

Chế tạo nanocomposite đồng/silica (Cu/SiO₂) để ứng dụng phòng trừ vi khuẩn *Ralstonia solanacearum* gây bệnh héo xanh

Trần Quốc Vinh^{1,2}, Bùi Thị Thu Thảo^{1,2}, Võ Thị Ngọc Hà³, Đặng Vinh Quang^{1,2}, Trần Công Khánh^{1,2,*}

TÓM TẮT

Bài báo trình bày việc tổng hợp nanocomposite đồng/silica (Cu/SiO₂) bằng phương pháp khử hoá học đơn giản với hợp chất khử sodium borohydride và chất ổn định polyvinylpyrrolidone ở nhiệt độ phòng. Tính chất hoá lý của Cu/SiO₂ được khảo sát thông qua các phương pháp phân tích như phổ hấp thụ tử ngoại–khả kiến, giản đồ nhiễu xạ tia X, phổ hồng ngoại biến đổi Fourier, hình ảnh hiển vi điện tử truyền qua và phổ tán sắc năng lượng tia X. Các kết quả phân tích chỉ ra rằng Cu/SiO₂ nanocomposite chứa các hạt nano đồng có kích thước trung bình là 6,78 nm, phân bố đều trong cấu trúc silica thông qua liên kết hóa học. Khả năng kháng khuẩn của Cu/SiO₂ được đánh giá qua thử nghiệm hoạt tính kháng vi khuẩn *Ralstonia solanacearum* gây bệnh héo xanh trên thực vật. Cu/SiO₂ có khả năng ức chế hoàn toàn sự phát triển của vi khuẩn *R. solanacearum* ở nồng độ 36 ppm, hiệu quả hơn gấp hai lần so với nano đồng. Các kết quả trên cho thấy nanocomposite Cu/SiO₂ có tiềm năng ứng dụng thực tế thay thế các loại thuốc hoá học truyền thống trong nông nghiệp.

Từ khoá: nanocomposit, đồng/silica, *Ralstonia solanacearum*, bệnh héo xanh

¹Khoa Khoa học và Công nghệ Vật liệu, Trường Đại học Khoa học Tự nhiên, TP. Hồ Chí Minh, Việt Nam

²Đại học Quốc Gia TP. Hồ Chí Minh, Việt Nam

³Khoa Nông học, Đại học Nông lâm Hồ Chí Minh, Việt Nam

Liên hệ

Trần Công Khánh, Khoa Khoa học và Công nghệ Vật liệu, Trường Đại học Khoa học Tự nhiên, TP. Hồ Chí Minh, Việt Nam

Đại học Quốc Gia TP. Hồ Chí Minh, Việt Nam

Email: tckhanh@hcmus.edu.vn

Lịch sử

- Ngày nhận: 19-11-2023
- Ngày chấp nhận: 19-6-2024
- Ngày đăng: 30-6-2024

DOI:

<https://doi.org/10.32508/stdjns.v8i2.1328>



Bản quyền

© ĐHQG TP.HCM. Đây là bài báo công bố mở được phát hành theo các điều khoản của the Creative Commons Attribution 4.0 International license.



MỞ ĐẦU

Vi khuẩn *Ralstonia solanacearum* (*R. solanacearum*) gây ra bệnh héo xanh trên các loại cây trồng quan trọng như nhóm cây họ Cà và hơn 450 loài cây trồng họ khác¹, phổ biến ở vùng nhiệt đới, cận nhiệt đới và một số vùng ôn đới². *R. solanacearum* là một trong những vi khuẩn gây thiệt hại lớn trên cây trồng và rất khó kiểm soát. Cụ thể, thiệt hại năng suất có thể lên đến 91% ở cà chua, 33–90% ở khoai tây, 10–30% ở cây thuốc lá, 80–100% trên cây chuối, và khoảng 20% trên cây lạc³. Kiểm soát bệnh héo xanh do vi khuẩn *R. solanacearum* gây ra bằng phương pháp vật lý, hóa học, sinh học đã được nghiên cứu trong nhiều thập kỷ qua. Trên thực tế, phương pháp sử dụng các thuốc bảo vệ thực vật hóa học là phổ biến nhất. Tuy nhiên, hiệu quả thu được chưa cao; thậm chí chúng còn gây ảnh hưởng xấu đến môi trường sinh thái, sức khỏe cộng đồng⁴. Cụ thể, hoạt chất thiabendazol có thể giảm tỷ lệ bệnh héo xanh xuống 50%. Còn hoạt chất streptomycin kết hợp với oxytetracycline làm giảm tỷ lệ bệnh héo xanh 46–57% với nồng độ 2% w/v trong điều kiện nhà lưới⁵. Bên cạnh đó, sử dụng clopicrin với liều lượng 300 kg/ha xử lý đất trước khi trồng lạc 10 ngày cho hiệu quả tốt trong việc phòng ngừa bệnh héo xanh. Ngoài ra, hoạt chất gốc đồng cũng được sử dụng trong quản lý bệnh héo xanh⁶. Tuy nhiên, việc lạm dụng các thuốc này, không theo liều lượng và liều dùng khuyến cáo của nhà sản xuất có thể gây tổn dư

một lượng thuốc khá cao trong các sản phẩm nông nghiệp và gây ra những vụ ngộ độc ảnh hưởng lớn đến sức khỏe con người³. Do đó trong thực tế sản xuất, phòng trị bệnh héo xanh do vi khuẩn *R. solanacearum* là vấn đề rất khó khăn.

Trong những năm gần đây, vật liệu nano được quan tâm nghiên cứu và phát triển với những ứng dụng tiềm năng trong đời sống nói chung⁷ và nông nghiệp nói riêng⁸. Trong đó, nano đồng được xem như một ứng viên tiềm năng cho nền nông nghiệp tương lai vì nguồn nguyên liệu lớn, giá thành rẻ, tổng hợp dễ dàng với nhiều phương pháp khác nhau như: phân huỷ nhiệt, khử hoá học, bức xạ, vi sóng, polyol,...^{9–13} và hiệu quả kháng khuẩn kháng nấm tuyệt vời. Nhóm tác giả Hương Thu Lương đã tổng hợp các hạt nano đồng (CuNPs) bằng phương pháp điện hoá sinh học, CuNPs cho thấy khả năng ức chế một nửa (IC₅₀) đối với *R. solanacearum* ở nồng độ 42 ppm¹⁴. Tuy nhiên, hạt nano đồng rất dễ bị oxi hoá ở điều kiện bảo quản thông thường, hệ quả là hoạt tính kháng khuẩn, nấm bị suy giảm. Để khắc phục nhược điểm đó, một số nhóm nghiên cứu đã khảo sát khả năng cố định các hạt nano đồng lên các chất mang như TiO₂, SiO₂, ZnO, graphene,... tạo ra vật liệu nanocomposite^{15–18}. Bên cạnh đó, các vật liệu nanocomposite còn cải thiện các tính chất khác của vật liệu như giảm kích thước hạt nano kim loại, giảm hiện tượng kết tụ và tăng khả năng kháng vi sinh vật. Trong các

