



# การสังเคราะห์ซีโอไลต์จากเถ้าลอยถ่านหินและจากเถ้าลอย ขานอ้อยเพื่อการกำจัดตะกั่วในน้ำเสียอุตสาหกรรม

## Synthesis of Zeolite from Coal Fly Ash and Bagasse Fly Ash for Lead Removal from Industrial Wastewater

Thares Srisatit\* and Anakkaon Phanphaisan\*\*

ชเรศ ศรีสถิตย์\* และ อนรรฆอร พันธุ์ไพศาล\*\*

\*ภาควิชาวิศวกรรมศาสตร์สิ่งแวดล้อม คณะวิศวกรรมศาสตร์ จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย กรุงเทพฯ 10330

\*\*สาขาวิชาวิทยาศาสตร์สิ่งแวดล้อม จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย กรุงเทพฯ 10330

E-mail: fentss@eng.chula.ac.th

### บทคัดย่อ

การวิจัยนี้มีวัตถุประสงค์เพื่อศึกษาความเป็นไปได้ในการสังเคราะห์ซีโอไลต์จากเถ้าลอยถ่านหินและจากเถ้าลอยขานอ้อยด้วยสารละลายด่างที่ผ่านการใช้แล้วจากโรงงานอุตสาหกรรมรมด้าโลหะ (Spent alkaline) ได้ทำการศึกษาสภาวะที่เหมาะสมในการสังเคราะห์ซีโอไลต์จากเถ้าลอยถ่านหินและจากเถ้าลอยขานอ้อย โดยตรวจสอบคุณสมบัติของความสามารถในการแลกเปลี่ยนแคลเซียมไอออนของซีโอไลต์ที่สังเคราะห์ได้ จากผลการทดลองพบว่าสภาวะที่เหมาะสมสำหรับการสังเคราะห์ซีโอไลต์จากเถ้าลอยถ่านหินและเถ้าลอยขานอ้อยคือ อุณหภูมิในการทำปฏิกิริยา 90 องศาเซลเซียส ความเข้มข้นของสารละลาย Spent alkaline 2 โมลาร์ และระยะเวลาในการทำปฏิกิริยา 5 วัน ซึ่งจะให้ค่าความสามารถในการแลกเปลี่ยนแคลเซียมไอออนเท่ากับ 418.36 cmol/kg และ 286.29 cmol/kg ตามลำดับ

การศึกษานี้ นำซีโอไลต์สังเคราะห์ไปทดสอบความสามารถในการกำจัดตะกั่วแบบไม่ต่อเนื่อง เพื่อศึกษาปัจจัยที่มีผลต่อการกำจัดตะกั่วในน้ำเสียสังเคราะห์ ได้แก่ พีเอช ความเข้มข้นของโลหะหนัก และปริมาณซีโอไลต์ เพื่อทดสอบไอโซเทอร์มการดูดซับตะกั่ว พบว่า ที่พีเอช 5 และความเข้มข้น 10 มิลลิกรัมต่อลิตรมีความสามารถในการกำจัดตะกั่วดีที่สุด ซึ่งผลการทดลองไอโซเทอร์มการดูดซับตะกั่วที่สภาวะดังกล่าวเป็นสมการดูดซับแบบแลงมัวร์ ซึ่งพบว่าซีโอไลต์ที่สังเคราะห์จากเถ้าลอยถ่านหินและเถ้าลอยขานอ้อยที่

ทำปฏิกิริยาด้วยสารละลาย Spent alkaline มีค่าความสามารถในการดูดติดพิวตะกั่วสูงสุดเท่ากับ 78.31 และ 65.23 มิลลิกรัมต่อกรัมซีโอไลต์ ตามลำดับ

ซีโอไลต์ที่สังเคราะห์จากเถ้าลอยถ่านหินและจากเถ้าลอยชานอ้อยที่ทำปฏิกิริยาด้วยสารละลาย Spent alkaline มีความสามารถในการกำจัดตะกั่วในน้ำเสียจากโรงงานหลอมตะกั่วจากแบตเตอรี่เก่า ได้เท่ากับร้อยละ 93 และ 90 ตามลำดับ

**คำสำคัญ :** ซีโอไลต์ เถ้าลอยถ่านหิน เถ้าลอยชานอ้อย ตะกั่ว ต่างเก่า

### Abstract

The objective of this research was to study the potential applicability in synthesized zeolite using coal fly ash and bagasse fly ash reaction by spent alkaline from black oxide coating industry. This study had a look for the optimum condition of synthetic zeolite comparatively from coal fly ash and bagasse fly ash. The optimum condition was determined by evaluating a cation exchange capacity (CEC) of the synthesized zeolite. The result revealed that the optimum condition exhibiting the highest CEC for synthesized zeolite using coal fly ash and bagasse fly ash were 418.36 and 286.29 cmol/kg, characterized by reaction temperature of 90 °C, reaction by spent alkaline solution concentration of 2.0 molar and reaction time of 5 days.

Lead removal by using the optimum synthesized zeolite was evaluated with batch test. The batch experiment was utilized to study influential factors on lead removal from synthetic wastewater which were namely pH favorableness, concentration of heavy metal, contact time and adsorption isotherm. The outcomes that the best adsorption efficiency of lead were at pH 5 and concentration 10 mg/l of lead. From Langmuir adsorption isotherm of synthetic wastewater, it was found that the lead adsorption capacities of synthesized zeolites from coal fly ash and bagasse fly ash reaction by spent alkaline were 78.31 and 65.23 mg/g of zeolite respectively

The removal efficiency of lead in wastewater from Lead Ingots Factory using synthesized zeolites from coal fly ash and bagasse fly ash that be prepared by spent alkaline were 93% and 90% respectively.

