

# NGHIÊN CỨU ẢNH HƯỞNG CỦA BÃ CÀ PHÊ ĐẾN TÍNH CHẤT CƠ HỌC CỦA COMPOSITE SINH HỌC TRÊN CƠ SỞ POLYPROPYLENE

STUDY ON THE EFFECT OF SPENT COFFEE GROUNDS ON MECHANICAL PROPERTIES OF BIOCOMPOSITE BASED ON POLYPROPYLENE

Vũ Minh Tân<sup>1,\*</sup>, Đặng Hữu Trung<sup>1</sup>,  
Nguyễn Ngọc Thanh<sup>1</sup>, Ngô Thúy Vân<sup>1</sup>

DOI: <http://doi.org/10.57001/huih5804.2024.089>

## TÓM TẮT

Trong nghiên cứu này, chúng tôi đã sử dụng bã cà phê làm chất độn gia cường cho nhựa polypropylene (PP) ở các hàm lượng khác nhau với sự có mặt của chất tương hợp polypropylene-graft-maleic anhydrit (PP-g-MAH) nhằm tạo ra vật liệu composite sinh học (biocomposite). Ảnh hưởng của hàm lượng bã cà phê (15, 20, 25, 30 và 35% khối lượng) đến tính chất cơ học của biocomposite đã được khảo sát và nghiên cứu. Kết quả cho thấy, hàm lượng bã cà phê gia cường có ảnh hưởng đến tính chất cơ học của vật liệu composite, cụ thể độ bền kéo và độ bền uốn giảm khi hàm lượng bã cà phê tăng. Đặc trưng cấu trúc vật liệu composite được khảo sát bằng các phương pháp hiển vi điện tử quét (SEM), phân tích nhiệt trọng lượng (TGA) và phổ hồng ngoại biến đổi Fourier (FT-IR).

**Từ khóa:** Composite sinh học, nhựa polypropylen, tính chất cơ học, bã cà phê.

## ABSTRACT

In this work, we used spent coffee grounds (SCG) as reinforcement fillers at different compositions in polypropylene (PP) with the presence of a maleated copolymer compatibilizer (polypropylene-graft-maleic anhydride, PP-g-MAH) to make biocomposites. The effect of SCG content (15, 20, 25, 30 and 35 wt%) on the mechanical properties of biocomposites was investigated. The results showed that, as the content of spent coffee grounds increased, the tensile strength and flexural strength decreased. Thermogravimetric analysis (TGA), scanning electron microscopy (SEM) morphology and fourier transform infrared (FTIR) spectroscopy of biocomposites were investigated.

**Keywords:** Biocomposite, polypropylene, mechanical properties, spent coffee grounds.

<sup>1</sup>Trường Đại học Công nghiệp Hà Nội

\*Email: [vuminhtan@hau1.edu.vn](mailto:vuminhtan@hau1.edu.vn)

Ngày nhận bài: 14/6/2023

Ngày nhận bài sửa sau phản biện: 06/9/2023

Ngày chấp nhận đăng: 25/3/2024

## 1. MỞ ĐẦU

Nhựa thải có chu kỳ phân hủy kéo dài hàng trăm năm, gây ô nhiễm môi trường và sức khỏe con người. Việc thay

thế một phần nguyên liệu có nguồn gốc từ tự nhiên vào nền nhựa polymer nhằm tạo ra một loại vật liệu mới biocomposite được các nhà khoa học trên thế giới quan tâm nghiên cứu [1-7].

Prasad N và cộng sự [8] đã sử dụng sợi chuối gia cường cho vật liệu polyethylene tỷ trọng thấp (LDPE) ở các hàm lượng 10, 15, 20 và 25% để chế tạo ra vật liệu biocomposite thân thiện với môi trường. Kết quả cho thấy ở hàm lượng 15% sợi chuối cho vật liệu biocomposite phân hủy sinh học tốt nhất. Đồng thời việc xử lý kiềm cho bề mặt sợi chuối và đưa chất trợ tương hợp vào vật liệu biocomposite đem lại tính chất cơ học tốt hơn.

