



DOI: <https://doi.org/10.52714/dthu.15.2.2026.1752>

TỐI ƯU HÓA QUÁ TRÌNH TIỀN XỬ LÝ GIẤY CARTON THẢI BẰNG PHƯƠNG PHÁP BỀ MẶT ĐÁP ỨNG NHẪM NÂNG CAO HIỆU QUẢ THU HỒI CELLULOSE

Nguyễn Thanh Việt

Khoa Kỹ thuật-Công nghệ-Môi trường, Trường Đại học An Giang,

Đại học Quốc gia Thành phố Hồ Chí Minh.

Tác giả liên hệ, Email: ntviet@agu.edu.vn

Lịch sử bài báo

Ngày nhận: 20/5/2025; Ngày nhận chỉnh sửa: 09/6/2025; Ngày duyệt đăng: 11/6/2025

Tóm tắt

Nghiên cứu này nhằm tối ưu hóa quá trình tiền xử lý giấy carton thải bằng dung dịch sodium hydroxide để thu hồi cellulose có độ tinh khiết cao, phục vụ cho các ứng dụng sinh học và công nghiệp. Phương pháp đáp ứng bề mặt (Response Surface Methodology - RSM) kết hợp với thiết kế tổ hợp tâm (Central Composite Design - CCD) được sử dụng để khảo sát và tối ưu các thông số công nghệ bao gồm nồng độ NaOH, nhiệt độ, thời gian xử lý và tỷ lệ NaOH/giấy. Sau đó, mẫu được xử lý tẩy trắng bằng sodium hypochlorite (NaClO) nhằm nâng cao độ tinh khiết của cellulose. Kết quả cho thấy điều kiện tối ưu đạt được tại nhiệt độ 100 °C, thời gian xử lý 3,5 giờ, nồng độ NaOH 2,5%, và tỷ lệ dung dịch NaOH/giấy là 70/1 mL/g, đạt hiệu suất loại bỏ tạp chất cao nhất đạt 40,06%. Mẫu sau xử lý được phân tích bằng kính hiển vi điện tử quét phát xạ trường (FE-SEM) để quan sát hình thái bề mặt và phổ hồng ngoại biến đổi Fourier (FTIR) để xác định sự thay đổi về nhóm chức hóa học. Nghiên cứu này góp phần nâng cao hiệu quả tái chế giấy, giảm thiểu chất thải rắn và thúc đẩy phát triển quy trình sản xuất giấy thân thiện với môi trường. Cellulose thu hồi có thể được ứng dụng trong sản xuất màng sinh học, vật liệu y sinh, vật liệu composite hoặc các sản phẩm hấp phụ sinh học, từ đó nâng cao giá trị sử dụng của nguyên liệu tái chế và thúc đẩy mô hình kinh tế tuần hoàn.

Từ khóa: độ tinh khiết của cellulose, Sodium hydroxide, RSM, , tác động môi trường, tái chế bền vững, thu hồi cellulose, tiền xử lý giấy carton.

Trích dẫn: Nguyễn, T. V. (2026). Tối ưu hóa quá trình tiền xử lý giấy carton thải bằng phương pháp bề mặt đáp ứng nhằm nâng cao hiệu quả thu hồi cellulose. *Tạp chí Khoa học Đại học Đồng Tháp*, 15(2), 64-77. <https://doi.org/10.52714/dthu.15.2.2026.1752>

Copyright © 2026 The author(s). This work is licensed under a CC BY-NC 4.0 License.

OPTIMIZATION OF WASTE PAPER PRETREATMENT USING RESPONSE SURFACE METHODOLOGY FOR ENHANCED CELLULOSE RECOVERY EFFICIENCY

Nguyen Thanh Viet

Department of Environmental Engineering, An Giang University,

Ho Chi Minh City National University, Vietnam

Corresponding author, Email: ntviet@agu.edu.vn

Article history

Received: 20/5/2025; Received in revised form: 09/6/2025; Accepted: 11/6/2025

Abstract

This study focuses on optimizing the pretreatment process of waste cardboard using sodium hydroxide (NaOH) to recover high-purity cellulose for biological and industrial applications. Response Surface Methodology (RSM) combined with Central Composite Design (CCD) was used to investigate and optimize technological parameters, including NaOH concentration, temperature, treatment time, and the NaOH-to-paper ratio. A bleaching step using sodium hypochlorite (NaClO) was subsequently applied to improve cellulose purity. The optimal conditions were found at a temperature of 100°C, treatment time of 3.5 hours, 2.5% NaOH concentration, and a NaOH-to-paper ratio of 70/1 mL/g, resulting in a maximum impurity removal efficiency of 40.347%. The treated samples were characterized by field-emission scanning electron microscopy (FE-SEM) to observe surface morphology and Fourier-transform infrared spectroscopy (FTIR) to identify changes in chemical functional groups. This study contributes to enhancing paper recycling efficiency, minimizing solid waste, and promoting environmentally friendly and sustainable paper production processes. Additionally, recovered cellulose can be applied to produce biofilms, biomedical materials, composite materials, or bio-adsorbent products, thereby increasing the utilization value of recycled materials and advancing the circular economy model.

Keywords: *Cardboard pretreatment, cellulose recovery, response surface methodology, sodium hydroxide, sustainable recycling, environmental impact, cellulose purity.*

