

Nghiên cứu tổng hợp xanh tổ hợp vật liệu nano kim loại hóa trị 0 từ dịch chiết lá trà xanh

Lê Hồng Minh^{1*}, Tô Phương Linh¹, Nguyễn Thị Thu Hương¹,
Nguyễn Quang Lý², Nguyễn Trung Đức³

¹Viện Công nghệ mới/Viện KH-CN quân sự;

²Trường Sĩ quan Lục quân 1;

³Khoa Hóa học/Trường Đại học Khoa học Tự nhiên/Đại học Quốc gia Hà Nội.

Email: lehongminh388@gmail.com

Nhận bài: 21/9/2022; Hoàn thiện: 17/10/2022; Chấp nhận đăng: 02/02/2023; Xuất bản: 28/02/2023.

DOI: <https://doi.org/10.54939/1859-1043.j.mst.85.2023.65-72>

TÓM TẮT

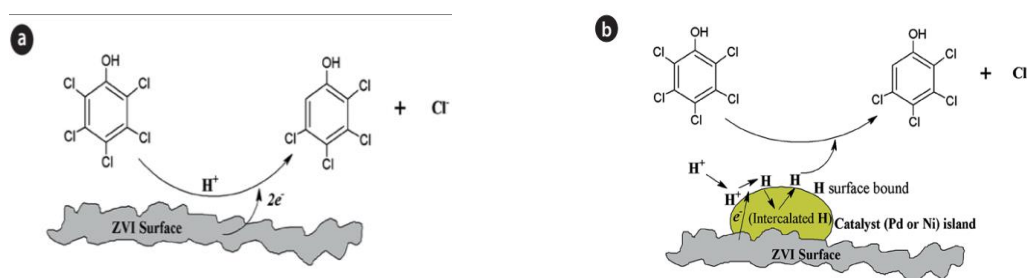
Nano sắt hóa trị 0 có thể xử lý một cách có hiệu quả nhiều loại chất ô nhiễm khác nhau trong môi trường, bao gồm các hợp chất hữu cơ chứa clo, kim loại nặng và một số chất vô cơ khác. Việc kết hợp thêm 1 xúc tác kim loại với sắt nano đã cho thấy hiệu quả xử lý chất ô nhiễm, đặc biệt là các hợp chất hữu cơ khó phân hủy (POPs) tăng lên đáng kể. Các phương pháp tổng hợp nano bền vững, thân thiện với môi trường ngày càng được quan tâm. Một phương pháp sử dụng các loại hóa chất không độc hại, dung môi thân thiện với môi trường, quy trình đơn giản, là sử dụng dịch chiết từ lá trà xanh trong dung môi nước đã được tiến hành trong nghiên cứu này để tổng hợp một số tổ hợp nano kim loại hóa trị 0. Cụ thể, tổ hợp nano lưỡng kim Fe/Ni, Cu/Ni đã được tổng hợp. Trong đó, khối lượng nano kim loại được tạo thành nhiều nhất ở tỉ lệ mol muối sắt/kim loại thứ 2 là 3:1. Điều kiện tối ưu để tổng hợp vật liệu là: thời gian 12 h, nhiệt độ 50 °C, pH trung tính.

Từ khóa: Tổng hợp xanh; Nano lưỡng kim; Polyphenol; Dịch chiết lá trà xanh.

1. MỞ ĐẦU

Ô nhiễm môi trường, đặc biệt là ô nhiễm các hợp chất hữu cơ khó phân hủy như DDT, lindane, dioxin,... là một vấn đề nóng cần giải quyết tại Việt Nam cũng như trên thế giới. Việc xử lý chất ô nhiễm bằng công nghệ, vật liệu thích hợp, tiết kiệm chi phí, không gây ô nhiễm thứ cấp là xu hướng được nhiều nhà khoa học quan tâm. Do có đặc tính cho electron và khử nhiều chất ô nhiễm với tốc độ cao, sắt nano (nZVI) được sử dụng để xử lý nhiều chất ô nhiễm trong môi trường. Sắt nano có thể đi vào trong đất bị ô nhiễm, trầm tích và tầng ngậm nước. Các chất ô nhiễm mà sắt nano có thể xử lý bao gồm các hợp chất hữu cơ chứa clo, kim loại nặng và các chất vô cơ khác [1].

Đối với dẫn xuất của halogen, cơ chế xử lý phổ biến là dựa trên phản ứng khử tách clo ra khỏi phân tử và chuyển hóa chúng thành các sản phẩm ít độc hơn, sau đó loại bỏ ra khỏi môi trường bằng các biện pháp xử lý khác nhau. Các nghiên cứu về ảnh hưởng của việc sử dụng thêm xúc tác kim loại (ví dụ như palladium, niken, bạch kim, bạc) với sắt hóa trị 0 đã tăng đáng kể trong thời gian qua. Tổ hợp nano lưỡng kim có lõi nZVI (cần chú thích ở lần đầu tiên) và được phủ bởi xúc tác kim loại làm tăng cường tốc độ phản ứng khử (hình 1).



