

# TỔNG HỢP MỘT GIAI ĐOẠN SỢI NANO CARBOXYL CELLULOSE TỪ PHỤ PHẨM ĐÀI SEN

● NGUYỄN VĂN DŨNG - NGUYỄN NGỌC HÂN - TRẦN THỤY TUYẾT MAI  
- LÂM HOA HÙNG - NGUYỄN QUANG LONG - NGÔ TRẦN HOÀNG DƯƠNG

## TÓM TẮT:

Sợi nano carboxyl cellulose đã được tổng hợp trực tiếp từ phụ phẩm đài sen thông qua phương pháp oxy hóa nitro. Các phương pháp phân tích gồm ảnh TEM, ảnh SEM, phổ EDX, phổ FTIR, nhiễu xạ tia X được sử dụng để xác định tính chất vật liệu thu được. Ảnh TEM cho thấy các sợi nano được tổng hợp thành công với đường kính khoảng 10 - 60 nm và chiều dài khoảng 200 nm đến 2  $\mu\text{m}$ . Phổ FTIR, EDX và phương pháp chuẩn độ cho thấy sự tồn tại của các nhóm -COOH trên bề mặt sợi nano carboxyl cellulose với hàm lượng khoảng 5,0 mmol/g hoặc 22 wt%. Ở dạng điện tích âm, những nhóm -COO<sup>-</sup> hỗ trợ cho sự phân tán đồng bộ của những sợi nano trong môi trường nước. So với những phương pháp truyền thống nhiều bước, phương pháp được sử dụng đơn giản hơn, ít sử dụng hóa chất và ít tiêu tốn năng lượng. Bài nghiên cứu đã đề xuất được một quy trình đơn giản để tổng hợp sợi nano carboxyl cellulose từ phụ phẩm đài sen, hứa hẹn cho nhiều ứng dụng khác nhau.

**Từ khóa:** đài sen, sợi nano carboxyl cellulose, oxy hóa nitro.

## 1. Đặt vấn đề

Sen được trồng nhiều trong các ao hồ với mục đích chủ yếu là lấy hoa và lấy hạt. Tổng diện tích trồng sen ở Việt Nam ước tính trên 3.000 ha. Trong đó, Đồng bằng sông Cửu Long chiếm tới 2/3 tổng diện tích cả nước với sản lượng bình quân đạt 4 - 5 tấn hạt/ha [1]. Hầu hết các bộ phận của cây sen từ rễ, lá đến hạt đều được sử dụng rộng rãi trong dược phẩm và thực phẩm. Tuy nhiên, đài sen sau khi lấy hạt chủ yếu bị thải bỏ, tạo điều kiện cho nhiều loại vi sinh vật sinh sôi hoặc được đốt gây ô nhiễm môi trường và ảnh hưởng đến sức khỏe người dân [2]. Theo Jun Pu và các cộng sự

[3], thành phần chủ yếu của phụ phẩm đài sen là cellulose, hemicellulose và lignin. Với ưu điểm là một nguồn phụ phẩm ít giá trị, dễ thu gom và trữ lượng tương đối lớn, phụ phẩm đài sen sẽ là ứng viên tiềm năng để tổng hợp các vật liệu nano trên nền tảng cellulose.

Hiện nay, để hạn chế việc giải phóng khí CO<sub>2</sub> gây hiệu ứng nhà kính, việc tổng hợp sợi nano cellulose đã nhận được nhiều sự quan tâm [4]. Vật liệu này không chỉ duy trì cấu trúc cơ bản và đặc tính của cellulose mà còn mang những ưu thế của kích thước nano như là độ bền cơ học tốt, khả năng tái tạo vật liệu, khả năng phân hủy sinh học

và dễ dàng biến tính bề mặt. Tuy nhiên, các phương pháp truyền thống tổng hợp các cấu trúc nanocellulose từ biomass thường nhiều bước, phức tạp, tốn thời gian, chi phí năng lượng cũng như sử dụng các hóa chất độc hại. Một số phương pháp điển hình như tiền xử lý kiềm với NaOH [5], thủy phân bằng axit mạnh HCl hay H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> gây ô nhiễm môi trường [6], xử lý sinh học bằng các cellulase [7] cho hiệu suất không cao và đắt tiền, hay tiền xử lý oxy hóa sử dụng NaOCl, NaBr và TEMPO (2, 2, 6, 6-tetramethyl-1-piperidinyloxy) [8].

