

## THÔNG TIN KẾT QUẢ NGHIÊN CỨU

### 1. Thông tin chung

**Tên đề tài:** Nghiên cứu chế tạo vật liệu quang xúc tác nano ZnO, Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> trên nền cacbon để xử lý tồn dư thuốc kháng sinh trong nước thải

- Mã số: B2021- TNA-15.

- **Chủ nhiệm đề tài:** TS. Trần Quốc Toàn

**Email:** [toantq@tnue.edu.vn](mailto:toantq@tnue.edu.vn) Điện thoại: 0978.553.908

- Cơ quan chủ trì: Đại học Thái Nguyên

Thời gian thực hiện: 24 tháng

### 2. Mục tiêu

- Chế tạo thành công các vật liệu quang xúc tác nano ZnO, Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> trên nền cacbon từ phụ phẩm nông nghiệp bằng phương pháp hóa học ướt.

- Ứng dụng vật liệu quang xúc tác, chế tạo được để xử lý tồn dư thuốc kháng sinh (nhóm quinolone và nhóm sulfonamid: Ciprofloxacin, Sulfamthoxazole...) trong nước thải (chăn nuôi/bệnh viện)

### 3. Tính mới và sáng tạo

- Vật liệu cacbon xốp (nanocompozit SiO<sub>2</sub>/C - RH) có diện tích bề mặt cao (521,35 m<sup>2</sup>/g), thể tích lỗ xốp lớn (5,2196 cm<sup>3</sup>/g) lần đầu tiên được chế tạo từ vỏ trấu theo hướng hóa học xanh, nhanh chóng, dễ dàng thông qua kỹ thuật làm nguội và nghiền.

- Vật liệu quang xúc tác nano ZnO, Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> trên nền cacbon xốp (RH) chế tạo được có khả năng xử lý tốt kháng sinh (Ciprofloxacin, Sulfamthoxazole) tồn dư trong nước thải chăn nuôi/bệnh viện đạt tiêu chuẩn xả thải QCVN 40:2011/BTNMT. Sản phẩm phân hủy các chất kháng sinh Ciprofloxacin, Sulfamthoxazole bằng phương pháp quang xúc tác thân thiện với môi trường.

### 4, Kết quả nghiên cứu

- Đã chế tạo thành công than trấu sinh học theo phương pháp hóa xanh, nhanh chóng cho độ xốp cao, diện tích bề mặt riêng lớn từ vỏ trấu.

- Đã chế tạo thành công vật liệu nano ZnO, Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> trên nền cacbon xốp (RH) theo phương pháp đồng kết tủa có sự hỗ trợ của siêu âm.

- Đã nghiên cứu các tính chất lí hóa: đặc trưng cấu trúc, thành phần hóa học, hình thái bề mặt, kích thước hạt, độ từ bão hòa của các vật liệu bằng phương pháp XRD, EDX, SEM, TEM, BET, từ kế rung, FT-IR, Raman, XPS... Kết quả cho thấy, các vật liệu đều có cấu trúc, thành phần, kích thước và tính chất lí hóa phù hợp với công thức và tính chất của chúng.

- Đã nghiên cứu ảnh hưởng của các yếu tố khác nhau như pH dung dịch, nồng độ đầu của các chất kháng sinh, khối lượng vật liệu đến hiệu suất xử lý các chất kháng

sinh CIP, SMX. Kết quả cho thấy, các yếu tố này ảnh hưởng khá nhiều đến hiệu suất xử lý kháng sinh của vật liệu.

- Đã nghiên cứu và đề xuất cơ chế quá trình phân hủy kháng sinh CIP, SMX trong nước, sản phẩm sau xử lý kháng sinh thân thiện môi trường.

- Đã ứng dụng vật liệu RHZ, RHF xử lý nước chứa kháng sinh của thải bệnh viện và nuôi tôm, kết quả cho thấy hiệu suất xử lý kháng sinh đều đạt >90%.

