



(12) **BẢN MÔ TẢ GIẢI PHÁP HỮU ÍCH THUỘC BẰNG ĐỘC QUYỀN
GIẢI PHÁP HỮU ÍCH**

(19) **Cộng hòa xã hội chủ nghĩa Việt Nam (VN)**
CỤC SỞ HỮU TRÍ TUỆ

(11) 
2-0002020

(51)⁷ **B01J 29/06**

(13) **Y**

(21) 2-2018-00403

(22) 17.01.2017

(67) 1-2017-00144

(45) 27.05.2019 374

(43) 27.03.2017 348

(73) **TRƯỜNG ĐẠI HỌC BÁCH KHOA HÀ NỘI (VN)**

Số 1, Đại Cồ Việt, quận Hai Bà Trưng, thành phố Hà Nội

(72) Tạ Ngọc Đôn (VN), Lê Văn Dương (VN), Tạ Ngọc Hùng (VN), Nguyễn Khánh
Diệu Hồng (VN), Tạ Ngọc Thiện Huy (VN), Trịnh Xuân Bái (VN)

(54) **PHƯƠNG PHÁP TỔNG HỢP MESO-NANO-ZEOLIT Y TRỰC TIẾP TỪ TRO
TRẤU VÀ METAKAOLIN**

(57) Giải pháp hữu ích đề cập đến phương pháp tổng hợp vật liệu meso-nano-zeolit Y có tỷ số $\text{SiO}_2 : \text{Al}_2\text{O}_3 = 4,8$ trực tiếp từ nguồn cấp silic là tro trấu và nguồn cấp nhôm là metakaolin, cùng với sự có mặt của natri clorua và natri hydroxit nhằm xây dựng cấu trúc nano-zeolit Y ở giai đoạn một, sự có mặt của xetyl trimetylamoni bromua (CTAB) nhằm định hướng tạo ra mao quản trung bình ở giai đoạn hai. Công đoạn kết tinh thủy nhiệt giai đoạn một được tiến hành ở nhiệt độ 80°C , áp suất khí quyển, thời gian làm già là 72 giờ, thời gian kết tinh là 12 giờ. Giai đoạn hai có bổ sung xetyl trimetylamoni bromua (CTAB) và tiếp tục kết tinh trong 12 giờ trong cùng điều kiện kết tinh thủy nhiệt. Sản phẩm meso-nano-zeolit Y thu được có độ tinh thể đạt 88-92%, bề mặt riêng là $422\text{-}465\text{m}^2/\text{g}$, độ bền nhiệt là $620\text{-}650^\circ\text{C}$, kích thước tinh thể nằm trong khoảng từ 60-85nm và mao quản trung bình tập trung trong khoảng từ 3,1nm đến 3,6nm.

Lĩnh vực kỹ thuật được đề cập

Giải pháp hữu ích thuộc lĩnh vực tổng hợp vật liệu zeolit kích thước nano chứa mao quản trung bình (MQTB, được thể hiện bằng tiền tố “meso”) từ tro trấu và metakaolin. Cụ thể hơn, giải pháp hữu ích liên quan đến phương pháp tổng hợp vật liệu meso-nano-zeolit Y trực tiếp từ tro trấu và metakaolin bằng cách kết tinh thủy nhiệt có bổ sung natri clorua và xetyl trimetylamonium bromua (CTAB) trong môi trường kiềm.

Tình trạng kỹ thuật của giải pháp hữu ích

Nghiên cứu tìm ra phương pháp tổng hợp zeolit kích thước nano chứa mao quản trung bình trực tiếp từ tro trấu và metakaolin là vấn đề có ý nghĩa khoa học và thực tiễn to lớn, đặc biệt là ở các quốc gia có nhiều khoáng sét thiên nhiên và có sản lượng lúa lớn.

