



Original Article

Application of Membrane Bioreactor (MBR) for Antibiotic Elimination From Wastewater

Tran Van Son*, Vu Thi Tuyet Mai

VNU University of Science, 334 Nguyen Trai, Thanh Xuan, Hanoi, Vietnam

Received 21 August 2023

Revised 14 March 2024; Accepted 5 June 2024

Abstract: In this study, a membrane bioreactor – MBR system at laboratory-scale was designed to remove sulfamethoxazole (SMX) in water. The system consists of a 8-liter aerobic tank combined with a hollow fiber micro filtration membrane (MF). Influent flow rate of wastewater was 15,84 L/day. Affecting factors to treatment efficiencies (organic pollutants and antibiotics) such as contact time and initial antibiotic concentration were investigated. Experimental results indicated that wastewater with initial parameters COD, NH_4^+ , NO_3^- , PO_4^{3-} were respectively 240, 9,4, 37,5, 6,3 mg/L, the treatment efficiencies achieved were respectively at 63,4, 89,7, 78,1, and 79,8%. The removal efficiencies of the wastewater containing SMX (concentrations range from 0,052 to 0,268 mg/L) for COD and NH_4^+ decreased by 4,2 and 10,9% respectively, and for NO_3^- and PO_4^{3-} increased by about 4,5 and 7,9%, correspondingly. Overall SMX elimination performance is about 49,7%.

Keywords: MBR, Sulfamethoxazole, Micro Filtration, antibiotic.

* Corresponding author.

E-mail address: transon_mt@hus.edu.vn

<https://doi.org/10.25073/2588-1094/vnuees.5008>

Ứng dụng công nghệ sinh học kết hợp màng (MBR) để xử lý kháng sinh trong nước

Trần Văn Sơn*, Vũ Thị Tuyết Mai

Trường Đại học Khoa học Tự nhiên, Đại học Quốc gia Hà Nội,
334 Nguyễn Trãi, Thanh Xuân, Hà Nội, Việt Nam

Nhận ngày 21 tháng 8 năm 2023

Chỉnh sửa ngày 14 tháng 3 năm 2024; Chấp nhận đăng ngày 5 tháng 6 năm 2024

Tóm tắt: Trong nghiên cứu này, hệ thống công nghệ sinh học kết hợp màng (Membrane Bioreactor - MBR) quy mô phòng thí nghiệm được thiết kế để đánh giá khả năng xử lý nước thải có chứa kháng sinh sulfamethoxazole (SMX). Bể sinh học hiếu khí được thiết kế có thể tích hữu dụng 8 L, màng sợi rỗng vi lọc MF có lưu lượng 15,84 L/ngày. Khả năng xử lý của hệ thống được khảo sát theo các yếu tố ảnh hưởng là thời gian và nồng độ kháng sinh ban đầu. Kết quả cho thấy, với nước thải có các thông số đầu vào COD; NH_4^+ ; NO_3^- ; PO_4^{3-} lần lượt là 240; 9,4; 37,5; và 6,3 mg/L, hiệu suất xử lý đạt được tương ứng là 63,4; 89,7; 78,1; và 79,8%. Với mẫu nước thải nêu trên có cho thêm kháng sinh SMX nồng độ dao động từ 0,052 đến 0,268 mg/L, hiệu suất xử lý có sự thay đổi, cụ thể như sau: hiệu quả xử lý COD; NH_4^+ giảm khoảng 4,2; 10,9% còn các chỉ tiêu NO_3^- ; PO_4^{3-} tăng lần lượt khoảng 4,5; 7,9%; hiệu suất xử lý SMX của hệ đạt khoảng 49,7%.

Từ khóa: Xử lý nước thải, MBR, kháng sinh SMX, màng MF.

1. Mở đầu

Nước là nguồn tài nguyên vô cùng quý giá của con người, tuy nhiên, hiện nay môi trường nước đang bị ô nhiễm có thể đem đến những nguy hiểm tiềm ẩn đặc biệt là nước thải có chứa kháng sinh. Nước thải có chứa kháng sinh làm thay đổi hệ sinh thái, cấu trúc vi sinh vật và có thể tạo ra các mầm bệnh mới cho con người. Kháng sinh SMX là kháng sinh tương đối bền vững trong môi trường, thời gian bán hủy dài nên thúc đẩy sự phát triển của các vi sinh vật kháng kháng sinh. Kháng sinh SMX là 1 trong 5 loại thuốc Sulfonamides được tiêu thụ nhiều trong lĩnh vực y tế, chăn nuôi, nuôi trồng thủy sản và là loại kháng sinh được kê đơn rộng rãi nhất. Vì thế, không khó để phát hiện SMX trong môi trường nước ở nhiều khu vực trên thế giới cũng

như ở Việt Nam. SMX thường được tìm thấy trong nước thải của nhà máy xử lý nước thải và nước mặt. Các mẫu nước hồ ở Hà Nội, SMX có nồng độ trung bình là 0,255 $\mu\text{g/L}$ [1]. Ở hồ Fuxian (Trung Quốc), nồng độ SMX dao động 0,98 - 14,32 $\mu\text{g/L}$ [2]. SMX được quan sát thấy ở đầu vào tại hai nhà máy xử lý nước thải ở Ba Lan có nồng độ 3000 $\mu\text{g/L}$ [3]. Nước mặt đô thị có chứa SMX chủ yếu là do nước thải được xả vào các hồ khi chưa qua xử lý. Vì vậy, với tình trạng ô nhiễm SMX như hiện nay, cần phải có những biện pháp xử lý triệt để để nâng cao sức khỏe và bảo vệ môi trường sống.

Hiện nay, có rất nhiều phương pháp để xử lý nước thải có chứa kháng sinh như: phương pháp oxy hóa/oxy hóa tiên tiến, hấp phụ, màng lọc, sinh học, lắng kết hợp keo tụ, tuy nhiên phương pháp MBR là phương pháp tối ưu, vận hành linh

* Tác giả liên hệ.

Địa chỉ email: transon_mt@hus.edu.vn

<https://doi.org/10.25073/2588-1094/vnuees.5008>

hoạt, phổ biến và đem lại hiệu quả cao. Công nghệ sinh học kết hợp màng (MBR) là công nghệ kết hợp xử lý sinh học (hiếu khí; thiếu khí; kỵ khí) và xử lý qua màng lọc (MF, UF, NF,...). Sự khác biệt của công nghệ này so với các công nghệ truyền thống là công nghệ này tách bùn bằng màng còn truyền thống tách bùn bằng công nghệ lắng hay hóa chất [4]. Công nghệ MBR rất hiệu quả trong việc loại bỏ các chất hữu cơ cao, kim loại, vi khuẩn nên xử lý được nhiều loại nước thải khác nhau như nước thải công nghiệp, nước thải bệnh viện, nước thải sinh hoạt, nước rỉ rác,... Đặc biệt, nước thải bệnh viện chứa nhiều các kháng sinh thuộc nhiều nhóm khác nhau và các hợp chất hữu cơ, vi sinh vật gây bệnh và mầm bệnh nên phù hợp ứng dụng công nghệ MBR để xử lý [1, 4].