Trích dẫn bài báo này: Vinh T Q, Thảo B T T, Hà V T N, Quang D V, Khánh T C. **Chế tạo nanocomposite đồng/silica (Cu/SiO₂) để ứng dụng phòng trừ vi khuẩn *Ralstonia solanacearum* gây bệnh héo xanh**. *Sci. Tech. Dev. J. - Nat. Sci.* 2024; 8(2):2947-2955.

chất mang đó, silica có thể được xem là một ứng viên tiềm năng phù hợp với ứng dụng trong nông nghiệp nhờ độ bền nhiệt tốt, độ bền hoá học của hệ cao, khả năng cung cấp dinh dưỡng silic và khả năng kháng các loại căng thẳng sinh học và phi sinh học cho cây trồng¹⁹⁻²¹. J. Peszke và cộng sự (2017) đã tổng hợp nanocomposite đồng/silica bằng phương pháp khử hóa học. Nanocomposite được thử nghiệm khả năng và có khả năng kháng vi sinh vật với các chủng nấm và khuẩn khác nhau như: nấm *Aspergillus niger* (DSM 1957), *Aspergillus terreus* (DSM 1958), *Scopulariopsis brevicaulis* (DSM 9122) và khuẩn *Escherichia coli* (DSM 1103), *Pseudomonas putida* G7 (DSM 4476), *Arthrobacter globiformis* (PCM 2134)²². Năm 2020, nhóm tác giả Nguyễn Thị Thanh Hải đã tổng hợp nanocomposite đồng/silica (Cu/SiO₂) bằng phương pháp hoá học với hợp chất khử là hydrazine hydrate (N₂H₄). Kết quả nghiên cứu cho thấy Cu/SiO₂ có khả năng kháng nấm tương đối tốt đối với *Pyricularia oryzae* và *Rhizoctonia solani*, gây bệnh đạo ôn và khô vằn trên cây lúa với hiệu lực kháng nấm tương ứng 79,05 và 76,71% ở nồng độ 100 ppm¹⁶. Tuy nhiên, cho đến nay chưa có công bố nghiên cứu để cập về khả năng ức chế của Cu/SiO₂ đối với vi khuẩn *R. solanacearum*. Do đó, việc mở rộng khảo sát khả năng kháng vi sinh vật đối với các loại nấm, vi khuẩn khác là rất cần thiết.

Bài báo trình bày việc tổng hợp Cu/SiO₂ bằng phương pháp khử hoá học đơn giản với hợp chất khử sodium borohydride và chất ổn định polyvinylpyrrolidone ở nhiệt độ phòng. Các đặc tính quang cũng như cấu trúc tinh thể, và hình thái học của nanocomposite đồng/silica được phân tích qua các phép đo như phổ hấp thụ tử ngoại–khả kiến, giản đồ nhiễu xạ tia X, hiển vi điện tử truyền qua. Đặc biệt, khả năng kháng khuẩn đối với vi khuẩn *R. solanacearum* gây bệnh héo xanh trên cây cà chua của vật liệu cũng được thực hiện.

VẬT LIỆU VÀ PHƯƠNG PHÁP

Hoá chất

Các hoá chất được sử dụng trong nghiên cứu này là: đồng acetate (C₄H₆CuO₄.H₂O, > 99,99%, Sigma-Aldrich), sodium borohydride (NaBH₄, > 98%, Sigma-Aldrich), ascorbic acid (C₆H₈O₆, > 99%, Sigma-Aldrich), polyvinylpyrrolidone ((C₆H₉NO)_n, Mw ~ 40 kDa, Fisher), D-glucose (C₆H₁₂O₆, > 99,5%, Sigma-Aldrich) và bột silica (SiO₂ > 99%, kích thước 3–8 mm, Công ty Cổ phần Công nghệ Nano BSB, Việt Nam), peptone (> 99,8%, Sigma-Aldrich), sucrose (C₁₂H₂₂O₁₁ > 99,5%, Sigma-Aldrich), magnesium sulfate heptahydrate (MgSO₄.7H₂O, > 99,5%, Sigma-Aldrich), potassium dihydrophosphate (K₂HPO₄, >

99,5%, Trung Quốc), agar (100%, Việt Nam). Nước cất có độ dẫn < 5 μS/cm được sử dụng trong các thực nghiệm.

Phương pháp tổng hợp

Nanocomposite Cu/SiO₂ được tổng hợp bằng phương pháp khử hóa học với chất ổn định polyvinylpyrrolidone (PVP), chất khử sodium borohydride (NaBH₄) và chất chống oxy hóa ascorbic acid (AA)²³. Cụ thể, dung dịch đồng acetate (0,015 M) được cho vào hệ phân tán silica (1000 mg/L). Sau đó, hỗn hợp muối đồng/silica được cho vào dung dịch PVP (3% w/v). Tiếp theo, dung dịch NaBH₄ (0,1 M) được nhỏ giọt vào dung dịch. Cuối cùng, dung dịch AA (1,4 M) được thêm vào dung dịch phản ứng. Màu của dung dịch phản ứng chuyển từ xanh lam sang nâu và cuối cùng là nâu đỏ. Nano đồng cũng được tổng hợp theo quy trình này không có sự tham gia phản ứng của SiO₂ để làm mẫu đối chứng trong khảo sát tính chất kháng khuẩn của Cu/SiO₂.

Phương pháp phân tích

Tính chất quang của vật liệu được xác định qua phổ hấp thụ tử ngoại–khả kiến (UV–Vis, UV-1800/SHIMADZU), tính chất tinh thể và thành phần pha được xác định bằng phương pháp nhiễu xạ tia X (XRD, D8 Advance-Bruker). Ngoài ra, kích thước tinh thể được tính thông qua công thức Scherrer (1) từ dữ liệu XRD:

$$D = \frac{0,9\lambda}{\beta \cos \theta} \quad (1)$$

trong đó: λ là bước sóng tia X của Cu K α (0,154 nm), β là độ bán rộng của đỉnh nhiễu xạ.

