



## Các phương pháp chế tạo màng polysulfone trên cơ sở graphen oxit ứng dụng xử lý nước thải nhiễm dầu

### Methods of synthesis polysulfone membrane based on graphen oxide and its applications in oils contaminated wastewater treatment

Huỳnh Tuấn Vũ<sup>1</sup>, Nguyễn Thị Kim Oanh<sup>1</sup>, Nguyễn Thị Thanh Huy<sup>1</sup>, Nguyễn Duy Thư<sup>1</sup>, Nguyễn Ngọc Minh<sup>1</sup>, Trương Công Đức<sup>1</sup>, Phạm Xuân Núi<sup>2</sup>, Nguyễn Thị Vương Hoàn<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Trường Đại học Quy Nhơn,

<sup>2</sup> Trường Đại học Mở - Địa chất Hà Nội

\*Email: [huynhtuanvusph35@gmail.com](mailto:huynhtuanvusph35@gmail.com) and [nguyenthivuonghoan@qnu.edu.vn](mailto:nguyenthivuonghoan@qnu.edu.vn)

#### ARTICLE INFO

Received: 22/8/2018

Accepted: 13/9/2018

*Keywords:* Polysulfone membrane;  
Graphen oxit

#### ABSTRACT

Polysulfone membrane based on graphite oxide have been successfully fabricated by the inversion method by spincoating, casting and electrospinning techniques. Surface membrane characteristics such as SEM, FTIR-ATR, EDX as well as the filtration characteristics of the membrane show that the modified GO membrane is capable of separating the oil from oil/ water emulsions better than the unmodified membrane under some parameters such as retention (R) and filter yield (J). Retention of GO/PSF membrane up to 60,40% while PSF membrane only reached 47,10%. When the GO content was modified on PSF substrate, the membrane became more compact than the previous membrane, the pores size of the membrane decreased and increased the density of the pores on the membrane surface. On the other hand, the modification of GO to the PSF membrane enhances the oxygen-containing functional groups on the membrane, thereby improving the hydrophobic properties which is necessary for the membrane filtration process of separating oil from oil/water emulsions. In addition to investigating the separation efficiency and film retention, we also investigated the irregularity coefficient of the GO/ PSF membranes. The coefficient of occlusion against  $FR_w$  is about 18,63%.

#### 1. Giới thiệu chung

Trong nhiều năm qua, công nghệ màng đã có những bước tiến vượt bậc và được áp dụng rộng rãi cho nhiều mục đích khác nhau như sản xuất nước sạch và siêu sạch, lọc – hóa dầu, dược phẩm, thực phẩm, hóa chất, y tế, môi trường. Ưu điểm của công nghệ màng là có thể tách các cấu tử có kích thước khác nhau, từ cỡ hạt tới cỡ ion mà không cần phải sử dụng thêm hóa chất khác, các cấu tử cần tách không cần chuyển pha, là phương pháp tách hiện đại, tiết kiệm năng lượng và thân thiện với môi trường [1], [6], [9], [10].

Màng lọc là phần quan trọng nhất trong hệ tách dùng màng, trong đó lớp bề mặt màng đóng vai trò quyết định khả năng tách, lọc của màng. Để có thể duy trì được các tính năng tốt của màng đồng thời giảm thiểu ảnh hưởng của những tính chất không mong muốn, các nhà khoa học luôn hướng đến việc tìm kiếm các loại vật liệu thích hợp để chế tạo màng. Bản chất vật liệu tạo màng và kỹ thuật tạo màng là hai yếu tố quan trọng ảnh hưởng đến khả năng tách lọc và quyết định khả năng ứng dụng tách lọc của màng. Có thể nói màng polysulfone trên cơ sở vật liệu graphen oxit là

thể hệ màng mới cực kỳ hiệu quả trong quá trình tách chất, xử lý asen và một số kim loại nặng trong dung dịch nước, đặc biệt nghiên cứu chế tạo màng ứng dụng trong công nghệ khử mặn [7], [15], [18]. Với nhiều tính năng vượt trội như chi phí năng lượng thấp, không cần tiến hành ở áp suất cao, tốc độ lọc cao hơn hẳn so với màng truyền thống RO [5], đặc biệt là màng tạo thành có độ bền cơ học cao nên dễ dàng cho việc thu hồi và tái sử dụng màng. Tuy nhiên tất cả là những kết quả khám phá ban đầu cần phải tiếp tục nghiên cứu và phát triển. Hiện vẫn còn ít các công trình công bố về lĩnh vực này đặc biệt từ các hoạt động nghiên cứu trong nước.

