

ẢNH HƯỞNG CỦA CÁC THÔNG SỐ VẬN HÀNH ĐỐI VỚI VIỆC LOẠI BỎ CARBAMAZEPINE VÀ CÁC CHẤT DINH DƯỠNG TRONG HỆ THỐNG MÀNG SINH HỌC CERAMIC

Đào Khánh Châu*

Trường Đại học Công nghệ Đồng Nai

*Email: daokhanhchau@dntu.edu.vn

Ngày nhận bài: 09/5/2023; Ngày chấp nhận đăng: 06/10/2023

TÓM TẮT

Dược phẩm và các sản phẩm chăm sóc cá nhân đã và đang gây ra những lo ngại đáng kể do được sử dụng rộng rãi, có mặt trong môi trường nước và những tác động tiềm ẩn của chúng đối với động vật hoang dã và con người. Carbamazepine là dư lượng dược phẩm được phát hiện thường xuyên nhất trong số các sản phẩm dược phẩm và chăm sóc cá nhân. Tuy nhiên, hiệu quả loại bỏ carbamazepine thấp trong các nhà máy xử lý nước thải là do khả năng chống phân hủy sinh học của nó ở nồng độ thấp. Hệ thống sinh học màng (membrane bioreactor - MBR) gần đây đã thu hút sự chú ý trong xử lý nước thải ở các thành phố và khu công nghiệp vì tính hiệu quả trong việc tách các chất ô nhiễm và khả năng chịu tải cao. Trong nghiên cứu này, các tác động chính và tác động tương tác của ba thông số vận hành, bao gồm thời gian lưu nước – HRT (12–24 giờ), nồng độ oxy hòa tan – DO (1,5–5,5 mg/L) và thời gian lưu bùn – SRT (5–15 ngày), trong việc loại bỏ carbamazepine, nhu cầu oxy hóa học (COD), nitơ amonia và photpho sử dụng màng gốm đã được thực hiện bằng cách áp dụng thiết kế thí nghiệm yếu tố đủ (full factorial design – FFD) hai cấp độ. Nồng độ oxy hòa tan, thời gian lưu nước và thời gian lưu bùn tối ưu lần lượt là 1,7 mg/L, 24 giờ và 5 ngày. Kết quả nghiên cứu cho thấy khả năng ứng dụng của MBR trong xử lý nước thải có tải lượng carbamazepine cao, cùng với sự hiệu quả trong việc loại bỏ các chất dinh dưỡng.

Từ khóa: Thiết kế thí nghiệm yếu tố đủ; carbamazepin; màng sinh học MBR; nước thải bệnh viện; thông số vận hành.

1. MỞ ĐẦU

Trong những năm gần đây, dược phẩm và các sản phẩm chăm sóc cá nhân (Pharmaceuticals and personal care products - PPCP) đang gây ra mối lo ngại ngày càng tăng vì chúng là chất gây ô nhiễm mới, được sử dụng rộng rãi, hiện diện trong môi trường nước và tác động tiềm ẩn đối với động vật hoang dã và con người. PPCP bao gồm một nhóm lớn và đa dạng các hợp chất hữu cơ, bao gồm dược phẩm và các thành phần của các sản phẩm chăm sóc cá nhân hàng ngày (xà phòng, kem đánh răng, nước hoa, kem chống nắng, v.v.) cũng như các sản phẩm chuyên hóa và biến đổi của chúng được sử dụng rộng rãi với lượng lớn trên toàn thế giới [1]. Các nghiên cứu trước đây cho thấy nhiều PPCP thường được phát hiện trong nước mặt, nước ngầm, nước biển và nước uống [2-4].

Dược phẩm và nhiều loại thuốc được sử dụng rộng rãi trong các bệnh viện, vì vậy nước thải bệnh viện thường có tỷ lệ phát hiện và nồng độ các chất gây ô nhiễm này cao hơn các nguồn khác [5, 6]. Một trong những vấn đề môi trường chính do nước thải bệnh viện gây ra là chúng xả vào hệ thống thoát nước đô thị mà không qua xử lý sơ bộ. Do đó, các nhà máy xử lý nên được nâng cấp để loại bỏ các PPCP này đến mức tối đa có thể trước khi nước thải của

chúng được thải ra môi trường. Trong các cuộc điều tra gần đây, các loại kháng sinh khác nhau đã được tìm thấy ở nồng độ thấp trong nước thải đô thị và nước mặt [7–9].

Carbamazepine (CBZ) là một loại thuốc phổ biến để kiểm soát các cơn động kinh, với khoảng 1014 tấn thuốc này được tiêu thụ trên toàn thế giới hàng năm. Việc dùng quá liều CBZ và các chất chuyển hóa của nó có thể gây hại cho gan. Kết quả là, nó là dư lượng dược phẩm phổ biến nhất được tìm thấy trong các vùng nước [10–12]. Các khảo sát trước đây cho thấy rằng CBZ tồn tại lâu dài trong các hệ thống xử lý nước thải với hiệu suất loại bỏ hầu hết dưới 10% [13], do khả năng chống lại sự phân hủy sinh học ở nồng độ thấp và ít bám vào bùn [14]. CBZ có thể được xem là một “nhân chứng” xác nhận sự hiện diện và tồn tại lâu dài của các thành phần thuốc trong các vùng nước [15].

Trong những năm gần đây, công nghệ màng đã thu hút sự chú ý để xử lý nước cấp và nước thải ở các thành phố và khu công nghiệp. Kết hợp màng với các phương pháp xử lý sinh học là một kỹ thuật hấp dẫn và khai sinh một khái niệm mới: hệ thống sinh học màng (MBR). MBR lần đầu tiên được sử dụng để xử lý nước thải hơn 50 năm trước [16]. MBR nhúng chìm (SMBR), được đặc trưng bằng cách nhúng các mô-đun màng dưới dạng các đơn vị phân tách trực tiếp trong bể phản ứng sinh học, được phát triển để xử lý nước thải vào những năm 1990 [17]. Các quy trình lọc màng là những lựa chọn thay thế đầy hứa hẹn để loại bỏ PPCP khỏi nước thải [18,19]. Mặc dù hiệu quả trong việc loại bỏ các chất ô nhiễm, khả năng chịu tải cao, chất lượng nước thải ổn định, dễ vận hành, chiếm diện tích nhỏ và loại bỏ vi khuẩn hiệu quả, nhưng MBR cũng phải đối mặt với một số thách thức trong nghiên cứu và phát triển, chẳng hạn như tắc nghẽn màng, chi phí cao và yêu cầu phải tiền xử lý [20].

Nghiên cứu này khảo sát các thông số (yếu tố) vận hành thông qua thiết kế thí nghiệm yếu tố đủ (full factorial design - FFD) để tối ưu hóa quy trình MBR. Đầu tiên, các yếu tố vận hành quan trọng, gian lưu nước - HRT, oxy hòa tan - DO và thời gian lưu bùn - SRT, được chọn để nghiên cứu các tác động chính và tương tác của chúng đối với các đáp ứng sau: hiệu quả loại bỏ CBZ, COD, nitơ amonia - $\text{NH}_4^+\text{-N}$, và photpho - $\text{PO}_4^{3-}\text{-P}$. Phạm vi của các yếu tố đã được chọn dựa trên khả năng thiết lập thử nghiệm, cân nhắc kinh tế và giới hạn vận hành của hệ thống MBR. Cuối cùng, một mô hình hồi quy được trình bày cho từng đáp ứng và việc tối ưu hóa quy trình được thực hiện để đạt được loại bỏ tối đa cho phép đối với CBZ, COD, $\text{NH}_4^+\text{-N}$ và $\text{PO}_4^{3-}\text{-P}$.