Mohamed H. Gabra và cộng sự [9] đã nghiên cứu tính chất cơ học của nhựa epoxy bổ sung vi sợi cellulose là cao su lỏng CTBN, đồng thời sử dụng sợi carbon gia cường. Kết quả nghiên cứu chỉ ra rằng ở hàm lượng 0,5% vi sợi cellulose cho độ bền dai phá hủy tách lớp ở thời điểm bắt đầu xuất hiện vết nứt và trong quá trình phát triển vết nứt  $G_{IC}$  tăng tương ứng 84% và 72% so với mẫu composite epoxy không biến tính. Sự có mặt của 0,5% khối lượng vi sợi cellulose và 10% khối lượng cao su lỏng CTBN làm tăng mô đun dự trữ lên 13% ở 400°C và 28% ở 200°C, điều này cho thấy sự kết hợp của vi sợi cellulose và cao su CTBN giúp cải thiện khả năng chịu nhiệt của vật liệu composite. R.Panneerdhassa và cộng sự [10] đã sử dụng nhựa nền epoxy gia cường bằng xơ sợi mướp kết hợp với vỏ hạt lạc ở các hàm lượng 10, 20, 30, 40 và 50%. Nhóm tác giả đã nghiên cứu bề mặt ảnh SEM, độ hấp thụ nước và các tính chất cơ học của vật liệu composite chế tạo được.

N. Jaya Chitra và cộng sự [11] đã nghiên cứu ảnh hưởng của các tác nhân trợ tương hợp giữa bã cà phê với nhựa nền polypropylene lên tính chất cơ học của vật liệu biocomposite. Peerayut Tapangnoi và cộng sự [12] đã sử dụng bã cà phê làm vật liệu gia cường cho cao su tự nhiên. Bã cà phê trước khi đưa vào cao su chúng được xử lý kiềm để nhằm loại bỏ lignin và các tạp chất polysaccharide khác. Với hàm lượng 5, 10, 15 và

20% bã cà phê đưa vào gia cường cho cao su đã làm tăng độ cứng nhưng lại làm giảm độ giãn dài khi đứt.

C. C. Daniel-Mkpume và cộng sự [13] đã nghiên cứu ảnh hưởng của hàm lượng xơ sợi mướp làm chất gia cường trên cơ sở nhựa nền epoxy đến tính chất kéo, uốn và va đập của vật liệu composite. Nhóm tác giả đã sử dụng xơ sợi mướp dạng ngắn ở các hàm lượng 2, 4 và 6% kết hợp với 10% xơ sợi mướp dạng bột nghiền. Kết quả nghiên cứu cho thấy ở hàm lượng xơ sợi mướp ngắn 4% kết hợp với 10% xơ sợi mướp dạng bột nghiền cho độ bền cơ học tốt nhất. Nhóm nghiên cứu của Marissa A. Paglicawan [14] sử dụng nhựa nền polyester gia cường bằng xơ sợi mướp dưới dạng tấm, bằng phương pháp lăn ép bằng tay, sử dụng chất khâu mạch là methyl ethyl ketone peroxide để chế tạo vật liệu composite thân thiện với môi trường.

Trong công nghiệp chế biến cà phê luôn thải ra một lượng lớn bã cà phê, bã cà phê chủ yếu được đốt để thu nhiệt hay sử dụng làm phân bón hữu cơ cho cây trồng, đem lại hiệu quả kinh tế thấp. Xuất phát từ ý tưởng đó, nhóm nghiên cứu đã sử dụng bã cà phê thải nhằm thay thế một phần trong nhựa polypropylene để chế tạo ra một loại vật liệu thân thiện với môi trường (biocomposite), đồng thời khảo sát ảnh hưởng của hàm lượng bã cà phê đến tính chất cơ học của vật liệu chế tạo được.

## 2. THỰC NGHIỆM

### 2.1. Hóa chất - thiết bị

- Hạt nhựa polypropylene HE10TQ (sản phẩm thương mại của Ả rập Xê út) có tỉ trọng là  $0,91\text{g/cm}^3$ , chỉ số chảy MFI ( $230^\circ\text{C}/2,16\text{kg}$ ) =  $3\text{g}/10\text{min}$ .
- Hạt nhựa polypropylen ghép maleic anhydrit (PP-g-MAH) (sản phẩm thương mại của Trung Quốc), chỉ số chảy MFI ( $230^\circ\text{C}/2,16\text{kg}$ ) là  $6\text{g}/10\text{min}$ , hàm lượng maleic anhydrit khoảng 8 - 10% khối lượng.
- Bã cà phê thu gom tại cơ sở chế biến cà phê hòa tan Hancoffee ở Văn Giang, Hưng Yên.
- Sodium hydroxide (NaOH khan) hãng Sigma có  $M = 40\text{g/mol}$ , độ tinh khiết  $\geq 98\%$ .
- Máy ép tạo mẫu biocomposite (GoTech, Trung Quốc).
- Thiết bị trộn kín Brabender® GmbH & Co. KG, model 815655 (Germany).

