Open Access Full Text Article

Tổng hợp và đặc tính than hoạt tính từ tro trấu: Ảnh hưởng của tỷ lệ NaOH đến tính chất của than hoạt tính

Huỳnh Thanh Lưu¹, Đào Thị Băng Tâm^{2,3}, Lê Mỹ Thoa^{2,3}, Hà Thúc Chí Nhân^{2,3,*}, Đặng Tấn Hiệp^{1,*}, Võ Thúy Vi^{1,*}

Từ khoá: than hoạt tính, than sinh học, tro trấu, siêu âm, hấp phụ

TÓM TẮT

Nghiên cứu này trình bày quá trình tổng hợp và xác định đặc tính của than hoạt tính (AC) có nguồn gốc từ tro trấu (RHA) thông qua phương pháp hoạt hóa hóa học và không cần nung ở nhiệt độ cao. RHA, thu được từ quá trình đốt trấu trong lò hơi công nghiệp, được trích ly silica để tạo thành than sinh học (BC). Sau đó BC được hoạt hóa bằng NaOH với máy siêu âm và sấy chân không để tạo thành than hoạt tính. Ảnh hưởng của tỷ lệ khối lượng của NaOH so với BC (m_{NaOH}:m_{BC}) đến các tính chất cụ thể của than hoạt tính được phân tích một cách có hệ thống bằng nhiều phương pháp phân tích khác nhau nhằm đánh giá sự hình thành cấu trúc, hình thái và kích thước lỗ xốp bề mặt và tính chất nhiệt. Kết quả cho thấy than hoạt tính thể hiện cấu trúc vô định hình với bề mặt gồm các hạt kích thước khoảng vài micromet được phân bố một cách ngẫu nhiên. Hơn nữa, than hoạt tính có cấu trúc xốp và rỗng với kích thước lỗ rỗng khác nhau. Đáng chú ý, diện tích bề mặt tối đa của than hoạt tính đạt được ở tỷ lệ hoạt hóa NaOH và BC là 7:1, đạt 823,913 m²/g. Những phát hiện này nhấn mạnh sự phù hợp của than hoạt tính tổng hợp từ quy trình mới rất phù hợp cho các ứng dụng làm vật liệu hấp phụ trong môi trường nước hoặc khí, cho thấy tiềm năng cho mục đích khắc phục môi trường.

¹Khoa Công nghệ hóa học, Trường Đại học Công thương TP.HCM

²Khoa Khoa học và Công nghệ Vật liệu, Trường Đại học Khoa học Tự nhiên

³Đại học Quốc gia, Thành phố Hồ Chí Minh

Liên hệ

Hà Thúc Chí Nhân, Khoa Khoa học và Công nghệ Vật liệu, Trường Đại học Khoa học Tự nhiên

Đại học Quốc gia, Thành phố Hồ Chí Minh Email: htcnhan@hcmus.edu.vn

Liên hệ

Đặng Tấn Hiệp, Khoa Công nghệ hóa học, Trường Đại học Công thương TP.HCM

Email: hiepdt@huit.edu.vn

Liên hệ

Võ Thúy Vi, Khoa Công nghệ hóa học, Trường Đại học Công thương TP.HCM Email: vivt@huit.edu.vn

Lịch sử

- Ngày nhận: 06-5-2024
- Ngày sửa đổi: 18-9-2024
- Ngày chấp nhận: 25-10-2024
- Ngày đăng: 31-12-2024

DOI:

https://doi.org/10.32508/stdjns.v8i4.1384



GIỚI THIỆU

Gạo chiếm vị trí quan trọng nhất trong danh sách các loại lương thực ở hầu hết các khu vực ở châu Á, đồng thời đây cũng là nơi sản xuất và tiêu thụ gạo chiếm hơn 90% sản lượng toàn cầu¹. Trong số các quốc gia, Việt Nam đã nổi lên như một trong những nước xuất khẩu gạo hàng đầu thế giới, với tổng sản lượng 5,949 triệu tấn vào năm 2012². Trong quá trình sản xuất gạo, trấu thường bị xem như một loại chất thải và thường được xử lý tại các nhà máy điện, tạo ra những vấn đề môi trường đáng kể. Do đó, việc tận dụng vỏ trấu một cách hiệu quả là rất quan trọng. Gần đây, vỏ trấu đã được sử dụng để sản xuất than hoạt tính $(AC)^{3-6}$, silica^{7,8}, bê tông⁹ và nhiều ứng dụng khác. Với cấu trúc xốp và diện tích bề mặt lớn, cùng với giá thành thấp, than hoạt tính (AC) đã thu hút sự quan tâm đáng kể và được sử dụng rộng rãi như một chất hỗ trợ xúc tác, chất hấp phụ để hấp phụ các ion kim loại³, phân tử hữu cơ⁵, VOCs¹⁰, hoặc làm vật liệu điện cực cho pin và tụ điện¹¹.