- Đã thiết kế, lắp đặt và vận hành hệ thống xử lý nước thải chứa kháng sinh của bệnh viện theo công nghệ quang xúc tác hấp phụ với các điều kiện đã lập ở trên, sử dụng vật liệu RHZ, RHF. Hiệu quả xử lý đạt QCVN40-2011/BTNMT

## 5. Sản phẩm

### 5.1. Sản phẩm khoa học (các bài báo công bố)

#### 5.1.1. Bài báo quốc tế : 02 bài Q1

1. **Tran Quoc Toan**, Do Tra Huong, Tran Kim Ngan, Le Phuoc Anh, Nguyen Thi Thuy, Nguyen Nhat Huy, Dang Van Thanh, Nguyen Manh Khai, Nguyen Thi Mai (2023), Green and facile synthesis of porous SiO<sub>2</sub>@C adsorbents from rice husk: preparation, characterization and its application in removal of Reactive Red 120 in aqueous solution. *ASC Omega*, 8(11), 9904–9918 (SCIE, Q1, IF=4,132) (accepted 28-2-2023), <https://doi.org/10.1021/acsomega.2c07034>

2. **Tran Quoc Toan**, Nguyen Thi Mai, Hoang Minh Trang, Nguyen Van Hao, Do Danh Bich, Dang Van Thanh (2023), A facile one-spot method to produce magnetic recyclable Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>/rice husk biochar photocatalysts for ciprofloxacin photodegradation in aqueous solution, *RSC Advance* (SCIE, Q1, IF=4,036) (accept ngày 30/3/2023)

#### 5.1.2. Bài báo trong nước: 03

3. **Trần Quốc Toàn**, Đồng Đức Thiện (2022), Tổng hợp vật liệu nano ZnO trên nền than sinh học ứng dụng phân hủy kháng sinh trong môi trường nước, *Tạp chí Phân tích Hóa, Lý và Sinh học*, 27(3), tr. 78-83.

4. **Trần Quốc Toàn**, Mai Thị Phương Ly, Trần Thị Phương Anh, Hà Xuân Linh, Đặng Văn Thành, Nguyễn Mạnh Khải, Nguyễn Nhật Huy, Nguyễn Thị Mai (2022), Nghiên cứu chế tạo vật liệu tổ hợp cấu trúc nano than trấu/Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> bằng phương pháp hóa siêu âm và quang xúc tác xử lý kháng sinh Sulfamethoxazole trong nước thải bệnh viện qui mô thí nghiệm, *Tạp chí Nông nghiệp và Phát triển nông thôn*, tháng 7/2022, tr. 73-79, ISSN: 1859-4581

5. **Trần Quốc Toàn**, Tống Thị Loan (2022), Nghiên cứu tổng hợp vật liệu ZnO-Biochar bằng phương pháp hóa siêu âm, ứng dụng để thử nghiệm xử lý kháng sinh Ciprofloxacin trong nước, *Tạp chí Phân tích Hóa, Lý và Sinh học*, 27(4)

### 5.2. Sản phẩm đào tạo

#### - Hướng dẫn 04 luận văn thạc sĩ:

1. Tống Thị Loan (2022), Nghiên cứu chế tạo vật liệu nano ZnO trên nền than hoạt tính ứng dụng xử lý Ciprofloxacin trong môi trường nước. Luận văn thạc sĩ, Trường Đại học Sư phạm – Đại học Thái Nguyên.

2. Mai Hà Quỳnh Anh (2022), Tổng hợp, nghiên cứu tính chất phức chất hỗn hợp phối tử Genzoic và 2,2'-dipyridyl N-oxit của một số nguyên tố đất hiếm nhẹ. Luận văn thạc sĩ, Trường Đại học Sư phạm – Đại học Thái Nguyên.

### **5.3. Sản phẩm ứng dụng**

- 5 kg Vật liệu tổ hợp nano ZnO, Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> trên nền cacbon.
- 01 Mô hình hệ thống xử lý kháng sinh trong nước thải (chăn nuôi/bệnh viện) qui mô phòng thí nghiệm công suất 50 lít/ngày đêm
- 01 Quy trình công nghệ xử lý kháng sinh trong nước thải (chăn nuôi/bệnh viện) bằng hấp phụ và quang xúc tác.

## **6. Phương thức chuyển giao, địa chỉ ứng dụng, tác động và lợi ích mang lại của kết quả nghiên cứu**

### **6.1. Phương thức chuyển giao**

Kết quả nghiên cứu của đề tài gồm các vật liệu nano ZnO, Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> trên nền cacbon, quy trình xử lý tồn dư thuốc kháng sinh trong nước thải có thể chuyển giao cho các cơ sở chăn nuôi, bệnh viện.

