NGHIÊN CỨU KHẢ NĂNG HẤP PHỤ AMONI BẰNG TRO BAY TRÊN MÔ HÌNH CỘT

Văn Hữu Tập[1*], Nguyễn Thị Tuyết[1], Hoàng Thị Bích Hồng[2]
[1]*Trường Đại học Khoa học - ĐH Thái Nguyên*
[2]*Trường Đại học Hạ Long*

TÓM TẮT

Nội dung của bài báo là đánh giá khả năng xử lý amoni bằng tro bay trên mô hình cột và đánh giá ảnh hưởng của các yếu tố: nồng độ amoni đầu vào C_0 = 10-30 mg/l, ảnh hưởng của vận tốc dòng V= 3-9 ml/phút, chiều cao của cột vật liệu hấp phụ H = 10-30 cm (tương ứng 60 g, 120 g và 180 g tro bay) và đánh giá khả năng hấp phụ amoni. Các mô hình động học được áp dụng để đánh giá quá trình hoạt động của cột hấp phụ. Kết quả nghiên cứu cho thấy quá trình hấp phụ NH_4^+ của tro bay phù hợp với cả ba mô hình Thomas, Yoon – Nelson và Bohart – Adam. Hiệu suất xử lý đạt tối ưu với tốc độ dòng là 3 ml/phút, nồng độ amoni ban đầu 10 mg/l và chiều cao lớp vật liệu hấp phụ là 30 cm

Từ khóa: *xử lý amoni, hấp phụ, mô hình động, tro bay*

ĐẶT VẤN ĐỀ

Có nhiều nguyên nhân dẫn đến tình trạng nhiễm bẩn amoni trong môi trường nước, trong đó nguyên nhân chủ yếu được đề cập đến nhiều là các nguồn ô nhiễm từ hoạt động của con người như nước thải sản xuất, nước thải sinh hoạt có chứa nhiều hợp chất nitơ hòa tan. Quá trình thối rữa, phân hủy phân hữu cơ của các hệ thống chuồng trại, canh tác nông nghiệp, rác thải sinh hoạt [2]. Theo quy chuẩn kỹ thuật quốc gia về chất lượng nước sinh hoạt QCVN02:2009/ BYT, hàm lượng amoni trong nước sinh hoạt đạt chuẩn khi có hàm lượng amoni 3 mg/l. Tuy nhiên, nhiều mẫu nước ngầm đã phát hiện có hàm lượng amoni vượt tiêu chuẩn cho phép ở các tỉnh như: Hà Nội, Hà Nam, Nam Định, Ninh Bình, Hải Dương, Hưng Yên, Thái Bình đều bị nhiễm bẩn amoni rất nặng [1]. Các phương pháp xử lý amoni phổ biến hiện nay là tháp tripping, trao đổi ion, nitrat hóa – khử [7], kết tủa hóa học [5], điện [4], hấp phụ [6]. Trong đó, phương pháp hấp phụ thường được sử dụng vì phương pháp đơn giản, chi phí thấp [3]. Nhược điểm lớn nhất của phương pháp là vật liệu hấp phụ thương mại có chi phí cao. Vì thế, xu hướng việc sử dụng phế thải làm vật liệu hấp phụ càng có ý nghĩa khi đạt được mục đích là tái sử dụng được chất thải này để xử lý được chất thải khác

Tro bay với lượng thải lớn từ các nhà máy nhiệt điện.Thành phần của tro bay thường chứa các ôxít silic, ôxít nhôm, ôxít canxi, ôxít sắt và ôxít lưu huỳnh, ngoài ra có thể chứa một lượng than chưa cháy, diện tích bề mặt mao quản hớn hơn rất phù hợp để hấp phụ các chất độc trong nước thải. Trong nghiên cứu này xử lý amoni trong nguồn nước được thực hiện bằng tro bay trên mô hình cột. Mục tiêu của nghiên cứu là đánh giá hiệu quả của vật liệu này đối với hấp phụ amoni thông qua mô hình cột hấp phụ.

THỰC NGHIỆM VÀ VẬT LIỆU

- *Đối tượng nghiên cứu:* Dung dịch amoni được pha từ NH_4Cl với nồng độ gốc 1000 mg/l.

