NGHIÊN CỨU KHẢ NĂNG HẤP PHỤ PARACETAMOL BẰNG VẬT LIỆU VERMICULITE BIẾN TÍNH

STUDY ON THE ADSORPTION OF PARACETAMOL USING MODIFIED VERMICULITE

Đặng Tuấn Quốc[1], Phạm Trà My[1], Trần Văn Chinh[2], Nguyễn Mạnh Hà[1], Phạm Thị Mai Hương[1,*]

DOI: https://doi.org/10.57001/huih5804.2026.068

TÓM TẮT

Trong nghiên cứu này, vermiculite được biến tính bằng H_2O_2 30% có sự hỗ trợ của vi sóng. Các tính chất của vermiculite sau biến tính được đặc trưng bởi kính hiển vi điện tử quét (SEM), diện tích bề mặt riêng Brunauer-Emmett-Teller (BET), nhiễu xạ tia X (XRD) và phổ hồng ngoại biến đổi Fourier (FTIR). Kết quả cho thấy, vermiculite sau biến tính có sự giản nỡ giữa các lớp trong cấu trúc lớp của vật liệu, diện tích bề mặt riêng (BET) tăng với vermiculite chưa biến tính khoảng 3 lần. Vật liệu sau biến tính được sử dụng nghiên cứu để hấp phụ paracetamol trong nước. Kết quả thực nghiệm cho thấy, hiệu suất hấp phụ paracetamol của vật liệu trong các điều kiện thích hợp với pH = 8, thời gian 120 phút, lượng vật liệu là 0,7g/50mL dung dịch paracetamol 20mg/L với hiệu suất hấp phụ đạt 80,1%. Nghiên cứu chứng tỏ tiềm năng sử dụng của vật liệu trong việc hấp phụ các hợp chất hữu cơ trong nước thải.

Từ khóa: *Hấp phụ, vermiculite biến tính, paracetamol.*

ABSTRACT

In this study, vermiculite was modified using 30% hydrogen peroxide (H_2O_2) under microwave-assisted treatment. The structural and surface characteristics of the modified vermiculite were analyzed using scanning electron microscopy (SEM), Brunauer–Emmett–Teller (BET) surface area analysis, X-ray diffraction (XRD), and Fourier-transform infrared spectroscopy (FTIR). The modification process resulted in significant interlayer expansion and a threefold increase in specific surface area compared to raw vermiculite. The modified material was subsequently employed for the adsorption of paracetamol from aqueous solutions. Under optimal conditions (pH = 8, contact time = 120 min, adsorbent dosage = 0.7g/50mL of 20mg/L paracetamol solution), the adsorption efficiency reached 80,1%. These findings highlight the potential application of materials for the removal of organic contaminants from wastewater.

Keywords**:** *Adsorption, modified vermiculite, paracetamol.*

[1]Khoa Công nghệ Hóa, Trường Đại học Công nghiệp Hà Nội
[2]Viện Hóa học - Vật liệu, Viện khoa học và Công nghệ Quân sự
[*]Email: phammaihuong@haui.edu.vn
Ngày nhận bài: 05/9/2025
Ngày nhận bài sửa sau phản biện: 20/12/2025
Ngày chấp nhận đăng: 30/3/2026

1. MỞ ĐẦU

Sự ô nhiễm dược phẩm trong nước thải từ các cơ sở y tế và ngành công nghiệp dược phẩm đang trở thành một vấn đề ngày càng nghiêm trọng, thu hút sự quan tâm của giới khoa học và các giải pháp kỹ thuật. Trong số các loại dược phẩm, sự hiện diện của paracetamol (PCT) là phổ biến nhất. Mặc dù nồng độ PTC được phát hiện trong nguồn nước từ ng/L đến µg/L, tuy nhiên việc thải liên tục PCT vào nguồn nước sẽ làm tích tụ gây ảnh hưởng tiêu cực đến sinh vật thuỷ sinh,… Ngoài ra, sự phân huỷ PCT dẫn đến tạo ra các hợp chất độc hại như 4-aminophenol gây thúc đẩy đột biến DNA và dẫn đến ung thư [1]. Do đó, việc loại bỏ PCT ra khỏi môi trường nước là rất quan trọng.