Phổ hồng ngoại biến đổi Fourier (FT-IR) được ghi nhận trên thiết bị Frontier/PerkinElmer với mục đích xác định các liên kết của mẫu. Hình thái và kích thước hạt nano kim loại được xác nhận thông qua phương pháp kính hiển vi điện tử truyền qua (TEM, JEM–2100Plus, JEOL), bên cạnh thành phần hoá học của vật liệu được xác định thông qua phổ tán sắc năng lượng tia X (EDS, Ultim Max TEM, JEOL).

Đánh giá hoạt tính kháng *Ralstonia solanacearum* của Cu/SiO₂

Khả năng kháng *Ralstonia solanacearum* của nano đồng và nanocomposite Cu/SiO₂ được đánh giá bằng phương pháp đục lỗ thạch và pha loãng dung dịch.

Môi trường PGA (200 g khoai tây, 20 g glucose, 15 g Agar cho 1 L) được hấp khử trùng ở 121°C trong 20 phút và rót vào đĩa petri để tạo mặt thạch, với thể tích 15 mL. Sau đó, dùng micropipet hút 100 μL dung

dịch vi khuẩn *R. solanacearum* cho vào đĩa môi trường đã đông cứng, dùng que trải đều vi khuẩn lên trên mặt thạch. Kế tiếp, đục một lỗ thạch ở trung tâm các đĩa petri. Cuối cùng, cho 20 μ L nước (đối chứng), dung dịch CuNPs hoặc Cu/SiO₂ cho vào lỗ thạch. Thí nghiệm đơn yếu tố được bố trí theo kiểu hoàn toàn ngẫu nhiên với 3 lần lặp lại, mỗi lần lặp lại là 3 đĩa petri. Các thao tác phải tiến hành trong điều kiện vô trùng. Ủ các đĩa petri này trong 24 giờ ở nhiệt độ 37 °C, đo đường kính vòng ức chế.

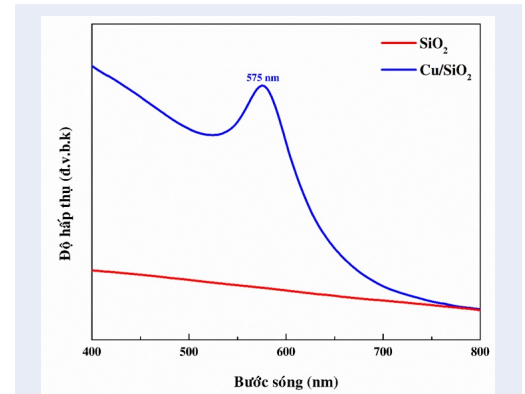
Để xác định MBC Cu/SiO₂ và CuNPs lần lượt được hòa tan trong môi trường SP (Sucrose–Peptone, 20 g/L sucrose; 5 g/L peptone; 0,25 g/L K₂HPO₄ và 0,25 g/L of MgSO₄.7H₂O) lỏng với các nồng độ khác nhau: 0, 18, 36 và 72 ppm. Sau đó chúng được phân tán bằng sóng siêu âm ở 35 kHz trong 30 phút. Cho 1,5 mL mỗi nồng độ pha loãng ở trên và 1,5 mL *R. solanacearum* 3×10^6 CFU/mL vào ống nghiệm 5 mL, đặt trên máy lắc ở 30 °C trong 24 giờ, ở ống nghiệm đối chứng âm không bổ sung *R. solanacearum*. Sau đó 0,1 mL dung dịch từ mỗi ống nghiệm được cấy vào môi trường thạch SPA (20 g/L sucrose; 5 g/L peptone; 0,25 g/L K₂HPO₄; 0,25 g/L MgSO₄.7H₂O và 15 g/L agar) và tiếp tục ủ ở 30°C trong 24 giờ. Mỗi nồng độ lặp lại 3 lần với 1 lần lặp lại là 1 đĩa petri và MBC là nồng độ thấp nhất của Cu/SiO₂ hoặc CuNPs không quan sát thấy hoặc quan sát thấy ít hơn 3 khuẩn lạc xuất hiện.

KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN

Tính chất vật liệu

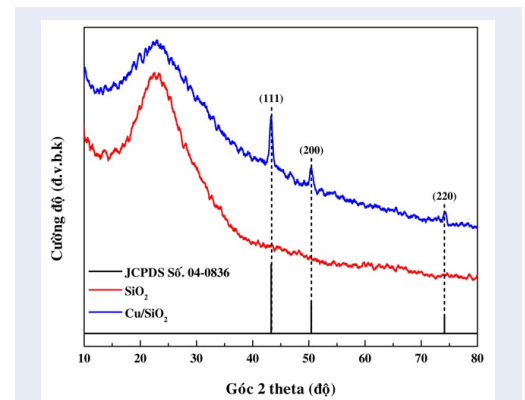
Hình 1 thể hiện phổ hấp thụ tử ngoại–khả kiến của silica và nanocomposite Cu/SiO₂. Mẫu Cu/SiO₂ cho đỉnh hấp thụ ở khoảng 575 nm ứng với dao động plasmon bề mặt của hạt nano đồng²⁴, trong khi đó mẫu đối chứng SiO₂ không thể hiện bất kỳ đỉnh hấp thụ nào trong khoảng bước sóng từ 400– 800 nm. Kết quả UV-Vis cho thấy có sự hình thành các hạt nano đồng trong nanocomposite Cu/SiO₂.

Kết quả giản đồ nhiễu xạ tia X của SiO₂ và nanocomposite Cu/SiO₂ được biểu hiện trên Hình 2. Đối với mẫu silica, chỉ có đỉnh nhiễu xạ rộng tập trung ở 15–30° đặc trưng cho silica vô định hình²⁵. Đối với mẫu Cu/SiO₂ bên cạnh vùng vô định hình của silica, còn có xuất hiện các đỉnh nhiễu xạ mới tại các góc nhiễu xạ 2θ lần lượt là 43,24° ; 50,42° và 74,24° tương ứng với các mặt mạng (111), (200) và (220) đặc trưng cho cấu trúc lập phương tâm mặt của kim loại đồng và phù hợp với giản đồ chuẩn của đồng số 04-0836²⁶. Kích thước tinh thể trung bình của CuNPs được tính thông qua công thức Scherrer (1) bằng 4,52 nm. Mặc khác, giản đồ XRD không xuất hiện các đỉnh nhiễu xạ



Hình 1: Phổ hấp thụ UV-Vis của SiO₂ và nanocomposite Cu/SiO₂.

