

Nghiên cứu xử lý nước rỉ rác sau sinh học bằng phương pháp fenton điện hoá

Phạm Kiều Tuyết Trân¹, Trần Lê Lựu^{2,*}



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

¹Khoa Môi trường và bảo hộ lao động, Trường Đại học Tôn Đức Thắng, Số 19 Nguyễn Hữu Thọ, Phường Tân Phong, Quận 7, TP. Hồ Chí Minh, Việt Nam

²Chương trình Thạc sỹ về Công nghệ, Tái sử dụng và quản lý nước, Trường Đại học Việt Đức, 10 Hoàng Diệu, Quận Phú Nhuận, TP. Hồ Chí Minh, Việt Nam.

Liên hệ

Trần Lê Lựu, Chương trình Thạc sỹ về Công nghệ, Tái sử dụng và quản lý nước, Trường Đại học Việt Đức, 10 Hoàng Diệu, Quận Phú Nhuận, TP. Hồ Chí Minh, Việt Nam.

Email: luu.tl@vgu.edu.vn

Lịch sử

- Ngày nhận: 24/6/2021
- Ngày chấp nhận: 17/8/2021
- Ngày đăng: 23/8/2021

DOI: 10.32508/stdjsec.v5i2.564



Bản quyền

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



TÓM TẮT

Nước rỉ rác chứa nhiều các hợp chất hữu cơ khó phân hủy sinh học và dinh dưỡng với nồng độ cao, nhất là từ các bãi chôn lấp rác thải đô thị có thời gian vận hành lâu (> 10 năm), gây ảnh hưởng đến sức khỏe con người và chất lượng môi trường. Fenton điện hóa là một trong những quá trình oxy hóa tiên tiến (AOPs) đã được nghiên cứu để xử lý hiệu quả nhiều hợp chất hữu cơ khó phân hủy sinh học trong nước. Trong nghiên cứu này, nước rỉ rác sau quá trình xử lý sinh học (bể sinh học dòng liên tục) được tiếp tục xử lý bằng phương pháp Fenton điện hóa với xúc tác dị thể Sắt (II) Sunfua và oxit sắt từ trên hai điện cực Ti/IrO₂-Ta₂O₅ và Ti/RuO₂. Ảnh hưởng các điều kiện pH khác nhau đến hiệu quả loại bỏ chất ô nhiễm trong nước rỉ rác đã được nghiên cứu. Kết quả cho thấy điện cực Ti/IrO₂-Ta₂O₅ và xúc tác Sắt (II) Sunfua có hiệu suất xử lý nước rỉ rác tốt hơn điện cực Ti/RuO₂ và oxit sắt từ trong cùng điều kiện thí nghiệm. Quá trình Fenton điện hóa dị thể có khả năng loại bỏ 71% nhu cầu oxy hoá học (COD), 88% tổng cacbon hữu cơ (TOC), 89% tổng nitơ (TN), 93% nitơ amoni (N-NH₄⁺) và 99% độ màu trên điện cực Ti/IrO₂-Ta₂O₅ và xúc tác Sắt (II) Sunfua tại pH 3, mật độ dòng điện 333 mA/cm² sau 90 phút điện phân. Nghiên cứu cho thấy phương pháp Fenton điện hoá có khả năng xử lý hiệu quả cao các thành phần ô nhiễm trong nước rỉ rác sau quá trình xử lý sinh học.

Từ khoá: Nước rỉ rác, Fenton điện hoá, xúc tác dị thể, pH

GIỚI THIỆU

Việt Nam được xem là một trong những nước có tốc độ gia tăng dân số và quá trình đô thị hóa diễn ra rất nhanh chóng. Bên cạnh đó, vấn đề chất lượng môi trường sống đô thị cũng đang bị suy giảm dần do không kiểm soát được các nguồn chất thải phát sinh¹. Việc xử lý các rác thải đã và đang dần trở thành vấn đề môi trường đáng quan tâm, đặc biệt là lượng rác thải sinh hoạt phát sinh ngày càng nhiều. Việc xử lý chất thải rắn sinh hoạt đô thị chủ yếu là tái sử dụng, chôn lấp, ủ phân vi sinh và đốt. Biện pháp được xem là được sử dụng phổ biến nhất tại các nước đang phát triển là sử dụng bãi chôn lấp rác hợp vệ sinh². Nước rỉ rác là loại nước thải được sinh ra trong quá trình chôn lấp rác thải rắn sinh hoạt, được hình thành do nước mưa thấm vào lòng bãi rác, do trong rác thải đã chứa sẵn độ ẩm khi được chôn lấp, qua một thời gian sẽ sinh ra sự rỉ nước. Nước rỉ rác này chứa nhiều thành phần phức tạp, rất độc hại, các chất ô nhiễm chủ yếu là amoni, vi trùng gây bệnh, hàm lượng COD cao, chứa kim loại nặng,... Các chất ô nhiễm này là nguyên nhân dẫn đến suy thoái môi trường nghiêm trọng. Nếu lượng chất thải này thấm vào đất với nồng độ vượt chuẩn cho phép sẽ gây ô nhiễm nguồn nước ngầm trầm trọng, còn nếu nhiễm vào nguồn nước mặt sẽ gây hủy hoại

hệ thủy sinh ở khu vực nước đó³.

Nhiều công trình nghiên cứu đã áp dụng nhiều phương pháp khác nhau để xử lý nước rỉ rác như phương pháp lọc sinh học⁴, oxy hóa Ozon (O₃)⁵, oxy hoá điện hoá⁶ keo tụ điện hóa kết hợp Fenton⁶... Trong đó nổi bật là quá trình Fenton có thể oxy hóa các chất ô nhiễm hữu cơ cao phân tử thành các phân tử nhỏ hoặc trực tiếp khoáng hóa các chất ô nhiễm thông qua bổ sung, thay thế, chuyển điện tử và phá vỡ liên kết, tấn công chất ô nhiễm bằng các chất oxy hóa mạnh (*OH)⁷. Phương pháp Fenton thông thường có ưu điểm phản ứng nhanh, điều kiện phản ứng đơn giản, thiết bị dễ tìm nhưng hạn chế là tổn chi phí hóa chất, chi phí xử lý bùn sắt sinh ra. Để khắc phục những nhược điểm này, quá trình Fenton điện hóa (EF) được nghiên cứu thay thế do có ưu điểm là thân thiện với môi trường vì lượng Fe²⁺ được tái sinh liên tục ở cực âm, nguồn sắt có thể hoàn lưu để tái sử dụng nên làm giảm lượng Fe²⁺ ban đầu và giảm lượng sắt bổ sung. Từ đó sẽ giảm được lượng bùn sắt sinh ra, ngoài ra còn cung cấp mật độ dòng điện lớn, ổn định, cải thiện tốc độ phản ứng, ít tiêu tốn hóa chất, khả năng xử lý các chất ô nhiễm cao⁸.