### 2.2. Xử lý bã cà phê bằng dung dịch kiềm

Bã cà phê sau khi thu mua ở trạng thái ướt được rửa sạch lại với nước để loại bỏ tạp chất, sau đó sấy khô ở  $60^\circ\text{C}$ . Bã cà phê được xử lý bằng dung dịch NaOH 8%, trong thời gian 24 giờ ở nhiệt độ phòng. Sau đó bã cà phê được lọc rửa nhiều lần bằng nước cất đến khi dung dịch trung tính và đem sấy khô ở  $60^\circ\text{C}$  trong thời gian 12 giờ, thu được bã cà phê đã xử lý. Bã cà phê sau khi được xử lý bằng dung dịch kiềm cho qua sàng rây có kích thước 0,03mm nhằm tạo sự đồng nhất.

### 2.3. Chế tạo vật liệu composite sinh học trên cơ sở nhựa polypropylen gia cường bằng bã cà phê

Composite sinh học trên cơ sở nhựa polypropylene gia cường bằng bã cà phê ở các hàm lượng khác nhau, sử dụng

chất trợ tương hợp PP-g-MAH, được chế tạo trên thiết bị Brabender. Chất trợ tương hợp PP-g-MAH đưa vào với hàm lượng 3% nhằm tăng khả năng trộn hợp giữa bã cà phê với nhựa polypropylene.

Bảng 1. Thành phần vật liệu composite sinh học

Composite sinh học	Hàm lượng bã cà phê (% LK)	Polypropylen (% LK)	PP-g-MAH (% KL)
PP	0	100	0
PP15	15	82	3
PP20	20	77	3
PP25	25	72	3
PP30	30	67	3
PP35	35	62	3

Mẫu được trộn ở điều kiện: nhiệt độ  $190^\circ\text{C}$ , trong thời gian 7 phút, tốc độ trục vít 50 vòng/phút. Sau đó mẫu được ép thành tấm trên máy ép Gotech ở nhiệt độ  $190^\circ\text{C}$ , với lực ép  $100\text{kg/cm}^2$ , trong thời gian 5 phút. Thành phần vật liệu composite sinh học được trình bày trong bảng 1.

### 2.4. Hình vi điện tử quét (SEM)

Hình thái học bề mặt phá hủy của các mẫu composite sinh học được quan sát bằng kính hiển vi điện tử quét (SEM) JEOL 6490 (Nhật Bản) tại Viện Kỹ thuật Nhiệt đới, Viện Hàn lâm Khoa học và Công nghệ Việt Nam. Trước khi quan sát bằng SEM, tất cả các mẫu được phủ bằng lớp mỏng Pt để tránh hiện tượng tích điện.

### 2.5. Phân tích nhiệt trọng lượng (TGA)

Phân tích nhiệt trọng lượng TGA được xác định trên máy TGA209F1, Netzsch (Đức) tại Viện Kỹ thuật nhiệt đới, Viện Hàn lâm Khoa học và Công nghệ Việt Nam. Mẫu được đựng trong chén platin, gia nhiệt với tốc độ  $10^\circ\text{C}/\text{phút}$  trong môi trường không khí từ nhiệt độ phòng đến  $800^\circ\text{C}$ .

### 2.6. Phổ hồng ngoại biến đổi Fourier (FT-IR)

Phổ hồng ngoại của các mẫu composite sinh học thu được trong dải số sóng từ  $400\text{cm}^{-1}$  đến  $4000\text{cm}^{-1}$  trên máy quang phổ hồng ngoại biến đổi Fourier (FTIR), NEXUS 670 (Mỹ), tại Viện Kỹ thuật nhiệt đới, Viện Hàn lâm Khoa học và Công nghệ Việt Nam.