Quá trình tổng hợp than hoạt tính thường được thực hiện chủ yếu thông qua hai phương pháp là hoạt hoá vật lý hoặc hóa học. Trong phương pháp hoạt hoá vật lý, nguyên liệu chứa cacbon được đưa vào nhiệt độ cao để kích hoạt cacbon bằng sự tác động của các loại khí như không khí, cacbon dioxit hoặc hơi nước,

nhằm tăng cường tính hoạt tính của cacbon. Trong khi đó, phương pháp hoạt hóa học thường sử dụng các hóa chất như natri hydroxit (NaOH), kali hydroxit (KOH), kẽm clorua (ZnCl₂), hoặc axit photphoric (H₃PO₄), axit sulfuric (H₂SO₄)... Nhìn chung, các nghiên cứu này tuy thay đổi chất hoạt hóa nhưng đều phải cần đến nhiệt độ nung khá cao. Cụ thể, năm 2024, Jhonnaifer J. Romero-Hernandez và các cộng sự đã nghiên cứu than hoạt tính từ tro trấu bằng cách hoạt hóa với NaOH ở nhiệt độ 800°C12, hoặc nhóm nghiên cứu của Eka Marya Mistar đã hoạt hóa than hoạt tính bằng KOH với tỷ lệ trọng lượng tẩm than so với KOH là 1:3 trong thời gian hoạt hóa 1 giờ ở 800°C¹³. Năm 2020, nhóm tác giả Adetola E. Ogungbenro cũng dùng KOH với tỉ lệ từ 3:1 đến 5:1 ở nhiệt độ từ 600 - 900° C¹⁴. Năm 2016, S.M. Yakout và các cộng sự đã dùng axit phosphoric (H₃PO₄) để hoạt hóa than ở nhiệt độ 500°C¹⁵. Năm 2022, nhóm tác giả Ndifreke Etuk Williams công bố bài đánh giá tổng hợp về việc sử dụng kali hydroxit (KOH) để sản xuất và hoạt hóa than hoạt tính, kết quả cho thấy dù khác nhau về quá trình hoạt hóa, cacbon hóa, nhiệt độ, thời gian hoạt hóa và tỷ lệ KOH, nhưng các phương pháp này đều cần nhiệt đô cao để có thể hoat hóa được than ¹⁶. Điều này cho thấy, việc nghiên cứu một quy trình hoạt hóa than vẫn đang là đề tài nhận được

Trích dẫn bài báo này: Lưu H T, Tâm D T B, Thoa L M, Nhân H T C, Hiệp D T, Vi V T. Tổng hợp và đặc tính than hoạt tính từ tro trấu: Ảnh hưởng của tỷ lệ NaOH đến tính chất của than hoạt tính. *Sci. Tech. Dev. J. - Nat. Sci.* 2024; 8(4):3219-3229.

Tạp chí Phát triển Khoa học và Công nghệ – Natural Sciences 2024, 8(4):3219-3229

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.



nhiều sự quan tâm của các nhà khoa học.

Từ những hạn chế của các nghiên cứu trước đó, mục tiêu của nghiên cứu này là trình bày một phương pháp mới để hoạt hóa than hoạt tính khác biệt so với phương pháp truyền thống đó là không cần ủ ở nhiệt đô cao. Theo đó, tro trấu sẽ được trích ly silica để tạo thành than sinh học (BC). Tiếp đó, than sinh học được ngâm tẩm với NaOH với các tỉ lệ khối lượng khác nhau và được hoạt hóa bằng sóng siêu âm. Sóng siêu âm sẽ tạo ra hiệu ứng cơ học trong dung dịch, gọi là cavitation (hiện tượng sủi bọt khí). Khi sóng siêu âm truyền qua dung dịch, nó tạo ra các bọt khí nhỏ. Các bọt khí này liên tục mở rộng và co lại, cho đến khi chúng sụp đổ mạnh mẽ, tạo ra các điểm nóng cục bộ với nhiệt độ và áp suất cao trong thời gian ngắn. Những điểm nóng này có tác động cơ học mạnh mẽ đến các hạt biochar và dung dịch NaOH, giúp phân tán các hạt biochar, đảm bảo rằng NaOH tiếp xúc đều với bề mặt của các hạt cacbon, tăng cường quá trình hoạt hóa, đồng thời tác động cơ học này cũng giúp mở rộng và phát triển các lỗ xốp trong cấu trúc than, tạo ra diện tích bề mặt lớn hơn. Bên cạnh đó, NaOH là một chất kiềm mạnh, NaOH tấn công vào cấu trúc cacbon của biochar, phá vỡ các liên kết cacbon và loại bỏ các tạp chất nhẹ hơn như oxit, cacbonat, và các hợp chất khác. Điều này dẫn đến sự hình thành của các lỗ xốp trong cấu trúc than, làm tăng diện tích bề mặt và khả năng hấp phụ của than hoạt tính. Nghiên cứu đã thử nghiệm ảnh hưởng của hàm lượng NaOH đến diện tích bề mặt, cấu trúc lỗ xốp, hình thái bề mặt và độ ổn định nhiệt của mẫu AC. Kết quả cho thấy các mẫu AC tạo được có tiềm năng ứng dụng làm vật liệu giải quyết các vấn đề về xử lý ô nhiễm môi trường nước và không khí.

VẬT LIỆU VÀ PHƯƠNG PHÁP

Hóa chất

Tro trấu (dạng thô, được đốt từ lò hơi công nghiệp được cung cấp bởi công ty Năng Lượng Nhiệt Star Tech (TP. Hồ Chí Minh, Việt Nam)), ethanol C_2H_5OH (³ 99,7%, Việt Nam), NaOH (³ 96%, Trung Quốc), KOH (³ 85%, Trung Quốc).