Có nhiều phương pháp chế tạo màng được áp dụng như dung kết nhiệt (sintering), kéo dãn (stretching), ăn mòn theo vết (track-etching), đảo pha (phase inversion), kết tụ hơi (vapor deposition), nhúng phủ.... Trong nghiên cứu này phương pháp đảo pha được áp dụng. Có thể thực hiện tạo màng theo nhiều cách như cán tay truyền thống (casting), phủ quay (spincoating) hay phun tĩnh điện (electrospinning). Màng chế tạo có đặc tính bề mặt tốt nhất được dùng để khảo sát khả năng tách dầu từ nhũ tương dầu/ nước. Với những kết quả thu được mang tính chất thăm dò từ việc chế tạo màng đến khảo sát, đánh giá các tính năng của màng cũng như khả năng tái sử dụng màng nhằm góp phần trong việc khai thác những ưu điểm của công nghệ màng phục vụ các nhu cầu phát triển kinh tế - xã hội.

## 2. Thực nghiệm và phương pháp nghiên cứu

### 2.1. Hóa chất

Graphit,  $\text{KMnO}_4$ , Natriododecylsulfat (SDS) - Meck; Polysulfone (PSF) - Alrich; Dimethylfomamide (DMF),  $\text{NaNO}_3$ ,  $\text{H}_2\text{SO}_4$  98%,  $\text{H}_2\text{O}_2$  30%, n-hexan (Trung Quốc) và một số chất khác HCl 36,5%, nước DI; Dầu diesel (DO).

### 2.2. Quá trình tạo màng

#### 2.2.1. Tổng hợp graphen oxit

Graphen oxit được tổng hợp dựa trên phương pháp Hummers biến tính [16], quy trình như sau: Cho 1 gam graphit cacbon, 0,5 gam  $\text{NaNO}_3$  và 23 ml  $\text{H}_2\text{SO}_4$  đậm đặc vào cốc thủy tinh chịu nhiệt, làm lạnh hỗn hợp ở (0-5 °C) và khuấy đều trên máy khuấy từ. Nâng nhiệt độ lên 15 °C và cho từ từ từng lượng nhỏ kết hợp với khuấy đều liên tục 3 gam  $\text{KMnO}_4$ , sau đó nâng tiếp nhiệt độ đến 40 °C. Tiếp tục thêm 100 ml nước cất và nâng nhiệt độ lên đến 98 °C, khuấy liên tục trong 1 giờ sau đó cho thêm 10ml  $\text{H}_2\text{O}_2$  30% vào hỗn hợp khuấy trong 1 giờ. Để nguội tự nhiên, lọc rửa sản phẩm nhiều lần bằng axit HCl 5%, sau đó rửa bằng nước cất. Để

thu được graphen oxit, sản phẩm graphit oxit được tách lớp bằng kỹ thuật siêu âm với dung môi nước trong 1 giờ trên thiết bị siêu âm Elmasonic S 100 H có tần số siêu âm 37 kHz. Sản phẩm được sấy ở nhiệt độ 60 °C trong khoảng thời gian 12 giờ, thu được graphen oxit (GO) dạng bột khô màu nâu đen.

#### 2.2.2. Chế tạo màng

Màng PSF và GO/ PSF được chế tạo theo phương pháp đảo pha. Trước khi chế tạo màng PSF và GO được sấy khô trong tủ sấy chân không ở 60 °C trong 4 giờ.

Chuẩn bị dung dịch 1: Hòa tan PSF trong dung môi DMF tỉ lệ 15:85 theo trọng lượng. Rung siêu âm 1 giờ được dung dịch polymer đồng nhất.

Chuẩn bị dung dịch 2: GO (2% trọng lượng PSF) hòa tan trong dung môi DMF, rung siêu âm 1 giờ, khuấy nhẹ ở nhiệt độ phòng trong 24 giờ.

Chuẩn bị dung dịch 3: Cho từ từ (rất chậm) dung dịch 2 vào dung dịch 1, khuấy đều liên tục trong 24 giờ ở nhiệt độ 60 °C thu được dung dịch đồng nhất (dung dịch tạo màng).

Dùng dung dịch 3 tạo màng bởi các kỹ thuật: casting, spincoating và electrospinning.

- Kỹ thuật casting: cho một thể tích xác định dung dịch 3 lên tấm kính có kích thước 20 × 25 cm, dùng thanh cán có rãnh khuôn màng 250  $\mu\text{m}$  dài 15cm, kéo với tốc độ 1 mm/s. Màng tạo thành được để ngoài không khí trong vòng 20 giây sau đó ngâm vào chậu nước DI và để yên 10 phút, dùng dao mỏng lách nhẹ, bóc màng khỏi tấm kính (độ dày màng phụ thuộc vào độ dày của thanh cán cũng như tốc độ kéo). Ký hiệu màng: C.

- Kỹ thuật spincoating: cho một thể tích xác định dung dịch 3 lên đế thủy tinh của thiết bị tạo màng, đường kính 15 cm. Quá trình tạo màng được tiến hành ở điều kiện: tốc độ quay 200 vòng/ phút, thời gian quay là 10 giây. Nhờ lực ly tâm, dung dịch sẽ lan đều trên đế và tạo thành màng mỏng (độ dày màng phụ thuộc vào thể tích dung dịch tạo màng, tốc độ quay và thời gian quay). Cho màng tiếp xúc với không khí 20 giây, sau đó ngâm vào chậu nước DI để yên 10 phút, dùng dao mỏng lách nhẹ, bóc màng khỏi tấm kính. Màng bất đối xứng được hình thành từ phương pháp kết tủa ngâm khô/ ướt. Độ dày màng thu được từ phương pháp phủ quay khá đồng đều. Ký hiệu màng: SC.