**Keywords :** zeolite, coal fly ash, bagasse fly ash, lead, spent alkaline

## บทนำ

ความสนใจในการเตรียมซีโอไลต์ด้วยค่าเก่าซึ่งเป็นของเหลือทิ้งจากอุตสาหกรรมรมดำโลหะเพื่อลดการทิ้งของเสียเหล่านี้เข้าสู่สิ่งแวดล้อมโดยเปล่าประโยชน์และยังเพิ่มคุณค่าให้กับของเสียอีกทางหนึ่ง งานวิจัยนี้จึงมีวัตถุประสงค์ดังต่อไปนี้

1. สังเคราะห์ซีโอไลต์จากเถ้าลอยถ่านหินและจากเถ้าลอยขานอ้อยด้วยสารละลายโซเดียมไฮดรอกไซด์ที่ผ่านการใช้แล้วจากโรงงานอุตสาหกรรมรมดำโลหะ

2. ศึกษาประสิทธิภาพของซีโอไลต์ที่สังเคราะห์จากเถ้าลอยถ่านหินและจากเถ้าลอยขานอ้อยในการกำจัดตะกั่วในน้ำเสียสังเคราะห์และตะกั่วในน้ำเสียอุตสาหกรรมโดยการทดสอบแบบไม่ต่อเนื่อง

Curkovic, Cerjan-Stefanovic และ Filipan [1] (1996) ได้ทำการทดลองกำจัดตะกั่วและแคดเมียมออกจากน้ำเสียโดยใช้ซีโอไลต์ตามธรรมชาติที่ไม่ได้ผ่านกระบวนการพิเศษ และซีโอไลต์ที่ผ่านการสังเคราะห์ ซึ่งแสดงให้เห็นว่าซีโอไลต์ที่ผ่านกระบวนการพิเศษจะมีประสิทธิภาพดีขึ้นทั้งความสามารถในการแลกเปลี่ยนประจุ และประสิทธิภาพในการกำจัด Steenbruggen and Hollman (1998) [2] ได้ทำการสังเคราะห์ซีโอไลต์จากเถ้าลอยถ่านหินจากโรงไฟฟ้าในประเทศเนเธอร์แลนด์ ซีโอไลต์ที่เกิดขึ้นคือ ซีโอไลต์โซเดียม-พีวัน (Zeolite Na-P1) เถ้าลอยถ่านหินจะเปลี่ยนเป็นซีโอไลต์ประมาณ 45% และค่าความสามารถในการแลกเปลี่ยนแคดเมียม (CEC) เพิ่มขึ้นจาก 0.02 เป็น 2.4 meq/g., Hollman,

Steenbruggen และ Janssen-Jurkovicova (1999) [3] ได้ทดลองสังเคราะห์ซีโอไลต์จากเถ้าลอยถ่านหินโดยทำปฏิกิริยากับสารละลายโซเดียมไฮดรอกไซด์จากการทดลองพบว่าซีโอไลต์ที่เกิดขึ้น คือ ซีโอไลต์โซเดียม-พีวัน (Zeolite Na-P1) ซีโอไลต์โซเดียม-เอกซ์ (Zeolite Na-X) จูฮาทิพย์ เพชรอินทร์ (2547) [4] ได้ศึกษาความเป็นไปได้ในการสังเคราะห์ซีโอไลต์จากเถ้าลอยถ่านหินและจากเถ้าลอยขานอ้อย พบว่าสถานะที่เหมาะสมสำหรับการสังเคราะห์ซีโอไลต์เถ้าลอยถ่านหินคือ อุณหภูมิในการทำปฏิกิริยา 100 องศาเซลเซียส ความเข้มข้นของสารละลายโซเดียมไฮดรอกไซด์ 2 โมลาร์ และระยะเวลาในการทำปฏิกิริยา 5 วัน ซึ่งจะให้ค่าความสามารถในการแลกเปลี่ยนไอออนบวกเท่ากับ 565.62 cmol/kg ส่วนสถานะที่เหมาะสมสำหรับการสังเคราะห์ซีโอไลต์เถ้าลอยขานอ้อย คืออุณหภูมิในการทำปฏิกิริยา 90 องศาเซลเซียส ความเข้มข้นของสารละลายโซเดียมไฮดรอกไซด์ 2 โมลาร์ และระยะเวลาในการทำปฏิกิริยา 4 วัน ซึ่งจะให้ค่าความสามารถในการแลกเปลี่ยนไอออนบวกเท่ากับ 303.19 cmol/kg และซีโอไลต์ที่สังเคราะห์จากเถ้าลอยถ่านหินและจากเถ้าลอยขานอ้อย มีความสามารถในการกำจัดตะกั่วในน้ำเสียได้เท่ากับร้อยละ 93 และ 91 ตามลำดับ

## อุปกรณ์และวิธีการ

การศึกษากำจัดตะกั่วในน้ำเสียสังเคราะห์โดยใช้ซีโอไลต์ที่สังเคราะห์จากเถ้าลอยถ่านหินและจากเถ้าลอยขานอ้อยแบ่งเป็น 5 ขั้นตอนคือ

### ขั้นตอนที่ 1 ศึกษาสมบัติและลักษณะเบื้องต้นของสารละลายด่างที่ใช้แล้ว (Spent alkaline)

ทดสอบหาค่าพารามิเตอร์ของสารละลายด่างที่ใช้แล้ว (Spent alkaline) ดังนี้

1. pH, Oxidation Reduction Potential (ORP), ของแข็งแขวนลอย (SS)
2. ปริมาณโลหะละลายและโลหะทั้งหมด ได้แก่ As, Cd, Cr, Cu, Fe, Hg, Ni และ Pb

### ขั้นตอนที่ 2 การสังเคราะห์ซีโอไลต์จากเถ้าลอยถ่านหินและเถ้าลอยขานอ้อย

การสังเคราะห์ซีโอไลต์จากเถ้าลอยถ่านหินและจากเถ้าลอยขานอ้อยนั้นทำได้โดยการนำวัตถุดิบคือ เถ้าลอยถ่านหิน และเถ้าลอยขานอ้อยมาอบให้แห้งที่อุณหภูมิ 105 องศาเซลเซียสเป็นเวลา 2 ชั่วโมง นำเถ้าลอยทั้งสองชนิดที่ผ่านการอบแล้ว มาทำการร่อนผ่านตะแกรงเบอร์ 100 mesh และร่อนผ่านตะแกรงเบอร์ 325 mesh แล้วนำไปเผาที่อุณหภูมิ 700 องศาเซลเซียสเป็นเวลา 3 ชั่วโมง จากนั้นนำเถ้าลอยทั้งสองชนิดที่ผ่านการเผามาผสมกับสารละลายโซเดียมไฮดรอกไซด์และสารละลายด่างจากกระบวนการรณค่าโลหะ (Spent alkaline) ที่ความเข้มข้น 2 และ 3.5 โมลาร์ โดยใช้อัตราส่วนวัตถุดิบต่อสารละลายโซเดียมไฮดรอกไซด์ หรือ Spent alkaline เท่ากับ 1:8 นำไปให้ความร้อนโดยใช้อุณหภูมิที่ทำปฏิกิริยา 90 และ 100 องศาเซลเซียส ใน Shaker water bath และระยะเวลาที่ใช้ในการทำปฏิกิริยา 3, 4 และ 5 วัน นำไปวิเคราะห์โครงสร้างด้วย X-rays Diffraction Spectrophotometer (XRD) เมื่อได้ซีโอไลต์สังเคราะห์ที่ทุกสภาวะแล้ว จึงนำซีโอไลต์

