

DOI:10.22144/ctu.jvn.2021.171

NGHIÊN CỨU VẬT LIỆU COMPOSITE THÂN THIỆN MÔI TRƯỜNG TỪ SỢI CUỐNG DỪA NƯỚC VÀ NHỰA POLYETHYLENE TỶ TRỌNG CAO TÁI CHẾ

Cao Lưu Ngọc Hạnh*, Nguyễn Thị Bích Thuyền, Lương Huỳnh Vũ Thanh, Mai Võ Phú Toàn và Trần Nguyễn Phương Lan

Khoa Công nghệ, Trường Đại học Cần Thơ

*Người chịu trách nhiệm về bài viết: Cao Lưu Ngọc Hạnh (email: clnhanh@ctu.edu.vn)

Thông tin chung:

Ngày nhận bài: 16/06/2021

Ngày nhận bài sửa: 28/07/2021

Ngày duyệt đăng: 25/12/2021

Title:

Study on biocomposite materials from *nypa fruticans* flower stalk fibers and recycled high-density polyethylene

Từ khóa:

NFFS, polyethylene tỷ trọng cao tái chế, sợi cuống dừa nước, vật liệu composite thân thiện môi trường

Keywords:

Biocomposite materials, NFFS, *Nypa fruticans* flower stalk fibers, recycled high-density polyethylene

ABSTRACT

In this study, recycled high-density polyethylene (r-HDPE)-based composite materials reinforced with *Nypa fruticans* flower stalk (NFFS) fibers were fabricated by hot-pressing methods. First, the fibers extracted from NFFS were chemically treated and pressed to create a random mat. Next, plastic containers from HDPE were collected, washed, chopped, and hot-pressed to create thin flat sheets. Finally, the composite materials were formed by hot-pressing alternating layers of plastics and fibers. The morphology and composition changes of NFFS fibers before and after chemical treatment were observed via scanning electron microscope and thermogravimetric analysis. The effects of the volume ratio of NFFS fibers on the shrinkage, tensile strength, flexural strength, and impact strength of composite materials were also investigated. As a result, NFFS fibers have a cellulose content of ~34% with lots of microfibrils in a parallel arrangement. It is interesting that NFFS fibers do not possess large central holes, which make a significant difference in mechanical properties compared to some other natural fibers. The material's mechanical properties are the best at a fiber volume ratio of 60%, having a tensile strength of ~45 MPa, a flexural strength of ~46 MPa, and an impact strength of ~19 KJ.m⁻². As expected, these results are approximately two times higher than that of the composite materials from coir fibers under the same conditions.

TÓM TẮT

Vật liệu composite nền polyethylen tỷ trọng cao tái chế (r-HDPE) gia cường bằng sợi cuống dừa nước (*Nypa fruticans* flower stalk - NFFS) được chế tạo bằng phương pháp ép nóng. Đầu tiên, các sợi sau khi tách từ NFFS được xử lý hoá học và ép tạo tấm sợi ngẫu nhiên. Tiếp theo, thùng nhựa từ HDPE được thu gom, rửa sạch, cắt nhỏ, và ép nóng để tạo tấm phẳng mỏng. Cuối cùng, tấm composite được tạo hình từ các lớp nhựa và sợi xen kẽ nhau. Cấu trúc và thành phần sợi NFFS trước và sau xử lý hoá học lần lượt được quan sát qua ảnh SEM và phân tích qua TGA. Ảnh hưởng của tỷ lệ thể tích sợi NFFS đến độ co ngót, độ bền kéo, độ bền uốn, và độ bền va đập cũng được khảo sát. Kết quả là sợi NFFS có hàm lượng cellulose ~34% với các vi sợi xếp song song. Điều thú vị là sợi NFFS không có lỗ rỗng to ở trung tâm đã tạo nên khác biệt lớn về cơ tính so với một số sợi thực vật khác. Cơ tính của vật liệu đạt cao nhất ở tỷ lệ thể tích sợi 60%, có độ bền kéo ~45 MPa, độ bền uốn ~46 MPa, và độ bền va đập ~19 KJ.m⁻². Như mong đợi, kết quả này cao hơn gần gấp đôi so với kết quả cơ tính của vật liệu composite từ sợi xơ dừa ở cùng điều kiện.

1. GIỚI THIỆU

Cùng với sự phát triển mạnh mẽ của vật liệu composite và những giá trị to lớn mà vật liệu này mang lại vẫn còn tồn tại nhiều nhược điểm như: nhiều loại composite có tuổi thọ ngắn nhưng mất rất nhiều thời gian để có thể phân hủy, một số khác không thể tái sử dụng cũng như phân hủy sinh học, composite từ sợi thủy tinh sau khi sử dụng rất khó để tiêu hủy, bụi thủy tinh được đánh giá là tác nhân gây ung thư phổi... (Nguyễn Hoa Thịnh & Nguyễn Đình Đức, 2002).

Trước những ảnh hưởng to lớn của vật liệu composite đối với môi trường sinh thái và con người, việc sản xuất vật liệu composite đã có những thay đổi theo hướng tăng cường nghiên cứu nguồn nguyên liệu có nguồn gốc tự nhiên, trong đó việc sử dụng sợi tự nhiên thay thế sợi tổng hợp làm vật liệu gia cường cho vật liệu composite được ưu tiên chọn lựa. Các sản phẩm composite từ sợi xơ dừa, sợi từ bẹ dừa nước, ... được nghiên cứu và ứng dụng rộng rãi trong đời sống. Hoàng Xuân Niên (2012) đã nghiên cứu về vật liệu composite kết hợp sợi xơ dừa với nhựa r-HDPE. Kết quả cho thấy vật liệu composite từ sợi xơ dừa và nhựa r-HDPE có các đặc tính cơ học đáp ứng đầy đủ yêu cầu của TCVN 7754-5-2007. Võ Tấn Phát (2013) đã nghiên cứu về composite từ sợi bẹ dừa nước và polyester không no. Kết quả cho thấy sợi từ bẹ dừa nước có các đặc tính tương đối tốt, tuy nhiên cơ tính của sợi bẹ dừa nước có phần thấp hơn so với xơ dừa nhưng vẫn đáp ứng được yêu cầu của sợi gia cường cho vật liệu composite. Dickie et al. (2020) đã nghiên cứu quy trình tối ưu để tách sợi từ bẹ dừa nước, kết quả nghiên cứu chỉ ra rằng việc xử lý hóa học giúp việc tách sợi diễn ra nhanh và hiệu quả hơn. Tamunaidu & Saka (2011) thực hiện nghiên cứu thành phần cơ bản của các bộ phận cây dừa nước, kết quả cho thấy hàm lượng cellulose ở các bộ phận có sự biến động khá lớn từ 28,9 – 45,6%, hàm lượng hemicellulose ở mức trung bình 21,8 – 26,4%, lignin chiếm 19,4 – 33,8%, protein, sáp và các chất hữu cơ vi lượng chiếm từ 2 – 8%, ngoài ra lượng chất tro từ 5,1 đến 11,7%. Maunpanil et al. (2012) đã thực hiện nghiên cứu so sánh độ bền kéo giữa sợi bẹ dừa nước được xử lý cơ học bằng cách xé toai và chải sạch với sợi còn trong bẹ, kết quả cho thấy sợi được làm sạch cơ học có độ bền kéo cao hơn (32 MPa so với 24 MPa), mức độ giãn dài giảm rõ rệt (5,5% so với 10,8%). Rasidy et al. (2014) đã nghiên cứu đặc tính bền nhiệt của composite từ sợi bẹ dừa nước với nhựa LDPE, khi sợi bẹ dừa nước được thấm copolymer Polypropylene - Lactic Acid, mẫu vật liệu

