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.2026.217

ỨNG DỤNG ZNO TỔNG HỢP XANH TỪ LÁ ĐU ĐỦ VÀ LÁ LÔ HỘI TRONG XỬ LÝ COD NƯỚC THẢI MÍA ĐƯỜNG TỔNG HỢP

Nguyễn Xuân Lộc, Dương Hiếu Kiệt, Nguyễn Phi Long, Phan Thị Thanh Tuyền và Đỗ Thị Mỹ Phượng*

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): 13/01/2026
Sửa bài (Revised): 26/02/2026
Duyệt đăng (Accepted): 02/09/2026

Title: *Application of green-synthesized ZnO from papaya and aloe vera leaves for COD treatment in sugarcane wastewater*

Author(s): *Nguyen Xuan Loc, Duong Hieu Kiet, Nguyen Phi Long, Phan Thi Thanh Tuyen and Do Thi My Phuong**

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

TÓM TẮT

Trong nghiên cứu này, phương pháp quang xúc tác sử dụng vật liệu ZnO tổng hợp từ chiết xuất lá đu đủ (Papaya) (ZnO-ĐĐ) và lá lô hội (Aloe vera) (ZnO-LH) được áp dụng để xử lý COD trong nước thải nhà máy mía đường. Vật liệu được chế tạo theo phương pháp tổng hợp xanh (green synthesis) và được khảo sát trong các điều kiện khác nhau: pH, khối lượng vật liệu, thời gian phản ứng, công suất đèn UV và khả năng tái sử dụng của vật liệu. Kết quả cho thấy, ZnO-ĐĐ có hiệu suất xử lý COD cao hơn so với ZnO-LH trong tất cả các điều kiện nghiên cứu. Tại điều kiện thí nghiệm thích hợp (pH 8, 0,5 g vật liệu, thời gian phản ứng 60 phút, công suất đèn UV 20 W), hiệu suất xử lý COD đạt 62,22% đối với ZnO-ĐĐ và 53,33% đối với ZnO-LH. Vật liệu ZnO-ĐĐ cho thấy khả năng tái sử dụng vượt trội, khi hiệu suất xử lý COD sau ba chu kỳ vẫn đạt lần lượt 58,10%, 46,67% và 35,24%, cao hơn đáng kể so với vật liệu ZnO-LH. Kết quả nghiên cứu cho thấy vật liệu ZnO sinh học, đặc biệt là ZnO-ĐĐ, có tiềm năng ứng dụng trong xử lý nước thải hữu cơ chứa các hợp chất khó phân hủy, góp phần định hướng phát triển các công nghệ xử lý nước thải thân thiện với môi trường và chi phí thấp.

Từ khóa: *COD, lá đu đủ, lá lô hội, nước thải mía đường, quang xúc tác, ZnO*

ABSTRACT

This study evaluated the efficiency of chemical oxygen demand (COD) removal from synthetic wastewater simulating sugarcane processing effluent using a photocatalytic method with ZnO materials synthesized from papaya (Carica papaya) leaf extract (ZnO-DD) and aloe vera (Aloe vera) leaf extract (ZnO-LH). The materials were prepared via a green synthesis approach and investigated under various operating conditions, including pH, catalyst dosage, reaction time, UV lamp power, and reusability. The results showed that ZnO-DD exhibited higher COD removal efficiency than ZnO-LH under all investigated conditions. Under optimal conditions (pH 8, catalyst dosage of 0.5 g, reaction time of 60 min, and UV lamp power of 20 W), the COD removal efficiencies reached 62.22% for ZnO-DD and 53.33% for ZnO-LH. In addition, ZnO-DD demonstrated better reusability, with COD removal efficiencies of 58.10%, 46.67%, and 35.24% after three consecutive cycles, which were higher than those obtained for ZnO-LH. These findings indicate that biologically synthesized ZnO materials, particularly ZnO-DD, have considerable potential for the treatment of organic wastewater containing refractory compounds, contributing to the development of environmentally friendly and cost-effective wastewater treatment technologies.

Keywords: *Aloe vera; COD, papaya leaf, photocatalysis, sugarcane wastewater, ZnO*

1. GIỚI THIỆU

Ngành công nghiệp mía đường giữ vai trò quan trọng trong cung cấp nguyên liệu cho ngành thực phẩm và tạo việc làm cho người lao động. Tuy nhiên, quá trình sản xuất đường tiêu thụ lượng lớn nước và nguyên liệu, đồng thời phát sinh nhiều loại chất thải gây ô nhiễm môi trường. Nước thải từ các nhà máy đường thường chứa hàm lượng cao các chất ô nhiễm như COD, BOD, TSS, TDS và một số kim loại nặng (điển hình là Cd), làm suy giảm oxy hòa tan và gây tác động tiêu cực đến hệ sinh thái thủy sinh (Khan et al., 2011; Ali et al., 2016). Nguồn nước thải này có thể gây ô nhiễm nước mặt, nước ngầm và ảnh hưởng nghiêm trọng đến sức khỏe cộng đồng nếu không được xử lý đạt yêu cầu.

Trong thực tế, nhiều phương pháp xử lý nước thải như lắng, lọc, hấp phụ và khử trùng bằng clo đã được áp dụng (Chong et al., 2010). Tuy nhiên, các phương pháp truyền thống này thường chỉ hiệu quả đối với một số nhóm chất ô nhiễm nhất định và khó xử lý triệt để các hợp chất hữu cơ bền vững có mặt trong nước thải nhà máy đường, thậm chí có thể tạo ra các sản phẩm phụ độc hại. Do đó, việc nghiên cứu và áp dụng các công nghệ xử lý tiên tiến là cần thiết.

Trong những năm gần đây, các quy trình oxy hóa nâng cao (Advanced Oxidation Processes – AOPs), đặc biệt là phương pháp quang xúc tác, đã được quan tâm nghiên cứu nhờ khả năng phân hủy hiệu quả các hợp chất hữu cơ khó phân hủy (Ribeiro et al., 2015). Quang xúc tác sử dụng vật liệu bán dẫn dưới tác động của ánh sáng để tạo ra các gốc oxy hóa mạnh, giúp khoáng hóa chất hữu cơ thành CO_2 và H_2O, qua đó làm giảm COD và độ màu mà không phát sinh sản phẩm phụ độc hại (Hoffmann et al., 1995; Chong et al., 2011; Karthik et al., 2018). Trong số các chất quang xúc tác phổ biến, TiO_2 và ZnO được sử dụng rộng rãi, trong đó ZnO được đánh giá cao nhờ khả năng hấp thụ ánh sáng tốt, dễ tổng hợp và thân thiện với môi trường (Sakthivel et al., 2003).

Gần đây, ZnO tổng hợp sinh học từ các nguồn thực vật tự nhiên ngày càng thu hút sự quan tâm nghiên cứu nhờ chi phí thấp, quy trình thân thiện với môi trường và tính bền vững cao. Các hợp chất sinh học như flavonoid, tannin, polysaccharide và các hợp chất phenolic có trong chiết xuất thực vật (đu đủ, lô hội, hoa dâm bụt, *Justicia adhatoda*, hoa xoài, …) đóng vai trò là tác nhân khử đồng thời là chất ổn định sinh học, góp phần kiểm soát quá trình tạo mầm, sự phát triển tinh thể, kích thước hạt và độ phân tán của các hạt nano ZnO trong quá trình tổng hợp (Nguyen et al., 2013). Nhờ hiệu ứng bio-capping này, ZnO sinh học thường có kích thước hạt nhỏ, hình thái đa dạng và diện tích bề mặt lớn, từ đó cải thiện khả năng hấp thụ ánh sáng và hiệu quả quang xúc tác. Ngoài ra, các nguồn sinh khối tự nhiên khác như vảy cá rô phi cũng có thể được sử dụng để chiết tách hydroxyapatite làm vật liệu mang cho ZnO nano, giúp tăng diện tích bề mặt và nâng cao hiệu quả xử lý các hợp chất lưu huỳnh như H_2S (Thuy et al., 2022).

Nhiều nghiên cứu đã chứng minh tiềm năng ứng dụng vượt trội của ZnO tổng hợp xanh trong xử lý các chất ô nhiễm hữu cơ thông qua quá trình quang xúc tác. Saraswathi et al. (2017) báo cáo ZnO tổng hợp từ lá bằng lăng tím có thể làm giảm COD của dung dịch methyl cam từ 5.600 mg/L xuống còn 374 mg/L chỉ sau 100 phút chiếu sáng mặt trời. Tương tự, Karnan & Selvakumar (2016) ghi nhận COD giảm từ 6.162 mg/L xuống 418 mg/L khi sử dụng ZnO sinh học tổng hợp từ vỏ chôm chôm dưới chiếu xạ UV. Gần đây, Mahajan et al. (2025) đã đạt được kích thước tinh thể ZnO nhỏ nhất được báo cáo đến nay (5,2 nm) khi sử dụng chiết xuất lá *Justicia adhatoda*, qua đó thu được ZnO có độ kết tinh cao, hình thái được kiểm soát tốt và hiệu suất quang xúc tác vượt trội, với khả năng phân hủy 99,8% malachite green và tốc độ khử nhanh 4-nitrophenol dưới ánh sáng UV và ánh sáng mặt trời. Kết quả này cho thấy mối liên hệ chặt chẽ giữa nguồn chiết xuất sinh học, đặc tính cấu trúc–bề mặt và hoạt tính quang xúc tác của ZnO.

