

NGHIÊN CỨU SỬ DỤNG Bùn THẢI NHÀ MÁY NƯỚC CẤP ĐỂ CHẾ TẠO VẬT LIỆU HẤP PHỤ PHOSPHATE TRONG MÔI TRƯỜNG NƯỚC

Dương Quang Thông¹, Lê Tuấn Kiệt², Dương Võ Anh Thư²,
Nguyễn Võ Châu Ngân³, Kim Lavane^{3,*}

TÓM TẮT

Mục đích của nghiên cứu này là đánh giá khả năng hấp phụ lân (PO_4^{3-}) trong dung dịch của bùn thải nhà máy xử lý nước cấp. Bùn thải được thu thập tại nhà máy xử lý nước cấp Châu Đốc và được sấy ở $105^\circ C$ tại phòng thí nghiệm trước khi nung trong thời gian 2 giờ ở nhiệt độ $300^\circ C$ và $550^\circ C$ trong điều kiện thường và $550^\circ C$ trong môi trường khí nitơ. Các thí nghiệm lần lượt được tiến hành để xác định các yếu tố ảnh hưởng, gồm: Thời gian tiếp xúc, điều kiện nung, pH của dung dịch đến hiệu suất loại bỏ PO_4^{3-} . Kết quả thí nghiệm cho thấy, quá trình hấp phụ đạt đến trạng thái bão hòa sau thời gian tiếp xúc khoảng 12 giờ. Bùn nung ở nhiệt độ $300^\circ C$ có khả năng hấp phụ PO_4^{3-} tốt hơn so với 2 điều kiện còn lại trong thí nghiệm. Tại giá trị pH=3,0, hiệu suất hấp phụ đạt cao nhất và giảm dần khi pH tăng. Kết quả phân tích động học hấp phụ của vật liệu nung $300^\circ C$ để loại bỏ PO_4^{3-} cho thấy, quá trình hấp phụ tuân theo mô hình động học biểu kiến bậc một với hệ số tương quan ($R^2=0,969$). Hấp phụ PO_4^{3-} trên bùn nung $300^\circ C$ tuân theo mô hình đẳng nhiệt Langmuir ($R^2=0,998$). Kết quả nghiên cứu cho thấy, vật liệu hấp phụ chế tạo từ bùn thải của nhà máy cấp nước hấp phụ tốt để loại bỏ PO_4^{3-} trong dung dịch.

Từ khóa: Bùn xử lý nước cấp, lân (PO_4^{3-}), hấp phụ.

1. ĐẶT VẤN ĐỀ

Phosphate được coi là nguyên tố chính gây ra hiện tượng phú dưỡng trong các thủy vực nước ngọt. Các nguồn chủ yếu của phosphate trong các vùng nước mặt là nước thải đô thị, nước thải công nghiệp và phân từ chăn nuôi, cũng như dòng chảy từ đất nông nghiệp [1]. Nước thải có chứa phosphate cần được xử lý trước khi xả để loại bỏ nguy cơ gây phú dưỡng vùng nước tiếp nhận. Đối với công nghệ loại bỏ phosphate, các phương pháp vật lý có thể được sử dụng là thẩm thấu ngược, thiết bị phản ứng sinh học màng, nhưng những phương pháp này quá đắt hoặc không hiệu quả; ngoài ra còn có phương pháp xử lý hóa học bao

gồm kết tủa phosphate với các muối kim loại như nhôm (Al), canxi (Ca) và sắt (Fe) [2].

Hạn chế chính của phương pháp xử lý hóa học là ô nhiễm thứ cấp có thể xảy ra do lượng bùn phát sinh quá nhiều, nhu cầu trung hòa pH và chi phí xử lý cao do liều lượng thay đổi [1]. Do đó, việc tìm kiếm các chất hấp phụ chi phí thấp vẫn là chủ đề nghiên cứu tích cực để loại bỏ phosphate. Cho đến nay, một số vật liệu đã được nghiên cứu để hấp phụ PO_4^{3-} có nguồn gốc từ tự nhiên và chất thải được biến tính từ bùn đỏ hoạt tính [3], cát [4, 5], tro bay [6]. Ngoài ra, các tài liệu lưu ý rằng, bùn thải nhà máy nước cấp cũng đã được khảo sát sơ bộ để sử dụng trong loại quy trình này với mức độ thành công khác nhau [7]

Phèn nhôm được sử dụng phổ biến chất đông tụ trong xử lý nước cấp cho sinh hoạt. Chúng dễ dàng bị thủy phân trong nước để tạo thành hydroxit nhôm tương ứng, có tác dụng kết tủa các tạp chất keo, chất rắn lơ lửng như phù sa, đất sét, các hạt humic có trong nước thô. Trong hệ thống

¹ Học viên cao học, Khoa Môi trường và Tài nguyên thiên nhiên, Trường Đại học Cần Thơ

² Sinh viên đại học, Khoa Môi trường và Tài nguyên thiên nhiên, Trường Đại học Cần Thơ

³ Khoa Môi trường và Tài nguyên thiên nhiên, Trường Đại học Cần Thơ

* Email: klavane@ctu.edu.vn

xử lý nước cấp, bùn thải phát sinh chủ yếu từ công đoạn lắng. Bùn thải lỏng được xả ra ngoài vào các ao lắng và sau đó được phơi tự nhiên để giảm độ ẩm trước khi thải. Hiện nay, bùn thải của các nhà máy nước cấp chủ yếu để san lấp mặt bằng hoặc phải được xử lý chôn lấp như một dạng chất thải rắn. Nghiên cứu cho thấy, bùn thải nhà máy nước cấp có chứa hàm lượng các ô-xít silic, nhôm, sắt và có ứng dụng trong nông nghiệp và môi trường [8, 9].

