

Tối ưu hóa thực nghiệm quy trình tổng hợp magnesium silicate vô định hình bằng phương pháp bề mặt đáp ứng ứng dụng trong quá trình hấp phụ

Vũ Thị Như Quỳnh, Nguyễn Hoàng Quý, Nguyễn Ánh Mai

Tóm tắt – Trong nghiên cứu này, magnesium silicate được tổng hợp bằng phương pháp kết tủa và được ứng dụng trong các quá trình xử lý mẫu phân tích bằng phương pháp chiết pha rắn. Khảo sát quy trình tổng hợp magnesium silicate bằng phương pháp quy hoạch thực nghiệm trực giao bậc hai theo phương pháp bề mặt đáp ứng, cung cấp điều kiện phản ứng tối ưu như sau: (1) tỷ lệ mol phản ứng giữa dung dịch muối sodium silicate lỏng và dung dịch muối magnesi clorua là 1,1; (2) tốc độ khuấy dung dịch sodium silicate là 177 rpm, (3) tốc độ dòng của dung dịch muối magnesium chloride là 3,74 mL/phút, nhiệt độ sấy là 98 °C. Sau đó sản phẩm được sấy ở nhiệt độ này trong 6 giờ để loại nước hấp phụ. Sản phẩm magnesium silicate có cấu trúc vô định hình, kích thước hạt trung bình khoảng 116 μm , diện tích bề mặt 454 m^2/g , khả năng hấp phụ glyceryl trioleate đạt 110 mg glyceryl trioleate/g magnesium silicate, tương đương sản phẩm florasil thương mại.

Từ khóa – Magnesium silicate, tối ưu hóa, phương pháp bề mặt đáp ứng, hấp phụ.

1 MỞ ĐẦU

Vật liệu silicate được ứng dụng rộng rãi trong nhiều lĩnh vực như làm vật liệu xử lý mẫu trong lĩnh vực phân tích, hấp phụ kim loại nặng trong xử lý nước [6], làm chất độn trong ngành công nghiệp sơn,... Trong ngành dược, magnesium silicate dùng làm chất mang thuốc trong điều trị ngộ độc, tiêu hóa, khó tiêu hay tình trạng viêm ruột non, dạ dày, ... Magnesium silicate còn được dùng trong sản xuất bánh kẹo như chất chống kết dính, chất chống đông hay thay thế TiO_2 tạo màu trắng trong bánh kẹo.

Ngày nhận bản thảo: 15-01-2017, ngày chấp nhận đăng: 15-9-2017, ngày đăng: 10-8-2018

Tác giả: Vũ Thị Như Quỳnh, Vũ Thị Như Quỳnh, Nguyễn Hoàng Quý, Nguyễn Ánh Mai-Trường Đại học Khoa học Tự nhiên, ĐHQG-HCM (nhuquynhvu2007@gmail.com)

Magnesium silicate có thể thu được bằng phương pháp tạo tủa từ dung dịch sodium silicate với dung dịch muối magnesium. Bề mặt magnesi silicat mang những gốc hydroxyl (silanol) giữ vai trò tâm hoạt tính.

Quá trình nghiên cứu về magnesium silicate đã được đề cập trong nhiều đề tài nghiên cứu như Ozgul O. và đồng sự đã khảo sát khả năng hấp phụ của magnesium silicate từ tro trấu, kết quả cho thấy khả năng hấp phụ lipid của magnesium silicate điều chế từ tro trấu cao hơn magnesol XL-một dạng magnesium silicate tổng hợp và than hoạt tính. Các điều kiện của phản ứng tổng hợp như tốc độ dòng, loại muối magnesium, nhiệt độ phản ứng và chất làm sạch vật liệu thường cũng được khảo sát bởi Terzioglu [1]. Bên cạnh khảo sát của Dietemann về tác động của sóng siêu âm (ultrasound) đến kích thước hạt [7] việc tổng hợp magnesium silicate kích thước nano cũng được nghiên cứu bởi Sei-ichi Suda [8] và Yuan Zhuang [6] với phương pháp sol-gel.

Các nghiên cứu đã đưa ra thông số quá trình tổng hợp vật liệu magnesium silicate dạng xốp với kích thước hạt micromet hay nanomet bằng những khảo sát đơn biến độc lập. Nghiên cứu này mong muốn đánh giá sự tương tác giữa các biến này lên khả năng hấp phụ vật liệu bằng mối quan hệ toán học.