composite có những cải thiện rõ rệt về mức độ ổn định nhiệt so với composite từ LDPE và sợi bẹ dừa nước. Mặc dù composite từ sợi thực vật có cơ tính thấp hơn so với composite từ sợi nhân tạo nhưng với ưu thế là nhẹ hơn và thân thiện với môi trường nên các sản phẩm composite từ sợi tự nhiên dần được ứng dụng rộng rãi và thay thế một phần composite từ sợi nhân tạo (Trần Vĩnh Diệu và ctv., 2018).

Trong đề tài này, sợi tự nhiên gia cường cho vật liệu composite được tách từ cuống dừa nước (*Nypa fruticans* flower stalk - NFFS), phần còn lại sau khi khai thác dịch đường hoặc thu hoạch buồng dừa nước để lấy quả. Đây là loại sợi tự nhiên hầu như chưa được nghiên cứu để gia cường cho vật liệu composite. Trước đây, sợi NFFS được người dân ở vùng Tây Nam Bộ sử dụng làm chổi bện và làm một số dụng cụ vệ sinh trong đời sống hằng ngày, tuy nhiên đến hiện tại hầu như không còn ứng dụng liên quan đến sợi NFFS. Nhựa nền được sử dụng là nhựa polyethylene tỷ trọng cao tái chế (r-HDPE), một loại nhựa được tái chế từ các sản phẩm bao bì sử dụng phổ biến trong đời sống (Bùi Chương, 2002). Việc sử dụng rộng rãi bao bì nhựa HDPE dẫn đến việc phát sinh quá mức nguồn nhựa phế thải, trong khi sự phân hủy của những loại nhựa từ nguồn dầu mỏ này mất đến hàng trăm năm. Vì thế, việc tái chế lại nhựa HDPE để làm nền cho vật liệu composite không chỉ với mục đích tạo ra sản phẩm rẻ có giá trị mà còn giải quyết vấn đề môi trường do rác thải nhựa gây ra.

2. PHƯƠNG PHÁP NGHIÊN CỨU

2.1. Nguyên liệu

Cuống dừa nước 6-8 tháng tuổi với chiều dài 100-130 cm được thu gom tại kênh 6000, xã Phong Thạnh Tây A, huyện Phước Long, tỉnh Bạc Liêu. Nhựa r-HDPE được sử dụng là vỏ thùng nước rửa chén hiệu Sunlight.

Các hóa chất sử dụng trong quá trình xử lý hóa học cho sợi NFFS gồm có: sodium hydroxide (NaOH, 99%, Zongtai, Trung Quốc), sodium sulfide (Na₂S, 99%, Xilong, Trung Quốc) và hydrogen peroxide (H₂O₂, 50%, Intercox, Thái Lan). Các hóa chất được sử dụng trực tiếp không phải tinh chế lại.

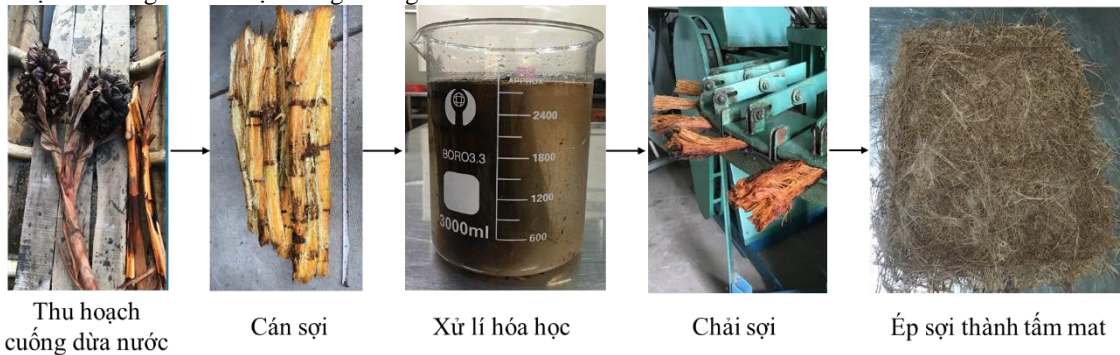
2.2. Các bước tiến hành

2.2.1. Quá trình tạo mat sợi từ NFFS

NFFS sau khi bỏ vỏ ngoài được cán giập bằng thiết bị cán sợi nhằm loại bỏ một phần dịch nhựa và phá vỡ cấu trúc của bó sợi, giúp cho công đoạn xử lý hoá học (NaOH, Na₂S, Na₂S/NaOH) thuận lợi hơn. Điều đặc biệt trong nghiên cứu này là việc xử

lý hoá học được thực hiện trước khi chải sợi bởi vì khác với những loại tự nhiên khác, cuống dừa nước chứa hàm lượng sợi rất cao với cấu trúc liên kết chặt chẽ nên rất khó khăn trong việc chải sợi bằng máy nếu không xử lý hoá học trước. Cụ thể là các sợi hoặc không thể tách rời, hoặc khi tách rời được thì trở nên đứt gãy vì sử dụng lực xé tương đối lớn. Chính vì thế, cuống dừa nước sau khi cán gập được xử lý hoá học trước để loại bỏ phần mụn dừa và lignin liên kết giữa các sợi. Từ đó, việc chải sợi được dễ dàng hơn. Thêm vào đó, việc xử lý hoá học trong nghiên cứu này chỉ với mục đích loại bỏ phần lignin và mụn dừa ở giữa các sợi trong cuống dừa nước

thay vì loại bỏ lignin/hemicellulose bên trong sợi cuống dừa nước. Sau đó, sợi được rửa sạch lại với nước và tiến hành chải sợi trên máy. Các bó sợi được chia thành nhiều phần nhỏ và lắp đều trên mâm kẹp, hai trống quay sẽ lần lượt chải qua các bó sợi theo hai chiều thuận-nghịch nhằm đảm bảo toàn bộ phần sợi đều được chải sạch. Cuối cùng, các sợi được dàn trải đều trên khuôn và ép trên máy ép gia nhiệt, thời gian ép 3 phút và nhiệt độ cài đặt là 120°C. Sau khi ép thành tấm, mat sợi NFFS được cắt lại theo kích thước của mẫu composite là 25x25 cm. Quá trình tạo mat sợi từ NFFS được mô tả như Hình 1.

