

STUDY ON THE TREATMENT OF DIRECT BLUE 86 IN WATER BY ELECTRO FENTON PROCESS

Luu Tuan Duong*, Vu Van Tung

TNU - University of Sciences

ARTICLE INFO		ABSTRACT
Received:	15/4/2023	The main objective of this paper is to study the parameters effect on the efficiency treatment of direct blue 86 (DB86) in water by electro fenton. Organic substance was degraded during the electrochemical procedure by the generation of hydroxyl radicals ($\bullet\text{OH}$). Anode and cathode carbon felt electrodes were used in the electrochemical experiment system. Experiments were conducted to investigate the impact of specific operating parameters: pH, electrode distance, current, electrolysis time, concentration of $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$, temperature on the treatment capacity of DB86. As a result, with optimal conditions performed at pH = 3, current 500 mA, concentration of $\text{Fe}^{2+} = 2 \text{ mmol/l}$, concentration of $\text{NaCl} = 0.1 \text{ mol/l}$; electrode distance of 1 cm, temperature of 25°C , after 90 minutes, the COD reduce efficiency reached 88.63%. The findings of this study indicate that the electro fenton procedure can be effectively used for the degradation of organic dyes.
Revised:	25/5/2023	
Published:	26/5/2023	
KEYWORDS		
Direct Blue 86		
Electro Fenton		
Wastewater treatment		
Chemical Oxygen Demand		
Carbon felt		

NGHIÊN CỨU XỬ LÝ DIRECT BLUE 86 TRONG NƯỚC BẰNG QUÁ TRÌNH FENTON ĐIỆN HÓA

Luu Tuấn Dương*, Vũ Văn Tùng

Trường Đại học Khoa học – ĐH Thái Nguyên

THÔNG TIN BÀI BÁO		TÓM TẮT
Ngày nhận bài:	15/4/2023	Mục tiêu chính của bài báo này là nghiên cứu các thông số ảnh hưởng đến hiệu quả xử lý thuốc nhuộm Direct Blue 86 (DB86) trong nước bằng quá trình fenton điện hóa. Trong quá trình điện hóa, chất hữu cơ bị phân hủy nhờ sự tạo thành các gốc tự do hydroxyl ($\bullet\text{OH}$). Hệ thí nghiệm điện hóa sử dụng điện cực vải cacbon ở cực dương và cực âm. Các thí nghiệm được tiến hành nghiên cứu ảnh hưởng của các thông số vận hành cụ thể: pH, khoảng cách điện cực, cường độ dòng điện, thời gian điện phân, nồng độ FeSO_4 , nhiệt độ đến khả năng xử lý DB86. Kết quả với điều kiện tối ưu được thực hiện tại pH = 3, cường độ dòng điện 500 mA, nồng độ $\text{Fe}^{2+} = 2 \text{ mmol/l}$, nồng độ $\text{NaCl} = 0,1 \text{ mol/l}$; khoảng cách điện cực 1 cm, nhiệt độ 25°C sau thời gian 90 phút hiệu suất COD đạt 88,63%. Kết quả đạt được trong nghiên cứu này cho thấy quá trình fenton điện hóa có thể ứng dụng tốt để phân hủy thuốc nhuộm khó phân hủy.
Ngày hoàn thiện:	25/5/2023	
Ngày đăng:	26/5/2023	
TỪ KHÓA		
Direct Blue 86		
Fenton điện hóa		
Xử lý nước thải		
COD		
Vải Cacbon		