1. Giới thiệu

Giấy carton là một trong những vật liệu bao bì được sử dụng phổ biến nhờ các đặc tính nổi bật như khả năng phân hủy sinh học, dễ gia công và khả năng tái chế cao (Zhang & cs., 2019). Trước bối cảnh mối quan ngại toàn cầu về tác động tiêu cực của chất thải nhựa đối với môi trường, nhu cầu chuyển dịch sang các vật liệu thân thiện sinh thái như giấy tái chế ngày càng trở nên cấp thiết trong ngành công nghiệp bao bì. Theo xu hướng phát triển bền vững và giảm thiểu chất thải, tái chế giấy carton đã trở thành một hướng nghiên cứu trọng điểm trong lĩnh vực bột giấy và giấy. Theo báo cáo của Hiệp hội Giấy và Bột giấy Việt Nam (VPPA, 2024), tổng sản lượng giấy thải năm 2023 đạt khoảng 4,8 triệu tấn, trong đó giấy bao bì (bao gồm giấy carton) chiếm hơn 78%, tương đương gần 3,7 triệu tấn. Trên phạm vi toàn cầu, theo FAO (Tổ chức Lương thực và Nông nghiệp Liên Hợp Quốc, 2024), tổng sản lượng giấy và bì thải năm 2023 đạt khoảng 275 triệu tấn, trong đó giấy carton chiếm tỷ lệ lớn nhất (ước tính khoảng 45–50% tổng lượng giấy thải). Mặc dù giấy carton chứa hàm lượng cellulose tương đối cao, quá trình tái chế vẫn gặp nhiều thách thức do sự hiện diện của lignin, hemicellulose và các tạp chất vô cơ trong cấu trúc lignocellulose phức tạp (Li & cs., 2021). Cellulose, một polysaccharide tuyến tính có cấu trúc tinh thể, chiếm khoảng 40–60% khối lượng giấy carton và là thành phần chính cần được thu hồi trong quá trình tái chế (Zhang & cs., 2019). Tuy nhiên, việc chiết tách cellulose trở nên khó khăn do liên kết hóa học chặt chẽ với lignin và hemicellulose – hai thành phần có cấu trúc dị thể, tính không đồng nhất cao và khả năng phân hủy kém dưới điều kiện xử lý thông thường. Đặc biệt, lignin – một phân tử polyphenolic lớn – tuy đóng vai trò bảo vệ và gia cường cho thành tế bào thực vật, lại là trở ngại trong quá trình thu hồi cellulose do làm giảm độ tinh khiết, độ sáng và độ bền cơ lý của sản phẩm giấy tái chế (Zhu & cs., 2020).

Nhiều nghiên cứu đã chỉ ra rằng xử lý kiềm là một trong những phương pháp hiệu quả để loại bỏ lignin và các hợp chất không mong muốn (Sun & cs., 2002; Chen & cs., 2016; Chandra & cs., 2007). Trong đó, sodium hydroxide (NaOH) được sử dụng rộng rãi nhờ khả năng phá vỡ liên kết lignin-carbohydrate thông qua quá trình thủy phân liên kết ether và ester, từ đó hòa tan lignin và loại bỏ một phần hemicellulose, tạo điều kiện thuận lợi cho quá trình thu hồi cellulose (Zhang & cs., 2019). Tuy nhiên, hiệu quả xử lý kiềm phụ thuộc đáng kể vào các thông số kỹ thuật như nồng độ NaOH, nhiệt độ, thời gian phản ứng và tỷ lệ NaOH/giấy. Nếu các yếu tố này không được tối ưu hóa, cellulose có thể bị thủy phân hoặc suy giảm cấu trúc, làm giảm hiệu suất thu hồi và chất lượng sản phẩm cuối (Zhu & cs., 2020). Để đạt được sự cân bằng giữa loại bỏ lignin và bảo toàn cấu trúc cellulose, việc tối ưu hóa điều kiện xử lý là vô cùng cần thiết. Phương pháp bề mặt đáp ứng (RSM) đã được chứng minh là công cụ hữu hiệu cho việc phân tích đồng thời nhiều biến đầu vào, giúp xác định điều kiện tối ưu với số lượng thí nghiệm tối thiểu và độ chính xác cao (Li & cs., 2021). Thêm vào đó, NaOH không chỉ loại bỏ lignin mà còn góp phần giải phóng hemicellulose và các tạp chất vô cơ, tạo ra nguyên liệu cellulose có độ tinh khiết cao hơn – phù hợp cho các ứng dụng như sản xuất giấy tái chế, bao bì phân hủy sinh học và vật liệu composite gia cường (Li & cs., 2021).

Tuy nhiên, xử lý bằng kiềm đơn lẻ thường chưa đủ để loại bỏ hoàn toàn lignin cũng như các hợp chất tạo màu bên hóa học còn lại trong nguyên liệu sau xử lý. Nhằm tăng cường hiệu quả loại bỏ các thành phần không mong muốn và cải thiện độ tinh khiết cũng như độ trắng của cellulose, giai đoạn xử lý oxy hóa bổ sung bằng dung dịch sodium hypochlorit (NaClO) đã được triển khai sau bước xử lý kiềm. NaClO là một chất oxy hóa mạnh, hoạt động thông qua cơ chế oxy hóa các liên kết phenolic trong lignin, góp phần phân hủy các cấu trúc lignin còn sót lại cũng như phá vỡ các nhóm mang màu (chromophore). Nhờ đó, độ sáng và độ trắng của cellulose được cải thiện rõ rệt (An & cs., 2022; Gurram & cs., 2015). Trên cơ sở các kết quả thực nghiệm và lý thuyết đã được trình bày ở phần trên, nghiên cứu này hướng đến việc tối ưu

hóa quá trình tiền xử lý giấy carton thải bằng dung dịch NaOH thông qua phương pháp RSM, kết hợp giai đoạn xử lý oxy hóa bổ sung bằng NaClO nhằm nâng cao hiệu suất thu hồi cellulose và cải thiện chất lượng nguyên liệu đầu ra phục vụ các ứng dụng công nghiệp bền vững.

2. Vật liệu và phương pháp nghiên cứu

2.1. Vật liệu

Nguồn nguyên liệu chính trong nghiên cứu là thùng giấy carton đã qua sử dụng, được thu gom từ các hộ gia đình và cơ sở tiêu thụ trên địa bàn thành phố Cần Thơ. Sau khi thu gom, giấy carton được cắt nhỏ bằng kéo cắt công nghiệp, sau đó xay nhuyễn bằng máy nghiền giấy nhằm tăng diện tích bề mặt tiếp xúc, thuận lợi cho các quá trình xử lý hóa học tiếp theo. Sodium hydroxide (NaOH), được cung cấp bởi Công ty hóa chất Gangdong Ganghua (Trung Quốc), với độ tinh khiết > 90%, được sử dụng trong quá trình tiền xử lý giấy carton. Sodium hypochlorite (NaClO), được cung cấp bởi Công ty hóa chất Xilong (Trung Quốc), với hàm lượng NaClO 8%, sử dụng trong quá trình tẩy trắng cellulose.