Bên cạnh đó, Anik et al. (2025) và Meena et al. (2025) cũng khẳng định rằng ZnO sinh học với kích thước nano (18–35 nm), hình thái hoa hoặc cầu và vùng hấp thụ UV–khả kiến phù hợp (band gap ~3,0–3,13 eV) thể hiện hiệu suất phân hủy gần như hoàn toàn các thuốc nhuộm hữu cơ dưới ánh sáng tự nhiên hoặc ánh sáng khả kiến, đồng thời duy trì hoạt tính cao sau nhiều chu kỳ tái sử dụng. Các kết quả này nhấn mạnh rằng nguồn nguyên liệu sinh học khác nhau có thể tạo ra ZnO với đặc tính vật liệu khác biệt (kích thước hạt, hình thái, tính chất bề mặt), từ đó dẫn đến sự khác nhau rõ rệt về hiệu suất xử lý COD và độ bền quang xúc tác.

Mặc dù đã đạt được nhiều kết quả khả quan trên thế giới, tại Việt Nam, các nghiên cứu về xử lý COD bằng phương pháp quang xúc tác vẫn còn tương đối hạn chế, đặc biệt là đối với vật liệu ZnO sinh học được tổng hợp từ các nguồn thực vật phổ biến, sẵn có và thân thiện với môi trường như lá đu đủ (*Carica papaya*) và lá lô hội (*Aloe vera*). Khoảng trống nghiên cứu này đặt ra nhu cầu cần thiết phải đánh

giá một cách hệ thống khả năng ứng dụng của các vật liệu ZnO sinh học trong điều kiện thực tế của nước thải công nghiệp.

Xuất phát từ thực tiễn đó, nghiên cứu này được thực hiện nhằm đánh giá khả năng xử lý COD trong nước thải sản xuất mía đường bằng phương pháp quang xúc tác, sử dụng chất xúc tác ZnO tổng hợp từ chiết xuất lá đu đủ và lá lô hội. Kết quả nghiên cứu kỳ vọng góp phần mở rộng cơ sở khoa học cho việc phát triển và ứng dụng các vật liệu nano thân thiện với môi trường trong xử lý nước thải công nghiệp, hướng tới các giải pháp xử lý bền vững và chi phí thấp.

2. PHƯƠNG PHÁP NGHIÊN CỨU

2.1. Quy trình chuẩn bị nước thải nhân tạo

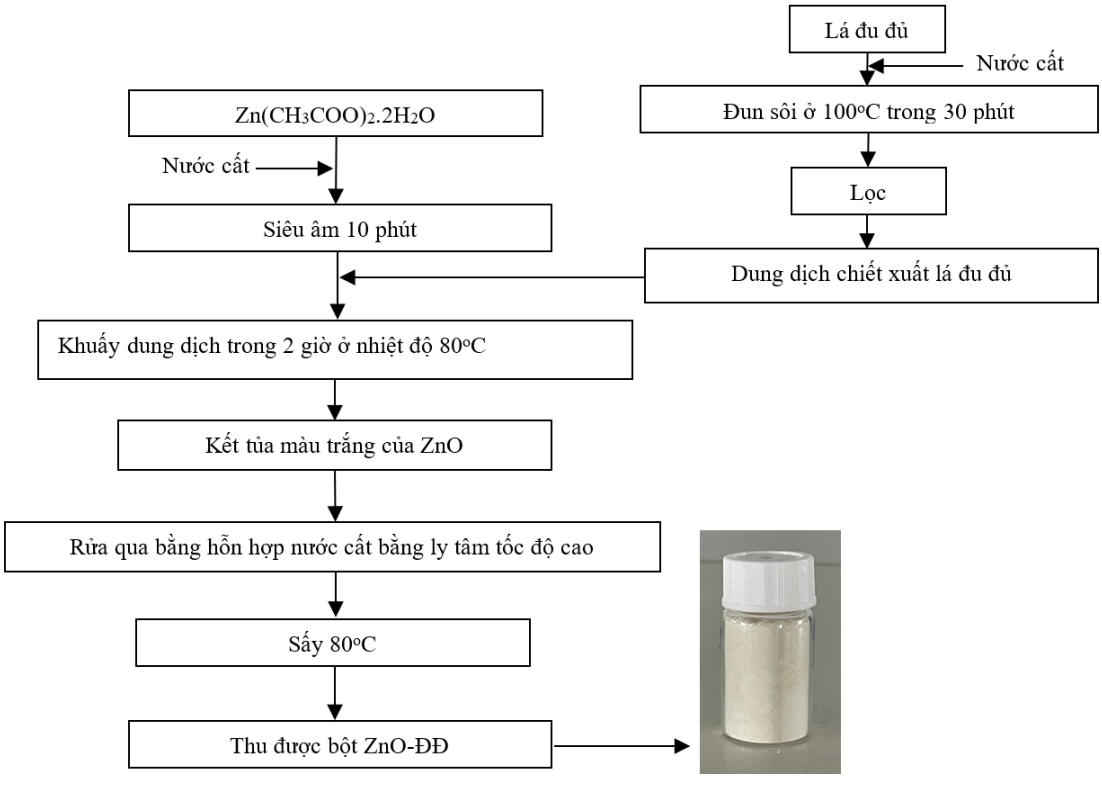
Nước thải nhân tạo mô phỏng nước thải nhà máy sản xuất mía đường được chuẩn bị dựa trên phương pháp đề xuất bởi Raji et al. (2021). Sơ đồ quy trình chuẩn bị nước thải nhân tạo được trình bày trong Hình 1. Cụ thể, 4,5 g $C_6H_{12}O_6$ (glucose), 1,88 g $C_2H_5NO_2$ (glycine) và 0,42 g $NaHCO_3$ (natri bicarbonate) được hòa tan trong 100 mL nước cất. Hỗn hợp dung dịch sau đó được gia nhiệt ở 95°C trong 7 giờ, rồi để nguội tự nhiên đến nhiệt độ phòng.

Tiếp theo, 400 mL nước cất được bổ sung vào dung dịch nhằm thu được nước thải nhân tạo có nồng độ COD khoảng 10.000 mg/L. Trước khi đưa vào thí nghiệm, dung dịch này được pha loãng theo tỷ lệ 1:4 để đạt nồng độ COD khoảng 2.500 mg/L, phù hợp cho các thí nghiệm xử lý quang xúc tác.

2.2. Quy trình điều chế vật liệu

2.2.1. Quy trình điều chế ZnO chiết xuất từ lá đu đủ

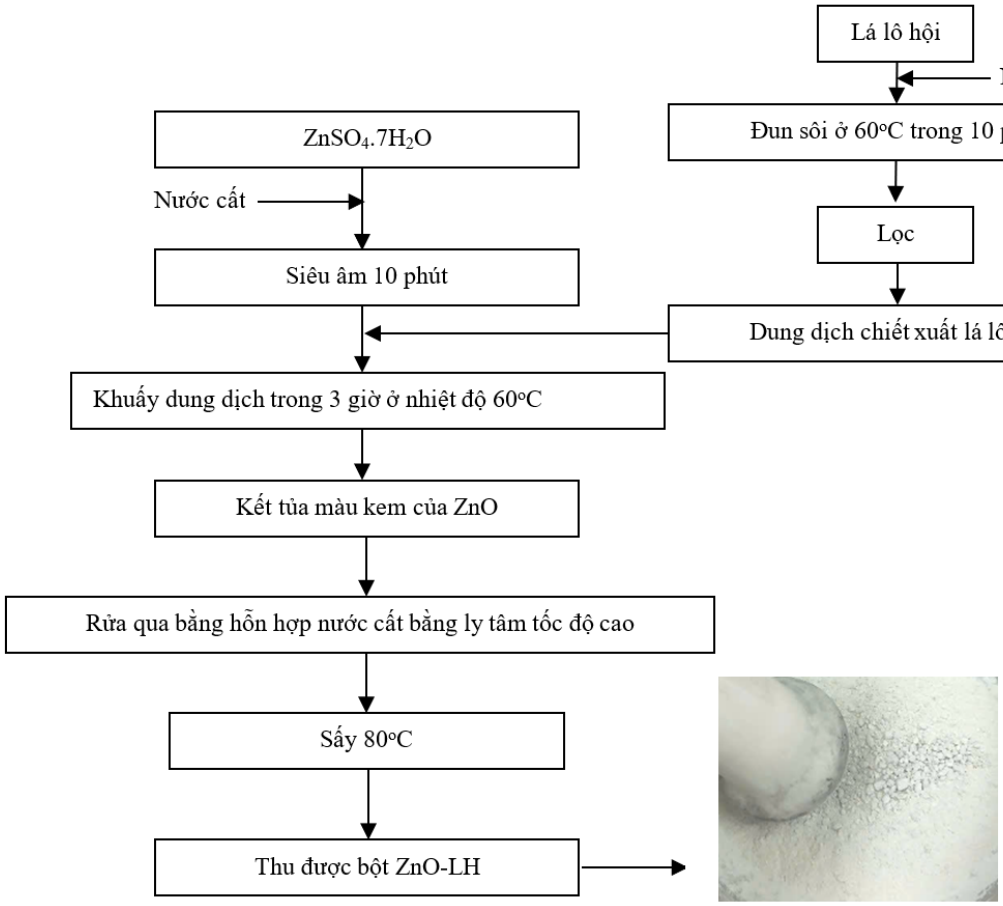
ZnO từ chiết xuất lá đu đủ (ZnO-ĐĐ) được tổng hợp theo phương pháp của Rathnasamy et al. (2017) (Hình 1). Cụ thể, 10 g lá đu đủ được đun với 100 mL nước cất ở 100°C trong 30 phút và lọc để thu dung dịch chiết; 5 mmol $Zn(CH_3COO)_2.2H_2O$ được hòa tan trong 50 mL nước cất và siêu âm 15 phút, sau đó 20 mL dung dịch chiết được bổ sung từ từ; pH hỗn hợp được điều chỉnh đến 12 và khuấy ở 60°C trong 2 giờ cho đến khi hình thành kết tủa ZnO. Kết tủa được ly tâm (2.000 vòng/phút), rửa bằng nước cất và sấy ở 80°C đến khối lượng không đổi để thu bột ZnO-ĐĐ.