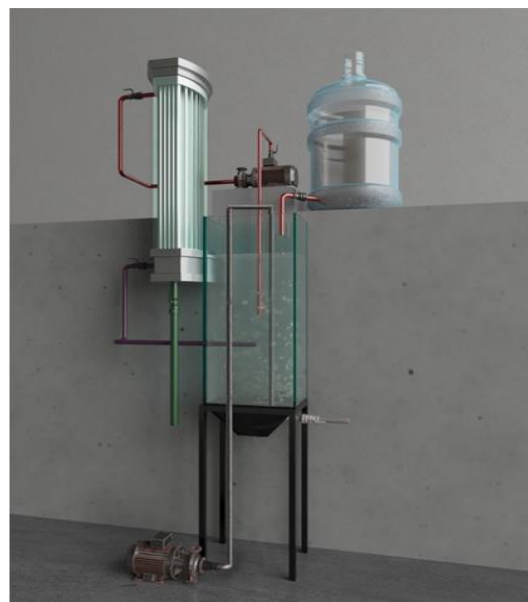
Quá trình xử lý sinh học trong MBR chủ yếu do hấp thụ sinh học, tích lũy sinh học, phân hủy sinh học, bay hơi và phân hủy quang [4]. Trong đó, sự hấp phụ và phân hủy sinh học là con đường chính để loại bỏ dư lượng kháng sinh của hệ thống MBR [4]. Hiệu quả loại bỏ kháng sinh có thể được cải thiện nhờ thời gian lưu bùn dài và nồng độ sinh khối cao hơn, cả hai đều làm tăng thời gian phân hủy kháng sinh của vi sinh [5]. Sinh khối và thời gian lưu dài sẽ tạo điều kiện thuận lợi cho sự phát triển của các vi sinh vật như *Bacillus subtilis*, *Pseudomonas*, *Nitrosomonas europaea*, *Rhodococcus rhodochrous* và *Acinetobacter*. Các vi khuẩn này có khả năng trong việc loại bỏ các hợp chất được phẩm như carbamazepine, SMX, iopromide, diclofenac, triclosan và paracetamol [6]. Không chỉ xử lý được kháng sinh, hệ thống MBR có thể xử lý các chất ô nhiễm khác. Nhờ tác động của vi khuẩn nitrit hóa, amoni (NH_4^+) bị oxy hóa thành nitrit (NO_2^-). Vi khuẩn nitrat hóa oxy hóa NO_2^- thành nitrat (NO_3^-) đồng thời tạo sinh khối. Quá trình này xử lý hiệu quả NH_4^+ đồng thời cung cấp nitrat cho quá trình khử nitrat. Dòng tuần hoàn bùn về bể sinh học giúp ổn định nồng độ vi sinh. Tại bể sinh học, vi khuẩn hấp thụ photpho cao hơn mức bình thường. Khi đó các tế bào này liên kết với nhau thành bông cặn lắng xuống đáy bể lắng sau đó được thải bỏ, do đó, photpho được xử lý hiệu quả.

Cơ chế xử lý của màng lọc là chọn lọc kích thước và tương tác tĩnh điện màng giữa màng và các chất hòa tan. Theo đó, khi dòng nước thải chảy qua màng, nước sạch sẽ được thấm thấu qua các sợi rỗng chảy về hệ thống thu nước và được bơm hút ra ngoài. Vi sinh vật, chất ô nhiễm, bùn được giữ lại trên bề mặt màng và định kỳ hút vào bể chứa bùn để xử lý. Hệ thống có sục khí để cung cấp oxy cho vi sinh vật và giữ bùn ở trạng thái lơ lửng, dẫn đến khả năng tổng hợp tế bào và phân hủy sinh học diễn ra tốt hơn tránh bị nghẽn màng.

Trong nghiên cứu này, hệ thống MBR quy mô phòng thí nghiệm được thiết kế để đánh giá khả năng xử lý nước thải có chứa kháng sinh sulfamethoxazole (SMX), các chất hữu cơ. Nghiên cứu này sẽ tạo cơ sở khoa học của việc sử dụng phương pháp sinh học kết hợp màng MBR để tiếp tục phát triển ứng dụng MBR vào trong xử lý nước thải có chứa kháng sinh như nước thải y tế, nước thải nuôi trồng thủy sản, chăn nuôi.

2. Đối tượng và phương pháp nghiên cứu

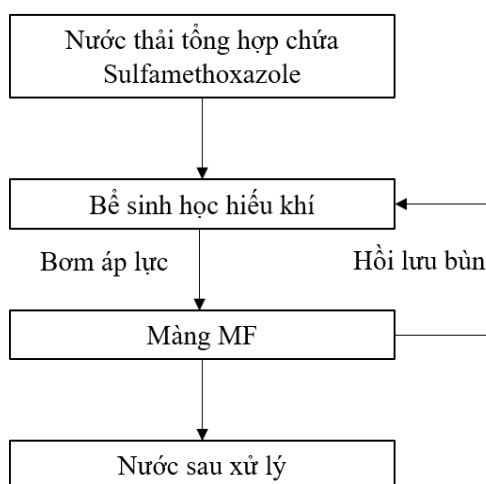
2.1. Đối tượng nghiên cứu



Hình 1. Hình vẽ 3D của hệ thống MBR.



Hình 2. Hệ thống MBR thực tế.



Hình 3. Sơ đồ vận hành của hệ thống MBR.

Trong nghiên cứu này có hai đối tượng nghiên cứu là hệ thống MBR và nước thải giả có chứa kháng sinh. Hệ thống MBR gồm bể sinh học hiếu khí có kích thước 52x15x52 cm; thể tích hữu dụng là 8 L; áp suất vận hành 35 kPa và màng thương mại vi lọc MF polypropylene dạng sợi rỗng (hollow fiber) có kích thước lỗ lọc là 0,45 μm , tốc độ màng lọc là 0,66 L/giờ. Ngoài ra, hệ thống còn thiết kế gắn thêm 6 cục sủi phân bố đồng đều dưới đáy bể để sục khí liên tục. Việc sục khí nhằm tránh tình trạng bùn bám trên các

sợi màng, duy trì bùn ở trạng thái lơ lửng và cung cấp oxy cho sinh khối, dẫn đến khả năng tổng hợp tế bào và phân hủy sinh học diễn ra tốt hơn.

