

NGHIÊN CỨU XỬ LÝ KHÁNG SINH TRONG NƯỚC THẢI BỆNH VIỆN BẰNG HỆ OXY HÓA KÉP HOẠT HÓA BẰNG SẮT HÓA TRỊ 0 (ZVI) VÀ TIA UV

Đến tòa soạn 21-02-2021

Nguyễn Thanh Hòa

Học viện Khoa học và công nghệ, Viện Hàn lâm khoa học và công nghệ Việt Nam

Đỗ Ngọc Khuê

Viện Công nghệ mới, Viện Khoa học quân sự Việt Nam

Vũ Đức Lợi

Viện Hóa Học, Viện Hàn lâm khoa học và công nghệ Việt Nam

Nguyễn Thanh Hòa, Vũ Hoàng Hoa, Vũ Thị Khắc

Đại Học Thủy Lợi

Vũ Thị Khắc

Trung tâm khoa học Công nghệ và Môi Trường

SUMMARY

TREATMENT ANTIBIOTICS FROM HOSPITAL WASTEWATER BY ADVANCED OXIDATION PROCESS BASED DUAL OXIDANTS ACTIVATED BY ZVI AND UV LIGHT

The feasibility of the application of the advanced oxidation process (AOPs) coupling H_2O_2 and persulfate activated by zero valent iron (ZVI) and UV in the treatment of hospital wastewater contaminated by Ciprofloxacin (CIP), Amoxicillin (AMO) antibiotic was evaluated. The Response Surface Methodology (RSM) based on Box Behnken Design (BBD) was used to evaluate and optimize the effect of persulfate, hydrogen peroxide, ZVI concentration, UV intensive and time of reaction as independent variables on CIP and AMO removal as the response function. The significance of the independent variables and their interactions was tested by means of analysis of variance (ANOVA) with a 95% confidence level. Results show that the concentration of ZVI and time of reaction were the main parameters affecting CIP removal, while persulfate concentration, UV intensive and time of reaction had a significant effect on AMO reduction. The optimum operating conditions to achieve maximum CIP and AMO removal were determined. The model prediction for maximum CIP, AMO removal was compared to the experimental result at optimal operating conditions. A good agreement between the model prediction and experimental results confirms the soundness of the developed model.

Keywords: advanced oxidation process, hydroxyl radical, surfate radical, zero valent iron, hospital wastewater, ciprofloxacin, amoxicillin.

1. GIỚI THIỆU

Thuốc kháng sinh, chất khử trùng, thuốc kìm tế bào, chất cản quang, kim loại và các dư lượng thuốc khác xuất hiện trong nước thải bệnh viện (NTBV) với nồng độ khác nhau. Trong số các

chất kháng sinh, Amoxicillin (AMO) và Ciprofloxacin (CIP) có thể được tìm thấy ở nồng độ tương đối cao trong môi trường đặc biệt là trong NTB. CIP được phát hiện trong tất cả các mẫu thu thập từ nước thải ra từ

tất cả các bệnh viện được nghiên cứu (15 mẫu NTBTV ở Thành phố Hồ Chí Minh và 8 ở Hà Nội) với nồng độ CIP cao nhất là 87,3 µg/L ở nước thải đầu vào và 53,3 µg/L trong nước thải sau xử lý bệnh viện vùng nông thôn [1]. Trong khi đó AMO là loại kháng sinh thuộc họ β -lactam được sử dụng rộng rãi nhất trên thế giới và Việt Nam. AMO đã được phát hiện ở một số vùng nước mặt của Châu Âu và Châu Úc. Nồng độ cao nhất của amoxicillin được xác định trong tổng quan này là 6,94 µg/L, được phát hiện trong nước thải đầu vào của trạm xử lý nước thải tại Australia [2].

