

# ÁP DỤNG PHƯƠNG PHÁP BỀ MẶT ĐÁP ỨNG NGHIÊN CỨU PHẢN ỨNG ESTER HÓA DẦU ĂN PHẾ THẢI BẰNG XÚC TÁC AXIT

• ĐẶNG NGUYỄN THOẠI - NGUYỄN THỊ TRÚC MỸ - ĐẶNG ĐÔNG NHẬT - QUẢNG THANH BÌNH - NGUYỄN XUÂN THẢO

## TÓM TẮT:

Quá trình sản xuất biodiesel từ dầu ăn phế thải (WCO) đã và đang được nghiên cứu trong thời gian gần đây. Trong nghiên cứu này, phản ứng ester hóa giữa axit béo tự do (FFA) trong WCO và methanol (MeOH) để tổng hợp biodiesel, được thực hiện trong thiết bị phản ứng dạng thùng khuấy trộn, làm việc gián đoạn. Phương pháp bề mặt đáp ứng (RSM) được sử dụng để thiết kế thí nghiệm, phân tích, đánh giá, và tối ưu hóa kết quả thực nghiệm. Các thông số được khảo sát bao gồm: tỷ lệ mol MeOH/FFA (30 - 50 mol/mol), hàm lượng xúc tác  $H_2SO_4$ /FFA (5 - 15 %kl), nhiệt độ phản ứng (45 - 65°C).

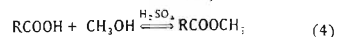
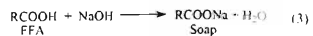
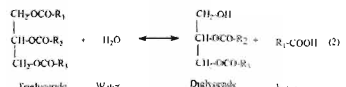
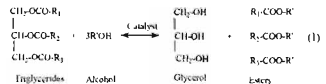
Ảnh hưởng của các thông số khảo sát được đánh giá và kiểm chứng dựa vào phương pháp bề mặt đáp ứng (RSM). Mô hình hồi quy của quá trình ester hóa WCO đã được thiết lập với hệ số tương quan giữa thực nghiệm và dự đoán rất cao (98,63%).

Từ khóa: Biodiesel, dầu ăn phế thải, ester hóa, xúc tác axit, RSM.

## 1. Đặt vấn đề

Sự phát triển kinh tế thế giới đòi hỏi yêu cầu cao về nhiên liệu. Tuy nhiên, khi sử dụng nhiên liệu hóa thạch đã tạo ra lượng lớn khí thải và các chất độc hại [1]. Biodiesel - một sự thay thế dầu diesel - là hỗn hợp các mono ester thu được thông qua phản ứng chuyển vị ester của các nguyên liệu khác nhau (dầu thực vật, dầu thải, mỡ động vật), với sự có mặt của ancol và xúc tác (phản ứng 1) [1, 2]. Tuy nhiên, dầu ăn thải lại có hàm lượng nước và axit béo tự do FFA (Free Fatty Acids) cao. Sự có mặt của nước gây nên phản ứng thủy phân tạo thành FFA (phản ứng 2). Hàm lượng FFA cao đã gây nên trở ngại lớn trong phản ứng chuyển vị ester xúc tác bazơ, vì FFA dễ dàng phản ứng với chất xúc tác để hình thành xà phòng thông qua phản ứng xà phòng hóa (phản ứng 3). Điều này gây ra tiêu hao chất xúc tác, làm giảm năng suất tạo thành biodiesel và gây phức tạp cho quá trình sản xuất. Do vậy, việc chuyển hóa FFA trong dầu thải (WCO) là rất quan trọng trong

công nghệ sản xuất biodiesel. Hiện nay, phản ứng ester hóa xúc tác axit là một phương pháp tiên xử lý hiệu quả vì nó trực tiếp chuyển FFA thành alkyl este (biodiesel), thuận lợi cho quá trình tổng hợp biodiesel (phản ứng 4) [3, 4].



Mục tiêu của nghiên cứu là: (1) nghiên cứu ảnh hưởng của các yếu tố bao gồm: tỷ lệ mol MeOH/FFA, hàm lượng xúc tác H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>/FFA, và nhiệt độ phản ứng đến quá trình ester hóa WCO; (2) áp dụng phương pháp RSM để phân tích, đánh giá và tối ưu quá trình ester hóa WCO.