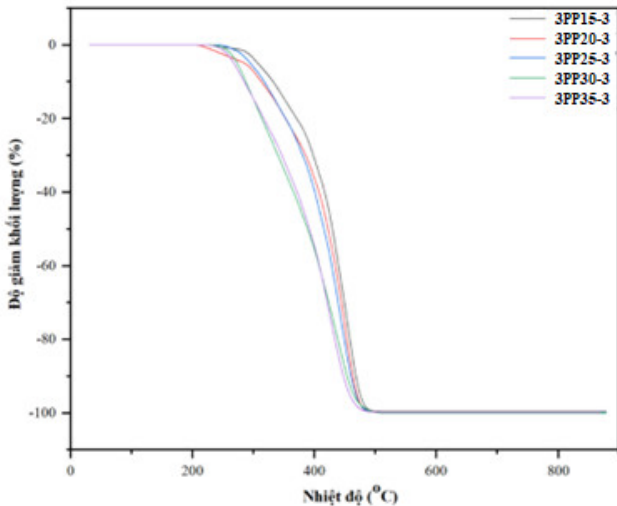
### 2.7. Tính chất cơ học

Độ bền kéo đứt được xác định theo tiêu chuẩn ASTM D638 trên thiết bị đo cơ lý vạn năng Shimadzu AGX-50kNVD (Nhật Bản), với tốc độ kéo  $10\text{mm}/\text{phút}$ . Độ bền uốn được xác định theo tiêu chuẩn D790-03 trên thiết bị đo cơ lý vạn năng Shimadzu AGX-50kNVD (Nhật Bản), với tốc độ uốn  $10\text{mm}/\text{phút}$ . Các tính chất cơ học nêu trên đều được xác định tại Viện Kỹ thuật nhiệt đới, Viện Hàn lâm Khoa học và Công nghệ Việt Nam.

## 3. KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN

### 3.1. Ảnh hưởng hàm lượng bã cà phê đến tính chất nhiệt của vật liệu composite sinh học

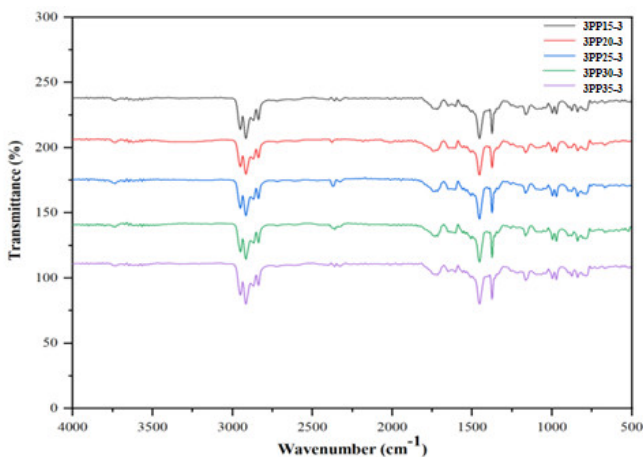
Đã xác định tính chất nhiệt của vật liệu composite sinh học ở các hàm lượng bã cà phê khác nhau. Kết quả nhận được trình bày trên hình 1.



Hình 1. Giảm đồ TGA của các mẫu composite sinh học ở các hàm lượng bã cà phê khác nhau

Kết quả trên hình 1 cho thấy, tính chất nhiệt của vật liệu composite sinh học gia cường bằng bã cà phê ở các hàm lượng khác nhau không có sự thay đổi nhiều. Quá trình phân hủy vật liệu composite sinh học qua hai giai đoạn. Giai đoạn thứ nhất có nhiệt độ phân hủy cực đại khoảng 290°C, được cho là sự phân hủy của hemicellulose và sự phân cắt liên kết glycoside của cellulose. Giai đoạn thứ 2 ở nhiệt độ phân hủy cực đại khoảng 435°C, được cho là quá trình phân hủy của nhựa PP[1, 3]. Hàm lượng bã cà phê trong vật liệu composite sinh học càng tăng thì đường phổ TGA càng dịch về phía dưới, điều đó chứng tỏ hàm lượng bã cà phê gia cường càng tăng thì khả năng chịu nhiệt của composite sinh học càng giảm.

