

NGHIÊN CỨU TÍNH CHẤT HẤP PHỤ KHÍ H_2S CỦA THAN HOẠT TÍNH TỪ VỎ DỪA ĐỊNH HƯỚNG ỨNG DỤNG TRONG ĐẦU LỌC KHÍ SINH HỌC

Huỳnh Thị Mai Diễm¹, Lê Thành Tây¹, Đỗ Hồng Hạnh¹,
Nguyễn Văn Nghĩa², Nguyễn Minh Vương^{2*}

¹ Khoa Sư phạm, Trường Đại học Quy Nhơn

² Khoa Khoa học Tự nhiên, Trường Đại học Quy Nhơn

* Email: nguyenminhvuong@qnu.edu.vn

Ngày nhận bài: 5/10/2024; ngày hoàn thành phản biện: 8/10/2024; ngày duyệt đăng: 01/11/2024

TÓM TẮT

Công trình này nghiên cứu khả năng tinh lọc khí sinh học (CH_4 , CO_2 , H_2S) của than hạt tính từ vỏ dừa – một trong những phế phẩm nông nghiệp, với mục tiêu loại bỏ các khí gây hại mà không làm ảnh hưởng đến hàm lượng khí metan (CH_4). Than hoạt tính được chế tạo từ vỏ dừa bằng cách than hoá trong môi trường yếm khí tại các nhiệt độ từ 450 đến 650°C trong 4 giờ. Các đặc tính của than hoạt tính bao gồm hiệu suất tạo than, tính chất điện và hình thái bề mặt; thành phần nguyên tố, cấu trúc tinh thể và tính chất hấp phụ khí H_2S , CH_4 và CO_2 của than hoạt tính được khảo sát. Kết quả cho thấy rằng than hoạt tính được nung yếm khí tại 650°C có độ xốp cao và thể hiện khả năng hấp phụ H_2S tốt nhất trong các mẫu được nghiên cứu.

Từ khóa: Than hoạt tính, hấp phụ, hydrogen sulfide, methane

1. GIỚI THIỆU

Ô nhiễm không khí là vấn đề môi trường nghiêm trọng tại nhiều đô thị trên thế giới, bao gồm Việt Nam - một quốc gia đang phát triển. Các hoạt động công nghiệp, giao thông, thương mại và sinh hoạt đã gia tăng nồng độ các chất độc hại trong không khí, ảnh hưởng tiêu cực đến sức khỏe con người, động thực vật và gây hư hại tài sản toàn cầu. Các vấn đề lớn như mưa axit, suy giảm tầng ôzôn và nóng lên toàn cầu cũng xuất phát từ những khí thải này.

Phân hủy các hợp chất hữu cơ là hoạt động diễn ra liên tục trong tự nhiên, có thể xảy ra trong điều kiện kỵ khí hoặc hiếu khí. Trong đó, quá trình phân hủy kỵ khí (yếm khí) các chất hữu cơ của một số loại vi sinh vật tạo ra các sản phẩm khí dễ cháy

(chủ yếu là khí Metan – CH₄) và các phụ phẩm bao gồm nước thải và chất khô. Các hỗn hợp khí được sinh ra từ quá trình phân hủy yếm khí này gọi là khí sinh học – biogas [1], [2], [3]. Quá trình vi sinh vật phân hủy yếm khí các chất thải hữu cơ đã được con người ứng dụng vào đời sống sinh hoạt, sản xuất nông nghiệp, công nghiệp. Khí thường có hàm lượng methane (CH₄) từ 55-65%; carbon dioxide (CO₂) từ 35-45%; và một phần nhỏ khí ammonia (NH₃), nitrogen (N₂), oxygen (O₂), carbon monoxide (CO) và hydrogen sulfide (H₂S), với nồng độ dưới 1% [4], [5]. Khí sinh học có thể được sử dụng làm nhiên liệu cho các phương tiện và nguồn sản xuất nhiệt và điện, với ưu điểm là nhiên liệu linh hoạt, sạch và rẻ tiền. Việc nâng cấp khí sinh học đã nhận được sự quan tâm lớn do nhu cầu năng lượng toàn cầu tăng trưởng ổn định, cùng với sự cạn kiệt các nguồn nhiên liệu hóa thạch, giá cả đắt đỏ và thiệt hại về môi trường mà chúng gây ra [6], [7], [8]. Mê-tan (CH₄) và cacbon dioxit (CO₂) là các thành phần chính của khí sinh học. Giá trị năng lượng của khí sinh học thấp hơn nhiều so với khí tự nhiên do có CO₂. Do đó, để tăng giá trị nhiệt của nó, hàm lượng CO₂ phải được giảm. Về mặt kinh tế, loại bỏ CO₂ là bước quan trọng nhất trong quá trình nâng cấp khí sinh học. Việc thu giữ và lưu trữ CO₂ đã đạt được vị trí quan trọng trong các nỗ lực giảm phát thải khí nhà kính [9], [10]. Ngoài ra, khí sinh học còn chứa các chất gây ô nhiễm như NH₃ và H₂S. Những chất này không chỉ làm giảm năng lượng nhiệt mà còn có thể ăn mòn đường ống, bếp đun, ảnh hưởng đến sức khỏe con người và gây ô nhiễm môi trường. Do đó, việc loại bỏ chúng để thu được khí sinh học chất lượng cao với hàm lượng CH₄ lớn hơn là cần thiết. Tại Việt Nam, đặc biệt là Bình Định, nông dân chủ yếu sử dụng khí sinh học để nấu thức ăn cho gia súc, gia cầm. Một số ít sử dụng khí sinh học để nấu cơm hàng ngày do khí này vẫn còn chứa các chất gây mùi hôi như NH₃ và H₂S. Vì vậy, việc loại bỏ các khí không cần thiết này là quan trọng để cải thiện chất lượng khí sinh học, tăng hiệu suất cháy, giúp giải quyết vấn đề kinh tế và môi trường địa phương.