2 VẬT LIỆU VÀ PHƯƠNG PHÁP

Quy trình tổng hợp

Tốc độ bơm tác chất, tốc độ khuấy trộn hỗn hợp, tỷ lệ tác chất và nhiệt độ sấy kết tủa trong phản ứng tổng hợp magnesium silicate là các thông số cơ bản quyết định tính chất vật lý của sản phẩm ảnh hưởng đến khả năng ứng dụng như kích thước hạt, diện tích bề mặt. Dung dịch muối magnesium chloride được bơm vào dung dịch sodium silicate với tốc độ xác định nhờ bơm định lượng xylanh NE100 của New Era. Dung dịch sodium silicate

dùng trong tổng hợp có nồng độ xác định và được khuấy trộn bằng máy khuấy đũa IKA-EUROSTAR 100 control nhằm khống chế quá trình tiếp xúc pha. Phản ứng thực hiện ở nhiệt độ phòng, áp suất 1 atm. Kết tủa hình thành được rửa nhiều lần bằng nước ấm theo phương pháp rửa gạn cho đến khi nước rửa có pH trung tính (~ 7) nhằm loại bỏ các tạp chất. Ly tâm lấy tủa và tiến hành sấy ở nhiệt độ thích hợp. Khả năng hấp phụ glyceryl trioleate trên 1 g sản phẩm được chọn để xây dựng hàm mục tiêu.

Nguyên vật liệu

Dung dịch sodium silicate- $\text{Na}_2\text{O} \cdot x\text{SiO}_2$ lỏng với hàm lượng Na_2O là 10,6% và SiO_2 là 26,5% (modul 2,5) là sản phẩm của nhà máy Hóa chất Biên Hòa, Đồng Nai, muối MgCl_2 của Xilong Chemical, Trung Quốc.

Đánh giá khả năng hấp phụ bằng glyceryl trioleat 99% của J&K Scientific, vật liệu hấp phụ đối chiếu là Florisil của J.T. Baker, cột SPE Florisil 1000 mg/6 mL (Teknokroma).

Methyl blue, các hydrocarbon dùng trong khảo sát ứng dụng hấp phụ dầu khoáng bao gồm chuẩn toluene, hexadecan, isooctan (độ tinh khiết 99,9%, Merck), chuẩn dung dịch hỗn hợp thuốc trừ sâu gốc clo 10 ppm của Dr Ehrenstorfer.

Phương pháp đánh giá chất lượng vật liệu

Độ hấp phụ glyceryl trioleate

Cân chính xác lượng khoảng 200 mg glyceryl trioleate trong cốc thủy tinh, hòa tan bằng 20 mL hexane. Nhồi chính xác khoảng 500 mg vật liệu vào cột thủy tinh có khóa, đường kính 1cm, chiều dài 30 cm. Hoạt hóa cột bằng 5 mL hexane, nạp dung dịch glyceryl trioleate lên cột, rửa lại 2 lần, mỗi lần 10 mL hexane. Gộp toàn bộ dịch sau cột, tiến hành cô quay chân không thu hồi và xác định lượng glyceryl trioleate còn lại. Độ hấp phụ glyceryl trioleate trên 1 g sản phẩm được tính theo công thức (1):

$$A = \frac{m_o - m'}{m} * 1000 \left(\frac{mg_{oleate}}{g} \right) \quad (1)$$

Trong đó m_o là khối lượng glyceryl trioleate ban đầu trước hấp phụ (g), m' : khối lượng glyceryl trioleate không được hấp phụ, m: khối lượng magnesium silicate khảo sát (g).

Đo khả năng hấp phụ dầu khoáng - ứng dụng phân tích dầu khoáng trong nước bề mặt

Xây dựng đường chuẩn của độ hấp thu với hàm lượng dầu khoáng. Nhồi 5 g magnesium silicate

vào cột nhồi 30 cm. Pha dung dịch 50 mg/L dầu khoáng, lấy 10 mL cho qua cột hấp phụ. Xác định hàm lượng dầu khoáng bị hấp phụ bằng phương pháp FT-IR (TCVN 7369: 2004).

