

# NGHIÊN CỨU XỬ LÝ PHENOL TRONG NƯỚC THẢI VỚI CÔNG NGHỆ LỌC SINH HỌC DÒNG BÙN NGƯỢC (USBF)

<sup>1</sup>Lê Ngọc Thuấn, Vũ Thị Mai<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Trường Đại học Tài nguyên và Môi trường Hà Nội

Nhận ngày 11/10/2020, chỉnh sửa ngày 21/12/2020, chấp nhận đăng 02/03/2021

## Tóm tắt

Công nghệ lọc sinh học dòng bùn ngược (USBF) được sử dụng để thử nghiệm xử lý phenol trong nước thải giả định quy mô phòng thí nghiệm. Phenol được loại bỏ ở các nồng độ khác nhau, từ 30 mg/L đến 450 mg/L; thời gian lưu nước 10h; hàm lượng bùn hoạt tính duy trì với giá trị MLSS trong khoảng 2000-2300 mg/L. Kết quả nghiên cứu cho thấy hệ thống USBF có sự thích nghi tốt với hàm lượng phenol thay đổi trong thời gian ngắn. Phenol được xử lý với tỉ lệ cao, lên tới 99,8% với nồng độ phenol dưới 200 mg/L, nhưng sau đó có biểu hiện giảm hiệu quả xử lý khi tăng nồng độ phenol, tại nồng độ phenol 450 mg/L, hiệu quả xử lý chỉ còn 22,06%. Khả năng loại bỏ NH<sub>4</sub>-N đạt cao nhất là 71,8%, sau đó sẽ giảm khi tăng nồng độ phenol; hiệu quả xử lý tổng phospho sẽ giảm khi tăng phospho dòng vào. Công nghệ USBF có thể được sử dụng để xử lý phenol trong nước thải nhờ những ưu điểm trong quá trình vận hành và khả năng xử lý.

**Từ khóa:** *Lọc sinh học dòng bùn ngược, xử lý phenol, nước thải*

## Abstract

Upflow Sludge Blanket Filtration (USBF) technology was used to remove phenol in wastewater with laboratory scale. Phenol is eliminated in concentrations ranging from 30 mg / L to 450 mg / L; hydraulic retention time 10 hours; Activated sludge content was maintained with MLSS values in the range of 2000-2300 mg / L. The results of the study showed that the USBF system has a good adaptation to phenol content changes in a short time. Phenol was treated at a high rate, up to 99.8% with phenol concentrations below 200 mg / L, but then showed signs of decreased treatment efficiency when the phenol concentration increased, at a phenol concentration of 450 mg / L the efficiency is only 22.06%. The removal of NH<sub>4</sub>-N reaches a maximum of 71.8%, then decreases with increasing phenol concentration; total phosphorus treatment efficiency is reduced with increasing phosphorus inflow. The USBF technology can be used to treat phenol in wastewater due to its advantages in operation and treatment capabilities.

**Key words:** *Upflow Sludge Blanket Filtration (USBF), phenol removal, wastewater*

## 1. Tổng quan

Nhiều nguồn nước thải từ quá trình sản xuất hóa chất, chế biến dầu mỏ, luyện than cốc có chứa phenol ở các nồng độ khác nhau, đây là một hợp chất có tính độc cao với vi sinh vật. Các phương pháp thường được áp dụng để xử lý phenol như hóa lý, hấp thụ, hấp phụ, oxy hóa với chất oxy hóa mạnh, tuy nhiên chi phí xử lý khá cao. Trong khi đó, các phương pháp sinh học truyền thống được sử dụng để xử lý nước thải chứa phenol, công nghệ này còn nhiều hạn chế về hiệu quả khi khó vận hành khi nồng độ phenol cao [1].