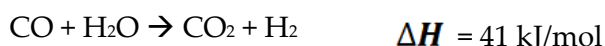
Than hoạt tính hay carbon hoạt tính, là một dạng carbon được xử lý ở nhiệt độ cao để tạo ra cấu trúc xốp với thể tích lỗ xốp cao, diện tích bề mặt lớn và độ bền nhiệt tốt [11]. Nhờ tính ổn định axit và bazơ cao và các nhóm chức bề mặt khác nhau, than hoạt tính là chất hấp phụ hiệu quả và thân thiện với môi trường. Nó có khả năng hấp phụ các tạp chất, hóa chất và khí độc hại, làm cho nó trở thành chất lọc hiệu quả. Vì vậy, nó có nhiều ứng dụng quan trọng như hấp phụ các ion kim loại nặng [12], làm chất xúc tác, chất hỗ trợ chất xúc tác, tích trữ năng lượng điện hóa, lọc dung môi, tách, lưu trữ khí [13],[14], và các ứng dụng khác. Mặc dù than hoạt tính thương mại được sử dụng rộng rãi, nhưng nó có giới hạn do chi phí cao hơn [15]. Than hoạt tính không hấp phụ các chất có kích thước quá nhỏ hoặc có độ ion hóa cao như acid, kiềm, và các muối dễ phân. Ở dạng hạt, than hoạt tính có khả năng hấp phụ chọn lọc hàng ngàn chất hữu cơ và một số vật liệu hữu cơ nhất định.

Sử dụng vỏ dừa - một phụ phẩm nông nghiệp, để chế tạo than hoạt tính là một

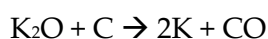
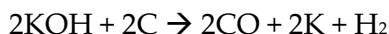
phương pháp thân thiện với môi trường và tận dụng nguồn tài nguyên tái tạo. Nghiên cứu có thể khám phá ra các đặc tính tinh lọc khí sinh học mới của than hoạt tính từ vỏ dừa, như khả năng hấp phụ các chất ô nhiễm cụ thể hoặc hiệu quả trong các điều kiện môi trường khác nhau. Than hoạt tính từ vỏ dừa có mật độ vi lỗ cao hơn so với các loại than khác, điều này làm tăng khả năng hấp phụ các hợp chất hữu cơ dễ bay hơi và các chất ô nhiễm khác một cách hiệu quả; không để lại mùi vị khó chịu trong nước, làm cho nó thân thiện hơn trong việc sử dụng để lọc nước uống. Vì vỏ dừa là nguồn tài nguyên tái tạo, có sẵn quanh năm và không yêu cầu phải chặt cây để thu hoạch, góp phần bảo vệ môi trường. Than có độ cứng cao và độ bền tốt, giúp nó có khả năng chịu mài mòn tốt và tuổi thọ sử dụng lâu dài. Tuy nhiên quá trình sản xuất than hoạt tính từ vỏ dừa thường khá phức tạp và tốn kém. Mặc dù rất hiệu quả trong việc hấp phụ các phân tử nhỏ, nhưng than hoạt tính từ vỏ dừa có thể kém hiệu quả hơn trong việc hấp phụ các phân tử lớn hơn [16].

Quá trình chế tạo than hoạt tính được diễn ra hai giai đoạn là than hoá trong môi trường yếm khí có hơi nước ở nhiệt độ cao và hoạt hoá khi ngâm than hoạt tính vào sodium hydroxide (NaOH), potassium hydroxide (KOH), zinc chloride (ZnCl₂) or phosphoric acid (H₃PO₄) trước khi nung tại 650°C trong môi trường yếm khí với mục đích là tăng diện tích bề mặt riêng phần và độ hấp phụ các khí sinh học của than hoạt tính.

Để tăng diện tích bề mặt cho than, người ta thường phải hoạt hóa biochar bằng phương pháp hóa học hoặc vật lý ở nhiệt độ cao. Trong phương pháp hoạt hóa vật lý, biochar được xử lý với CO₂ hoặc H₂O ở nhiệt độ cao nhằm kích hoạt phản ứng giữa các tác nhân này với C theo phương trình [17] :



Trong phương pháp hoạt hóa hóa học, các ion kim loại kiềm đóng vai trò quan trọng trong việc tạo ra các phân tử khí dễ bay hơi, hoạt động ở nhiệt độ cao, ví dụ:



Kim loại K hình thành dễ dàng phản ứng với các nhóm chức phân cực còn lại của biochar để tạo thành hơi nước; hơi nước và CO, CO₂ có tác dụng hoạt hóa biochar như quá trình hoạt hóa vật lý nói trên. Các chất xúc tác như ZnCl₂ hay H₃PO₄ có vai trò chủ yếu là ngăn cản sự hình thành các đại phân tử hydrocarbon thơm từ lignin, làm

giảm nhiệt độ của quá trình dehydrat hóa lignin và phá hủy mạng lưới cấu trúc carbon ở nhiệt độ cao để tạo thành các kênh lỗ xốp [18].

Từ các báo cáo nghiên cứu khác nhau thì trong nghiên cứu này, than hoạt tính từ vỏ dừa được chế tạo chỉ thông qua quá trình than hoá. Trong nghiên cứu này, các tính chất vật lý và hoá học của than hoạt tính từ vỏ dừa được than hoá tại các nhiệt độ từ 450°C – 650°C trong 4 giờ. Kết quả hình thái và tính chất vật lý của mẫu được phân tích bằng kính hiển vi điện tử quét, phổ tán sắc năng lượng electron EDS, nhiễu xạ tia X. Tính chất hấp phụ khí CH₄, CO₂ và H₂S được nghiên cứu sử dụng hệ tự thiết kế dùng máy đo khí độc đa cách Drager X-am 8000.

2. THỰC NGHIỆM

2.1. Nguyên liệu và thiết bị

Trong bài báo này, vỏ dừa được dùng để chế tạo than hoạt tính. Vỏ dừa có kích thước trung bình khoảng 1-2cm được rửa sạch và đưa vào sấy khô với nhiệt độ 90°C cho đến khi khô hoàn toàn. Vỏ dừa được nung yếm khí trong lò nhiệt phân với tốc độ nâng nhiệt là 10°C/phút với tốc độ thổi khí qua nước là 0,2 l/p (hay 200 sccm) sau khi đạt nhiệt độ cần nung thì thời gian nung giữ nhiệt trong vòng 4 giờ tương ứng với các khoảng nhiệt độ từ 450°C - 650°C.