Liên quan đến việc tổng hợp vật liệu zeolit Y từ nguồn silic trong vỏ trấu, đã có các bài báo trình bày kết quả tổng hợp như “A.M. Yusof, N.A. Nizam, N.A.A. Rashid, J. Porous Mater. 17, 39-47, 2010”, “N.A.N. Nik Malek, A.M. Yusof, The Malaysian J. Analytical Science, 11(1), 76-83, 2007”, “M. Nsaif, A. Abdulhaq, A. Farhan, S. Neamat, Journal of Asian Scientific Research 2(12), 927-948, 2012”, “M. M.Rahman, N. Hasnida and W. B. Wan Nik. Journal of Scientific Research 1(2), 285-291, 2009” và “R.M. Mohamed, I.A. Mkhallid, M.A. Barakat, Arabian Journal of Chemistry, <http://dx.doi.org/10.1016/j.arabjc.2012.12.013>, 2013”. Đặc điểm chung của các ấn phẩm nêu trên là sử dụng nguồn silic trong vỏ trấu và nguồn nhôm tinh khiết ở dạng natri aluminat hoặc nhôm sulfat. Quá trình kết tinh thủy nhiệt thường được thực hiện ở 90-100°C hoặc ở 110-170°C trong dòng áp suất tự sinh, thời gian từ 2 đến 24 giờ. Trong số các ấn phẩm nêu trên, chỉ có ấn phẩm của A.M. Yusof, N.A. Nizam, N.A.A. Rashid bộc lộ phương pháp tổng hợp vật liệu zeolit Y có diện tích bề mặt riêng tính theo BET là 239m²/g và chưa có ấn phẩm nào bộc lộ phân bố lỗ xốp có chứa MQTB.

Cho đến nay, chưa có báo cáo nào trình bày kết quả tổng hợp zeolit từ tro trấu có sử dụng nguồn nhôm từ cao lanh.

Ngoài ra, như đã biết, cao lanh là loại khoáng sét tự nhiên rất phổ biến có chứa khoáng vật chính là kaolinit với hàm lượng Al_2O_3 từ 36,83 đến 40,22% trọng lượng. Ở Việt Nam, cao lanh vùng Yên Bái có hàm lượng $\text{Al}_2\text{O}_3 = 38,66\%$ trọng lượng và tỷ số $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3 = 1,99$; sau khi xử lý axit và nung thì tỷ số $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3 = 2,77$. Do đó, để tổng hợp các loại vật liệu mao quản và zeolit thì cao lanh có thể xem là một nguồn cung cấp nhôm tiềm năng đã được biết đến từ lâu. Tuy nhiên, vì trong cao lanh còn chứa cả silic nên việc tổng hợp vật liệu zeolit có tỷ số $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3 \geq 3$ thường cần bổ sung nguồn silic từ các muối nhôm và thủy tinh lỏng.

Như vậy, việc tổng hợp zeolit Y trực tiếp từ tro trấu và metakaolin chưa có công trình nào đề cập. Tương tự, chưa có sáng chế hay giải pháp hữu ích nào công bố tổng hợp thành công vật liệu meso-nano-zeolit Y đồng thời từ tro trấu và metakaolin.

Bản chất kỹ thuật của giải pháp hữu ích

Mục đích của giải pháp hữu ích là đề xuất phương pháp tổng hợp vật liệu meso-nano-zeolit Y trực tiếp từ tro trấu và metakaolin. Nguyên liệu thô ban đầu là vỏ trấu và cao lanh. Sau khi làm biến tính vỏ trấu và cao lanh để lần lượt thu được tro trấu và metakaolin, thành phần hoá học của tro trấu: SiO_2 : 90,0-91,2%; Al_2O_3 : 0,58-0,87%; CaO : 0,99-1,22%; K_2O : 0,72-0,88%; lượng mất khi nung: 5,90-6,76%, và thành phần hoá học của metakaolin: SiO_2 : 62,4-63,2%; Al_2O_3 : 35,2-37,1%; Fe_2O_3 : 0,22-0,40%; CaO : 0,23-0,45%; K_2O : 0,35-0,56%; lượng mất khi nung: 0,20-0,40%. Phương pháp tổng hợp vật liệu meso-nano-zeolit Y này bao gồm các bước:

a) rửa vỏ trấu thô nhiều lần bằng nước để lọc phần tạp chất không tan, sau đó sấy khô ở 80°C , xử lý vỏ trấu thu được sau khi sấy khô bằng dung dịch axit HCl 5% theo tỷ lệ trấu/axit = 1/5 (g/ml) tại nhiệt độ phòng trong 6 giờ, sau đó lọc rửa hết Cl^- , sấy khô ở 100°C và nung ở 700°C trong 4 giờ ở áp suất khí quyển để thu được tro có chứa thành phần chủ yếu là SiO_2 ở dạng vô định hình,

b) lọc rửa cao lanh được khai thác từ mỏ cho đến khi hết cát, sỏi và sấy khô, sau đó xử lý cao lanh đã sấy khô bằng dung dịch axit HCl 4N theo tỷ lệ rắn/lỏng =

2/3 (g/ml) trong 6 giờ ở nhiệt độ 90°C, tiếp theo lọc rửa đến hết ion Cl^- và sấy khô ở 100°C, nung trong 3 giờ ở 650°C, áp suất khí quyển để thu được metakaolin,

c) trộn sản phẩm thu được ở bước (a), (b) đồng thời với natri clorua, natri hydroxit và nước cất theo tỷ lệ mol $\text{Na}_2\text{O} : \text{Al}_2\text{O}_3 : \text{SiO}_2 : \text{NaCl} : \text{H}_2\text{O}$ là 6 : 1 : 5 : (1-3) : 160, sau đó làm già hỗn hợp này trong 72 giờ ở nhiệt độ phòng, có khuấy trộn,

d) kết tinh thủy nhiệt hỗn hợp thu được ở bước (c) ở nhiệt độ 80°C trong 12 giờ, không khuấy trộn, sau đó bổ sung xetyl trimetylamonium bromua (CTAB) vào hỗn hợp thu được sao cho tỷ lệ mol $\text{CTAB} : \text{SiO}_2 = 1 : 16$ và tiếp tục kết tinh trong 12 giờ trong cùng điều kiện kết tinh thủy nhiệt, và

e) rửa sạch sản phẩm thu được ở bước (d) bằng nước cất đến khi nước rửa có độ pH = 8, sấy khô ở nhiệt độ 100°C, nung ở nhiệt độ 500°C trong không khí, sau đó nghiền và tạo ra hạt có cỡ hạt nhỏ hơn 0,15mm, sản phẩm meso-nano-zeolit Y thu được có tỷ số $\text{SiO}_2 : \text{Al}_2\text{O}_3 = 4,8$, kích thước tinh thể là 60-65nm; độ tinh thể là 92%, bề mặt riêng là 465m²/g, diện tích bề mặt ngoài là 135m²/g, độ bền nhiệt lên đến 650°C và phân bố mao quản trung bình tập trung ở giá trị 3,6nm.

Mô tả chi tiết giải pháp hữu ích

Theo giải pháp hữu ích, nguồn nguyên liệu ban đầu được chọn là vỏ trấu và cao lanh. Sau khi làm biến tính các nguyên liệu này, thành phần hoá học của tro trấu: SiO_2 : 90,0-91,2%; Al_2O_3 : 0,58-0,87%; CaO : 0,99-1,22%; K_2O : 0,72-0,88%; lượng mất khi nung: 5,90-6,76%. Thành phần hoá học của metakaolin: SiO_2 : 62,4-63,2%; Al_2O_3 : 35,2-37,1%; Fe_2O_3 : 0,22-0,40%; CaO : 0,23-0,45%; K_2O : 0,35-0,56%; lượng mất khi nung: 0,20-0,40%.

Ưu điểm của giải pháp hữu ích chính là việc sử dụng tro trấu là nguồn cấp silic, còn metakaolin là nguồn cấp nhôm và tìm được điều kiện thích hợp để các hợp phần vô định hình kết tinh tạo ra cấu trúc zeolit Y kích thước nano. Việc bổ sung CTAB vào đúng thời điểm và với tỷ lệ thích hợp sẽ tạo ra cấu trúc MQTB cho vật liệu zeolit Y kích thước nano.