- *Vật liệu*: Tro bay đươc thu gom tại hệ thống lọc bụi tĩnh điện của Công ty nhiệt điện Cao Ngạn, tỉnh Thái Nguyên. Tro bay tại thời điểm lấy mẫu có nhiệt độ cao, khô và bảo quản cho việc sử dụng.

- *Nội dung thí nghiệm:*

+ Đánh giá ảnh hưởng của tốc độ xử lý (lựa chọn ảnh hưởng của 3 vận tốc dòng vào khác nhau) đến khả năng hấp phụ amoni trên cột hấp phụ.

* *Email: vanhuutap@gmail.com*

+ Đánh giá ảnh hưởng của nồng độ amoni đến khả năng hấp phụ amoni trên cột hấp phụ.

+ Đánh giá ảnh hưởng của chiều cao cột đến khả năng hấp phụ amoni trên cột hấp phụ bằng tro bay

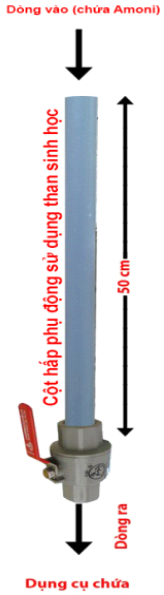
- *Phương pháp thực nghiệm:* Thực nghiệm hấp phụ amoni được thực hiện bằng mô hình cột (Hình 1) Trong cột xử lý có chứa vật liệu hấp phụ (VLHP) là tro bay. Các thí nghiệm được thực hiện để khảo sát các yếu tố ảnh hưởng của nồng độ amoni đầu vào C_0 = 10-30 mg/l, ảnh hưởng của vận tốc dòng vào V= 3-9 ml/phút, chiều cao của cột tro bay H = 10-30 cm (tương ứng 60 g, 120 g và 180 g tro bay). Mẫu đầu ra được lấy đều đặn (mỗi giờ) để xác định nồng độ amoni đầu ra cho đến khi nồng độ amoni vào bằng đầu ra. Thiết lập một số mô hình hấp phụ động như Thomas, Yoon – Nelson và Bohart – Adam trên mô hình hấp phụ động khi thay đổi tốc độ dòng chảy, nồng độ NH_4^+ ban đầu và chiều cao cột VLHP.

Phương pháp phân tích: Xác định amoni (NH_4^+) bằng phương pháp lên màu trực tiếp với thuốc thử Nessler và được so màu ở bước sóng 640 nm với máy UV-Vis spectrophotometer (DR5000, Hach). Quá trình hấp phụ được đánh giá qua đường cong thoát qua tỉ số C_t/C_0, trong đó C_t và C_0 là nồng độ amoni đầu ra và đầu vào.