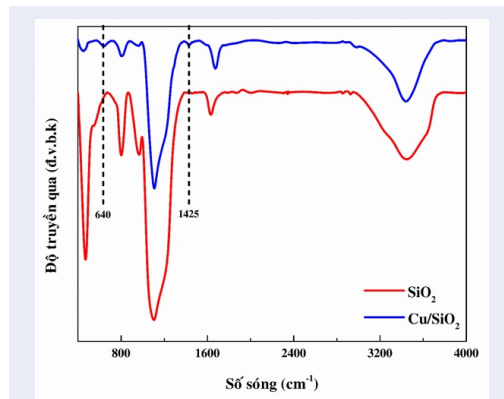
đặc trưng của Cu₂O, CuO hay Cu(OH)₂ chứng tỏ chỉ có kim loại đồng được hình thành sau quá trình tổng hợp. Kết quả cho thấy rằng có sự hình thành nano đồng ở dạng tinh thể trên bề mặt silica, tạo thành cấu trúc nanocomposite Cu/SiO₂²⁷.



Hình 2: Giản đồ nhiễu xạ tia X của SiO₂ và nanocomposite Cu/SiO₂.

Để xác định các liên kết trong silica và nanocomposite, phổ FT-IR được xử dụng và kết quả được thể hiện trong Hình 3 và Bảng 1. Kết quả FT-IR cho thấy đỉnh phổ rộng ở vị trí số sóng khoảng 3440 cm⁻¹ đặc trưng cho dao động kéo dãn của nhóm hydroxyl (-OH) trong SiO₂²⁸. Đỉnh phổ ở vị trí 1636 cm⁻¹ đặc trưng cho dao động biến dạng của OH của nước hấp phụ trên silica²⁸. Dao động bất đối xứng và đối xứng của liên kết Si–O–Si được đặc trưng bởi đỉnh phổ 1102; 802 và 470 cm⁻¹, một đỉnh phổ có cường độ yếu ở số sóng 965 cm⁻¹ đặc trưng cho dao động của nhóm silanol (Si–OH)^{29–31}. Trên phổ của nanocomposite Cu/SiO₂ ngoài những đỉnh của SiO₂ còn sự xuất hiện

các đỉnh phổ ở các vị trí số sóng 640 và 1425 cm^{-1} đặc trưng cho dao động của liên kết Cu–O²². Ngoài ra, đỉnh phổ ở 447 và 802 cm^{-1} của nhóm silanol bị suy giảm đáng kể, chứng tỏ có sự thủy phân thành SiO^- và liên kết với Cu^+ để hình thành liên kết Cu–O. Kết quả FT-IR đã chứng minh nano đồng đã có hình thành liên kết hóa học với silica thông qua liên kết giữ Cu và O trong SiO_2 , tạo ra cấu trúc composite bền vững.



Hình 3: Phổ FT-IR mẫu SiO_2 (đỏ) và Cu/SiO_2 (xanh)

Kết quả kính hiển vi điện tử truyền qua, được thể hiện trong Hình 4a, cho thấy các hạt nano đồng phân bố đều trên bề mặt và bên trong cấu trúc chất nền silica. Các hạt nano kim loại có dạng hình cầu hoặc gần cầu với kích thước 4–10 nm (trung bình là 6,78 nm) (Hình 4b). Kết quả kích thước hạt ở đây phù hợp với kích thước tinh thể trung bình được tính toán từ XRD. Hình 4c thể hiện kết quả EDS của mẫu nanocomposite cho thấy trong mẫu tồn tại các nguyên tố O; Si và Cu với tỷ lệ phần trăm nguyên tử tương ứng là 69,8; 26,4 và 3,8%.

Hoạt tính kháng *R. solanacearum*

Hiệu quả kháng khuẩn đối với vi khuẩn *R. Solanacearum* gây bệnh héo xanh của nanocomposite Cu/SiO_2 được đánh giá thông qua phương pháp đục lỗ thạch và pha loãng dung dịch để tìm ra nồng độ diệt khuẩn tối thiểu (MBC). Mẫu CuNPs được tổng hợp với cùng quy trình để sử dụng làm đối chứng dương. Tác dụng kháng khuẩn ở dạng vùng ức chế được đánh giá bằng phương pháp khuếch tán giếng thạch của CuNPs và nanocomposit Cu/SiO_2 được thể hiện trên Hình 5.

Đường kính vùng ức chế *R. Solanacearum* của nanocomposite Cu/SiO_2 là $19,8 \pm 0,1$ mm, lớn hơn so với CuNPs $14,4 \pm 0,2$ mm. Đối với phương pháp pha loãng dung dịch, khi tăng nồng độ CuNPs và

Cu/SiO_2 mật độ khuẩn giảm dần (Hình 6). Sự phát triển *R. solanacearum* hoàn toàn bị ức chế khi nồng độ của Cu/SiO_2 là 36 ppm, trong khi dung dịch CuNPs chỉ thể hiện tác dụng ức chế ở nồng độ 72 ppm. Kết quả thử nghiệm cho thấy hoạt tính kháng khuẩn *R. solanacearum* của Cu/SiO_2 cao gấp 2 lần so với mẫu đối chứng CuNPs. Khả năng kháng khuẩn *R. solanacearum* của Cu/SiO_2 so sánh với các hoạt chất khác được trình bày trong Bảng 2. Đánh giá kết quả thử nghiệm trong phòng thí nghiệm cho thấy: So với các hoạt chất thuốc bệnh hóa học thông thường và các loại nano khác, Cu/SiO_2 thể hiện khả năng ức chế tương đối tốt đối với vi khuẩn *R. solanacearum*. Như vậy, Cu/SiO_2 có tiềm năng để tiến hành tiếp các thử nghiệm khả năng kháng khuẩn *R. solanacearum* ở quy mô lớn hơn như trong nhà lưới hoặc ngoài đồng ruộng.

Khả năng kháng khuẩn của các hạt nano kim loại nói chung và nano đồng nói riêng có thể biểu thị qua bốn cơ chế chính gồm: cơ chế giải phóng ion, hình thành oxy hoạt hoá (ROS), tiếp xúc trực tiếp và sự kết hợp các cơ chế trên³⁷. Do đó, kích thước hạt và độ ổn định ảnh hưởng rất lớn đến khả năng kháng khuẩn của vật liệu³⁸. Từ đó có thể giải thích hiệu quả kháng khuẩn của nanocomposite cao hơn hạt nano đồng đơn thuần vì khi CuNPs được cố định lên trên silica làm tăng tính ổn định dẫn đến kéo dài hiệu quả sử dụng³⁹. Bên cạnh đó, khi các hạt nano đồng được cố định lên SiO_2 dẫn đến kích thước hạt nhỏ, giảm hiện tượng kết tụ⁴⁰.

