



## Study of Fouling Characteristics on Reverse Osmosis Membrane During Treatment of Diclofenac in Synthetic Water

---

Issaree Sonthiratana, Chalor Jarusutthirak and Pawee Klongvessa

EasyChair preprints are intended for rapid dissemination of research results and are integrated with the rest of EasyChair.

January 19, 2023

# การศึกษาการอุดตันเยื่อกรองรีเวอร์สออสโมซิสสำหรับบำบัดไดโคลฟีแนคในน้ำสังเคราะห์

## Study of fouling characteristics on reverse osmosis membrane during treatment of diclofenac in synthetic water

อิสรีย์ สนธิรัตน์<sup>a</sup>, ชลอ จารุสุทธิรักษ์<sup>a</sup>, ปวีร์ คล่องเวสสะ<sup>a</sup>

Issaree Sonthiratana<sup>a</sup>, Chalor Jarusutthirak<sup>a</sup>, Pawee Klongvessa<sup>a</sup>

<sup>a</sup> ภาควิชาเทคโนโลยีและการจัดการสิ่งแวดล้อม คณะสิ่งแวดล้อม มหาวิทยาลัยเกษตรศาสตร์ กรุงเทพฯ 10900

<sup>a</sup> Department of Environment Technology and Management, Faculty of Environmental, Kasetsart University, Bangkok, 10900, Thailand

\*Corresponding author. E-mail address: [issaree.son@ku.th](mailto:issaree.son@ku.th)

### บทคัดย่อ

งานวิจัยนี้ศึกษาประสิทธิภาพการกักกันไดโคลฟีแนคในน้ำสังเคราะห์ด้วยเยื่อกรองชนิดรีเวอร์สออสโมซิสและการลดลงของค่าฟลักซ์ปัจจัยที่ทำการศึกษาคือ ความดัน ค่าพีเอช และความเข้มข้นเริ่มต้นของไดโคลฟีแนค ผลการทดลองพบว่า ที่ความดัน 40 และ 60 psi มีค่าการกักกันใกล้เคียงกันได้แก่ 61.90% และ 60.70% ตามลำดับ ที่พีเอช 7 และ 9 มีค่าการกักกัน 61.92% และ 63.07% ตามลำดับที่สูงกว่าที่พีเอช 3 (55.96%) การเพิ่มความเข้มข้นเริ่มต้นของไดโคลฟีแนคส่งผลให้ประสิทธิภาพการกักกันลดลง ที่สภาวะที่เหมาะสมได้แก่ ความดัน 40 psi พีเอช 7 และความเข้มข้นเริ่มต้น 1 มิลลิกรัมต่อลิตร ให้ประสิทธิภาพการกักกันไดโคลฟีแนค 98.86% โดยกลไกการคัดแยกด้วยขนาดและแรงผลักทางไฟฟ้าสถิต การศึกษารูปแบบการอุดตันด้วยแบบจำลองอนุกรมความต้านทานพบว่า การลดลงของค่าฟลักซ์ส่วนใหญ่เกิดจากความต้านทานที่เกิดจากปรากฏการณ์คอนเซนเตรชันโพลาไรเซชัน ( $R_{cp}$ ) เนื่องจากการสะสมตัวของสารที่ถูกกักกันบริเวณผิวหน้าของเยื่อกรอง

**คำสำคัญ:** ไดโคลฟีแนค, การลดลงของค่าฟลักซ์, การอุดตัน, รีเวอร์สออสโมซิส

### Abstract

This research studied the rejection efficiency and flux decline in treatment of diclofenac containing in synthetic water using reverse osmosis membranes. Factors affecting rejection efficiency and flux decline, including transmembrane pressure, pH, and initial concentration, were investigated the results showed that at transmembrane pressures of 40 and 60 psi, the rejection efficiencies were similar, i.e., 61.90% and 60.70%, respectively. At pH of 7 and 9, the rejection efficiencies were 61.92% and 63.07%, respectively, higher than that at pH of 3 (55.96%). An increase of initial concentration led to the decrease of rejection efficiency. At optimum condition, i.e., transmembrane pressure of 40 psi, pH of 7, and initial concentration of 1 mg/L, the rejection efficiency was found to be up to 98.86%. Major contribution of rejection mechanisms were size exclusion and electrostatic repulsion effects. Characteristics of membrane fouling were studied by using resistance-in-series model. It was found that the main resistance causing flux decline was the resistance from concentration polarization ( $R_{cp}$ ) caused by an accumulation of rejected materials nearby membrane surface.

