

AEROGEL TỪ XƠ DỪA - ỨNG DỤNG LÀM SẠCH DẦU

● NGUYỄN LÊ ĐĂNG PHƯƠNG - HUỲNH ANH DUY - LÊ THỊ THANH VÂN

TÓM TẮT:

Ô nhiễm nước do dầu mỡ luôn gây ra các tổn hại nghiêm trọng đến môi trường sinh thái và sức khỏe con người. Aerogel từ xơ dừa có khả năng phân hủy sinh học, được tổng hợp bằng cách sử dụng chất liên kết polyvinyl alcohol (PVA) và phương pháp sấy đông khô. Loại aerogel thân thiện với môi trường này có mật độ thấp (0.0575 g/cm^3), độ xốp cao (96.24 %). Tính chất kỵ nước và khả năng hấp phụ dầu tối đa đạt (20.2 g/g) sau khi các mẫu aerogel được phủ bằng methytrimethoxysilane (MTMS). Kết quả nghiên cứu này cho thấy, việc ứng dụng aerogel trong việc xử lý dầu mỡ là hoàn toàn khả thi.

Từ khóa: cellulose aerogel, hấp phụ dầu, polyvinyl alcohol, sấy đông khô, xơ dừa.

1. Đặt vấn đề

Nước thải nhiễm dầu mỡ có khả năng ngấm vào đất hoặc bị cuốn theo nước mưa vào các tầng nước ngầm làm cho nước có mùi hôi, ảnh hưởng đến nguồn nước sinh hoạt và sức khỏe con người. Một số vật liệu đã được nghiên cứu để loại bỏ dầu khỏi nước và một xu hướng mới nổi trong những năm gần đây là aerogel (Doshi et. al., 2018). Do mật độ thấp, độ xốp cao, không độc hại, tương thích sinh học và khả năng phân hủy sinh học (Nguyen et. al., 2022), aerogel thể hiện là vật liệu tiềm năng trong xúc tác, loại bỏ chất ô nhiễm, cách nhiệt, y sinh và nhiều lĩnh vực khác (Liu et. al., 2021). Aerogel có thể được điều chế từ nhiều nguồn khác nhau bao gồm silica, carbon, graphene, cellulose,... Trong đó, cellulose aerogel đã thu hút được sự chú ý đáng kể như một loại vật liệu thân thiện với môi trường và tiết kiệm chi phí (Leng et. al., 2021).

Xơ dừa là một loại phụ phẩm nông nghiệp

có giá trị kinh tế thấp, với hàm lượng cellulose $23\div 44\%$, hemicellulose $3\div 12\%$ và lignin $35\div 54\%$ (Maher et. al., 2008). Vật liệu này là ứng cử viên tiềm năng để chuyển đổi thành cellulose aerogel có giá trị kinh tế cao để xử lý vấn đề ô nhiễm dầu mỡ trong nước thải. Kết quả nghiên cứu của (Thai et. al., 2020) cho thấy, cellulose aerogel từ bã mía có khả năng hấp phụ dầu lên đến 25 (g/g) . Tương tự, các kết quả nghiên cứu của Nguyen et. al. (2013) và Vo et. al. (2022) cũng cho thấy, khả năng hấp thu dầu thô của cellulose aerogel từ giấy thải và rơm rạ lần lượt đạt 24 và 21.7 (g/g) . Điều này cho thấy, cellulose aerogel là vật liệu đầy tiềm năng để xử lý vấn đề ô nhiễm dầu.

2. Nguyên vật liệu và phương pháp

2.1. Nguyên vật liệu

Xơ dừa được thu gom từ xe chở dừa. Các hóa chất được sử dụng bao gồm polyvinyl alcohol, methytrimethoxysilane, hydro peroxide, natri hydroxide, ure và ethanol (xuất xứ Trung Quốc).