### **6.2. Địa chỉ ứng dụng**

- Bệnh viện trên địa bàn tỉnh Thái Nguyên (bệnh viện Trường Đại học Y Dược-Thái Nguyên ...)
- Trang trại chăn nuôi trên địa bàn tỉnh Thái Nguyên
- Ngoài ra, kết quả nghiên cứu của đề tài sẽ là tài liệu tham khảo quan trọng cho sinh viên, học viên cao học, nghiên cứu sinh ngành hóa học, hóa môi trường, công nghệ hóa học.

### **6.3. Tác động và lợi ích mang lại của đề tài**

#### **6.3.1. Đối với lĩnh vực giáo dục và đào tạo:**

Đề tài đã góp phần đào tạo 04 Thạc sĩ chuyên ngành Hóa học, đóng góp vào sự phát triển giáo dục và đào tạo của Đại học Thái Nguyên. Kết quả nghiên cứu của đề tài là tài liệu phục vụ nghiên cứu, đào tạo sinh viên, học viên cao học ngành hóa học, hóa môi trường, khoa học vật liệu. Đặc biệt bồi dưỡng khả năng nghiên cứu của các giảng viên trẻ, góp phần nâng cao chất lượng, hiệu quả đào tạo và nghiên cứu khoa học của Trường Đại học Sư phạm - Đại học Thái Nguyên.

#### **6.3.2. Đối với lĩnh vực khoa học và công nghệ có liên quan:**

- Kết quả của đề tài là tài liệu tham khảo cho các đơn vị nghiên cứu, cơ sở chăn nuôi, bệnh viện
- Kết quả nghiên cứu của đề tài được công bố trên các tạp chí khoa học chuyên ngành uy tín và trên tạp chí quốc tế. Đây cũng là cơ hội tốt để mở rộng hợp tác với các trường, trung tâm nghiên cứu ở Việt Nam và nước ngoài.

#### **6.3.3. Đối với phát triển kinh tế - xã hội:**

- Đề tài nghiên cứu, thử nghiệm thành công sẽ có ý nghĩa về kinh tế - xã hội, góp phần đưa khoa học công nghệ gắn liền với công tác bảo đảm phát triển kinh tế ổn định, bền vững, bảo vệ môi trường.
- Áp dụng thành công kết quả nghiên cứu để xử lý tồn dư thuốc kháng sinh trong

nước thải sẽ đóng góp một công nghệ xử lý môi trường mới đạt tiêu chuẩn xả thải quy định, có giá thành hợp lí.

#### **6.3.4. Đối với tổ chức chủ trì và các cơ sở ứng dụng kết quả nghiên cứu:**

- *Đối với tổ chức chủ trì, cá nhân tham gia thực hiện đề tài:*

+ Nâng cao trình độ nghiên cứu, cải tiến công nghệ cho các cán bộ tham gia thực hiện đề tài trong lĩnh vực xử lý tồn dư kháng sinh trong nước thải nói riêng và công nghệ xử lý môi trường nói chung.

+ Kết quả nghiên cứu của đề tài là tài liệu phục vụ nghiên cứu, đào tạo sinh viên, học viên cao học ngành sư phạm cử nhân hóa học của Trường Đại học Sư phạm - Đại học Thái Nguyên.

+ Các công trình công bố trong nước và quốc tế sẽ góp phần nâng cao chất lượng nghiên cứu của các giảng viên trẻ, góp phần nâng cao chất lượng, hiệu quả đào tạo và nghiên cứu khoa học của Đại học Thái Nguyên, tiếp cận với trình độ nghiên cứu khoa học của khu vực và thế giới.

- *Đối với cơ sở ứng dụng kết quả nghiên cứu:*

+ Nâng cao được chất lượng, ổn định công nghệ, giảm giá thành là những điều kiện quan trọng áp dụng công nghệ vào thực tiễn của các công ty sản xuất.

+ Kết quả của đề tài sẽ là hướng nghiên cứu và triển khai lâu dài nhằm phục vụ cho việc sử dụng vật liệu quang xúc tác kết hợp hấp phụ nano ZnO, Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> trên nền cacbon, góp phần làm sạch và bảo vệ môi trường.