Đối tượng thứ hai của bài nghiên cứu là nước thải giả có chứa kháng sinh. Nước thải giả được pha và phân tích lấy số liệu đầu vào như sau:

Bảng 1. Dữ liệu pha nước thải giả

Hóa chất	Khối lượng (g)	Nồng độ (mg/L)
Glucose	5,6	280
NH_4NO_3	1,744	87,206
KH_2PO_4	0,264	13,1902
$\text{MgSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$	0,1014	5,07
Axit humic	0,2	10
Đất sét	1	50

2.2. Phương pháp nghiên cứu

Nghiên cứu sử dụng kết hợp nhiều phương pháp, đó là phương pháp thiết kế hệ thống, phương pháp đánh giá khả năng xử lý các chất ô nhiễm của hệ và các phương pháp phân tích chất ô nhiễm theo TCVN cụ thể như sau:

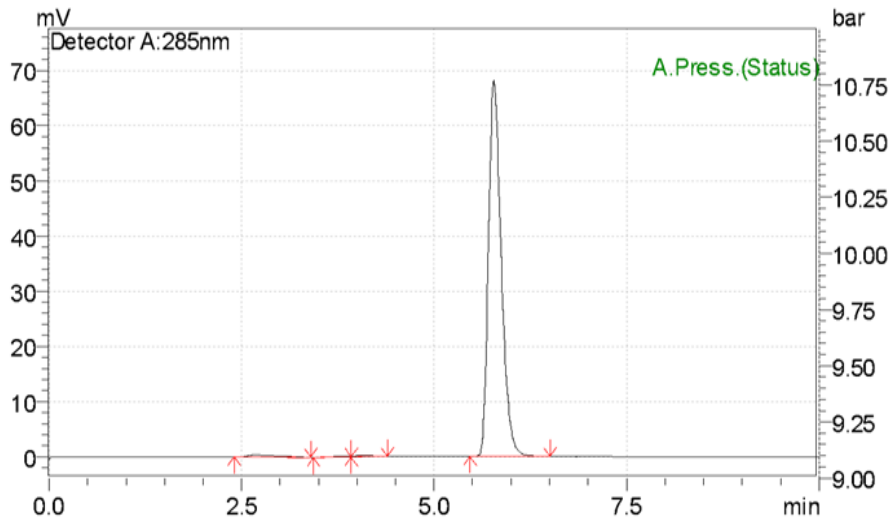
Bảng 2. Các phương pháp phân tích chất ô nhiễm

Chỉ tiêu	Phương pháp phân tích
COD	TCVN 6491:1999 (ISO 6060:1989)
TSS	TCVN 6625: 2000 (ISO 11923:1997)
NH_4^+	Số màu sử dụng thuốc thử Nessler
NO_3^-	TCVN 6180:1996
PO_4^{3-}	TCVN 6202:2008 (ISO 6878:2004)
Kháng sinh	Máy HPLC-UV

3. Kết quả và thảo luận

3.1. Hiệu quả xử lý các chất ô nhiễm trong điều kiện nước thải không có chứa kháng sinh

Kết quả phân tích nước thải đầu vào của hệ thống có sự tương đồng với nước thải y tế và nước thải sinh hoạt được thống kê ở Bảng 3.



Hình 4. Sắc kí đồ kháng sinh SMX bằng máy HPLC – UV.

Bảng 3. Kết quả các chỉ tiêu trong nước thải giả

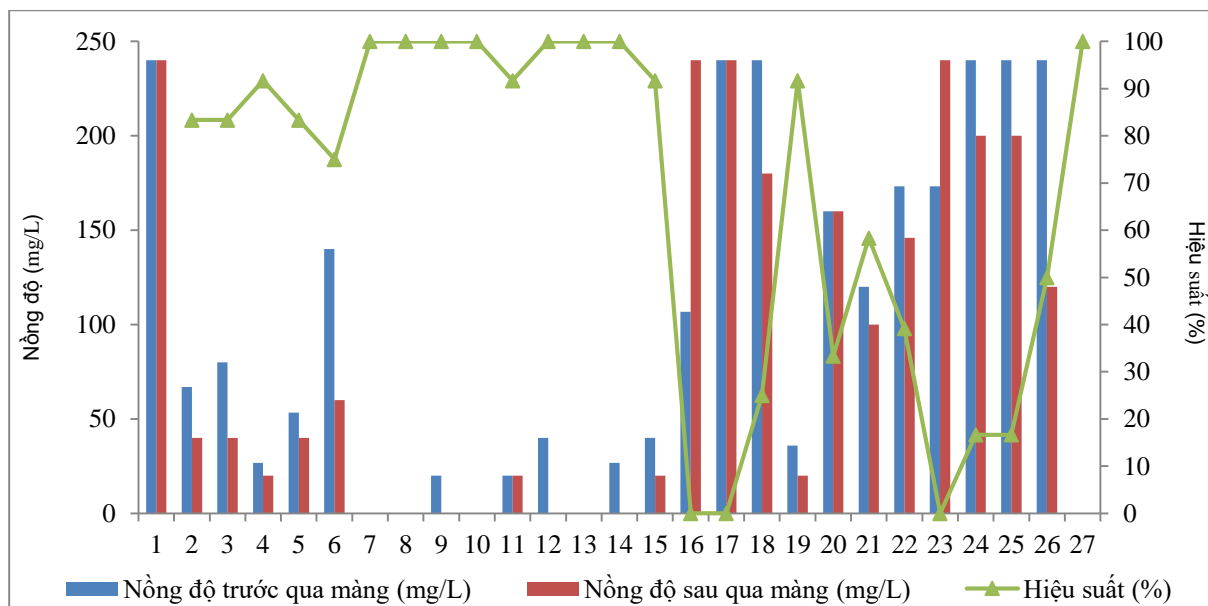
Các chỉ tiêu	Đơn vị	Nước thải trong nghiên cứu	Nước thải y tế thực tế	Nước thải sinh hoạt thực tế
pH	-	6,5 – 6,9	6 - 8	5 - 9
Độ đục	NTU	8,3	-	-
DO	mg/L	3,3	-	-
TSS	mg/L	167	100 - 150	250
COD	mg/L	240	300 - 500	583
NO ₃ ⁻	mg/L	37,5	50 - 80	70
NH ₄ ⁺	mg/L	9,4	15 - 30	30
PO ₄ ³⁻	mg/L	6,3	10 - 20	10