Việc tái sử dụng bùn thải nhà máy nước cấp sẽ mang lại lợi ích về mặt kinh tế và môi trường. Các ion nhôm vô định hình dồi dào trong bùn thải có thể trở nên có giá trị để loại bỏ phốt pho trong nước thải vì các ion này tăng cường quá trình hấp phụ và kết tủa hóa học [10, 11]. Do đó, nghiên cứu này nhằm thử nghiệm khả năng hấp phụ phosphate trong dung dịch bằng bùn thải nung bằng cách khảo sát các yếu tố ảnh hưởng gồm thời gian tiếp xúc, pH và nồng độ phosphate ban đầu. Kết quả của nghiên cứu rất hữu ích cho việc tái sử dụng chất thải để tạo ra chất hấp phụ có ích nhằm thu hồi dưỡng chất và loại bỏ chúng khỏi môi trường nước.

2. PHƯƠNG PHÁP NGHIÊN CỨU

2.1. Vật liệu

Bảng 1. Thành phần, tính chất bùn thải

Thành phần	Giá trị
pH	6,8 ± 0,1
C	22,9 ± 2,52%
O	49,2 ± 1,97%
Al	9,85 ± 0,07%
Si	12,4 ± 0,54%
K	1,40 ± 0,10%
Fe	3,75 ± 0,44%
Mg	0,42 ± 0,36%
Nguyên tố khác	KPH

Ghi chú: KPH: Không phát hiện

Bùn thải sử dụng trong nghiên cứu được thu thập tại Xi nghiệp Cấp nước Châu Đốc, phường Châu Phú A, thành phố Châu Đốc, tỉnh An Giang, có công suất 40.000 m³/ngày.đêm, với nguồn nước đầu vào từ sông Hậu. Tại nhà máy cấp nước, bùn được phơi trong điều kiện tự nhiên để làm giảm độ ẩm của bùn. Tính chất của bùn thải nước cấp được trình bày trong bảng 1. Bùn sau khi thu thập từ nhà máy được sấy khô tuyệt đối ở nhiệt độ 105°C. Sau đó, bùn tiếp tục được nung ở 300°C và 550°C trong điều kiện phòng thí nghiệm bằng lò nung F0311 (Nhật Bản). Bên cạnh đó, bùn cũng được nung trong môi trường không có oxy ở nhiệt độ 550°C bằng lò nung VMF 165 cấp khí nitơ (Nhật Bản) [12]. Sau khi nung ở các điều kiện khác nhau thì bùn sẽ được đập, nghiền nhỏ và sàng qua rây có số hiệu 10 và 18 để thu được hạt vật liệu hấp phụ có kích thước 1 - 2 mm.

2.2. Bố trí thí nghiệm

2.2.1. Thí nghiệm 1: Ảnh hưởng của điều kiện nung và thời gian tiếp xúc

Thí nghiệm được thực hiện trong các bình tam giác 250 mL. Mỗi bình tam giác chứa 100 mL dung dịch PO₄³⁻ có nồng độ 5 mg/L và 1,2 g vật liệu hấp phụ được nung ở 3 điều kiện khác nhau và rây sàng cho kích thước hạt 1 - 2 mm. Trong thời gian thí nghiệm, các bình phản ứng được đậy bằng giấy bạc và lắc đều bằng máy lắc tại 120 vòng/phút với nhiệt độ duy trì ổn định ở mức 30°C. Thời gian tiếp xúc trong thí nghiệm lần lượt là: 0,5 giờ, 1,0 giờ, 2,0 giờ, 3,0 giờ, 4,0 giờ, 5,0 giờ, 6,0 giờ, 8,0 giờ, 10 giờ, 12 giờ, 16 giờ, 20 giờ, 24 giờ và mỗi mốc thời gian được lặp lại 3 lần. Vật liệu nung cho kết quả hấp phụ cao nhất sẽ được chọn để làm các thí nghiệm tiếp theo.

2.2.2. Thí nghiệm 2: Ảnh hưởng của khối lượng chất hấp phụ

Vật liệu nung được chọn từ kết quả thí nghiệm 1 sẽ được cân với các khối lượng 0,8 g, 1,2 g, 1,6 g, 2,0 g, 2,4 g và cho bình tam giác 250 mL, mỗi khối lượng chất hấp phụ được lặp lại 3 lần. 100 mL dung dịch PO₄³⁻ có nồng độ 5 mg/L được thêm vào bình và đậy lại bằng giấy bạc. Các bình phản ứng được lắc đều bằng máy lắc tại 120 vòng/phút và nhiệt độ

duy trì ở mức 30°C. Thời gian tiếp xúc được chọn tương tự như thí nghiệm 1.

2.2.3. Thí nghiệm 3: Ảnh hưởng của pH dung dịch

Trong thí nghiệm này, khối lượng vật liệu hấp phụ, thời gian tiếp xúc và nồng độ PO_4^{3-} được duy trì tương tự như thí nghiệm 2. Tuy nhiên, pH của dung dịch chứa PO_4^{3-} được hiệu chỉnh với các giá trị tương ứng là 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8, 9 và 10. pH của dung dịch được điều chỉnh bằng H_2SO_4 (1 M và 0,1 M) và NaOH (1 M và 0,1 M). Sau đó, các bình tam giác thí nghiệm được lắc đều bằng máy lắc tại 120 vòng/phút và nhiệt độ được duy trì ở mức 30°C.

2.2.4. Thí nghiệm 4: Ảnh hưởng của nồng độ ban đầu của PO_4^{3-}

Thí nghiệm khảo sát ảnh hưởng của nồng độ PO_4^{3-} được thực hiện với sự thay đổi nồng độ gồm: 5, 10, 15, 20, 25, 30, 40, 50, 60, 70, 80 mg/L. pH dung dịch được hiệu chỉnh về điều kiện trung tính (pH=7,0). Các thí nghiệm được lặp lại 3 lần tại mỗi nồng độ khác nhau. Thời gian tiếp xúc và khối lượng vật liệu hấp phụ tương tự như thí nghiệm 2 và 3. Các bình thí nghiệm được lắc đều bằng máy lắc tại tốc độ 120 vòng/phút và nhiệt độ được duy trì ở mức 30°C.