Trong những năm gần đây, một trong những hướng nghiên cứu mới được tập trung nghiên cứu đó là tổng hợp vật liệu hấp phụ thân thiện với môi trường. Vật liệu vermiculite (VER) là một trong những hướng nghiên cứu đối với các nhà khoa học. Vermiculit là loại khoáng sét có

trữ lượng dồi dào, giá thành thấp và thân thiện với môi trường. Do có nhiều đặc tính tuyệt vời, như mật độ thấp, độ dẫn nhiệt thấp, khả năng chịu nhiệt độ cao và độ ổn định nhiệt cao [2-4]. Chúng cũng có thể hấp phụ các kim loại nặng như chì, cadmium và thủy ngân, giúp làm giảm nồng độ chúng trong môi trường. Trong xử lý nước thải, khoáng vermiculite được sử dụng trong quá trình xử lý nước thải để loại bỏ chất hữu cơ, chất độc hại và các chất ô nhiễm khác; chúng có khả năng hấp phụ các chất hữu cơ trong quá trình lọc và giúp tách biệt chất rắn và chất lỏng trong quá trình kết tủa. Ở Việt Nam việc nghiên cứu hấp phụ ion Cd^{2+} bởi vermiculite vẫn chưa được thực hiện, chỉ một vài công bố về vermiculite biến tính hấp phụ As(V) [5], Hg^{2+} [6] và một số dung môi hữu cơ [7].

Trong nghiên cứu này, trình bày các đặc trưng tính chất và khả năng hấp phụ paracetamol trong môi trường nước của vermiculite biến tính bằng H_2O_2 hỗ trợ vi sóng từ khoáng vermiculite tự nhiên.

2. THỰC NGHIỆM

2.1. Hóa chất, nguyên liệu

Khoáng vermiculite có kích thước khoảng 3 - 5mm (Trung Quốc), H_2O_2 30% (Trung Quốc), chất chuẩn paracetamol chuẩn 99,7% (Viện Kiểm nghiệm thuốc Trung ương). Nước cất hai lần sử dụng tại phòng thí nghiệm Khoa Công nghệ Hóa - Trường Đại học Công nghiệp Hà Nội.

2.2. Chế tạo vermiculite biến tính

Vermiculite biến tính được chế tạo theo phương pháp vi sóng sử dụng H_2O_2 [7] như sau: Cho 1g vermiculite cho vào đĩa petri (d = 12cm), tẩm đều 6 mL H_2O_2 30%. Sau đó đĩa petri có nắp đậy được giữ trong tủ sấy ở 60°C trong thời gian 60 phút. Tiếp theo, mẫu được chuyển vào lò vi sóng (Sharp R-211TV-BK) để chiếu xạ (6 lần mỗi lần trong 15 giây, công suất chiếu 800W), sau đó mẫu được lấy ra để trong không khí để làm mát. Cuối cùng vermiculite giãn nở được sấy ở 120°C trong 1 giờ và bảo quản trong bình hút ẩm để sử dụng cho các thí nghiệm.

2.3. Đặc trưng tính chất của vật liệu

Diện tích bề mặt riêng được xác định bằng phương pháp hấp phụ - nhả hấp phụ đẳng nhiệt N_2 theo BET, trên thiết bị TRISTAR II PLUS (hãng Micromeritics). Giản đồ nhiễu xạ tia X, được thực hiện trên máy D8 Advance (Bruker - Đức) với góc quét 2θ từ 10 đến 80°, với bức xạ Kλ của anot Cu có λ = 0,154056nm. Hình thái cấu trúc tế vi của xúc tác được đặc trưng bằng phương pháp SEM trên thiết bị Field Emission Scaning Electron S-4800 (hãng Hitachisdz - Nhật Bản).

2.4. Nghiên cứu khả năng hấp phụ paracetamol của vermiculite biến tính

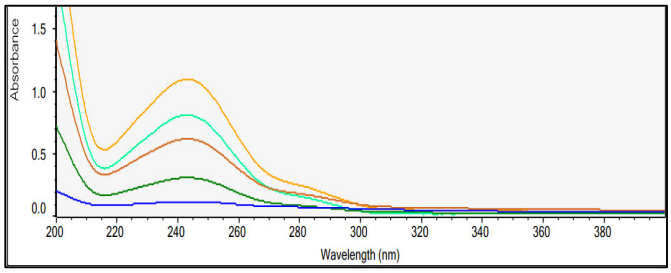
Các thí nghiệm hấp phụ paracetamol được thực hiện như sau: cho 0,7g vermiculite sau giãn nở vào cốc 100mL có chứa 50ml dung dịch paracetamol 20mg/L. Các bình cốc được đặt trên máy khuấy từ gia nhiệt với tốc độ 300 vòng/phút. Định kỳ theo thời gian, lấy khoảng 3mL dung dịch đem ly tâm với tốc độ 7000 vòng/phút trong 7 phút, rồi hút lấy phần dịch trong đem đo quang. Dung dịch đo quang xong cũng như phần dịch cặn sau ly tâm lại cho vào cốc dung dịch hấp phụ. Mật độ quang của dung dịch được đo trên máy máy Thermo Fisher Scientific ở bước sóng 243nm, tại Khoa Công nghệ Hóa, Trường Đại học Công nghiệp Hà Nội. Đường chuẩn định lượng paracetamol được xây dựng trong khoảng nồng độ 1, 5, 10, 15, 20mg/L, hình ảnh quét UV-VIS các dải nồng độ được thể hiện trong hình 1.

