



# CHẾ TẠO VẬT LIỆU COMPOSITE TÁI CHẾ HOÀN TOÀN TỪ PHẾ LIỆU ĐỂ GIÀY EVA VÀ CAO SU BẰNG PHƯƠNG PHÁP LƯU HÓA PEROXIT HƯỚNG ĐẾN ỨNG DỤNG BỀN VỮNG

LÊ QUANG MINH<sup>1</sup>, HÀ MAI LINH<sup>1</sup>, ĐỒNG THỊ NGỌC ANH<sup>1</sup>, TRẦN THU HỒNG<sup>1</sup>,  
LÊ NGỌC ANH<sup>1</sup>, ĐỖ QUỐC VIỆT<sup>1</sup>, HUỖNH TRUNG HẢI<sup>1</sup>, ĐOÀN ANH VŨ<sup>1\*</sup>

<sup>1</sup> Khoa Vật liệu Hóa học Ứng dụng, Trường Vật liệu, Đại học Bách khoa Hà Nội

## Tóm tắt

Trong nghiên cứu này, vật liệu composite tái chế hoàn toàn từ phế liệu đế giày ethylene-vinyl acetate (EVA) và cao su phế liệu (CSPL) được chế tạo bằng phương pháp tái lưu hóa sử dụng tác nhân dicumyl peroxide (DCP). Hàm lượng gel của EVA phế liệu và CSPL ban đầu lần lượt là 80,50% và 90,46%. Kết quả cho thấy, DCP cải thiện độ bền kéo của EVA tái chế từ 10 MPa lên 13 MPa, nhưng không cải thiện đáng kể đối với CSPL, độ bền kéo chỉ đạt 1,85 MPa. Đối với hỗn hợp blend, độ bền kéo và độ giãn dài có xu hướng giảm khi tăng tỷ lệ CSPL. Tỷ lệ blend cho các giá trị cân bằng giữa hàm lượng tái chế và cơ tính là 40/60, với độ bền kéo đạt 6,383 MPa, độ giãn dài 177,1% và độ cứng Shore A 90. Kết quả từ nghiên cứu đã cho thấy, vật liệu composite từ 100% phế liệu EVA và CSPL được chế tạo thành công mà không sử dụng bất kỳ polyme nguyên sinh nào. Vật liệu này có tiềm năng ứng dụng trong các sản phẩm không yêu cầu cơ tính cao, góp phần giải quyết bài toán chất thải ngành giày dép theo hướng kinh tế tuần hoàn.

**Từ khóa:** EVA phế liệu, cao su phế liệu, composite tái chế, lưu hóa peroxide, kinh tế tuần hoàn.

**Ngày nhận bài:** 13/2/2026; **Ngày sửa chữa:** 25/2/2026; **Ngày duyệt đăng:** 4/3/2026.

## Fabricating fully recycled composite materials from EVA and rubber shoe sole waste using peroxide vulcanization, aiming for sustainable applications

### Abstract

In this study, a composite material fully recycled from ethylene-vinyl acetate (EVA) shoe sole waste and waste rubber (WR) was fabricated using a re-vulcanization method with dicumyl peroxide (DCP) as the curing agent. The gel content of the waste EVA and initial waste rubber was 80.50% and 90.46%, respectively. The results showed that DCP improved the tensile strength of recycled EVA from 10 MPa to 13 MPa, but did not significantly enhance that of waste rubber, which achieved only 1.85 MPa. For the blends, tensile strength and elongation tended to decrease with increasing waste rubber content. The blend ratio that provided a balance between recycled content and mechanical properties was 40/60, achieving a tensile strength of 6.383 MPa, an elongation of 177.1%, and a Shore A hardness of 90. The results of this study demonstrate that a composite material made from 100% waste EVA and waste rubber was successfully fabricated without using any virgin polymer. This material has potential applications in products that do not require high mechanical properties, contributing to solving the waste problem in the footwear industry within a circular economy framework.