2.3. Phân tích, đánh giá cơ chế và động học của quá trình hấp phụ PO_4^{3-}

Lượng PO_4^{3-} hấp phụ trên khối lượng vật liệu ở trạng thái cân bằng và hiệu quả loại bỏ PO_4^{3-} được tính theo công thức sau [13]:

Dung lượng Q_e của vật liệu:

$$Q_e = \frac{(C_0 - C_e) \cdot V}{m} \quad (\text{mg/g}) \quad (1)$$

Hiệu suất hấp phụ của vật liệu:

$$H = \frac{(C_0 - C_e) \cdot 100}{C_0} \quad (\%) \quad (2)$$

Trong đó: Q_e (mg/g) là dung lượng hấp phụ ở thời điểm cân bằng; V (L) là thể tích dung dịch; m (g) là khối lượng chất hấp phụ; C_0 (mg/L) là nồng độ ban đầu của chất bị hấp phụ; C_e (mg/L) là nồng độ chất bị hấp phụ ở thời điểm cân bằng; H (%) là hiệu suất hấp phụ.

Phương trình động học biểu kiến bậc một:

$$\ln(q_e - q_t) = \ln(q_e) - k_1 \cdot t \quad (3)$$

Phương trình động học biểu kiến bậc hai:

$$\frac{t}{q_t} = \frac{1}{k_2 q_e^2} + \frac{1}{q_e} t \quad (4)$$

Trong đó: q_e , q_t (mg/g) lần lượt là dung lượng hấp phụ tại thời điểm cân bằng và thời điểm t ; k_1 là hằng số tốc độ hấp phụ biểu kiến bậc một (1/phút); k_2 là hằng số tốc độ hấp phụ biểu kiến bậc hai (g/mg.phút).

Mô hình Langmuir và Freundlich được sử dụng để phân tích dữ liệu thực nghiệm cho đường đẳng nhiệt hấp phụ. Các phương trình Langmuir và Freundlich có thể được viết như sau [14]:

Mô hình Langmuir:

$$\frac{C_e}{q_e} = \frac{C_e}{q_{\max}} + \frac{1}{q_{\max} K_L} \quad (5)$$

Trong đó: q_e (mg/g) là dung lượng hấp phụ ứng với nồng độ C_e ; $q_{\max}$ (mg/g) là dung lượng hấp phụ cực đại đơn lớp; C_e (mg/L) là nồng độ chất hấp phụ lúc cân bằng; K_L (L/mg) là hằng số hấp phụ Langmuir.

Mô hình Freundlich:

$$\ln q_e = \ln K_F + \frac{1}{n} \ln C_e \quad (6)$$

Trong đó: q_e (mg/g) là dung lượng hấp phụ ứng với nồng độ C_e ; C_e (mg/L) là nồng độ chất hấp phụ lúc cân bằng; K_F là hằng số Freundlich (mg/g) (mg/L)ⁿ; n là hằng số đẳng nhiệt Freundlich có quan hệ đến cường độ hấp phụ.

2.4. Phân tích và xử lý số liệu

Dung dịch sau thí nghiệm được lọc qua giấy lọc trước khi phân tích. PO_4^{3-} trong dung dịch trước và sau thí nghiệm được phân tích theo phương pháp SnCl_2 . Cụ thể, 50 mL mẫu được rút và cho vào bình tam giác 125 mL. Thêm 2 mL dung dịch molybdate (0,02M) và 0,25 mL dung dịch SnCl_2 (0,1M) vào bình tam giác chứa mẫu và sau đó lắc đều. Sau thời gian phản ứng 10 phút, mẫu được đo độ hấp phụ ở bước sóng 690 nm. Số liệu thí nghiệm sau đó được xử lý và vẽ biểu đồ bằng Microsoft Excel 2016.