**Keywords:** Diclofenac, Flux decline, Fouling, Reverse Osmosis

## คำนำ

ไดโคลฟีแนค (Diclofenac) มีสูตรทางเคมีว่า 2-(2-(2,6-Di chlorophenyl amino)phenyl)acetic acid (DCF) เป็นยาในกลุ่มยาต้านการอักเสบของร่างกายที่ไม่ใช่สเตียรอยด์ (Non-steroidal anti-inflammatory drugs: NSAIDs) (Tung et al., 2018) ช่วยบรรเทาอาการปวด บวมจากการอักเสบ ปวดตามข้อ ไขข้อกระดูก ปัจจุบันไดโคลฟีแนคถูกจัดเป็นยาในบัญชียาหลักแห่งชาติ ทำให้มีปริมาณการใช้สูง เมื่อรับประทานร่างกายสามารถดูดซึมไดโคลฟีแนคได้ 100% จากนั้นถูกขับออกทางปัสสาวะประมาณ 65-70% ในรูปของสารออกฤทธิ์เดิมและสารเมตาบอไลต์ (metabolites) ที่เกิดจากกระบวนการเมตาบอลิซึมของร่างกาย (Vieno and Sillanpää, 2014) จึงมีโอกาสปนเปื้อนในน้ำเสียชุมชนได้ และเนื่องจากไดโคลฟีแนคถูกย่อยสลายทางชีวภาพระหว่างกระบวนการบำบัดน้ำเสียชุมชนได้น้อยทำให้ปริมาณไดโคลฟีแนคยังคงหลงเหลือในน้ำทิ้งจากระบบบำบัดน้ำเสีย ซึ่งนำไปสู่การปนเปื้อนแหล่งน้ำธรรมชาติและเกิดอันตรายต่อระบบนิเวศและสิ่งมีชีวิตที่อาศัยอยู่ในแหล่งน้ำนั้นได้ (Vieno and Sillanpää, 2014) ดังนั้น จึงควรมีการบำบัดยาไดโคลฟีแนคและอนุพันธ์ที่ยังตกค้างในน้ำทิ้งจากระบบบำบัดน้ำเสียที่เหมาะสมก่อนการระบายออกสู่สิ่งแวดล้อม

ที่ผ่านมามีงานวิจัยที่ทำการศึกษเกี่ยวกับวิธีการบำบัดยาไดโคลฟีแนคที่ปนเปื้อนในน้ำเสีย เช่น รังสีอัลตราไวโอเลต และ กระบวนการโอโซนเช่น อย่างไรก็ตาม วิธีการดังกล่าวมีข้อจำกัด คือ ค่าใช้จ่ายสูงเมื่อเทียบการวิธีการบำบัดสารวิธีอื่น รวมทั้งโอกาสเกิดผลิตภัณฑ์ผลพลอยได้ที่ไม่ต้องการจากกระบวนการออกซิเดชัน การดูดซับด้วยถ่านกัมมันต์ (Activated carbon) แม้ว่าจะมีประสิทธิภาพการบำบัดที่ดี แต่มีอายุการใช้งานที่จำกัดและค่าใช้จ่ายในการกำจัดหรือการรีเจนเนอเรตตัวดูดซับที่เสื่อมสภาพแล้ว (Taheran et al., 2016) กระบวนการกรองด้วยเยื่อกรองรีเวอร์สออสโมซิส (Reverse osmosis: RO) เป็นวิธีที่มีความเป็นไปได้ในการบำบัดสารไดโคลฟีแนค เนื่องจากมีกลไกการกักกันที่มีประสิทธิภาพสูงด้วยขนาดรูพรุนของเยื่อกรองที่มีขนาดเล็กทำให้สามารถกักกันโมเลกุลที่มีขนาดใหญ่กว่า 0.0001 ไมครอน ได้อย่างมีประสิทธิภาพ ในขณะที่ไดโคลฟีแนคมีโมเลกุลขนาดใหญ่ (น้ำหนักโมเลกุล 296.15 กรัมต่อโมล) ซึ่งงานวิจัยที่ผ่านมาพบว่าเยื่อกรองรีเวอร์สออสโมซิสสามารถกักกันไดโคลฟีแนคได้ถึง 90-99% (Mehrddad et al., 2016) นอกจากนี้ น้ำที่ผ่านการกรองมีความบริสุทธิ์สูงสามารถนำกลับมาใช้ประโยชน์ได้ อย่างไรก็ตาม ข้อจำกัดของการใช้เยื่อกรองรีเวอร์สออสโมซิสได้แก่การอุดตันบนเยื่อกรอง (Membrane fouling) ส่งผลให้เยื่อกรองเสื่อมสภาพและค่าฟลักซ์สารละลายมีค่าลดลง ได้ปริมาณน้ำน้อย จำเป็นต้องทำความสะอาดบ่อยครั้งขึ้น ส่งผลต่อค่าใช้จ่ายในการเดินระบบ (จตุพล และคณะ, 2561) การอุดตันเยื่อกรองออสโมซิสระหว่างการกรองสารสามารถเกิดขึ้นได้ในหลายลักษณะ ได้แก่ การเกิดชั้นคอนเซนเตรชันโพลาไรเซชัน การเกิดชั้นเจล การเกิดชั้นเค้ก เป็นต้น (Cho et al., 2000) การศึกษากลไกการอุดตันสามารถนำไปสู่แนวทางการป้องกันการอุดตันและการทำความสะอาดเยื่อกรองที่เหมาะสมนำไปสู่การยืดอายุการใช้งานของเยื่อกรอง