3.1.1. Chỉ tiêu COD

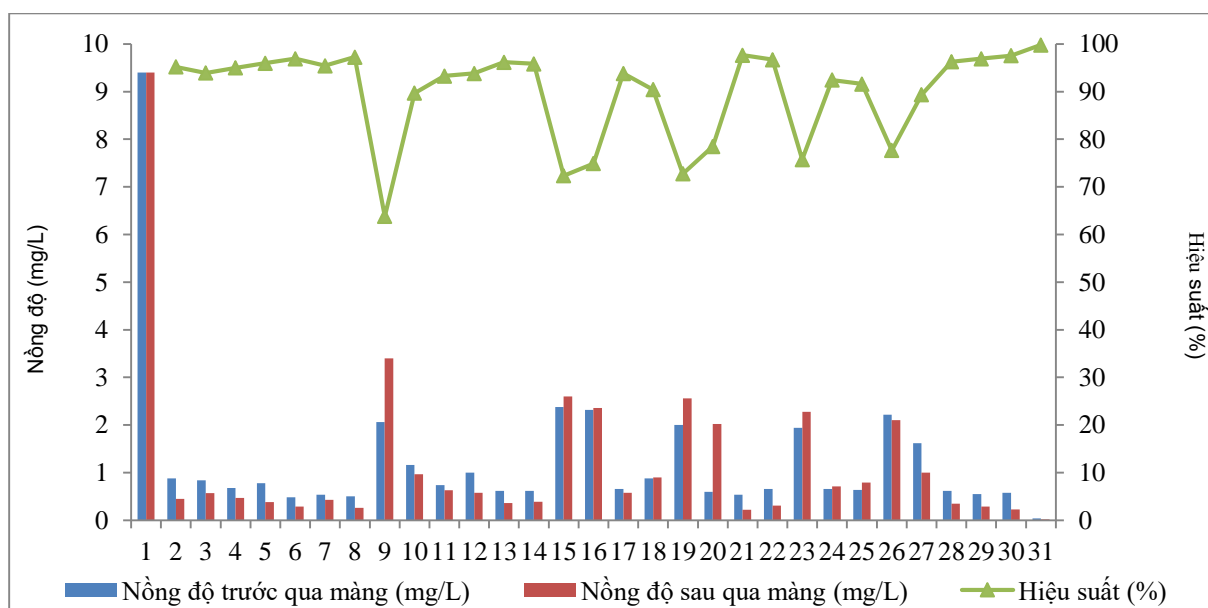
Với nồng độ ban đầu của COD trong nước thải giả là 240 mg/L, kết quả sau xử lý được trình bày ở Hình 5. COD ổn định ở khoảng nồng độ từ 0 – 50 mg/L trong 15 ngày đầu vận hành hệ thống xử lý, tương ứng với hiệu suất dao động 80 – 100%. Đặc biệt, ngày thứ 7, 8, 10, 13 và 27 vận hành hệ thống nồng độ COD nhỏ hơn ngưỡng phát hiện của phương pháp phân tích. Tuy nhiên, nồng độ COD tăng đột biến sau 16 ngày vận hành hệ thống do cặn bẩn trên bề mặt màng, các vi sinh chết và phân hủy vào nước làm ảnh hưởng đến nồng độ COD ở đầu ra của hệ

thống. Quá trình vận hành hệ thống MBR sau đó có nồng độ COD không ổn định.

Nhìn chung, hiệu suất xử lý COD trung bình của hệ MBR trước khi qua màng đạt 60,2% và sau khi qua màng đạt 66,6%. Nghiên cứu của Smith & cộng sự (2015) cũng chỉ ra rằng hiệu suất xử lý COD sau khi qua màng cao hơn trước khi qua màng. Điều này có thể được giải thích là do sự hình thành màng sinh học trên bề mặt màng, cho phép tăng cường khả năng phân hủy sinh học của chất hữu cơ [7]. Nước thải được hệ thống MBR xử lý đạt hiệu suất trung bình là 63,4%. Như vậy, hiệu suất xử lý chỉ tiêu COD tương đối cao.



Hình 5. Biểu đồ thể hiện hiệu suất nồng độ COD khi không có kháng sinh.



Hình 6. Biểu đồ thể hiện hiệu suất nồng độ của NH_4^+ khi không có kháng sinh.

3.1.2. Chỉ tiêu amoni (NH_4^+)

Hiệu quả xử lý NH_4^+ của hệ thống MBR với nồng độ đầu vào là 9,4 mg/L được trình bày ở Hình 6. Nồng độ NH_4^+ giảm xuống khoảng 0,2 - 1 mg/L duy trì ổn định trong 8 ngày đầu vận hành, tương ứng với hiệu suất 90-97%. Đặc biệt,

ngày vận hành thứ 31 vận hành hệ thống nồng độ NH_4^+ nhỏ hơn ngưỡng phát hiện của phương pháp phân tích. Trong quá trình vận hành, có một số ngày như ngày 9, 15, 16, 19, 23 và 26, nồng độ NH_4^+ tăng lên trong khoảng 2,06 - 2,38, cao hơn mức nồng độ trung bình là khoảng 1-1,2

mg/L. Điều này có thể là do sự chuyển đổi sinh học của protein thành axit amin và NH_4^+ làm tăng nồng độ NH_4^+ như Chen và cộng sự (2014) đã nghiên cứu và thực nghiệm [8].

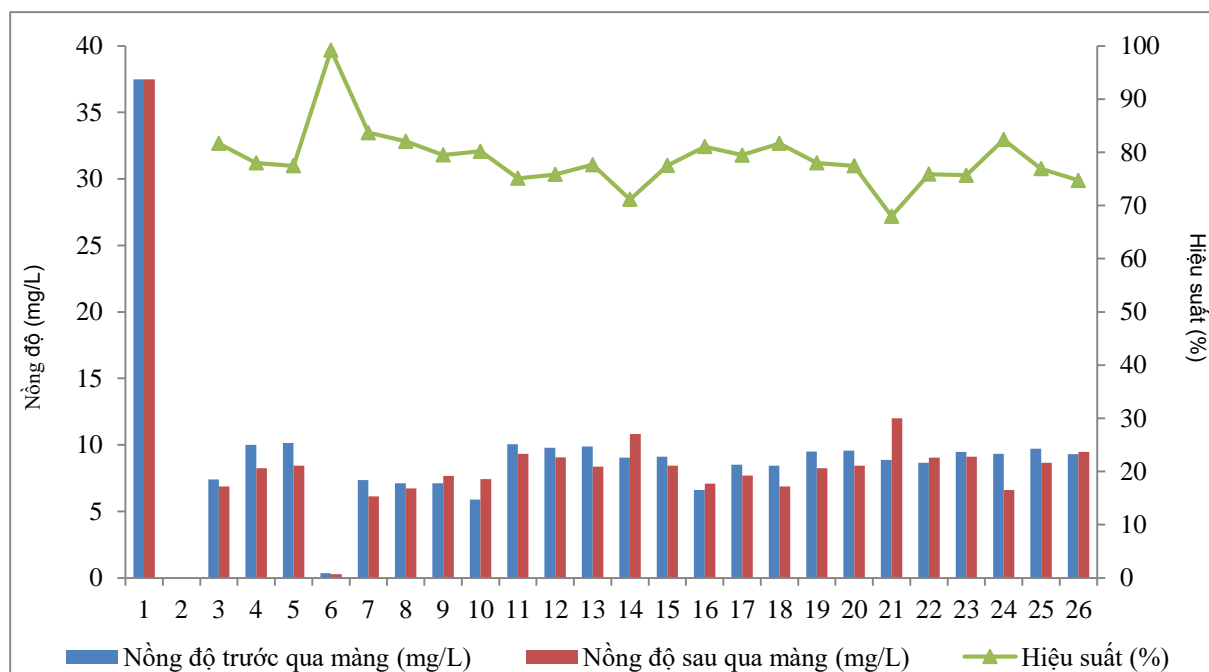
Từ kết quả thực nghiệm, hiệu suất xử lý trung bình của hệ trước khi qua màng đạt 89,4% và sau khi qua màng đạt 89,9%. Nước thải được hệ thống MBR xử lý đạt hiệu suất trung bình là 89,7%. Như vậy, hiệu suất xử lý chỉ tiêu NH_4^+ khá cao.

