

STUDY ON FABRICATION OF ZnO NANOMATERIALS BY ULTRASOUND-ASSISTED PRECIPITATION METHOD FOR PHOTOCATALYTIC DEGRADATION OF TARTRAZINE DYE IN WATER

Pham Huong Quynh¹, Dang Van Thanh^{2,3}, Nguyen Thi Thu Phuong¹, Ta Thi Huong¹, Tran Y Doan Trang¹, Pham Thi Thanh Yen¹, Pham Nguyet Anh⁴, Chu Tuong Mai⁴, Vu Thi Thuy^{2,5*}

¹Hanoi University of Industry, ²TNU - University of Medicine and Pharmacy

³VNU University of Science, Hanoi, ⁴Thuyloi University, ⁵TNU - University of Sciences

ARTICLE INFO		ABSTRACT
Received:	11/02/2025	In this research, we present the results of fabrication of ZnO (UZO) nanomaterials by ultrasound-assisted precipitation method for treatment of Tartrazine dye (Tar) in water. XRD and SEM results show that the obtained UZO material is in the form of nanoparticles with a size of 50-120 nm with hexagonal wurtzite ZnO structure and ultrasound plays an important role in crystal formation and affects the morphological properties of the fabricated materials. The photocatalytic ability of UZO was evaluated through the decomposition reaction of Tar dye in water with a treatment efficiency of 99.62% for an initial concentration of 20 ppm, 180 minutes using UVA light. The mechanism of Tar decomposition under illumination is explained as the light stimulation causes photoelectrons to be transferred to the conduction band from the valence band while positively charged holes formed in the valence band move to the material surface to participate in the pollutant oxidation-reduction reaction. The obtained results show the potential application of UZO in practice.
Revised:	28/3/2025	
Published:	03/4/2025	
KEYWORDS		
Photocatalytic		
Ultrasound		
Precipitation		
ZnO		
Tartrazine		

NGHIÊN CỨU CHẾ TẠO VẬT LIỆU NANO ZNO BẰNG PHƯƠNG PHÁP KẾT TỦA VỚI SỰ HỖ TRỢ CỦA SIÊU ÂM ỨNG DỤNG QUANG XÚC TÁC PHÂN HỦY THUỐC NHUỘM TARTRAZINE TRONG NƯỚC

Phạm Hương Quỳnh¹, Đặng Văn Thành^{2,3}, Nguyễn Thị Thu Phương¹, Tạ Thị Hương¹, Trần Ý Doan Trang¹, Phạm Thị Thanh Yên¹, Phạm Nguyệt Ánh⁴, Chu Tường Mai⁴, Vũ Thị Thúy^{2,5*}

¹Trường Đại học Công nghiệp Hà Nội, ²Trường Đại học Y - Dược - ĐH Thái Nguyên

³Trường Đại học Khoa học Tự nhiên - ĐH Quốc gia Hà Nội

⁴Trường Đại học Thủy lợi, ⁵Trường Đại học Khoa học - ĐH Thái Nguyên

THÔNG TIN BÀI BÁO		TÓM TẮT
Ngày nhận bài:	11/02/2025	Nghiên cứu này trình bày kết quả chế tạo vật liệu nano ZnO (UZO) bằng phương pháp kết tủa với sự hỗ trợ của siêu âm ứng dụng UZO quang xúc tác xử lý thuốc nhuộm Tartrazine (Tar) trong môi trường nước. Các kết quả phân tích XRD và SEM cho thấy vật liệu UZO thu được dạng hạt với kích thước cỡ 50-120 nm có cấu trúc lục giác wurtzite ZnO cho thấy sóng siêu âm đóng vai trò quan trọng trong sự hình thành tinh thể và tính chất của vật liệu. Ảnh hưởng của siêu âm giúp hình thành các hạt nano đồng đều, phân tán tốt, không tạo thành đám kết tụ. Khả năng quang xúc tác của vật liệu chế tạo được đánh giá qua phản ứng phân hủy thuốc nhuộm Tar trong môi trường nước. Kết quả cho thấy, hiệu suất xử lý Tar của UZO đạt 99,62% cho nồng độ đầu vào 20 ppm trong khoảng 180 phút sử dụng đèn UVA. Cơ chế phân hủy Tar dưới sự chiếu sáng được giải thích là do ánh sáng kích thích làm cho các electron quang được chuyển lên vùng dẫn từ vùng hóa trị trong khi lỗ trống mang điện dương được hình thành trong vùng hóa trị di chuyển ra bề mặt vật liệu tham gia vào phản ứng oxy hóa khử chất ô nhiễm. Kết quả nhận được cho thấy tiềm năng ứng dụng của UZO trong thực tiễn.
Ngày hoàn thiện:	28/3/2025	
Ngày đăng:	03/4/2025	
TỪ KHÓA		
Quang xúc tác		
Siêu âm		
Kết tủa		
ZnO		
Tartrazine		

