



DOI:10.22144/ctujos.2026.082

THU HỒI AL(III), NI(II), VÀ MG(II) TỪ DUNG DỊCH GIẢ HÒA TÁCH HCl CỦA XÚC TÁC THẢI BẰNG PHƯƠNG PHÁP KẾT TỦA CHỌN LỌC

Nguyễn Việt Nhân Hòa^{1,*}, Trần Thanh Tuấn², Lê Ngọc Thạch¹, Lê Ngọc Hân¹,
Đoàn Văn Hồng Thiện¹, Hồ Quốc Phong¹, Nguyễn Thị Bích Thuyền¹ và Lương Huỳnh Vũ Thanh¹

¹Khoa Kỹ thuật Hoá học, Trường Bách Khoa, Đại học Cần Thơ, Việt Nam

²Khoa Khoa học và Kỹ thuật Vật liệu Tiên tiến, Viện Kim loại hiếm, Đại học Quốc gia Mokpo, Hàn Quốc

*Tác giả liên hệ (Corresponding author): nvnhoa@ctu.edu.vn

Thông tin chung (Article Information)

Nhận bài (Received): 27/01/2026

Sửa bài (Revised): 15/02/2026

Duyệt đăng (Accepted): 26/04/2026

Title: Recovery of Al(III), Ni(II), and Mg(II) from HCl synthetic leaching of spent steam reforming catalysts using selective precipitation

Author(s): Nguyen Viet Nhan Hoa^{1,*}, Tran Thanh Tuan¹, Le Ngoc Thach¹, Le Ngoc Han¹, Doan Van Hong Thien¹, Ho Quoc Phong¹, Nguyen Thi Bích Thuyen¹ and Luong Huynh Vu Thanh¹

Affiliation(s): ¹Faculty of Chemical Engineering, College of Engineering, Can Tho University, Viet Nam;

²Department of Advanced Materials Science & Engineering, Institute of Rare Metal, Mokpo National University, Korea

TÓM TẮT

Trong nghiên cứu này, Al(III), Ni(II) và Mg(II) từ dung dịch giả hòa tách HCl của xúc tác thải steam reforming được thu hồi lần lượt bằng phương pháp kết tủa chọn lọc. Ảnh hưởng của các yếu tố đến hiệu suất thu hồi kim loại cũng được khảo sát. Kết quả nghiên cứu cho thấy >99,0% Al(III) được thu hồi ở dạng γ -Al₂O₃ với độ tinh khiết 95,5% sau khi được kết tủa bởi Na₂CO₃, ở điều kiện pH 6,8, 80°C, 30 phút và nung ở 500°C trong 2 giờ. Tiếp theo, >99,9% Ni(II) từ dịch lọc chứa Mg(II) được kết tủa đến Ni(OH)₂·NiOOH bởi NaClO ở pH 8, tỷ lệ mol 1:2 của Ni(II):NaClO, 30 phút, 30°C và độ tinh khiết của kết tủa là 98,5%. Trong khi đó, hiệu quả kết tủa NiS là thấp, chỉ đạt <20% khi tỷ lệ mol Ni(II):Na₂S là 1:4. Cuối cùng, ~100% Mg(II) được kết tủa đến Mg₅(CO₃)₄(OH)₂(H₂O)₄ ở điều kiện tỷ lệ mol 1:1 của Mg(II):Na₂CO₃, pH 10, 30°C. Quy trình thu hồi các hợp chất Al, Ni và Mg từ xúc tác thải đã được đề xuất, tạo tiềm năng trong lĩnh vực phân kim và tái chế kim loại có giá trị từ các nguồn thải thứ cấp.

Từ khóa: HCl, kết tủa, nickel, xúc tác thải steam reforming

ABSTRACT

In this study, Al(III), Ni(II), and Mg(II) from the HCl synthetic solution of spent steam reforming catalysts were recovered by selective precipitation. The influence of factors on metal recovery efficiency was also investigated. The results showed that > 99.0% of Al(III) was precipitated as γ -Al₂O₃ with a purity of 95.5% using Na₂CO₃ under the following conditions: pH 6.8, 80 °C, 30 min, followed by calcination at 500 °C for 2 hour. Subsequently, >99.9% of Ni(II) from the filtrate containing Mg(II) was precipitated to Ni(OH)₂·NiOOH by NaClO at pH 8, a Ni(II):NaClO molar ratio of 1:2, 30 minutes, 30°C, and the purity of the precipitate was 98.5%. Meanwhile, the precipitation efficiency of NiS was low, reaching <20% at a Ni(II):Na₂S molar ratio of 1:4. Finally, ~100% of Mg(II) was precipitated to Mg₅(CO₃)₄(OH)₂(H₂O)₄ under conditions of a Mg(II):Na₂CO₃ molar ratio of unity, pH 10, 30°C. A process for recovering Al, Ni, and Mg compounds from spent catalysts has been proposed, creating potential in the field of metallurgy and recycling of valuable metals from secondary waste sources.

Keywords: HCl, precipitation, nickel, spent steam reforming catalyst

1. GIỚI THIỆU

Trong những năm gần đây, nhu cầu đối với kim loại ngày càng tăng, đặc biệt là các kim loại quý, chiến lược (như nickel (Ni), cobalt (Co), platinum (Pt), palladium (Pd)) trong các ngành công nghiệp như xúc tác, hóa chất, luyện kim, dầu mỏ,... Hơn nữa, sự cạn kiệt dần các nguồn khoáng sản dẫn đến nguy cơ gián đoạn nguồn cung ứng và tăng giá thành nguyên liệu trong tương lai (Gerst & Graedel, 2008; Watari et al., 2021). Do đó, việc thu hồi kim loại từ các nguồn thứ cấp như xúc tác thải, pin thải, chất thải điện tử,... được xem là một giải pháp sản xuất bền vững, giúp quản lý và sử dụng hiệu quả nguồn tài nguyên kim loại (Yang et al., 2011).

Xúc tác thải từ các nguồn công nghiệp được xem là một trong những nguồn kim loại thứ cấp quan trọng do chứa nhiều kim loại giá trị với hàm lượng cao (Wen et al., 2023; Deng et al., 2025). Mặt khác, xúc tác thải được phân loại là chất thải rắn nguy hại do chứa nhiều kim loại nặng, độc hại và có thể gây ô nhiễm nếu không được xử lý hay quản lý chặt chẽ (Wen et al., 2023). Ở Việt Nam, lượng lớn xúc tác thải từ các nhà máy như lọc dầu, sản xuất phân bón, hay hóa chất phát sinh hàng năm và được xử lý chủ yếu là chôn lấp (Xuân et al., 2016). Trong khi đó, các nghiên cứu về thu hồi kim loại từ xúc tác thải là còn rất hạn chế (Marafi & Stanislaus, 2008). Do đó, việc tái chế kim loại từ xúc tác thải là rất cần thiết, mang giá trị cao về kinh tế và môi trường.

Nhìn chung, để thu hồi kim loại từ xúc tác thải, nhiều phương pháp đã được áp dụng như thủy luyện, nhiệt luyện và sinh luyện. Trong đó, các quy trình dựa vào thủy luyện là được sử dụng phổ biến do có nhiều ưu điểm như ít tiêu tốn năng lượng, dễ vận hành, thu hồi hiệu quả kim loại với độ tinh khiết cao (Dzulkefly et al., 2002; Idris et al., 2010; Lee et al., 2010; Nguyen & Lee, 2021). Các quy trình thủy luyện gồm các bước như (1) hòa tách (leaching) bằng các dung dịch nước (thường là acid hoặc kiềm) nhằm chuyển các kim loại từ chất rắn sang dạng ion trong dung dịch; (2) phân tách, tinh chế và thu hồi kim loại bằng các phương pháp như chiết dung môi, kết tủa, trao đổi ion, lọc màng và điện phân (Hindawi et al., 2025; Liang et al., 2022; Padamata et al., 2020). Với ưu điểm là dễ vận hành, ít tốn chi phí, hiệu quả, hạn chế dung môi hữu cơ, phương pháp kết tủa vẫn là kỹ thuật ưu tiên trong tái chế kim loại so với các phương pháp khác. Tuy nhiên, do tính chất và thành phần phức tạp của xúc tác, hiệu quả của quá trình kết tủa chọn lọc phụ thuộc vào nhiều yếu tố như thành phần và nồng độ kim loại, loại tác nhân kết tủa, các điều kiện phản ứng như pH

dung dịch, nhiệt độ, thời gian, sự hiện diện của các ion cạnh tranh hoặc ức chế quá trình kết tủa. Mỗi kim loại có xu hướng kết tủa ở khoảng pH riêng, do đó việc xác định và duy trì pH tối ưu là một yêu cầu quan trọng trong thiết kế quy trình (Lee et al., 2010; Mbamba et al., 2015). Tính chọn lọc của phương pháp, tức khả năng nhận diện và phản ứng với một ion kim loại nhất định trong hỗn hợp mà không ảnh hưởng đến các thành phần khác, đóng vai trò thiết yếu trong tối ưu hóa hiệu suất và độ tinh khiết sản phẩm thu được. Ví dụ, dimethylglyoxime (DMG) có khả năng tách riêng Ni(II) ra khỏi dung dịch chứa Ni(II) và Zn(II) (Liao et al., 2012) hoặc sử dụng sodium phosphate tribasic (Na_3PO_4) để chọn lọc kết tủa Al(III) trong hỗn hợp các ion Li(I), Al(III), Co(II) và Ni(II) (Marcinow et al., 2024). Sodium sulfide (Na_2S) cũng là một tác nhân được sử dụng phổ biến, có thể chọn lọc kết tủa Co(II) từ dung dịch chứa Co, Al và Mo (Hamza et al., 2019) hoặc loại bỏ Ni(II) khỏi hỗn hợp gồm Ni(II), Fe(III), Al(III) và Si(IV) (Sahu et al., 2005). Sau khi tách kết tủa ra khỏi dung dịch bằng phương pháp lắng hoặc lọc, kết tủa sẽ được nung, rửa hoặc tinh chế để thu hồi kim loại mong muốn.