3.1.3. Chỉ tiêu nitrat (NO_3^-)

Hiệu quả xử lý NO_3^- của hệ thống MBR được thể hiện trong Hình 7 với nồng độ đầu vào của

NO_3^- là 37,5 mg/L. Nồng độ NO_3^- ổn định trong khoảng 6 – 9 mg/L, tương ứng với hiệu suất 72 – 80% trong cả quá trình vận hành. Chứng tỏ, vi sinh vật trong bể sinh học hiếu khí thích nghi và xử lý NO_3^- khá tốt. Quan sát trong quá trình vận hành, nhận thấy ngày thứ 5 hệ đạt hiệu suất cao nhất là 99,2% và hiệu suất thấp nhất vào ngày thứ 20 đạt 72%.

Như vậy, hiệu suất xử lý trung bình của hệ trước khi qua màng đạt 77,4% và sau khi qua màng đạt 78,8%. Nước thải được hệ thống MBR xử lý đạt hiệu suất trung bình là 78,1%. Vậy hiệu suất xử lý chỉ tiêu NO_3^- khá cao.

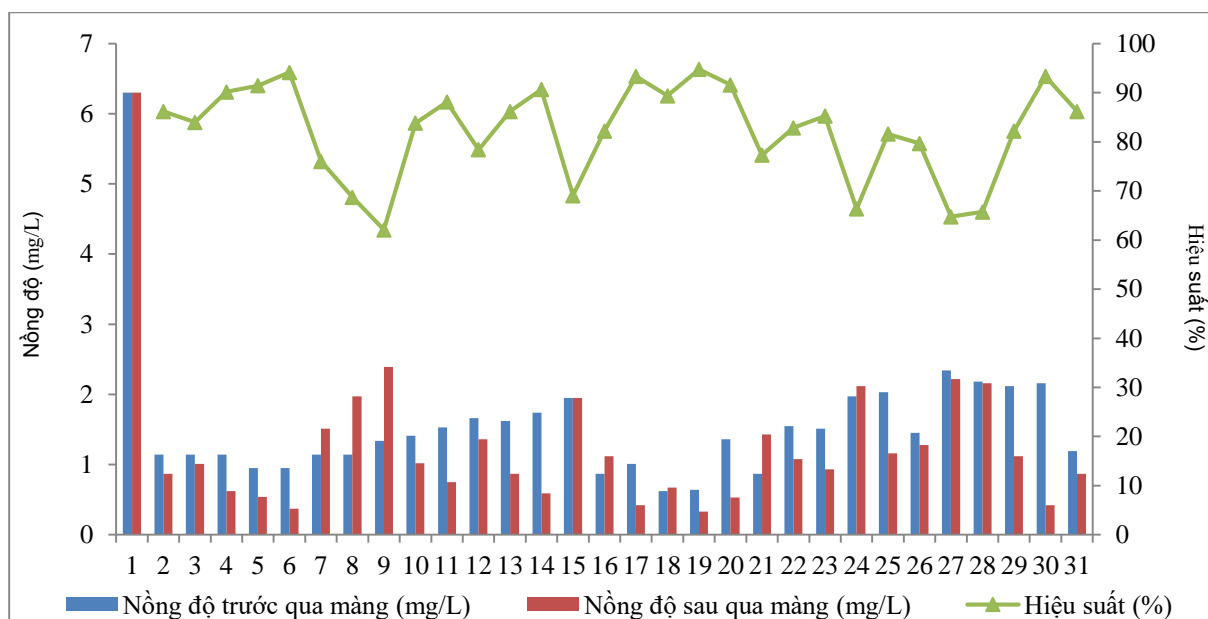


Hình 7. Biểu đồ thể hiện hiệu suất nồng độ của NO_3^- khi không có kháng sinh.

3.1.4. Chỉ tiêu photphat (PO_4^{3-})

Sau 30 ngày vận hành hệ thống, với nồng độ đầu vào của PO_4^{3-} là 6,3 mg/L, kết quả sau khi xử lý của PO_4^{3-} có sự biến thiên được trình bày ở Hình 8. PO_4^{3-} ổn định ở nồng độ trong khoảng 0,3 – 1 mg/L tại 6 ngày đầu vận hành hệ thống xử lý, tương ứng với hiệu suất dao động 81 – 94%. Sau khi vận hành hệ thống, vào ngày thứ 19, hệ MBR đạt hiệu suất cao nhất là 94,8%.

Nhìn chung, hiệu suất xử lý trung bình của hệ trước khi qua màng đạt 77,4% và sau khi qua màng đạt 82,2%. Nước thải được hệ thống MBR xử lý đạt hiệu suất trung bình là 79,8%. Trong nghiên cứu của Nguyễn Minh Kỳ & cộng sự (2017) sử dụng hệ thống MBR có modul màng chìm kích thước lỗ lọc 0,4 μm và hiệu quả xử lý trung bình tổng Phốtpho đạt 79,2% [7]. Như vậy, hiệu suất xử lý chỉ tiêu PO_4^{3-} của nghiên cứu này là khá cao so với nghiên cứu trước đó.



Hình 8. Biểu đồ thể hiện hiệu suất nồng độ của PO₄³⁻ khi không có kháng sinh.

3.2. Ảnh hưởng của nồng độ kháng sinh đến khả năng xử lý của hệ

3.2.1. Hệ thống được bổ sung kháng sinh có nồng độ 0,052 mg/L

Khi nước thải được bổ sung thêm kháng sinh SMX với các nồng độ khác nhau, hiệu suất xử lý COD cũng có sự thay đổi rõ rệt. Hiệu suất xử lý COD của hệ thống MBR bị ảnh hưởng bởi kháng sinh trong nước thải. Nghiên cứu của Hou & cộng sự (2022) cũng chỉ ra rằng khi nước thải chứa kháng sinh đã làm giảm khả năng loại bỏ COD do tác dụng ức chế của kháng sinh với vi sinh vật [10]. Ảnh hưởng của nồng độ kháng sinh tới hiệu quả xử lý COD được thể hiện ở Hình 9. Khi bổ sung nước thải chứa 0,052 mg/L SMX, hiệu suất xử lý COD giảm đột ngột do kháng sinh có tác dụng ức chế sự phát triển của vi sinh vật làm giảm khả năng xử lý COD của hệ sinh học hiếu khí. Hiệu suất trung bình của hệ MBR xử lý trước và sau khi qua màng là 54,9 và 56,9%; hiệu suất trung bình toàn hệ là 55,9%.

