



DOI: <https://doi.org/10.52714/dthu.14.04S.2025.1566>

ĐÁNH GIÁ QUÁ TRÌNH HẤP PHỤ METHYLENE BLUE BẰNG NANOCELLULOSE TỪ XƠ DỪA TƯƠI

**Lương Huỳnh Vũ Thanh^{1,2*}, Lê Thành Phú², Dương Quốc Phú²,
Nguyễn Trọng Tuấn³ và Phạm Duy Toàn³**

¹Khoa Kỹ thuật hoá học, Trường Đại học Cần Thơ, Việt Nam

²Phòng thí nghiệm Ứng dụng kỹ thuật hoá học, Trường Đại học Cần Thơ, Việt Nam

³Bộ môn Khoa học sức khỏe, Trường Đại học Cần Thơ, Việt Nam

*Tác giả liên hệ, Email: lvhthanh@ctu.edu.vn

Lịch sử bài báo

Ngày nhận: 31/3/2025; Ngày nhận chỉnh sửa: 24/5/2025; Ngày duyệt đăng: 27/6/2025

Tóm tắt

Nghiên cứu này nhằm mục tiêu tổng hợp nanocellulose từ xơ dừa tươi và đánh giá khả năng hấp phụ chất màu hữu cơ Methylene Blue (MB). Các yếu tố ảnh hưởng đến khả năng hấp phụ MB trong môi trường nước, bao gồm pH, thời gian hấp phụ, nồng độ MB và nhiệt độ, đã được khảo sát. Các phương pháp phân tích như phân tích nhiệt trọng lượng (TGA), nhiễu xạ tia X (XRD), phổ hồng ngoại biến đổi (FT-IR), cùng với phân tích hình thái bề mặt bằng SEM và TEM, đã được sử dụng để đánh giá đặc tính của vật liệu và xác nhận quá trình tổng hợp nanocellulose từ xơ dừa tươi. Điều kiện tối ưu cho quá trình tổng hợp là sử dụng acid H_2SO_4 nồng độ 12 M với tỷ lệ 1:10 (w/v) xơ dừa:acid, thời gian phản ứng 45 phút ở 30°C. Kết quả cho thấy diện tích bề mặt riêng của Nanocellulose đạt 5,062 m²/g, với lỗ xốp thuộc loại mesopore có đường kính 23,724 Å. Vật liệu Nanocellulose cho thấy khả năng hấp phụ MB hiệu quả trong môi trường nước dưới các điều kiện tối ưu: pH 6, thời gian hấp phụ 15 giờ và nồng độ MB ban đầu 25 mg/L. Quá trình hấp phụ MB tuân theo mô hình đẳng nhiệt hấp phụ Langmuir, động học bậc hai và chủ yếu là quá trình hấp phụ vật lý.

Từ khóa: hấp phụ, methylene blue, nanocellulose, xơ dừa tươi.

Trích dẫn: Lương, H. V. T., Lê, T. P., Dương, Q. P., Nguyễn, T. T., & Phạm, D. T. (2025). Đánh giá quá trình hấp phụ methylene blue bằng nanocellulose từ xơ dừa tươi. *Tạp chí Khoa học Đại học Đồng Tháp*, 14(04S), 77-93. <https://doi.org/10.52714/dthu.14.04S.2025.1566>

Copyright © 2025 The author(s). This work is licensed under a CC BY-NC 4.0 License.

EVALUATING ADSORPTION OF METHYLENE BLUE USING NANOCELLULOSE FROM FRESH COCONUT FIBER

**Luong Huynh Vu Thanh^{1,2*}, Le Thanh Phu², Duong Quoc Phu²,
Nguyen Trong Tuan³, and Pham Duy Toan³**

¹*Faculty of Chemical Engineering, Can Tho University, Vietnam*

²*Applied Chemical Engineering Lab, Can Tho University, Vietnam*

³*Department of Health Sciences, Can Tho University, Vietnam*

**Corresponding author, Email: lhvthanh@ctu.edu.vn*

Article history

Received: 31/3/2025; Received in revised form: 24/5/2025; Accepted: 27/6/2025

Abstract

This study aims to synthesize nanocellulose from fresh coconut fiber and evaluate its ability to adsorb the organic dye Methylene Blue (MB). Accordingly, it investigated factors influencing MB adsorption in aqueous environments, including pH, adsorption time, MB concentration, and temperature. Analytical techniques included Thermogravimetric Analysis (TGA), X-ray Diffraction (XRD), Fourier-Transform Infrared Spectroscopy (FT-IR), as well as surface morphology analysis using Scanning Electron Microscopy (SEM) and Transmission Electron Microscopy (TEM). These techniques were employed to assess the properties of the material and confirm the successful synthesis of nanocellulose from fresh coconut fiber. The optimal synthesis conditions involved using 12 M sulfuric acid at a 1:10 (w/v) fiber-to-acid ratio, with a reaction time of 45 minutes at 30°C. The results showed that the specific surface area of Nanocellulose was 5.062 m²/g, with mesoporous pores having a diameter of 23.724 Å. The Nanocellulose material exhibited effective MB adsorption in water under optimal conditions: pH 6, adsorption time of 15 h, and initial MB concentration of 25 mg/L. The MB adsorption process followed the Langmuir isotherm model, second-order kinetics, and was predominantly a physical adsorption process.

Keywords: *adsorption, fresh coconut fiber, Methylene Blue, nanocellulose.*

1. Giới thiệu

Ô nhiễm môi trường nước do thuốc nhuộm là một vấn đề nghiêm trọng, đặc biệt ở các khu vực có ngành công nghiệp dệt may phát triển. Thuốc nhuộm, bao gồm cả các loại thuốc nhuộm hữu cơ như Methylene Blue (MB), thường được thải ra từ các nhà máy mà không qua xử lý triệt để, gây ô nhiễm nghiêm trọng cho nguồn nước (Al-Tohamy & cs., 2022). Do đặc tính bền màu và khó phân hủy sinh học, thuốc nhuộm tồn tại lâu trong môi trường nước, làm thay đổi màu sắc và giảm khả năng xuyên sáng, từ đó ảnh hưởng đến quá trình quang hợp của thực vật thủy sinh (Yang & cs., 2011). Hơn nữa, một số hợp chất trong thuốc nhuộm có thể gây độc cho thủy sinh vật, làm suy giảm đa dạng sinh học và phá vỡ cân bằng hệ sinh thái. Khi nước bị ô nhiễm bởi thuốc nhuộm thấm vào nguồn nước ngầm hoặc được sử dụng trong sinh hoạt, nó có thể ảnh hưởng đến sức khỏe con người, gây kích ứng da, và có nguy cơ gây ung thư nếu tiếp xúc lâu dài (Mashkoor & Nasar, 2020).

Trong những năm gần đây, nhiều nghiên cứu đã tập trung vào việc ứng dụng vật liệu từ các nguồn phụ phẩm nông nghiệp để xử lý ô nhiễm môi trường nước. Nanocellulose, với tính thân thiện với môi trường, diện tích bề mặt lớn và khả năng hấp phụ hiệu quả, đã thu hút sự quan tâm lớn trong việc xử lý nước thải. Đặc biệt, nanocellulose được nghiên cứu rộng rãi trong việc xử lý các thuốc nhuộm hữu cơ như MB, một chất gây ô nhiễm phổ biến trong nước thải ngành công nghiệp dệt may. Nghiên cứu của Rahman và cộng sự (2025) đã chiết xuất nanocellulose từ xơ dừa bằng phương pháp xử lý kiềm và siêu âm, cho thấy hiệu suất hấp phụ MB đạt 78% sau 120 phút, với điều kiện tối ưu pH = 7 và nồng độ MB ban đầu 50 mg/L. Tuy nhiên, do thiếu nhóm chức hoạt động, khả năng hấp phụ của nanocellulose từ xơ dừa nguyên bản vẫn còn hạn chế so với vật liệu biến tính. Trong một nghiên cứu khác, Oyarce và cộng sự (2022) đã biến tính cellulose nano sợi (CNF) bằng cách gắn nhóm carboxyl (-COOH) và sulfonate (-SO₃H), giúp tăng cường khả năng hấp phụ lên đến 92% trong vòng 60 phút. Nhóm sulfonate tăng cường tương tác tĩnh điện với MB, trong khi nhóm carboxyl giúp ổn định cấu trúc và thúc đẩy quá trình hấp phụ.

Với mục tiêu tận dụng nguồn nguyên liệu xơ dừa sẵn có và chuyển đổi phụ phẩm này thành vật liệu có khả năng loại bỏ hiệu quả thuốc nhuộm hữu cơ trong môi trường nước, nghiên cứu này tập trung vào việc ứng dụng nanocellulose được tổng hợp từ xơ dừa tươi vào trong đánh giá quá trình hấp phụ MB. Nghiên cứu sẽ khảo sát và đánh giá các yếu tố ảnh hưởng đến quá trình hấp phụ MB, bao gồm pH, nồng độ ban đầu của thuốc nhuộm MB (mg/L), thời gian hấp phụ (phút), liều lượng chất hấp phụ (g/L) và nhiệt độ hấp phụ. Từ kết quả thực nghiệm, các mô hình động học, đẳng nhiệt và nhiệt động lực học hấp phụ của MB lên vật liệu nanocellulose sẽ được xây dựng.

