Tạp chí Phát triển Khoa học và Công nghệ – Khoa học Trái đất và Môi trường 2022, 6(2):600-608

Open Access Full Text Article

Bài nghiên cứu

Tác động của siêu âm lên quá trình tổng hợp zeolite A từ tro bay than

Lê Văn Tâm[1,*], Nguyễn Thanh Tùng[1], Lê Thị Thu Thủy[2], Phạm Hồng Nhật[1]

Use your smartphone to scan this QR code and download this article

TÓM TẮT

Zeolite A là một trong số những zeolite nổi tiếng được tổng hợp từ tro bay nhiệt điện than có nhiều ứng dụng trong công nghiệp như phụ gia trong bột giặt, hấp phụ, làm sạch ao nuôi, xử lý kim loại nặng, NH_4^+, hút ẩm, rây phân tử, v.v. Sử dụng siêu âm trong quá trình kết tinh thủy nhiệt (1 giai đoạn), zeolite A đã được tổng hợp thành công với độ kết tinh đạt 84,9%, cỡ hạt 1-2 μm với điều kiện tổng hợp tối ưu ở 90^{o}C, 50' và biên độ rung 50%. Siêu âm bổ sung ở giai đoạn trước thủy nhiệt (2 giai đoạn) trong 15' và biên độ rung 80% giúp tổng hợp được zeolite A có độ kết tinh tương đương (83,7%) và kích thước hạt nhỏ hơn (0,5-1 μm). Siêu âm ở giai đoạn trước thủy nhiệt góp phần tạo mầm tinh thể và quá trình tạo mầm này chính là nguyên nhân giúp tạo ra hạt có kích thước nhỏ hơn so với quy trình tổng hợp không có bước siêu âm tại giai đoạn này. Năng lượng siêu âm với vai trò chính là nhằm thúc đẩy quá trình kết tinh nhanh hơn, hiệu quả hơn, nhưng chỉ cần mức năng lượng đủ để thúc đẩy quá trình này. Đối với thiết bị siêu âm sử dụng trong nghiên cứu này, biên độ rung cần thiết là 50%. Điều kiện tối ưu tổng hợp zeolite A từ tro bay than nhà máy nhiệt điện đã được xác định theo quy hoạch thực nghiệm central composite là 90^{o}C, 50 phút và biên độ rung 50%, sử dụng siêu âm đầu phát tần số thấp 20 kHz.

Từ khoá: Tro bay, zeolite, nhiệt điện, siêu âm

[1]Viện Nhiệt đới môi trường, 57A Trương Quốc Dung, Quận Phú Nhuận, Thành phố Hồ Chí Minh, Việt Nam

[2]Khoa Môi trường - Trường Đại học Tài nguyên & Môi trường TP.HCM, Việt Nam

Liên hệ

Lê Văn Tâm, Viện Nhiệt đới môi trường, 57A Trương Quốc Dung, Quận Phú Nhuận, Thành phố Hồ Chí Minh, Việt Nam

Email: tamvndmt@gmail.com

Lịch sử

- Ngày nhận: 07-10-2022
- Ngày chấp nhận: 05-12-2022
- Ngày đăng: 31-12-2022

DOI :

https://doi.org/10.32508/stdjsee.v6i2.708

Check for updates

Bản quyền

© ĐHQG Tp.HCM. Đây là bài báo công bố mở được phát hành theo các điều khoản của the Creative Commons Attribution 4.0 International license.

VNUHCM PRESS

ĐẶT VẤN ĐỀ

Tro bay từ các nhà máy nhiệt điện than tại Việt Nam là nguồn nguyên liệu dồi dào và có nhiều ứng dụng tại Việt Nam [1,2]. Nhiều nghiên cứu đã chỉ ra rằng, zeolite từ tro bay có thể xử lý hiệu quả kim loại nặng (KLN) và NH_4^+ trong nước thải. Trong số những loại zeolite nổi tiếng được tổng hợp từ tro bay như zeolite X, A, Y, P, Na-P1, zeolite A là một trong những loại zeolite tổng hợp từ tro bay có CEC cao nhất (4,7 meq/g) [3,4]. Đặc tính của các loại zeolite khác nhau được thể hiện ở Bảng 1.

Các loại zeolite từ tro bay có thể tổng hợp được bằng các phương pháp khác nhau, chẳng hạn như thủy nhiệt, nung chảy bằng xút kết hợp thủy nhiệt, phương pháp muối nóng chảy, phương pháp hỗ trợ vi sóng. Trong đó, phương pháp nung chảy tro bay bằng xút rắn theo sau là thủy nhiệt được xem là phương pháp mạnh mẽ nhất để tổng hợp zeolite, giúp trích được Si, Al không những ở dạng vô định hình mà cả ở dạng tinh thể. Tuy nhiên, phương pháp này đòi hỏi tiêu tốn nhiều năng lượng khi nung ở nhiệt độ cao (500-650^{o}C) trong nhiều giờ và do đó, có lẽ không có hiệu quả kinh tế khi triển khai ở quy mô công nghiệp [3,5,6]. Ngày nay, siêu âm đang được đánh giá là phương pháp đầy hứa hẹn giúp thay thế phương pháp nung chảy bằng xút, đồng thời rút ngắn thời gian và nhiệt độ thủy nhiệt [4,7–19]. Sóng siêu âm làm cho dung dịch liên tục bị nén vào khi áp suất cao và giãn ra khi áp suất thấp. Tại trạng thái bị giãn ra, rất nhiều vi bọt khí sẽ hình thành, phát triển và vỡ rất nhanh. Quá trình này gọi là hiện tượng "cativation". Các hiệu ứng của "cavitation" trong siêu âm giúp làm tăng hiệu quả trích ly silicon và kết tinh zeolite [3,10,12].