งานวิจัยนี้ทำการศึกษาศักยภาพของเยื่อกรองรีเวอร์สออสโมซิสในการกักกันไดโคลฟีแนคในน้ำสังเคราะห์ รวมทั้งปัจจัยที่มีผลต่อประสิทธิภาพการกักกันและค่าฟลักซ์เพอร์มิเอท ได้แก่ ความดันที่ใช้เดินระบบ (40 และ 60 psi) ความเข้มข้นของยาไดโคลฟีแนค (1 และ 20 มิลลิกรัมต่อลิตร) และค่าพีเอชของสารละลาย (3 และ 9) รวมทั้งศึกษาการลดลงของค่าฟลักซ์ (Flux decline) ที่เกิดจากการอุดตันในรูปแบบต่างๆ โดยใช้แบบจำลองทางคณิตศาสตร์ ได้แก่ แบบจำลองอนุกรมความต้านทาน (Resistance-in-series model) เพื่อศึกษาลักษณะการอุดตันของเยื่อกรอง ผลจากงานวิจัยสามารถนำไปประยุกต์ใช้ในการกำจัด การปนเปื้อนของไดโคลฟีแนคหรือสารปฏิชีวนะอื่นๆ รวมทั้งน้ำที่ผ่านเยื่อกรองรีเวอร์สออสโมซิสแล้วสามารถนำกลับมาใช้ใหม่ได้ รวมทั้งนำไปสู่แนวทางการป้องกัน แกไขการอุดตันของเยื่อกรอง และยืดอายุการใช้งานของเยื่อกรองต่อไป

## อุปกรณ์และวิธีการ

### การติดตั้งระบบเยื่อกรองรีเวอร์สออสโมซิส

ระบบเยื่อกรองรีเวอร์สออสโมซิสประกอบด้วย หน่วยทดสอบชนิด dead-end stirred cell (ยี่ห้อ Amicon, USA.) ขนาดความจุ 200 มิลลิลิตร พื้นที่กรอง 28.7 ตารางเซนติเมตร ภายในมีแกนแม่เหล็กสำหรับปั่นกวนที่ความเร็วรอบ 200 รอบต่อนาที (rpm) ต่อเข้ากับถังเก็บน้ำป้อน (Feed reservoir) ทำจากสแตนเลสสตีล ความจุ 10 ลิตร มีเกจวัดความดันภายในถัง ใช้ก๊าซไนโตรเจนสำหรับให้แรงดันแก่ระบบ ดังแสดงใน Fig.1 เยื่อกรองรีเวอร์สออสโมซิสที่ใช้ (ยี่ห้อFujitec) ผลิตจากวัสดุโพลีเอไมด์ มีขนาดรูพรุน 0.0001 ไมครอน ในการทดลองตัดเยื่อกรองเป็นวงกลมขนาดเส้นผ่าศูนย์กลาง 6.2 เซนติเมตร เก็บรักษาเยื่อกรองในสารละลายโซเดียมเมตาไบซัลไฟต์ ความเข้มข้น 1% ที่อุณหภูมิ 4 องศาเซลเซียส โดยก่อนการใช้งานทำการล้างด้วยน้ำอาร์โอ จากนั้นล้างด้วยกรดโดยแช่ในสารละลายกรดซัลฟูริก ( $C_6H_8O_7 \cdot H_2O$ ) เข้มข้น 2% ปริมาตร 150 มิลลิลิตร เป็นเวลา 30 นาที ล้างด้วยน้ำอาร์โออีกครั้ง ก่อนนำมาล้างด้วยเบสโดยแช่สารละลายโซเดียมไฮดรอกไซด์ (NaOH) เข้มข้น 1% ปริมาตร 150 มิลลิลิตร เป็นเวลา 30 นาที และล้างด้วยน้ำอาร์โออีกครั้ง ก่อนนำเยื่อกรองไปติดตั้งที่หน่วยทดสอบ dead-end stirred cell เพื่อเริ่มใช้งาน

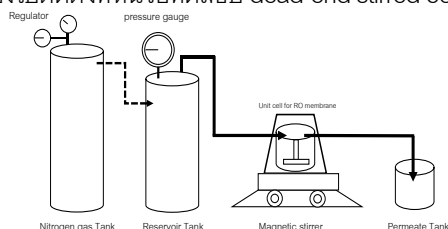


Fig.1 Schematic diagram of reverse osmosis membrane filtration system

### การเตรียมน้ำตัวอย่าง

น้ำสังเคราะห์ที่ใช้การทดลอง เตรียมจากการผสมยาไดโคลฟีแนคในปริมาณความเข้มข้นที่ต้องการกับน้ำอาร์โอ โดยนำน้ำที่ผสมแล้วไปผ่านกระบวนการกรองด้วยเยื่อกรองขนาด 0.45 ไมครอนเพื่อกำจัดสารอินทรีย์ขนาดใหญ่ที่อาจรบกวนปัจจัยศึกษา ก่อนนำมาทำการทดลองทุกครั้ง