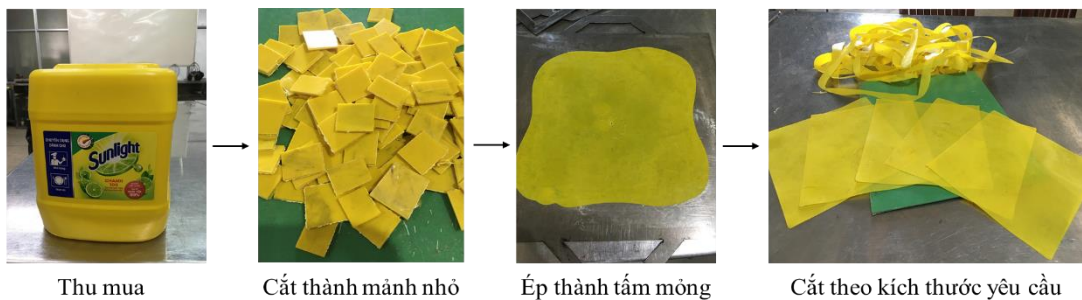


Hình 1. Quá trình tạo mat sợi từ NFFS

2.2.2. Chuẩn bị tấm nhựa mỏng từ r-HDPE

Thùng nhựa sau khi loại bỏ nhãn được tẩy sạch keo dán bằng acetone. Sau đó, thùng được cắt đôi, rửa sạch, phơi khô, rồi cắt thành mảnh nhỏ. Các mảnh nhựa này được rải đều lên tấm lót sao cho dàn trải

toàn bộ diện tích mong muốn khi tạo hình trên máy ép. Thời gian ép 6 phút ở 145°C và giải nhiệt bằng không khí. Tấm nhựa r-HDPE thu được có độ dày khoảng 0,4 mm và được cắt thành tấm có kích thước 25x25 cm. Quá trình chuẩn bị tấm nhựa được thể hiện trong Hình 2.

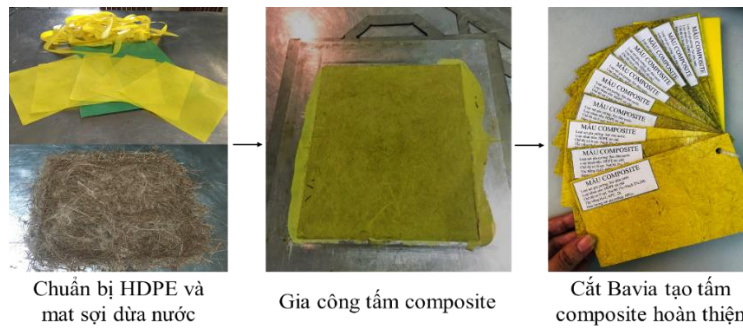


Hình 2. Quá trình tái chế nhựa HDPE

2.2.3. Gia công mẫu composite từ mat sợi NFFS và tấm nhựa r-HDPE

Tấm composite từ sợi NFFS và r-HDPE được gia công bằng phương pháp ép nóng. Đầu tiên, các lớp nhựa và mat sợi được xếp xen kẽ với nhau. Tiếp theo là đặt vào khuôn và ép ở nhiệt độ thích hợp với thời gian gia công 10 phút, thời gian giải nhiệt 15 phút. Tấm composite sau khi ép cần được cố định

trong khuôn và thực hiện giải nhiệt trên máy ép, vì trong quá trình giải nhiệt cho tấm composite, phần vật liệu ở bề mặt sẽ được làm nguội trước, trong khi phần vật liệu bên trong vẫn có nhiệt độ cao, quá trình giải nhiệt không đồng đều là một trong những nguyên nhân gây ra hiện tượng cong vênh đối với vật liệu composite từ nhựa nhiệt dẻo. Hình 3 thể hiện các bước gia công tấm composite từ sợi NFFS và nhựa r-HDPE.



Hình 3. Quá trình gia công tấm composite từ sợi NFFS và HDPE

2.3. Phương pháp phân tích

Cấu trúc sợi từ NFFS (cả mặt cắt ngang và bề mặt sợi) được quan sát dưới kính hiển vi quét điện tử (SEM, JSM-IT100, Jeol, Nhật Bản). Thêm vào đó, mẫu sợi NFFS trước và sau khi xử lý hoá học được phân tích nhiệt (TGA/DSC 3+, Mettler Toledo, Thụy Sĩ) với tốc độ gia nhiệt 5°C/phút ở 100–600°C. Dựa vào độ bền nhiệt của các thành phần có trong mẫu sợi dừa nước (như cellulose, hemicellulose, lignin...) để ước lượng khối lượng của các thành phần tương ứng.

Độ co ngót của vật liệu composite được khảo sát với các mẫu ở các hàm lượng sợi dừa nước 30 – 80% theo thể tích với kích thước 250x250x3 mm, tiến hành đo kích thước mẫu và ghi nhận số liệu. Độ co ngót tuyệt đối (Δl) được tính bằng hiệu số giữa kích thước mẫu đo được và kích thước lòng trong của khuôn, tính bằng mm.

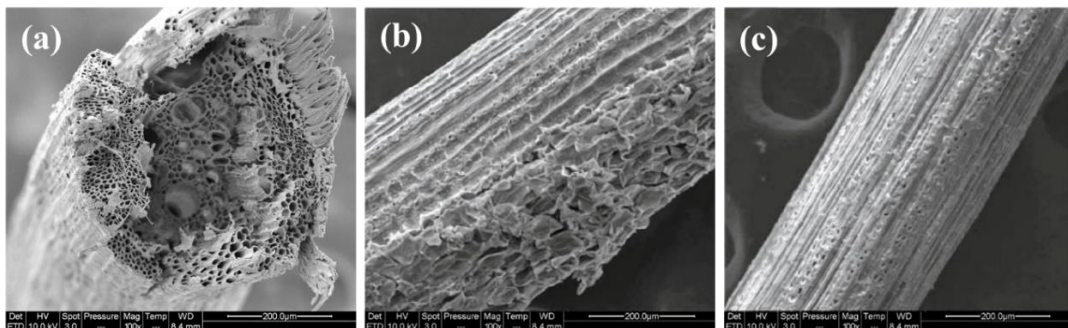
Độ bền kéo, độ bền uốn, và độ bền va đập của vật liệu composite của các mẫu trước và sau khi xử lý hoá học, trước và sau khi tẩy trắng được xác định lần lượt theo tiêu chuẩn ASTM D638-03 (kích thước mẫu thử là 165x10x3 mm), ASTM D7264-02 (kích thước mẫu thử 45x15x3 mm), và ASTM D6110-04 (127x12,7x3 mm, kiểu thử Charpy) với 5 lần lặp lại.

3. KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN

3.1. Cấu trúc và thành phần hoá học của sợi NFFS

3.1.1. Cấu trúc của sợi NFFS

Cấu trúc của sợi NFFS được quan sát dưới kính hiển vi điện tử quét cho thấy nhiều vi sợi rỗng xếp song song có đường kính không đồng đều từ 5 – 50 μm (Hình 4a). Hơn nữa, sợi NFFS được quan sát thấy có mật độ sợi cao. Cấu trúc này khác biệt so với loại sợi tự nhiên phổ biến khác, chẳng hạn như sợi xơ dừa với cấu trúc chứa lỗ rỗng có đường kính to ở trung tâm nên mật độ sợi thấp. Điều này giúp dự đoán rằng cơ tính của sợi NFFS cao hơn một số loại sợi tự nhiên khác. Ngoài ra, trên Hình 4b thể hiện trên bề mặt của lớp vi sợi bên ngoài cùng được bao bọc bởi lớp mụn xốp chứa hàm lượng cao lignin, đây là thành phần cần loại bỏ để nâng cao bề mặt liên diện giữa sợi NFFS và nhựa nền khi tạo tấm composite. Hình 4c thể hiện hình ảnh sợi NFFS đã được xử lý hoá học với NaOH để loại bỏ một phần lignin và hemicellulose trên bề mặt sợi. Vì thế, tầng vi sợi bên trong được thể hiện rõ. Ngoài ra, trên bề mặt còn có rất nhiều lỗ rỗng, là vị trí để nhựa nền bám dính tốt hơn, góp phần tăng độ bền liên diện cho vật liệu composite. Đường kính sợi cũng có sự khác biệt rất lớn giữa hai mẫu, mẫu sợi thô (Hình 4b) có đường kính $\sim 300 \mu\text{m}$, trong khi mẫu sợi đã qua xử lý (Hình 4c) có đường kính $\sim 230 \mu\text{m}$. Điều này cho thấy tác động của quá trình xử lý hóa học đã loại bỏ một số thành phần của sợi NFFS.



Hình 4. Ảnh SEM của sợi từ NFFS: mặt cắt ngang (a), bề mặt sợi chưa xử lý (b), và bề mặt sợi đã xử lý với NaOH (c)

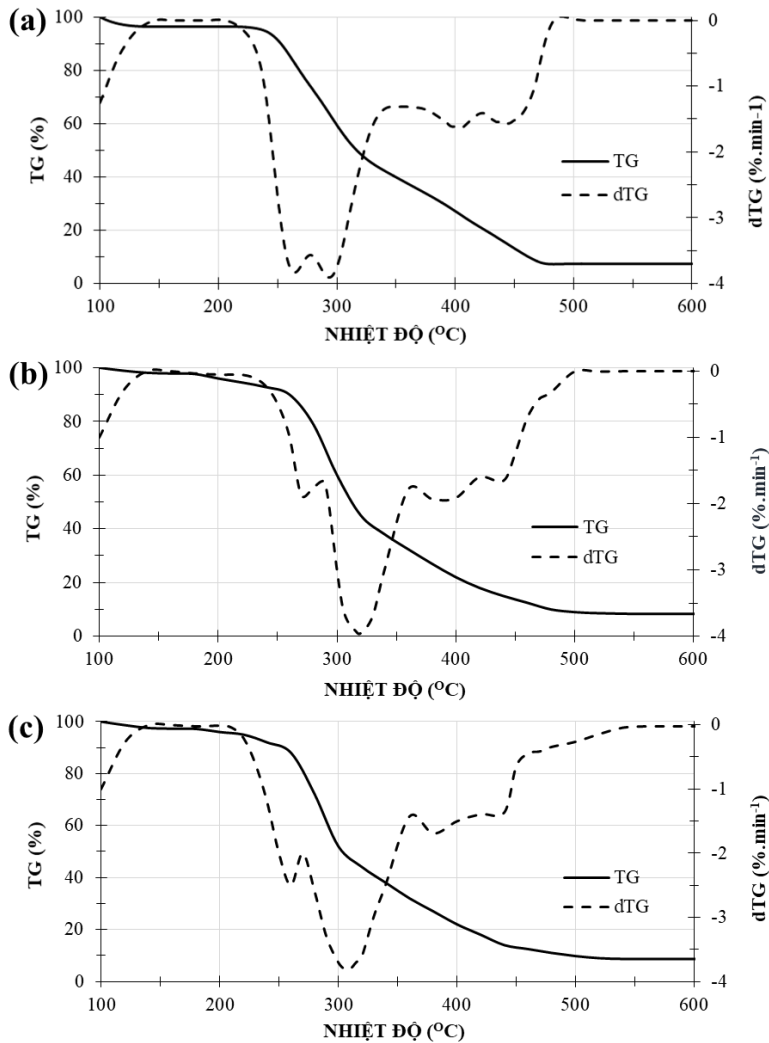
3.1.2. Thành phần hóa học của sợi NFFS trước và sau khi xử lý hoá học

Thành phần hóa học của sợi NFFS trước và sau khi xử lý hoá học được ước lượng thông qua phép phân tích nhiệt trọng lượng. Mẫu sợi được cắt nhỏ, cho vào chén nung và miền nhiệt độ ghi nhận số liệu cho phân tích mẫu ở 100 – 600°C, tốc độ gia nhiệt cho mẫu là 5°C.phút⁻¹. Kết quả phân tích nhiệt trọng lượng của sợi NFFS bao gồm giản đồ TG và dTG được thể hiện ở Hình 5.

Dựa vào các điểm tới hạn trên đường dTG và nhiệt độ phân hủy của các thành phần cơ bản để xác định độ giảm khối lượng trong các khoảng nhiệt độ và thành phần hóa học ứng với khoảng nhiệt độ đó. Theo nghiên cứu của Hosokawa et al. (2017) và

Gomez et al. (2021), hemicellulose có độ bền nhiệt dưới 270°C, cellulose bền nhiệt đến 300°C và lignin là thành phần bền nhiệt nhất và phân hủy ở nhiệt độ trên 300°C. Sau quá trình xử lý số liệu, thành phần hóa học chính của sợi NFFS được trình bày ở Bảng 1.

Như vậy, hàm lượng cellulose có trong sợi NFFS trước xử lý (Hình 5a) khoảng 34%, xấp xỉ hàm lượng cellulose có trong sợi xơ dừa vào khoảng 30 – 40% (Ofaruk & Sain, 2014). Trong khi đó, hàm lượng lignin khoảng 34,5% thấp hơn đáng kể so với sợi xơ dừa từ 40 – 45% (Ofaruk & Sain, 2014). Hàm lượng hemicellulose trong sợi NFFS khoảng 23,3%, ở mức trung bình so với các loại sợi tự nhiên là 20 – 25% (Ofaruk & Sain, 2014).