Hình 1. Cơ chế khử clo của nZVI (a) và nZVM (b).

Hiện nay, để tổng hợp nano sắt (nZVI) hay tổ hợp vật liệu nano trên nền sắt (nZVM) có thể sử dụng nhiều phương pháp khác nhau như vật lý, hóa học, hóa lý. Tuy nhiên, các phương pháp này tốn kém và sử dụng các chất khử độc hại như hydrazine, natri borohydride..., hạt nano sau tổng hợp dễ bị oxy hóa và kết tụ [2]. Việc sử dụng dịch chiết thực vật để tổng hợp nZVI hoặc nZVM có thể giải quyết được vấn đề trên. Một số báo cáo đã chỉ ra rằng, polyphenol trong dịch chiết từ các loài thực vật khác nhau là chất khử quan trọng để tổng hợp các hạt nano [1].

Thành phần polyphenol trong lá trà xanh (*Camelha sinensis*) rất đa dạng, nhưng thành phần chủ yếu bao gồm các flavonoid và tanin. Các polyphenol này chiếm khoảng 13-35% trọng lượng chè khô, thích hợp để làm chất khử trong tổng hợp nano kim loại, đồng thời cấu trúc của polyphenol cũng có khả năng dùng làm chất ổn định kích thước và bảo vệ các hạt nano sau quá trình khử [3].

Các nghiên cứu sử dụng dịch chiết từ các loài thực vật ứng dụng trong lĩnh vực tổng hợp hóa học xanh là một lĩnh vực mới mẻ và chưa có nhiều nghiên cứu, đa phần tập trung vào chế tạo vật liệu nano đơn kim của bạc, đồng và đánh giá hoạt tính kháng vi sinh vật [4 ÷ 7]. Một số nghiên cứu cũng chỉ ra rằng, việc sử dụng các hạt nano lưỡng kim cho kết quả xử lý môi trường tốt hơn so với nano đơn kim. Trong nghiên cứu này, chúng tôi báo cáo kết quả tổng hợp hạt nano lưỡng kim loại trên nền sắt sử dụng dịch chiết lá chè xanh và khảo sát cấu trúc của vật liệu hình thành.

2. THỰC NGHIỆM VÀ PHƯƠNG PHÁP NGHIÊN CỨU

2.1. Hóa chất, dụng cụ, thiết bị

Hóa chất: $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ (99%, Trung Quốc); $\text{Fe}_2(\text{SO}_4)_3$ (98 %, Trung Quốc); $\text{CuSO}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$ (99 %, Trung Quốc); $\text{NiSO}_4 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ (98 %, Trung Quốc), lá trà xanh (Việt Nam) và một số hóa chất thông dụng khác.

Thiết bị: Cân điện tử Ohaus PA2102 (Mỹ); micropipette; máy khuấy từ Velp ARE (Ý); thiết bị đo phổ nhiễu xạ tia X D8-ADVANCE (Bruker, Đức); thiết bị UV-Vis Spectrophotometer Halo RB-10 (Dynamica Scientific Ltd., Anh); thiết bị SEM-EDX (SM-6510LV, Jeol, Nhật Bản); thiết bị đo pH SevenCompact pH meter S220 (Mettler Toledo).

2.2. Phương pháp chế tạo vật liệu nano lưỡng kim

- Chuẩn bị dịch chiết lá trà: Lá trà tươi được mua về, loại bỏ cành thừa và lá bị dập nát, sau đó được ngâm 30 phút trong nước sạch, rửa sạch bằng nước máy và đem phơi khô tự nhiên. Khi lá đã khô, đem sấy ở nhiệt độ $(60 \div 65)^\circ\text{C}$ đến khối lượng không đổi trong thời gian 10 giờ. Lá sau khi sấy được nghiền mịn bằng máy Jiasound công suất 3000 W trong 2 đến 4 phút thành dạng bột mịn. Cho 20 g bột trà vào 1.000 mL nước deion. Tiến hành đun hồi lưu hỗn hợp ở nhiệt độ $94 \div 96^\circ\text{C}$ trong các thời gian 2 h, 4 h, 6 h hoặc ủ với nước đã được đun sôi ở 100°C trong các thời gian 8 h, 10 h, 12 h. Lọc dịch chiết bằng giấy lọc Whatman, thu phần dịch lọc.

- Hòa tan một lượng nhất định hỗn hợp muối kim loại Fe, Cu, Ni theo tỷ lệ mol Fe/Cu và Fe/Ni tương ứng là 1:1, 3:1, 5:1 trong 20 mL nước deion, thêm 100 mL dịch chiết trà xanh được chuẩn bị ở trên, tiếp tục khuấy hỗn hợp trong thời gian 1 h, 2 h, 4 h, 6 h, 8 h ở nhiệt độ phòng, điều chỉnh pH trong khoảng 2-10, nhiệt độ 40°C , 50°C , 60°C . Hỗn hợp sau khuấy được để yên trong 24 h, sau đó ly tâm thu được kết tủa. Sấy khô ở nhiệt độ 50°C đến khối lượng không đổi và bảo quản trong bình hút ẩm.