VẬT LIỆU VÀ PHƯƠNG PHÁP

Vật liệu và mô hình

Tro bay được lấy ngay tại silo chứa tro bay của Nhà máy nhiệt điện Duyên Hải, trước khi đưa ra bãi chứa. Tro bay có hàm lượng SiO_2 + Al_2O_3 + Fe_2O_3 dao động từ 86-87,3% $\geq$ 70% [20–22] nên là tro bay loại F, phù hợp cho quá trình tổng hợp zeolite [3,5,7,8,12]. Đặc tính của tro bay dùng trong nghiên cứu được thể hiện ở Bảng 2. $NaAlO_2$ (Sodium aluminate) được sử dụng để bổ sung Al nhằm điều chỉnh tỷ lệ SiO_2/Al_2O_3 trong dung dịch trước khi thủy nhiệt. Nước tinh khiết được sử dụng để tạo dung dịch hòa tan Si, Al trong tro bay. NaOH rắn được sử dụng để tạo dung dịch phản ứng. Các hóa chất được sử dụng mà không cần xử lý thêm. Siêu âm đầu phát có tần số thấp ở 20 kHz được sử dụng trong nghiên cứu này.

Trích dẫn bài báo này: Tâm L V, Tùng N T, Thủy L T T, Nhật P H. **Tác động của siêu âm lên quá trình tổng hợp zeolite A từ tro bay than**. *Sci. Tech. Dev. J. - Sci. Earth Environ.;* 6(2):600-608.

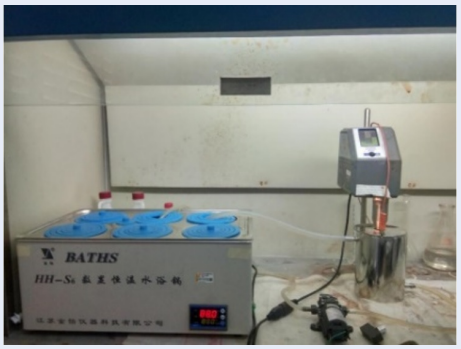
Bảng 1: Đặc tính của các loại zeolite khác nhau [3]

Loại zeolite	CEC (meq/g)	Kích thước lỗ (Å)	Thể tích lỗ trống (%)	Trọng lượng riêng (g/ml)
X/Linde X	5	7,3	50	1,93
Clinoptilolite-8R	2,54	3,9-5,4	39	2,16
Laumontite	4,25	4,6-6,0	34	2,20-2,30
Erionite	3,12	3,6-5,2	35	2,02-2,08
Mordenite 8R	2,29	2,6-5,7	28	2,12-2,15
A/Linde A	4,7	4,1	47	1,99
Y	3,12	7,3	-	-
Na-P1	2,7	3,1x4,5/2,8x4,8	-	-
Chabazite	3,81	3,7-4,2	47	2,05-2,10
Herschelite	2,1	3,5	-	-

Bảng 2: Đặc tính tro bay của các NMNĐ Duyên Hải [20]

Thông số	Đơn vị	Hàm lượng (%)			
		Lần 1	Lần 2	Lần 3	Trung bình
SiO2	%	51,4	52,2	51,9	51,8
Al2O3	%	28,1	27,3	29,3	28,2
Fe2O3	%	6,5	6,8	6,1	6,5
CaO	%	3,0	3,2	2,8	3,0
MgO	%	0,6	0,4	0,5	0,5
SO3	%	0,4	0,6	0,6	0,5

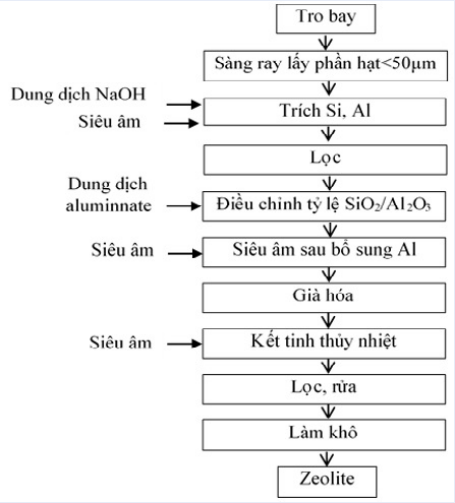
Hình 1: Tro bay không qua ray 50 μm (bên trái) và qua ray 50 μm (bên phải)



Hình 2: Mô hình nghiên cứu tổng hợp zeolite A

Quy trình tổng hợp zeolite bằng phương pháp thủy nhiệt hỗ trợ siêu âm

Tro bay được sàng qua ray 50 μm nhằm tách phần than chưa cháy hết và cặn ra khỏi tro bay (Hình 1). Phần tro bay qua ray 50 μm được khuấy trộn vào dung dịch NaOH 6 M với tỷ lệ chất rắn : dung dịch là 1 : 4 (g : mL), sau đó tiến hành siêu âm ở các điều kiện khác nhau về nhiệt độ, thời gian và biên độ rung, sử dụng thiết bị siêu âm dạng đầu phát 20 kHz, VCX 1500 HV2-220, Sonics & Materials, USA. Dung dịch thu được được bổ sung thêm 12,22g $NaAlO_2$ để tỷ lệ



Hình 3: Quy trình tổng hợp zeolite A

SiO_2/Al_2O_3 ≈1,13, sau đó tiếp tục siêu âm ở các thời gian và biên độ rung khác nhau. Hỗn hợp được để ở nhiệt độ phòng trong thời gian 2 giờ để tiến hành già hóa và sau đó được tiếp tục siêu âm ở các điều kiện khác nhau. Cuối cùng, dung dịch được làm nguội đến nhiệt độ phòng, tiến hành lọc lấy phần rắn, rửa bằng nước cất cho đến khi pH đạt 9-10, sấy khô ở nhiệt độ 105°C, để nguội thu được sản phẩm. Mô hình tổng hợp zeolite A được thể hiện ở Hình 2. Quy trình tổng hợp zeolite A được thể hiện ở Hình 3.