DOI: <https://doi.org/10.34238/tnu-jst.7753>

* Corresponding author. Email: luutuanuong@gmail.com

1. Giới thiệu

Hiện nay, ngành dệt may có một vị thế quan trọng trong nền kinh tế với những đóng góp rất lớn vào sự tăng trưởng GDP hàng năm ở Việt Nam. Tuy nhiên, trong quá trình sản xuất một lượng lớn nước thải nhuộm thải ra môi trường vì vậy việc xử lý nước thải nhuộm là vấn đề cần được quan tâm nghiên cứu. Trong thành phần các chất gây ô nhiễm thì thuốc nhuộm là một trong những chất gây ô nhiễm đáng kể. Nước thải dệt nhuộm được coi là chất độc hại do tính chất độc ảnh hưởng lâu dài trong môi trường tạo ra những thách thức lớn đối với việc loại bỏ các chất gây ô nhiễm. Nước thải dệt nhuộm thường có màu đậm không chỉ gây ảnh hưởng đến thẩm mỹ mà còn cản trở sự truyền qua của ánh sáng dẫn đến ảnh hưởng quá trình sinh học trong môi trường nước. Đồng thời thuốc nhuộm cũng là chất độc đối với sinh vật gây ảnh hưởng hệ sinh thái. Ngoài ra sử dụng thuốc nhuộm azo và các sản phẩm phản ứng của chúng như chất thơm amin có khả năng gây ung thư cao đối với con người [1]. Thuốc nhuộm azo là loại thuốc nhuộm lớn nhất và được sử dụng rộng rãi trong công nghiệp từ dệt may đến mỹ phẩm [2]. Trong ngành công nghiệp dệt may thì có khoảng 20% tổng số thuốc nhuộm azo được xả vào môi trường thông qua nước thải công nghiệp [3]. Hầu hết thuốc nhuộm đều khó bị xử lý bằng các quá trình xử lý thông thường. Các phương pháp truyền thống như quá trình oxy hóa hóa học, hấp phụ, xử lý sinh học được áp dụng để loại bỏ thuốc nhuộm trong nước thải tuy nhiên vẫn còn những hạn chế do hầu hết các loại thuốc nhuộm được sử dụng đều khó phân hủy quang học, sinh học và các tác nhân oxy hóa. Các phương pháp hấp phụ không xử lý triệt để các hóa chất nhuộm mà chuyển sang dạng khác. Đặc điểm trong thành phần của nước thải dệt may có tỷ lệ BOD₅/COD thấp vì vậy khó áp dụng quá trình sinh học để xử lý [4]. Bên cạnh đó cấu trúc vòng thơm của thuốc nhuộm khó phân hủy sinh học. Ngoài ra quá trình sinh học hạn chế khi phân hủy sinh học có thể tạo ra các sản phẩm độc hại cho vi sinh vật [5]. Trong số các công nghệ này, các quá trình oxy hóa tiên tiến có hiệu quả để xử lý các loại thuốc nhuộm azo [6]. Công nghệ oxy hóa tiên tiến là công nghệ liên quan đến hóa học, quang xúc tác, quang hóa, điện hóa và quang điện hóa trong đó gốc hydroxyl ($\cdot\text{OH}$) được tạo thành trong quá trình xử lý được coi là chất oxy hóa chính với thế khử tiêu chuẩn cao ($E^0((\cdot\text{OH})/\text{H}_2\text{O}) = 2,80 \text{ V}$). Gốc tự do này có thể phản ứng với các chất hữu cơ tạo ra các sản phẩm ngắn mạch hơn hoặc khoáng hóa thành CO_2 , H_2O và các chất vô cơ [7]. Trong nghiên cứu của Son và cộng sự khi nghiên cứu các thông số ảnh hưởng đến khả năng xử lý xanh metylen sử dụng cực dương là điện cực Ti/PbO₂ khi áp dụng quá trình fenton điện hóa đạt hiệu suất 92,19% sau 60 phút xử lý [8]. Một nghiên cứu của Wang và cộng sự [9] đã áp dụng quá trình fenton điện hóa để xử lý nước thải dệt nhuộm sử dụng cực dương là than hoạt tính kết quả hiệu suất đạt trên 70% sau thời gian 240 phút điện phân. Thuốc nhuộm DB86 là một trong những thuốc nhuộm thương mại và được sử dụng rộng rãi trong việc in các loại vải, nhuộm lụa, len [10]. Do đó mục đích trong nghiên cứu này áp dụng quá trình fenton điện hóa để xử lý DB86 sử dụng điện cực vải cacbon ở cực dương và cực âm. Quá trình fenton điện hóa với cơ chế phân hủy dựa trên phản ứng fenton và quá trình oxy hóa trực tiếp trên bề mặt cực dương, hydrogen peroxit (H_2O_2) được tạo ra trong quá trình điện phân và các ion Fe^{2+} được thêm vào dung dịch tạo ra gốc hydroxyl (theo phương trình 1) [11]. Hydro peroxit được tạo thành liên tục trong quá trình điện phân bằng cách khử O_2 ở cực âm trong môi trường axit từ quá trình (theo phương trình 2). Gốc tự do hydroxyl là một gốc oxy hóa mạnh có vai trò phân hủy thuốc nhuộm để có thể khoáng hóa hoàn toàn [12]. Hơn nữa trong quá trình fenton điện hóa Fe^{2+} có thể tái sinh từ Fe^{3+} ở cực âm (theo phương trình 3) làm giảm khả năng tạo bùn.

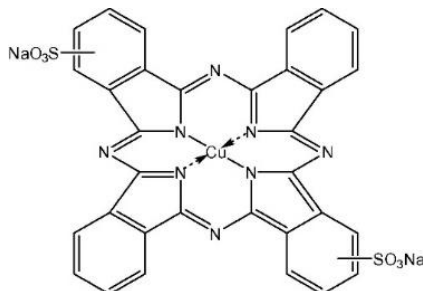


Nghiên cứu này đánh giá ảnh hưởng của pH, mật độ dòng điện, thời gian điện phân, nồng độ Fe^{2+} , khoảng cách điện cực và nhiệt độ ảnh hưởng đến quá trình xử lý DB86.