Đặc biệt, giải pháp hữu ích đã sử dụng nguyên liệu ban đầu là vỏ trấu là phụ phẩm nông nghiệp với trữ lượng trên 5 triệu tấn/năm chưa được sử dụng ở Việt Nam và cao lanh tự nhiên rất sẵn có nên có thể ứng dụng ở phạm vi lớn, giảm giá

thành sản phẩm, giảm ô nhiễm môi trường, không phải sử dụng các nguồn nhôm hoặc/và silic tinh khiết.

Phương pháp tổng hợp vật liệu meso-nano-zeolit Y có tỷ số $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3 = 4,8$, phương pháp này bao gồm các bước sau:

a) rửa vỏ trấu thô nhiều lần bằng nước để lọc phần tạp chất không tan, sau đó sấy khô ở 80°C , xử lý vỏ trấu thu được sau khi sấy khô bằng dung dịch axit HCl 5% theo tỷ lệ trấu/axit = 1/5 (g/ml) tại nhiệt độ phòng trong 6 giờ, sau đó lọc rửa hết Cl^- , sấy khô ở 100°C và nung ở 700°C trong 4 giờ ở áp suất khí quyển để thu được tro có chứa thành phần chủ yếu là SiO_2 ở dạng vô định hình,

b) lọc rửa cao lanh được khai thác từ mỏ cho đến khi hết cát, sỏi và sấy khô, sau đó xử lý cao lanh đã sấy khô bằng dung dịch axit HCl 4N theo tỷ lệ rắn/lỏng = 2/3 (g/ml) trong 6 giờ ở nhiệt độ 90°C , tiếp theo lọc rửa đến hết ion Cl^- và sấy khô ở 100°C , nung trong 3 giờ ở 650°C , áp suất khí quyển để thu được metakaolin,

c) trộn sản phẩm thu được ở bước (a), (b) đồng thời với natri clorua, natri hydroxit và nước cất theo tỷ lệ mol $\text{Na}_2\text{O} : \text{Al}_2\text{O}_3 : \text{SiO}_2 : \text{NaCl} : \text{H}_2\text{O}$ là 6 : 1 : 5 : (1-3) : 160, sau đó làm già hỗn hợp này trong 72 giờ ở nhiệt độ phòng có khuấy trộn,

d) kết tinh thủy nhiệt hỗn hợp thu được ở bước (c) ở nhiệt độ 80°C trong 12 giờ, không khuấy trộn, sau đó bổ sung xetyl trimetylamon bromua (CTAB) vào hỗn hợp thu được ở bước (c) sao cho tỷ lệ mol CTAB : $\text{SiO}_2 = 1 : 16$ và tiếp tục kết tinh trong 12 giờ trong cùng điều kiện kết tinh thủy nhiệt, và

e) rửa sạch sản phẩm thu được ở bước (d) bằng nước cất đến khi nước rửa có độ pH = 8, sấy khô ở nhiệt độ 100°C , nung ở nhiệt độ 500°C trong không khí, sau đó nghiền và tạo ra hạt có cỡ hạt nhỏ hơn 0,15mm, sản phẩm meso-nano-zeolit Y thu được có tỷ số $\text{SiO}_2 : \text{Al}_2\text{O}_3 = 4,8$, kích thước tinh thể là 60-65nm; độ tinh thể là 92%, bề mặt riêng là $465\text{m}^2/\text{g}$, diện tích bề mặt ngoài là $135\text{m}^2/\text{g}$, độ bền nhiệt lên đến 650°C và phân bố mao quản trung bình tập trung ở giá trị 3,6nm.

Sản phẩm thu được mịn và xốp, trong đó chỉ chứa vật liệu meso-nano-zeolit Y có tỷ số $\text{SiO}_2 : \text{Al}_2\text{O}_3 = 4,8$ (mã số tinh thể PDF 00-038-0239, công thức $0,94\text{Na}_2\text{O}.\text{Al}_2\text{O}_3.4,8\text{SiO}_2.9\text{H}_2\text{O}$) với hàm lượng lớn, tạp chất còn lại chiếm hàm lượng rất nhỏ là quartz.