**2. Nguyên liệu, quy trình thực nghiệm và phương pháp đánh giá kết quả thực nghiệm** (Bảng 1, 2, 3)

**2.1. Nguyên liệu**

Nguyên liệu được chọn để đánh giá quá trình thực nghiệm là dầu ăn thải của các nhà hàng, tiệm đồ nướng, thức ăn nhanh trên địa bàn thành phố Quy Nhơn, tỉnh Bình Định. Các loại hóa chất khác (metanol 98 %kl, ethanol công nghiệp, và axit sunfuric 98%kl) được cung cấp từ Công ty Trang thiết bị hóa chất tỉnh Bình Định.

**2.2. Quy trình thực nghiệm**

Đầu tiên, WCO sau khi được thu gom về sẽ trải qua quá trình lắng, tách để tách bỏ những tạp chất cơ học trong dầu. Sau đó, WCO được gia nhiệt ở 110°C, trong thời gian khoảng 2 giờ, để tách hoàn toàn nước ra khỏi hỗn hợp. Tiếp đến, thực hiện phản ứng ester hóa FFA trong WCO bằng MeOH với xúc tác H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> đậm đặc (98%kl). Quá trình này được thực hiện trong bình ba cổ 0,5 lít gắn với nhiệt kế để đo nhiệt độ của hỗn hợp phản ứng bên trong bình. Sử dụng máy khuấy từ - gia nhiệt, điều chỉnh tốc độ khuấy 600 vòng/phút để trộn đều hỗn hợp phản ứng. Quá trình được tiến hành ở áp suất khí quyển. Một ống sinh hàn được kết nối theo chiều dọc đến bình phản ứng để ngưng tụ hơi MeOH. Nguyên liệu dầu (100g WCO) được gia nhiệt cho đến khi nhiệt độ đạt đến giá trị yêu cầu. Khi nhiệt độ trong thiết bị phản ứng đạt giá trị mong muốn, hỗn hợp của MeOH và xúc tác H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> sẽ được thêm vào. Thời gian bắt đầu được tính từ lúc mà hỗn hợp MeOH và chất xúc tác được đưa vào thiết bị phản ứng. Duy trì nhiệt độ này trong quá trình phản ứng, đến thời gian định kỳ (lần

lượt là 5, 10, 20, 40, 60, 80, 100, và 120 phút), tiến hành hút mẫu và xác định hàm lượng FFA; từ đó tính độ chuyển hóa của FFA theo thời gian. Nồng độ FFA được xác định bằng cách chuẩn độ mẫu hỗn hợp phản ứng với dung dịch NaOH 0,1M, sử dụng phenolphthalein làm chất chỉ thị.

Độ chuyển hóa của FFA được tính theo phương trình sau:

$$X = \frac{\%FFA_{ban đầu} - \%FFA_{kết thúc}}{\%FFA_{ban đầu}} \times 100\%$$

**2.3. Phương pháp thiết kế và đánh giá kết quả thực nghiệm**

Phương pháp bề mặt đáp ứng (RSM) là một trong những phương pháp thống kê hiện đại để thiết lập các điều kiện tiến hành và đánh giá kết quả thực nghiệm. Trong phương pháp RSM có hai mô hình thiết kế thực nghiệm được áp dụng rộng rãi là thiết kế tổ hợp trung tâm (CCD) và thiết kế hộp Behnken (BBD) [5,6]. Trong nghiên cứu này, mô hình BBD đã được sử dụng để tìm các điều kiện tối ưu cho quá trình ester hóa.

BBD là một thiết kế tổ hợp 3 mức độ được mã hóa (-1; 0; +1). Các nhân tố quan trọng nhất để nghiên cứu trong phản ứng ester hóa bao gồm: tỷ lệ mol (X<sub>1</sub>), hàm lượng xúc tác (X<sub>2</sub>), nhiệt độ phản ứng (X<sub>3</sub>) được chọn làm biến độc lập và độ chuyển hóa của FFA là hàm phụ thuộc (Y). Giới hạn thực nghiệm và mức độ mã hóa của các yếu tố độc lập được thể hiện trong Bảng 1. Danh sách 16 thí nghiệm gồm 12 thí nghiệm thừa số và 4 thí nghiệm tại điểm trung tâm được thiết lập. Phương trình hồi quy bậc 2 được thể hiện như trong phương trình 5:

$$Y = \beta_0 + \sum_{i=1}^3 \beta_i X_i + \sum_{i=1}^2 \sum_{j=1}^2 \beta_{ij} X_i X_j + \sum_{i=1}^3 \beta_{ii} X_i^2 \quad (5)$$