Các công trình nghiên cứu trên thế giới đã cho thấy rằng Fenton điện hóa xử lý được nhiều loại nước thải

Trích dẫn bài báo này: Trần P K T, Lựu T L. Nghiên cứu xử lý nước rỉ rác sau sinh học bằng phương pháp fenton điện hoá. *Sci. Tech. Dev. J. - Sci. Earth Environ.*; 5(2):377-387.

khác nhau. Tác giả Gengbo và cộng sự (2016)⁹ đã nghiên cứu một hệ phản ứng với dòng chảy thẳng đứng mới gồm 10 ngăn chứa sử dụng cực dương PbO₂ và cực âm than chì với điều kiện tối ưu (pH 3, điện áp 4 V, tốc độ dòng 40 mL/phút, [Fe²⁺] = 0.4 mmol/L, tốc độ sục khí 80 mL/phút) để xử lý nước thải hữu cơ. Hiệu quả loại bỏ Tartrazine là 100%, loại bỏ TOC là 41.6%. Carmina Bruguera Casamada và cộng sự (2018)¹⁰ đã nghiên cứu ưu điểm của Fenton điện hóa trong việc khử trùng nước thải từ sữa. Nghiên cứu này sử dụng bước keo tụ điện (EC) sau đó đến điện Fenton và hỗ trợ thêm quang điện tử. Các phương pháp này được chạy với cực âm khuếch tán không khí tạo H₂O₂ và cực dương là kim cương pha tạp boron (Boron doped diamond, BDD) hoặc RuO₂. Nước thải ban đầu với pH tự nhiên 5.7 được xử lý bằng điện Fenton với cực dương RuO₂ đem lại hiệu quả loại bỏ vi khuẩn *Escherichia Coli* và *Enterococci* cao hơn so với dùng cực dương BDD. James I. Colades và cộng sự (2015)¹¹ nghiên cứu qui trình điện Fenton để xử lý chất thải màn hình tinh thể lỏng (TFT-LCD) chứa một lượng lớn dung môi hữu cơ Dimethyl Sulfoxide (DMSO). Hiệu quả xử lý DMSO đạt 100%, loại bỏ TOC và COD lần lượt là 68% và 79%. Xiaobiao Zhu và cộng sự (2011)⁸ đã sử dụng hai quá trình Fenton và điện Fenton để xử lý nước thải luyện cốc được tiền xử lý sinh học. Các thông số tối ưu được xác định tại pH 4, thời gian phản ứng là 1.2 giờ, nồng độ Fe²⁺ và H₂O₂ là 40 mM cho quá trình Fenton; tại pH 4, thời gian phản ứng 1.8 giờ, nồng độ Fe²⁺ 0.6 mM và mật độ dòng điện là 3.7 mA/cm² cho quá trình điện Fenton. Kết quả cho thấy hiệu suất loại bỏ TOC của hai quá trình Fenton và điện Fenton lần lượt là 75% và 55%. Tác giả Dilek Gümüş và Feryal Akbalb (2016)¹² đã thực hiện so sánh hiệu suất của 2 quá trình Fenton và điện Fenton trong điều kiện tối ưu (pH 3, mật độ dòng điện là 333 mA/cm², nồng độ H₂O₂ là 500 mg/L) kết quả loại bỏ phenol và COD là 93.3% và 87.5%. Bên cạnh đó, kết quả còn cho thấy điện hoá Fenton là kinh tế hơn Fenton thông thường trong việc xử lý nước thải chứa phenol.

Trong bài nghiên cứu này, nước rỉ rác sẽ được thu nhận sau bể xử lý sinh học học dòng liên tục (sequencing batch reactor, SBR) của hệ thống xử lý nước thải hiện hữu tại nhà máy xử lý nước rỉ rác Bình Dương. Tiến hành thử nghiệm xử lý nước rỉ rác áp dụng công nghệ Fenton điện hóa trên các điện cực: Ti/IrO₂-Ta₂O₅, Ti/RuO₂ với các xúc tác thương mại dị thể khác nhau: oxit sắt từ (Fe₃O₄), Sắt (II) Sunfua (FeS). Khảo sát ảnh hưởng của pH khác nhau để theo dõi khả năng phân hủy các chất ô nhiễm hữu cơ và dinh dưỡng trong nước rỉ rác như nhu cầu oxy hóa học (COD), tổng cacbon hữu cơ (TOC), độ màu, tổng Nitơ (TN) và amoni.

VẬT LIỆU VÀ PHƯƠNG PHÁP

Nước rỉ rác

Các mẫu nước rỉ rác được thu nhận từ bể xử lý sinh học dòng liên tục (sequencing batch reactor, SBR) tại Khu liên hợp xử lý chất thải rắn Nam Bình Dương và được đựng bằng can nhựa (polyethylene) 2 lít. Mẫu được bảo quản trong tủ lạnh ở nhiệt độ 4-5°C theo TCVN 6663-3:2008 để đảm bảo giảm thiểu tối đa sự thay đổi nồng độ các chất ô nhiễm có trong mẫu nước rỉ rác bởi các quá trình sinh học và hóa học. Tính chất của nước rỉ rác trước và sau bể SBR được thể hiện ở bảng 1. Điện cực dương sử dụng là 2 điện cực thương mại gồm: Ti/RuO₂, Ti/IrO₂-Ta₂O₅. Điện cực Ti/Pt được dùng làm điện cực âm. Các điện cực có kích thước 2 x 3 cm được cung cấp từ công ty Permelech Ltd (Nhật Bản). Dựa trên những nghiên cứu trước đây về khoảng cách điện cực, kết quả cho thấy khoảng cách 2 cm cho hiệu quả xử lý tốt nhất nên ở nghiên cứu này chọn khoảng cách giữa các điện cực anốt và catốt là 2 cm¹³. Xúc tác Oxit sắt từ (Fe₃O₄), Sắt(II) Sunfua (FeS) với độ tinh khiết 99.9% được cung cấp bởi Fisher Scientific (Mỹ).

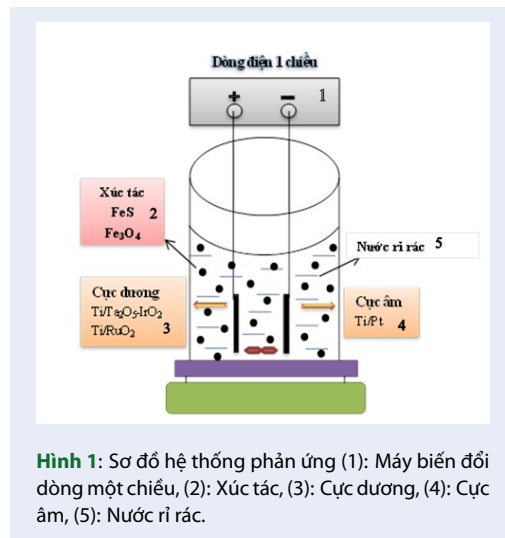
Bố trí thí nghiệm

Hình 1 miêu tả sơ đồ hệ thống phản ứng. Bình phản ứng có hình trụ tròn có kích thước 6 x 7.5 cm, thể tích hiệu dụng là 100 mL. Máy tạo dòng điện một chiều UDP Series 150 W của hãng Unicorn TMI – Hàn Quốc có khoảng điều chỉnh điện thế 0-150 V, nhiệt độ phòng thí nghiệm 26°C. Mẫu được đặt trên máy khuấy từ VEP AREC, Italy ở 200 vòng/phút, nước rỉ rác và xúc tác trong cốc sẽ được khuấy trộn bằng máy khuấy với thanh cá từ (1 g) để đảm bảo nước thải trong bình luôn được trộn lẫn tốt nhất. Hai điện cực (anốt và catốt) sẽ được đặt ngập trong nước và song song nhau với khoảng cách 2 cm vì đây được xem là khoảng cách tối ưu cho quá trình điện phân thông qua các nghiên cứu trước đây (Sruthi T. và cộng sự, 2018)¹³. Mật độ dòng điện một chiều chạy qua các điện cực trong tất cả thí nghiệm được đặt cố định theo thiết kế thí nghiệm 333 mA/cm², điện thế U = 6 V, khối lượng xúc tác m_{FeS} = 20 g/L, m_{Fe₃O₄} = 20 g/L. Mẫu nước rỉ rác được điều chỉnh pH từ 3-10 (sử dụng NaOH hoặc H₂SO₄). Giá trị pH trong dung dịch hay môi trường phản ứng đóng vai trò khá quan trọng trong phản ứng điện oxy hóa. Ở phương pháp này giá trị pH không chỉ ảnh hưởng đến việc tạo ra các ion sắt (Fe²⁺, Fe³⁺) mà còn ảnh hưởng đến sự hình thành và phân hủy H₂O₂. Mỗi thí nghiệm được lặp lại 3 lần và tính toán giá trị kết quả trung bình.