Quy trình tạo than sinh học (BC) đã trích ly silica

Nguyên liệu tro trấu (TT) từ lò hơi công nghiệp được cung cấp bởi công ty Năng Lượng Nhiệt Star Tech (TP. Hồ Chí Minh). Tro trấu nguyên liệu được nghiền mịn và xử lý trích ly trong dung dịch KOH nóng (nhiệt độ ~ 90°C) để trích ly tách dung dịch kali silicat ra khỏi than đen. Than đen thu được từ quá trình lọc được rửa bằng nước đến pH 8 và sấy khô 80°C trong 7 giờ để tạo thành sản phẩm than sinh học (BC). Quy trình được mô tả như Hình 1.

Quy trình hoạt hóa than sinh học (BC) thành than hoạt tính (AC)

Than sinh học (BC) được tẩm ướt với NaOH theo các tỉ lệ khối lượng m_{NaOH} : m_{BC} khác nhau là 1:1; 3:1; 5:1 và 7:1 lần lượt được ký hiệu là AC1-1, AC3-1, AC5-1 và AC7-1. Siêu âm lần lượt các dung dịch với máy siêu âm dạng thanh trong 30 phút. Sấy chân không hỗn hợp ở 100°C trong 24 giờ. Các mẫu sau khi sấy được rửa với nước cất đến pH 7 và sấy 100°C đến khi khô hoàn toàn thì thu được than hoạt tính (AC). Quy trình hoạt hóa than sinh học được mô tả như Hình 2.

Các phương pháp đánh giá vật liệu

Thành phần nguyên tố có trong các mẫu than hoạt tính và hình thái bề mặt được phân tích bởi máy thiết bị hiển vi điện tử quét SEM-EDX (Hitachi S4800). Giản đồ nhiễu xạ tia X (XRD) của các mẫu sản phẩm được ghi trên nhiễu xạ kế tia X (D2-PHASER) với tia Cu-Kα (dùng tấm lọc Ni) có bước sóng λ =1,5406 Å, điện áp gia tốc 40 kV, cường độ dòng điên 40 mA, góc quét $2\theta = 5 - 80^\circ$, tốc đô quét 0,030°/s. Kích thước hạt trung bình được tính toán dựa vào đỉnh đặc trưng trên giản đồ XRD theo phương trình Scherrer. Phổ hấp thu hồng ngoại (FTIR) được đo từ 4000 - 400 cm $^{-1}$ trên máy Nicolet iS 50 (FT-IR, Thermo, USA). Diện tích bề mặt và kích thước lỗ xốp của thanh hoạt tính được phân tích bằng phương pháp Brunauer-Emmett-Teller (BET) và Barrett-Joyner-Halenda (BJH). Độ bên nhiệt của than hoat tính được đánh giá bằng phương pháp phân tích nhiệt mất trọng lượng (TGA).

KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN

Kết quả SEM và EDX

Hình thái bề mặt của tro trấu sau khi nghiền và rây mịn (TT), than sinh học (BC), và các than hoạt tính theo các tỉ lệ khối lượng mNaOH:mBC khác nhau (AC1-1, AC3-1, AC5-1 và AC7-1) được thể hiện ở Hình 3. Các hạt tro trấu có dạng tấm với kích thước không đồng đều và có tính xốp nhất định ¹⁷ (Hình 3a). Do tro trấu chứa một lượng lớn silica, việc tách silica là bước quan trọng trong quá trình sản xuất than sinh học, giúp cải thiện chất lượng của sản phẩm cuối cùng. Bên cạnh đó, silica tách ra có thể được tái chế hoặc sử dụng cho các ứng dụng khác. Kết quả SEM trong Hình 3b cho thấy bề mặt của BC có độ xốp cao hơn so với tro trấu.

Đáng chú ý rằng bề mặt của các than hoạt tính phụ thuộc vào tỉ lệ hoạt hóa m_{NaOH} :m_{BC} (Hình 3c-f).





Trong khi Hình BC có bề mặt gồ ghề và xốp rõ rệt (Hình 1b), thì Hình 3c-f lại cho thấy sau khi được hoạt hóa theo tỉ lệ m_{NaOH}:m_{BC} tăng dần thì bề mặt của các mẫu than hoạt tính dường như xếp chặt hơn¹⁸. Sự khác biệt về bề mặt của các mẫu than hoạt tính (AC) có thể được giải thích bởi cơ chế hoạt hóa siêu âm trong môi trường NaOH, và ảnh hưởng của quá trình này lên cấu trúc bề mặt của vật liệu. Trong quá trình hoat hóa bằng siêu âm, các sóng siêu âm tao ra hiệu ứng cavitation, tức là sự hình thành và sụp đổ nhanh chóng của các bọt khí trong dung dịch. Quá trình này sinh ra những vi sóng có năng lượng rất cao và gây ra các áp lực cơ học mạnh mẽ trên bề mặt của vật liệu, trong trường hợp này là than sinh học (BC), gây ra quá trình phá vỡ cấu trúc, loại bỏ các tạp chất và mở rộng mạng lưới xốp của vật liệu.