KẾT LUẬN

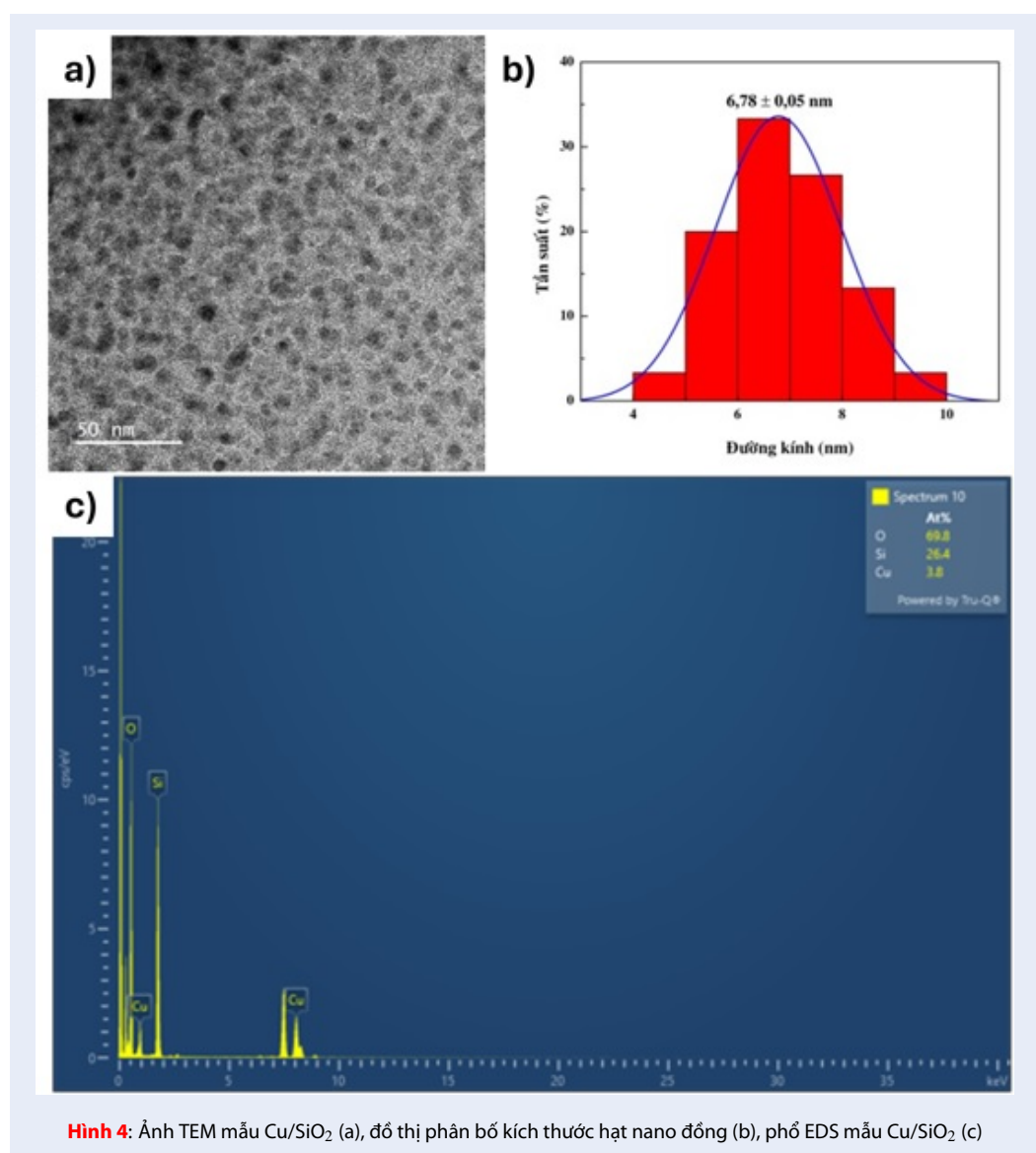
Nanocomposite đồng/silica được tổng hợp thành công bằng phương pháp khử hoá học. Các hạt nano đồng được phân bố đều trên bề mặt và trong cấu trúc silica với kích thước < 10 nm và kích thước hạt trung bình là 6,78 nm. Đồng thời các hạt nano đồng không những hấp phụ lên silica mà còn hình thành liên kết hoá học bền, giúp hệ vật liệu trở nên ổn định hơn. Bên cạnh đó, Cu/SiO_2 có khả năng ức chế hoàn toàn sự phát triển của khuẩn *R. solanacearum* gây bệnh héo xanh ở nồng độ 36 ppm, hiệu quả hơn gấp 2 lần so với nano đồng được tổng hợp theo quy trình tương tự là 72 ppm, và tương đối tốt so với các hoạt chất thuốc bệnh hóa học thông thường và các loại nano khác. Từ các kết quả trên cho thấy nanocomposite Cu/SiO_2 có tiềm năng ứng dụng thực tế thay thế các loại thuốc hoá học truyền thống trong nông nghiệp.