2. NGUYÊN LIỆU VÀ PHƯƠNG PHÁP NGHIÊN CỨU

2.1. Hóa chất

Hóa chất được sử dụng để chuẩn bị nước thải nhân tạo là loại phân tích, acetonitril, axeton, etyl axetat và metanol (dành cho máy HPLC) được mua từ Sigma-Aldrich. Cột chiết Oasis HLB 3 cc Vac được cung cấp bởi Waters, Milford, MA, USA.

CBZ có độ tinh khiết cao nhất hiện có trên thị trường, được mua từ Sigma-Aldrich. Nước siêu tinh khiết được điều chế bằng hệ thống lọc nước Milli-Q (điện trở suất 18,2 M Ω cm ở 25 °C). Tất cả các dung môi cho máy HPLC đã được lọc trước khi sử dụng bằng giấy lọc màng 0,45 μm (Millipore, Merck, Darmstadt, Đức) và khử khí bằng siêu âm trong 30 phút trước khi sử dụng.

Dung dịch gốc của CBZ được chuẩn bị trong nước Milli-Q từ dạng bột với nồng độ 1 g/L. Dung dịch gốc được pha hàng tuần từ dạng bột và được bảo quản trong bóng tối ở 4 °C.

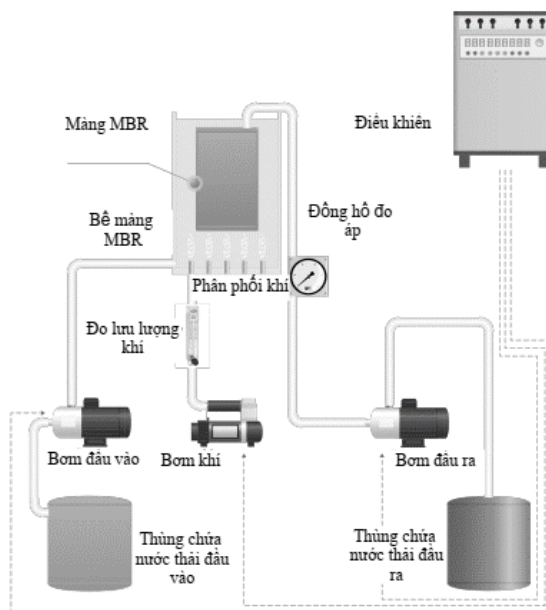
2.2. Nước thải nhân tạo

Nước thải mô phỏng nước thải bệnh viện dựa trên nghiên cứu trước đó [21] được tổng hợp bao gồm (g/L): peptone 0,12, chiết xuất thịt 0,083, NH_4Cl 0,143, NaCl 0,005, $\text{CaCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ 0,003, $\text{MgSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ 0,0015, $\text{CuCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ 50×10^{-6} , $\text{K}_2\text{HPO}_4 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$ 0,084, $\text{C}_6\text{H}_{12}\text{O}_6$ 0,19, và

NaHCO₃ 0,83. Nồng độ COD là 485,82 ± 57,11 mg/L, NH₄⁺-N 60,72 ± 8,67 mg/L, PO₄³⁻-P là 14,74 ± 1,09 mg/L và độ pH là 7,7 ± 0,2. CBZ được thêm vào nước thải tổng hợp ở mức 100 µg/L.

2.3. Cấu hình và vận hành hệ thống

Hệ thống MBR thể tích 25L dùng màng gồm tám phẳng (GVE Environmental Co., Ltd., Đào Viên, Đài Loan) với kích thước lỗ màng danh nghĩa là 0,1 µm và diện tích bề mặt hiệu dụng là 0,25 m² (Hình 1).



Hình 1. Sơ đồ thiết lập thí nghiệm của hệ thống sinh học màng (MBR)

Màng gồm tám phẳng dựa trên Al₂O₃ có ba lớp: lớp bề mặt, lớp chuyển tiếp và lớp hỗ trợ. Màng được vận hành ở chế độ ngắt quãng (hoạt động 8 phút và nghỉ 2 phút) giúp thư giãn mô-đun màng. Tốc độ dòng chảy vào được điều chỉnh bằng với tốc độ dòng chảy ra để duy trì mực nước không đổi. Các hệ thống được điều khiển tự động bằng bộ hẹn giờ và đồng hồ đo áp suất. Bộ khuếch tán không khí được đặt ở dưới cùng của bể phản ứng để sục khí và làm sạch màng, nguồn cung cấp không khí được điều khiển bằng đồng hồ đo lưu lượng khí.

Áp suất xuyên màng (TMP) được đo bằng cách sử dụng đồng hồ đo áp suất được lắp đặt giữa mô-đun màng và bơm đầu ra. Vào cuối mỗi thí nghiệm, qui trình làm sạch màng được thực hiện. Mô-đun màng được rửa sạch bằng nước máy để loại bỏ lớp bùn bám và sau đó ngâm trong dung dịch natri hypochlorite 3 % (v/v) tối thiểu 24 giờ. Bùn hoạt tính được rút khỏi bể phản ứng trong quá trình làm sạch bằng hóa chất.

Bùn hoạt tính được thu thập từ hệ thống nước thải thông thường tại nhà máy xử lý nước thải truyền thống. Tỷ lệ chất rắn lơ lửng dễ bay hơi với chất rắn lơ lửng (MLVSS/MLSS) của bùn hoạt tính hạt là 0,8. Các thành phần trong nước thải tổng hợp được điều chỉnh để duy trì tỷ lệ BOD:N:P là 100:15:5. Nitơ và photpho được đưa vào nước thải tổng hợp ở mức dư thừa để không bị thiếu hụt các chất dinh dưỡng cần thiết cho hoạt động của vi khuẩn. Sau mỗi thí nghiệm, một lượng bùn được bổ sung vào bể phản ứng MBR để đạt nồng độ khoảng 5000 mg/L.

2.4. Mô hình hóa bằng thiết kế thí nghiệm yếu tố đủ (FFD)

FFD được sử dụng để xác định các yếu tố quan trọng, khả năng dự đoán các tương tác và tối ưu hóa các tham số. HRT (12 và 24 giờ), DO (1,5 và 5,5 mg/L) và SRT (5 và 15 ngày) được thiết lập, như trong Bảng 1. Các thí nghiệm được thực hiện ở nhiệt độ môi trường. Nồng

độ CBZ, COD, $\text{NH}_4^+\text{-N}$ và $\text{PO}_4^{3-}\text{-P}$ được phân tích bằng phương pháp phân tích. Tất cả các mẫu được thực hiện ba lần và độ lệch chuẩn trung bình được tính cho từng mẫu. Mỗi thí nghiệm được tiến hành trong năm ngày.