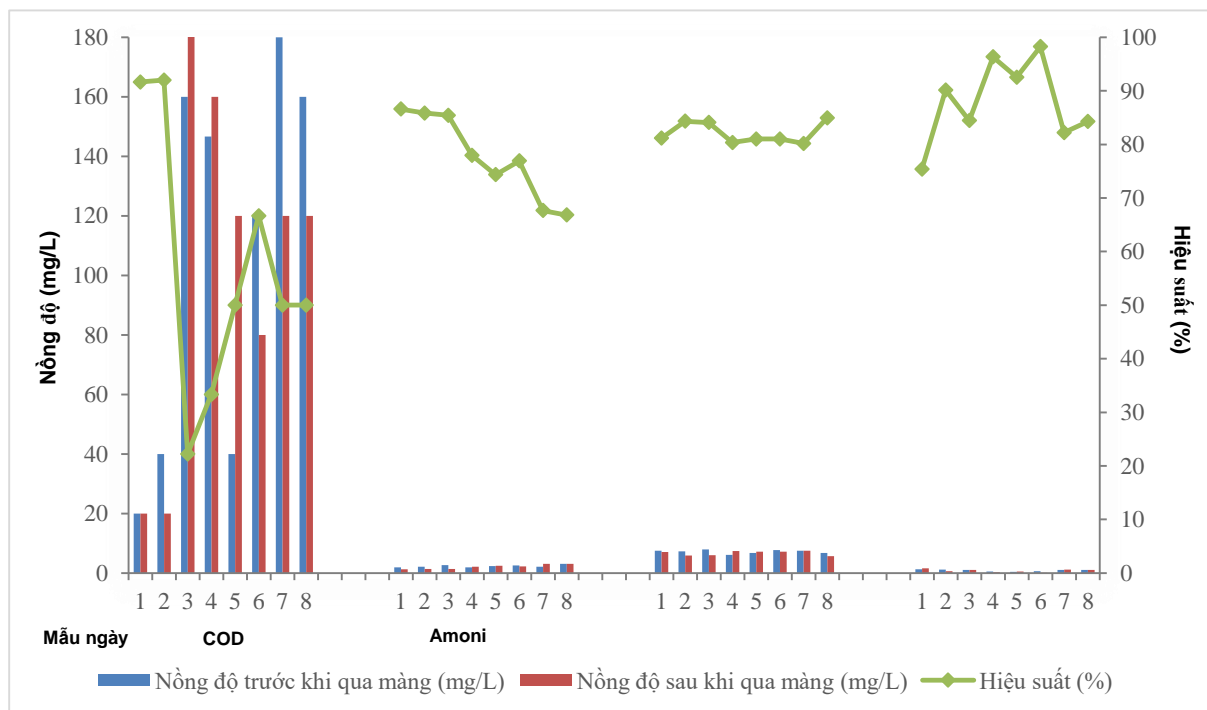
Trong điều kiện nước thải được bổ sung kháng sinh SMX, hiệu suất xử lý NH₄⁺ giảm đi. Hiệu suất xử lý NH₄⁺ của hệ thống MBR chịu ảnh hưởng bởi nồng độ kháng sinh SMX có

trong nước thải. Điều này được chứng minh bởi Muller & cộng sự (2013), trong nghiên cứu, tác giả đã chỉ ra rằng nhóm amin phân giải kháng sinh bị tách ra và chuyển thành NH₄⁺, do quá trình phân hủy sinh học nhóm amin của kháng sinh SMX làm tăng nồng độ NH₄⁺ gây ảnh hưởng đến hiệu suất xử lý NH₄⁺ [11]. Kết quả thực nghiệm cho thấy vào ngày thứ nhất hiệu suất xử lý NH₄⁺ cao nhất đạt 86,6%. Ở điều kiện vận hành nước thải chứa kháng sinh SMX nồng độ 0,052 mg/L, hiệu suất xử lý NH₄⁺ trước và sau khi qua màng khá cao là 75,2 và 77,7% do lúc này nồng độ kháng sinh thấp nên vi sinh vật thích nghi được và phát triển tốt. Hiệu suất trung bình toàn hệ là 76,5%.

Hệ thống MBR quy mô phòng thí nghiệm có NO₃⁻ ổn định ở nồng độ 5 – 7 mg/L trong cả quá trình vận hành khi nước thải có chứa kháng sinh SMX, tương ứng với hiệu suất 80 – 85%. Quan sát Hình 9, sau khi hệ thống MBR được vận hành, ngày thứ 8 hệ thống đạt hiệu suất cao nhất 85%. Trong điều kiện nước thải có chứa kháng sinh SMX nồng độ 0,052 mg/L, hiệu suất trung bình của hệ thống MBR xử lý NO₃⁻ trước và sau khi qua màng lần lượt là 80,9 và 82,1%; hiệu suất trung bình toàn hệ là 81,5%.

Trong quá trình vận hành, khi nước thải được bổ sung kháng sinh SMX, hiệu suất xử lý PO_4^{3-} giảm. Hiệu suất xử lý PO_4^{3-} cao nhất đạt 98,3% vào ngày thứ 5 khi vận hành hệ thống. Ở điều kiện nước thải có chứa kháng sinh SMX nồng độ 0,052 mg/L, hiệu suất trung bình của hệ thống MBR xử lý PO_4^{3-} trước và sau khi qua màng như nhau là 87%. Trong nghiên cứu này sử dụng bê

sinh học hiếu khí đem lại hiệu quả xử lý PO_4^{3-} cao hơn một số nghiên cứu khác về MBR. Như Nguyen & cộng sự (2016), hiệu quả xử lý tổng photpho chỉ đạt $20 \pm 15\%$ và tăng lên $26 \pm 11\%$ bằng cách thêm giá thể bọt biển vào hệ thống [4]. Nguyễn Thu Hiền (2021) sử dụng bể kỵ khí, hiệu quả xử lý tổng photpho cũng chỉ đạt 40-45% [12].



Hình 9. Biểu đồ thể hiện hiệu suất nồng độ của các chỉ tiêu khi nước thải được bổ sung kháng sinh có nồng độ 0,052 mg/L.

3.2.2. Hệ thống được bổ sung kháng sinh có nồng độ 0,268 mg/L

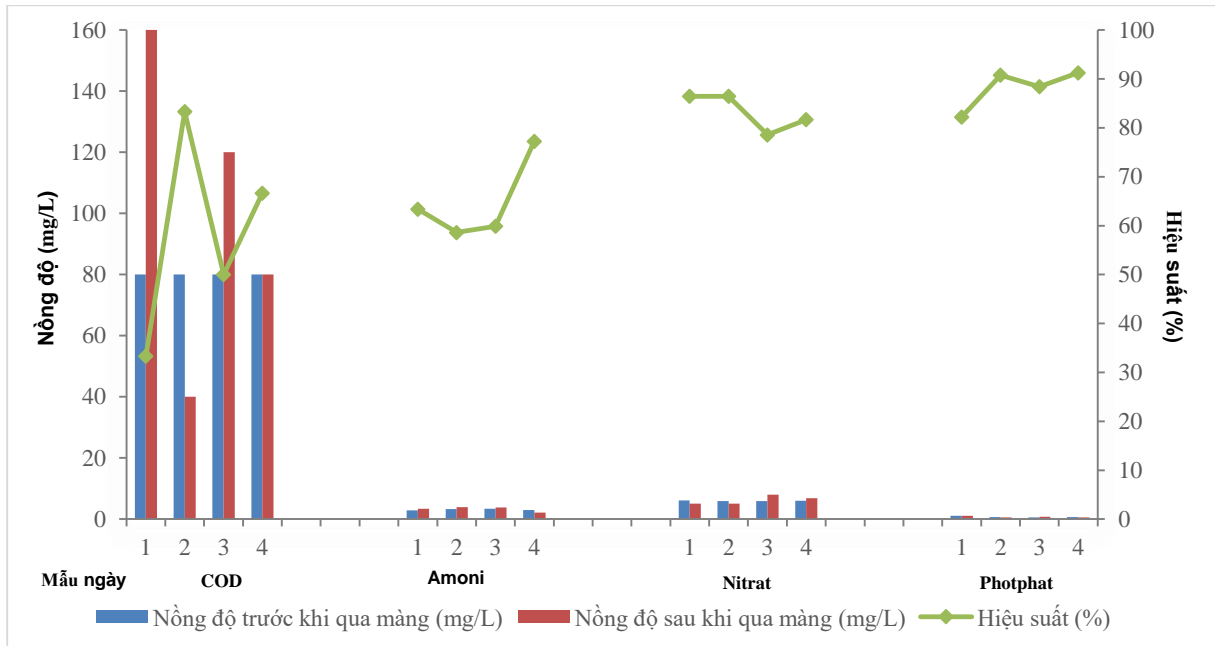
Tăng nồng độ kháng sinh lên 0,268 mg/L, hiệu suất xử lý COD tăng lên dao động trong khoảng 50-80% và tăng khoảng 6,6% so với khi nước thải có chứa kháng sinh nồng độ 0,052 mg/L. Hiệu suất trung bình của hệ MBR xử lý COD trước và sau khi qua màng lần lượt là 66,7 và 58,3%; hiệu suất trung bình toàn hệ là 62,5%.