Phương pháp phân tích

Xác định cấu trúc tinh thể, thành phần khoáng trong zeolite bằng XRD (phương pháp nhiễu xạ tia X/X-ray diffraction) sử dụng thiết bị Model D2 Phaser, hãng Bruker, Đức. Phương pháp kính hiển vi điện tử quét (SEM-Scaning Electron Microscopy) trên máy JSM-IT200, hãng Jeol, Nhật Bản được sử dụng để xác định hình dạng và cấu trúc bề mặt vật liệu.

Thiết kế thí nghiệm và xử lý số liệu

Bình phản ứng hai lớp, bể ổn nhiệt và đầu dò nhiệt độ được sử dụng để kiểm soát nhiệt độ trong quá trình phản ứng. Sau giai đoạn phản ứng, hỗn hợp được xử lý ngay lập tức để giảm thiểu sai số. Thiết bị lọc chân không được sử dụng để tách hỗn hợp, sau đó thành phần chất lỏng được phân tích. Mỗi mẫu được phân tích ba lần và giá trị trung bình của 03 lần đo được trình bày trong nghiên cứu này.

Điểm đặc trưng của thiết bị siêu âm đầu phát là biên độ rung của đầu phát (tính theo %) là yếu tố quyết định gây ra hiện tượng "cavitation". Khi biên độ rung càng lớn thì cường độ sóng âm tác động lên mẫu càng cao. Thiết bị cho phép cài đặt các mức biên độ rung mong muốn bất kỳ, từ tối thiểu 20% đến 100%. Tuy nhiên, để đảm bảo an toàn thiết bị, giới hạn biên độ rung được khuyến cáo là <90%. Trong số các yếu tố ảnh hưởng trên, ba yếu tố nhiệt độ, thời gian và biên độ rung ảnh hưởng lớn nhất đến quá trình trích Si. Vì vậy, miền khảo sát với ba yếu tố nhiệt độ, thời gian và biên độ rung được lựa chọn [11,12,14–16].

Thí nghiệm được xử lý thống kê sử dụng phương pháp thiết kế thí nghiệm central composite sử dụng phần mềm Design Expert [23] với 17 thí nghiệm trong đó số mẫu lặp tại điểm trung tâm là 03 lần. Các giá trị thực của các yếu tố thực nghiệm được mã hóa để xử lý số liệu như tại Bảng 3.

$x_i=(X_i-X_{0i})/DX_i$, α=1,68

Ảnh hưởng của siêu âm trong giai đoạn trước già hóa đến khả năng kết tinh zeolite ở giai đoạn thủy nhiệt phía sau được khảo sát với 02 yếu tố ảnh hưởng chính là thời gian siêu âm và biên độ rung. Mối tương quan giữa giá trị mã hóa và giá trị thực được chỉ ra ở Bảng 4.

$x_i=(X_i-X_{0i})/DX_i$

Trong đó: x_i là giá trị mã hóa của biến thứ i, X_i là giá trị thật của biến thứ i, X_{0i} là giá trị thật của biến thứ i tại điểm trung tâm, DX_i là giá trị bước nhảy của biến thứ i.

KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN

Tổng hợp zeolite A theo quy trình siêu âm giai đoạn thủy nhiệt

Các mẫu zeolite được tổng hợp ở các điều kiện khác nhau được đem đi phân tích XRD để xác định cấu trúc tinh thể, thành phần khoáng trong mẫu tổng hợp được. Kết quả được trình bày ở Hình 4 cho thấy sự khác nhau về độ kết tinh ở các điều kiện nhiệt độ, thời gian phản ứng và biên độ rung khác nhau. Một chuỗi các peak đặc trưng được quan sát thấy ở 2θ góc 7,26°, 10,23°, 12,53°, 16,20°, 21,74°, 24,10°, 27,18°, 30,02°, và 34,25°, phù hợp với các peak chuẩn của zeolite A.

Giản đồ XRD của mẫu ii-09 không có sự xuất hiện các peak của zeolite, chứng tỏ điều kiện nhiệt độ quá thấp (82^{o}C) sẽ không hình thành zeolite. Kết quả này phù hợp với các nghiên cứu trước đây [10,12,15,16,18].

Hình 5 cho thấy độ kết tinh của 17 mẫu sản phẩm zeolite A tổng hợp được đạt từ 79,3-84,9%, trừ các mẫu ii-09 (26,8%), ii-07 (67,8%), trong đó mẫu trung tâm đạt độ kết tinh cao nhất 84,9%. Đây là hiệu quả chuyển hóa tương đương với các nghiên cứu trước đây, ví dụ như, tổng hợp zeolite Na-P1 có độ kết tinh 81% [19], tổng hợp zeolite A và X có độ kết tinh 98% và thành phần pha đơn tinh thể [16], tổng hợp Na-P cho zeolite có độ kết tinh 87% [7].