Hiệu suất hấp phụ (H%) của vermiculite sau biến tính được tính theo công thức:

$$H(\%) = \frac{(C_o - C_e)}{C_o} \times 100 \quad (1)$$

Trong đó:

- C_o và C_e (mg/L) lần lượt là nồng độ dung dịch paracetamol ban đầu và cân bằng;
- V (L) là thể tích dung dịch paracetamol;
- m (g) là khối lượng chất hấp phụ.



Hình 1. Phổ UV-VIS của đường chuẩn định lượng paracetamol

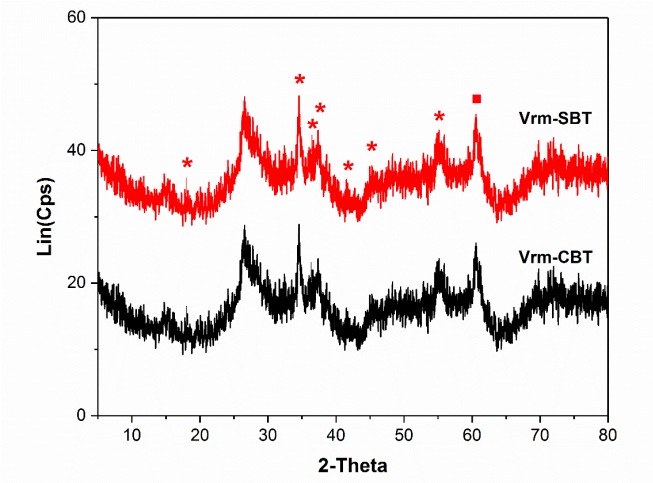
Để đánh giá khả năng tái sử dụng của vật liệu đến khả năng hấp phụ paracetamol. Xúc tác sau khi hấp phụ xong được lọc qua giấy lọc và rửa bằng nước cất đến khi dịch lọc hết paracetamol. Vật liệu sau khi lọc được sấy khô ở 100°C trong thời gian 2 giờ để đánh giá khả năng tái sử dụng của vật liệu.

3. KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN

3.1. Đặc trưng tính chất của vật liệu

3.1.1. Giản đồ nhiễu xạ tia X (XRD)

Phổ XRD của vật liệu vermiculite được biểu diễn trên hình 2.

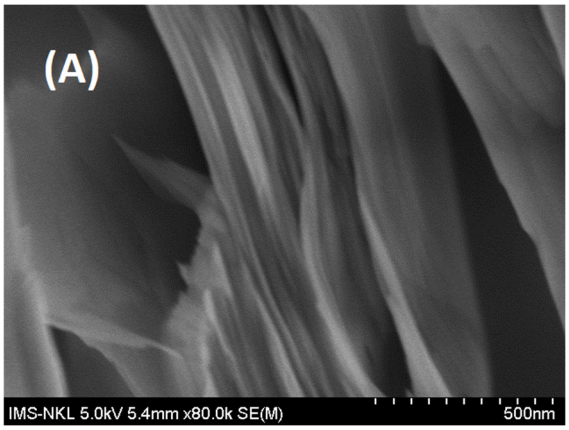


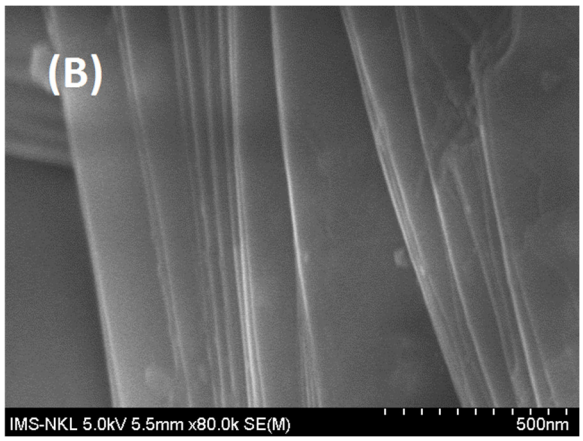
Hình 2. Phổ XRD của vermiculite chưa biến tính (Vrm-CBT) và sau biến tính (Vrm-SBT)

