

Bài báo nghiên cứu

**ẢNH HƯỞNG CỦA ĐIỀU KIỆN THỦY NHIỆT
ĐẾN TÍNH CHẤT QUANG CỦA HẠT CACBON NANO
ĐƯỢC TỔNG HỢP TỪ QUẢ BẦU**

**Lê Vũ Trường Sơn^{1*}, Trần Thị Nguyên Thảo¹, Diệp Thị Thanh Thảo¹,
Lê Thị Minh Thùy¹, Châu Bảo Trân¹, Phạm Thị Tố Uyên¹, Trần Hồng Vân¹,
Trịnh Ngọc Đạt¹, Phan Liễn¹, Cao Nữ Thùy Linh², Đặng Ngọc Toàn³, Ngô Khoa Quang^{4*}**

¹Trường Đại học Sư phạm, Đại học Đà Nẵng, Việt Nam

²Viện Nghiên cứu và Đào tạo Việt Anh – Đại học Đà Nẵng, Việt Nam

³Trường Đại học Duy Tân, Việt Nam

⁴Trường Đại học Khoa học, Đại học Huế, Việt Nam

*Tác giả liên hệ: Lê Vũ Trường Sơn – Email: lvtsn_kl@ued.udn.vn

Ngày nhận bài: 06-11-2023; ngày nhận bài sửa: 22-11-2023; ngày duyệt đăng: 13-12-2023

TÓM TẮT

Trong nghiên cứu này, chúng tôi thực hiện khảo sát sự ảnh hưởng của điều kiện chế tạo (nhiệt độ thủy nhiệt, khối lượng tiền chất, thời gian thủy nhiệt) đến tính chất quang của hạt cacbon nano (CNPs) được chế tạo từ quả bầu bằng phương pháp thủy nhiệt. Các yếu tố như nhiệt độ, khối lượng tiền chất và thời gian thủy nhiệt đã được chúng tôi khảo sát một cách khá chi tiết. Phép đo chụp ảnh kính hiển vi điện tử truyền qua, phổ năng lượng tán xạ tia X, nhiễu xạ tia X, và phổ tán xạ Raman đã được sử dụng để nghiên cứu hình thái, thành phần nguyên tố và cấu trúc của CNPs. Phép đo phổ phát quang được sử dụng để so sánh cường độ phát quang và nghiên cứu sự ảnh hưởng của điều kiện thủy nhiệt đến tính chất quang của CNPs. Kết quả nghiên cứu cho thấy CNPs chế tạo được có kích thước hạt phân bố trong vùng rộng từ 10 nm đến 100 nm. Phổ phát quang của CNPs phát quang mạnh nhất khi được kích thích ở bước sóng 350 nm. Trong nghiên cứu này, CNPs thu được khi thủy nhiệt 4 g bầu ở nhiệt độ 220°C trong thời gian 12 giờ cho cường độ phát quang mạnh nhất.

Từ khóa: hạt cacbon nano; quả bầu; điều kiện thủy nhiệt; vật liệu phát quang

1. Giới thiệu

Vào năm 2004, hạt cacbon nano (CNPs) lần đầu tiên được tìm thấy bởi Xu và các cộng sự (Xu et al., 2004). Từ đó, hàng loạt công bố liên quan đến tính chất lí hoá cũng như ứng dụng của CNPs được thực hiện (Ansi & Renuka, 2018; Cui et al., 2021; Li et al., 2019; Liu et al., 2016; Liu et al., 2012; Xu et al., 2004; Xu et al., 2014; Zhang et al., 2018). Với tính

Cite this article as: Le Vu Truong Son, Tran Thi Nguyen Thao, Diep Thi Thanh Thao, Le Thi Minh Thuy, Chau Bao Tran, Pham Thi To Uyen, Tran Hong Van, Trinh Ngoc Dat, Phan Lien, Cao Nu Thuy Linh, Dang Ngoc Toan, & Ngo Khoa Quang (2023). Effects of hydrothermal conditions on optical properties of gourd-based carbon nanoparticles. *Ho Chi Minh City University of Education Journal of Science*, 20(12), 2095-2105.

chất huỳnh quang đặc trưng, vật liệu CNPs đã được nghiên cứu ứng dụng trong các lĩnh vực như sinh học, nông nghiệp hay hóa học (Cui et al., 2021; Zhang et al., 2018). Những nghiên cứu gần đây cũng cho thấy vật liệu CNPs đã có bước tiến vượt trội trong việc cho thấy khả năng ứng dụng trong trợ giúp điều trị bệnh ung thư và vận chuyển thuốc (Cui et al., 2021). Liên quan đến lĩnh vực nông nghiệp, nhóm nghiên cứu của Yadong Li và cộng sự đã công bố sự ảnh hưởng của CNPs đến khả năng sinh trưởng và phát triển của một số loại cây trồng bằng cách thêm CNPs vào phân bón (Li et al., 2019). Bên cạnh đó, việc sử dụng CNPs nhằm phát hiện ion kim loại nặng trong nước tại các môi trường khác nhau đã thu được các kết quả khả quan. Cụ thể, các ion như Fe^{2+} , Hg^{2+} , Pb^{2+} và Cu^{2+} đã được phát hiện dựa trên sự thay đổi cường độ phổ phát quang của CNPs (Ansi & Renuka, 2018; Liu et al., 2016; Liu et al., 2012; Xu et al., 2014).