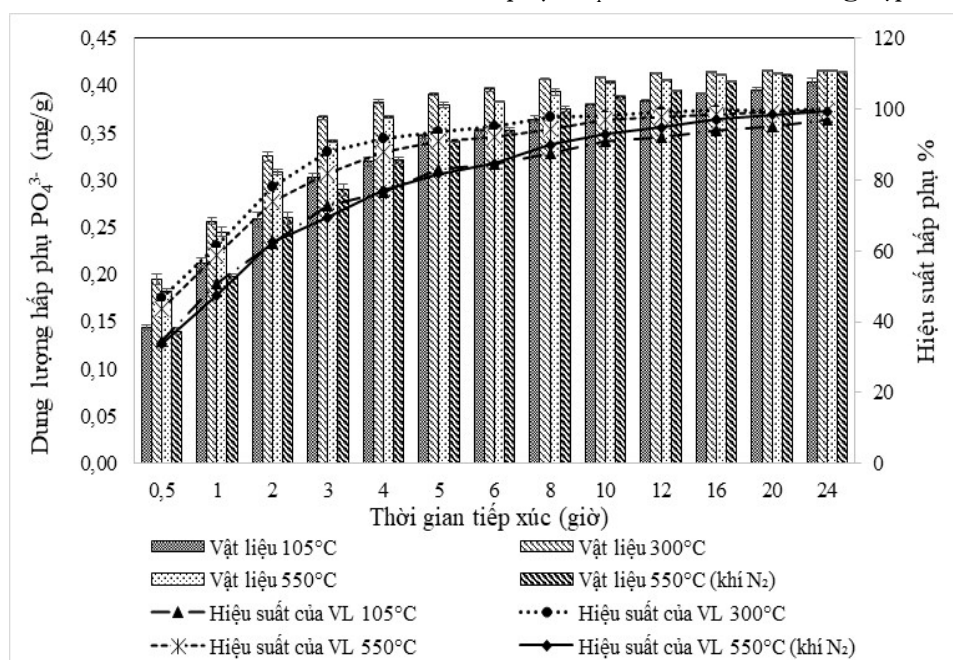
3. KẾT QUẢ NGHIÊN CỨU VÀ THẢO LUẬN

3.1. Các yếu tố ảnh hưởng đến quá trình hấp phụ PO_4^{3-}

3.1.1. Ảnh hưởng của nhiệt độ và điều kiện nung

Hình 1 thể hiện khả năng hấp phụ PO_4^{3-} của các chất hấp phụ khác nhau. Kết quả cho thấy, khả năng hấp phụ PO_4^{3-} của các loại vật liệu nung là khác nhau trong 12 giờ đầu và từ 12 - 24 giờ không có sự khác biệt. Cụ thể, vật liệu có khả năng hấp phụ PO_4^{3-} tốt nhất là vật liệu nung ở 300°C . Lượng PO_4^{3-} bị hấp phụ sau thời gian tiếp xúc lần lượt từ 0,5 - 12 giờ là 0,195 - 0,413 mg/g với hiệu suất hấp

phụ dao động từ 46,7 - 99,16%. Khi bùn được sấy 105°C cho khả năng hấp phụ PO_4^{3-} kém nhất và lượng PO_4^{3-} bị hấp phụ sau 0,5 - 12 giờ là 0,143 - 0,384 mg/g, với hiệu suất hấp phụ từ 34,43 - 92,12%. Khi bùn được sấy và nung ở nhiệt độ khác nhau thì cấu trúc vật liệu thay đổi. Theo Jeon và cs (2018) [15], diện tích bề mặt của bùn tăng 26 lần khi nung ở 300°C so với sấy ở 105°C . Tuy nhiên, nếu tăng nhiệt độ lên $500 - 550^\circ\text{C}$ thì diện tích bề mặt có hướng giảm do các bon bị đốt cháy nhiều hơn và làm tăng kích thước lỗ hổng trong vật liệu [15]. Đặc điểm này có thể là một trong những yếu tố cho thấy bùn nung ở 300°C cho hiệu quả hấp phụ PO_4^{3-} tốt hơn so với trường hợp còn lại.



Hình 1. Ảnh hưởng của nhiệt độ nung đến khả năng hấp phụ PO_4^{3-}

Một nguyên nhân khác có thể ảnh hưởng đến khả năng hấp phụ của các vật liệu là sự thay đổi các liên kết của các nguyên tố hóa học bên trong bùn. Ở nhiệt độ 105°C , lượng các bon trong bùn không được đốt cháy và do đó không làm thay đổi nhiều liên kết của các nguyên tố. Theo Jeon và cs (2018) [15], liên kết Al-O được cho là chiếm ưu thế khi được nung ở 300°C . Liên kết này cũng không thay đổi khi nung ở 550°C , tuy nhiên, các cấu trúc vô định hình hydroxit nhôm bị chuyển thành các dạng cấu trúc tinh thể đồng thời giảm diện tích bề mặt [15].

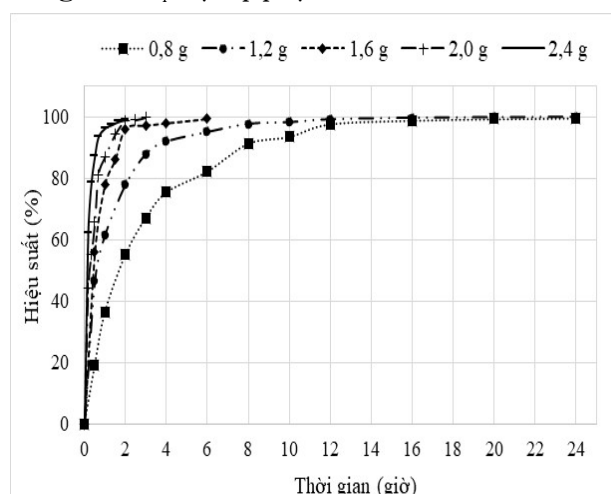
3.1.2. Ảnh hưởng khối lượng vật liệu hấp phụ

Ảnh hưởng của khối lượng vật liệu lên quá trình hấp phụ PO_4^{3-} theo thời gian được thể hiện trong hình 2. Nghiên cứu cho thấy, đối với khối lượng vật liệu là 0,8 g, 1,2 g và 1,6 g thì lượng PO_4^{3-} bị hấp phụ nhanh ở thời gian đầu từ 30 phút đến 360 phút; 30 phút đến 360 phút và 30 phút đến 90 phút. Khi khối lượng vật liệu tăng 2,0 g và 2,4 g thì lượng PO_4^{3-} bị hấp phụ nhanh ở thời gian đầu từ 10 - 90 phút và 10 - 40 phút. Hiệu suất của quá trình hấp phụ ổn định sau thời gian 480 phút đối với khối lượng vật liệu 0,8 g và 1,2 g. Điều này cho

thấy, vật liệu hấp phụ đã đạt đến trạng thái bão hòa. Khi tăng khối lượng vật liệu hấp phụ thì thời gian hấp phụ ngắn. Khi khối lượng vật liệu lớn sẽ cung cấp tổng bề mặt lớn và do đó tốc độ hấp phụ diễn ra nhanh. Theo Maqbool và cs (2015) [16], thời gian hấp phụ khoảng 90 phút. Do đó, nếu các thí nghiệm tiếp theo sử dụng thời gian sau 90 phút là thích hợp.