DOI: <https://doi.org/10.34238/tnu-jst.12007>

* Corresponding author. Email: vuthithuy@tnmc.edu.vn

1. Giới thiệu

Quang xúc tác là một kỹ thuật hiệu quả xử lý các chất hữu cơ khó phân hủy trong nước vì hiệu quả xử lý nhanh, thân thiện với môi trường, có thể phân hủy các phân tử hữu cơ thành chất ít độc hại hơn [1], [2]. Do đó, các vật liệu khác nhau đã được nghiên cứu để sử dụng như WO_3 , TiO_2 , ZnO hoặc tổ hợp của chúng. Trong số các vật liệu đó, ZnO thường hay được lựa chọn sử dụng làm vật liệu xúc tác do đặc tính thân thiện với môi trường, độ ổn định cao, hiệu quả quang xúc tác tốt, giá thành chế tạo không quá cao và nguyên liệu đầu vào sẵn có [1], [3]. Lailatul Qomariyah và cộng sự đã chế tạo hạt nano ZnO ứng dụng trong quang xúc tác, có khả năng phân hủy tới 98% chất thải Batik công nghiệp chỉ trong 60 phút. Ngoài ra, các hạt nano ZnO cho thấy độ ổn định và hiệu suất tốt trong 3 chu kỳ tái sử dụng. Vì vậy, các phương pháp khác nhau đã được nghiên cứu để chế tạo ZnO ở kích thước nano ví dụ như: phương pháp thủy nhiệt, điện hóa, sol-gel và kết tủa hóa học [3]. Tuy nhiên, các phương pháp trên có hạn chế là sản phẩm yêu cầu xử lý nhiệt hoặc sử dụng thêm các chất hoạt động bề mặt, yêu cầu nghiêm ngặt về nhiệt độ áp suất để không chế điều kiện chế tạo. Việc tổng hợp ZnO cũng như một số vật liệu nano khác gặp trở ngại do hành vi keo tự nhiên của vật liệu, do đó làm giảm tính chất mong muốn. Do đó, rất cần thiết phát triển một phương pháp đơn giản để có thể chế tạo được ZnO cấu trúc nano ngay tại nhiệt độ phòng, phù hợp với các đơn vị còn hạn chế về cơ sở vật chất.

Tartrazine (E102), công thức phân tử hóa học $\text{C}_{16}\text{H}_9\text{N}_4\text{Na}_3\text{O}_9\text{S}_2$, là thuốc nhuộm azo tổng hợp giúp tạo màu vàng chanh cho các sản phẩm, chủ yếu là dùng trong lĩnh vực thực phẩm. Tartrazine có khả năng hòa tan tốt trong nước và chất béo do đó sự tồn tại của nó có thể gây ảnh hưởng bất lợi đến đời sống sinh vật và mĩ quan khi được thải vào môi trường sống. Do đó, nghiên cứu phát triển các phương pháp xử lý để loại bỏ thuốc nhuộm Tar từ nước thải cần được quan tâm để đảm bảo mục tiêu tiêu thụ và sản xuất bền vững. Vì vậy các kỹ thuật khác nhau đã được đề xuất để xử lý Tar trong nước như Fenoton [4], hấp phụ [5], xúc tác quang hóa [6], v.v. Ví dụ, nhóm nghiên cứu của Serena Fiorito đã sử dụng các chất hấp phụ rắn để loại bỏ Tar ra khỏi dung dịch nước [7]. Kết quả cho thấy nhiều chất đạt được hiệu quả tốt > 99% như Zn Al nitrat (99,9%), Zn Al clorua (99,9%), Mg Al nitrat (99,8%), v.v. Quá trình loại bỏ Tar bằng quang xúc tác cũng được thực hiện bởi Vinod K. Gupta và cộng sự với chất xúc tác là titan dioxide (TiO_2) [8]. Dưới ảnh hưởng của chất xúc tác và chiếu sáng UV, dung dịch Tar mất màu hoàn toàn cho thấy hiệu quả quang xúc tác tốt. Trong các phương pháp trên, thì quang xúc tác sử dụng các vật liệu cấu trúc nano thân thiện môi trường như TiO_2 , ZnO [7] thu hút được sự quan tâm rất nhiều của cộng đồng khoa học do hiệu quả xử lý cao, chi phí thấp và thực hiện đơn giản.

Quá trình siêu âm tạo ra sự hình thành, phát triển và vỡ của các bong bóng bên trong chất lỏng. Quá trình này tạo điều kiện trộn các chất hình thành trong lòng chất lỏng ở cấp độ vi mô, đồng thời ngăn ngừa sự kết tụ của các chất này. Trong nghiên cứu này, chúng tôi đề xuất một cách thức đơn giản để chế tạo ZnO ngay tại nhiệt độ phòng sử dụng phản ứng kết tủa với sự hỗ trợ của siêu âm ứng dụng quang xúc tác xử lý thuốc nhuộm Tar trong môi trường nước. Các hạt nano ZnO tổng hợp bằng phương pháp này được kỳ vọng có kích thước đồng nhất, khả năng hấp thụ ánh sáng hiệu quả, do vậy đưa đến hiệu quả phân hủy tốt đối với Tar so với mẫu ZnO được tổng hợp không siêu âm.