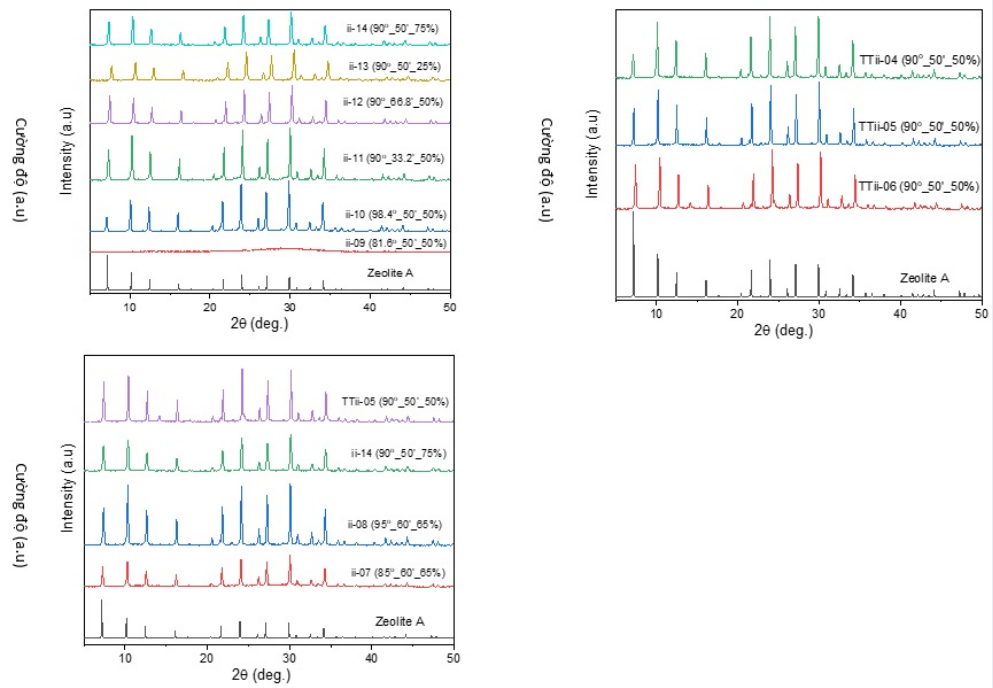
Kết quả cho thấy trong số các mẫu có cường độ peak tốt nhất đã phân tích bên trên, các mẫu TT ii-04, TT

Bảng 3: Giá trị mã hóa và giá trị thực nghiệm của các yếu tố thực nghiệm

Biến số	Ký hiệu	Ký hiệu giá trị mã hóa				
		-α	-1	0	+1	+α
t° (°C)	X1	81,6	85	90	95	98,4
t (phút)	X2	33,2	40	50	60	66,8
Biên độ rung (%)	X3	25	35	50	65	75

Bảng 4: Giá trị mã hóa và giá trị thực nghiệm của các yếu tố thực nghiệm

Biến số	Ký hiệu	Ký hiệu giá trị mã hóa		
		-1	0	+1
t (phút)	X1	10	15	30
Biên độ rung (%)	X2	40	60	80

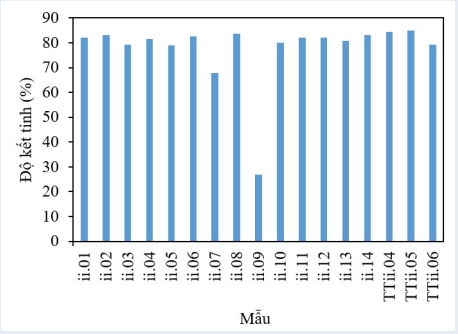


Hình 4: Giản đồ XRD của 17 mẫu tổng hợp zeolite A bằng quy trình thủy nhiệt hỗ trợ siêu âm 1 giai đoạn.

ii-05, mẫu ii-1, ii-2, ii-6, ii-8, ii-11 cũng là những mẫu có độ kết tinh cao nhất. Trong đó, các mẫu ii-2, ii-6, ii-8 tiêu tốn năng lượng nhiều hơn do tổng hợp ở nhiệt độ cao (95^{o}C). Mẫu ii-11 tuy có nhiệt độ thủy nhiệt ở 90^{o}C nhưng so về cường độ peak và độ kết tinh không bằng các mẫu trung tâm. Riêng mẫu ii-1 (85^{o}C) tuy có cường độ peak tốt nhưng cấu trúc tinh thể chưa hoàn thiện (Hình 5). Do đó, có thể nhận thấy ở mức nhiệt độ 90^{o}C là mức nhiệt độ phù hợp để sử dụng siêu âm. Giản đồ XRD của các mẫu trung tâm (TT ii-04, TT ii-05, TTii-06) có chiều cao peak tương đương nhau, chứng tỏ độ tin cậy của thí nghiệm.

Năng lượng siêu âm với vai trò chính là nhằm thúc đẩy quá trình kết tinh nhanh hơn, hiệu quả hơn, nhưng chỉ cần mức năng lượng đủ để thúc đẩy quá trình này, trong trường hợp này là biên độ rung 50%.

Hình 6 cho thấy zeolite A tổng hợp được ở mẫu trung tâm (mẫu TT ii-05) có hình khối lập phương sắc nét, đồng đều và ít tạp chất hơn các mẫu ở các điều kiện tổng hợp khác trong quy hoạch thực nghiệm, cho thấy



Hình 5: Độ kết tinh của mẫu tổng hợp zeolite A.