**Keywords:** Waste EVA, waste rubber powder, fully recycled composite, DCP crosslinking, circular economy.

**JEL Classifications:** Q55, Q51, O44.

### 1. ĐẶT VẤN ĐỀ

Ngành công nghiệp giày dép toàn cầu đang phải đối mặt với áp lực ngày càng lớn trong việc quản lý chất thải sau sản xuất và sau tiêu dùng. Tại châu Âu, lượng chất thải rắn ngành giày dép khoảng 1,2 triệu tấn mỗi năm, trong đó chỉ có 5% được tái chế, 15% được tái sử dụng và 80% bị chôn lấp hoặc đốt bỏ [1]. Trong số các vật liệu được sử dụng phổ biến nhất để sản xuất đế giày, ethylene-vinyl acetate (EVA) và cao su chiếm tỷ

trọng đáng kể. EVA là một copolyme ngẫu nhiên của ethylene và vinyl acetate, được ưa chuộng nhờ đặc tính nhẹ, đàn hồi tốt và khả năng hấp thụ xung động cao [2-4]. Trong khi đó, các vật liệu từ cao su (tự nhiên hoặc tổng hợp) mang lại độ bền cơ học và khả năng chống mài mòn vượt trội. Tuy nhiên, chính những đặc tính này, cùng với cấu trúc liên kết ngang sau khi lưu hóa đã khiến cho việc tái chế chúng theo hướng tuần hoàn và khép kín trở thành một thách thức lớn.



Các nghiên cứu trước đây đã chỉ ra rằng, việc kết hợp EVA và cao su phế thải có tiềm năng cải thiện một số tính chất cơ lý. Ramarad và cộng sự đã chế tạo vật liệu blend tái chế từ EVA và cao su tái chế từ lốp xe. Vật liệu blend sau đó được khâu mạng dưới tác động của chùm tia bức xạ điện tử [5, 6]. Wiśniewska và cộng sự đã chế tạo vật liệu polyme composite dựa trên cao su phế thải từ lốp xe (GTR) và EVA có bổ sung carbon black. Các kết quả nghiên cứu chỉ ra, vật liệu với tỷ lệ EVA/GTR là 50/50 thể hiện tính chất chống cháy đáng kể [7]. Trong một nghiên cứu khác sử dụng phế liệu EVA từ ngành giày dép, EVA đã được lưu hóa sơ bộ bằng cách nghiền nhỏ và phân tán 10% trọng lượng bột EVA phế liệu vào nền EVA nguyên sinh [8]. Mặc dù các tính chất cơ học của vật liệu tái chế thấp hơn so với EVA nguyên sinh, nhưng kết quả đánh giá vòng đời (LCA) cho thấy phương pháp này mang lại lợi ích vượt trội về mặt môi trường và chi phí. Dicumyl peroxide (DCP) là một tác nhân lưu hóa phổ biến cho cả EVA và cao su. Về mặt cơ chế phản ứng trong hệ EVA, các gốc tự do từ DCP tấn công chủ yếu vào nguyên tử carbon của nhóm methyl ở đầu nhóm acetoxyl, tạo thành liên kết ngang C-C. Varghese và cộng sự đã so sánh ảnh hưởng của ba hệ lưu hóa khác nhau (lưu huỳnh, DCP và hỗn hợp lưu huỳnh kết hợp DCP) lên tính chất cơ học của hỗn hợp cao su nitrile butadiene (NBR) và EVA [9]. Kết quả cho thấy, hệ lưu hóa hỗn hợp mang lại các tính chất cơ học tốt nhất, bao gồm độ bền kéo, độ giãn dài và độ bền xé. Tuy nhiên, hệ chỉ sử dụng DCP vẫn tạo ra vật liệu có tính chất cơ học chấp nhận được, đặc biệt khi xét đến khả năng chịu nhiệt và kháng dầu tốt hơn so với hệ lưu huỳnh. Mặc dù các nghiên cứu kể trên đã đóng góp đáng kể vào lĩnh vực tái chế polyme, vẫn còn tồn tại một khoảng trống nghiên cứu quan trọng: chưa có nghiên cứu nào tập trung vào việc chế tạo vật liệu composite 100% từ EVA và cao su mà không bổ sung bất kỳ polyme nguyên sinh nào. Hầu hết các nghiên cứu hiện tại đều sử dụng EVA nguyên sinh làm nền hoặc chỉ xử lý riêng lẻ từng loại phế liệu.