Cho đến nay, có rất nhiều phương pháp đã được áp dụng để tổng hợp CNPs từ nguồn nguyên liệu tự nhiên hoặc hóa chất. Có thể kể ra một số phương pháp thường được sử dụng như bức xạ laser cường độ cao, điện hoá, phóng điện hồ quang, thủy nhiệt... (Li et al., 2012). Trong số này, phương pháp thủy nhiệt được cho là có hiệu quả cao khi có thể tổng hợp CNPs được gắn một cách tự nhiên các nhóm chức như carboxylic, hydroxyl và amino trên bề mặt (S et al., 2020). Ngoài ra, phương pháp này rất phù hợp với nguồn tiền chất có nguồn gốc tự nhiên, có sẵn, dễ tìm và đa dạng. Đặc biệt, CNPs được tổng hợp từ tiền chất tự nhiên được đánh giá là một trong các cách tiếp cận bền vững và thân thiện với môi trường (Liu et al., 2011).

Flavonoids là một hợp chất tự nhiên thường được tìm thấy trong trái cây, rau và các loại thực phẩm có nguồn gốc thực vật khác. Chúng được biết đến với đặc tính chống oxy hóa và có nhiều lợi ích cho sức khỏe cũng như khả năng chống ung thư, kháng khuẩn và kháng vi-rút (Ullah et al., 2020). Nghiên cứu của tác giả K. H. Mian cho thấy hàm lượng flavonoids có trong quả bầu có giá trị 42,4 mg/kg (Mian & Mohamed, 2001). Dù là loài thực vật khá phổ biến tại Việt Nam nhưng hàm lượng flavonoids có trong quả bầu là khá cao khi so sánh với một số loại thực vật khác như cà rốt (37,4 mg/kg), củ cải trắng (9,0 mg/kg) (Mian & Mohamed, 2001). Gần đây, nghiên cứu của Jing Xu cũng chỉ ra rằng, chiết xuất flavonoids từ lá bạch quả (*ginkgo biloba*) có thể được dùng để chế tạo CNPs và được ứng dụng trong phát hiện ion Pb^{2+} với giới hạn đến 55 pM (Xu et al., 2018). Đây cũng chính là cơ sở để nhóm nghiên cứu lựa chọn quả bầu làm vật liệu chế tạo CNPs.

Việc tìm ra điều kiện thủy nhiệt phù hợp nhằm mục đích kiểm soát tính chất quang học và cường độ phát quang của CNPs là rất cần thiết. Trong nghiên cứu này, nhóm tác giả đã thực hiện khảo sát sự ảnh hưởng của điều kiện thủy nhiệt (nhiệt độ, khối lượng tiền chất và thời gian) đến tính chất quang học của CNPs. Nghiên cứu được thực hiện bằng cách thay đổi điều kiện nhiệt độ (180°C, 200°C và 220°C), khối lượng tiền chất (2 g, 3 g, 4 g, 5 g và 6g), và thời gian thủy nhiệt khác nhau (4 giờ, 8 giờ, 12 giờ, 16 giờ và 20 giờ). Kết quả cho thấy, tính chất quang của CNPs phụ thuộc mạnh vào các yếu tố trên và sẽ là cơ sở cho những

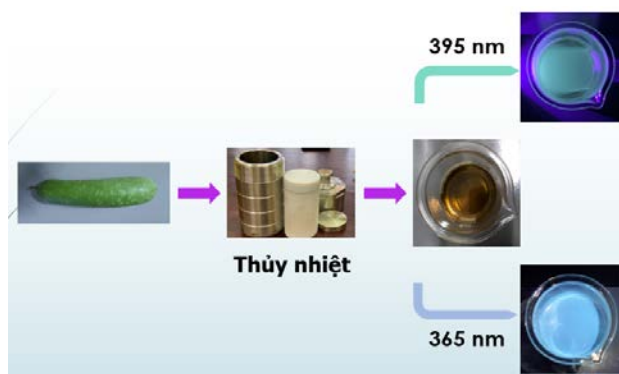
nghiên cứu tiếp theo nhằm chức năng hóa vật liệu cho những ứng dụng liên quan đến sinh học và hóa học.

2. Vật liệu và phương pháp

2.1. Vật liệu, thiết bị và phương pháp đo đạc

Quả bầu được rửa sạch, thái nhỏ và sấy khô trước khi cho vào bình thủy nhiệt có thể tích là 100 ml. Nước cất hai lần được sử dụng làm dung môi. Tủ sấy MEMMERT UNB 500 – Đức được sử dụng để sấy mẫu và tổng hợp CNPs. Cấu trúc của vật liệu được nghiên cứu bằng phương pháp nhiễu xạ tia X trên máy nhiễu xạ D8-Advance Eco của hãng Bruker – Đức sử dụng nguồn phát Cu-K α ($\lambda = 1,54056 \text{ \AA}$) và phổ tán xạ Raman được thực hiện trên máy XploRA Plus của hãng Horiba – Nhật Bản. Kích thước của CNPs được xác định bằng phương pháp chụp ảnh trên kính hiển vi điện tử truyền qua JEOL Jem-1010 của hãng JEOL – Nhật Bản với điện áp gia tốc là 80 kV. Phổ năng lượng tán xạ tia X được thực hiện trên thiết bị kính hiển vi điện tử quét JSM-IT200 của hãng JEOL nhằm xác định thành phần nguyên tố của mẫu chế tạo được. Các tính chất quang của vật liệu được nghiên cứu thông qua phổ phát quang thu được từ máy FL3-22 của hãng Horiba – Nhật Bản.