Sợi nano carboxyl cellulose (CCNFs) lần đầu tiên được tổng hợp thành công từ sợi đay và cỏ spinifex bằng phương pháp oxy hóa nitro sử dụng hỗn hợp HNO<sub>3</sub> và NaNO<sub>2</sub> vào năm 2017 [9]. Trong phương pháp này, thành phần lignin được khử thành các sản phẩm benzoquinon có thể được hòa tan bởi các loại oxit nitơ. Các thành phần hemicellulose được chia thành xylose và sản phẩm phụ khác bởi axit nitric [10]. Đặc biệt, ion nitroxonium (NO<sup>+</sup>) tấn công nhóm hydroxyl tại vị trí C6 của cellulose và tạo ra nhóm carboxyl [9]. Vì thế, sợi thu được có mang ion carboxylate (-COO<sup>-</sup>) trên bề mặt khác với đa số sợi nano cellulose truyền thống. So với các phương pháp truyền thống, phương pháp oxy hóa nitro đơn giản, một bước, mang lại hiệu quả cao, tiết kiệm hóa chất, thời gian và năng lượng. Một ưu điểm khác của quy trình này là nước thải sau khi tổng hợp có thể được trung hòa bằng bazơ để tạo ra muối giữa nitơ ứng dụng làm phân bón.

Nhóm carboxyl dễ dàng được biến tính thành dạng acid hoặc muối tùy vào mục đích sử dụng. Đặc biệt, nếu tồn tại ở dạng muối, nhóm này giúp phân tán các sợi trong nước nhờ vào lực tương tác tĩnh điện giữa các ion carboxylate. Thêm nữa, CCNFs có diện tích bề mặt rất lớn nên phù hợp ứng dụng làm màng lọc hoặc hấp phụ trong xử lý nước [11, 12]. Dựa vào đặc tính đó, Chengbo Zhan và các cộng sự [13] đã tổng hợp CCNFs từ vỏ trấu và ứng dụng thành công vật liệu này để loại bỏ kim loại nặng trong nước ô nhiễm như Pb (II), La (III).

PR Sharma và các cộng sự [14] đã sử dụng CCNFs để loại bỏ ion UO<sub>2</sub><sup>2+</sup> khỏi nước. Ngoài ra, Sunil K. Sharma và các cộng sự [15] đã nghiên cứu tích hợp các CCNFs được tổng hợp từ sợi đay vào mủ cao su thiên nhiên. Dạng ion -COO<sup>-</sup> trong vật liệu này đã giúp các sợi phân tán tốt trong nước làm tăng tương tác giữa mủ cao su và sợi nano, từ đó nâng cao độ bền cơ học của vật liệu này. Với những ưu điểm trên, nghiên cứu này đã sử dụng phương pháp oxy hóa nitro để tổng hợp CCNFs từ nguồn phụ phẩm dài sen và khảo sát các đặc trưng của vật liệu thu được.

## 2. Nội dung nghiên cứu

### 2.1. Quy trình tổng hợp CCNF từ phụ phẩm dài sen

Phụ phẩm dài sen được thu thập từ hồ sen ở thị xã Hồng Ngự, tỉnh Đồng Tháp. Nguyên liệu được phơi khô, cắt nhỏ, xay nhuyễn, rửa bằng nước cất, cồn và sấy ở 60°C cho tới khi khối lượng không đổi.

Quy trình tổng hợp CCNFs được tham khảo từ công trình nghiên cứu của Priyanka R. Sharma và các cộng sự [9]. Cân 1,00 g nguyên liệu khô vào bình cầu hai cổ, thêm vào 15,0 ml HNO<sub>3</sub> 65 wt%. Tiếp theo, 1,96 g NaNO<sub>2</sub> 99 wt% được thêm vào và khuấy từ liên tục. Phản ứng được thực hiện ở các nhiệt độ 40°C, 50°C, 60°C và 70°C. Sau 6 giờ phản ứng, 250 ml nước cất được đổ vào bình cầu và làm nguội. Sau khi thực hiện quá trình khử màu đầu tiên, hỗn hợp ethanol và nước (tỷ lệ thể tích 1: 2) được thêm vào sản phẩm rắn và khuấy bằng đũa thủy tinh.

Bước khử màu trên được lặp lại đến khi giá trị pH của huyền phù đạt trên 3,5. Để phân tán tốt các sợi nano trong nước bằng cách chuyển các nhóm -COOH thành -COO<sup>-</sup> mang điện tích âm, dung dịch NaHCO<sub>3</sub> 40 g/L được thêm vào hỗn hợp cho đến khi pH của huyền phù đạt khoảng 7,5. Huyền phù sau đó được đánh siêu âm để hỗ trợ CCNFs phân tán tốt trong nước. Các mẫu sản phẩm được ký hiệu là CCNFs-X với X (°C) là nhiệt độ tổng hợp.

