

THÔNG TIN LUẬN ÁN TIẾN SĨ

Tên đề tài: Tổng hợp vật liệu cellulose aerogel từ xơ dừa để ứng dụng xử lý một số chất màu hữu cơ và dầu bôi trơn

Ngành: Kỹ thuật Hóa học

Mã số ngành: 9520301

Họ tên NCS: Nguyễn Trần Xuân Phương

Người hướng dẫn: PGS.TS. Trần Tấn Việt, TS. Đỗ Chiếm Tài

Cơ sở đào tạo: Đại học Quốc gia Tp. Hồ Chí Minh - Trường Đại học Bách Khoa

Thông tin tóm tắt những đóng góp mới về mặt học thuật, lý luận của luận án

Cellulose aerogel được biết đến là một vật liệu hấp phụ mới của thế kỉ XXI với nhiều đặc tính nổi trội, chẳng hạn như khối lượng riêng thấp, độ xốp cao, diện tích bề mặt riêng lớn và dễ dàng chức năng hoá bề mặt để hấp phụ chọn lọc. Tuy nhiên, phương pháp tổng hợp hay bản chất của chất liên kết hình thành trong cellulose aerogel có thể ảnh hưởng đến khả năng hấp phụ và vấn đề này chưa được làm rõ trong các nghiên cứu trước đây. Do đó, hướng nghiên cứu về việc tổng hợp cellulose aerogel định hướng hấp phụ chất màu hữu cơ và dầu bôi trơn rất có ý nghĩa khoa học và thực tiễn.

Trong luận án này, hai loại cellulose aerogel được tổng hợp từ xơ dừa và chất liên kết theo hai cơ chế khác nhau để ứng dụng làm vật liệu hấp phụ chất màu hữu cơ và dầu bôi trơn. Thứ nhất, vật liệu aerogel được tổng hợp từ cellulose xơ dừa kiềm hoá với chất tạo liên kết ngang vật lý polyvinyl alcohol (PVA) và xanthan gum (XTG) (kí hiệu PXA). Thứ hai, vật liệu aerogel được tổng hợp từ cellulose xơ dừa tẩy trắng với dung dịch kiềm/urea kết hợp chất tạo liên kết ngang hóa học tetraethylenepentamine (TEPA) (kí hiệu NUTA). Các đặc tính hoá lý của vật liệu cellulose aerogel được phân tích bằng giản đồ nhiễu xạ tia X (XRD), kính hiển vi điện tử quét (SEM), phổ hồng ngoại chuyển hoá Fourier (FT-IR), độ đàn hồi và nhiệt trọng lượng (TGA). Kết quả cho thấy, vật liệu PXA có các đặc trưng sau: khối lượng riêng (27,59–47,78 mg/cm³), độ xốp (96,74–98,03%); vật liệu chứa những sợi cellulose đan xen nhau và kết dính bởi các màng polymer; cấu trúc chứa các nhóm chức đặc trưng của cả lignin, hemicellulose và cellulose I; độ đàn hồi với modul nén (3,26–12,66 kPa); sự phân hủy nhiệt diễn ra qua hai giai đoạn. Đặc trưng hóa lý của vật liệu NUTA bao gồm: khối lượng riêng (91,89–111,68 mg/cm³), độ xốp (>90%); vật liệu chứa những sợi cellulose đan xen chặt chẽ với nhau, có các nhóm chức đặc

trung của cellulose II và amine trong TEPA; độ đàn hồi với modul nén (138,59–197,99 kPa); phân hủy nhiệt qua ba giai đoạn. Cấu trúc khối 3D của vật liệu aerogel thu được sau khi sấy thăng hoa được giải thích dựa trên liên kết hydrogen (vật liệu PXA) hoặc cộng hóa trị (vật liệu NUTA) giữa sợi cellulose và chất kết dính.