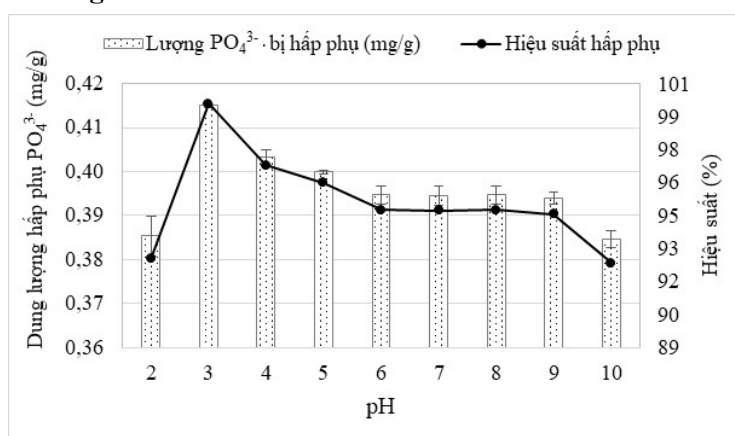
Khi tăng khối lượng của vật liệu nung 300°C từ 0,8 - 2,4 g sẽ làm giảm lượng PO_4^{3-} bị hấp phụ. Trong khi đó, hiệu suất hấp phụ PO_4^{3-} có xu hướng tăng và tỷ lệ thuận với sự thay đổi khối lượng chất hấp phụ (Hình 4). Cụ thể, hiệu suất hấp phụ PO_4^{3-} tăng từ 55,2- 99,11% khi tăng khối lượng từ 0,8 - 2,4 g và tương ứng với lượng PO_4^{3-} bị hấp phụ giảm dần là 0,345 - 0,206 mg/g. Điều này chứng minh rằng, việc tăng khối lượng chất hấp phụ dẫn đến diện tích bề mặt lớn hơn và làm tăng sự cạnh tranh giữa chất hấp phụ khiến dung lượng hấp phụ giảm đi. Bên cạnh đó, theo Dang Thi Thanh Loc và cs

(2018) [17], khi tăng khối lượng chất hấp phụ sẽ làm giảm PO_4^{3-} bị hấp phụ.



Hình 2. Hiệu suất hấp phụ theo của thời gian của khối lượng vật liệu khác nhau

3.1.3. Ảnh hưởng của pH dung dịch



Hình 3. Ảnh hưởng của pH đến khả năng hấp phụ PO_4^{3-}

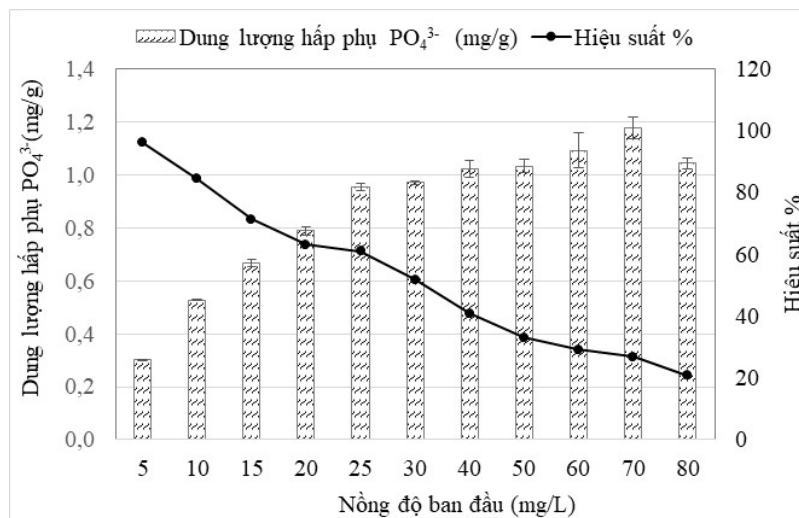
Hiệu suất hấp phụ PO_4^{3-} của vật liệu nung 300°C có xu hướng tăng khi tăng pH từ 2 - 3 và bắt đầu có xu hướng giảm khi tăng giá trị pH từ 4 - 6 (Hình 4). Cụ thể, hiệu suất hấp phụ PO_4^{3-} là 92,53% tại pH = 2 lên đến 99,6% tại pH = 3, với lượng PO_4^{3-} bị hấp phụ tương ứng từ 0,385 mg/g lên 0,415 mg/g. Hiệu suất hấp phụ PO_4^{3-} giảm xuống 96,80% tại pH = 4, với lượng PO_4^{3-} bị hấp phụ tương ứng là 0,403 mg/g, tiếp tục giảm xuống 96% tại pH = 5, với lượng PO_4^{3-} bị hấp phụ tương ứng là 0,400 mg/g và giảm xuống 94,76% tại pH = 6, với lượng PO_4^{3-} bị hấp phụ tương ứng là 0,395 mg/g. Hiệu suất hấp phụ PO_4^{3-} có xu hướng ổn định khi tăng

pH từ 6 - 9, với hiệu suất 94,73% tại pH = 7, với lượng PO_4^{3-} bị hấp phụ tương ứng là 0,395 mg/g, với hiệu suất 94,76% tại pH = 8, với lượng PO_4^{3-} bị hấp phụ tương ứng là 0,395 mg/g, với hiệu suất 94,57% tại pH = 9, với lượng PO_4^{3-} bị hấp phụ tương ứng là 0,394 mg/g. Khi tăng pH đến 10 thì hiệu suất hấp phụ PO_4^{3-} giảm đáng kể, còn 92,35%, với lượng PO_4^{3-} bị hấp phụ là 0,385 mg/g. Như vậy, ở pH = 3 thì hiệu suất hấp phụ PO_4^{3-} cao nhất là 99,06% và lượng PO_4^{3-} bị hấp phụ là 0,415 mg/g. Do đó, giá trị pH = 3 được xác định là pH thích hợp cho quá trình hấp phụ PO_4^{3-} . Từ kết quả trên có thể kết luận, ở pH axit thì khả năng hấp phụ PO_4^{3-} là