Hình 1. Sơ đồ điều chế ZnO bằng chiết xuất lá đu đủ

2.2.2. Quy trình điều chế ZnO chiết xuất từ lá lô hội

ZnO từ chiết xuất lá lô hội (ZnO-LH) được tổng hợp theo phương pháp của Ali et al. (2016) (Hình 2). Cụ thể, 25 g vỏ lá lô hội được đun với 100 mL nước cất ở 60°C trong 10 phút, sau đó lọc để thu dung dịch chiết. Dung dịch $ZnSO_4$ (0,25 M) được chuẩn bị bằng cách hòa tan 35,875 g $ZnSO_4.7H_2O$ trong 500 mL nước cất và siêu âm trong 15 phút. Dung dịch chiết lá lô hội được bổ sung vào dung dịch $ZnSO_4$ theo tỷ lệ 1:4 (v/v), sau đó hỗn hợp được khuấy ở 60°C trong 3 giờ. Kết tủa ZnO thu được được ly tâm (2.000 vòng/phút), rửa bằng nước cất và sấy ở 80°C đến khối lượng không đổi để thu bột ZnO-LH.



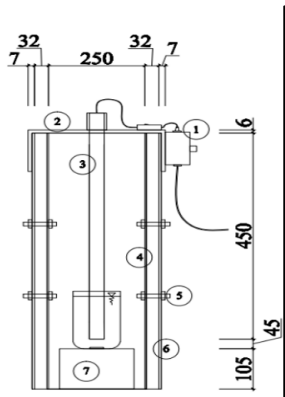
Hình 2. Sơ đồ điều chế ZnO bằng chiết xuất lá lô hội

2.2.3. Mô hình sử dụng cho thí nghiệm

Mô hình quang xúc tác được thiết kế gồm bốn bộ phận chính (Hình 3). Lớp ống nhựa PVC tối màu bên ngoài (6) đóng vai trò làm khung bảo vệ và kết hợp với phần nắp (2), giúp ngăn cản ánh sáng từ các nguồn bên ngoài ảnh hưởng đến quá trình thí nghiệm. Bên trong là ống trong suốt (4), cho phép ánh sáng từ nguồn chiếu đi vào vùng phản ứng mà không bị ảnh hưởng bởi lớp ống ngoài. Hai lớp ống được cố định với nhau bằng bốn ốc vít (5).

Trên phần nắp, một lỗ được khoan tại vị trí trung tâm để lắp đặt đèn UV (3), đồng thời tích hợp bộ điều khiển công suất điện (1) nhằm điều chỉnh cường độ chiếu sáng phù hợp với từng điều kiện thí nghiệm. Máy khuấy từ (7) được đặt tại trung tâm mô hình; trong quá trình vận hành, cốc chứa mẫu nước thí nghiệm và chất xúc tác được đặt trên máy khuấy để đảm bảo hệ phản ứng được khuấy trộn đồng đều.

Khi tiến hành thí nghiệm, mẫu nước cùng vật liệu xúc tác và cá từ được đặt vào cốc trên máy khuấy từ; tốc độ khuấy được điều chỉnh phù hợp, sau đó mô hình được đặt bao phủ bên ngoài cốc phản ứng. Cuối cùng, công suất đèn UV được điều chỉnh theo yêu cầu và hệ thống được vận hành bằng cách bật công tắc đèn.



Chú thích:
1: Bộ điều khiển công suất điện
2: Phần nắp mô hình
3: Đèn UV
4: Phần ống nhựa PVC trong suốt bên trong
5: Ốc vít cố định mô hình
6: Phần ống nhựa PVC bên ngoài
7: Máy khuấy từ

Hình 3. Mô hình quang xúc tác

Bố trí thí nghiệm được thiết kế nhằm đánh giá ảnh hưởng của pH, khối lượng vật liệu (g), thời gian phản ứng (phút) và công suất đèn (W) đến hiệu suất xử lý COD của nước thải. Mỗi nghiệm thức được lặp lại ba lần, với thể tích mẫu 500 mL cho mỗi thí nghiệm (Bảng 1).

Hai vật liệu nano ZnO-ĐĐ và ZnO-LH được tổng hợp và xác định điểm không điện tích (pH_{pzc}). Các mẫu ZnO được đưa vào dung dịch NaCl có pH ban đầu trong khoảng 2–12; sau đó, dung dịch được lắc trong 24 giờ và pH cuối được đo để xác định pH_{pzc} (Yang et al., 2004).pH dung dịch thí nghiệm được điều chỉnh đến giá trị mong muốn bằng cách thêm từ từ dung dịch HCl 0,1 M hoặc NaOH 0,1 M và được kiểm tra bằng máy đo pH để bàn (PH1100-S, Horiba, Nhật Bản) trước khi tiến hành thí nghiệm quang xúc tác.

Bảng 1. Bố trí các thí nghiệm ảnh hưởng

Thí nghiệm	Yếu tố khảo sát	Giá trị khảo sát	Điều kiện cố định
TN1	Xác định nồng độ pH	2; 4; 6; 8	V = 500 mL; thời gian phản ứng 60 phút; khối lượng vật liệu 0,5 g; công suất đèn UV là 20 W
TN2	Xác định khối lượng vật liệu ZnO (g)	0,5; 0,75; 1	V = 500 mL; pH xác định TN1; thời gian phản ứng 60 phút; công suất đèn UV là 20 W
TN3	Xác định thời gian phản ứng (phút)	60; 120; 240	V = 500 mL; pH xác định TN1; khối lượng vật liệu xác định TN2; công suất đèn UV là 20 W
TN4	Xác định công suất đèn (W)	10, 15, 20	V = 500 mL; pH xác định TN1; khối lượng vật liệu xác định TN2; thời gian phản ứng xác định TN3

Công thức tính toán nhu cầu oxy hóa học (COD)

$$COD\ (\text{mg } O_2/\text{L}) = \frac{(A-B)\times M\times 8000\times DF}{V}$$

Trong đó:

A: thể tích FAS dùng cho mẫu trắng (mL)

B: thể tích FAS dùng cho mẫu thử (mL)

M: Nồng độ FAS (mol/L hoặc N)

DF: Hệ số pha loãng

V: Thể tích mẫu nước (mL)

Công thức tính hiệu suất xử lý (H)

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

Trong đó:

H: Hiệu suất xử lý (%)

C_0: Nồng độ COD ban đầu (mg/L)

C_1: Nồng độ COD sau xử lý (mg/L)

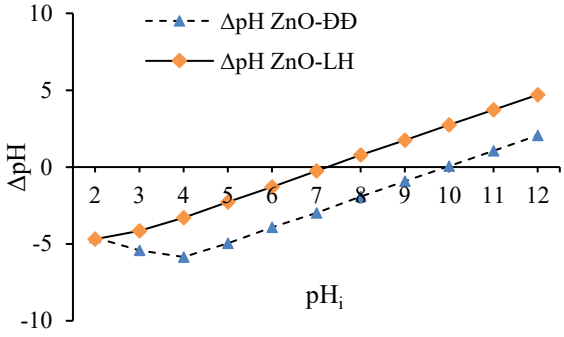
Xử lý số liệu: Số liệu được phân tích bằng phần mềm IBM SPSS Statistics 20 thông qua phân tích phương sai một nhân tố (ANOVA) và kiểm định Duncan để so sánh sự khác biệt giữa các giá trị trung bình ở mức tin cậy 95% ($p < 0,05$). Trước khi phân tích ANOVA, dữ liệu được kiểm tra phân phối chuẩn và tính đồng nhất phương sai.

3. KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN

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

Điểm không điện tích (pH_{pzc}) là giá trị pH tại đó điện tích bề mặt tổng của vật liệu bằng không, phản ánh sự cân bằng giữa các nhóm tích điện dương và âm trên bề mặt. Thông số này có ý nghĩa quan trọng trong các quá trình hấp phụ và quang xúc tác, vì nó chi phối tương tác tĩnh điện giữa bề mặt vật liệu và các chất ô nhiễm trong dung dịch. Khi pH dung dịch

nhỏ hơn pH_{pzc}, bề mặt ZnO mang điện tích dương, trong khi ở pH lớn hơn pHpzc, bề mặt mang điện tích âm, từ đó ảnh hưởng đến khả năng tiếp cận và phân bố của các hợp chất hữu cơ trong quá trình xử lý COD (Lee et al., 2016; Gupta et al., 2022).