2.2. Các đặc tính của than hoạt tính

2.2.1. Hiệu suất tạo than

Hiệu suất tạo than hoạt tính được tính bằng công thức:

$$H(\%) = \frac{m_t}{m_0} \cdot 100\%$$

Trong đó: m_t là khối lượng than hoạt tính sau khi nung (g);

m_0 là khối lượng vỏ dừa trước khi nung (g).

Khối lượng vỏ dừa và than hoạt tính được xác định bằng phương pháp cân trọng lượng và thí nghiệm được đo ba lần.

2.2.2. Tính chất điện, hình thái, cấu trúc và thành phần của vật liệu

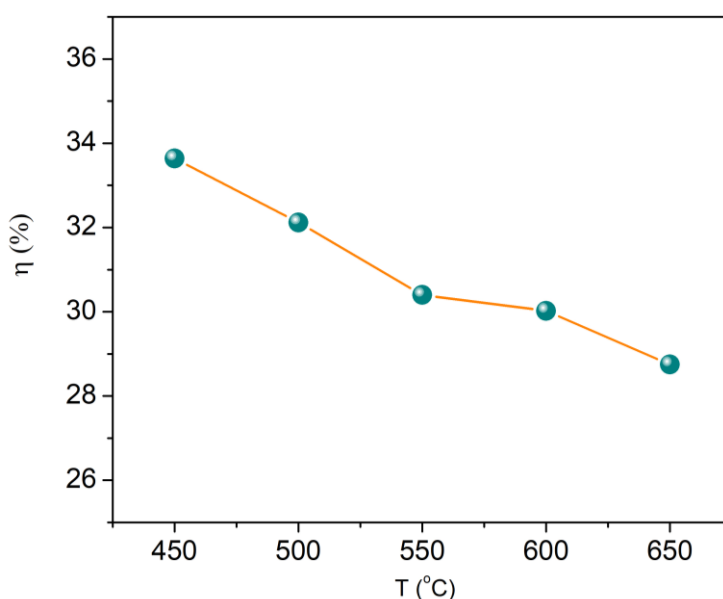
Điện trở của vật liệu được đo sử dụng đồng hồ đo điện vạn năng. Kết quả hình thái, thành phần hoá học và tính chất vật lý của mẫu được phân tích bằng kính hiển vi điện tử quét, phổ tán sắc năng lượng electron EDS (SEM, HITACHI S-4800 tại Viện Khoa học Vật liệu, Viện Hàn lâm Khoa học và Công nghệ Việt Nam), nhiễu xạ tia X (XRD, Bruker D2, tại Trường Đại học Quy Nhơn).

2.3. Tính chất hấp phụ khí

Tính chất hấp phụ khí CH_4 , CO_2 và H_2S được nghiên cứu sử dụng hệ tự thiết kế dùng máy đo khí độc đa cách Drager X-am 8000 đo nồng độ khí thoát ra sau khi khí đi qua cột hấp phụ chứa than hoạt tính tại nhiệt độ phòng ($\sim 25^\circ\text{C}$). Cột hấp phụ được làm bằng thủy tinh có đường kính 2cm và chiều cao 10cm. Các bình khí chuẩn CH_4 và CO_2 với nồng độ 99,99% đã được sử dụng để nghiên cứu trong khi khí H_2S được điều chế tại phòng thí nghiệm sử dụng dung dịch acid HCl (nồng độ $\sim 15\%$) và bột ZnS (hoặc FeS) thương mại. Nồng độ khí được pha loãng dùng các MFCs (mass flow controllers) sử dụng khí mang Nitrogen. Kích thước hạt than sau khi bẻ đồng nhất cho tất cả các mẫu trong khoảng $1,0 \pm 0,2$ cm. Than hoạt tính sử dụng để khảo sát tính chất hấp phụ khí có khối lượng như nhau (6 gram) trong tất cả các thí nghiệm.

III. KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN

3.1. Ảnh hưởng của nhiệt độ đến hiệu suất tạo than hoạt tính



Hình 1. Sự phụ thuộc hiệu suất tạo than hoạt tính từ vỏ dừa theo nhiệt độ yếm khí

Hình 1 thể hiện kết quả hiệu suất tạo than hoạt tính từ vỏ dừa tại các nhiệt độ ủ yếm khí khác nhau. Kết quả cho thấy hiệu suất tạo than giảm dần khi nhiệt độ ủ phân được điều chỉnh từ 450°C đến 650°C . Hiệu suất tạo than đạt giá trị 33.64%, 32.12%, 30.40%, 30.02% và 28.75% tương ứng tại các nhiệt độ xử lý yếm khí 450, 500, 550, 600 và 650°C . Hiệu suất tạo than hoạt tính lại có xu hướng không thay đổi đáng kể ở mức nhiệt độ từ 550- 650°C . Các yếu tố chính quyết định hiệu suất và tính chất của

than hoạt tính: (1) *Nguyên liệu ban đầu*: Nguyên liệu và tính chất hoá học của vật liệu có ảnh hưởng khá lớn đến chất lượng của than hoạt tính, cụ thể vỏ dừa là nguyên liệu giàu carbon nên sẽ tạo ra than hoạt tính có độ xốp tương đối cao; (2) *Quá trình hoạt hoá*: Gồm nhiệt độ và thời gian xử lý cũng như sử dụng các chất hoạt hoá như hơi nước. Nhiệt độ hoạt hoá càng cao thì than được tạo ra với diện tích bề mặt lớn hơn và khả năng hấp phụ sẽ lớn hơn. (3) *Nhiệt độ xử lý*: Nhiệt độ càng cao sẽ làm tăng thêm độ xốp và diện tích bề mặt nên hiệu suất chế tạo than hoạt tính sẽ giảm dần khi nhiệt độ xử lý tăng cao. (4) *Sự hiện diện của các nhóm chức phân cực*: Nó quyết định khả năng phản ứng hoá học với các hợp chất cần hấp phụ.