2.2. Phương pháp tổng hợp cellulose aerogel từ xơ dừa

Cellulose aerogel từ xơ dừa được tổng hợp bằng phương pháp NaOH-ure (Fauziyah et. al., 2019) gồm 2 giai đoạn:

Xử lý sơ bộ: đầu tiên, xơ dừa được xé sợi, cắt thành từng đoạn 1÷2 cm và nghiền mịn thành bột. Kích thước bột xơ dừa được kiểm soát bằng sàng lắc phòng thí nghiệm (BK-TS200, Biobase, Trung Quốc). Bột xơ dừa có kích thước 0.25mm phản ứng với dung dịch NaOH (6% wt) với tỷ lệ 1:20 ở 90°C trong 4h để phá vỡ liên kết lignocellulose. Tiếp theo, mẫu được tẩy trắng bằng H₂O₂ (10% wt) với tỷ lệ 1:5 ở 60°C trong 10 giờ. Hỗn hợp được rửa sạch bằng nước cất đến pH trung tính và sấy khô ở 70°C trong 24 giờ thu được bột xơ dừa khô (được lưu trữ để làm tiền chất tổng hợp cellulose aerogel).

Tổng hợp cellulose aerogel: bột xơ dừa khô (sau khi xử lý sơ bộ) được trộn với dung dịch NaOH-ure (gồm NaOH 3.8 % wt, urê 1.5% wt) theo tỉ lệ 1:10, rồi tiến hành siêu âm trong 30 phút. Hỗn hợp được đặt trong tủ lạnh trong 24 giờ ở nhiệt độ -18°C để tạo gel. Sau đó, mẫu gel được rửa đông ở nhiệt độ phòng và ngâm trong ethanol (98% wt) theo tỉ lệ 1:2 để tiến hành quá trình đông tụ. Sau khi đông tụ, gel được ngâm trong nước khử khoáng để trao đổi ethanol với nước theo tỉ lệ 1:1. Nước khử khoáng được thay định kỳ mỗi giờ cho đến khi dung dịch không còn ethanol. Điều này được biểu thị bằng sự thay đổi màu của nước từ màu vàng nâu sang không màu và không có mùi ethanol. Sau đó, mẫu được bổ sung dung dịch PVA (1% wt) và tiến hành siêu âm đồng nhất hỗn hợp trong 15 phút. Aerogel được hình thành bằng cách sấy đông khô hỗn hợp trong 72 giờ bằng máy đông khô phòng thí nghiệm (BK-FD10S, Biobase, Trung Quốc).

2.3. Lớp phủ kỵ nước của aerogel từ xơ dừa

Aerogel từ xơ dừa ưa nước do các nhóm hydroxyl trên bề mặt. Lớp phủ MTMS giúp cải thiện tính kỵ nước mà không làm ảnh hưởng đến độ xốp của vật liệu (Feng và cộng sự, 2015). Các mẫu aerogel vào hộp chứa MTMS đã mở nắp bên trong. Hộp được đậy kín và đặt trong tủ sấy ở 80°C trong 8

giờ. Cuối cùng, các mẫu được đặt trong điều kiện chân không để loại bỏ MTMS dư thừa.

2.4. Phương pháp phân tích

2.4.1. Phương pháp xác định khối lượng riêng

Khối lượng riêng (ρ , g/cm³) của aerogel (Nguyen và cộng sự, 2022) được xác định theo công thức:

$$\rho = \frac{m}{V} = \frac{m}{\frac{\pi D^2}{4} \times H}$$

Trong đó:

m là khối lượng mẫu aerogel (g), D là đường kính khối mẫu (cm), H là chiều cao khối mẫu (cm).

2.4.2. Phương pháp xác định độ xốp

Độ xốp (p , %) của aerogel (Thai et. al., 2020) được xác định theo công thức:

$$p(\%) = \left(1 - \frac{\rho}{\rho_s}\right) \times 100$$

Trong đó: ρ_s là khối lượng riêng của cellulose (1.528 g/cm³)

2.4.3. Phương pháp định khả năng hấp phụ dầu

Khả năng hấp phụ dầu tối đa (Q , g/g) (Feng và cộng sự, 2015) được tính theo công thức:

$$Q = \frac{m^2 - m^1}{m^1}$$

Trong đó: m^1 là trọng lượng khô của mẫu aerogel trước khi hấp phụ dầu (g), m^2 là trọng lượng của mẫu aerogel sau khi hấp phụ dầu (g).