Đánh giá khả năng ứng dụng làm sạch mẫu phân tích thuốc trừ sâu

Mẫu tôm được thêm hỗn hợp chuẩn các thuốc trừ sâu Lindan, Endrin, Diendrin, Heptachlor, Heptachlor epoxide, Aldrin, β BHC, Deta BHC, α Chlordane, Endosulfan1, DDE, Endrin aldehyde ở nồng độ 100 ppb và thực hiện quy trình phân tích song song với mẫu trắng như sau: Cân 5g mẫu vào ống nghiệm, thêm 15 mL ethyl acetat, lắc chiết và lặp lại hai lần. Dịch chiết được gộp lại và thổi khô bằng khí N_2 sau đó được hòa tan lại bằng 1mL hexane. Nhồi 1g vật liệu vào xylanh nhựa 6 mL, phủ thêm 1 cm Na_2SO_4 khan. Hoạt hóa cột bằng 5mL hexane, tải mẫu lên cột và rửa giải bằng 9 mL hexane:dichleromethane 7:3, v/v. Thổi khô dịch qua cột và định mức 1 mL bằng ethyl acetate.

Mẫu được tiêm vào hệ sắc kí với thông số như sau: Hệ Trace GC-MS 0222 của Thermo, đầu dò ECD, cột phân tích: DB-35MS (0,32 mm x 30 m, 0,52 μm). Chương trình nhiệt: 90°C giữ 1 phút, tăng 8,5°C/phút lên 300°C, giữ 10 phút. Tốc độ khí mang: 1,2 mL/phút, nhiệt độ buồng tiêm, lò cột: 250°C, nhiệt độ đầu dò: 300°C.

Đánh giá hàm lượng kim loại trong vật liệu

Vật liệu được hòa tan bằng phương pháp kiềm chảy, mẫu được cân chính xác một lượng khoảng 0,2 g vào chén nickel, thêm vào 3 g KOH, nung 650°C trong 30 phút, tiếp tục hòa tan mẫu bằng 50 mL nước nóng cùng 50 mL dung dịch HCl 36%, định mức và tiến hành đo trên thiết bị ICP-OES. Xác định hàm lượng các nguyên tố: Mg, Si, Na và một số kim loại tạp có trong vật liệu.

Kết quả thực nghiệm

Khoảng giá trị của các thông số khảo sát

Quá trình khảo sát này được thực hiện theo phương pháp quy hoạch thực nghiệm trực giao bậc hai theo phương pháp bề mặt đáp ứng dùng phần mềm Minitab 16 để tiến hành giải và so sánh với giá trị thực nghiệm.

Tác chất là magnesium chloride 1-M, sodium silicate lỏng 1-M. Bốn thông số ảnh hưởng trực tiếp được lựa chọn tác động đến hàm mục tiêu (khả năng hấp phụ glyceryl trioleate) là tốc độ khuấy sodium silicate, tốc độ thêm dung dịch magnesi clorua, tỷ lệ hàm lượng giữa sodium

silicate và magnesium chloride, và nhiệt độ sấy kết tủa (thời gian sấy cố định là 15 giờ).

Bảng 1. Khoảng giá trị của các thông số khảo sát

| STT | Thông số | Nhiệt độ sấy °C (X _A) | Tốc độ khuấy *150 vòng /phút (X _B) | Tốc độ dòng MgCl ₂ mL/phút (X _C) | Tỷ lệ mol Na ₂ SiO ₃ :MgCl ₂ (X _D) |
|-----|------------------|-----------------------------------|--|---|---|
| 1 | Z _{max} | 100 | 6 | 8 | 2,3 |
| 2 | Z _{min} | 70 | 2 | 4 | 1,3 |
| 3 | Z _o | 85 | 4 | 6 | 1,8 |
| 4 | ΔZ | 15 | 2 | 2 | 0,5 |

Z_{max}, Z_{min}, Z_o, ΔZ ứng với giá trị cao nhất, thấp nhất, giá trị trung bình và khoảng cách từ giá trị trung bình đến các giá trị cao nhất và thấp nhất của các thông số khảo sát. Khi đưa vào tính toán các dữ liệu được chuyển sang đại lượng không thứ

nguyên theo nguyên tắc như sau: $A = \frac{z - z_o}{\Delta z}$

(tương tự các đại lượng khác)

Khảo sát ở tâm ứng với giá trị trung bình của tất cả các thông số được thực hiện 4 lần nghiệm nhằm xác định độ sai lệch thực nghiệm. Tổng số thực nghiệm được tiến hành là 25 với cánh tay đòn α là 2.