### 2.2. Các phương pháp xác định đặc trưng

Cấu trúc tinh thể của CCNFs được phân tích bằng phương pháp nhiễu xạ tia X (XRD) trên

thiết bị Micrometrics ASAP 2020. Độ kết tinh  $x$  được tính theo phương pháp Segal [16], sử dụng chiều cao của mũi 200 ( $I_{200}$ ,  $2\theta = 22,7^\circ$ ) và mũi  $I_{am}$  ( $2\theta = 18^\circ$ ).  $I_{200}$  đại diện cho cả cấu trúc tinh thể và vô định hình trong khi  $I_{am}$  chỉ đại diện cho cấu trúc vô định hình.

$$x = (I_{200} - I_{am})/I_{200}$$

Ảnh kính hiển vi điện tử truyền qua (TEM) của CCNFs được chụp bằng máy JOEL JEM-1400 100kV. Quang phổ chuyển đổi hồng ngoại Fourier (FTIR) của nguyên liệu dài sen và sản phẩm được phân tích bằng máy quang phổ Tensor 27 (Bruker Optics, Đức). Thành phần nguyên tố được đánh giá bằng kính hiển vi JSM-7401F kết hợp phổ tán xạ năng lượng tia X (EDX) JED-2300.

Để định lượng hàm lượng carboxyl (khối lượng mol  $-COOH = 45,0$  g/mol) trong vật liệu, 0,500 g mẫu được cho vào dung dịch  $Ca(CH_3COO)_2$  2,00 wt% trong 30 phút. Hỗn hợp sau đó được chuẩn độ với V (lít) NaOH 0,100 N sử dụng vài giọt phenolphthalein làm chất chỉ thị. Hàm lượng carboxyl trong mẫu được tính bằng công thức sau:

Hàm lượng carboxyl (mmol/g)

$$= 0,100.V/0,500.1000$$

Hàm lượng carboxyl (wt%)

$$= 0,100.V.45,0/0,500.100\%$$

Các thí nghiệm chuẩn độ được thực hiện 3 lần và tính trung bình.

### 3. Kết quả và thảo luận

#### 3.1. Ảnh TEM

Hình 1 trình bày ảnh TEM của vật liệu CCNFs được tổng hợp ở những nhiệt độ khác nhau. Kết quả cho thấy, ở nhiệt độ tổng hợp  $40^\circ C$ , các sợi nano đã được hình thành mặc dù các bó sợi cellulose vẫn chưa được cắt nhỏ hoàn toàn. Như vậy, quá trình loại bỏ hemicellulose và lignin có thể vẫn chưa diễn ra hoàn toàn. Ở  $50^\circ C$ , các sợi nano có chiều dài ước chừng khoảng 200 nm đến 2  $\mu m$  và đường kính khoảng 20 nm đến 60 nm. Tương tự, ở  $60^\circ C$ , các sợi nano có kích thước ngắn hơn với chiều dài khoảng từ 200 nm đến 2  $\mu m$  và đường kính từ 10 nm đến 30 nm. Như vậy, khi nhiệt độ tăng lên dẫn đến phản ứng hóa học diễn ra nhanh hơn, đường kính sợi có xu hướng giảm xuống. Ở  $70^\circ C$ , hình thái của sản phẩm hầu

như không quan sát được rõ. Nhiệt độ cao có thể dẫn đến cellulose đã bị thủy phân mạnh và không thu được sợi nano như mong muốn.

CCNFs được tổng hợp từ sợi dây được công bố bởi Priyanka Sharma và các cộng sự có chiều dài từ 190 nm đến 370 nm và chiều rộng từ 4 nm đến 5 nm [9], với điều kiện tổng hợp là  $50^\circ C$  trong 12 h. Mặc dù CCNFs được tổng hợp trong nghiên cứu có kích thước lớn hơn, thời gian tổng hợp lại ngắn hơn dù ở cùng điều kiện nhiệt độ. Việc rút ngắn thời gian này giúp tiết kiệm được chi phí năng lượng. Ngoài ra, ảnh TEM cho thấy các sợi phân tán chứ không bị keo tụ. Kết quả này chứng tỏ sự hiện diện của các nhóm  $-COO^-$  đẩy nhau giúp vật liệu phân tán tốt hơn so với các sợi nano cellulose truyền thống (Hình 1).