3.2. Đặc tính vật lý

3.2.1. Tính chất điện

Các mẫu đã chế tạo được kiểm tra bước đầu về độ dẫn điện của chúng. Giá trị điện trở được đo sử dụng đồng hồ đo vạn năng với khoảng cách giữa 2 điểm đo được xác định ngẫu nhiên cách nhau 1 cm trên mẫu than. Mỗi mẫu xác định 3 lần đo. Các mẫu than thường cũng như mẫu carbon hoạt tính thương mại cũng được đo bằng cách tương tự để so sánh. Kết quả đo điện trở của các mẫu được hiển thị trong Bảng 1.

Bảng 1. Giá trị điện trở của các mẫu than từ vỏ dừa, than thường và than hoạt tính thương mại

STT	Tên mẫu	Giá trị điện trở	Đơn vị
1	AC-450 (Mẫu nhiệt phân tại 450 °C)	Không xác định	
2	AC-500 (Mẫu nhiệt phân tại 500 °C)	Không xác định	
3	AC-550 (Mẫu nhiệt phân tại 550 °C)	$6,6 \pm 0,3$	MΩ
4	AC-600 (Mẫu nhiệt phân tại 600 °C)	20 ± 4	kΩ
5	AC-650 (Mẫu nhiệt phân tại 650 °C)	$5,95 \pm 0,19$	kΩ
6	Mẫu than thường	$4,8 \pm 1,3$	MΩ
7	Mẫu than hoạt tính thương mại	$0,42 \pm 0,12$	kΩ

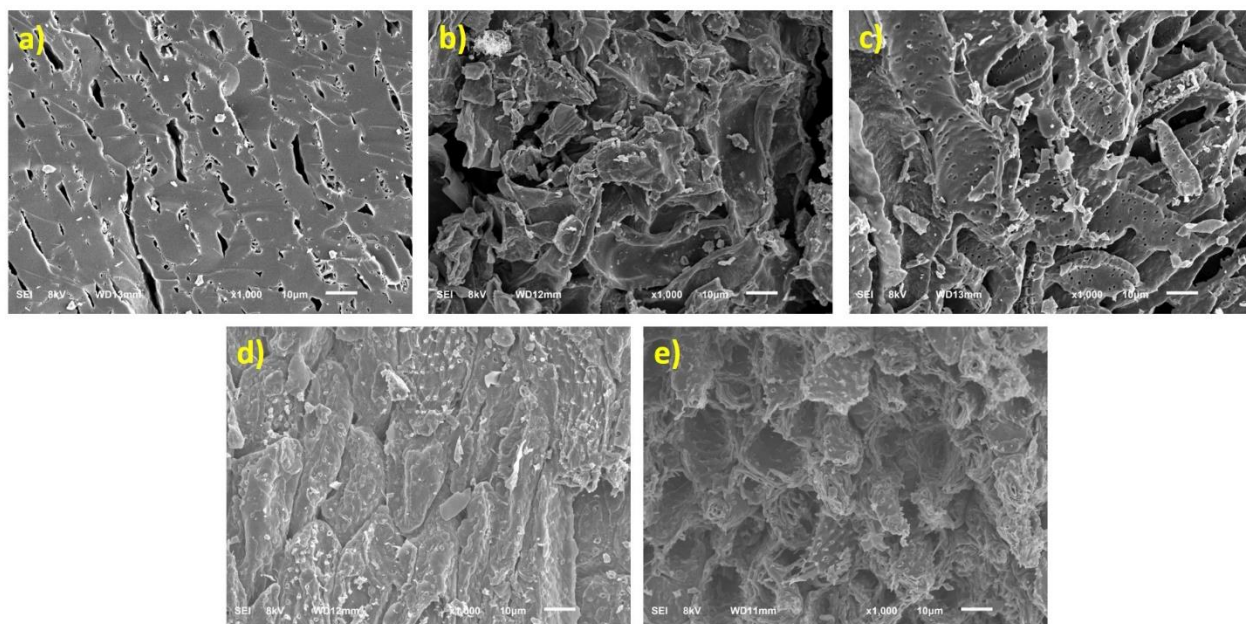
Kết quả cho thấy, các mẫu nhiệt phân ở nhiệt độ thấp (450 °C và 500 °C) hầu như không xác định được giá trị điện trở (vì điện trở quá lớn), điều này cho thấy việc than hoá chưa xảy ra hoàn toàn. Đối với các mẫu nhiệt độ cao hơn, khi nhiệt độ nhiệt phân tăng thì điện trở của mẫu giảm một cách rõ rệt. Điều này cho thấy khi nhiệt độ nhiệt phân tăng, quá trình than hoá tốt hơn và kết tinh tốt hơn của carbon hoạt tính. Vì điều kiện phòng thí nghiệm chúng tôi không nhiệt phân ở nhiệt độ cao hơn.

3.2.2. Thành phần nguyên tố của than hoạt tính từ vỏ dừa

Kết quả về thành phần nguyên tố và tỉ lệ phần trăm về khối lượng của than hoạt tính từ vỏ dừa được xác định thông qua phương pháp tán xạ năng lượng tia X (EDS) như sau: hàm lượng C (91.65%), O (6.25%), Ca (1.075%), K (0.575%), Na (0.2%), Mg (0.1%) và Si (0.075%) ứng với nhiệt độ nung là 600°C. Ứng với nhiệt độ nung là 650°C thì hàm lượng C (94.8%), O (4.35%), Ca (0%), K (0.5%), Na (0.1%), Mg (0.125%), Si (0%), S (0.025%) và Sn (0.05%). Dựa vào kết quả thành phần nguyên tố và tỉ lệ phần trăm khối lượng của than ở hai nhiệt độ khác nhau là 600 °C và 650 °C ta nhận thấy, khi nhiệt độ nhiệt phân tăng thì hàm lượng carbon tăng. Các tạp chất trong mẫu chiếm tỉ lệ rất nhỏ. Hàm lượng oxy xuất hiện trong mẫu, chúng tôi cho rằng nguyên nhân là do quá trình hấp phụ khí oxy và CO₂ trong không khí trên bề mặt của carbon hoạt tính tại nhiệt độ phòng.