2.2. Phương pháp nghiên cứu

2.2.1. Xác định thành phần của nguyên liệu

Thành phần hóa học của nguyên liệu được xác định theo các phương pháp chuẩn của TAPPI, bao gồm: hàm lượng tro được xác định theo tiêu chuẩn TAPPI T 211 om-93 (525 ± 25 °C, 3 giờ; TAPPI, 1993); hàm lượng α -cellulose theo tiêu chuẩn TAPPI T 203 cm-99 (thủy phân kiềm 17,5% NaOH; TAPPI, 1999); và hàm lượng lignin không tan trong acid theo tiêu chuẩn TAPPI T 222 om-02 (H₂SO₄ 72%, đun cách thủy 1 giờ; TAPPI, 2002). Mọi quy trình đều tuân thủ hướng dẫn chi tiết trong bộ tiêu chuẩn thử nghiệm TAPPI và các phương pháp hữu ích của TAPPI, đảm bảo độ lặp lại cao và khả năng so sánh kết quả với các nghiên cứu trước đó.

2.2.2. Khảo sát các yếu tố ảnh hưởng đến quá trình loại tạp chất

Tối ưu hóa bằng phương pháp RSM được sử dụng để thiết kế ma trận nghiên cứu tác động đồng thời của bốn biến số chính (nồng độ NaOH, nhiệt độ, thời gian và tỉ lệ NaOH/mẫu) ảnh hưởng đến hiệu suất thu hồi cellulose và khả năng loại bỏ lignin.

Bảng 1. Các yếu tố dùng trong RSM – CCD

Biến mã hóa	Tên	Phạm vi nghiên cứu	Mức				
			- α	-1	0	+1	+ α
X ₁	Nhiệt độ (°C)	85 – 105	85	90	95	100	105
X ₂	Thời gian (h)	2 – 4	2	2.5	3	3.5	4
X ₃	Nồng độ (%)	1 – 3	1	1.5	2	2.5	3
X ₄	Tỉ lệ giữa thể tích dung dịch NaOH / khối lượng giấy	40 – 80	40	50	60	70	80

Bốn biến được thiết kế ở năm cấp độ: thấp (-1), trung tâm (0), cao (+1) và mức biên (\pm) để đánh giá mức độ biến thiên của các thí nghiệm (bảng 1). Ma trận được thiết kế bao gồm 30 thí nghiệm với 6 lần lặp lại tại các điểm trung tâm, 16 thí nghiệm nhân tố, 8 thí nghiệm xung

quanh trục. Kết quả được phân tích bằng cách áp dụng hệ số xác định (R^2 và R^2 -adj), biểu đồ phân hồi và phân tích phương sai (ANOVA) bằng phần mềm Design Expert 11.

Kết quả dự đoán được phân tích bằng hồi quy của phương pháp đáp ứng bề mặt và được biểu diễn bằng phương trình hồi quy đa thức bậc hai liên quan đến các biến số chính và sự tương tác cho từng biến số theo phương trình (1). Sử dụng phân tích phương sai bằng ANOVA để đánh giá ý nghĩa thống kê của mô hình. Giá trị p nhỏ hơn 0,05 được coi là có ý nghĩa. Phương trình của mô hình đa thức được biểu thị bằng hệ số xác định R^2 , hệ số xác định được điều chỉnh (R^2 -adj) và phép thử F không phù hợp. Dữ liệu được phân tích bằng phần mềm Design Expert 11 thông qua các phân tích thống kê và đồ họa

$$H_i = \beta_0 + \sum_{i=0}^k \beta_i x_i + \sum \beta_{ii} x_i^2 + \sum \beta_{ij} x_i x_j \quad (1)$$

Trong đó, H_i là hàm mục tiêu, β_0 là hệ số tự do, β_i , β_{ii} , β_{ij} là các vectơ tham số của mô hình được xác định qua thực nghiệm. Mô hình thống kê chỉ có ý nghĩa và được sử dụng sau khi thỏa mãn các tiêu chuẩn thống kê (Fisher).

Sau khi xác định được điều kiện tối ưu cho quá trình xử lý bằng dung dịch NaOH, mẫu giấy carton tiếp tục được xử lý bằng dung dịch NaClO ở nồng độ 3 %, tại nhiệt độ 43 °C trong thời gian 1,5 giờ nhằm nâng cao hiệu quả loại bỏ tạp chất còn lại.

2.2.3. Chụp FE – SEM

Cấu trúc vi mô của mẫu trước và sau tiền xử lý thu được sau quá trình tiền xử lý được phân tích bằng FE – SEM, tại Viện Công nghệ Kyoto, Nhật Bản, để quan sát cấu trúc bề mặt của mẫu.

2.2.4. FTIR

Mẫu được đo FTIR bằng thiết bị Jasco 4700 (Viện Công nghệ Kyoto, Nhật Bản). Thiết bị cho phép xác định các nhóm phân tử của các vật liệu hữu cơ và nhiều vật liệu vô cơ.

3. Kết quả và thảo luận

3.1. Thành phần của nguyên liệu

Thành phần hóa học của giấy loại được phân tích theo các tiêu chuẩn quốc tế. Kết quả (Bảng 2) cho thấy hàm lượng cellulose cao, phản ánh đặc điểm tái chế của giấy, vốn chủ yếu có nguồn gốc từ gỗ mềm đã qua tẩy trắng trong quá trình sản xuất ban đầu. Theo nghiên cứu của Sun & cs. (2004), hàm lượng cellulose trong bột giấy tẩy trắng có thể đạt trên 80%, phù hợp với kết quả trong nghiên cứu này. Trong khi đó, hàm lượng lignin thấp cho thấy giấy đã trải qua quá trình loại bỏ lignin hiệu quả, tương tự với kết quả của Jahan & cs. (2007), khi họ xác định lignin trong giấy tẩy trắng dao động từ 4–7%. Tuy nhiên, hàm lượng tro tương đối cao (11,86%) có thể phản ánh sự tích tụ của các phụ gia vô cơ trong quá trình tái chế, như kaolin, calcium carbonate hoặc titanium dioxide – những chất thường được thêm vào để cải thiện độ đục và độ bền giấy (Hubbe & cs., 2007).