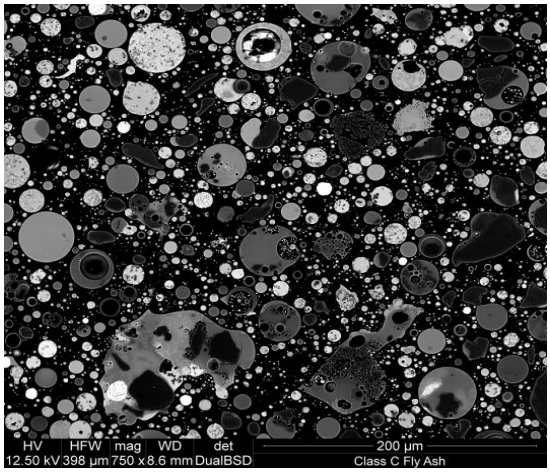
KẾT QUẢ NGHIÊN CỨU VÀ THẢO LUẬN

Tính chất của tro bay nhà máy nhiệt điện Cao Ngạn

Thành phần của tro bay thường chưa các ôxít silic, ôxít nhôm, ôxít canxi, ôxít sắt, ôxít manhe và ôxít lưu huỳnh, ngoài ra có thể chứa một lượng than chưa cháy. Cũng giống như các phụ gia khoáng hoạt tính cho bê tông khác như muội silic, tro bay là một loại puzzolan nhân tạo với thành phần chính tạo hiệu ứng puzzolan là các ôxit silic, ôxit nhôm chứa trong tro bay. Hàm lượng than chưa cháy hết trong tro bay phải < 6%, nếu lượng chất cháy chưa hết trong tro bay > 6% phải có biện pháp tinh lọc để loại than chưa cháy hết khỏi tro bay. Hàm lượng các chất ôxit nhôm, ôxit si-líc và ôxit sắt trong tro bay phải > 70%. Các hạt tro bay thường có dạng hình cầu và có kích thước từ 0.5 µm đến 300 µm. và phần lớn là các chất thủy tinh vô định hình, không đồng nhất. SiO_2, Al_2O_3, Fe_2O_3 và đôi khi CaO là các thành phần hóa học chính có trong tro bay.



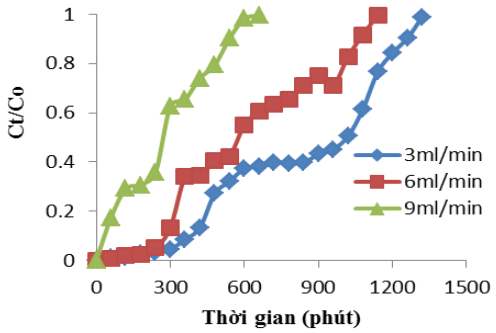
Hình 1. *Mô hình thí nghiệm cột*



Hình 2. *Ảnh SEM của tro bay*

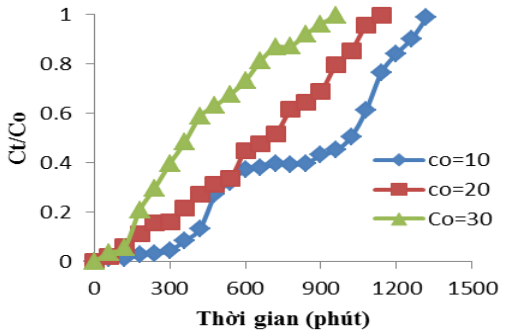
Khảo sát ảnh hưởng của tốc độ dòng vào đến hiệu quả hấp phụ amoni bằng tro bay

Kết quả khảo sát ảnh hưởng của tốc độ dòng vào đến hiệu quả hấp phụ amoni bằng tro bay được thể hiện ở hình 3.



Hình 3. *Đồ thị biểu diễn ảnh hưởng tốc độ dòng vào đến đường cong thoát khi xử lý amoni bằng tro bay*

Kết quả thể hiện trên hình 3 cho thấy khi tốc độ dòng nước chứa amoni vào cột càng nhỏ thì nồng độ NH_4^+ xuất hiện ở lối ra cột hấp phụ theo thời gian càng lớn. Điều này thể hiện rất rõ qua kết quả thực nghiệm, với vận tốc dòng vào V=3 ml/phút, hiệu suất hấp phụ NH_4^+ của tro bay xấp xỉ 52% trong thời gian đạt bão hòa là 1200 phút (20 ^{h}), khi tăng vận tốc dòng vào lên V = 6 ml/phút thì hiệu suất hấp phụ NH_4^+ của tro bay giảm xuống còn 48% và thời gian đạt bão hòa là 960 phút (16 ^{h}). Tại V=9 ml/phút thì hiệu suất hấp phụ NH_4^+ của tro bay giảm xuống chỉ còn 46.55% tương ứng thời gian bão hòa là 840 phút (14 ^{h}). Thời gian thoát và thời gian đạt bão hòa diễn ra ngắn hơn khi tăng tốc độ dòng vào. Nguyên nhân do khi tốc độ dòng vào nhỏ, thời gian tiếp xúc giữa vật liệu hấp phụ và chất bị hấp phụ lớn làm tăng khả năng hấp phụ NH_4^+ dẫn đến hiệu suất hấp phụ của cột hấp phụ tăng lên và thời gian đạt bão hòa dài hơn và ngược lại khi tốc độ dòng vào tăng thì khả năng hấp phụ NH_4^+ của tro bay diễn ra nhanh hơn dẫn đến thời gian bão hòa ngắn hơn.