Hai loại vật liệu PXA và NUTA được đánh giá khả năng hấp phụ chất màu hữu cơ dựa trên các yếu tố: hiệu quả loại bỏ, thời gian cân bằng, pH dung dịch, nồng độ ban đầu và nhiệt độ. Cơ chế của quá trình hấp phụ được nghiên cứu thông qua ba mô hình động học, bốn mô hình đẳng nhiệt và sự khác nhau về một số đặc trưng của vật liệu trước và sau hấp phụ (bao gồm phổ FT-IR và EDX). Vật liệu PXA3 (3 wt% cellulose, 0,6 wt% PVA và 0,3 wt% XTG) có hiệu quả hấp phụ cao nhất với methylene blue (MB), crystal violet (CV) và methyl orange (MO) ở nồng độ 50 mg/L là 80,57; 82,04; 16,67% sau 90 phút tiếp xúc ở khoảng pH 7–11, tuân theo mô hình động học bậc hai và đẳng nhiệt Redlich–Peterson. Vật liệu NUTA2 (2 wt% cellulose, tỉ lệ dung môi ngâm tẩm 2TEPA:5EtOH:3H₂O) có hiệu quả hấp phụ với MB và CV ở nồng độ 50 mg/L là 98,65 và 89,92% sau 120 phút và tuân theo mô hình đẳng nhiệt Freundlich và động học bậc hai. Cả hai vật liệu nghiên cứu đều có quá trình hấp phụ tự diễn biến qua ba giai đoạn ở khoảng pH rộng (pH 5–11). Dựa trên các mô hình hấp phụ và một số phép phân tích vật liệu trước – sau khi hấp phụ, cơ chế hấp phụ được cho là sự tương tác tĩnh điện, lực Vander Waals, liên kết hydrogen giữa cellulose aerogel và phân tử chất màu hữu cơ. Nhận thấy, vật liệu NUTA2 phù hợp cho ứng dụng hấp phụ chất màu hữu cơ vì hiệu quả hấp phụ cao, có khả năng tái sử dụng sau bốn chu kỳ hấp phụ – giải hấp phụ liên tiếp và giữ được cấu trúc khối trong dung dịch.

Do bề mặt cellulose aerogel chứa nhiều nhóm hydroxyl ưa nước nên vật liệu được tiến hành biến tính bề mặt với methyltrimethoxysilane (MTMS) giúp nâng cao hiệu quả hấp phụ dầu bôi trơn. Sự xuất hiện của các nhóm chức silane trong cấu trúc và sự phân bố của silic trên bề mặt vật liệu cho thấy phương pháp lắng đọng hơi hóa học phù hợp để biến tính kỵ nước cho cellulose aerogel. Nghiên cứu đã đánh giá về ảnh hưởng độ nhớt của các loại dầu bôi trơn khác nhau (bao gồm dầu parafin, dầu 5w30 và dầu bơm chân không) đến dung lượng hấp phụ. Kết quả cho thấy, khi độ nhớt càng tăng thì dung lượng hấp phụ càng giảm. Bên cạnh đó, trong khi vật liệu PXSA1 hấp phụ dầu lên đến 20,32 g/g thì NUSA1 chỉ đạt 17,10 g/g. Ngoài ra, PXSA1 còn có khả năng tái sử dụng trong ba chu kỳ hấp phụ – giải hấp phụ liên tiếp. Điều này cho thấy, vật liệu PXSA1 phù hợp để hấp phụ dầu bôi trơn.

Tóm lại, kết quả nghiên cứu của luận án góp phần phát triển thêm hai loại vật liệu mới có khả năng hấp phụ chất màu hữu cơ và dầu bôi trơn. Trong đó, vật liệu chứa cellulose và chất tạo liên

kết ngang vật lý phù hợp cho ứng dụng hấp phụ dầu bôi trơn; vật liệu chứa cellulose và chất tạo liên kết ngang hoá học được đề xuất để hấp phụ chất màu hữu cơ. Cả hai quy trình tổng hợp cellulose aerogel được thiết kế đơn giản, cấp đông bằng tủ đông thông thường, sử dụng sấy thăng hoa giúp giữ vững cấu trúc 3D của vật liệu. Vai trò của chất liên kết hình thành trong cấu trúc vật liệu, cơ chế hấp phụ được trình bày cụ thể, làm tiền đề để tiếp tục nghiên cứu và phát triển vật liệu hấp phụ.

Tập thể hướng dẫn

Nghiên cứu sinh

PGS.TS. Trần Tấn Việt

TS. Đỗ Chiếm Tài

Nguyễn Trần Xuân Phương