Bảng 2. Thành phần hóa học của mẫu giấy carton

Loại giấy thải	Hàm lượng tro (%)	Cellulose (%)	Lignin (%)	Hemicellulose (%)	Khác (%)
Giấy carton	11,86	80,33	6,83	-	0,98

3.2. Các yếu tố ảnh hưởng đến quá trình loại tạp trong quá trình

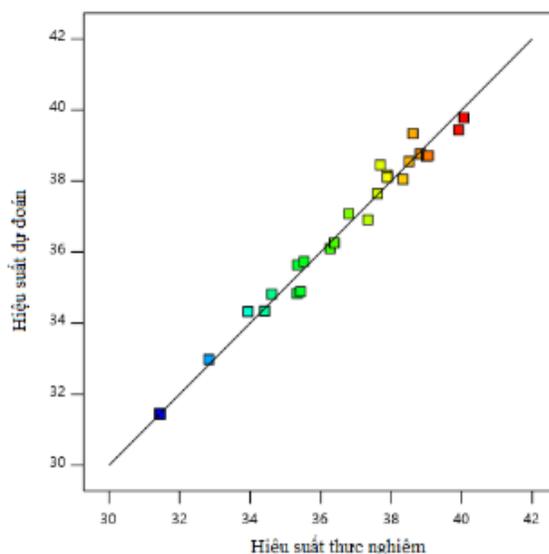
Quá trình xử lý giấy carton bằng dung dịch NaOH được tiến hành trong khoảng điều kiện kỹ thuật khác nhau bao gồm: nhiệt độ (85–105 °C), thời gian phản ứng (2–4 giờ), nồng độ NaOH (1–3%) và tỷ lệ thể tích dung dịch NaOH trên khối lượng giấy (40–80 mL/g). Ma trận thực nghiệm gồm 30 thí nghiệm được xây dựng và hiệu suất loại bỏ tạp chất thu được được trình bày tại Bảng 3. Kết quả cho thấy hiệu suất loại tạp dao động từ 31,45% đến 40,06%, trong đó điều kiện tối ưu được xác định tại thí nghiệm số 24 với các thông số: nhiệt độ 100 °C, thời gian phản ứng 3,5 giờ, nồng độ NaOH 2,5% và tỷ lệ dung dịch/giấy là 70/1 mL/g. Ngược lại, hiệu suất thấp nhất (31,45 %) xuất hiện ở những thí nghiệm được tiến hành ở 95 °C, 3 giờ, NaOH 2 % và tỷ lệ dung dịch/giấy 60 mL/g (ví dụ thí nghiệm số 8), cho thấy tỷ lệ 60 mL/g không đủ để tạo điều kiện cho NaOH tiếp xúc và loại bỏ tạp chất hiệu quả.

Bảng 3. Ma trận thực nghiệm với bốn yếu tố nhiệt độ, thời gian, nồng độ, tỉ lệ NaOH/giấy và kết quả thí nghiệm

STT	Giá trị thực				Hàm mục tiêu Y	
	X ₁ Nhiệt độ (°C)	X ₂ Thời gian (h)	X ₃ Nồng độ (%)	X ₄ Tỉ lệ NaOH/Giấy (mL/g)	Thực nghiệm (%)	Mô hình (%)
1	95	3,0	3,0	60	39,91	39,44
2	90	3,5	1,5	70	37,89	38,10
3	100	2,5	1,5	50	35,33	34,83
4	100	2,5	1,5	70	36,27	36,10
5	90	2,5	1,5	70	34,41	34,34
6	90	3,5	1,5	50	35,43	34,89
7	85	3,0	2,0	60	36,39	36,26
8	95	3,0	2,0	60	31,45	31,45
9	100	3,5	2,5	50	37,89	38,18
10	90	2,5	1,5	50	32,83	32,98
11	100	3,5	1,5	70	38,82	38,76
12	95	3,0	1,0	60	33,94	34,32
13	95	3,0	2,0	60	31,45	31,45
14	95	3,0	2,0	60	31,45	31,45
15	95	3,0	2,0	60	31,45	31,45
16	95	3,0	2,0	60	31,45	31,45

STT	Giá trị thực				Hàm mục tiêu Y	
	X ₁ Nhiệt độ (°C)	X ₂ Thời gian (h)	X ₃ Nồng độ (%)	X ₄ Tỷ lệ NaOH/Giấy (mL/g)	Thực nghiệm (%)	Mô hình (%)
17	90	2,5	2,5	50	36,80	37,08
18	100	2,5	2,5	50	39,06	38,71
19	95	2,0	2,0	60	34,61	34,81
20	90	2,5	2,5	70	37,34	36,91
21	95	3,0	2,0	80	39,00	38,70
22	100	2,5	2,5	70	37,69	38,45
23	90	3,5	2,5	50	37,61	37,65
24	100	3,5	2,5	70	40,06	39,78
25	100	3,5	1,5	50	35,34	35,64
26	105	3,0	2,0	60	38,51	38,55
27	95	3,0	2,0	60	31,45	31,45
28	95	4,0	2,0	60	38,34	38,05
29	90	3,5	2,5	70	38,62	39,34
30	95	3,0	2,0	40	35,53	35,74

Sự tương quan giữa kết quả thực nghiệm và mô hình dự đoán được thể hiện tại Hình 1, trong đó các điểm dữ liệu phân bố gần đường chéo, phản ánh mức độ phù hợp cao giữa mô hình và thực nghiệm. Kết quả phân tích phương sai (ANOVA) ở Bảng 4 cho thấy mô hình có ý nghĩa thống kê với giá trị $F = 82,24$ và $p < 0,0001$. Các yếu tố khảo sát như nhiệt độ (X_1), thời gian (X_2), nồng độ NaOH (X_3) và tỷ lệ dung dịch NaOH/giấy (X_4) đều có ảnh hưởng đáng kể đến hiệu suất khử tạp chất ($p < 0,05$). Một số tương tác hai yếu tố như X_2X_3 , X_2X_4 , và X_3X_4 cũng thể hiện ảnh hưởng có ý nghĩa, trong khi các tương tác X_1X_3 và X_1X_4 không đáng kể ($p > 0,05$). Đặc biệt, các yếu tố bậc hai đều có ý nghĩa rất cao ($p < 0,0001$), phản ánh bản chất phi tuyến trong mô hình.