Trong nghiên cứu trước, nickel (Ni) từ xúc thải steam reforming chứa đồng thời nhôm (Al) và magie (Mg) đã được thu hồi hoàn toàn qua hai bước gồm hòa tách trong 3 M HCl ở 80°C trong 3 giờ; (2) kết tủa chọn lọc Ni(II) từ dung dịch hòa tách đến Ni(DMG)₂ bằng DMG tại pH 4 với lệ mol Ni(II):DMG là 1:2 ở nhiệt độ phòng trong 30 phút (Tran et al., 2025). Kết tủa, Ni(DMG)₂ thu được có độ tinh khiết >99,0%. Mặc dù, Ni(II) từ dung dịch hòa tách HCl đã được thu hồi hiệu quả nhưng việc sử dụng một tác nhân có giá thành cao như DMG có thể ảnh hưởng đến chi phí của quá trình vận hành. Ngoài ra, Al(III) và Mg(II) từ dịch lọc vẫn chưa được nghiên cứu thu hồi. Do đó, các nghiên cứu tiếp theo cho thấy thu hồi hiệu quả các ion kim loại này là cần thiết.

Trong nghiên cứu này, việc phân tách Ni(II), Al(III) và Mg(II) từ dung dịch giả hòa tách HCl đã được nghiên cứu bằng phương pháp kết tủa chọn lọc. Trước tiên, Al(III) được kết tủa đến Al(OH)₃ bằng tác nhân Na_2CO_3 . Sau đó, Ni(II) và Mg(II) từ dịch lọc sau khi kết tủa Al(III) được phân tách. Cả tác nhân kết tủa Na_2S và kết tủa oxy hóa NaClO sẽ được nghiên cứu để thu hồi chọn lọc Ni(II). Mg(II) còn lại trong dung dịch lọc cuối sẽ được kết tủa đến MgCO_3 . Để đạt điều kiện kết tủa tốt nhất, ảnh hưởng của các nhân tố như tỷ lệ tác nhân phản ứng, thời gian và nhiệt độ sẽ được khảo sát. Hình thái và cấu trúc của các sản phẩm kim loại thu được cũng sẽ

được phân tích. Kết quả nghiên cứu mở ra hướng tiếp cận đầy triển vọng cho việc phát triển quy trình thu hồi kim loại có giá trị từ xúc tác thải công nghiệp.

2. PHƯƠNG PHÁP NGHIÊN CỨU

2.1. Hóa chất và tác nhân

Dung dịch giả hòa tách HCl chứa các ion kim loại Al(III), Mg(II) và Ni(II) được điều chế bằng cách hòa tan các muối kim loại tương ứng của chúng như aluminum chloride hexahydrate ($\text{AlCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, 97%), magnesium chloride hexahydrate ($\text{MgCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, 98%) và nickel chloride hexahydrate ($\text{NiCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, 98%) trong nước cất và sau đó được điều chỉnh đến pH 2 bằng dung dịch hydrochloric acid (HCl, 37%) để tránh giảm nồng độ do phản ứng hydroxo hóa ion kim loại ($\text{M}(\text{OH})_x$). Nồng độ của các ion kim loại trong dung dịch giả hòa tách HCl được trình bày trong Bảng 1. Các tác nhân kết tủa và điều chỉnh pH như sodium carbonate (Na_2CO_3 , 99,7%), sodium sulfide nonahydrate ($\text{Na}_2\text{S} \cdot 9\text{H}_2\text{O}$, 98%) và sodium hypochlorite (NaClO, 8%) và sodium hydroxide (NaOH, >96%) được sử dụng để phân tách các ion kim loại. Tất cả các hóa chất được cung cấp từ Xilong Scientific Co., Ltd, Trung Quốc; ngoại trừ, $\text{NiCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ từ Shanghai Zhanyun Chemical Co., Ltd, Trung Quốc. Tất cả các hóa chất được sử dụng trực tiếp mà không cần tinh chế.

2.2. Quy trình thí nghiệm và phương pháp phân tích

Quy trình thí nghiệm chung: Các thí nghiệm kết tủa kim loại được thực hiện trong cốc thủy tinh trên máy khuấy từ kết hợp với gia nhiệt (ARE Velp, Ý). Dung dịch chứa tác nhân kết tủa ở nồng độ thích hợp vừa được thêm từ từ, chậm, vừa khuấy đều vào dung dịch giả hòa tách HCl hoặc dịch lọc chứa ion kim loại đến khi thêm hoàn toàn. Hỗn hợp phản ứng được thực hiện ở pH, nhiệt độ và thời gian thích hợp và khuấy đều. Sau thời gian phản ứng, kết tủa được lọc, rửa nhiều lần với nước cất để loại bỏ các tạp chất đến khi pH dịch lọc trung tính. Kết tủa sau khi rửa được sấy trong tủ sấy đến khi khối lượng không đổi để loại bỏ ẩm. pH dung dịch được theo dõi bằng máy đo pH (Thermo Scientific Orion Star A211, Mỹ). Nồng độ kim loại trong dung dịch nước được đo bằng phương pháp quang phổ phát xạ plasma cảm ứng (Inductively Coupled Plasma – Optical Emission Spectrometry - ICP-OES, iCAP™ PRO X ICP-OES, Thermo Fisher, Mỹ). Phần trăm kết tủa kim loại (%P, wt/wt) được tính theo công thức (1).

$$\%P = \frac{m_i - m}{m_i} \times 100\% \quad (1)$$

Trong đó, m_i và m lần lượt là khối lượng kim loại trong dung dịch trước và sau khi kết tủa.

Phân tích đặc tính của kết tủa: Đặc tính cấu trúc và hình thái của kết tủa được xác định bằng phương pháp nhiễu xạ tia X (X-ray Diffraction-XRD, D8-Advance, Bruker, Đức) và hiển vi điện tử quét (Scanning Electron Microscopy - SEM, JCM 7000, JOEL NeoScope, Nhật Bản).

Xác định độ tinh khiết của kết tủa: Một lượng kết tủa được hòa tan hoàn toàn trong dung dịch 5% (v/v) HNO_3 và định lượng bằng phương pháp ICP-OES.

Mỗi thí nghiệm được lặp lại ba lần với sai số dao động trong khoảng 5%.

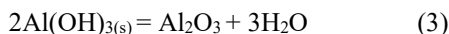
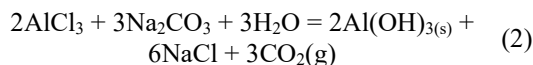
3. KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN

3.1. Kết tủa chọn lọc Al(III) từ dung dịch hòa tách chứa Ni(II) và Mg(II)

Như được trình bày ở Bảng 2, kết tủa hydroxide của Al(III), Ni(II) và Mg(II) có thể đạt được bởi điều chỉnh pH dung dịch. Theo các báo cáo trước đây, Al(III) có thể được kết tủa hoàn toàn đến $\text{Al}(\text{OH})_3$ tại pH ~7,0 và sau đó kết tủa tan dần khi pH tăng; trong khi đó, Ni(II) và Mg(II) bắt đầu kết tủa đến $\text{Ni}(\text{OH})_2$ và $\text{Mg}(\text{OH})_2$ lần lượt ở pH 8,15 và 9,80 (Baes & Mesmer, 1976; Dávila-Pulido et al., 2021; Lekhlif et al., 2014; Speight, 2005b). Điều này cho thấy rằng kết tủa chọn lọc Al(III) từ dung dịch hòa tách chứa Ni(II) và Mg(II) có thể đạt được bằng cách điều chỉnh pH dung dịch. Để hạn chế sự hoàn tan ngược của kết tủa $\text{Al}(\text{OH})_3$ và làm giảm hiệu suất thu hồi khi sử dụng base mạnh như NaOH, trong nghiên cứu này dung dịch Na_2CO_3 5%wt đã được nghiên cứu làm tác nhân kết tủa Al(III) từ dung dịch hòa tách HCl chứa Al(III), Ni(II) và Mg(II). Nhằm thúc đẩy quá trình chuyển hóa kết tủa keo $\text{Al}(\text{OH})_3$ thành tinh thể boehmite $\text{AlO}(\text{OH})$, tạo điều kiện thuận lợi cho việc thu hồi và hạn chế được sự hấp phụ của các ion phụ khác, phản ứng được thực hiện ở 80°C và khuấy đều ở tốc độ khuấy 500 rpm (Shoppert et al., 2023). Kết quả nghiên cứu cho thấy rằng, >99,6% Al(III) đã được kết tủa ở pH 6,8 trong 30 phút; trong khi Ni(II) và Mg(II) lần lượt là 1,8% và 12,2%. Kết quả được trình bày ở Bảng 1 cho thấy nồng độ của ion kim loại trước và sau khi kết tủa Al(III) bởi Na_2CO_3 .