DANH MỤC VIẾT TẮT

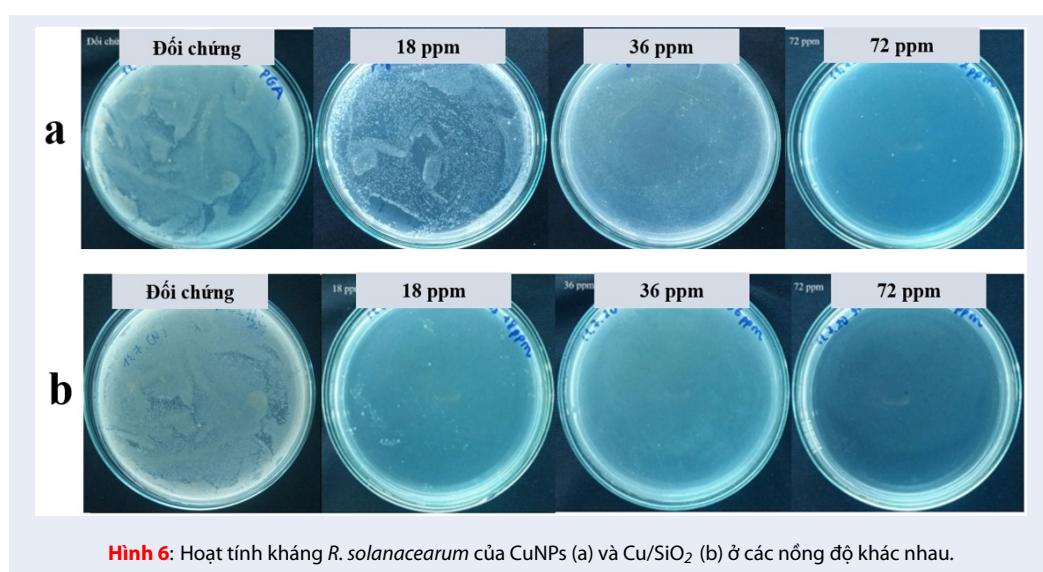
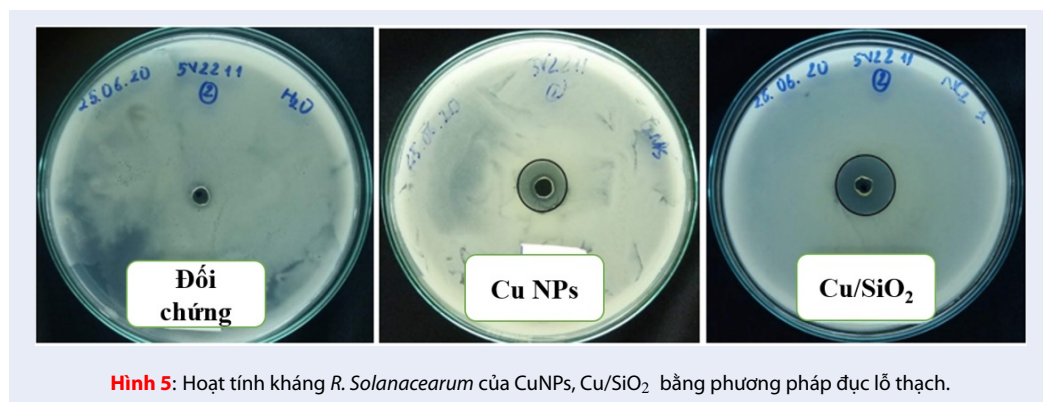
CuNPs: các hạt nano đồng
MBC: Minimum Bactericidal Concentration
MIC: Minimal inhibitory concentration

Bảng 1: Số sóng và các dao động đặc trưng trên phổ FT-IR trong mẫu SiO₂ và Cu/SiO₂

Số sóng (cm ⁻¹)	Dao động đặc trưng	
SiO ₂	Cu/SiO ₂	
3447	3440	Dao động kéo dài nhóm hydroxyl (O–H)
1636	1673	Dao động biến dạng nhóm hydroxyl (O–H)
	1425	Dao động Cu–O
1102	1108	Dao động kéo dài bất đối xứng Si–O–Si
965	962	Dao động kéo dài đối xứng Si–OH (SiO ₂) và Si–O–Cu (Cu/SiO ₂)
802	808	Dao động uốn Si–O–Si
	640	Dao động Cu–O
470	447	Dao động biến dạng Si–O–Si



Hình 4: Ảnh TEM mẫu Cu/SiO₂ (a), đồ thị phân bố kích thước hạt nano đồng (b), phổ EDS mẫu Cu/SiO₂ (c)



Bảng 2: Một số hoạt chất và nồng độ hiệu quả cho phòng trừ *R. solanacearum*

Tên hoạt chất	Nồng độ MIC/MBC (ppm)	Nồng độ hiệu quả tối đa một nửa (EC50, ppm)	Trích dẫn
Hạt nano MgO	200.0 (MIC)		32
Copper thiodiazole	125.0 (MIC)		32
Bismethiazol		60	33
Chloramphenicol		20	34
Streptomycin sulfate	3,9 (MIC)		35
Đồng hydroxide	200,0 (MIC)		36
CuNPs		42	14
Nanocomposite Cu/SiO ₂	36,0 (MBC)		Nghiên cứu này

UV-Vis: Ultraviolet-visible spectroscopy
 XRD: X-ray diffraction
 FT-IR: Fourier Transform Infrared Spectroscopy
 TEM: Transmission electron microscopy
 EDS: Energy-dispersive X-ray spectroscopy
 ROS: Reactive oxygen species
 IC₅₀: Half maximum inhibitory concentration
 EC₅₀: Half maximal effective concentration

XUNG ĐỘT LỢI ÍCH

Các tác giả tuyên bố rằng không có xung đột lợi ích.

ĐÓNG GÓP CỦA TÁC GIẢ

Nghiên cứu này được thiết kế bởi Trần Quốc Vinh và Trần Công Khánh. Trần Quốc Vinh, Bùi Thị Thu Thảo và Võ Thị Ngọc Hà thực nghiệm, thu thập số liệu và xử lý kết quả. Bản thảo được viết bởi Trần Quốc Vinh, Đặng Vinh Quang và Trần Công Khánh.

LỜI CẢM ƠN

Nghiên cứu được tài trợ bởi Đại học Quốc gia Thành phố Hồ Chí Minh (ĐHQG-HCM) trong khuôn khổ Đề tài mã số B2023-18-16.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

- Salgon S, Jourda C, Sauvage C, Daunay M-C, Reynaud B, Wicker E et al. Eggplant Resistance to the *Ralstonia solanacearum* Species Complex Involves Both Broad-Spectrum and Strain-Specific Quantitative Trait Loci. *Frontiers in Plant Science* 2017; 8. (accessed 16 Nov2023); PMID: 28580001. Available from: <https://doi.org/10.3389/fpls.2017.00828>.
- Kelman A. One Hundred and One Years of Research on Bacterial Wilt. In: Prior P, Allen C, Elphinstone J (eds). *Bacterial Wilt Disease: Molecular and Ecological Aspects*. Springer: Berlin, Heidelberg, 1998, pp 1-5; Available from: https://doi.org/10.1007/978-3-662-03592-4_1.
- Tadesse Demissie Y. Integrated Potato (*Solanum Tuberosum* L.) Late Blight (*Phytophthora Infestans*) Disease Management in Ethiopia. *AJBIO* 2019; 7: 123; Available from: <https://doi.org/10.11648/j.ajbio.20190706.16>.
- Kumar N, Kulsoom M, Shukla V, Kumar D, Priyanka, Kumar S et al. Profiling of heavy metal and pesticide residues in medicinal plants. *Environ Sci Pollut Res* 2018; 25: 29505-29510; PMID: 30136183. Available from: <https://doi.org/10.1007/s11356-018-2993-z>.
- Tâm HN, Phương TL, Thanh* LU. Hiệu quả phòng trị của một số nhóm hoạt chất kháng sinh và hóa học đối với vi khuẩn *Ralstonia solanacearum* gây bệnh héo xanh trên cây hoa Vụn thọ (*Tagetes papula* L.). 1 2022; 11: 80-87; Available from: <https://doi.org/10.52714/dthu.11.2.2022.942>.
- Trí H. Biện pháp quản lý bệnh héo xanh trên cây trồng họ cà và họ bầu bí dưa. (accessed 16 Nov2023); Available from: <https://www.hoptri.com/quy-trinh-giai-phap/cay-trong-khac-bien-phap-quan-ly-benh-heo-xanh-tren-cay-trong-ho-ca-va-ho-bau-bi-dua>.
- Abdullaeva Z. *Nanomaterials in Daily Life: Compounds, Synthesis, Processing and Commercialization*. Springer International Publishing: Cham, 2017; Available from: <https://doi.org/10.1007/978-3-319-57216-1>.
- Hạng ND, Mẫn NT, Hiệp NM, Phong NTH. Ứng dụng công nghệ nano trong nông nghiệp. *Tạp chí Khoa học và Công nghệ Việt Nam* 2018;.