Để đánh giá cấu trúc và các tính chất đặc trưng của sản phẩm thu được, các mẫu được phân tích trên máy phát nhiễu xạ BRUKER D8 ADVANCE (Đức). Chế độ ghi: ống phát tia Cu với bước sóng $K_{\alpha} = 1,54056\text{\AA}$, điện áp 40kV, cường độ ống phóng 30mA, nhiệt độ 25°C và góc quét $2\theta = 1-5^{\circ}$ và $2\theta = 5-45^{\circ}$. Phân tích phổ hấp thụ hồng ngoại (IR) theo phương pháp ép viên với KBr, tỷ lệ 1mg mẫu/200mg KBr, áp lực nén là 2000kg/cm² (200Mpa), trên máy SHIMADZU FTIR 8101M (Nhật) ở nhiệt độ 25°C, bước quét là 4cm⁻¹ trong vùng dao động tinh thể từ 400 đến 1300cm⁻¹. Chụp ảnh hiển vi điện tử quét (SEM) trên máy JSM 5410LV (Nhật); chụp ảnh hiển vi điện tử truyền qua trên máy JEM 1010 (Nhật); xác định bề mặt riêng (BET) trên hệ COULTER SA3100 (Mỹ); ghi giản đồ TG-DSC trên máy Netzsch STA 409 PC (Đức).

Ngoài ra, để đánh giá nhanh kích thước mao quản và độ xốp của sản phẩm, các mẫu còn được xác định dung lượng trao đổi ion, xác định độ hấp phụ nước và hấp phụ toluen trong 15 giờ ở trạng thái tĩnh, nhiệt độ và áp suất thường sau khi sấy mẫu trong 6 giờ ở áp suất 4mmHg (500Pa), nhiệt độ 180°C.

Phương pháp tổng hợp vật liệu meso-nano-zeolit Y có tỷ số $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3 = 4,8$ trực tiếp từ tro trấu và metakaolin theo giải pháp hữu ích khá đơn giản, dễ áp dụng, chi phí không cao, sản phẩm thu được có độ tinh thể tốt, cỡ hạt nhỏ, chứa MQTB, dung lượng trao đổi ion lớn, khả năng hấp phụ cũng như bề mặt riêng và độ bền nhiệt cao.

Ví dụ thực hiện giải pháp hữu ích

Dưới đây là các ví dụ ưu tiên về phương pháp tổng hợp vật liệu meso-nano-zeolit Y trực tiếp từ tro trấu và metakaolin có tỷ số $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3 = 4,8$ (công thức $0,94\text{Na}_2\text{O} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 4,8\text{SiO}_2 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$) theo giải pháp hữu ích.

Ví dụ 1

Xử lý một lượng vỏ trấu thô ban đầu có trọng lượng xác định được rửa nhiều lần bằng nước để lọc phần tạp chất không tan, sấy khô ở 80°C. Vỏ trấu sau khi rửa được xử lý bằng dung dịch axit HCl 5% theo tỷ lệ trấu/axit = 1/5 (g/ml) tại nhiệt độ phòng trong 6 giờ, sau đó lọc rửa hết Cl⁻ và sấy khô ở 100°C, nung ở 700°C trong 4 giờ, áp suất khí quyển thu được tro trấu.

Lọc rửa một lượng cao lanh thô ban đầu đã được lấy từ mỏ về cho đến khi hết cát, sỏi và sấy khô. Tiếp tục xử lý mẫu bằng dung dịch axit HCl 4N theo tỷ lệ rắn/lỏng = 2/3 (g/ml) trong 6 giờ tại nhiệt độ 90°C, sau đó lọc rửa đến hết ion Cl⁻ và sấy khô ở 100°C, nung trong 3 giờ ở 650°C, áp suất khí quyển để thu được metakaolin.