2. Vật liệu và phương pháp nghiên cứu

2.1. Nguồn nước thải/ Mẫu và hóa chất thử nghiệm

Thuốc nhuộm DB86 có công thức $C_{32}H_{14}CuN_8Na_2O_6S_2$ – Merck. Cấu trúc hóa học của DB86 được thể hiện trong Hình 1. Mẫu nước tổng hợp với nồng độ DB86 là 200 mg/l. Nồng độ chất điện li NaCl 0,1 mol/l; nồng độ chất xúc tác $FeSO_4 \cdot 7H_2O$ 2 mmol/l, pH được điều chỉnh khảo sát ở các giá trị 2, 3, 4, 5, 6, 7.

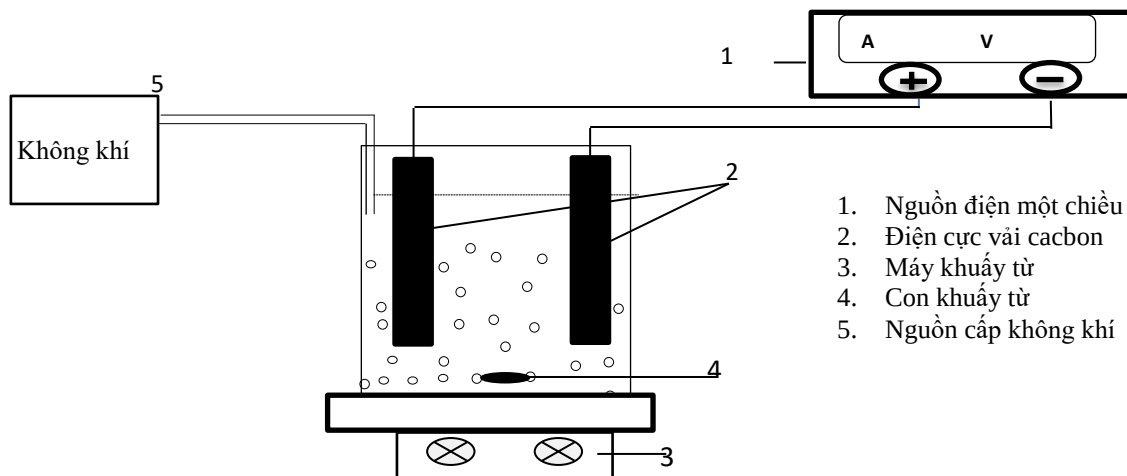


Hình 1. Cấu trúc hóa học của thuốc nhuộm DB86

Cấu trúc hóa học của thuốc nhuộm DB86 (công thức: $C_{32}H_{14}CuN_8Na_2O_6S_2$; khối lượng phân tử 780,17), bước sóng = 594 nm. Các hoá chất khác được sử dụng trong nghiên cứu gồm: H_2SO_4 98% (Merck), NaOH 99% (Merck), $FeSO_4 \cdot 7H_2O$ 98% (Merck), NaCl 99% (Trung Quốc).

2.2. Quá trình EF

Hệ thí nghiệm trong quá trình fenton điện hóa thực hiện trong hệ kín các phản ứng được thực hiện trong cốc thủy tinh dung tích là 500 ml. Điện cực vôi cacbon được sử dụng làm điện cực ở cả cực dương và cực âm với kích thước 40 mm x 80 mm. Khoảng cách giữa các điện cực được khảo sát tại các giá trị khác nhau. Dòng điện một chiều được cung cấp bởi thiết bị DC QJE PS3005 (0-30V/0-5A). Trong các thí nghiệm ảnh hưởng của độ pH được nghiên cứu bằng cách điều chỉnh hỗn hợp của phản ứng với pH ban đầu từ (2 ÷ 7) bằng H_2SO_4 0,1 M hoặc NaOH 0,1 M. Phép đo pH được thực hiện bằng cách sử dụng máy đo pH HANNA HI98107. Sắt được bổ sung dưới dạng $FeSO_4 \cdot 7H_2O$ ở các nồng độ khác nhau. Không khí được sục trước khi điện phân trong vòng 30 phút và được sục liên tục vào dung dịch với tốc độ 1 lít/phút trong quá trình điện phân.



Hình 2. Hệ thí nghiệm fenton điện hóa

Sơ đồ hệ thí nghiệm để xử lý DB86 bằng quá trình fenton điện hóa sử dụng trong nghiên cứu này được minh họa trên Hình 2.

2.3. Phương pháp phân tích

Trong nghiên cứu, COD được phân tích bằng phương pháp xác định độ oxy hóa theo tiêu chuẩn Việt Nam TCVN 4565:1988. COD được tính cho mẫu chưa xử lý và đã xử lý ở nồng độ 200 mg/l. Hiệu suất loại bỏ COD được tính:

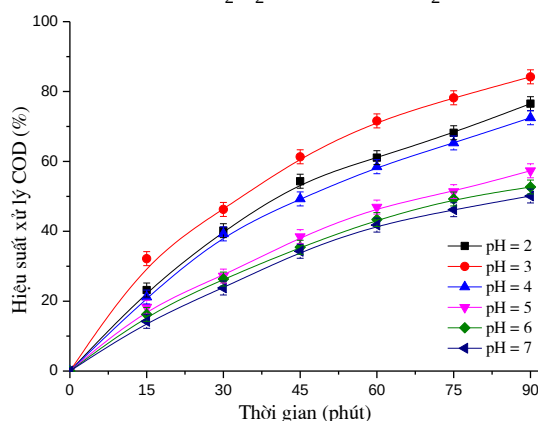
$$\%COD = \frac{COD_o - COD}{COD_o} \times 100\%$$

Trong đó, COD_o là COD ban đầu của mẫu dung dịch xử lý.