Hình 5. Giản đồ nhiệt trọng lượng của sợi NFFS: không xử lý (a), xử lý với NaOH 3% (b), và xử lý với Na₂S 3% (c)

Bảng 1. Thành phần của sợi NFFS trước và sau khi xử lý hoá học

Thành phần	Sợi tự nhiên	Sợi xử lý NaOH	Sợi xử lý Na ₂ S
Hemicellulose (%)	23,33	15,42	16,03
Cellulose (%)	33,96	46,61	45,98
Lignin (%)	34,50	28,43	28,77
Chất vô cơ (%)	8,21	8,54	9,22

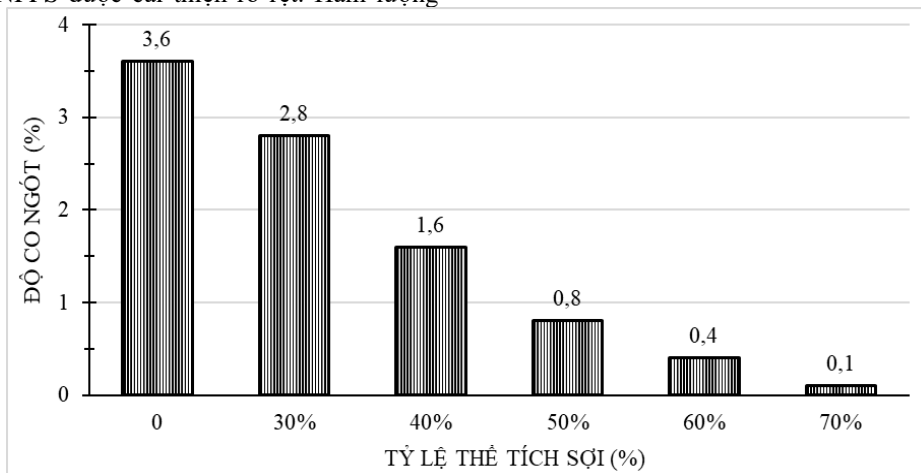
Phân tích tương tự, mẫu sợi sau khi xử lý hóa học trong dung dịch NaOH 3% và Na₂S trong 24 h được thể hiện ở Hình 5b và Hình 5c. Đối chiếu với kết quả phân tích ở giản đồ nhiệt trọng lượng của sợi NFFS tự nhiên, xu hướng chung của các đường biểu diễn TG và dTG có điểm tới hạn ở nhiệt độ cao hơn, các điểm tới hạn ở sợi tự nhiên là 264, 294 và 445°C, trong khi sợi xử lý NaOH là 272, 304 và 450°C, tương ứng ở sợi xử lý Na₂S là 270, 308 và 446°C. Ở nhiệt độ < 270°C, mẫu sợi có xử lý ít biến đổi khối lượng hơn, điều này đồng nghĩa với một phần hemicellulose đã bị loại bỏ trong quá trình xử lý. Tương tự như hemicellulose, ở nhiệt độ > 400°C, mức độ giảm khối lượng cũng trở nên ít hơn so với mẫu sợi chưa xử lý. Điều này khẳng định một phần lignin trong sợi NFFS đã bị loại bỏ trong quá trình xử lý hóa học. Bảng 1 thể hiện thành phần của sợi NFFS trước và sau khi xử lý hóa học.

Sau quá trình xử lý hóa học, hàm lượng cellulose trong sợi NFFS được cải thiện rõ rệt. Hàm lượng

cellulose từ 33,96% ở sợi chưa xử lý, tăng đến 46,61% khi xử lý với NaOH và 45,98% khi xử lý với Na₂S. Bên cạnh đó, quá trình xử lý hóa học giúp tăng tính bền nhiệt cho sợi NFFS khi hóa chất xử lý phản ứng với sợi cellulose tạo thành các hợp chất Sodium Cellulose (Ofaruk & Sain, 2014).

3.2. Khảo sát ảnh hưởng của hàm lượng sợi đến độ co ngót của vật liệu composite

Ảnh hưởng của hàm lượng sợi NFFS tự nhiên (không qua xử lý) đến độ co ngót của vật liệu composite được thể hiện ở Hình 6. Kết quả cho thấy mức độ co ngót của vật liệu có xu hướng giảm dần tương ứng với độ tăng của hàm lượng thể tích sợi, với hàm lượng sợi chiếm từ 50% thể tích trở lên thì vật liệu có độ co ngót rất thấp (<= 0,8%). Điều này có ý nghĩa rất lớn trong việc chống biến dạng sau gia công cho composite nhựa nhiệt dẻo, giúp cho vật liệu hạn chế được mức độ cong vênh thường thấy khi gia công nhựa nhiệt dẻo.



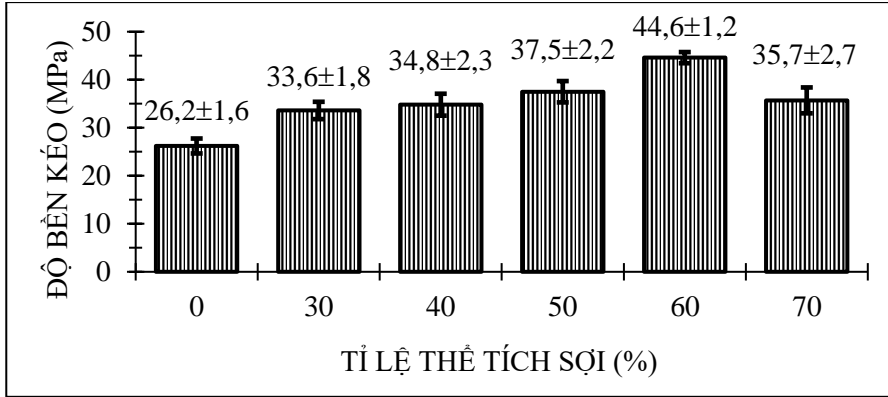
Hình 1. Độ co ngót của vật liệu composite với tỷ lệ thể tích sợi khác nhau

3.3. Khảo sát ảnh hưởng của hàm lượng sợi đến cơ tính của vật liệu composite

3.3.1. Kết quả cơ tính kéo

Các mẫu composite với các hàm lượng sợi 0, 30, 40, 50, 60, 70, 80% về thể tích được khảo sát. Mẫu

được cắt và thử độ bền kéo theo phương pháp ASTM D638. Độ bền kéo trung bình của vật liệu composite tương ứng với các hàm lượng sợi khác nhau được thể hiện trên Hình 7.



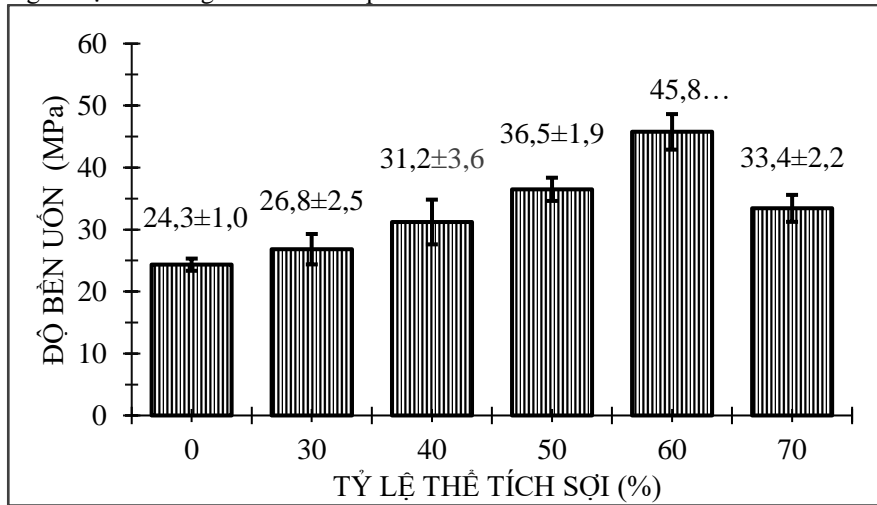
Hình 2. Độ bền kéo của mẫu composite tương ứng với các tỷ lệ thể tích sợi khác nhau

Độ bền kéo của mẫu thử có xu hướng tăng khi gia tăng hàm lượng sợi NFFS, tuy nhiên hàm lượng sợi tối ưu là 60% thể tích, nguyên nhân là với hàm lượng sợi quá cao, phần nhựa nền không đủ để lấp đầy các khoảng trống giữa các sợi, gây nên những vùng rỗng bên trong cấu trúc của vật liệu, những vùng này không có sự liên kết giữa các thành phần

sợi – nhựa, khiến cho vật liệu trở nên yếu đi và dễ hút ẩm hơn.