2.2. Quy trình chế tạo mẫu bằng phương pháp thủy nhiệt



Hình 1. Quy trình tổng hợp CNPs từ quả bầu bằng phương pháp thủy nhiệt

Bảng 1. Điều kiện tổng hợp CNPs từ quả bầu bằng phương pháp thủy nhiệt

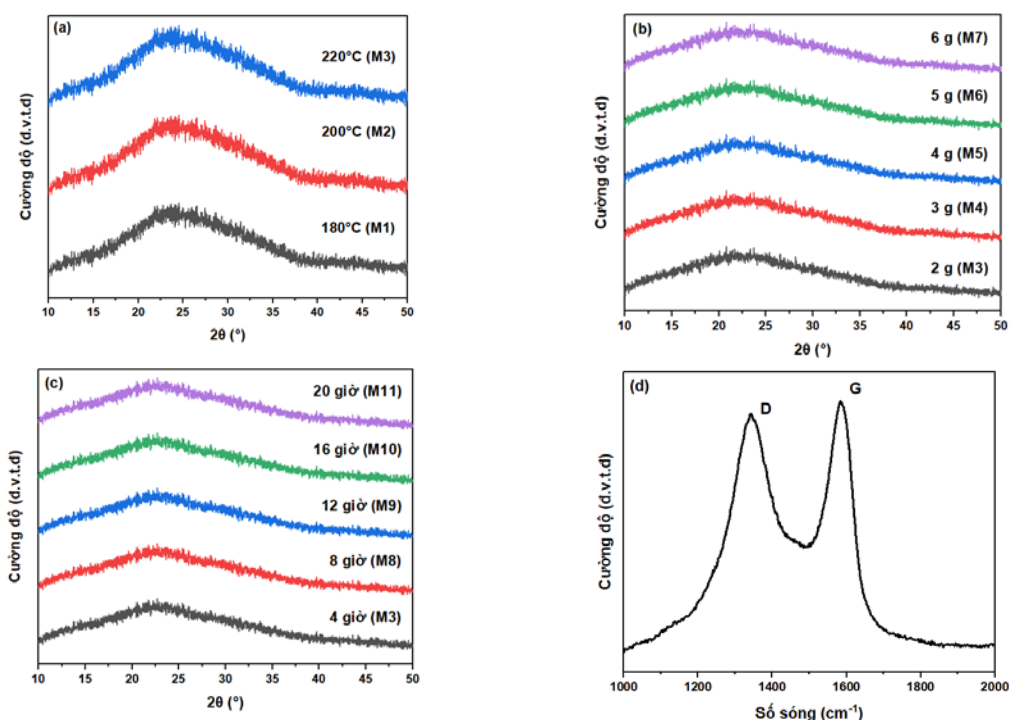
Trình tự khảo sát	Yếu tố khảo sát	Thời gian thủy nhiệt (giờ)	Khối lượng tiền chất (g)	Nhiệt độ thủy nhiệt (°C)	Kí hiệu mẫu
1	Nhiệt độ	4	2	180	M1
				200	M2
				220	M3
2	Khối lượng tiền chất	4	3	220	M4
			4		M5
			5		M6
			6		M7
3	Thời gian thủy nhiệt	8	4	220	M8
		12			M9
		16			M10
		20			M11

Quả bầu sau khi được rửa sạch bằng nước cất hai lần sẽ được gọt vỏ, bỏ phần ruột và thái mỏng. Tiếp theo, quả bầu được sấy khô ở nhiệt độ 50°C trong thời gian 48 giờ và nghiền nhỏ thành dạng bột. Nhằm tối thiểu hóa năng lượng tiêu hao trong quá trình chế tạo mẫu, dựa trên việc tham khảo những công bố trước đây, chúng tôi lựa chọn nhiệt độ thủy nhiệt là 180°C, khối lượng bầu là 2 g và thời gian thủy nhiệt ở 4 giờ cho mẻ đầu tiên (Bui et al., 2019; Zhu et al., 2012; Zulfajri et al., 2019). Sau đó, bình thủy nhiệt được để nguội tự nhiên đến nhiệt độ phòng và tiến hành xử lý mẫu. Dung dịch thu được, cho qua giấy lọc thô để loại bỏ hạt kích thước lớn và tiếp tục lọc tinh bằng đầu lọc (syringe) 0,22 μm . Sau cùng, sản phẩm được li tâm với tốc độ 14.000 vòng/phút trong 30 phút. Để nghiên cứu sự ảnh hưởng của nhiệt độ, nhóm nghiên cứu tiến hành thí nghiệm thêm với hai mẻ vật liệu chế tạo khác ở các nhiệt độ 200°C, 220°C. Dựa trên kết quả đo phổ phát quang, nhiệt độ tối ưu được lựa chọn là 220°C. Chúng tôi tiếp tục thực hiện thay đổi khối lượng tiền chất cho vào bình Teflon lần lượt là 3 g, 4 g, 5 g và 6 g. Ở khối lượng 4 g bầu, đánh giá sơ bộ cho thấy phổ phát quang mạnh nhất. Cuối cùng, 4 g nguyên liệu được chúng tôi thủy nhiệt ở nhiệt độ 220°C với các thời gian thay đổi từ 8 giờ đến 20 giờ (bước thay đổi là 4 giờ). Hình 1 và Bảng 1 lần lượt mô tả các bước của tiến trình thí nghiệm và các tham số được khảo sát trong nghiên cứu này.