Sử dụng thiết bị đo quang phổ UV-VIS Shimadzu 1800 (Nhật Bản) với phương pháp bình đun kín

Bảng 1: Thành phần nước rỉ rác trước và sau bể SBR.

Thông số	Đơn vị	Nồng độ (ban đầu)	Nồng độ (sau bể SBR)
pH	-	8.5	8.6
COD	mg/L	4500	2600
TOC	mg/L	1500	700
Màu	TCU	4600	4000
NH ₄ ⁺	mg/L	1200	380
TN	mg/L	2000	100



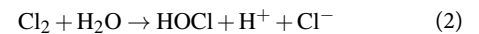
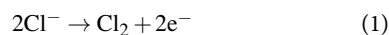
Hình 1: Sơ đồ hệ thống phản ứng (1): Máy biến đổi dòng một chiều, (2): Xúc tác, (3): Cực dương, (4): Cực âm, (5): Nước rỉ rác.

tiêu chuẩn 5220 để phân tích nồng độ COD khi thí nghiệm. Sử dụng thiết bị Metrohm 900 multimeter (Thụy Sĩ) để đo giá trị pH và độ màu của nước rỉ rác khi thí nghiệm. Sử dụng thiết bị đo TOC Shimadzu 00936 (Nhật Bản) để đo nồng độ TOC và TN khi thí nghiệm. Sử dụng thiết bị đo sắc ký ion Metrohm IC 883 (Thụy Sĩ) để đo thông số N-NH₄⁺ có trong nước rỉ rác.

KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN

Khả năng loại bỏ COD

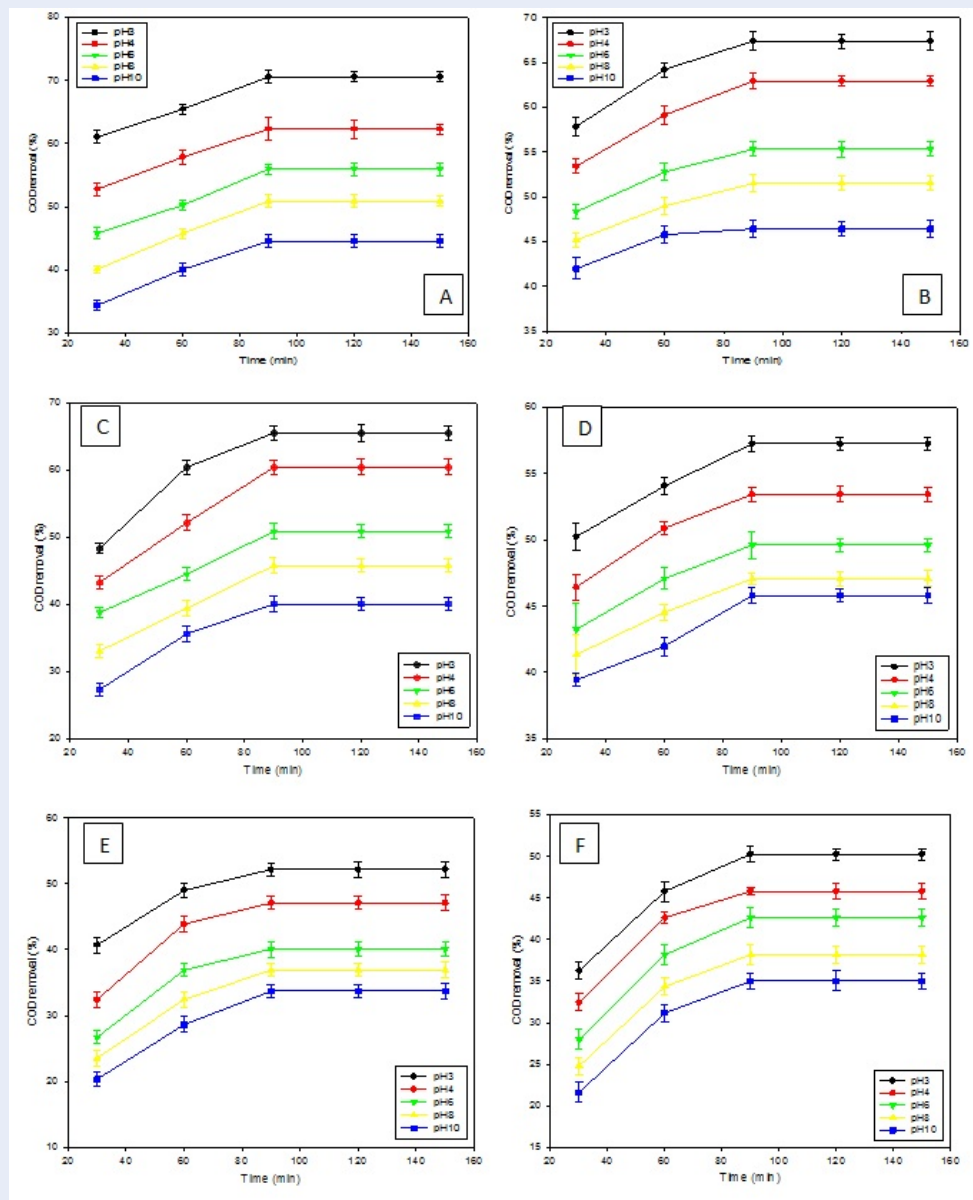
Hình 2 cho thấy hiệu suất loại bỏ COD bằng Ti/IrO₂-Ta₂O₅ và Ti/RuO₂ khi có FeS (A, B), Fe₃O₄ (C, D) và không xúc tác (E, F). Kết quả thí nghiệm cho thấy khi không sử dụng chất xúc tác, hiệu suất loại bỏ COD cao ở môi trường nước thải có pH 3 và giảm dần hiệu suất khi tăng pH ở cả anốt Ti/IrO₂-Ta₂O₅ và Ti/RuO₂. Điều này có thể là do khi điện hóa trong môi trường axit (pH 3), gốc Cl₂ tự do và HClO được sinh ra do ion Cl⁻ bị oxy hóa ở cực dương theo phương trình 1, 2 dưới đây¹⁴:



Sau đó hai chất này sẽ oxy hóa các chất ô nhiễm có trong nước rỉ rác. Do đó, ở pH 3 hiệu quả loại bỏ COD là cao nhất ở cả hai điện cực. Khi tăng pH từ 3 lên 10 có thể thấy rằng COD giảm từ 52% xuống 34% trong khoảng thời gian 90 phút với anốt Ti/IrO₂-Ta₂O₅, tương tự COD giảm từ 50% xuống 35% với anốt Ti/RuO₂.