Trong dung dịch nước các ion CO_3^{2-} bị thủy phân thành OH^- , H_2CO_3 và HCO_3^- tại pH <9.0 và không hình thành kết tủa carbonate với các kim loại như Ni(II) and Mg(II) (Zosel et al., 2011). Do đó, sự

giảm nồng độ của Ni(II) và Mg(II) sau phản ứng kết tủa có thể là do sự hấp phụ các ion kim loại vào kết tủa keo của Al(III). Ngoài ra, sự hình thành CO₂ cũng được quan sát trong quá trình phản ứng. Kết quả này hoàn toàn phù hợp với nghiên cứu trước đây khi tiến hành kết tủa Al(III) bằng Na₂CO₃ (Marinos et al., 2021). Do đó, phản ứng kết tủa Al(III) bởi dung dịch Na₂CO₃ được trình bày như sau:



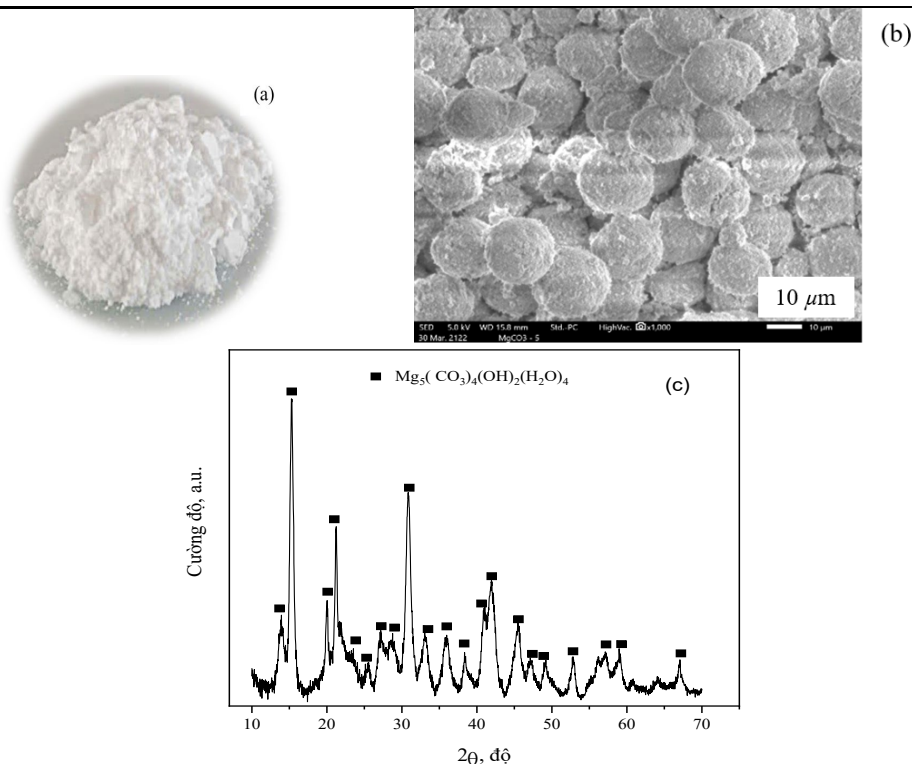
Để chuyển hóa kết tủa Al(III) thành γ -Al₂O₃, kết tủa Al(OH)₃ sau khi lọc đã được sấy và nung ở 500°C trong 2 giờ (Toledo-Chávez et al., 2016). Như được trình bày ở Hình 1, sản phẩm có màu trắng và hình thái dạng đa phiến. Cấu trúc lập phương (cubic) của tinh thể γ -Al₂O₃ cũng xác nhận bởi phân tích XRD với các peak đặc trưng phù hợp với dữ liệu đã được báo cáo của JCPDS 29-0063 (Joint Committee on Powder Diffraction Standards).

Bảng 1. Nồng độ các ion kim loại trong dung dịch giả hòa tách HCl và sau phản ứng với Na₂CO₃ 5%wt

Nồng độ kim loại (mg/L)	Al(III)	Mg(II)	Ni(II)	pH
Giả hòa tách	1086,2	360,3	286,9	2,0
Sau hòa tách	4,2	316,1	281,5	6,8

Bảng 2. Các phản ứng tạo phức hydroxo của Al(III), Ni(II), và Mg(II) và giá trị tích số tan K_{sp} của các kết tủa hydroxide kim loại ở 25°C

Các phản ứng	Tích số tan, K _{sp}	Các phản ứng	Tích số tan, K _{sp}
Al ³⁺ + OH ⁻ = AlOH ²⁺	-	NiOH ⁺ + OH ⁻ = Ni(OH) _{2(s)} ;	3,3×10 ⁻¹⁷
AlOH ²⁺ + OH ⁻ = Al(OH) ₂ ⁺	-	Ni(OH) _{2(s)} + OH ⁻ = Ni(OH) ₃ ⁺	-
Al(OH) ₂ ⁺ + OH ⁻ = Al(OH) _{3(s)}	4,6×10 ⁻³³	Ni(OH) ₃ ⁺ + OH ⁻ = Ni(OH) ₄ ²⁺	-
Al(OH) _{3(s)} + OH ⁻ = Al(OH) ₄ ⁻	-	Mg ²⁺ + OH ⁻ = MgOH ⁺	-
Al(OH) ₄ ⁻ + OH ⁻ = Al(OH) ₅ ²⁻	-	Mg(OH) ⁺ + OH ⁻ = Mg(OH) _{2(s)}	5,6×10 ⁻¹²
Ni ²⁺ + OH ⁻ = NiOH ⁺	-		



Hình 1. Kết tủa (a), ảnh SEM (b) và giản đồ XRD (c) của Mg₅(CO₃)₄(OH)₂(H₂O)₄

Như vậy, Al(III) từ dung dịch hòa tách HCl chứa đồng thời Ni(II) và Mg(II) đã được thu hồi ở dạng γ -Al₂O₃ bằng phương pháp kết tủa chọn lọc bởi Na₂CO₃ 5%wt ở điều kiện là pH 6,8, 80°C, 500 rpm, và 30 phút. Độ tinh khiết của hợp chất γ -Al₂O₃ thu được là 95,5%. Vì lượng Al(III) còn lại trong dịch lọc rất nhỏ (4,2 mg/L) nên trong các nghiên cứu về thu hồi Ni(II) và Mg(II) tiếp theo, Al(III) sẽ không được đề cập.

3.2. Kết tủa Ni(II) từ dung dịch chứa Mg(II) sau khi hòa tách Al(III)

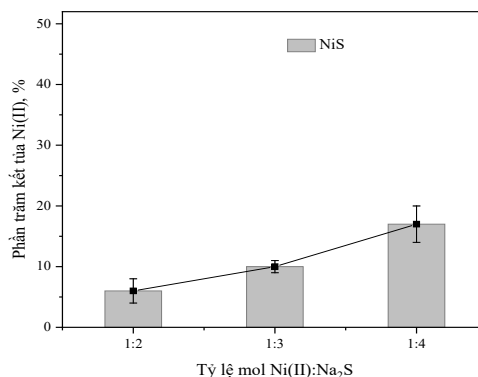
Nồng độ Ni(II) và Mg(II) trong dịch lọc sau kết tủa Al(III) lần lượt là 281,5 mg/L và 316,1 mg/L và giá trị pH là 6,8. Vì pH để kết tủa hydroxide của Ni(II) và Mg(II) khá gần nhau nên việc phân tách hai kim loại bởi điều chỉnh pH là khó đạt được. Các nghiên cứu đã chỉ ra rằng Ni(II) có thể kết tủa đến nickel(II) sulfide NiS (NiS, $K_{sp} = 3 \times 10^{-21}$ ở 25°C) hoặc bị kết tủa oxy hóa đến các nickel(III) oxide (Ni₂O₃ hoặc NiOOH), trong khi Mg(II) không có các đặc tính kết tủa này (Ho et al., 2025; Speight, 2005a). Do đó, các nghiên cứu kết tủa chọn lọc Ni(II) ở dạng sulfide và oxide từ dịch lọc chứa Mg(II) được thực hiện.