3. Kết quả và thảo luận

3.1. Giảm đồ nhiễu xạ tia X và phổ tán xạ Raman

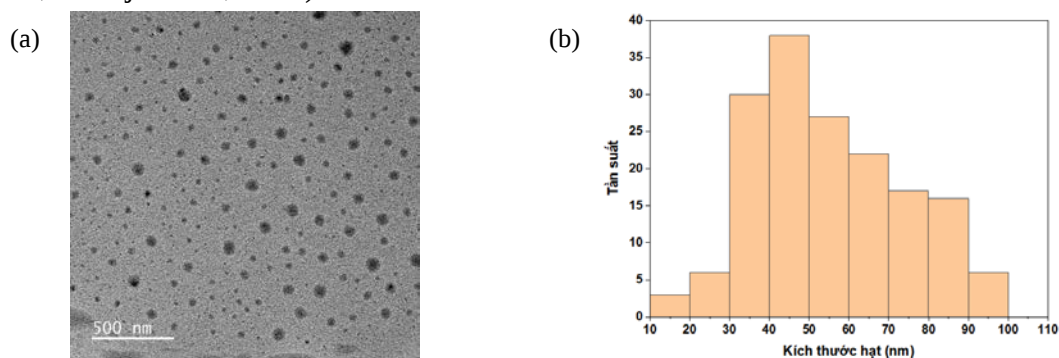
Giảm đồ nhiễu xạ tia X (XRD) của CNPs được tổng hợp ở các điều kiện khác nhau được trình bày ở Hình 2. Cụ thể, các yếu tố nhiệt độ, khối lượng và thời gian thủy nhiệt được trình bày lần lượt ở Hình 2a, 2b và 2c. Khi thay đổi điều kiện thủy nhiệt, giảm đồ XRD đều cho một đỉnh rộng ở $2\theta \approx 22^\circ$. Đây là đỉnh nhiễu xạ đặc trưng ứng với họ mặt (002) của vật liệu gốc cacbon (Hara et al., 2004; Prasannan & Imae, 2013). Nhằm nhận định rõ hơn về pha vật liệu CNPs tổng hợp được, nhóm tác giả tiến hành đo phổ tán xạ Raman. Tín hiệu Raman của mẫu CNPs được tổng hợp ở nhiệt độ 220°C, khối lượng tiền chất 4 g và trong 12 giờ được thể hiện ở Hình 2d. Kết quả, cho thấy sự xuất hiện của các dải D và dải G ứng với các số sóng tương ứng là 1343 cm^{-1} và 1582 cm^{-1} (Zhi et al., 2018). Theo các công bố trước đây, dải D có nguồn gốc từ trạng thái cacbon lai hóa sp^3 và dải G ứng với quá trình graphit hoá của CNPs (Zhi et al., 2018). Kết quả này góp phần củng cố nhận định về pha của vật liệu CNPs chế tạo được có tính chất vô định hình (da Silva et al., 2021).



Hình 2. (a) Giản đồ XRD của CNPs khi thủy nhiệt 2 g bầu ở 180°C, 200°C và 220°C trong thời gian 4 giờ. (b) Giản đồ XRD của CNPs thu được khi thủy nhiệt với các khối lượng tiền chất khác nhau: 2 g, 3 g, 4 g, 5 g, 6 g ở 220°C trong thời gian 4 giờ. (c) Giản đồ XRD của CNPs thu được khi thủy nhiệt 4 g bầu ở 220°C ứng với các thời gian khác nhau: 4 giờ, 8 giờ, 12 giờ, 16 giờ, 20 giờ. (d) Phổ tán xạ Raman của CNPs khi thủy nhiệt 4 g bầu trong thời gian 12 giờ ở nhiệt độ 220°C

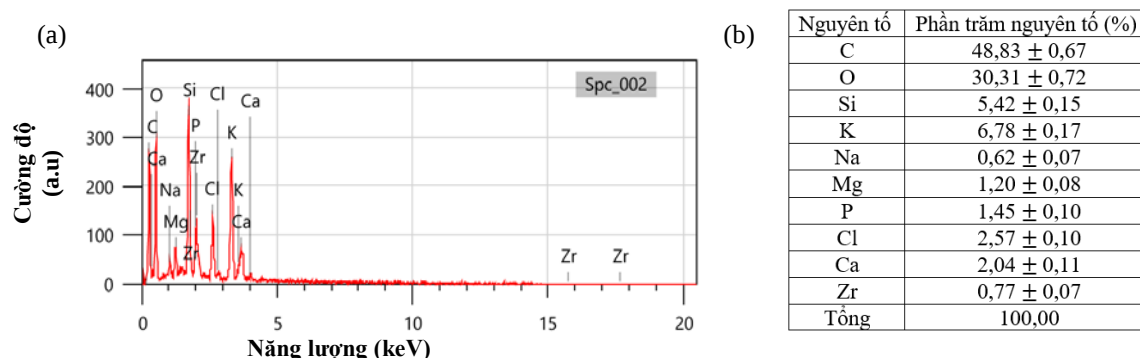
3.2. Ảnh chụp kính hiển vi điện tử truyền qua và phổ năng lượng tán xạ tia X

Kết quả chụp ảnh kính hiển vi điện tử truyền qua (TEM) được mô tả trên Hình 3 cho thấy CNPs thu được có độ phân tán đồng đều, không xuất hiện quá trình kết tụ (thanh định cỡ trên hình có giá trị 500 nm). Cụ thể, biểu đồ phân bố kích thước hạt chỉ ra rằng các CNPs được phân bố trong vùng khá rộng từ 10 nm đến 100 nm với giá trị trung bình ~50 nm. Nhận định ban đầu cho thấy CNPs đã được chế tạo thành công với kích thước nano, tuy nhiên cỡ hạt vẫn còn khá lớn khi so sánh với các nghiên cứu trước đây (Bui et al., 2019; Zhu et al., 2012; Zulfajri et al., 2019).



Hình 3. (a) Ảnh TEM của CNPs khi thủy nhiệt 4 g bầu ở nhiệt độ 220°C trong thời gian 12 giờ và (b) Biểu đồ mô tả phân bố kích thước hạt

Hình 4a mô tả phổ năng lượng tán xạ tia X (EDS) của vật liệu chế tạo được. Kết quả thống kê cho thấy, mẫu vật liệu chế tạo được có thành phần chính là các nguyên tố C (48,83%), O (30,31%), Si (5,42%), K (6,78%). Bên cạnh đó cũng có sự xuất của các nguyên tố Na, Mg, P, Cl, Ca, Zr như được mô tả trong Hình 4b.