Phương trình thực nghiệm và kiểm định

Phương trình biểu diễn mối quan hệ giữa hàm đáp ứng với các thông số khảo sát thu được từ phần mềm Minitab 16 với A, B, C, D là nhiệt độ sấy, tốc độ khuấy, tốc độ thêm MgCl₂ và tỷ lệ mol natri silicat và MgCl₂ như sau:

$$y = 16,1 + 4,6A - 8,4B - 2,2C - 2,5D - 9,9A^2 + 19,4B^2 - 4,3C^2 + 1,7D^2 - 5,3AB - 4,5AC + 0,004AD + 3,8BC + 1,2BD - 1,5CD \quad (2)$$

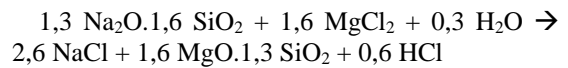
Kiểm định lại phương trình và loại bỏ các hệ số không có nghĩa bằng chuẩn student. Kết quả thu được phương trình (3)

$$y = 16,1 + 4,6A - 8,4B - 2,5D - 9,9A^2 + 19,4B^2 - 4,3C^2 - 5,3AB - 4,5AC + 3,8BC \quad (3)$$

Kiểm định phương trình (3) thu được so với thực nghiệm, với số lượng hệ số thu được là 10, thu được giá trị F_{iso} thực nghiệm là 7,8 so sánh với chuẩn F_{iso} là 26 với độ tin cậy p là 95%, nên phương trình kiểm định thu được hoàn toàn phù hợp với thực nghiệm.

Phương trình (3) cho thấy tốc độ khuấy (B) tác động mạnh đến độ hấp phụ glyceryl trioleate (-8,4 B và 19,4 B²). Tốc độ khuấy càng cao cho hiệu quả hấp phụ càng lớn, do hệ số của B² lớn. Ngược lại nhiệt độ sấy vật liệu sau khi kết tủa (A) không

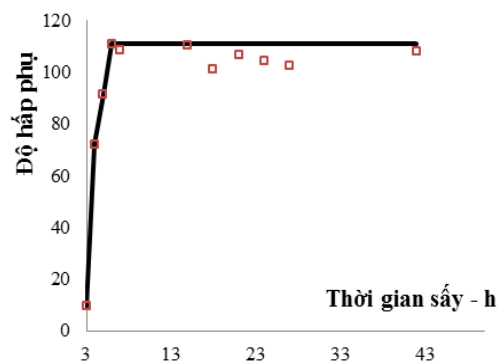
nên cao quá vì làm giảm đáng kể khả năng hấp phụ. Tỷ lệ mol giữa hai lưu chất cần không chế theo phương trình tạo tủa tạo hiệu suất sản phẩm lớn nhất về hàm lượng:



Kết quả tính toán cho thấy để đạt giá trị hàm mục tiêu lớn nhất với các thông số nằm trong vùng khảo sát có giá trị như sau: nhiệt độ sấy (A) 98°C, tốc độ khuấy (B) 177 rpm, tốc độ bơm dung dịch MgCl₂, (C) 3,74 mL/phút; tỷ lệ mol Na₂SiO₃:MgCl₂ (D) bằng 1,1. Sản phẩm được tổng hợp tại điều kiện tối ưu nêu trên có khả năng hấp phụ glyceryl trioleate cao gấp 1,4 lần so với florisil thương mại (110,4 mg so với 79,4 mg glyceryl trioleate/g vật liệu).

Các thông số tối ưu này được sử dụng cho các khảo sát tiếp theo.

Ảnh hưởng của nhiệt độ và thời gian sấy



Hình 1. Độ hấp phụ glyceryl trioleate của magnesium silicate theo thời gian sấy

Thời gian sấy ảnh hưởng tới tổng năng lượng cung cấp cho việc hình thành lỗ xốp của sản phẩm và loại bỏ nước bề mặt của vật liệu. Thời gian sấy cũng ảnh hưởng đến bài toán kinh tế, tính ứng dụng của quy trình vào thực tiễn sản xuất, nên việc đánh giá thời gian sấy là rất cần thiết.

Khảo sát thời gian sấy từ 3–24 giờ tại 98°C cho thấy độ hấp phụ glyceryl trioleate của sản phẩm tăng theo thời gian sấy nhưng sau 6 giờ sấy thì gần

như không đổi cho đến 42 giờ (Hình 1). Như vậy chỉ cần 6 giờ là đủ để loại nước và hoạt hóa các tâm hấp phụ của vật liệu.