Trong nghiên cứu này vật liệu “100% tái chế” được chế tạo dựa trên nguồn phế liệu từ đế giày là EVA và CSPL. Tác nhân DCP được thêm vào với mục đích tạo liên kết giữa hai pha nền trong quá trình tái lưu hóa và giúp tăng cường các tính chất về cơ lý do sự không tương hợp giữa hai pha. Các tính chất cơ-lý như độ bền kéo, độ giãn dài, độ cứng của vật liệu được khảo sát với các tỉ lệ EVA/CSPL khác nhau.

## 2. PHƯƠNG PHÁP NGHIÊN CỨU

**Hóa chất:** Cao su phế liệu và EVA phế liệu dạng bột được thu gom từ phế liệu của quá trình sản xuất giày của Công ty Giày Xuân Ngọc (Hà Nội). Dicumyl peroxide (DCP) có nguồn gốc từ Công ty hóa chất Nouryon (Ningbo) (Trung Quốc).

**Phương pháp thực nghiệm:** Cao su phế và EVA phế được sấy khô ở nhiệt độ 80°C trong vòng 24 giờ trước khi được đem ra sử dụng. Tỷ lệ phối trộn EVA phế/cao su phế được sử dụng là: 100/0, 80/20, 60/40, 50/50, 40/60, 20/80, 0/100 theo phần khối lượng (pkl) và 2 pkl DCP được trộn bằng máy trộn kín Brabender (Đức) ở nhiệt độ phòng (24°C) với tốc độ quay 20 vòng/phút trong 30 phút. Sau đó hỗn hợp này được ép bằng máy ép có gia nhiệt ở nhiệt độ 140°C, áp suất 25 MPa trong vòng 60 phút và thu được vật liệu composite tái chế.

**Đánh giá tính chất:** Hàm lượng phần gel của EVA phế liệu được đánh giá thông qua chiết Soxhlet bằng Xylene ở nhiệt độ 140°C trong 72 giờ. Hàm lượng phần gel của cao su phế được đánh giá thông qua ngâm trương nở Toluene trong 72 giờ. Sau đó mẫu được sấy ở 80°C tới khối lượng không đổi. Hàm lượng phần gel được tính toán thông qua khối lượng mẫu sau khi ngâm và sấy so với khối lượng mẫu ban đầu.

Độ bền kéo và độ giãn dài khi đứt được xác định theo tiêu chuẩn ASTM D412 bằng máy đo vạn năng (Yangyi, Đài Loan) với tốc độ kéo 500 mm/phút. Mẫu hình mái chèo (loại 2) được cắt từ tấm composite với độ dày khoảng 1 mm. Độ cứng Shore A được đo theo tiêu chuẩn ASTM D2240 bằng máy đo độ cứng (GS-709N, Teclock, Nhật Bản). Giá trị độ cứng được ghi lại ở nhiệt độ phòng. Mỗi mẫu đo được thực hiện 5 lần tại các vị trí khác nhau.

## 3. KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN

### 3.1. Hàm lượng phần gel của EVA phế liệu và cao su phế liệu

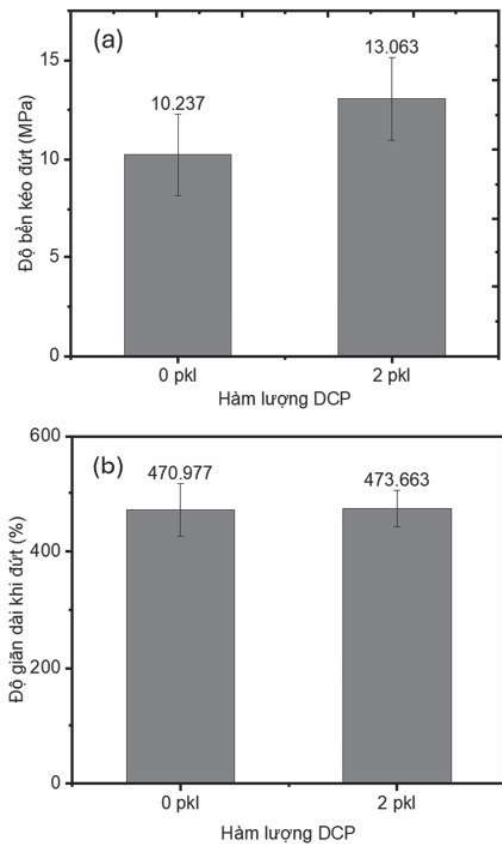
**Bảng 1. Hàm lượng phần gel ban đầu của mẫu EVA và CSPL**