2. Phương pháp nghiên cứu

2.1. Nguyên liệu

Xơ dừa tươi được thu gom tại chợ Xuân Khánh Thành Phố Cần Thơ. Các hóa chất Hydrogen Peroxide (H₂O₂), Sodium hydroxide (NaOH), Sulfuric Acid (H₂SO₄), Formic Acid (HCOOH) được cung cấp bởi công ty hóa chất Xilong. Các hóa chất được sử dụng mà không cần phải tinh chế thêm.

2.2. Thu hồi Cellulose từ xơ dừa tươi và tổng hợp nano cellulose

Quy trình phân lập cellulose từ xơ dừa bao gồm bốn giai đoạn chính như sau (Vu & cs., 2024): (i) Tiền xử lý xơ dừa: Xơ dừa sau khi xử lý sơ bộ được cắt thành mẫu 5g và cho vào cốc. Sau đó, mẫu được khuấy với nước cất theo tỉ lệ 1:20 ở nhiệt độ 90°C trong 2 giờ nhằm loại bỏ tạp chất bám bên ngoài. Hỗn hợp sau đó được lọc và sấy khô ở 70°C. (ii) Xử lý với formic acid: Sau quá trình tiền xử lý, xơ dừa được khuấy hoàn lưu trong dung dịch formic acid

90% với tỉ lệ 1:10 ở nhiệt độ 80°C trong 2 giờ. Sau đó, mẫu được rửa một lần với formic acid tinh khiết, tiếp theo là rửa với nước cất đun sôi để loại bỏ dư lượng acid, và sấy khô ở 70°C. (iii) Xử lý với dung dịch FPA: Tiếp theo, xơ dừa được khuấy hoàn lưu trong dung dịch FPA (gồm 90% formic acid, 4% H₂O₂ và 6% nước cất) ở 80°C trong 2 giờ. Quá trình này giúp loại bỏ hoàn toàn lignin và hemicellulose. Sau đó, mẫu được rửa lần lượt với formic acid và nước cất. (iv) Tẩy trắng: Sau khi xử lý với dung dịch FPA, xơ dừa được tẩy trắng bằng dung dịch NaOH 1M và H₂O₂ với tỉ lệ mẫu/H₂O₂ là 1:1. Mẫu được khuấy hoàn lưu trong 1 giờ ở 80°C và quy trình này được thực hiện hai lần. Sau khi tẩy trắng, mẫu được sấy khô ở 70°C để thu được cellulose.

Quy trình thủy phân tạo nano cellulose được thực hiện dựa theo nghiên cứu của Vu và cộng sự (2024) với một vài những thay đổi phù hợp với điều kiện thực nghiệm. Cellulose thu hồi sau đó sẽ được thủy phân bằng sulfuric acid 12M trong 45 phút, với tỉ lệ khối lượng: thể tích acid là 1:10, khuấy từ từ với tốc độ 40 vòng/phút. Trong suốt quá trình thủy phân, thiết bị phản ứng được ngâm trong nước để tránh hiện tượng sinh nhiệt gây cháy mẫu do nồng độ acid cao. Sau khi thủy phân, mẫu được lọc và rửa đến khi đạt pH trung tính. Tiếp theo, mẫu được ly tâm ở 10.000 vòng/phút để thu mẫu, bảo quản dưới dạng huyền phù ở 4°C và sau đó sấy đông khô để thu được mẫu cellulose dạng bột.

2.3. Phương pháp phân tích vật liệu

Nghiên cứu này sử dụng các thiết bị phân tích hiện đại để đánh giá đặc tính của nanocellulose. Cấu trúc tinh thể đặc trưng của nanocellulose được xác định bằng phương pháp nhiễu xạ tia X (XRD) trên thiết bị D8-Advance của hãng Bruker (Đức), với dải góc 2 θ từ 10° đến 80°. Hình thái đặc trưng của nanocellulose tổng hợp được quan sát bằng kính hiển vi điện tử quét phân giải cao (FE-SEM S4800) của hãng Hitachi. Quang phổ hồng ngoại biến đổi (FT-IR) được đo trên thiết bị NIR/MIR Frontier của PerkinElmer, nhằm xác định các liên kết và nhóm chức đặc trưng trong cấu trúc vật liệu. Phân tích nhiệt trọng lượng (TGA) được thực hiện trên thiết bị STA PT 1600 của hãng LINSEIS, trong khoảng nhiệt độ từ 50°C đến 700°C, sử dụng khí N₂ và tốc độ gia nhiệt 5°C/phút để xác định hàm lượng cellulose và tính chất nhiệt của mẫu nanocellulose. Diện tích bề mặt riêng, thể tích lỗ rỗng và kích thước lỗ rỗng của nanocellulose được đo bằng máy phân tích hấp phụ khí NOVA 4000e của Quantachrome.

Để xác định điện tích bề mặt của nanocellulose, phương pháp muối được sử dụng với một số điều chỉnh phù hợp với điều kiện phòng thí nghiệm (Rao & cs., 2011). Cụ thể, 10 mL dung dịch KCl 0,1 M được cho vào các bình Erlen, và pH của dung dịch được điều chỉnh từ 2 đến 11 bằng dung dịch NaOH 0,01 M và HCl 0,01 M. Sau đó, 0,05 g nanocellulose được thêm vào các bình Erlen đã điều chỉnh pH và lắc với tốc độ 150 vòng/phút trong 24 giờ. Sau 24 giờ, pH của dung dịch được đo lại. Sự thay đổi pH giữa dung dịch trước và sau 24 giờ sẽ cho biết điện tích bề mặt của nanocellulose ở các giá trị pH khác nhau, đồng thời xác định điểm điện tích bằng không của nanocellulose (pH_{pzc}).

2.4. Thí nghiệm đánh giá quá trình hấp phụ MB của nanocellulose

Quy trình tiến hành quá trình hấp phụ: Trong mỗi bình Erlen, cho vào 100 mL dung dịch chứa MB và thực hiện quá trình hấp phụ trên máy lắc với tốc độ 120 vòng/phút. Liều lượng chất hấp phụ được sử dụng là 0,1 g/L, với các giá trị pH, nồng độ MB, thời gian hấp phụ và nhiệt độ hấp phụ được điều chỉnh phù hợp theo điều kiện khảo sát.

Các thông số ảnh hưởng đến quá trình hấp phụ được nghiên cứu bao gồm: pH (2-10), thời gian hấp phụ (1-24 giờ), nồng độ MB ban đầu (5-25 mg/L) và nhiệt độ hấp phụ (30°C – 45°C). Quá trình khảo sát các thông số được thực hiện theo phương pháp luân phiên từng biến.

Sau quá trình hấp phụ, dung dịch được ly tâm với tốc độ 10.000 vòng/phút để tách phần dung dịch. Nồng độ MB trong dung dịch sau hấp phụ được xác định bằng phương pháp quang phổ UV-Vis tại bước sóng $\lambda = 664 \text{ nm}$.

Hiệu suất của quá trình hấp phụ được xác định bằng công thức:

$$H(\%) = \frac{C_o - C_c}{C_o} \quad (1)$$

Dung lượng hấp phụ được xác định qua công thức sau:

$$q_c = \frac{(C_o - C_c) \cdot V}{m} \quad (\text{mg/g}) \quad (2)$$

Trong đó: C_o là nồng độ ban đầu (mg/L) và C_c là nồng độ ở trạng thái cân bằng (mg/L). V là thể tích dung dịch (L) và m là khối lượng của chất hấp phụ (g)

Trong nghiên cứu này, các mô hình động học tuyến tính bao gồm mô hình động học bậc 1 và bậc 2, cùng với các mô hình đẳng nhiệt hấp phụ tuyến tính như Langmuir, Freundlich và Dubinin-Radushkevich, được áp dụng để mô tả quá trình hấp phụ. Nhiệt động lực học hấp phụ cũng được xây dựng dựa trên kết quả thực nghiệm.

3. Kết quả và thảo luận

3.1. Thu hồi cellulose từ xơ dừa tươi

Xơ dừa sau khi được xử lý sơ bộ nhằm loại bỏ các tạp chất, sáp, pectin, lignin và hemicellulose, đã được sấy đến khối lượng không đổi và cân để xác định lượng cellulose thu hồi. Kết quả thu hồi cellulose được trình bày trong Bảng 1. Theo đó, khối lượng cellulose thu được là 2,5 g, chiếm $81,26 \pm 0,33\%$ so với lượng xơ dừa ban đầu. Kết quả này hoàn toàn phù hợp với hàm lượng cellulose trong xơ dừa tươi, như đã được Vu và cộng sự (2024) công bố.

Kết quả này có thể giải thích là do quá trình khuấy trộn xơ dừa trong hỗn hợp PFA (gồm 90% dung dịch HCOOH, 4% dung dịch H_2O_2 30% và 6% nước cất) với tỷ lệ 1:20 (khối lượng/thể tích) đã giúp loại bỏ hiệu quả lignin và hemicellulose. Thêm vào đó, quá trình tẩy trắng bằng dung dịch NaOH và H_2O_2 đã hỗ trợ làm giảm đáng kể hàm lượng lignin và hemicellulose, góp phần nâng cao hiệu suất thu hồi cellulose.