- Kỹ thuật electrospinning: cho một thể tích xác định dung dịch 3 vào ống kim tiêm với mũi kim có  $d = 0,25$  mm, sau đó lắp vào thiết bị phun tĩnh điện. Dung dịch phun ra với tốc độ 2,5 ml/h, tốc độ quay thiết bị làm

cực âm là 90 m/s. Sau thời gian phun thu được màng mỏng, để khô ngoài không khí khoảng 15 phút. Ký hiệu màng: ES.

Các màng chế tạo được rửa nhiều lần bằng nước DI để loại lượng dư dung môi. Màng được ngâm trong nước DI. Trước khi sử dụng màng được sấy trong tủ sấy chân không ở 60 °C.

### 2.3. Chuẩn bị mẫu nước chứa dầu dạng nhũ tương dầu/ nước

Mẫu nước chứa dầu diesel được tạo ra bằng cách trộn 11,5 g dầu diesel (DO) với 1000 ml nước với 12,5 g chất tạo nhũ (natri dodecyl sunfate). Sau đó hỗn hợp được khuấy trên máy khuấy từ với tốc độ 1600 vòng/ phút, thời gian 15-20 phút. Dung dịch thu được có màu trắng đục như sữa. Sau đó pha loãng dung dịch nhũ tùy theo hàm lượng dầu trong nhũ cần cho các thí nghiệm [11].

### 2.4. Đánh giá đặc tính bề mặt màng

Ảnh SEM của các mẫu màng được chụp trên thiết bị FE – SEM (Hitachi S-4800); Phổ EDX được thực hiện trên thiết bị EDAX 9900 gắn với thiết bị SEM. Phổ hồng ngoại phản xạ bề mặt đo trên máy JASCO (USA), FT/IR-4100.

### 2.5. Đánh giá đặc tính tách lọc màng

Khả năng tách lọc dầu từ nhũ tương dầu/ nước của màng được đánh giá qua độ lưu giữ và năng suất lọc.

*Độ lưu giữ* tính theo công thức:

$$R = \frac{C_0 - C}{C_0} \times 100\% \quad (2.1)$$

Trong đó:  $C_0$  và  $C$  là nồng độ ban đầu và nồng độ sau lọc của dầu trong hệ nhũ tương dầu/ nước (mg/L).

*Năng suất lọc* của màng được xác định bằng cách đo thể tích dịch lọc vận chuyển qua màng trong một khoảng thời gian tại áp suất xác định theo công thức:

$$J = \frac{V}{S \times t} \quad \text{hoặc} \quad J = \frac{V}{S \times t \times P} \quad (2.2)$$

(L/m<sup>2</sup>.h.) hoặc (L/m<sup>2</sup>.h.bar)

Trong đó:  $V$  là thể tích dịch lọc (L hoặc mL),  $S$  là diện tích bề mặt làm việc của màng (m<sup>2</sup> hoặc cm<sup>2</sup>),  $t$ : thời gian lọc (h hoặc phút),  $P$  là áp suất lọc [bar].

### 2.6. Đánh giá độ nhớt của dung dịch tạo màng

Độ nhớt của dung dịch tạo màng được xác định theo công thức sau:

$$\eta = \frac{T}{T_0}$$

Trong đó:  $T$ ,  $T_0$  lần lượt là thời gian chảy của dung dịch tạo màng và thời gian chảy của dung môi.

### 2.7. Xác định dầu còn lại trong nhũ tương dầu/ nước

Xác định lượng dầu còn lại trong nhũ tương dầu/ nước theo phương pháp trọng lượng. Cụ thể:

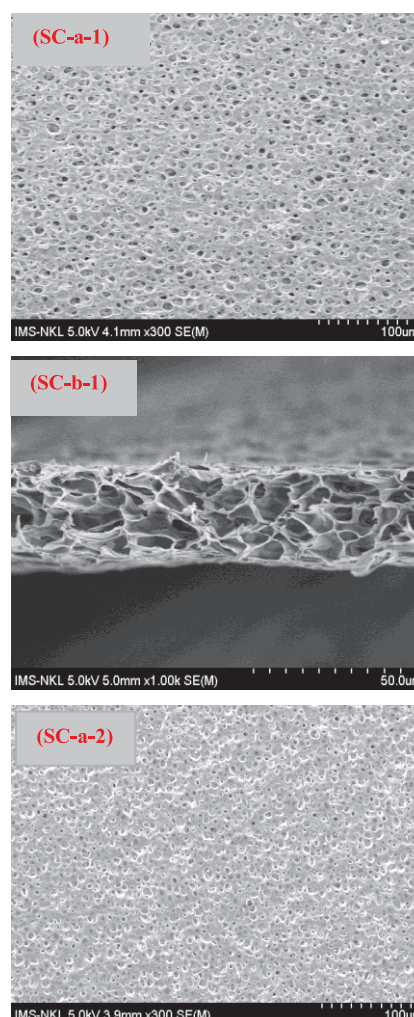
Cho dịch lọc vào phễu chiết có dung môi n-hexan vào lắc mạnh trong 2 phút, sau đó để yên trong 20 phút cho dầu tan hết vào trong n-hexan. Hỗn hợp gồm 2 pha: pha (dầu + n-hexan) và nước. Tiến hành chiết tách loại nước sau đó đuổi n-hexan bằng cách đun hỗn hợp còn lại ở 70 °C, khi n-hexan gần bay hết, giảm nhiệt độ đun, còn lại là dầu.

## 3. Kết quả và thảo luận

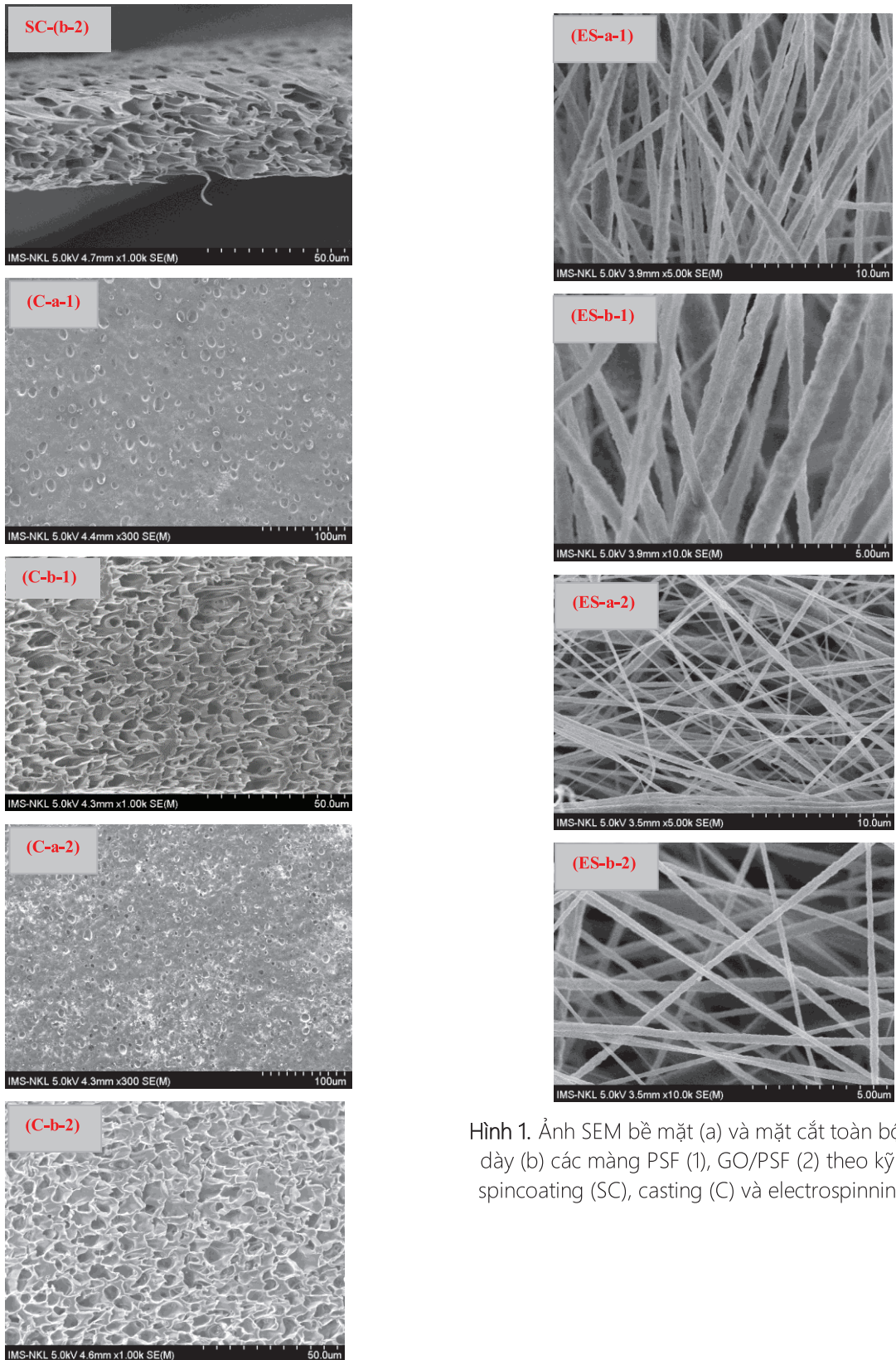
### 3.1. Đánh giá đặc tính bề mặt màng

#### 3.1.1. Ảnh SEM bề mặt màng

Hình 1, ảnh SEM (bề mặt và mặt cắt) của các màng PSF và GO/ PSF chế tạo theo các kỹ thuật spincoating, casting và electrospinning.