สังเคราะห์ทั้งสองชนิดมาทดสอบค่าความสามารถในการแลกเปลี่ยนไอออน (CEC) เพื่อเลือกสภาวะที่ซีโอไลต์มาทำการทดลองขั้นต่อไป

### ขั้นตอนที่ 3 การศึกษาสมบัติทางกายภาพและทางเคมีของซีโอไลต์

พารามิเตอร์	วิธีการวิเคราะห์	เครื่องมือที่ใช้วิเคราะห์
ตะกั่ว	AAS	Atomic Adsorption Spectrophotometer (AAS). Perkin Elmer Instrument, Analyst 300 Atomic Adsorption Spectrophotometer. USA
CEC	การแลกเปลี่ยนแคลเซียมไอออน	ไตเตรตกับสารละลายมาตรฐานอีดีทีเอ
พื้นที่ผิว	BET	Specific Surface Area Analyzer. ASAP2000.Germany
องค์ประกอบทางเคมี	XRF	X-rays Fluorescences Spectrophotometer JOEL รุ่น PW 2400 PHILIPS, JAPAN
โครงสร้างผลึก	XRD	X-rays Diffraction Spectrophotometer JOEL รุ่น JDX-8030, JAPAN

### ขั้นตอนที่ 4 ศึกษาปัจจัยต่างๆ ที่มีผลต่อการกำจัดตะกั่วในน้ำเสียสังเคราะห์ของซีโอไลต์

เป็นขั้นตอนศึกษาความสามารถในการกำจัดตะกั่วโดยใช้ซีโอไลต์ที่สังเคราะห์จากเถ้าลอยถ่านหินและจากเถ้าลอยขานอ้อย โดยศึกษา

1. อิทธิพลของความเป็นกรด-ด่าง : นำน้ำเสียสังเคราะห์ที่ปรับค่าพีเอชให้เท่ากับ 4-7 แล้วกรองตะกอนออก นำน้ำเสียไปวัดปริมาณตะกั่วที่

เหลืออยู่ และนำน้ำเสียสังเคราะห์ที่ปรับค่าพีเอชให้เท่ากับ 4, 5, 6 และ 7 ใส่ลงในขวด เดิมซีโอไลต์สังเคราะห์ปริมาณ 0.1 กรัม ลงในขวดแต่ละใบ นำขวดไปเขย่าบนเครื่องเขย่าเป็นเวลา 120 นาทีที่ความเร็วรอบ 200 รอบ/นาที

2. อิทธิพลของเวลาสัมผัส : นำน้ำเสียสังเคราะห์ที่มีค่าพีเอชที่เหมาะสมจากขั้นตอนที่ผ่านมา เดิมซีโอไลต์สังเคราะห์ปริมาณ 0.1 กรัมลงในขวดแต่ละใบ นำขวดไปเขย่าบนเครื่องเขย่าเป็นเวลา 5, 10, 20, 30, 60, 90, 120, 150, 180, 240, 300, 900 และ 1440 นาที ตามลำดับ ที่ความเร็วรอบ 200 รอบ/นาที

3. อิทธิพลของปริมาณซีโอไลต์สังเคราะห์ : นำน้ำเสียสังเคราะห์ที่มีความเข้มข้นและพีเอชเท่ากับค่าที่เหมาะสมจากขั้นตอนที่ผ่านมา เดิมซีโอไลต์สังเคราะห์ปริมาณ 0, 0.01, 0.02, 0.04, 0.08, 0.10 และ 0.20 กรัม ลงในขวดตามลำดับ นำขวดไปเขย่าบนเครื่องเขย่าโดยใช้เวลาสัมผัสที่เหมาะสม ที่ความเร็วรอบ 200 รอบ/นาที แล้วนำน้ำเสียไปวิเคราะห์ปริมาณตะกั่วที่เหลืออยู่ เพื่อนำผลที่ได้ไปเขียนกราฟไอโซเทอร์มการดูดซับ (ASTM D 3860-89a., 1996) [5]

**ขั้นตอนที่ 5 ศึกษาการกำจัดโลหะตะกั่วในน้ำเสียจากโรงงานผลิตตะกั่วแท่ง**

ตัวอย่างน้ำเสียจริงที่ใช้ทำการศึกษาจะเป็นน้ำเสียจากโรงงานหลอมตะกั่วจากแบดเตอรีเก่า โดย

สถานะที่ใช้ในการบำบัดจะใช้จากสถานะต่างๆ ในขั้นตอนที่ 4 ใช้ซีโอไลต์สังเคราะห์ปริมาณ 0.1 กรัม ปริมาตรของน้ำเสีย 100 ml นำไปเขย่า 200 รอบต่อ นาที แล้วทำการวิเคราะห์หาปริมาณตะกั่วละลายของตัวอย่างน้ำเสียก่อนและหลังการเขย่า

## ผลการวิจัย

**ขั้นตอนที่ 1 ศึกษาสมบัติและลักษณะเบื้องต้นของสารละลายต่างที่ใช้แล้ว (Spent alkaline)**

สารละลายต่างที่ใช้แล้วเป็นส่วนผสมของสารละลาย NaOH และน้ำยารมดำ SUGICUT CS-58 Y (พรรคพงษ์, 2547) [6] มีลักษณะสมบัติเบื้องต้นคือ เป็นของเหลวขุ่นหนืด ความเป็นด่างสูง มีค่า pH เริ่มต้น 12.98 มีความเข้มข้นของ NaOH 12.38 N

**ขั้นตอนที่ 2 การสังเคราะห์ซีโอไลต์จากเถ้าลอยถ่านหินและจากเถ้าลอยชานอ้อย**

สถานะที่เหมาะสมในการสังเคราะห์ซีโอไลต์จากเถ้าลอยถ่านหินและจากเถ้าลอยชานอ้อย ดังตารางที่ 1 จากการวิเคราะห์ XRD พบซีโอไลต์ 2 ชนิด ชนิดแรกมีโครงสร้างตรงกับซีโอไลต์ชนิด P1 และอีกชนิดพบตรงตามโครงสร้างของซีโอไลต์แต่ยังไม่มีชื่อเรียก จึงเป็น Unnamed zeolite ซึ่งจะได้อธิบายต่อไปในผลการศึกษาระดับขั้นตอนที่ 3