Bảng 1. Hiệu suất thu hồi Cellulose từ nguồn nguyên liệu xơ dừa tươi

	Lần 1	Lần 2	Lần 3
Khối lượng xơ dừa (g)	5	5	5
Khối lượng cellulose (g)	2,501	2,42	2,495
Hiệu suất (%)	80,56	80,04	83,17
Hiệu suất trung bình (%)	$81,26 \pm 0,33$		

3.2. Kết quả phân tích các đặc trưng tính chất của nanocellulose có nguồn gốc từ xơ dừa tươi

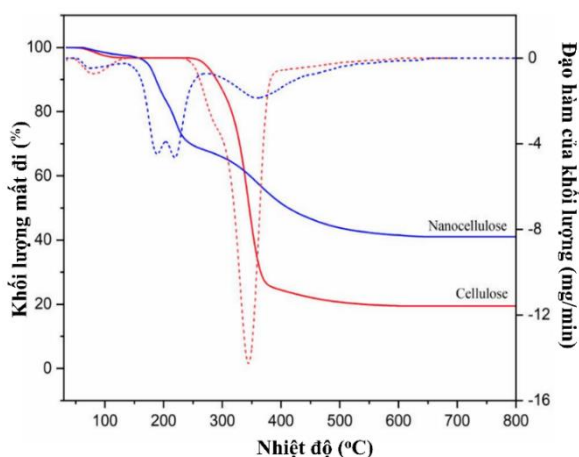
3.2.1. Phân tích nhiệt trọng lượng (TGA)

Cellulose và nanocellulose sau khi được thu hồi và tổng hợp bằng phương pháp hóa học thủy phân với acid, xử lý bằng NaOH và tẩy trắng, đã được đánh giá độ bền nhiệt thông qua sự thay đổi trọng lượng theo nhiệt độ, được biểu diễn trên các đồ thị TGA và DTG như trong Hình 1.

Kết quả phân tích TGA của cellulose cho thấy sự thay đổi khối lượng được chia thành hai giai đoạn khác nhau. Giai đoạn đầu, ở nhiệt độ từ 50–125°C, có sự suy giảm khối lượng là 3,08%, chủ yếu là do sự bay hơi của nước vật lý trong mẫu. Giai đoạn thứ hai, từ nhiệt độ 230–375°C, cho thấy sự mất khối lượng kéo dài, chủ yếu là do sự phân hủy của hemicellulose ở khoảng 345°C (Luong & cs., 2025). Trong mẫu cellulose thu hồi, ngoài sự xuất hiện của mức phân hủy nhiệt của các tạp chất có trọng lượng nhỏ và độ ẩm trong vật liệu, không có sự xuất hiện của điểm phân hủy nhiệt của các thành phần vô định hình. Điều này chứng tỏ rằng nhóm nghiên cứu đã thành công trong việc thu hồi cellulose với độ tinh khiết cao (Moraes & cs., 2024; Luong & cs., 2025).

Đối với nanocellulose, đường cong DTG của mẫu cellulose sau thủy phân (nanocellulose) xuất hiện một mũi thu nhiệt đầu tiên tại khoảng 190°C, điều này chỉ ra sự hiện diện của dư lượng sulfuric acid. Điểm phân hủy nhiệt tại 220°C có thể liên quan đến nhóm ester sulfate trên bề mặt nanocellulose (Wang & cs., 2023). Sự hiện diện của nhóm ester sulfate này mang lại ưu thế về độ bền nhiệt vượt trội cho nanocellulose được tổng hợp từ sulfuric acid, làm cho nó phù hợp với các ứng dụng xử lý nhiệt.

Ngoài ra, một mũi phân hủy nhiệt tại 350°C xuất hiện, được cho là mức phân hủy nhiệt cực đại của cellulose sau thủy phân. Sự sai khác này có thể do quá trình kết tinh sau thủy phân, làm cho các liên kết hóa học trong cấu trúc cellulose được sắp xếp lại, từ đó làm tăng nhiệt độ bắt đầu phân hủy của mẫu (Wang & cs., 2023). Điểm mất khối lượng cực đại của mẫu nanocellulose cao khoảng 380 °C so với cellulose khoảng 350 °C, minh chứng cho sự gia tăng đáng kể về độ bền nhiệt. Hơn nữa, phần khối lượng còn lại ở nhiệt độ cao hơn 600 °C của nanocellulose lớn hơn so với cellulose, phản ánh khả năng chịu nhiệt tổng thể được cải thiện. Sự gia tăng độ bền nhiệt của nanocellulose được giải thích bằng các đặc điểm cấu trúc nano đặc trưng, bao gồm kích thước hạt siêu nhỏ và tỷ lệ tinh thể cellulose cao hơn. Quá trình hình thành cấu trúc nano tạo ra mạng lưới liên kết hydro mạnh mẽ và cấu trúc phân tử gọn chặt, làm tăng năng lượng cần thiết để phá vỡ các liên kết glycosidic (Yue & cs., 2015). Đồng thời, diện tích bề mặt lớn và kích thước hạt nhỏ giúp phân tán nhiệt đồng đều hơn, hạn chế quá trình phân hủy cục bộ đột ngột (Bambo & cs., 2024).

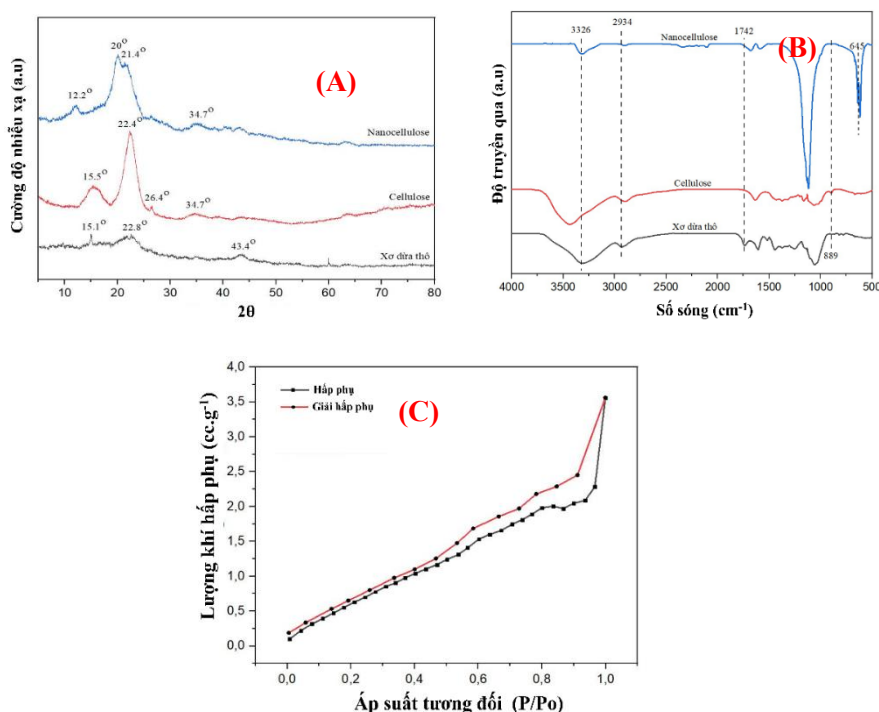


Hình 1. Kết quả phân tích nhiệt trọng lượng(TGA) của mẫu cellulose và nanocellulose

3.2.2. Các đánh giá đặc trưng cấu trúc XRD, FT-IR, và đẳng nhiệt hấp phụ/giải hấp phụ khí N_2

Cấu trúc đặc trưng của mẫu xơ dừa thô, cellulose và nanocellulose đã được phân tích bằng phương pháp nhiễu xạ tia X (XRD), và các biểu đồ nhiễu xạ được thể hiện trong Hình

2(A). Giảm đồ XRD của cellulose cho thấy các đỉnh đặc trưng tại các góc $2\theta = 15,5^\circ$, $22,4^\circ$, $26,4^\circ$, và $34,7^\circ$, tương ứng với các mặt phẳng tinh thể đặc trưng của cellulose I (Wang & cs., 2023; Moraes & cs., 2024; Luong & cs., 2025). Từ mẫu xơ dừa thô đến mẫu cellulose, cường độ của các đỉnh nhiễu xạ đã tăng lên, đặc biệt là sự dịch chuyển nhẹ của đỉnh nhiễu xạ cường độ cao nhất tại góc $2\theta = 22,4^\circ$. Điều này cho thấy rằng các tạp chất và thành phần vô định hình (lignin và hemicellulose) đã được loại bỏ qua các giai đoạn xử lý, dẫn đến sự tăng cường độ kết tinh của mẫu. Kết quả này cũng chỉ ra rằng quá trình tẩy trắng đã loại bỏ hoàn toàn các thành phần vô định hình, để lại cellulose với độ tinh khiết cao. Cellulose là một polymer bán kết tinh, với các vùng vô định hình và tinh thể đan xen. Quá trình thủy phân bằng acid H_2SO_4 đã cắt đứt các liên kết β -glycoside trong vùng vô định hình, đồng thời loại bỏ các vùng này và giữ lại các vùng có độ kết tinh cao. Peak kết tinh xuất hiện tại $2\theta = 20^\circ$ cho thấy quá trình xử lý kiềm và kết tinh sau thủy phân đã chuyển hóa cellulose I thành cellulose II (Arun & cs., 2022). Điều này cho thấy rằng H_2SO_4 không chỉ tác động vào các vùng vô định hình, mà còn ảnh hưởng đến các vùng tinh thể của cellulose sau tẩy trắng, đồng thời làm giảm độ kết tinh do sulfate hóa các nhóm hydroxyl trên bề mặt nanocellulose. Việc sử dụng nhiều H_2O_2 trong quá trình tẩy trắng đã loại bỏ lignin, giúp cellulose dễ bị thủy phân hơn và cắt đứt mạch cellulose. Theo báo cáo của Ling và cộng sự (2019), sự xuất hiện của ba đỉnh ở $2\theta = 12,2^\circ$, 20° , và $21,4^\circ$ là đặc trưng của cellulose II, chứng tỏ sự chuyển hóa từ cellulose I sang cellulose II sau quá trình xử lý với NaOH.