2.4.4. Phương pháp phân tích, xử lý số liệu và đánh giá kết quả

Các số liệu phân tích được xử lý và vẽ trên phần mềm Microsoft excel. Hình thái của aerogel được quan sát bằng kính hiển vi ánh sáng phân cực (DM2500P, Leica, Đức) và kính hiển vi điện tử quét (JSM-IT500, Nhật Bản). Quang phổ hồng ngoại biến đổi Fourier (FTIR) của mẫu được thực hiện trong phạm vi 400÷4000 cm⁻¹, với độ phân giải 4 cm⁻¹ ở nhiệt độ phòng (Tensor 27, Bruker, Đức).

3. Kết quả và thảo luận

3.1. Hình thái và vi cấu trúc của aerogel từ xơ dừa

Hình 1a cho thấy, mẫu aerogel có cấu trúc xốp, nhẹ. Ảnh chụp kính hiển vi quang học (Hình 1b) cho thấy cấu trúc mạng lưới xốp của các sợi

Bảng 1. Khối lượng riêng và độ xốp của aerogel từ xơ dừa

Mẫu	Khối lượng riêng (g/cm ³)	Độ xốp (%)
Aerogel	0.0575 ± 0.002	96.24 ± 0.08

nanocellulose và mối liên kết giữa chúng với chất liên kết PVA. Các sợi nanocellulose có dạng mảnh, dài, bề mặt phẳng và mịn với đường kính đồng đều nhau. Tương tự như các kết quả nghiên cứu của Fauziyah et. al. (2019), Dang et. al. (2022), aerogel từ xơ dừa có cấu trúc xốp đặc trưng (với đường kính sợi từ 20÷200 nm) và độ xốp cao (94.2÷96.7%).

