for electrocatalytic and photoelectrocatalytic degradation of antibiotics," *Chem. Eng. J*, vol. 409, p. 127739.
28. Ae WW, Wang H-J, Chong AE, Jiang Q, Wei W, Wang H-J, Jiang AC-Q (2008), "Study of the inactivation of copper, zinc superoxide dismutase by tetracycline analogues," *Med Chem Res*, vol. 17, pp. 475-486.
29. Hasan MN, Salman MS, Hasan MM, Kubra KT, Sheikh MC, Rehan AI, Rasee AI, Awual ME, Waliullah RM, Hossain MS, Islam A, Khandaker S, Alsukaibi AKD, Alshammari HM, Awual MR (2023), "Assessing sustainable lutetium(III) ions adsorption and recovery using novel composite hybrid nanomaterials," *J Mol Struct*, vol. 1276, p. 134795.
30. Ae WW, Wang H-J, Chong AE, Jiang Q, Wei W, Wang H-J, Jiang AC-Q (2008), "Study of the inactivation of copper, zinc superoxide dismutase by tetracycline analogues," *Med Chem Res*, vol. 17, pp. 475-486.
31. Zhang J, Tian B, Wang L., Xing M., Lei J. (2018), "Photocatalysis: fundamentals, materials and applications," Springer.
32. Mohubedu RP, Diagboya PNE, Abasi CY, Dikio ED, Mtunzi F (2019), "Magnetic valorization of biomass and biochar of a typical plant nuisance for toxic metals contaminated water treatment," *J Clean Prod*, vol. 209, pp. 1016-1024.
33. Zhang L, Xin Z, Fei X, Luo H, Li H, Lu B, Li Z, Wei G (2019), "Study on adsorption of tetracycline by red mud-based ceramsite," *J Water Supply Res Technol AQUA*, vol. 68(1), pp. 39-50.
34. Suwunwong T, Patho P, Choto P, Phoungthong K (2020), "Enhancement the rhodamine 6G adsorption property on Fe₃O₄-composited biochar derived from rice husk," *Mater Res Express*, vol. 7(2), p. 02551.