Hình 2. Kết quả phân tích đặc trưng cấu trúc (A) XRD, (B) FT-IR, (C) Đẳng nhiệt hấp phụ/ giải hấp phụ khí N₂

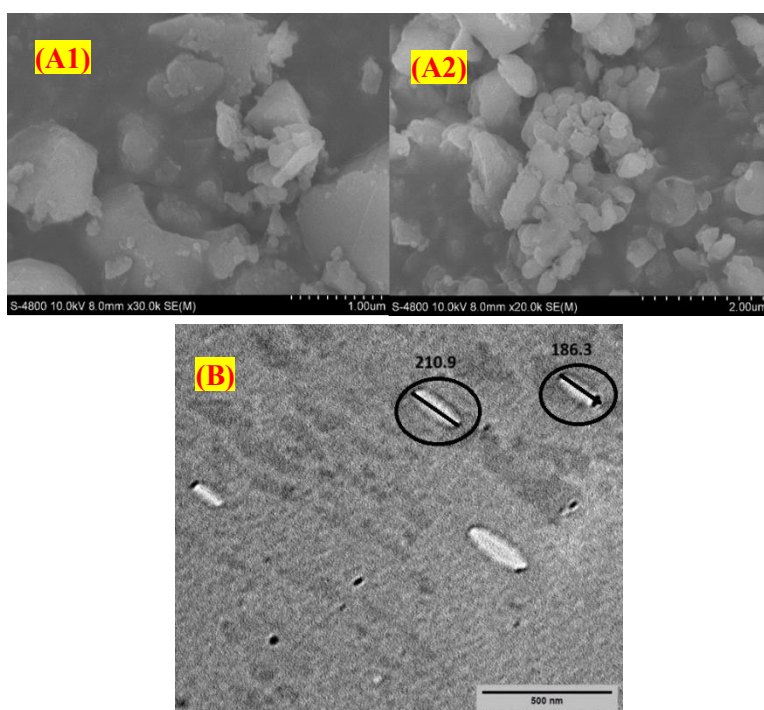
Kết quả phân tích phổ hồng ngoại biến đổi (FT-IR) được thể hiện trong Hình 2(B) cho thấy tất cả các mẫu đều có hai vùng hấp thụ chính: một vùng từ 700 – 1800 cm^{-1} và một vùng từ 2700 – 3500 cm^{-1} . Các đỉnh hấp thụ tại 3326 cm^{-1} và 2934 cm^{-1} lần lượt đặc trưng cho dao động của nhóm O–H và liên kết C–H trong polysaccharide (Luong & cs., 2025). Dao động của lignin trong khoảng 1500 – 1600 cm^{-1} , đặc biệt là mũi hấp thụ tại 1742 cm^{-1} trong mẫu xơ

dựa thô, cho thấy sự hiện diện của nhóm ketone và carbonyl có trong hemicellulose hoặc hợp chất thơm trong lignin (Arun & cs., 2022). Sau quá trình tẩy trắng, mũi hấp thu tại 1730 cm^{-1} biến mất, đồng thời đỉnh hấp thu đặc trưng cho liên kết β -glucoside tại 889 cm^{-1} trở nên rõ rệt. Điều này chứng tỏ rằng các thành phần lignin và hemicellulose đã được loại bỏ hoàn toàn, chỉ còn lại cellulose tinh khiết. Quá trình thủy phân acid đã loại bỏ các vùng vô định hình trong cellulose, nhưng quá trình xử lý kiềm có thể làm giảm các liên kết hydro do sự mất đi của nhóm hydroxyl, điều này dẫn đến sự suy giảm cường độ của peak tại 1742 cm^{-1} và sự xuất hiện mạnh mẽ của peak tại 889 cm^{-1} (Ling & cs., 2019).

Diện tích bề mặt riêng của vật liệu được xác định bằng phương pháp đẳng nhiệt hấp phụ theo lý thuyết BET (Brunauer-Emmett-Teller) với khí N_2 . Kết quả đo được cho thấy diện tích bề mặt của vật liệu đạt $5,062\text{ m}^2/\text{g}$ và đường kính lỗ xốp trung bình là $23,724\text{ Å}$ ($2,3724\text{ nm}$). Vật liệu thuộc loại mao quản trung bình (mesoporous), với kích thước lỗ xốp trong khoảng từ $2\text{--}50\text{ nm}$ (Li & cs., 2021). Kích thước lỗ xốp này cho phép vật liệu hấp phụ Methylene Blue hiệu quả, do kích thước phân tử MB dao động từ $13,82\text{ Å}$ đến $14,47\text{ Å}$, với chiều rộng khoảng $9,5\text{ Å}$ (Wang & cs., 2005). Vật liệu nanocellulose có cấu trúc lỗ mao quản phân bố từ lớn đến nhỏ dần từ ngoài vào trong, do đó, để đạt được hiệu suất hấp phụ cao, cần thời gian dài để các phân tử MB có thể khuếch tán vào các lỗ mao quản.

3.2.3. Các đánh giá đặc trưng hình thái SEM và TEM

Phương pháp kính hiển vi điện tử quét (SEM) và kính hiển vi điện tử truyền qua (TEM) được sử dụng để nghiên cứu bề mặt, hình dạng và kích thước của vật liệu. Kết quả phân tích ảnh SEM cho thấy hình thái của vật liệu ở thang đo $1\text{ }\mu\text{m}$ và $2\text{ }\mu\text{m}$ có nhiều sai hỏng, với sự xuất hiện của các vết nứt vi cấu trúc. Các hiện tượng này là do vật liệu đã trải qua các quy trình xử lý, bao gồm loại bỏ tạp chất, tẩy trắng và thủy phân bằng acid ở nồng độ cao. Quá trình thủy phân với sulfuric acid đã xâm nhập vào vùng vô định hình của cellulose, đồng thời giữ nguyên các vùng kết tinh của cấu trúc (Maiti & cs., 2013).

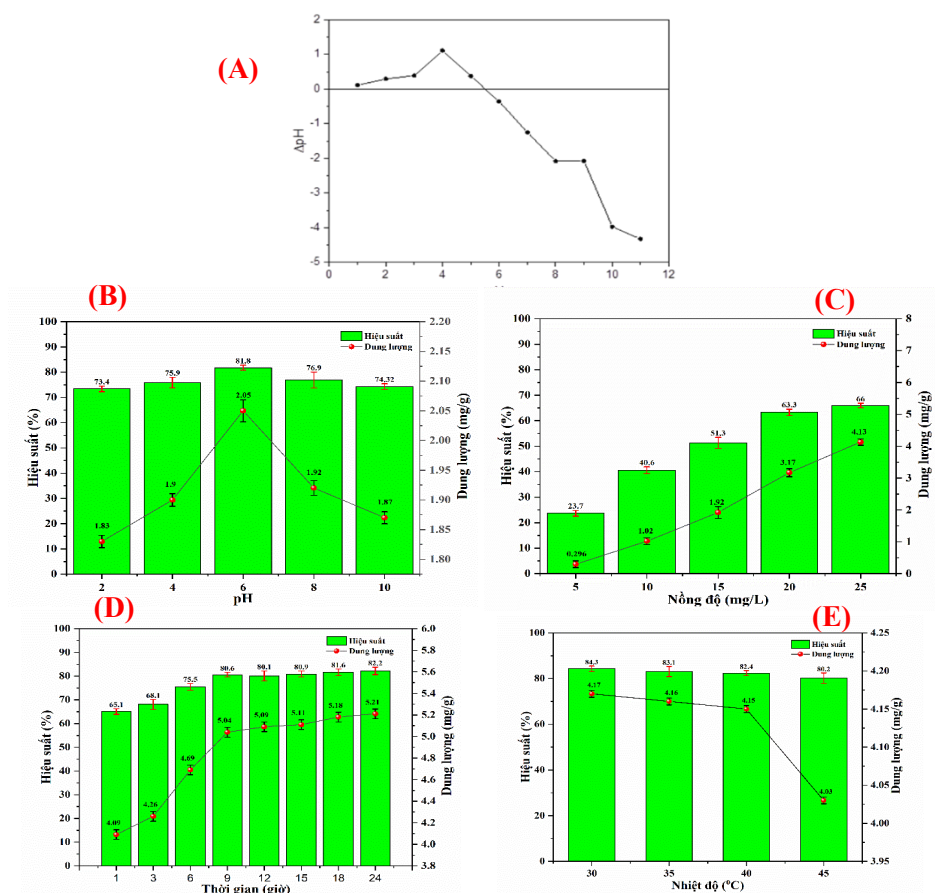


Hình 3. Kết quả phân tích đặc trưng hình thái (A) SEM, (B) TEM của nanocellulose

Kết quả phân tích TEM cho thấy, nanocellulose đã được tổng hợp thành công với các tinh thể có hình dạng đặc trưng là hình que. Quá trình thủy phân với acid nồng độ cao không chỉ loại bỏ các vùng vô định hình mà còn làm giảm kích thước của sợi cellulose xuống kích thước nanomet. Các cụm hạt nanocellulose có kích thước dao động từ 186,3 nm đến 210,9 nm. Kết quả này phù hợp với nghiên cứu tổng hợp nanocellulose từ xơ dừa của Arun và cộng sự (2022), chứng tỏ rằng quá trình thủy phân và xử lý acid đã thành công trong việc biến đổi cấu trúc cellulose thành nanocellulose với kích thước đồng nhất ở cấp độ nano.