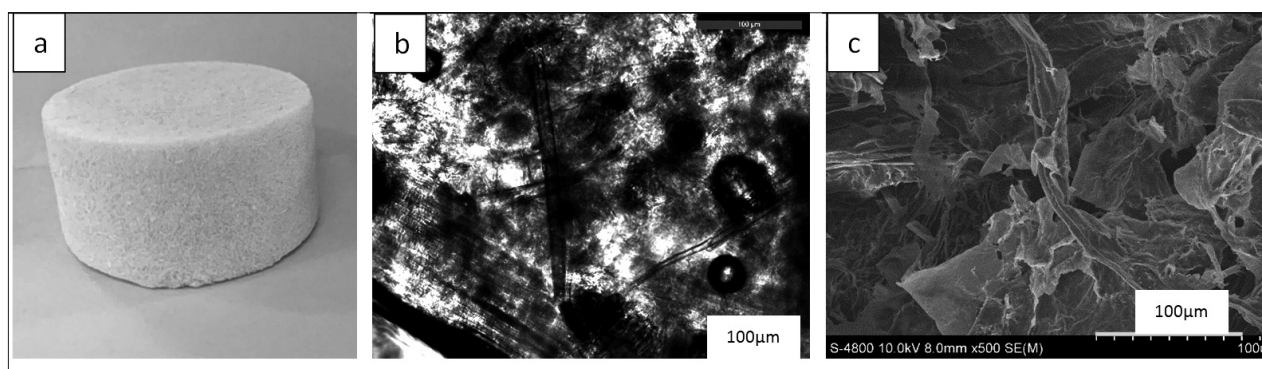
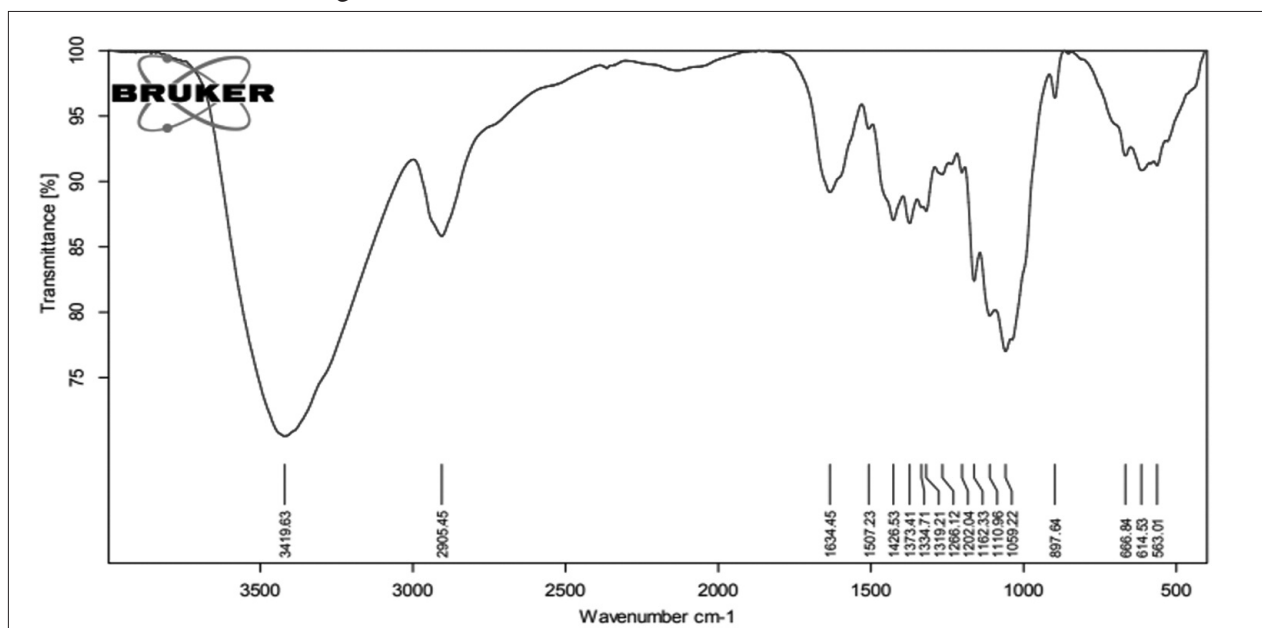
Dựa vào kết quả phân tích SEM (Hình 1c), việc sử dụng PVA làm chất liên kết ngang với các sợi nanocellulose giúp hình thành mạng tinh thể đồng nhất tốt hơn (Thai et. al., 2020). Ngoài ra, việc sử dụng chất liên kết là PVA không chỉ tạo ra vật liệu có cấu trúc xốp và nhẹ hơn (kết quả phân tích Bảng 1) mà còn tạo điều kiện thuận lợi cho việc ứng dụng làm vật liệu hấp phụ.

3.2. Phân tích quang phổ FTIR của aerogel từ xơ dừa

Phổ FTIR của mẫu aerogel được minh họa trong Hình 3.2. Đỉnh hấp phụ đặc trưng ở 3419 cm⁻¹ thể hiện dao động kéo giãn của liên kết O-H và đỉnh

Hình 1: Hình ảnh thực tế

(a). Hình chụp kính hiển vi quang học, (b). Hình chụp SEM, (c) của mẫu aerogel từ xơ dừa