2. Phương pháp nghiên cứu

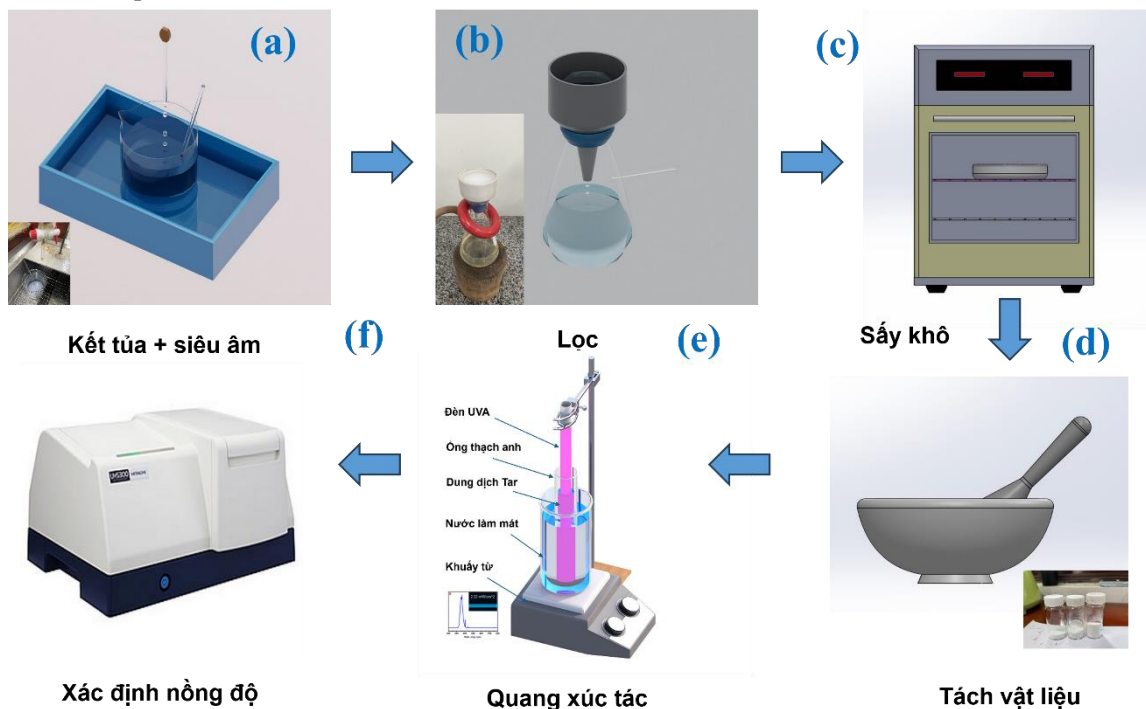
2.1. Dụng cụ và hóa chất

NaOH (Merk, Cas -No:1310- 73-2), $\text{Zn}(\text{NO}_3)_2$ (Merk, CAS-No: 19154-63-3). Thuốc nhuộm Tartrazine được mua từ Anh. Nước cất hai lần được cất từ máy Aquatron-A4000D tại phòng thí nghiệm.

2.2. Chế tạo vật liệu

Nhỏ từ từ NaOH (180 mL, 0,3 M) vào cốc chứa dung dịch $\text{Zn}(\text{NO}_3)_2$ (180 mL, 0,15 M) đồng thời với rung siêu âm trong vòng 180 phút. Sản phẩm thu được thông qua quá trình lọc hỗ trợ

bơm chân không. Sau đó được rửa sạch bằng nước cất 2 lần cho đến khi pH đạt trung tính. Sau đó mẫu được sấy khô ở 80°C trong 24h. Sản phẩm được kí hiệu UZO. Ảnh hưởng của tỷ lệ NaOH (180 mL, 0,3 M) + $\text{Zn}(\text{NO}_3)_2$ (180 ml, 0,075 M), NaOH (180 mL, 0,3 M) + $\text{Zn}(\text{NO}_3)_2$ (180 ml, 0,5 M) với cùng thời gian 180 phút đến tính chất vật liệu được khảo sát và vật liệu sau phản ứng được kí hiệu tương ứng lần lượt là UZO3, UZO2, UZO1. Vật liệu được làm với điều kiện NaOH (180 mL, 0,3 M) + $\text{Zn}(\text{NO}_3)_2$ (180 ml, 0,15 M) nhưng với thời gian 210 phút cũng được khảo sát với kí hiệu là UZO4. Để so sánh, vật liệu được làm tương tự NaOH (180 mL, 0,3 M) + $\text{Zn}(\text{NO}_3)_2$ (180 ml, 0,15 M) nhưng không có siêu âm được kí hiệu là ZO. Hình 1a,b,c,d là sơ đồ minh họa quá trình chế tạo vật liệu.



Hình 1. (a, b,c,d) Sơ đồ thí nghiệm, ảnh nhỏ là hình chụp khi làm việc
(e) mô hình thí nghiệm xử lý Tar trong nước, (f) máy UV-Vis xác định nồng độ Tar

2.3. Đặc trưng vật liệu

Hình thái học của vật liệu được xác định sử dụng phương pháp hiển vi điện tử quét (FESEM Hitachi 4800). Cấu trúc vật liệu sử dụng phương pháp nhiễu xạ tia X (XRD) (D2 PHASER Bruke).