3. Kết quả và bàn luận

3.1. Yếu tố pH ảnh hưởng đến quá trình xử lý COD

Đối với quá trình fenton điện hóa, giá trị pH ban đầu là một thông số quan trọng ảnh hưởng đến hiệu suất của quá trình điện hóa. Ảnh hưởng của độ pH trong khoảng từ 2 ÷ 7 khi xử lý DB86 được thể hiện trong Hình 3. Hiệu suất loại bỏ COD đạt hiệu quả lần lượt là 76,52%; 84,21%; 72,50%; 57,32%; 52,68%; 50,10%. Kết quả trên Hình 3 cho thấy hiệu quả loại bỏ COD đối với DB86 tốt nhất tại pH 3,0 và hiệu quả xử lý giảm khi tăng độ pH. Điều này được giải thích do phản ứng fenton thể hiện hoạt tính xúc tác tối đa ở điều kiện pH từ 2,8 ÷ 3,0 [13], hiệu quả xử lý giảm đáng kể khi tăng hoặc giảm giá trị pH này. Do đó các gốc tự do hydroxyl ($\cdot OH$) được tạo thành đáng kể trong điều kiện axit. Ở pH lớn hơn 3, Fe^{3+} bắt đầu kết tủa tạo thành $Fe(OH)_3$ và phân hủy H_2O_2 thành O_2 và H_2O . Việc hình thành kết tủa $Fe(OH)_3$ ở giá trị pH cao dẫn đến giảm nồng độ Fe^{2+} dẫn đến giảm sự hình thành gốc hydroxyl. Ngoài ra ở giá trị pH trên 5, các chất oxy hóa yếu hơn như các ion Fe được hình thành theo phản ứng 4.



Hình 3. Ảnh hưởng pH đến khả năng xử lý COD

Khi pH tăng dần tới khử hoạt tính của các ion xúc tác Fe^{2+} dẫn tới chuyển thành ion Fe^{3+} làm giảm khả năng xúc tác phản ứng, làm giảm khả năng tạo ra gốc hydroxyl ($\cdot OH$) và giảm hiệu suất quá trình fenton điện hóa theo phản ứng 1 [13].

Về mặt lý thuyết môi trường axit thuận lợi cho quá trình xử lý fenton điện hóa vì theo phản ứng 2 quá trình tạo thành H_2O_2 được tiến hành trong môi trường axit. Tuy nhiên ở điều kiện pH dưới 3, H_2O_2 hình thành ion oxonium ($H_3O_2^+$) theo phản ứng 5 làm giảm khả năng phản ứng của ion Fe^{2+} .



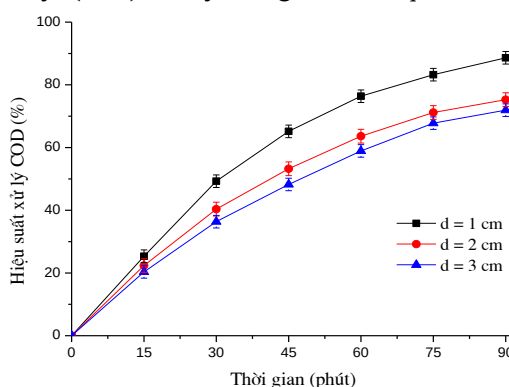
Theo báo cáo của Wang [9], trong dung dịch axit mạnh ($pH < 2$) các loại sắt tạo phức ổn định với H_2O_2 . Ngoài ra, trong môi trường pH thấp, phản ứng fenton bị vô hiệu hóa do tạo ra các hợp chất như $[Fe(H_2O)_6]^{2+}$, $[Fe(OH)(H_2O)_5]^{2+}$.

Từ kết quả trên, nghiên cứu lựa chọn pH = 3 tối ưu trong quy trình fenton điện hóa để xử lý DB86.