**Hình 2: Phổ FTIR của aerogel từ xơ dừa**

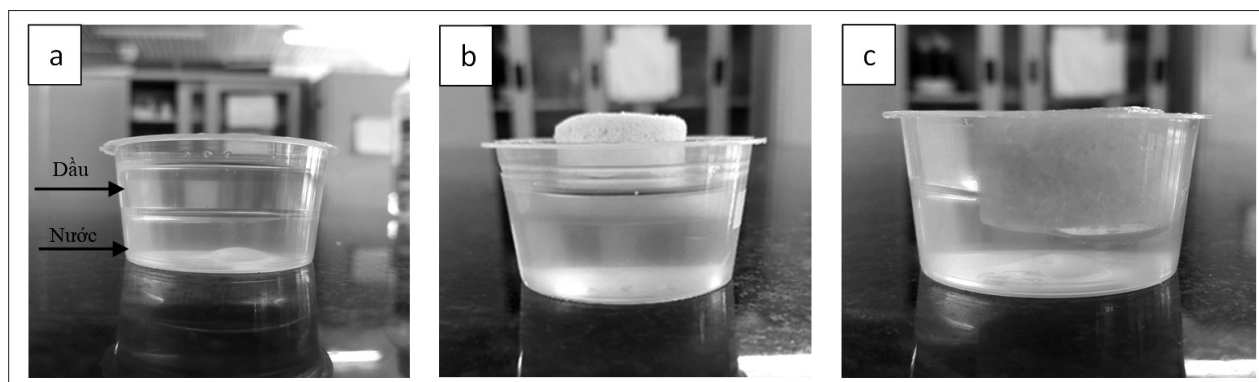
hấp phụ ở 2905 cm^{-1} tương ứng với dao động kéo giãn của liên kết C-H trong nhóm methyl và methylen của cellulose (Reddy et. al., 2014). Theo giả thuyết, các sợi lignin lignocellulose đã bị loại bỏ đáng kể sau bước xử lý kiềm và tẩy trắng. Do đó, đỉnh đặc trưng của chúng ở 1730 cm^{-1} không được nhận biết trong phổ FTIR của aerogel được nghiên cứu (Thai et. al., 2020). Các đỉnh hấp phụ ở 1634 cm^{-1} và 1426 cm^{-1} đặc trưng cho sự kéo dài của liên kết C=O. Đỉnh hấp phụ ở 1507 cm^{-1} và 1373 cm^{-1} có liên quan đến dao động kéo dài của vòng thơm C=C trong lignin và dao động uốn cong của liên kết C-H. Các đỉnh hấp phụ ghi nhận ở 1426 cm^{-1} và 1266 cm^{-1} liên quan đến dao động uốn cong và dao động giãn của nhóm C-H và C-O tương ứng (Meenakshi et. al., 2022). Ngoài ra, dao động kéo dài không đối xứng của C-O (1110 cm^{-1}), dao động của các vòng pyranose (1059 cm^{-1}) và dao động lắc

của C-H (899 cm^{-1}) tương ứng với các giá trị đặc trưng của cellulose (Sun et. al., 2024).

3.3. Khả năng hấp phụ dầu

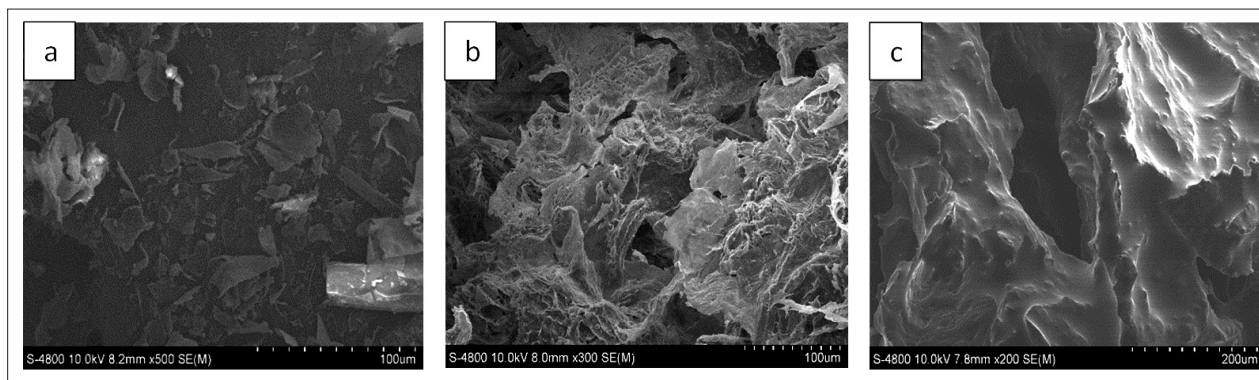
Dầu dừa có tỷ trọng $0.9242(\text{g}/\text{cm}^3)$ được sử dụng để khảo sát khả năng hấp phụ dầu tối đa của aerogel. Đầu tiên, dầu dừa được đổ vào trong cốc có chứa nước (Hình 3a). Sau đó, mẫu aerogel được đặt trên lớp dầu (Hình 3b). Cấu trúc xốp nhẹ và kỵ nước của mẫu aerogel tạo điều kiện thuận lợi cho việc hấp phụ dầu hiệu quả trong môi trường nước. Sau 20 phút lớp dầu trong cốc biến mất (Hình 3c), chứng tỏ aerogel đã hút hết dầu. Sau khi hấp phụ, mẫu aerogel vẫn giữ được hình dạng ban đầu. Kết quả phân tích SEM (Hình 4 a, b, c) cho thấy sự thay đổi cấu trúc của mẫu aerogel sau quá trình hấp phụ dầu. Khả năng hấp phụ dầu tối đa đạt 20.2 g/g cho thấy tiềm năng của vật liệu này trong lĩnh vực xử lý dầu mỡ của nước thải.