3.2.3. Cấu trúc bề mặt của than hoạt tính từ vỏ dừa

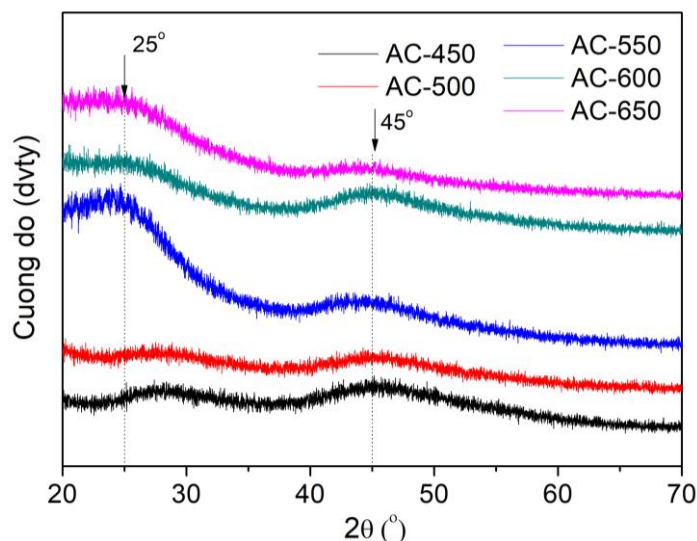
Hình thái bề mặt của than hoạt tính từ vỏ dừa được khảo sát bằng cách chụp bằng kính hiển vi điện tử quét (SEM). Hình 2 hiển thị kết quả của ảnh SEM với độ phóng đại là 1000 đối với các mẫu nhiệt phân tại (a) 450°C, (b) 500°C, (c) 550°C, (d) 600°C và (e) 650°C với ống phát điện từ trường phát xạ làm việc ở 8 kV, khoảng cách làm việc WD 12 mm. Kết quả ảnh SEM cho thấy, khi nhiệt độ nhiệt phân thấp (450°C), bề mặt mẫu than khá nhẵn, tuy nhiên tại nhiệt độ này, than bắt đầu hình thành các mao quản với độ rộng các mao quản khoảng 2,5 µm. Khi nhiệt độ nhiệt phân tăng lên, bề mặt than trở nên gồ ghề, hình thành các vách với độ xốp cao, điều này giúp than hoạt tính có thể hấp phụ được nhiều chất hơn trong các lỗ rỗng cũng như cấu trúc xốp của nó.



Hình 2. Ảnh SEM của các mẫu đo tại độ phóng đại x1,000 đối với các mẫu nhiệt phân tại (a) 450 °C, (b) 500 °C, (c) 550 °C, (d) 600 °C và (e) 650 °C

3.2.4. Đặc tính cấu trúc của vật liệu (XRD)

Đặc tính cấu trúc của các mẫu carbon hoạt tính được nghiên cứu dựa vào phổ nhiễu xạ tia X. Các mẫu carbon hoạt tính chế tạo ở nhiệt độ từ 550°C trở lên bao gồm hai đỉnh nhiễu xạ rộng và cường độ thấp ở $\sim 25^\circ$ và $\sim 45^\circ$ tương ứng với các mặt nhiễu xạ (002) và (100). Các đỉnh nhiễu xạ rộng cho thấy tính chất mất trật tự của nguyên tử carbon trong mẫu. Nguồn gốc của mặt nhiễu xạ (002) được hiểu là do một số lượng nhỏ các lớp carbon được xếp chồng lên nhau trong cấu trúc của nó. Trong suốt quá trình hoạt tính carbon bằng hơi nước, các nguyên tử carbon sắp xếp trở lại để hình thành nên các lớp graphene. Các lớp này thường mất trật tự và không hoàn hảo so với các lớp này trong cấu trúc graphite, do đó dẫn đến sự mở rộng và cường độ thấp tại đỉnh nhiễu xạ (002). Tuy nhiên, sự hiện diện của đỉnh này chứng tỏ các mẫu carbon hoạt tính sẽ có khả năng hấp phụ và diện tích bề mặt riêng phần tăng. Đỉnh nhiễu xạ (100) thể hiện sự hiện diện của các nguyên tử carbon lai hoá sp^2 sắp xếp trong mạng lục giác. Mặt phẳng nhiễu xạ này liên quan đến việc xếp chồng các lớp graphene song song với các mặt phẳng cơ bản của chúng.



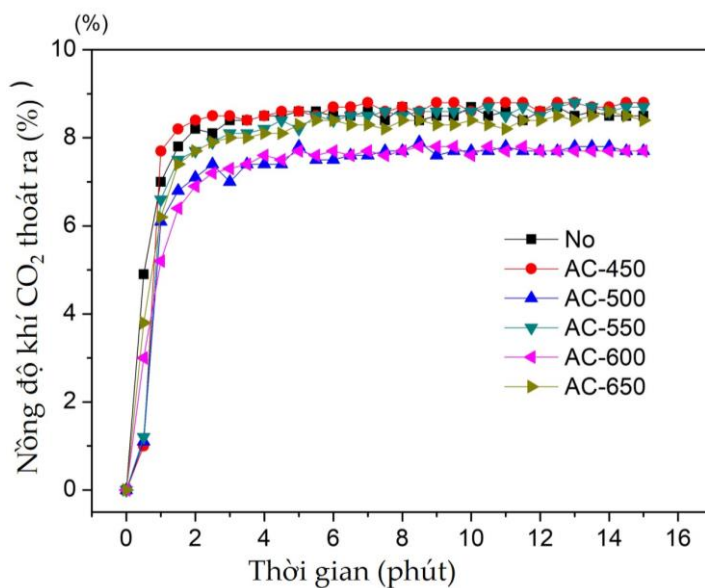
Hình 3. Phổ nhiễu xạ tia X của các mẫu carbon hoạt tính nhiệt phân tại