Bảng 1. Các yếu tố và mức độ cho thiết kế yếu tố đủ (FFD)

Yếu tố	Tên	Đơn vị	Kiểu	Min	Max
A	DO	mg/L	Numeric	1,5	5,5
B	HRT	giờ	Numeric	12	24
C	SRT	ngày	Numeric	5	15

Phương pháp này bao gồm việc thêm các điểm trung tâm vào FFD hai cấp để bảo vệ độ cong và cho phép dự đoán sai số một cách độc lập [22]. Phương pháp này cũng có thể dễ dàng nâng cấp để đáp ứng các thiết kế bề mặt nhằm tối ưu hóa hơn nữa quá trình [23]. Phương trình hồi quy dựa trên mô hình bậc nhất với ba tham số và các số hạng tương tác của chúng có thể được đưa ra dưới dạng biểu thức sau [24]:

$$Y_i = b_0 + b_1X_{1i} + b_2X_{2i} + b_3X_{3i} + b_{12}X_{1i}X_{2i} + b_{13}X_{1i}X_{3i} + b_{23}X_{2i}X_{3i} + b_{123}X_{1i}X_{2i}X_{3i} \quad (1)$$

trong đó Y_i là đáp ứng; Các giá trị X_{ji} ($j = 1, 2, 3; i = 1, 2, 3, \dots, 8$) biểu thị các tham số tương ứng ở dạng mã hóa của chúng; b_0 là giá trị trung bình cộng của kết quả; b_1, b_2 và b_3 là các hệ số tuyến tính; và b_{12}, b_{13}, b_{23} và b_{123} đại diện cho các hệ số tương tác (24). Việc thêm các yếu tố tương tác vào các hiệu ứng chính đã đưa độ cong vào chức năng đáp ứng. Do đó, nếu có độ cong nhẹ trong một vùng giới hạn, mô hình bậc nhất với các tương tác là phù hợp để mô hình hóa [25,26]. Design-Expert® 11 được sử dụng để thiết kế thí nghiệm và phân tích phương sai (ANOVA) được sử dụng để phân tích kết quả.

2.5. Phương pháp phân tích

Các phương pháp phân tích dựa theo Standard Methods [27] được áp dụng để xác định COD, MLSS và $\text{PO}_4^{3-}\text{-P}$. COD được đo bằng phương pháp so màu với sự có mặt của kali dicromat và độ hấp thụ được đo ở bước sóng 600nm bằng máy quang phổ UV (DR 5000, Hach, CO, USA). $\text{NH}_4^+\text{-N}$ được đo bằng phương pháp indophenol [28].

Trước khi tiến hành quá trình chiết tách pha rắn trong quy trình phân tích CBZ, chất rắn lơ lửng trong mẫu được loại bỏ bằng cách lọc mẫu qua bộ lọc sợi thủy tinh 0,45 μm (Millipore, Merck, Darmstadt, Đức). Tiếp theo, CBZ được chiết từ các mẫu nước bằng cột chiết đã chọn. Trước khi nạp mẫu, chất hấp phụ pha rắn đã được ổn định trước với 5 mL metanol, sau đó là 5 mL nước Milli-Q. Sau đó, mẫu được đưa qua cột chiết với tốc độ dòng chảy 5 mL/phút. Sau đó, cột được rửa giải bằng năm lần 1 mL etyl axetat–axeton (50:50, v/v) với tốc độ 1 mL/phút; phần dịch sau đó được làm bay hơi dưới dòng khí nitơ có độ tinh khiết cao và được hòa tan lại trong 1 mL metanol. CBZ sau đó được phân tích trên máy HPLC Agilent 1200 (Agilent, Santa Clara, CA, Hoa Kỳ). Bước sóng phát hiện là 210nm và nhiệt độ cột được đặt ở 30°C. Cột Eclipse XDB-C18 (4,6 \times 150 mm, kích thước hạt 5 μm , Agilent) được sử dụng để phân tách. Pha động là axetonitril–nước (31:69, v/v) với tốc độ dòng 1 mL/phút. Thể tích tiêm là 20 μL . Giá trị LOQ (limit of quantification) của phương pháp xác định CBZ là 0,25 $\mu\text{g/L}$.

3. KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN

3.1. Sự phù hợp của mô hình và phân tích thống kê

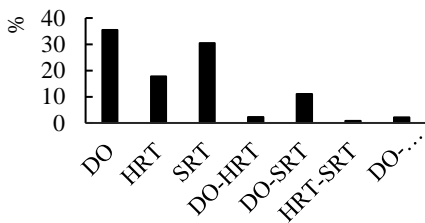
Tổng cộng có 11 thử nghiệm đã được thực hiện bằng cách sử dụng FFD hai cấp ba yếu tố với ba lần lặp lại tại điểm trung tâm. Bảng 2 cho thấy ma trận thiết kế thử nghiệm và kết quả của các đáp ứng được khảo sát.

Để một mô hình phù hợp tốt, giá trị R^2 ít nhất phải bằng 0,80. Các biến đáp ứng này có R^2 lớn hơn 0,80, cho thấy rằng các mô hình hồi quy giải thích tốt đáp ứng [29]. Các thí nghiệm được thực hiện trong các lần chạy ngẫu nhiên để xác định ảnh hưởng của các yếu tố đối với bốn đáp ứng: CBZ, COD, $\text{NH}_4^+\text{-N}$ và $\text{PO}_4^{3-}\text{-P}$.

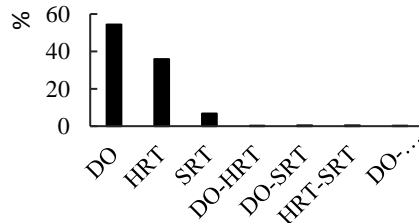
Phần trăm đóng góp của tất cả các yếu tố được trình bày dưới dạng biểu đồ trong Hình 2 để xác định tầm quan trọng của các yếu tố. Có thể thấy từ Hình 2a, b và d rằng trong trường hợp loại bỏ CBZ, COD và photpho, DO là yếu tố có ảnh hưởng nhất. Ngoài ra, theo Hình 2c, HRT có ảnh hưởng đáng kể nhất trong việc loại bỏ amonia.

Bảng 2. Bảng thiết kế thí nghiệm cho các yếu tố và đáp ứng

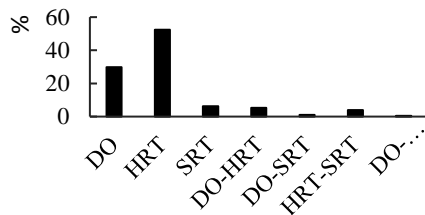
Run	Yếu tố 1	Yếu tố 2	Yếu tố 3	Đáp ứng 1	Đáp ứng 2	Đáp ứng 3	Đáp ứng 4
	A:DO (mg/L)	B:HRT (giờ)	C:SRT (ngày)	% loại bỏ CBZ	% loại bỏ COD	% loại bỏ Amonia	% loại bỏ photpho
1	3,5	18	10	17,66 ± 3,33	87,18 ± 3,88	91,62 ± 6,04	-9,57 ± 2,22
2	1,5	24	15	19,65 ± 7,18	82,16 ± 4,97	90,40 ± 1,11	-8,71 ± 1,05
3	5,5	24	5	17,23 ± 5,38	99,37 ± 0,42	99,58 ± 0,25	-15,43 ± 0,33
4	5,5	24	15	14,75 ± 4,48	95,97 ± 0,99	99,71 ± 0,03	-16,87 ± 1,51
5	5,5	12	15	9,04 ± 1,12	85,87 ± 2,37	89,38 ± 3,65	-11,51 ± 1,75
6	5,5	12	5	13,67 ± 4,81	89,46 ± 1,40	85,81 ± 1,38	-9,50 ± 2,95
7	3,5	18	10	16,20 ± 4,00	87,62 ± 3,23	90,35 ± 2,41	-11,84 ± 2,47
8	1,5	12	5	24,12 ± 1,45	77,49 ± 1,46	79,75 ± 6,58	-6,03 ± 1,73
9	3,5	18	10	18,48 ± 4,35	89,54 ± 0,22	92,62 ± 1,64	-9,20 ± 3,27
10	1,5	12	15	13,39 ± 10,31	69,23 ± 2,56	87,50 ± 3,51	-5,91 ± 1,23
11	1,5	24	5	38,36 ± 4,49	87,07 ± 0,54	89,30 ± 1,33	-7,10 ± 4,70



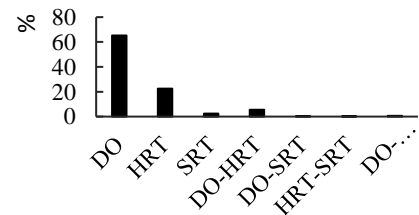
(a)



(b)



(c)



(d)

Hình 2. Phần trăm đóng góp của từng yếu tố vào (a) loại bỏ CBZ, (b) loại bỏ COD, (c) loại bỏ amonia, (d) loại bỏ photpho.