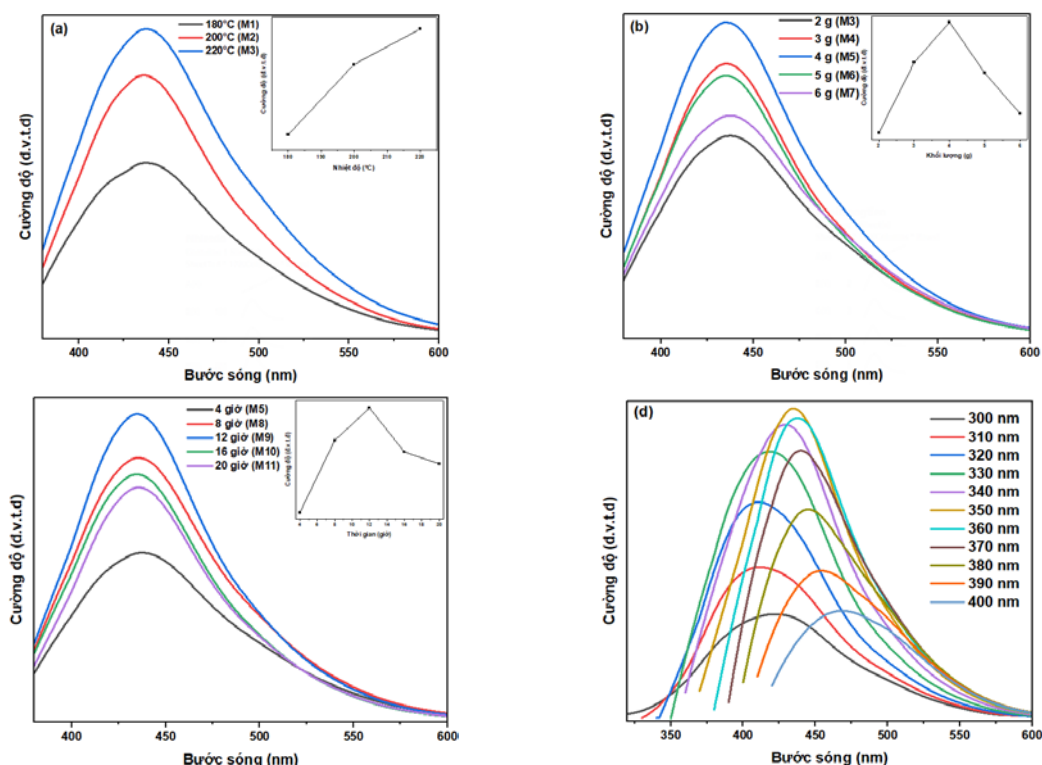


Hình 4. (a) Phổ EDS của CNPs khi thủy nhiệt 4 g bầu ở nhiệt độ 220°C trong thời gian 12 giờ và (b) Tỷ lệ phần trăm các nguyên tố trong vật liệu

3.3. Phổ phát quang

Trước khi thực hiện các phép đo XRD, phổ Raman, TEM và phổ EDS, phổ quang phát quang được nhóm nghiên cứu sử dụng nhằm đánh giá sơ bộ tính chất các mẫu chế tạo được. Dựa vào kết quả khảo sát phổ quang phát quang nhóm nghiên cứu đã tìm ra điều kiện thủy nhiệt 4 g bầu ở nhiệt độ 220°C trong thời gian 12 giờ cho cường độ phát quang mạnh nhất. Cụ thể, ảnh hưởng của nhiệt độ thủy nhiệt đến tính chất quang của vật liệu được mô tả như Hình 5a (khối lượng tiền chất 2 g và thời gian thủy nhiệt 4 giờ). Khi được kích thích ở bước sóng 350 nm, cường độ phát quang các mẫu thay đổi theo nhiệt độ, hình dạng phổ là phổ đám và đỉnh hầu như không thay đổi. Nguyên nhân dẫn đến kết quả trên có thể là do hiệu suất cacbon hóa các hợp chất hữu cơ tự nhiên có trong quả bầu tăng tỉ lệ với nhiệt độ thủy nhiệt (Deme et al., 2023). Ngoài ra, một công bố của nhóm nghiên cứu Zheng và cộng sự khẳng định rằng, cường độ phát quang đạt giá trị lớn khi tốc độ cacbon hóa của CNPs tăng và nó tỉ lệ thuận với nhiệt độ dùng để tổng hợp CNPs (Zheng et al., 2018).

Trên cơ sở tín hiệu huỳnh quang cho giá trị mạnh nhất ở 220°C, để đánh giá vai trò của khối lượng tiền chất, chúng tôi cố định nhiệt độ thủy nhiệt các mẫu ở 220°C với thời gian 4 giờ và thay đổi khối lượng nguyên liệu lần lượt là 3 g, 4 g, 5 g, 6 g. Kết quả khảo sát phổ phát quang được mô tả trong Hình 5b cho thấy cường độ phát quang của CNPs bị ảnh hưởng mạnh và đạt cực đại tại 4 g. Cụ thể, tỉ số cường độ đỉnh giữa các mẫu lần lượt là $I_{M3}:I_{M4}:I_{M5}:I_{M6}:I_{M7} = 0,63:0,87:1:0,83:0,70$ (M_i là các mẫu được kí hiệu trong Bảng 1). Điều này có thể được giải thích do bởi hàm lượng CNPs tạo ra trong quá trình thủy nhiệt tỉ lệ thuận với khối lượng tiền chất đưa vào, dẫn đến cường độ phát quang tăng theo. Tuy nhiên, nếu tiếp tục gia tăng khối lượng tiền chất thì mật độ CNPs sẽ tăng lên và hiệu ứng kết tụ xảy ra (Saafie et al., 2023). Quá trình này làm tăng kích thước hạt và do đó làm giảm cường độ phát quang (Jiang et al., 2014; Sahu et al., 2012).