Tuy nhiên, khi tỉ lệ NaOH tăng lên, hiệu ứng hoạt hóa cũng mạnh hơn, dẫn đến việc cấu trúc bề mặt bị phá hủy một cách quá mức. Ở tỉ lệ NaOH thấp (AC1-1), quá trình siêu âm giúp tạo ra các lỗ xốp và duy trì đặc điểm bề mặt gồ ghề. Nhưng khi tỉ lệ NaOH tăng cao hơn (như AC5-1 và AC7-1), áp lực từ các bọt khí và sự tấn công của NaOH quá mạnh, dẫn đến việc các lỗ xốp ban đầu bị sụp đồ hoặc bị bào mòn, làm cho bề mặt dần trở nên phẳng và min hơn.

Ngoài ra, NaOH đóng vai trò như một chất xúc tác hóa học, ăn mòn carbon tại các vị trí kém bền vững, và sự phá hủy cơ học từ quá trình siêu âm làm gia tăng hiệu ứng này. Khi tỷ lệ NaOH càng cao, mức độ ăn mòn càng lớn, dẫn đến sự sụp đổ của các cấu trúc xốp nhỏ và giảm độ gổ ghề của bề mặt.

Thành phần các nguyên tố trong các mẫu được xác định thông qua phương pháp EDX, như minh họa trong Hình 4. Tro trấu (TT) chứa các nguyên tố C, O, Si, K, Ca, với hàm lượng cao nhất là nguyên tố Si. Sau khi trích ly silica để sản xuất than sinh học (BC), nồng độ Si giảm đáng kể, đồng thời nồng độ nguyên tố C tăng lên. Khi tỷ lệ hoạt hóa m_{NaOH} :m_{BC} tăng, cường độ của nguyên tố C trong mẫu than hoạt tính cũng tăng cao. Silic thường tồn tại dưới dạng silicat trong than, và phản ứng với NaOH có thể làm giảm nồng độ của silicat. Hơn nữa, silicat cũng có thể bị hòa tan trong dung dịch NaOH, làm giảm lượng silicat trên bề mặt than. Do đó, việc tăng hàm lượng NaOH trong than hoạt tính có thể ảnh hưởng đến phân bố của các nguyên tố trên bề mặt của than.

Kết quả nhiễu xạ XRD

Hình 5 trình bày giản đồ nhiễu xạ tia X của tro trấu, than sinh học và các than hoạt tính AC1-1, AC3-1, AC5-1 và AC7-1. Kết quả cho thấy rằng tất cả các mẫu đều có cấu trúc vô định hình. Ngoài ra, trong các vùng vô định hình, tro trấu (TT) cũng thể hiện đỉnh ở góc $2\theta = 22^{\circ}$, cho thấy sự hiện diện của cristobalite. Cristobalite là một dạng của silica (SiO₂) thường gặp trong tro trấu ¹⁹. Cường độ của đỉnh này giảm dần trong mẫu BC và gần như không quan sát được trong các mẫu than hoạt tính bao gồm AC1-1, AC3-1, AC5-1 và AC7-1. Kết quả này hoàn toàn phù hợp với phân tích EDX trước đó, chứng tỏ khả năng loại bỏ silica trong than hoạt tính tăng dần khi tỷ lệ NaOH tăng trong quá trình hoạt hóa than sinh học.



Hình 5: Giản đồ XRD của tro trấu (TT), than sinh học (BC) và các than hoạt tính AC1-1, AC3-1, AC5-1 và AC7-1.

Kết quả FTIR

Các dao đông liên kết có trong các mẫu tro trấu (TT), than sinh học (BC) và các than hoạt tính AC1-1, AC3-1, AC5-1 và AC7-1 được phân tích bằng phổ dao động hồng ngoại và được mô tả như Hình 6. Đỉnh phổ nằm trong khoảng từ số sóng 1056 đến 1078 cm $^{-1}$ được cho là do dao động kéo dài không đối xứng O-Si-O. Đỉnh nằm trong khoảng từ 790 đến 800 cm $^{-1}$ được cho là do dao động kéo dãn đối xứng O-Si-O. Đỉnh nằm ở khoảng 440 - 450 cm⁻¹ là do dao động uốn Si– O^{20,21}. Ba đỉnh này đều thể hiện sự có mặt của silica trong tro trấu, và đều có cường độ giảm dần đối với than sinh học, và gần như không quan sát được đối với các mẫu than hoạt tính. Điều này hoàn toàn phù hợp với các phân tích đã đề cập ở trên. Dải rộng nằm trong khoảng từ 3000 đến 3700 cm $^{-1}$ được cho là do dao động kéo giãn của các phân tử nước. Đỉnh quan sát được ở 1635 cm⁻¹ là do dao động uốn cong của các phân tử nước ^{20,21}.

Phân tích TGA

Các phép đo nhiệt trọng lượng (TGA) và phân tích nhiệt vi sai (DTA) của tro trấu (TT), than sinh học



Hình 3: Ảnh SEM của các mẫu tro trấu (TT), than sinh học (BC) và các than hoạt tính AC1-1, AC3-1, AC5-1 và AC7-1.