Quá trình oxi hóa nâng cao (AOPs) gần đây được ứng dụng nhiều trong xử lý kháng sinh trong nước. Tuy nhiên, các AOPs truyền thống (phản ứng Fenton) có một số nhược điểm như: chỉ hoạt động môi trường axit (pH 2-4,5), tạo ra nhiều bùn cặn. Vì vậy, hệ AOPs dựa trên persulfate (PS) kết hợp với H_2O_2 được hoạt hóa bằng ZVI được nghiên cứu, phát triển. ZVI được chứng minh là khả năng xúc tác hiệu quả tạo ra gốc tự do có khả năng oxy hóa mạnh HO^* , SO_4^{*-} trong khoảng pH rộng từ 2-11[3]. Theo nghiên cứu về quá trình AOPs, việc tối ưu hóa có thể đạt được bằng cách thay đổi lần lượt các yếu tố trong khi giữ một yếu tố khác không thay đổi. Tuy nhiên, phương pháp này gây lãng phí thời gian và năng lượng, và thường khó đạt được hiệu suất tối ưu vì bỏ qua sự tương tác giữa các yếu tố ảnh hưởng [4]. Vì vậy, ở nghiên cứu này nhóm tác giả tập trung cứu áp dụng phương pháp bề mặt đáp ứng theo mô hình Box- Behnken như một công cụ tối ưu hóa là giảm số lần chạy thử nghiệm và cung cấp thông tin đầy đủ để thu được kết quả có thể chấp nhận được về mặt thống kê. Nhóm tác giả tìm ra các yếu tố thích hợp như khối lượng (m ZVI), nồng độ mol các chất oxy hóa ($[H_2O_2]$, $[S_2O_8^{2-}]$), cường độ tia UV, và thời gian phản ứng khi pH cố định 5 của hệ oxi hóa persulfate kết hợp với hydro peroxide hoạt hóa bằng ZVI và ánh sáng UV để phân hủy các mẫu nước thải bệnh viện chứa 2 chất kháng sinh AMO và CIP.

2. THỰC NGHIỆM

2.1. Hóa chất và thiết bị

Ciprofloxacin hydrochloride hydrate

($C_{17}H_{21}ClFN_3O_4$), Amoxicillin trihydrate ($C_{16}H_{25}N_3O_8S$), Natri persulfate ($Na_2S_2O_8$) từ Acros (Fisher, Hà Lan); $Na_2S_2O_8$ và H_2O_2 (30%, Đức Giang, Việt Nam), ZVI (Acros Organic, Hà Lan). Đèn UV Philip có các công suất 6w, 11w và 17 w (Philip, Hà Lan). Máy lắc (IKA, USA)

2.2. Tính chất NTBTV

NTBTV được lấy tại cổng của bệnh viện Răng Hàm Mặt -Trung Ương – 40 Tràng Thi – Hà Nội. Pha thêm 2 loại kháng sinh 50 µg/L CIP và 2,5 µg/L AMO, tính chất nước thải đầu vào được thể hiện ở bảng 1

2.3. Thiết kế thí nghiệm

Xác định khối lượng thích hợp của 5 yếu tố ảnh hưởng đến hiệu quả xử lý CIP và AMO trong NTBTV: m_{ZVI} , $[H_2O_2]$, $[Na_2S_2O_8]$, thời gian, cường độ đèn UV bằng cách sử dụng phương pháp “Đáp ứng bề mặt” theo mô hình Box-Behnken, mỗi yếu tố tiến hành tại 3 mức (-1, 0, +1) như Trong bảng 2. Quy hoạch thực nghiệm bao gồm bảng ma trận thực nghiệm gồm 43 thí nghiệm, trong đó: 3 thí nghiệm lặp lại tại tâm với hàm mục tiêu là hiệu quả xử lý CIP (%CIP) và hiệu quả xử lý AMO (%AMO) (bảng 3). Mỗi thí nghiệm được lặp lại 3 lần rồi lấy giá trị trung bình.

Các thí nghiệm cho nghiên cứu tối ưu được tiến hành với thể tích nước thải 1000 mL lần lượt cho ZVI, $Na_2S_2O_8$, H_2O_2 30% với nồng độ xác định đã được quy hoạch nhờ phần mềm Design of Expert ver 11.0 (DX11) (Stat-Ease, In, USA) vào thiết bị phản ứng (hình 1). pH của nước thải được điều chỉnh bằng dung dịch HCL 0,1M, NaOH 0,1M xuống giá trị pH=5. Dung dịch được trộn đều bằng máy lắc IKA, USA với tốc độ 100 vòng/phút. Chỉ số AMO và CIP nước thải được phân tích gồm: nồng độ đầu vào (CIP_0 , AMO_0) và nồng độ sau phản ứng (CIP , AMO).