3.2.1. Kết tủa nickel sulfide

Để kết tủa Ni(II) đến NiS từ dịch lọc chứa Ni(II) và Mg(II), Na₂S đã được sử dụng như nguồn cung cấp sulfide. Ảnh hưởng của tỷ lệ mol của Ni(II) với Na₂S lên hiệu suất kết tủa được khảo sát từ 1:2 đến 1:4. Các phản ứng được tiến hành với sự cố định pH ban đầu 6,8, nhiệt độ phòng (30 ± 1 °C) và thời gian phản ứng 60 phút. Kết quả được thể hiện ở Hình 2 cho thấy rằng phần trăm kết tủa Ni(II) tăng từ 6% đến 17% và pH dung dịch cũng tăng nhẹ từ 6,8 đến 7,8 khi tăng tỷ lệ mol của Ni(II):Na₂S từ 1:2 đến 1:4. Trong khi đó, Mg(II) hầu như không bị kết tủa ở các điều kiện thí nghiệm. Mặc dù, Ni(II) có thể thu hồi chọn lọc thông qua kết tủa đến NiS nhưng hiệu suất kết tủa thấp. Kết quả này được cho là các ion S²⁻ ở pH thí nghiệm do bị thủy phân nên tồn tại chủ yếu ở dạng HS⁻ và làm giảm sự hình thành kết tủa NiS (Hille et al., 2005; Jerroumi et al., 2020). Việc tăng lượng Na₂S hoặc pH dung dịch có thể làm tăng ion S²⁻ làm tăng hiệu quả kết tủa Ni(II) nhưng đồng thời cũng tăng chi phí cho quá trình thu hồi và có thể làm giảm độ tinh khiết của sản phẩm NiS do sự đồng kết tủa Mg(OH)₂.



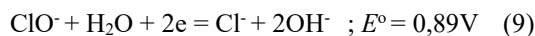
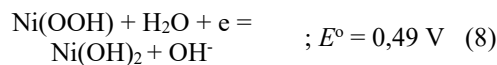
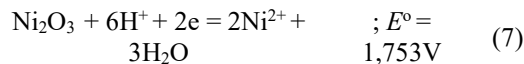
Như vậy, phương pháp phân tách Ni(II) và Mg(II) thông qua kết tủa chọn lọc Ni(II) dưới dạng NiS bằng Na₂S không đạt hiệu quả cao. Vì vậy, việc sử dụng các tác nhân kết tủa khác để thu kết tủa Ni(II) sẽ được tiếp tục nghiên cứu trong giai đoạn tiếp theo.



Hình 2. Ảnh hưởng tỷ lệ mol Ni(II):Na₂S đến hiệu suất kết tủa NiS (pH = 6,8, 60 phút, 30°C, 500 rpm)

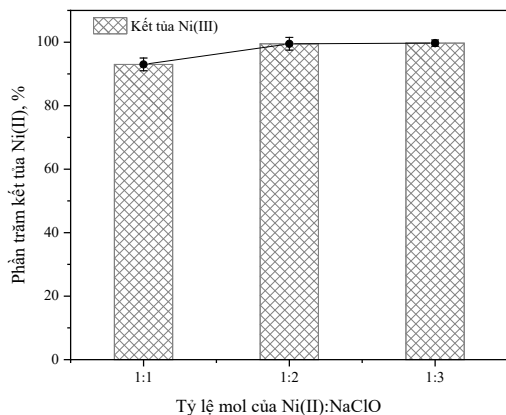
3.2.2. Kết tủa oxy hóa nickel(III) oxide

Các tác nhân oxy hóa phổ biến bao gồm hydro peroxide (H₂O₂), potassium permanganate (KMnO₄), sodium hypochlorite (NaClO) và ozone (O₃), có thể được sử dụng để oxy hóa Ni(II) đến kết tủa Ni(III) như nickel(III) oxide (Ni₂O₃) và nickel(III) oxyhydroxide (NiOOH) (Wen et al., 2024). Xét về chi phí, điều kiện phản ứng thích hợp và khả năng khử của các tác nhân oxy hóa, NaClO là lựa chọn cho nghiên cứu này. Thế khử và bán phản ứng oxy khử của các ion tại 25°C được trình bày ở phương trình (7)-(9) (Shih et al., 2018; Speight, 2005b) cho thấy hiệu suất kết tủa phụ thuộc vào các yếu tố như pH, tỷ lệ mol Ni(II):NaClO, thời gian và nhiệt độ đã được nghiên cứu.



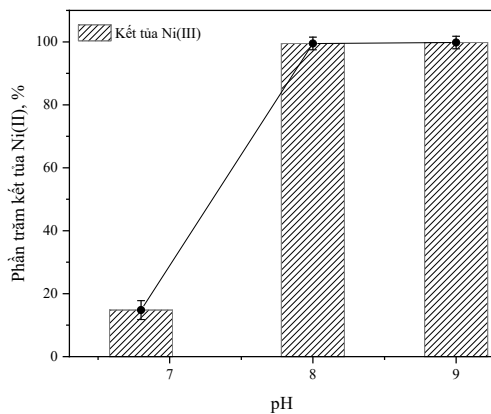
Để xem xét ảnh hưởng của tác nhân oxy hóa đến hiệu quả kết tủa Ni(III) từ dịch lọc chứa Mg(II), tỷ lệ mol của Ni(II):NaClO được thay đổi từ 1:1 đến 1:3. Các phản ứng sẽ được thực hiện tại pH 8,0 ở nhiệt độ phòng (30±1°C) trong 30 phút với tốc độ khuấy 500 rpm. Như được trình bày ở Hình 3, phần trăm kết tủa Ni(III) tăng khi tăng lượng tác nhân

NaClO, trong đó, Ni(II) kết tủa gần như hoàn toàn (99,7%) ở tỷ lệ mol Ni(II): NaClO là 1:2. Ngoài ra, sự tăng nhẹ pH của dung dịch sau phản ứng từ 8,2 đến 8,9 cũng được quan sát. Sự thủy phân ClO⁻ tạo ra OH⁻ có thể phản ứng trung hòa H⁺ và làm tăng pH, thúc đẩy phản ứng oxy hóa Ni(II) thành Ni(III) theo nguyên lý chuyển dịch cân bằng Le Chatelier và giúp ổn định sản phẩm kết tủa. Mặt khác, sự đồng kết tủa của Mg(II) cũng không được quan sát ở điều kiện thí nghiệm, cái được cho là pH dung dịch chưa đủ để hình thành kết tủa Mg(OH)₂ (pH>9,5) (Dávila-Pulido et al., 2021; Salleh et al., 2015). Từ kết quả đạt được, tỷ lệ mol Ni(II):NaClO tốt nhất cho kết tủa Ni(III) là 1:2.



Hình 3. Ảnh hưởng của tỷ lệ mol Ni(II):NaClO đến phần trăm kết tủa Ni(III) (pH = 8,0, 30 phút, 30°C, 500 rpm)

Để khảo sát ảnh hưởng của pH đến hiệu suất kết tủa Ni(III) và ngăn cản đồng kết tủa Mg(OH)₂ (pH~ 9,5), các thí nghiệm kết tủa được thực hiện ở giá trị pH từ khoảng 6,8 đến 9,0 với sự cố định tỷ lệ mol Ni(II):NaClO ở 1:2, thời gian phản ứng 30 phút ở nhiệt độ phòng (30±1°C) với tốc độ khuấy 500 rpm. Kết quả ở Hình 4 cho thấy phần trăm kết tủa Ni(II) tăng đáng kể từ 14,8% đến 99,7% khi pH dung dịch tăng từ 6,8 lên 8,0 và hầu như không đổi khi tiếp tục tăng pH. Sự thay đổi pH trước và sau phản ứng là không đáng kể trong khoảng 7,1 đến 9,1 (xem Bảng 3). Kết quả này hoàn toàn phù hợp với các nghiên cứu trước đây về sự ổn định của kết tủa NiOOH trong môi trường kiềm (Fu et al., 2007; Gallenberger et al., 2023). Từ kết quả đạt được, pH 8,0 được chọn là điều kiện tốt nhất cho kết tủa nickel.

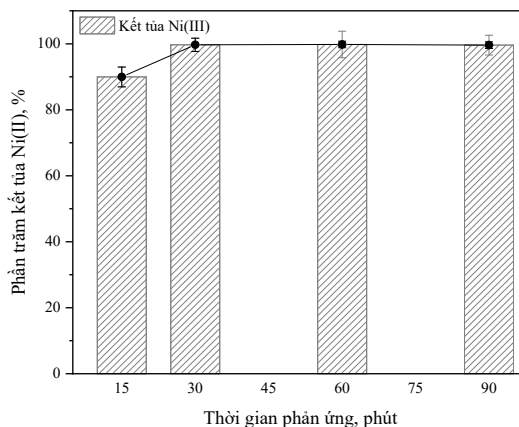


Hình 4. Ảnh hưởng của pH đến phần trăm kết tủa Ni(III) (n_{Ni(II)}:n_{NaClO} = 1:2, 30 phút, 30°C, 500 rpm).