3.3.2. Kết quả cơ tính đo uốn

Ảnh hưởng của hàm lượng sợi NFFS đến độ bền uốn trung bình của vật liệu composite được thể hiện ở Hình 8.



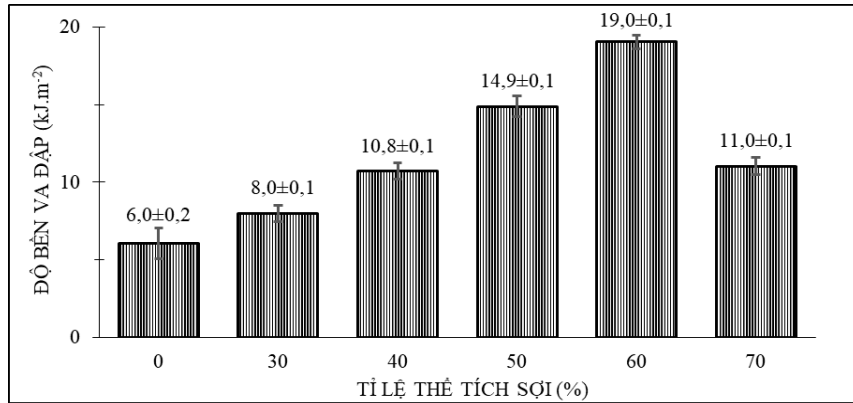
Hình 8. Độ bền uốn của mẫu composite tương ứng với các tỷ lệ thể tích sợi khác nhau

Kết quả thử nghiệm độ bền uốn của mẫu vật liệu composite với các hàm lượng sợi khác nhau cho kết quả tương tự với thử nghiệm độ bền kéo, xu hướng của độ bền uốn cũng tăng theo hàm lượng thể tích của sợi, hàm lượng sợi gia cường tối ưu cũng là 60% thể tích. Mẫu có hàm lượng sợi 70% đạt tải trọng tối đa rất nhanh và đứt gãy ở khoảng biến dạng rất nhỏ so với các mẫu còn lại. Điều này cho thấy ý nghĩa quan trọng của việc lựa chọn phối liệu cho các thành phần đối với đặc tính cơ học của vật liệu composite.

3.3.3. Kết quả đo va đập

Ảnh hưởng của hàm lượng sợi đến độ bền va đập của vật liệu composite được biểu diễn ở Hình 9.

Nhìn chung, độ bền va đập của mẫu thử có xu hướng tăng theo chiều tăng hàm lượng thể tích của thành phần sợi gia cường. Tuy nhiên, giá trị động năng thử đạt cực đại ở mẫu composite chứa 60% thể tích sợi và giảm mạnh khi tăng hàm lượng thể tích sợi đến 70%. Nguyên nhân cũng giống như ở các thử nghiệm trước, do hàm lượng sợi quá nhiều và nhựa nền không đủ thể tích để lấp đầy các khoảng trống giữa các sợi làm cho cấu trúc của composite không đồng đều, mức độ kết dính thấp (Ofaruk & Sain, 2014).



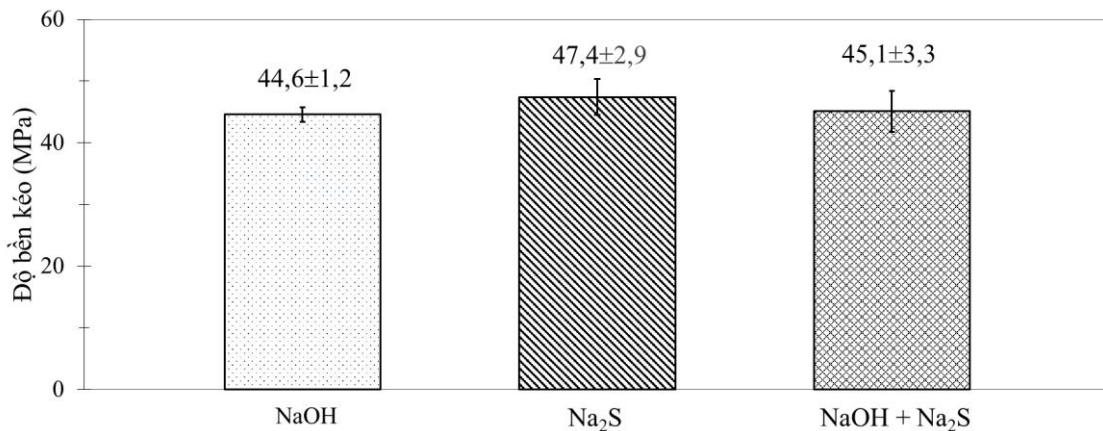
Hình 9. Độ bền va đập của mẫu composite tương ứng với các tỷ lệ thể tích sợi khác nhau

3.4. Khảo sát ảnh hưởng của tác nhân xử lý sợi đến cơ tính của vật liệu composite

Mẫu composite có thành phần sợi NFFS chiếm 60% thể tích, các tác nhân xử lý sợi gồm dung dịch NaOH 3%, dung dịch Na₂S 3%, dung dịch kết hợp 1% NaOH và 2% Na₂S, thời gian xử lý sợi là 24 h.

3.4.1. Kết quả đo độ bền kéo

Mẫu composite từ sợi NFFS được xử lý với các tác nhân khác nhau được đo độ bền kéo theo tiêu chuẩn ASTM D638-02 và kết quả được thể hiện ở Hình 10.



Hình 10. Độ bền kéo của mẫu composite từ sợi NFFS xử lý với các tác nhân khác nhau

Kết quả đo độ bền kéo của mẫu composite được xử lý bằng các dung dịch hóa học khác nhau cho thấy mẫu composite kết hợp với sợi NFFS được xử lý trong dung dịch Na₂S có độ bền kéo cao nhất, mẫu composite kết hợp sợi xử lý Na₂S + NaOH có cơ tính kéo trung bình, thấp nhất là mẫu composite từ sợi xử lý bằng NaOH. Nguyên nhân dẫn đến sự khác biệt này là do pH của môi trường xử lý sợi, với dung dịch NaOH 3% giá trị pH tương ứng ~13,9, giá trị pH ở dung dịch gồm 1% NaOH + 2% Na₂S ~13,6, riêng dung dịch Na₂S 3% có pH thấp nhất ~12,9. Trong môi trường pH cao, một phần lignin và hemicellulose bị hòa tan vào dung dịch, song song với quá trình này là sự ngắt mạch của các sợi cellulose làm cho sợi bị giảm độ bền kéo (Hồ Sĩ Tráng, 2002). Mặc dù có sự khác biệt về mật thông