Hình 5. (a) Phổ phát quang của CNPs khi thủy nhiệt 4 g bầu trong thời gian 4 giờ ở các nhiệt độ khác nhau với bước sóng kích thích 350 nm. (b) Phổ phát quang của CNPs khi thủy nhiệt bầu với các khối lượng tiền chất khác nhau ở nhiệt độ 220°C trong thời gian 4 giờ khi được kích thích ở bước sóng 350 nm. (c) Phổ phát quang của CNPs khi thủy nhiệt 4 g bầu ở nhiệt độ 220°C ở các thời gian thủy nhiệt khác nhau với bước sóng kích thích 350 nm. (d) Phổ phát quang của CNPs (thủy nhiệt 4 g bầu ở nhiệt độ 220°C trong thời gian 12 giờ) khi được kích thích ở các bước sóng khác nhau.

Thông số cuối cùng trong nghiên cứu này chính là vai trò của thời gian thủy nhiệt. Phổ phát quang của CNPs tổng hợp từ 4 g bầu ở 220°C với thời gian thủy nhiệt khác nhau (4 giờ, 8 giờ, 12 giờ, 16 giờ và 20 giờ) được thể hiện trong Hình 5c. Cụ thể, khi thời gian thủy nhiệt tăng từ 4 đến 12 giờ thì cường độ phát quang cũng thay đổi tỉ lệ thuận và đạt giá trị cực đại, sau đó giảm dần lượt tại các mốc thời gian 16 giờ và 20 giờ. Một số nghiên cứu trước đây nhận định rằng, việc kéo dài thời gian thủy nhiệt sẽ hỗ trợ quá trình hình thành CNPs và đạt được sự ổn định về mặt cấu trúc, dẫn đến cường độ phát quang mạnh (Bui et al., 2019; Ngo, 2022). Bên cạnh đó, quá trình này cũng làm gia tăng mật độ hạt và quá trình dập tắt phát quang cũng xảy ra đồng thời như đã đề cập ở trên (Zulfajri et al., 2019). Kết quả nghiên cứu của chúng tôi cũng phù hợp với công bố trước đây của Bui và các cộng sự khi nghiên cứu vai trò của thời gian thủy nhiệt đến tính chất quang của vật liệu CNPs được chế tạo từ quả chanh (Bui et al., 2019).

Việc lựa chọn được điều kiện tối ưu khi chế tạo vật liệu CNPs từ quả bầu bằng phương pháp thủy nhiệt tạo cơ sở để nhóm nghiên cứu khảo sát chi tiết hơn phổ phát quang của vật liệu chế tạo được. Đây cũng được xem là một trong các tính chất vật lý thu hút sự quan tâm của các nhóm nghiên cứu (Bui et al., 2019; Saafie et al., 2023; Zulfajri et al., 2019). Hình 1

mô tả ảnh chụp dung dịch CNPs khi được quan sát ở điều kiện ánh sáng phòng thí nghiệm và khi chiếu bằng ánh sáng có bước sóng 365 nm và 395 nm. Bằng mắt thường, chúng ta có thể quan sát sự thay đổi màu sắc của dung dịch khi được chiếu bằng ánh sáng có bước sóng khác nhau. Cụ thể, phổ phát quang của CNPs phụ thuộc bước sóng kích thích đã được chúng tôi khảo sát chi tiết như thể hiện ở Hình 5d. Dựa trên kết quả thể hiện, chúng ta có thể nhận thấy việc thay đổi bước sóng kích thích từ 300 nm đến 400 nm (bước nhảy là 10 nm) kéo theo đỉnh phổ phát quang của dung dịch cũng thay đổi từ 410 nm (ánh sáng xanh dương) đến 470 nm (ánh sáng xanh lá). Phổ phát quang có dạng dải rộng, khi được kích thích ở bước sóng 350 nm vật liệu chế tạo được cho cường độ phát quang mạnh nhất và cực đại phát quang ở bước sóng khoảng 426 nm. Hiện nay, cơ chế vật lý giải thích cho hiện tượng này vẫn đang còn có nhiều quan điểm khác nhau: như sự lai hóa trạng thái bề mặt giữa lõi cacbon và các nhóm chức hay do kích thước hạt CNPs phân bố rộng (Ding et al., 2020; Sahu et al., 2012). Dựa vào kết quả đo ảnh TEM như mô tả trong Hình 3, chúng tôi bước đầu nhận định, với nguồn tiền chất là quả bầu, sự phụ thuộc vào bước sóng kích thích của dung dịch có thể được gây ra do bởi sự phân bố kích thước hạt nằm trong vùng khá rộng, trải dài từ 10 nm đến 100 nm.

4. Kết luận

Trong bài báo này, chúng tôi đã trình bày kết quả nghiên cứu một cách khá chi tiết về sự ảnh hưởng của các tham số nhiệt độ, thời gian và khối lượng tiền chất đưa vào khi chế tạo vật liệu CNPs bằng phương pháp thủy nhiệt. Sử dụng quả bầu làm nguyên liệu ban đầu, chúng tôi đã quan sát thấy sự thay đổi cường độ phổ quang phát quang khi các mẫu được xử lý nhiệt ở các điều kiện khác nhau. Điều kiện thủy nhiệt tối ưu để vật liệu CNPs phát quang mạnh nhất đó là 4 g nguyên liệu, thủy nhiệt ở 220°C trong 12 giờ. Do điều kiện thiết bị, tốc độ gia nhiệt là tham số hiện tại nhóm nghiên cứu vẫn chưa khảo sát được. Tuy nhiên, kết quả của nghiên cứu này sẽ là cơ sở để đánh giá các thông số quang học và định hướng cho các ứng dụng trong tương lai của CNPs.