Mẫu	Hàm lượng phần gel
EVA	80,50%
CSPL	90,46%

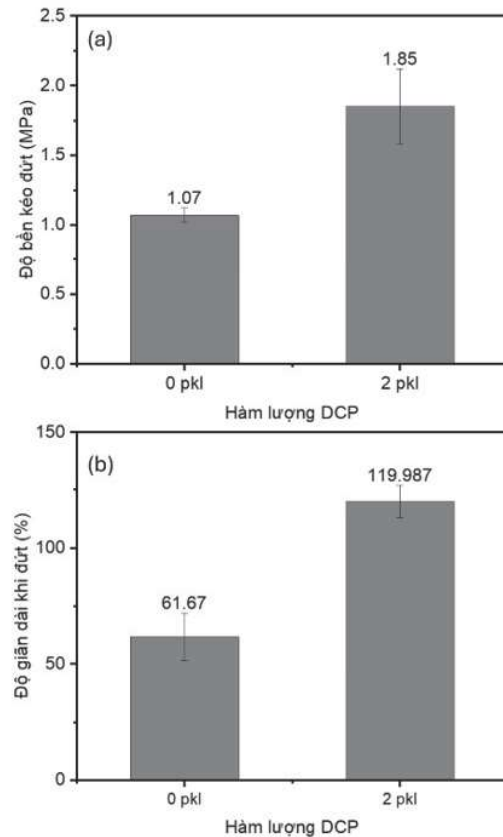
Kết quả ở Bảng 1 cho thấy hàm lượng gel của EVA phế liệu đạt 80,50%, trong khi CSPL lên tới 90,46%. Giá trị này phản ánh mức độ liên kết ngang của vật liệu. Đối với EVA, hàm lượng gel chưa quá cao cho thấy vẫn tồn tại các chuỗi tự do, hơn nữa do bản chất EVA là copolyme nên vật liệu còn khả năng tái gia công tương tự nhựa nhiệt dẻo [10]. Ngược lại, CSPL có hàm lượng gel cao hơn và các chuỗi cao su không thể khuếch tán qua mạng liên kết. Do đó, các hạt CSPL không thể tái liên kết hiệu quả chỉ bằng gia công nhiệt.

### 3.2. Ảnh hưởng của quá trình lưu hóa lại bằng DCP đến tính chất cơ-lý của từng nền vật liệu EVA phế và cao su phế

Số liệu về ảnh hưởng của DCP đến tính chất cơ-lý của bột EVA phế được ép nóng chảy ở 140°C được so sánh với bột EVA phế được ép ở cùng nhiệt độ được biểu thị trong Hình 1. Có thể nhận thấy rằng mẫu bột EVA phế nguyên bản (0 pkl DCP) sau khi ép nóng cũng đã cho ra độ bền kéo đứt và độ giãn dài ở mức tương đối. Độ bền kéo đạt khoảng 10 MPa và độ giãn dài khoảng 471%. Điều này có thể giải thích được từ góc độ bản chất của EVA giống như nhựa nhiệt dẻo [10]. Đối với mẫu EVA với sự có mặt của 2 pkl DCP, giá trị độ bền kéo tăng lên 13 MPa. Trong công nghệ gia công polyme, DCP thường được dùng như một chất khâu mạng do có khả năng phân hủy dưới nhiệt độ cao và tạo các gốc tự do phản ứng. Các gốc tự do tạo ra tấn công vào các vị trí trên mạch polyme và tái tạo các liên kết ngang C-C của bột EVA phế khiến cho các hạt liên kết tốt với nhau cho kết quả độ bền kéo cao hơn. Tương tự như EVA phế, mẫu bột cao su phế liệu (CSPL) với 0pkl và 2pkl DCP cũng được ép nóng ở 140°C để so sánh tính chất cơ-lý. Do các hạt cao su đã gần như được lưu hóa hoàn toàn, quá trình ép nóng không thể làm cho các hạt liên kết lại thành một pha đồng nhất. Do đó, độ bền kéo của của mẫu 0 pkl thu