Kết quả cho thấy, 2 vật liệu vermiculite chưa biến tính và sau biến tính khá tương đồng nhau, đó là sự xuất hiện các peak của pha vermiculite (dấu *) tại các vị trí 2θ = 19,31°; 34,15°; 35,78°; 36,78°; 41,20°; 45,18° và 54,45° (theo COD 901-6797). Ngoài ra, xuất hiện peak tại ở 60,06° (dấu ▪) là pha của phlogopite (theo COD 901-6905) thuộc loại mica phyllosilicate với công thức $KMg_3(Si_3Al)O_{10}(OH)_2$ [8]. Như vậy, có thể khẳng định cấu trúc của vermiculite sau biến tính giữ vững ổn định so với vermiculite trước khi biến tính.

3.1.2. Hình thái của vật liệu (SEM)

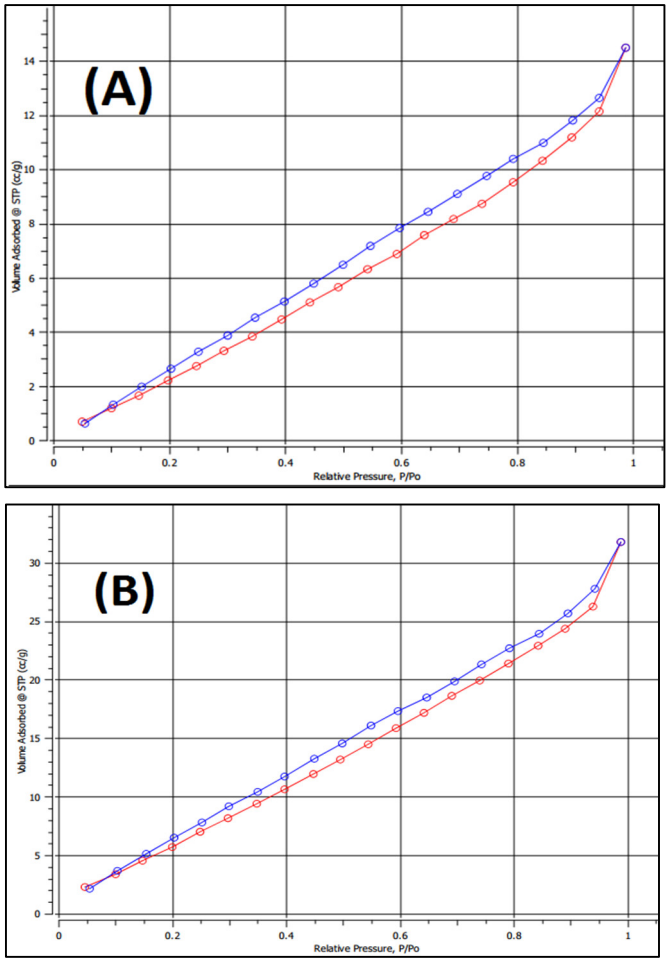
Để thấy rõ hơn về hình thái của vật liệu, vermiculite chưa biến tính và vermiculite sau biến tính được phân tích bởi SEM, kết quả thể hiện ở hình 3. Từ kết quả cho thấy, vermiculite có cấu trúc dạng tấm, xếp chồng nhau liên kết chặt chẽ và độ xốp tối thiểu (hình 3A). Sau giãn nở, các tấm lớn này bị bong tróc, khiến các lớp giãn nở và tách ra làm tăng thể tích so với vermiculite ban đầu (hình 3B). Điều này dự đoán vermiculite sau biến tính có thể làm tăng diện tích bề mặt riêng lên so với vermiculite chưa biến tính.