ตารางที่ 1 สภาวะที่เหมาะสมในการสังเคราะห์ซีโอไลต์จากเถ้าลอยถ่านหินและจากเถ้าลอยชานอ้อย

พารามิเตอร์	เถ้าลอยถ่านหิน		เถ้าลอยชานอ้อย	
	NaOH	Spent alkaline	NaOH	Spent alkaline
ความเข้มข้น (Mol)	2 M	2 M	2	2
อุณหภูมิ (°C)	100	90	90	90
ระยะเวลาในการทำปฏิกิริยา (วัน)	5	5	5	5
ค่า CEC สูงสุด (cmol/kg)	501.53	418.36	296.99	286.29

### ขั้นตอนที่ 3 การศึกษาสมบัติทางกายภาพและทางเคมีของซีโอไลต์

1. การหาการกระจายขนาดของเถ้าลอยถ่านหิน เถ้าลอยชานอ้อย และซีโอไลต์สังเคราะห์โดยใช้เครื่อง Laser Particle Size Analyzer ดังตารางที่ 2

2. การศึกษาพื้นที่ผิว (Surface area) ปริมาตรโพรง (Pore Volume) ซึ่งทำการวิเคราะห์โดยใช้เครื่อง Specific Surface Area Analysis ด้วยวิธี BET (Brunauer-Emmett-Teller) ได้ผลการทดลองดังตารางที่ 3

จากผลการวิเคราะห์พื้นที่ผิวและปริมาตรโพรงของซีโอไลต์สังเคราะห์จากเถ้าลอยถ่านหินและจากเถ้าลอยชานอ้อยที่ทำปฏิกิริยาด้วยสารละลายโซเดียมไฮดรอกไซด์ และสารละลาย Spent alkaline พบว่ามีพื้นที่ผิวและปริมาตรโพรงมากกว่าเถ้าลอยถ่านหินและเถ้าลอยชานอ้อยที่ยังไม่ผ่านการทำปฏิกิริยา ดังนั้นซีโอไลต์ที่สังเคราะห์จากเถ้าลอยถ่านหินและจากเถ้าลอยชานอ้อยย่อมมีความสามารถในการดูดซับได้ดีกว่าเถ้าลอยถ่านหินและเถ้าลอยชานอ้อยที่ยังไม่ผ่านการทำปฏิกิริยา

ตารางที่ 2 การกระจายขนาดของเถ้าลอยถ่านหิน เถ้าลอยชานอ้อย และซีโอไลต์สังเคราะห์

ประเภท	ขนาดของอนุภาค	ประเภท	ขนาดของอนุภาค
เถ้าลอยถ่านหิน	0.05-103.58 ไมโครเมตร	เถ้าลอยชานอ้อย	0.05-190 ไมโครเมตร
ซีโอไลต์จากเถ้าลอยถ่านหิน (ทำปฏิกิริยาด้วยสารละลาย NaOH)	0.05-88.91 ไมโครเมตร	ซีโอไลต์จากเถ้าลอยชานอ้อย (ทำปฏิกิริยาด้วยสารละลาย NaOH)	0.05-190 ไมโครเมตร
ซีโอไลต์จากเถ้าลอยถ่านหิน (ทำปฏิกิริยาด้วยสารละลาย Spent alkaline)	0.09-76.32 ไมโครเมตร	ซีโอไลต์จากเถ้าลอยชานอ้อย (ทำปฏิกิริยาด้วยสารละลาย Spent alkaline)	0.05-190 ไมโครเมตร

ตารางที่ 3 ผลการวิเคราะห์ลักษณะทางกายภาพของเถ้าลอยถ่านหิน เถ้าลอยขานอ้อย และซีโอไลต์สังเคราะห์

ชนิดของเถ้าลอยและซีโอไลต์สังเคราะห์	ลักษณะทางกายภาพ	พื้นที่ผิว (ตร.ม./กรัม)	ปริมาตรโพรง (ลบ.ซม./กรัม)
เถ้าลอยถ่านหิน		3.37	0.0173
ซีโอไลต์สังเคราะห์จากเถ้าลอยถ่านหินที่ทำปฏิกิริยากับ NaOH		23.61	0.1239
ซีโอไลต์สังเคราะห์จากเถ้าลอยถ่านหินที่ทำปฏิกิริยากับ Spent alkaline		18.09	0.0995
เถ้าลอยขานอ้อย		2.55	0.0522
ซีโอไลต์สังเคราะห์จากเถ้าลอยขานอ้อยที่ทำปฏิกิริยากับ NaOH		20.16	0.1211
ซีโอไลต์สังเคราะห์จากเถ้าลอยขานอ้อยที่ทำปฏิกิริยากับ Spent alkaline		18.01	0.1047

3. การวิเคราะห์สมบัติทางเคมีของเถ้าลอยถ่านหิน เถ้าลอยขานอ้อยและซีโอไลต์ที่สังเคราะห์จากเถ้าลอยทั้งสองชนิด โดยวิธีเอกซเรย์ฟลูออเรสเซนซ์ (XRF)

สารประกอบที่พบในเถ้าลอยถ่านหิน และเถ้าลอยขานอ้อยเป็นสารประกอบเริ่มต้นที่สำคัญในการสังเคราะห์ซีโอไลต์ เพราะว่าเถ้าลอยทั้งสองชนิดประกอบไปด้วย  $\text{SiO}_2$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  และ  $\text{CaO}$  ซึ่งเป็นสารประกอบที่มีความสำคัญมากในการเกิดซีโอไลต์พบว่าในเถ้าลอยถ่านหินมี  $\text{SiO}_2$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  และ  $\text{CaO}$  เท่ากับ 39.87% 11.11% 16.30% และ 17.91% ตามลำดับ ส่วนเถ้าลอยขานอ้อยมี  $\text{SiO}_2$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  และ  $\text{CaO}$  เท่ากับ 60.21% 5.98% 7.42% และ 9.16% ตามลำดับ ซึ่งเมื่อนำเถ้าลอยถ่านหินและเถ้าลอยขานอ้อยมาทำปฏิกิริยากับสารละลายต่าง ซึ่งในงานวิจัยนี้ใช้สารละลายโซเดียมไฮดรอกไซด์และสารละลาย Spent alkaline ซึ่งเป็นสารละลายต่างที่ผ่านการใช้งานจากกระบวนการรมค่าโลหะ จะสามารถทำให้เกิดเป็นซีโอไลต์สังเคราะห์ขึ้นได้