3.3. Kết quả đánh giá quá trình hấp phụ MB trong môi trường nước

Kết quả đánh giá các yếu tố ảnh hưởng đến quá trình hấp phụ thuốc nhuộm hữu cơ MB trong môi trường nước được trình bày trong Hình 4.



Hình 4. Các yếu tố ảnh hưởng đến quá trình hấp phụ MB (A) pH_{pzc} , (B) pH, (C) Nồng độ MB đầu, (D) Thời gian hấp phụ, (E) Nhiệt độ hấp phụ

Thuốc nhuộm MB tồn tại dưới dạng cation MB^+ trong môi trường nước. Khi $pH > 5,5$, điện tích âm trên bề mặt vật liệu tạo điều kiện thuận lợi cho quá trình hấp phụ, như được chỉ ra trong Hình 4A, nơi mô tả điểm đẳng điện của vật liệu nanocellulose. Kết quả trong Hình 4B cho thấy hiệu suất xử lý MB không có sự khác biệt đáng kể giữa các giá trị pH khác nhau của dung dịch MB. Khi pH tăng từ 2, 4 đến 6, dung lượng hấp phụ MB tăng nhẹ từ 1,83 mg/g lên 1,9 mg/g và 2,05 mg/g, đồng thời hiệu suất hấp phụ cũng tăng từ 73,4% lên 75,9% và 81,8%. Điều này có thể giải thích bởi sự ảnh hưởng của điểm đẳng điện, với vật liệu hấp phụ tốt hơn khi $pH > 5,5$. Tuy nhiên, ở pH 8 và 10, hiệu suất hấp phụ và dung lượng hấp phụ có xu hướng giảm nhẹ, mặc dù sự thay đổi không đáng kể. Điều này có thể do sự cạnh tranh giữa các ion

OH^- trong dung dịch tự do và ion OH^- trên bề mặt vật liệu (Le & cs., 2024). Bên cạnh đó, lực van der Waals và lực hút tĩnh điện cũng đóng vai trò quan trọng trong việc giữ phân tử MB trên bề mặt vật liệu, làm cho hiệu suất hấp phụ không thay đổi quá lớn. Theo Quy chuẩn Việt Nam (QCVN 24:2009/BTNMT), pH của nước thải công nghiệp cho mục đích cấp nước sinh hoạt phải nằm trong khoảng 6–9 (Thanh & cs., 2023). Vì vậy, pH = 6 được chọn làm điều kiện tối ưu để khảo sát các yếu tố ảnh hưởng tiếp theo.

Ngoài pH, nồng độ ban đầu của MB cũng ảnh hưởng mạnh đến khả năng hấp phụ. Kết quả thí nghiệm đánh giá sự ảnh hưởng của nồng độ MB ban đầu được trình bày trong Hình 4C. Khi nồng độ MB tăng từ 5 đến 25 ppm, hiệu suất hấp phụ tăng từ 23,7% lên 66%, đồng thời dung lượng hấp phụ cũng tăng từ 0,296 mg/g lên đến 4,13 mg/g. Ở nồng độ thấp, hiệu suất hấp phụ không cao do lượng phân tử thuốc nhuộm trong dung dịch ít, làm giảm gradient nồng độ và chậm quá trình khuếch tán của MB vào vật liệu (Trần & cs., 2024). Vì vậy, nồng độ MB 25 ppm được chọn làm điều kiện tối ưu cho các khảo sát tiếp theo.

Kết quả khảo sát ảnh hưởng của thời gian hấp phụ được thể hiện ở Hình 4D. Quá trình hấp phụ trong khoảng thời gian từ 1 đến 9 giờ cho thấy hiệu suất hấp phụ tăng rõ rệt từ 75,1% lên 80,6%, và dung lượng hấp phụ cũng tăng từ 4,69 mg/g lên 5,04 mg/g. Tuy nhiên, từ sau 9 giờ đến 24 giờ, sự thay đổi của hiệu suất hấp phụ không đáng kể, từ 80,6% lên 82,1%, và dung lượng hấp phụ chỉ tăng nhẹ từ 5,04 mg/g lên 5,13 mg/g. Do đó, thời gian hấp phụ tối ưu được chọn là 9 giờ để khảo sát các yếu tố tiếp theo.

Cuối cùng, kết quả khảo sát ảnh hưởng của nhiệt độ đến quá trình hấp phụ được thể hiện ở Hình 4E. Khi nhiệt độ tăng từ 35°C lên 45°C, dung lượng hấp phụ giảm. Điều này cho thấy khả năng ứng dụng thực tế của vật liệu hấp phụ trong điều kiện nhiệt độ phòng. Giảm dung lượng hấp phụ khi nhiệt độ tăng có thể giải thích bởi ba lý do chính: (i) nhiệt độ cao làm tăng khả năng hòa tan MB, ngăn cản sự tương tác giữa dung dịch thuốc nhuộm và vật liệu hấp phụ. Ở nhiệt độ cao, khả năng hòa tan của MB trong dung dịch tăng lên do sự gia tăng động năng phân tử, dẫn đến sự khuếch tán nhanh và đồng đều hơn trong pha lỏng (Gupta & Suhas, 2009). Kết quả là, nồng độ MB tự do trong dung dịch tăng, giảm thiểu sự tiếp xúc trực tiếp giữa các phân tử MB và bề mặt hấp phụ, từ đó làm suy yếu hiệu quả hấp phụ.; (ii) sự yếu đi của tương tác giữa dung dịch thuốc nhuộm và vật liệu hấp phụ do động năng cao của các phân tử tham gia vào quá trình hấp phụ; và (iii) độ linh động của các phân tử MB trong dung dịch tăng, ảnh hưởng đến khả năng hấp phụ của chúng (Mohammad & Suzylawati, 2020). Bên cạnh đó, nhiệt độ cao cũng có thể ảnh hưởng tiêu cực đến các tương tác vật lý yếu như liên kết hydro, tương tác tĩnh điện và lực Van der Waals giữa phân tử MB và nhóm chức trên bề mặt vật liệu hấp phụ (Foo & Hameed, 2010). Các lực này thường chịu ảnh hưởng bởi nhiệt độ vì sự tăng động năng phân tử làm giảm tính ổn định của các liên kết yếu, dẫn đến khả năng giải hấp phụ tăng và làm giảm lượng MB hấp phụ trên bề mặt vật liệu. Đây là lý do tại sao quá trình hấp phụ MB thường thể hiện tính thuận nghịch và giảm hiệu suất khi nhiệt độ vượt quá mức tối ưu.

3.4. Động học hấp phụ, đẳng nhiệt hấp phụ và nhiệt động lực học hấp phụ của MB lên nanocellulose.

3.4.1. Động học hấp phụ

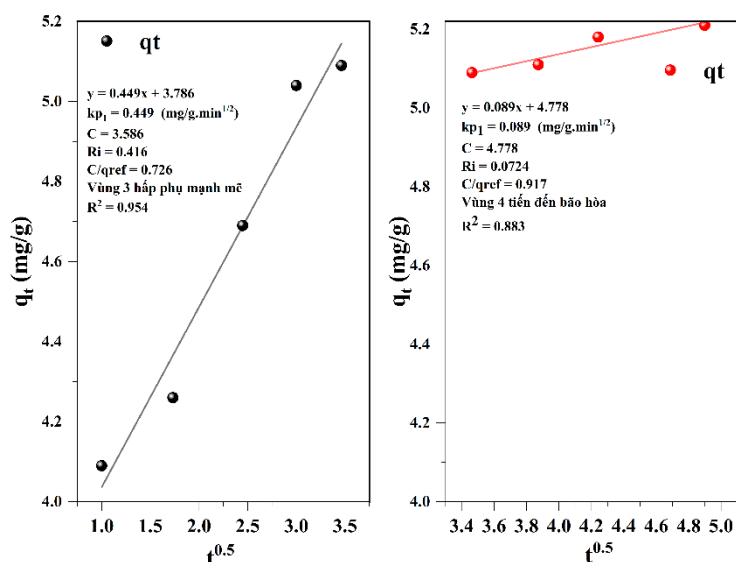
Kết quả các tham số của phương trình động học hấp phụ giả định bậc 1 và bậc 2 đối với quá trình hấp phụ MB trên vật liệu nanocellulose được trình bày trong Bảng 2. Kết quả cho thấy hệ số hồi quy tuyến tính R^2 của phương trình động học bậc 1 chỉ đạt 0,188, trong khi dung lượng hấp phụ q_e tính toán từ phương trình này thấp hơn so với giá trị thực nghiệm. Điều này chỉ ra rằng phương trình động học bậc 1 không phù hợp để mô tả quá trình hấp phụ MB trên vật liệu nanocellulose.