Hình 3: Thí nghiệm hấp phụ dầu trên aerogel từ xơ dừa



Hình 4: Hình chụp SEM của xơ dừa

(a), aerogel từ xơ dừa trước khi hấp phụ dầu (b) và sau quá trình hấp phụ dầu (c)



4. Kết luận

Kết quả nghiên cứu cho thấy, có thể chuyển đổi xơ dừa - một loại phế phẩm nông nghiệp có giá trị kinh tế thấp thành vật liệu hấp phụ có giá trị kinh tế cao. Cellulose aerogel từ xơ dừa có mật độ

thấp, độ xốp cao, có khả năng hấp phụ dầu tốt (lượng dầu được hấp phụ gấp 20 lần trọng lượng ban đầu của chính nó). Điều này thể hiện, aerogel từ xơ dừa là giải pháp đầy hứa hẹn cho việc giải quyết vấn đề ô nhiễm dầu mỡ của nước thải ■

Lời cam đoan: Chúng tôi cam đoan bài báo do nhóm tác giả thực hiện và không có bất kỳ mâu thuẫn nào giữa các tác giả.

Lời cảm ơn:

Nghiên cứu được tài trợ bởi Trường Đại học Nông Lâm Thành phố Hồ Chí Minh (mã nghiên cứu: CS-SV23-HHTP-05).

TÀI LIỆU THAM KHẢO:

1. Dang, Y. T., N, N. H., Do, Nguyen, P. T. X., Ho, K. H., Le, K. A., Duong, H. M., & Le, P. K. (2022). Green fabrication of bio-based aerogels from coconut fibers for wastewater treatment. *Journal of Porous Materials*, 29(4), 1265-1278.
2. Doshi, B., Sillanpää, M., & Kalliola, S. (2018). A review of bio-based materials for oil spill treatment. *Water Research*, 135, 262-277.
3. Fauziyah, M., Widiyastuti, W., Balgis, R., & Setyawan, H. (2019). Production of cellulose aerogels from coir fibers via an alkali-urea method for sorption applications. *Cellulose*, 26(18), 9583-9598.
4. Feng, J., Nguyen, S. T., Fan, Z., & Duong, H. M. (2015). Advanced fabrication and oil absorption properties of super-hydrophobic recycled cellulose aerogels. *Chemical Engineering Journal*, 270, 168-175.
5. Leng, W., He, S., Zhang, X., Wang, X., & Navarathna, C. M. (2021). Biobased Aerogels for Oil Spill Remediation. In book: *Supramolecular Gels* (pp. 169-213). USA: Springer.
6. Liu, Z., Zhang, S., He, B., Wang, S., & Kong, F. (2021). Synthesis of cellulose aerogels as promising carriers for drug delivery: a review. *Cellulose*, 28(5), 2697-2714.
7. Maher, M., Prasad, M., & Raviv, M. (2008). Organic soilless media components. In book: *Soilless Culture* (pp. 459-504). USA: Academic Press.
8. Meenakshi, S., Vasudeva, R. M. R., Bomyung, K., Bharati, P., Chinho, P., Woo, K. K., & Pratibha, S. (2022). Fabrication of Cu₂ZnSnS₄ Light Absorber Using a Cost-Effective Mechanochemical Method for Photovoltaic Applications. *Materials*, 15(5), 1708.
9. Nguyen N.T.T., Pham N.Q., Pham C.M., Dinh C.N., Tran A.K., Nguyen M.H., Le P.T.K., Le K.A., & Tran V.C. (2021). Synthesis of Cellulose Aerogels from Coir Fibers via a NaOH/Urea Method for Methylene-blue Adsorption. *Chemical Engineering Transactions*, 89, 565-570.
10. Nguyen, S. T., Feng, J., Le, N. T., Le, A. T. T., Hoang, N., Tan, V. B. C., & Duong, H. M. (2013). Cellulose Aerogel from Paper Waste for Crude Oil Spill Cleaning. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 52(51), 18386-18391.
11. Nguyen, V. T., Ha, L.Q., Nguyen, T. D. L., Ly, P. H., Nguyen, D. M., & Hoang, D. Q. (2022). Nanocellulose and graphene oxide aerogels for adsorption and removal methylene blue from an aqueous environment. *ACS Omega*, 7(1), 1003-1013. doi:
12. Reddy, K.O., Ashok, B., Reddy, K. R. N., Feng, Y. E., Zhang, J., & Rajulu, A.V. (2014) Extraction and characterization of novel lignocellulosic fibers from *Thespesia lampas* plant. *International Journal of Polymer Analysis and Characterization*, 19, 48-61.