**3.2. Phân tích phổ IR của mẫu composite sinh học ở các hàm lượng bã cà phê khác nhau**



Hình 2. Phổ IR của các mẫu composite sinh học ở các hàm lượng bã cà phê khác nhau

Kết quả phân tích phổ IR của mẫu composite sinh học ở các hàm lượng bã cà phê khác nhau được trình bày trên hình 2. Kết quả trên hình 2 cho thấy, phổ IR của các mẫu composite sinh học xuất hiện pick ở 2916cm<sup>-1</sup> đặc trưng cho dao động của nhóm C-H. Đỉnh hấp thụ ở 1743cm<sup>-1</sup> đặc trưng cho dao

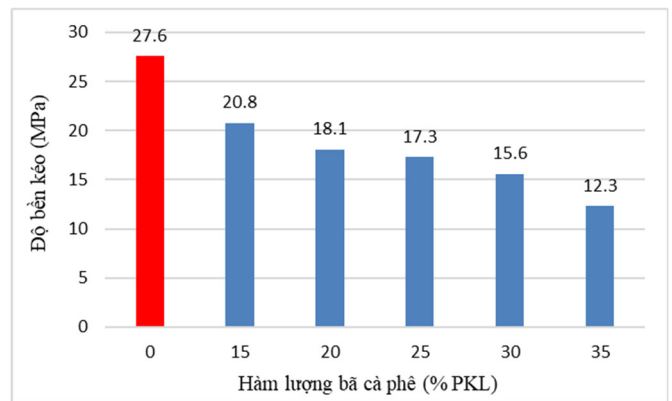
động hoá trị của nhóm C=O có trong ester của acetyl và uronic acid trong thành phần pectin hoặc hemicellulose, cũng có thể đó là dao động của liên kết ester trong nhóm carboxylic của ferulic acid có trong lignin hoặc hemicellulose.

Ngoài ra có thể quan sát thấy pick 1647cm<sup>-1</sup> đặc trưng cho dao động hoá trị của nhóm C=C trong hemicellulose, pic ở 1375cm<sup>-1</sup> đặc trưng cho dao động biến dạng của nhóm -CH<sub>3</sub>, pick ở 1029cm<sup>-1</sup> đặc trưng cho dao động của nhóm C-O-C và C-O trong cellulose và lignin. Không có sự khác biệt giữa phổ IR của các mẫu composite sinh học khi hàm lượng bã cà phê thay đổi. Điều này chứng tỏ tương tác giữa PP và bã cà phê chủ yếu là tương tác vật lý.

**3.3. Ảnh hưởng hàm lượng bã cà phê đến tính chất cơ học của vật liệu composite sinh học**

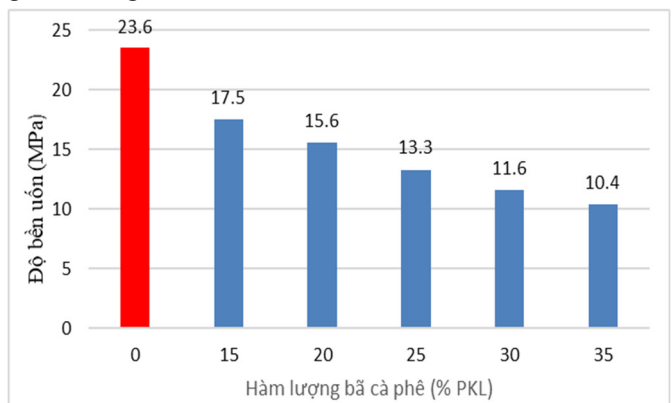
Đã xác định độ bền kéo và bền uốn của các mẫu composite sinh học ở các hàm lượng bã cà phê khác nhau, kết quả nhận được trình bày trong hình 3, 4.

Kết quả nghiên cứu độ bền kéo của vật liệu composite sinh học cho thấy, độ bền kéo giảm khi tăng hàm lượng bã cà phê. Với hàm lượng bã cà phê 0, 15, 20, 25, 30 và 35% trong composite sinh học, độ bền kéo tương ứng giảm xuống 27,6; 20,8; 18,1; 17,3; 15,6 và 12,3MPa (hình 3).



Hình 3. Ảnh hưởng hàm lượng bã cà phê đến độ bền kéo của composite sinh học

Xây ra điều này có thể là do bã cà phê đóng vai trò như một chất độn hữu cơ, chúng có chứa các nhóm chức phân cực, trong khi đó nhựa nền polypropylene lại không phân cực nên rất khó tương hợp với nhau, dẫn đến độ bền cơ học giảm xuống.