Phối trộn tro trấu, metakaolin đồng thời với natri clorua, natri hydroxit và nước cất theo tỷ lệ mol Na₂O : Al₂O₃ : SiO₂ : NaCl : H₂O là 6 : 1 : 5 : 1 : 160. Hỗn hợp thu được được làm già trong 72 giờ ở nhiệt độ phòng, có khuấy trộn. Kết tinh thủy nhiệt ở nhiệt độ 80°C trong 12 giờ, không khuấy trộn, tiếp tục bổ sung CTAB với tỷ lệ mol CTAB : SiO₂ = 1 : 16 và kết tinh tiếp trong 12 giờ trong cùng điều kiện kết tinh thủy nhiệt. Khi kết thúc phản ứng, mẫu được lọc rửa bằng nước cất đến khi nước rửa có độ pH = 8, sấy khô ở nhiệt độ 100°C, nung ở nhiệt độ 500°C trong không khí, sau đó nghiền và tạo ra hạt có cỡ hạt nhỏ hơn 0,15mm.

Các kết quả phân tích sản phẩm:

- Độ tinh thể meso-nano-zeolit Y	: Y = 88%
- Dung lượng trao đổi ion Ba ²⁺ ở pH = 7	: C = 220 mldl/100g
- Độ hấp phụ nước ở 25°C, 1 atm	: A _{H2O} = 22,6%
- Độ hấp phụ toluen ở 25°C, 1 atm	: A _{C7H8} = 24,5%
- Bề mặt riêng BET	: S _{BET} = 422m ² /g
- Bề mặt ngoài	: S _{ngoài} = 128m ² /g
- Phân bố MQTB tập trung	: Meso = 3,2nm
- Độ bền nhiệt	: B = 645°C
- Kích thước tinh thể	: S = 60-72nm.

Bằng phương pháp XRD xác nhận meso-nano-zeolit Y trong mẫu tổng hợp có cùng cấu trúc với mẫu zeolit Y chuẩn có mã số tinh thể PDF 00-038-0239. Bằng phương pháp IR xác nhận meso-nano-zeolit Y trong mẫu tổng hợp có các đỉnh hấp thụ cực đại tại các giá trị 1109, 1006, 778, 692, 569 và 456cm⁻¹. Bằng phương pháp SEM và TEM khẳng định tinh thể meso-nano-zeolit Y trong mẫu tổng hợp có dạng hình lập phương, kích thước hạt tinh thể đều nhau trong khoảng 60-72nm. Bằng phương pháp TG-DSC xác định được hai pic thu nhiệt tại 35°C (tương ứng với mất nước hấp phụ bề mặt) và 213°C (tương ứng với mất nước hấp phụ trong mao quản),

pic tỏa nhiệt tại 375°C (ứng với quá trình phân hủy chất hoạt động bề mặt CTAB), cấu trúc bắt đầu bị phá vỡ tại 675°C.

Sản phẩm meso-nano-zeolit Y thu được có tỷ số $\text{SiO}_2 : \text{Al}_2\text{O}_3 = 4,8$; kích thước tinh thể từ 60-65nm; độ tinh thể đạt 92%, bề mặt riêng 465m²/g (trong đó diện tích bề mặt ngoài 135m²/g), bền nhiệt đến 650°C, phân bố MQTB tập trung tại giá trị 3,6nm.

Ví dụ 2

Phương pháp tổng hợp được thực hiện tương tự như trong Ví dụ 1 nhưng thành phần mol trong hỗn hợp phản ứng $\text{NaCl}/\text{Al}_2\text{O}_3 = 2$. Sản phẩm thu được có các đặc điểm:

$$Y = 92,0\% ; C = 235 \text{ mldl}/100\text{g} ; A_{\text{H}_2\text{O}} = 25,5\%.$$

$$A_{\text{C}_{7\text{H}_8}} = 28,2\% ; S_{\text{BET}} = 465\text{m}^2/\text{g} ; S_{\text{ngoài}} = 135\text{m}^2/\text{g}.$$

$$\text{Meso} = 3,6\text{nm} ; B = 650^\circ\text{C} ; S = 60-65\text{nm}.$$

Ví dụ 3

Phương pháp tổng hợp được thực hiện tương tự như trong Ví dụ 1 nhưng thành phần mol trong hỗn hợp phản ứng $\text{NaCl}/\text{Al}_2\text{O}_3 = 3$. Sản phẩm thu được có các đặc điểm:

$$Y = 90,0\% ; C = 230 \text{ mldl}/100\text{g} ; A_{\text{H}_2\text{O}} = 23,7\%.$$