- Allahverdi Ç. Synthesis of copper nano/microparticles via thermal decomposition and their conversion to copper oxide film. *Turk J Chem*; 47: 616-632; Available from: <https://doi.org/10.55730/1300-0527.3565>.
- Aguilar MS, Esparza R, Rosas G. Synthesis of Cu nanoparticles by chemical reduction method. *Transactions of Nonferrous Metals Society of China* 2019; 29: 1510-1515; Available from: [https://doi.org/10.1016/S1003-6326\(19\)65058-2](https://doi.org/10.1016/S1003-6326(19)65058-2).
- Ahmad SIB, Ahmad MdSBHJ, Radiman SB. A Study on Gamma Irradiation Synthesis of Copper Nanoparticles. *AIP Conference Proceedings* 2009; 1136: 186-190; Available from: <https://doi.org/10.1063/1.3160127>.
- Sreeju. N, Rufus A, Philip D. Microwave-assisted rapid synthesis of copper nanoparticles with exceptional stability and their multifaceted applications. *Journal of Molecular Liquids* 2016; 221: 1008-1021; Available from: <https://doi.org/10.1016/j.molliq.2016.06.080>.
- Gande VV, Pushpavanam S. Continuous synthesis of copper nanoparticles using a polyol process in a milli-channel reactor. *J Flow Chem* 2021; 11: 661-674; Available from: <https://doi.org/10.1007/s41981-021-00169-y>.
- Luong HT, Nguyen CX, Lam TT, Nguyen T-H, Dang Q-L, Lee J-H et al. Antibacterial effect of copper nanoparticles produced in a *Shewanella*-supported non-external circuit bioelectrical system on bacterial plant pathogens. *RSC Adv* 2022; 12: 4428-4436;.
- Rosenbaum J, Versace DL, Abbad-Andalousi S, Pires R, Azevedo C, Cénédesse P et al. Antibacterial properties of nanostructured Cu-TiO₂ surfaces for dental implants. *Biomater Sci* 2017; 5: 455-462;.
- Thanh Hai NT, My Phuong TN, Luong NV, Toan DK, Hoa TT, Thu Thuy NT. Synthesis and in vitro antifungal efficacy of copper-silica nanocomposites against pathogenic fungi of rice. *NST* 2020; 36; Available from: <https://doi.org/10.25073/2588-1140/vnunst.5056>.
- Medina-Ramírez IE, Arzate-Cardenas MA, Mojarro-Olmos A, Romo-López MA. Synthesis, characterization, toxicological and antibacterial activity evaluation of Cu@ZnO nanocomposites. *Ceramics International* 2019; 45: 17476-17488; Available from: <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2019.05.309>.
- Li Y, Yang D, Cui J. Graphene oxide loaded with copper oxide nanoparticles as an antibacterial agent against *Pseudomonas syringae* pv. tomato. *RSC Adv* 2017; 7: 38853-38860; Available from: <https://doi.org/10.1039/C7RA05520J>.
- Vandevenne F, Struyf E, Clymans W, Meire P. Agricultural silica harvest: have humans created a new loop in the global silica cycle? *Frontiers in Ecology and the Environment* 2012; 10: 243-248; Available from: <https://doi.org/10.1890/110046>.
- Silica - The Overlooked Element That Is Essential For Soil And Plant Health. *AgSolutions*. 2022; Available from: <https://agsolutions.com.au/silica/>.
- Currie HA, Perry CC. Silica in Plants: Biological, biochemical and chemical studies. *Annals of Botany* 2007; 100: 1383-1389;.
- Peszke J, Dulski M, Nowak A, Balin K, Zubko M, Sułowicz S et al. Unique properties of silver and copper silica-based nanocomposites as antimicrobial agents. *RSC Adv* 2017; 7: 28092-28104; Available from: <https://doi.org/10.1039/C7RA00720E>.
- Rajesh KM, Ajitha B, Ashok Kumar Reddy Y, Suneetha Y, Sreedhara Reddy P. Synthesis of copper nanoparticles and role of pH on particle size control. *Materials Today: Proceedings* 2016; 3: 1985-1991; Available from: <https://doi.org/10.1016/j.matpr.2016.04.100>.
- Pham N-D, Duong M-M, Le M-V, Hoang HA, Pham L-K-O. Preparation and characterization of antifungal colloidal copper nanoparticles and their antifungal activity against *Fusarium oxysporum* and *Phytophthora capsici*. *Comptes Rendus Chimie* 2019; 22: 786-793; Available from: <https://doi.org/10.1016/j.crci.2019.10.007>.
- Li J, Li X, Zheng Y, Zhan L, Tian Q, Liu X. New underfill material based on copper nanoparticles coated with silica for high