Bảng 2. Các tham số phương trình giả định bậc 1 và bậc 2

Động học	a	b	q_e	k_1	k_2	R^2
Bậc 1	-0,0324	-0,425	0,653	0,0324	-	0,188
Bậc 2	0,1981	0,0795	5,047	-	0,493	0,996

Ngược lại, phương trình động học giả định bậc 2 có hệ số hồi quy tuyến tính $R^2=0,996$, cho thấy sự phù hợp rất cao giữa dữ liệu thực nghiệm và phương trình lý thuyết. Dung lượng hấp phụ q_e theo phương trình bậc 2 cũng có giá trị cao hơn so với giá trị thực nghiệm. Điều này chứng tỏ quá trình hấp phụ MB trên vật liệu nanocellulose tuân theo động học bậc 2, với quá trình hấp phụ chủ yếu liên quan đến sự hình thành các liên kết hóa học giữa phân tử MB và các nhóm chức trên bề mặt nanocellulose.

Dựa vào giá trị R_i quá trình hấp phụ theo mô hình hấp phụ nội hạt có thể được chia ra các giai đoạn: Thứ nhất, khi $R_i = 1$ và $C/q_{ref} = 0$, không có sự hấp phụ ban đầu (vùng 0). Tiếp theo, khi $1 > R_i > 0,9$ và $0 < C/q_{ref} < 0,1$, sự hấp phụ ban đầu yếu xảy ra (vùng 1). Sau đó, nếu $0,9 > R_i > 0,5$ và $0,1 < C/q_{ref} < 0,5$ thì đây là sự hấp phụ ban đầu trung bình (vùng 2). Sau đó, khi $0,5 > R_i > 0,1$ và $0,5 < C/q_{ref} < 0,9$, sự hấp phụ ban đầu mạnh mẽ (vùng 3). Cuối cùng, khi $R_i < 0,1$ và $C/q_{ref} > 0,9$ thì quá trình hấp phụ ban đầu hoàn toàn đang tiến đến cân bằng (vùng 4) (Wu & cs., 2009).



Hình 5. Mô hình khuếch tán nội hạt

Theo mô hình kết tủa nội hạt quá trình hấp phụ MB lên nanocellulose 2 giai đoạn: giai đoạn I (từ lúc bắt đầu hấp phụ đến 9 giờ) với các tham số: hằng số tốc độ ($kp_1 = 0,449$), hệ số tương quan ($R^2 = 0,954$), tỉ số giữa lượng hấp phụ đầu và tối đa trong giai đoạn ($C/q_{ref} = 0,726$), đây là giai đoạn hấp phụ mạnh mẽ thuộc vào vùng 3. Giai đoạn I bao gồm sự tương tác của phân tử MB^+ với các tâm hấp phụ có sẵn trên bề nhóm ($-OH$) của nanocellulose để tạo thành liên kết hydro và lực Van der Waals do các phân tử MB với nanocellulose (Rahman & cs., 2025). Ngoài ra, giai đoạn này bao gồm sự khuếch tán các phân tử MB đến lớp màng xung quanh vật liệu. Giai đoạn II (từ 9 giờ đến 24 giờ) với các tham số: hằng số tốc độ ($kp_2 = 0,089$), hệ số tương quan ($R^2 = 0,883$), tỉ số lượng hấp phụ đầu và cuối ($C/q_{ref} = 0,917$) đặc trưng cho vùng 4, đây là giai đoạn hấp phụ đạt cân bằng do tỉ số $C/q_{ref} \approx 1$, cho thấy khả năng hấp phụ ở giai đoạn này không có sự thay đổi đáng kể (dưới 5%), thể hiện khả năng khuếch tán chậm

các phân tử thuốc nhuộm vào trong lỗ xốp, điều này được thể hiện qua đường kính lỗ xốp và diện tích bề mặt trong phân tích diện tích bề mặt riêng của vật liệu. Các giá trị điểm chặn ($C \neq 0$) cho thấy khuếch tán nội hạt không phải là bước giới hạn tốc độ duy nhất, mà còn nhờ vào các cơ chế hấp phụ khác.

3.4.2. *Đẳng nhiệt hấp phụ*

Bảng 3. Các thông số mô hình đẳng nhiệt hấp phụ Langmuir, Freundlich và Dubinin Radushkevich

Langmuir		Freundlich		Dubinin Radushkevich	
R^2	0,9899	R^2	0,862	R^2	0,7026
K_L (L/mg)	2,629	K_F (mg/g)	5,5	$q_{\max}$ (mg/g)	4,528
$q_{\max}$ (mg/g)	4,12	n	9,48	E (kJ/mol)	0,57

Để mô tả sự phân bố của MB giữa pha rắn và pha lỏng ở điều kiện cân bằng, phương pháp đẳng nhiệt hấp phụ đã được áp dụng (Ismail & cs., 2013). Trong nghiên cứu này, các mô hình đẳng nhiệt Langmuir, Freundlich và Dubinin-Radushkevich được sử dụng để đánh giá quá trình hấp phụ MB trên vật liệu nanocellulose.

Kết quả được trình bày trong Bảng 3 cho thấy mô hình đẳng nhiệt Langmuir có hệ số hồi quy tuyến tính $R^2 = 0,9899$, cao hơn so với mô hình Freundlich ($R^2 = 0,862$), chỉ ra rằng mô hình Langmuir phù hợp hơn trong việc mô tả quá trình hấp phụ MB. Với giá trị $n = 9,48$ (hay $1/n = 0,105$), quá trình hấp phụ được coi là khá tốt, vì hệ số góc của đường thẳng thấp, cho thấy khả năng hấp phụ cao và vật liệu hấp phụ có sự đồng nhất về năng lượng trên bề mặt. Điều này khẳng định rằng quá trình hấp phụ MB trên vật liệu nanocellulose tuân theo mô hình Langmuir, nghĩa là quá trình hấp phụ là thuận nghịch, với bề mặt hấp phụ đồng nhất và vật liệu hấp phụ đơn lớp.

Mô hình đẳng nhiệt Dubinin-Radushkevich cũng được sử dụng để xác định cơ chế hấp phụ (hóa học hay vật lý) và dự đoán dung lượng hấp phụ cũng như năng lượng hấp phụ tự do. Hằng số năng lượng hấp phụ được xác định là 0,57 kJ/mol, cho thấy sự tương tác yếu giữa MB và vật liệu nanocellulose. Do đó, quá trình hấp phụ chủ yếu mang tính chất vật lý, xác nhận rằng cơ chế hấp phụ chính trong nghiên cứu này là hấp phụ vật lý (Ismail & cs., 2013).

3.4.3. *Nhiệt động lực học hấp phụ*

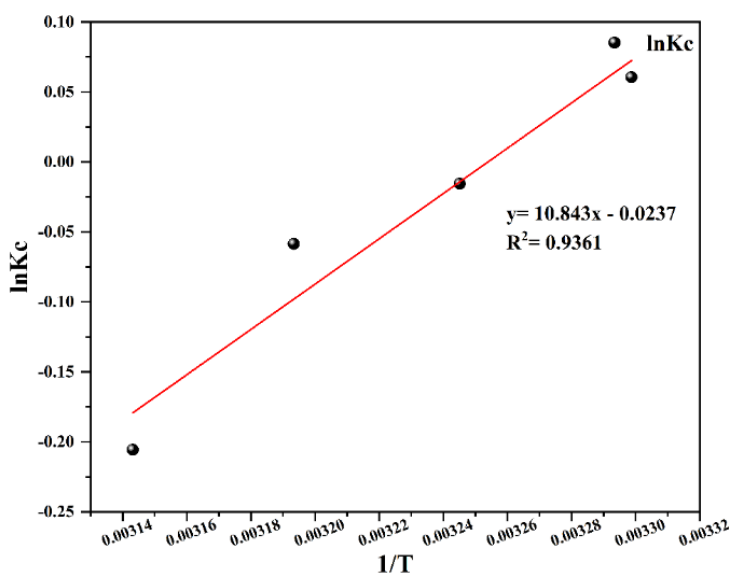
Các thông số như năng lượng tự do Gibbs (ΔG^0), enthalpy (ΔH^0) và entropy (ΔS^0) được xác định thông qua phương trình Van't Hoff. Biểu thức được trình bày như sau (Bulut & cs., 2006):

$$\Delta G^0 = \Delta H^0 - T\Delta S^0 \quad (3)$$

$$\ln K_C = -\frac{\Delta H^0}{RT} + \frac{\Delta S^0}{R} \quad (4)$$

$$K_C = \frac{C_0 - C_e}{C_e} \quad (5)$$

Trong đó: T là nhiệt độ tuyệt đối (tính bằng Kelvin, K), R là hằng số khí lý tưởng (8.314 J/mol·K), K_C là hằng số cân bằng, C_0 là nồng độ ban đầu của methylene blue (mg/L), C_e là nồng độ MB còn lại trong dung dịch sau khi đạt trạng thái cân bằng (mg/L).



