Tạp chí Khoa học Đại học Cần Thơ
Phần A: Khoa học tự nhiên, Công nghệ và Môi trường
ISSN 1859-2333 | e-ISSN 2815-5599

DOI:10.22144/ctujos.2026.219

XỬ LÝ CONGO RED TRONG MÔI TRƯỜNG NƯỚC BẰNG VẬT LIỆU QUANG XÚC TÁC TIO_2

Đỗ Thị Mỹ Phượng*, Lê Trần Kim Ngọc và Nguyễn Xuân Lộc
Khoa Môi trường và Tài nguyên Thiên nhiên, Đại học Cần Thơ, Việt Nam
**Tác giả liên hệ (Corresponding author): dtmphuong@ctu.edu.vn*

Thông tin chung (Article Information)

Nhận bài (Received): 27/02/2026
Sửa bài (Revised): 02/04/2026
Duyệt đăng (Accepted): 20/09/2026

Title: *Treatment of Congo Red in aqueous solution using nano-TiO_2 photocatalytic material*

Author(s): *Do Thi My Phuong*, Le Tran Kim Ngoc and Nguyen Xuan Loc*

Affiliation(s): *College of Environment and Natural Resources, Can Tho University, Viet Nam*

TÓM TẮT

Nghiên cứu này được thực hiện nhằm đánh giá hiệu quả quang xúc tác của vật liệu nano TiO_2 tổng hợp bằng phương pháp sol–gel trong xử lý thuốc nhuộm Congo Red (CR) trong nước. Vật liệu được phân tích đặc trưng bề mặt bằng SEM, BET và pH_{pzc}. Kết quả cho thấy TiO_2 có dạng hạt gần hình cầu, kích thước 20 – 80 nm, diện tích bề mặt riêng 46,853 m^2/g, thể tích lỗ rỗng 0,05 cm^3/g và đường kính lỗ rỗng trung bình 2,34 nm và pH_{pzc} khoảng 5,5. Hiệu quả xử lý CR được khảo sát theo các yếu tố pH, liều lượng TiO_2, thời gian phản ứng, nhiệt độ và cường độ chiếu sáng UV. Kết quả cho thấy các giá trị tối ưu là: pH = 3, liều lượng TiO_2 0,75 g/L, thời gian phản ứng 120 phút, nhiệt độ 30 °C và cường độ chiếu sáng 4 đèn UV, đạt hiệu suất phân hủy khoảng 98%. Kết quả nghiên cứu chứng minh rằng vật liệu nano TiO_2 có khả năng quang xúc tác hiệu quả, mở ra tiềm năng ứng dụng trong xử lý nước thải dệt nhuộm chứa các hợp chất azo khó phân hủy.

Từ khóa: *Congo Red, nước thải dệt nhuộm, quang xúc tác, sol–gel, TiO_2 nano, UV*

ABSTRACT

This study evaluates the photocatalytic efficiency of sol–gel synthesized TiO_2 nanoparticles for the removal of Congo Red (CR) dye from water. The TiO_2 material was characterized using SEM, BET and pH_{pzc}, revealing nearly spherical particles with sizes of 20 - 80 nm, a specific surface area of 46.853 m^2/g, a pore volume of 0.05 cm^3/g, an average pore diameter of 2.34 nm, and a pH_{pzc} of approximately 5.5. The photocatalytic performance was investigated under varying pH, TiO_2 dosage, reaction time, temperature, and UV light intensity. The optimal conditions were determined as: pH = 3, TiO_2 dosage 0.75 g/L, reaction time 120 min, temperature 30 °C, and 4 UV lamps, achieving a removal efficiency of approximately 98%. These results indicate that the synthesized TiO_2 nanoparticles exhibit high photocatalytic activity and have strong potential for practical application in treating textile wastewater containing recalcitrant azo dyes.

Keywords: *Congo Red, nano-TiO_2, photocatalysis, sol–gel, textile wastewater, UV irradiation*

1. GIỚI THIỆU

Ngành công nghiệp dệt nhuộm là một trong những ngành công nghiệp truyền thống và đóng vai trò quan trọng trong việc thúc đẩy kinh tế toàn cầu. Ngành dệt may là ngành tạo ra việc làm lớn thứ hai trên thế giới, đóng góp đáng kể vào tăng trưởng kinh tế và tạo cơ hội việc làm tại nhiều quốc gia (Atkar et al., 2021). Tuy nhiên, nước thải từ các nhà máy dệt nhuộm chứa một lượng lớn các hợp chất hữu cơ phức tạp, chất màu bền vững và nhiều loại hóa chất độc hại như kim loại nặng, thuốc nhuộm azo và các chất trợ nhuộm, gây ô nhiễm nghiêm trọng nguồn nước (Hashemi & Kaykhaii, 2022). Ô nhiễm màu không chỉ ảnh hưởng đến thẩm mỹ mà còn cản trở sự xuyên sáng trong môi trường nước, làm gián đoạn quá trình quang hợp của sinh vật thủy sinh; đồng thời, một số thuốc nhuộm có thể phân hủy thành các sản phẩm trung gian độc hại, gây nguy cơ đối với sức khỏe con người và hệ sinh thái (Afkhami & Moosavi, 2010).

Trong số các thuốc nhuộm azo, Congo Red (CR) là một hợp chất điển hình được sử dụng rộng rãi trong ngành dệt nhuộm nhờ khả năng tạo màu bền và chi phí thấp. CR là một thuốc nhuộm azo diazo anion với công thức $C_{32}H_{22}N_6Na_2O_6S_2$, chứa các liên kết azo (–N=N–) và nhóm sulfonate ($–SO_3^-$). Cấu trúc phức tạp này khiến phân tử CR hòa tan tốt trong nước nhưng đồng thời rất bền về mặt hóa học và khó bị phân hủy sinh học trong các quá trình xử lý tự nhiên, dẫn đến khó loại bỏ bằng các phương pháp xử lý sinh học thông thường (Siddiqui et al., 2023). Đặc biệt, CR là một thuốc nhuộm azo phân tử phức tạp chứa liên kết azo (–N=N–) và thường có thể bị khử thành các amin thơm như benzidine, vốn được biết là chất độc tính, đột biến và nghi ngờ gây ung thư khi hình thành trong môi trường thiếu oxy hoặc quá trình biến đổi sinh học. Chính vì vậy, một số quốc gia đã hạn chế hoặc cấm sử dụng CR trong các ứng dụng công nghiệp do mối nguy hiểm tiềm tàng từ các sản phẩm chuyển hóa này (Ngo & Tischler, 2022). Chính vì vậy, việc loại bỏ hiệu quả CR khỏi nước thải là một thách thức lớn trong xử lý môi trường.

Nhiều phương pháp đã được áp dụng để xử lý Congo Red, bao gồm hấp phụ bằng than hoạt tính hoặc vật liệu nano, keo tụ – tạo bông, lọc màng và các quá trình oxy hóa hóa học như ozon hóa hoặc clo hóa (Khadhraoui et al., 2009; Nikravesh et al., 2020). Trong đó, phương pháp hấp phụ cho hiệu suất loại bỏ cao nhưng bị hạn chế bởi khả năng tái sinh vật liệu và chi phí xử lý sau hấp phụ. Các quá trình oxy hóa hóa học có thể phân hủy thuốc nhuộm nhưng thường tiêu tốn năng lượng lớn và có nguy cơ tạo ra sản phẩm phụ độc hại (Morin-Crini et al., 2022). Gần đây, các quá trình oxy hóa nâng cao (AOPs), đặc biệt là quang xúc tác, đã thu hút nhiều sự quan tâm nhờ khả năng tạo ra các gốc oxy hóa mạnh như •OH, có thể khoáng hóa hoàn toàn các hợp chất hữu cơ phức tạp.

Trong số các vật liệu quang xúc tác, Titanium Dioxide (TiO_2) được xem là một trong những chất bán dẫn tiềm năng nhất nhờ tính ổn định hóa học cao, không độc hại, chi phí thấp và khả năng tạo ra các cặp electron – lỗ trống (e^-/h^+) khi được kích thích bởi ánh sáng UV. Các điện tử và lỗ trống này tham gia vào quá trình hình thành các gốc tự do như •OH và $•O_2^-$, đóng vai trò quan trọng trong việc phân hủy các hợp chất hữu cơ thành CO_2 và H_2O (Neppolian et al., 2002). Kết quả của nhiều nghiên cứu đã chứng minh hiệu quả của TiO_2 trong phân hủy Congo Red, với hiệu suất đạt khoảng 60 – 70% dưới điều kiện chiếu xạ UV hoặc ánh sáng mặt trời (Harun et al., 2018; Palma Soto, 2024). Titanium dioxide có thể tồn tại ở nhiều pha tinh thể khác nhau, bao gồm anatase, rutile và brookite, mỗi pha có cấu trúc tinh thể, bề mặt và đặc tính điện tử riêng biệt dẫn đến hiệu quả quang xúc tác khác nhau trong xử lý chất ô nhiễm. Anatase thường được báo cáo có hoạt tính quang xúc tác cao hơn so với rutile và brookite do sự khác biệt về cấu trúc vùng năng lượng và hiệu quả phân tách cặp electron – lỗ trống, trong khi pha rutile bền nhiệt hơn và pha brookite cũng thể hiện hoạt tính đáng kể trong một số ứng dụng nhất định (Hanaor & Sorrell, 2011; Chen & Mao, 2007; Banfield, 1998). Các pha này có thể tồn tại riêng lẻ hoặc trong các pha hỗn hợp, ảnh hưởng đến diện tích bề mặt, pH_{pzc} và tính hấp phụ/quang xúc tác tổng thể của TiO_2 (Zhang et al., 2014; Fischer et al., 2017).