Trong đó: Y là hàm mục tiêu (độ chuyển hóa FFA trong phản ứng ester hóa WCO); β<sub>i</sub> là hằng số, các β<sub>i</sub>

**Bảng 1. Giới hạn và các mức độ đã được mã hóa của các yếu tố khảo sát thực nghiệm**

Các yếu tố khảo sát thực nghiệm			Giới hạn và các mức độ đã được mã hóa		
Yếu tố	Ký hiệu	Đơn vị	-1	0	+1
Tỷ lệ mol MeOH/FFA	X <sub>1</sub>	mol/mol	30	40	50
Hàm lượng xúc tác H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> /FFA	X <sub>2</sub>	%kl	5	10	15
Nhiệt độ phản ứng	X <sub>3</sub>	°C	45	55	65

Bảng 2. Kết quả thực nghiệm và dự đoán từ phương pháp RSM

STT thực nghiệm	Yếu tố khảo sát			Độ chuyển hóa FFA (%)			STT thực nghiệm	Yếu tố khảo sát			Độ chuyển hóa FFA (%)		
	$X_1$	$X_2$	$X_3$	Thực nghiệm	Dự đoán	Sai lệch		$X_1$	$X_2$	$X_3$	Thực nghiệm	Dự đoán	Sai lệch
1	30	10	45	32,85	34,28	-1,43	9	40	5	65	52,36	53,44	-1,08
2	40	15	45	35,06	33,98	1,08	10	50	5	55	52,62	52,97	-0,35
3	50	10	45	41,77	42,13	-0,36	11	30	10	65	45,28	44,92	0,36
4	50	10	65	52,09	50,66	1,43	12	30	15	55	36,64	36,29	0,35
5	30	5	55	54,00	53,29	0,72	13	40	10	55	41,79	42,75	-0,96
6	50	15	55	49,50	50,22	-0,72	14	40	10	55	43,82	42,75	1,07
7	40	5	45	33,20	32,49	0,71	15	40	10	55	42,02	42,75	-0,73
8	40	15	65	31,49	32,20	-0,71	16	40	10	55	43,36	42,75	0,61

là các hệ số tuyến tính,  $\beta_{ii}$  là các hệ số bậc hai,  $\beta_{ij}$  là các hệ số tương tác.

### 3. Kết quả và thảo luận

#### 3.1. Mô hình hồi quy và phân tích thống kê của quá trình ester hóa WCO

Quá trình ester hóa WCO phụ thuộc chặt chẽ vào 3 yếu tố đầu vào, bao gồm: tỉ lệ mol MeOH/FFA, phần trăm khối lượng xúc tác  $H_2SO_4$ /FFA và nhiệt độ phản ứng. (Bảng 1)

Dựa vào phương pháp RSM, mối quan hệ toán học giữa các yếu tố đầu vào và hàm mục tiêu đầu ra (độ chuyển hóa FFA trong WCO) đã được hình thành. Có 16 thí nghiệm đã được thiết lập; kết quả thực nghiệm (khi phản ứng kết thúc tại thời điểm 120 phút) và dự đoán từ RSM được thể hiện trong Bảng 2.

Dựa trên các yếu tố đầu vào đã được mã hóa và loại bỏ các yếu tố không có ý nghĩa thống kê (với giá

Bảng 3. Bảng ANOVA cho mô hình hồi quy theo phương pháp RSM

Nguồn/Yếu tố	DF	Hệ số	SS	MS	F-value	P-value	Ghi chú
Mô hình	9		859,10	95,46	48,10	6,60841*10 <sup>-5</sup>	Có ý nghĩa thống kê
Hằng số $\beta_0$		-98,66				0,01698	Có ý nghĩa thống kê
$X_1$	1	-4,247				0,000910	Có ý nghĩa thống kê
$X_2$	1	2,227				0,09305	Không có ý nghĩa thống kê
$X_3$	1	7,279				0,000128	Có ý nghĩa thống kê
$X_1^2$	1	0,05206				0,000315	Có ý nghĩa thống kê
$X_2^2$	1	0,00945				0,749	Không có ý nghĩa thống kê
$X_3^2$	1	-0,04956				0,000412	Có ý nghĩa thống kê
$X_1X_2$	1	0,07120				0,00232	Có ý nghĩa thống kê
$X_1X_3$	1	-0,00528				0,482	Không có ý nghĩa thống kê
$X_2X_3$	1	-0,114				0,000194	Có ý nghĩa thống kê
Phần dư	6		11,91	1,985			
Thiếu phù hợp (LOF)	3		8,936	2,979	3,0073	0,195	Không có ý nghĩa thống kê
Sai số góc	3		2,971				
Tổng	15		871,00	0,990			