3.2. Loại bỏ CBZ

Hiệu suất tổng thể của MBR được dự đoán bằng cách tính toán loại bỏ CBZ dưới dạng đáp ứng. Phân tích phương sai (ANOVA) cho các yếu tố mô hình được tóm tắt trong Bảng 3. Giá trị F và giá trị p xác định tầm quan trọng của từng hệ số. Nó đã được quan sát từ phân tích ANOVA rằng mức độ tin cậy lớn hơn 80% ($p < 0,05$) đối với đáp ứng loại bỏ CBZ, trong khi giá trị F và giá trị p của mô hình lần lượt là 38,44 và 0,0062. Điều này chỉ ra rằng mô hình dự đoán phù hợp với dữ liệu thử nghiệm một cách đầy đủ.

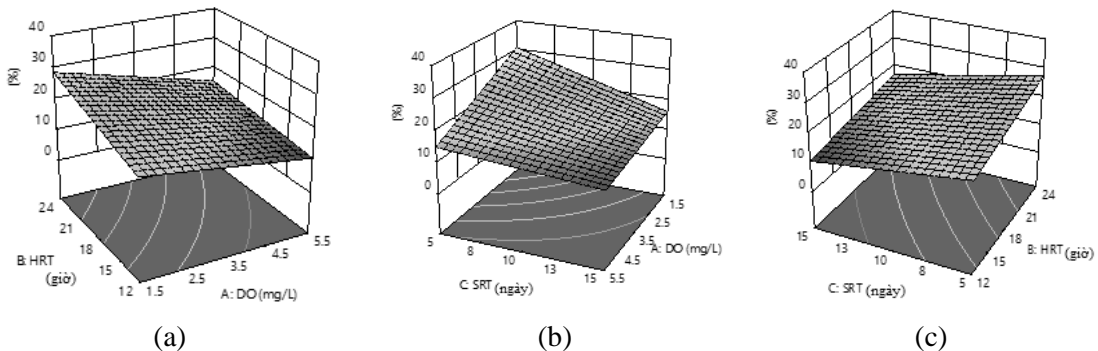
Bảng 3. Kết quả ANOVA cho đáp ứng loại bỏ CBZ

Giá trị	Tổng các bình phương	Bậc tự do	Trung bình bình phương	Giá trị F	Giá trị p	Nhận xét
Mô hình	582,31	7	83,19	38,44	0,0062	Đáng kể
A-DO	207,62	1	207,62	95,94	0,0023	
B-HRT	111,38	1	111,38	51,47	0,0056	
C-SRT	167,72	1	167,72	77,51	0,0031	
AB	16,02	1	16,02	7,40	0,0725	
AC	62,82	1	62,82	29,03	0,0125	
BC	4,13	1	4,13	1,91	0,2610	
ABC	12,62	1	12,62	5,83	0,0946	
Residual	6,49	3	2,16			
Lack of fit	3,81	1	3,81	2,85	0,2335	Không đáng kể
Pure error	2,68	2	1,34			
Cor total	588,80	10				
Std. dev.	1,47		R ²		0,9890	
Mean	18,41		Adjusted R ²		0,9632	

Hơn nữa, hệ số xác định R² của mô hình khá gần với 1 (0,9890), ngụ ý rằng mô hình giải thích được khoảng 98,90% độ biến thiên của dữ liệu. Từ Bảng 3, A (DO), C (SRT) và B (HRT) là các yếu tố mô hình quan trọng. Tương tác giữa DO và SRT quan trọng hơn các tương tác khác (AB, BC và ABC), với giá trị xác suất lớn hơn 0,05. Sau khi loại bỏ các tham số không đáng kể, mô hình thực nghiệm cuối cùng ở mức độ tin cậy 95% có thể được biểu diễn dưới dạng:

$$\text{Hiệu quả loại bỏ CBZ (\%)} = 10,16 + 0,54 \times A + 2,01 \times B - 0,15 \times C - 0,33 \times A \times B - 0,097 \times A \times C - 0,098 \times B \times C + 0,02 \times A \times B \times C \quad (2)$$

Hình 3a–c hiển thị biểu đồ bề mặt 3D của việc loại bỏ CBZ so với hai tham số khác nhau và giá trị cố định của tham số thứ ba. Một lần nữa, sự giảm hiệu quả loại bỏ CBZ đã được quan sát thấy khi tăng DO và SRT, với tác động của DO lớn hơn một chút so với SRT.



Hình 3. Biểu đồ bề mặt đáp ứng cho hiệu quả loại bỏ CBZ như một hàm của: (a) HRT và DO tại SRT = 10 ngày; (b) SRT và DO tại HRT = 18 giờ; (c) HRT và SRT ở DO = 3,5 mg/L.

Các số liệu cho thấy tác động tích cực của HRT đối với việc loại bỏ CBZ trong hệ thống MBR. Hiệu quả loại bỏ CBZ tối đa là $38,36 \pm 4,49\%$ ở $1,5 \text{ mg/L DO}$, 24 giờ HRT và 5 ngày SRT, trong khi mức tối thiểu đạt $9,04 \pm 1,12\%$ ở $5,5 \text{ mg/L DO}$, 12 giờ HRT và 15 ngày SRT. Kết quả này tương tự với các nghiên cứu trước đây, cho thấy điều kiện thiếu khí loại bỏ nhiều CBZ hơn điều kiện hiếu khí [30] và cũng phụ thuộc nhiều vào các điều kiện vận hành [31]. Việc không có các nhóm nhường điện tử trong CBZ có thể giải thích cho hiệu quả loại bỏ thấp trong quá trình bùn hoạt tính hoặc MBR [32], thậm chí với SRT dài [33]. Kết quả gợi ý rằng khi SRT ngắn có thể có tác động đáng kể đến mô hình nghiên cứu và việc tối ưu hóa các yếu tố vận hành có thể cải thiện đáng kể việc loại bỏ toàn bộ CBZ. Các cơ chế chính để loại bỏ PPCPs bằng MBR là phân hủy sinh học và hấp thụ [34]. Tuy nhiên, để loại bỏ CBZ, cần kết hợp quy trình MBR với các phương pháp xử lý khác, chẳng hạn như quy trình oxy hóa nâng cao (AOP) hoặc hấp phụ.

3.3. Loại bỏ COD

Dựa trên ANOVA (Bảng 4), A (DO) và B (HRT) là các yếu tố mô hình quan trọng, có thể là do sự gia tăng của vi khuẩn dị dưỡng hiếu khí, trong khi tác dụng của C (SRT) không nhiều đối với việc loại bỏ tổng thể. Hơn nữa, mức độ tin cậy của đáp ứng loại bỏ COD lớn hơn 80% ($p < 0,05$), trong khi giá trị F và giá trị p của mô hình lần lượt là 19,38 và 0,0167. Điều này cũng chỉ ra rằng mô hình dự đoán phù hợp với dữ liệu thực nghiệm. Phân tích còn chỉ ra rằng các tương tác của AB, AC, BC và ABC không phải là các yếu tố mô hình quan trọng.