4. การวิเคราะห์ด้วยเครื่องเอกซเรย์ดิฟแฟรกชัน (XRD) พบว่าเถ้าลอยถ่านหินที่ผ่านการทำปฏิกิริยากับสารละลายโซเดียมไฮดรอกไซด์แล้วสามารถตรวจพบซีโอไลต์คือ Zeolite P1 และพบสารประกอบอื่นที่ไม่ใช่ซีโอไลต์คือ Quartz- $\text{SiO}_2$  ส่วนเถ้าลอยถ่านหินที่ผ่านการทำปฏิกิริยากับสารละลาย Spent alkaline สามารถตรวจพบซีโอไลต์คือ Zeolite P1 และ Unnamed zeolite (Sodium Aluminum Silicate Hydrate) และพบสารประกอบอื่นที่ไม่ใช่ซีโอไลต์คือ Quartz- $\text{SiO}_2$

เมื่อนำเถ้าลอยขานอ้อยมาผ่านการทำปฏิกิริยากับสารละลายโซเดียมไฮดรอกไซด์แล้วสามารถตรวจพบซีโอไลต์คือ Zeolite P1 และพบสารประกอบอื่นที่ไม่ใช่ซีโอไลต์คือ Quartz- $\text{SiO}_2$  ส่วนเถ้าลอยขานอ้อยที่ผ่านการทำปฏิกิริยากับสารละลาย Spent alkaline สามารถตรวจพบซีโอไลต์คือ Zeolite P1 และพบสารประกอบอื่นที่ไม่ใช่ซีโอไลต์คือ Quartz- $\text{SiO}_2$  ดังตารางที่ 4

ตารางที่ 4 ซีโอไลต์ที่สังเคราะห์ได้จากเถ้าลอยถ่านหินและจากเถ้าลอยขานอ้อย

ชนิดของเถ้าลอย	ซีโอไลต์ที่สังเคราะห์ได้	สูตรทั่วไปของซีโอไลต์
เถ้าลอยถ่านหินที่ทำปฏิกิริยากับ NaOH	Zeolite P1	$[\text{Na}_6\text{Al}_6\text{Si}_{10}\text{O}_{32}]\text{12H}_2\text{O}$
เถ้าลอยถ่านหินที่ทำปฏิกิริยากับ Spent alkaline	Zeolite P1 Unnamed zeolite	$[\text{Na}_6\text{Al}_6\text{Si}_{10}\text{O}_{32}]\text{12H}_2\text{O}$ $[1.08(\text{Na}_2\text{O})(\text{Al}_2\text{O}_3)1.68(\text{SiO}_2)]\text{1.8H}_2\text{O}$
เถ้าลอยขานอ้อยที่ทำปฏิกิริยากับ NaOH	Zeolite P1	$[\text{Na}_6\text{Al}_6\text{Si}_{10}\text{O}_{32}]\text{12H}_2\text{O}$
เถ้าลอยขานอ้อยที่ทำปฏิกิริยากับ Spent alkaline	Zeolite P1	$[\text{Na}_6\text{Al}_6\text{Si}_{10}\text{O}_{32}]\text{12H}_2\text{O}$

ขั้นตอนที่ 4 ศึกษาปัจจัยต่างๆ ที่มีผลต่อการกำจัด ตะกั่วในน้ำเสียสังเคราะห์โดยใช้ซีโอไลต์

#### อิทธิพลของความเป็นกรด-ด่าง

จากการศึกษาของ Reed, Jamil and Thomas (1996) [7] พบว่า Pb จะมีการตกตะกอนในรูปของ  $\text{Pb}(\text{OH})_2$  ในช่วงพีเอช 5.5 และจะตกตะกอนเพิ่มมากขึ้นเรื่อยๆ จนถึงพีเอช 12-12.5 แล้วจะกลับมามีผลใหม่ ดังนั้นเพื่อเป็นการศึกษาถึงการดูดซับ จึงทำการทดลองปรับค่าพีเอชต่างๆ ตั้งแต่ 4-7 แล้วนำไปเขย่า

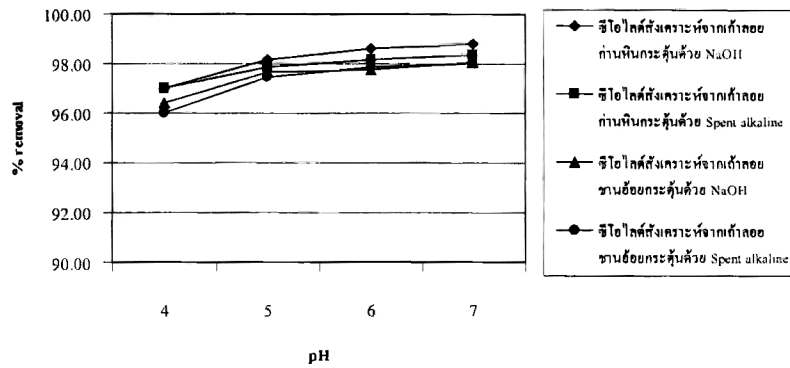
ที่ความเร็ว 200 รอบ/นาที แล้วทำการกรองตะกอนที่เกิดขึ้นออก หลังจากนั้นจึงนำไปวัดปริมาณตะกั่วในน้ำเสียสังเคราะห์ที่เหลืออยู่หลังการตกตะกอน เพื่อหาพีเอชที่เหมาะสมในการศึกษาถึงการดูดซับผลการทดลองที่ได้ดังตารางที่ 5

จากผลการทดลองการหา pH ที่เหมาะสมในการดูดซับตะกั่วในน้ำเสียสังเคราะห์สามารถสรุปผลการทดลองได้ดังรูปที่ 1

ตารางที่ 5 ปริมาณตะกั่วในน้ำเสียสังเคราะห์ที่เหลืออยู่หลังปรับค่าความเป็นกรดด่างที่พีเอชต่างๆ