Hình 1. Ảnh SEM bề mặt (a) và mặt cắt toàn bộ chiều dày (b) các màng PSF (1), GO/PSF (2) theo kỹ thuật spincoating (SC), casting (C) và electrospinning (ES)



Từ kết quả ảnh SEM của các màng SC – (a, b) 1, 2 cho thấy có sự hình thành các mao dẫn ở mật độ cao ngay trên bề mặt màng và bên trong màng với kích thước tương đối đồng đều. Sự xuất hiện của hệ thống lỗ màng này là một yếu tố quan trọng trong quá trình lọc màng. Giữa màng nền và màng biến tính bởi GO, khi quan sát mặt cắt cho thấy bề mặt màng biến tính GO có sự tăng lên về độ dày, đồng thời kích thước mao dẫn giảm hơn so với màng nền. Sở dĩ như vậy bởi vì, khi được biến tính bởi GO đã làm độ nhớt của dung dịch tăng, từ 198,9 kg/m<sup>2</sup>.s ở màng nền PSF tăng lên 202,4 kg/m<sup>2</sup>.s ở màng GO (1% khối lượng)/ PSF. Sự tăng độ nhớt dẫn đến làm tăng độ đặc khít của màng tạo thành. Như vậy, với việc biến tính GO lên bề mặt màng làm cho màng trở nên đặc khít hơn so với màng nền.

Tương tự các màng C - (a, b) 1, 2 ta thấy, có sự phân tán của GO ngay trên bề mặt màng và bên trong hệ thống lỗ trống của màng. Đồng thời, với sự có mặt của GO trên màng đã làm giảm kích thước các lỗ trống của màng và làm tăng mật độ các lỗ màng tương tự như trường hợp ở màng tạo theo phương pháp spincoating. Các màng PSF (1), GO/ PSF (2) tạo bởi phương pháp casting có độ dày khá lớn và mật độ lỗ trên bề mặt không đồng đều so với màng được chế tạo theo phương pháp spincoating (phủ quay).

Đối với màng được chế tạo theo phương pháp electrospinning có cấu trúc ở dạng sợi, các sợi đan với nhau không đều và khá thưa dẫn đến không kiểm soát được mật độ lỗ cũng như kích thước lỗ trên màng.

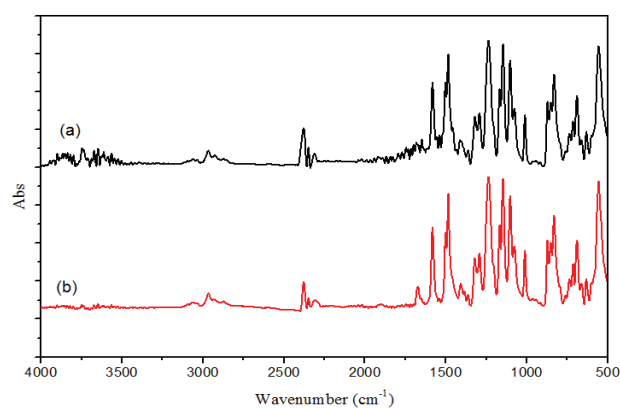
Như vậy, với việc biến tính GO lên bề mặt màng làm cho màng trở nên đặc khít hơn so với màng nền, làm giảm kích thước các lỗ màng và làm tăng mật độ lỗ trống trên bề mặt màng.

Từ các nội dung đã thảo luận, các màng PSF và GO/PSF chế tạo theo phương pháp spincoating được lựa chọn cho các nghiên cứu tiếp theo.

### 3.1.2. Phổ hồng ngoại phản xạ bề mặt

Hình 2. Phổ hồng ngoại phản xạ bề mặt của màng nền PSF (a) và GO/PSF (b).