2.3. Phương pháp đánh giá đặc trưng của dịch chiết lá trà xanh

- Đo pH: Giá trị pH của dịch chiết lá cây được đo 3 lần, lấy giá trị trung bình.
- Màu sắc, mùi: Xác định bằng cảm quan và đánh giá theo TCVN 3218:2012.
- Tổng polyphenol: Tổng polyphenol trong dịch chiết được xác định theo TCVN 9745-1-2013 (ISO 14502-1-2005). Các polyphenol trong dịch chiết được xác định bằng phương pháp đo màu dùng thuốc thử Folin-Ciocalteu. Pha loãng dịch chiết trà xanh tới nồng độ thích hợp. Hút 1,0 mL

Nghiên cứu khoa học công nghệ

dịch chiết pha loãng vào các ống nghiệm, thêm 5 mL thuốc thử Folin-Ciocalteu 10%. Hỗn hợp được lắc bằng máy Vortex trước khi thêm 4 mL dung dịch Na_2CO_3 7,5%. Để hỗn hợp chất lỏng ở trạng thái tĩnh trong 60 phút ở nhiệt độ phòng, sau đó phân tích độ hấp thụ quang ở bước sóng 765 nm. Hàm lượng polyphenol được biểu diễn theo miligam đương lượng acid gallic trên mỗi gam chất khô (mg GAE/g, được quy đổi ra %).

Bảng 1. Kết quả xây dựng đường chuẩn axit gallic.

Nồng độ acid gallic ($\mu\text{g/mL}$)	0	20	40	60	80	100	120	$Y = 0,0136x + 0,0262$ $R^2 = 0,9967$
Abs	0	0,312	0,624	0,793	1,122	1,409	1,646	

2.4. Phương pháp đánh giá đặc trưng của vật liệu nano lưỡng kim

- Phương pháp phổ hồng ngoại (FT-IR): Được ghi trên thiết bị Affinity-1S (Shimadzu Corporation, Nhật Bản), cho biết thông tin về nhóm chức có mặt trong phân tử.
- Phương pháp nhiễu xạ tia X (XRD): Được đánh giá trên thiết bị (D8-ADVANCE, Bruker, Đức), cho biết thông tin về cấu trúc tinh thể của vật liệu.
- Phương pháp kính hiển vi điện tử quét phát xạ trường (FE-SEM): Được đánh giá trên thiết bị S-4800 (Hitachi, Nhật Bản), dùng để xác định hình thái học của vật liệu.
- Phương pháp phổ tán sắc năng lượng tia X (EDX): Được đánh giá trên thiết bị SEM-EDX (Máy SEM: SM-6510LV, Jeol, Nhật Bản kết hợp với đầu dò EDX: X-Act, Oxford Instrument, Anh), dùng để xác định thành phần nguyên tố.

3. KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN

3.1. Đánh giá đặc trưng của dịch chiết lá trà xanh

Đánh giá bằng cảm quan, dịch chiết trà ở dạng lỏng có màu vàng đậm, mùi thơm đặc trưng của trà. Giá trị pH dao động trong khoảng 5,28 đến 5,42.

Kết quả xác định hàm lượng tổng polyphenol được thể hiện ở bảng 1.

Bảng 2. Khảo sát thời gian và phương pháp chiết trà tối ưu.

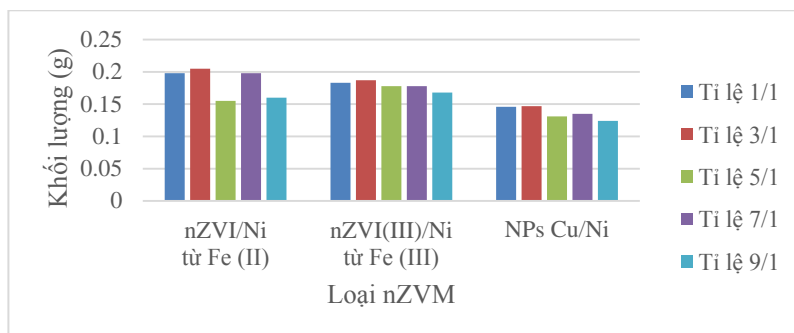
STT	Tên dịch chiết trà	Phương pháp chiết	Thời gian chiết (giờ)	Hàm lượng polyphenol theo khối lượng khô (%)
1	Bột L1	Đun với nước	2	7,104
2	Bột L2	Đun với nước	4	7,283
3	Bột L3	Đun với nước	6	7,485
4	Bột L4	Ủ với nước	8	6,327
5	Bột L5	Ủ với nước	10	6,856
6	Bột L6	Ủ với nước	12	7,193

Kết quả cho thấy, phương pháp đun với nước có hiệu suất chiết cao hơn phương pháp ủ với nước và thời gian chiết ngắn hơn. Phần trăm lượng polyphenol theo khối lượng khô cao nhất ở thời gian chiết 6 h bằng phương pháp đun với nước ở nhiệt độ $94 \div 96$ °C, đạt giá trị là 7,485%.