### การศึกษาประสิทธิภาพการกักกันและการลดลงของฟลักซ์

ทำการศึกษปัจจัยที่มีผลต่อการทำงานของระบบรีเวอร์สออสโมซิสแสดงดัง Table 1

Table 1 Factors investigated and control parameters

Factors	Value	Control parameter
1. Pressure (psi)	40, 60	pH 7 and DCF conc. 20 mg/L
2. Diclofenac concentration(mg/L)	1, 20	pH 7 and pressure 40 psi
3. pH	3, 7, 9	DCF conc. 20 mg/L and pressure 40 psi

การคำนวณค่าฟลักซ์ดัง Equation 1

$$J = \frac{V}{A.t} \quad (1)$$

เมื่อ J = ฟลักซ์ของเพอร์มิเทของน้ำตัวอย่าง ( $L/m^2 \cdot min$ ), V = ปริมาตรของเพอร์มิเท (L), A = พื้นที่ผิวเยื่อกรอง ( $m^2$ ) และ t = เวลา (min)

### การเดินระบบและการเก็บตัวอย่าง

ในการเดินระบบเริ่มจากการเดินระบบด้วยน้ำอาร์โอ เพื่อวัดค่าฟลักซ์ของน้ำเพอร์มิเอท (Permeate flux) โดยวัดปริมาตรน้ำเพอร์มิเอท ทุก 1 นาที ภายใน 20 นาทีแรก, ทุกๆ 10 นาที ภายใน 1 ชั่วโมงต่อมา และ ทุกๆ 15 นาที จนกว่าค่าฟลักซ์ของน้ำเพอร์มิเอทคงที่ จากนั้นทำการเดินระบบด้วยน้ำตัวอย่าง โดยเติมน้ำตัวอย่างปริมาตร 2 ลิตรในถังเก็บน้ำป้อน เดินระบบและเก็บตัวอย่างน้ำเพอร์มิเอทตามช่วงเวลาที่กำหนดจนถึงสิ้นสุดการเดินระบบ เพื่อศึกษาหาค่าฟลักซ์ที่ลดลง (Flux decline) นอกจากนี้ตัวอย่างที่ทุกๆ 15 นาที มาวิเคราะห์หาค่าความเข้มข้นไดโคฟีแนค ด้วยวิธีการดูคลื่นแสงที่ความยาวคลื่น 275 นาโนเมตร (Javier et al., 2010) ด้วยเครื่อง UV-visible spectrometer รุ่น Cary 60 UV-Vis บริษัท Agilent Technologies และนำมาคำนวณหาประสิทธิภาพการกำจัดยาไดโคฟีแนค ตาม Equation 2

$$\%R = \left(1 - \frac{C_p}{C_f}\right) \times 100 \quad (2)$$

เมื่อ R = เปอร์เซ็นต์การกักกัน,  $C_p$  = ความเข้มข้นของไดโคฟีแนคในน้ำเพอร์มิเอท และ  $C_f$  = ความเข้มข้นของไดโคฟีแนคในน้ำป้อน

### การศึกษาแบบจำลองอนุกรมความต้านทาน (Resistance-in-series model)

แบบจำลองอนุกรมความต้านทานแสดงรูปแบบความต้านทานในเชิงอนุกรมที่สัมพันธ์กับค่าฟลักซ์ของเพอร์มิเอท (Permeate flux) และแรงดันผ่านเยื่อกรอง โดยอาศัยหลักการตามกฎของดาร์ซี (Darcy's law) ที่ว่าการเปลี่ยนแปลงของค่าการไหลขึ้นอยู่กับแรงดันผ่านเยื่อกรองและความต้านทานที่เกิดขึ้น ดังแสดงใน Equation 3 (Jiratananon and Chanachai, 1996) เมื่อมีการเดินระบบด้วยน้ำตัวอย่าง การอุดตัน (Fouling) ที่เกิดขึ้นทำให้เกิดความต้านทานชนิดต่างๆ ของระบบเยื่อกรอง ส่งผลให้ค่าฟลักซ์ของเพอร์มิเอทลดลง ซึ่งรูปแบบการอุดตันที่ส่งผลต่อความต้านทานของระบบ แสดงดัง Equation 4