Chương trình nhiệt độ sấy ($T = f(t)$)

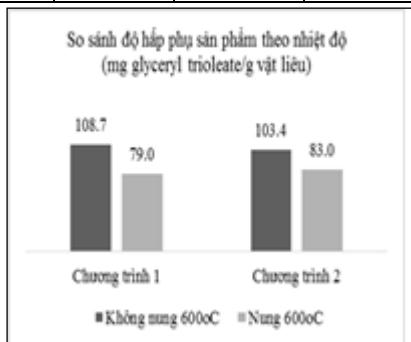
Nhiệt độ sấy ảnh hưởng đến tính chất hấp phụ của vật liệu qua hệ số trên phương trình thực nghiệm, tương ứng là -8,4 và 19,4 của bậc 1 và bậc 2. Khảo sát tương quan giữa sự thay đổi nhiệt độ sấy và khả năng hấp phụ của vật liệu được tiến hành qua 2 chương trình nhiệt (Bảng 2).

Mẫu được tổng hợp theo điều kiện tối ưu và tiến hành nung hoạt hóa lên 650°C trong 4 h cũng được so sánh trong thí nghiệm này.

Khi so sánh độ hấp phụ của hai loại chương trình nhiệt cùng với chế độ sấy đẳng nhiệt, trước nung và sau nung, các giá trị này không chênh lệch nhau nhiều (Hình 2). Lý giải thông qua giản đồ TGA (hình 3), qua vùng nhiệt độ lớn hơn 95°C mới xuất hiện sự thay đổi cấu trúc. Do đó, các chế độ điều chỉnh chương trình nhiệt dưới 95°C không làm thay đổi lớn đến độ hấp phụ của vật liệu so với trường hợp sấy đẳng nhiệt.

Bảng 2. Chương trình nhiệt độ sấy vật liệu

| STT | T-°C | Chương trình nhiệt | |
|-----|------|--------------------|----------------|
| | | P ₁ | P ₂ |
| 1 | 29 | 0 | 0 |
| 2 | 50 | 2 | |
| 3 | 50 | 182 | |
| 4 | 85 | 184 | 10 |
| 5 | 85 | 364 | 190 |
| 6 | 98 | 366 | 200 |
| 7 | 98 | 1,440 | 1,400 |



Hình 2. So sánh độ hấp phụ glyceryl trioleate của sản phẩm theo chương trình nhiệt sấy khô sản phẩm

Cấu trúc và độ tinh khiết của sản phẩm

Sản phẩm tổng hợp theo các thông số tối ưu từ mô hình tối ưu hóa thực nghiệm, thời gian sấy: 6h,

không sử dụng chương trình nhiệt. Sản phẩm tiếp tục được tiến hành nung hoạt hóa ở 600°C và tiến hành phân tích cấu trúc bằng FT-IR so sánh với vật liệu không nung. Kết quả thu được như sau:

Đối với phổ FT-IR, các dao động trong vùng 1.100–900 cm^{-1} đặc trưng cho nhóm siloxane Si – O–Si và vùng 600 cm^{-1} dao động uốn của nhóm này. Trong vùng từ 1025–968 cm^{-1} là dao động dạng co giãn bất đối xứng nhóm siloxane. Dao động trong vùng 3.800–3050 cm^{-1} là dao động đặc trưng của nhóm OH. Phổ FT-IR thu được hoàn toàn tương tự phổ ghi nhận trước đó về magnesium silicate của Iyad Rashid [10].

Phổ XRD của vật liệu cho kết quả vô định hình, không xuất hiện mũi đặc trưng cấu trúc tinh thể nào trên sắc ký đồ. Góc quét 2θ từ 20 đến 30 độ xuất hiện một vùng nhô cao (Hình 4). Kết quả này, cũng tương tự nghiên cứu của Sevil Özgül-Yücel [4].

Hàm lượng kim loại trong sản phẩm được đo trên thiết bị ICP-OES, tỷ lệ hàm lượng giữa Mg/Si = 2,8 đáp ứng yêu cầu của florasil thương mại (2,5 – 4,5). Ở mức ppm, không phát hiện các nguyên tố Fe, Al, Cu, Zn, Cr, Pb, Mn, Ti. Hàm lượng anion hòa tan được phân tích bằng sắc ký trao đổi ion cho thấy không có sự xuất hiện của các anion SO_4^{2-} , PO_4^{3-} , NO_3^- .