ค่า pH	ความเข้มข้นตะกั่ว ในน้ำเสียเริ่มต้น (mg/l)	ความเข้มข้นตะกั่ว ในน้ำเสียหลังปรับ pH (mg/l)	% การตกตะกอน
4	10	9.142	8.58
5	10	8.996	10.04
6	10	5.010	49.90
7	10	2.547	74.53





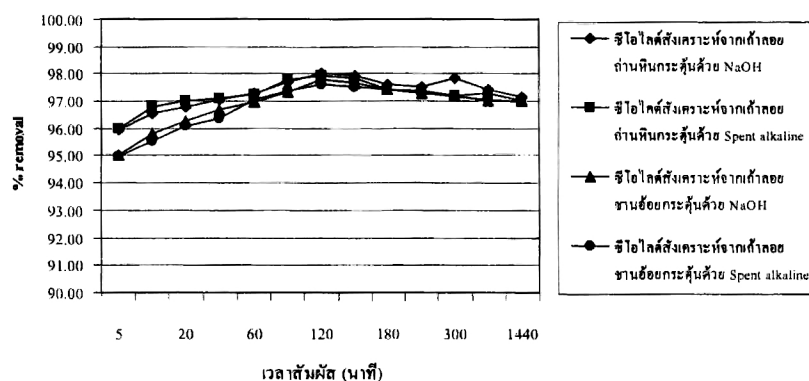
รูปที่ 1 ประสิทธิภาพในการกำจัดตะกั่วของซีโอไลต์ที่สังเคราะห์จากถ่านหินทั้งสองชนิดที่พีเอชต่างๆ

จากผลการทดลองดังรูปที่ 1 สรุปได้ว่าที่ pH 4, 5, 6 และ 7 ประสิทธิภาพในการดูดซับตะกั่วของซีโอไลต์ที่สังเคราะห์จากถ่านหินถ่านหินและจากถ่านหินขาน้อยมีความสามารถในการดูดซับได้ไม่ต่างกันมากนัก ซึ่งเมื่อพิจารณาการตกตะกอนของตะกั่วพบว่าตะกั่วจะเริ่มตกตะกอนที่ pH ประมาณ 6-7 ดังนั้นในการเลือก pH เพื่อนำไปใช้ในการทดลองต่อไปจะใช้ pH เท่ากับ 5 ซึ่งจากผลการทดลองซีโอไลต์สังเคราะห์จากถ่านหินถ่านหินที่ทำปฏิกิริยากับสารละลายโซเดียมไฮดรอกไซด์และที่ทำปฏิกิริยากับสารละลาย Spent alkaline จะได้ประสิทธิภาพการกำจัดเท่ากับ 98.16% และ 97.86% ตามลำดับ ส่วนซีโอไลต์สังเคราะห์จากถ่านหิน

ขาน้อยที่ทำปฏิกิริยากับสารละลายโซเดียมไฮดรอกไซด์และที่ทำปฏิกิริยากับสารละลาย Spent alkaline จะได้ประสิทธิภาพการกำจัดเท่ากับ 97.63% และ 97.47% ตามลำดับ เนื่องจากเป็นช่วงที่ตะกั่วยังตกตะกอนไม่มากนัก ถ้าเลือก pH สูงกว่านี้จะเป็นการตกตะกอนของตะกั่วมากกว่าการดูดซับโดยซีโอไลต์

#### อิทธิพลของเวลาสัมผัส

การหาเวลาสัมผัสที่เหมาะสมในการกำจัดตะกั่วในน้ำเสียสังเคราะห์ สามารถสรุปผลการทดลองได้ดังรูปที่ 2



รูปที่ 2 ความสัมพันธ์ระหว่างช่วงเวลาสัมผัสของซีโอไลต์แต่ละชนิดกับ %removal ของตะกั่ว

จากรูปที่ 2 พบว่าประสิทธิภาพการกำจัด ตะกั่ว โดยใช้ซีโอไลต์ที่สังเคราะห์จากเถ้าลอย ถ่านหินและจากเถ้าลอยขานอ้อยจะเพิ่มขึ้นเรื่อยๆ เมื่อเวลาการเขย่าเพิ่มขึ้น และเปอร์เซ็นต์เฉลี่ยการ กำจัดตะกั่วมากที่สุดที่เวลาการเขย่า 120 นาที โดย ซีโอไลต์สังเคราะห์จากเถ้าลอยถ่านหินที่ทำปฏิกิริยา ด้วยสารละลายโซเดียมไฮดรอกไซด์และที่ทำปฏิกิริยา ด้วยสารละลาย Spent alkaline มีค่าเฉลี่ยเท่ากับ 98.03% และ 97.92% ตามลำดับ ส่วนซีโอไลต์สังเคราะห์ จากเถ้าลอยขานอ้อยที่ทำปฏิกิริยาด้วยสารละลาย โซเดียมไฮดรอกไซด์และที่ทำปฏิกิริยาด้วยสารละลาย Spent alkaline มีค่าเฉลี่ยเท่ากับ 97.79% และ 97.63% ตามลำดับ จะเห็นได้ว่าประสิทธิภาพในการกำจัด ตะกั่วจะมีความชันในช่วงแรกของเวลาสัมผัสจะ มากกว่าในช่วงหลัง และมีความชันลดลงเรื่อยๆ จนมี ลักษณะเป็นเส้นค่อนข้างสม่ำเสมอในที่สุด ซึ่ง

ปฏิกิริยาส่วนใหญ่ที่เกิดขึ้นจะเกิดจากการแลกเปลี่ยน ประจุกันระหว่างประจุของโซเดียมกับประจุของ ตะกั่ว และอาจมีปริมาณสูงขึ้นในบางเวลา โดยอาจ เกิดจากการผันกลับของการดูดซับ (desorption) เกิดขึ้น ซึ่งอาจเกิดจากการดูดติดทางกายภาพที่เกิด จากแรงแวนเดอร์วาลส์ (Faust and Aly, 1987) [8] ทำให้ง่ายที่จะเกิดการผันกลับของการดูดซับ

#### อิทธิพลของปริมาณซีโอไลต์สังเคราะห์

จากสมการไอโซเทอร์มการดูดติดผิวแบบ แลงมัวร์ของซีโอไลต์ที่สังเคราะห์จากเถ้าลอยถ่านหิน และจากเถ้าลอยขานอ้อย เมื่อแทนค่าความเข้มข้น ของตะกั่วเท่ากับ 10 mg/l จะได้ค่าความหนาแน่น ของการดูดติดผิวสูงสุด  $X_{max}$  ของซีโอไลต์ที่สังเคราะห์ จากเถ้าลอยถ่านหินและจากเถ้าลอยขานอ้อย ดังแสดงในตารางที่ 6