Xử lý số liệu: Xử lý số liệu thực nghiệm bằng phần mềm thống kê DX11 để phân tích các hệ số hồi qui, bề mặt đáp ứng và tối ưu hóa với thuật toán hàm với dạng:

$$Y = b_0 + \sum_{i=1}^k b_i X_i + \sum_{i=1}^k b_{ii} X_i^2 + \sum_{j=1}^k \sum_{i=1}^k b_{ij} X_i X_j \quad (1)$$

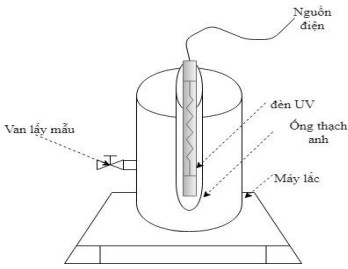
Với: Y: hàm mục tiêu; b_0 : hệ số tự do, $b_1 \dots b_{23}$: hệ số tuyến tính

Tìm các giá trị thích hợp của các yếu tố ($mZVI$, $[H_2O_2]$, $[Na_2S_2O_8]$, thời gian, cường độ đèn UV) để hiệu suất xử lý CIP và AMO trong NTB là cao nhất dựa vào phần mềm DX11 và kiểm tra lại bằng thực nghiệm.

2.4. Phương pháp phân tích

CIP và AMO được phân tích bằng HPLC (Capell Pak, Anh) cột C18 với kích thước 250 mm × 4.6 mm. Pha động sử dụng acetonitrile/acetic acid 0.5 % với tỉ lệ (30:70, v/v), tốc độ dòng 0.5 mL/min.

CIP được nhận diện tại bước sóng 280 nm và AMO tại bước sóng 229 nm.



Hình 1. Thiết bị quang hóa

Bảng 1. Tính chất nước thải bệnh viện trước xử lý

TT	Chỉ tiêu	Đơn vị	Nồng độ	QCVN 28-2010 cột A	Ghi chú
1	pH		7,2	5.5-8.5	
2	TSS	mg/L	160	50	Xử lý
3	BOD ₅	mg/L	173	30	Xử lý
4	COD	mg/L	375	50	Xử lý
5	NO ₃ ⁻	mg/L	2,5	30	
6	NH ₄ ⁺	mg/L	17,3	5	Xử lý
7	PO ₄ ³⁻	mg/L	15	6	Xử lý
8	CIP	µg/L	50	-	Xử lý
9	AMOX	µg/L	2,5	-	Xử lý
10	TOC	mg/L	102	-	Xử lý
11	Tổng coliform	MPN/100 mL	35000	3000	Xử lý

Bảng 1. Bảng ma trận thực nghiệm

Nhân tố	Ký hiệu	Biến mã hóa (X)		
		-1	0	1
ZVI µg/L	A	400	700	1000
[H ₂ O ₂], µM	B	3	6	9
nS ₂ O ₈ ²⁻ , µM	C	2	4	6
Cường độ đèn UV, W	D	6	11	17
Thời gian, phút	E	10	20	30
%CIP, %	Y ₁			
% AMO, %	Y ₂			

3. KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN

3.1 Tối ưu các yếu tố ảnh hưởng đến xử lý CIP và AMO trong NTB hệ AOPs UV/H₂O₂/S₂O₈²⁻/ZVI

Các thí nghiệm 5- yếu tố được thực hiện theo mô hình Box – Behnken và quy hoạch thực nghiệm bằng phần mềm DX11 cho kết quả thực nghiệm được trình bày trên bảng 3. Kết

quả phân tích ANOVA (bảng 4 và 5) cho thấy, mô hình có ý nghĩa thống kê với độ tin cậy cho hiệu quả xử lý CIP và AMO lần lượt là 99,9 % và 99,96% ($p < 0,0001$), hệ số hồi quy $R^2 = 0,9989$ và $0.9915 > 0,8$ [5] cho thấy tỷ lệ cao các biến phụ thuộc được giải thích bằng các dữ liệu. Khoảng 1% của tổng số biến không được giải thích bằng mô hình hồi quy. Từ đó, %CIP và %AMO thu từ mô hình tương thích với thực nghiệm. Bảng 4 và 5 thể hiện mức độ ảnh hưởng của từng yếu tố đến hiệu suất xử lý CIP và AMO. Đối với khả năng xử lý CIP, tất cả các yếu tố trừ $[H_2O_2]$, $[S_2O_8^{2-}]$, cường độ UV và trừ hai cặp yếu tố (trừ $[H_2O_2]$ -cường độ UV, $[H_2O_2]$ – thời gian), còn lại đều có ảnh hưởng đến quá trình xử lý CIP trong NTB bằng hệ oxy hóa kép UV/H₂O₂/S₂O₈²⁻/ZVI (bảng 4) khi $p < 0,05$. Tương tự, đối với hiệu quả xử lý AMO, tất cả các yếu tố trừ $mZVI$, $[H_2O_2]$ và trừ 4 cặp yếu tố ($[H_2O_2]$ -cường độ UV, $[H_2O_2]$ – thời gian, $[S_2O_8^{2-}]$ cường độ UV, $[S_2O_8^{2-}]$ thời gian