Khi sử dụng quá trình vi sinh vật để xử lý các chất độc hại như phenol, cần thiết có sự Ngoài phenol trong nước thải, việc loại bỏ Phốt pho và Nito loại bỏ khỏi nước thải cũng cần quan tâm để ngăn chặn hiện tượng phú dưỡng ở các vùng nước. Các vấn đề do phú dưỡng làm giảm tính thẩm mỹ, cạn kiệt chất lượng nước các vùng nước tiếp nhận và làm tăng chi phí xử lý nước thải [2,3]. Loại bỏ Phốt pho và Nito khi có mặt phenol đang được ít các tác giả quan tâm.

Do đó, việc lựa chọn công nghệ xử lý sinh học vừa có thể loại bỏ phenol ở hàm lượng cao vừa có thể xử lý nitơ và phốt pho có ý nghĩa quan trọng. Lọc sinh học dòng bùn ngược (USBF) là

một cấu hình mới kết hợp một vùng chọn lọc thiếu khí, bộ phận sục khí và dòng chảy lên bể lắng lọc bùn trong một bể phản ứng sinh học [4]. USBF đang được cho là quy trình hiệu quả nhất để xử lý nước thải và gần đây, một số lượng lớn việc lắp đặt USBF đã được thực hiện ở các nước phát triển [5]. Bài báo này tập trung vào việc sử dụng quy trình mới này để loại bỏ phenol, nitơ và phốt pho khỏi nước thải.

## 2. Vật liệu và phương pháp nghiên cứu

### 2.1. Thiết bị USBF

Bể nghệ lọc hiếu khí dòng bùn ngược (USBF) gồm 3 ngăn chính: ngăn thiếu khí (anoxic), ngăn hiếu khí (aerobic) và ngăn lọc bùn sinh học dòng ngược. Mương chảy tràn phân phối nước đầu vào nhằm hạn chế tác động của dòng vào đối với ngăn thiếu khí và tăng hiệu quả xáo trộn giữa dòng nước thải đầu vào và bùn tuần hoàn.

Thí nghiệm được tiến hành trong hệ USBF có tổng thể tích là 70 lít, tỷ lệ thể tích bể thiếu khí : hiếu khí: lắng là 3:7. Độ sâu lớp nước 36cm, hàm lượng DO trong ngăn thiếu khí thấp hơn 0,5mg/L, tại ngăn hiếu khí 2-4mg/L, thời gian lưu nước được vận hành ổn định ở 10 giờ.

### 2.2. Vận hành thí nghiệm

Trong nước thải giả định có chứa 14,3mg/l  $\text{NH}_4\text{Cl}$ , 4,8mg/l  $\text{KH}_2\text{PO}_4$ , 1,3mg/l  $\text{CaCl}_2$ , 31,1mg/l  $\text{NaHCO}_3$ , 0,7mg/l  $\text{MgSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ , 3,6mg/l  $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ , 1ml dung dịch các hợp chất vi lượng theo [6]. Phenol được sử dụng ở các nồng độ khác nhau, là nguồn các bon chính cho hệ xử lý. Bùn hoạt tính sử dụng trong thí nghiệm được lấy từ nhà máy xử lý nước thải công nghiệp tại khu công nghiệp Tân Trường, Hải Dương

Nghiên cứu hiệu quả xử lý phenol được tiến hành với nồng độ phenol từ 30 đến 450mg/L trong bể USBF. Đánh giá ảnh hưởng của nồng độ phenol trong khoảng từ 10 đến 200mg/L đến hiệu quả xử lý phốt pho ở các nồng độ 5, 10, và 15mg/L, của ni tơ ở nồng độ 20mg/L. Trong các thí nghiệm này glucose được cung cấp bổ sung vào nước đầu vào ở các nồng độ khác nhau để duy trì nồng độ COD ở ngưỡng 400mg/L.