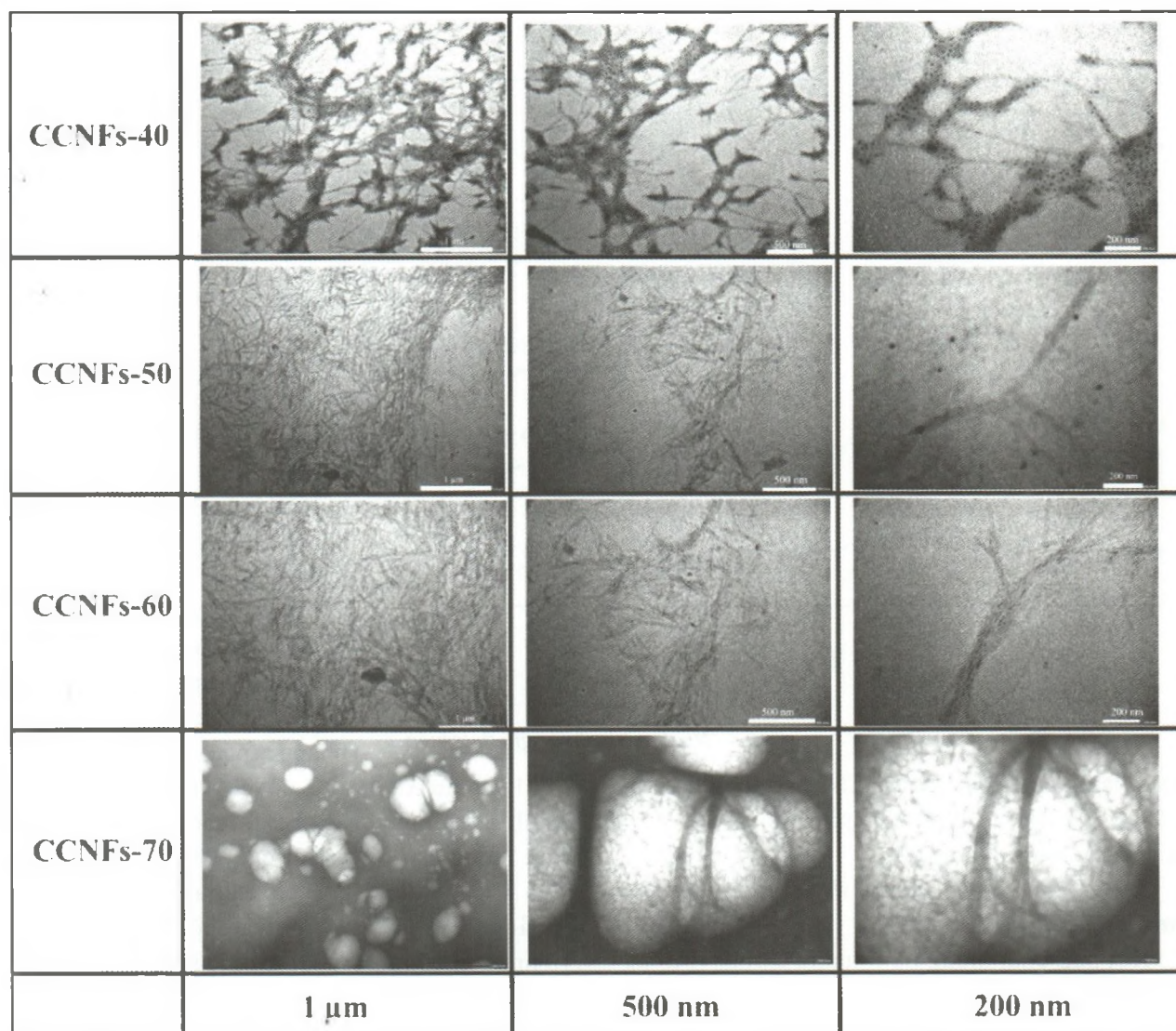
#### 3.2. Nhiễu xạ tia X

Nhiễu xạ tia X được đo đạc để xác định cấu trúc tinh thể của vật liệu (Hình 2). Nhìn chung, cả nguyên liệu và 3 mẫu CCNFs đều có các mũi đặc trưng tại  $2\theta = 16,5^\circ, 22,5^\circ, 33,8^\circ$ , tương ứng với các mặt tinh thể (1 1 0), (2 0 0), (0 0 4) của cellulose [17]. Tuy nhiên, các mũi đặc trưng của CCNFs cao hơn hẳn so với nguyên liệu, khi nhiệt độ càng tăng thì độ tinh thể càng cao (Bảng 1). Bản chất cellulose có độ tinh thể khá cao nhưng do nguyên liệu còn chứa hemicellulose, lignin là pha vô định hình nên sự trộn lẫn này làm cho độ tinh thể của nguyên liệu thấp. Khi nhiệt độ tăng thì pha vô định hình của hemicellulose và lignin có thể đã được loại bỏ đáng kể giúp cải thiện độ tinh thể của các mẫu.

#### 3.3. Phổ FTIR

Kết quả FTIR (Hình 3) cho thấy cả nguyên liệu và CCNFs-50 đều có những mũi đặc trưng của cellulose tại khoảng  $3316 - 3335$   $cm^{-1}$  của nhóm  $-OH$  và  $2903 - 2933$   $cm^{-1}$  của liên kết C-H. Tuy nhiên, các mũi  $1732$   $cm^{-1}$  của  $C=O$  của methyl ester trong hemicellulose,  $1635$   $cm^{-1}$  của liên kết  $C=C$  và  $1443$   $cm^{-1}$  của liên kết  $O-CH_3$  trong lignin không xuất hiện trong mẫu sản phẩm. Kết quả này chứng tỏ quá trình tổng hợp đã loại bỏ được phần lớn hemicellulose và lignin. Ngược lại, sự suy yếu của mũi liên kết  $-OH$  và sự xuất hiện mũi  $1611$   $cm^{-1}$  đặc trưng cho ion carboxylate  $-COO^-$  ở