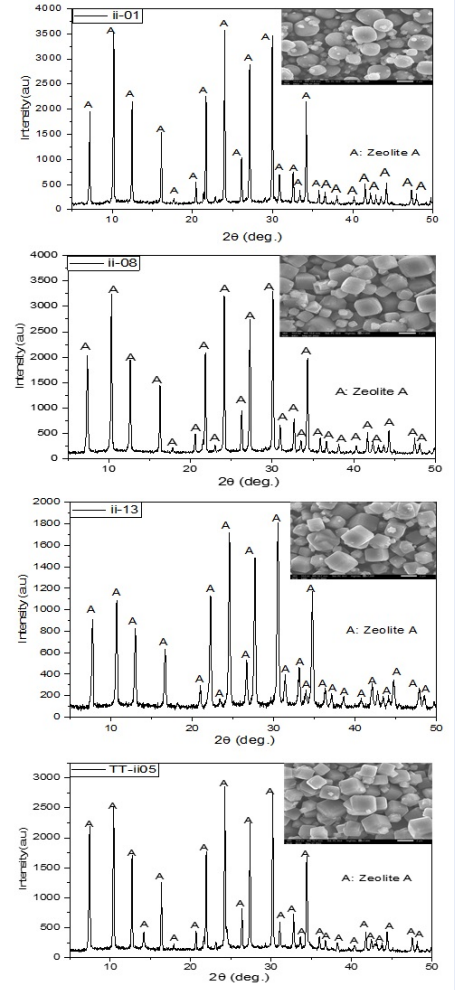
độ kết tinh của mẫu tổng hợp cao. Kích cỡ hạt zeolite A các mẫu tổng hợp khoảng từ 1-2 μm.

Tổng hợp zeolite A theo quy trình siêu âm 02 giai đoạn

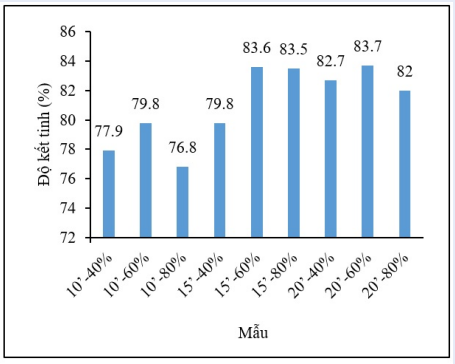
Siêu âm tại giai đoạn trước tổng hợp thủy nhiệt giúp tạo ra zeolite có kích thước nhỏ hơn (0,5-1 μm, Hình 7) so với quy trình chỉ có siêu âm trong giai đoạn thủy nhiệt và có độ kết tinh tương đương (83,7%) (Hình 8). Các mẫu có thời gian siêu âm nhiều hơn (15', 20') có xu hướng tạo ra hạt lớn hơn so với các mẫu chỉ siêu âm 10'. Mẫu 15'-80% và 20'-80% là 02 mẫu có kết tinh zeolite A tốt nhất. Mẫu 15'-80% có thời gian siêu âm ngắn hơn nên tiết kiệm năng lượng hơn. Như vậy, có thể nhận thấy khi thời gian siêu âm kéo dài từ 15-20', các mầm tinh thể sẽ bắt đầu hình thành.

Các nghiên cứu thời gian gần đây đã tổng hợp được zeolite với cỡ hạt lớn hơn (zeolite X, cỡ hạt 2-3μm[8]; zeolite A, cỡ hạt 2-3μm[14]; zeolite X, cỡ hạt 1-3μm[9]; zeolite A, X, cỡ hạt vài μm[13]; zeolite A, cỡ hạt vài μm[12]; zeolite A, cỡ hạt vài μm[15]; zeolite A, cỡ hạt vài μm[10]; zeolite Na-P, cỡ hạt từ 0,2 μm đến 200 μm với 5,5% thể tích là hạt cỡ 35μm[7]; zeolite A, X, cỡ hạt <2 đến >500 μm[16]) hoặc tương đương (zeolite Na-P1, cỡ hạt 0,2 μm[19]; zeolite X, cỡ hạt 1-2 μm[17]; zeolite X, cỡ hạt zeolite 0,4-1 μm[11]. Các nghiên cứu này đều có nhược điểm là sử dụng quy trình nung tiêu tốn nhiều năng lượng hoặc thời gian thủy nhiệt kéo dài. Một nghiên cứu tổng hợp được zeolite X với cỡ hạt nano[18], tuy nhiên, quy trình tổng hợp vẫn còn sử dụng nung tro bay với NaOH rắn và thủy nhiệt kéo dài 6h.