**MINISTRY OF EDUCATION AND TRAINING**  
**THAI NGUYEN UNIVERSITY**

**INFORMATION OF RESEARCH RESULTS**

**1. General information**

**Project title:** Research on fabrication of ZnO, Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> nanophotocatalyst materials on carbon base to treat antibiotic residues in wastewater.

**Code:** B2021- TNA-15

**Project leader:** Dr. Tran Quoc Toan

Email: toantq@tnue.edu.vn

Phone: 0978.553.908

Host institution: Thai Nguyen University

Implementation period: From January 2021 to December 2022

**2. Goals**

- Fabrication of ZnO, Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> nanophotocatalyst materials based on carbon from agricultural by-products by wet chemical method.

- Application of photocatalyst materials, manufactured to treat residues of antibiotics (quinolone group and sulfonamide group: Ciprofloxacin, Sulfamthoxazole...) in wastewater (animal husbandry/hospital)

**3. Novelty and creativity**

- Porous carbon material (nanocomposite SiO<sub>2</sub>/C - RH) with high surface area (521.35 m<sup>2</sup>/g), large pore volume (5,2196 cm<sup>3</sup>/g) was first made from rice husk. in the direction of green chemistry, quickly and easily through cooling and grinding techniques.

- The fabricated ZnO, Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> nanophotocatalyst materials on a porous carbon (RH) base have good ability to treat antibiotics (Ciprofloxacin, Sulfamthoxazole) residues in livestock/hospital wastewater meeting discharge standards QCVN 40 :2011/BTNMT. The product decomposes the antibiotics Ciprofloxacin, Sulfamthoxazole by environmentally friendly photocatalytic method.

**4, Research results**

- Successfully made bio-husk charcoal by greening method, quickly for high porosity, large specific surface area from rice husk.

- Successfully fabricated ZnO, Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> nanomaterials on porous carbon (RH) base by ultrasonic-assisted co-precipitation method.

- Studied physicochemical properties: structural characteristics, chemical composition, surface morphology, particle size, saturation magnetism of the materials by XRD, EDX, SEM, TEM, BET methods, vibrating magnetometer, FT-IR, Raman, XPS...The results show that the materials have structure, composition, size and physicochemical properties consistent with their formula and properties.

- Researched the influence of different factors such as solution pH, initial concentration of antibiotics, weight of materials on the treatment efficiency of CIP, SMX antibiotics. The results show that these factors greatly affect the antibiotic treatment efficiency of the materials.
- Researched and proposed a mechanism for the decomposition of CIP and SMX antibiotics in water, environmentally friendly antibiotic products after treatment.
- Using RHZ and RHF materials to treat antibiotic-containing water from hospital waste and shrimp farming, the results show that antibiotic treatment efficiency is >90%.
- Designed, installed and operated the hospital's antibiotic-containing wastewater treatment system by photocatalytic adsorption technology with the conditions set out above, using RHZ, RHF materials. Treatment efficiency reaches QCVN40-2011/BTNMT

## 5. Products

### 5.1. Scientific products:

1. **Tran Quoc Toan**, Do Tra Huong, Tran Kim Ngan, Le Phuoc Anh, Nguyen Thi Thuy, Nguyen Nhat Huy, Dang Van Thanh, Nguyen Manh Khai, Nguyen Thi Mai (2023), Green and facile synthesis of porous SiO<sub>2</sub>@C adsorbents from rice husk: preparation, characterization and its application in removal of Reactive Red 120 in aqueous solution. *ASC Omega*, 8(11), 9904–9918 (SCIE, Q1, IF=4,132) (accepted February 28, 2023), <https://doi.org/10.1021/acsomega.2c07034>

2. **Tran Quoc Toan**, Nguyen Thi Mai, Hoang Minh Trang, Nguyen Van Hao, Dang Van Thanh (2023), A facile one-spot method to produce magnetic recycled Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>/rice huck biochar photocatalysts for ciprofloxacin photodegradation in aqueous solution, *RSC Advance* (SCIE, Q1, IF=4,036) (accept 30/3/2023)

3. **Tran Quoc Toan**, Dong Duc Thien (2022), Synthesis of zno nanomaterials on biochar and application of antibiotic degradation in aqueous solution, *Journal of Analytical Sciences*, 27(3), p. 78-83.