Hình 1. Ảnh TEM của CCNFs được tổng hợp ở các nhiệt độ khác nhau



Nguồn: Nhóm tác giả thực hiện

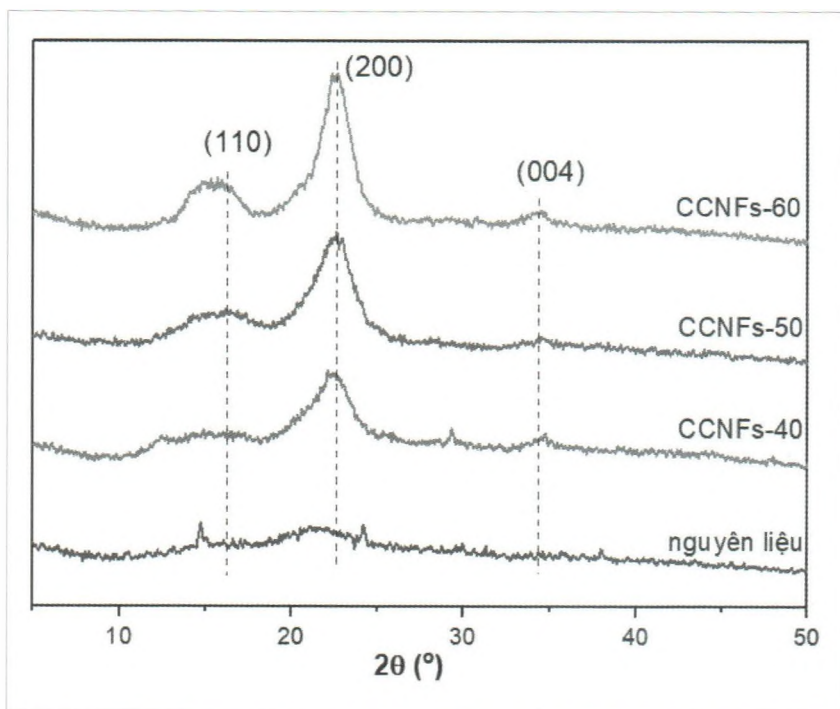
mẫu CCNFs-50 cho thấy nhóm  $-CH_2OH$  đã bị oxy hóa thành  $-COOH$ .

#### 3.4. Phổ tán xạ năng lượng tia X

Phổ EDX được sử dụng để xác định thành phần nguyên tố có trong mẫu nguyên liệu và mẫu sau khi xử lý ở điều kiện  $50^\circ C$  (Hình 4). Mẫu nguyên liệu trước khi xử lý chứa các nguyên tố chính C, O và lượng nhỏ các nguyên tố khoáng Mg, K, Ca, Cl. Zhang và các công sự [18] đã chứng minh sen là thực vật thân mềm sống trong môi trường nước nên thường hấp thụ những nguyên tố khoáng từ môi trường.

Mẫu sau khi xử lý có hàm lượng C giảm đáng kể, hàm lượng O tăng lên. Sự oxy hóa gốc  $-CH_2OH$  thành gốc  $-COO^-$  có thể là nguyên nhân chính làm tăng hàm lượng O trong CCNFs-50. Ngoài ra, hàm lượng O trong lignin thấp hơn trong cellulose, nên việc loại bỏ được phần lớn lignin và hemicellulose làm hàm lượng O trong mẫu CCNFs-50 tăng so với mẫu nguyên liệu. Các nguyên tố Mg, Ca, K, Cl không xuất hiện ở mẫu CCNFs, chứng tỏ quá trình rửa mẫu đã loại hết những ion này và có thể cả  $NaNO_2$  dư sau khi tổng hợp. Đặc biệt, sự xuất hiện của nguyên tố Na với

Hình 2. XRD của nguyên liệu, CCNFs-40, CCNFs-50 và CCNFs-60



Nguồn: Nhóm tác giả thực hiện

hàm lượng cao trong mẫu CCNFs có thể do gốc -COONa đã được hình thành mà không phải muối tan  $\text{NaNO}_2$  hoặc  $\text{NaHCO}_3$ .

### 3.5. Hàm lượng carboxyl trong sợi nano carboxycellulose

Kết quả định lượng hàm lượng carboxyl trong CCNFs ở Bảng 1 cho thấy hàm lượng carboxyl tăng dần theo nhiệt độ phản ứng. Có thể giải thích khi nhiệt độ càng tăng thì tốc độ oxi hóa  $-\text{CH}_2\text{OH}$  thành  $-\text{COOH}$  tăng theo nên hàm lượng carboxyl

thu được càng nhiều. Ở nhiệt độ tương đối thấp  $40^\circ\text{C}$ , tốc độ oxi hóa nhóm  $-\text{CH}_2\text{OH}$  thành  $-\text{COOH}$  diễn ra tương đối chậm. Đến 50 và  $60^\circ\text{C}$  thì hàm lượng carboxyl chênh lệch không đáng kể, lần lượt là 4,99 và 5,21 mmol/g. Như vậy, phần lớn nhóm  $-\text{CH}_2\text{OH}$  đã được chuyển hóa ở nhiệt độ này. Việc chọn nhiệt độ  $50^\circ\text{C}$  làm điều kiện tổng hợp có thể tiết kiệm chi phí năng lượng cũng như ít khắc nghiệt hơn so với  $60^\circ\text{C}$ .