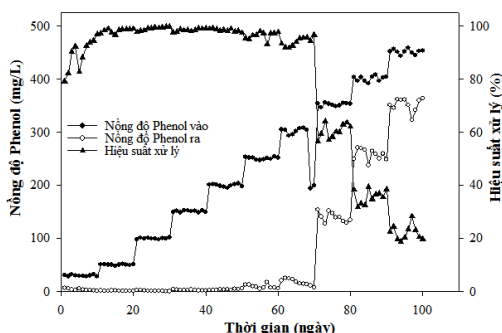
### 2.3. Các phương pháp phân tích

Các thông số amoni, nitrat, tổng phốt pho được phân tích bằng các phương pháp chuẩn tại phòng thí nghiệm [7]. Phenol trong nước được phân tích bằng phương pháp trắc quang, hiện màu với dung dịch aminoantipyrin (4-AAP), theo đó 0,2ml dung dịch 0,1M glycine chứa 5% (w/v)  $\text{K}_3\text{Fe}(\text{CN})_6$  được trộn đều với 2ml mẫu nước sau lọc. Hỗn hợp được để phản ứng 5 phút, cho thêm 2ml dung dịch đệm glycine (chuẩn bị bằng cách hoà tan 5,58g glycine hydro-chloride và 3,75g glycine trong 0,9l nước cất và điều chỉnh đến pH 9,7 bằng NaOH 5N, sau đó định mức lên 1 lít), dung dịch đệm này chứa 0,25% (w/v) 4-aminoantipyrin. Quá trình hiện màu của dung dịch trong 20 phút, sau đó đem đo ở bước sóng 506 nm với máy trắc quang. Nồng độ của phenol được tính thông qua đường chuẩn lập với phenol tinh khiết.

## 3. Kết quả và thảo luận

### 3.1. Hiệu quả xử lý phenol

Thí nghiệm đánh giá hiệu quả xử lý phenol được thực hiện ở các điều kiện với bùn hoạt tính ở khoảng giá trị MLSS từ 2000 đến 2300mg/L, nồng độ phenol đầu vào tăng dần từ 30 đến 450mg/L. Các thí nghiệm được tiến hành tương tự nhau ở các điều kiện ổn định trong tất cả các nồng độ thử nghiệm, đánh giá hiệu quả xử lý phenol trong nước thải trước và sau xử lý.

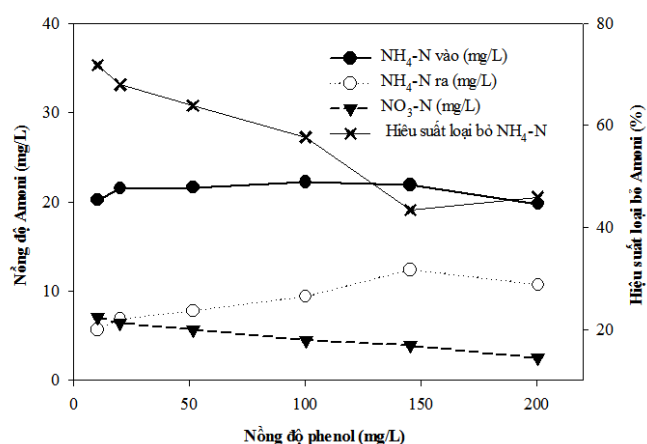


**Hình 1:** Hiệu suất xử lý Phenol theo các tải trọng đầu vào khác nhau.

Hình 1 cho thấy hiệu quả loại bỏ phenol rất cao và ổn định ở các nồng độ phenol đầu vào khoảng từ 30 đến 200 mg/L, đạt hiệu suất từ 97,7 đến 99,8%, cho thấy hệ vi sinh vật trong bể USBF hoạt động tốt, xem xét số liệu về chỉ số thể tích bùn cũng chỉ ra khả năng lắng hiệu quả trong quá trình phát triển của bùn hoạt tính, giá trị SVI từ 79,6 đến 96,8 ml/g. Quá trình khảo sát