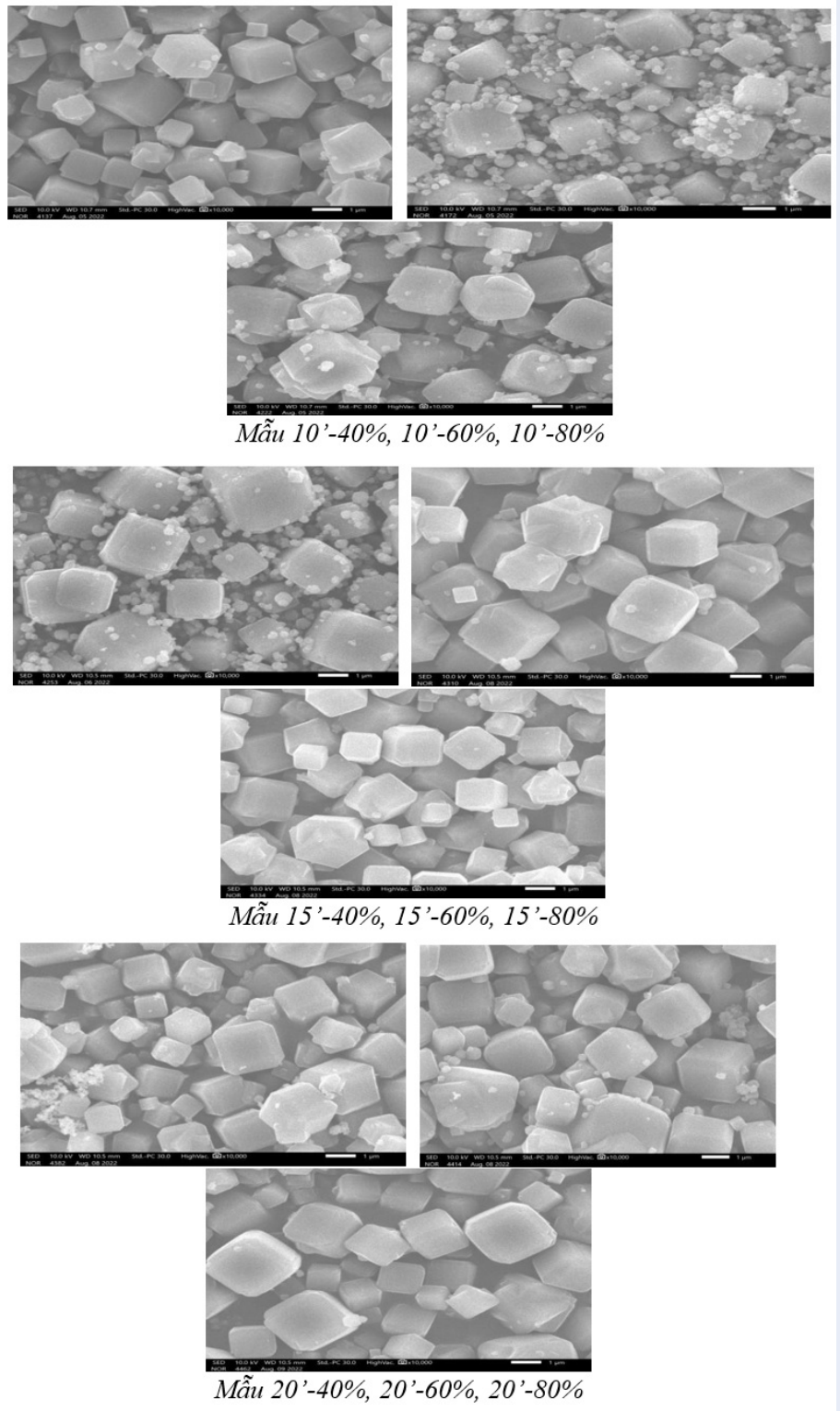
Đặc biệt, với điều kiện thí nghiệm tương đồng với Bukhari S.S. năm 2016[12], kết quả của nghiên cứu này tổng hợp được kích thước nhỏ hơn nhiều, cho thấy bước siêu âm bổ sung ở giai đoạn trước thủy nhiệt có vai trò quyết định tạo hơn hạt với kích cỡ nhỏ.



Hình 6: Ảnh SEM của 04 mẫu đại diện tổng hợp zeolite A bằng quy trình thủy nhiệt hỗ trợ siêu âm 1 giai đoạn.



Hình 8: Độ kết tinh của sản phẩm zeolite A.



Hình 7: So sánh cấu trúc tinh thể 09 mẫu tổng hợp zeolite A bằng quy trình thủy nhiệt hỗ trợ siêu âm 2 giai đoạn (phóng đại 10.000 lần).

Sự hòa tan và khử trùng hợp các nhóm polymer của Si và Al liên kết với nhau để tạo thành dạng gel aluminosilicate là cơ chế chính cho sự kết tinh của zeolite[24,25]. Gel cần được đồng nhất để cho phép sự hình thành của hạt nhân của pha mong muốn. Sau khi có sự hình thành của hạt nhân thì sự gia tăng nhiệt độ mới dẫn đến sự phát triển của các tinh thể zeolite tinh khiết. Quá trình này sẽ được xúc tiến mạnh hơn bởi tác động của siêu âm, tuy nhiên, nếu quá trình tác động của siêu âm không đủ thì sự phát triển của tinh thể sẽ không xảy ra[12]. Kết quả nghiên cứu cho thấy siêu âm ở giai đoạn trước thủy nhiệt góp phần tạo mầm tinh thể và quá trình tạo mầm này chính là nguyên nhân giúp tạo ra hạt có kích thước nhỏ hơn so với quy trình tổng hợp không có bước siêu âm tại giai đoạn này.

KẾT LUẬN

Quy hoạch thực nghiệm theo phương pháp central composite đã xác định được điều kiện tối ưu tổng hợp zeolite A từ tro bay than Nhà máy nhiệt điện ở 90^oC, 50 phút và biên độ rung 50%, sử dụng siêu âm đầu phát tần số thấp 20 kHz. Zeolite A tổng hợp có độ kết tinh đạt đến 84,9%, cỡ hạt từ 1-2 μm.

Siêu âm bổ sung ở giai đoạn trước thủy nhiệt trong 15 phút và biên độ rung 80% giúp tạo ra zeolite có kích thước nhỏ 0,5-1 μm mà vẫn duy trì độ kết tinh tương đương ở 83,7%.