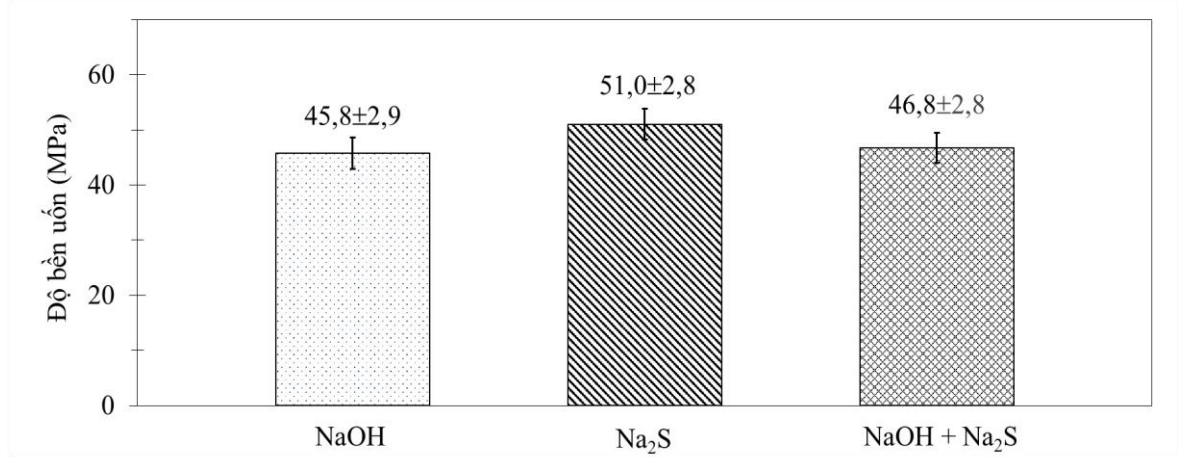
số đo đặc trưng bình giữa các mẫu nhưng nhìn chung, độ bền kéo giữa các mẫu composite từ sợi được xử lý bằng các tác nhân kiềm hóa khác nhau là không quá lớn (< 5%). Trong điều kiện thực tế, cả 3 loại dung dịch xử lý có thể áp dụng để làm tăng cơ tính kéo của vật liệu composite.

3.4.2. Kết quả đo độ bền uốn

Mẫu composite từ sợi NFFS được xử lý với các tác nhân khác nhau được cắt và đo độ bền uốn theo phương pháp ASTM D7264 và kết quả được thể hiện ở Hình 11. Kết quả đo độ bền uốn của mẫu composite được xử lý bằng các dung dịch hóa học khác nhau cho thấy mẫu composite kết hợp với sợi NFFS được xử lý trong dung dịch Na₂S có độ bền uốn cao nhất, mẫu composite kết hợp sợi xử lý

NaOH + Na₂S có cơ tính uốn trung bình, thấp nhất là mẫu composite có sợi xử lý với NaOH. Có sự chênh lệch tương đối lớn về mật thông số cơ tính uốn trung bình giữa các mẫu, độ bền uốn của mẫu composite từ sợi xử lý NaOH thấp hơn mẫu composite từ sợi xử lý Na₂S đến 10%, độ bền uốn của mẫu composite xử lý sợi bằng dung dịch kết hợp thấp hơn mẫu composite từ sợi xử lý Na₂S đến

8,3%. Nguyên nhân chính yếu của vấn đề này liên quan đến sự biến đổi độ giãn dài và module đàn hồi kéo của vật liệu sợi khi xử lý bằng các dung dịch hóa học khác nhau, ngoài ra còn có sự sai lệch trong quá trình tạo mẫu (hàm lượng sợi tương đối tại vị trí trích mẫu đo), độ dày mỏng thực tế của mẫu, sai sót trong lắp đặt mẫu và vận hành thiết bị...

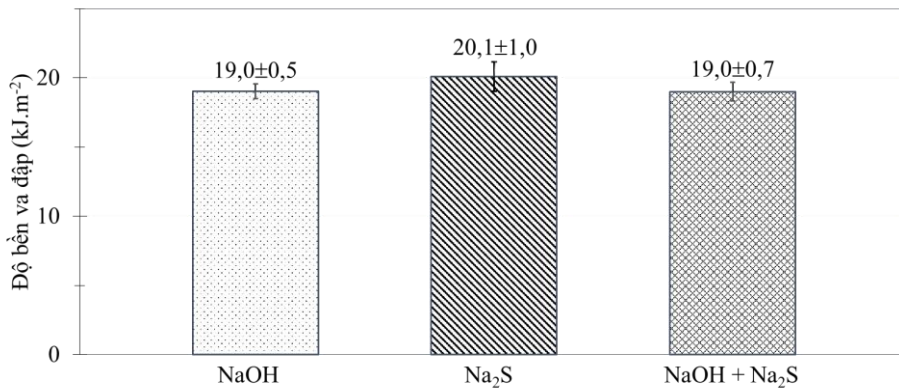


Hình 11. Độ bền uốn của mẫu composite từ sợi NFFS xử lý với các tác nhân khác nhau

3.4.3. Kết quả đo độ bền va đập

Độ bền va đập của mẫu composite từ sợi NFFS được xử lý bởi các tác nhân khác nhau được cất và

đo đạc theo phương pháp ASTM D6110-04. Kết quả độ bền va đập của các mẫu composite từ sợi NFFS được xử lý bằng các tác nhân khác nhau được thể hiện ở Hình 12.



Hình 12. Độ bền va đập của mẫu composite từ sợi NFFS xử lý với các tác nhân khác nhau

Kết quả đo độ bền va đập không tương tự như quá trình xác định cơ tính kéo và uốn trước đó, độ bền va đập trung bình giữa các mẫu tương đối đồng đều và sai khác rất ít giữa các giá trị độ bền va đập. Mẫu composite từ sợi NFFS xử lý Na₂S có độ bền va đập trung bình cao nhất (~20 kJ.m⁻²), hai mẫu còn lại có giá trị gần tương đương nhau (~19 kJ.m⁻²). Như vậy, Na₂S là tác nhân xử lý cho độ bền va đập

tốt nhất, hai tác nhân xử lý là NaOH và hỗn hợp Na₂S + NaOH cho kết quả cơ tính va đập của mẫu composite tương tự nhau và không chênh lệch lớn so với mẫu có cơ tính tối đa (~5%).

3.5. Ảnh hưởng của quá trình tẩy trắng sợi NFFS đến cơ tính của vật liệu composite

Việc xử lý sợi NFFS bằng phương pháp kiềm hóa giúp cải thiện cơ tính của sợi một cách đáng kể,

tuy nhiên một nhược điểm của phương pháp này là sợi bị ngả màu nâu sậm, ảnh hưởng xấu đến ngoại quan của sản phẩm composite. Thực hiện tẩy trắng sợi NFFS đã qua xử lý Na₂S trong dung dịch H₂O₂

1% trong 2 giờ, lượng H₂O₂ tương ứng bằng 15% khối lượng khô của sợi, kết quả thu được sợi có màu sắc khá sáng (Hình 13).