3.2. Khảo sát các yếu tố ảnh hưởng tới khả năng tạo thành vật liệu nano lưỡng kim

3.2.1. Ảnh hưởng của tỷ lệ kim loại

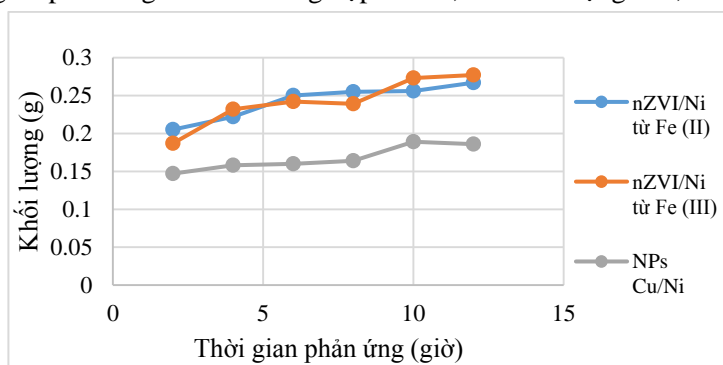
Kết quả khảo sát tỷ lệ tạo thành nZVM ở hình 2 cho thấy, ở cả 3 loại nZVM được nghiên cứu đều cho kết quả tỷ lệ tối ưu của muối kim loại (sắt, đồng) và muối niken là 3:1. Ở tỷ lệ này, khối lượng sản phẩm tạo thành của cả 3 loại nZVM là lớn nhất, với nZVI/Ni từ muối sắt (II) là 0,205 g; nZVI/Ni từ muối sắt (III) là 0,187 g và NPs Cu/Ni là 0,147 g.



Hình 2. Khảo sát tỉ lệ tối ưu để tổng hợp nZVM.

3.2.2. Ảnh hưởng của thời gian phản ứng

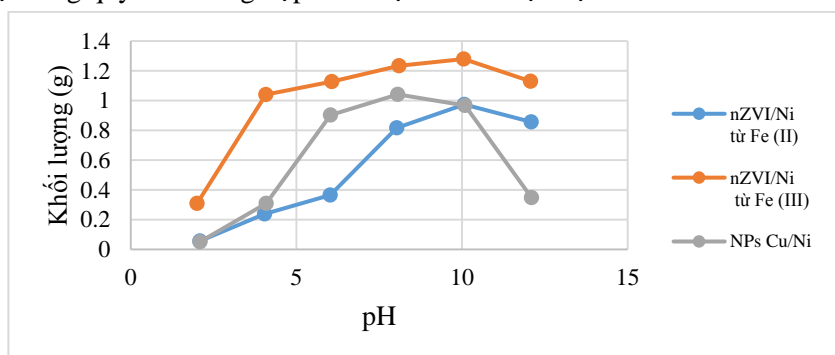
Hiệu suất tạo thành hai loại nZVI/Ni từ muối sắt (II) và muối sắt (III) có xu hướng tăng nhẹ trong khoảng thời gian phản ứng từ 2 h đến 12 h và đạt cực đại ở thời gian phản ứng 12 h với khối lượng sản phẩm nZVI/Ni từ muối sắt (II) và muối sắt (III) lần lượt là 0,267 g và 0,277 g. Đối với NPs Cu/Ni, thời gian phản ứng tối ưu để tổng hợp là 10h, có khối lượng là 0,189 g (hình 3).



Hình 3. Khảo sát thời gian tối ưu tổng hợp nZVM.