LỜI CẢM ƠN

Tác giả xin chân thành cảm ơn Viện Khoa học và Công nghệ Quân sự đã tài trợ cho công trình này. Nghiên cứu đã nhận được sự hỗ trợ về cơ sở vật chất của Viện Nhiệt đới Môi trường và sự tham gia, phối hợp của các đồng nghiệp trong và ngoài Viện.

DANH MỤC CÁC TỪ VIẾT TẮT

BET: Brunauer–Emmett–Teller
CEC: Dung lượng trao đổi cation
KLN: Kim loại nặng
NMNĐ: Nhà máy nhiệt điện
SEM: Kính hiển vi điện tử quét
XRD: Nhiễu xạ tia X

XUNG ĐỘT LỢI ÍCH

Tác giả tuyên bố không có xung đột lợi ích.

ĐÓNG GÓP CỦA CÁC TÁC GIẢ

Lê Văn Tâm: định hướng nghiên cứu, thiết lập thí nghiệm, viết bài. **Nguyễn Thanh Tùng**: triển khai thí nghiệm, xử lý số liệu. **Lê Thị Thu Thủy**: tham gia thí nghiệm, xử lý số liệu. **Phạm Hồng Nhật**: cố vấn chuyên môn.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

1. Bộ Công thương. Dự Thảo. "Quy hoạch phát triển điện lực quốc gia thời kỳ 2021-2030, tầm nhìn đến năm 2045", Hà Nội. 2021;.
2. Thủ tướng Chính phủ. Quyết định số 452/QĐ-TTg phê duyệt Đề án đẩy mạnh xử lý, sử dụng tro, xỉ, thạch cao của các nhà máy nhiệt điện, nhà máy hóa chất, phân bón làm nguyên liệu sản xuất vật liệu xây dựng và trong các công trình xây dựng. 2017;.
3. Jha B, Singh DN. A Review on synthesis, characterization and industrial applications of fly ash zeolites. J Mater Educ. 2011;33(1-2):65-132;.
4. Jha VK, Nagae M, Matsuda M, Miyake M. Zeolite formation from coal fly ash and heavy metal ion removal characteristics of thus-obtained zeolite X in multi-metal systems. J Environ Manage. 2009;90(8):2507-14;PMID: 19233542. Available from: https://doi.org/10.1016/j.jenvman.2009.01.009.
5. Belviso C. State-of-the-art applications of fly ash from coal and biomass: A focus on zeolite synthesis processes and issues. Prog Energy Combust Sci. 2018;65:109-35;Available from: https://doi.org/10.1016/j.pecs.2017.10.004.
6. Fukui K, Arai K, Kanayama K, Yoshida H. Phillipsite synthesis from fly ash prepared by hydrothermal treatment with microwave heating. Adv Powder Technol. 2006;17(4):369-82;Available from: https://doi.org/10.1163/156855206777866164.
7. Aldahri T, Behin J, Kazemian H, Rohani S. Synthesis of zeolite Na-P from coal fly ash by thermo-sonochemical treatment. Fuel. 2016;182:494-501;Available from: https://doi.org/10.1016/j.fuel.2016.06.019.
8. Belviso C, Cavalcante F, Lettino A, Fiore S. Effects of ultrasonic treatment on zeolite synthesized from coal fly ash. Ultrason Sonochem. 2011;18(2):661-8;PMID: 20851662. Available from: https://doi.org/10.1016/j.ultsonch.2010.08.011.
9. Belviso C, Cavalcante F, Fiore S. Ultrasonic waves induce rapid zeolite synthesis in a seawater solution. Ultrason Sonochem. 2013;20(1):32-6;PMID: 22770723. Available from: https://doi.org/10.1016/j.ultsonch.2012.06.004.
10. Belviso C. Ultrasonic vs hydrothermal method: different approaches to convert fly ash into zeolite. How they affect the stability of synthetic products over time? Vol. 43. Ultrasonics - Sonochemistry; 2018. p. 9-14;PMID: 29555292. Available from: https://doi.org/10.1016/j.ultsonch.2017.12.050.
11. Boycheva S, Marinov I, Miteva S, Zgureva D. Conversion of coal fly ash into nanozeolite Na-X by applying ultrasound assisted hydrothermal and fusion-hydrothermal alkaline activation. Sustain Chem Pharm. 2020;15:100217;Available from: https://doi.org/10.1016/j.scp.2020.100217.
12. Bukhari SS, Rohani S, Kazemian H. Effect of ultrasound energy on the zeolitization of chemical extracts from fused coal fly ash. Ultrason Sonochem. 2016;28:47-53;PMID: 26384882. Available from: https://doi.org/10.1016/j.ultsonch.2015.06.031.
13. Hums E, Musyoka NM, Baser H, Inayat A, Schwieger W. In-situ ultrasound study of the kinetics of formation of zeolites Na-A and Na-X from coal fly ash. Res Chem Intermed. 2015;41(7):4311-26;Available from: https://doi.org/10.1007/s11164-014-1531-y.
14. Musyoka NM, Petrik LF, Hums E. Ultrasonic assisted synthesis of zeolite A from coal fly ash using mine waters (acid mine drainage and circumneutral mine water) as a substitute for ultra pure water. Aachen, Germany: IMWA; 2011;.
15. Ojumu TV, Du Plessis PWD, Petrik LF. Synthesis of zeolite A from coal fly ash using ultrasonic treatment - A replacement for fusion step. Ultrason Sonochem. 2016;31:342-9;PMID: 26964958. Available from: https://doi.org/10.1016/j.ultsonch.2016.01.016.
16. Panek R, Madej J, Bandura L, Słowik G. Recycling of waste solution after hydrothermal conversion of fly ash on a semi-technical scale for zeolite synthesis. Materials (Basel). 2021;14(6):1413;PMID: 33803965. Available from: https://doi.org/10.3390/ma14061413.