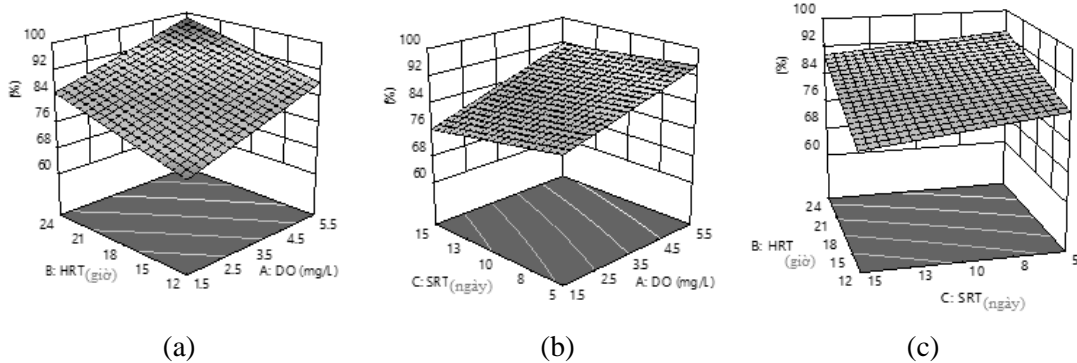
Bảng 4. Kết quả ANOVA cho phản ứng loại bỏ COD

Giá trị	Tổng các bình phương	Bậc tự do	Trung bình bình phương	Giá trị F	Giá trị p	Nhận xét
Mô hình	659,56	7	94,22	19,38	0,0167	Đáng kể
A-DO	374,40	1	374,40	77,02	0,0031	
B-HRT	226,00	1	226,00	46,49	0,0065	
C-SRT	50,80	1	50,80	10,45	0,0481	
AB	0,7858	1	0,7858	0,1617	0,7146	
AC	4,76	1	4,76	0,9788	0,3954	
BC	1,56	1	1,56	0,3218	0,6102	
ABC	1,25	1	1,25	0,2570	0,6471	
Residual	14,58	3	4,86			
Lack of fit	11,43	1	11,43	7,24	0,1148	Không đáng kể
Pure error	3,16	2	1,58			
Cor total	674,15	10				
Std. dev.	2,20		R ²		0,9784	
Mean	86,45		Adjusted R ²		0,9279	

Hình 4a-c minh họa tác động tương tác của các yếu tố đối với việc loại bỏ COD. Kết quả cho thấy khi thay đổi DO từ $1,5$ đến $5,5 \text{ mg/L}$ và HRT từ 12 đến 24 giờ đã tăng khả năng loại bỏ COD lên tương ứng khoảng 13% và 11%, trong khi loại bỏ COD giảm 5% khi thay đổi SRT. Nhìn chung, hệ thống cho thấy hiệu suất tốt trong việc loại bỏ COD, với hiệu quả loại bỏ nằm trong khoảng từ 70% đến 99%. Các giá trị tối đa của đáp ứng là $99,37 \pm 0,42\%$ ở $5,5 \text{ mg/L DO}$, 24 giờ HRT và 5 ngày SRT so với mức tối thiểu là $69,23 \pm 2,56\%$ ở $1,5 \text{ mg/L DO}$, 12 giờ HRT và 15 ngày SRT. Do đó, mô hình thực nghiệm cuối cùng ở mức độ tin cậy 95% có thể được biểu diễn dưới dạng:

$$\text{Hiệu quả loại bỏ COD (\%)} = 71,43 + 1,93 \times A + 0,60 \times B - 1,45 \times C + 0,04 \times A \times B + 0,20 \times A \times C + 0,04 \times B \times C - 0,007 \times A \times B \times C \quad (3)$$

Các hệ số dương +1,93 và +0,60 cho thấy tác động ngày càng tăng của A và B đối với đáp ứng và phụ thuộc nhiều hơn vào DO (A) so với HRT (B). Nghiên cứu này đã xác nhận tác động ít đáng kể của SRT đối với hiệu quả loại bỏ COD trước đây [35]. Hiện tượng này có thể là do tỷ lệ sinh khối hoạt động so với tổng sinh khối (MLVSS/MLSS) giảm sau khi tăng SRT, nó cho thấy tuổi bùn tăng có thể làm giảm hoạt động của vi sinh vật.



Hình 4. Biểu đồ bề mặt đáp ứng cho hiệu quả loại bỏ COD như một hàm của: (a) HRT và DO tại SRT = 10 ngày; (b) SRT và DO tại HRT = 18 giờ; (c) HRT và SRT ở DO = 3,5 mg/L

3.4. Loại bỏ amonia

Dựa trên ANOVA (Bảng 5), A và B là các yếu tố mô hình quan trọng. Ngoài ra, mức độ tin cậy cho đáp ứng loại bỏ amonia lớn hơn 80% ($p < 0,05$), trong khi giá trị F và giá trị p của mô hình lần lượt là 20,57 và 0,0154. Điều này cho thấy rằng mô hình dự đoán phù hợp với dữ liệu thực nghiệm. Hơn nữa, hệ số xác định R^2 của mô hình tương đối gần với 1 (0,9796), nghĩa là mô hình mô tả được khoảng 97,96% độ biến thiên của dữ liệu.

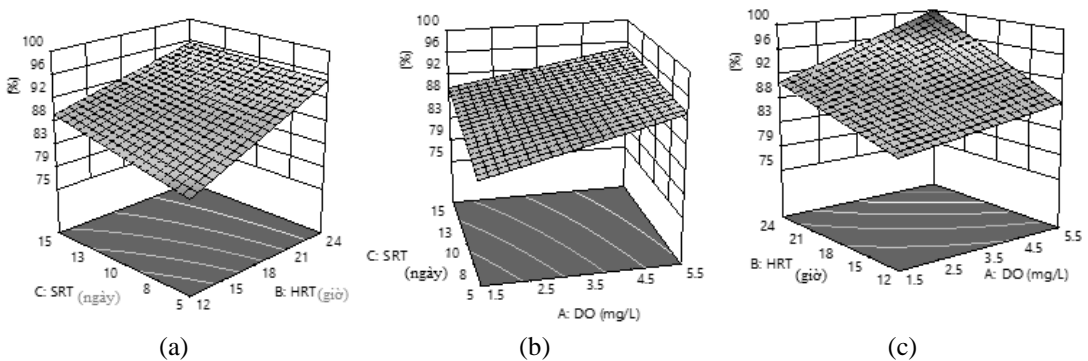
Bảng 5. Kết quả ANOVA cho phản ứng loại bỏ amonia

Giá trị	Tổng các bình phương	Bậc tự do	Trung bình bình phương	Giá trị F	Giá trị p	Nhận xét
Mô hình	315,97	7	45,14	20,57	0,0154	Đáng kể
A-DO	94,80	1	94,80	43,21	0,0072	
B-HRT	167,20	1	167,20	76,21	0,0032	
C-SRT	19,67	1	19,67	8,97	0,0579	
AB	16,97	1	16,97	7,74	0,0689	
AC	3,33	1	3,33	1,52	0,3059	
BC	12,70	1	12,70	5,79	0,0953	
ABC	1,29	1	1,29	0,5872	0,4993	
Residual	6,58	3	2,19			
Lack of fit	4,00	1	4,00	3,10	0,2206	Không đáng kể
Pure error	2,58	2	1,29			
Cor total	322,55	10				
Std. dev.	1,48		R2		0,9796	
Mean	90,55		Adjusted R2		0,9320	