Tuy nhiên, việc ứng dụng TiO_2 vẫn tồn tại một số hạn chế như khả năng hấp thụ ánh sáng chủ yếu trong vùng UV và hiện tượng tái kết hợp nhanh của cặp electron – lỗ trống, làm giảm hiệu quả quang xúc tác (Quintanilla-Villanueva et al., 2025; Harun et al., 2018).

Ngoài ra, hiệu suất xử lý CR phụ thuộc mạnh vào các yếu tố vận hành như pH, liều lượng xúc tác, thời gian phản ứng và cường độ chiếu xạ, nhưng các nghiên cứu trước đây thường chỉ tập trung vào từng yếu tố riêng lẻ hoặc chưa liên hệ đầy đủ với đặc tính bề mặt của vật liệu. Đây chính là khoảng trống nghiên cứu cần được làm rõ.

Do đó, nghiên cứu này được thực hiện nhằm đánh giá một cách hệ thống hiệu quả quang xúc tác

của vật liệu nano TiO_2 tổng hợp bằng phương pháp sol–gel trong xử lý CR trong môi trường nước. Nghiên cứu tập trung phân tích đồng thời ảnh hưởng của các yếu tố vận hành (pH, khối lượng xúc tác, thời gian phản ứng, nhiệt độ và cường độ UV) kết hợp với đặc trưng vật liệu (SEM, BET, pH_{pzc}), từ đó xác định điều kiện tối ưu và làm rõ vai trò của các yếu tố này trong quá trình phân hủy quang xúc tác.

2. PHƯƠNG PHÁP NGHIÊN CỨU

2.1. Hóa chất và thiết bị sử dụng

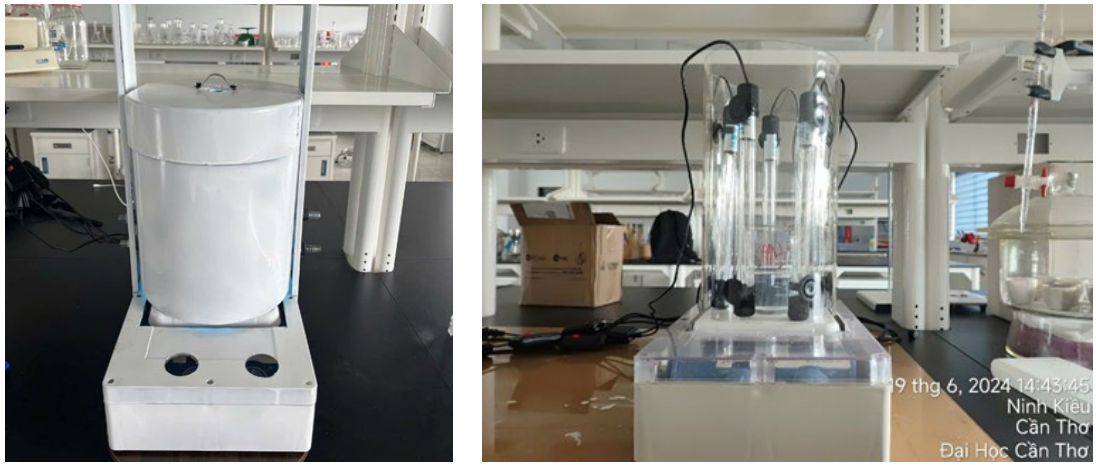
Các hóa chất sử dụng trong nghiên cứu bao gồm: thuốc nhuộm Congo Red (CR, $C_{32}H_{22}N_6Na_2O_6S_2$, Trung Quốc), titanium isopropoxide (TTIP, $C_{12}H_{28}O_4Ti$, 95%, Trung Quốc), ethanol (C_2H_5OH, 99%, Việt Nam), nitric acid (axit nitric, 99%, Merck), citric acid (axit citric $C_6H_8O_7$, 99%, Merck) và ammonium hydroxide (amoni hydroxit, NH_4OH, 28%, Merck). Tất cả các hóa chất được sử dụng trực tiếp mà không qua xử lý thêm.

Phân tích SEM, BET và XRD

Cấu trúc bề mặt và thành phần nguyên tố của TiO_2 được khảo sát bằng kính hiển vi điện tử quét (SEM; Hitachi S-4800, Nhật Bản). Diện tích bề mặt riêng, thể tích và phân bố kích thước lỗ rỗng của vật liệu được xác định từ đẳng nhiệt hấp phụ–giải hấp N_2 theo phương pháp Brunauer–Emmett–Teller (BET) sử dụng thiết bị Nova Station A (Quantachrome, Mỹ). Việc phân tích nhiễu xạ tia X (XRD) được thực hiện bằng máy D8-Advance (Bruker, Đức) nhằm xác định pha tinh thể và cấu trúc vật liệu.

2.2. Mô hình thí nghiệm

Trong nghiên cứu này, hệ thống phản ứng quang xúc tác được thiết kế theo mô hình huyền phù, trong đó TiO_2 được phân tán trực tiếp vào dung dịch chứa thuốc nhuộm CR. Dung dịch được đặt trong một buồng hình trụ nhựa (đường kính 194 - 200 mm, chiều cao 0,5 m), với máy khuấy từ hỗ trợ quá trình trộn đều và tăng tốc độ phản ứng. Đèn UV công suất 20 W được bố trí xung quanh buồng để chiếu sáng đồng đều. Hệ thống thổi khí giúp duy trì nhiệt độ phòng ổn định, tối ưu hóa hiệu suất quang xúc tác (Hình 1).

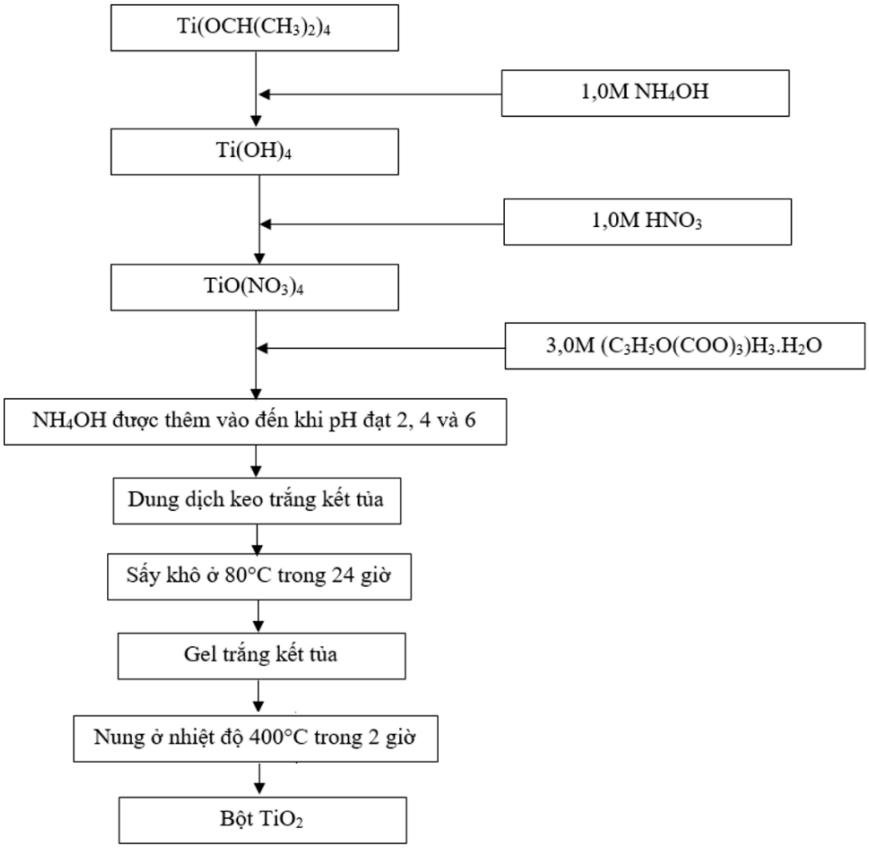


Hình 1. Bố trí hệ thống phản ứng quang xúc tác

Tổng hợp vật liệu TiO_2 bằng phương pháp sol–gel:

Vật liệu TiO_2 được tổng hợp bằng phương pháp sol–gel dựa theo quy trình của Pookmanee and Phanichphant (2009) với một số điều chỉnh (Hình 2). Titanium isopropoxide [$Ti(OCH(CH_3)_2)_4$] được sử dụng làm tiền chất do có hoạt tính cao và dễ tham gia phản ứng thủy phân - ngưng tụ. Trong nghiên cứu trên, lượng tiền chất sử dụng là 76,7 mL ($\rho \approx$ 0,96 g/mL), tương ứng với khoảng 73,63 g (~0,259 mol), nhằm đảm bảo khả năng định lượng và tái lập thí nghiệm (Pookmanee & Phanichphant, 2009).