phản ứng), còn lại đều có ảnh hưởng đến quá trình xử lý AMO trong NTB

Kết quả này phù hợp với một số nghiên cứu trước cũng chỉ ra ảnh hưởng của các yếu tố như khối lượng ZVI, thời gian này đến quá trình xử lý CIP, AMO [6]. Từ bảng 3 và 4 có thể viết được phương trình hồi quy, mô tả sự phụ thuộc của Y (%CIP) vào các nhân n_{ZVI} (A), $[H_2O_2]$ (B), $[Na_2S_2O_8]$ (C), thời gian (D), cường độ đèn UV (E) và từng cặp nhân tổ tin cây.

$$Y_1 (\%CIP_{\text{dự đoán}}) = 60,72 - 2,35 A - 0,9872 B + 1,34 C + 1,43 D + 30,54 E + 7,79 AB - 23,84 AC + 10,91 AD - 2,25 AE - 2,23 BC - 0,1675 BD - 1,42 BE - 3,03 CD - 2,28 CE + 7,34 DE + 3,9 A^2 + 3,11 B^2 + 5,27 C^2 + 10,3 D^2 - 10,32 E^2 + 16,6 A^2B - 3,72 A^2C + 12,78 A^2D - 9,61 A^2E + 7,98 AB^2 + 12,64 AD^2 - 8,13 B^2C - 1,26 B^2D - 12,27 B^2E + 6,74 BC^2 + 25,65 BD^2 + 22,28 C^2D - 6,48 C^2E + 1,69 CD^2 + 5,66 A^2B^2 + 9,58 A^2C^2 - 9,72 A^2D^2 - 1,54 B^2C^2 + 1,21 B^2D^2$$

$$Y_2 (\%AMO_{\text{dự đoán}}) = 55,99 + 4,21 A + 1,16 B + 7,86 C + 5,46 D + 28,27 E + 7,09 AB - 22,25 AC + 12,12 AD + 11,47 AE - 10,03 BC + 4,14$$

$$BD - 1,39 BE + 0,9425 CD - 3,41 CE + 10,16 DE + 12,75 A^2 + 2,04 B^2 + 10,12 C^2 + 12,06 D^2 - 11,53 E^2 + 17,53 A^2B - 4,16 A^2C + 4,4 A^2D - 0,6241 A^2E + 0,79 AB^2 + 0,36 AC^2 + 8,5 AD^2 - 15,36 B^2C - 9,61 B^2D - 6,75 B^2E + 5,95 BC^2 + 22,2 BD^2 + 16,77 C^2D - 5,89 C^2E - 8,8 CD^2 - 4,13 B^2C^2 + 6,95 B^2D^2$$

3.2 Xác định Tối ưu các yếu tố ảnh hưởng đến xử lý CIP và AMO trong NTB hệ AOPs UV/ H_2O_2 / $S_2O_8^{2-}$ /ZVI

Dựa trên những số liệu thực nghiệm thu được, với sự hỗ trợ của phần mềm DX11, có thể tìm ra điều kiện tối ưu (% CIP, % AMO: cao nhất, n_{ZVI} , thời gian, $[H_2O_2]$ và $[S_2O_8^{2-}]$: ít nhất) để tiến hành quá trình oxy hóa nâng cao, loại kháng sinh CIP và AMO trong NTB tại quy mô phòng thí nghiệm: $m_{ZVI} = 741,136 \mu\text{g/L}$, $[H_2O_2] = 5,658 \mu\text{M}$, $[S_2O_8^{2-}] = 2 \mu\text{M}$, cường độ UV = 17W, thời gian phản ứng = 19 phút. Có hiệu suất xử lý CIP_{dự đoán} = 100% và AMO_{dự đoán} = 98,43 %