Hình 13. Sợi NFFS: xử lý Na₂S (a) và tẩy trắng bằng H₂O₂ (b)

Mẫu composite từ sợi tẩy trắng được gia công và tiến hành đo cơ tính để đối chiếu với thông số vật

liệu composite từ sợi NFFS được xử lý Na₂S. Kết quả đối chiếu được trình bày ở Bảng 2.

Bảng 2. Cơ tính của mẫu composite từ sợi NFFS trước và sau tẩy trắng bằng H₂O₂

Độ bền kéo (Mpa)		Độ bền uốn (Mpa)		Độ bền va đập (kJ.m ⁻²)	
trước tẩy trắng	sau tẩy trắng	trước tẩy trắng	sau tẩy trắng	trước tẩy trắng	sau tẩy trắng
47,43±2,91	45,54±2,43	51,01±2,78	49,02±5,32	20,08±1,05	17,17±0,52

Nhìn chung, việc sử dụng chất oxy hóa mạnh như H₂O₂ để tẩy trắng sợi, đặc biệt là ở những môi trường có pH thấp và nhiệt độ cao sẽ khiến cho cấu trúc của các vi sợi cellulose bị hư tổn, đồng thời phân tử lượng trung bình của cellulose thô cũng sẽ giảm đi, hiện tượng sụt giảm phân tử khối trung bình của cellulose là nguyên nhân trực tiếp gây giảm độ bền kéo của sợi NFFS sau khi tẩy trắng. Mặt khác, tuy rằng việc tẩy trắng làm giảm cơ tính của sợi và composite là không thể tránh khỏi, nhưng việc tẩy trắng đem lại kết quả cải thiện ngoại quan của sản phẩm composite rất tích cực, và mức độ suy giảm cơ tính khi đối chiếu với mẫu không tẩy trắng cũng không quá lớn (~5% đối với cơ tính kéo và uốn, ~9% với cơ tính va đập). Như vậy, việc tẩy trắng sợi NFFS có thể được cân nhắc nếu sản phẩm composite cần tính thẩm mỹ cao.

4. KẾT LUẬN

Sợi từ NFFS có hàm lượng cellulose ~34%, với cấu trúc các vi sợi có đường kính nhỏ và xếp song song nhau, không có lỗ rỗng ở trung tâm sợi nên sợi NFFS có mật độ vi sợi cùng khối lượng riêng cao hơn so với sợi từ bẹ dừa nước, sợi xơ dừa và một số sợi thực vật khác. Việc xử lý sợi NFFS bằng các tác nhân hoá học (như NaOH, Na₂S, và NaOH + Na₂S) giúp tăng cường cơ tính của vật liệu composite, trong đó việc xử lý sợi bằng Na₂S cho kết quả cơ

tính kéo, uốn, và va đập cao hơn so với các tác nhân còn lại, tuy nhiên sự chênh lệch này là không đáng kể. Như vậy, vật liệu composite từ sợi NFFS và nhựa r-HDPE có cơ tính tối đa ở hàm lượng sợi 60% thể tích, sợi được xử lý bằng 3% Na₂S, với độ bền kéo ~45 MPa, độ bền uốn ~46 MPa, và độ bền va đập ~19 kJ.m⁻². Các chỉ số cơ tính này đều cao hơn so với vật liệu composite từ sợi xơ dừa và nhựa r-HDPE ở cùng hàm lượng thể tích sợi (độ bền kéo của composite từ xơ dừa ~26 MPa, độ bền uốn ~24 MPa, độ bền va đập ~17 kJ.m⁻²).

Ngoài ra, việc tẩy sợi bằng H₂O₂ đã giúp màu sợi từ NFFS sáng hơn rất nhiều, nhưng ngược lại làm giảm phần nào cơ tính của vật liệu composite.

Việc ứng dụng sợi NFFS gia cường cho vật liệu composite nền nhựa r-HDPE giúp tạo ra sản phẩm có giá thành rẻ hơn, góp phần nâng cao giá trị cho cả cây dừa nước và phế phẩm từ sản phẩm nhựa đã qua sử dụng.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

- Bùi Chương. (2002). *Hóa lý polymer*. Nhà xuất bản Bách khoa Hà Nội.
- Dickie, T., Tarmizi, S., Syazali, S. & Mohamed, N. H. N. (2020). Development of Nipah Palm Fibre Extraction Process. *Materials Science Forum*, 997, 57-65.

- Faruk, O. & Sain, M. (2014). *Biofiber reinforcements in composite materials*, Composites science and engineering, Elsevier.
- Gomez, T. S., Zuluaga, S., Jimenez, M., Navacerrada, M. A., Barbero-Barrera, M. M., Prida, D., Restrepo-Osorio, A. & Fernández-Morales, P. (2021). Evaluation of Colombian Crops Fibrous Byproducts for Potential Applications in Sustainable Building Acoustics. *Polymers*, 13(1), 101.
- Hoàng Xuân Niên. (2018). Xác định thông số công nghệ tạo composite từ sợi xơ dừa với chất nền là nhựa HDPE. *Tạp chí Khoa học và Công nghệ Lâm nghiệp*, 4, 167-174.
- Hồ Sĩ Tráng (2002). *Cơ sở hóa học gỗ và xenluloza*. NXB Khoa học và Kỹ thuật Hà Nội.
- Hosokawa, M. N., Darros, A. B., Moris, V. A. S. & Paiva, J. M. F. (2017). Polyhydroxybutyrate Composites with Random Mats of Sisal and Coconut Fibers. *Materials Research*, 20(1), 279-290.
- Maungpanil, A., Boonyobhas, S., Chonsakorn, S. & Mongkholrattanasit, R. (2012). The characterization and properties of fiber from *Nypa fruticans* Wurmb. *RMUTP International Conference: Textiles & Fashion*, Bangkok, Thailand.
- Nguyễn Hoa Thịnh & Nguyễn Đình Đức. (2002). Vật liệu composite, Cơ học và công nghệ. *NXB Khoa học & Kỹ Thuật Hà Nội*.
- Rasidy, M. S., Salmad, H., & The, J. S. (2014). Thermal Properties of *Nypa fruticans* Fiber Filled Poly(lactic Acid/Recycled Low Density Polyethylene Biocomposites: Effect Compatibilization with Ultra-Plast TP01. *The 2014 World Congress on Advances in Civil, Environmental, and Materials Research*, Busan, Korea.
- Tamunaidu, P. & Saka, S. (2011). Chemical characterization of various parts of nipa palm (*Nypa fruticans*), *Industrial Crops and Products*, 34(3), 1423-1428.
- Trần Vĩnh Diệu, Hồ Xuân Năng, Phạm Anh Tuấn & Đoàn Thị Yến Oanh. (2018). *Vật liệu polymer composite, khoa học và công nghệ*. NXB Khoa Học Tự Nhiên Và Công Nghệ.
- Võ Tấn Phát. (2013). Khảo sát đặc tính sợi dừa nước (*Nypa fruticans* Wurmb) và bước đầu khởi tạo mẫu composite với nhựa Polyester không no (Luận văn tốt nghiệp đại học). Trường Đại học Cần Thơ.