được tiến hành ở các nồng độ phenol đầu vào cao hơn từ 250 đến 350mg/L, kết quả cho thấy hiệu quả xử lý có dấu hiệu giảm dần từ ngưỡng nồng độ 250mg/L, chỉ còn 96,35%, ở nồng độ 350mg/L là 64,3%, ở nồng độ cao nhất 450mg/L hiệu quả xử lý giảm xuống thấp nhất là 22,06%, hiệu quả xử lý này cũng không cải thiện thêm cho dù tăng thời gian lưu nước. Phenol thể hiện tính độc và ức chế cho vi sinh vật nên thông thường thì hiệu quả loại bỏ phenol sẽ có xu hướng giảm khi tăng nồng độ phenol đầu vào. Trong nghiên cứu này, với hệ USBF thì hiệu quả xử lý phenol đã có xu hướng dần khi phenol ở ngưỡng 300mg/L, sau đó giảm đột ngột và đáng kể khi phenol ở nồng độ 350mg/L đến 450mg/L. Một số thí nghiệm khác cũng đã được tiến hành trong điều kiện này, nhưng đã không cho thấy sự cải thiện đáng kể nào nữa của USBF đối với phenol ở mức nồng độ cao hơn.

### 3.2. Hiệu quả của quá trình xử lý ni tơ



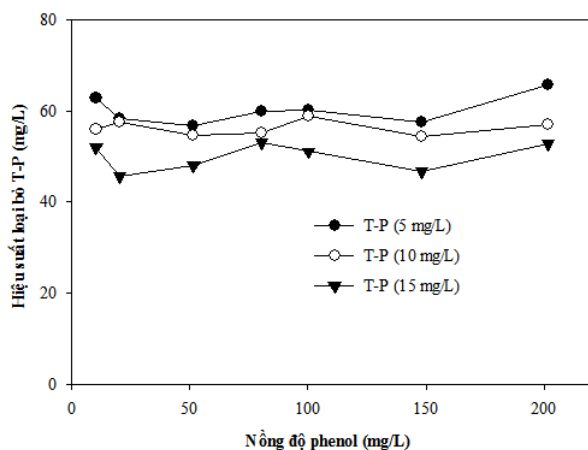
**Hình 2.** Biểu đồ thể hiện mối quan hệ của nồng độ phenol đầu vào và sự thay đổi của amoni.

Biểu đồ hình 2 cho biết hiệu quả loại bỏ  $\text{NH}_4^+$  dao động rất nhiều khi thay đổi nồng độ phenol đầu vào. Khi tăng dần nồng độ phenol đầu vào thì hiệu quả loại bỏ  $\text{NH}_4^+$  có xu hướng giảm dần. Ở nồng độ phenol đầu vào là 10,36mg/l thì hiệu quả loại bỏ  $\text{NH}_4^+$  đạt 71,8% và giảm dần khi tăng nồng độ phenol đầu vào, khi nồng độ phenol đầu vào là 200,5mg/L thì hiệu quả loại bỏ chỉ còn 46%. Quá trình nitrate diễn ra tương đối tốt, amoni được chuyển đổi thành nitrate độ, phenol ở nồng độ 10,4mg/l hàm lượng  $\text{N-NO}_3^-$  đầu ra cao đạt 7,1mg/L. Khi tăng nồng độ phenol đầu vào tăng lên 51,56mg/l  $\text{N-NO}_3^-$  giảm xuống 5,7mg/L, chỉ còn 2,5mg/L  $\text{N-NO}_3^-$  với nồng độ phenol 200,5mg/L.