Các hệ số dương cho thấy tác động ngày càng tăng của A và B đối với đáp ứng, tương ứng là +1,39 và +0,99. Có thể thấy, ảnh hưởng của SRT đối với đáp ứng thấp hơn so với DO và HRT, trong khi các tương tác của AB, AC, BC và ABC không phải là các yếu tố mô hình quan trọng. Kết quả là hiệu quả loại bỏ amonia tối đa là 99,71% ở DO (5,5 mg/L), HRT (24 giờ) và SRT (15 ngày). Mô hình thực nghiệm cuối cùng ở mức độ tin cậy 95% có thể được biểu diễn dưới dạng:

$$\text{Hiệu quả loại bỏ amonia (\%)} = 61,29 + 1,39 \times A + 0,99 \times B + 1,72 \times C + 0,05 \times A \times B - 0,18 \times A \times C - 0,07 \times B \times C + 0,007 \times A \times B \times C \quad (4)$$

Những thay đổi trong việc loại bỏ amonia như là một hàm của các biến được thể hiện trong Hình 5a-c. Các nghiên cứu trước đây cho thấy rằng sự gia tăng loại bỏ amonia là do tăng DO, HRT và SRT. Theo một số nghiên cứu về quá trình nitrat hóa trong MBR, việc tăng SRT đã cải thiện đáng kể hiệu quả loại bỏ amonia [36], trong khi những nghiên cứu khác cho thấy hiệu quả loại bỏ amonia cao gần như không phụ thuộc vào SRT [37].



Hình 5. Biểu đồ bề mặt đáp ứng cho hiệu quả loại bỏ amonia như là hàm của: (a) HRT và DO tại SRT = 10 ngày; (b) SRT và DO tại HRT = 18 h; (c) HRT và SRT ở DO = 3,5 mg/L

3.5. Loại bỏ photpho

Quá trình loại bỏ photpho sinh học được chia thành các giai đoạn kỵ khí và hiếu khí. Trong vùng kỵ khí, các sinh vật tích lũy photphat (PAO) giải phóng photpho và tích lũy poly hydroxybutyrate (PHB), trong khi đó, ở vùng hiếu khí, photpho được hấp thụ [38].

Dựa trên phân tích ANOVA, mức độ tin cậy cho đáp ứng loại bỏ photpho lớn hơn 80% ($p < 0,05$), trong khi giá trị F và giá trị p của mô hình lần lượt là 12,77 và 0,0303. Điều này chỉ ra rằng mô hình dự đoán phù hợp tốt với dữ liệu thực nghiệm. Hơn nữa, hệ số xác định R^2 của mô hình khá gần với 1 (0,9675), cho thấy rằng mô hình mô tả khoảng 96,75% độ biến thiên của dữ liệu.

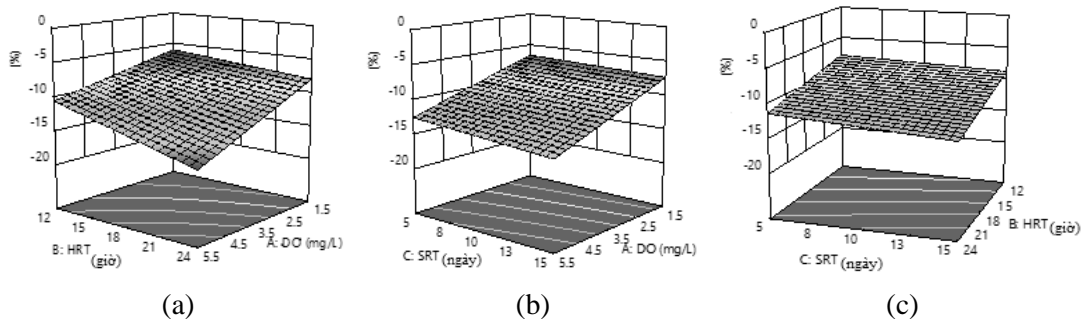
A và B là các yếu tố mô hình quan trọng, như thể hiện trong Bảng 6. Các hệ số dương +0,90, +0,17 và +0,35 cho thấy tác động của A, B và C tăng lên tương ứng đối với đáp ứng. Như có thể quan sát thấy, SRT có ảnh hưởng đến đáp ứng thấp hơn so với DO và HRT, và các tương tác giữa AB, AC, BC và ABC không phải là các yếu tố mô hình quan trọng. Do đó, mô hình thực nghiệm cuối cùng ở mức độ tin cậy 95% có thể được biểu diễn như sau:

$$\text{Hiệu suất loại bỏ photpho (\%)} = -7,28 + 0,90 \times A + 0,17 \times B + 0,35 \times C - 0,12 \times A \times B - 0,11 \times A \times C - 0,02 \times B \times C + 0,005 \times A \times B \times C \quad (5)$$

Hiệu suất loại bỏ photpho tỷ lệ nghịch với DO, HRT và SRT. Kết quả là, mức độ loại bỏ photpho tối đa đạt được là -5,91% ở DO thấp (1,5 mg/L), HRT (12 giờ) và SRT cao (15 ngày), điều này cho thấy môi trường kỵ khí–hiếu khí đã được cung cấp ở điều kiện này. Hình 6a-c cho thấy tác động tương tác của các biến đối với việc loại bỏ photpho.

Bảng 6. Kết quả ANOVA cho đáp ứng loại bỏ photpho

Giá trị	Tổng các bình phương	Bậc tự do	Trung bình bình phương	Giá trị F	Giá trị p	Nhận xét
Mô hình	121,55	7	17,36	12,77	0,0303	Đáng kể
A-DO	81,66	1	81,66	60,06	0,0045	
B-HRT	28,67	1	28,67	21,09	0,0194	
C-SRT	3,05	1	3,05	2,24	0,2312	
AB	6,87	1	6,87	5,05	0,1101	
AC	0,4812	1	0,4812	0,3539	0,5938	
BC	0,1661	1	0,1661	0,1222	0,7498	
ABC	0,6548	1	0,6548	0,4816	0,5376	
Residual	4,08	3	1,36			
Lack of fit	0,0131	1	0,0131	0,0065	0,9433	Không đáng kể
Pure error	4,07	2	2,03			
Cor total	125,63	10				
Std. dev.	1,17		R ²		0,9675	
Mean	-10,15		Adjusted R ²		0,8918	



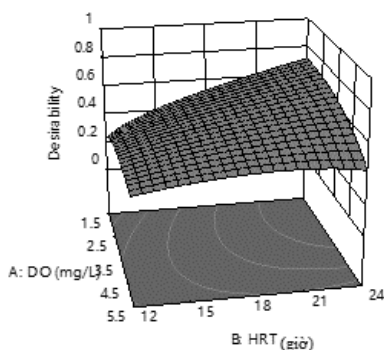
Hình 6. Biểu đồ bề mặt đáp ứng cho hiệu quả loại bỏ photpho như là một hàm của: (a) HRT và DO tại SRT = 10 ngày; (b) SRT và DO tại HRT = 18 giờ; (c) HRT và SRT ở DO = 3,5 mg/L

3.6. Tối ưu hóa quá trình

Việc tối ưu hóa các tham số vận hành dựa trên FFD hai cấp được thực hiện để cải thiện quy trình xử lý của MBR. Ngoài ra, một phương pháp đa đáp ứng gọi là hàm mong muốn đã được sử dụng, phương pháp này tìm ra các điều kiện vận hành mang lại đáp ứng “mong muốn nhất” [39, 40].

Trong phương pháp này, nhiều đáp ứng có thể được kết hợp thành “hàm mong muốn” bằng cách chọn giá trị từ 0 đến 1. Phương pháp này đã chuyển đổi một hàm thích hợp của từng mức đáp ứng xác định (Y_i) thành điểm số mong muốn (desirability) trong phạm vi từ 0 đến 1. Sau đó, tất cả các điểm số mong muốn riêng lẻ được tích hợp vào một hàm mong muốn tổng thể duy nhất được tối ưu hóa để xác định tập hợp các biến đầu vào tối ưu [39].