2.4. Đánh giá khả năng quang xúc tác của vật liệu

Hoạt tính quang xúc tác của UZO được đánh giá bằng cách nghiên cứu sự phân hủy dung dịch Tartrazine dưới sự chiếu xạ tia UVA sử dụng hệ thí nghiệm ở Hình 1e. Tiến hành thí nghiệm như sau: Chuẩn bị dung dịch Tar (450 mL, 20 ppm). Dùng micropipet lấy ra 1,5 mL dung dịch cho vào lọ đựng màu tối để làm mẫu nồng độ ban đầu. Cân các khối lượng vật liệu cho vào cốc đong thủy tinh dung tích 500 mL có chứa 450 mL Tar trên, khuấy từ 60 phút trong bóng tối để đạt được cân bằng hấp phụ - giải hấp. Để hạn chế ảnh hưởng của ánh sáng bên ngoài, toàn bộ hệ thí nghiệm được đặt trong phòng tối. Đồng thời, bình phản ứng được làm mát xung quanh bằng nước sao cho nhiệt độ phản ứng luôn duy trì xung quanh 25°C . Sau đó dung dịch trên đồng thời được khuấy từ và chiếu bằng bức xạ của đèn UVA 8W trong thời gian 180 phút, với thời gian lấy mẫu lần lượt 30 ph, 60 ph, 90 ph, 120 ph, 180 phút, thể tích mỗi lần lấy là 1,5 mL, dung dịch lấy ra được ly tâm với tốc độ 6.000 v/ph trong 20 phút để lọc bỏ kết tủa, bảo quản trong lọ tối màu và đo phổ hấp thụ.

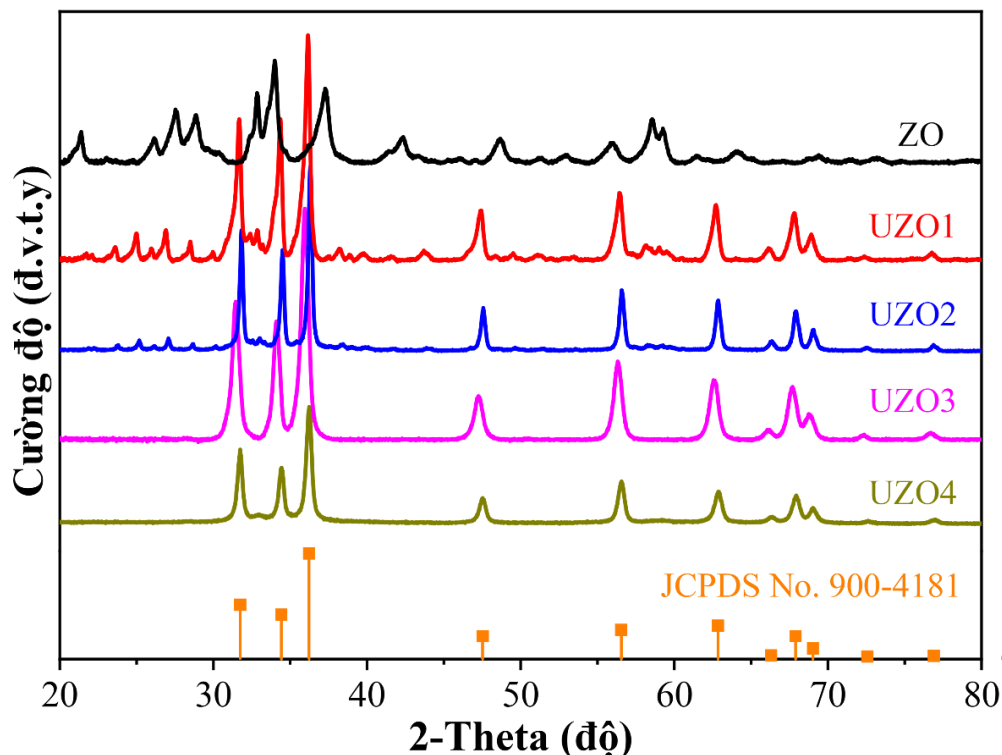
Hiệu suất phân hủy Tar được tính theo công thức sau:

$$H = \frac{C^0 - C_t}{C^0} \cdot 100 \quad (1)$$

Trong đó: C^0 : Nồng độ Tar tại thời điểm ban đầu $t = 0$; C_t : Nồng độ Tar tại thời điểm khảo sát.

Nồng độ Tar ban đầu và sau quá trình quang xúc tác được xác định bằng máy quang phổ hấp thụ phân tử (UV-Vis Hitachi UH5300) tại bước sóng $\lambda = 428$ nm theo phương pháp đường chuẩn.

3. Kết quả và bàn luận



Hình 2. Giản đồ nhiễu xạ tia X của mẫu UZ (màu đỏ) và Zn (màu đen)