13. Sun, X. F., Sun, R. C., Su, Y., & Sun, J.X. (2004). Comparative Study of Crude and Purified Cellulose from Wheat Straw. *Journal of Agricultural and Food Chemistry*, 52(4), 839-847.
14. Thai, Q. B., Nguyen, S. T., Ho, D. K., Tran, et. al. (2020). Cellulose-based aerogels from sugarcane bagasse for oil spill-cleaning and heat insulation applications. *Carbohydrate Polymers*, 228, 115365.
15. Vo, N., Nguyen, C. T. X., Le, T. M., Pham, C. D., Nguyen, N. H., Do, Le, K. A., Mai, T. P., & Le, P. T. K. (2022). Recovery of rice straw cellulose on pilot scale for fabrication of aerogel for Oil/Water separation. *Directory of Open Access Journals*, 97, 73-78.

Ngày nhận bài: 7/6/2024

Ngày phản biện đánh giá và sửa chữa: 22/6/2024

Ngày chấp nhận đăng bài: 9/7/2024

Thông tin tác giả:

1. LÊ THỊ THANH VÂN

2. NGUYỄN LÊ ĐĂNG PHƯƠNG

3. HUỖNH ANH DUY

**Bộ môn Công nghệ Hóa học, Khoa Công nghệ Hóa học và Thực phẩm,
Trường Đại học Nông Lâm TP. Hồ Chí Minh**

USING AEROGELS FROM COCONUT FIBER FOR TREATING OIL AND GREASE

● LE THI THANH VAN¹

● NGUYEN LE DANG PHUONG¹

● HUYNH ANH DUY¹

¹Department of Chemical Technology,
Faculty of Chemical and Food Technology,
Nonglam University - Ho Chi Minh City

ABSTRACT:

Water pollution by oil and grease always causes serious damage to the ecological environment and human health. Biodegradable aerogels from coconut fiber were synthesized by using polyvinyl alcohol (PVA) as a linker and freeze-drying method. This environmentally friendly aerogel has low density (0.0575 g/cm³) and high porosity (96.24%). Aerogels from coconut fiber have hydrophobic properties. If these aerogels are coated with methytrimethoxysilane (MTMS), their maximum oil adsorption capacity will reach 20.2 g/g. This study's findings showed that it is feasible to use aerogels for treating oil and grease.

Keywords: cellulose aerogel, oil absorbent, polyvinyl alcohol, freeze drying, coconut fiber.