- thermally conductive and electrically insulating epoxy composites. *Journal of Materials Science* 2019; 54; Available from: <https://doi.org/10.1007/s10853-019-03335-9>.
26. Kobayashi Y, Sakuraba T. Silica-coating of metallic copper nanoparticles in aqueous solution. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects* 2008; 317: 756-759; Available from: <https://doi.org/10.1016/j.colsurfa.2007.11.009>.
 27. Zhang N, Gao Y, Zhang H, Feng X, Cai H, Liu Y. Preparation and characterization of core-shell structure of SiO₂@Cu antibacterial agent. *Colloids and Surfaces B: Biointerfaces* 2010; 81: 537-543; PMID: 20729042. Available from: <https://doi.org/10.1016/j.colsurfb.2010.07.054>.
 28. Sahoo DP, Patnaik S, Rath D, Nanda B, Parida K. Cu@CuO promoted g-C₃N₄/MCM-41: an efficient photocatalyst with tunable valence transition for visible light induced hydrogen generation. *RSC Adv* 2016; 6: 112602-112613; Available from: <https://doi.org/10.1039/C6RA24358D>.
 29. Araghi M, Ghahari M, Shafiee Afarani M. Synthesis and investigation of antimicrobial properties of SiO₂@Cu rods with core-shell structure. *Journal of Environmental Chemical Engineering* 2017; 5: 1780-1790; Available from: <https://doi.org/10.1016/j.jece.2017.03.012>.
 30. Tran TN, Pham TVA, Le MLP, Nguyen TPT, Tran VM. Synthesis of amorphous silica and sulfonic acid functionalized silica used as reinforced phase for polymer electrolyte membrane. *Adv Nat Sci: Nanosci Nanotechnol* 2013; 4: 045007; Available from: <https://doi.org/10.1088/2043-6262/4/4/045007>.
 31. Musić S, Filipović-Vinceković N, Sekovanić L. Precipitation of amorphous SiO₂ particles and their properties. *Braz J Chem Eng* 2011; 28: 89-94; Available from: <https://doi.org/10.1590/S0104-66322011000100011>.
 32. Cai L, Chen J, Liu Z, Wang H, Yang H, Ding W. Magnesium oxide nanoparticles: effective agricultural antibacterial agent against *Ralstonia solanacearum*. *Front Microbiol* 2018; 9: 790; Available from: <https://doi.org/10.3389/fmicb.2018.00790>.
 33. Li P, Shi L, Gao M-N, Yang X, Xue W, Jin L-H et al. Antibacterial activities against rice bacterial leaf blight and tomato bacterial wilt of 2-mercapto-5-substituted-1,3,4-oxadiazole/thiadiazole derivatives. *Bioorganic & Medicinal Chemistry Letters* 2015; 25: 481-484; Available from: <https://doi.org/10.1016/j.bmcl.2014.12.038>.
 34. Kumar LS, Prasad KS, Revanasiddappa HD. Synthesis, characterization, antioxidant, antimicrobial, DNA binding and cleavage studies of mononuclear Cu(II) and Co(II) complexes of 3-hydroxy-N'-(2-hydroxybenzylidene)-2-naphthohydrazide. *European Journal of Chemistry* 2011; 2: 394-403; Available from: <https://doi.org/10.5155/eurjchem.2.3.394-403.232>.
 35. Wattana-Amorn P, Charoenwongsa W, Williams C, Crump MP, Apichaisataienchote B. Antibacterial activity of cyclo(L-Pro-L-Tyr) and cyclo(D-Pro-L-Tyr) from *Streptomyces* sp. strain 22-4 against phytopathogenic bacteria. *Natural Product Research* 2016; 30: 1980-1983; PMID: 26469746. Available from: <https://doi.org/10.1080/14786419.2015.1095747>.
 36. Lee Y-H, Choi C-W, Kim S-H, Yun J-G, Chang S-W, Kim Y-S et al. Chemical pesticides and plant essential oils for disease control of tomato bacterial wilt. *The Plant Pathology Journal* 2012; 28: 32-39; Available from: <https://doi.org/10.5423/PPJ.OA.10.2011.0200>.
 37. Fan X, Yahia L, Sacher E. Antimicrobial properties of the Ag, Cu nanoparticle system. *Biology* 2021; 10: 137; PMID: 33578705. Available from: <https://doi.org/10.3390/biology10020137>.
 38. Ma X, Zhou S, Xu X, Du Q. Copper-containing nanoparticles: Mechanism of antimicrobial effect and application in dentistry-a narrative review. *Front Surg* 2022; 9: 905892; PMID: 35990090. Available from: <https://doi.org/10.3389/fsurg.2022.905892>.
 39. Ermini ML, Voliani V. Antimicrobial nano-agents: The copper age. *ACS Nano* 2021; 15: 6008-6029; PMID: 33792292. Available from: <https://doi.org/10.1021/acsnano.0c10756>.
 40. Xiong L, Yu H, Nie C, Xiao Y, Zeng Q, Wang G et al. Size-controlled synthesis of Cu₂O nanoparticles: size effect on antibacterial activity and application as a photocatalyst for highly efficient H₂O₂ evolution. *RSC Adv* 2017; 7: 51822-51830; Available from: <https://doi.org/10.1039/C7RA10605J>.

Synthesis of copper/silica nanocomposite for application in preventing *Ralstonia solanacearum* bacteria causing the wilt disease

Quoc Vinh Tran^{1,2}, Thi Thu Thao Bui^{1,2}, Thi Ngoc Ha Vo³, Vinh Quang Dang^{1,2}, Cong Khanh Tran^{1,2,*}

ABSTRACT

This paper presented the synthesis at room temperature of copper/silica (Cu/SiO₂) nanocomposite by the chemical reduction method with sodium borohydride as a reducing agent and polyvinylpyrrolidone as a stabilizer. The physicochemical properties of Cu/SiO₂ were studied through ultraviolet–visible absorption spectrum, X-ray diffraction pattern, Fourier transform infrared spectrum, transmission electron microscope and energy-dispersive X-ray spectrum. Analytical results indicated that Cu/SiO₂ contained copper nanoparticles with an average size of 6.78 nm, evenly distributed in the silica structure through chemical bonds. The antibacterial activity of Cu/SiO₂ was evaluated by testing its activity against *Ralstonia solanacearum* bacteria that caused the wilt disease in plants. Cu/SiO₂ could completely inhibit the growth of *R. solanacearum* bacteria at a concentration of 36 ppm, two times more effective than copper nanoparticles. The results showed that Cu/SiO₂ nanocomposites would be potential for practical applications to replace traditional chemical pesticides in agriculture.

Key words: nanocomposites, copper/silica, *Ralstonia solanacearum*, bacterial wilt

¹Faculty of Materials Science and Technology, University of Science, Ho Chi Minh City, Vietnam

²Viet Nam National University Ho Chi Minh City, Ho Chi Minh City, Vietnam

³Faculty of Agronomy, Nong Lam University, Ho Chi Minh City, Vietnam

Correspondence

Cong Khanh Tran, Faculty of Materials Science and Technology, University of Science, Ho Chi Minh City, Vietnam

Viet Nam National University Ho Chi Minh City, Ho Chi Minh City, Vietnam

Email: tckhanh@hcmus.edu.vn

History

- Received: 19-11-2023
- Accepted: 19-6-2024
- Published Online: 39-6-2024

DOI : <https://doi.org/10.32508/stdjns.v8i2.1328>



Copyright

© VNUHCM Press. This is an open-access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution 4.0 International license.



Cite this article : Tran Q V, Bui T T T, Vo T N H, Dang V Q, Tran C K. **Synthesis of copper/silica nanocomposite for application in preventing *Ralstonia solanacearum* bacteria causing the wilt disease** . *Sci. Tech. Dev. J. - Nat. Sci.* 2024, 8(2):2947-2955.