Hình 3. Ảnh SEM của vermiculite chưa biến tính (A), vermiculite sau biến tính (B)

3.1.3. Diện tích bề mặt riêng (BET)



Hình 4. Đường đẳng nhiệt hấp phụ - giải hấp N_2 và sự phân bố kích thước mao quản của của vermiculite chưa biến tính (A) và vermiculite sau biến tính (B)

Quan sát giản đồ hấp phụ-nhả hấp phụ đẳng nhiệt của Vrm-CBT và Vrm-SBT (hình 4) là vật liệu mao quản trung bình có cấu trúc xốp dạng tấm [9]. Mặt khác, từ số liệu bảng 1 cho thấy, diện tích bề mặt riêng của vật liệu vermiculite trước và sau biến tính được trình bày trong

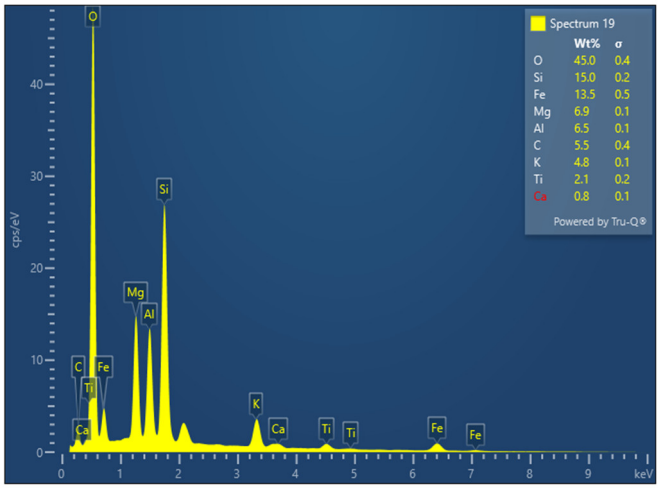
bảng. Từ kết quả cho thấy, sau khi biến tính vermiculite, diện tích bề mặt riêng tăng từ 8,1001m^2/g lên 26,1507m^2/g. Tương ứng, mao quản trung bình của vermiculite sau biến tính (13,1221nm) lớn hơn so với vermiculite chưa biến tính (12,5860 nm). Tương tự, tổng thể tích lỗ xốp cũng tăng từ 0,0594cm^3/g lên 13,121cm^3/g. Nguyên nhân của việc tăng diện tích bề mặt riêng có thể là do sự giãn nở các lớp vermiculite làm tăng diện tích bề mặt riêng của vật liệu. Điều này sẽ thuận lợi cho khả năng hấp phụ paraceltamol của vermiculite sau biến tính.

Bảng 1. Diện tích bề mặt riêng, thể tích lỗ xốp, kích thước mao quản trung bình của vermiculite chưa biến tính và vermiculite sau biến tính bằng phương pháp hấp phụ-nhả hấp theo BET

Vật liệu	Diện tích bề mặt riêng, (m^2/g)	Thể tích lỗ xốp trung bình, (cm^3/g)	Kích thước mao quản, (nm)
Vrm-CBT	8,1001	0,0594	12,5860
Vrm-SBT	26,1507	0,0653	13,1221

3.1.4. Thành phần của vật liệu

Thành phần hóa học của vật liệu vermiculite sau biến tính được đặc trưng bởi phổ tán xạ năng lượng tia X (EDX). Thành phần hóa học của vật liệu phụ thuộc vào nguồn gốc khu vực địa lý. Kết quả từ hình 5 cho thấy, trên giản đồ xuất hiện các peak đặc trưng xác nhận sự có mặt của các nguyên tố O, Si, Fe, Mg, Al, K, Ti, Ca. Tuy nhiên, có sự xuất hiện peak của nguyên tố C, điều này được giải thích có thể là do sự nhiễm bẩn có trên vật liệu.