ตารางที่ 6 ค่าคงที่ของซีโอไลต์ที่สังเคราะห์จากเถ้าลอยถ่านหินและจากเถ้าลอยขานอ้อยจากสมการ ของ Langmuir

ชนิดของซีโอไลต์สังเคราะห์	สมการของแลงมัวร์	$1/X_m$	b	$X_{max}$ (mg/g)
ซีโอไลต์สังเคราะห์จากเถ้าลอยถ่านหินที่ ทำปฏิกิริยาด้วย NaOH	$y = 0.0033X + 0.0937$ $R^2 = 0.9699$	0.0033	0.0352	79.93
ซีโอไลต์สังเคราะห์จากเถ้าลอยถ่านหินที่ ทำปฏิกิริยาด้วย Spent alkaline	$y = 0.0045X + 0.0827$ $R^2 = 0.9515$	0.0045	0.0544	78.31
ซีโอไลต์สังเคราะห์จากเถ้าลอยขานอ้อยที่ ทำปฏิกิริยาด้วย NaOH	$y = 0.0061X + 0.0844$ $R^2 = 0.9523$	0.0061	0.0722	68.78
ซีโอไลต์สังเคราะห์จากเถ้าลอยขานอ้อยที่ ทำปฏิกิริยาด้วย Spent alkaline	$y = 0.0057X + 0.0963$ $R^2 = 0.9505$	0.0057	0.0592	65.23

จากตารางที่ 6 พบว่าซีโอไลต์ในปริมาณที่ เท่ากัน คือ 1 กรัม ซีโอไลต์ที่สังเคราะห์จากเถ้าลอย

ถ่านหินมีความสามารถในการดูดติดผิวตะกั่วได้ มากกว่าซีโอไลต์ที่สังเคราะห์จากเถ้าลอยขานอ้อย

### ขั้นตอนที่ 5 ศึกษาการกำจัดโลหะตะกั่วในน้ำเสียจากโรงงานผลิตตะกั่วแท่ง

ตัวอย่างน้ำเสียจริงที่ใช้ทำการศึกษาจะเป็นน้ำเสียจากโรงงานผลิตตะกั่วแท่ง ซึ่งมี pH เท่ากับ 2.02 โดยสภาวะที่ใช้ในการบำบัด ใช้ค่า pH เท่ากับ 5

ใช้ซีโอไลต์สังเคราะห์ปริมาณ 0.1 กรัม ปริมาณของน้ำเสีย 100 ml ใช้เวลาเขย่า 120 นาที แล้วทำการวิเคราะห์หาปริมาณตะกั่วละลายของตัวอย่างน้ำเสียก่อนและหลังการเขย่า ซึ่งได้ผลการทดลองดังแสดงในตารางที่ 7

### ตารางที่ 7 ผลการดูดซับด้วยซีโอไลต์สังเคราะห์ของน้ำเสียจากโรงงาน

ชนิดของซีโอไลต์สังเคราะห์	pH ก่อนเขย่า	pH หลังเขย่า	ความเข้มข้นของตะกั่วเฉลี่ย (mg/l)		ประสิทธิภาพการกำจัด (%)		
			ก่อนการทดลอง	หลังการทดลอง	ตกตะกอน	ดูดซับโดย Zeolite	รวม
ซีโอไลต์สังเคราะห์จากถ้ำลอยถ่านหิน ทำปฏิกิริยาด้วย NaOH	5	7.84	2.049	0.129	19.20	74.49	93.69
ซีโอไลต์สังเคราะห์จากถ้ำลอยถ่านหิน ทำปฏิกิริยาด้วย Spent alkaline	5	7.67	2.049	0.146	19.03	73.83	92.86
ซีโอไลต์สังเคราะห์จากถ้ำลอยชานอ้อย ทำปฏิกิริยาด้วย NaOH	5	7.98	2.049	0.209	18.40	71.42	89.82
ซีโอไลต์สังเคราะห์จากถ้ำลอยชานอ้อย ทำปฏิกิริยาด้วย Spent alkaline	5	8.01	2.049	0.214	18.35	71.21	89.56

จากการศึกษาที่ได้พบว่า การดูดซับโลหะตะกั่วของน้ำเสียจริงจากโรงงานผลิตตะกั่วแท่งที่นำมาใช้ในการทดลองนี้ จะมีประสิทธิภาพในการถูกดูดซับด้วยซีโอไลต์ที่สังเคราะห์จากถ้ำลอยถ่านหินที่ทำปฏิกิริยาด้วยสารละลายโซเดียมไฮดรอกไซด์ และที่ทำปฏิกิริยาด้วยสารละลาย Spent alkaline เท่ากับ 93.69% และ 92.86% ตามลำดับ ส่วนประสิทธิภาพในการถูกดูดซับด้วยซีโอไลต์ที่สังเคราะห์จากถ้ำลอยชานอ้อยที่ทำปฏิกิริยาด้วยสารละลายโซเดียมไฮดรอกไซด์ และที่ทำปฏิกิริยาด้วยสารละลาย Spent

alkaline เท่ากับ 89.82% และ 89.56% ตามลำดับ เมื่อพิจารณาการดูดซับโลหะตะกั่วจากผลการทดลองที่ได้ แสดงให้เห็นว่าประสิทธิภาพในการดูดซับตะกั่วของซีโอไลต์สังเคราะห์ทั้งสองชนิดกับน้ำเสียจริงจะลดปริมาณโลหะตะกั่วลงได้มาก และมีประสิทธิภาพในการกำจัดตะกั่วใกล้เคียงกัน ซึ่งเป็นประสิทธิภาพของการตกตะกอนและการดูดซับร่วมกัน โดยเฉพาะเมื่อ pH ในน้ำตัวอย่างอยู่ที่ 7 สัดส่วนการตกตะกอนด้วย pH จะมากกว่าการดูดซับของซีโอไลต์