Phenol là một hợp chất có khả năng gây ức chế sinh trưởng đối với vi sinh vật, ở hàm lượng nhỏ thì sẽ không ảnh hưởng đến sự phân hủy hoàn toàn của amoni, amoniac monooxygenase (AMO) có thể xúc tác quá trình oxy hóa benzen, phenol, xiclohexan và ankan, nên sự phân hủy phenol xảy ra với cả sinh vật dị dưỡng và sinh vật tự dưỡng [8]. Tuy nhiên khi tăng cao nồng độ phenol thì quá trình khử nitrat của vi sinh vật bị ức chế, vi khuẩn nitrat hóa rất nhạy cảm với với các hợp chất độc hại, đặc biệt là các dung môi hữu cơ, phenol càng cao thì hiệu quả loại bỏ  $\text{NH}_4^+$  càng giảm. Phenol có thể ức chế đến 77% quá trình nitrat hóa của amoni ở nồng độ 5,6 mg/L [9]

### 3.3 Hiệu quả của quá trình loại bỏ Phốt pho

Căn cứ vào quá trình vận hành ổn định của hệ USBF, vi sinh vật phát triển ổn định và phân hủy phenol đạt hiệu quả cao ở nồng độ nhỏ hơn 200mg/L, do vậy khoảng nồng độ này được lựa chọn để đánh giá hiệu quả loại bỏ phốt pho của hệ USBF ở các nồng độ phenol khác nhau, nồng độ tổng P đầu vào là 5, 10 và 15mg/L. Để đảm bảo đủ nguồn chất hữu cơ cho vi sinh vật phát triển, ngoài nguồn carbon từ phenol, một lượng glucose tương ứng được cung cấp thêm để sao cho giá trị COD đầu vào được duy trì ở ngưỡng 400mg/L.



**Hình 3:** Ảnh hưởng của phenol tới quá trình loại bỏ phốt pho.

Hình 3 cho thấy khi hàm nồng độ phenol đầu vào thay đổi từ 10 đến 200mg/L, thì hiệu suất loại bỏ phốt pho ở mỗi nồng độ không có sự thay đổi rõ ràng, tương đối dao động; cụ thể ở giá trị tổng P đầu vào 5mg/L, 10mg/L và 15mg/L thì hiệu suất xử lý tổng P nằm trong các khoảng tương ứng là 57-65%, 54-58%, 45-52%. Hiện tượng giảm hiệu quả loại bỏ phốt pho do tăng lượng phốt pho đầu vào, chứ không phải do nồng độ phenol tăng.

Trong một hệ xử lý nước thải sinh học, phốt pho thường được loại bỏ đáng kể khi kết hợp điều kiện kỵ khí/hiếu khí, đôi khi cũng có thể là thiếu khí/hiếu khí. Bùn hoạt tính thông thường chỉ chứa từ 1-2% phốt pho, nhưng với quá trình loại bỏ phốt pho sinh học cải tiến (EBPR), những loại vi sinh vật thuộc nhóm PAO có thể chứa tới 15-25% phốt pho [10]. Nếu có thêm ngăn kỵ khí trước USBF thì hiệu quả xử lý phốt pho của hệ có thể lên đến 86% khi thời gian lưu bùn là 10 ngày và thời gian lưu nước là 24 h và tỉ lệ COD/P tối ưu là 100/1, nhưng nếu tăng nồng độ phốt pho thì hiệu quả giảm đáng kể, chỉ đạt 52,8% ở COD/P là 30 [11]. Khi nghiên cứu hệ USBF đơn lẻ, khả năng xử lý phốt pho ở mức hạn chế, chỉ đạt 55% trong khoảng 6 giờ. Sự loại bỏ phốt pho chỉ được tăng lên nếu sử dụng thêm chất hữu cơ bổ sung, hoặc tiền xử lý bằng các loại muối kim loại [12]

### 4. Kết luận

Công nghệ lọc sinh học dòng bùn ngược (USBF) đã được sử dụng để đánh giá hiệu quả xử lý phenol ở các nồng độ khác nhau từ 30mg/L đến 450mg/L. Các thí nghiệm cho thấy hệ thống USBF có sự thích nghi tốt với hàm lượng phenol thay đổi trong thời gian ngắn. Phenol được xử lý với tỉ lệ cao, lên tới 99,8% với nồng độ phenol dưới 200mg/L, nhưng sau đó giảm dần về 22,06% ở nồng độ phenol 450mg/L. Khả năng loại bỏ  $\text{NH}_4\text{-N}$  đạt cao nhất là