Hình 1. So sánh hiệu suất loại tạp chất từ thực nghiệm và mô hình

Bảng 4. Phân tích phương sai ANOVA của mô hình của quá trình khử tạp giấy carton

Yếu tố	Tổng bình phương	Bậc tự do	Trung bình bình phương	Giá trị F	Giá trị p
Mô hình	232,89	14	16,64	82,24	< 0,0001
X ₁ -Nhiệt độ	7,90	1	7,90	39,06	< 0,0001
X ₂ -Thời gian	15,67	1	15,67	77,45	< 0,0001
X ₃ -Nồng độ	39,24	1	39,24	194,02	< 0,0001
X ₄ -NaOH/G	13,13	1	13,13	64,90	< 0,0001
X ₁ X ₂	1,22	1	1,22	6,01	0,0270
X ₁ X ₃	0,0473	1	0,0473	0,2339	0,6357
X ₁ X ₄	0,0086	1	0,0086	0,0423	0,8398
X ₂ X ₃	1,79	1	1,79	8,84	0,0095
X ₂ X ₄	3,45	1	3,45	17,06	0,0009
X ₃ X ₄	2,33	1	2,33	11,54	0,0040
X ₁ ²	60,80	1	60,80	300,58	< 0,0001
X ₂ ²	42,52	1	42,52	210,22	< 0,0001

Yếu tố	Tổng bình phương	Bậc tự do	Trung bình bình phương	Giá trị F	Giá trị p
X_3^2	50,55	1	50,55	249,92	< 0,0001
X_4^2	57,08	1	57,08	282,20	< 0,0001
Phần dư	3,03	15	0,2023		
Sự không tương thích	3,03	10	0,3034		
Sai số thuần	0,0000	5	0,0000		
Tổng tương quan	235,93	29			

Độ tin cậy và khả năng mô phỏng của mô hình được đánh giá thông qua các chỉ số thống kê: hệ số xác định $R^2 = 0,9871$; R^2 hiệu chỉnh = 0,9751; và R^2 dự đoán = 0,9259 (Bảng 5). Các giá trị này cho thấy mô hình có khả năng giải thích phần lớn biến thiên trong dữ liệu thực nghiệm và có độ chính xác cao trong dự đoán hiệu suất quá trình.

Bảng 5. Kết quả phân tích sự phù hợp của mô hình với thực nghiệm

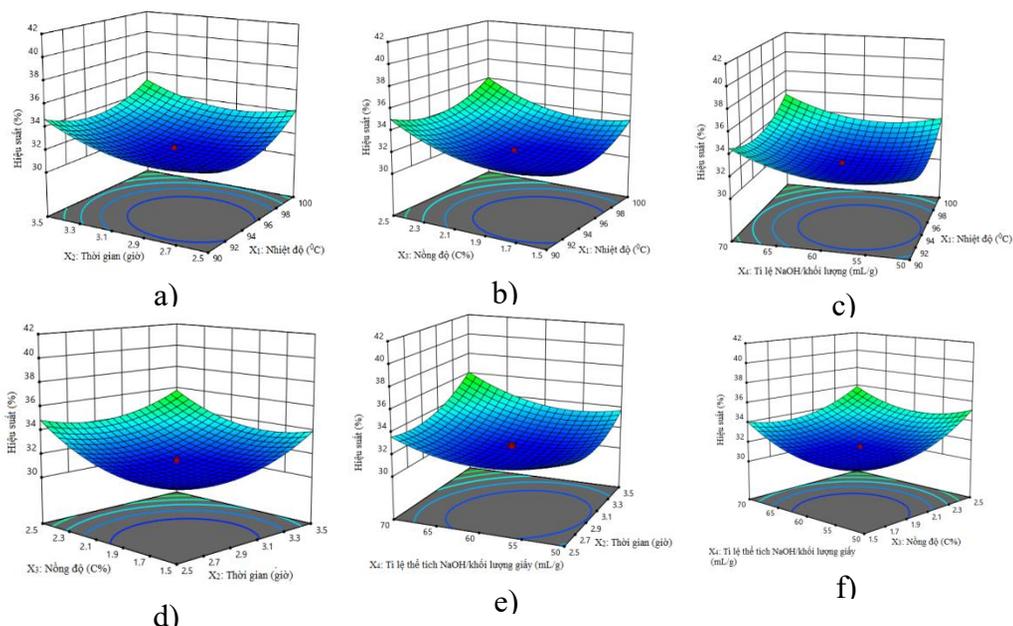
Thông số	Giá trị	Thông số	Giá trị
Độ lệch chuẩn	0,4497	R^2	0,9871
Giá trị trung bình	35,88	R^2 hiệu chỉnh	0,9751
Hệ số biến thiên	1,25	R^2 dự đoán	0,9259
Tổng bình phương phần dư dự đoán (RPESS)	17,48	Độ chính xác phù hợp (Adeq Precision)	26,1906

Ảnh hưởng đồng thời của từng cặp yếu tố khảo sát đến hiệu suất khử tạp được minh họa thông qua các đồ thị bề mặt đáp ứng ba chiều (Hình 2a–f), cung cấp cái nhìn trực quan về mối quan hệ giữa các biến trong quá trình xử lý giấy carton. Dựa trên các kết quả phân tích ở trên, phương trình hồi quy được xây dựng bằng phần mềm Design-Expert 11 nhằm mô tả ảnh hưởng của các yếu tố độc lập (X_1, X_2, X_3, X_4) cũng như các tương tác giữa chúng đến hiệu suất xử lý, được biểu diễn như sau:

$$H_i = 31,36 + 0,6720X_1 + 0,8515X_2 + 1,12X_3 + 0,6120X_4 - 0,1396X_1X_2 + 0,1359X_1X_3 + 0,0914X_1X_4 - 0,299X_2X_3 + 0,3752X_2X_4 - 0,4160X_3X_4 + 1,43X_1^2 + 1,43X_2^2 + 1,3X_3^2 + 1,5X_4^2 \quad (2)$$

Trong đó, H_i là hiệu suất mong đợi, và X_1, X_2, X_3, X_4 lần lượt là nhiệt độ, thời gian, nồng độ NaOH và tỷ lệ thể tích dung dịch NaOH/khối lượng giấy. Dựa trên mô hình, các điều kiện tối ưu dự đoán cho phản ứng khử mực bao gồm nhiệt độ 100 °C, thời gian 3,5 giờ, nồng độ NaOH 2,5% và tỷ lệ thể tích dung dịch NaOH/khối lượng giấy là 70 mL/g, với hiệu suất

tối ưu đạt 40,347%. Kết quả này có thể được kiểm chứng qua các thí nghiệm thực tế để xác nhận tính chính xác của mô hình và áp dụng vào quy trình thực tế.