Kích thước hạt trung bình của sản phẩm là 116 μm và giá trị trung vị là 95 μm , tương tự kích thước hạt nhồi cột SPE Sigma Aldrich (Hình 6).

Bảng 3. Tính chất vật lý và khả năng hấp phụ của magnesi silicate tổng hợp và thương mại

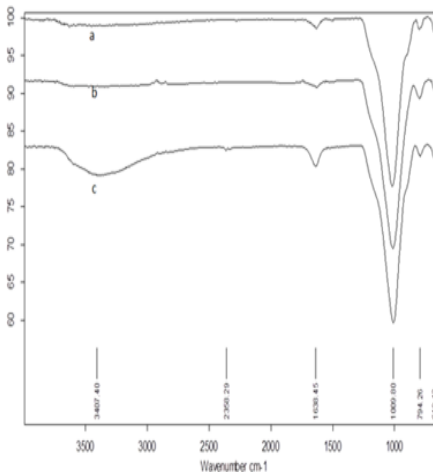
| ST T | Magnesi silicat | Diện tích bề mặt* (m^2/g) | Thể tích lỗ xốp* (cm^3/g) | Độ hấp phụ glyceryl trioleate (mg/g) |
|---------|---------------------------|---|---|--------------------------------------|
| 1 | MgSiO_3 | 455 | 0,325 | 111 |
| 2 | MgSiO_3 hoạt hóa | 189 | 0,214 | 81 |
| 3 | Florisil (Baker) | 183 | - | 79 |

*: Diện tích bề mặt và thể tích lỗ xốp đo bằng thiết bị Nova 3200e

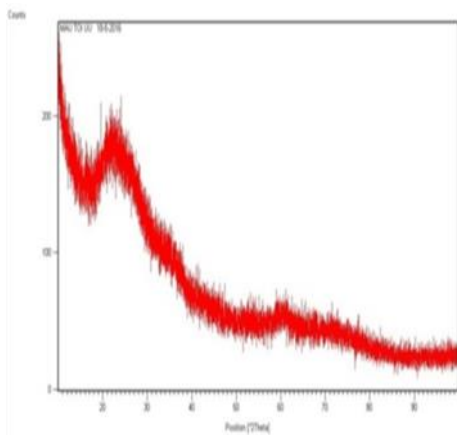
Diện tích bề mặt của sản phẩm sau khi sấy ở 98°C lên đến 455 m^2/g , giảm đáng kể sau khi nung ở 650°C nhưng gần với Florisil của Baker (Bảng 3) và cao hơn nhiều so với công trình nghiên cứu trước đây của Terzioglu (87,41 m^2/g) [1].

Với phổ đồ TGA mang lại cho thấy vùng nhiệt độ 100°C bay hơi nước bề mặt trong vật liệu, khối lượng vật liệu tiếp tục giảm và xuất hiện sự mất nước cấu trúc ở vùng nhiệt độ 200–250°C và vùng nhiệt độ 450–500°C (Hình 5).

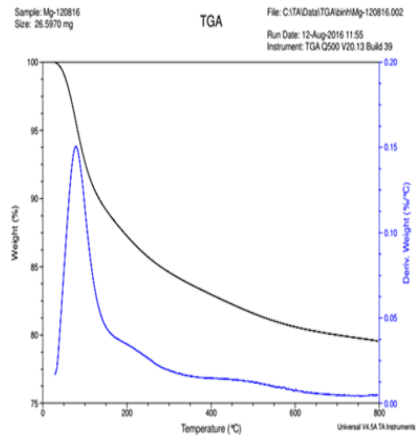
So sánh kết quả đo thể tích lỗ xốp vật liệu không nung và sau nung 650°C, cho thấy dung tích lỗ xốp đã thay đổi đáng kể, thể tích lỗ xốp trước nung là 0,325 cc/g, gấp 1,5 lần so với vật liệu sau nung ở 650°C. Điều này chứng tỏ đã xảy ra quá trình thiêu kết vật liệu khi nung hoạt hóa ở nhiệt độ này.