3.2.3. Ảnh hưởng của pH

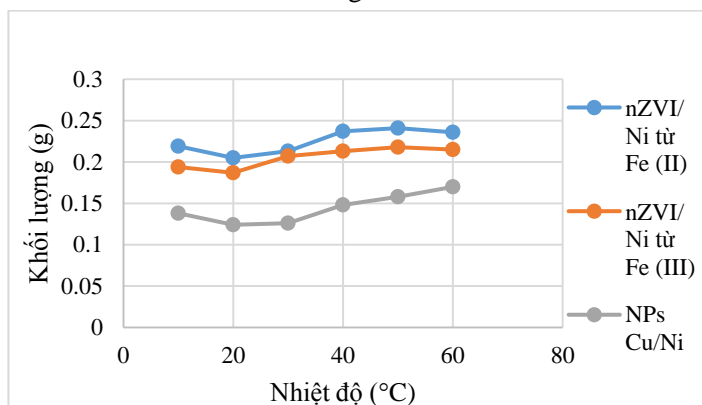
Ảnh hưởng của pH đến quá trình tổng hợp xanh vật liệu sắt nano bằng dịch chiết thực vật loãng cũng đã được nghiên cứu. Trong môi trường tổng hợp axit, vật liệu nano kim loại tạo thành bị hòa tan lại thành dạng sắt hóa trị 2, 3 nằm trong dung dịch dẫn đến lượng nano kim loại tổng hợp được là rất ít. Còn với môi trường tổng hợp là bazơ (pH = 10), khối lượng kết tủa thu được là lớn nhất, tuy nhiên, thực tế kết tủa thu được có cả nZVM và dạng hydroxit do phản ứng của muối kim loại với ion OH⁻. Do đó, lựa chọn môi trường trung tính để tổng hợp tổ hợp vật liệu nano kim loại bằng quy trình tổng hợp xanh dịch chiết thực vật.



Hình 4. Khảo sát pH tối ưu để tổng hợp nZVM.

3.2.4. Ảnh hưởng của nhiệt độ phản ứng

Hình 4 mô tả kết quả thí nghiệm khảo sát nhiệt độ phản ứng chế tạo 3 loại nZVM trong khoảng nhiệt độ từ 10 °C đến 60 °C. Nhiệt độ tối ưu để tổng hợp 2 loại nZVI/Ni từ muối sắt (II) và muối sắt (III) là 50 °C, có khối lượng sản phẩm lớn nhất lần lượt là 0,241 g và 0,218 g. Đối với NPs Cu/Ni, hiệu suất tổng hợp tăng dần theo nhiệt độ trong khoảng từ 20 °C đến 60 °C, đạt khối lượng sản phẩm lớn nhất ở 60 °C là 0,170 g.

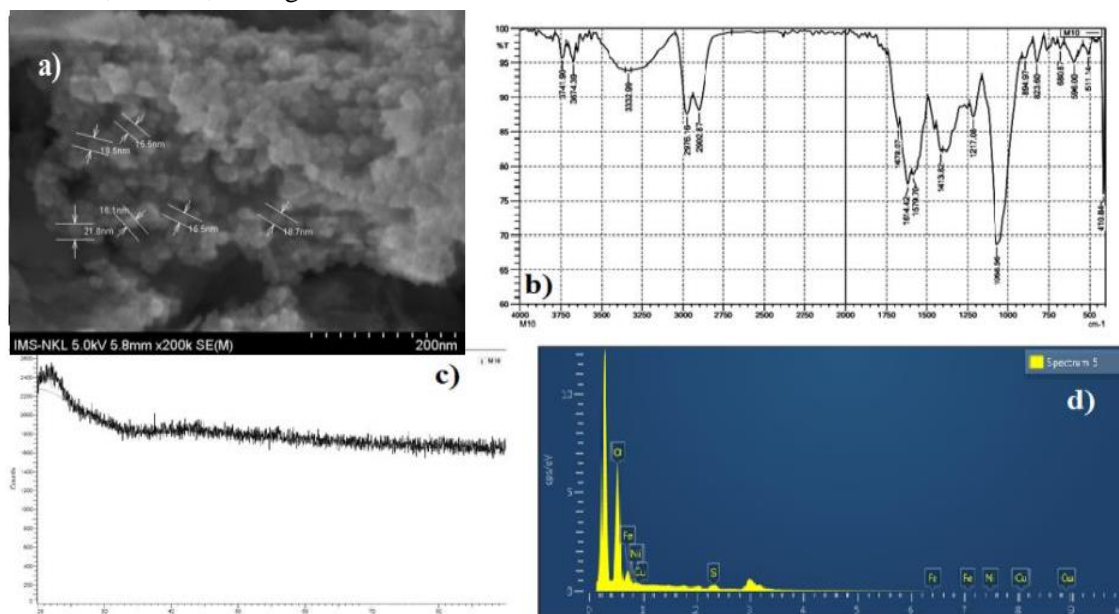


Hình 5. Khảo sát nhiệt độ tối ưu để tổng hợp nZVM.

3.3. Nghiên cứu cấu trúc và đặc trưng kỹ thuật của vật liệu nano kim loại hóa trị 0 từ dịch chiết lá trà xanh

3.3.1. Kết quả đánh giá cấu trúc của hạt nano Fe/Ni tổng hợp từ muối sắt (II)

Kết quả đánh giá cấu trúc của hạt nano tổng hợp Fe/Ni từ muối sắt (II): Cấu trúc của hạt nano Fe/Ni được thể hiện trong hình 6.



Hình 6. Đặc tính của hạt nano Fe/Ni tạo thành từ muối sắt (II):

Phổ SEM (a), FT-IR (b), XRD (c) và EDX (d).