Khi nước thải được bổ sung kháng sinh nồng độ 0,268 mg/L, hiệu suất xử lý NH_4^+ tăng khoảng 4,5% so với ở nồng độ 0,052 mg/L. Hiệu suất trung bình của hệ MBR xử lý NH_4^+ trước và sau

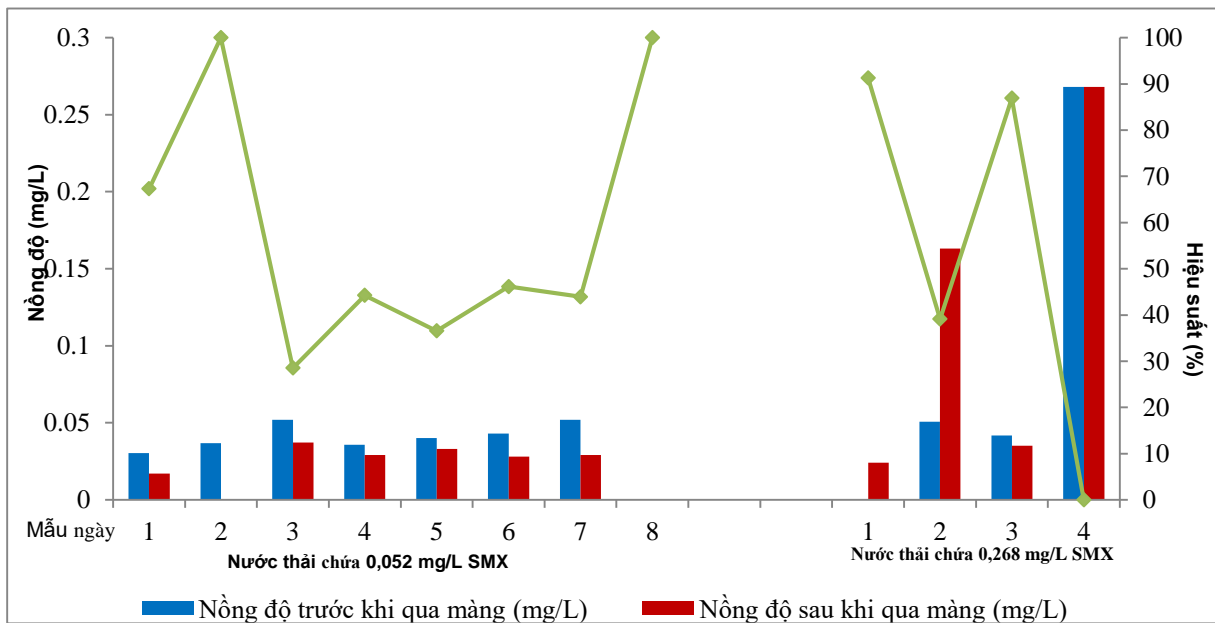
khi qua màng là 78,8 và 83,1%; hiệu suất trung bình toàn hệ là 81%.

Với chỉ tiêu NO_3^- , hiệu suất xử lý của hệ thống MBR cũng tăng lên 83 - 84%. Hiệu suất xử lý cao hơn khi nước thải có kháng sinh nồng độ 0,052 mg/L là khoảng 2,2%. Hiệu suất trung bình của hệ thống MBR xử lý NO_3^- tại nồng độ 0,268 mg/L trước và sau khi qua màng lần lượt là 84,1 và 83,3%; hiệu suất trung bình toàn hệ là 83,7%.

Hiệu quả xử lý PO_4^{3-} tăng 1,4% so với khi nước thải có nồng độ kháng sinh 0,052 mg/L. Hiệu suất trung bình của hệ thống MBR xử lý PO_4^{3-} trước và sau khi qua màng lần lượt là 88,5 và 88,2%; hiệu suất trung bình toàn hệ là 88,4%.



Hình 10. Biểu đồ thể hiện hiệu suất nồng độ của các chỉ tiêu khi nước thải được bổ sung kháng sinh có nồng độ 0,268 mg/L.



Hình 11. Biểu đồ thể hiện hiệu suất nồng độ của chỉ tiêu kháng sinh.

3.3. Chỉ tiêu kháng sinh SMX

Nghiên cứu này khảo sát kháng sinh tại hai nồng độ, kết quả được biểu diễn tại biểu đồ Hình

11. Theo biểu đồ, hiệu suất xử lý kháng sinh của hệ thống có sự biến thiên. Tại nồng độ 0,052 mg/L, khi nước thải mới được bổ sung kháng sinh SMX, 2 ngày đầu vi sinh vật vẫn thích nghi

và chống lại kháng sinh. Tuy nhiên, từ ngày thứ 3 trở đi, kháng sinh đã diệt đáng kể vi sinh vật khiến hiệu suất xử lý giảm đột ngột từ 100% (ngày thứ 2) xuống 28,5% (ngày thứ 3) và duy trì hiệu suất thấp dao động 30 - 40% đến hết ngày thứ 7. Sang ngày thứ 8, hiệu suất xử lý lại tăng trở lại đạt 100%. Hiệu suất trung bình của hệ thống MBR xử lý kháng sinh nồng độ 0,052 mg/L trước và sau khi qua màng lần lượt là 30,4 và 58,3%. Vậy tại nồng độ 0,052 mg/L, hệ thống MBR chỉ mất 2 ngày để loại bỏ hoàn toàn kháng sinh SMX.