(BC) và các than hoạt tính AC1-1, AC3-1, AC5-1 và AC7-1 đã được biểu diễn trong Hình 7. Kết quả cho thấy tro trấu có ít sụt giảm khối lượng nhất (10%), trong khi AC5-1 có sụt giảm khối lượng lớn nhất (60%). Sự sụt giảm khối lượng trong các mẫu ở các nhiệt độ khác nhau có thể được phân tích thành bốn vùng nhiệt, bao gồm vùng từ 0 - 100°C, 100°C - 35° C, 350° C - 650° C và 650° C - 800° C. Sự mất khối lượng ban đầu ở 100°C liên quan đến sự mất nước vật lý được hấp phụ trên mẫu và các chất dễ bay hơi khác ^{21,22}. Nhiệt độ mà hiện tượng này xảy ra có thể được nhận biết trên đồ thị DTA ở 63° C - 100° C khi tỉ lệ hoạt hóa BC tăng. Sau nhiệt độ này, tro trấu (TT) gần như không có sự sụt giảm khối lượng. Trong khoảng từ 100 đến 350° C, khối lượng của các mẫu BC,

AC1-1, AC3-1, AC5-1 và AC5-1 giảm nhẹ (≤ 5%). Giai đoạn này liên quan đến sự phân hủy nhiệt của hemicellulose và cellulose, thành phần hữu cơ của tro trấu. Hemicellulose, thành phần kém ổn định nhất, bị phân hủy chủ yếu ở nhiệt độ từ 200 đến 260°C và cellulose ở nhiệt độ từ 240 đến 360°C²¹. Trong khoảng từ 350 đến 650°C, khối lượng của BC, AC1-1, AC3-1, AC5-1 và AC7-1 giảm mạnh (lần lượt là 35%, 26%, 17%, 40% và 15%) do sự phân hủy nhiệt của thành phần lignin xảy ra ở nhiệt độ từ 370 đến 600°C²¹. Trên 600°C, các mẫu than hoạt tính có thể trải qua các phản ứng oxi hóa mạnh mẽ với các chất oxy hóa có mặt trong môi trường, như không khí. Các liên kết hóa học trong cấu trúc của than có thể bị phá vỡ, dẫn đến sự giảm khối lượng. Điều này cho thấy tỉ lệ



Hình 4: Phổ EDX của các mẫu tro trấu (TT), than sinh học (BC) và các than hoạt tính AC1-1, AC3-1, AC5-1 và AC7-1.



và các than hoạt tính AC1-1, AC3-1, AC5-1 và AC7-1.

NaOH có thể ảnh hưởng đến quá trình hoạt hóa, làm tăng khả năng hấp thụ chất hữu cơ trên bề mặt than. Khi hoạt hóa hiệu quả, sự hấp thụ này có thể dẫn đến sự giảm khối lượng ở các nhiệt độ thấp hơn trong giản đồ TGA do các chất hữu cơ đã được loại bỏ.

Phân tích BET & BJH

Diện tích bề mặt riêng BET của các mẫu tro trấu (TT), than sinh học (BC) và các than hoạt tính AC1-1, AC3-1, AC5-1 và AC7-1 đã được xác định bằng phương

pháp hấp phụ/giải hấp phụ N2 và được biểu diễn trong Hình 8. Tất cả các mẫu đều cho thấy đường cong hấp phụ loại IV theo phân loại IUPAC và các vòng trễ loại H4, đặc trưng cho các vật liệu chứa vi lỗ xốp và lỗ xốp trung bình²²⁻²⁴. Dạng của đường cong đẳng nhiệt phản ánh mối liên hệ chặt chẽ với cấu trúc và hình dạng của các lỗ xốp. Theo biểu đồ, tro trấu có lượng hấp phụ thấp, cho thấy mật độ lỗ xốp của tiền chất trấu là rất ít. Ngược lại, lượng hấp phụ của tro trấu đã tăng đáng kể sau khi được xử lý bằng KOH để trích ly silica. Đặc biệt, lượng hấp phụ tiếp tục tăng khi tỉ lệ m_{NaOH} :mBC tăng trong mẫu có tẩm NaOH. Các thông số đặc trưng về độ xốp bao gồm diện tích bề mặt (SBET), tổng thể tích lỗ (V_{total}) và đường kính lỗ xốp của các mẫu tro trấu (TT), than sinh học (BC) và các than hoạt tính AC1-1, AC3-1, AC5-1 và AC7-1 đã được biểu diễn trong Bảng 1. Đặc biệt, diện tích bề mặt của AC7-1 đạt được là 823,913 m²/g, tăng lên gần 5 lần so với tro trấu, nhờ vào quá trình hoạt hóa bằng NaOH và kết hợp với siêu âm, tạo điều kiện thuận lợi cho sự phát triển của lỗ mao quản rỗng/xốp. NaOH có khả năng tác động và làm phân hủy các thành phần hữu cơ trong than, tạo ra các lỗ rỗng mới và mở rộng cấu trúc, loại bỏ chất hữu cơ không mong muốn, và tăng tính phân tán của hạt^{2,12}. Các lỗ rỗng và cấu trúc mở rộng này cung cấp nhiều không gian hơn cho các phân tử khí hoặc chất lỏng hấp phụ, làm tăng diện tích bề mặt



Hình 7: Giản đồ TGA và DTA của các mẫu tro trấu (TT), than sinh học (BC) và các than hoạt tính AC1-1, AC3-1, AC5-1 và AC7-1.

hiệu quả của than hoạt tính. So sánh với đặc tính của than hoạt tính từ tro trấu trong các nghiên cứu khác trên thế giới (Bảng 2) cho thấy rằng than hoạt tính được hoạt hóa từ quy trình không nung nhiệt trong nghiên cứu này có đặc tính rất tốt. Những kết quả này cho thấy quy trình mới trong nghiên cứu này đã tạo ra sản phẩm than hoạt tính tiềm năng thuận lợi cho việc nâng cao khả năng xúc tác, hấp phụ các phân tử nhỏ và cồng kềnh như phẩm nhuộm, chất khí và ngay cả kim loại nặng.