Hình 1. Ảnh hưởng của DCP đến tính chất cơ-lý của nền vật liệu EVA phế



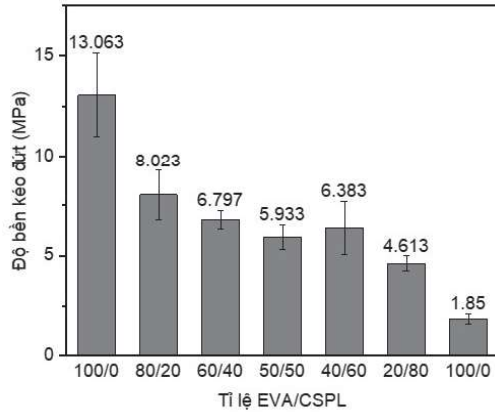
Hình 2. Ảnh hưởng của DCP đến tính chất cơ-lý của nền cao su phế liệu

được tương đối thấp (khoảng 1,07 MPa). Tuy nhiên, độ giãn dài của mẫu có sự tăng từ 61,67% lên đến gần gấp đôi tại 119,99%. Điều này cho thấy sự có mặt của tác nhân DCP có thể hỗ trợ tạo liên kết một phần trong quá trình tái lưu hóa đối với CSPL (Hình 1, 2).

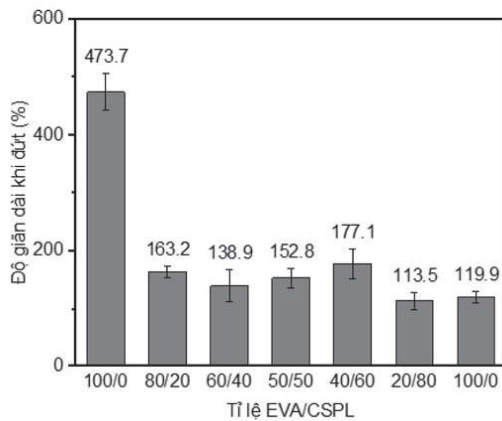
### 3.3. Ảnh hưởng của hàm lượng blend EVA/CSPL đến các tính chất cơ học của vật liệu composite tái chế

Độ bền kéo đứt và độ giãn dài của các mẫu blend EVA/CSPL sau khi tái lưu hóa với 2pkl DCP được trình bày trong Hình 3 và Hình 4. Kết quả cho thấy khi tỷ lệ CSPL tăng dần 80/20 đến 60/40, độ bền kéo giảm lần lượt xuống còn 8,02 MPa và 6,80 MPa. Trong một nghiên cứu trước đây của Alex và cộng sự, nguyên nhân chủ yếu là do sự không tương hợp về mặt nhiệt động giữa hai pha vật liệu [11]. Tại tỷ lệ 50/50, độ bền kéo tiếp tục giảm xuống 5,93 MPa, có thể do sự phân bố pha kém ổn định khi hai thành phần gần bằng nhau. Đáng chú ý, tại tỷ lệ 40/60, độ bền kéo có sự cải thiện nhẹ lên 6,38 MPa, hiện tượng này có thể được lý giải bởi sự hình thành cấu trúc đồng liên tục [11], trong đó các hạt EVA tuy ít nhưng vẫn đủ để lấp đầy khoảng trống giữa các hạt CSPL, tạo ra một số liên kết kết nối mới và cải thiện sự phân bố ứng suất (Hình 3, 4).