Vì lý do này, các thông số vận hành được đặt nằm trong phạm vi, trong khi hiệu quả loại bỏ CBZ, COD, amonia và photpho được đặt ở mức tối đa. Hình 7 cho thấy đồ họa mong muốn được tạo ra từ 40 điểm tối ưu. Tại điểm tốt nhất với mức mong muốn tổng thể tối đa là 0,72, DO, HRT và SRT tối ưu lần lượt được tìm thấy là 1,7 mg/L, 24 giờ và 5 ngày. Trong các điều kiện tối ưu, việc loại bỏ CBZ, COD, amonia và photpho thu được lần lượt là 37,08, 88,23, 90,12 và -7,48 %.



Hình 7. Bề mặt 3D phù hợp với SRT 5 ngày.

4. KẾT LUẬN

Nghiên cứu đã sử dụng phương pháp FFD để xác định các tham số quan trọng, khảo sát các tương tác của chúng và tối ưu hóa các điều kiện cho quy trình MBR liên quan đến việc loại bỏ CBZ, COD, amonia và photpho. Tầm quan trọng tương đối của các thông số và các yếu tố tương tác có thể được quan sát như sau: (a) Đối với việc loại bỏ CBZ, khi DO (A) và SRT (C) tăng, hiệu quả loại bỏ sẽ giảm; (b) Loại bỏ COD: đáp ứng phụ thuộc vào A nhiều hơn B trong khi C ít ảnh hưởng; (c) để loại bỏ amonia, các hệ số dương cho thấy tác động ngày càng tăng của A và B đối với đáp ứng, trong khi các tương tác giữa các yếu tố không phải là các yếu tố mô hình quan trọng; (d) để loại bỏ photpho, A và B là các yếu tố mô hình quan trọng. Tương tác giữa AB, AC, BC và ABC không phải là các yếu tố mô hình quan trọng và hiệu quả loại bỏ tỷ lệ nghịch với DO, HRT và SRT. Quá trình tối ưu hóa được thấy ở DO, HRT và SRT là 1,7 mg/L, 24 giờ và 5 ngày để loại bỏ tối ưu CBZ, COD, amonia và photpho.

Màng gồm tám phẳng đã chứng minh hiệu quả loại bỏ CBZ cao tới gần 40%. Để loại bỏ hoàn toàn CBZ, các nghiên cứu trong tương lai khuyến nghị kết hợp quy trình MBR với các phương pháp xử lý khác, chẳng hạn như quy trình oxy hóa bậc cao (AOP) hoặc hấp phụ.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

1. Daughton C.G., Ternes T.A. - Pharmaceuticals and personal care products in the environment: agents of subtle change? Environ Health Perspect. **107** (suppl 6) (1999) 907–38. doi:10.1289/ehp.99107s6907.
2. Fang T.H., Lin C.W., Kao C.H. - Occurrence and distribution of pharmaceutical compounds in the Danshuei River Estuary and the Northern Taiwan Strait. Mar Pollut Bull. **146** (2019) 146:509–20. doi:10.1016/j.marpolbul.2019.06.069.
3. Lin A.Y.C., Panchangam S.C., Chen H.Y. - Implications of human pharmaceutical occurrence in the Sindian river of Taiwan: a strategic study of risk assessment. J Environ Monit. **12** (1) (2010) 261–70. doi: 10.1039/B903880A.
4. Dao K.C., Yang C.C., Chen K.F., Tsai Y.P. - Recent Trends in Removal Pharmaceuticals and Personal Care Products by Electrochemical Oxidation and Combined Systems. Water. **12** (4) (2020) 1043. doi: 10.3390/w12041043.
5. Kosma C.I., Lambropoulou D.A., Albanis T.A. - Occurrence and removal of PPCPs in municipal and hospital wastewaters in Greece. J Hazard Mater. **179** (1-3) (2010) 804–17. doi:10.1016/j.jhazmat.2010.03.075.
6. Oliveira T.S., Murphy M., Mendola N., Wong V., Carlson D., Waring L. - Characterization of pharmaceuticals and personal care products in hospital effluent and

- waste water influent/effluent by direct-injection LC-MS-MS. *Sci Total Environ.* **518** (2015) 459-478. doi:10.1016/j.scitotenv.2015.02.104.
7. Frick E.A., Henderson A.K., Moll D.M., Furlong E.T., Meyer M.T. - Presence of pharmaceuticals in wastewater effluent and drinking water, metropolitan Atlanta, Georgia, July-September 1999. In: Proceedings of the 2001 Georgia Water Resources Conference., Athens, GA, USA: Georgia Institute of Technology (2001).
 8. Hartig C., Storm T., Jekel M. - Detection and identification of sulphonamide drugs in municipal waste water by liquid chromatography coupled with electrospray ionisation tandem mass spectrometry. *J Chromatogr A.* **854** (1-2) (1999) 163-73. doi:10.1016/S0021-9673(99)00378-7.
 9. Meyer M.T., Bumgarner J.E., Varns J.L., Daughtridge J.V., Thurman E.M., Hostetler K.A. - Use of radioimmunoassay as a screen for antibiotics in confined animal feeding operations and confirmation by liquid chromatography/mass spectrometry. *Sci Total Environ.* **248** (2-3) (2000) 181-187. doi:10.1016/S0048-9697(99)00541-0.
 10. Miao X.S., Metcalfe C.D. - Determination of carbamazepine and its metabolites in aqueous samples using liquid chromatography– electrospray tandem mass spectrometry. *Anal Chem.* **75** (15) (2003) 3731-8. doi:10.1021/ac030082k.
 11. Molinari R., Pirillo F., Loddo V., Palmisano L. - Heterogeneous photocatalytic degradation of pharmaceuticals in water by using polycrystalline TiO₂ and a nanofiltration membrane reactor. *Catal Today.* **118** (1) (2006) 205-13. doi:10.1016/j.cattod.2005.11.091.
 12. Zhang Y., Geißen S.U., Gal C. - Carbamazepine and diclofenac: removal in wastewater treatment plants and occurrence in water bodies. *Chemosphere* **73** (8) (2008) 1151-61. doi:10.1016/j.chemosphere.2008.07.086.
 13. Mohapatra D.P., Brar S.K., Tyagi R.D., Picard P., Surampalli R.Y. - Analysis and advanced oxidation treatment of a persistent pharmaceutical compound in wastewater and wastewater sludge-carbamazepine. *Sci Total Environ.* **470** (2014) 58-75. doi:10.1016/j.scitotenv.2013.09.034.
 14. Ternes T.A., Herrmann N., Bonerz M., Knacker T., Siegrist H., Joss A. - A rapid method to measure the solid–water distribution coefficient (K_d) for pharmaceuticals and musk fragrances in sewage sludge. *Water Res.* **38** (19) (2004) 4075-84. doi:10.1016/j.watres.2004.07.015.
 15. Clara M., Strenn B., Kreuzinger N. - Carbamazepine as a possible anthropogenic marker in the aquatic environment: investigations on the behaviour of carbamazepine in wastewater treatment and during groundwater infiltration. *Water Res.* **38**(4) (2004) 947-54. doi:10.1016/j.watres.2003.10.058.
 16. Smith Jr C.V. - The use of ultrafiltration membrane for activated sludge separation. In: Proc 24th Annual Purdue Industrial Waste Conf. Purdue University, West Lafayette, IN, USA. (1969) 1300-10.
 17. Yamamoto K., Hiasa M., Mahmood T., Matsuo T. - Direct solid-liquid separation using hollow fiber membrane in an activated sludge aeration tank. In: Water Pollution Research and Control Brighton. Elsevier (1988) 43-54. doi:10.1016/B978-1-4832-8439-2.50009-2.
 18. Nghiem L.D., Schäfer A.I., Elimelech M. - Removal of natural hormones by nanofiltration membranes: measurement, modeling, and mechanisms. *Environ Sci Technol.* **38**(6) (2004) 1888-96. doi:10.1021/es034952r.
 19. Yoon Y., Westerhoff P., Snyder S.A., Wert E.C. - Nanofiltration and ultrafiltration of endocrine disrupting compounds, pharmaceuticals and personal care products. *J Membr Sci.* **270** (1-2) (2006) 88-100. doi:10.1016/j.memsci.2005.06.045.