(a) 450 °C, (b) 500 °C, (c) 550 °C, (d) 600 °C và (e) 650 °C

3.3. Tính chất hấp phụ một số thành phần khí trong khí sinh học

3.3.1. Tính chất hấp phụ CO₂

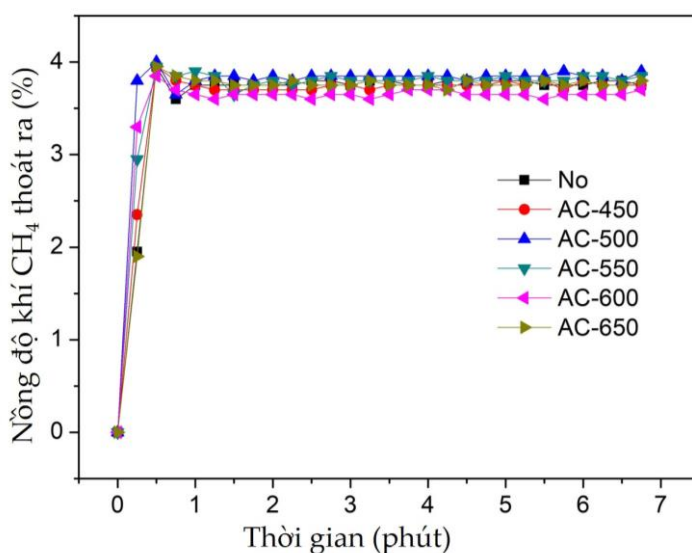
Để nghiên cứu khả năng hấp phụ khí CO₂ của các mẫu than hoạt tính đã chế tạo, chúng tôi tiến hành đo tính chất hấp phụ khí CO₂ của than hoạt tính với các điều kiện sau: không có than hoạt tính và có than hoạt tính nhiệt phân tại các nhiệt độ 450, 500, 550, 600 và 650°C sử dụng cảm biến khí độc đa cách và hệ thống MFC pha trộn và điều khiển nồng độ khí CO₂. Từ kết quả được hiển thị trên Hình 4 ta thấy rằng, hầu hết các mẫu hấp phụ CO₂ khá ít và nhanh đạt đến trạng thái bão hòa (sau thời gian khoảng 3 phút). Khả năng hấp phụ CO₂ của mẫu carbon hoạt tính nhiệt phân ở 500 và 600°C tốt hơn các mẫu còn lại tuy nhiên không đáng kể.



Hình 4. Phần trăm khí CO_2 không được hấp phụ khi không có than và có than hoạt tính nhiệt phân tại các nhiệt độ 450, 500, 550, 600 và $650^\circ C$

3.3.2. Tính chất hấp phụ CH_4

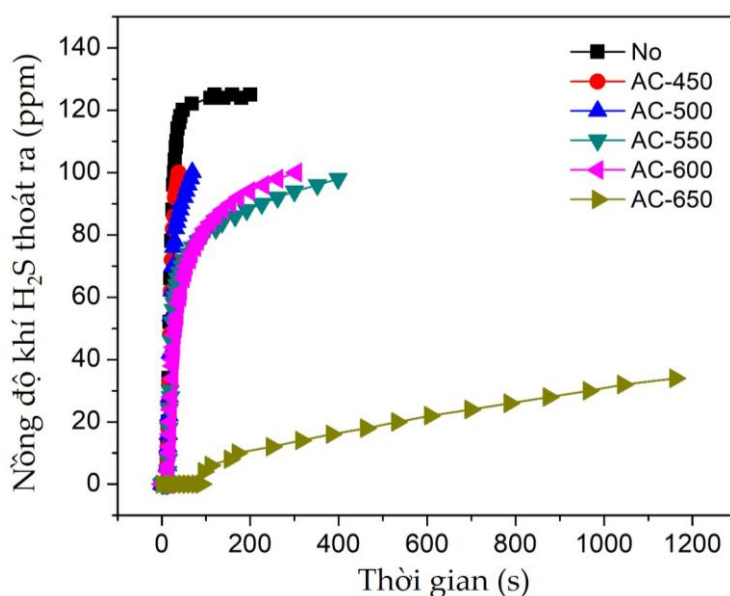
Để nghiên cứu khả năng hấp phụ khí CH_4 của các mẫu than hoạt tính đã chế tạo, chúng tôi tiến hành đo tính chất hấp phụ khí CH_4 của than hoạt tính với các điều kiện sau: không có than hoạt tính và có than hoạt tính nhiệt phân tại các nhiệt độ 450, 500, 550, 600 và $650^\circ C$ sử dụng cảm biến khí độc đa cách và hệ thống MFC pha trộn và điều khiển nồng độ khí CH_4 .



Hình 5. Phần trăm khí CH_4 không được hấp phụ khi không có than và có than hoạt tính nhiệt phân tại các nhiệt độ 450, 500, 550, 600 và $650^\circ C$

Từ kết quả được hiển thị trên hình vẽ thì có thể dễ dàng so sánh lượng khí CH_4 đi ra khi không có than và có mẫu than hoạt tính. Kết quả cho thấy rằng, hầu hết tất cả các mẫu đều hấp phụ rất ít CH_4 . Các mẫu than tại tất cả các điều kiện từ lúc bắt đầu đo đến phút thứ nhất thì than hấp phụ khá là chậm nên lượng khí CH_4 đi qua đo được tăng rất là nhanh và cao, sau đó bắt đầu từ phút thứ 2 trở đi thì các mẫu than gần như không có hấp phụ khí CH_4 . Bằng chứng là phần trăm khí CH_4 sau khi đi qua các mẫu than tăng lên rất nhanh tại phút đầu tiên trước đạt trạng thái bão hoà từ phút thứ 2 trở đi và lượng khí CH_4 đi qua gần bằng và có xu hướng cao hơn với lúc không có than hoạt tính nhưng không quá đáng kể.