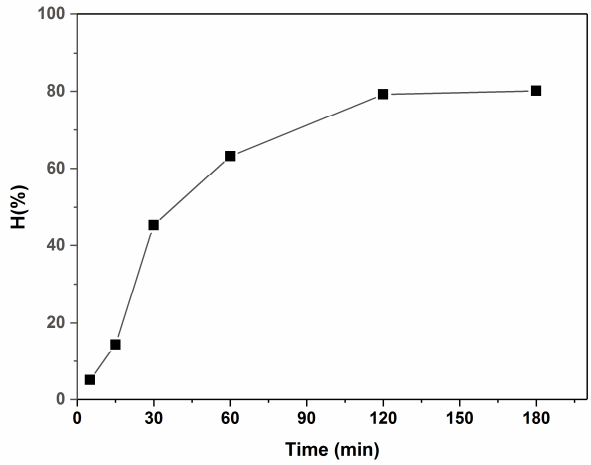


Hình 5. Giản đồ EDX của vật liệu vermiculite sau biến tính

3.2. Các yếu tố ảnh hưởng tới khả năng hấp phụ paracetamol của vật liệu

3.2.1. Ảnh hưởng của thời gian hấp phụ

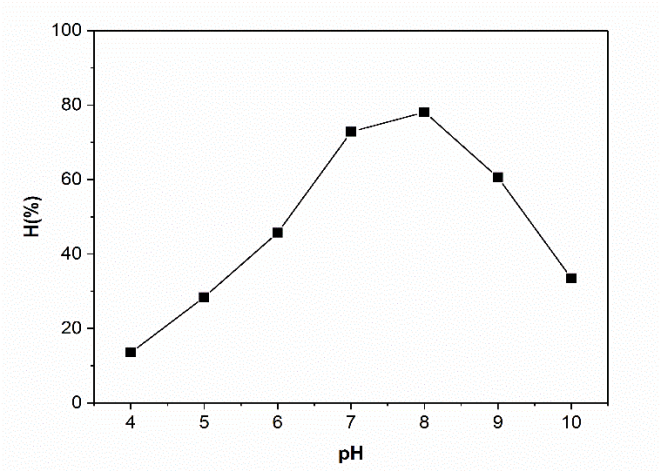
Kết quả nghiên cứu ảnh hưởng của thời gian hấp phụ paraceltamol của vermiculite sau biến tính được trình bày trong hình 6. Từ kết quả cho thấy, khi thời gian hấp phụ tăng lên từ 5 đến 120 phút thì khả năng hấp phụ tăng lên đáng kể tương ứng hiệu suất hấp phụ tưng từ 5,1% lên 79,1%. Sau 120 phút, khả năng hấp phụ của vật liệu đạt cân bằng Do đó, thời gian hấp phụ thích hợp là 120 phút và được chọn cho các nghiên cứu tiếp theo.



Hình 6. Ảnh hưởng của thời gian đến quá trình hấp phụ

3.2.2. Ảnh hưởng của pH

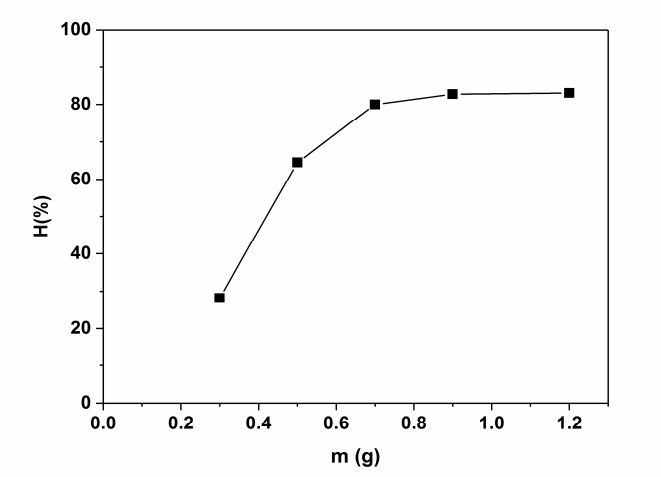
Kết quả nghiên cứu ảnh hưởng của pH đến khả năng hấp phụ của vật liệu được thể hiện trong hình 7. Từ kết quả cho thấy hiệu suất hấp phụ paracetamol tăng mạnh từ 5,1% lên 78,6% khi pH tăng từ 4 đến 8, sau đó giảm xuống còn 33,5% tại pH 10. Sự gia tăng ban đầu được giải thích là do ở pH gần trung tính, paracetamol tồn tại chủ yếu ở dạng không ion hóa, thuận lợi cho quá trình tương tác hấp phụ với bề mặt vật liệu [10]. Khi pH lớn hơn 9, paracetamol bị ion hóa thành dạng anion, dẫn đến lực đẩy tĩnh điện giữa phân tử thuốc và bề mặt vermiculite (vốn cũng mang điện tích âm), làm giảm hiệu suất hấp phụ [10]. Như vậy, pH thích hợp được chọn là 8 cho các nghiên cứu tiếp theo.