KẾT LUẬN

Như vậy, nghiên cứu này đã thành công trong việc thực hiện quy trình tổng hợp và xác định đặc tính hình thái cấu trúc của than hoạt tính (AC) từ tro trấu (RHA) thông qua phương pháp hoạt hóa hóa học mà không cần nung ở nhiệt độ cao. Bằng cách trích ly silica từ RHA để tạo thành than sinh học (BC), sau đó hoạt hóa bằng NaOH với máy siêu âm và sấy chân không, đã tạo ra than hoạt tính với cấu trúc và tính chất đặc trưng như cấu trúc vô định hình, xốp và rỗng với diện tích bề mặt tối đa đáng kể, đạt 823,913 m²/g ở tỷ lệ hoạt hóa NaOH và BC là 7:1. Những kết quả này đã làm nổi bật tiềm năng của than hoạt tính trong ứng dụng làm vật liệu hấp phụ trong môi trường nước hoặc khí, góp phần vào việc giải quyết các vấn đề môi trường ngày càng trở nên cấp bách. Đồng thời, nghiên cứu này cung cấp một cơ sở vũng chắc cho sự phát triển và ứng dụng của than hoạt tính từ tro trấu trong các ứng dụng bảo vệ môi trường với quy trình đơn

TT	Tên mẫu	Diện tích bề mặt (S _{BET}) (m ² /g)	Thể tích lỗ xốp (V _{total}) (cc/g)	Đường kính lỗ xốp (Pore Diameter) (Å)
1	Tro trấu	169,367	0,078	9,915
2	BC	289,220	0,190	10,198
3	AC1-1	404,292	0,202	10,218
4	AC3-1	791,914	0,346	10,832
5	AC5-1	817,396	0,383	9,844
6	AC7-1	823,913	0,418	9,792

Bảng 1: Diện tích bề mặt và kích thước lỗ xốp của các mẫu tro trấu (TT), than sinh học (BC) và các than hoạt tính AC1-1, AC3-1, AC5-1 và AC7-1.

Bảng 2: So sánh giá trị diện tích bề mặt của than hoạt tính với các công bố trên thế giới

TT	Phương pháp hoạt hóa	Diện tích bề mặt (SBET) (m²/g)	TLTK
1	Siêu âm với NaOH và sấy chân không 100°C	823,913	Nghiên cứu này
2	Nung 900°C với ZnCl $_2$	645	25
3	than sau quá trình nhiệt phân từ trấu được hoạt hóa bằng hơi nước ở nhiệt độ 800oC để tạo ra than hoạt tính	407	26
4	Hoạt hóa với H_3PO_4 và nung $400^{o}C$	615,2	27
5	Hoạt hóa với $\rm Na_2CO_3$ và nung ở nhiệt độ cao	570	28
6	Hoạt hóa với KOH và nung 600°C	755	29
7	Trấu được cacbon hóa ở nhiệt độ cố định và được hoạt hóa ở các nhiệt độ khác nhau (700 - 900°C) và thời gian lưu (60 - 90 phút)	589.67	30



Hình 8: Đường cong hấp phụ/giải hấp phụ khí N_2 của các mẫu tro trấu (TT), than sinh học (BC) và các than hoạt tính AC1-1, AC3-1, AC5-1 và AC7-1.

giản và tiết kiệm năng lượng.

LỜI CÁM ƠN

Nhóm tác giả chân thành cám ơn sự hỗ trợ về cơ sở vật chất và điều kiện tiến hành thí nghiệm của Phòng thí nghiệm cơ sở Khoa học Vật liệu thuộc Khoa Khoa học và Công nghệ Vật liệu, Trường Đại học Khoa học Tự nhiên, Đại học Quốc gia Thành phố Hồ Chí Minh, và đồng thời xin chân thành cám ơn sự hỗ trợ tài chính và thiết bị dụng cụ từ Công ty TNHH Thiết Bị Khoa Học LABone, Việt Nam đã tạo điều kiện cho quá trình hoàn thành các kết quả nghiên cứu này.

DANH MỤC CÁC TỪ VIẾT TẮT

AC (Activated Carbon): Than hoạt tính BC (biochar): Than sinh học EDX (Energy-dispersive X-ray spectroscopy): Phổ tác sắc năng lượng tia X FT-IR (Fourier-transform infrared spectroscopy): Phổ dao động hồng ngoại RHA (rice husk ash): Tro trấu SEM (A scanning electron microscope): Kính hiển vi điện tử quét TGA (Thermogravimetric analysis): Phân tích nhiệt trọng lượng VOCs (Voltile Organic Compounds): các hợp chất

hữu cơ có gốc Carbon rất dễ bay hơi. XRD (X-Ray diffraction analysis): Nhiễu xạ tia X

XUNG ĐÔT LƠI ÍCH

Chúng tôi cam kết không có bất kỳ xung đột lợi ích nào giữa các thành viên trong nhóm nghiên cứu