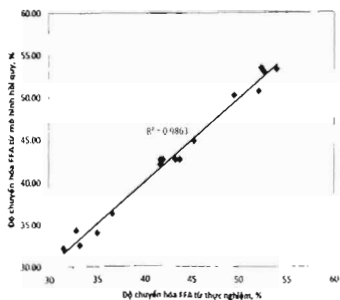
$R^2$ : 0,9863,  $R^2$  đã hiệu chỉnh: 0,966,  $R^2$  để dự đoán: 0,830

trị P-value > 0,05), mô hình hồi quy cho quá trình ester WCO được thể hiện trong phương trình (6):

$$Y = -98,66 - 4,247X_1 + 7,279X_2 + 0,052061X_1^2 - 0,04956X_2^2 + 0,0712X_1X_2 - 0,114X_1X_3 \quad (6)$$

Kết quả phân tích phương sai (bảng ANOVA) được thể hiện trong Bảng 3. Sự phù hợp của mô hình hồi quy dự đoán so với các kết quả thực nghiệm được kiểm tra qua các giá trị: F-value, P-value, R<sup>2</sup> và R<sup>2</sup> đã hiệu chỉnh, R<sup>2</sup> để dự đoán [3,4,6]. Giá trị F-value của mô hình hồi quy cao (48,10) và giá trị P-value rất thấp (6,60841\*10<sup>-5</sup>), chứng tỏ rằng mô hình dự đoán có ý nghĩa thống kê với độ tin cậy 95%. Bên cạnh đó, sự phù hợp của mô hình còn được đánh giá dựa trên hệ số tương quan R<sup>2</sup> tại độ tin cậy 95%. Trong mô hình hồi quy này, hệ số tương quan (0,9863) chỉ ra rằng: 98,63% sự thay đổi về độ chuyển hóa FFA trong WCO chịu ảnh hưởng bởi các yếu tố độc lập như tỉ lệ mol MeOH/FFA (X<sub>1</sub>), hàm lượng xúc tác H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>/FFA (X<sub>2</sub>), và nhiệt độ phản ứng (X<sub>3</sub>). Ngược lại, chỉ có 1,37% sự thay đổi về độ chuyển hóa FFA trong WCO là do sai số ngẫu nhiên. Hơn nữa, giá trị P-value của sự thiếu phù hợp (LOF) là 0,195 > 0,05; chứng tỏ rằng LOF không có ý nghĩa thống kê; điều này càng góp phần khẳng định sự phù hợp của mô hình hồi quy đã dự đoán. Sự tương quan về độ chuyển hóa FFA từ thực nghiệm và được dự đoán từ mô hình hồi quy được thể hiện trong Hình 1. Hệ số tương quan rất cao (0,9863) thể hiện sự phù hợp giữa

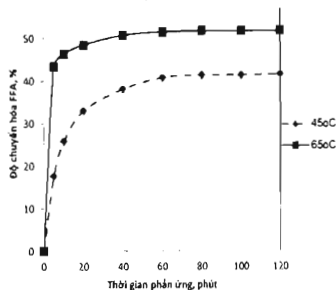
**Hình 1: Mối tương quan giữa độ chuyển hóa FFA từ thực nghiệm và được dự đoán từ mô hình hồi quy**



các kết quả từ thực nghiệm và từ việc dự đoán nhờ vào mô hình hồi quy ở trên.