Khi tăng pH dung dịch từ 4 đến 8, gốc Cl₂ tự do hoạt động tương đối yếu vì Cl₂ hoạt động chủ yếu trong môi trường axit, thay vào đó chỉ gốc HClO hoạt động nên hiệu suất xử lý bắt đầu giảm xuống. Tiếp tục tăng độ pH > 8 (pH 10), gốc ClO⁻ sẽ hoạt động là chủ yếu nên hiệu suất loại bỏ COD giảm đáng kể vì gốc Cl₂ và HClO hoạt động yếu hoặc không hoạt động. Điều này có thể giải thích bởi điện thế hoạt động của ba chất oxy hóa vì E_o(HClO) > E_o(Cl₂) > E_o(ClO⁻). Nhìn chung hiệu suất ở anốt Ti/IrO₂-Ta₂O₅ hiệu quả hơn anốt Ti/RuO₂ ở những môi trường pH khác nhau.

Kết quả thí nghiệm cho thấy khi có chất xúc tác (FeS, Fe₃O₄) theo biểu đồ (A, B, C, D) Hình 2, hiệu suất loại bỏ COD cao ở môi trường dung dịch có pH 3 và hiệu suất loại bỏ COD giảm dần khi tăng độ pH ở cả hai anốt Ti/IrO₂-Ta₂O₅ và anốt Ti/RuO₂. Điều này là do độ pH trong dung dịch tăng lên và trong điều kiện kiềm (pH > 8), H₂O₂ do catốt tạo ra nhanh chóng bị phân hủy thành O₂ và H₂O. Do đó làm giảm lượng ion sắt sinh ra, dẫn đến lượng hydroxyl tự do (•OH) tạo ra giảm nên hiệu suất xử lý giảm. Khi tăng pH từ 3 lên 10 có thể thấy rằng COD giảm từ 71% xuống 45% (FeS) và từ 66% xuống 40% (Fe₃O₄) trong khoảng thời gian 90 phút với anốt Ti/IrO₂-Ta₂O₅, tương tự cho anốt Ti/RuO₂ COD giảm từ 67% xuống 46% (FeS) và từ 57% xuống 46% (Fe₃O₄) với liều lượng xúc tác 20 g/L. Kết quả này tương đồng nghiên cứu khác gần đây của Soraya và cộng sự (2010)¹⁵ tối ưu hóa các điều kiện phản ứng cho nước rỉ bãi rác bằng quy trình Fenton điện hóa cho hiệu suất loại bỏ COD đạt 94% ở pH 3, mật độ dòng điện 49 mA/cm² và phản ứng thời gian 43 phút.



Hình 2: Hiệu suất loại bỏ COD bằng Ti/IrO₂-Ta₂O₅ và Ti/RuO₂ khi có FeS (A, B), Fe₃O₄ (C, D) và không xúc tác (E, F).

Khả năng loại bỏ TOC

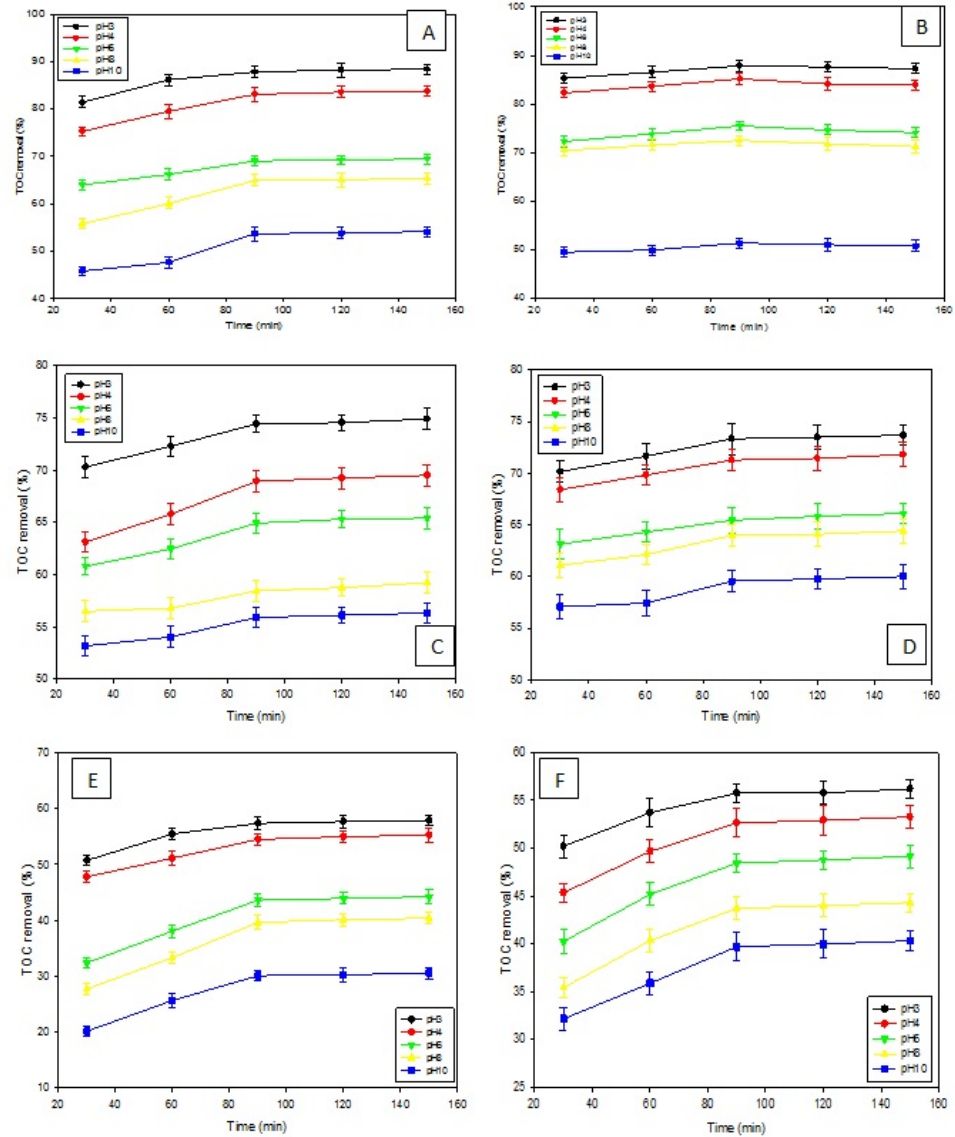
Hình 3 cho thấy hiệu suất loại bỏ TOC bằng Ti/IrO₂-Ta₂O₅ và Ti/RuO₂ khi có FeS (A, B), Fe₃O₄ (C, D) và không xúc tác (E, F). Hiệu quả loại bỏ TOC cao nhất ở pH 3 và giảm dần khi tăng độ pH dung dịch ở điều kiện không có xúc tác và khi có FeS, Fe₃O₄. Khi không sử dụng xúc tác hiệu suất loại bỏ TOC cao nhất trên anốt Ti/IrO₂-Ta₂O₅ và Ti/RuO₂ lần lượt là 58% và 56% ở pH 3, mật độ dòng 333 mA/cm².

Khi quá trình Fenton điện hóa có thêm xúc tác, hiệu suất xử lý TOC tăng cao trên cả hai anốt. anốt

Ti/IrO₂-Ta₂O₅ với xúc tác FeS hiệu suất loại bỏ TOC tăng từ 57% lên 88% (với Fe₃O₄ tăng từ 34% lên 61%). Anốt Ti/RuO₂ với xúc tác FeS tăng từ 56% lên 88% (với Fe₃O₄ tăng từ 34% lên 56%) ở pH 3. Qua đó có thể thấy rằng anốt Ti/IrO₂-Ta₂O₅ cho hiệu suất xử lý cao hơn so với Ti/RuO₂ trong cùng điều kiện thí nghiệm.