3.3.3. Tính chất hấp phụ H_2S



Hình 6. Phần trăm khí H_2S không được hấp phụ khi không có than, có than hoạt tính nhiệt phân tại các nhiệt độ khác nhau

Chúng tôi tiến hành đo tính chất hấp phụ khí H_2S của than hoạt tính với các điều kiện sau: không có than hoạt tính và có than hoạt tính nhiệt phân tại các nhiệt độ 450, 500, 550, 600 và 650°C. Từ kết quả được hiển thị trên hình vẽ thì có thể dễ dàng so sánh lượng khí H_2S không được hấp phụ khi không có than, có than hoạt tính nhiệt phân tại các nhiệt độ khác nhau. Đầu tiên, khi không có mẫu đo hay không có than hoạt tính thì khoảng thời gian đầu khí H_2S tăng nhanh và bắt đầu bão hòa tại giây thứ 68. Đối với các mẫu than hoạt tính, khả năng hấp phụ H_2S tăng lên khi nhiệt độ nung mẫu tăng. Mẫu than hoạt tính nung ở nhiệt độ 650 °C thể hiện khả năng hấp phụ tốt nhất. Trong 94s đầu, nồng độ khí H_2S sau khi qua ống chứa than thoát ra bằng không. Từ giây thứ 95, nồng độ khí H_2S thoát ra với nồng độ thấp và tăng chậm theo thời gian. Khả năng hấp phụ tốt khí H_2S so với các khí CO_2 và CH_4 có thể được giải thích bởi các

nguyên nhân sau: (1) *Kích thước phân tử*: H_2S có kích thước phân tử nhỏ hơn so với CH_4 và CO_2 , điều này giúp H_2S dễ dàng xâm nhập vào các lỗ rỗng nhỏ trong cấu trúc vi xốp của than hoạt tính. Các phân tử nhỏ hơn có thể tiếp cận được nhiều bề mặt hấp phụ hơn, do đó làm tăng khả năng hấp phụ; (2) *Tính tương tác phân cực*: H_2S là một phân tử phân cực và có khả năng tạo liên kết hydro yếu với bề mặt than hoạt tính, đặc biệt khi trên bề mặt có các nhóm chức chứa oxy (như nhóm hydroxyl hoặc carboxyl). Trong khi đó, CH_4 là một phân tử không phân cực và CO_2 mặc dù có mô-men lưỡng cực nhưng lại ít tương tác với than hoạt tính hơn so với H_2S . (3) *Ái lực hóa học*: H_2S có khả năng tương tác hóa học mạnh với các nhóm chức hóa học trên bề mặt của than hoạt tính, đặc biệt là các nhóm chứa kim loại hoặc oxy. Sự tương tác này tạo ra một ái lực mạnh, khiến than hoạt tính hấp phụ H_2S hiệu quả hơn.

4. KẾT LUẬN

Than hoạt tính chế tạo từ vỏ dừa được nung trong khoảng nhiệt độ từ $450^{\circ}C$ đến $650^{\circ}C$. Kết quả cho thấy rõ rằng mẫu than nung ở $650^{\circ}C$ hình thành nhiều lỗ xốp với các kích thước đa dạng. Những lỗ xốp này đóng vai trò quan trọng trong việc nâng cao khả năng hấp phụ khí. Các mẫu nung ở nhiệt độ thấp hầu như không thể xác định được giá trị điện trở, điều này cho thấy quá trình than hóa chưa hoàn tất. Ngược lại, khi nhiệt độ nung tăng lên, điện trở giảm đáng kể. Điều này cho thấy rằng quá trình than hóa và sự kết tinh của carbon trở nên tốt hơn, cải thiện khả năng hấp phụ khí của than hoạt tính. Kết quả đo hấp phụ khí cho thấy than hoạt tính nung ở $650^{\circ}C$ hấp phụ rất hiệu quả khí H_2S nhưng chỉ hấp phụ rất ít khí CH_4 . Điều này chứng tỏ than nung ở $650^{\circ}C$ có khả năng loại bỏ các khí gây hại mà không ảnh hưởng nhiều đến hàm lượng CH_4 trong khí sinh học, dù hiệu suất tạo than chỉ đạt hơn 28%.

LỜI CẢM ƠN

Nghiên cứu này được tiến hành trong khuôn khổ Chương trình IUC-QNU giai đoạn 1 theo mã dự án VN2022IUC044A101.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

- [1]. T. Abbasi, S. M. Tauseef, and S. A. Abbasi, "Biogas energy," *Biogas Energy*, pp. 1–169, 2012.
- [2]. C. Da Costa Gomez, *Biogas as an energy option*. Woodhead Publishing Limited, 2013.
- [3]. C. P. Pabón Pereira, M. Slingerland, J. B. Van Lier, and R. Rabbinge, "Anaerobic digestion as a key technology for biomass valorization: Contribution to the energy balance of biofuel chains," *Biogas Handb. Sci. Prod. Appl.*, no. Wwf 2008, pp. 166–188, 2013.
- [4]. B. Belaisaoui and E. Favre, "Novel dense skin hollow fiber membrane contactor based process for CO₂ removal from raw biogas using water as absorbent," *Sep. Purif. Technol.*, vol. 193, pp. 112–126, 2018.
- [5]. T. Remy *et al.*, "Biogas upgrading through kinetic separation of carbon dioxide and methane over Rb- and Cs-ZK-5 zeolites," *RSC Adv.*, vol. 4, no. 107, pp. 62511–62524, 2014.
- [6]. B. Zheng and J. Xu, "Carbon capture and storage development trends from a techno-paradigm perspective," *Energies*, vol. 7, no. 8, pp. 5221–5250, 2014.
- [7]. C. F. A. Rodrigues, M. A. P. Dinis, and M. J. Lemos de Sousa, "Review of European energy policies regarding the recent 'carbon capture, utilization and storage' technologies scenario and the role of coal seams," *Environ. Earth Sci.*, vol. 74, no. 3, pp. 2553–2561, 2015.
- [8]. K. O. Yoro and P. T. Sekoai, "The potential of co₂ capture and storage technology in south africa's coal-fired thermal power plants," *Environ. - MDPI*, vol. 3, no. 3, pp. 1–20, 2016.
- [9]. K. Lackner, A.-H. Park, and B. Miller, "Eliminating CO₂ Emissions from Coal-Fired Power Plants," in *Generating Electricity in a Carbon-Constrained World*, 2010, pp. 127–173.
- [10]. J. C. M. Pires, F. G. Martins, M. C. M. Alvim-Ferraz, and M. Simões, "Recent developments on carbon capture and storage: An overview," *Chem. Eng. Res. Des.*, vol. 89, no. 9, pp. 1446–1460, 2011.
- [11]. T. Kyotani, "Porous Carbon," *Carbon Alloy. Nov. Concepts to Dev. Carbon Sci. Technol.*, vol. 28, no. April, pp. 109–127, 2003.
- [12]. P. T. Green, "Xerox University Microfilms," *Child Psychiatry Q.*, pp. 1–70, 1975.
- [13]. E. Bailón-García, F. J. Maldonado-Hódar, A. F. Pérez-Cadenas, and F. Carrasco-Marín, "Catalysts supported on carbon materials for the selective hydrogenation of citral," *Catalysts*, vol. 3, no. 4, pp. 853–877, 2013.
- [14]. Z. Gao, Y. Zhang, N. Song, and X. Li, "Biomass-derived renewable carbon materials for electrochemical energy storage," *Mater. Res. Lett.*, vol. 5, no. 2, pp. 69–88, 2017.
- [15]. N. Kaya, F. Arslan, Z. Y. Uzun, and S. Ceylan, "Kinetic and thermodynamic studies on the adsorption of Cu²⁺ ions from aqueous solution by using agricultural waste-derived biochars," *Water Sci. Technol. Water Supply*, vol. 20, no. 8, pp. 3120–3140, 2020.
- [16]. A. Abdeljaoued, N. Querejeta, I. Durán, N. Álvarez-Gutiérrez, C. Pevida, and M. H. Chahbani, "Preparation and evaluation of a coconut shell-based activated carbon for CO₂/CH₄ separation," *Energies*, vol. 11, no. 7, pp. 1–14, 2018.
- [17]. W. J. Liu, H. Jiang, and H. Q. Yu, "Thermochemical conversion of lignin to functional