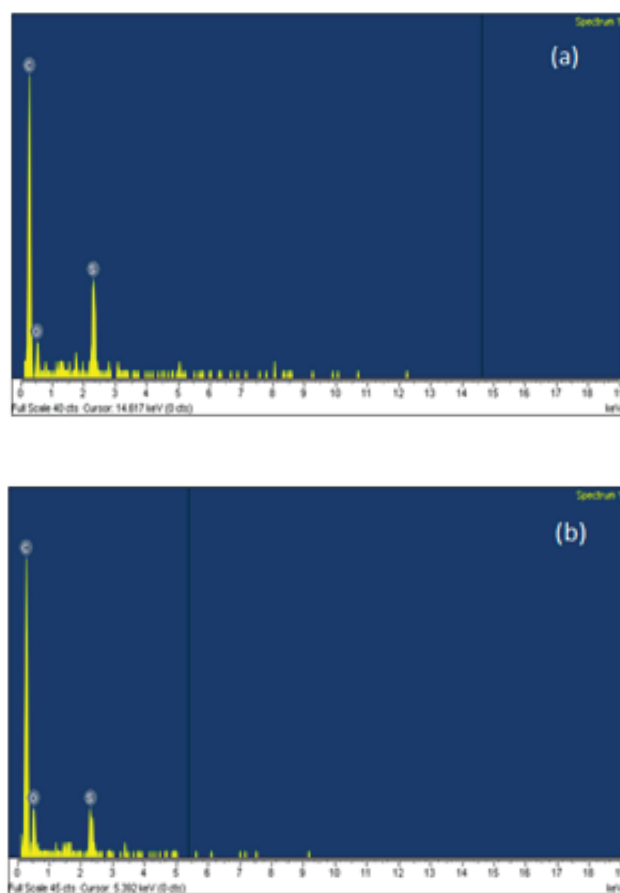
Có thể nhận thấy màng nền PSF và GO/PSF đều xuất hiện các pick đặc trưng dao động của nhóm O=S=O trong vùng 1000 – 1300 cm<sup>-1</sup>, pick đặc trưng cho dao động liên kết C=C của vòng thơm ở vùng 1400 – 1600 cm<sup>-1</sup> và dao động của liên kết C-O ở số sóng 1101 cm<sup>-1</sup>. Bên cạnh đó, với màng GO/ PSF còn thấy xuất hiện các pic đặc trưng dao động của nhóm -C=O ở vùng 1690 – 1750 cm<sup>-1</sup>.



Hình 2. Phổ hồng ngoại phản xạ bề mặt của màng nền PSF (a) và GO/PSF (b)

### 3.1.3. Phổ EDX

Để xác định thành phần nguyên tố có trong các màng nghiên cứu, phương pháp EDX được sử dụng. Kết quả được thể hiện ở hình 3.



Hình 3. Phổ EDX màng PSF (a), GO/PSF (b)

Từ hình 3 có thể thấy, khi đưa GO lên màng PSF thì thành phần các nguyên tố có sự thay đổi so với màng nền PSF. Cụ thể lượng C giảm từ 87,75% còn 79,34%; S giảm từ 5,95% xuống 2,39% nhưng thành phần O

tăng mạnh ở màng biến tính bởi GO, tăng từ 9,76% ở màng nền lên tới 19,26%. Điều này dẫn đến, khi biến tính GO lên màng PSF làm tăng thêm các nhóm chứa oxi trên màng do đó thành phần các nguyên tố đã có sự thay đổi đáng kể.

Như vậy việc biến tính GO lên màng PSF đã làm tăng cường các nhóm chức chứa oxi lên trên màng, qua đó cải thiện được tính ưa nước, một đặc tính cần thiết cho quá trình ứng dụng tách lọc nước của màng.

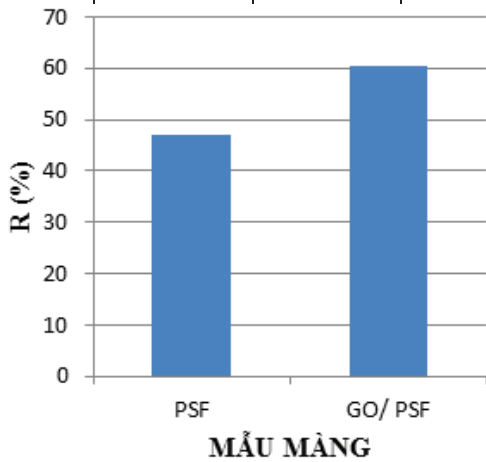
**3.2. Khảo sát tính năng tách lọc của màng**

**3.2.1. Độ lưu giữ**

Kết quả khảo sát độ lưu giữ của các màng PSF; GO/PSF thể hiện ở bảng 1 và hình 4.

**Bảng 1.** Độ lưu giữ của các màng PSF và GO/PSF

Mẫu	Nồng độ ban đầu C <sub>0</sub> (mg/ L)	Nồng độ sau lọc C (mg/ L)	Độ lưu giữ (%)
PSF	450,00	238,20	47,07
GO/PSF	450,00	178,26	60,39



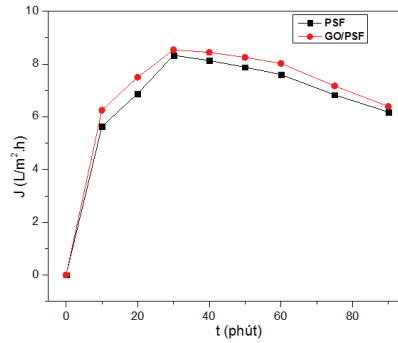
**Hình 4.** Độ lưu giữ của các màng PSF; GO/PSF

Có thể thấy màng GO/ PSF có độ lưu giữ cao hơn màng nền PSF, gấp khoảng 1,3 lần. Kết quả này hoàn toàn phù hợp với nội dung thảo luận ở mục 3.1.3

**3.2.2. Năng suất lọc**

Nghiên cứu này tiến hành khảo sát năng suất lọc của các màng thông qua lượng chất lỏng (sau lọc) qua màng theo thời gian, đồng thời khảo sát hiện tượng tắc màng sau thời gian t (với t thay đổi từ 10 đến 90 phút). Kết quả được trình bày ở hình 5.