Khả năng loại bỏ màu

Hình 4 cho thấy hiệu suất loại bỏ màu bằng Ti/IrO₂-Ta₂O₅ và Ti/RuO₂ khi có FeS (A, B), Fe₃O₄ (C, D) và

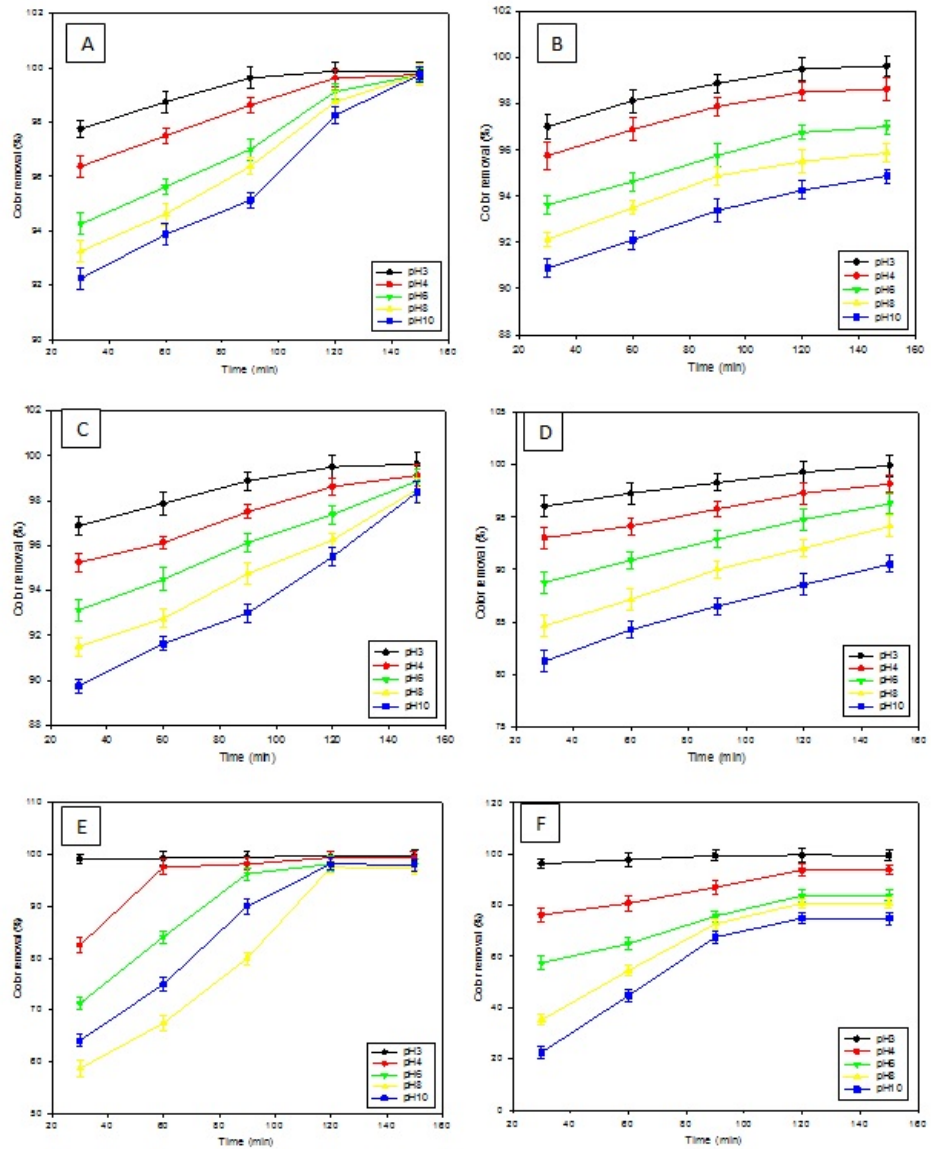


Hình 3: Hiệu suất loại bỏ TOC bằng Ti/IrO₂-Ta₂O₅ và Ti/RuO₂ khi có FeS (A, B), Fe₃O₄ (C, D) và không xúc tác (E, F).

không xúc tác (E, F). So sánh những biểu đồ Hình 4 có thể thấy rằng ở điều kiện không dùng xúc tác, khả năng loại bỏ màu ở cả hai anot đều cho hiệu suất cao trên 90% (99% với anot Ti/IrO₂-Ta₂O₅ và 94% với Ti/RuO₂), màu gần như được loại bỏ hoàn toàn ở môi trường axit (pH 3, pH 4) trong thời gian điện hóa từ 90 - 150 phút với mật độ dòng điện 333 mA/cm². Khi tăng độ pH tỷ lệ loại bỏ màu giảm xuống, tăng môi trường từ pH 3 lên pH 8, hiệu suất giảm từ 99% xuống 95% với anot Ti/IrO₂-Ta₂O₅ ở biểu đồ (A) và tương tự cũng giảm cho biểu đồ (B). Gần đây, Rostamizadeh và cộng sự (2018)¹⁶ xác định Fe-ZSM làm xúc tác cho

quá trình điện Fenton để xử lý nước rỉ rác, pH 3 cho thấy hiệu suất khử màu cao (> 95%) trong 30 phút, khá tương tự với kết quả nghiên cứu này. Hiệu suất loại bỏ màu giữa anot Ti/IrO₂-Ta₂O₅ và anot Ti/RuO₂ khi không có xúc tác (E, F) với có xúc tác FeS (A, B) và Fe₃O₄ (C, D), được thể hiện như Hình 4 sau:

Khi sử dụng xúc tác dị thể (FeS, Fe₃O₄) cho quá trình điện hóa, làm tăng hiệu suất xử lý màu bởi sự oxy hóa bởi các gốc oxy hóa mạnh như đã được giải thích.