Bảng 3. Sự thay đổi pH dung dịch trước và sau phản ứng kết tủa Ni(III)

pH _i	6,8	8,0	9,0
pH _{eq}	7,1	8,5	9,1

*Ghi chú: pH_i và pH_{eq} là pH dung dịch ban đầu và sau phản ứng.

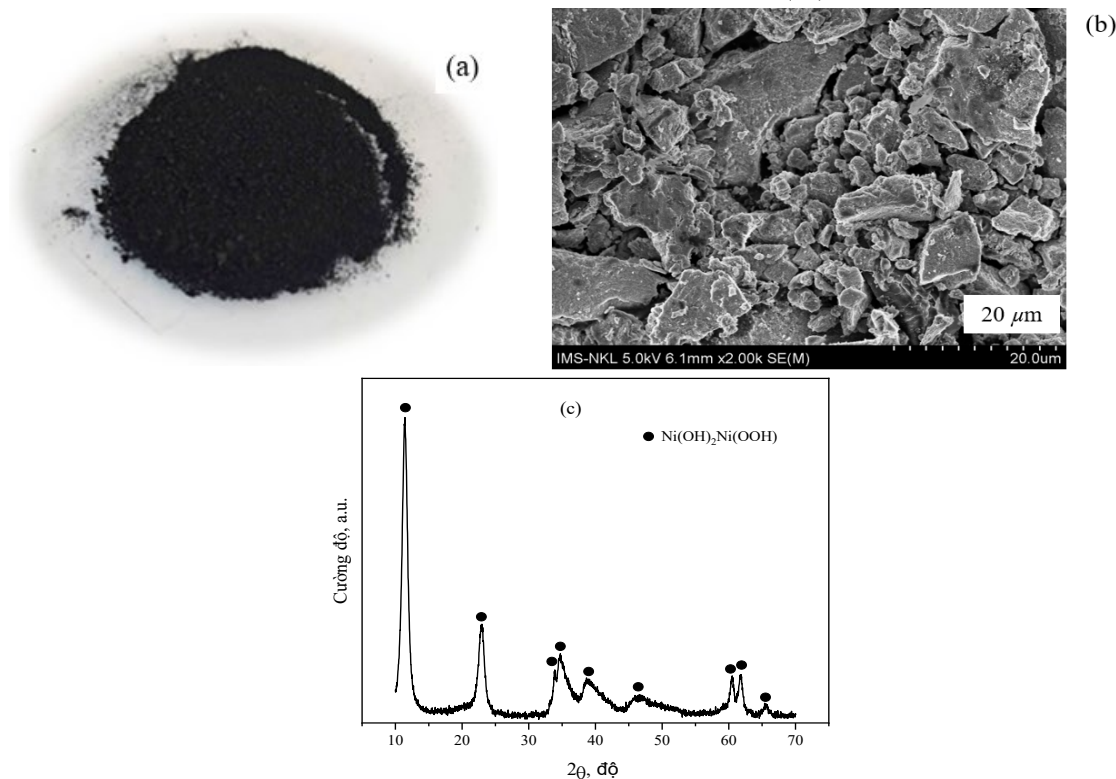


Hình 5. Ảnh hưởng của thời gian đến phần trăm kết tủa Ni(III) (n_{Ni(II)}:n_{NaClO} = 1:2, pH = 8, 30°C, 500 rpm)

Ảnh hưởng của thời gian đến hiệu suất và sự ổn định của kết tủa Ni(III), các thí nghiệm được thực hiện trong khoảng thời gian từ 15 phút đến 90 phút. Các điều kiện khác của phản ứng được cố định như tỷ lệ mol Ni(II):NaClO là 1:2, pH 8,0, tốc độ khuấy 500 rpm và ở nhiệt độ phòng. Ở Hình 5, phần trăm kết tủa Ni(II) tăng từ 90 đến 99,7% khi tăng thời gian phản ứng đến 30 phút. Việc kéo dài thời gian phản ứng đến 90 phút, phần trăm kết tủa Ni(II) hầu như tăng không đáng kể. Theo các nghiên cứu trước đây, quá trình kết tủa thường tuân theo quy tắc

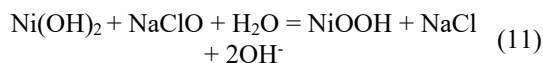
Ostwald qua từng giai đoạn (Calmanovici et al., 1997). Ở giai đoạn đầu, các pha kết tủa dễ tan được hình thành do tốc độ tạo hạt chậm hơn độ hòa tan của chúng. Tiếp theo là giai đoạn xuất hiện các hạt có độ tan giảm dần và độ ổn định tăng lên, tương ứng với khoảng thời gian 30 - 90 phút trong nghiên cứu này (Giulietti et al., 2001). Tóm lại, thời điểm 30 phút được xác định là trạng thái siêu bão hòa của hệ, vừa đảm bảo hiệu suất tối ưu, vừa kiểm soát tốt quá trình hình thành pha kết tủa ổn định.

Các phản ứng kết tủa Ni(III) được thực hiện ở nhiệt độ từ 30°C đến 70°C với sự cố định tỷ lệ mol 1:2 của Ni(II):NaClO, pH 8,0, tốc độ khuấy 500 rpm, thời gian 30 phút. Kết quả được thể hiện tại Hình 6 cho thấy hiệu suất kết tủa Ni(III) giảm từ 99,7% xuống còn 90,7% khi tăng nhiệt độ phản ứng. Kết quả này là phù hợp với các nghiên cứu trước đây về sự phân hủy của NaClO trong dung dịch với sự hiện diện của kim loại ở nhiệt độ cao (Lister, 1956). Do đó, 30°C được xem là khoảng nhiệt độ tốt nhất cho sự kết tủa Ni(III).

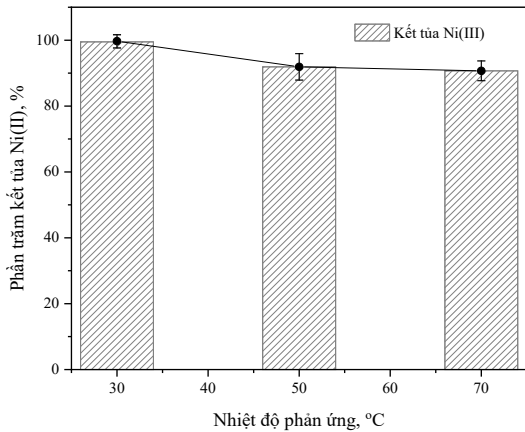


Hình 6. Kết tủa (a), ảnh SEM (b) và giản đồ XRD của kết tủa Ni(OH)₂.NiOOH

Từ các kết quả đạt được, điều kiện tốt nhất để kết tủa chọn lọc Ni(III) từ dịch lọc chứa Ni(II) và Mg(II) sử dụng NaClO là 1:2 tỷ lệ mol của Ni(II):NaClO, pH 8,0, 30 phút, ở nhiệt độ phòng với tốc độ khuấy 500 rpm. Ở điều kiện tốt nhất, hơn 99,0% Ni(II) được kết tủa đến Ni(III) với 98,5% độ tinh khiết. Kết tủa nickel thu được dạng bột, màu đen, và có cấu trúc dạng phiến (Hình 7a & 7b). Giản đồ nhiễu xạ tia X (XRD) (Hình 7c) xác nhận rằng kết tủa thu được có cấu trúc là hỗn hợp của Ni(OH)₂Ni(OOH) và có mức độ kết tinh cao, phù hợp với báo cáo của (Qin et al., 2014). Như vậy, Ni(II) đã không được oxy hóa hoàn toàn đến Ni(III) mà tạo thành hỗn hợp composite của Ni(OH)₂ và NiOOH. Phản ứng kết tủa Ni(II) bởi NaClO có thể được viết như sau:



Như vậy, việc thu hồi chọn lọc Ni(II) từ dung dịch chứa Mg(II) thông qua kết tủa với sulfide và oxy hóa với NaClO đạt được. Tuy nhiên, kết tủa sulfide (NiS) là kém hiệu quả hơn so với kết tủa oxy hóa Ni(II) đến Ni(III); trong đó, Ni(II) đã được kết tủa hoàn toàn đến Ni(OH)₂Ni(OOH) bằng NaClO với độ tinh khiết cao.