### 4. Kết luận

Sợi nano carboxycellulose đã được tổng hợp thành công từ phụ phẩm đài sen bằng phương pháp oxy hóa nitro. Các đặc trưng cấu trúc vật liệu được xác định bằng nhiều phương pháp như chụp ảnh

TEM, nhiễu xạ tia X, đo phổ FTIR, phân tích thành phần nguyên tố EDX, chuẩn độ xác định hàm lượng carboxyl. Kết quả TEM cho thấy các mẫu CCNFs thu được có chiều dài ước chừng khoảng 200 nm đến 2  $\mu\text{m}$  và đường kính khoảng 10 nm đến 60 nm. Ngoài ra, các sợi phân tán khá đều và không bị keo tụ.

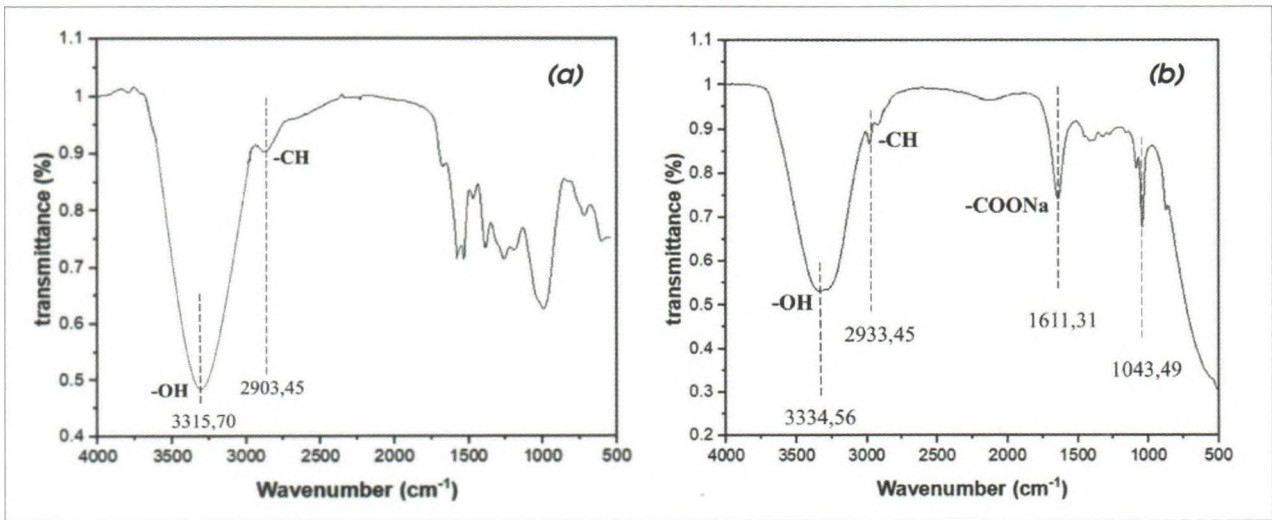
Kết quả nhiễu xạ tia X và phổ FTIR chứng minh đã loại bỏ được phần lớn hemicellulose, lignin và đặc biệt có nhóm carboxyl xuất hiện với

Bảng 1. Độ tinh thể và hàm lượng carboxyl của nguyên liệu đài sen và các sản phẩm CCNFs

Mẫu	Nhiệt độ ( $^\circ\text{C}$ )	Độ tinh thể (%)	Hàm lượng carboxyl	
			(mmol/g)	(wt%)
Nguyên liệu	-	20	0	0
CCNFs-40	40	55	$3,18 \pm 0,02$	$14,3 \pm 0,1$
CCNFs-50	50	57	$4,99 \pm 0,02$	$22,4 \pm 0,1$
CCNFs-60	60	72	$5,21 \pm 0,02$	$23,5 \pm 0,1$