Quá trình bắt đầu bằng việc chuyển đổi $Ti(OCH(CH_3)_2)_4$ thành $Ti(OH)_4$ bằng cách xử lý với dung dịch NH_4OH 1,0 M. $Ti(OH)_4$ sau đó được xử lý với dung dịch HNO_3 1,0 M để tạo $TiO(NO_3)_4$. Tiếp theo, dung dịch citric acid 3,0 M [$(C_3H_5O(COO)_3)H_3.H_2O$] được bổ sung nhằm tạo phức và kiểm soát quá trình phản ứng. Dung dịch NH_4OH được thêm dần vào cho đến khi pH đạt các giá trị 2, 4 và 6 để điều chỉnh tính acid–base trong hệ.



Hình 2. Sơ đồ quy trình tổng hợp bột TiO_2 bằng phương pháp sol-gel

(Pookmanee & Phanichphant, 2009)

Phản ứng thủy phân và ngưng tụ xảy ra theo các phương trình:

$$Ti(OR)_4 + H_2O \rightarrow Ti(OR)_3(OH) + ROH$$

$$Ti(OR)_3(OH) + HO–Ti(OR)_3 \rightarrow (OR)_3Ti–O–Ti(OR)_3 + H_2O$$

Quá trình ngưng tụ tiếp diễn tạo thành mạng lưới Ti–O–Ti ba chiều, dẫn đến sự hình thành sol và chuyển dần sang trạng thái gel. Gel thu được được sấy ở 80°C trong 24 giờ nhằm loại bỏ dung môi và thu được bột khô.

Vật liệu sau sấy được nung ở 400°C trong 2 giờ với tốc độ gia nhiệt khoảng 5°C/phút nhằm hoàn thiện cấu trúc tinh thể. Ở nhiệt độ này, TiO_2 chủ yếu tồn tại ở pha anatase, vốn có hoạt tính quang xúc tác cao nhờ diện tích bề mặt lớn và khả năng hạn chế tái kết hợp electron – lỗ trống, tạo điều kiện thuận lợi cho các phản ứng phân hủy chất màu (Hanaor & Sorrell, 2011; Chen & Mao, 2007; Banfield, 1998).

Dựa trên lượng tiền chất ban đầu (~0,259 mol), khối lượng TiO_2 lý thuyết được ước tính khoảng 20,68 g (M = 79,87 g/mol), giả định hiệu suất chuyển hóa hoàn toàn. Khối lượng TiO_2 thực tế thu được sau quá trình tổng hợp là 16,24 g, tương ứng với hiệu suất tổng hợp đạt 78,5%. Sự chênh lệch giữa giá trị lý thuyết và thực nghiệm có thể được giải thích bởi tổn thất vật liệu trong các bước rửa, lọc, ly tâm và nung, cũng như hiện tượng kết tụ của các hạt nano trong quá trình xử lý (Yahaya et al., 2015).

2.3. Xác định các điều kiện ảnh hưởng đến thí nghiệm

Dung dịch CR 10 mg/L được xử lý trong huyền phù TiO_2 dưới ánh sáng UV và khuấy liên tục để đảm bảo phân tán đồng đều. Thiết kế thí nghiệm chi tiết được trình bày trong Bảng 1.

Bảng 1. Thiết kế thí nghiệm khảo sát ảnh hưởng của các yếu tố đến quá trình quang xúc tác phân hủy CR bằng TiO_2

Yếu tố khảo sát	Giá trị khảo sát	Điều kiện cố định
pH	2, 3, 4, 5, 6, 7, 8, 9	Liều lượng TiO_2 = 0,75 g/L, thời gian phản ứng = 60 phút, nhiệt độ = 25 ± 2°C, cường độ UV = 4 đèn
Liều lượng TiO_2 (g/L)	0,25; 0,5; 0,75; 1,0	pH tối ưu (từ thí nghiệm trước), thời gian = 60 phút, nhiệt độ = 25 ± 2°C, cường độ UV = 5 đèn
Thời gian phản ứng (phút)	30, 60, 90, 120, 240	pH và liều lượng TiO_2 tối ưu, nhiệt độ = 25 ± 2°C, cường độ UV = 5 đèn
Nhiệt độ (°C)	30, 50, 70, 90	pH, liều lượng TiO_2 và thời gian tối ưu, cường độ UV = 5 đèn
Cường độ UV (số đèn)	0, 1, 2, 3, 4, 5	pH, liều lượng TiO_2, thời gian và nhiệt độ tối ưu

Các khoảng giá trị khảo sát được lựa chọn dựa trên tài liệu tham khảo trước đây (Habibi et al., 2005; Baran et al., 2008; Reza et al., 2017) và thí nghiệm sơ bộ nhằm đảm bảo bao phủ đầy đủ vùng ảnh hưởng của từng yếu tố.

Phương pháp phân tích CR và chuẩn bị dung dịch chuẩn

Nồng độ CR được xác định bằng phương pháp quang phổ hấp thụ UV–Vis sử dụng máy Shimadzu UV-1900. Các đường chuẩn được thiết lập tại hai bước sóng 498 nm và 529 nm trong khoảng pH từ 2 đến 4. Kết quả cho thấy mối quan hệ tuyến tính tốt giữa nồng độ CR và độ hấp thụ (Abs), với hệ số tương quan cao ($R^2 \approx 1$).

Tại bước sóng 498 nm, độ hấp thụ tăng tuyến tính theo nồng độ CR, cho phép định lượng chính xác trong điều kiện khảo sát. Trong khi đó, tại 529 nm, độ hấp thụ phụ thuộc vào pH, phản ánh sự thay đổi trạng thái ion hóa và đặc tính quang phổ của CR trong môi trường axit. Do đó, bước sóng phù hợp được lựa chọn tương ứng với điều kiện pH của từng thí nghiệm.

Dung dịch gốc CR (1000 mg/L) được chuẩn bị bằng cách hòa tan chính xác 1,0 g CR trong nước cất và định mức đến 1 L. Dung dịch được khuấy đều bằng máy khuấy từ đến khi hòa tan hoàn toàn và được bảo quản trong chai tối màu để tránh phân hủy quang học.

Các dung dịch làm việc được pha loãng từ dung dịch gốc theo phương trình:

$$C_1V_1 = C_2V_2$$

Trong đó, C_1 và V_1 lần lượt là nồng độ và thể tích dung dịch gốc, C_2 và V_2 là nồng độ và thể tích dung dịch cần pha. Ví dụ, để pha dung dịch CR 10 mg/L, 10 mL dung dịch gốc 1000 mg/L được lấy và định mức đến 1 L bằng nước cất.

Công thức tính hiệu suất xử lý (%):

$$H\ (\%) = \frac{(C_0 - C_1)\ x\ 100}{C_0}$$

Trong đó:

H: hiệu suất xử lý (%),

C_0: nồng độ CR ban đầu trước khi xử lý (mg/L),

C_1: nồng độ CR sau khi xử lý (mg/L).

Công thức tính sự thay đổi của pH trong dung dịch sau khi tiếp xúc với bề mặt của vật liệu TiO_2 (ΔpH):

$$\Delta pH = pH_f - pH_i$$

Trong đó:

pH_f: pH dung dịch sau khi tiếp xúc với vật liệu,

pH_i: pH dung dịch trước khi tiếp xúc với vật liệu.

Dữ liệu thí nghiệm được xử lý bằng Microsoft Excel để tính toán và biểu diễn đồ thị. Phân tích thống kê được thực hiện bằng phần mềm SPSS (phiên bản 20.0). Sự khác biệt giữa các nghiệm thức được đánh giá bằng phân tích phương sai một yếu tố (one-way ANOVA); sau đó, phép kiểm định Tukey được sử dụng để so sánh cặp với mức ý nghĩa $p < 0,05$. Tất cả các thí nghiệm được thực hiện lặp lại ít nhất ba lần và kết quả được trình bày dưới dạng giá trị trung bình ± độ lệch chuẩn (SD).

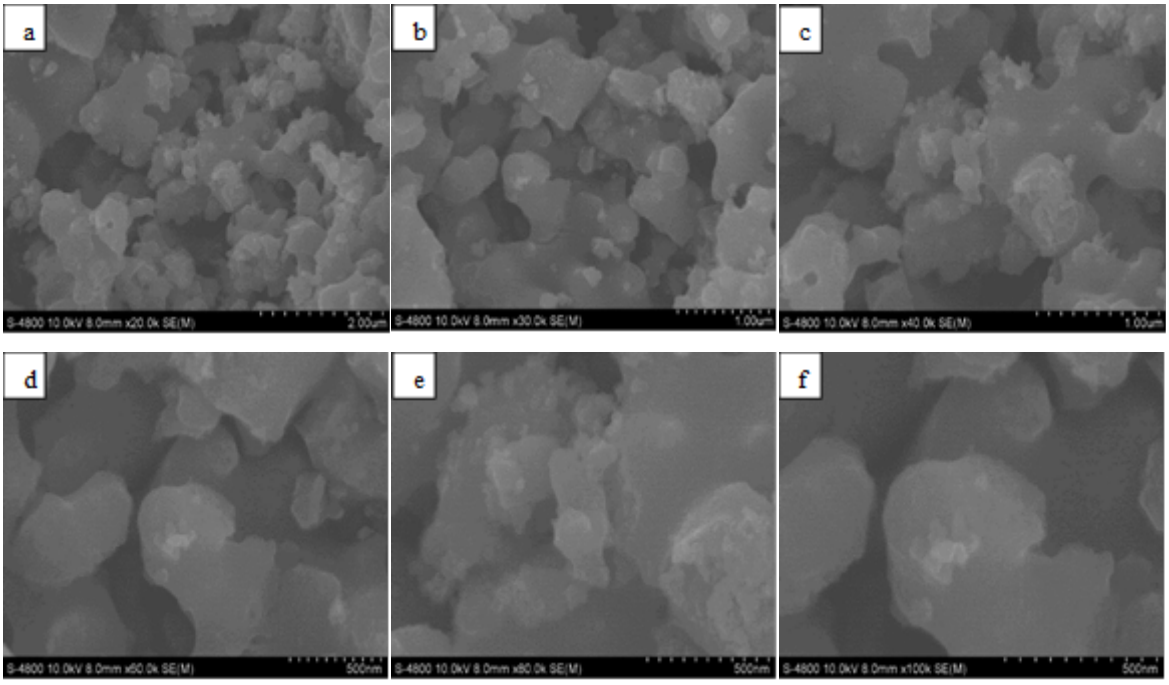
3. KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN

3.1. Kết quả phân tích đặc tính vật liệu

3.1.1. Kính hiển vi điện tử quét (SEM)

Hình dạng, kích thước và các đặc tính bề mặt của vật liệu được khảo sát bằng kính hiển vi điện tử quét (SEM). Kết quả ở Hình 3 cho thấy các hạt nano TiO_2 có dạng gần hình cầu, phân bố tương đối ngẫu nhiên và có xu hướng kết tụ nhẹ. Bề mặt hạt tương đối nhẵn, không quan sát thấy các cấu trúc góc cạnh rõ rệt.

Kích thước hạt quan sát được nằm trong khoảng 20 – 80 nm, phù hợp với đặc trưng của vật liệu nano tổng hợp bằng phương pháp sol–gel. Sự phân bố kích thước tương đối đồng đều cho thấy quá trình thủy phân – ngưng tụ đã diễn ra hiệu quả, góp phần tạo ra vật liệu có diện tích bề mặt lớn, thuận lợi cho các quá trình hấp phụ và quang xúc tác. Kết quả tương tự cũng được tìm thấy qua nghiên cứu chiết xuất TiO_2 bằng lá *Mentha arvensis* (Ahmad et al., 2020).



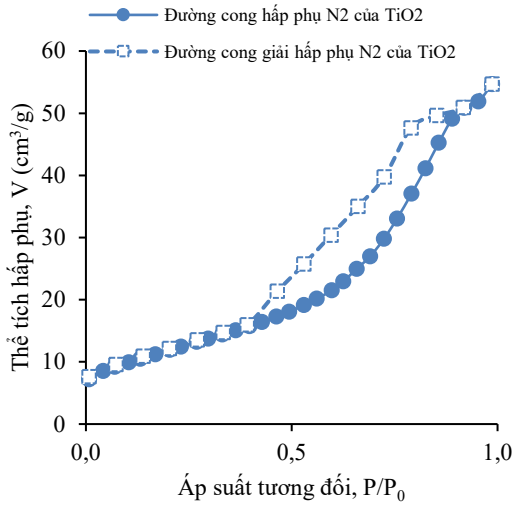
Hình 3. Ảnh chụp SEM của vật liệu TiO_2 ở các độ phóng đại

Ghi chú: a) 20.000 lần, b) 30.000 lần, c) 40.000 lần, d) 60.000 lần, e) 80.000 lần và f) 100.000 lần.

3.1.2. Phân tích diện tích bề mặt riêng của vật liệu

Đặc tính mao quản của vật liệu TiO_2 được xác định thông qua phương pháp hấp phụ/giải hấp phụ N_2 (BET), như trình bày trong Hình 4. Kết quả cho thấy thể tích hấp phụ tăng đáng kể trong khoảng áp suất tương đối $0,5 < P/P_0 < 0,9$. Theo phân loại của IUPAC, đường đẳng nhiệt thuộc dạng IV, đặc trưng cho vật liệu mao quản trung bình (mesoporous) (Lee & Park, 2013; Vigneshwaran et al., 2021).

Đường cong xuất hiện vòng trễ dạng H4 trong khoảng áp suất tương đối rộng, cho thấy sự hiện diện của hệ lỗ rỗng dạng khe hẹp. Theo IUPAC, dạng vòng trễ này thường liên quan đến cấu trúc vi mao quản kết hợp mao quản trung bình, trong đó cơ chế ngưng tụ mao quản đóng vai trò chi phối (Nguyen & Tran, 2023).



Hình 4. Đường cong hấp phụ/giải hấp phụ N_2 của vật liệu TiO_2

Sự phân bố kích thước lỗ rỗng của vật liệu cho thấy đường kính lỗ rỗng chủ yếu nằm trong khoảng 2 - 4 nm, phù hợp với đặc trưng của vật liệu mao

quản trung bình. Bên cạnh đó, phần lớn lỗ rỗng tập trung trong khoảng 2 – 50 nm (≈ 87,65%), trong khi không ghi nhận sự hiện diện đáng kể của các lỗ rỗng kích thước lớn hơn 50 nm. Điều này cho thấy cấu trúc mao quản của vật liệu tương đối đồng nhất.

Kết quả tính toán BET cho thấy diện tích bề mặt riêng của TiO_2 đạt 46,853 m^2/g, thể tích lỗ rỗng 0,05 cm^3/g và đường kính lỗ rỗng trung bình 2,34 nm. Diện tích bề mặt riêng và cấu trúc mao quản đóng vai trò quan trọng trong việc chi phối hiệu quả quang xúc tác của vật liệu TiO_2. Diện tích bề mặt lớn (46,853 m^2/g) giúp gia tăng số lượng vị trí hoạt tính, từ đó nâng cao khả năng hấp phụ các phân tử thuốc nhuộm CR lên bề mặt xúc tác. Đồng thời, hệ mao quản trung bình với đường kính lỗ rỗng 2 – 4 nm tạo điều kiện thuận lợi cho quá trình khuếch tán các phân tử chất ô nhiễm và các gốc phản ứng (•OH, $•O_2^-$) vào bên trong cấu trúc vật liệu.

3.1.3. Phân tích phổ XRD của vật liệu

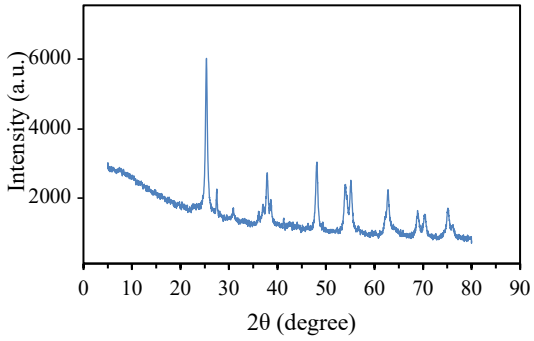
Phổ nhiễu xạ tia X (XRD) của mẫu TiO_2 tổng hợp từ tiền chất titanium isopropoxide (Hình 5) cho thấy sự hình thành rõ ràng các đỉnh nhiễu xạ đặc trưng của pha tinh thể TiO_2. Đỉnh nhiễu xạ mạnh nhất tại khoảng $2\theta \approx 25,3°$ tương ứng với mặt phẳng (101) của pha anatase. Đây là đặc trưng điển hình và có cường độ cao nhất, chứng tỏ anatase là pha tinh thể chủ đạo trong vật liệu (Chen & Mao, 2007).

Các đỉnh phụ tại khoảng 37,8°; 48,0°; 54,0°; 55,1° và 62,7° lần lượt được gán cho các mặt phẳng (004), (200), (105), (211) và (204) của anatase TiO_2, phù hợp với thẻ chuẩn JCPDS No. 21-1272 (Banfield, 1998). Sự hiện diện đồng thời của các đỉnh này cho thấy vật liệu có cấu trúc tinh thể anatase tương đối hoàn chỉnh và mức độ kết tinh tốt.

Đáng chú ý, phổ XRD không ghi nhận rõ các đỉnh đặc trưng của rutile ($2\theta \approx 27,4°$) hay brookite, cho thấy quá trình tổng hợp và xử lý nhiệt đã ưu tiên hình thành pha anatase. Điều này phù hợp với các nghiên cứu về phương pháp sol–gel sử dụng tiền chất alkoxide như titanium isopropoxide, trong đó quá trình thủy phân – ngưng tụ tạo mạng Ti–O–Ti và chuyển hóa thành anatase ở nhiệt độ nung trung bình (Diebold, 2003; Fujishima et al., 2008).

Ngoài ra, nền nhiễu nhẹ và độ rộng đỉnh tương đối lớn cho thấy sự tồn tại của tinh thể kích thước nano hoặc một phần vật liệu vô định hình, đặc trưng thường gặp trong vật liệu TiO_2 tổng hợp bằng phương pháp sol–gel (Chen & Mao, 2007).

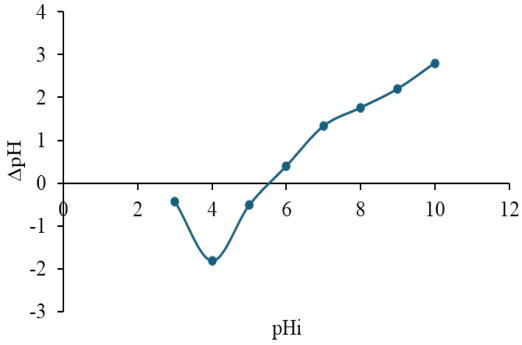
Tổng hợp lại, kết quả XRD khẳng định vật liệu TiO_2 thu được chủ yếu ở pha anatase, có độ kết tinh tốt, không xuất hiện đáng kể pha rutile/brookite, phù hợp cho các ứng dụng quang xúc tác và xử lý môi trường.