Hình 7. Ảnh hưởng của nhiệt độ đến phần trăm kết tủa Ni(II) ($n_{Ni(II)}:n_{NaClO} = 1:2$, pH = 8, 30 phút, 500 rpm)

3.3. Kết tủa Mg(II) từ dung dịch lọc sau khi tách Al(III) và Ni(II)

Sau khi phân tách Al(III) và Ni(II), dịch lọc còn lại chứa 316,1 mg/L Mg(II) và pH dung dịch là 8,5. Theo các nghiên cứu trước đây, Mg(II) có thể được

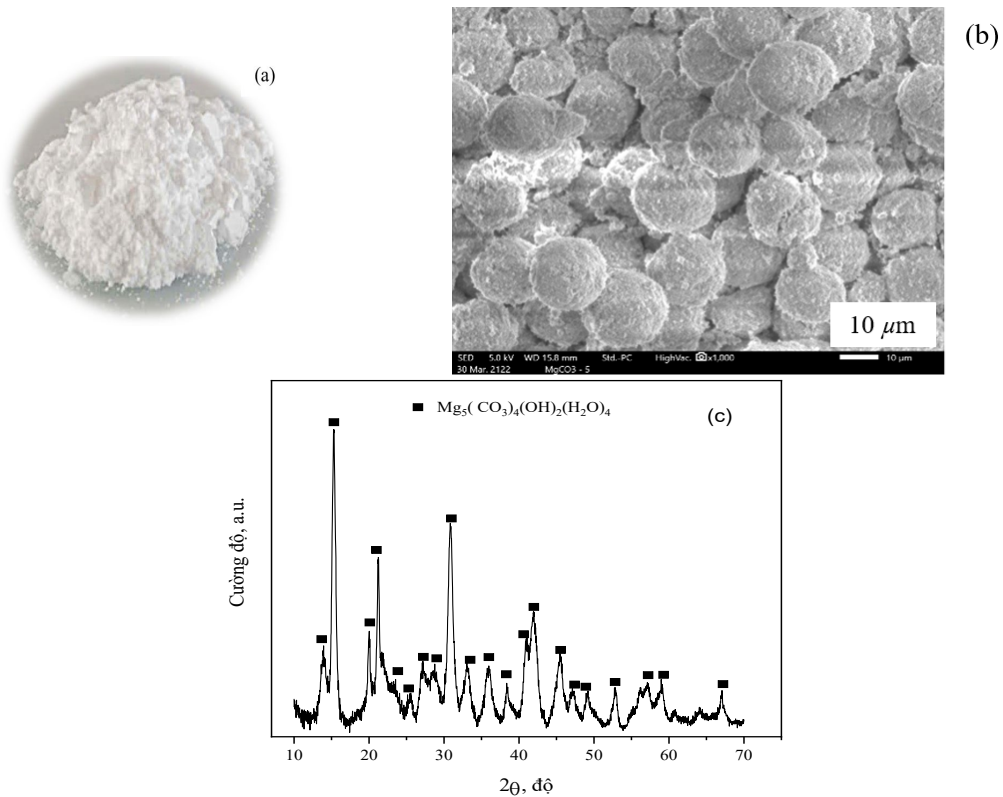
kết tủa đến magnesium carbonate hydrate ($MgCO_3 \cdot xH_2O$) bởi Na_2CO_3 tại pH 10; đây là loại muối magnesium carbonate đã và đang được ứng dụng rộng rãi trong chế tạo giấy, cao su, gốm sứ, mỹ phẩm, sơn, bột màu, mực in, chất đánh bóng, dược phẩm và làm tiền chất để điều chế các hóa chất gốc magnesium khác (Apriani et al., 2019; Guo et al., 2010). Kết quả nghiên cứu cho thấy rằng Mg(II) từ dịch lọc đã được kết tủa hoàn toàn ở tỷ lệ mol 1:1 của Mg(II): Na_2CO_3 , pH 10, nhiệt độ phòng trong 30 phút. Phản ứng kết tủa cũng được trình bày ở phương trình sau:



Kết tủa $MgCO_3$ thu được có màu trắng, có dạng hình cầu, đồng đều, đường kính trong khoảng 15-17 μm (Hình 8). Giảm độ XRD trong Hình 8c cho thấy kết tủa thu được là $Mg_5(CO_3)_4(OH)_2(H_2O)_4$ với cấu trúc tinh thể nghiêng, phù hợp với các dữ liệu đã báo cáo (JCPDS Card 25-513). Hình dạng các đỉnh nhiễu xạ cho thấy sản phẩm được kết tinh tốt. Kết quả này hoàn toàn phù hợp với báo cáo trước đây (Zhang et al., 2007).

Bảng 4. Các tính toán cân bằng khối lượng đối với các kim loại ở mỗi bước kết tủa từ dung dịch giả hòa tách HCl của xúc tác thải steam reforming

Quá trình phân tách	Điều kiện thí nghiệm	Al(III)	Ni(II)	Mg(II)
Dung dịch giả hòa tách HCl ban đầu	<ul style="list-style-type: none"> pH 2, mg/L 	1086,2	286,9	360,3
Phân tách Al(III)	<ul style="list-style-type: none"> Kết tủa $Al(OH)_3$: Na_2CO_3 5% wt, pH 6,8, 80°C, 30 phút. Sau đó, kết tủa được nung đến dạng $\gamma-Al_2O_3$ ở 500 °C trong 2 giờ. Phần trăm kết tủa, % 	99,6	1,8	12,2
Phân tách Ni(II)	<ul style="list-style-type: none"> Dịch lọc sau tách Al(III), mg/L Kết tủa $Ni(OH)_2 \cdot NOOH$: 1:2 tỷ lệ mol của Ni(II):NaClO, pH 8,0, 30°C, 30 phút. Phần trăm kết tủa, % 	4,2	281,5	316,1
Phân tách Mg(II)	<ul style="list-style-type: none"> Dịch lọc sau cùng, mg/L Kết tủa $Mg_5(CO_3)_4(OH)_2(H_2O)_4$: 1:1 tỷ lệ mol của Mg(II):Na_2CO_3, pH 10, 30°C, 30 phút. Phần trăm kết tủa, % 	~100	~100	-
Kết quả	<ul style="list-style-type: none"> Dịch lọc sau cùng, mg/L Kết tủa $Mg_5(CO_3)_4(OH)_2(H_2O)_4$: 1:1 tỷ lệ mol của Mg(II):Na_2CO_3, pH 10, 30°C, 30 phút. Phần trăm kết tủa, % 	0	0	316,1
	<ul style="list-style-type: none"> Phần trăm thu hồi, % Độ tinh khiết, % 	-	-	~100
		99,6	98,2	~100
		95,5	98,5	>99,9



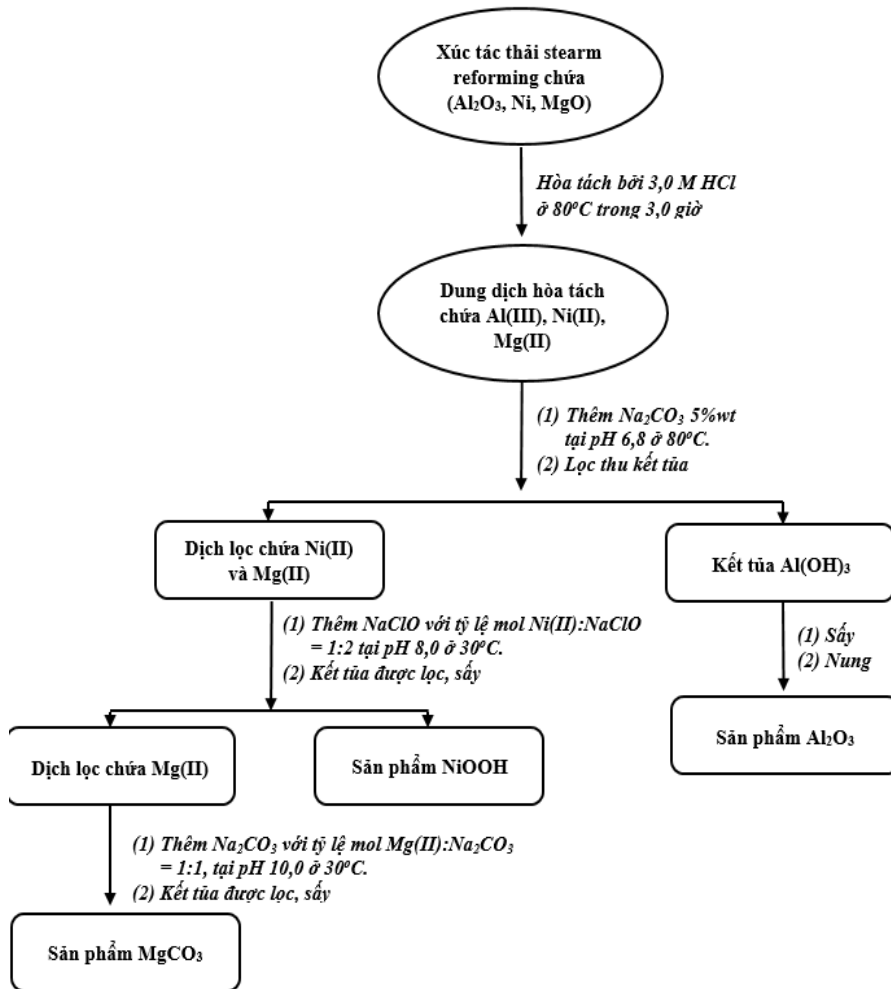
Hình 8. Kết tủa (a), ảnh SEM (b) và giản đồ XRD (c) của Mg₅(CO₃)₄(OH)₂(H₂O)₄

Tóm lại, Al(III), Ni(II), và Mg(II) từ dung dịch giả hòa tách HCl đã được phân tách thành công bằng phương pháp kết tủa chọn lọc. Hình thái và cấu trúc của các kết tủa thu được cũng được xác định bằng SEM và XRD. Như trình bày trong Bảng 4, hiệu suất thu hồi và độ tinh khiết của các hợp chất kim loại từ dung dịch giả hòa tách HCl, theo quy trình phân tách bằng phương pháp kết tủa, được xác định dựa trên cân bằng khối lượng. Từ các kết quả đạt được, một quy trình thu hồi Al, Ni, và Mg từ xúc tác steam reforming đã được đề nghị.