Tiến hành lại 3 thí nghiệm với các yếu tố đã tìm được ở trên kết quả thu được :

$$\%CIP_{\text{thực lại}} = 100\%, \%AMO_{\text{thực lại}} = 98,52 \pm 1,2 \%$$

Bảng 2. Kết quả hiệu quả xử lý CIP và AMOX bằng hệ oxy hóa nâng cao UV/ZVI/ H_2O_2 / S_2O_8

TT	Yếu tố 1	Yếu tố 2	Yếu tố 3	Yếu tố 4	Yếu tố 5	Đáp ứng 1	Đáp ứng 2
	A:ZVI	B: H_2O_2	C: S_2O_8	D:cường độ UV	E:Thời gian	%CIP	% AMOX
	$\mu\text{g/L}$	μM	μM	W	min	%	%
1	700	3	4	6	20	50,33	61,56
2	400	6	4	6	20	52,2	54,86
3	400	6	2	11	20	56,5	48,42
4	1000	6	4	11	10	31,16	20,88
5	1000	6	6	11	20	48,14	62,58
6	700	3	4	11	30	73,37	67,66
7	700	6	4	11	20	59,8	52,56
8	1000	3	4	11	20	52,73	48,86
9	1000	6	4	11	30	67,18	97,26
10	700	6	4	6	30	82,46	68,76
11	700	6	4	17	10	24,25	23,15
12	700	9	4	11	10	36,65	28,37
13	700	6	6	6	20	58,64	53,65
14	700	3	4	17	20	51	44,98
15	700	6	6	11	30	76,34	78
16	700	9	4	11	30	69	66,82
17	700	6	6	17	20	100	100
18	700	3	4	11	10	35,32	23,66
19	700	9	4	6	20	100	100

20	400	6	4	11	10	34,34	37,46
21	700	6	4	11	20	61,32	56,16
22	400	6	4	11	30	79,35	67,96
23	400	6	4	17	20	58,8	50,33
24	400	3	4	11	20	60,03	55,07
25	700	6	4	11	20	60,91	56,86
26	700	6	2	17	20	100	100
27	700	6	2	6	20	46,53	57,42
28	700	3	2	11	20	63,9	53,33
29	700	9	6	11	20	62,87	51,86
30	1000	6	4	6	20	49,77	56,03
31	700	9	2	11	20	80,33	87,23
32	700	9	4	17	20	100	100
33	700	6	2	11	10	26,3	19,69
34	400	6	6	11	20	100	100
35	1000	9	4	11	20	100	100
36	700	6	4	17	30	100	100
37	700	3	6	11	20	55,37	58,08
38	1000	6	4	17	20	100	100
39	1000	6	2	11	20	100	100
40	700	6	4	6	10	36,07	32,54
41	700	6	2	11	30	77,65	69,42
42	700	6	6	11	10	34,12	41,92
43	400	9	4	11	20	76,13	77,91

Bảng 3. Phân tích phương sai ANOVA cho hiệu xuất xử lý CIP

Yếu tố	Tổng bình phương	Bậc tự do	Trung bình bình phương	Giá trị F	Giá trị p Prob>F	Chú thích
Mô Hình	22905,14	40	572,63	925,93	0,0011	
A-ZVI	33,96	1	33,96	54,92	0,0177	
B-H ₂ O ₂	3,80	1	3,80	6,15	0,1313	k.t.c
C-S ₂ O ₈ ²⁻	6,99	1	6,99	11,30	0,0783	k.t.c
D-cường độ UV	8,18	1	8,18	13,23	0,0680	k.t.c
E-Thời gian	3729,54	1	3729,54	6030,63	0,0002	
AB	242,89	1	242,89	392,75	0,0025	
AC	2273,38	1	2273,38	3676,03	0,0003	
AD	475,89	1	475,89	769,52	0,0013	
AE	20,21	1	20,21	32,67	0,0293	
BC	19,94	1	19,94	32,24	0,0296	
BD	0,1122	1	0,1122	0,1815	0,7116	k.t.c
BE	812	1	8,12	13,13	0,0684	k.t.c
CD	36,66	1	36,66	59,28	0,0165	
CE	20,84	1	20,84	33,70	0,0284	
DE	215,50	1	215,50	348,47	0,0029	
A ²	28,51	1	28,51	46,10	0,0210	
B ²	18,13	1	18,13	29,32	0,0325	
C ²	102,32	1	102,32	165,45	0,0060	
D ²	383,56	1	383,56	620,20	0,0016	
E ²	391,99	1	391,99	633,84	0,0016	
A ² B	551,29	1	551,29	891,42	0,0011	
A ² C	27,64	1	27,64	44,69	0,0217	