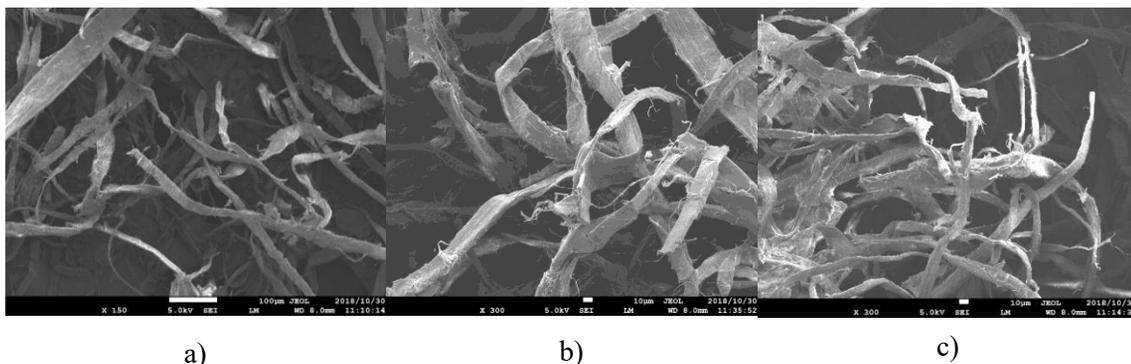
Hình 2. Đồ thị bề mặt 3D biểu diễn ảnh hưởng của nhiệt độ, thời gian, nồng độ NaOH và tỉ lệ NaOH/mẫu: a) Tương tác giữa nhiệt độ (°C) và thời gian (phút); b) Tương tác giữa nồng độ dung dịch NaOH C (%) và nhiệt độ (°C); c) Tương tác giữa nhiệt độ (°C) và tỉ lệ thể tích NaOH/khối lượng giấy (mL/g); d) Tương tác giữa nồng độ dung dịch NaOH và thời gian; e) Tương tác giữa tỉ lệ thể tích NaOH/khối lượng giấy (mL/g) và thời gian (phút); f) Tương tác giữa tỉ lệ thể tích NaOH/khối lượng giấy (mL/g) và nồng độ NaOH C (%).

Sau khi xác định được điều kiện tối ưu cho quá trình xử lý giấy carton bằng dung dịch NaOH (100 °C, 3,5 giờ, 2,5% NaOH, 70/1 mL/g), mẫu giấy tiếp tục được xử lý bổ sung bằng dung dịch NaClO 3% tại nhiệt độ 43 °C trong 1,5 giờ nhằm nâng cao hiệu quả loại bỏ tạp chất còn lại. Kết quả cho thấy hiệu suất loại bỏ tạp chất tăng rõ rệt khi kết hợp giữa hai giai đoạn xử lý kiềm hóa (NaOH) và oxy hóa (NaClO), so với việc chỉ xử lý bằng NaOH đơn lẻ. Quá trình này góp phần đáng kể vào việc cải thiện độ sạch của nguyên liệu, giảm hàm lượng lignin còn lại và loại bỏ các chất màu không mong muốn trong mẫu giấy sau xử lý.

3.3. FE-SEM

Kết quả quan sát hình ảnh FE-SEM (Hình 3) cho thấy biến đổi rõ rệt về hình thái bề mặt sợi cellulose qua từng giai đoạn xử lý. Ở mẫu giấy carton ban đầu, bề mặt sợi gồ ghề và phủ bởi các tạp chất, tương tự mô tả về lignin và hợp chất vô cơ trong các công trình trước đây (Mohamed & cs., 2016; Mandal & Chakrabarty (2011)). Sau xử lý kiềm bằng NaOH, cấu trúc sợi trở nên xốp và có dấu hiệu mở rộng không gian mao quản – đây là biểu hiện điển hình của quá trình loại bỏ một phần lignin và hemicellulose. Tiếp tục xử lý với NaClO làm mịn hơn bề mặt, giúp các sợi trở nên rõ nét, liên kết và đồng đều hơn, phản ánh hiệu quả của quá trình tẩy trắng và tái cấu trúc sợi cellulose. Kết quả này phù hợp với nhiều nghiên cứu trước đó của Mohamed & cs. (2016) khi khảo sát quá trình chiết tách nanocellulose từ xơ kê nấp (kenaf) bằng phương pháp hóa học, cũng nhận thấy sự thay đổi đáng kể hình thái bề mặt sau xử lý NaOH và NaClO. Cụ thể, hình ảnh FE-SEM cho thấy sự giảm đáng kể các cặn lignin và sự hình thành cấu trúc sợi tách rời, đồng đều hơn – dấu hiệu rõ ràng của quá trình loại bỏ lignin và hemicellulose thành công. Mandal & Chakrabarty (2011) trong nghiên cứu về chiết tách

cellulose từ bã mía cũng ghi nhận rằng sau khi xử lý kiềm và oxy hóa, ảnh FE-SEM Hình 3 cho thấy bề mặt cellulose trở nên sạch và rõ nét hơn, đồng thời giảm hẳn các khối vật chất bám dính hoặc lấp kín mao quản sợi. Zhang & cs. (2019) cũng mô tả hiện tượng “cell wall disruption” (phá vỡ thành tế bào) sau xử lý NaOH là một đặc trưng quan trọng cho thấy NaOH có khả năng tách các lớp lignocellulose, mở rộng không gian tiếp xúc và tạo điều kiện thuận lợi cho quá trình oxy hóa tiếp theo. So với các công bố nêu trên, nghiên cứu hiện tại củng cố thêm bằng chứng thực nghiệm rằng quy trình xử lý kết hợp NaOH và NaClO không chỉ giúp loại bỏ tạp chất hữu cơ hiệu quả mà còn tái tạo được bề mặt sợi cellulose rõ nét, đồng đều – một yếu tố then chốt để ứng dụng cellulose thu hồi vào vật liệu tái chế cao cấp hoặc composite sinh học.