## สรุปผลการทดลอง

สถานะที่เหมาะสมสำหรับการสังเคราะห์ซีโอไลต์จากเถ้าลอยถ่านหินโดยทำปฏิกิริยาด้วยสารละลายโซเดียมไฮดรอกไซด์ คือ อุณหภูมิในการทำปฏิกิริยา 100 องศาเซลเซียส ความเข้มข้นของสารละลายโซเดียมไฮดรอกไซด์ 2 โมลาร์ และระยะเวลาในการทำปฏิกิริยา 5 วัน ซึ่งจะให้ค่าความสามารถในการแลกเปลี่ยนแคลเซียมไอออนเท่ากับ 501.53 cmol/kg ส่วนสถานะที่เหมาะสมสำหรับการสังเคราะห์ซีโอไลต์จากเถ้าลอยถ่านหินโดยทำปฏิกิริยาด้วยสารละลาย Spent alkaline คือ อุณหภูมิในการทำปฏิกิริยา 90 องศาเซลเซียส ความเข้มข้นของสารละลายโซเดียมไฮดรอกไซด์ 2 โมลาร์ และระยะเวลาในการทำปฏิกิริยา 5 วัน ซึ่งจะให้ค่าความสามารถในการแลกเปลี่ยนแคลเซียมไอออนเท่ากับ 418.36 cmol/kg และสถานะที่เหมาะสมสำหรับการสังเคราะห์ซีโอไลต์จากเถ้าลอยขานอ้อยที่ทำปฏิกิริยาด้วยสารละลายโซเดียมไฮดรอกไซด์และที่ทำปฏิกิริยาด้วยสารละลาย Spent alkaline คือ อุณหภูมิในการทำปฏิกิริยา 90 องศาเซลเซียส ความเข้มข้นของสารละลายโซเดียมไฮดรอกไซด์ 2 โมลาร์ และระยะเวลาในการทำปฏิกิริยา 5 วัน ซึ่งจะให้ค่าความสามารถในการแลกเปลี่ยนแคลเซียมไอออนเท่ากับ 296.99 cmol/kg และ 285.63 cmol/kg ตามลำดับ

ซีโอไลต์ที่สังเคราะห์จากเถ้าลอยถ่านหินที่ทำปฏิกิริยาด้วยสารละลายโซเดียมไฮดรอกไซด์และที่ทำปฏิกิริยาด้วยสารละลาย Spent alkaline มีความสามารถในการกำจัดตะกั่วในน้ำเสียจากกระบวนการผลิตตะกั่วแห่งของโรงงานหลอมตะกั่ว

จากเบตเตอรีเก่าได้เท่ากับร้อยละ 93.69 และ 92.86 ตามลำดับ ส่วนซีโอไลต์ที่สังเคราะห์จากเถ้าลอยขานอ้อยที่ทำปฏิกิริยาด้วยสารละลายโซเดียมไฮดรอกไซด์ และที่ทำปฏิกิริยาด้วยสารละลาย Spent alkaline มีความสามารถในการกำจัดตะกั่วในน้ำเสียจากแหล่งเดียวกันได้เท่ากับร้อยละ 89.82 และ 89.56 ตามลำดับ ประสิทธิภาพในการดูดซับตะกั่วของซีโอไลต์สังเคราะห์ทั้งสองชนิดกับน้ำเสียจริงสามารถลดปริมาณโลหะตะกั่วลงได้มากใกล้เคียงกันทั้งนี้เป็นการกระบวนการแลกเปลี่ยนไอออนบวกประมาณ 71-74% และมีการตกตะกอนของตะกั่วประมาณ 18-19%

## กิตติกรรมประกาศ

ขอขอบคุณกองทุนวิจัยรัชดาภิเษกสมโภชที่สนับสนุนทุนในการวิจัยครั้งนี้ และขอขอบคุณโรงงานผลิตตะกั่วแห่งจากการหลอมเบตเตอรีเก่าที่ให้ความอนุเคราะห์น้ำเสีย โรงงานอุตสาหกรรมดำโลหะที่ให้ความอนุเคราะห์น้ำค้างที่ผ่านการใช้งานแล้ว (Spent alkaline) บริษัท ปัญจพลเปเปอร์อินดัสทรี และโรงงานน้ำตาลสระบุรี ที่ให้ความอนุเคราะห์ตัวอย่างเถ้าลอยถ่านหินและเถ้าลอยขานอ้อยในการวิจัยครั้งนี้

## เอกสารอ้างอิง

- [1] Curkovic, L., Cerjan-Stefanovic, S. and Filipan, T. 1996. Metal Ion Exchange and Modified Zeolites. *Wat. Res* 31 (6): 1379-1382.

- [2] Steenbruggen, G. and Hollman, G.G. 1998. The synthesis of zeolites from fly ash and the properties of the zeolite products. *J. Geochem. Explor.* 62: 305-309.
- [3] Hollman, G.G., Steenbruggen, G. and Janssen-Jurkovicova, M. 1999. A two-step process for the synthesis of zeolites from coal fly ash. *Fuel* 78: 1225-1230.
- [4] จุฑาทิพย์ เพชรอินทร์. 2547. การกำจัดตะกั่วในน้ำเสียสังเคราะห์โดยใช้ซีโอไลต์ที่สังเคราะห์จากถ่านลอยถ่านหินและจากถ่านลอยชานอ้อย. วิทยานิพนธ์ปริญญาวิทยาศาสตรมหาบัณฑิต ภาควิชาสหสาขาวิทยาศาสตร์สิ่งแวดล้อม คณะบัณฑิตวิทยาลัย จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย.
- [5] American Society for Testing and Materials (ASTM). 1996. Standard practice for : Determination of adsorptive capacity of activated carbon by aqueous phase isotherm technique, D 3860 – 89a. Annual book of ASTM standards Vol. 15.01. Philadelphia: ASTM.
- [6] พรรคพงษ์ ศรีประเสริฐ. 2547. การใช้น้ำค้างที่ใช้แล้วจากอุตสาหกรรมค้ำในกระบวนการตกตะกอนตะกั่วในน้ำเสียอุตสาหกรรม การหลอมแบตเตอรี่เก่า. วิทยานิพนธ์ปริญญาวิทยาศาสตรมหาบัณฑิต ภาควิชาวิศวกรรมศาสตร์ สิ่งแวดล้อม คณะบัณฑิตวิทยาลัย จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย.
- [7] Reed, B.E., Jamil, M. and Thomas, B. 1995. Effect of pH, empty bed contact time and hydraulic loading rate on leading rate on lead removal by granular activated carbon columns. *Water Environ. Res.* 68(5): 877-882.
- [8] Faust, S.D. and Aly, O.M. 1987. Adsorption processes for water treatment. Boston : Butterworths Publisher.