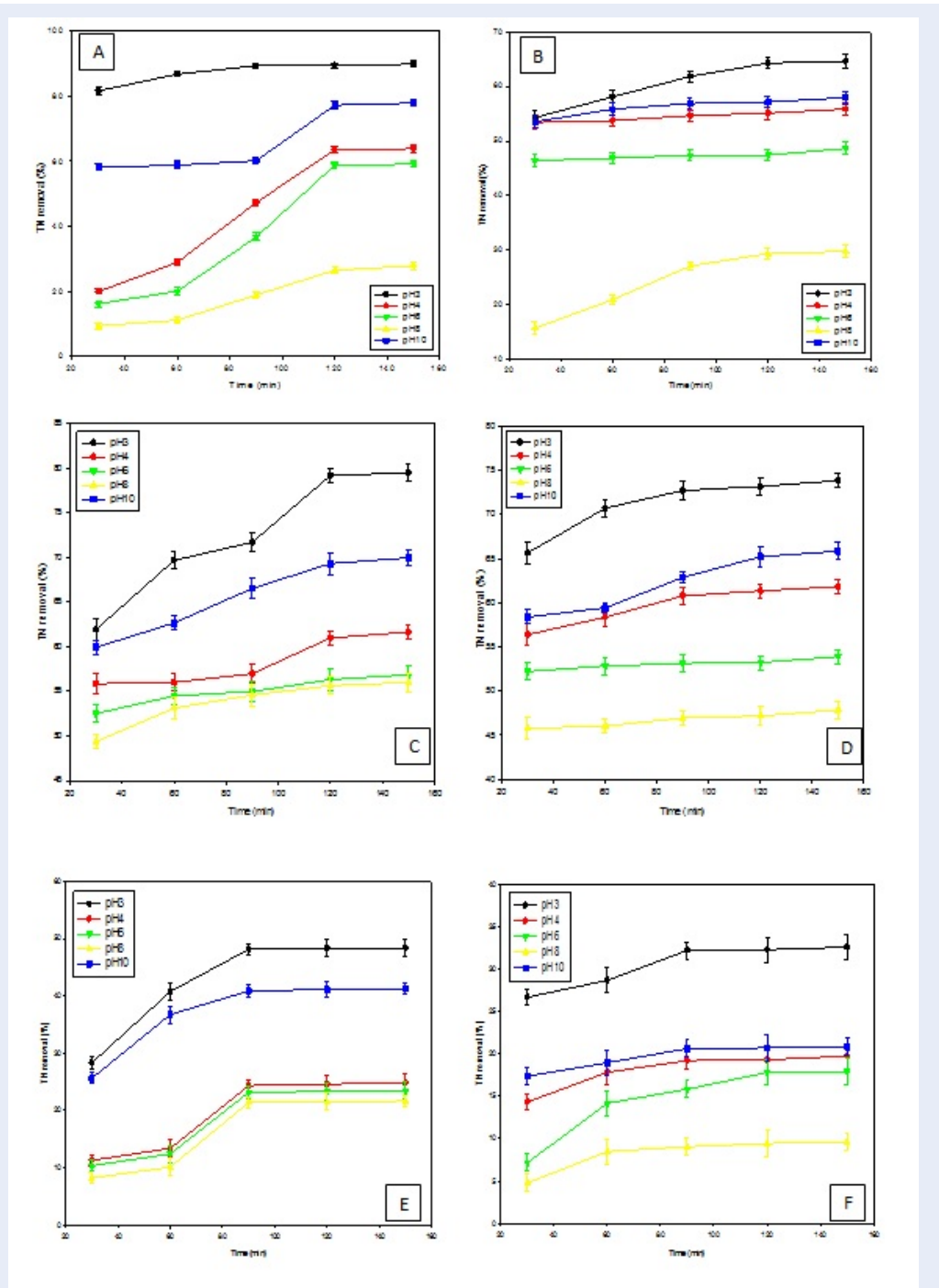
Hình 4: Hiệu suất loại bỏ màu bằng Ti/IrO₂-Ta₂O₅ và Ti/RuO₂ khi có FeS (A, B), Fe₃O₄ (C, D) và không xúc tác (E, F).

Khả năng loại bỏ tổng Nitơ và amoni (N-NH₄⁺)

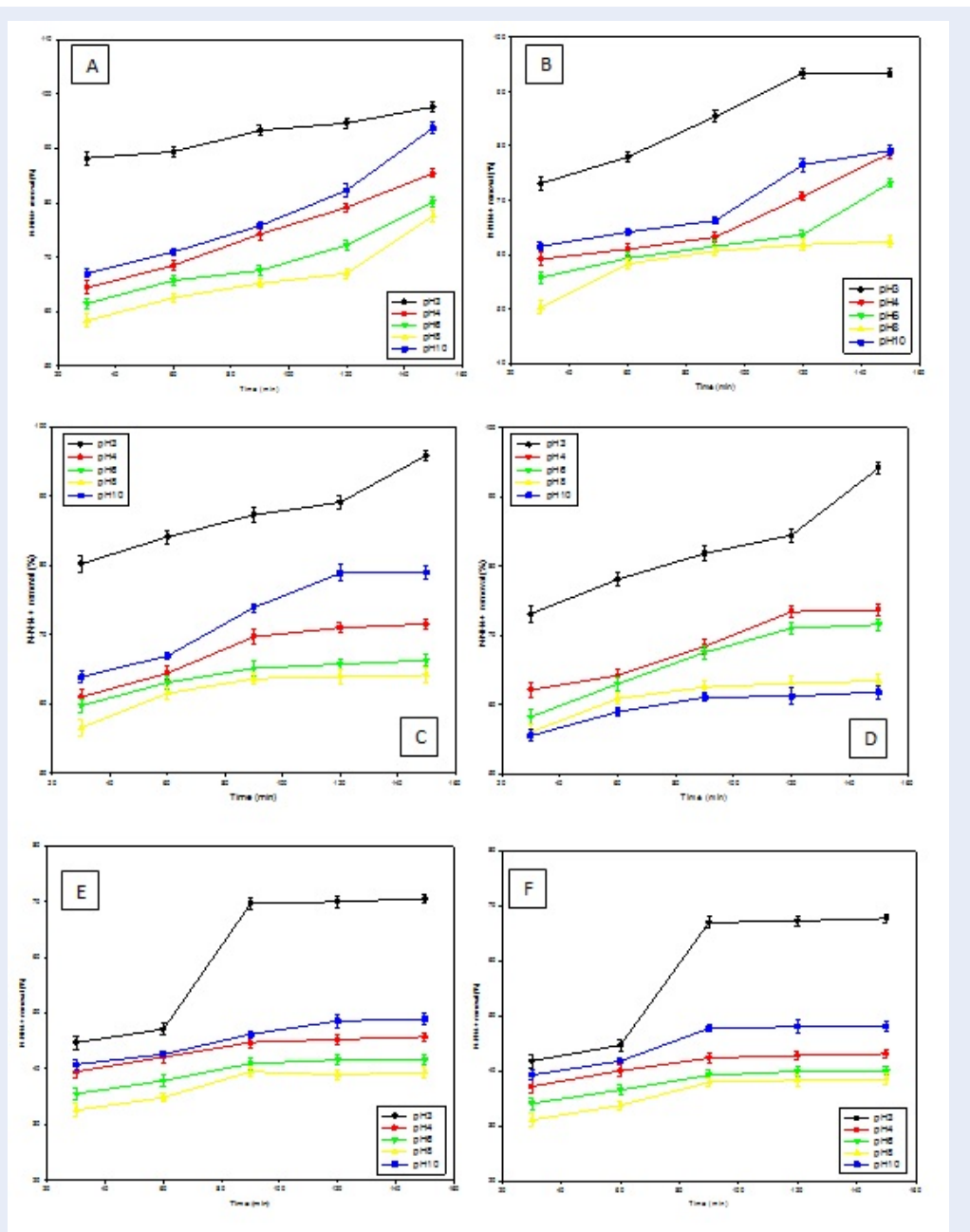
Hiệu suất loại bỏ tổng Nitơ giữa anot Ti/IrO₂-Ta₂O₅ và anot Ti/RuO₂ khi không có xúc tác (E, F) với có xúc tác FeS (A, B) và Fe₃O₄ (C, D), được thể hiện như Hình 5 sau:

Hình 5 cho thấy hiệu suất loại bỏ TN bằng Ti/IrO₂-Ta₂O₅ và Ti/RuO₂ khi có FeS (A, B), Fe₃O₄ (C, D) và không có xúc tác (E, F). So sánh hai biểu đồ (A, B) Hình 5 có thể thấy rằng hiệu quả loại bỏ tổng Nitơ cao ở mẫu nước rỉ rác có giá trị pH 3 và pH 10, sau đó giảm dần theo thứ tự pH 4, pH 6, pH 8 với xúc tác

FeS ở cả hai anot Ti/IrO₂-Ta₂O₅ và Ti/RuO₂. Hiệu suất loại bỏ TN cao nhất là 89% (107 mg/L) bởi anot Ti/IrO₂-Ta₂O₅ và 65% (355 mg/L) bởi anot Ti/RuO₂ trong thời gian 120 - 150 phút với mật độ dòng điện là 333 mA/cm². Điều này có thể được lý giải bởi quá trình điện phân gián tiếp trên hai loại điện cực sẽ hình thành các chất oxy hóa chứa ion Cl⁻ như Clo (Cl₂), axit hipoclorơ (HClO), hypoclorit (OCl⁻), hydro peroxit (H₂O₂) (Chiang L.C, và cộng sự 1995)⁵. Ngoài ra, theo kết quả phân tích nước rỉ rác đầu vào cho thấy nguồn nước rỉ có chứa nhiều ion Cl⁻ (5015 mg/L) và khi giảm pH của mẫu nước càng thấp xuống pH 3 bởi



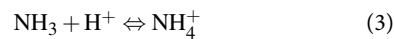
Hình 5: Hiệu suất loại bỏ TN bằng Ti/IrO₂-Ta₂O₅ và Ti/RuO₂ khi có FeS (A, B), Fe₃O₄ (C, D) và không có xúc tác (E, F).