Hình 3. Ảnh hiển vi điện tử quét (FE-SEM) của mẫu giấy carton:

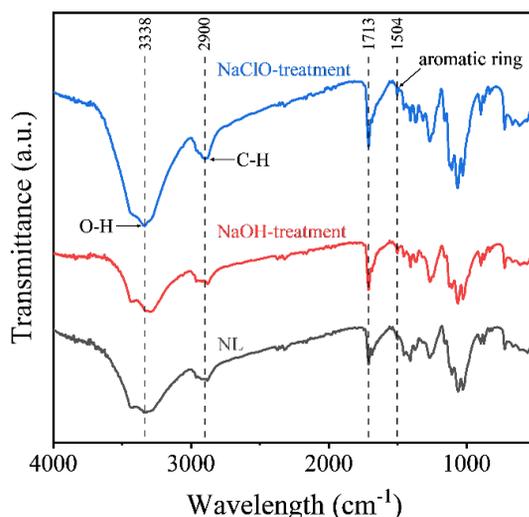
- a) Nguyên liệu ban đầu; b) Sau xử lý với dung dịch NaOH;
- c) Sau xử lý tiếp theo với dung dịch NaClO.

3.4. FTIR

Kết quả phân tích phổ hồng ngoại (FTIR) của mẫu giấy thô, mẫu sau xử lý bằng NaOH và sau xử lý tiếp theo bằng NaClO (Hình 4) cho thấy các đỉnh hấp thụ tương đối tương đồng, phản ánh sự tương đồng về thành phần hóa học cơ bản, chủ yếu là cellulose.

Các đỉnh hấp thụ đặc trưng cho cellulose cũng được ghi nhận, phù hợp với các nghiên cứu trước đó (Mohamed & cs., 2016). Cụ thể, vùng phổ từ $3365\text{--}3228\text{ cm}^{-1}$ tương ứng với dao động hóa trị của nhóm hydroxyl (--OH) tự do trong cellulose; các đỉnh tại $1124\text{--}1105\text{ cm}^{-1}$ biểu thị liên kết ether (C--O--C), trong khi các đỉnh trong khoảng $2955\text{--}2880\text{ cm}^{-1}$ là do dao động của liên kết C--H trong các nhóm alkyl. Một tín hiệu nổi bật của lignin là đỉnh hấp thụ tại khoảng 1505 cm^{-1} , đặc trưng cho dao động của liên kết đôi C=C trong vòng thơm – cấu trúc đặc trưng của lignin (Faix, 1992). Sự hiện diện của đỉnh này trong mẫu giấy thô cho thấy lignin chưa bị loại bỏ. Sau xử lý kiềm bằng NaOH, cường độ đỉnh 1505 cm^{-1} giảm đáng kể, phản ánh sự phân giải từng phần lignin do quá trình phá vỡ các liên kết ether và este giữa lignin và polysaccharide (Mandal & Chakrabarty, 2011). Tuy nhiên, cấu trúc vòng thơm bền vững khiến lignin không bị loại bỏ hoàn toàn. Khi tiếp tục xử lý bằng NaClO – một tác nhân oxy hóa mạnh – cấu trúc vòng thơm bị phân hủy triệt để, dẫn đến việc đỉnh 1505 cm^{-1} gần như biến mất hoàn toàn, cho thấy hiệu quả cao trong việc loại bỏ lignin (Faix, 1992; Mandal & Chakrabarty, 2011). Bên cạnh đó, đỉnh tại 1713 cm^{-1} là đặc trưng cho dao động hóa trị (stretching vibration) của liên kết carbonyl (C=O), thường xuất hiện do các nhóm este hoặc acid carboxylic trong hemicellulose hoặc hình thành từ các nhóm carbonyl mới trong quá trình oxy hóa lignin. Sau xử lý bằng NaOH, hemicellulose bị loại bỏ một phần, tuy nhiên, nếu đỉnh này vẫn xuất hiện hoặc có xu hướng tăng cường sau xử lý bằng NaClO, điều đó cho thấy sự

hình thành các dẫn xuất carbonyl từ vòng thơm của lignin trong quá trình oxy hóa (Faix, 1992; Sun & cs., 2000).



Hình 4. Phổ hồng ngoại (FTIR) của mẫu giấy carton tại các giai đoạn xử lý khác nhau: NL – nguyên liệu ban đầu (đường phổ màu đen), sau xử lý bằng dung dịch NaOH (đường màu đỏ), và sau xử lý tiếp theo bằng dung dịch NaClO (đường màu xanh).

4. Kết luận

Nghiên cứu đã thành công trong việc tối ưu hóa quá trình tiền xử lý giấy carton bằng dung dịch NaOH, mang lại hiệu quả cao trong việc loại bỏ tạp chất và thu hồi cellulose có độ tinh khiết cao. Qua việc áp dụng phương pháp đáp ứng bề mặt (RSM) với thiết kế tổ hợp tâm (CCD), các thông số kỹ thuật như nồng độ NaOH, nhiệt độ, thời gian xử lý và tỷ lệ NaOH/giấy đã được tối ưu hóa. Điều kiện tối ưu đạt được hiệu suất khử mực lên đến 40,06% tại nhiệt độ 100 °C, thời gian 3,5 giờ, nồng độ NaOH 2,5% và tỷ lệ NaOH/giấy 70/1 mL/g. Các phân tích FE-SEM và FTIR xác nhận rằng cấu trúc bề mặt cellulose sau xử lý trở nên đồng đều hơn, với sự giảm rõ rệt của các đỉnh hấp thụ đặc trưng cho lignin và hemicellulose. Đặc biệt, sự biến mất gần như hoàn toàn của đỉnh hấp thụ ở 1505 cm^{-1} sau xử lý với NaClO cho thấy hiệu quả cao trong việc loại bỏ lignin và nâng cao độ tinh khiết của cellulose. Kết quả này không chỉ chứng minh tính khả thi của việc tái chế giấy carton để thu hồi nguyên liệu cellulose có giá trị, mà còn mở ra triển vọng cho việc phát triển các quy trình sản xuất giấy bền vững, giảm thiểu tác động môi trường. Hơn nữa, phương pháp tối ưu hóa điều kiện xử lý bằng NaOH và NaClO có thể được áp dụng cho các nguyên liệu lignocellulose khác, nâng cao hiệu quả tái chế và phát triển các sản phẩm sinh học tái chế trong tương lai, thúc đẩy sự chuyển dịch sang các quy trình sản xuất xanh và bền vững hơn trong ngành công nghiệp giấy. Cellulose thu hồi có thể được định hướng sử dụng để sản xuất màng sinh học, vật liệu y sinh, vật liệu composite hoặc các sản phẩm hấp phụ sinh học. Điều này sẽ nâng cao giá trị sử dụng của nguyên liệu tái chế, góp phần thúc đẩy nền kinh tế tuần hoàn.