3.2. Yếu tố khoảng cách điện cực ảnh hưởng đến hiệu quả xử lý COD

Trong nghiên cứu ảnh hưởng của khoảng cách giữa các điện cực đối với quá trình xử lý COD được tiến hành với khoảng cách điện cực tại các giá trị 1,0 cm, 2,0 cm, 3,0 cm. Khoảng cách giữa các điện cực là một yếu tố quan trọng khác ảnh hưởng đến quá trình phân hủy COD. Kết quả nghiên cứu yếu tố ảnh hưởng của khoảng cách điện cực đến hiệu quả xử lý COD được thể hiện trong Hình 4. Khi tăng khoảng cách giữa các điện cực từ 1,0 cm đến 3,0 cm, hiệu quả loại bỏ giảm từ 88,63% xuống còn 71,92%. Kết quả cho thấy khi tăng khoảng cách giữa điện cực từ 1,0 cm đến 3,0 cm làm hiệu suất giảm 16,71%.

Điều này có thể do khi khoảng cách điện cực tăng, điện trở tăng lên do đó làm giảm độ dẫn điện của dung dịch, làm giảm khả năng tái tạo Fe^{2+} theo phản ứng 3, lượng ion Fe^{2+} trong trường hợp điện cực ở khoảng cách xa hơn có thể bị hạn chế để phản ứng hoàn toàn với H_2O_2 do đó dẫn tới việc ít tạo ra các gốc hydroxyl ($\cdot\text{OH}$) vì vậy làm giảm hiệu quả loại bỏ COD.



Hình 4. Yếu tố khoảng cách điện cực ảnh hưởng đến khả năng xử lý COD

Zhang và cộng sự khi xử lý nước rò rỉ bãi chôn lấp rác bằng quá trình fenton điện hóa đã báo cáo với điều kiện khoảng cách điện cực quá gần dẫn đến khi Fe^{2+} được tái sinh bằng quá trình điện phân có thể dễ dàng bị oxi hóa thành Fe^{3+} (phản ứng 6) ở cực dương. Khi các điện cực được đặt quá gần với điều kiện khoảng cách điện cực <1 cm dẫn đến quá trình điện phân không ổn định (có thể dẫn tới hiện tượng đoản mạch) [14].



Trên cơ sở các nghiên cứu trước đây và kết quả thực nghiệm trên Hình 4, nghiên cứu này tác giả lựa chọn khoảng cách giữa các điện cực tối ưu là 1 cm.

3.3. Yếu tố nồng độ Fe^{2+} ảnh hưởng đến khả năng xử lý COD

Ion Fe^{2+} đóng vai trò là chất xúc tác trong quá trình fenton điện hóa. Vì vậy nồng độ Fe^{2+} có ảnh hưởng đáng kể đến hiệu quả xử lý của quá trình. Tốc độ phân hủy chất ô nhiễm DB86 tăng khi tăng nồng độ Fe^{2+} . Vai trò các ion Fe^{2+} có tác dụng kích thích quá trình tạo thành gốc hydroxyl ($\cdot\text{OH}$) theo phản ứng 1.

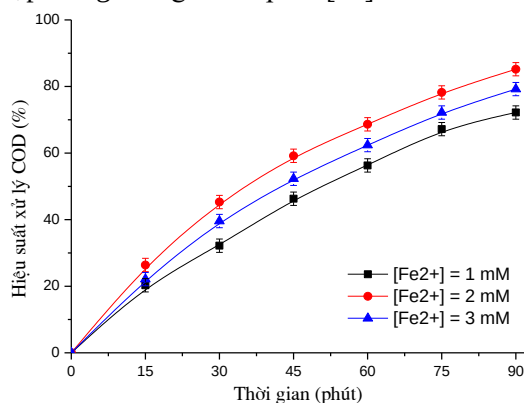
Kết quả đánh giá nồng độ Fe^{2+} đến khả năng loại bỏ COD được thể hiện trên Hình 5.

Kết quả cho thấy rằng việc loại bỏ COD tăng từ 72,19% lên 85,18% khi nồng độ Fe^{2+} tăng từ 1 mmol/l lên 2 mmol/l. Tuy nhiên khi nồng độ Fe^{2+} tăng lên 3 mmol/l thì hiệu quả loại bỏ COD đạt hiệu suất 77,22%. Trong quá trình Fenton, nồng độ Fe^{2+} có ảnh hưởng đến việc tạo ra gốc $\cdot\text{OH}$ và quá trình phân hủy chất ô nhiễm hữu cơ. Nhưng ở nồng độ Fe^{2+} cao, hiệu suất của quá trình fenton điện hóa giảm do nồng độ ion sắt tăng cao sẽ tham gia phản ứng với gốc hydroxyl ($\cdot\text{OH}$) làm giảm tác nhân oxy hóa theo phản ứng 7:



Quá trình loại bỏ COD tăng lên khi tăng nồng độ Fe^{2+} từ 1 mmol/l đến 2 mmol/l được giải thích do sự tạo thành gốc hydroxyl ($\cdot\text{OH}$) được gia tăng ở nồng độ Fe^{2+} cao hơn qua đó thúc đẩy

quá trình phân hủy DB86. Trong một nghiên cứu đánh giá khả năng khoáng hóa glyphosate ($C_3H_8NO_5P$) bằng quá trình fenton điện hóa, Sơn và cộng sự đã công bố tại nồng độ Fe^{2+} 0,1 mmol/l là điều kiện thích hợp trong thời gian 50 phút [15].