Nguồn: Nhóm tác giả thực hiện

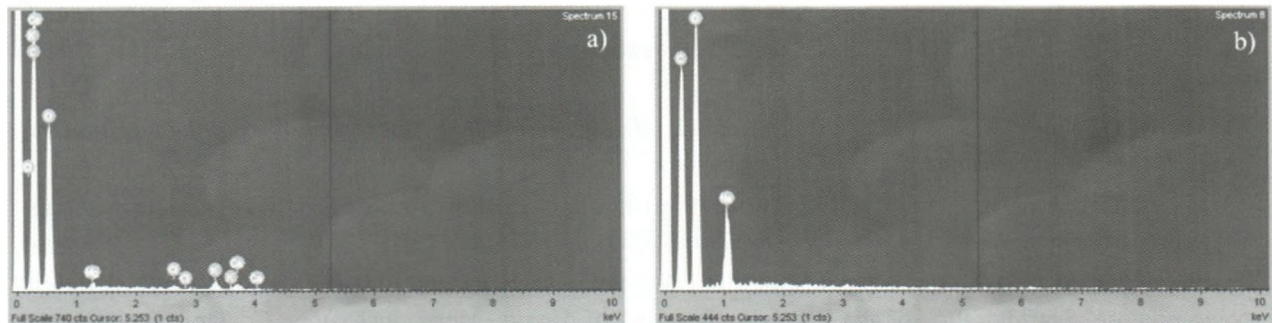
Hình 3. Phổ FTIR của (a) nguyên liệu và (b) CCNFs-50



Nguồn: Nhóm tác giả thực hiện

Hình 4. Phổ EDX và thành phần nguyên tố của (a) nguyên liệu dài sen và (b) CCNFs-50

Nguyên tố	C	O	Mg	Ca	K	Cl	Na
Nguyên liệu (%mol)	61,70	37,57	0,18	0,19	0,27	0,09	-
CCNFs-50 (%mol)	46,46	49,40	-	-	-	-	4,14



Nguồn: Nhóm tác giả thực hiện

hàm lượng khoảng 5,0 mmol/g (22 wt%). So với các phương pháp truyền thống nhiều bước phức tạp để tổng hợp các vật liệu cấu trúc nano cellulose từ biomass, phương pháp một bước trong

nghiên cứu này không chỉ giúp tiết kiệm thời gian, hóa chất và năng lượng, đồng thời tạo nhóm chức carboxyl mở ra nhiều ứng dụng cho công nghiệp và đời sống ■

**Lời cảm ơn:**

Nghiên cứu được tài trợ bởi Trường Đại học Bách khoa - Đại học Quốc gia Thành phố Hồ Chí Minh trong khuôn khổ đề tài mã số T-KTHH-2020-74. Chúng tôi xin cảm ơn Trường Đại học Bách khoa, Đại học Quốc gia Thành phố Hồ Chí Minh đã hỗ trợ thời gian và phương tiện vật chất cho nghiên cứu này.

## TÀI LIỆU THAM KHẢO:

1. Le. T.T.H. (2019). Sản xuất sen lấy củ - Hướng phát triển mới tại Việt Nam. Truy cập tại: <http://favri.org.vn/index.php/vi/tin-tuc-noi-bat/986-san-xuat-sen-lay-cu-huong-phat-trien-moi-tai-viet-nam>.
2. Tran, T.K.N., T.T.N. Le, H.S. Le, D.L. Tran, Q.V. Nguyen, T.M. Pham, and V.T. Le. (2020). Facile Synthesis of Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> Nanoparticles Loaded on Activated Carbon Developed from Lotus Seed Pods for Removal of Ni (II) Ions. *Journal of Nano Research*, 61,1-7.
3. Pu, J., W. Kong, C. Lu, and Z. Wang. (2015). Directly carbonized lotus seedpod shells as high-stable electrode material for supercapacitors. *Ionics*. 21(3), 809-816.
4. Chen, Y., Q. Wu, B. Huang, M. Huang, and X. Ai. (2015). Isolation and characteristics of cellulose and nanocellulose from lotus leaf stalk agro-wastes. *BioResources*, 10(1), 684-696.
5. Wang, B. and M. Sain. (2007). Dispersion of soybean stock-based nanofiber in a plastic matrix. *Polymer International*, 56(4), 538-546.
6. Mohanty, A.K., M. Misra, and L.T. Drzal. (2005). *Natural fibers, biopolymers, and biocomposites*. USA: CRC press.
7. Henriksson, M., G. Henriksson, L. Berglund, and T. Lindström. (2007). An environmentally friendly method for enzyme-assisted preparation of microfibrillated cellulose (MFC) nanofibers. *European Polymer Journal*, 43(8), 3434-3441.
8. Saito, T., Y. Nishiyama, J.-L. Putaux, M. Vignon, and A. Isogai. (2006). Homogeneous suspensions of individualized microfibrils from TEMPO-catalyzed oxidation of native cellulose. *Biomacromolecules*, 7(6), 1687-1691.
9. Sharma, P.R., R. Joshi, S.K. Sharma, and B.S. Hsiao. (2017). A simple approach to prepare carboxycellulose nanofibers from untreated biomass. *Biomacromolecules*, 18(8), 2333-2342.
10. Zhan, C., P.R. Sharma, L. Geng, S.K. Sharma, R. Wang, R. Joshi, and B.S. Hsiao. (2019). Structural characterization of carboxyl cellulose nanofibers extracted from underutilized sources. *Science China Technological Sciences*, 62(6), 971-981.
11. Ma, H., C. Burger, B.S. Hsiao, and B. Chu. (2012). *Highly permeable polymer membranes containing directed channels for water purification*. USA: ACS Publications.
12. Ma, H., C. Burger, B.S. Hsiao, and B. Chu. (2011). Ultra-fine cellulose nanofibers: new nano-scale materials for water purification. *Journal of Materials Chemistry*, 21(21), 7507-7510.
13. Zhan, C., P. Sharma, H. He, S. Sharma, A. McCauley-Pearl, R. Wang, and B. Hsiao. (2020). Rice Husk Based Nanocellulose Scaffold for Highly Efficient Removal of Heavy Metal Ions from Contaminated Water. *Environmental Science: Water Research & Technology*, 6, 3080-3090.
14. Sharma, P.R., S.K. Sharma, W. Borges, H. Chen, and B.S. Hsiao. (2020). *Remediation of UO<sub>2</sub><sup>2+</sup> from Water by Nitro-Oxidized Carboxycellulose Nanofibers: Performance and Mechanism*, in *Contaminants in Our Water: Identification and Remediation Methods*. USA: ACS Publications, 269-283.
15. Sharma, S.K., P.R. Sharma, S. Lin, H. Chen, K. Johnson. R. Wang, W. Borges, C. Zhan, and B.S. Hsiao. (2020). Reinforcement of Natural Rubber Latex Using Jute Carboxycellulose Nanofibers Extracted Using Nitro-Oxidation Method. *Nanomaterials*, 10(4), 706.
16. Thygesen, A., J. Oddershede, H. Lilholt, A.B. Thomsen, and K. Ståhl. (2005). On the determination of crystallinity and cellulose content in plant fibres. *Cellulose*, 12(6), 563.
17. Cheng, C., R. Guo, J. Lan, and S. Jiang. (2017). Extraction of lotus fibres from lotus stems under microwave irradiation. *Royal Society Open Science*, 4(9), 170747.
18. Zhang, Y., X. Lu, S. Zeng, X. Huang, Z. Guo, Y. Zheng, Y. Tian, and B. Zheng . (2015). Nutritional composition, physiological functions and processing of lotus (*Nelumbo nucifera* Gaertn.) seeds: a review. *Phytochemistry Reviews*, 14(3), 321-334.