Hình 5. Phổ nhiễu xạ XRD của vật liệu TiO_2

3.2. Phân tích điểm không điện tích pH_{pzc}

TiO_2 được tổng hợp và đánh giá hoạt tính quang xúc tác thông qua việc đo pH ở nhiều mức khác nhau nhằm xác định điểm tích điện bằng không (pH_{pzc}). Kết quả được trình bày trong Hình 6. Dựa trên số liệu thu được, giá trị pH_{pzc} của vật liệu được xác định xấp xỉ 5,5. Ở mức pH này, bề mặt TiO_2 không xảy ra hiện tượng hấp phụ hay đẩy các ion H^+ hoặc OH^- (Chen et al., 2007; Li et al., 2019), thể hiện qua độ biến thiên ΔpH rất nhỏ, gần bằng 0.



Hình 6. pH_{pzc} của vật liệu TiO_2

Tại các giá trị pH xấp xỉ pH_{pzc}, bề mặt TiO_2 duy trì trạng thái trung hòa về điện tích, giảm thiểu sự tương tác tĩnh điện đáng kể với các ion trong dung dịch. Điều này giúp tăng khả năng hấp phụ các phân tử phản ứng và nâng cao hiệu quả quang xúc tác, do đó khoảng pH gần pH_{pzc} được xem là vùng hoạt động ổn định nhất của vật liệu trong xử lý nước.

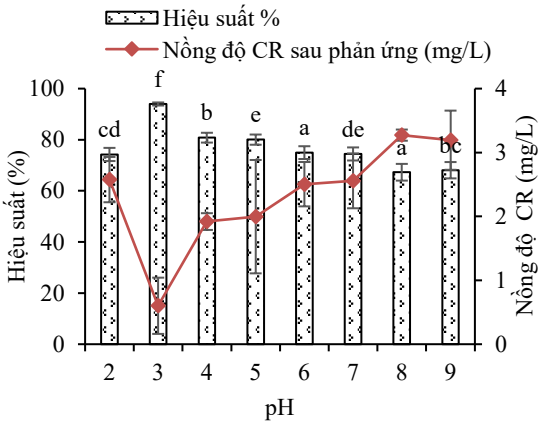
TiO_2 có thể tồn tại ở các pha tinh thể khác nhau như anatase, rutile hoặc brookite, mỗi pha có đặc tính bề mặt và giá trị pH_{pzc} riêng biệt (Zhang et al., 2014; Fischer et al., 2017). Trong nghiên cứu này, pH_{pzc} được xác định là 5,5, cho thấy vật liệu có độ

đồng nhất tương đối về pha tinh thể và đặc tính bề mặt. Kết quả này tương đồng với nghiên cứu của Sugimoto and Zhou (2002), khi pH_{pzc} của TiO_2 pha anatase tổng hợp bằng phương pháp sol–gel xấp xỉ 6,0. Sự chênh lệch nhỏ có thể do khác biệt về điều kiện tổng hợp và xử lý nhiệt, nhưng giá trị pH_{pzc} ổn định ở mức 5,5 trong nghiên cứu này phản ánh sự ổn định và tính đồng nhất của pha anatase chủ đạo (Sugimoto & Zhou, 2002).

3.3. Ảnh hưởng của pH đến hiệu suất quang xúc tác

Thí nghiệm được thực hiện ở các giá trị pH từ 2 đến 9 nhằm đánh giá ảnh hưởng của pH đến quá trình quang xúc tác phân hủy CR. pH dung dịch được điều chỉnh bằng HCl hoặc NaOH 0,1 M trước khi chiếu sáng.

Trong quá trình khảo sát, các thông số khác được giữ không đổi, bao gồm: thời gian phản ứng 60 phút, liều lượng TiO_2 0,75 g/L, nồng độ CR 10 mg/L, cường độ chiếu xạ với 4 đèn UV và nhiệt độ phòng (25 ± 2 °C), nhằm đảm bảo đánh giá chính xác ảnh hưởng riêng biệt của pH đến hiệu suất phân hủy.



Hình 7. Ảnh hưởng pH đến hiệu suất phân hủy CR

Ghi chú: Số liệu trình bày là giá trị trung bình ± độ lệch chuẩn, n = 3. Những giá trị trong cùng một cột có kí tự (a, b, c, d) khác nhau thì khác biệt có ý nghĩa thống kê ở mức α = 5%.

Kết quả ở Hình 7 cho thấy pH pH ảnh hưởng rõ rệt đến hiệu quả phân hủy CR. Ở pH = 3, nồng độ CR sau phản ứng đạt giá trị thấp nhất (0,60 mg/L), tương ứng giảm 9,4 mg/L so với ban đầu. Khi pH tăng từ 3 đến 9, nồng độ CR sau xử lý tăng dần, đạt 3,19 mg/L tại pH = 9. Xu hướng này phù hợp với hiệu suất loại bỏ CR, dao động từ 67,28 đến 93,99%, trong đó cao nhất tại pH = 3 (93,99%) và thấp nhất tại pH = 8 (67,28%). Phân tích thống kê ($p < 0,05$) cho thấy pH 3 khác biệt có ý nghĩa so với các mức pH khác và được xác định là điều kiện tốt nhất.

Hiệu suất cao trong môi trường acid (pH 2–3) có thể được giải thích thông qua cơ chế quang xúc tác của TiO_2. Dưới chiếu xạ UV, electron (e^-) được kích thích từ vùng hóa trị lên vùng dẫn, tạo ra cặp electron–lỗ trống (e^-/h^+). Các lỗ trống (h^+) có khả năng oxy hóa H_2O hoặc OH^- để tạo gốc hydroxyl (•OH), trong khi electron (e^-) khử O_2 hòa tan tạo thành gốc superoxide ($•O_2^-$). Các gốc oxy hóa mạnh này đóng vai trò chủ đạo trong quá trình phân hủy CR. Ở pH thấp, bề mặt TiO_2 tích điện dương, tăng cường hấp phụ CR mang điện tích âm, đồng thời hạn chế tái kết hợp e^-/h^+, từ đó nâng cao hiệu suất phản ứng. Xu hướng này phù hợp với nghiên cứu của Sowmya et al. (2018).

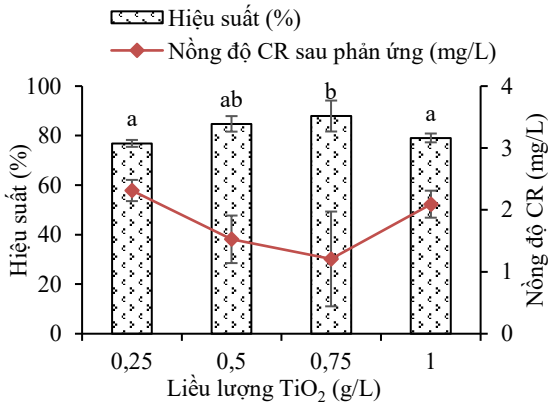
Ngược lại, trong môi trường trung tính đến kiềm ($pH > pH_{pzc}$), bề mặt TiO_2 mang điện tích âm, làm giảm tương tác tĩnh điện với CR, đồng thời có thể làm tăng quá trình tái kết hợp e^-/h^+, dẫn đến giảm sự hình thành các gốc •OH và $•O_2^-$, từ đó làm suy giảm hiệu suất quang xúc tác (Li et al., 2019). Nhìn chung, pH là yếu tố chi phối quan trọng đến cả cơ chế phản ứng và hiệu quả xử lý; trong đó, pH = 3 được xác định là điều kiện thích hợp cho quá trình quang xúc tác của hệ TiO_2.

3.4. Ảnh hưởng của liều lượng TiO_2 đến hiệu suất quang xúc tác

Thí nghiệm được thực hiện nhằm đánh giá ảnh hưởng của khối lượng chất xúc tác TiO_2 đến hiệu suất phân hủy CR. Liều lượng TiO_2 được thay đổi trong khoảng từ 0,25 g đến 1 g/L.

Trong quá trình khảo sát, các thông số khác được giữ không đổi, bao gồm: pH = 3, thời gian phản ứng 60 phút, nồng độ CR 10 mg/L, cường độ chiếu xạ với 5 đèn UV và nhiệt độ phòng (25 ± 2 °C), nhằm đảm bảo đánh giá chính xác ảnh hưởng riêng biệt của khối lượng xúc tác đến hiệu suất phân hủy.

Kết quả ở Hình 8 cho thấy liều lượng TiO_2 ảnh hưởng đáng kể đến hiệu quả phân hủy CR. Nồng độ CR sau phản ứng giảm khi tăng liều lượng từ 0,25 lên 0,75 g/L, đạt giá trị thấp nhất tại 0,75 g/L (1,21 mg/L, giảm 8,79 mg/L so với ban đầu); sau đó, tăng trở lại ở 1 g/L (2,09 mg/L). Xu hướng này phù hợp với hiệu suất phân hủy, tăng từ 76,86% (0,25 g/L) lên 87,92% (0,75 g/L), rồi giảm còn 79,07% tại 1 g/L. Phân tích thống kê ($p < 0,05$) cho thấy liều lượng 0,75 g/L cho hiệu suất cao nhất và khác biệt có ý nghĩa so với các mức còn lại.