Hình 4. pH_{pzc} ở hai loại vật liệu

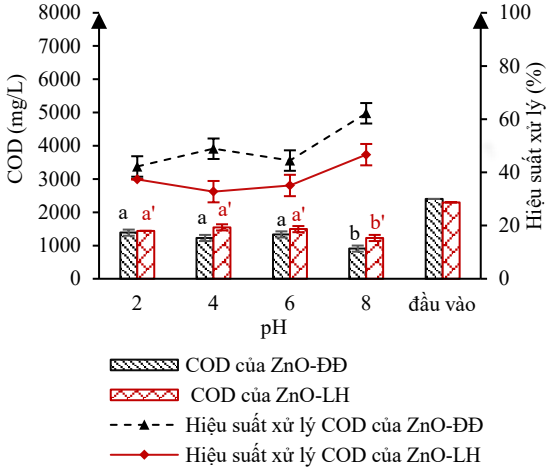
Kết quả trình bày trong Hình 4 cho thấy giá trị pH_{pzc} của ZnO-LH là 7,3, thấp hơn đáng kể so với ZnO-ĐĐ (9,9). Điều này cho thấy bề mặt ZnO-LH chuyển sang trạng thái mang điện tích âm ở giá trị pH thấp hơn, trong khi ZnO-ĐĐ chỉ mang điện tích âm rõ rệt trong môi trường pH kiềm mạnh. Do đó, ZnO-LH có khoảng pH hoạt động hiệu quả rộng hơn ở vùng pH trung tính đến kiềm, tạo điều kiện thuận lợi cho tương tác bề mặt trong quá trình xử lý COD ở môi trường pH cao.

Sự khác biệt về pH_{pzc} giữa hai vật liệu được cho là liên quan đến thành phần và bản chất của các hợp chất sinh học trong dịch chiết thực vật được sử dụng trong quá trình tổng hợp. Cụ thể, các hợp chất phenolic và polysaccharide trong lá lô hội, cũng như flavonoid và alkaloid trong lá đu đủ, có thể tham gia bao phủ bề mặt hạt nano ZnO, từ đó làm thay đổi mật độ nhóm chức bề mặt và đặc tính điện tích của vật liệu (Ali et al., 2016; Ammu et al., 2025).

Giá trị pH_{pzc} thu được trong nghiên cứu này có thể được so sánh với các báo cáo trước đây về ZnO tổng hợp bằng phương pháp tổng hợp xanh. Primo et al. (2020) ghi nhận ZnO được tổng hợp với sự hỗ trợ của dịch chiết lá lô hội (*Aloe vera*) có pH_{pzc} khoảng 8,8, trong khi ZnO tổng hợp từ tinh bột sắn có pH_{pzc} khoảng 9,4. Các giá trị này phù hợp với khoảng pH_{pzc} thường được báo cáo đối với vật liệu ZnO. Sự khác biệt về điểm pH_{pzc} phụ thuộc vào đặc tính bề mặt cũng như phương pháp tổng hợp vật liệu (Adair et al., 2001; Primo et al., 2020). Sự khác biệt về pH_{pzc} phản ánh sự thay đổi đặc tính điện tích bề mặt của vật liệu và cho thấy hai vật liệu có tiềm năng ứng dụng khác nhau trong xử lý COD nước thải, đặc biệt dưới các điều kiện pH vận hành khác nhau.

3.2. Ảnh hưởng yếu tố pH đến khả năng xử lý COD của hai vật liệu

pH là yếu tố then chốt chi phối hiệu quả của quá trình quang xúc tác do ảnh hưởng trực tiếp đến điện tích bề mặt của chất xúc tác, trạng thái ion hóa của các chất ô nhiễm và khả năng hình thành các gốc oxy hóa mạnh, đặc biệt là gốc hydroxyl (*OH) (Khan et al., 2024). Trong môi trường kiềm nhẹ, sự gia tăng nồng độ ion OH^- tạo điều kiện thuận lợi cho quá trình sinh gốc *OH trên bề mặt xúc tác, qua đó thúc đẩy quá trình oxy hóa và phân hủy các hợp chất hữu cơ, dẫn đến hiệu quả xử lý COD cao hơn.



Hình 5. Ảnh hưởng của pH đến khả năng xử lý COD của hai vật liệu ZnO

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

Kết quả được trình bày trong Hình 5 cho thấy hiệu suất xử lý COD của cả hai vật liệu nano ZnO-ĐĐ và ZnO-LH đều tăng theo pH, tuy nhiên mức độ cải thiện có sự khác biệt rõ rệt giữa hai vật liệu. Hiệu suất xử lý COD của ZnO-ĐĐ tăng từ 42,22% tại pH 2 lên 62,22% tại pH 8, trong khi ZnO-LH tăng từ 37,39% lên 46,67% trong cùng khoảng pH. Phân tích thống kê cho thấy pH 8 là điều kiện cho hiệu suất xử lý COD cao nhất và có ý nghĩa so với các mức pH còn lại đối với cả hai hệ vật liệu, cho thấy môi trường kiềm nhẹ đặc biệt thuận lợi cho quá trình quang xúc tác.

Xu hướng này có mối liên hệ chặt chẽ với giá trị điểm không điện tích (pH_{pzc}) của các vật liệu ZnO. Kết quả xác định pH_{pzc} cho thấy ZnO-LH có pHpzc ≈ 7,3, trong khi ZnO-ĐĐ có pH_{pzc} cao hơn đáng kể (≈ 9,9). Ở pH 8, bề mặt ZnO-LH mang điện tích âm,

trong khi bề mặt ZnO-ĐĐ vẫn gần trạng thái trung hòa hoặc mang điện tích dương nhẹ. Điều này ảnh hưởng trực tiếp đến đặc tính hấp phụ và tương tác bề mặt giữa chất ô nhiễm hữu cơ và vật liệu xúc tác.

Đối với ZnO-LH, bề mặt mang điện tích âm tại pH 8 có thể làm giảm lực đẩy tĩnh điện đối với các hợp chất hữu cơ trung hòa hoặc mang điện âm yếu, đồng thời vẫn tạo điều kiện thuận lợi cho quá trình tạo gốc hydroxyl nhờ sự hiện diện của ion OH^- trong môi trường kiềm nhẹ. Trong khi đó, đối với ZnO-ĐĐ, giá trị pH_{pzc} cao giúp vật liệu duy trì bề mặt ít âm hơn tại pH 8, từ đó hạn chế hiện tượng đẩy tĩnh điện và tăng cường khả năng tiếp cận của các phân tử hữu cơ đến các tâm xúc tác, góp phần giải thích hiệu suất xử lý COD cao hơn của ZnO-ĐĐ so với ZnO-LH trong cùng điều kiện.

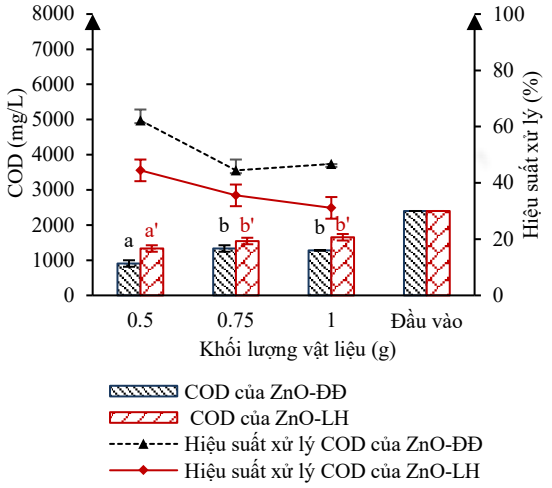
Ở pH thấp (pH 2), cả hai vật liệu đều cho hiệu suất xử lý COD thấp do môi trường axit mạnh có thể gây hòa tan một phần ZnO, làm giảm độ ổn định cấu trúc và hạn chế sự hình thành các gốc oxy hóa mạnh như *OH (Gupta & Tripathi, 2011). Khi pH tăng vượt qua giá trị pH_{pzc}, bề mặt vật liệu chuyển sang mang điện tích âm rõ rệt, điều này có thể làm giảm khả năng tiếp cận của một số hợp chất hữu cơ đến bề mặt xúc tác, đặc biệt đối với ZnO-LH tại pH cao hơn.

Nhìn chung, sự khác biệt về pH_{pzc} giữa ZnO-ĐĐ và ZnO-LH đóng vai trò quan trọng trong việc chi phối trạng thái điện tích bề mặt, khả năng tạo gốc hydroxyl và tương tác vật liệu–chất ô nhiễm, từ đó dẫn đến sự khác biệt về hiệu suất xử lý COD. Kết quả này phù hợp với các nghiên cứu trước đây, trong đó hiệu suất quang xúc tác của ZnO thường đạt giá trị tối ưu trong khoảng pH 7–9, phụ thuộc mạnh vào pH_{pzc} và đặc tính bề mặt của vật liệu (Chen & Mao, 2010; Primo et al., 2020).

3.3. Ảnh hưởng khối lượng vật liệu đến khả năng xử lý COD của hai vật liệu

Khối lượng vật liệu là thông số quan trọng ảnh hưởng đến hiệu quả quang xúc tác do chi phối khả năng hấp thụ ánh sáng và diện tích bề mặt tham gia phản ứng (Hoffmann et al., 2019). Khi khối lượng xúc tác quá thấp, số lượng tâm hoạt động không đủ để xử lý hiệu quả chất ô nhiễm; ngược lại, khối lượng quá cao có thể gây kết tụ hạt và hiện tượng che chắn ánh sáng, làm giảm hoạt tính quang xúc tác (Kashif & Ouyang, 2009; Ankamwar et al., 2017).

Kết quả được trình bày ở Hình 6 cho thấy hiệu suất xử lý COD của cả hai vật liệu ZnO tổng hợp từ lá đu đủ và lá lô hội đều giảm khi khối lượng vật liệu tăng. Cụ thể, khi khối lượng tăng từ 0,5 g lên 1 g, hiệu suất xử lý COD của ZnO-ĐĐ giảm từ 62,22% xuống 46,67%, trong khi ZnO-LH giảm từ 44,44% xuống 31,11%. Phân tích thống kê cho thấy khối lượng 0,5 g cho hiệu suất xử lý COD cao hơn có ý nghĩa so với các mức khối lượng còn lại ở cả hai loại vật liệu.