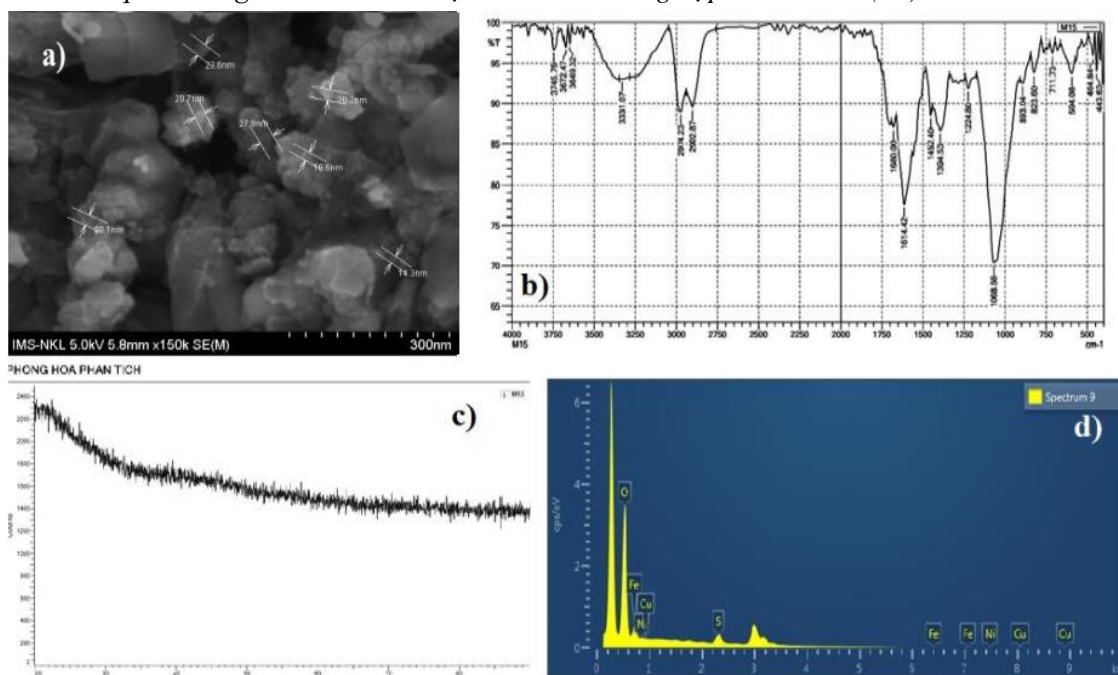
Kết quả SEM (hình 5a) cho thấy, các hạt nano Fe/Ni được tạo thành có dạng hình cầu, kích thước tương đối đồng đều, phần lớn trong khoảng (15 ÷ 20) nm. Trên phổ hồng ngoại (FT-IR) (hình 6b), băng sóng hấp thụ xuất hiện ở 3333 cm⁻¹ (chân rộng) đặc trưng cho dao động hóa trị

của nhóm chức –OH; các băng sóng hấp thụ ở 2976 cm^{-1} và 2902 cm^{-1} đặc trưng cho dao động hóa trị của liên kết –CH no; một số băng sóng xuất hiện ở 1614 cm^{-1} , 1579 cm^{-1} đặc trưng cho dao động hóa trị của liên kết C=C thơm; đặc biệt băng sóng hấp thụ mạnh ở 1068 cm^{-1} đặc trưng cho dao động hóa trị của liên kết C-O-C ether, thể hiện rằng bề mặt của sản phẩm được bao bọc bởi các thành phần polyphenol có trong dịch chiết trà xanh. Đặc biệt, peak ở vùng $500\text{-}600\text{ cm}^{-1}$ đặc trưng cho liên kết Fe-O chứng minh cho sự tương tác giữa Fe và các thành phần hữu cơ này.

Trên phổ XRD (hình 6c), không có đỉnh peak nào được tìm thấy là hoàn toàn phù hợp với một số nghiên cứu về tổ hợp nZVI của một số tác giả khác [4, 9]. Điều này chứng tỏ, sản phẩm tạo thành là loại hạt nano Fe/Ni ở dạng vô định hình. Desalegn, B. và cộng sự vào năm 2019 đã giải thích rằng, có thể là do sự vắng mặt của các cấu trúc tinh thể có trật tự và bản chất của hạt tạo thành tồn tại ở trạng thái vô định hình, trong đó đã có sự kết hợp giữa sắt và các nhóm chức của polyphenol [8].

Trên phổ EDX (hình 6d) cho thấy, bên cạnh các peak Fe, Ni còn xuất hiện các peak có cường độ cao ở C, O, có khả năng là của nhóm chức C=O của polyphenol, trong khi peak ở S là từ muối FeSO_4 và NiSO_4 được sử dụng để tổng hợp nên sản phẩm.