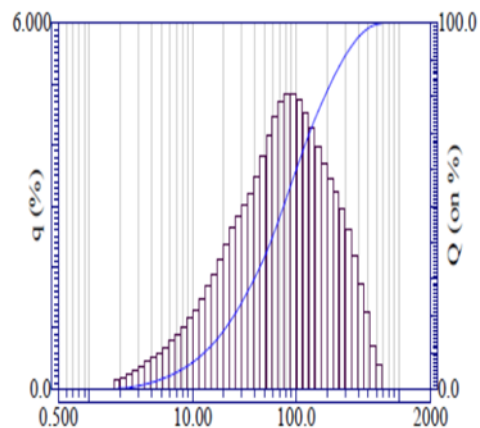
Hình 3. Phổ FTIR đo trên thiết bị Bruker IFS 28 của magnesium silicate (A) trước, (B) sau nung khi nung hoạt hóa ở 650°C và (C) Florisil thương mại



Hình 4. Phổ XRD đo trên thiết bị X'Pert3 Powder của vật liệu magnesium silicat, vùng quét 2θ từ 0-100°



Hình 5. Phổ TGA của sản phẩm MgSiO₃ TGA Q500 V20.13 Build 39, tốc độ nitrogen 60 mL/phút



Hình 6. Phân bố kích thước hạt của vật liệu magnesium silicate, thực hiện trên thiết bị HORIBA LA-920

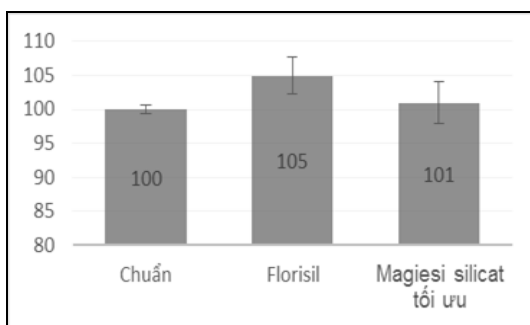
Ứng dụng trong phân tích

Ứng dụng phân tích thuốc trừ sâu họ chlorine trong thủy hải sản

Sản phẩm điều chế theo các thông số tối ưu từ mô hình quy hoạch thực nghiệm nhưng không nung hoạt hóa, được thử nghiệm trong quy trình phân tích dầu khoáng bằng FTIR (TCVN 7369: 2004) và quy trình làm sạch mẫu cho phân tích thuốc trừ sâu họ chlorine theo phương pháp SW-846 EPA 3620c. Kết quả như sau:

Bảng 4. Hiệu suất thu hồi khi phân tích 6 hoạt chất thuốc trừ sâu họ chlorine theo TCVN 8170-3:2009

| Mẫu | Lindane | Heptachlor | Diendrin | Endrin | Aldrin | Heptachlor epoxide | |
|-------------------|----------|------------|---------------------|--------------------|-------------|--------------------|-----------------|
| Chuẩn | 92,2 | 110,1 | 104,0 | 97,7 | 95,7 | 85,8 | |
| Mẫu tôm | 84,7 | 114,6 | 121,4 | 89,6 | 89,8 | 87,8 | |
| Các dẫn xuất khác | | | | | | | |
| Mẫu | Beta_BHC | Deta_BHC | α _Chlordane | β _Chlordane | Endosulfan1 | DDE | Endrin aldehyde |
| Chuẩn | 103,3 | 89,6 | 89,6 | 90,3 | 89,6 | 107,3 | 79,6 |
| Mẫu tôm | 98,7 | 94,7 | 87,9 | 101,9 | 102,1 | 85,0 | 97,8 |



Hình 7. So sánh hiệu suất thu hồi khi phân tích dầu khoáng sử dụng magnesium silicate và florisil thương mại

Hỗn hợp chuẩn các hợp chất thuốc trừ sâu họ chlorine phân tích bằng phương pháp GC-ECD, hiệu suất thu hồi đạt từ 86%–110% (6 hợp chất quy định trong TCVN 8170-3:2009). Khi thực hiện phân tích trong mẫu tôm, hiệu suất này đạt từ 85%–120%. Như vậy bột magnesium silicate cấu trúc xốp này hoàn toàn thích hợp trong lĩnh vực phân tích thuốc trừ sâu bởi không hấp phụ các hoạt chất phân tích (Bảng 4).

Ứng dụng trong phân tích dầu khoáng trong nước mặt, kết quả cho thấy không có sự chênh lệch giữa hai loại vật liệu silicate tổng hợp được và florisil thương mại về khả năng lưu giữ dầu khoáng khi hấp phụ. Hiệu suất thu hồi đạt 105% đối với Florisil thương mại và 101% khi dùng magnesi silicat tổng hợp được (Hình 7).