Hình 6. Ảnh hưởng khối lượng vật liệu đến khả năng xử lý COD của hai vật liệu ZnO

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

Tại khối lượng xúc tác 0,5 g, vật liệu ZnO được phân tán tương đối đồng đều trong hệ phản ứng, tạo điều kiện tối ưu cho sự tiếp xúc giữa bề mặt xúc tác, ánh sáng chiếu xạ và các chất ô nhiễm hữu cơ trong dung dịch. Sự phân tán phù hợp này không chỉ giúp gia tăng số lượng tâm hoạt động sẵn có mà còn đảm bảo khả năng hấp thụ và sử dụng hiệu quả bức xạ chiếu tới, từ đó thúc đẩy quá trình kích hoạt điện tử và hình thành các gốc oxy hóa mạnh, đặc biệt là gốc hydroxyl (*OH). Các gốc *OH đóng vai trò chủ đạo trong việc phá vỡ cấu trúc các hợp chất hữu cơ phức tạp, góp phần nâng cao hiệu quả oxy hóa và giảm COD của nước thải.

Ngược lại, khi khối lượng xúc tác tăng lên 0,75 g và 1,0 g, nồng độ hạt trong hệ phản ứng trở nên quá cao, dẫn đến hiện tượng kết tụ và chồng lấp giữa các hạt xúc tác. Hiện tượng này làm giảm diện tích bề mặt hiệu dụng và cản trở sự khuếch tán của ánh sáng vào sâu trong huyền phù, gây ra hiện tượng che chắn ánh sáng (light shielding effect). Kết quả là cường độ bức xạ thực tế đến các tâm hoạt động trên bề mặt xúc tác bị suy giảm, làm hạn chế quá trình tạo cặp electron–lỗ trống và sự hình thành các gốc

·OH. Ảnh hưởng bất lợi này đặc biệt rõ rệt đối với vật liệu ZnO-LH, có thể do đặc tính bề mặt và mức độ kết tụ cao hơn so với ZnO-ĐĐ, như đã được báo cáo trong các nghiên cứu trước (Deng et al., 2018).

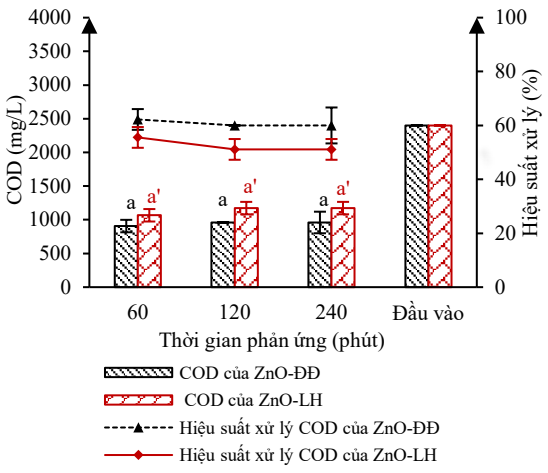
Xu hướng này phù hợp với các kết quả đã được báo cáo trong các nghiên cứu trước đây. Affam et al. (2020) cho thấy hiệu suất xử lý COD bằng ZnO đạt giá trị tối ưu tại khối lượng xúc tác 0,5 g, và giảm đáng kể khi tiếp tục gia tăng lượng vật liệu (Lu & Chiu, 2006). Tương tự, Joy et al. (2021) cũng ghi nhận rằng khi khối lượng xúc tác vượt quá giá trị tối ưu, hiệu suất xử lý COD có xu hướng suy giảm do hiện tượng bão hòa bề mặt, kết tụ hạt và hạn chế khả năng hấp thụ ánh sáng, từ đó làm giảm hiệu quả của quá trình quang xúc tác (AlMohamadi et al., 2024).

Kết quả thu được cho thấy khối lượng xúc tác là yếu tố quan trọng chi phối hiệu suất xử lý COD của cả hai hệ vật liệu ZnO. Trong phạm vi điều kiện khảo sát, khối lượng 0,5 g cho hiệu suất xử lý COD cao nhất đối với ZnO-ĐĐ (62,22%) và ZnO-LH (44,44%), do đó được lựa chọn cho các thí nghiệm tiếp theo.

3.4. Ảnh hưởng yếu tố thời gian đến khả năng xử lý COD của hai vật liệu

Thời gian phản ứng là một trong những yếu tố ảnh hưởng đến hiệu suất của quá trình quang xúc tác, do ảnh hưởng trực tiếp đến mức độ phân hủy các hợp chất hữu cơ trong nước thải. Cơ chế quang xúc tác của ZnO bao gồm các bước chính: hấp phụ chất ô nhiễm lên bề mặt xúc tác, kích thích vật liệu dưới ánh sáng để tạo cặp electron–lỗ trống (e^-/h^+), và hình thành các gốc hydroxyl (*OH) có khả năng oxy hóa mạnh, dẫn đến quá trình phân hủy các hợp chất hữu cơ (Chen et al., 2020). Tuy nhiên, khi thời gian phản ứng kéo dài, hiệu suất xử lý có thể không tiếp tục tăng do sự bão hòa các vị trí hoạt động hoặc sự tích tụ các sản phẩm trung gian trên bề mặt xúc tác (Ankamwar et al., 2017).

Ảnh hưởng của thời gian phản ứng đến hiệu suất xử lý COD của hai vật liệu ZnO được trình bày ở Hình 7. Kết quả cho thấy hiệu suất xử lý COD của cả hai loại ZnO đều có xu hướng giảm khi thời gian phản ứng tăng từ 60 đến 240 phút. Cụ thể, hiệu suất xử lý COD của ZnO-ĐĐ giảm từ 62,22% xuống 60,00%, trong khi ZnO-LH giảm từ 55,56% xuống 51,11%. Phân tích thống kê cho thấy sự khác biệt về hiệu suất xử lý COD tại các mốc thời gian 60, 120 và 240 phút không có ý nghĩa thống kê ($p > 0,05$), đồng thời hiệu suất của hai vật liệu tại các thời điểm này là tương đương.



Hình 7. Ảnh hưởng thời gian phản ứng đến khả năng xử lý COD của hai vật liệu ZnO

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

Hiệu suất xử lý COD cao nhất của cả hai vật liệu ZnO-ĐĐ và ZnO-LH được ghi nhận tại thời gian phản ứng 60 phút, cho thấy đây là giai đoạn mà quá trình quang xúc tác diễn ra mạnh mẽ và hiệu quả nhất. Trong khoảng thời gian đầu, vật liệu ZnO hấp thụ hiệu quả bức xạ UV, kích thích sự chuyển dịch điện tử từ dải hóa trị lên dải dẫn và tạo ra số lượng lớn các cặp electron–lỗ trống (e^-/h^+). Các cặp e^-/h^+ này nhanh chóng tham gia vào các phản ứng bề mặt với nước và ion hydroxyl, hình thành các gốc oxy hóa mạnh, đặc biệt là gốc hydroxyl (*OH), đóng vai trò chủ đạo trong việc phá vỡ các liên kết hóa học của các hợp chất hữu cơ phức tạp, từ đó làm giảm đáng kể COD của nước thải (Chen & Mao, 2010).

Khi thời gian phản ứng kéo dài đến 120 và 240 phút, hiệu suất xử lý COD giảm nhẹ và có xu hướng ổn định, cho thấy hệ quang xúc tác dần tiến tới trạng thái cân bằng động. Hiện tượng này có thể được giải thích bởi một số cơ chế đồng thời xảy ra. Thứ nhất, các vị trí hoạt động trên bề mặt xúc tác dần bị bão hòa bởi các phân tử chất ô nhiễm hoặc các sản phẩm oxy hóa trung gian, làm giảm số lượng tâm xúc tác sẵn có cho các phản ứng tiếp theo. Thứ hai, sự tích tụ các hợp chất trung gian có thể che phủ bề mặt xúc tác hoặc cạnh tranh với các phân tử ban đầu trong việc tiếp cận các gốc ·OH, từ đó làm suy giảm hiệu quả của các phản ứng quang xúc tác. Ngoài ra, sự tái kết hợp của các cặp e^-/h^+ theo thời gian cũng góp phần làm giảm hiệu suất tạo gốc *OH, đặc biệt khi

hệ phản ứng không còn được khuấy trộn hoặc chiếu xạ tối ưu (Deng et al., 2018).

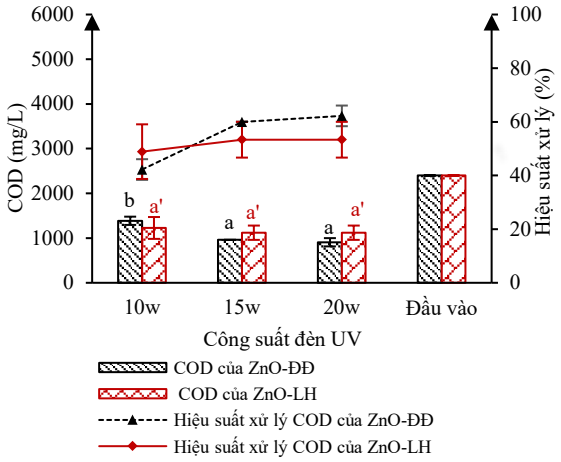
Xu hướng quan sát được trong nghiên cứu này phù hợp với các kết quả đã được công bố trước đây. An et al. (2021) ghi nhận rằng hiệu suất xử lý COD của hệ xúc tác TiO_2/ZnO đạt giá trị tối ưu sau khoảng 60 phút phản ứng, phản ánh đặc điểm động học tương tự của các hệ quang xúc tác bán dẫn. Tương tự, Danwittayakul et al. (2015) cũng cho thấy thời gian phản ứng tối ưu của các hệ xúc tác ZnO trong xử lý COD thường nằm quanh mốc 60 phút và việc kéo dài thời gian phản ứng không mang lại sự cải thiện đáng kể về hiệu suất do sự bão hòa bề mặt xúc tác, sự tích tụ các sản phẩm phụ và sự gia tăng quá trình tái kết hợp điện tử–lỗ trống.