Ở các mẫu với hàm lượng CSPL cao như 20/80 và

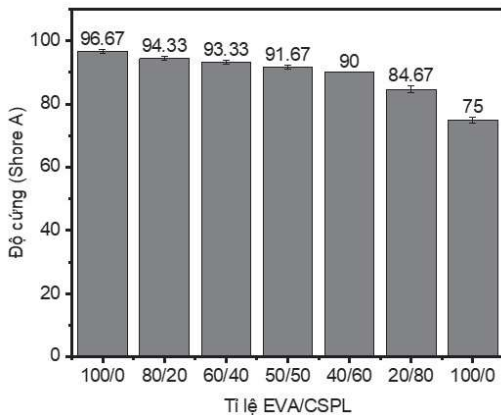


Hình 3. Ảnh hưởng của hàm lượng blend đến độ bền kéo của vật liệu tái chế



Hình 4. Ảnh hưởng của hàm lượng blend đến giãn dài khi đứt của vật liệu tái chế

0/100, độ bền kéo giảm mạnh xuống 4,61 MPa và 1,85 MPa, cho thấy khi thiếu vắng nền EVA đóng vai trò chất kết dính, các hạt cao su phế liệu hầu như không thể tái liên kết ngang hiệu quả với nhau chỉ bằng DCP. Điều này dẫn đến một cấu trúc rời rạc, kém bền về cơ



Hình 5. Ảnh hưởng của hàm lượng blend đến độ cứng của vật liệu tái chế

học. Nhìn chung, với hàm lượng DCP 2 phk, tỷ lệ 80/20 cho độ bền kéo tối ưu, trong khi 40/60 thể hiện sự cân bằng hợp lý giữa tái sử dụng phế liệu và tính chất cơ học. Xu hướng tương tự cũng được ghi nhận đối với độ giãn dài khi đứt.

Hình 5 thể hiện sự thay đổi độ cứng Shore A của các mẫu composite tái chế theo tỷ lệ EVA/CSPL. Kết quả cho thấy độ cứng giảm dần tuyến tính khi hàm lượng CSPL tăng lên. Xu hướng này hoàn toàn phù hợp với bản chất của hai vật liệu thành phần do cao su có bản chất đàn hồi, độ cứng thấp hơn EVA ở cùng điều kiện gia công.

#### 4. KẾT LUẬN

Nghiên cứu chứng minh khả năng chế tạo composite tái chế hoàn toàn từ EVA và CSPL thông qua quá trình tái lưu hóa với DCP mà không cần sử dụng polyme nguyên sinh. Kết quả cho thấy DCP cải thiện rõ độ bền kéo của EVA, nhưng hiệu quả hạn chế với CSPL. Trong các blend EVA/CSPL, mẫu 80/20 đạt độ bền kéo cao nhất (8,02 MPa) và độ giãn dài tương ứng 163,2%; trong khi mẫu 40/60 cho sự cân bằng tốt giữa tỷ lệ phế liệu (60% CSPL) và độ bền kéo (6,29 MPa). Vật liệu tái chế phù hợp cho các ứng dụng như tấm lót, đế giày tái chế và vật liệu cách âm, cách nhiệt... góp phần thúc đẩy phát triển kinh tế tuần hoàn trong ngành giày dép.

**Lời cảm ơn:** Kết quả nghiên cứu của bài báo là một phần trong nội dung của đề tài KC.06.05/21-30

#### TÀI LIỆU THAM KHẢO

- European Commission, 2020. Demonstration of a new business and consumption model for the circular economy in the footwear sector.
- Zhang, X., et al. (2016). *Polymer Testing*, 53, 230-237.
- Li, Y., et al. (2025). *Materials Today Communications*, 38, 106123.
- Ames, K. A. (2004). *Elastomers for shoe applications*, 77(3), 413-475.
- Ramarad, S., et al. (2015). *Journal of Applied Polymer Science*, 132(11), 41649.
- Ramarad, S., et al. (2020). *IOP Conf. Ser.: Mater. Sci. Eng.*, 957, 012067.
- Wiśniewska, P., et al. (2024). *Composites Science and Technology*, 251, 110563.
- Bianchi, I., et al. (2023). *The International Journal of Advanced Manufacturing Technology*, 126(7/8), 3149-3160.
- Varghese, H., et al. (1999). *Journal of Applied Polymer Science*, 71(14), 2335-2364.
- Schneider, C., et al. (2017). *Journal of Controlled Release*, 262, 284-295.
- George, S., et al. (1993). *Polymer*, 34(16), 3428-3436.