- ❖ **Tuyên bố về quyền lợi:** Các tác giả xác nhận hoàn toàn không có xung đột về quyền lợi.
- ❖ **Lời cảm ơn:** Nghiên cứu này được tài trợ bởi Quỹ Phát triển Khoa học Trường Đại học Sư phạm – Đại học Đà Nẵng trong đề tài có mã số T2023-TN-10.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

- Ansi, V. A., & Renuka, N. K. (2018). Table sugar derived Carbon dot – a naked eye sensor for toxic Pb²⁺ ions. *Sensors and Actuators B: Chemical*, 264, 67-75. <https://doi.org/10.1016/j.snb.2018.02.167>
- Bui, T. H., Phuong, D. T., & Vuong, H. P. (2019). Green Synthesis of Highly Luminescent Carbon Quantum Dots from Lemon Juice. *Journal of Nanotechnology*, 2019, Article e2852816. <https://doi.org/10.1155/2019/2852816>
- Cui, L., Ren, X., Sun, M., Liu, H., & Xia, L. (2021). Carbon Dots: Synthesis, Properties and Applications. *Nanomaterials*, 11, Article 3419. <https://doi.org/10.3390/nano11123419>

- Da Silva, A. O., Rodrigues, M. O., Sousa, M. H., & Campos, A. F. C. (2021). pH-Dependent surface properties of N-Cdots obtained by the hydrothermal method with multicolored emissions. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 621, Article 126578. <https://doi.org/10.1016/j.colsurfa.2021.126578>
- Deme, G., Belay, A., Andoshe, D. M., Barsisa, G., Tsegaye, D., Tiruneh, S., & Seboka, C. (2023). Effect of Hydrothermal Reaction Temperature on Fluorescent Properties of Carbon Quantum Dots Synthesized from Lemon Juice for Adsorption Applications. *Journal of Nanomaterials*, 2023, Article e1701496. <https://doi.org/10.1155/2023/1701496>
- Ding, H., Li, X.-H., Chen, X.-B., Wei, J.-S., Li, X.-B., & Xiong, H.-M. (2020). Surface states of carbon dots and their influences on luminescence. *Journal of Applied Physics*, 127, Article 231101. <https://doi.org/10.1063/1.5143819>
- Hara, M., Yoshida, T., Takagaki, A., Takata, T., Kondo, J. N., Hayashi, S., & Domen, K. (2004). A carbon material as a strong protonic acid. *Angewandte Chemie (International Ed. in English)*, 43(22), 2955-2958. <https://doi.org/10.1002/anie.200453947>
- Jiang, C., Wu, H., Song, X., Ma, X., Wang, J., & Tan, M. (2014). Presence of photoluminescent carbon dots in Nescafe® original instant coffee: Applications to bioimaging. *Talanta*, 127, 68-74. <https://doi.org/10.1016/j.talanta.2014.01.046>
- Li, H., Kang, Z., Liu, Y., & Lee, S.-T. (2012). Carbon nanodots: Synthesis, properties and applications. *Journal of Materials Chemistry*, 22(46), 24230-24253. <https://doi.org/10.1039/C2JM34690G>
- Li, Y., Xu, X., Wu, Y., Zhuang, J., Zhang, X., Zhang, H., Lei, B., Hu, C., & Liu, Y. (2019). A review on the effects of carbon dots in the plant system. *Materials Chemistry Frontiers*, 4, 437-448. <https://doi.org/10.1039/C9QM00614A>
- Liu, L., Li, Y., Zhan, L., Liu, Y., & Huang, C. (2011). One-step synthesis of fluorescent hydroxyls-coated carbon dots with hydrothermal reaction and its application to optical sensing of metal ions. *Science China Chemistry*, 54(8), 1342-1347. <https://doi.org/10.1007/s11426-011-4351-6>
- Liu, M., Xu, Y., Niu, F., Gooding, J. J., & Liu, J. (2016). Carbon quantum dots directly generated from electrochemical oxidation of graphite electrodes in alkaline alcohols and the applications for specific ferric ion detection and cell imaging. *Analyst*, 141(9), 2657-2664. <https://doi.org/10.1039/C5AN02231B>
- Liu, S., Tian, J., Wang, L., Zhang, Y., Qin, X., Luo, Y., Asiri, A. M., Al-Youbi, A. O., & Sun, X. (2012). Hydrothermal Treatment of Grass: A Low-Cost, Green Route to Nitrogen-Doped, Carbon-Rich, Photoluminescent Polymer Nanodots as an Effective Fluorescent Sensing Platform for Label-Free Detection of Cu(II) Ions. *Advanced Materials*, 24(15), 2037-2041. <https://doi.org/10.1002/adma.201200164>
- Miean, K. H., & Mohamed, S. (2001). Flavonoid (Myricetin, Quercetin, Kaempferol, Luteolin, and Apigenin) Content of Edible Tropical Plants. *Journal of Agricultural and Food Chemistry*, 49(6), 3106-3112. <https://doi.org/10.1021/jf000892m>
- Ngo, K. Q. (2022). Ảnh hưởng của nhiệt độ thủy nhiệt tính chất quang của dung dịch hạt cacbon nano được chế tạo từ hạt đậu xanh [Effect of reaction temperature on optical properties of carbon nanoparticles derived from mung bean]. *Vietnam Journal of Science and Technology - B*, 64(6), 64-68. [https://doi.org/10.31276/VJST.64\(6\).64-68](https://doi.org/10.31276/VJST.64(6).64-68)