ĐÓNG GÓP CỦA CÁC TÁC GIẢ

- Huỳnh Thanh Lưu: Thực hiện các quy trình thực nghiệm, thống kê, tổng hợp số liệu các phép đo và biên soạn bản thảo.
- Đào Thị Băng Tâm: Thực hiện các quy trình thực nghiệm, thống kê, tổng hợp số liệu các phép đo và biên soạn bản thảo.
- Lê Mỹ Thoa: Thực hiện các quy trình thực nghiệm và thực hiện các phương pháp đo.
- Võ Thúy Vi: Định hướng nghiên cứu
- Đặng Tấn Hiệp: Định hướng nghiên cứu
- Hà Thúc Chí Nhân: Định hướng nghiên cứu, biên soạn và chỉnh sửa bản thảo.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

- Daljit Singh Karam, Prakash Nagabovanalli, Keeren Sundara Rajoo, Che Fauziah Ishak, Arifin Abdu, Zamri Rosli, Farrah Melissa Muharam, Dzarifah Zulperi. An overview on the preparation of rice husk biochar, factors affecting its properties, and its agriculture application", Journal of the Saudi Society of Agricultural Sciences . 2022; 3: 238833809, 149-159;.
- Van KL, et al. Activated carbon derived from rice husk by NaOH activation and its application in supercapacitor", Progress in Natural Science: Materials International. 2014; 24 (3): 191-198;.
- 3. Fabiane Figueiredo Severo, Leandro Souza da Silva, Janielly Silva Costa Moscôso, Qamar Sarfaraz, Luiz Fernando Rodrigues Júnior, Augusto Ferreira Lopes, Laura Brondani Marzari, Gustavo Dal Molin (2020), "Chemical and physical characterization of rice husk biochar and ashes and their iron adsorption capacity", SN Applied Sciences 2: 1286;.
- 4. Sadia Aziz, Bushra Uzair, Muhammad Ishtiaq Ali, Sundas Anbreen, Fatiha Umber,Muneeba Khalid, Alaa AA.Aljabali, Yachana Mishra, Vijay Mishra, Angel Serrano-Aroca, Gowhar A.Naikoo, Mohamed El-Tanani, Shafiul Haque, Abdulmajeed G. Almutary, Murtaza M.Tambuwala (2023), "Synthesis and characterization of nano biochar from rice husk biochar for the removal of safranin and malachite green from water", Environmental Research 238: 116909;.
- Phuong Thu Le, Huyen Thuong Bui, Duy Ngoc Le, Thi Hue Nguyen, Le Anh Pham, Hong Nam Nguyen, Quoc Son Nguyen, Thu Phuong Nguyen, Ngoc Trinh Bich, Thi Thuy Duong, Marine Herrmann, Sylvain Ouillon, and Thi Phuong Quynh Le (2021), "Preparation and Characterization of Biochar Derived from Agricultural By-Products for Dye Removal", Adsorption Science & Technology 2021: 9161904;.
- 6. Menya E, et al. Synthesis and evaluation of activated carbon from rice husks for removal of humic acid from water. Biomass Conversion and Biorefinery 12: 3229–3248. 2022;.
- Nayak PP. Synthesis of SiO2-Nanoparticles from Rice Husk Ash and its Comparison with Commercial Amorphous Silica through Material Characterization. Silicon 13: 1209–1214. 2021;.

- Phouthavong V, Hagio T, Park JH, Nijpanich S, Srihirunthanon T, Chantanurak N, et al. Utilization of agricultural waste to herbicide removal: Magnetic BEA zeolite adsorbents prepared by dry-gel conversion using rice husk ash-derived SiO2 for paraquat removal. Arab J Chem. 2023;16(8):104959;.
- Noureddine O, Manssouri I, Sahbi H, Limami H, Khaldoun A. Rheological and physicomechanical investigations on the destabilization of unfired clay bricks with almond husk additive by salt. Constr Build Mater. 2023;375:130971;.
- Yang YJ, Jo HK, Jang MH, Ma X, Jeon Y, Oh K, et al. A brief review of formaldehyde removal through activated carbon adsorption. Appl Sci. 2022;12:5025;.
- Ruan X, Cui X, Jia G, Wu J, Zhao J, Singh DJ, et al. Intramolecular heterostructured carbon nitride with heptazine-triazine for enhanced photocatalytic hydrogen evolution. Chem Eng J. 2022;428:132579;.
- Romero-Hernandez JJ, Paredes-Laverde M, Silva-Agredo J, Mercado DF, Ávila-Torres Y, Torres-Palma RA. Pharmaceutical adsorption on NaOH-treated rice husk-based activated carbons: Kinetics, thermodynamics, and mechanisms. J Clean Prod. 2024;434:139935;.
- Mistar EM, Alfatah T, Supardan MD. Synthesis and characterization of activated carbon from Bambusa vulgaris striata using two-step KOH activation. J Mater Res Technol. 2020;9(3):6278-6286;.
- Ogungbenro AE, Quang DV, Al-Ali KA, Vega LF, Abu-Zahr MR. Synthesis and characterization of activated carbon from biomass date seeds for carbon dioxide adsorption. J Environ Chem Eng. 2020;8(5):104257;.
- Yakout SM, El-Deen GS. Characterization of activated carbon prepared by phosphoric acid activation of olive stones. Arab J Chem. 2016;9:S1155-S1162;.
- Williams NE, Oba OA, Aydinlik NP. Modification, production, and methods of KOH-activated carbon. ChemBioEng Rev. 2022;9(2):164-189;.
- 17. Endale SA, Taffese WZ, Vo DH, Yehualaw MD. Rice husk ash in concrete. Sustainability. 2023;15(1):255082850;.
- Heo YJ, Park SJ. Synthesis of activated carbon derived from rice husks for improving hydrogen storage capacity. J Ind Eng Chem. 2015;31:330-334;.
- Parrillo A, Sánchez G, Bologna Alles A. α-Si3N4 and Si2N2O whiskers from rice husk and industrial rice husk ash. SN Appl Sci. 2021;3:268;.
- Vijayan R, Kumar GS, Karunakaran G, Surumbarkuzhali N, Prabhu S, Ramesh R. Microwave combustion synthesis of tin oxide-decorated silica nanostructure using rice husk template for supercapacitor applications. J Mater Sci Mater Electron. 2020;31:5738–5745;.
- Pereira MA, de Oliveira JE, Fonseca CS. Influence of the use of rice husk as source of silica on the sol-gel synthesis of bioglass. Cerâmica. 2021;67:333-337;.
- 22. Liu XY, Huang M, Ma HL, Zhang ZQ, Gao JM, Zhu YL, et al. Preparation of a carbon-based solid acid catalyst by sulfonating activated carbon in a chemical reduction process. Molecules. 2010;15:7188-7196;.
- Heo YJ, Park SJ. Synthesis of activated carbon derived from rice husks for improving hydrogen storage capacity. J Ind Eng Chem. 2015;31:330-334;.
- Liu Y, Guo Y, Gao W, Wang Z, Ma Y, Wang Z. Simultaneous preparation of silica and activated carbon from rice husk ash. J Clean Prod. 2012;32:204-209;.
- Ahiduzzaman M, Islam AKMS. Preparation of porous bio-char and activated carbon from rice husk by leaching ash and chemical activation. SpringerPlus. 2016;5:1248;.
- 26. Olupot PW, Wakatuntu J, Turyasingura M, Jjagwe J, Menya E, Okure M. Optimization of heavy metal removal by activated carbon obtained as a co-product from fast pyrolysis of rice husks. Results Mater. 2024;21:100545;.