materials: a review and future directions," *Green Chem.*, vol. 17, no. 11, pp. 4888–4907, 2015.

- [18]. Y. Huang and G. Zhao, "Preparation and characterization of activated carbon fibers from liquefied wood by KOH activation," *Holzforschung*, vol. 70, no. 3, pp. 195–202, 2016.

RESEARCH ON THE H₂S ADSORPTION OF ACTIVATED CARBON FABRICATED FROM COCONUT SHELLS FOR BIOGAS FILTER APPLICATIONS

Huynh Thi Mai Diem¹, Le Thanh Tay¹, Do Hong Hanh¹,
Nguyen Van Nghia², Nguyen Minh Vuong^{2*}

¹ Faculty of Pedagogy, Quy Nhon University.

² Faculty of Natural Sciences, Quy Nhon University.

* Email: nguyenminhvuong@qnu.edu.vn/0962357469

ABSTRACT

This study examines the potential of using granular activated carbon made from coconut shells, an agricultural byproduct to purify biogas (CH₄, CO₂, H₂S) by removing harmful gases without affecting the methane content (CH₄). The activated carbon was prepared by anaerobic carbonization at temperatures between 450 and 650°C for 4 hours. The characterizations of the activated carbon included carbon yield, electrical properties, surface morphology, elemental composition, crystalline structure and adsorption properties were considered. The results indicated that activated carbon produced at 650°C had high porosity and exhibited the best H₂S adsorption capacity among the samples studied.

Keywords: Activated carbon, adsorption, hydrogen sulfide, methane



Nguyễn Minh Vương sinh ngày 01/3/1983 tại Bình Định. Ông tốt nghiệp cử nhân ngành Sư phạm Vật lý, Trường Đại học Quy Nhơn năm 2004, tốt nghiệp thạc sĩ chuyên ngành Vật lý chất rắn năm 2008 tại Trường Đại học Sư phạm I Hà Nội, tốt nghiệp tiến sĩ năm 2014 tại Đại học Quốc gia Chungnam, Hàn Quốc. Ông đạt chuẩn chức danh Phó giáo sư ngành Vật lý năm 2019. Ông công tác tại Trường Đại học Quy Nhơn từ năm 2004.

Lĩnh vực nghiên cứu: Vật liệu bán dẫn và Công nghệ nano; vật liệu hấp phụ ứng dụng xử lý môi trường; vật liệu ứng dụng cửa sổ thông minh, linh kiện cảm biến khí, cảm biến quang, pin quang điện hoá tách nước.



Huỳnh Thị Mai Diễm sinh ngày 01/12/2002 tại Bình Định. Bà tốt nghiệp cử nhân ngành Sư phạm Vật lý, Trường Đại học Quy Nhơn năm 2024.

Lĩnh vực nghiên cứu: Vật liệu bán dẫn oxit kim loại và ống nano carbon ứng dụng trong cảm biến khí, vật liệu than hoạt tính từ vỏ dừa ứng dụng bắt giữ H_2S .



Lê Thành Tây sinh ngày 27/09/2003 tại Bình Định. Hiện tại là sinh viên năm 4 ngành Sư phạm Vật lý, Trường Đại học Quy Nhơn.

Lĩnh vực nghiên cứu: vật liệu than hoạt tính ứng dụng bắt giữ H_2S ứng dụng trong đầu lọc khí sinh học.



Đỗ Hồng Hạnh sinh ngày 04/09/2003 tại Bình Định. Hiện tại là sinh viên năm 4 chuyên ngành Sư phạm Vật lý, Trường Đại học Quy Nhơn.

Lĩnh vực nghiên cứu: Vật liệu bán dẫn oxit kim loại và ống nano carbon ứng dụng trong cảm biến khí; vật liệu than hoạt tính từ vỏ trấu, vật liệu bentonite ứng dụng bắt giữ H_2S .



Nguyễn Văn Nghĩa sinh ngày 24/02/1982. Ông tốt nghiệp cử nhân ngành Vật lý, Trường Đại học Quy Nhơn năm 2004; tốt nghiệp thạc sĩ chuyên ngành Vật lý chất rắn năm 2008 tại Trường Đại học Khoa học, Đại học Huế; tốt nghiệp tiến sĩ năm 2021 tại Trường Đại học Khoa học, Đại học Huế. Ông công tác tại Trường Đại học Quy Nhơn từ năm 2004.

Lĩnh vực nghiên cứu: Vật liệu bán dẫn và Công nghệ nano; vật liệu hấp phụ ứng dụng xử lý môi trường; linh kiện cảm biến khí, pin quang điện hoá tách nước.