3.4. Quy trình thu hồi Al, Ni, và Mg từ xúc tác thải steam reforming

Kết quả được trình bày ở Hình 9 cho thấy quy trình thu hồi các hợp chất Al, Ni và Mg từ xúc tác thải steam reforming. Trước tiên, các kim loại từ xúc tác thải được hòa tách hoàn toàn bằng dung dịch 3,0 M HCl ở 80°C trong 3,0 giờ để chuyển hóa hoàn toàn kim loại thành các ion Al(III), Ni(II), và Mg(II). Tiếp theo, Al(III) từ dung dịch hòa tách HCl chứa Ni(II) và Mg(II) được kết tủa chọn lọc bằng

dung dịch Na₂CO₃ 5%wt tại pH 6,8 ở 80°C và sau đó kết tủa Al(OH)₃ được lọc, sấy và nung thu được sản phẩm Al₂O₃. Dịch lọc sau khi tách Al(III) chứa Ni(II) và Mg(II) được phân tách bởi kết tủa oxy hóa Ni(II) đến Ni(III) ở điều kiện 1:2 tỷ lệ mol Ni(II):NaClO tại pH 8,0 ở 30°C. Cuối cùng, Mg(II) được kết tủa đến MgCO₃ bằng Na₂CO₃ với tỷ lệ mol 1:1 của Mg(II):Na₂CO₃ ở pH 10 tại nhiệt độ phòng. Quy trình cho thấy nhiều thuận lợi trong việc thu hồi kim loại từ xúc tác thải công nghiệp như hiệu quả phân tách và thu hồi cao; quy trình đơn giản, dễ thực hiện, tiết kiệm năng lượng do các phản ứng đều thực hiện ở nhiệt độ phòng và thời gian phản ứng ngắn; các tác nhân kết tủa có sẵn, chi phí thấp; thân thiện môi trường do không sử dụng dung môi hữu cơ. Ngoài ra, quy trình cũng cho thấy sự linh hoạt với các điều kiện thực nghiệm như pH, lượng tác nhân để thay đổi và có thể tích hợp với các quy trình khác (ví dụ như chiết dung môi, điện phân, trao đổi ion,...); nâng cao hiệu quả tái chế kim loại. Với những ưu điểm của mình, quy trình có thể xem xét ứng dụng trong thực tế trong tái chế các kim loại từ xúc tác thải hoặc các nguồn bạc hai khác.



Hình 9. Quy trình thu hồi Al, Ni, và Mg từ xúc tác thải steam reforming

4. KẾT LUẬN

Nghiên cứu phân tách chọn lọc Al(III), Ni(II) và Mg(II) từ dung dịch hòa tách HCl của xúc tác thải steam reforming bằng phương pháp kết tủa đã được khám phá. Hơn 99,6% Al(III) từ dung dịch hòa tách được kết chọn lọc đến Al(OH)₃ bởi Na₂CO₃ 5%wt tại pH 6,8 ở 80°C và được thu hồi đến γ -Al₂O₃ sau khi nung ở 500°C trong 2 giờ. Sau đó, Ni(II) từ dịch lọc sau khi tách Al(III) chứa Mg(II) được kết tủa đến NiS bởi Na₂S và oxy hóa đến Ni(III) bởi NaClO. Cả hai tác nhân đều cho thấy khả năng kết tủa chọn lọc

Ni(II) nhưng hiệu suất kết tủa NiS thấp. Trong khi đó, Ni(II) được kết tủa hoàn toàn đến với độ tinh khiết trên 99,7% ở điều kiện tốt nhất gồm tỷ lệ mol 1:2 của Ni(II):NaClO, pH 8,0 ở 30°C trong 30 phút. Sau cùng, Mg(II) dịch lọc được kết tủa bởi Na₂CO₃ với tỷ lệ mol của Mg(II):Na₂CO₃ 1:1 ở pH 10 tại nhiệt độ phòng. Các sản phẩm thu được đều có cấu trúc tinh thể của γ -Al₂O₃, Ni(OH)₂NiOOH, và Mg₅(CO₃)₄(OH)₂(H₂O)₄. Từ các kết quả đạt được, một quy trình thu hồi Al, Ni và Mg từ xúc tác thải đến các sản phẩm có tính khả dụng cao đã được đề xuất.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

- Apriani, M., Hadi, W., & Masduqi, A. (2019). The kinetics of magnesium carbonate crystallization for traditional salt production wastewater recovery. *Materials Science Forum*, 964, 136 - 144. <https://doi.org/10.4028/www.scientific.net/MSF.964.136>.
- Baes, C. F., & Mesmer, R. E. (1976). *The hydrolysis of cations*. John Wiley, New York.
- Calmanovici, C. E., Gilot, B., & Laguérie, C. (1997). Mechanism and kinetics for the dissolution of apatitic materials in acid solutions. *Brazilian Journal of Chemical Engineering*, 14(2), 95-102. <https://doi.org/10.1590/S0104-66321997000200001>.
- Dávila-Pulido, G. I., González-Ibarra, A. A., Garza-García, M., & Charles, D. A. (2021). Effect of magnesium on the hydrophobicity of sphalerite. *Minerals*, 11(12), 1359. <https://doi.org/10.3390/min11121359>.
- Deng, X., Tian, M., Cui, J., Liu, H., Zhang, W., Shang, Z., Wen, J., Huang, G., & Xu, S. (2025). Efficient recovery of critical metals from spent reforming catalysts and regeneration into highly active pt-based catalysts for hydrogen evolution reaction. *Separation and Purification Technology*, 362, 131826. <https://doi.org/10.1016/j.seppur.2025.131826>
- Dzulkefly, K., Haron, M. J., Lim, W. H., & Woon, C. C. (2002). Recovery of nickel from spent hydrogenation catalyst using chelating resin. *Journal of Oleo Science*, 51(12), 749-751. <https://doi.org/10.5650/jos.51.749>.
- Fu, X. Z., Wang, X., Xu, Q. C., Li, J., Xu, J. Q., Lin, J. D., & Liao, D. W. (2007). Physical characterization, electrochemical performance and storage stability of spherical al-substituted γ -niooh. *Electrochimica acta*, 52(5), 2109-2115. <https://doi.org/10.1016/j.electacta.2006.08.021>.
- Gallenberger, J., Fernández, H. M., Alkemper, A., Li, M., Tian, C., Kaiser, B., & Hofmann, J. P. (2023). Stability and decomposition pathways of the niooh oer active phase of nio x electrocatalysts at open circuit potential traced by ex situ and in situ spectroscopies. *Catalysis Science & Technology*, 13(16), 4693-4700. <https://doi.org/10.1039/D3CY00674C>.
- Gerst, M. D., & Graedel, T. E. (2008). In-use stocks of metals: Status and implications. *Environmental science & technology*, 42(19), 7038-7045. <https://doi.org/10.1021/es800420p>.
- Giulietti, M., Seckler, M. M., Derenzo, S., Ré, M. I., & Cekinski, E. (2001). Industrial crystallization and precipitation from solutions: State of the technique. *Brazilian Journal of Chemical Engineering*, 18(4), 423-440. <https://doi.org/10.1590/S0104-66322001000400007>.
- Guo, M., Li, Q., Ye, X., & Wu, Z. (2010). Magnesium carbonate precipitation under the influence of polyacrylamide. *Powder technology*, 200(1-2), 46-51. <https://doi.org/10.1016/j.powtec.2010.02.006>
- Hamza, M. F., Roux, J. C., & Guibal, E. (2019). Metal valorization from the waste produced in the manufacturing of co/mo catalysts: Leaching and selective precipitation. *Journal of Material Cycles and Waste Management*, 21, 525-538. <https://doi.org/10.1007/s10163-018-0811-9>.
- Hille, R. P., Peterson, K. A., & Lewis, A. E. (2005). Copper sulphide precipitation in a fluidised bed reactor. *Chemical Engineering Science*, 60(10), 2571-2578. <https://doi.org/10.1016/j.ces.2004.11.052>.
- Hindawi, A. S., Tahawy, R., Abdelbasir, S. M., El-Gendy, A. A., & Ibrahim, H. (2025). Management and valuation of spent molybdenum catalyst: A review. *Separation and Purification Technology*, 376, 134018. <https://doi.org/10.1016/j.seppur.2025.134018>.
- Ho, H. L., Wen, J., & Lee, M. S. (2025). Development of an efficient process for the separation of co (ii), mn (ii), and ni (ii) from chloride solution by precipitation. *Mineral Processing and Extractive Metallurgy Review*, 46(7), 771-782. <https://doi.org/10.1080/08827508.2024.2376626>.
- Idris, J., Musa, M., Yin, C. Y., & Hamid, K. H. K. (2010). Recovery of nickel from spent catalyst from palm oil hydrogenation process using acidic solutions. *Journal of Industrial and Engineering Chemistry*, 16(2), 251-255. <https://doi.org/10.1016/j.jiec.2010.01.044>.
- Jerroumi, S., Amarine, M., Nour, H., Lekhlif, B., & Jamal, J. E. (2020). Removal of nickel through sulfide precipitation and characterization of electroplating wastewater sludge. *Water Quality Research Journal*, 55(4), 345-357. <https://doi.org/10.2166/wqrj.2020.116>.
- Lee, J. Y., Rao, S. V., Kumar, B. N., Kang, D. J., & Reddy, B. R. (2010). Nickel recovery from spent raneynickel catalyst through dilute sulfuric acid leaching and soda ash precipitation. *Journal of Hazardous Materials*, 176(1-3), 1122-1125. <https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2009.11.137>.
- Lekhlif, B., Oudrhiri, L., Zidane, F., Drogui, P., & Blais, J. (2014). Study of the electrocoagulation of electroplating industry wastewaters charged by nickel (ii) and chromium (vi). *Journal of*