3.3.2. Kết quả đánh giá cấu trúc của hạt nano Fe/Ni tổng hợp từ muối sắt (III)



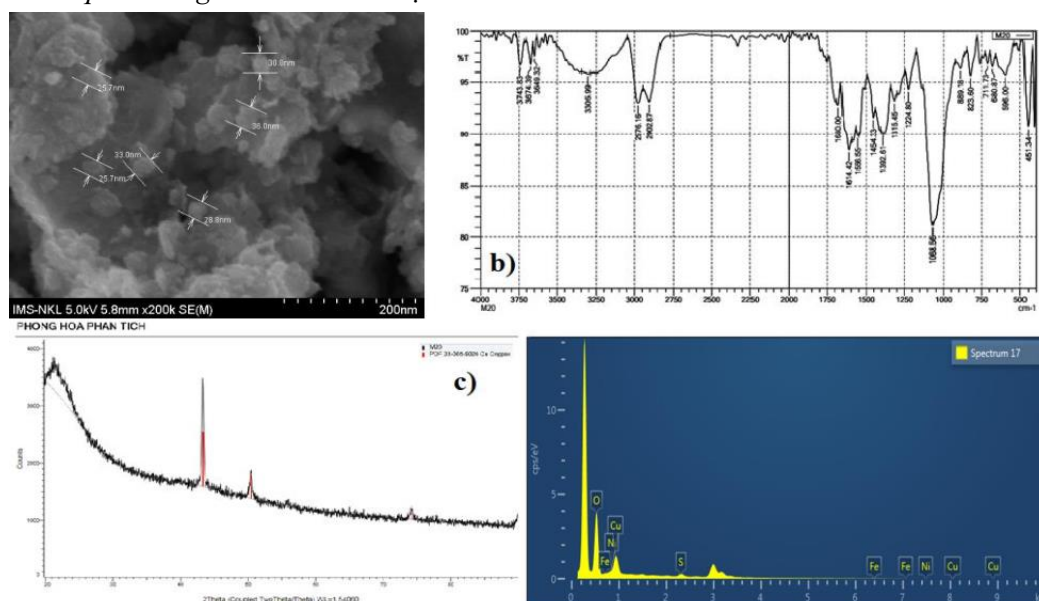
Hình 7. Đặc tính của hạt nano Fe/Ni tạo thành từ muối sắt (III).

Hầu hết các hạt nano Fe/Ni có kích thước nằm trong khoảng $(15 \div 30)\text{ nm}$, được thể hiện qua ảnh chụp SEM (hình 7a).

Trên phổ FT-IR (hình 7b) xuất hiện các băng sóng hấp thụ đặc trưng tương tự như vật liệu tạo thành từ sắt (II), bao gồm: 3331 cm^{-1} (ν_{OH} , chân rộng), 2974 cm^{-1} , 2902 cm^{-1} (ν_{CH} , no), 1614 cm^{-1} , 1579 cm^{-1} ($\nu_{\text{C}=\text{C}}$, thơm), 1068 cm^{-1} ($\nu_{\text{C-O-C}}$, ether), chứng tỏ rằng, bề mặt sản phẩm được bao bọc bởi các polyphenol trong dịch chiết trà xanh. Đặc biệt, peak ở vùng $500\text{-}600\text{ cm}^{-1}$ đặc trưng cho liên kết Fe-O chứng minh cho sự tương tác giữa Fe và các thành phần hữu cơ này.

Trên phổ XRD (hình 7c) và kết quả EDX (hình 7d) có sự tương đồng với hạt nano Fe/Ni được tổng hợp từ muối sắt (II), phổ XRD không có đỉnh peak rõ ràng nào được tìm thấy, chứng tỏ hạt nano Fe/Ni được tổng hợp từ muối sắt (III) ở dạng vô định hình, trong khi kết quả EDX (hình 7d) có xuất hiện peak của Fe, Ni, C, O, S.

3.3.3. Kết quả đánh giá cấu trúc của hạt nano Cu/Ni



Hình 8. Kết quả nghiên cứu cấu trúc của hạt nano Cu/Ni.

Kết quả chụp SEM của hạt nano Cu/Ni (hình 8a) cho thấy các hạt có kích thước nằm trong khoảng từ (30 ÷ 150) nm. Phổ IR của sản phẩm (hình 8b) có các peak tương đồng với hai sản phẩm ở 2 mục trên do sự xuất hiện của thành phần polyphenol, cụ thể gồm các peak: 3305 cm⁻¹, 2976 cm⁻¹, 2902 cm⁻¹, 1614 cm⁻¹, 1068 cm⁻¹ lần lượt thể hiện cho sự có mặt của các nhóm O-H, C-H, C=C thơm, C-O-C.

Phổ XRD (hình 8c) xuất hiện peak ở 2θ = 43,30 đặc trưng của Cu, chứng tỏ sự có mặt của Cu ở trong sản phẩm. Kết quả EDX (hình 8d) cho thấy, các peak xuất hiện đặc trưng cho các nguyên tố Cu, Ni, C, O, S, thể hiện rằng sản phẩm có chứa liên kết C=O, S từ gốc SO₄ của muối sunfate.