A ² D	326,53	1	326,53	527,99	0,0019	
A ² E	183,95	1	183,95	297,45	0,0033	
AB ²	127,36	1	127,36	205,94	0,0048	
AC ²	6,11	1	6,11	9,88	0,0881	k.t.c
AD ²	313,13	1	313,13	506,33	0,0020	
B ² C	132,03	1	132,03	213,49	0,0047	
B ² D	3,19	1	3,19	5,15	0,1512	k.t.c
B ² E	299,76	1	299,76	484,70	0,0021	
BC ²	90,92	1	90,92	147,02	0,0067	
BD ²	1289,34	1	1289,34	2084,84	0,0005	
C ² D	992,57	1	992,57	1604,98	0,0006	
C ² E	83,51	1	83,51	135,04	0,0073	
CD ²	5,59	1	5,59	9,04	0,0951	k.t.c
A ² B ²	21,30	1	21,30	34,44	0,0278	
A ² C ²	91,40	1	91,40	147,80	0,0067	
A ² D ²	92,57	1	92,57	149,69	0,0066	
B ² C ²	2,36	1	2,36	3,82	0,1899	k.t.c
B ² D ²	1,43	1	1,43	2,31	0,2680	k.t.c
Sai số thuần	1,24	2	0,6184			
Tổng tương quan	22906,38	42				
R2	0,9999		R2 dự đoán	0,9899		

Bảng 4. Phân tích phương sai ANOVA cho hiệu suất xử lý AMO

Yếu tố	Tổng bình phương	Bậc tự do	Trung bình bình phương	Giá trị F	Giá trị p Prob>F	Chú thích
Mô Hình	26283,05	40	657,08	123,43	0,0081	
A-ZVI	69,22	1	69,22	13,00	0,0690	k.t.c
B-H ₂ O ₂	5,26	1	5,26	0,9876	0,4250	k.t.c
C-S ₂ O ₈ ²⁻	241,10	1	241,10	45,29	0,0214	
D-cường độ UV	119,36	1	119,36	22,42	0,0418	
E-Thời gian	3196,21	1	3196,21	600,41	0,0017	
AB	200,22	1	200,22	37,61	0,0256	
AC	1980,25	1	1980,25	371,99	0,0027	
AD	588,06	1	588,06	110,47	0,0089	
AE	526,24	1	526,24	98,86	0,0100	
BC	402,40	1	402,40	75,59	0,0130	
BD	68,72	1	68,72	12,91	0,0695	k.t.c
BE	7,70	1	7,70	1,45	0,3521	k.t.c
CD	3,55	1	3,55	0,6675	0,4998	k.t.c
CE	46,58	1	46,58	8,75	0,0978	k.t.c
DE	412,70	1	412,70	77,53	0,0127	
A ²	305,55	1	305,55	57,40	0,0170	
B ²	7,79	1	7,79	1,46	0,3500	k.t.c
C ²	376,85	1	376,85	70,79	0,0138	
D ²	525,77	1	525,77	98,77	0,0100	
E ²	489,26	1	489,26	91,91	0,0107	
A ² B	614,43	1	614,43	115,42	0,0086	
A ² C	34,65	1	34,65	6,51	0,1254	k.t.c
A ² D	38,68	1	38,68	7,27	0,1145	k.t.c
A ² E	0,7758	1	0,7758	0,1457	0,7394	k.t.c
AB ²	1,25	1	1,25	0,2345	0,6761	k.t.c

AC ²	0,2592	1	0,2592	0,0487	0,8458	k.t.c
AD ²	141,47	1	141,47	26,58	0,0356	
B ² C	471,71	1	471,71	88,61	0,0111	
B ² D	184,61	1	184,61	34,68	0,0276	
B ² E	90,26	1	90,26	16,95	0,0542	k.t.c
BC ²	70,86	1	70,86	13,31	0,0676	k.t.c
BD ²	965,83	1	965,83	181,43	0,0055	
C ² D	562,47	1	562,47	105,66	0,0093	
C ² E	69,14	1	69,14	12,99	0,0691	k.t.c
CD ²	151,82	1	151,82	28,52	0,0333	
A ² B ²	0,0032	1	0,0032	0,0006	0,9826	k.t.c
A ² C ²	2,98	1	2,98	0,5596	0,5324	k.t.c
A ² D ²	223,19	1	223,19	41,93	0,0230	
B ² C ²	17,01	1	17,01	3,20	0,2157	k.t.c
B ² D ²	47,35	1	47,35	8,90	0,0964	k.t.c
Sai số thuần	10,65	2	5,32			
Tổng tương quan	26293,70	42				
R2	0,9996		R2 dự đoán	0,9615		