Nhìn chung, các kết quả này khẳng định rằng thời gian phản ứng là một thông số vận hành quan trọng chi phối hiệu quả quang xúc tác của ZnO tổng hợp từ lá đu đủ và lá lô hội. Việc lựa chọn thời gian phản ứng 60 phút không chỉ đảm bảo hiệu suất xử lý COD cao mà còn góp phần tối ưu hóa thời gian vận hành và hiệu quả năng lượng cho hệ quang xúc tác trong các ứng dụng thực tế.

3.5. Ảnh hưởng yếu tố công suất đèn đến khả năng xử lý COD của hai vật liệu

Công suất đèn UV là một trong những thông số then chốt của quá trình quang xúc tác vì nó quyết định cường độ bức xạ và lượng photon cung cấp cho bề mặt xúc tác. Khi công suất đèn tăng, mật độ photon chiếu tới vật liệu ZnO tăng lên, làm gia tăng khả năng kích thích điện tử từ dải hóa trị lên dải dẫn, qua đó thúc đẩy sự hình thành các cặp electron–lỗ trống (e^-/h^+). Các cặp e^-/h^+ này tiếp tục tham gia vào các phản ứng bề mặt tạo ra các gốc oxy hóa mạnh, chủ yếu là gốc hydroxyl (*OH) và gốc superoxide ($O_2^{-\cdot}$), đóng vai trò quyết định trong quá trình oxy hóa và phân hủy các hợp chất hữu cơ, thể hiện qua hiệu suất xử lý COD (Chen et al., 2020).

Tuy nhiên, khi công suất đèn vượt quá giá trị tối ưu, số lượng photon cung cấp vượt quá khả năng hấp thụ và sử dụng của các tâm hoạt động trên bề mặt xúc tác, dẫn đến hiện tượng bão hòa bề mặt. Trong điều kiện này, photon dư thừa không được khai thác hiệu quả cho quá trình tạo cặp e^-/h^+, đồng thời có thể làm gia tăng hiện tượng tán xạ và che chắn ánh sáng trong hệ phản ứng, khiến hiệu suất xử lý COD không tiếp tục tăng hoặc thậm chí suy giảm (Abdolalian & Taghavijeloudar, 2022).



Hình 8. Ảnh hưởng công suất đèn UV đến khả năng xử lý COD của hai vật liệu ZnO

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

Ảnh hưởng của công suất đèn UV đến hiệu suất xử lý COD của hai vật liệu ZnO được trình bày ở Hình 8. Kết quả cho thấy hiệu suất xử lý COD của cả hai vật liệu đều tăng khi công suất đèn tăng, tuy nhiên mức độ cải thiện khác nhau. Đối với ZnO-ĐĐ, hiệu suất xử lý COD tăng rõ rệt từ 42,22% tại nghiệm thức 10 W lên 60,00% và 62,22% tương ứng tại 15 W và 20 W. Trong khi đó, ZnO tổng hợp từ lá lô hội chỉ ghi nhận mức tăng nhẹ, từ 48,89% tại 10 W lên 53,33% tại 15 W và 20 W. Phân tích thống kê cho thấy đối với ZnO-ĐĐ, sự khác biệt hiệu suất giữa công suất 10 W và các mức 15 W, 20 W là có ý nghĩa thống kê ($p < 0,05$), trong khi giữa 15 W và 20 W không có sự khác biệt đáng kể. Ngược lại, đối với ZnO-LH, hiệu suất xử lý COD không có sự khác biệt có ý nghĩa thống kê giữa các mức công suất khảo sát ($p > 0,05$).

Sự biến thiên hiệu suất xử lý COD theo công suất đèn UV có thể được giải thích dựa trên cơ chế quang xúc tác của ZnO. Ở công suất 10 W, năng lượng photon cung cấp chưa đủ để kích thích hiệu quả vật liệu ZnO-ĐĐ, dẫn đến số lượng cặp electron–lỗ trống (e^-/h^+) và các gốc oxy hóa mạnh, đặc biệt là gốc *OH, được tạo thành còn hạn chế, từ đó làm giảm khả năng oxy hóa COD (Lee et al., 2016; He et al., 2018). Khi công suất đèn tăng lên 15 W và 20 W, mật độ photon chiếu tới bề mặt xúc tác tăng lên, thúc đẩy quá trình kích hoạt ZnO và hình thành nhiều tâm phản ứng hơn, qua đó nâng cao hiệu suất xử lý COD (Liao et al., 2018).

Đối với vật liệu ZnO-LH, hiệu suất xử lý COD chỉ tăng nhẹ khi công suất đèn tăng. Hiện tượng này có thể liên quan đến việc vật liệu sớm đạt trạng thái bão hòa về khả năng hấp thụ ánh sáng hoặc do đặc điểm cấu trúc và tính chất bề mặt làm hạn chế khả năng khai thác hiệu quả lượng photon bổ sung, dẫn đến hiệu suất quang xúc tác không cải thiện đáng kể khi tiếp tục tăng công suất đèn (Deng et al., 2018).

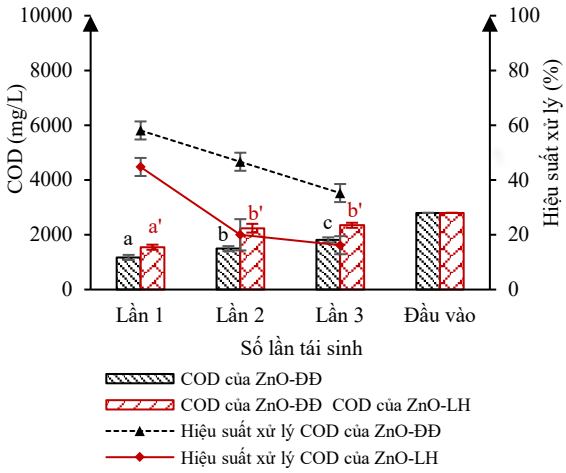
Kết quả thu được cho thấy hiệu suất xử lý COD tăng khi công suất đèn UV tăng và đạt mức cao tại 20 W. Xu hướng này phù hợp với nguyên lý quang xúc tác, trong đó sự gia tăng cường độ chiếu xạ làm tăng số photon đến bề mặt xúc tác và thúc đẩy quá trình tạo các cặp electron–hole. Tuy nhiên, khi cường độ chiếu xạ tiếp tục tăng, hiệu suất xử lý có thể không tăng tương ứng do các quá trình giới hạn như tái kết hợp electron–hole và giới hạn truyền khối. Các nghiên cứu về vật liệu ZnO và hệ ZnO–TiO_2 cũng cho thấy hoạt tính quang xúc tác phụ thuộc đáng kể vào điều kiện chiếu sáng và đặc tính của vật liệu, trong đó sự hình thành dị thể ZnO–TiO_2 có thể cải thiện sự phân tách điện tích và hoạt tính quang xúc tác (Liao et al., 2018).

Dựa trên các kết quả thực nghiệm và phân tích thống kê, đối với vật liệu ZnO-ĐĐ, công suất đèn 15 W được lựa chọn cho các thí nghiệm tiếp theo do mang lại hiệu suất xử lý COD cao (60,00%) và không khác biệt có ý nghĩa thống kê so với công suất 20 W, đồng thời giúp tối ưu hóa tiêu thụ năng lượng. Trong khi đó, đối với ZnO-LH, công suất đèn 10 W được lựa chọn do hiệu suất xử lý COD không thay đổi đáng kể khi tăng công suất đèn, cho thấy khả năng đáp ứng photon của vật liệu này đã đạt ngưỡng bão hòa trong phạm vi khảo sát.

3.6. Khả năng tái sinh của hai vật liệu

Kết quả thí nghiệm về khả năng tái sinh của hai vật liệu ZnO tổng hợp từ lá đu đủ và lá lô hội được trình bày ở Hình 9. Nhìn chung, hiệu suất xử lý COD của cả hai vật liệu đều suy giảm qua các chu kỳ tái sinh, tuy nhiên mức độ suy giảm có sự khác biệt rõ rệt giữa hai loại vật liệu.

Đối với vật liệu ZnO-ĐĐ, hiệu suất xử lý COD ở lần tái sinh thứ nhất đạt 58,1%, sau đó giảm xuống 46,67% ở lần thứ hai và 35,24% ở lần thứ ba. Mặc dù hiệu suất giảm dần theo số lần tái sử dụng nhưng mức suy giảm tương đối ổn định và không đột ngột, cho thấy vật liệu vẫn duy trì được hoạt tính quang xúc tác nhất định sau nhiều chu kỳ sử dụng. Điều này phản ánh tính ổn định tương đối tốt của cấu trúc vật liệu ZnO tổng hợp từ lá đu đủ.



Hình 9. Khả năng tái sinh của hai loại vật liệu

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

Ngược lại, vật liệu ZnO-LH thể hiện hiệu suất xử lý COD thấp hơn và suy giảm nhiều hơn qua các lần tái sinh. Cụ thể, hiệu suất đạt 44,76% ở lần tái sinh thứ nhất, giảm xuống còn 20% ở lần thứ hai và tiếp tục giảm còn 16,19% ở lần thứ ba. Mức suy giảm lớn cho thấy vật liệu ZnO-LH kém ổn định hơn trong quá trình tái sử dụng, làm hạn chế khả năng ứng dụng lâu dài trong xử lý nước thải.