Hình 8. Ảnh hưởng của liều lượng TiO_2 đến hiệu suất phân hủy CR

Ghi chú: Số liệu trình bày là giá trị trung bình ± độ lệch chuẩn, n = 3. Những giá trị trong cùng một cột có kí tự (a, b) khác nhau thì khác biệt có ý nghĩa thống kê ở mức α = 5%.

Sự gia tăng hiệu suất trong khoảng 0,25 – 0,75 g/L có thể được giải thích bởi sự gia tăng số lượng vị trí hoạt tính trên bề mặt xúc tác, từ đó thúc đẩy quá trình hấp phụ CR và tăng cường hình thành các cặp electron–lỗ trống (e^-/h^+) dưới chiếu xạ UV. Các e^- và h^+ này tiếp tục tham gia tạo các gốc oxy hóa mạnh như •OH và $•O_2^-$, đóng vai trò chính trong quá trình phân hủy CR. Tại 0,75 g/L, hệ đạt cân bằng tối ưu giữa số lượng vị trí hoạt động và khả năng xuyên thấu ánh sáng, dẫn đến hiệu suất cao nhất.

Khi tăng liều lượng lên 1 g/L, hiệu suất giảm có thể do hiện tượng che chắn ánh sáng và sự kết tụ của các hạt TiO_2, làm giảm khả năng hấp thụ photon, tăng tái kết hợp e^-/h^+ và hạn chế sự hình thành các gốc •OH và $•O_2^-$. Đồng thời, sự gia tăng độ đục của hệ cũng làm giảm hiệu quả truyền ánh sáng vào dung dịch, từ đó làm suy giảm hoạt tính quang xúc tác (Belver et al., 2019).

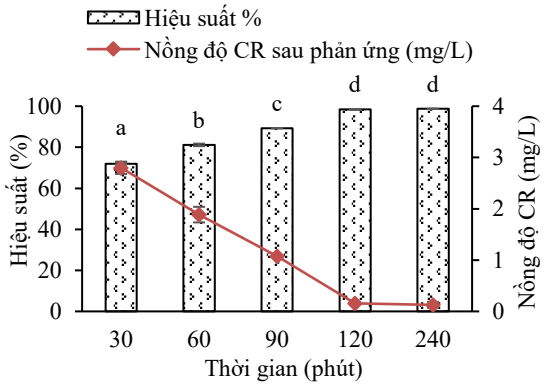
Xu hướng này phù hợp với các nghiên cứu trước đây, trong đó hiệu suất quang xúc tác tăng theo liều lượng xúc tác đến một giá trị tối ưu, sau đó giảm khi vượt quá ngưỡng do hiện tượng kết tụ và cản trở ánh sáng (Hamasalih et al., 2026; Sowmya et al., 2018).

Nhìn chung, liều lượng TiO_2 là yếu tố quan trọng chi phối hiệu quả phản ứng, trong đó 0,75 g/L được xác định là điều kiện tối ưu, đảm bảo hiệu suất cao đồng thời sử dụng vật liệu một cách hợp lý.

3.5. Ảnh hưởng của thời gian phản ứng đến hiệu suất quang xúc tác

Thí nghiệm được thực hiện nhằm đánh giá ảnh hưởng của thời gian phản ứng đến hiệu suất quang xúc tác phân hủy Congo Red. Thời gian phản ứng được khảo sát tại các mốc 30, 60, 90, 120 và 240 phút.

Trong quá trình khảo sát, các thông số khác được giữ không đổi, bao gồm: pH = 3, liều lượng TiO_2 0,75 g/L, nồng độ CR 10 mg/L, cường độ chiếu xạ với 5 đèn UV và nhiệt độ phòng (25 ± 2 °C), nhằm đảm bảo đánh giá chính xác ảnh hưởng riêng biệt của thời gian phản ứng đến hiệu suất phân hủy.



Hình 9. Ảnh hưởng thời gian phản ứng đến hiệu suất phân hủy CR

Ghi chú: Số liệu trình bày là giá trị trung bình ± độ lệch chuẩn, n = 3. Những giá trị trong cùng một cột có kí tự (a, b, c, d, e) khác nhau thì khác biệt có ý nghĩa thống kê ở mức α = 5%.

Kết quả ở Hình 9 cho thấy thời gian phản ứng ảnh hưởng đáng kể đến hiệu quả phân hủy CR. Nồng độ CR giảm mạnh khi tăng thời gian từ 30 phút (2,80 mg/L) đến 120 phút (0,16 mg/L), sau đó gần như không thay đổi ở 240 phút (0,13 mg/L). Xu hướng này phù hợp với hiệu suất xử lý, tăng từ 72,01% (30 phút) lên 98,40% (120 phút) và đạt 98,74% tại 240 phút; tuy nhiên, mức tăng sau 120 phút là không đáng kể. Phân tích thống kê ($p < 0,05$) cho thấy sự khác biệt rõ rệt giữa giai đoạn đầu (30 – 60 phút) và các thời điểm sau, trong khi chênh lệch giữa 120 và 240 phút không có ý nghĩa thực tiễn. Do đó, 120 phút được xem là thời gian phản ứng tối ưu.

Về cơ chế, trong giai đoạn đầu, dưới chiếu xạ UV, TiO_2 tạo ra các cặp electron – lỗ trống (e^-/h^+), trong đó h^+ oxy hóa H_2O/OH^- tạo gốc •OH, còn e^- khử O_2 hòa tan tạo gốc $•O_2^-$. Các gốc oxy hóa mạnh này nhanh chóng tấn công và phân hủy phân tử CR, dẫn đến sự gia tăng hiệu suất theo thời gian. Khi kéo dài thời gian phản ứng, tốc độ phân hủy giảm dần do nồng độ CR giảm, số vị trí hoạt tính bị chiếm dụng, đồng thời hiện tượng tái kết hợp e^-/h^+ trở nên đáng kể hơn, làm hạn chế sự hình thành các gốc •OH và

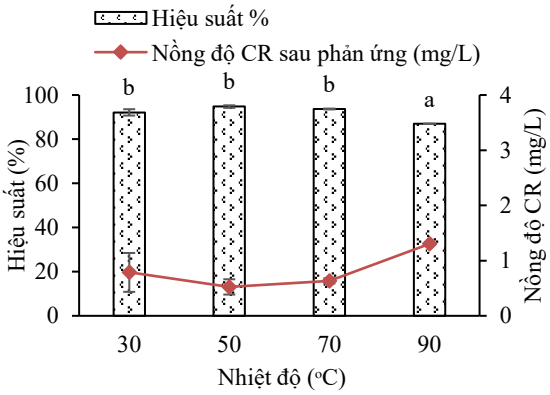
•O_2^-. Ngoài ra, sự tích lũy các sản phẩm trung gian cũng có thể cạnh tranh vị trí phản ứng, góp phần làm hệ đạt trạng thái gần bão hòa sau 120 phút (Belver et al., 2019).

Xu hướng này phù hợp với các nghiên cứu trước đây; trong đó, hiệu suất quang xúc tác tăng nhanh ở giai đoạn đầu và đạt trạng thái cân bằng sau một thời gian phản ứng nhất định, khi tốc độ tạo gốc oxy hóa và tốc độ phân hủy chất ô nhiễm đạt trạng thái cân bằng động (Quintanilla-Villanueva et al., 2025).

3.6. Ảnh hưởng của nhiệt độ đến hiệu suất quang xúc tác

Thí nghiệm được thực hiện nhằm đánh giá ảnh hưởng của nhiệt độ đến quá trình quang xúc tác phân hủy Congo Red, với các mức nhiệt độ khảo sát 30, 50, 70 và 90°C.

Trong quá trình khảo sát, các thông số khác được giữ không đổi, bao gồm: pH = 3, liều lượng TiO_2 0,75 g/L, thời gian phản ứng 120 phút, nồng độ CR 10 mg/L và cường độ chiếu xạ với 5 đèn UV, nhằm đảm bảo đánh giá chính xác ảnh hưởng riêng biệt của nhiệt độ đến hiệu suất phân hủy.



Hình 10. Ảnh hưởng của của nhiệt độ môi trường đến hiệu suất phân hủy CR

Ghi chú: Số liệu trình bày là giá trị trung bình ± độ lệch chuẩn, n = 3. Những giá trị trong cùng một cột có kí tự (a, b, c) khác nhau thì khác biệt có ý nghĩa thống kê ở mức α = 5%

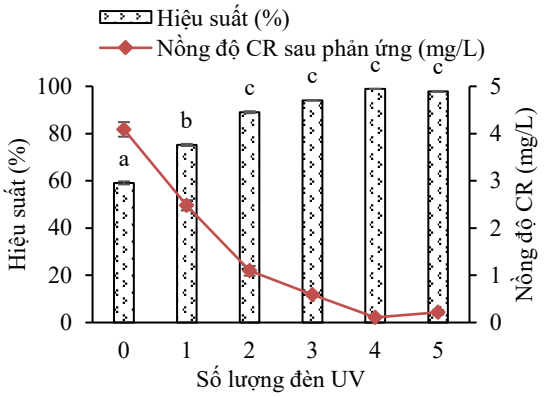
Kết quả ở Hình 10 cho thấy nhiệt độ môi trường có ảnh hưởng nhất định đến hiệu quả phân hủy CR. Nồng độ CR sau phản ứng giảm từ 0,76 mg/L (30°C) xuống 0,52 mg/L (50°C), sau đó tăng lên 1,30 mg/L tại 90°C. Xu hướng này tương ứng với hiệu suất xử lý, dao động trong khoảng 86,97 – 94,76%, trong đó đạt 92,14% tại 30 °C, cao nhất tại 50°C (94,76%) và giảm còn 86,97% ở 90°C. Phân tích thống kê ($p > 0,05$) cho thấy không có sự khác biệt có ý nghĩa giữa 30 – 70°C, trong khi 90°C khác biệt rõ rệt ($p < 0,05$). Mặc dù hiệu suất cao nhất ghi nhận tại 50°C, 30°C được xem là điều kiện phù hợp hơn do đạt hiệu quả tương đương về mặt thống kê nhưng tiêu tốn ít năng lượng hơn.