$$R_t = \frac{\Delta P}{\mu \cdot (J_v)} \quad (3)$$

$$R_t = r_m + r_{cp} + r_g + r_c + r_{ir} \quad (4)$$

โดยที่  $J_v$  คือ ค่าอัตราการไหล ( $L \cdot m^{-2} \cdot h^{-1} \cdot kPa^{-1}$ )  $\Delta P$  คือ ค่าความดันที่ให้แก่ระบบ (kPa),  $\mu$  คือ ค่าความหนืดของน้ำ (kPa.s)  $R_t$  คือ ความต้านทานรวม ( $m^{-1}$ ) ซึ่งประกอบด้วย  $r_m$  คือ ความต้านทานที่เกิดจากเยื่อกรอง ( $m^{-1}$ )  $r_{cp}$  คือ ความต้านทานคอนแทกชั้นโพลีไธเรซิน ( $m^{-1}$ )  $r_g$  คือ ความต้านทานจากชั้นเจล ( $m^{-1}$ )  $r_c$  คือ ความต้านทานจากชั้นเค้ก ( $m^{-1}$ ) และ  $r_{ir}$  คือ ความต้านทานที่ไม่สามารถผันกลับได้ ( $m^{-1}$ )

การทดสอบหาค่าความต้านทานที่บ่งชี้รูปแบบของการอุดตันเยื่อกรองซึ่งเกิดขึ้นจากการกำจัดไดโคฟีแนคในน้ำสังเคราะห์ ทำโดยเดินระบบเยื่อกรองรีเวอร์สออสโมซิสด้วยน้ำตัวอย่างครบเวลาที่กำหนดแล้วทำการหยุดระบบ จากนั้นทำความสะอาดด้วยการเดินระบบด้วยน้ำอาร์โอ (hydrodynamic cleaning) เป็นเวลา 30 นาที และวัดฟลักซ์เพอร์มิเอท ในขั้นตอนนี้เป็น การลดความต้านทานที่เกิดจากปรากฏการณ์คอนแทกชั้นโพลีไธเรซิน ( $r_{cp}$ ) จากนั้นทำความสะอาดเยื่อกรองด้วยกรดซิตริก ( $C_6H_8O_7 \cdot H_2O$ ) เข้มข้น 2% เป็นเวลา 30 นาที และล้างด้วยน้ำอาร์โอ 30 นาที ทำการวัดค่าฟลักซ์ของน้ำเพอร์มิเอท ซึ่งเป็นการลดการอุดตันที่เกิดจากสารอินทรีย์ที่มีลักษณะเป็นชั้นเจล ( $r_g$ ) จากนั้นทำความสะอาดด้วยสารละลายโซเดียมไฮดรอกไซด์ (NaOH) 1% เป็นเวลา 30 นาทีและล้างด้วยน้ำอาร์โอ 30 นาที วัดค่าฟลักซ์ของน้ำเพอร์มิเอท ซึ่งเป็นการลดความต้านทานที่เกิดจากการอุดตันด้วยสารอินทรีย์ที่มีลักษณะเป็นชั้นเค้ก ( $r_c$ ) คงเหลือไว้แต่ค่าความต้านทานที่ไม่สามารถล้างออกได้ ( $r_m$ )

## ผลและวิจารณ์ผลการทดลอง

### ผลของความดันต่อประสิทธิภาพการกักกันและการลดลงของฟลักซ์

การศึกษาผลของความดันต่อประสิทธิภาพการกักกันไดโคลฟีแนคในน้ำสังเคราะห์ด้วยระบบรีเวอร์สออสโมซิส ทำการแปรค่าความดันที่ใช้ในการเดินระบบที่ 40 และ 60 psi โดยเดินระบบด้วยความเข้มข้นไดโคลฟีแนคเริ่มต้น 20 มิลลิกรัมต่อลิตร สภาวะ พีเอช 7 ผลการทดลองแสดงดัง Fig. 2a พบว่าการกักกันไดโคลฟีแนคของเยื่อกรองรีเวอร์สออสโมซิสที่ความดันทั้งสองค่ามีประสิทธิภาพใกล้เคียงกันที่ 61.90% 60.70% ตามลำดับ เนื่องจากกลไกการกักกันด้วยขนาด โดยมวลโมเลกุลของไดโคลฟีแนคมีขนาด 296 กรัมต่อลิตร และขนาดรูพรุนของเยื่อกรองรีเวอร์สออสโมซิสที่สามารถกักกันโมเลกุลที่มีขนาดใหญ่กว่า 0.0001 ไมครอนได้ แสดงให้เห็นว่า การเพิ่มความดันไม่ได้ส่งผลต่อประสิทธิภาพการกักกันไดโคลฟีแนคอย่างมีนัยสำคัญ อย่างไรก็ตาม พบว่าความดันมีผลต่อค่าฟลักซ์เพอร์มิเทโดยที่ค่าความดัน 60 psi ให้ค่าฟลักซ์เพอร์มิเทสูงกว่า ที่ความดัน 40 psi เล็กน้อย ซึ่งเป็นไปตามกฎของดาร์ซี เมื่อพิจารณาการลดลงของฟลักซ์ดัง Fig.2b พบว่าการเดินระบบด้วยความดันทั้งสองค่าให้แนวโน้มการลดลงของฟลักซ์ที่เป็นไปในรูปแบบเดียวกัน ทั้งนี้เนื่องจากน้ำป้อนระบบที่ใช้เป็นเพียงน้ำสังเคราะห์ที่เติมเฉพาะยาไดโคลฟีแนคเท่านั้น รูปแบบการอุดตันบนเยื่อกรองจึงมีลักษณะเดียวกัน ในการศึกษาขั้นต่อไปควรคำนึงถึงผลกระทบของสารปนเปื้อนอื่นที่มีโอกาสพบได้ในน้ำทิ้งชุมชน เช่น สารอินทรีย์ในน้ำทิ้ง (Effluent organic matters: EfOM) และของแข็งละลายทั้งหมด (Total dissolved solids: TDS) เป็นต้น เพื่อเปรียบเทียบผลของสารปนเปื้อนดังกล่าวต่อรูปแบบการอุดตันบนเยื่อกรองรีเวอร์สออสโมซิส