Hình 4. *Đồ thị biểu diễn sự ảnh hưởng của nồng độ amoni đầu đến đường cong thoát khi xử lý bằng tro bay*

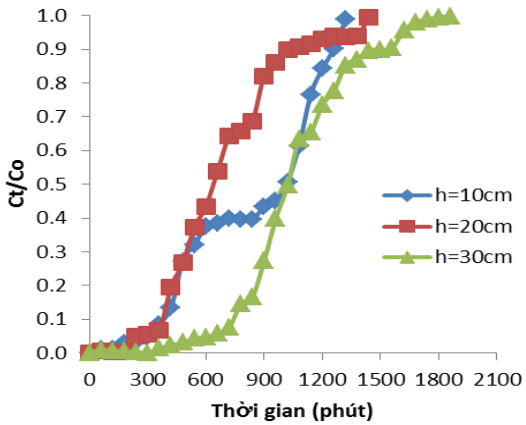
Khảo sát ảnh hưởng của nồng độ NH_4^+ đầu vào đến hiệu quả hấp phụ bằng tro bay

Kết quả khảo sát ảnh hưởng của nồng độ amoni đầu vào đến hiệu quả hấp phụ bằng tro bay được thể hiện ở hình 4.

Kết quả thể hiện ở hình 4 cho thấy khi nồng độ amoni đầu vào tăng thì lượng NH_4^+ tương ứng sau khi ra khỏi cột hấp phụ ở cùng một thời điểm tăng dẫn tới thời gian hoạt động của cột hấp phụ giảm. Khi nồng độ NH_4^+ đầu vào tăng từ 10 mg/l đến 30 mg/l thì hiệu suất hấp phụ giảm tương ứng từ 52% tương ứng thời gian đạt bão hòa là 1200 phút (20 ^{h}) xuống còn 39,13% với thời gian bão hòa là 660 phút (giảm 1,3 lần hiệu suất hấp phụ so với nồng độ 10 mg/l) và 37,5% với thời gian 600 phút (giảm 1,4 lần hiệu suất so với nồng độ 10 mg/l). Điều này chứng tỏ khi nồng độ đầu vào tăng dẫn đến khả năng hấp phụ của tro bay nhanh đạt trạng thái bão hòa do lượng amoni cao dẫn đến quá trình khuyếch tán vào bề mặt tro bay nhanh hơn dẫn đến quá trình hấp phụ xảy ra nhanh hơn nên trạng thái bão hòa đến sớm hơn.

Khảo sát ảnh hưởng của chiều cao lớp vật liệu hấp phụ đến hiệu quả hấp phụ amoni bằng tro bay

Kết quả khảo sát ảnh hưởng của chiều cao đến khả năng hấp phụ amoni được thể hiện ở hình 5.



Hình 5. *Đồ thị biểu diễn sự ảnh hưởng của chiều cao lớp tro bay đến đường cong thoát khi xử lý amoni*

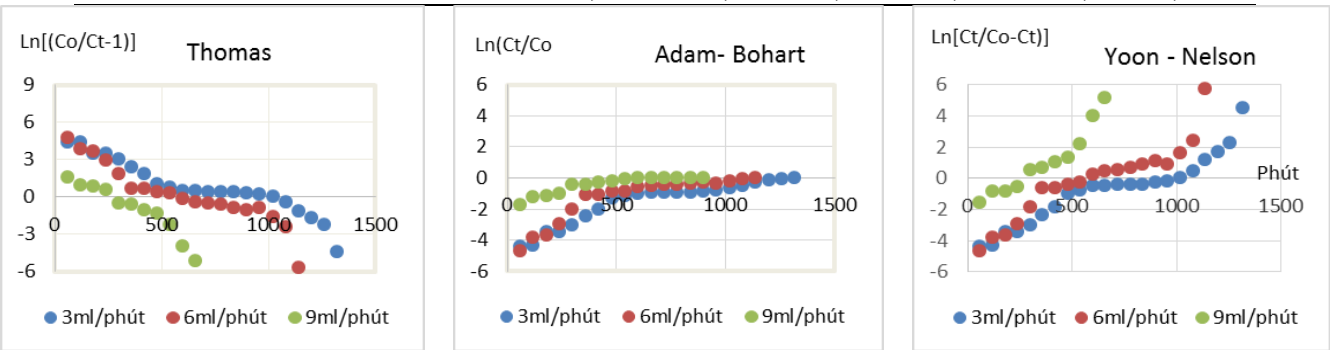
Kết quả thể hiện ở hình 5 cho thấy khi ta tăng chiều cao lớp vật liệu hấp phụ (tro bay) từ 10 cm lên 20 cm thì hiệu suất hấp phụ tăng từ 52% lên 66,67% tương ứng thời gian đạt bão hòa là 1560 phút (tăng 1,28 lần hiệu suất hấp phụ). Điều đáng chú ý là khi ta tăng chiều cao lớp vật liệu hấp phụ lên 30 cm thì hiệu suất hấp phụ tăng mạnh, lên đến hơn 78% với thời gian đạt bão hòa là 1920 phút (tăng hơn 1,5 lần hiệu suất hấp phụ so với chiều cao 10 cm). Điều này có thể được giải thích là do khi tăng chiều cao lớp vật liệu hấp phụ sẽ làm giảm tốc độ thẩm thấu của nước nhiễm NH_4^+ do đó làm tăng thời gian và khả năng tiếp xúc giữa VLHP và ion NH_4^+. Điều này cho thấy chiều cao lớp tro bay tỉ lệ thuận với hiệu suất hấp phụ.