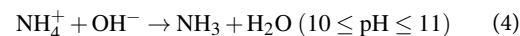
Hình 6: Hiệu suất loại bỏ $N-NH_4^+$ bằng $Ti/IrO_2-Ta_2O_5$ và Ti/RuO_2 có FeS (A, B), Fe_3O_4 (C, D) và không có xúc tác (E, F)

axit HCl thì điện phân sẽ sinh ra nhiều ion Cl^- , ngoài ra Clo tự do có thể được tạo ra bằng cách oxy hóa các ion Cl^- ở cực dương theo phương trình 1 và 2. Sau đó các chất này sẽ oxy hóa amoni có trong nước rỉ rác vì chúng có tính oxy hóa mạnh, làm giảm hàm lượng N-NH_4^+ theo những phương trình 3, 4. Có thể thấy ở pH 10 và pH 3, hiệu quả xử lý TN ở hai điện cực đều cao trên 50% trong thời gian 120-150 phút với cả hai loại xúc tác, mật độ dòng điện là 333 mA/cm^2 . Hiệu suất xử lý TN với xúc tác FeS trên anốt $\text{Ti/IrO}_2\text{-Ta}_2\text{O}_5$ cao hơn so với khi dùng Fe_3O_4 . Kết quả này cũng diễn ra tương tự cho điện cực Ti/RuO_2 . Nhìn chung anốt $\text{Ti/IrO}_2\text{-Ta}_2\text{O}_5$ cho kết quả xử lý TN tốt hơn anốt Ti/RuO_2 khi không có xúc tác và khi có xúc tác (FeS , Fe_3O_4).

Trong nước amoni tồn tại hai dạng là NH_4^+ và NH_3 và có thể chuyển dịch cân bằng thuận nghịch phụ thuộc vào pH theo phương trình sau:



Khi nâng giá trị pH ≥ 10 cân bằng sẽ chuyển dịch về phía tạo thành khí NH_3 . Ở môi trường kiềm, amoni chuyển từ trạng thái lỏng sang khí. Đó là nguyên nhân làm giảm hàm lượng amoni và hiệu suất loại bỏ TN cao hơn so với ở môi trường trung tính (pH 6, pH 8). Quá trình N-NH_4^+ chuyển thành khí NH_3 theo phương trình sau⁵:



Hiệu suất loại bỏ amoni (N-NH_4^+) giữa anốt $\text{Ti/IrO}_2\text{-Ta}_2\text{O}_5$ và anốt Ti/RuO_2 khi không có xúc tác (E, F) với có xúc tác FeS (A, B) và Fe_3O_4 (C, D), được thể hiện như Hình 6.

Nhìn chung, khi xử lý nước rỉ rác bằng phương pháp Fenton điện hóa với xúc tác FeS, Fe_3O_4 hiệu quả loại bỏ N-NH_4^+ ở anốt $\text{Ti/IrO}_2\text{-Ta}_2\text{O}_5$ cao hơn nhiều so với anốt Ti/RuO_2 ở điều kiện thí nghiệm tương tự nhau. Xúc tác FeS cho hiệu quả xử lý cao hơn Fe_3O_4 với tỷ lệ đạt 93% - 98% (9-25 mg/L) với anốt $\text{Ti/IrO}_2\text{-Ta}_2\text{O}_5$ và đạt 83%-93% (25-55 mg/L) trong khoảng thời gian 90 - 150 phút, mật độ dòng là 333 mA/cm^2 . So sánh với QCVN 25:2009/BTNMT, hiệu suất xử lý N-NH_4^+ đạt tiêu chuẩn cột B (N-NH_4^+ cột B là 25 mg/L). Tác giả Eyüp Atmaca (2009)¹⁷ đã xử lý nước rỉ rác bằng phương pháp Fenton điện hóa đồng thể ở pH 3, trong 20 phút với hiệu suất loại bỏ 72% COD và 28% N-NH_4^+ . So sánh với hiệu suất xử lý amoni bởi Fenton điện hóa dị thể cho hiệu quả thấp hơn.

Nhìn vào biểu đồ (A, B, C, D) Hình 6 có thể thấy rằng FeS và Fe_3O_4 cho kết quả loại bỏ N-NH_4^+ với xúc tác đạt hiệu suất cao ở pH 3, pH 10 và giảm dần về phía pH 4, pH 6, pH 8. Có thể lý giải bằng cơ chế oxy hóa bởi gốc Clo tự do theo như các nghiên cứu trước

đây¹⁷. Ngoài ra, trong môi trường kiềm (pH 10) xảy ra sự chuyển hóa amoni từ lỏng sang khí nên amoni đã được loại bỏ. Khi so sánh hiệu suất loại bỏ N-NH_4^+ trên cùng anốt $\text{Ti/IrO}_2\text{-Ta}_2\text{O}_5$ cho thấy khả năng loại bỏ N-NH_4^+ khi sử dụng xúc tác FeS cao hơn xúc tác Fe_3O_4 .

KẾT LUẬN

Từ nghiên cứu này có thể kết luận rằng việc sử dụng Sắt (II) Sunfua (FeS) và Oxit sắt từ (Fe_3O_4) như một chất xúc tác trong quá trình Fenton điện hóa thích hợp cho quá trình khoáng hóa chất hữu cơ có trong nước rỉ rác từ bãi chôn lấp ổn định (> 10 năm). loại điện cực sử dụng ($\text{Ti/IrO}_2\text{-Ta}_2\text{O}_5$ và Ti/RuO_2) và xúc tác có ảnh hưởng đáng kể đến hiệu suất xử lý chất gây ô nhiễm có trong nước rỉ rác. Kết quả thí nghiệm cho thấy khi tăng hoặc giảm giá trị pH của dung dịch điện hóa, hiệu suất xử lý sẽ thay đổi. Quá trình xử lý chất ô nhiễm sẽ đạt hiệu suất cao trong môi trường axit và sẽ giảm dần khi chuyển sang môi trường kiềm. Hiệu quả loại bỏ chất ô nhiễm cao nhất ở pH 3 với hiệu suất đạt trên 70% cho các chỉ tiêu COD, TOC, TN, N-NH_4^+ và độ màu được loại bỏ hoàn toàn khỏi nước rỉ rác. Fenton điện hóa là một phương pháp dễ dàng vận hành với các hóa chất dễ tìm, dễ bảo quản và cho hiệu quả xử lý cao trên nước rỉ rác.

LỜI CẢM ƠN

Nghiên cứu này được tài trợ bởi Quỹ Phát triển khoa học và công nghệ Quốc gia (NAFOSTED) trong đề tài mã số 105.08-2019.22.

XUNG ĐỘT LỢI ÍCH

Các tác giả đồng ý không có bất kì xung đột lợi ích nào liên quan đến các kết quả đã công bố.