Hình 6. Biểu đồ Van't Hoff cho quá trình hấp phụ MB trên vật liệu nanocellulose

Bảng 4. Các giá trị nhiệt động lực học của quá trình hấp phụ MB

ΔH (J/mol)	-87,175			
ΔS (J/mol.K)	-0,1971			
ΔG (J/mol)	30 °C	35 °C	40 °C	45 °C
	-27.453	-26.468	-25.482	-24.497

Các thông số nhiệt động học như entanpy (ΔH°), entropy (ΔS°) và năng lượng tự do Gibbs (ΔG°) đã được xác định bằng phương trình Van't Hoff (Bulut & cs., 2006). Kết quả từ Bảng 4 cho thấy năng lượng tự do Gibbs (ΔG) đối với quá trình hấp phụ MB là âm ở tất cả các nhiệt độ, chứng tỏ rằng quá trình hấp phụ MB trên vật liệu nanocellulose là tự phát và thuận lợi về mặt nhiệt động. Cụ thể, giá trị năng lượng tự do Gibbs thay đổi từ -27,453 (J/mol) ở 30°C đến -24,497 (J/mol) ở 45°C, cho thấy quá trình hấp phụ MB trên nanocellulose dễ xảy ra hơn ở nhiệt độ thấp.

Thêm vào đó, giá trị entanpy (ΔH) là -87,175 (J/mol), cho thấy quá trình hấp phụ MB trên nanocellulose là một quá trình tỏa nhiệt. Điều này chỉ ra rằng quá trình hấp phụ được thúc đẩy bởi sự giải phóng năng lượng, phù hợp với cơ chế hấp phụ vật lý.

Cuối cùng, giá trị âm của sự thay đổi entropy (ΔS) là -0.1971 (J/mol.K) chỉ ra rằng sự xáo trộn của hệ giảm đi trong suốt quá trình hấp phụ. Điều này cho thấy các phân tử MB bị giữ lại và ngưng tụ trên bề mặt vật liệu nanocellulose, dẫn đến sự giảm bớt hỗn loạn trong hệ (Gouamid & cs., 2013).

3.5. Dự đoán cơ chế cho quá trình hấp phụ Methylene Blue trên nanocellulose

Cơ chế hấp phụ methylene blue (MB) lên nanocellulose chủ yếu diễn ra thông qua các tương tác vật lý, với vai trò nổi bật của liên kết hydro, lực Van der Waals và hiệu ứng mao quản (Rahman & cs., 2025). Nanocellulose sở hữu mật độ cao các nhóm hydroxyl ($-OH$) phân bố dày đặc trên bề mặt, tạo điều kiện thuận lợi cho việc hình thành các liên kết hydro với các

nhóm amin và vòng dị vòng chứa nitơ trong cấu trúc phân tử của MB (Shahnaz & cs., 2022). Các liên kết hydro này có vai trò định hướng và giữ ổn định MB trên bề mặt vật liệu hấp phụ. Bên cạnh đó, do MB là một phân tử cationic lớn và tương đối phân cực, sự hấp phụ còn được hỗ trợ bởi các tương tác Van der Waals giữa bề mặt cellulose và phân tử thuốc nhuộm (Maiti & cs., 2013). Trong một số điều kiện pH trung tính hoặc kiềm nhẹ, nhóm hydroxyl trên nanocellulose có thể deproton hóa nhẹ, tạo ra điện tích âm yếu, từ đó hình thành một số tương tác tĩnh điện không bền vững với MB⁺. Quá trình hấp phụ mô tả tốt bởi mô hình đẳng nhiệt Freundlich, phản ánh sự hấp phụ đa lớp và bề mặt không đồng nhất. Năng lượng hấp phụ thấp ($0,57 \text{ kJ} < 8 \text{ kJ}$) chứng minh đây là quá trình hấp phụ vật lý.

3.6. So sánh khả năng hấp phụ của các vật liệu hấp phụ dựa trên nanocellulose

Bảng 5. So sánh dung lượng hấp phụ cực đại của các vật liệu hấp phụ tổng hợp dựa trên nanocellulose

Vật liệu	$q_{\max}$ (mg/g)	Tác giả
Nanocellulose biến tính EDTA	55,008	(Shahnaz & cs., 2022)
Nanocellulose tổng hợp có hỗ trợ sóng siêu âm	232.56	(Rahman & cs., 2025)
Hydrogels composite nanocellulose	122,2	(Oyarce & cs., 2022)
Nanocellulose từ nguồn xơ dừa tươi	4,12	Nghiên cứu này

Trong nghiên cứu hiện tại, khả năng hấp phụ của nanocellulose được chiết xuất từ xơ dừa tươi $q_{\max}$ 4,12 mg/g, giá trị này tương đối thấp khi so sánh với các vật liệu nanocellulose đã qua biến tính hoặc tổng hợp theo phương pháp hiện đại. Cụ thể, theo Rahman và cộng sự (2025), nanocellulose tổng hợp có hỗ trợ siêu âm đạt giá trị $q_{\max}$ ấn tượng lên tới 232,56 mg/g. Sự gia tăng vượt trội này được lý giải bởi tác động của sóng siêu âm giúp phá vỡ cấu trúc lignocellulosic và phân tách hiệu quả hơn, từ đó tạo ra diện tích bề mặt lớn và nhiều vị trí hấp phụ chủ động. Tương tự, hydrogel composite nanocellulose do Oyarce và cộng sự (2022) phát triển ghi nhận $q_{\max}$ 122,2 mg/g. Cấu trúc mạng lưới hydrogel không chỉ duy trì tính linh động phân tử mà còn cải thiện khả năng khuếch tán phân tử MB vào vùng hấp phụ bên trong, tạo điều kiện thuận lợi cho cơ chế hấp phụ nội hạt. Trong khi đó, vật liệu nanocellulose biến tính với nhóm chức EDTA được báo cáo bởi Shahnaz và cộng sự (2022) đạt $q_{\max}$ 55,008 mg/g, cho thấy hiệu quả tương tác giữa nhóm carboxyl và amin trên phân tử MB. Mặc dù nanocellulose từ xơ dừa tươi có dung lượng hấp phụ $q_{\max}$ không cao so với các vật liệu đã biến tính hoặc tổng hợp tiên tiến, tuy nhiên, đây vẫn là một nguồn nguyên liệu tiềm năng nhờ vào tính sẵn có, chi phí thấp và thân thiện với môi trường. Đặc biệt, cấu trúc lignocellulosic đặc trưng của xơ dừa tạo nền tảng thuận lợi cho các quá trình biến tính tiếp theo, như gắn nhóm chức anion (-COOH, -SO₃H) hoặc phối hợp với vật liệu nano, nhằm cải thiện khả năng hấp phụ. Do đó, mặc dù hiệu suất ban đầu còn hạn chế, nanocellulose từ xơ dừa tươi hoàn toàn có thể được phát triển thành vật liệu hấp phụ hiệu quả, nếu được tối ưu hóa thông qua các giải pháp công nghệ phù hợp, góp phần thúc đẩy các giải pháp xử lý nước thải bền vững và kinh tế.

4. Kết luận

Nghiên cứu này đã thành công trong việc tổng hợp nanocellulose từ nguyên liệu xơ dừa tươi, và các đặc trưng cấu trúc, tính chất của vật liệu đã được đánh giá bằng các phương pháp phân tích hiện đại. Kết quả từ XRD cho thấy các đỉnh nhiễu xạ đặc trưng của nanocellulose, trong khi FT-IR và TGA xác nhận sự loại bỏ hoàn toàn các thành phần hemicellulose và lignin trong mẫu ban đầu. SEM và TEM cho thấy hình thái đặc trưng và kích thước của nanocellulose

dao động trong khoảng từ 186,3 đến 210,9 nm. Phân tích đẳng nhiệt hấp phụ khí N₂ theo mô hình BET chỉ ra rằng vật liệu nanocellulose có diện tích bề mặt là 5,062 m²/g và đường kính lỗ xốp thuộc loại mesopore với kích thước 23,724 Å. Kết quả ứng dụng vật liệu nanocellulose trong xử lý thuốc nhuộm hữu cơ MB trong môi trường nước cho thấy điều kiện tối ưu của quá trình hấp phụ là pH 6, thời gian hấp phụ 15 giờ và nồng độ ban đầu của MB là 25 mg/L. Quá trình hấp phụ MB phù hợp với mô hình Langmuir, cho thấy đây là quá trình hấp phụ thuận nghịch, thuận lợi và thuộc cơ chế hấp phụ vật lý. Kết quả nhiệt động lực học cũng cho thấy quá trình hấp phụ MB trên nanocellulose là thuận nghịch, thuận lợi ở nhiệt độ phòng. Những kết quả này chỉ ra tiềm năng ứng dụng của nanocellulose từ xơ dừa trong xử lý môi trường, đặc biệt là như một vật liệu hấp phụ hiệu quả, mang lại lợi ích về mặt kỹ thuật và kinh tế.