Nghiên cứu động học hấp phụ theo các mô hình hấp phụ động

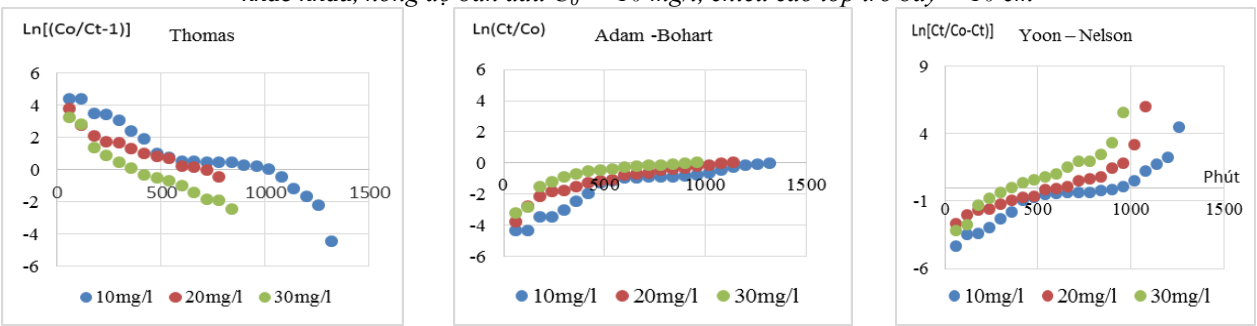
Kết quả thể hiện các mô hình động học ở bảng 1 và các hình 6, 7 và 8 cho thấy các phương trình thực nghiệm có hệ số tương quan khá cao ($R^2 > 0,85$) chứng tỏ sự hấp phụ NH_4^+ của tro bay phù hợp với cả ba mô hình Thomas, Yoon – Nelson và Bohart - Adam. Các tham số trong cả ba mô hình đều phụ thuộc vào tốc độ dòng, nồng độ ban đầu của amoni và chiều cao tro bay trong cột. Theo mô hình Thomas, dung lượng hấp phụ cực đại Q_o tăng khi tốc độ dòng vào, nồng độ ban đầu của amoni và chiều cao lớp vật liệu hấp phụ tăng. Theo mô hình Yoon – Nelson, hệ số K_{YN} tăng khi tốc độ dòng tăng và giảm khi nồng độ ban đầu của NH_4^+ tăng và chiều cao cột hấp phụ giảm.