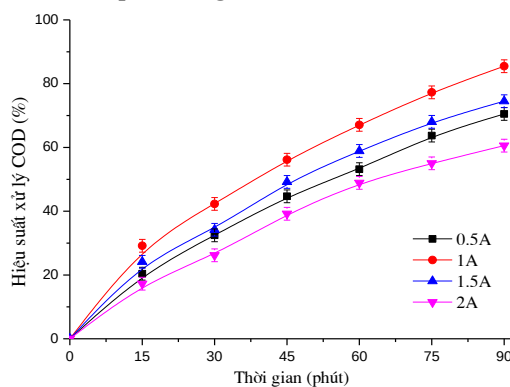


Hình 5. Nồng độ Fe^{2+} ảnh hưởng đến khả năng xử lý COD

Kết quả cho thấy khi tăng nồng độ Fe^{2+} thì hiệu quả xử lý có xu hướng giảm dần. Với các điều kiện và đối tượng nghiên cứu khác nhau cho thấy việc tăng thêm nồng độ Fe^{2+} làm thay đổi không đáng kể khả năng loại bỏ COD. Trong nghiên cứu này, tác giả đánh giá khả năng xử lý DB86 ($C_{32}H_{14}CuN_8Na_2O_6S_2$) vì có thể do phân tử DB86 bền hơn so với phân tử glyphosate ($C_3H_8NO_5P$) do đó điều kiện tối ưu của Fe^{2+} được lựa chọn cao hơn so với nghiên cứu của Sơn và cộng sự. Trong nghiên cứu này lựa chọn nồng độ 2 mmol/l Fe^{2+} được chọn là nồng độ tối ưu.

3.4. Yếu tố cường độ dòng điện ảnh hưởng đến khả năng xử lý COD

Cường độ dòng điện là một thông số vận hành quan trọng ảnh hưởng đến hiệu suất của quá trình oxy hóa điện hóa [16]. Khi sử dụng dòng điện sẽ thúc đẩy quá trình khử oxy ở điện cực âm dẫn đến việc tạo ra nhiều hydro peroxide (H_2O_2). Với sự gia tăng H_2O_2 sẽ góp phần thúc đẩy tạo ra nhiều gốc hydroxyl ($\cdot OH$). Đây là chất oxy hóa mạnh tham gia vào quá trình phân hủy chất hữu cơ. Dòng điện tăng cũng làm tăng khả năng tái tạo của ion sắt Fe^{2+} theo phản ứng 3 và góp phần thúc đẩy phản ứng fenton theo phản ứng 1 [17].



Hình 6. Yếu tố cường độ dòng điện ảnh hưởng đến khả năng xử lý COD

Trong nghiên cứu này, để xác định cường độ dòng điện phù hợp cho hiệu quả loại bỏ COD, tiến hành thí nghiệm tại các điều kiện cường độ dòng điện 0,5A; 1A; 1,5A; 2A. Kết quả trên Hình 6 cho thấy ảnh hưởng của cường độ dòng điện đến hiệu quả xử lý COD, cụ thể tại cường độ dòng điện 0,5A đạt hiệu suất 70,51% COD được loại bỏ sau 60 phút. Việc tăng cường độ dòng điện lên 1A làm tăng khả năng loại bỏ COD lên 85,47%. Khi cường độ dòng điện tăng lên 1,5A thì hiệu quả xử lý giảm xuống đạt 74,5%; tại cường độ dòng điện 2A hiệu suất xử lý COD đạt

60,57%. Điều này được giải thích do khi tăng cường độ dòng điện sẽ làm gia tăng tỷ lệ sản xuất hydro peroxide (H_2O_2) và thúc đẩy quá trình hình thành của các gốc hydroxyl ($\cdot OH$). Theo công thức Faraday, lượng ion Fe^{2+} được giải phóng từ cực dương phụ thuộc chủ yếu vào mức cường độ dòng điện lớn hơn như vậy khi cường độ dòng điện cao được sử dụng có thể hỗ trợ quá trình phân hủy hoàn toàn hơn các chất ô nhiễm hữu cơ thông qua phản ứng với gốc hydroxyl ($\cdot OH$) [18].

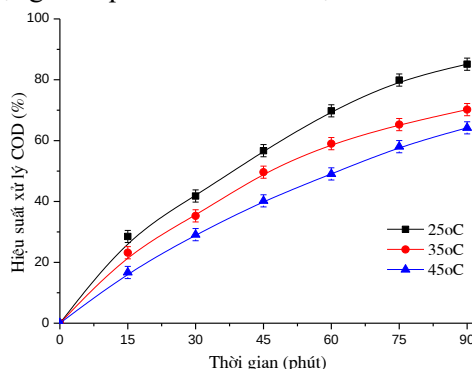
Tuy nhiên khi cường độ dòng điện tăng cao có thể gây rách điện cực làm ảnh hưởng đến hiệu suất xử lý. Tại cường độ 1,5A đã có hiện tượng gây rách điện cực vải cacbon làm giảm hiệu suất xử lý COD. Hiệu suất xử lý COD giảm khi cường độ dòng điện cao được giải thích do quá trình oxy hóa H_2O_2 theo các phản ứng (8÷14) [19].