Tài liệu tham khảo

- An, D., Zhang, X., Wang, Y., & Liu, Z. (2022). Enhanced delignification and brightness improvement of recycled paper pulp using sodium hypochlorite oxidation. *Bioresource Technology*, 344, 126234. <https://doi.org/10.1016/j.biortech.2021.126234>.
- An, Y., Zeng, X., Xu, F., & Sun, R. (2022). Combined chemical pretreatment and oxidative bleaching for effective delignification of lignocellulosic biomass. *Industrial Crops and Products*, 182, 114916. <https://doi.org/10.1016/j.indcrop.2022.114916>.

- Chandra, R. P., Bura, R., Mabee, W. E., Berlin, A., Pan, X., & Saddler, J. N. (2007). Substrate pretreatment: The key to effective enzymatic hydrolysis of lignocellulosics? *Advances in Biochemical Engineering/Biotechnology*, 108, 67–93. https://doi.org/10.1007/10_2007_064.
- Chen, H., Liu, Z., & Zhang, M. (2016). Alkali pretreatment of lignocellulosic biomass for bioethanol production: A review. *Bioresource Technology*, 199, 49–58. <https://doi.org/10.1016/j.biortech.2015.08.102>.
- Faix, O. (1992). Fourier transform infrared (FT-IR) spectroscopic methods for lignin analysis. Trong *Lignin and Lignans: Advances in Chemistry* (tr. 37–50). CRC Press.
- FAO. (2024). *Forest products statistics 2024: Global production and trade*. Tổ chức Lương thực và Nông nghiệp Liên Hợp Quốc. Truy cập từ <https://www.fao.org/forestry/statistics>.
- Gurram, R. N., Al-Shannag, M., Knutson, B. L., & Govindaraju, P. (2015). Evaluation of sodium hypochlorite pretreatment for enzymatic hydrolysis of lignocellulosic biomass. *Bioresource Technology*, 192, 682–690. <https://doi.org/10.1016/j.biortech.2015.06.031>.
- Hiệp hội Giấy và Bột giấy Việt Nam. (2024). *Báo cáo ngành giấy Việt Nam năm 2024*. Truy cập từ <http://www.vpppa.vn>.
- Hubbe, M. A., Gill, R. A., & Lucia, L. A. (2007). Mechanisms of filler retention in paper during wet pressing. *BioResources*, 2(1), 106–145. <https://doi.org/10.15376/biores.2.1.106-145>.
- Jahan, M. S., Mun, S. P., & Quaiyyum, M. A. (2007). Characterization of lignin isolated from some non-wood materials. *Bioresource Technology*, 98(2), 465–469. <https://doi.org/10.1016/j.biortech.2006.01.010>.
- Jafari, M., Tavakoli, O., & Mortazavi, Y. (2020). Integrated alkaline and oxidative pretreatment for enhancing delignification of waste paper pulp. *Journal of Environmental Chemical Engineering*, 8(1), 103589. <https://doi.org/10.1016/j.jece.2019.103589>.
- Li, R., Fei, J., Cai, Y., Li, Y., & Feng, J. (2021). Optimization of alkaline pretreatment of recycled paperboard for cellulose recovery using response surface methodology. *Industrial Crops and Products*, 171, 113902. <https://doi.org/10.1016/j.indcrop.2021.113902>.
- Mandal, A., & Chakrabarty, D. (2011). Extraction and characterization of cellulose from bagasse. *BioResources*, 6(2), 1406–1415. <https://doi.org/10.15376/biores.6.2.1406-1415>.
- Mohamed, N. A., Kadir, W. S. W., & Shafie, S. (2016). Extraction of cellulose nanofibers from kenaf fiber using a chemical method. *Carbohydrate Polymers*, 136, 55–62. <https://doi.org/10.1016/j.carbpol.2015.08.060>.
- Rasmussen, H., Sørensen, H. R., & Meyer, A. S. (2015). Formation of degradation compounds from lignocellulosic biomass under alkaline conditions. *Biotechnology Advances*, 33(3–4), 365–381. <https://doi.org/10.1016/j.biotechadv.2015.04.002>.
- Sun, R., Tomkinson, J., Ma, P. L., & Liang, S. F. (2004). Comparative study of lignins isolated from five different plant materials. *Journal of Applied Polymer Science*, 93(3), 1675–1684. <https://doi.org/10.1002/app.20535>.
- Sun, R., Tomkinson, J., Ma, P., & Liang, S. (2002). Comparative study of lignins isolated by alkali and ultrasound-assisted alkali extractions from wheat straw. *Ultrasonics Sonochemistry*, 9(2), 85–93. [https://doi.org/10.1016/S1350-4177\(01\)00108-1](https://doi.org/10.1016/S1350-4177(01)00108-1).
- Sun, R., Tomkinson, J., Ma, X., & Liang, Z. (2000). FTIR study of the cellulose–hemicellulose interactions. *Journal of Wood Chemistry and Technology*, 20(2), 167–176. <https://doi.org/10.1080/02773810009373839>.
- TAPPI. (1993). *T 211 om-93: Ash in wood, pulp, paper and paperboard: Combustion at 525°C*. Technical Association of the Pulp and Paper Industry.

- TAPPI. (1999). *T 203 cm-99: Alpha-, beta- and gamma-cellulose in pulp*. Technical Association of the Pulp and Paper Industry.
- TAPPI. (2002). *T 222 om-02: Acid-insoluble lignin in wood and pulp*. Technical Association of the Pulp and Paper Industry.
- Zhang, X., Li, Q., Li, Z., & Liu, Y. (2019). Preparation and characterization of nanocellulose from bamboo pulp by chemical method. *Cellulose*, 26(2), 1009–1021. <https://doi.org/10.1007/s10570-018-2152-3>.
- Zhang, X., Wang, Y., Li, R., & Liu, Z. (2018). Optimization of alkaline pretreatment conditions for cellulose recovery from recycled paper using response surface methodology. *Cellulose*, 25(4), 2335–2347. <https://doi.org/10.1007/s10570-018-1680-3>.
- Zhu, H., Luo, W., Ciesielski, P. N., Fang, Z., Zhu, J. Y., Henriksson, G., Himmel, M. E., & Hu, L. (2020). Wood-derived materials for green electronics, biological devices, and energy applications. *Chemical Reviews*, 120(16), 12233–12272. <https://doi.org/10.1021/acs.chemrev.9b00735>.