- Prasannan, A., & Imae, T. (2013). One-Pot Synthesis of Fluorescent Carbon Dots from Orange Waste Peels. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 52(44), 15673-15678. <https://doi.org/10.1021/ie402421s>
- S, S. P. N., N, K., & Pk, S. G. (2020). Green Synthesized Luminescent Carbon Nanodots for the Sensing Application of Fe³⁺ Ions. *Journal of Fluorescence*, 30(2), 357-363. <https://doi.org/10.1007/s10895-020-02505-2>
- Saafie, N., Sambudi, N. S., Wirzal, M. D. H., & Sufian, S. (2023). Effect of Hydrothermal Conditions on Kenaf-Based Carbon Quantum Dots Properties and Photocatalytic Degradation. *Separations*, 10(2), Article 2. <https://doi.org/10.3390/separations10020137>
- Sahu, S., Behera, B., Maiti, T. K., & Mohapatra, S. (2012). Simple one-step synthesis of highly luminescent carbon dots from orange juice: Application as excellent bio-imaging agents. *Chemical Communications*, 48(70), 8835-8837. <https://doi.org/10.1039/C2CC33796G>
- Ullah, A., Munir, S., Badshah, S. L., Khan, N., Ghani, L., Poulson, B. G., Emwas, A.-H., & Jaremko, M. (2020). Important Flavonoids and Their Role as a Therapeutic Agent. *Molecules (Basel, Switzerland)*, 25(22), Article 5243. <https://doi.org/10.3390/molecules25225243>
- Xu, X., Ray, R., Gu, Y., Ploehn, H. J., Gearheart, L., Raker, K., & Scrivens, W. A. (2004). Electrophoretic Analysis and Purification of Fluorescent Single-Walled Carbon Nanotube Fragments. *Journal of the American Chemical Society*, 126(40), 12736-12737. <https://doi.org/10.1021/ja040082h>
- Xu, Y., Tang, C.-J., Huang, H., Sun, C.-Q., Zhang, Y.-K., Ye, Q.-F., & Wang, A.-J. (2014). Green Synthesis of Fluorescent Carbon Quantum Dots for Detection of Hg²⁺. *Chinese Journal of Analytical Chemistry*, 42(9), 1252-1258. [https://doi.org/10.1016/S1872-2040\(14\)60765-9](https://doi.org/10.1016/S1872-2040(14)60765-9)
- Zhang, J., Zhao, X., Xian, M., Dong, C., & Shuang, S. (2018). Folic acid-conjugated green luminescent carbon dots as a nanoprobe for identifying folate receptor-positive cancer cells. *Talanta*, 183, 39-47. <https://doi.org/10.1016/j.talanta.2018.02.009>
- Zheng, J., Wang, J., Wang, Y., Yang, Y., Liu, X., & Xu, B. (2018). Facile and Rapid Synthesis of Yellow-Emission Carbon Dots for White Light-Emitting Diodes. *Journal of Electronic Materials*, 47(12), 7497-7504. <https://doi.org/10.1007/s11664-018-6691-x>
- Zhi, B., Gallagher, M. J., Frank, B. P., Lyons, T. Y., Qiu, T. A., Da, J., Mensch, A. C., Hamers, R. J., Rosenzweig, Z., Fairbrother, D. H., & Haynes, C. L. (2018). Investigation of phosphorous doping effects on polymeric carbon dots: Fluorescence, photostability, and environmental impact. *Carbon*, 129, 438-449. <https://doi.org/10.1016/j.carbon.2017.12.004>
- Zhu, C., Zhai, J., & Dong, S. (2012). Bifunctional fluorescent carbon nanodots: Green synthesis via soy milk and application as metal-free electrocatalysts for oxygen reduction. *Chemical Communications*, 48(75), 9367-9369. <https://doi.org/10.1039/C2CC33844K>
- Zulfajri, M., Gedda, G., Chang, C.-J., Chang, Y.-P., & Huang, G. G. (2019). Cranberry Beans Derived Carbon Dots as a Potential Fluorescence Sensor for Selective Detection of Fe³⁺ Ions in Aqueous Solution. *ACS Omega*, 4(13), 15382-15392. <https://doi.org/10.1021/acsomega.9b01333>

EFFECTS OF HYDROTHERMAL CONDITIONS ON OPTICAL PROPERTIES OF GOURD-BASED CARBON NANOPARTICLES

Le Vu Truong Son^{1}, Tran Thi Nguyen Thao¹, Diep Thi Thanh Thao¹,
Le Thi Minh Thuy¹, Chau Bao Tran¹, Pham Thi To Uyen¹, Tran Hong Van¹,
Trinh Ngoc Dat¹, Phan Lien¹, Cao Nu Thuy Linh², Dang Ngoc Toan^{3,4}, Ngo Khoa Quang^{4*}*

¹University of Education, The University of Danang, Vietnam

²VN-UK Institute for Research & Executive Education, The University of Danang, Vietnam

³Duy Tan University, Vietnam

⁴University of Sciences, Hue University, Vietnam

*Corresponding author: Le Vu Truong Son – Email: lvton_kl@ued.udn.vn

Received: November 06, 2023; Revised: November 22, 2023; Accepted: December 13, 2023

ABSTRACT

In this study, we investigated the influence of hydrothermal conditions (hydrothermal temperature, precursor mass, and hydrothermal time) on the optical properties of gourd-based carbon nanoparticles (CNPs) synthesized by hydrothermal methods. Factors such as temperature, precursor mass, and hydrothermal time were investigated. Transmission electron microscopy imaging, Energy dispersive X-ray spectroscopy, X-ray diffraction, and Raman scattering spectroscopy were utilized to analyze the morphology, elemental composition, and structure of CNPs. Photoluminescence spectroscopy was used to compare the photoluminescence intensity and study the influence of hydrothermal conditions on the optical properties of CNPs. Research results show that the produced CNPs have particle sizes distributed widely from 10 nm to 100 nm. The photoluminescence spectrum of CNPs is strongest when excited at a wavelength of 350 nm. In this study, CNPs synthesized by hydrothermally heating 4 g of gourd at 220°C for 12 hours offered the strongest photoluminescence intensity.

Keywords: carbon nanoparticles; gourd; Hydrothermal conditions; photoluminescent materials