71,8% ở nồng độ phenol 10,36mg/l, sau đó sẽ có xu hướng giảm và đạt 46% khi phenol ở nồng độ 200,5mg/L. Quá trình nitrate bị ảnh hưởng bởi nồng độ phenol đầu vào, hàm lượng  $\text{N-NO}_3^-$  đầu ra đạt 7,1mg/L khi phenol ở mức 10,36mg/L và chỉ còn 2,5mg/L  $\text{N-NO}_3^-$  với nồng độ phenol 200,5mg/L. Như vậy hệ USBF có thể hoạt động hiệu quả và ổn định với nồng độ phenol cao, có thể xử lý một phần ni tơ và phốt pho trong nước thải, hiện tượng ức chế vi sinh vật nitrate cần được nghiên cứu thêm.

**Lời cảm ơn:** Tập thể tác giả xin cảm ơn Trường Đại học Tài nguyên và môi trường Hà Nội vì những hỗ trợ kỹ thuật, Bộ Tài nguyên và môi trường tài trợ kinh phí thông qua đề tài cấp Bộ mã số TNMT.2017.04.11

### Tài liệu tham khảo

- [1] G. Byrns (2001), "The fate of xenobiotic organic compounds in wastewater treatment plants", *Water Res.* (35) 2523-2533
- [2] R.J. Seviour, T. Mino, and M. Onuki (2003), "The microbiology of biological phosphorus removal in activated sludge systems, *FEMS Microbiol.* Rev. 27, pp. 99-127.
- [3] A. Oehmen, P.C. Lemos, G. Carvalho, Z. Yuan, J. Kaller, L.L. Blakall, and M.A.M. Reis, (2007), "Advances in enhanced biological phosphorus removal: From micro to macro scale", *Water Res.* 41 (2007), pp. 2271-2300
- [4] L.K. Wang, N.K. Shammas, and Y.T. Hung (2008), "Advanced Biological Treatment Processes, Humana Press", New York, pp. 365-408.
- [5] Trương Thanh Cảnh, Trần Công Tấn, Nguyễn Quỳnh Nga, Nguyễn Khoa Việt Trường (2006), "Nghiên cứu xử lý nước thải đô thị bằng công nghệ sinh học kết hợp lọc dòng ngược USBF, (The upflow sludge blanket filter)", *Tạp chí phát triển KH & CN*, 9(7), tr 66-67.
- [6] Moy, B. Y. P., Tay, J.H., Toh, S.K., Liu, Y. and Tay, S.T.L. (2002), "High organic loading influences the physical characteristics of aerobic sludge granules". *Let. Appl. Microbiol.* 34:407-412
- [7] APHA, (1998). "Standard Methods for the Examination of Water and Wastewater", 20th ed, Washington, DC, USA số 7
- [8] McCarty GW (1999), "Modes of action of nitrification inhibitors". *Biol Fertil Soils* 1999;29:1-9.
- [9] Stafford DA (1974). "The effect of phenols and heterocyclic bases on nitrification in activated sludge". *J Appl Bacteriol*;37:75-82.
- [10] G. Tchobanoglus, F.L. Burton, and H.D. Stensel (2003), "Wastewater Engineering: Treatment and Reuse", 4th ed, McGraw-Hill, New York, pp. 799-816.
- [11] H. Khorsandia, H. Movahedyanb, B. Binab and H. Farrokhzadehb (2011). "Innovative anaerobic/upflow sludge blanket filtration bioreactor for phosphorus removal from wastewater". *Environmental Technology* Vol. 32, No. 5, 499-506.
- [12] A.H. Mahvi, R. Nabizadeh, M.H. Pishrafti, and Th. Zarei, Evaluation of single stage USBF in removal of nitrogen and phosphorus from wastewater, *Eur. J. Sci. Res.* 23 (2008), pp. 204-211