ĐÓNG GÓP CỦA CÁC TÁC GIẢ

Phạm Kiều Tuyết Trần: thực hiện thí nghiệm, thu thập, xử lý số liệu.

Trần Lê Lưu: lên ý tưởng, định hướng, chuẩn bị bản thảo bài báo.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

1. Vũ Đ.T. Đánh giá ảnh hưởng của bãi chôn lấp Xuân Sơn, Hà Nội đến môi trường nước và đề xuất giải pháp. Tạp chí Khoa học Kỹ thuật Thủy lợi và môi trường, 2012;39;8-33;
2. Hoornweg D, Bhada-Tata P. What a Waste: A Global Review of Solid Waste Management. World Bank, Washington DC, USA 2012;1-33;
3. Văn HT. Nghiên cứu xử lý nước rỉ rác bãi chôn lấp bằng phương pháp ozon hóa. Luận án Tiến sỹ. Học viện Khoa học và Công nghệ. 2015;1-223;
4. Abbas AA, Jingsong G, Ping LZ, Ya PY, Al-Rekabi WS. Review on landfill leachate treatments, American Journal of Applied Sciences. 2009;672-684; Available from: <https://doi.org/10.3844/ajas.2009.672.684>.

5. Chiang LC, Chang JE, Wen TC. Indirect oxydation effect in electrochemical oxydation treatment of landfill leachate. *Water Research*. 1995;29 (2);671-678;Available from: [https://doi.org/10.1016/0043-1354\(94\)00146-X](https://doi.org/10.1016/0043-1354(94)00146-X).
6. Boumechhour F, Rabah K, Lamine C, Said BM. Treatment of landfill leachate using Fenton process and coagulation/flocculation. *Water and Environment Journal*. 2013;27;114-119;Available from: <https://doi.org/10.1111/j.1747-6593.2012.00332.x>.
7. Yanshi Z, Shan Q, Fengxia D, Yingshi Z, Guojun L, Fang M. Three-dimensional electro-Fenton system with iron foam as particle electrode for folic acid waste water pretreatment. *Separation and Purification Technology*. 2019;224;463-474;Available from: <https://doi.org/10.1016/j.seppur.2019.05.054>.
8. Xiaobiao Z, Jinping T, Rui L, Lujun C. Optimization of Fenton and electro-Fenton oxidation of biologically treated coking wastewater using response surface methodology. *Separation and Purification Technology*. 2011;81;444-450;Available from: <https://doi.org/10.1016/j.seppur.2011.08.023>.
9. Gengbo R, Minghua Z, Mengmeng L, Liang M, Huijia Y. A novel vertical-flow electro-Fenton reactor for organic wastewater treatment. *Chemical Engineering Journal*. 2016;298;55-67;Available from: <https://doi.org/10.1016/j.cej.2016.04.011>.
10. Carmina B, Rosa MA, Enric B, Ignasi S. Advantages of electro-Fenton over electro coagulation for disinfection of dairy wastewater. *Chemical Engineering Journal*. 376;2018;119975;Available from: <https://doi.org/10.1016/j.cej.2018.09.136>.
11. James IC, Mark DGL, Chia CS, Ming CL. Treatment of thin film transistor-liquid crystal display (TFT-LCD) wastewater by the electro-Fenton process. *Separation and Purification Technology*. 2015;145;104-112;Available from: <https://doi.org/10.1016/j.seppur.2015.02.039>.
12. Dilek G, Feryal A. Comparison of Fenton and electro-Fenton processes for oxidation of phenol. *Process Safety and Environmental Protection*. 2016;103;252-258;Available from: <https://doi.org/10.1016/j.psep.2016.07.008>.
13. Sruthi T, Gandhimathi R, Ramesh ST, Nidheesh PV. Stabilized landfill leachate treatment using heterogeneous Fenton and electro-Fenton processes. *Chemosphere*. 2018;210;38-43;Available from: <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2018.06.172>.
14. Júlia BW, Elisa VS, Eduardo HR, Daiana S. Bioassays and Zahn-Wellens test assessment on landfill leachate treated by photo-Fenton process, 2018;6;1390-1395;Available from: <https://doi.org/10.1016/j.jece.2018.01.059>.
15. Soraya M, Hamidi AA, Mohamed HI, Mohammad AZ, Mohd NA. Statistical optimization of process parameters for landfill leachate treatment using electro-Fenton technique, *Journal of Hazardous Materials*. 2010;176(1-3);749-58;Available from: <https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2009.11.099>.
16. Rostamizadeh M, Abbas J, Soorena G. High efficient decolorization of Reactive Red 120 azo dye over reusable Fe-ZSM-5 nanocatalyst in electro-Fenton reaction, *Separation and Purification Technology*. 2018;30;340-347;Available from: <https://doi.org/10.1016/j.seppur.2017.10.041>.
17. Eyüp A. Treatment of landfill leachate by using electro-Fenton method. *Journal of Hazardous Materials* 2009;163(1):109-14;Available from: <https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2008.06.067>.

Study of the treatment of leachate after biodigestion using Electro-fenton method

Pham Kieu Tuyet Tran¹, Tran Le Luu^{2,*}



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

ABSTRACT

Leachate contains many non-biodegradable organic compounds and nutrients with high concentrations, especially from urban waste landfills with long operating times (> 10 years), which affects the human health and environmental quality. Electro-Fenton is one of the advanced oxidation processes (AOPs) that has been recently studied for the treatment of many persistent organic compounds in water. In this study, post-biological leachate (continuous flow biological tank) was treated using Electro-Fenton method with heterogeneous catalysts as Iron (II) Sulfide and Iron Oxide on two electrodes Ti/IrO₂-Ta₂O₅ and Ti/RuO₂. The effect of different pH conditions on the pollutant removal efficiency in landfill leachate was studied. The results show that Ti/IrO₂-Ta₂O₅ electrode and Iron (II) Sulfide catalyst obtain better leachate treatment performance than the others under the same experimental conditions. The heterogeneous Electro-Fenton process was capable of removing 71% of chemical oxygen demand (COD), 88% of total organic carbon (TOC), 89% of total nitrogen (TN), 93% of ammonium nitrogen N-NH₄⁺ and 99% color at Ti/IrO₂-Ta₂O₅ electrode and Iron (II) Sulfide catalyst at a pH 3, current density 333 mA/cm² after 90 minutes of electrolysis. The results showed that the Electro-Fenton method capable effective treatment of pollutants in the post-biological leachate in the future.

Key words: Leachate, Electro-fenton, catalyst, pH

¹Faculty of Environment and Labour Safety, Ton Duc Thang University, No 19 Nguyen Huu Tho, Tan Phong Ward, District 7, Ho Chi Minh city, Vietnam

²Master program in Water Technology, Reuse and Management, Vietnamese German University, 10 Hoang Dieu, Phu Nhuan District, Ho Chi Minh city, Vietnam

Correspondence

Tran Le Luu, Master program in Water Technology, Reuse and Management, Vietnamese German University, 10 Hoang Dieu, Phu Nhuan District, Ho Chi Minh city, Vietnam

Email: luu.tl@vgu.edu.vn

History

- Received: 24/6/2021
- Accepted: 17/8/2021
- Published: 23/8/2021

DOI : 10.32508/stdjsee.v5i2.564



Copyright

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



Cite this article : Tran P K T, Luu T L. **Study of the treatment of leachate after biodigestion using Electro-fenton method.** *Sci. Tech. Dev. J. - Sci. Earth Environ.*; 5(2):377-387.