Hình 2 là giản đồ nhiễu xạ tia X của các mẫu UZO4, UZO3, UZO2, UZO1 và ZO. Có thể thấy rõ trên giản đồ XRD của các mẫu UZO xuất hiện các đỉnh phổ đặc trưng 2θ tại 31,66, 34,39, 36,19, 47,55, 56,60, 62,82, 66,39, 67,87, 69,03, tương ứng với các mặt (100), (002), (101), (102), (110), (103), (200), (112), (201) của cấu trúc lục giác wurtzite của vật liệu ZnO [3]. Tuy nhiên, với các mẫu UZO1, UZO2 thời gian 180 phút vật liệu xuất hiện các pha khác liên hệ với sự dư của muối hoặc NaOH. Trong khi đó vật liệu UZO3 nhận được là đơn pha wurtzite của ZnO. Khi tăng thêm thời gian phản ứng vật liệu vẫn giữ được sự đơn pha nhưng cũng bắt đầu xuất hiện các pha ở giữa các đỉnh $2\theta \approx 32^\circ$ và $2\theta \approx 35^\circ$ liên hệ với sự dư của muối hoặc NaOH [9]. Trong khi đó với vật liệu ZO có cường độ thấp hơn, đỉnh phổ đặc trưng cho cấu trúc Zn(OH)_2 và xuất hiện nhiều các đỉnh nhỏ của các pha khác nhau. Điều này cho thấy sự hỗ trợ của sóng siêu âm đóng một vai trò quan trọng trong sự hình thành tinh thể và tác động lên đặc tính hình thái học của vật liệu chế tạo.

Kích thước tinh thể trung bình của vật liệu (D) có thể được tính toán bằng cách sử dụng phương trình Sherrer:

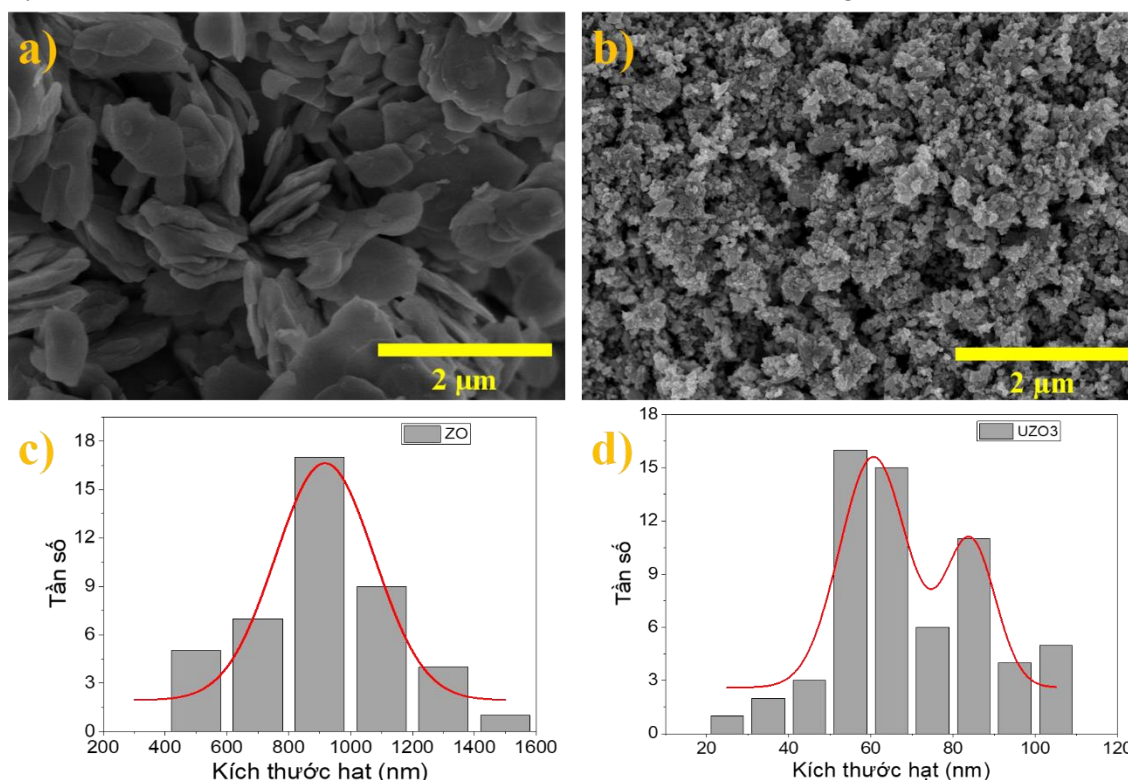
$$D = \frac{0,94\lambda}{\beta \cos \theta} \quad (2)$$

Trong đó, β là độ rộng bán phổ (độ rộng tối đa tại nửa cực đại – FWHM) phụ thuộc vào độ rộng của đỉnh (radian), λ là bước sóng tia X (1,5406 nm), θ là góc tán xạ (radian). Kích thước tinh thể được tính toán bằng cách sử dụng phương trình (2) và thể hiện trong Bảng 1.

Bảng 1. Kích thước tinh thể trung bình của các mẫu ZO, UZO

Tên mẫu	ZO	UZO1	UZO2	UZO3	UZO4
Kích thước tinh thể (nm)	9,71	14,82	18,56	29,05	20,67