- Dada AO, Inyinbor AA, Tokula BE, Bello OS, Pal U. Preparation and characterization of rice husk activated carbonsupported zinc oxide nanocomposite (RHAC-ZnO-NC). Heliyon. 2022;8:10167;.
- Liu Y, Guo Y, Zhu Y, An D, Gao W, Wang Z, et al. A sustainable route for the preparation of activated carbon and silica from rice husk ash. J Hazard Mater. 2011;186:1314-1319;
- Nandi R, Jha MK, Guchhait SK, Sutradhar D, Yadav S. Impact of KOH activation on rice husk derived porous activated carbon for carbon capture at flue gas alike temperatures with high CO2/N2 selectivity. ACS Omega. 2023;8:4802-4812;.
- Yadav BK, Kumar A. Activated carbon from rice husk: Optimization and characterization. Key Eng Mater. 2023;960(3):185-195;.

Open Access Full Text Article

Synthesis, Characterization of Activated Carbon from Rice Husk Ash and Influence of NaOH Ratio on its Properties

Thanh Luu Huynh¹, Bang Tam Thi Dao^{2,3}, My Thoa Le^{2,3}, Chi Nhan Ha-Thuc^{2,3,*}, Tan Hiep Dang^{1,*}, Thuy Vi Vo^{1,*}

ABSTRACT

This study presents the synthesis and characterization of activated carbon (AC) derived from rice husk ash (RHA) using a chemical activation method that does not require high-temperature heating. RHA, obtained from burning rice husks as a fuel for industrial boilers, was subjected to silica extraction to form biochar (BC). BC is then activated with NaOH using an ultrasound machine and vacuum-dried to form activated carbon (AC). The influence of the mass ratio of NaOH to BC (m_{NaOH} :m_{BC}) on the specific properties of the activated carbon was systematically analyzed such as structure, porous morphology, and thermal behavior. The results show that the activated carbon exhibits an amorphous structure with a surface consisting of randomly distributed particles of several micrometers in size. Furthermore, the activated carbon possessed a porous and hollow structure with varying pore sizes. Notably, the maximum surface area of the activated carbon was achieved at a NaOH to BC activation ratio of 7:1, reaching 823,913 m²/g. These findings underscore the suitability of the synthesized activated carbon for applications as adsorbent materials in water or gas, suggesting its potential for environmental remediation purposes.

Key words: activated carbon, biochar, rice husk ash, ultrasound activation, adsorption

¹Faculty of Chemical Technology, Ho Chi Minh City University of Industry and Trade, Vietnam

²Faculty of Materials Science and Technology, University of Science, Ho Chi Minh City, Vietnam

³Vietnam National University, Ho Chi Minh City, Vietnam

Correspondence

Chi Nhan Ha-Thuc, Faculty of Materials Science and Technology, University of Science, Ho Chi Minh City, Vietnam

Vietnam National University, Ho Chi Minh City, Vietnam

Email: htcnhan@hcmus.edu.vn

Correspondence

Tan Hiep Dang, Faculty of Chemical Technology, Ho Chi Minh City University of Industry and Trade,Vietnam

Email: hiepdt@huit.edu.vn

Correspondence

Thuy Vi Vo, Faculty of Chemical Technology, Ho Chi Minh City University of Industry and Trade, Vietnam

Email: vivt@huit.edu.vn