Sự khác biệt về khả năng tái sinh giữa hai vật liệu ZnO-ĐĐ và ZnO-LH có thể được giải thích dựa trên đặc điểm cấu trúc, thành phần bề mặt và cơ chế quang xúc tác của ZnO tổng hợp sinh học. Chiết xuất lá đu đủ chứa hàm lượng cao các hợp chất phenolic, flavonoid và enzyme như papain, đóng vai trò vừa là tác nhân khử vừa là chất ổn định trong quá trình tổng hợp xanh. Các hợp chất này góp phần kiểm soát sự hình thành và phát triển tinh thể ZnO, tạo ra các hạt nano có cấu trúc tinh thể tốt, diện tích bề mặt lớn và các tâm hoạt động ổn định, từ đó nâng cao hoạt tính quang xúc tác và khả năng duy trì hiệu suất qua nhiều chu kỳ sử dụng (Nizamuddin et al., 2022). Nhờ những đặc điểm này, vật liệu ZnO-ĐĐ cho thấy khả năng giữ hiệu suất xử lý COD tương đối ổn định trong các chu kỳ tái sinh liên tiếp.

Ngược lại, chiết xuất lá lô hội chủ yếu chứa các polysaccharide như acemannan, trong khi hàm lượng các hợp chất phenolic thấp hơn. Điều này có thể làm hạn chế vai trò ổn định cấu trúc và bảo vệ bề mặt hạt ZnO trong quá trình tổng hợp, dẫn đến vật liệu ZnO-LH có cấu trúc tinh thể kém bền hơn và dễ bị biến đổi trong quá trình vận hành quang xúc

tác. Hệ quả là hiệu suất xử lý COD ban đầu của ZnO-LH thấp hơn và suy giảm nhanh hơn qua các chu kỳ tái sử dụng (Vidya et al., 2013; Ali et al., 2016).

Kết quả của nghiên cứu này phù hợp với các báo cáo trước đây, trong đó hiệu suất quang xúc tác của ZnO thường suy giảm theo số chu kỳ tái sử dụng do sự tích tụ các chất ô nhiễm và sản phẩm trung gian trên bề mặt xúc tác, cũng như sự suy giảm dần cấu trúc tinh thể của vật liệu (Vidya et al., 2013; Quispe Cohaila et al., 2025). Đồng thời, các nghiên cứu này cũng chỉ ra rằng nguồn chiết xuất sinh học có ảnh hưởng đáng kể đến độ bền, tính ổn định và khả năng tái sinh của ZnO nano.

Dựa trên kết quả thực nghiệm và phân tích thống kê, vật liệu ZnO-ĐĐ thể hiện khả năng tái sinh và độ ổn định vượt trội so với ZnO-LH. Cụ thể, sau ba chu kỳ tái sinh, hiệu suất xử lý COD của ZnO-ĐĐ vẫn đạt 35,24%, trong khi ZnO-LH chỉ đạt 16,19%. Do đó, ZnO-ĐĐ được đánh giá là vật liệu quang xúc tác tiềm năng cho các ứng dụng xử lý nước thải đòi hỏi khả năng tái sử dụng cao và độ ổn định lâu dài.

4. KẾT LUẬN

Vật liệu quang xúc tác ZnO từ chiết xuất lá đu đủ và lá lô hội theo phương pháp tổng hợp xanh được chế tạo thành công, đồng thời đánh giá hiệu quả xử lý COD trong nước thải nhân tạo mô phỏng ngành mía đường. Kết quả cho thấy đặc tính bề mặt của vật liệu, thể hiện qua giá trị pHpzc, ảnh hưởng đáng kể đến hiệu suất quang xúc tác, trong đó ZnO-ĐĐ (pH_{pzc} = 9,9) cho hiệu quả xử lý COD cao hơn so với ZnO-LH (pH_{pzc} = 7,3). Ở điều kiện tốt nhất, hiệu suất xử lý COD của ZnO-ĐĐ đạt 75%, cao hơn so với ZnO-LH (65%). Bên cạnh đó, ZnO-ĐĐ thể hiện khả năng tái sinh và độ ổn định tốt hơn khi duy trì hiệu suất xử lý COD lần lượt đạt 58,10%, 46,67% và 35,24% sau ba chu kỳ tái sử dụng, trong khi ZnO-LH suy giảm nhanh hơn. Các kết quả thu được khẳng định tiềm năng ứng dụng của ZnO-ĐĐ trong xử lý nước thải hữu cơ, đồng thời góp phần định hướng phát triển các vật liệu quang xúc tác thân thiện với môi trường từ nguồn sinh học.

Do giới hạn về kinh phí và phạm vi của đề tài, nghiên cứu này chưa thực hiện các phân tích đặc trưng vật liệu ZnO như XRD, SEM/TEM, FTIR và UV–Vis. Đây được xem là một hạn chế của nghiên cứu và nhóm tác giả cam kết bổ sung các phân tích này trong các nghiên cứu tiếp theo nhằm làm rõ hơn cấu trúc và tính chất của vật liệu.

LỜI CẢM TẠ

Nhóm tác giả xin trân trọng cảm ơn Phòng thí nghiệm Xử lý Chất thải Rắn Tiên tiến và Phòng thí nghiệm Nước và Nước thải Tiên tiến, Đại học Cần Thơ, với sự tài trợ của JICA, đã hỗ trợ thực hiện các thí nghiệm và phân tích trong nghiên cứu này.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

Abdolalian, S., & Taghavijeloudar, M. (2022). Performance evaluation and optimization of ZnO–PVP nanoparticles for photocatalytic wastewater treatment: Interactions between UV light intensity and nanoparticle dosage. *Journal of Cleaner Production*, 365, 13283. https://doi.org/10.1016/j.jclepro.2022.132833

Adair, J. H., Suvaci, E., & Sindel, J. (2001). Surface and colloid chemistry. In K. H. J. Buschow, R. W. Cahn, M. C. Flemings, et al. (Eds.), *Encyclopedia of Materials: Science and Technology* (pp. 1–10). Elsevier. https://doi.org/10.1016/B0-08-043152-6/01622-3

Affam, A. C., & Bin Bistar, A. R. (2020). Oxidation of palm oil mill effluent using hydrogen peroxide and catalysed by UV light/zinc oxide. In *IOP Conference Series: Materials Science and Engineering 736* (4), 042025 https://doi.org/10.1088/1757-899X/736/4/042025

Ali, K., Dwivedi, S., Azam, A., Saquib, Q., Al-Said, M. S., Alkhedhairy, A. A., & Musarrat, J. (2016). Aloe vera extract functionalized zinc oxide nanoparticles as nanoantibiotics against multidrug-resistant clinical bacterial isolates. *Journal of Colloid and Interface Science*, 472, 145–156. https://doi.org/10.1016/j.jcis.2016.03.021

AlMohamadi, H., Awad, S. A., Sharma, A. K., Fayzullaev, N., Távara-Aponte, A., Chiguala-Contreras, L., Amari, A., Rodriguez-Benites, C., Tahoon, M. A., & Esmaeili, H. (2024). Photocatalytic activity of metal-and non-metal-anchored ZnO and TiO_2 nanocatalysts for advanced photocatalysis: comparative study. *Catalysts*, *14*(7), 420. https://doi.org/10.3390/catal14070420

Ammu, V. K., Pushpadass, H. A., Franklin, M. E. E., & Duraisamy, R. (2025). Biosynthesis of zinc oxide nanoparticles using Carica papaya and Cymbopogon citratus leaf extracts: A comparative investigation of morphology and structures. *Journal of Molecular Structure*, *1323*, 140737. https://doi.org/10.1016/j.molstruc.2024.140737

Anik, A. B., Akash, M. H., Alam, M. A., Alam, M. Z., Sarker, D., & Sultana, N. (2025). Green synthesis of ZnO nanoparticles using Justicia

adhatoda for effective photocatalytic degradation of methylene blue dye. *RSC Advances*, *15*(54), 45874-45888.

Ankamwar, B. G., Kamble, V. B., Annsi, J. I., Sarma, L. S., & Mahajan, C. M. (2017). Solar photocatalytic degradation of methylene blue by ZnO nanoparticles. *Journal of Nanoscience and Nanotechnology*, *17*(2), 1185–1192.

Chen, D., Cheng, Y., Zhou, N., Chen, P., Wang, Y., Li, K., Huo, S., Cheng, P., Peng, P., & Zhang, R. (2020). Photocatalytic degradation of organic pollutants using TiO_2-based photocatalysts: A review. *Journal of Cleaner Production*, 268, 121725. https://doi.org/10.1016/j.jclepro.2020.121725

Chen, X., & Mao, S. S. (2010). Titanium dioxide nanomaterials: Synthesis, properties, modifications, and applications. *Chemical Reviews*, *107*(7), 2891–2959. https://doi.org/10.1021/cr900055q

Chong, M. N., Jin, B., & Saint, C. P. (2011). Using H-titanate nanofiber catalysts for water disinfection: Understanding and modelling of the inactivation kinetics and mechanisms. *Chemical Engineering Science*, *66*(24), 6525–6535.