tốt hơn pH bazơ. Việc tăng giá trị pH từ 3 - 10 dẫn đến giảm khả năng hấp phụ PO_4^{3-} của vật liệu nung 300°C . Kết quả này tương đồng với nghiên cứu của Dang Thi Thanh Loc và cs (2018) [17], khi nghiên cứu loại bỏ PO_4^{3-} khỏi dung dịch bằng cách sử dụng biến đổi bùn từ nhà máy xử lý nước. Theo đó, khi tăng giá trị pH từ 3 - 10 thì khả năng hấp phụ PO_4^{3-} của vật liệu giảm. Trong dung dịch, PO_4^{3-} tồn tại chủ yếu dưới các dạng H_3PO_4 , H_2PO_4^- , HPO_4^{2-} , PO_4^{3-} và phụ thuộc vào nồng độ pH. Ở khoảng pH từ 3 - 6, H_2PO_4^- hiện diện chủ yếu và có thể dễ dàng bị hấp phụ bởi oxit kim loại chứa trong vật liệu. Trong khi đó, sự gia tăng giá trị pH có thể thay đổi bề mặt vật liệu thành bề mặt tích điện âm. Khi độ pH của dung dịch tăng lên, các ion hydroxyl (OH^-) chủ yếu tồn tại trong vật liệu, làm tăng tốc độ cạnh tranh cho vị trí liên kết giữa các ion PO_4^{3-} và OH^- trên bề mặt vật liệu, dẫn đến làm giảm khả năng hấp phụ PO_4^{3-} của vật liệu. Kết hợp lại với nhau, kết quả này cho thấy, sự hấp phụ PO_4^{3-} được ưu tiên ở các giá trị pH thấp hơn.

3.1.4. Ảnh hưởng của nồng độ ban đầu của PO_4^{3-}

Kết quả ảnh hưởng của nồng độ PO_4^{3-} ban đầu đến hiệu quả xử lý PO_4^{3-} của vật liệu 300°C được thể hiện ở hình 4 cho thấy, khi tăng nồng độ ban đầu của dung dịch PO_4^{3-} từ 5 - 20 mg/L thì lượng hấp phụ tăng từ 0,300 - 0,789 mg/g, nồng độ ban đầu của dung dịch PO_4^{3-} từ 25 - 60 mg/L thì lượng hấp phụ tăng nhưng không đáng kể, từ 0,965 - 1,090 mg/g và nồng độ ban đầu của dung dịch PO_4^{3-} từ 70 - 80 mg/L thì lượng hấp phụ giảm từ 1,177 mg/g còn 1,043 mg/g. Tuy nhiên, hiệu suất hấp phụ lại giảm từ 96,2% xuống còn 20,9%, ở nồng độ 5 mg/L đạt hiệu suất hấp phụ cao nhất và ở nồng độ 80 mg/L đạt hiệu suất hấp phụ thấp nhất. Tương tự, theo Dang Thi Thanh Loc và cs (2018) [17], nồng độ ban đầu cao hơn làm tăng khả năng hấp phụ (0,18 - 0,90 mg/g), nhưng làm giảm hiệu suất loại bỏ P (95% - 91%).



Hình 4. Ảnh hưởng của nồng độ ban đầu đến khả năng hấp phụ PO_4^{3-}

3.2. Phân tích mô hình động học và đẳng nhiệt của quá trình hấp phụ

3.2.1. Động học hấp phụ

Mô hình động học hấp phụ được sử dụng để xác định tốc độ hấp phụ theo thời gian tiếp xúc. Quá trình hấp phụ PO_4^{3-} lên vật liệu bùn được chế tạo ở điều kiện nhiệt độ 300°C được mô phỏng theo mô hình động học biểu kiến bậc một và bậc hai ở dạng phi tuyến tính. Hình 5 biểu diễn đồ thị

của hai mô hình động học cho quá trình hấp phụ PO_4^{3-} trên vật liệu.

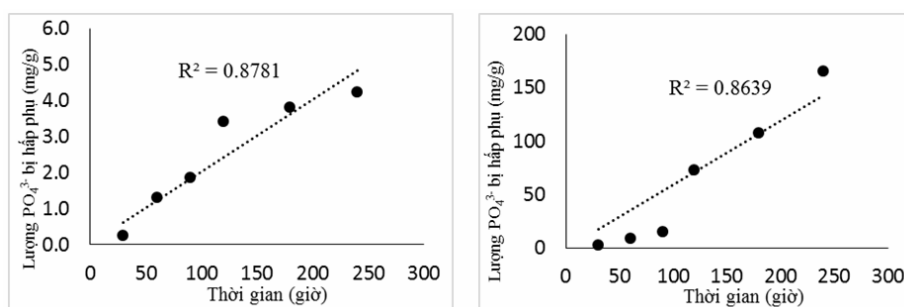
Kết quả ở bảng 2 cho thấy, hệ số tương quan của mô hình động học biểu kiến bậc một tương đối cao ($R^2 = 0,9693$), giá trị Q_e tính toán từ mô hình động học bậc một không có sự khác biệt so với giá trị Q_e thực nghiệm. Cụ thể, Q_e thực nghiệm được tìm thấy ở trạng thái cân bằng là 0,310 mg/L và giá trị Q_e được tính toán từ mô hình động học bậc một

cũng là 0,310 mg/L. Trong khi đó, hệ số tương quan ($R^2 = 0,9348$) của mô hình động học bậc hai thấp hơn mô hình động học bậc một, với giá trị Q_e tính toán từ mô hình động học bậc hai là 0,313 mg/L và cho thấy có sự khác biệt nhưng không

đáng kể so với Q_e thực nghiệm. Nhưng do hệ số tương quan R^2 của mô hình động học biểu kiến bậc một cao hơn hệ số tương quan R^2 mô hình động học biểu kiến bậc hai nên quá trình hấp phụ tuân theo mô hình động học biểu kiến bậc một.