$$A_{\text{C}_{7\text{H}_8}} = 26,1\% ; S_{\text{BET}} = 425\text{m}^2/\text{g} ; S_{\text{ngoài}} = 115\text{m}^2/\text{g}.$$

$$\text{Meso} = 3,1\text{nm} ; B = 620^\circ\text{C} ; S = 72-85\text{nm}.$$

YÊU CẦU BẢO HỘ

1. Phương pháp tổng hợp vật liệu meso-nano-zeolit Y với tỷ số $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3 = 4,8$ trực tiếp từ tro trấu có thành phần hoá học: SiO_2 : 90,0-91,2%; Al_2O_3 : 0,58-0,87%; CaO : 0,99-1,22%; K_2O : 0,72-0,88%; lượng mất khi nung: 5,90-6,76%, và metakaolin có thành phần hoá học: SiO_2 : 62,4-63,2%; Al_2O_3 : 35,2-37,1%; Fe_2O_3 : 0,22-0,40%; CaO : 0,23-0,45%; K_2O : 0,35-0,56%; lượng mất khi nung: 0,20-0,40%, phương pháp này bao gồm các bước:

a) rửa vỏ trấu thô nhiều lần bằng nước để lọc phần tạp chất không tan, sau đó sấy khô ở 80°C , xử lý vỏ trấu thu được sau khi sấy khô bằng dung dịch axit HCl 5% theo tỷ lệ trấu/axit = 1/5 (g/ml) tại nhiệt độ phòng trong 6 giờ, sau đó lọc rửa hết Cl^- , sấy khô ở 100°C và nung ở 700°C trong 4 giờ ở áp suất khí quyển để thu được tro có chứa thành phần chủ yếu là SiO_2 ở dạng vô định hình,

b) lọc rửa cao lanh được khai thác từ mỏ cho đến khi hết cát, sỏi và sấy khô, sau đó xử lý cao lanh đã sấy khô bằng dung dịch axit HCl 4N theo tỷ lệ rắn/lỏng = 2/3 (g/ml) trong 6 giờ ở nhiệt độ 90°C , tiếp theo lọc rửa đến hết ion Cl^- và sấy khô ở 100°C , nung trong 3 giờ ở 650°C , áp suất khí quyển để thu được metakaolin,

c) trộn sản phẩm thu được ở các bước (a) và (b) đồng thời với natri clorua, natri hydroxit và nước cất theo tỷ lệ mol $\text{Na}_2\text{O} : \text{Al}_2\text{O}_3 : \text{SiO}_2 : \text{NaCl} : \text{H}_2\text{O}$ là 6 : 1 : 5 : (1-3) : 160, sau đó làm già hỗn hợp này trong 72 giờ ở nhiệt độ phòng có khuấy trộn,

d) kết tinh thủy nhiệt hỗn hợp thu được ở bước (c) ở nhiệt độ 80°C trong 12 giờ không khuấy trộn, sau đó bổ sung xetyl trimetylamonium bromua (CTAB) vào hỗn hợp thu được sao cho tỷ lệ mol $\text{CTAB} : \text{SiO}_2 = 1 : 16$ và tiếp tục kết tinh trong 12 giờ trong cùng điều kiện kết tinh thủy nhiệt, và

e) rửa sạch sản phẩm thu được ở bước (d) bằng nước cất đến khi nước rửa có độ pH = 8, sấy khô ở nhiệt độ 100°C , nung ở nhiệt độ 500°C trong không khí, sau đó nghiền và tạo ra hạt có cỡ hạt nhỏ hơn 0,15mm, sản phẩm meso-nano-zeolit Y thu được có tỷ số $\text{SiO}_2 : \text{Al}_2\text{O}_3 = 4,8$, kích thước tinh thể là 60-65nm; độ tinh thể là 92%, bề mặt riêng là $465\text{m}^2/\text{g}$, diện tích bề mặt ngoài là $135\text{m}^2/\text{g}$, độ bền nhiệt lên đến 650°C và phân bố mao quản trung bình tập trung ở giá trị 3,6nm.