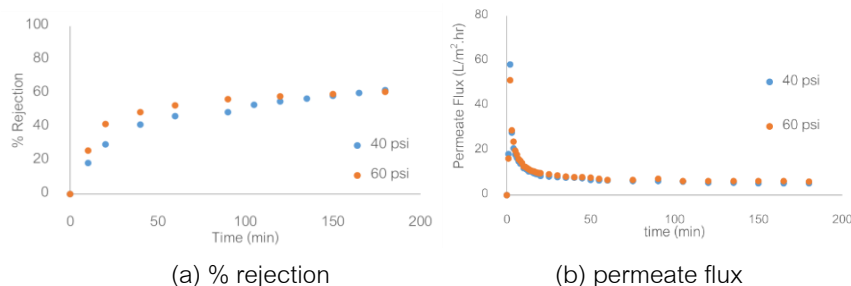


Fig 2. Effect of transmembrane pressure on diclofenac rejection and permeate flux during filtration by reverse osmosis membrane (diclofenac concentration = 20 mg/L and pH = 7)

### ผลของค่าพีเอชต่อประสิทธิภาพการกักกันและการลดลงของฟลักซ์

การศึกษาผลของค่า pH ต่อประสิทธิภาพการกักกันไดโคลฟีแนค ทำการแปรค่าพีเอชของน้ำป้อนระบบที่ 3 7 และ 9 และเดินระบบด้วยความเข้มข้นไดโคลฟีแนคเริ่มต้น 20 มิลลิกรัมต่อลิตร และ ความดัน 40 psi จากผลการทดลองดังแสดงใน Fig. 3a พบว่า ประสิทธิภาพการกักกันไดโคลฟีแนคมีค่า 55.96% 61.92% และ 63.07% สำหรับน้ำป้อนระบบที่มีค่าพีเอช 3 7 และ 9 ตามลำดับ แสดงให้เห็นว่า ในสภาวะสารละลายเป็นเบส ที่พีเอช 9 มีประสิทธิภาพในการกักกันสูงกว่าในสภาวะกลางและกรด ทั้งนี้เนื่องจากไดโคลฟีแนคมี ค่า pKa เท่ากับ 4.1 เมื่อค่าพีเอชสูงกว่าค่า pKa โมเลกุลของสารไดโคลฟีแนคซึ่งมีหมู่ฟังก์ชันคาร์บอกซิลิกเสียโปรตอนทำให้มีประจุสุทธิเป็นลบ ในขณะที่เยื่อกรองรีเวอร์สออสโมซิส มีค่า isoelectric point ที่พีเอช 6 เมื่อเยื่อกรองอยู่ในสารละลายที่เป็นเบส พื้นผิวของเยื่อกรองมีความเป็นประจุลบมากขึ้นเช่นกัน ที่สภาวะพีเอชดังกล่าว ประสิทธิภาพการกักกันนอกจากจะเกิดจากกลไกการคัดแยกด้วยขนาด (Size exclusion) แล้ว ยังมีโอกาสเกิดจากกลไกของแรงผลักทางไฟฟ้าสถิต (electrostatic repulsion) ระหว่างโมเลกุลไดโคลฟีแนคและพื้นผิวเยื่อกรอง ส่งผลให้การกักกันไดโคลฟีแนคด้วยเยื่อกรอง