4. **Tran Quoc Toan**, Mai Thi Phuong Ly, Tran Thi Phuong Anh, Ha Xuan Linh, Dang Van Thanh, Nguyen Manh Khai, Nguyen Nhat Huy, Nguyen Thi Mai (2022), Research and manufacture nanostructured composite materials Rice husk charcoal/Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> by ultrasonic chemistry and photocatalytic treatment of Sulfamethoxazole antibiotics in hospital wastewater on experimental scale, *Journal of Agriculture and Rural Development*, July 2022, p. 73-79, ISSN: 1859-4581

5. **Tran Quoc Toan**, Tong Thi Loan (2022), Research on synthesis of ZnO-Biochar materials by ultrasonic chemistry method, application to test treatment of antibiotics Ciprofloxacin in water, *Journal of Analytical Sciences*, 27(4).

### 5.2. Training products

- Guide to 04 master's theses:

1. Tong Thi Loan (2022), Research and manufacture ZnO nanomaterials based on activated carbon using Ciprofloxacin treatment in water environment. Master's Thesis, University of Education - Thai Nguyen University.

2. Mai Ha Quynh Anh (2022), Synthesis and study of complex properties of Genzoic ligands and 2,2'-dipiridyl N-oxides of some light rare earth elements. Master's Thesis, University of Education - Thai Nguyen University.

### **5.3. Application products**

- 5 kg of ZnO, Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> nanocomposite materials on carbon base.
- 01 Model of antibiotic treatment system in wastewater (animal husbandry/hospital) laboratory scale with capacity of 50 liters/day
- 01 Technological process of antibiotic treatment in wastewater (animal husbandry/hospital) by adsorption and photocatalysis.

## **6. Method of transfer, application address, impact and benefits of research results**

### **6.1. Transfer method**

Research results include carbon-based ZnO and Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> nanomaterials, and the antibiotic treatment process in wastewater can be transferred to livestock facilities and hospitals.

### **6.2. Application address**

- Hospital in Thai Nguyen province
- Livestock farms in Thai Nguyen province
- This research result is a reference for students, graduate students, PhD students in chemistry, environmental chemistry, chemical technology.

### **6.3. Impact and benefits of the project**

#### **6.3.1. For the field of education and training:**

The project has contributed to training 04 Masters in Chemistry, contributing to the development of education and training of Thai Nguyen University. The results of this study are documents for research and training of students and graduate students in chemistry, environmental chemistry, and materials science. Fostering the research ability of young lecturers, contributing to improving the quality and effectiveness of training and scientific research of Thai Nguyen University of Education.

#### **6.3.2. For relevant science and technology fields:**

- The results of the project are references for research units, breeding facilities, and hospitals
- The research results of the topic are published in prestigious specialized scientific journals and in international journals. This is also a good opportunity to expand cooperation with universities and research centers in Vietnam and internationally.

#### **6.3.3. For socio- economic development:**

- Successful research and experiment project will have socio-economic significance, contributing to bringing science and technology associated with the work of ensuring stable and sustainable economic development, and environmental protection.
- Successfully applying research results to treat antibiotic residues in wastewater, which will contribute to a new environmental treatment technology that meets the prescribed discharge standards and is reasonably priced.

#### **6.3.4. For the lead organization and research results application establishments:**

- For the lead organization and individual participating in the project implementation:

+ Improve the level of research for staff participating in the implementation of the topic in the field of antibiotic residue treatment in wastewater in particular and environmental treatment technology in general.

+ The research results of the project are documents for the research and training of students and graduate students in pedagogy with a bachelor's degree in chemistry of the University of Pedagogy - Thai Nguyen University.

+ Nationally and internationally published works will contribute to improving the research quality of young lecturers, contributing to improving the quality and effectiveness of training and scientific research of Thai Nguyen University, approaching with the scientific research level of the region and the world.

+ For the basis of application of research results:

+ Improving quality, stabilizing technology, reducing costs are important conditions for applying technology to the practice of manufacturing companies.

+ The results of the project will be a long-term research and development direction to serve the use of photocatalyst materials combining ZnO, Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> nano-adsorption on carbon, contributing to cleaning and environmental protection.