- Materials and Environmental Science*, 5(1), 111-120.
- Liang, X., Tang, J., Li, L., Wu, Y., & Sun, Y. (2022). A review of metallurgical processes and purification techniques for recovering Mo, V, Ni, Co, Al from spent catalysts. *Journal of Cleaner Production*, 376, 134108. <https://doi.org/10.1016/j.jclepro.2022.134108>.
- Liao, J., Hu, H., Fu, W., Li, S., & Chen, Q. (2012). A hydrometallurgical route to produce ZnO nanoparticles and NiO strips from the spent ni/zno catalyst. *Hydrometallurgy*, 121-124, 107-115. <https://doi.org/10.1016/j.hydromet.2012.03.009>.
- Lister, M. (1956). Decomposition of sodium hypochlorite: The uncatalyzed reaction. *Canadian journal of chemistry*, 34(4), 465-478. <https://doi.org/10.1139/v56-068>.
- Marafi, M., & Stanislaus, A. (2008). Spent catalyst waste management: A review: Part i—developments in hydroprocessing catalyst waste reduction and use. *Resources, Conservation and Recycling*, 52(6), 859-873. <https://doi.org/10.1016/j.resconrec.2008.02.004>.
- Marcinov, V., Oráč, D., Klimko, J., Takáčová, Z., Pirošková, J., & Jankovský, O. (2024). Selective precipitation of REE-rich aluminum phosphate with low lithium losses from lithium enriched slag leachate. *Materials*, 17(20), 5113. <https://doi.org/10.3390/ma17205113>.
- Marinos, D., Kotsanis, D., Alexandri, A., Balomenos, E., & Panias, D. (2021). Carbonation of sodium aluminate/sodium carbonate solutions for precipitation of alumina hydrates—avoiding dawsonite formation. *Crystals*, 11(7), 836. <https://doi.org/10.3390/cryst11070836>.
- Mbamba, C. K., Batstone, D. J., Flores-Alsina, X., & Tait, S. (2015). A generalised chemical precipitation modelling approach in wastewater treatment applied to calcite. *Water research*, 68, 342-353. <https://doi.org/10.1016/j.watres.2014.10.011>.
- Nguyen, V. N. H., & Lee, M. S. (2021). Separation of co (ii), ni (ii), mn (ii) and li (i) from synthetic sulfuric acid leaching solution of spent lithium ion batteries by solvent extraction. *Journal of Chemical Technology & Biotechnology*, 96(5), 1205-1217. <https://doi.org/10.1002/jctb.6632>.
- Padamata, S. K., Yasinskiy, A. S., Polyakov, P. V., Pavlov, E. A., & Varyukhin, D. Y. (2020). Recovery of noble metals from spent catalysts: A review. *Metallurgical and materials transactions B*, 51(5), 2413-2435. <https://doi.org/10.1007/s11663-020-01913-w>.
- Qin, X., Li, X., Yang, L., Wang, Z., Zheng, B., Yuan, H., & Xiao, D. (2014). Molten-salt synthesis of lamellar Ni(OH)₂/NiOOH composite and its application for pseudocapacitor. *Journal of alloys and compounds*, 610, 549-554. <https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2014.05.043>.
- Sahu, K. K., Agarwal, A., & Pandey, B. D. (2005). Nickel recovery from spent nickel catalyst. *Waste Management & Research*, 23(2), 148-154. <https://doi.org/10.1177/0734242X05052334>.
- Salleh, S. H., Thomas, S., Yuwono, J. A., Venkatesan, K., & Birbilis, N. (2015). Enhanced hydrogen evolution on Mg(OH)₂ covered Mg surfaces. *Electrochimica acta*, 161, 144-152. <https://doi.org/10.1016/j.electacta.2015.02.079>.
- Shih, Y. J., Huang, Y. H., & Huang, C. P. (2018). In-situ electrochemical formation of nickel oxyhydroxide (NiOOH) on metallic nickel foam electrode for the direct oxidation of ammonia in aqueous solution. *Electrochimica acta*, 281, 410-419. <https://doi.org/10.1016/j.electacta.2018.05.169>.
- Shoppert, A., Valeev, D., Alekseev, K., & Loginova, I. (2023). Enhanced precipitation of gibbsite from sodium aluminate solution by adding agglomerated active Al(OH)₃ seed. *Metals*, 13(2), 193. <https://doi.org/10.3390/met13020193>.
- Speight, J. G. (2005a). *Environmental analysis and technology for the refining industry*. John Wiley & Sons. <https://doi.org/10.1002/0471739855>
- Speight, J. G. (2005b). *Environmental analysis and technology for the refining industry*. John Wiley & Sons. <https://doi.org/10.1002/0471739855>
- Toledo-Chávez, G., Paniagua-Rodríguez, J. C., Zárate-Medina, J., & Maya-Yescas, R. (2016). Reactions analysis during the synthesis of pseudo-boehmite as precursor of gamma-alumina. *Catalysis Today*, 271, 207-212. <https://doi.org/10.1016/j.cattod.2015.07.056>.
- Tran, T. T., Tran, N. T., Le, N. H., Le, N. T., Bui, Q. H., Dang, H. G., Doan, V. H. T., Lee, M. S., Nguyen, V. N. H. (2025). A simple process for recovering high-purity nickel (ii) compound from spent steam reforming catalyst by acid leaching and selective precipitation with dimethylglyoxime. *Journal of Sustainable Metallurgy*, 11:4394-4404. <https://doi.org/10.1007/s40831-025-01240-x>.
- Watari, T., Nansai, K., & Nakajima, K. (2021). Major metals demand, supply, and environmental impacts to 2100: A critical review. *Resources, Conservation and Recycling*, 164, 105107. <https://doi.org/10.1016/j.resconrec.2020.105107>.
- Wen, J., Tran, T. T., & Lee, M. S. (2024). Comparison of separation of mn (ii), co (ii), and

- ni (ii) by oxidative precipitation between chloride and sulfate solutions. *Physicochemical Problems of Mineral Processing*, 60(1):183029. <https://doi.org/10.37190/ppmp/183029>.
- Wen, J., Wang, X., Yu, F., Tian, M., Wang, C., Huang, G., & Xu, S. (2023). Recovery and value-added utilization of critical metals from spent catalysts for new energy industry. *Journal of Cleaner Production*, 419, 138295. <https://doi.org/10.1016/j.jclepro.2023.138295>.
- Xuân, D. T. T., Quân, H. L. M., Tùng, D. T., & Duy, V. M. (2016). Đề xuất phương án tái sử dụng xúc tác thải của nhà máy lọc dầu dung quất và nhà máy đạm phú mỹ. *Petrovietnam Journal*, 7, 48-53.
- Yang, Q. Z., Qi, G. J., Low, H. C., & Song, B. (2011). Sustainable recovery of nickel from spent hydrogenation catalyst: Economics, emissions and wastes assessment. *Journal of Cleaner Production*, 19(4), 365-375. <https://doi.org/10.1016/j.jclepro.2010.11.007>.
- Zhang, Z., Zheng, Y., Zhang, J., Zhang, Q., Chen, J., Liu, Z., & Liang, X. (2007). Synthesis and shape evolution of monodisperse basic magnesium carbonate microspheres. *Crystal growth & design*, 7(2), 337-342. <https://doi.org/10.1021/cg060544y>
- Zosel, J., Oelßner, W., Decker, M., Gerlach, G., & Guth, U. (2011). The measurement of dissolved and gaseous carbon dioxide concentration. *Measurement Science and Technology*, 22(7), 072001. <https://doi.org/10.1088/0957-0233/22/7/072001>