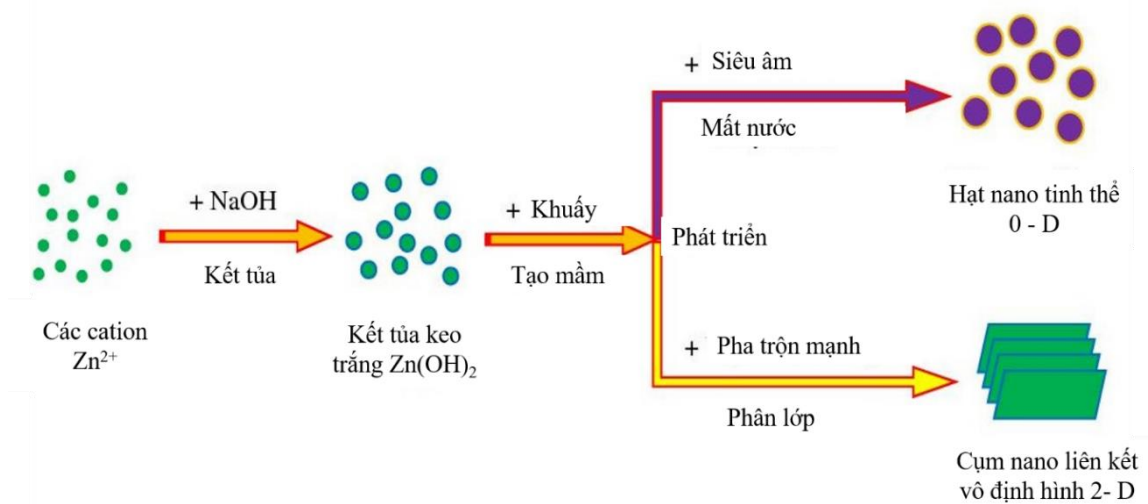
Kết quả tính toán kích thước tinh thể đối với mẫu ZO là 9,71 nm; trong khi đó với các mẫu UZO trong khoảng từ 14,82 nm đến 29,05 nm, lớn hơn khá nhiều so với các mẫu tổ hợp. Điều này gợi ý rằng quá trình siêu âm làm tăng kích thước của các tinh thể kẽm. Từ kết quả XRD cho thấy vật liệu UZO3 thu được là tối ưu. Do đó, UZO3 được lựa chọn để nghiên cứu thêm.



Hình 3. Ảnh SEM của mẫu ZO (a) và (b) UZO3; phân bố kích thước hạt của mẫu (c) ZO và (d) UZO3

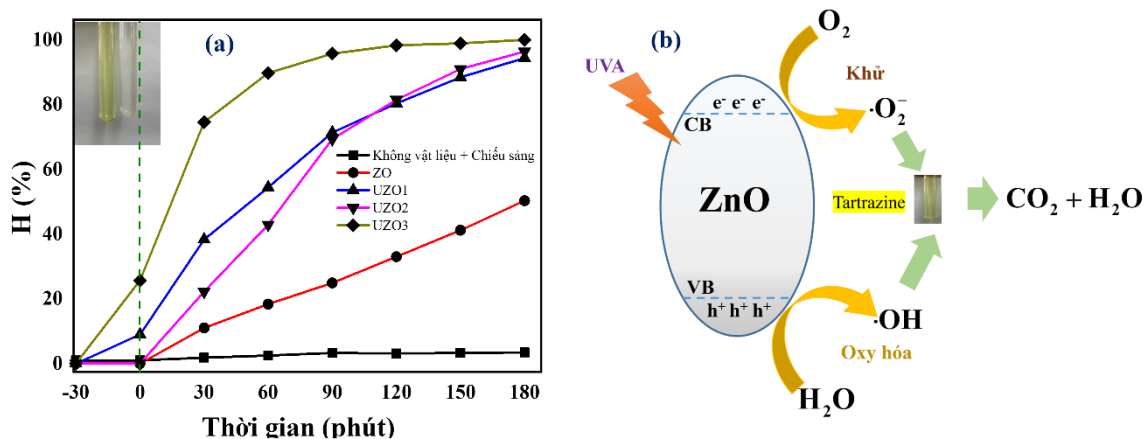
Hình 3 là kết quả SEM của các mẫu ZO và UZO3. Có thể thấy rằng đối với mẫu ZO kích thước hạt thu được nằm trong khoảng 400 – 1600 nm (Hình 3a, c), tuy nhiên với mẫu UZO3 trên Hình 3 (b,d) có siêu âm kích thước hạt giảm đi rất nhiều (~ 20 – 110 nm) cho thấy rằng quá trình siêu âm làm giảm mạnh kích thước của các hạt kết tủa. Các hạt nano UZO3 phân bố tương đối đồng đều, trong khi đó không có sự tác động của siêu âm thì vật liệu thu được (ZO) có dạng tấm hoặc đám kết tụ lại. Các phản ứng hóa học cho sự hình thành hạt nano ZnO có thể được đề xuất như sau: Kết tủa Zn(OH)_2 được tạo ra khi nhỏ dần dung dịch NaOH vào dung dịch $\text{Zn(NO}_3)_2$. Về mặt cấu trúc, ZnO bao gồm các nguyên tử Zn và O được nằm xen kẽ nhau trong các mặt phẳng (1 0 - 1 0) song song với trục c. Do đó, khi không có siêu âm, dưới sự khuấy các hạt Zn(OH)_2 sẽ phát triển theo hướng phẳng do sự trượt sinh ra từ quá trình chảy lớp dẫn đến sự hình thành các nano 2-D Zn(OH)_2 dạng cụm chứa các tấm liên kết với nhau. Để ngăn chặn sự kết tụ, các chất hoạt động bề mặt thường được sử dụng [10]. Khi dung dịch phản ứng được hỗ trợ bởi sóng siêu âm, các bọt khí được hình thành. Bên trong các bọt khí, khí có thể bị giãn nở và đạt đến nhiệt

độ cao ($\sim 5000\text{K}$) và áp suất cao ($\sim 1000\text{ atm}$) và sau đó sẽ “nổ” [11]-[13]. Trong quá trình bọt khí thoát ra ngoài, cùng với sự kết hợp của sóng siêu âm có thể đưa vào dung dịch phản ứng một nguồn năng lượng cao và tạo ra sự hỗn loạn trong dung dịch phản ứng, dẫn đến hạn chế sự kết tụ để tạo thành các hạt như chỉ ra ở Hình 4 minh họa các bước cho sự hình thành ZO và UZO [14].