Về cơ chế, sự gia tăng hiệu suất từ 30 đến 50°C có thể do nhiệt độ cao hơn thúc đẩy quá trình khuếch tán của CR trong dung dịch và tăng cường tương tác với bề mặt xúc tác, đồng thời hỗ trợ quá trình hình thành các cặp electron – lỗ trống (e^-/h^+) dưới chiếu xạ. Các e^- và h^+ tiếp tục tham gia tạo các gốc oxy hóa mạnh như •OH và •O_2^-, đóng vai trò chính trong phân hủy CR. Tuy nhiên, ở nhiệt độ cao hơn (≥70°C), hiệu suất giảm có thể do gia tăng tái kết hợp e^-/h^+, làm giảm số lượng gốc •OH và •O_2^- được tạo thành. Ngoài ra, sự giảm độ hòa tan của O_2 ở nhiệt độ cao cũng hạn chế quá trình tạo gốc •O_2^-, từ đó làm suy giảm hiệu quả quang xúc tác (Li et al., 2019).

Nhìn chung, nhiệt độ ảnh hưởng đến cả quá trình khuếch tán và cơ chế phản ứng quang xúc tác; trong đó, 30°C được đề xuất là điều kiện vận hành tối ưu, đảm bảo hiệu suất xử lý cao đồng thời tiết kiệm năng lượng.

3.7. Ảnh hưởng của cường độ UV đến hiệu suất quang xúc tác

Thí nghiệm được thực hiện nhằm đánh giá ảnh hưởng của cường độ chiếu xạ UV đến hiệu suất quang xúc tác phân hủy CR thông qua việc thay đổi số lượng đèn UV trong khoảng 0 – 5 đèn.



Hình 11. Ảnh hưởng cường độ UV đến hiệu suất xử lý độ màu

Ghi chú: Số liệu trình bày là giá trị trung bình ± độ lệch chuẩn, n = 3. Những giá trị trong cùng một cột có kí tự (a, b) khác nhau thì khác biệt có ý nghĩa thống kê ở mức α = 5%.

Trong quá trình khảo sát, các thông số khác được giữ không đổi, bao gồm: pH = 3, liều lượng TiO_2

0,75 g/L, thời gian phản ứng 120 phút, nồng độ CR 10 mg/L và nhiệt độ 30°C, nhằm đảm bảo đánh giá chính xác ảnh hưởng riêng biệt của cường độ UV đến hiệu suất phân hủy.

Kết quả ở Hình 11 cho thấy cường độ chiếu xạ (thông qua số lượng đèn UV) ảnh hưởng mạnh đến hiệu quả phân hủy CR. Nồng độ CR sau phản ứng giảm đáng kể khi tăng số lượng đèn từ 0 đến 4, từ 4,09 mg/L xuống 0,11 mg/L, sau đó tăng nhẹ ở 5 đèn (0,22 mg/L). Xu hướng này phù hợp với hiệu suất phân hủy, tăng từ 59,12% (0 đèn) lên cực đại 98,92% tại 4 đèn, rồi giảm nhẹ còn 97,85% ở 5 đèn. Phân tích thống kê cho thấy sự khác biệt có ý nghĩa giữa nghiệm thức không chiếu xạ và các mức còn lại, trong đó 4 đèn được xác định là điều kiện tối ưu.

Hiệu suất thấp khi không có UV khẳng định vai trò thiết yếu của ánh sáng trong việc kích hoạt TiO_2. Dưới chiếu xạ UV, các cặp electron – lỗ trống (e^-/h^+) được hình thành; trong đó, h^+ oxy hóa H_2O/OH^- tạo gốc •OH, còn e^- khử O_2 hòa tan tạo gốc $•O_2^-$. Khi cường độ chiếu xạ tăng (tăng số đèn), số lượng cặp e^-/h^+ và các gốc oxy hóa mạnh (•OH, $•O_2^-$) tăng lên, từ đó thúc đẩy quá trình phân hủy CR (Castellanos et al., 2019).

Tuy nhiên, khi vượt quá mức tối ưu (≥5 đèn), hiệu suất có xu hướng giảm nhẹ, có thể do hiện tượng bão hòa ánh sáng, tăng tái kết hợp e^-/h^+ hoặc tán xạ ánh sáng trong hệ, làm giảm hiệu quả sử dụng photon. Ngoài ra, ở cường độ chiếu xạ cao, tốc độ tạo gốc tự do có thể vượt quá khả năng phản ứng với chất nền, dẫn đến suy giảm hiệu quả tổng thể (Chiou, 2008).

Nhìn chung, cường độ UV là yếu tố quyết định trong quá trình quang xúc tác, trong đó 4 đèn được xác định là điều kiện tối ưu, đảm bảo hiệu suất phân hủy cao và ổn định.

4. KẾT LUẬN

Kết quả nghiên cứu này đã đánh giá hiệu quả của vật liệu nano TiO_2 trong quá trình quang xúc tác phân hủy thuốc nhuộm CR trong nước. Kết quả cho thấy điều kiện tối ưu là pH = 3, liều lượng TiO_2 0,75 g/L, thời gian phản ứng 120 phút, nồng độ CR 10 mg/L, nhiệt độ 30°C và sử dụng 4 đèn UV, đạt hiệu suất phân hủy khoảng 97 – 99%. Vật liệu TiO_2 tổng hợp có dạng hạt gần hình cầu, kích thước 20 – 80 nm, phân bố đồng đều, diện tích bề mặt riêng 46.853 m^2/g, thể tích lỗ rỗng 0,05 cm^3/g và đường kính lỗ rỗng trung bình 2,34 nm, cho thấy tiềm năng thuận lợi cho quá trình quang xúc tác.

Hiệu suất phân hủy CR phụ thuộc đáng kể vào các điều kiện vận hành; trong đó, pH thấp, liều lượng xúc tác phù hợp, thời gian phản ứng và cường độ chiếu xạ đóng vai trò quan trọng. Nhiệt độ 30°C được xem là phù hợp để cân bằng giữa hiệu quả xử lý và tiết kiệm năng lượng. Nhìn chung, vật liệu TiO_2 thể hiện khả năng quang xúc tác hiệu quả và có tiềm năng ứng dụng trong xử lý nước thải chứa thuốc nhuộm.

Một hạn chế của nghiên cứu là chưa thực hiện đầy đủ các nghiệm thức đối chứng, bao gồm thí nghiệm không có vật liệu xúc tác để đánh giá quang phân và thí nghiệm trong điều kiện tối để đánh giá hấp phụ. Các nghiên cứu tiếp theo cần bổ sung những nghiệm thức này để làm rõ cơ chế phân hủy và nâng cao độ tin cậy của kết quả.

Hơn nữa, các thí nghiệm hiện tại sử dụng hệ một cấu tử với CR, trong khi nước thải thực tế thường chứa nhiều thành phần khác nhau có thể cạnh tranh vị trí hấp phụ trên bề mặt vật liệu, dẫn đến giảm hiệu suất. Do đó, nghiên cứu tiếp theo nên đánh giá hiệu quả của TiO_2 trong các hệ phức tạp hơn, bao gồm hệ đa cấu tử và nước thải thực tế, nhằm xác định khả năng ứng dụng thực tiễn.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

Afkhami, A., & Moosavi, R. (2010). Adsorptive removal of Congo red, a carcinogenic textile dye, from aqueous solutions by maghemite nanoparticles. *Journal of Hazardous Materials*, *174*(1–3), 398–403. https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2009.09.066

Ahmad, W., Jaiswal, K. K., & Soni, S. (2020). Green synthesis of titanium dioxide (TiO_2) nanoparticles by using *Mentha arvensis* leaves extract and its antimicrobial properties. *Inorganic and Nano-Metal Chemistry*, *50*(10), 1032–1038. https://doi.org/10.1080/24701556.2020.1732419

Atkar, A., Pabba, M., Sekhar, S. C., & Sridhar, S. (2021). In Fundamentals of Natural Fibres and Textiles, *Current limitations and challenges in the global textile sector*, 741–764. Elsevier. https://doi.org/10.1016/B978-0-12-821483-1.00004-8

Banfield, J. (1998). Thermodynamic analysis of phase stability of nanocrystalline titania. *Journal of Materials Chemistry*, *8*(9), 2073-2076. https://doi.org/10.1039/A802619J

Baran, W., Adamek, E., & Makowski, A. (2008). The influence of selected parameters on the photocatalytic degradation of azo-dyes in the

presence of TiO_2 aqueous suspension. *Chemical Engineering Journal*, *145*(2), 242-248. https://doi.org/10.1016/j.cej.2008.04.021