20. Akamatsu K., Lu W., Sugawara T., Nakao S. ichi. - Development of a novel fouling suppression system in membrane bioreactors using an intermittent electric field. *Water Res.* **44** (3) (2010 Feb 1) 825–30. doi:10.1016/j.watres.2009.10.026.
21. Ouarda, Y., Tiwari, B., Azais, A., Vaudreuil, M. A., Ndiaye, S. D., Drogui, P., ... & Dubé, R. (2018). - Synthetic hospital wastewater treatment by coupling submerged membrane bioreactor and electrochemical advanced oxidation process: Kinetic study and toxicity assessment. *Chemosphere* **193** (2018)160-169. doi: 10.1016/j.chemosphere.2017.11.010
22. Montgomery D.C. - Design and analysis of experiments. John Wiley & sons. (2017).
23. Gottipati R., Mishra S. - Process optimization of adsorption of Cr (VI) on activated carbons prepared from plant precursors by a two-level full factorial design. *Chem Eng J.* **160** (1) (2010) 99–107. doi:10.1016/j.ccej.2010.03.015.
24. Seki Y., Seyhan S., Yurdakoc M. - Removal of boron from aqueous solution by adsorption on Al₂O₃ based materials using full factorial design. *J Hazard Mater.* **138**(1) (2006) 60–6. doi:10.1016/j.jhazmat.2006.05.033.
25. Hui Y.H. - Handbook of food science, technology, and engineering. Vol. 149. Boca Raton, FL, USA: CRC press. (2006).
26. Onsekizoglu P., Bahceci K.S., Acar J. - The use of factorial design for modeling membrane distillation. *J Membr Sci.* **349** (1-2) (2010) 225–30. doi:10.1016/j.memsci.2009.11.049.
27. American Public Health Association. - APHA Standard methods for the examination of water and wastewater. Stand Methods Exam Water Wastewater Wash DC Am Public Health Assoc. (2005).
28. Weatherburn M.W. - Phenol-hypochlorite reaction for determination of ammonia. *Anal Chem.* **39** (8) (1967) 971–4. doi:10.1021/ac60252a045.
29. Joglekar A.M., May A.T. - Product excellence through design of experiments. *Cereal Foods World.* **32**(12) (1987) 857-.
30. Phan H.V., Hai F.I., Zhang R., Kang J., Price W.E., Nghiem L.D. - Bacterial community dynamics in an anoxic-aerobic membrane bioreactor–impact on nutrient and trace organic contaminant removal. *Int Biodeterior Biodegrad.* **109** (2016) 61–72. doi:10.1016/j.ibiod.2016.01.002.
31. Hai F.I., Li X., Price W.E., Nghiem L.D. - Removal of carbamazepine and sulfamethoxazole by MBR under anoxic and aerobic conditions. *Bioresour Technol.* **102** (22) (2011) 10386–90. doi:10.1016/j.biortech.2011.09.019.
32. Hai F.I., Nghiem L.D., Khan S.J., Asif M.B., Price W.E., Yamamoto K. - Removal of emerging trace organic contaminants (TrOC) by MBR. *Membr Biol React Theory Model Des Manag Appl Wastewater Reuse.* (2019) 413–68. doi:10.2166/9781780409177_0413.
33. Reif R., Suárez S., Omil F., Lema J.M. - Fate of pharmaceuticals and cosmetic ingredients during the operation of a MBR treating sewage. *Desalination.* **221**(1-3) (2008) 511–7. doi:10.1016/j.desal.2007.01.111.
34. Tran N.H., Chen H., Reinhard M., Mao F., Gin K.Y.H. - Occurrence and removal of multiple classes of antibiotics and antimicrobial agents in biological wastewater treatment processes. *Water Res.* **104** (2016) 461–72. doi:10.1016/j.watres.2016.08.040.
35. Duan L., Moreno-Andrade I., Huang C. lin, Xia S., Hermanowicz S.W. - Effects of short solids retention time on microbial community in a membrane bioreactor. *Bioresour Technol.* **100** (14) (2009 Jul 1) 3489–96. doi:10.1016/j.biortech.2009.02.056.

36. Fan X.J., Urbain V., Qian Y., Manem J. - Nitrification and mass balance with a membrane bioreactor for municipal wastewater treatment. *Water Sci Technol.* **34** (1-2) (1996) 129–36. doi:10.1016/0273-1223(96)00502-1.
37. Huang X., Gui P., Qian Y. - Effect of sludge retention time on microbial behaviour in a submerged membrane bioreactor. *Process Biochem.* **36** (10) (2001) 1001–6. doi:10.1016/S0032-9592(01)00135-2.
38. Kermani M., Bina B., Movahedian H., Amin M.M., Nikaein M. - Application of moving bed biofilm process for biological organics and nutrients removal from municipal wastewater. *Am J Environ Sci.* **4** (6) (2008) 675.
39. Ruby Figueroa R.A., Cassano A., Drioli E. - Ultrafiltration of orange press liquor: Optimization for permeate flux and fouling index by response surface methodology. *Sep Purif Technol.* **80** (1) (2011 Jul 12) 1–10. doi:10.1016/j.seppur.2011.03.030.
40. Aksezer S.Ç. - On the sensitivity of desirability functions for multiresponse optimization. (2008).

ABSTRACT

EFFECTS OF OPERATION PARAMETERS ON THE REMOVAL OF CARBAMAZEPINE AND NUTRIENTS IN A CERAMIC MEMBRANE BIOREACTOR

Dao Khanh Chau*

Dong Nai Technology University

*Email: *daokhanhchau@dntu.edu.vn*

Pharmaceuticals and personal care products have raised significant concerns due to their widespread use and their potential impacts on wildlife and humans. Carbamazepine is the most frequently detected pharmaceutical residue among pharmaceutical and personal care products. However, the low removal efficiency of carbamazepine in wastewater treatment plants is due to its resistance to biodegradation at low concentrations. Membrane bioreactor (MBR) systems have recently attracted attention in municipal and industrial wastewater treatment because of their efficiency in separating pollutants. In this study, the main effects and interactions of three operating parameters, including hydraulic retention time - HRT (12–24 hours), dissolved oxygen concentration - DO (1.5–5.5 mg/L) and sludge retention time - SRT (5–15 days), in the removal of carbamazepine, chemical oxygen demand (COD), ammonia nitrogen and phosphorus using ceramic membranes was investigated by applying using a two-level full factorial design (FFD). The optimum dissolved oxygen concentration, hydraulic retention time and sludge retention time were 1.7 mg/L, 24 hours and 5 days, respectively. Research results show the applicability of MBR in wastewater treatment with high carbamazepine loading, along with the efficiency in removing nutrients.

Keywords: Carbamazepine, full factorial design, hospital wastewater, membrane bioreactor, operating parameters.