Chong, M. N., Jin, B., Chow, C. W. K., & Saint, C. (2010). Recent developments in photocatalytic water treatment technology: A review. *Water Research, 44*(10), 2997–3027. https://doi.org/10.1016/j.watres.2010.02.039

Danwittayakul, S., Sreethawong, T., & Chavadej, S. (2015). Photocatalytic degradation of textile reactive dye by nano-ZnO under UV irradiation. *Separation and Purification Technology*, 140, 167–175. https://doi.org/10.1016/j.seppur.2014.09.020

Deng, Y., Tang, L., Zeng, G., Wang, J., Zhou, Y., & Wang, J. (2018). Facile fabrication of ZnO–reduced graphene oxide heterojunctions for pH-dependent photodegradation of organic pollutants under UV–visible light irradiation. *Journal of Colloid and Interface Science*, 509, 219–229. https://doi.org/10.1016/j.jcis.2017.09.073

Gupta, A., Sharma, S., & Kumar, R. (2022). Enhanced COD removal from wastewater using ZnO photocatalysis under UV light: Role of surface charge and pHpzc. *Journal of Hazardous Materials*, 425, 127890. https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2021.127890

Gupta, V. K., & Tripathi, M. (2011). A review on the synthesis of ZnO nanoparticles using plant extracts and their photodegradation potential. *Environmental Nanotechnology, Monitoring & Management*, 6, 92–96. https://doi.org/10.1016/j.enmm.2016.09.001

He, S., Hou, P., Petropoulos, E., Feng, Y., Yu, Y., Xue, L., & Yang, L. (2018). High efficient visible-light photocatalytic performance of Cu/ZnO/rGO nanocomposite for decomposing of aqueous ammonia and treatment of domestic wastewater. *Frontiers in Chemistry*, *6*, 219. https://doi.org/10.3389/fchem.2018.00219

Hoffmann, M. R., Martin, S. T., & Choi, W. (2019). Environmental applications of semiconductor photocatalysis: A review. Journal of Photochemistry and Photobiology C: *Photochemistry Reviews*, 40, 1–26. https://doi.org/10.1016/j.jphotochemrev.2019.01.001

Hoffmann, M. R., Martin, S. T., Choi, W., & Bahnemann, D. W. (1995). Environmental applications of semiconductor photocatalysis. *Chemical Reviews*, *95*(1), 69–96. https://doi.org/10.1002/mnfr.201200388

Joy, V. M., Feroz, S., & Dutta, S. (2021). Solar nanophotocatalytic pretreatment of seawater: process optimization and performance evaluation using response surface methodology and genetic algorithm. *Applied Water Science*, *11*(2), 18. https://doi.org/10.1007/s13201-020-01353-6

Karnan, T., & Selvakumar, S. A. S. (2016). Biosynthesis of ZnO nanoparticles using rambutan (*Nephelium lappaceum* L.) peel extract and their photocatalytic activity on methyl orange dye. *Journal of Molecular Structure*, 1125, 358–365. https://doi.org/10.1016/j.molstruc.2016.07.029

Karthik, K., Shashank, M., Revathi, V., & Tatarchuk, T. (2018). Facile microwave-assisted green synthesis of NiO nanoparticles from *Andrographis paniculata* leaf extract and evaluation of their photocatalytic and anticancer activities. *Molecular Crystals and Liquid Crystals*, *673*(1), 70–80. https://doi.org/10.1080/15421406.2019.1578495.

Kashif, N., & Ouyang, F. (2009). Parameters effect on heterogeneous photocatalysed degradation of phenol in aqueous dispersion of TiO_2. *Journal of Environmental Sciences*, *21*(4), 527–533. https://doi.org/10.1016/S1001-0742(08)62303-7

Khan, M., Kalsoom, U., Mahmood, T., Riaz, M., & Khan, A. (2011). Characterization and treatment of industrial effluent from sugar industry. *Journal of the Chemical Society of Pakistan*, *25*(3), 242–247.

Khan, S., Noor, T., Iqbal, N., & Yaqoob, L. (2024). Photocatalytic dye degradation from textile wastewater: A review. *ACS Omega*, *9*(20), 21751–21767. https://doi.org/10.1021/acsomega.4c00887

Lee, K. M., Lai, C. W., Ngai, K. S., & Juan, J. C. (2016). Recent developments of zinc oxide based

photocatalyst in water treatment technology: a review. *Water Research*, *88*, 428-448. https://doi.org/10.1016/j.watres.2015.09.045

Liao, Y., Zhang, K., Wang, X., Zhang, D., Li, Y., Su, H., Zhang, H., & Zhong, Z. (2018). Preparation of ZnO@TiO_2 nanotubes heterostructured film by thermal decomposition and their photocatalytic performances. *RSC Advances*, 8(15), 8064-8070.

Lu, C., & Chiu, H. (2006). Adsorption of zinc (II) from water with purified carbon nanotubes. *Chemical Engineering Science*, *61*(4), 1138-1145. https://doi.org/10.1016/j.ces.2005.08.007

Mahajan, M., Kumar, S., Gaur, J., Kaushal, S., Dalal, J., Singh, G., Misra, M., & Ahlawat, D. S. (2025). Green synthesis of ZnO nanoparticles using Justicia adhatoda for photocatalytic degradation of malachite green and reduction of 4-nitrophenol. *RSC Advances*, *15*(4), 2958-2980.

Meena, P. L., Surela, A. K., & Chhachhia, L. K. (2025). Investigating photocatalytic activity of biosynthesized ZnO nanoparticles against organic dye pollutants under visible light. *Spectrochimica Acta Part A: Molecular and Biomolecular Spectroscopy*, *338*, 126214. https://doi.org/10.1016/j.saa.2025.126214

Nizamuddin, S., Hymavathi, A., Yaku, G., & Kumar, U. U. (2022). Green synthesis and characterization of ZnO nanoparticles-A novel approach using Carica papaya leaf extract. *Materials Today: Proceedings*, *62*, 6854-6856. https://doi.org/10.1016/j.matpr.2022.05.053

Nguyen, T. T., Shaw, P. N., Parat, M. O., & Hewavitharana, A. K. (2013). Anticancer activity of Carica papaya: A review. *Molecular nutrition & food research*, *57*(1), 153-164. https://doi.org/10.1002/mnfr.201200388

Primo, J. D. O., Bittencourt, C., Acosta, S., Sierra-Castillo, A., Colomer, J. F., Jaerger, S., Teixeira, V. C. & Anaissi, F. J. (2020). Synthesis of zinc oxide nanoparticles by ecofriendly routes: adsorbent for copper removal from wastewater. *Frontiers in Chemistry*, *8*, 571790. https://doi.org/10.3389/fchem.2020.571790

Quispe Cohaila, A. B., Fora Quispe, G. D. L., Lanchipa Ramos, W. O., Cáceda Quiroz, C. J., Tamayo Calderón, R. M., Medina Salas, J. P., Rajendran, S., & Sacari Sacari, E. J. (2025). Synthesis of ZnO Nanoparticles by Bacillus subtilis for Efficient Photocatalytic Degradation of Cyanide. *Nanomaterials*, *15*(7), 501.

Raji, M., Mirbagheri, S. A., Ye, F., & Dutta, J. (2021). Nano zero-valent iron on activated carbon cloth support as Fenton-like catalyst for efficient color and COD removal from melanoidin wastewater. *Chemosphere*, *263*, 127945. https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2020.127945

Rathnasamy, R., Thangasamy, P., Thangamuthu, R., Sampath, S., & Alagan, V. (2017). Green synthesis of ZnO nanoparticles using Carica papaya leaf extracts for photocatalytic and photovoltaic applications. *Journal of Materials Science: Materials in Electronics*, 28, 10374–10381. https://doi.org/10.1007/s10854-017-6807-8

Ribeiro, A. R., Nunes, O. C., Pereira, M. F., & Silva, A. M. (2015). An overview on the advanced oxidation processes applied for the treatment of water pollutants defined in the recently launched Directive 2013/39/EU. *Environmental International*, *75*, 33-51. https://doi.org/10.1016/j.envint.2014.10.027

Sakthivel, S., Neppolian, B., Shankar, M., Arabindoo, B., Palanichamy, M., & Murugesan, V. (2003). Solar photocatalytic degradation of azo dye: Comparison of photocatalytic efficiency of ZnO and TiO_2. *Solar Energy Materials and Solar Cells*, *77*(1), 65–82. https://doi.org/10.1016/S0927-0248(02)00255-6

Saraswathi, V. S., Tatsugi, J., Shin, P.-K., & Santhakumar, K. (2017). Facile biosynthesis, characterization, and solar assisted photocatalytic effect of ZnO nanoparticles mediated by leaves of *L. speciosa*. *Journal of Photochemistry and Photobiology B: biology*, *167*, 89-98. https://doi.org/10.1016/j.jphotobiol.2016.12.032

Thuy, V. P. D., Phat, V. V., Chiem, N. H., Quyen, T. T. B., Mai, N. T. N., Giao, D. H., Do, T. N., & Thien, D. V. H. (2022). Synthesis of Hydroxyapatite/Zinc Oxide Nanoparticles from Fish Scales for the Removal of Hydrogen Sulfide. *Environment and Natural Resources Journal*, *20*(3), 323-329. https://doi.org/10.32526/ennrj/20/202100228

Vidya, C., Hiremath, S., Chandraprabha, M., Antonyraj, M., Gopal, I. V., Jain, A., & Bansal, K. (2013). Green synthesis of ZnO nanoparticles by *Calotropis gigantea*. *International Journal of Current Engineering and Technology*, *1*(1), 118-120.

Yang, Y., Chun, Y., Sheng, G., & Huang, M. (2004). pH-dependence of pesticide adsorption by wheat-residue-derived black carbon. *Langmuir*, *20*(16), 6736-6741. https://doi.org/10.1021/la049363t