Hơn nữa, khi cường độ dòng điện tăng thì dẫn tới sinh nhiệt nhiều hơn và đòi hỏi tiêu thụ nhiều năng lượng hơn. Vì vậy, trong nghiên cứu lựa chọn cường độ dòng điện tại giá trị 1A.

3.5. Yếu tố nhiệt độ ảnh hưởng đến khả năng xử lý COD

Quá trình điện phân được tiến hành ở điều kiện nhiệt độ từ 25°C đến 45°C. Kết quả ảnh hưởng của nhiệt độ đến khả năng loại bỏ COD được thể hiện ở Hình 7. Kết quả cho thấy nhiệt độ tăng làm giảm hiệu quả xử lý COD bằng quá trình fenton điện hóa. Hiệu quả xử lý tại 25°C đạt 85,12% giảm xuống 64,21% tại nhiệt độ 45°C. Khi tăng nhiệt độ sẽ làm giảm khả năng tạo thành hydro peroxide (H_2O_2) do khi tăng nhiệt độ thì nồng độ oxy hòa tan kém hơn đồng thời sự phân hủy của hydrogen peroxide (H_2O_2) xảy ra ở nhiệt độ cao hơn làm ảnh hưởng đến phản ứng fenton. Trong nghiên cứu của Yazici và cộng sự đã công bố ở nhiệt độ từ 30°C trở lên có ảnh hưởng đến khả năng phân hủy H_2O_2 nếu tiếp tục tăng nhiệt độ lên 50°C thì sự phân hủy H_2O_2 lên tới 80% [20]. Tốc độ phân hủy của hydrogen peroxide (H_2O_2) thành oxy và nước tăng theo nhiệt độ. Khi H_2O_2 bị phân hủy thì lượng gốc hydroxyl $\cdot OH$ giảm theo phản ứng (1). Khi tăng 10°C dẫn đến tốc độ phân hủy tăng khoảng 2, 3 lần so với ở nhiệt độ thấp hơn [21]. Khi nhiệt độ tăng thì tốc độ phản ứng (1) diễn ra nhanh thúc đẩy quá trình hình thành gốc $\cdot OH$, tái sinh xúc tác cũng tăng lên và tăng sự kết hợp của gốc $\cdot OH$ với DB86. Tuy nhiên có thể do H_2O_2 là thành phần chính tham gia vào phản ứng fenton mà lượng H_2O_2 giảm do quá trình phân hủy ở điều kiện nhiệt độ cao hơn sẽ dẫn đến lượng gốc hydroxyl ($\cdot OH$) tạo thành cũng giảm vì vậy sẽ ảnh hưởng chính đến hiệu quả xử lý DB86. Vì vậy trong nghiên cứu này điều kiện nhiệt độ thấp 25°C được sử dụng là điều kiện tối ưu áp dụng cho quá trình fenton điện hóa.



Hình 7. Yếu tố nhiệt độ ảnh hưởng đến khả năng xử lý COD

4. Kết luận

Phương pháp xử lý bằng quá trình Fenton điện hóa đã được chứng minh có hiệu quả để loại bỏ COD trong nước thải dệt nhuộm. Cơ chế phản ứng chính trong quá trình fenton điện hóa bao gồm quá trình keo tụ và quá trình hình thành các gốc tự do hydroxyl ($\cdot\text{OH}$) trong quá trình oxy hóa. Trong khi quá trình keo tụ xảy ra trực tiếp với các ion sắt, quá trình oxy hóa gốc tự do hydroxyl ($\cdot\text{OH}$) được tạo thành dựa trên phản ứng giữa hydro peroxide (H_2O_2) và các ion Fe^{2+} . Trong nghiên cứu thì hiệu quả xử lý COD dao động thay đổi tùy thuộc vào điều kiện loại nước thải, năng lượng tiêu thụ, thời gian phản ứng hoặc độ pH. Kết quả nghiên cứu xử lý DB86 bằng quá trình fenton điện hóa này hiệu quả loại bỏ COD đạt hiệu suất cao nhất tại 88,63% trong thời gian 90 phút. Do đó quá trình EF có thể được áp dụng là một phương pháp để xử lý thuốc nhuộm trong nước thải.