Kết quả khảo sát quá trình tách lọc dầu từ nhũ tương dầu/ nước theo thời gian cho thấy rằng màng cả màng PSF và GO/ PSF có năng suất lọc cao nhất sau 30 phút tách lọc và giảm dần đều cho đến 90 phút khảo sát.



**Hình 5.** Năng suất lọc của các màng PSF và GO/PSF theo thời gian

So với màng PSF, màng GO/ PSF có năng suất lọc và độ lưu giữ cao hơn màng PSF. Độ lưu giữ của màng GO/ PSF lên đến 60,40% trong khi đó màng PSF chỉ đạt 47,10%. Điều này có thể là do khi GO biến tính lên màng PSF làm tăng tính thấm nước của màng bởi xuất hiện nhiều nhóm chức chứa oxi như hydroxyl (C-OH), các hợp chất chứa C-O và C=O khác.... Mặt khác, theo động lực quá trình chuyển khối qua màng là nhờ sự chênh lệch áp suất khi lọc. Cơ chế tách qua màng là cơ chế sàng lọc. Theo cơ chế này, màng giữ lại những phân tử dầu có kích thước lớn hơn kích thước lỗ màng, dầu tích tụ trên màng theo thời gian lọc làm giảm năng suất lọc của màng. Trong khi đó nước bị cưỡng bức chuyển qua màng lọc.

Như vậy từ các kết quả thảo luận cho thấy việc tạo màng trên cơ sở graphen oxit trên nền polysulfone đã làm tăng tính thấm nước của màng chế tạo, tạo thuận lợi cho quá trình tách lọc dầu từ nhũ tương dầu/ nước.

Bên cạnh việc khảo sát năng suất tách lọc và độ lưu giữ của màng, chúng tôi còn khảo sát hệ số tắc màng bất thuận nghịch đối với màng GO/ PSF nhằm đánh giá khả năng làm sạch và phục hồi năng suất lọc của màng.

Hệ số tắc màng bất thuận nghịch  $FR_w$  được xác định dựa vào độ thấm nước qua màng trước khi lọc ( $J_{w0}$ ) và sau khi lọc ( $J_w$ ) nhũ tương dầu/ nước.

$$FR_w = \frac{(J_{w0} - J_w)}{J_{w0}} \times 100$$

Ở đây  $J_w$  được xác định bằng cách đo thể tích nước tinh khiết vận chuyển qua màng trong khoảng thời gian t (t: 30 phút):

$$J_w = \frac{V}{S \times t} \quad (L/m^2.h)$$

Với V là thể tích nước tinh khiết (L); S là diện tích bề mặt làm việc của màng (m<sup>2</sup>).

Kết quả khảo sát hệ số tắc màng bất thuận nghịch  $FR_w$  được trình bày ở bảng 2.

**Bảng 2.** Hệ số tắc màng bất thuận nghịch

$J_{wo}$ (L/m <sup>2</sup> .h)	$J_w$ (L/m <sup>2</sup> .h)	FR <sub>w</sub> (%)
12,29	10,00	18,63

Hệ số tắc màng bất thuận nghịch FR<sub>w</sub> đạt khoảng 18,63%. Màng có giá trị FR<sub>w</sub> càng thấp thì khả năng chống tắc màng càng cao.

#### 4. Kết luận

Chế tạo thành công màng polysulfone (PSF) trên cơ sở graphen oxit theo phương pháp đảo pha bởi các kỹ thuật spincoating, casting và electrospinning. Màng PSF và GO/PSF chế tạo theo phương pháp spincoating có mật độ lỗ dày đặc hơn với kích thước tương đối đồng đều.

Đã khảo sát khả năng tách lọc dầu của màng PSF và GO/PSF. Màng biến tính GO có khả năng tách lọc dầu từ nhũ tương dầu/nước tốt hơn màng không biến tính, thể hiện qua các thông số như độ lưu giữ và năng suất lọc. Độ lưu giữ của màng GO/PSF lên đến 60,40% trong khi đó màng PSF chỉ đạt 47,10%. Việc biến tính GO lên màng PSF ngoài việc tác động đến sự thay đổi kích thước lỗ, mật độ lỗ trên bề mặt màng lọc còn cải thiện được tính ưa nước, một đặc tính cần thiết cho quá trình ứng dụng tách lọc qua màng do đó tạo thuận lợi cho quá trình tách lọc dầu từ nhũ tương dầu/nước.