Bảng 2. Giá trị tham số của phương trình động học biểu kiến bậc một và bậc hai

Q_e thực nghiệm (mg/g)	Mô hình động học				
	Động học biểu kiến bậc 1			Động học biểu kiến bậc 2	
	Q_e tính toán (mg/g)	K_1 (1/phút)	R^2	Q_e tính toán (mg/g)	R^2
0,310	0,310	0,0202	0,969	0,313	0,935

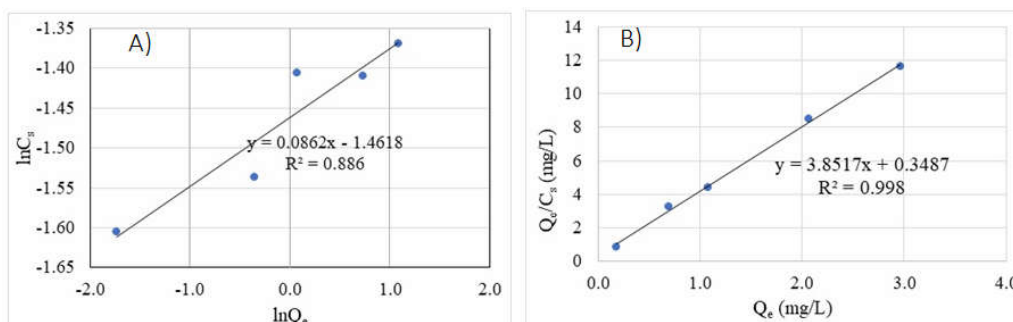


Hình 5. Mô hình động học biểu kiến bậc 1 và bậc 2

3.2.2. Đẳng nhiệt hấp phụ

Đường đẳng nhiệt hấp phụ mô tả sự tương tác giữa chất hấp phụ và bề mặt chất hấp phụ. Quá trình hấp phụ đẳng nhiệt được tiến hành với các nồng độ PO_4^{3-} ban đầu khác nhau trong điều kiện

nhệt độ được kiểm soát trong tủ ấm ($30^\circ C \pm 0,5$). Đường hấp phụ đẳng nhiệt Freundlich và Langmuir trong nghiên cứu được thể hiện trên hình 6.



Hình 6. Phương trình tuyến tính bậc 1

A) Mô hình đẳng nhiệt Freundlich, B) Mô hình đẳng nhiệt Langmuir

Mô hình đẳng nhiệt hấp phụ mô tả sự hấp phụ phân bố cân bằng của các phân tử PO_4^{3-} (pha lỏng) và chất hấp phụ (pha rắn) trong dung dịch. Dữ liệu thu được từ quá trình hấp phụ PO_4^{3-} bởi vật liệu nung $300^\circ C$ cho thấy, về hệ số tương quan thì mô hình Langmuir có hệ số tương quan $R^2 = 0,9985$ cao hơn hệ số tương quan của mô hình Frenudlich, với

$R^2 = 0,8857$ (Bảng 3). Do đó, mô hình Langmuir được cho là phù hợp với dữ liệu thực nghiệm và cho thấy sự hấp phụ PO_4^{3-} chủ yếu xảy ra bởi sự hấp phụ đơn lớp. Kết quả này tương đồng với nghiên cứu của Maqbool và cs (2016) [16], Dang Thi Thanh Loc và cs (2018) [17], với sự tương ứng của mô hình Langmuir là tốt hơn so với mô hình Freundlich.

Bảng 3. Giá trị tham số của phương trình đẳng nhiệt Freundlich và Langmuir

Mô hình đẳng nhiệt						
Freundlich			Langmuir			
1/n	K_f (mg/g) (mg/L) ⁿ	R ²	Q_{max} (mg/g)	K_L (L/mg)	R_L	R ²
0,0862	0,232	0,886	0,26	11,03	0,018	0,998

4. KẾT LUẬN

Bùn thải từ bể lắng của hệ thống xử lý nước cấp được nung ở nhiệt độ 300°C có khả năng hấp phụ PO_4^{3-} trong dung dịch cao hơn so với điều kiện nung khác trong nghiên cứu này. Kết quả nghiên cứu cho thấy, hiệu suất loại bỏ PO_4^{3-} lên đến 99,97% sau thời gian tiếp xúc là 24 giờ. Các yếu tố khảo sát gồm: pH dung dịch, khối lượng vật liệu, thời gian tiếp xúc và nồng độ PO_4^{3-} ban đầu đều có ảnh hưởng đến quá trình hấp phụ. Động học hấp phụ của vật liệu nung 300°C để loại bỏ PO_4^{3-} tuân theo mô hình động học biểu kiến bậc một với hệ số tương quan (R^2) là 0,969. Mô hình đẳng nhiệt Langmuir mô tả tốt quá trình hấp phụ PO_4^{3-} trên vật liệu nung ở nhiệt độ 300°C với hệ số tương quan (R^2) là 0,998. Từ kết quả của nghiên cứu trên có thể thấy rằng, bùn thải từ bể lắng của các hệ thống xử lý nước cấp có thể sử dụng lại để tạo ra vật liệu hấp phụ xử lý PO_4^{3-} trong dung dịch và tiềm năng áp dụng trong các hệ thống lọc và hấp phụ để xử lý nước thải.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

- Muisa, Norah, Innocent Nhapi, Walter Ruziwa and Mercy M. Manyuchi (2020). Utilization of Alum Sludge as Adsorbent for Phosphorus Removal in Municipal Wastewater: A Review. *Journal of Water Process Engineering*, 35:101–87.
- de-Bashan, L.E. and Bashan, Y. (2004). Recent advances in removing phosphorus from wastewater and its future use as fertilizer (1997-2003). *Wat. Res.*, 38(19), 4222 - 4246.
- Pradhan, J., Das, P., Das, S. and Thakur, R. S. (1998). Adsorption of phosphate from aqueous solution using activated red mud. *J. Colloid Interface Sci.*, 204 (1), 169 - 172.
- Arias, C. A., Bubba, M. D. and Brix, H. (2001). Phosphorus removal by sands for use as

media in subsurface flow constructed reed beds. *Wat. Res.*, 35(5), 1159 - 1168.