17. Popova M, Boycheva S, Lazarova H, Zgureva D, Lázár K, Szegedi Á. VOC oxidation and CO2 adsorption on dual adsorption/catalytic system based on fly ash zeolites. Cat Today. 2020;357:518-25;Available from: https://doi.org/10.1016/j.cattod.2019.06.070.
18. Sivalingam S, Sen S. Rapid ultrasound assisted hydrothermal synthesis of highly pure nanozeolite X from fly ash for efficient treatment of industrial effluent. Chemosphere. 2018;210:816-23;PMID: 30048933. Available from: https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2018.07.091.
19. Wdowin M, Franus M, Panek R, Badura L, Franus W. The conversion technology of fly ash into zeolites. Clean Technol Environ Policy. 2014;16(6):1217-23;Available from: https://doi.org/10.1007/s10098-014-0719-6.
20. Lý Cẩm Hùng. Nghiên cứu giải pháp công nghệ và thiết kế, chế tạo thiết bị xử lý tro bay của các nhà máy nhiệt điện chạy than thành nguyên liệu cho nhà máy xi măng và vật liệu không nung, Đề tài nghiên cứu cấp quốc gia, Trường Đại học Tài nguyên môi trường, Tp. Hồ Chí Minh. 2020;.
21. Lê Anh kiên. Nghiên cứu, đánh giá ảnh hưởng các dự án thuộc Trung tâm điện lực Duyên Hải đến đời sống, sản xuất của người dân và đề xuất các giải pháp quản lý, Báo cáo tổng kết đề tài, Viện Nhiệt đới môi trường, Tp. Hồ Chí Minh. 2019;.
22. Ahmaruzzaman M. A review on the utilization of fly ash. Prog Energy Combust Sci. 2010;36(3):327-63;Available from: https://doi.org/10.1016/j.pecs.2009.11.003.
23. Stat-ease Inc. Design Expert 12 software. Minneapolis. 2019;.
24. Barrer RM. Hydrothermal chemistry of zeolites. Toronto, Canada: Academic Press; 1982;.
25. Breck DW. Zeolite molecular sieves: structure, chemistry and use. J Chromatogr Sci. 1975;13(4);.

Science & Technology Development Journal – Science of The Earth & Environment 2022, 6(2):600-608

Open Access Full Text Article

Research Article

Effect of ultrasound on synthesis of zeolite A from coal fly ash

Le Van Tam[1,*], Nguyen Thanh Tung[1], Le Thi Thu Thuy[2], Pham Hong Nhat[1]

Use your smartphone to scan this QR code and download this article

ABSTRACT

Zeolite A is one of the most famous zeolite types synthesized from coal-fired fly ash with many industrial applications such as an additive in washing powder, adsorption, pond cleaning, treatment of heavy metals, NH_4^+, desiccation, molecular sieve, etc. Using ultrasonic in hydrothermal crystallization process (1 stage), zeolite A was successfully synthesized with crystallinity reaching 84,9 %, particle size of 1-2 μm with optimal synthesis conditions at 90 ^{o}C, 50 minutes and amplitude of 50 %. Additional ultrasound at the pre-hydrothermal stage (2 stages) for 15 minutes and amplitude of 80 % helped to synthesize zeolite A with equivalent crystallinity (83,7 %) and smaller particle size (0,5-1 μm). Ultrasonication in the pre-hydrothermal stage contributes to crystal nucleation and this nucleation is responsible for the smaller particle size compared to the synthesis without the ultrasonic step at this stage. The main role of ultrasound energy is to promote faster, more efficient crystallization, but only enough energy is needed to accelerate this process. For the ultrasonic device used in this study, the required vibration amplitude is 50 %. Optimal condition for synthesizing zeolite A from coal fly ash from thermal power plants were determined according to the central composite experimental plan, it was 90 ^{o}C, 50 minutes and 50 % vibration amplitude, using 20 kHz low frequency ultrasonic generator.

Key words: Fly ash, zeolite, thermal power, ultrasound

[1]*Institute for Tropicalization and Environment, 57A Truong Quoc Dzung Street, Phu Nhuan District, Ho Chi Minh City, Vietnam*

[2]*Faculty of environment – Ho Chi Minh City University of Natural resources and Environment (HCMUNRE), 236B Le Van Sy Street, Tan Binh District, Ho Chi Minh City, Vietnam*

Correspondence

Le Van Tam, Institute for Tropicalization and Environment, 57A Truong Quoc Dzung Street, Phu Nhuan District, Ho Chi Minh City, Vietnam

Email: tamvndmt@gmail.com

History

- Received: 07-10-2022
- Accepted: 17-02-2023
- Published: 08-3-2023

DOI : https://doi.org/10.32508/stdjsee.v6i2.708

Check for updates

Copyright

© VNUHCM Press. This is an open-access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution 4.0 International license.

VNUHCM PRESS

Cite this article : Tam L V, Tung N T, Thuy L T T, Nhat P H. **Effect of ultrasound on synthesis of zeolite A from coal fly ash**. *Sci. Tech. Dev. J. - Sci. Earth Environ.;* 2022, 6(2):600-608.