รีเวอร์สออสโมซิสมีประสิทธิภาพสูงขึ้น (Park and Kwon, 2018) อย่างไรก็ตาม เนื่องจากการทดลองนี้ดำเนินการด้วยหน่วยทดสอบแบบ Dead-end stirred cell unit สารที่เยื่อกรองกักกันยังคงสะสมตัวของบริเวณผิวหน้าเยื่อกรอง ส่งผลให้ความเข้มข้นของสารบริเวณผิวหน้าของเยื่อกรองมีค่าสูงจากปรากฏการณ์คอนเซนเตรชันโพลาไรเซชัน รวมทั้งการสะสมตัวของสารไดโคลฟีแนคที่ผิวหน้าหรือภายในรูพรุนของเยื่อกรอง ซึ่งมีส่วนทำให้ค่าฟลักซ์เพอร์มิเอท ลดลงได้ ดังแสดงใน Fig. 3b

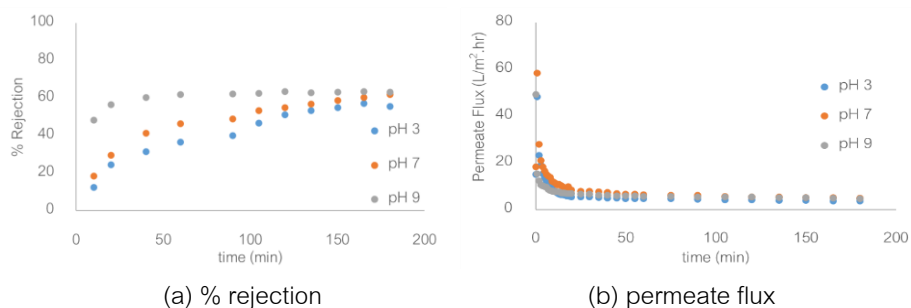


Fig 3. Effect of solution pH on rejection efficacy of diclofenac and permeate flux during filtration by reverse osmosis membrane (diclofenac concentration = 20 mg/L and pressure = 40 psi)

*ผลของความเข้มข้นของไดโคลฟีแนคเริ่มต้นต่อประสิทธิภาพการกักกันและการลดลงของฟลักซ์*

การศึกษาผลของค่าความเข้มข้นไดโคลฟีแนคเริ่มต้น ทำการเปรียบเทียบความเข้มข้นไดโคลฟีแนค 1 และ 20 มิลลิกรัมต่อลิตร โดยควบคุมค่าพีเอชเท่ากับ 7 และค่าความดัน 40 psi ผลการทดลองแสดงดัง Fig. 4a พบว่า ประสิทธิภาพการกักกันไดโคลฟีแนคมีค่า 98.86 และ 71.34% สำหรับน้ำป้อนที่มีความเข้มข้นไดโคลฟีแนค 1 และ 50 มิลลิกรัมต่อลิตร ตามลำดับ นอกจากนี้ยังพบว่า ความเข้มข้นของไดโคลฟีแนคที่เพิ่มมากขึ้นส่งผลให้ค่าการลดลงของฟลักซ์เพอร์มิเอท (Flux decline) เพิ่มมากขึ้น เนื่องจากการเพิ่มปริมาณสารที่ถูกกักกันที่ไม่ผ่านเยื่อกรองรีเวอร์สออสโมซิส จึงเกิดการสะสมตัวอยู่บริเวณผิวหน้าเยื่อกรองเกิดการอุดตันเยื่อกรอง ส่งผลต่อการลดลงของฟลักซ์มากที่สุด

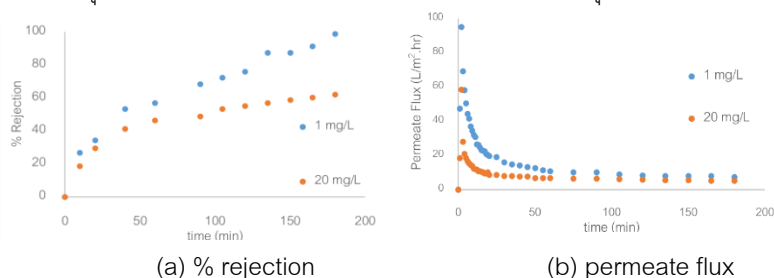


Fig 4. Effect of feed concentration on rejection efficacy of diclofenac and permeate flux during filtration by reverse osmosis membrane (solution pH = 7 and pressure = 40 psi)

*ผลการศึกษาแบบจำลองอนุกรมความต้านทานของการอุดตัน*

การศึกษาแบบจำลองอนุกรมความต้านทานของการอุดตันเยื่อกรองรีเวอร์สออสโมซิสที่ใช้ในการกักกันไดโคลฟีแนคที่ปนเปื้อนในน้ำสังเคราะห์ ทำให้ทราบถึงรูปแบบหรือลักษณะการอุดตันที่เกิดขึ้นในรูปแบบของความต้านทานที่ส่งผลต่อการลดลงของค่าฟลักซ์ Fig. 5a แสดงค่าความต้านทานของการอุดตันเยื่อกรองที่กักกันไดโคลฟีแนคที่ความเข้มข้นเริ่มต้นแตกต่างกัน