Khi nước thải chứa kháng sinh nồng độ 0,268 mg/L, vi sinh vật chỉ xử lý được 3 ngày đầu và đạt hiệu suất tốt dao động 60 – 100%, từ ngày thứ 4 trở đi, hệ không xử lý được kháng sinh. Điều này có thể chứng minh rằng 3 ngày đầu vi sinh vật thích nghi và chống chọi được kháng sinh, sau 3 ngày thì vi sinh vật chết dần gây ảnh hưởng đến hiệu quả xử lý của hệ thống MBR. Hiệu suất trung bình của hệ thống MBR xử lý kháng sinh nồng độ 0,268 mg/L trước và sau khi qua màng lần lượt là 66,4 và 54,3%.

Nhìn chung, hiệu suất trung bình của hệ thống MBR khi xử lý nước thải được bổ sung kháng sinh đạt 49,7%. Trong nghiên cứu của Muller & cộng sự (2013) đã chỉ ra rằng NH_4^+ ức chế đối với vi khuẩn chức năng có liên quan có thể dẫn đến việc loại bỏ SMX thấp [11]. So sánh với công nghệ lò phản ứng bể khuấy liên tục (CSTR) và công nghệ lò phản ứng theo mẻ tuần tự (SBR) thì hệ thống MBR có hiệu quả xử lý kháng sinh SMX cao hơn. Cheng & cộng sự (2020) đã đánh giá hiệu quả xử lý SMX của công nghệ SBR là 0% và công nghệ CSTR đạt 31% [13].

4. Kết luận

Thiết kế hệ thống MBR có khả năng xử lý nước thải đạt hiệu quả cao, có thể làm việc trong cả điều kiện nước thải có và không có kháng sinh. Từ đó, đánh giá khả năng loại bỏ kháng sinh SMX và chất hữu cơ của hệ MBR. Hiệu quả xử lý trung bình của hệ thống đạt trên 77% trong điều kiện không có kháng sinh, cụ thể: COD

63,4%; amoni 89,7%; nitrat 78,1%; photphat 79,8%. Trong điều kiện có kháng sinh nồng độ từ 0,052 - 0,268 mg/L, hiệu suất trung bình của hệ đạt trên 71%, cụ thể: COD 59,2%; amoni 78,8%; nitrat 82,6%; photpho 87,7% và kháng sinh đạt 49,7%.

Lời cảm ơn

Nghiên cứu này được tài trợ bởi Quỹ Phát triển Khoa học và Công nghệ Quốc gia (NAFOSTED) trong đề tài mã số 105.08-2019.321.

Tài liệu tham khảo

- [1] N. H. Tran et al., Occurrence and Risk Assessment of Multiple Classes of Antibiotics in Urban Canals and Lakes In Hanoi, Vietnam, *Science of the Total Environment*, Vol. 692, 2019, pp. 157-174, <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2019.07.092>.
- [2] B. Zhao, J. Xu, G. Zhang, S. Lu, X. Liu, L. Li, M. Li, Occurrence of Antibiotics and Antibiotic Resistance Genes in the Fuxian Lake and Antibiotic Source Analysis Based on Principal Component Analysis-Multiple Linear Regression Model, *Chemosphere*, Vol. 262, 2020, pp. 127741, <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2020.127741>.
- [3] J. Giebułtowitz, G. N. Jawecki, M. Harnisz, D. Kucharski, E. Korzeniewska, G. Płaza, Environmental Risk and Risk of Resistance Selection Due to Antimicrobials' Occurrence in Two Polish Wastewater Treatment Plants and Receiving Surface Water, *Molecules*, Vol. 25, No. 6, 2020, pp. 1470, <https://doi.org/10.3390/molecules25061470>.
- [4] T. T. Nguyen et al., Performance and Membrane Fouling of Two Types of Laboratory-Scale Submerged Membrane Bioreactors For Hospital Wastewater Treatment at Low Flux Condition, *Science Direct, Separation and Purification Technology*, Vol. 165, 2016, pp. 123-129, <https://doi.org/10.1016/j.seppur.2016.03.051>.
- [5] S. Liang, H. Zhang, H. Dai, X. Wan, F. Zhu, Q. Xu, W. Ji, Efficient, Rapid and Simple Adsorption Method by Polydopamine Polystyrene Nanofibers Mat for Removal of Multi-Class Antibiotic Residues in Environmental Water, *Chemosphere*, Vol. 288, Part 3, 2022, <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2021.132616>.

- [6] N. Nasrollahi, V. Vatanpour, A. Khataee, Removal of Antibiotics from Wastewaters by Membrane Technology: Limitations, Successes, and Future Improvements, *Science of the Total Environment*, Vol. 838, Part 1, 2022, <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2022.156010>.
- [7] A. L. Smith, S. J. Skerlos, L. Raskin, Membrane Biofilm Development Improves COD Removal in Anaerobic Membrane Bioreactor Wastewater Treatment, *Microb Biotechnol*, Vol. 8, No. 5, 2015, pp. 883-894, <https://doi.org/10.1111/1751-7915.12311>.
- [8] Z. Chen, Y. Wang, K. Li, H. Zhou, Effects of Increasing Organic Loading Rate on Performance and Microbial Community Shift of an Up-Flow Anaerobic Sludge Blanket Reactor Treating Diluted Pharmaceutical Wastewater, *Journal of Bioscience and Bioengineering*, Vol. 118, No. 3, 2014, pp. 284-288, <https://doi.org/10.1016/j.jbiosc.2014.02.027>.
- [9] M. K. Nguyen, T. N. T. Thi, L. H. Nguyen, Research on Residential Wastewater Treatment by MBR Biological Filter Technology (Membrane Bioreactor), *Journal of Science Can Tho University, Part A: Natural Sciences, Technology and Environment, Part A*, 2017, pp. 72-79, <http://dx.doi.org/10.22144/ctu.jvn.2017.112>.
- [10] H. Hou, Z. Mengting, L. Duan, Y. Zhao, Z. Zhang, M. Yao, B. Zhou, H. Zhang, S. W. Hermanowicz, Removal Performance and Biodegradation Mechanism of Sulfonamides Antibiotic Contained Wastewater by IFAS-MBR Bioreactor, *Journal of Molecular Liquids*, Vol. 367, 2022, pp. 120572, <https://doi.org/10.1016/j.molliq.2022.120572>.
- [11] E. Müller, W. Schüssler, H. W. Horn, H. Lemmer, Aerobic Biodegradation of the Sulfonamide Antibiotic Sulfamethoxazole by Activated Sludge Applied As Co-Substrate and Sole Carbon and Nitrogen Source, *Chemosphere*, Vol. 92, No. 8, 2013, pp. 969-978, <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2013.02.070>.
- [12] N. T. Hien, Effect of Nitrogen Loading on the Denitrification Efficiency of A Membrane Bioreactor (MBR) System Supplemented with Sulfur Containing Material (S-Media), *Journal of Science, Technology and Food*, Vol. 21, 2021, pp. 71-72.
- [13] D. Cheng, H. H. Ngo, W. Guo, S. W. Chang, D. D. Nguyen, Y. Liu, Q. Wei, D. Wei, A Critical Review on Antibiotics and Hormones In Swine Wastewater: Water Pollution Problems and Control Approaches, *Journal of Hazardous Materials*, Vol. 387, 2020, pp. 121682, <https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2019.121682>.