Đã tiến hành khảo sát hệ số tắc màng bất thuận nghịch đối với màng GO/PSF nhằm đánh giá khả năng làm sạch và phục hồi năng suất lọc của màng. Hệ số tắc màng bất thuận nghịch FR<sub>w</sub> đạt khoảng 18,63%.

**Lời cảm ơn:** Công trình này được thực hiện trong khuôn khổ đề tài Nafosted, mã số: 104.06-2017.56. Nhóm tác giả xin chân thành cảm ơn sự tài trợ của quỹ Phát triển khoa học và công nghệ quốc gia.

#### Tài liệu tham khảo

1. Lê Văn Cát, Cơ sở hóa học và kỹ thuật xử lý nước, NXB Thanh niên (1999)
2. Lê Viết Kim Ba, Nguyễn Trọng Uyển, Trần Thị Dung, Nguyễn Thị Hiền (2001), "Khả năng làm sạch nước bằng màng thẩm thấu ngược", Tạp chí hoá học và công nghiệp hoá chất, T.5 (70), 30-32
3. Nguyễn Hoa Thịnh, Nguyễn Đình Đức (2002), Vật liệu composite cơ học và công nghệ, Nhà xuất bản Khoa học và Kỹ thuật, Hà Nội
4. Trần Thị Dung (2004), Bài giảng công nghệ màng lọc và các quá trình tách bằng màng
5. Trần Thị Dung (2006), Cấu trúc bất đối xứng của màng

- siêu lọc chế tạo từ vật liệu polymer bằng phương pháp đảo pha, Tạp chí Hóa học, T.44 (1), Tr. 1-5
6. Trần Văn Nhân, Ngô Thị Nga (2005), Giáo trình Công nghệ xử lý nước thải, Nhà xuất bản Khoa học và kỹ thuật
7. B.M. Ganesh, Arun M. Isloor, A.F. Ismail (2013), Enhanced hydrophilicity and salt rejection study of graphene oxide-polysulfone mixed matrix membrane, pp 199-207
8. Brendehaug, J.S. Johnsen, K.H. Bryne, A.L. Gjose, and T.H. Eide (1992), Toxicity Testing and Chemical Characterization of Produced Water - A Preliminary Study In Produced Water, J.P. Ray and F.R. Englehart (eds.), Plenum Press, New York
9. Environmental Science: Water Research & Technology. Published on 27 September 2016. View Article Online. DOI: 10.1039/C6EW00187D, (2016)
10. Gongping Liu, Wanqin Jin and Nanping Xu. Graphene-based membranes DOI: 10.1039/c4cs00423j. www.rsc.org/chemsocrev
11. Ibrahim, S., Ang, H.M., Wang, S., Bioresour (2009). Technol. 100(23), 5744-5749
12. Jae woo Lee, Hee – Ro Chae, Young June Won, Ki baek Lee, Chung – Hak Lee, Hong H. Lee, In – Chul Kim, Jong – min Lee (2013), Graphene oxide nanoplatelets composite membrane with hydrophilic and antifouling properties for wastewater treatment, Journal of Membrane Science 448 (2013), 223 – 230
13. Rafeah Wahid, Luqman Abdullah Chuah, Thomas Shean Yaw Choong, Zainab Ngaini, Mohsen Mabrarekeh Nourouzi (2013), Oil removal from aqueous state by natural fibrous sorbent, Separation and Purification Technology 113 (2013) 51 – 63
14. R.K. Joshi, S. Alwarappan, M. Yoshimura, V. Sahajwalla, Y. Nishina. (2015), Graphene oxide: the new membrane material (Review). Applied Materials Today
15. Sumedh P. Surwade, Sergei N. Smirnov, Ivan V. Vlassiok, Raymond R. Unocic, Gabriel M. Veith, Sheng Dai and Shannon M. Mahurin, Water desalination using nanoporous single-layer graphene. Nature nanotechnology, Advance online public. DOI: 10.1038/NNANO. 37, (2015)
16. William S.Hummers, Jr, Richard E.Offeman. Preparation of graphitic oxide, Journal of American Chemical Society, 1958, 80(6), 1339 – 1349
17. Xin Yang, Changlun Chen, Jiaying Li, Guixia Zhao, Xuemei Ren and Xiangke Wang (2013), Graphene oxide-iron oxide and reduced Graphene oxide-iron oxide hybrid materials for the removal of organic and inorganic pollutants, RCS Advances, 23
18. Xuebing Hu, Yun Yu, Jianer Zhou, Yongqing Wang, Jian Liang, Xiaozhen Zhang, Qibing Chang, Lixin Song, The improved oil/water separation performance of graphene oxide modified Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> microfiltration membrane, journal of Membrane Science 476, 200 – 204, (2015)
19. Yunjin Yao, Shiding Miao, Shizhen Liu, Li Ping Ma, Hongqi Sun, Shaobin Wang (2012), Synthesis, characterization and adsorption properties of magnetic Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> - Graphene nanocomposite, Volume, 184, pp. 326–33