- Bubba, M. D., Arias, C. A. and Brix, H. (2003). Phosphorus adsorption maximum of sands for use media in subsurface flow constructed reed beds as measured by the Langmuir isotherm. *Wat. Res.*, 37(14), 3390 - 3400.
- Ugurlu, A. and Salman, B. (1998). Phosphorus removal by fly ash. *Environ. Int.*, 24(8), 911 - 918.
- Kim, J. G., Kim, J. H., Moon, H., Chon, C. and Ahn, J. S. (2003). Removal capacity of water plant alum sludge for phosphorus in aqueous solution. *Chem. Spec. Bioavail.*, 14, 67 - 73.
- Dassanayake, K. B., Jayasinghe, G. Y., Surapaneni, A. & Hetherington, C. (2015). A review on alum sludge reuse with special reference to agricultural applications and future challenges. *Waste Management*, 38, 321-335. doi:https://doi.org/10.1016/j.wasman.2014.11.025
- Xu, D., Lee, L. Y., Lim, F. Y., Lyu, Z., Zhu, H., Ong, S. L. & Hu, J. (2020). Water treatment residual: A critical review of its applications on pollutant removal from stormwater runoff and future perspectives. *Journal of Environmental Management*, 259, 109649. doi:https://doi.org/10.1016/j.jenvman.2019.109649
- Huang, S. H. and Chiswell, B. (2000). Phosphate removal from wastewater using spent alum sludge. *Water Sci. Technol.*, 42(3 - 4), 295 - 300.
- Chu, W. (2001). Dye removal from textile dye wastewater using recycled alum sludge. *Wat. Res.*, 35(13), 3147–3152.
- Nguyễn Hữu Chiêm, Phạm Ngọc Thoa, Phạm Văn Toàn, Nguyễn Xuân Lộc, Tăng Lê Hoài Ngân, Trương Thị Phiên, Huỳnh Thị Thanh Trúc (2021). Sử dụng đất phèn tiềm tàng nung hấp phụ

lân trong nước thải sau túi ủ biogas. *Tạp chí Khoa học Trường Đại học Cần Thơ*, 57, 24 - 33. doi:10.22144/ctu.jsi.2021.026.

13. Nguyễn Đạt Phương, Đỗ Thị Mỹ Phượng, Nguyễn Hữu Chiêm và Nguyễn Xuân Lộc (2021). Sự hấp phụ nitrat của than sinh học sản xuất từ trấu (*O. sativa* L., OM5451). *Tạp chí Khoa học Đại học Huế: Khoa học Tự nhiên*, 130(1A):31 - 39.

14. Wang, Y., Wang, H., Peng, H., Wang, Z., Wu, J. and Liu, Z. (2018). Dye Adsorption from Aqueous Solution by Cellulose/chitosan Composite: Equilibrium, Kinetics and Thermodynamics. *Fibers Polym*, 19:340 - 349.

15. Jeon, Eun Ki, Sori Ryu, Sung Woo Park, Lei Wang, Daniel C. W. Tsang and Kitae Baek

(2018). Enhanced Adsorption of Arsenic onto Alum Sludge Modified by Calcination. *Journal of Cleaner Production* 176:54 - 62. doi: 10.1016/j.jclepro.2017.12.153

16. Maqbool, Nida, Zahiruddin Khan and Aisha Asghar (2016). Reuse of Alum Sludge for Phosphorus Removal from Municipal Wastewater. *Desalination and Water Treatment*, 57(28): 13246 - 54.

17. Dang Thi Thanh Loc, Le Van Tuan and Hidenori Harada (2018). Phosphate removal from aqueous solution by using modified sludge from water treatment plant. *Vietnam Journal of Science and Technology*, 56(2C): 43 - 49. doi: 10.15625/2525-2518/56/2c/13028

USING SUPPLY WATER TREATMENT SLUDGE TO MAKE ABSORBENT MATERIAL FOR PHOSPHATE REMOVAL IN SOLUTION

**Duong Quang Thong¹, Le Tuan Kiet², Duong Vo Anh Thu²,
Nguyen Vo Chau Ngan³, Kim Lavane³**

¹Master student, College of Environment and Natural Resources, Can Tho University

²Undergraduate student, College of Environment and Natural Resources, Can Tho University

³College of Environment and Natural Resources, Can Tho University

Summary

The purpose of this study is to assess the feasibility of phosphate (PO_4^{3-}) adsorption in solution using sludge from supply water treatment plant. The sludge used in this study was collected at Chau Doc water treatment plant and dried at 105°C at the laboratory before calcining for 2 hours at temperatures of 300°C , 550°C and 550°C in nitrogen gas environment. The experiments were carried to determine the influent factors including contact time, calcined conditions and pH solution on PO_4^{3-} adsorption. The adsorption process reaches a saturated state after an exposure time of about 12 hours. The research results showed that the sludge after heating at 300°C had the ability to adsorb PO_4^{3-} better than the other 2 conditions in the experiment. At pH 3.0, the adsorption efficiency is highest and decreases as pH increases. The results of the adsorption kinetic analysis of calcined material 300°C to remove PO_4^{3-} show that the adsorption process follows a first-order apparent kinetic model with a correlation coefficient ($R^2 = 0.969$). PO_4^{3-} adsorption on calcined sludge 300°C follows the Langmuir isothermal model ($R^2=0.998$). The research results show that the sludge of the water supply treatment plant can be used as an adsorbent to remove PO_4^{3-} in aqueous solution.

Keywords: *Water treatment sludge, phosphate, adsorption.*

Người phản biện: PGS.TS. Phạm Quang Hà

Ngày nhận bài: 3/8/2023

Ngày thông qua phản biện: 28/8/2023

Ngày duyệt đăng: 7/9/2023