Cũng trong Bảng 3, mỗi yếu tố trong mô hình hồi quy cũng được kiểm tra để đánh giá mức độ ảnh hưởng của từng yếu tố riêng lẻ cũng như sự tương tác của chúng tới quá trình ester hóa WCO. Giá trị P-value nhỏ hơn 0,05 chứng tỏ yếu tố đó có ý nghĩa thống kê, tác động đến phương trình hồi quy (6). Từ Bảng 3 và phương trình (6) cho thấy rằng các yếu tố: X<sub>1</sub>, X<sub>2</sub>, X<sub>1</sub><sup>2</sup>, X<sub>2</sub><sup>2</sup>, X<sub>1</sub>X<sub>2</sub> và X<sub>2</sub>X<sub>3</sub> thì có ý nghĩa thống kê; trái lại các yếu tố: X<sub>3</sub>, X<sub>3</sub><sup>2</sup>, X<sub>1</sub>X<sub>3</sub> thì không có ý nghĩa và không có mặt trong phương trình (6).

**Hình 2: Ảnh hưởng của thời gian phản ứng đến độ chuyển hóa**



**3.2. Ảnh hưởng của các yếu tố khác nhau đến phản ứng**

Bên cạnh việc áp dụng phương pháp RSM đánh giá sự ảnh hưởng của các điều kiện phản ứng và thiết lập phương trình hồi quy mô tả quá trình ester hóa FFA trong WCO, tiến hành nghiên cứu ảnh hưởng của các yếu tố phản ứng đến độ chuyển hóa FFA trong quá trình ester hóa WCO trong những khoảng thời gian như nhau (2 giờ).

**3.2.1. Ảnh hưởng của nhiệt độ phản ứng**

Các kết quả thí nghiệm để chuyển hóa FFA ở các giá trị nhiệt độ phản ứng khác nhau với tỉ lệ mol MeOH/FFA và hàm lượng H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>/FFA là không đổi (lần lượt là 50 mol/mol và 10 %kt), được thể hiện trong Hình 2. Kết quả cho thấy độ chuyển hóa của FFA tăng theo nhiệt độ. Ở nhiệt độ phản ứng thấp (45°C), phản ứng đạt tới trạng thái cân bằng sau 80

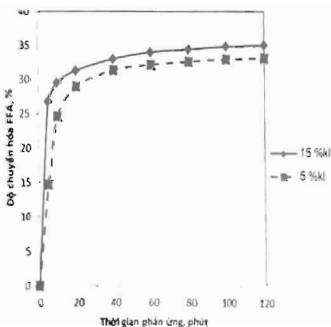
phút. Tại nhiệt độ cao hơn (65°C), thời gian cần thiết để phản ứng đạt đến trạng thái cân bằng giảm đáng kể, chỉ là 60 phút. Điều này chứng tỏ, nhiệt độ phản ứng càng cao, thời gian cần thiết để đạt đến trạng thái cân bằng càng ngắn. Ở trạng thái cân bằng, độ chuyển hóa FFA tại 45°C và 65°C lần lượt là 41,77% và 52,09%. Điều này có thể giải thích như sau: tốc độ phản ứng ester hóa FFA trong WCO phụ thuộc vào nhiệt độ. Khi nhiệt độ tăng, khả năng khuếch tán vào nhau của các chất tăng làm cho phản ứng diễn ra nhanh hơn.

Kết quả này cũng khá phù hợp với nghiên cứu của M. Mekala và các cộng sự [7]. Độ chuyển hóa của  $\text{CH}_3\text{COOH}$  trong phản ứng ester hóa đạt giá trị cao hơn (khoảng 69%) có thể được giải thích là nghiên cứu này được thực hiện chỉ có một phản ứng giữa  $\text{CH}_3\text{COOH}$  và  $\text{CH}_3\text{OH}$ . Trái lại, phản ứng ester FFA trong WCO trải qua nhiều phản ứng ester hóa riêng lẻ do sự phức tạp của thành phần FFA trong WCO. Điều này dẫn đến độ chuyển hóa FFA trong WCO không cao (41,77% và 52,09%).