Hình 4. Sơ đồ cho sự hình thành ZO và UZO [14]

Tiềm năng ứng dụng của vật liệu được thử nghiệm quang phân hủy Tar trong nước sử dụng vật liệu UZO3 làm chất xúc tác. Kết quả được chỉ ra trong Hình 5.



Hình 5. Hiệu quả quá trình quang phân hủy Tar theo thời gian sử dụng các vật liệu UZO3 làm chất xúc tác và (b) sơ đồ cơ chế phân hủy Tar

Hiệu suất phân hủy Tar của mẫu UZO3 là lớn nhất, đạt 99,62% trong thời gian 180 phút chiếu sáng. Các mẫu UZO1 và UZO2 đạt được hiệu suất phân hủy lần lượt là 94,3% và 96,4%, lớn hơn so với ZO chỉ đạt được 50,3%. Hiệu suất phân hủy Tar đối với trường hợp không có vật liệu đồng thời thời chiếu sáng chỉ đạt $\sim 5\%$. Có thể thấy rằng các vòng trong cấu trúc hóa học của Tar đã bị phá hủy trong trường hợp có chất xúc tác. Hiệu suất phân hủy được cải thiện đáng kể của các mẫu siêu âm UZO so với mẫu đối chứng ZO, gợi ý rằng quá trình siêu âm làm thay đổi cấu trúc, kích thước tinh thể,... do đó làm thay đổi hiệu suất quang xúc tác.

So sánh với một số bài báo trong thời gian gần đây, vật liệu UZO chế tạo bằng phương pháp kết tủa hỗ trợ siêu âm sử dụng phân hủy Tar đạt hiệu quả tốt ($> 99\%$). Ví dụ, hiệu suất phân hủy quang xúc tác của tartrazine khi có mặt ZnO đạt $\geq 98\%$ đã được thực hiện bởi nhóm nghiên cứu của D.Tassalit và cộng sự [15], $\sim 87\%$ thực hiện bởi A. Alcantara-Cobos và cộng sự [5].

Cơ chế phân hủy Tar dưới sự chiếu sáng được giải thích như sau: Dưới sự chiếu xạ của ánh sáng kích thích có năng lượng photon bằng hoặc lớn hơn độ rộng vùng cấm của bán dẫn ZnO, các electron quang được chuyển lên vùng dẫn (CB) từ vùng hóa trị (VB) trong khi lỗ trống mang điện dương được hình thành trong vùng hóa trị (Hình 5b) [2], [16]. Các electron và lỗ trống này di chuyển ra bề mặt vật liệu tham gia vào phản ứng oxy hóa khử chất ô nhiễm. Các lỗ trống quang trong vùng hóa trị tham gia phản ứng tạo thành gốc hydroxyl OH^* trong khi các electron trong vùng dẫn (CB) tham gia vào quá trình khử tạo gốc superoxit $\text{O}_2^{\bullet-}$. Các gốc hoạt động này sẽ oxy hóa các chất ô nhiễm bị hấp phụ trên bề mặt chất xúc tác tạo thành sản phẩm cuối cùng là CO_2 và H_2O [2].

4. Kết luận

Nghiên cứu đã chế tạo thành công vật liệu ZnO dạng hạt nano với thành phần pha wurtzite bằng phương pháp kết tủa với sự hỗ trợ của siêu âm. Ưu điểm của phương pháp tổng hợp này là đơn giản, dễ thực hiện, có thể chế tạo ZnO ngay tại nhiệt độ phòng. Khả năng quang xúc tác của vật liệu chế tạo được đánh giá qua phản ứng phân hủy thuốc nhuộm Tar trong nước với hiệu suất xử lý 99,62% cho nồng độ đầu 20 ppm, thời gian phản ứng 180 phút sử dụng đèn UVA. Ưu điểm của phương pháp là có thể chế tạo vật liệu ZnO cấu trúc nano ngay tại nhiệt độ phòng, không sử dụng chất hoạt động bề mặt để tránh kết tụ, quy trình và trang thiết bị đơn giản. Các kết quả thu được sẽ là cơ sở cho định hướng nghiên cứu nhằm ứng dụng trong việc xử lý nguồn nước bị ô nhiễm phẩm nhuộm. Tuy nhiên, cơ chế hình thành sản phẩm vẫn chưa được giải thích tường minh, các sản phẩm trung gian của quá trình phân hủy quang xúc tác cũng cần được đánh giá thêm.

Lời cảm ơn

Nghiên cứu này được tài trợ bởi đề tài HĐ 66-2024-RD/HĐ-ĐHCN.