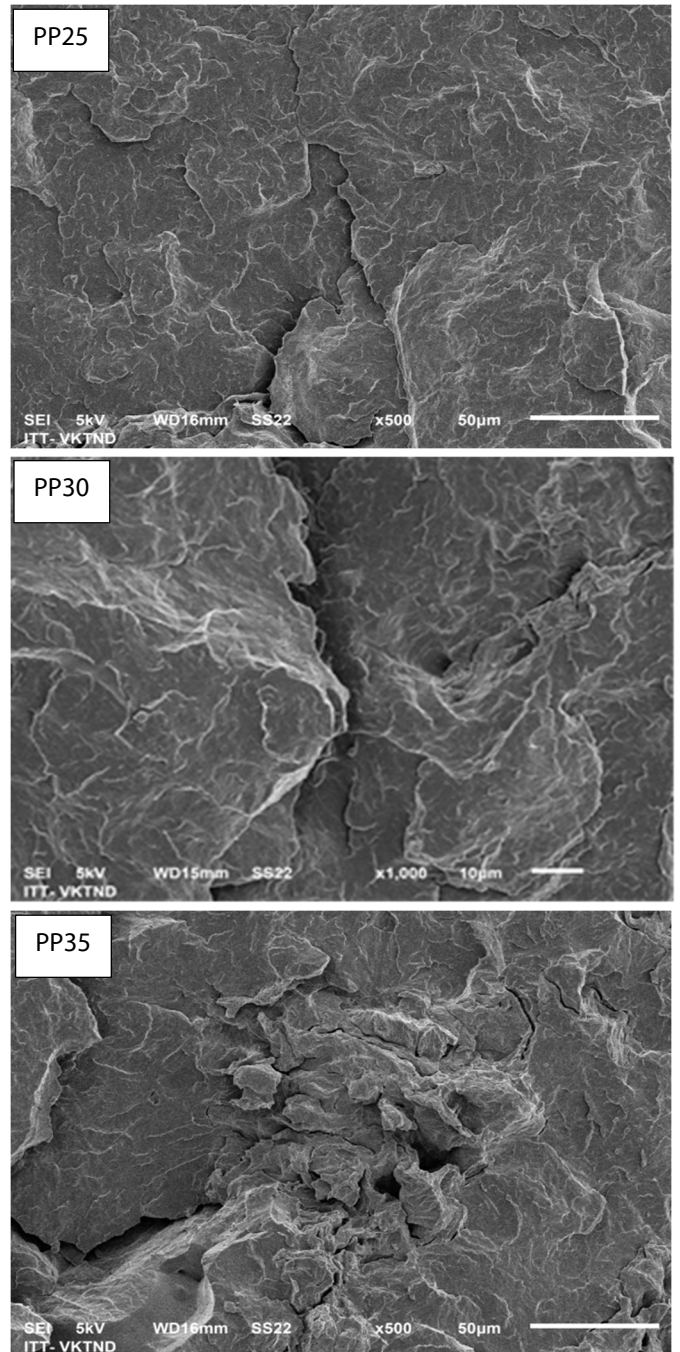
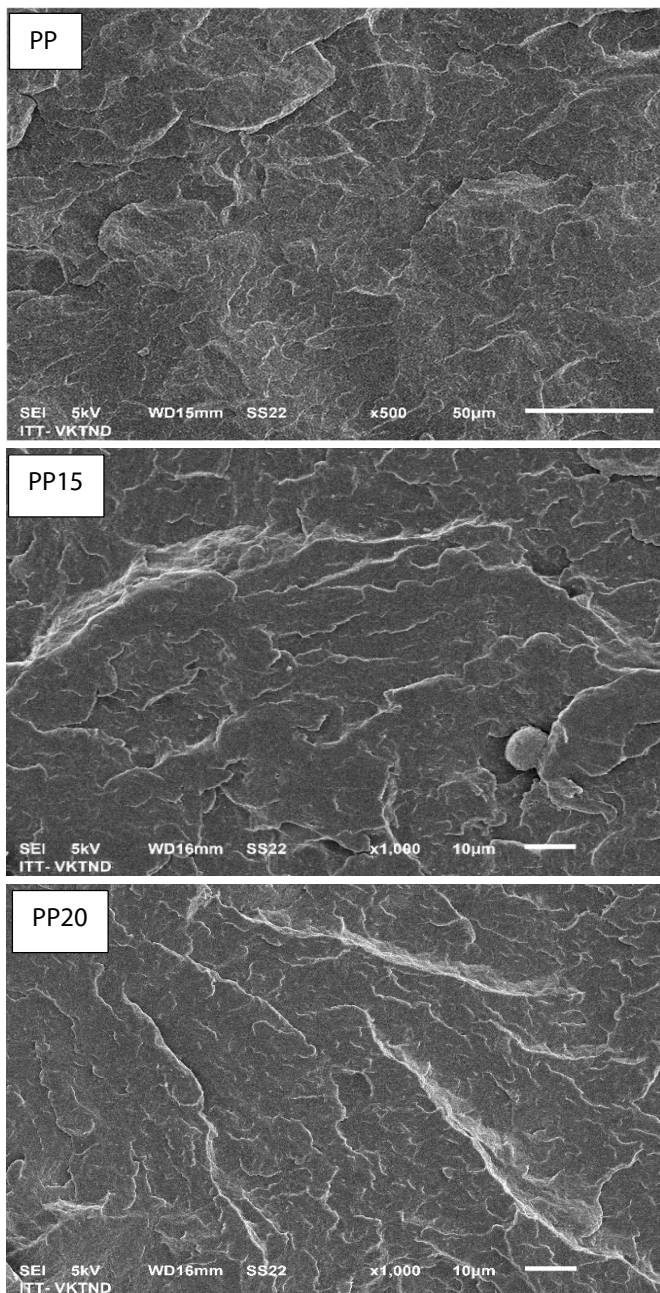