Hình 7. Ảnh hưởng của pH đến quá trình hấp phụ

3.2.3. Ảnh hưởng của lượng vật liệu đến quá trình hấp phụ

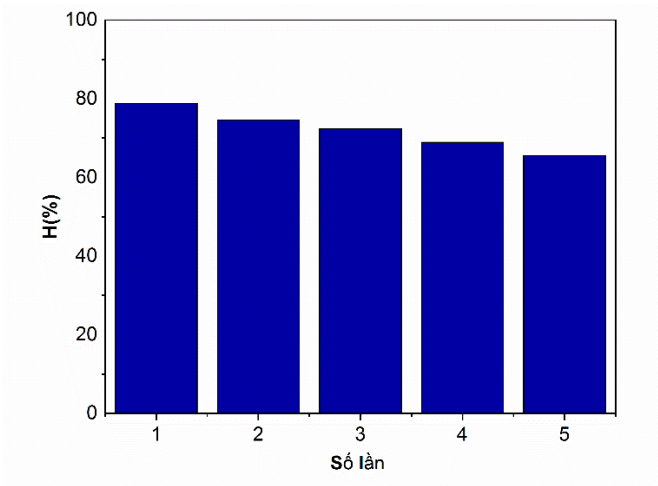
Kết quả nghiên cứu ảnh hưởng lượng vật liệu hấp phụ paracetamol được trình bày trên hình 8. Từ kết quả cho thấy, hiệu suất hấp phụ cực đại đạt 80,1% khi lượng vật liệu vermiculite sau biến tính là 0,7g. Khi tăng lượng vật liệu đến 1,2g gần như hiệu suất hấp phụ tăng không đáng kể và dần đạt đến trạng thái cân bằng. Do đó, lượng vật liệu hấp phụ được chọn là 0,7g/50mL dung dịch paracetamol 20mg/L.



Hình 8. Ảnh hưởng của lượng vật liệu đến khả năng hấp phụ paracetamol

3.2.4. Đánh giá khả năng tái sử dụng của vật liệu

Kết quả đánh giá khả năng tái sử dụng của vật liệu đến khả năng hấp phụ paracetamol được trình bày trên hình 9. Từ kết quả cho thấy, sau 5 lần tài sử dụng hiệu suất hấp phụ paracetamol giảm từ 79,8% (lần 1) đến 65,6% (lần 5). Điều này cho thấy, việc tái sử dụng vật liệu vermiculite sau biến tính để hấp phụ paracetamol đạt hiệu quả và tính ổn định tốt.



Hình 9. Khả năng tái sử dụng của vật liệu vermiclute sau biến tính đến hấp phụ paracetamol

Để đánh giá khả năng ứng dụng thực tiễn của vật liệu vermiculite sau biến tính trong nghiên cứu này đã sử dụng vật liệu vermiculite chưa biến tính hấp phụ paracetmol trong cùng điều kiện hấp phụ (pH = 8, thời gian 120 phút, lượng vật liệu 0,7g). Kết quả cho thấy hiệu suất hấp phụ paracetamol của vật liệu vermiculite chưa biến tính thấp hơn nhiều so với vật liệu vermiculite sau biến tính, tương ứng là 12,5% và 80,1%). Bảng 2 so sánh hiệu suất hấp phụ paracetamol của một số chất hấp phụ khác so với vật liệu vermiculite sau biến tính trong nghiên cứu này. Điều này nhận thấy rằng, vermiculite sau biến tính là một chất chất hấp phụ hiệu quả, chi phí thấp, thân thiện môi trường để loại bỏ paracetamol trong môi trường nước.

Bảng 2. So sánh hiệu suất hấp phụ paracetamol đối với một số vật liệu khác

TT	Chất hấp phụ	Hiệu suất hấp phụ	Nguồn
1	Vermiculite biến tính	80,1%	Nghiên cứu này
2	Than hoạt tính (thương mại)	95%	[11]
3	ZnO/chitosan-inulin nanocomposite	99,58%	[12]
4	GO (từ phế thải nông nghiệp)	76,6%	[13]
5	Fe_3O_4 và ZSM-5	84,6% và 75%	[14]

4. KẾT LUẬN

Vermiculite biến tính đã được chế tạo thành công bởi H_2O_2 và kết hợp sấy vi sóng trong thời gian ngắn. Vật liệu có diện tích bề mặt riêng 26,1507 m^2/g, tăng gấp khoảng 3 lần so với vermiculite thô ban đầu. Vermiculite sau biến tính được nghiên cứu để hấp phụ paracetamol trong nước. Kết quả cho thấy, trong điều kiện thích hợp (pH = 8, thời gian tiếp xúc = 120 phút, liều lượng chất hấp phụ = 0,7g/50mL dung dịch paracetamol 20mg/L), hiệu suất hấp phụ đạt 80,1%. Nghiên cứu khẳng định vermiculite biến tính có nhiều tiềm năng trong lĩnh vực hấp phụ chất hữu cơ và là tiền đề cho các nghiên cứu hấp phụ các chất hữu cơ khác trong nước thải.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

[1]. Md. Aminul Islam, Mazen Khaled Nazal, Muhammad Sajid, Mohammed Altahir Suliman, Mohammed Altahir Suliman, "Adsorptive removal of paracetamol from aqueous media: A review of adsorbent materials, adsorption mechanisms, advancements, and future perspectives," *Journal of Molecular Liquids*, 2024. DOI: 10.1016/j.molliq.2024.123976.