Bảng 1. *Các tham số trong phương trình động học hấp phụ Thomas và Yoon – Nelson and Bohart-Adam*

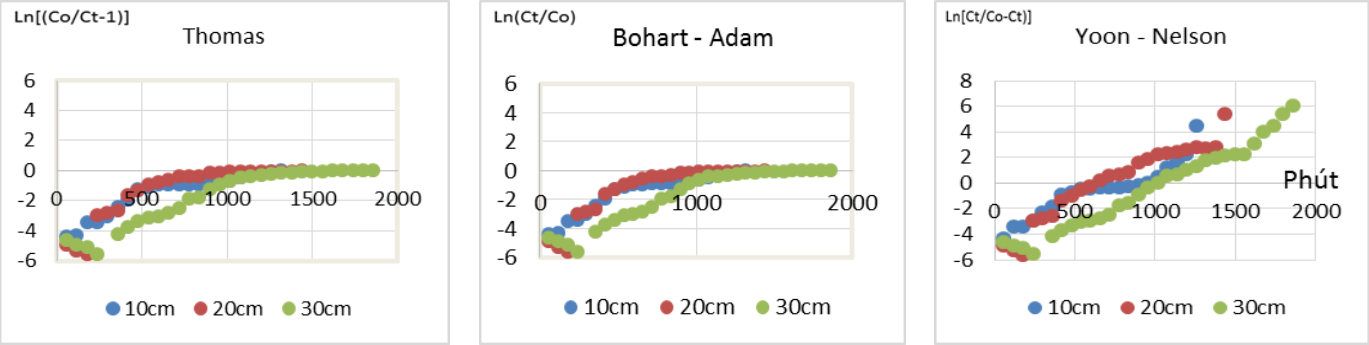
Biến số			Thomas		Yoon - Nelson		*Bohart-Adam*	
Co (mg/l)	V (ml/phút)	H (cm)	Qo (mg/g)	R^2	K_{YN}	R^2	No	R^2
10	3	10	0,44	0,9256	0,0053	0,8776	53,5	0,8488
10	6	10	0,57	0,9245	0,0073	0,9245	57,24	0,8762
10	9	10	0,41	0,9473	0,0082	0,9473	59,39	0,9368
10	3	20	0,16	0,9405	0,004	0,9405	50,17	0,8171
10	3	30	0,18	0,8987	0,0038	0,8987	49,82	0,9587
20	3	10	0,65	0,935	0,0043	0,9791	71,74	0,8723
30	3	10	0,63	0,926	0,0033	0,9227	71,97	0,9587



Hình 6. *Mô hình động học Thomas, Yoon – Nelson và Bohart - Adam dạng tuyến tính tại vận tốc dòng vào khác nhau, nồng độ ban đầu C_0 = 10 mg/l, chiều cao lớp tro bay = 10 cm*



Hình 7. *Mô hình động học Thomas, Yoon – Nelson và Bohart-Adam dạng tuyến tính tại tại các nồng độ đầu vào, chiều cao lớp tro bay = 10 cm, vận tốc dòng vào V = 3 ml/phút*



Hình 8. *Mô hình động học Thomas, Yoon – Nelson và Bohart-Adam dạng tuyến tính tại chiều cao lớp tro bay khác nhau nồng độ ban đầu Co = 10 mg/l, vận tốc dòng vào V = 3 ml/phút*

KẾT LUẬN

Tro bay là vật liệu có khả năng xử lý amoni tốt. Hiệu suất xử lý amoni phụ thuộc vào nồng độ dung dịch, vận tốc, chiều cao lớp vật liệu hấp phụ. Quá trình hấp thụ NH_4^+ tuân theo mô hình động học Thomas, Yoon – Nelson và Bohart-Adam. Với vận tốc đầu vào V=3, 6 và 9 ml/phút hiệu suất xử lý NH_4^+ đạt tương ứng là 52% tương ứng thời gian bão hòa là 1200 phút, 48% (thời gian bão hòa là 960 phút) và 46,55% (thời gian bão hòa là 840 phút). Với nồng độ NH_4^+ đầu vào 10, 20 và 30 mg/l thì hiệu suất xử lý đạt được tương ứng là 52% (thời gian bão hòa là 1200 phút), 39,13% (thời gian bão hòa là 660 phút) và 37,5% (thời gian bão hòa là 600 phút). Đối với ảnh hưởng của chiều cao lớp vật liệu hấp phụ 20ccm thì hiệu suất xử lý là 66,67% trong thời gian 1560 phút. Chiều cao 30 cm hiệu suất xử lý đạt 78,05% trong thời gian 1920 phút. Hiệu suất sử dụng cột hấp phụ lớn nhất tại điều kiện tối ưu tốc độ dòng chảy V= 3 ml/phút, nồng độ ban đầu Co=10 mg/l, chiều cao cột hấp phụ H= 30 cm hiệu suất sử dụng cột hấp phụ lớn nhất (78,05%). Đây chính là điều kiện hấp phụ tối ưu nhất của tro bay đối với quá trình xử lý NH_4^+ trong nước ngầm trong các chế độ thực nghiệm đã khảo sát.