4. KẾT LUẬN

Lượng polyphenol theo khối lượng khô cao nhất là ở thời gian chiết 6h bằng phương pháp đun với nước với nhiệt độ (94 – 96) °C, đạt giá trị là 7,485%. Vật liệu nano Fe/Ni, Cu/Ni đã được tổng hợp từ muối kim loại với dịch chiết lá trà xanh. Trong đó, khối lượng nano kim loại được tạo thành nhiều nhất ở tỉ lệ mol muối sắt/kim loại thứ 2 là 3:1. Điều kiện tối ưu để tổng hợp vật liệu là: thời gian 12 h, nhiệt độ 50 °C, pH trung tính. Ảnh SEM của 3 loại vật liệu cho thấy tổ hợp vật liệu nano lưỡng kim có cấu trúc đồng đều, khả năng phân tán tốt. Điều này cũng phù hợp với các nghiên cứu trước đã chỉ ra rằng, polyphenol trong trà xanh có thể bao quanh và bảo vệ nano kim loại khỏi bị oxy hóa. Quá trình tổng hợp đơn giản, trải qua ít giai đoạn, nguyên vật liệu thân thiện với môi trường, không gây ô nhiễm thứ cấp. Đây là một lợi thế của việc tổng hợp vật liệu nano từ dịch chiết thực vật so với việc sử dụng NaBH₄, là một hợp chất độc hại, gây hại cho môi trường khi sử dụng.

Lời cảm ơn: Các tác giả trân trọng cảm ơn sự hỗ trợ kinh phí của Đề tài nghiên cứu định hướng cho cán bộ trẻ năm 2021 thuộc Viện Công nghệ mới/Viện KH-CN quân sự.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

[1]. M. A. M. & F. A. M. FHeba Mohamed Fahmy, Fatma Mahmoud Mohamed, Mariam Hisham Marzouq, Amira Bahaa El-Din Mustafa, Asmaa M. Alsoudi, Omnia Ashoor Ali, "Review of Green Methods of Iron Nanoparticles Synthesis and Applications Heba," Bionanoscience, vol. 8, pp. 491–503, (2018).

- [2]. X. Zhang, S. Lin, Z. Chen, M. Megharaj, and R. Naidu, "Kaolinite-supported nanoscale zero-valent iron for removal of Pb²⁺ from aqueous solution: Reactivity, characterization and mechanism," *Water Res.*, vol. 45, no. 11, pp. 3481–3488, (2011), doi: <https://doi.org/10.1016/j.watres.2011.04.010>.
- [3]. N. M. Phạm Thị, B. Lê Thái, Đ. Phạm Huy, T. N. Nguyễn Thị, Đ. Phạm Tiến, and Á. H. Nguyễn Thị, "Xác định hàm lượng Polyphenol và EGCG trong chè và sản phẩm chè bằng phương pháp UV-VIS và HPLC," *Heavy metals and arsenic concentrations in water, agricultural soil, and rice in Ngan Son district, Bac Kan province, Vietnam*, vol. 1, no. 1, pp. 8–12, (2018). doi: 10.47866/2615-9252/vjfc.692.
- [4]. B. Desalegn, M. Megharaj, Z. Chen, and R. Naidu, "Green synthesis of zero valent iron nanoparticle using mango peel extract and surface characterization using XPS and GC-MS," *Heliyon*, vol. 5, no. 5, p. e01750, (2019), doi: 10.1016/j.heliyon.2019.e01750.
- [5]. A. Soliemanzadeh, M. Fekri, S. Bakhtiary, and M. H. Mehrizi, "Biosynthesis of iron nanoparticles and their application in removing phosphorus from aqueous solutions," *Chemistry and Ecology*, vol. 32, no. 3, pp. 286–300, (2016). doi: 10.1080/02757540.2016.1139091.

ABSTRACT

Green synthesis of bimetallic nanoparticles from green tea leaf extract

Zero-valent iron could effectively treat many different types of pollutants in the environment, such as chlorine organic compounds, heavy metals and some other inorganic substances. The combination of a metal catalyst with iron was increased the efficiency of pollutant removal, especially persistent organic compounds (POPs). Sustainable, environmentally friendly nanosynthetic methods were gaining more and more attention. In this study, a method using non-toxic chemicals, environment-friendly solvents, simple process was described. Bimetallic nano materials Fe/Ni, Cu/Ni were synthesised by using green tea leaf extract in water solvent. In which, the mass of metal nanoparticles was formed the most at the second iron/metal salt molar ratio of 3:1. The optimal conditions for the synthesis of materials were: 12 h time, 50 °C temperature, neutral pH.

Keywords: Green synthesis; Bimetallic nanoparticles; Polyphenol; Green tea extract.