Belver, C., Bedia, J., Gómez-Avilés, A., Peñas-Garzón, M., & Rodriguez, J. J. (2019). In Nanoscale Materials in Water Purification, *Semiconductor photocatalysis for water purification*, pp. 581–651. Elsevier. https://doi.org/10.1016/B978-0-12-813926-4.00028-8

Castellanos, N. J., Martinez Rojas, Z., Camargo, H. A., Biswas, S., & Granados-Oliveros, G. (2019). CR decomposition by photocatalytic formation of hydroxyl radicals (·OH) using titanium metal–organic frameworks. *Transition Metal Chemistry*, *44*(1), 77-87. https://doi.org/10.1007/s11243-018-0271-z

Chen, X., & Mao, S. S. (2007). Titanium dioxide nanomaterials: Synthesis, properties, modifications, and applications. *Chemical Reviews, 107*, 2891–2959. https://doi.org/10.1021/cr0500535

Chiou, C. H., Wu, C. Y., & Juang, R. S. (2008). Influence of operating parameters on photocatalytic degradation of phenol in UV/TiO_2 process. *Chemical Engineering Journal*, *139*(2), 322-329. https://doi.org/10.1016/j.cej.2007.08.002

Diebold, U. (2003). The surface science of titanium dioxide. *Surface Science Reports*, *48*(5-8), 53-229. https://doi.org/10.1016/S0167-5729(02)00100-0

Fischer, K., Gawel, A., Rosen, D., Krause, M., Abdul Latif, A., Griebel, J., Prager, A., & Schulze, A. (2017). Low-temperature synthesis of anatase/rutile/brookite TiO_2 nanoparticles on a polymer membrane for photocatalysis. *Catalysts*, *7*(7), 209. https://doi.org/10.3390/catal7070209

Fujishima, A., Zhang, X., & Tryk, D. A. (2008). TiO_2 photocatalysis and related surface phenomena. *Surface Science Reports*, *63*(12), 515-582. https://doi.org/10.1016/j.surfrep.2008.10.001

Habibi, M. H., Hassanzadeh, A., & Mahdavi, S. (2005). The effect of operational parameters on the photocatalytic degradation of three textile azo dyes in aqueous TiO_2 suspensions. *Journal of Photochemistry and Photobiology A: Chemistry*, *172*(1), 89-96. https://doi.org/10.1016/j.jphotochem.2004.11.009

Hamasalih, G. H., Mohammed, S. J., & Aziz, S. B. (2026). Sustainable TiO_2 photocatalysts modified with hollyhock-derived carbon dots and natural dye for enhanced visible-light degradation of Congo red: a comparative study. *Materials Advances*, 7, 913–932. https://doi.org/10.1039/D5MA01037C

Hanaor, D. A., & Sorrell, C. C. (2011). Review of the anatase to rutile phase transformation. *Journal of Materials Science*, *46*(4), 855-874. https://doi.org/10.1007/s10853-010-5113-0

Harun, N. H., Rahman, M. N. A., Kamarudin, W. F. W., Irwan, Z., Muhammud, A., Akhir, N. E. F. M., & Yaafar, M. R. (2018). Photocatalytic degradation of CR dye based on titanium dioxide using solar and UV lamp. *Journal of Fundamental and Applied Sciences*, *10*(1S), 832–846.

Hashemi, S. H., & Kaykhaii, M. (2022). Azo dyes: Sources, occurrence, toxicity, sampling, analysis, and their removal methods. In T. Dalu & N. T. Tavengwa (Eds.), *Emerging freshwater pollutants: Analysis, fate and regulations* (pp. 267–287). Elsevier. https://doi.org/10.1016/B978-0-12-822850-0.00013-2

Khadhraoui, M., Trabelsi, H., Ksibi, M., Bouguerra, S., & Elleuch, B. (2009). Discoloration and detoxicification of a CR dye solution by means of ozone treatment for a possible water reuse. *Journal of Hazardous Materials*, *161*(2–3), 974–981. https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2008.04.060

Lee, S. Y., & Park, S. J. (2013). TiO_2 photocatalyst for water treatment applications. *Journal of Industrial and Engineering Chemistry*, *19*(6), 1761–1769. https://doi.org/10.1016/j.jiec.2013.07.012

Li, Y., Chen, F., He, R., Wang, Y., & Tang, N. (2019). Semiconductor photocatalysis for water purification. In S. Thomas, D. Pasquini, S.-Y. Leu, & D. A. Gopakumar (Eds.), *Nanoscale materials in water purification* (pp. 689–705). Elsevier. https://doi.org/10.1016/B978-0-12-813926-4.00030-6

Morin-Crini, N., Lichtfouse, E., Fourmentin, M., Ribeiro, A. R. L., Noutsopoulos, C., Mapelli, F., Fenyvesi, E., Fenyvesi, E, Vieira, M. G. A., Picos-Corrales, L. A., Moreno-Piraján, J. C., Giraldo, L., Sohajda, T., Huq, M. M., Soltan, J., Torri, J., Magureanu, M., Bradu, C., & Crini, G. (2022). Removal of emerging contaminants from wastewater using advanced treatments. A review. *Environmental Chemistry Letters*, *20*(2), 1333-1375. https://doi.org/10.1007/s10311-021-01379-5

Neppolian, B., Choi, H. C., Sakthivel, S., Arabindoo, B., & Murugesan, V. (2002). Solar/UV-induced photocatalytic degradation of three commercial textile dyes. *Journal of Hazardous Materials*, *89*(2–3), 303–317. https://doi.org/10.1016/S0304-3894(01)00329-6

Nikravesh, B., Shomalnasab, A., Nayyer, A., Aghababaei, N., Zarebi, R., & Ghanbari, F. (2020). UV/Chlorine process for dye degradation in aqueous solution: Mechanism, affecting factors and toxicity evaluation for textile wastewater. *Journal of Environmental Chemical Engineering*, *8*(5), 104244. https://doi.org/10.1016/j.jece.2020.104244

Ngo, A. C. R., & Tischler, D. (2022). Microbial degradation of azo dyes: approaches and prospects for a hazard-free conversion by microorganisms. *International journal of environmental research and public health*, *19*(8), 4740. https://doi.org/10.3390/ijerph19084740

Nguyen, T. H., & Tran, Q. A. (2023). Investigation of the adsorption characteristics of TiO_2 materials using BET and BJH methods. *Journal of Advanced Materials Science*, *10*(3), 570–580.

Palma Soto, E., Rodriguez Gonzalez, C. A., Luque Morales, P. A., Reyes Blas, H. & Carrillo Castillo, A. (2024). Degradation of organic dye Congo red by heterogeneous solar photocatalysis with Bi_2S_3, Bi_2S_3/TiO_2, and Bi_2S_3/ZnO thin films. *Catalysts, 14*(9), 589. https://doi.org/10.3390/catal14090589

Pookmanee, P., & Phanichphant, S. (2009). Titanium dioxide powder prepared by a sol-gel method. *Journal of Ceramic Processing Research*, *10*(2), 167–170.

Quintanilla-Villanueva, G. E., Sicardi-Segade, A., Luna-Moreno, D., Núñez-Salas, R. E., Villarreal-Chiu, J. F., & Rodríguez-Delgado, M. M. (2025). Recent advances in CR degradation by TiO_2-based photocatalysts under visible light. *Catalysts*, *15*(1), 84. https://doi.org/10.3390/catal15010084

Reza, K. M., Kurny, A. S. W., & Gulshan, F. (2017). Parameters affecting the photocatalytic degradation of dyes using TiO_2: a review. *Applied Water Science*, *7*(4), 1569-1578. https://doi.org/10.1007/s13201-015-0367-y

Siddiqui, S. I., Allehyani, E. S., Al-Harbi, S. A., Hasan, Z., Abomuti, M. A., Rajor, H. K., & Oh, S. (2023). Investigation of CR toxicity towards different living organisms: a review. *Processes*, *11*(3), 807. https://doi.org/10.3390/pr11030807

Sowmya, S. R., Madhu, G. M., & Hashir, M. (2018). Studies on nano-engineered TiO_2 photocatalyst for effective degradation of dye. *IOP Conference Series: Materials Science and Engineering, 310*(1), *012026.* https://doi.org/10.1088/1757-899X/310/1/012026

Sugimoto, T., & Zhou, X. (2002). Synthesis of uniform anatase TiO_2 nanoparticles by the gel–sol method: 2. Adsorption of OH^- ions to $Ti(OH)_4$ gel and TiO_2 particles. *Journal of Colloid and Interface Science*, *252*(2), 347–353. https://doi.org/10.1006/jcis.2002.8480

Vigneshwaran, S., Park, C. M., & Meenakshi, S. (2021). Designed fabrication of sulfide-rich bi-metallic-assembled MXene layered sheets with dramatically enhanced photocatalytic performance for Rhodamine B removal. *Separation and Purification Technology, 258, 118003.* https://doi.org/10.1016/j.seppur.2020.118003

Yahaya, M. Z., Abdullah, M. Z., & Mohamad, A. A. (2015). Centrifuge and storage precipitation of TiO_2 nanoparticles by the sol–gel method. *Journal of Alloys and Compounds*, *651*, 557-564. https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2015.08.110

Zhang, J., Zhou, P., Liu, J., & Yu, J. (2014). New understanding of the difference of photocatalytic activity among anatase, rutile and brookite TiO_2. *Physical Chemistry Chemical Physics*, *16*(38), 20382-20386. https://doi.org/10.1039/C4CP02201G