TÀI LIỆU THAM KHẢO/ REFERENCES

- [1] P. Gnanamozhi, V. Renganathan, S.-M. Chen, V. Pandiyan, M. A. Arockiaraj, N. S. Alharbi, S. Kadaikunnan, J. M. Khaled, and K. F. Alanzi, "Influence of Nickel concentration on the photocatalytic dye degradation (methylene blue and reactive red 120) and antibacterial activity of ZnO nanoparticles," *Ceramics International*, vol. 46, pp. 18322-18330, 2020.
- [2] A. Houas, H. Lachheb, M. Ksibi, E. Elaloui, C. Guillard, and J.-M. Herrmann, "Photocatalytic degradation pathway of methylene blue in water," *Applied Catalysis B: Environmental*, vol. 31, pp. 145-157, 2001.
- [3] P. Gnanamozhi, G. Rajivgandhi, N. S. Alharbi, S. Kadaikunnan, J. M. Khaled, T. N. Almanaa, V. Pandiyan, and W.-J. Li, "Enhanced antibacterial and photocatalytic degradation of reactive red 120 using lead substituted ZnO nanoparticles prepared by ultrasonic-assisted co-precipitation method," *Ceramics International*, vol. 46, pp. 19593-19599, 2020.
- [4] T. D. Nguyen, T. D. Le, T. H. Nguyen, D. T. Vu, V. N. Le, and N. H. Nguyen, "A comprehensive study on the heterogeneous electro-Fenton degradation of tartrazine in water using CoFe_2O_4 /carbon felt cathode," *Chemosphere*, vol. 287, 2022, Art. no. 132141.
- [5] A. Alcantara-Cobos, E. Gutiérrez-Segura, M. Solache-Ríos, A. Amaya-Chávez, and D. A. Solís-Casados, "Tartrazine removal by ZnO nanoparticles and a zeolite-ZnO nanoparticles composite and the phytotoxicity of ZnO nanoparticles," *Microporous and Mesoporous Materials*, vol. 302, 2020, Art. no. 110212.
- [6] J. Liu, H. Yao, K. Zhang, S. Xue, D. Fang, H. Zhang, Y. Zhang, Z. Zhang, and J. Wang, "In-situ immobilization of a novel fixed Z-scheme $\text{Ag}/\text{Ag}_2\text{S}/\text{Ag}/\text{SnO}_2$ photocatalytic system for pure hydrogen production and synchronous tartrazine degradation: Efficiency and mechanism insight," *Journal of Environmental Chemical Engineering*, vol. 13, 2025, Art. no. 115445.
- [7] S. Fiorito, F. Epifano, L. Palumbo, C. Colavecchio, M. Bastianini, F. Cardellini, R. Spogli, and S. Genovese, "Efficient removal of tartrazine from aqueous solutions by solid sorbents," *Separation and Purification Technology*, vol. 290, 2022, Art. no. 120910.

-
- [8] V. K. Gupta, R. Jain, A. Nayak, S. Agarwal, and M. Shrivastava, "Removal of the hazardous dye—Tartrazine by photodegradation on titanium dioxide surface," *Materials Science and Engineering: C*, vol. 31, pp. 1062-1067, 2011.
- [9] L. Wang and M. Muhammed, "Synthesis of zinc oxide nanoparticles with controlled morphology," *Journal of Materials Chemistry*, vol. 9, pp. 2871-2878, 1999.
- [10] K. D. Bhatte, D. N. Sawant, D. V. Pinjari, A. B. Pandit, and B. M. Bhanage, "One pot green synthesis of nano sized zinc oxide by sonochemical method," *Materials Letters*, vol. 77, pp. 93-95, 2012.
- [11] K. D. Bhatte, D. N. Sawant, R. A. Watile, and B. M. Bhanage, "A rapid, one step microwave assisted synthesis of nanosize zinc oxide," *Materials Letters*, vol. 69, pp. 66-68, 2012.
- [12] K. S. Suslick and G. J. Price, "Applications of ultrasound to materials chemistry," *Annual Review of Materials Science*, vol. 29, pp. 295-326, 1999.
- [13] R. Mahdavi and S. S. A. Talesh, "The effect of ultrasonic irradiation on the structure, morphology and photocatalytic performance of ZnO nanoparticles by sol-gel method," *Ultrasonics Sonochemistry*, vol. 39, pp. 504-510, 2017.
- [14] N. H. Nguyen, T. T. Vo, H. T. Nguyen, T. T. Nguyen, T. Q. Le, T. K. Tran, and V. T. Dang, "Facile one-step synthesis of zinc oxide nanoparticles by ultrasonic-assisted precipitation method and its application for H₂S adsorption in air," *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, vol. 132, pp. 99-103, 2019.
- [15] D. Tassalit, S. Lebouachera, S. Dechir, N. Chekir, O. Benhabiles, and F. Bentahar, "Comparison between TiO₂ and ZnO photocatalytic efficiency for the degradation of tartrazine contaminant in water," *International Journal of Education and Learning Systems 1*, vol. 1, pp. 357-364, 2016.
- [16] S. Adhikari, D. Sarkar, and G. Madras, "Synthesis and photocatalytic performance of quasi-fibrous ZnO," *RSC advances*, vol. 4, pp. 55807-55814, 2014.