k.t.c - không tin cậy

4. KẾT LUẬN

Quá trình oxy hóa nâng cao kép hoạt hóa bằng ZVI dưới tia UV được phát hiện là một phương pháp hiệu quả để xử lý nước thải bệnh viện bị nhiễm kháng sinh CIP và AMO. Phương pháp bề mặt phản hồi (RSM) dựa trên thiết kế Box Behnken (BBD) được sử dụng để đánh giá và tối ưu hóa ảnh hưởng khối lượng ZVI, nồng độ mol $[H_2O_2]$, $[S_2O_8^{2-}]$, cường độ tia UV và thời gian phản ứng. Thí nghiệm cho thấy rằng việc loại bỏ CIP và AMO tăng lên với tăng cường độ tia UV. Sự kết hợp RSM dựa trên BBD được chứng minh là một công cụ mạnh mẽ trong việc tối ưu hóa phản ứng quang oxy hóa nâng cao. Các điều kiện tối ưu cho phản ứng UV/ H_2O_2 / $S_2O_8^{2-}$ /ZVI là $m_{ZVI} = 741,136 \mu g/L$, $[H_2O_2] = 5,658 \mu M$, $[S_2O_8^{2-}] = 2 \mu M$, cường độ UV = 17W, thời gian phản ứng = 19 phút, hiệu suất xử lý CIP và AMO lần lượt đạt 100% và 98,52%. Kết quả thí nghiệm hoàn toàn phù hợp với số liệu dự đoán bằng phương pháp BBD.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

- [1] Hong Anh Duong, Ngoc Ha Pham, Hoang Tung Nguyen, Thi Thuong Hoang, Hung Viet Pham, Van Ca Pham, Michael Berg, Walter Giger, Alfredo C. Alder (2008), "Occurrence, fate and antibiotic resistance of fluoroquinolone antibacterials in hospital wastewaters in Hanoi, Vietnam," *Chemosphere*, vol. 72, no. 6, pp. 968–973.
- [2] A. J. Watkinson, E. J. Murby, D. W. Kolpin, S. D. Costanzo (2009), "The occurrence of antibiotics in an urban watershed: From

wastewater to drinking water," *Sci. Total Environ.*, vol. 407, no. 8, pp. 2711–2723

- [3] M. Li, X. Yang, D. S. Wang, and J. Yuan (2017), "Enhanced oxidation of erythromycin by persulfate activated iron powder- H_2O_2 system: Role of the surface Fe species and synergistic effect of hydroxyl and sulfate radicals," *Chem. Eng. J.*, vol. 317, pp. 103–111.

- [4] Zaidi Ab Ghani, Mohd Suffian Yusoff, Nastaein Qamaruz Zaman, Mohd Faiz Muaz Ahmad Zamri, Jeyashelly Andas (2017), "Optimization of preparation conditions for activated carbon from banana pseudo-stem using response surface methodology on removal of color and COD from landfill leachate," *Waste Management*, Volume 62, Pages 177-187

- [5] Pengpeng Qiu, Mingcan Cui, Kyounglim Kang, Beomguk Park, Yonggyu Son, Eunkyung Khim, Min Jang, Jeehyeong Khim (2014), "Application of Box–Behnken design with response surface methodology for modeling and optimizing ultrasonic oxidation of arsenite with H_2O_2 ," *Cent. Eur. J. Chem.*, vol. 12, no. 2, pp. 164–172.

- [6] Jose L. Buitrago, Janeth Sanabria Héctor M. Gutiérrez-Zapata, Frankly J. Urbano-Ceron, Alejandra García-Barco, Paula Osorio-Vargas, Julián A. Rengifo-Herrera (2020), "Photo-Fenton process at natural conditions of pH, iron, ions, and humic acids for degradation of diuron and amoxicillin", *Environmental Science and Pollution Research*, vol.27, pages 1608–1624.