Hình 4. Ảnh hưởng hàm lượng bã cà phê đến độ bền uốn của composite sinh học

Nghiên cứu ảnh hưởng của hàm lượng bã cà phê đến độ bền uốn (hình 4) của vật liệu composite sinh học. Kết quả cho thấy, hàm lượng bã cà phê càng tăng thì độ bền uốn càng giảm và ở hàm lượng bã cà phê 35% cho độ bền uốn thấp nhất và đạt 10,4MPa.

**3.4. Hình thái cấu trúc SEM**

Đã nghiên cứu hình thái cấu trúc bề mặt đứt gãy của mẫu vật liệu composite sinh học ở các hàm lượng bã cà phê khác nhau. Kết quả nhận được trình bày trên hình 5. Quan sát ảnh SEM trên hình 5 cho thấy, hàm lượng bã cà phê càng tăng thì bề mặt đứt gãy của mẫu composite sinh học càng gồ gề và sự phân tách pha giữa bã cà phê với nền nhựa PP càng rõ rệt. Điều này phần nào lý giải được tại sao khi đưa bã cà phê với hàm lượng càng cao thì tính chất cơ học của composite sinh học càng giảm.



Hình 5. Ảnh SEM bề mặt phá hủy của mẫu composite sinh học ở các hàm lượng bã cà phê khác nhau

**4. KẾT LUẬN**

Đã chế tạo được vật liệu composite sinh học trên cơ sở nhựa PP gia cường bằng bã cà phê ở các hàm lượng 0, 15, 20, 25, 30 và 35% với sự có mặt của chất trợ tương hợp PP-g-MAH. Kết quả cho thấy, với hàm lượng bã cà phê đưa vào nền nhựa PP lên tới 35% vừa có ý nghĩa về mặt môi trường, đồng thời làm giảm giá thành của vật liệu composite sinh học do tận dụng được nguồn nguyên liệu bã cà phê. Độ bền nhiệt của vật liệu composite sinh học không thay đổi nhiều, hàm lượng bã cà phê càng tăng dẫn tới khả năng phân hủy nhiệt càng lớn. Tính chất cơ học và hình thái cấu trúc của vật

liệu composite sinh học ở các hàm lượng bã cà phê khác nhau đã được nghiên cứu. Kết quả cho thấy độ bền kéo và độ bền uốn của vật liệu composite sinh học giảm khi hàm lượng bã cà phê tăng và mức độ kết dính giữa bã cà phê với nhựa nền PP càng giảm.