Lời cảm ơn

Tác giả bài báo này xin cám ơn sự tài trợ kinh phí thực hiện của Đại học Thái Nguyên và Trường Đại học Khoa học thông qua đề tài cấp Đại học Thái Nguyên, mã số: ĐH 2017-TN06-05.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

1. Nguyễn Thị Hà Chi, Đoàn Trung Dũng, Phạm Ngọc Chức, Nguyễn Quang Bắc,Dương Thị Lịm, Đào Ngọc Nhiệm, (2017), "Khảo sát khả năng hấp phụ amoni của oxit phức hợp $LaFeO_3$ kích thước nanomet", *Tạp chí Hóa học*, tập 55, số 3, tr. 294-297.

2. Vũ Thị Mai (2018), *Nghiên cứu chế tạp than biến tính từ lõi ngô định dướng ứng dụng xử lý amoni trong nước sinh hoạt*, Luận án Tiến sỹ kỹ thuật môi trường,

3. Vũ Thị Mai, Trịnh Văn Tuyên, (2016), "Nghiên cứu khả năng xử lý amoni trong môi trường nước của than sinh học từ lõi ngô biến bằng H_3PO_4 và NaOH", *Tạp chí Khoa học ĐHQGHN: Các Khoa học Trái đất và Môi trường*, tập 32, số 1S, tr. 274-281.

4. K.W. Kim, Y.J. Kim, I.T. Kim, G.I. Park, E.H. Lee, (2006), "Electrochemical conversion characteristics of ammonia to nitrogen", *Water Res.*, vol. 40, pp. 1431–1441.

5. X.Z. Li, Q.L. Zhao, X.D. Hao (1999), "Ammonium removal from landfill leachate by chemical precipitation", *Waste Manage.*, vol. 19, pp. 409–415.

6. M. D. G. D. Luna, C. M. Futalan, C. A. Jurado, J. I. Colades, M. W. Wan, (2018), "Removal of ammonium-nitrogen from aqueous solution using chitosan-coated bentonite: Mechanism and effect of operating parameters. Removal of ammonium-nitrogen from aqueous solution using chitosan-coated bentonite: Mechanism and effect of operating parameters", *Journal of applied polymer Science.*, vol. 135, pp. 1-11.

7. A. R. Rahmani, A. H. Mahvi, A. R. Mesdaghinia and S. Nasseri, (2004), "Investigation of ammonia removal from polluted waters by Clinoptilolite zeolite", *International Journal of Environmental Science & Technology.*, Vol. 1, pp. 125 – 133.

ABSTRACT

RESEARCH ON AMMONIUM ADSORPTION BY FLY ASH THROUGH CONTINUOUS COLUMN

Van Huu Tap[1*], Nguyen Thi Tuyet[1], Hoang Thi Bich Hong[2]
[1]*University of Sciences - TNU*
[2]*Ha Long University*

The study was to evaluate the ammonium adsorption capability of fly ash in the column model with an assessment of the effect of initial ammonium concentration from 10 to 30 mg/l, flow rate from 3 – 9 ml/min and the height of the adsorbent column from 10 to 30 cm (60 g, 120 g and 180 g fly ash, respectively) and the estimated adsorption capacity of ammonium. Kinetic models are used to evaluate the activity of the adsorption column. The results showed that the NH_4^+ adsorption of fly ash was fit with all three models, including Thomas, Yoon - Nelson and Bohart - Adam. The optimum adsorption process reached at the flow rate of 3 ml/min, the initial ammonium concentration of 10 mg/l and the absorbent height of 30 cm.

Key words: *ammonium treatment, adsorption, dynamic modeling, fly ash*

Ngày nhận bài: 14/11/2018; Ngày hoàn thiện: 23/11/2018; Ngày duyệt đăng: 15/12/2018

[*] *Email: vanhuutap@gmail.com*