TÀI LIỆU THAM KHẢO/ REFERENCES

- [1] M. F. Boeniger, "Carcinogenicity and metabolism of azo dyes, especially those derived from benzidine," *Technical Report*, DHHS (NIOSH) Publication, no.80-119, pp. 1 – 141, 1980.
- [2] K. Barbusinski and J. Majewski, "Discoloration of azo dye Acid Red 18 by Fenton reagent in the presence of iron powder," *Polish Journal of Environmental Studies*, vol. 12, pp. 151 – 155, 2003.
- [3] C. Thakur, V. C. Srivastava, and I. D. Mall, "Electrochemical treatment of a distillery wastewater: Parametric and residue disposal study," *Chemical Engineering Journal*, vol. 148, pp. 496 – 505, 2009.
- [4] G. Mouedhen, M. Feki, M. D. P. Wery, and H. F. Ayedi, "Behavior of aluminum electrodes in electrocoagulation process," *Journal of Hazardous Materials*, vol.150, pp. 124 – 135, 2008.
- [5] K. R. Ramakrishna and T. Viraraghavan, "Dye removal using low cost adsorbent," *Water Science and Technology*, vol.36, pp. 189–196, 1997.
- [6] W. Z. Tang and R. Z. Chen, "Decolorization kinetics and mechanisms of commercial dyes by H_2O_2 /iron powder system," *Chemosphere*, vol. 32, pp. 947 – 958, 1996.
- [7] I. Sirés and E. Brillas, "Remediation of water pollution caused by pharmaceutical residues based on electrochemical separation and degradation technologies: A review," *Environment International*, vol. 40, pp. 212–229, 2012.
- [8] T. S. Le, T. D. Nguyen, T. H. Tran, T. D. Nguyen, and P. U. Dao, "Study on some parameters affecting degradation of methylene blue in water by electro-fenton using Ti/PbO_2 anode," *Vietnam Journal of Science and Technology*, vol. 59, pp. 609 – 622, 2021.
- [9] C. T. Wang, W. L. Chou, M. H. Chung, and Y. M. Kuo, "COD removal from real dyeing wastewater by electro fenton technology using an activated carbon fiber cathode," *Desalination*, vol. 253, pp. 129 – 134, 2010.
- [10] B. Shi, G. Li, D. Wang, C. Feng, and H. Tang, "Removal of direct dyes by coagulation: the performance of preformed polymeric aluminum species," *Journal of Hazard Materials*, vol. 143, pp. 567–574, 2007.
- [11] P. V. Nidheesh, M. Zhou, and M. A. Oturan, "An overview on the removal of synthetic dyes from water by electrochemical advanced oxidation processes," *Chemosphere*, vol. 197, pp. 210 – 227, 2018.
- [12] P. V. Nidheesh, R. Gandhimathi, and N. S. Sanjini, " NaHCO_3 enhanced Rhodamine B removal from aqueous solution by graphite – graphite electro Fenton system," *Separation and Purification Technology*, vol. 132, pp. 568 – 576, 2014.
- [13] J. J. Pignatello, E. Oliveros, and A. Mackay, "Advanced oxidation processes for organic contaminant destruction based on the fenton reaction and related chemistry," *Critical Reviews in Environmental Science and Technology*, vol. 36, pp. 1-84, 2006.
- [14] H. Zhang, H. J. Choi, and C. P. Huang, "Treatment of landfill leachate by Fenton's reagent in a continuous stirred tank reactor," *Journal of Hazard Materials*, vol. 136, pp. 618–623, 2006.
- [15] T. S. Le, T. D. Luu, T. L. Doan, and M. H. Tran, "Study of some parameters responsible for glyphosate herbicide mineralization by electro fenton process," *Vietnam Journal of Science and Technology*, vol. 55, no. 4C, pp. 238 – 244, 2017.
- [16] E. Pajootan, M. Arami, and M. Rahimdokht, "Discoloration of wastewater in a continuous electro-Fenton process using modified graphite electrode with multiwalled carbon nanotubes/surfactant," *Separation and Purification Technology*, vol. 130, pp. 34 – 44, 2014.

-
- [17] P. V. Nidheesh and R. Gandhimathi, "Trends in electro Fenton process for water and wastewater treatment: an overview," *Desalination*, vol. 299, pp. 1–15, 2012.
- [18] N. Daneshvar, A. Oladegaragoze, and N. Djafarzadeh, "Decolorization of basic dye solutions by electrocoagulation: An investigation of the effect of operational parameters," *Journal of Hazardous Materials*, vol. 129, pp. 116 – 122, 2006.
- [19] A. L. Estrada, Y. Y. Li, and A. Wang, "Biodegradability enhancement of wastewater containing cefalexin by means of the electro-Fenton oxidation process," *Journal of Hazardous Materials*, vol. 227, pp. 41– 48, 2012.
- [20] E. Y. Yazici and H. Deveci, "Factors affecting decomposition of hydrogen peroxide," *Proceedings of the XIIth International Mineral Processing Symposium*, 2010, pp. 609 – 616.
- [21] C.W. Jones, "Applications of Hydrogen Peroxide and Derivatives," in *Industrial and Technical Chemistry*, 1st Ed., MPG Books, UK, 1999, pp.79 – 177.