Tài liệu tham khảo

- Al-Tohamy, R., Ali, S. S., Li, F., Okasha, K. M., Mahmoud, Y. A. G., Elsamahy, T., ... & Sun, J. (2022). A critical review on the treatment of dye-containing wastewater: Ecotoxicological and health concerns of textile dyes and possible remediation approaches for environmental safety. *Ecotoxicology and environmental safety*, 231, 113160. <https://doi.org/10.1016/j.ecoenv.2021.113160>
- Arun, R., Shruthy, R., Preetha, R., & Sreejit, V. (2022). Biodegradable nano composite reinforced with cellulose nano fiber from coconut industry waste for replacing synthetic plastic food packaging. *Chemosphere*, 291, 132786. <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2021.132786>
- Bambo, M. F., Matabola, K. P., May, B., Chauke, N., & Munonde, T. (2024). Fabrication and Characterization of Flame Retardant Nanocellulose-Based Materials. In *Biomaterials as Green Flame Retardants* (pp. 185-229). Singapore: Springer Nature Singapore. https://doi.org/10.1007/978-981-97-6871-4_9
- Bulut, Y., & Aydın, H. (2006). A kinetics and thermodynamics study of methylene blue adsorption on wheat shells. *Desalination*, 194(1-3), 259-267. <https://doi.org/10.1016/j.desal.2005.10.032>
- Foo, K. Y., & Hameed, B. H. (2010). Insights into the modeling of adsorption isotherm systems. *Chemical Engineering Journal*, 156(1), 2–10. <https://doi.org/10.1016/j.cej.2009.09.013>
- Gouamid, M. O. M. R., Ouahrani, M. R., & Bensaci, M. B. (2013). Adsorption equilibrium, kinetics and thermodynamics of methylene blue from aqueous solutions using date palm leaves. *Energy procedia*, 36, 898-907. <https://doi.org/10.1016/j.egypro.2013.07.103>
- Gupta, V. K., & Suhas. (2009). Application of low-cost adsorbents for dye removal – A review. *Journal of Environmental Management*, 90(8), 2313–2342. <https://doi.org/10.1016/j.jenvman.2008.11.017>
- Ismail, B., Hussain, S. T., & Akram, S. (2013). Adsorption of methylene blue onto spinel magnesium aluminate nanoparticles: adsorption isotherms, kinetic and thermodynamic studies. *Chemical Engineering Journal*, 219, 395-402. <https://doi.org/10.1016/j.cej.2013.01.034>
- Le, T. P., Luong, H. V. T., Nguyen, H. N., Pham, T. K. T., Le, T. L. T., Tran, T. B. Q., & Ngo, T. N. M. (2024). Insight into adsorption-desorption of methylene blue in water using zeolite NaY: Kinetic, isotherm and thermodynamic approaches. *Results in Surfaces and Interfaces*, 16, 100281. <https://doi.org/10.1016/j.rsufi.2024.100281>

- Li, H., Shen, D., Lu, H., Wu, F., Chen, X., Pleixats, R., & Pan, J. (2021). The synthetic approaches, properties, classification and heavy metal adsorption applications of periodic mesoporous organosilicas. *Separation and Purification Technology*, 277, 119453. <https://doi.org/10.1016/j.seppur.2021.119453>
- Ling, Z., Xu, F., Edwards, J. V., Prevost, N. T., Nam, S., Condon, B. D., & French, A. D. (2019). Nanocellulose as a colorimetric biosensor for effective and facile detection of human neutrophil elastase. *Carbohydrate Polymers*, 216, 360-368. <https://doi.org/10.1016/j.carbpol.2019.04.027>
- Luong, H. T., Le, T. L., Ly, X. H., Le, T. P., Nguyen, N. Y., & Pham, D. T. (2025). Optimizing cellulose extraction from coconut coir pith via response surface methodology for improving methylene blue adsorption. *International Journal of Environmental Science and Technology*, 22(7), 5591-5608. <https://doi.org/10.1007/s13762-024-05963-4>
- Maiti, S., Jayaramudu, J., Das, K., Reddy, S. M., Sadiku, R., Ray, S. S., & Liu, D. (2013). Preparation and characterization of nano-cellulose with new shape from different precursor. *Carbohydrate polymers*, 98(1), 562-567. <https://doi.org/10.1016/j.carbpol.2013.06.029>
- Mashkoo, F., & Nasar, A. (2020). Magsorbents: Potential candidates in wastewater treatment technology—A review on the removal of methylene blue dye. *Journal of magnetism and magnetic materials*, 500, 166408. <https://doi.org/10.1016/j.jmmm.2020.166408>
- Mohammad, S., & Suzylawati, I. (2020). Study of the adsorption/desorption of MB dye solution using bentonite adsorbent coating. *Journal of Water Process Engineering*, 34, 101155. <https://doi.org/10.1016/j.jwpe.2020.101155>
- Moraes, F. P., Cordeiro, N. G. B., Bojorge, N., & Alhadeff, E. M. (2024). Coconut fibre for the synthesis of microfibrillated cellulose: Thermal analysis experimental characterization. *The Canadian Journal of Chemical Engineering*, 102(10), 3405-3415. <https://doi.org/10.1002/cjce.25270>
- Oyarce, E., Cantero-López, P., Yañez, O., Roa, K., Boulett, A., Pizarro, G. D. C., ... & Sánchez, J. (2022). Nanocellulose bio-based composites for the removal of methylene blue from water: An experimental and theoretical exploration. *Journal of Molecular Liquids*, 357, 119089. <https://doi.org/10.1016/j.molliq.2022.119089>
- Rao, R. A. K., Khan, M. A., & Rehman, F. (2011). Batch and column studies for the removal of lead (II) ions from aqueous solution onto lignite. *Adsorption Science & Technology*, 29(1), 83-98. <https://doi.org/10.1260/0263-6174.29.1.83>
- Saupi, F. A. C., et al. (2025). Comparative analysis of nanocellulose extraction from Cocos nucifera shell by ultrasonication versus acid hydrolysis for methylene blue dye removal. *Iranian Polymer Journal*, 1-24. <https://doi.org/10.1007/s13726-025-01462-6>
- Shahnaz, T., Bedadeep, D., & Narayanasamy, S. (2022). Investigation of the adsorptive removal of methylene blue using modified nanocellulose. *International Journal of Biological Macromolecules*, 200, 162-171. <https://doi.org/10.1016/j.ijbiomac.2021.12.081>
- Thanh, L. H. V., Lợi, H. H., Pha, L. P., Giao, Đ. H., & Hạnh, C. L. N. (2023). Đánh giá khả năng hấp phụ methylene blue trong nước của vật liệu composite tổng hợp từ phụ phẩm bã mía. *Tạp chí Khoa học Đại học Cần Thơ*, 59(CĐ Khoa học Kỹ thuật và Công nghệ), 109-118. <https://doi.org/10.22144/ctu.jvn.2023.035>

- Trần, T. X. M., Nguyễn, T. N. Q., & Bùi, V. T. (2024). Chế tạo vật liệu bentonite biến tính bằng citric acid để xử lý methylene blue trong nước. *Tạp chí Khoa học Đại học Đồng Tháp*, 14(2), 41-52. <https://doi.org/10.52714/dthu.14.2.2025.1435>
- Vu, A. N., Nguyen, L. H., Tran, H. C. V., Yoshimura, K., Tran, T. D., Van Le, H., & Nguyen, N. U. T. (2024). Cellulose nanocrystals extracted from rice husk using the formic/peroxyformic acid process: isolation and structural characterization. *RSC advances*, 14(3), 2048-2060. <https://doi.org/10.1039/D3RA06724F>
- Wang, S., Zhu, Z. H., Coomes, A., Haghseresht, F., & Lu, G. Q. (2005). The physical and surface chemical characteristics of activated carbons and the adsorption of methylene blue from wastewater. *Journal of Colloid and Interface Science*, 284(2), 440-446. <https://doi.org/10.1016/j.jcis.2004.10.050>
- Wang, S., Zou, Q., Zhang, L., Zheng, W., Huang, X., & Zhang, J. (2023). A new nanocellulose prepared from waste coconut shell fibers based on a novel ultrasonic–Active agent combination method: Preparation principle and performances in cement matrix. *Industrial Crops and Products*, 197, 116607. <https://doi.org/10.1016/j.indcrop.2023.116607>
- Wu, F. C., Tseng, R. L., & Juang, R. S. (2009). Initial behavior of intraparticle diffusion model used in the description of adsorption kinetics. *Chemical engineering journal*, 153(1-3), 1-8. <https://doi.org/10.1016/j.cej.2009.04.042>
- Yang, S. T., et al. (2011). Removal of methylene blue from aqueous solution by graphene oxide. *Journal of Colloid and Interface Science*, 359(1), 24-29. <https://doi.org/10.1016/j.jcis.2011.02.064>
- Yue, Y., Han, J., Han, G., Aita, G. M., & Wu, Q. (2015). Cellulose fibers isolated from energycane bagasse using alkaline and sodium chlorite treatments: Structural, chemical and thermal properties. *Industrial Crops and Products*, 76, 355-363. <https://doi.org/10.1016/j.indcrop.2015.07.006>
- Zha, R., Shi, T., He, L., & Zhang, M. (2022). Nanoengineering and green chemistry-oriented strategies toward nanocelluloses for protein sensing. *Advances in Colloid and Interface Science*, 308, 102758. <https://doi.org/10.1016/j.cis.2022.102758>