3.2.2. Ảnh hưởng của hàm lượng xúc tác

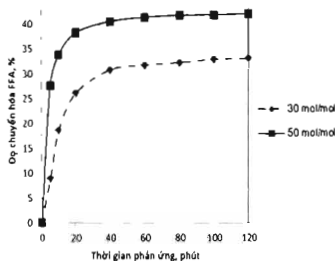
Các kết quả thí nghiệm về chuyển hóa FFA ở các giá trị hàm lượng xúc tác khác nhau với tỉ lệ mol  $\text{MeOH}/\text{FFA}$  và nhiệt độ phản ứng là không đổi (lần lượt là 50 mol/mol và 45°C), được thể hiện trong Hình 3. Ảnh hưởng của hàm lượng xúc tác đến độ

Hình 3: Ảnh hưởng của hàm lượng xúc tác đến độ chuyển hóa



chuyển hóa của FFA tương tự như ảnh hưởng của nhiệt độ. Khi tăng nồng độ chất xúc tác thì độ chuyển hóa FFA càng tăng. Tuy nhiên, mức tăng này không lớn so với mức tăng của nhiệt độ (độ chuyển hóa tăng 33,20% đến 35,06%). Điều này chứng tỏ rằng, yếu tố hàm lượng xúc tác ảnh hưởng không lớn đến độ chuyển hóa FFA trong WCO. Có thể do phản ứng ester hóa nhanh chóng đạt trạng thái cân bằng ở hàm lượng xúc tác khoảng 5 %/kl. Kết quả này phù hợp với mô hình hồi quy dự đoán từ phương pháp RSM (phương trình 6) cũng như trong các nghiên

Hình 4: Ảnh hưởng của tỉ lệ mol chất phản ứng ban đầu đến độ chuyển hóa



cứ đã công bố [7, 8].

3.2.3. Ảnh hưởng của tỉ lệ mol chất phản ứng ban đầu

Các kết quả thí nghiệm về chuyển hóa FFA ở các tỉ lệ mol khác nhau với hàm lượng xúc tác và nhiệt độ phản ứng là không đổi (lần lượt là 10 %/kl và 45°C), được thể hiện trong Hình 4. Với sự gia tăng tỷ lệ mol của axit axetic với metanol từ 1:30 đến 1:50, sự chuyển đổi cân bằng của axit axetic tăng từ 32,85% lên 41,77%. Điều này có thể giải thích là do phản ứng ester hóa là phản ứng thuận nghịch nên khi ta tăng lượng metanol thì phản ứng sẽ dịch chuyển theo chiều làm giảm lượng metanol, tức là phản ứng xảy ra theo chiều thuận, độ chuyển hóa FFA càng tăng.

Kết quả này được so sánh với nghiên cứu của M. Mekala và các cộng sự với kết quả độ chuyển hóa của  $\text{CH}_3\text{COOH}$  rất cao (hơn 90%). Điều này có thể được giải thích, nghiên cứu của M. Mekala

và các cộng sự được thực hiện giữa phản ứng  $\text{CH}_3\text{COOH}$  và  $\text{CH}_3\text{OH}$  với sự tham gia của xúc tác  $\text{H}_2\text{SO}_4$ . Đây là một nghiên cứu cho đơn phản ứng, độ chuyển hóa của  $\text{CH}_3\text{COOH}$  không bị những yếu tố khác tác động. Trái lại, phản ứng ester hóa FFA trong WCO thực chất bao gồm rất nhiều phản ứng do thành phần đa dạng của FFA trong WCO. Hơn nữa, thành phần chính của WCO là triglycerit (ester 3 chức) nên sẽ có phản ứng chuyển vị ester giữa triglycerit với metanol dưới xúc tác axit, tạo ra các metyl ester và glycerol (phản ứng xảy ra với tốc độ chậm). Những yếu tố này cũng góp phần cản trở phản ứng ester hóa giữa FFA và metanol.

#### 4. Kết luận

Bài nghiên cứu đã đạt được các kết quả sau:

(1) Xây dựng mô hình hồi quy dựa trên phương pháp RSM cho quá trình transester hóa WCO với các chi số có ý nghĩa thống kê cao; đặc biệt sự tương quan giữa độ chuyển hóa FFA giữa thực nghiệm và mô hình dự đoán là rất cao (98,63%);

(2) Đã khảo sát sự ảnh hưởng của các yếu tố như: tỉ lệ mol  $\text{MeOH}/\text{FFA}$ , hàm lượng xúc tác  $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{FFA}$ , và nhiệt độ phản ứng tới độ chuyển hóa FFA trong WCO khi thực hiện thời gian phản ứng là như nhau (120 phút). Các kết quả này đã được thảo luận và so sánh với các công bố trước.