Ngày nhận bài: 12/3/2022

Ngày phản biện đánh giá và sửa chữa: 18/4/2022

Ngày chấp nhận đăng bài: 14/5/2022

*Thông tin tác giả:*

1. TS. NGUYỄN VĂN DŨNG<sup>1,2\*</sup>

2. NGUYỄN NGỌC HÂN<sup>1,2</sup>

3. TS. TRẦN THUY TUYẾT MAI<sup>1,2</sup>

4. ThS. LÂM HOA HÙNG<sup>1,2</sup>

5. PGS.TS. NGUYỄN QUANG LONG<sup>1,2</sup>

6. TS. NGÔ TRẦN HOÀNG DƯƠNG<sup>1,2</sup>

<sup>1</sup>Khoa Kỹ thuật Hóa học, Trường Đại học Bách khoa

<sup>2</sup>Đại học Quốc gia Thành phố Hồ Chí Minh

## ONE-STEP PREPARATION OF CARBOXYL CELLULOSE NANOFIBERS FROM LOTUS SEEDPOD RESIDUE

● Ph.D. NGUYEN VAN DUNG<sup>1,2</sup>

● NGUYEN NGOC HAN<sup>1,2</sup>

● Ph.D. TRAN THUY TUYET MAI<sup>1,2</sup>

● Master. LAM HOA HUNG<sup>1,2</sup>

● Asocc. Ph.D. NGUYEN QUANG LONG<sup>1,2</sup>

● Ph.D. NGO TRAN HOANG DUONG<sup>1,2</sup>

<sup>1</sup>Faculty of Chemical Engineering, Ho Chi Minh City University of Technology

<sup>2</sup>Vietnam National University Ho Chi Minh City

### ABSTRACT:

Carboxyl cellulose nanofibers were directly prepared from lotus seedpod residue by the one-step nitro-oxidation method. Different methods including TEM images, SEM images, EDX spectroscopy, X-ray diffraction were used to analyze the characteristics of the obtained materials. TEM images show that the nanofibers were formed successfully with the width and the length of the nanofibers were around 40-60 nm and around 0.2-2  $\mu\text{m}$ , respectively. FTIR, EDX spectroscopies and titration proved that the presence of -COOH groups on the surface of the product with its amount of 5.0 mmol/g or 22 wt%. In negative form, these -COO<sup>-</sup> groups could support the uniform dispersion of the nanofibers in aqueous medium. Compared with conventional multiple-step processes, the current approach is simpler, less chemical use and less energy consumption. Overall, this study proposed an advanced route for facile preparation of carboxyl cellulose nanofibers from biomass for further applications.

**Keywords:** lotus seedpod, carboxyl cellulose nanofiber, nitro-oxidation.