3 KẾT LUẬN

Sản phẩm magnesium silicate vô định hình được tổng hợp theo điều kiện tối ưu mang lại kết quả tương đương sản phẩm thương mại trong việc xử lý mẫu xác định tổng dầu khoáng trong nước mặt, dư lượng thuốc trừ sâu họ chlorine trong thủy sản. Nghiên cứu này là cơ sở cho việc triển khai sản xuất magnesi silicat ở quy mô lớn. Tuy nhiên bên

cạnh việc xây dựng quy trình công nghệ, việc kiểm soát chất lượng của nguồn nguyên liệu công nghiệp bao gồm sodium silicate và muối magnesium cũng là một trong những vấn đề quan trọng nhằm đảm bảo chất lượng sản phẩm.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

- [1]. T. Pinar, "Synthesis of magnesium silicate from wheat husk ash: effects of parameters on structural and surface properties". *BioResources*, vol. 7, no. 4, pp. 5435–5447, 2012.
- [2]. S. Evre, "Comparison of surface areas and oleic acid adsorption characteristics of various silicates produced from rice hull ash", *Fresenius Environmental Bulletin*, vol. 19, pp. 2823–283, 2010.
- [3]. Q. Lu, Q.L.J. Zhang, J. F. Li, J. Lu, "Facile mesoporous template-assisted hydrothermal synthesis of ordered mesoporous magnesi silicate as an efficient adsorbent", *Applied Surface Science*, vol. 360, pp. 889–895, 2015.
- [4]. O. Yucel, "Lipid adsorption capacities of magnesium silicate and activated carbon prepared from the same rice hull", *The European Journal of Lipid Science Technology*, 110, 742–746 (2008).
- [5]. C. Filip, A.K.J. Teofil, Adsorptive properties of synthetic

- magnesi silicate, *Physico Chemical Problems of Mineral ProCessing*, 41, 185–193 (2007).
- [6]. Y.Y.Y. Zhuang, G. Xiang, X. Wang, "Magnesium silicate hollow nanostructures as highly efficient adsorbents for toxic metal ions". *Journal of Physical Chemistry. C*, vol. 113, pp. 1044–10445, 2009.
- [7]. M. Dietemann, F. Baillon, F. Espitalier, R. Calvet, P. Accart, G. Hooper M., "Properties of an amorphous magnesium silicate synthesized by precipitation" *Chemical Engineering Journal*, pp. 215–216, pp. 658–670, 2011.
- [8]. S. Sei-ichi, T.T.U. Takao, "Synthesis of MgO-SiO₂ and CaO-SiO₂ amorphous powder by Sol-gel process and ion exchange", *Journal of Non-Crystalline Solids*, vol. 255, pp. 178–184 (1999).
- [9]. Y. Zhu, "Synthesis of mesoporous magnesi silicate particles and their adsorption property". *Institution of Engineering and Technology*, vol. 6, no. 8, pp. 671– 674, 2011.
- [10]. I. Rashid, Profiles of Drug Substances, Excipients and Related Methodology, G.B. Harry, Editor. Academic Press, 241–285, 2011, USA.

Synthesis and application of amorphous magnesium silicate in sample preparation for analysis

Vu Thi Nhu Quynh¹, Nguyen Hoang Quy², Nguyen Anh Mai¹

¹University of Science, VNU-HCM

²Center of Analytical Services and Experimentation of HCM City – CASE

Corresponding author: nhuquynhvu2007@gmail.com

Received: 15-01-2017, Accepted: 15-9-2017, Published: 10-08-2018

Abstract – Magnesium silicate, one of silicate materials, is widely used as adsorbent for sample cleanup in solid phase extraction as well as color reducing agent in the industry of sugar, paint, paper, ... In this research, magnesium silicate is synthesized by precipitation method. The synthesis process was optimized by experimental design with quadratic orthogonal experimental method. The optimal reaction conditions are as follows: the mole ratio of sodium silicate/magnesium chloride = 1:1, the speed of stirring sodium silicate solution: 177 rpm, the added flow rate of

magnesium chloride solution: 3.86 mL/min, drying temperature: 98°C. In addition, it takes at least 6 hours to eliminate water adsorption at this temperature. The product has amorphous structure with average particle size of 116 μm, surface area of 454 m²/g, and trioleate glyceryl absorption capacity of 110 mg/g. The efficiency in the removal of esters of glyceryl and fatty acids in hydrocarbons determination and the removal of matrix in the analysis of organochlorides are as good as that of commercial Florisil.

Index Terms – Magnesium silicate, optimization, response surface method, adsorption, florisil.