*Lời cảm ơn: Nghiên cứu này do Trường Đại học Quy Nhơn bảo trợ và cấp kinh phí cho đề tài Nghiên cứu khoa học sinh viên cấp Trường, mã số S2019 588.25*

#### TÀI LIỆU THAM KHẢO:

- Dang Nguyen Thoai, C. Tongurai, K. Prasertsit, A. Kumar. *Review on biodiesel production by two-step catalytic conversion*, Biocatal Agric. Biotechnol., 2019, 18, 101023.
- Dang Nguyen Thoai, C. Tongurai, K. Prasertsit, S. Pholaworn. *Optimization of the first step transesterification of refined palm oil using solid sodium methoxide catalyst*, 23rd Regional Symposium on Chemical Engineering (RSCE2016), Vung Tau City, Vietnam, 2016, 137-144.
- Dang Nguyen Thoai, A. Kumar, K. Prasertsit, C. Tongurai. *Evaluation of biodiesel production process by the determining of the total glycerol content in biodiesel*, Energy Procedia, 2017, 138, 544-551.
- Dang Nguyen Thoai, C. Tongurai, K. Prasertsit, A.I. Kumar. *A novel two-step transesterification process catalyzed by homogeneous base catalyst in the first step and heterogeneous acid catalyst in the second step*, Fuel Process Technol., 2017, 168, 97-104.
- D. D. Steppan, J. Werner, R. P. Yeater. *Essential Regression and Experimental Design for Chemists and Engineers*, 1998.
- Dang Nguyen Thoai, C. Tongurai, K. Prasertsit, A. Kumar. *Predictive Capability Evaluation of RSM and ANN in Modeling and Optimization of Biodiesel Production from Palm (Elaeisguineensis) Oil*, Int. J. Appl. Eng. Res., 2018, 13(10), 7529-7540.
- Mallaiiah Mekala, Venkat Reddy Goli. *Kinetics of esterification of methanol and acetic acid with mineral homogeneous acid catalyst*, Chinese Journal of Chemical Engineering, 2015, 23, 100-105.
- U Rofiqah, R A Djalal, B Sutrisno, A Hidayat. *Kinetic Study on the Esterification of Palm Fatty Acid Distillate (PFAD) Using Heterogeneous Catalyst*, IOP Conf. Series: Materials Science and Engineering, 2018, 358, 012069.

Ngày nhận bài: 3/3/2020

Ngày phản biện đánh giá và sửa chữa: 13/3/2020

Ngày chấp nhận đăng bài: 23/3/2020

*Thông tin tác giả:*

1. TS. **ĐẶNG NGUYỄN THOẠI**

Khoa Khoa học Tự nhiên, Trường Đại học Quy Nhơn

Trung tâm Hỗ trợ sinh viên và Quan hệ doanh nghiệp, Trường Đại học Quy Nhơn

2. **NGUYỄN THỊ TRÚC MỸ - ĐẶNG ĐỒNG NHẬT - QUẢNG THANH BÌNH - NGUYỄN XUÂN THẢO**

Sinh viên Khoa Khoa học Tự nhiên, Trường Đại học Quy Nhơn

## **USING THE RESPONSE SURFACE METHOD TO STUDY ACID-CATALYZED ESTERIFICATION OF WASTE COOKING OIL**

● Ph.D **DANG NGUYEN THOAI**

Faculty of Natural Sciences, Quy Nhon University

Center for Student Support and Business Relations, Quy Nhon University

● **NGUYEN THI TRUC MY - DANG DONG NHAT**

Student, Faculty of Natural Sciences, Quy Nhon University

● **QUANG THANH BINH**

Student, Faculty of Natural Sciences, Quy Nhon University

● **NGUYEN XUAN THAO**

Student, Faculty of Natural Sciences, Quy Nhon University

### **ABSTRACT:**

The biodiesel production from waste cooking oil (WCO) has been studying recently. In this study, the esterification reaction between free fatty acids (FFA) in WCO and methanol (MeOH) to synthesize biodiesel was carried out in a batch reactor. Response surface method (RSM) was used to design experiments, analyze, evaluate, and optimize experimental results. The parameters which were investigated included molar ratio MeOH/FFA (30-50 mol/mol), catalyst content of  $H_2SO_4$ /FFA (5-15 wt.%) and reaction temperature (45-65°C). The influence of these parameters was assessed and verified by using the RSM. The regression model of WCO esterification was established and showed that there was a very high correlation coefficient between experiment and prediction (98.63%).

**Keywords:** Biodiesel, waste cooking oil, esterification, acid catalyst, RSM.