[2]. Kariya J. Ryu J. Kato Y., "Development of thermal storage material using vermiculite and calcium hydroxide," *Appl. Therm. Eng.,* 94:186-192, 2016. doi: 10.1016/j.applthermaleng.2015.10.090.

[3]. Sutcu M., "Influence of expanded vermiculite on physical properties and thermal conductivity of clay bricks," *Ceram. Int.,* 41:2819-2827, 2015. doi: 10.1016/j.ceramint.2014.10.102.

[4]. Zhou F., Zhi H., Wang C., "Preparation and microstructure of in-situ gel modified expanded vermiculite," *Ceram. Int.,* 39:4075-4079, 2013. doi: 10.1016/j.ceramint.2012.10.261.

[5]. K. H. Bình, N. V. Huy, N. M. Việt, "Nghiên cứu chế tạo vermiculite giãn nở sử dụng tác nhân H2O2 và vi sóng ứng dụng cho hấp phụ Asen trong nước," *Journal of Military Science Technology*, 100, 77-82, 2024.

[6]. L. T. Trần, "Nghiên cứu biến tính khoáng sét vermiculit nhằm nâng cao khả năng hấp phụ kim loại nặng trong nước," *Journal of Science: Earth Environmental Sciences*, 32, 3, 2016.

[7]. N. Van Huy, K. H. Binh, T. Van Chinh, N. T. H. Phuong, V. T. Thien, D. T. Trang, N. T. H. Phuong, V. T. Hang, T. V. Hoai, "Fabrication of expanded vermiculite using the mixed methods of microwave and H_2O_2 and their application for adsorption," *Vietnam Journal of Catalysis Adsorption*, 12, 2, 95-99, 2024.

[8]. S. K. Haldar, *Introduction to mineralogy and petrology.* Elsevier, 2020.

[9]. H. S. d. C. Neves, T. L. da Silva, M. G. C. da Silva, R. Guirardello, M. G. A. Vieira, "Ion exchange and adsorption of cadmium from aqueous media in sodium-modified expanded vermiculite," *Environmental Science Pollution Research*, 1-17, 2022.

[10]. Hegedűs P., et al. "Vermiculite modified with alkylammonium salts: characterization and sorption of ibuprofen and paracetamol," *Chemical Papers,* 75, 4199-4216, 2021.

[11]. Nathalia Krummenauer Haro, Ivone Vanessa Jurado Dávila, Keila Guerra Pacheco Nunes, Marcela Andrea Espina de Franco, Nilson Romeu Marcilio, Liliana Amaral Féris, "Kinetic, equilibrium and thermodynamic studies of the adsorption of paracetamol in activated carbon in batch model and fixed-bed column," *Applied Water Science*, 2021. https://doi.org/10.1007/s13201-020-01346-5.

[12]. Mohd Nasir, Daniya Shahid, Wajiha Khan, Atif Afroz, Mohammad Shahzad Samdani, Md. Abdur Rashid Mia, "Mechanistic insights into paracetamol adsorption from water using ZnO nanoparticle-immobilized chitosan-inulin composites: fractal kinetics, statistical physics, thermodynamic analysis, and application to real water samples," *Environmental Science: Water Research & Technology*, 2025. https://doi.org/10.1039/D5EW00116A.

[13]. Temitope M. Osobamiro, Adewale Oladipo, "Adsorption Study of Paracetamol with Graphene oxide Synthesizedfrom Agricultural waste," *Annals of Science and Technology - A,* 7 (2): 69-75, 2022. DOI: 10.2478/ast-2022-0011.

[14]. Florinela Pirvu, Cristina Ileana Covaliu-Mierlă, Gina Alina Catrina, "Removal of Acetaminophen Drug from Wastewater by Fe_3O_4 and ZSM-5 Materials," *Nanomaterials,* 13(11), 2023. https://doi.org/10.3390/nano13111745.

AUTHORS INFORMATION

Dang Tuan Quoc[1], Pham Tra My[1], Tran Van Chinh[2], Nguyen Manh Ha[1], Pham Thi Mai Huong[1]

[1]Faculty of Chemical Technology, Hanoi University of Industry, Vietnam

[2]Institute of Chemistry - Materials, Academy of Military Science and Technology, Vietnam