#### TÀI LIỆU THAM KHẢO

- [1]. Mohamad Alhijazi, Babak Safaei, Qasim Zeeshan, Mohammed Asmael, Arameh Eyvazian, Zhaoye Qin, "Recent Developments in Luffa Natural Fiber Composites: Review," *Sustainability*, 12, 7683, 2020. doi:10.3390/su12187683.
- [2]. Tuan Anh Nguyen, Thi Huong Nguyen, "Banana Fiber-Reinforced Epoxy Composites: Mechanical Properties and Fire Retardancy," *International Journal of Chemical Engineering* Vo. 2021, Article ID 1973644, 9 pages, 2020. <https://doi.org/10.1155/2021/1973644>.
- [3]. H. P. S Abdul Khalil, A. H. Bhat, A. F. Ireana Yusra, "Green composites from sustainable cellulose nanofibrils: A review," *Carbohydrate Polymers*, 87, 963-979, 2012.
- [4]. Joo Seong Sohn, Youngjae Ryu, Chang-Seok Yun, Kun Zhu, Sung Woon Cha, "Extrusion Compounding Process for the Development of Eco-Friendly SCG/PP Composite Pellet," *Sustainability*, 11, 1720, 2019.
- [5]. Tuan Anh Nguyen, "Biocomposites Developed with Litchi Peel Based on Epoxy Resin: Mechanical Properties and Flame Retardant," *Journal of Chemistry*, Vol. 2021, Article ID 3287733, 9 pages, 2022. <https://doi.org/10.1155/2021/3287733>.
- [6]. Nguyen Tien Phong, Mohamed H. Gabr, Kazuya Okubo, Bui Chuong, Toru Fujii, "Enhancement of mechanical properties of carbon fabric/epoxy composites using micro/nano-sized bamboo fibrils," *Materials and Design* 47, 624-632, 2013.
- [7]. M. H. Gabr, M. A. Elrahman, K. Okubo, T. Fujii, "Effect of microfibrillated cellulose on mechanical properties of plain-woven CFRP reinforced epoxy," *Compos. Struct.*, Vol. 92, 1999-2006, 2010.
- [8]. Prasad N., Agarwal V. K., Sinha S., "Banana fiber reinforced low-density polyethylene composites: Effect of chemical treatment and compatibilizer addition," *Iran. Polym. J.*, 25, 229-241, 2016.
- [9]. Mohamed H. Gabra, Mostafa Abd Elrahman, Kazuya Okubo, Toru Fujii, "A study on mechanical properties of bacterial cellulose/epoxy reinforced by plain woven carbon fiber modified with liquid rubber," *Composites: Part A.*, 41, 1263-1271, 2010.
- [10]. R. Panneerdhassa, A. Gnanavelbabub, K. Rajkumar, "Mechanical Properties of Luffa Fiber and Ground nut Reinforced Epoxy Polymer Hybrid Composites," *Procedia Engineering*, 97, 2042-2051, 2014.
- [11]. Jaya Chitra, R. Vasanthakumari, Syed Amanulla, "Preliminary Studies of the Effect of Coupling Agent on the Properties of Spent Coffee Grounds Polypropylene Bio-Composites," *International Journal of Engineering Research and Technology*, 7(1), 9-16, 2014.
- [12]. Peerayut Tapangnoi, Pongdhorn Sae-Oui, Weerawut Naebetch, Chomsri Siriwong, "Preparation of purified spent coffee ground and its reinforcement in natural rubber composite," *Arabian Journal of Chemistry*, 5, 103917, 2022.
- [13]. C. C. Daniel-Mkpume, C. Ugochukwu, E. G. Okonkwo, O. S. I. Fayomi, S. M. Obiorah, "Effect of Luffa cylindrica fiber and particulate on the mechanical properties of epoxy," *The International Journal of Advanced Manufacturing Technology*, 2019. <https://doi.org/10.1007/s00170-019-03422-w>.

- [14]. Marissa A. Paglicawan, Ma. Susana Cabillon, Rosito P. Cerbito, Elizabeth O. Santos, "Loofah Fiber as Reinforcement Material for Composite," *Philippine Journal of Science*, 134 (2): 113-120, 2005.

#### AUTHORS INFORMATION

**Vu Minh Tan, Dang Huu Trung, Nguyen Ngoc Thanh, Ngo Thuy Van**

Hanoi University of Industry, Vietnam