พบว่า ความต้านทานส่วนใหญ่เกิดจากปรากฏการณ์คอนเซนเตรชันโพลาไรเซชัน ( $R_{cp}$ ) เนื่องจากไดโคลิพีแนคในสารละลายที่ถูกกักกันด้วยเยื่อกรองสะสมอยู่ในบริเวณใกล้ผิวหน้าเยื่อกรอง ทำให้ความเข้มข้นของสารที่บริเวณใกล้ผิวหน้าของเยื่อกรองมีค่าสูงขึ้น เกิดปรากฏการณ์คอนเซนเตรชันโพลาไรเซชัน ที่ทำให้ความดันออสโมติกบริเวณผิวหน้าเยื่อกรองเพิ่มสูงขึ้น และส่งผลต่อการลดลงของค่าฟลักซ์เพอร์มิเอท เมื่อเพิ่มความเข้มข้นจาก 1 เป็น 20 และ 50 มิลลิกรัมต่อลิตร พบว่าความต้านทานการอุดตันที่เกิดจากชั้นเจล ( $R_g$ ) และชั้นเค้ก ( $R_c$ ) เริ่มมีค่ามากขึ้น แสดงให้เห็นว่าสารไดโคลิพีแนคที่มีปริมาณเพิ่มมากขึ้นเกิดการสะสมตัวบนผิวหน้าหรือในรูพรุนของเยื่อกรองในลักษณะชั้นเจลและชั้นเค้ก Fig.5b แสดงค่าความต้านทานการอุดตันที่เกิดขึ้นจากการเดินระบบเยื่อกรองรีเวอร์สออสโมซิสที่ความดัน 40 และ 60 psi สำหรับกรองสารละลายไดโคลิพีแนคความเข้มข้นเริ่มต้น 20 มิลลิกรัมต่อลิตร ค่าพีเอช 7 พบว่าการอุดตันส่วนใหญ่เกิดจากปรากฏการณ์คอนเซนเตรชันโพลาไรเซชัน ( $R_{cp}$ ) ดังได้กล่าวมาแล้วข้างต้น การเพิ่มความดันทำให้มีการถ่ายเทมวลสารเข้าสู่บริเวณผิวหน้าเยื่อกรองมากขึ้น และมีโอกาสสะสมตัวบนผิวหน้าเยื่อกรองในลักษณะของชั้นเจลและชั้นเค้กมากขึ้น ทำให้ค่า  $R_{cp}$ ,  $R_g$  และ  $R_c$  จากการเดินระบบที่ความดัน 60 psi มีค่าสูงกว่าที่ความดัน 40 psi

Fig.5c แสดงผลของพีเอชต่ออนุกรมความต้านทานจากการอุดตัน จะเห็นว่าค่าพีเอชส่งผลให้ค่าความต้านทานที่เกิดจากปรากฏการณ์คอนเซนเตรชันโพลาไรเซชัน ( $R_{cp}$ ) มีค่าลดลง เนื่องจากที่ค่าพีเอชมากกว่า pKa (4.1) การกักกันสารนอกจากจะเกิดจากกลไกการคัดแยกด้วยขนาดแล้วยังเกิดจากแรงผลักทางไฟฟ้าสถิต ทำให้เกิดการสะสมของไดโคลิพีแนคในบริเวณใกล้กับผิวหน้าเยื่อกรองมีค่าต่ำลงที่พีเอช 7 และ 9 ซึ่งสอดคล้องกับผลของค่าการลดลงของฟลักซ์ดังได้กล่าวมาแล้ว

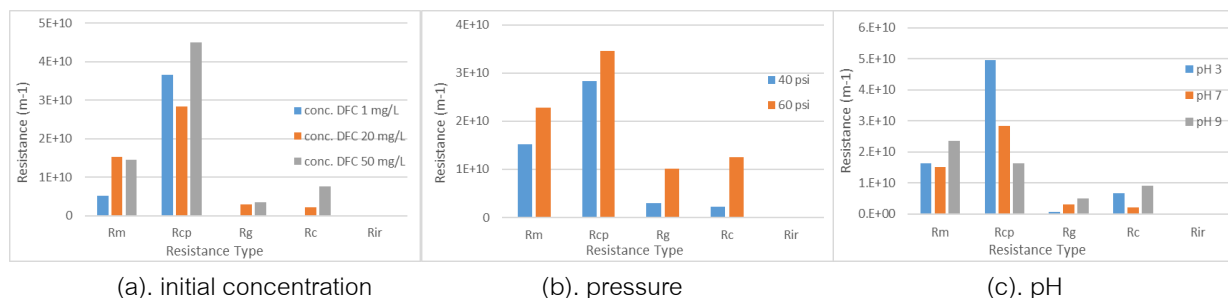


Fig.5 Effect of initial concentration, pressure, and pH on fouling characteristics based on resistances in-series model.

### สรุปผลการทดลอง

การศึกษาประสิทธิภาพและปัจจัยที่มีผลต่อการทำงานของเยื่อกรองรีเวอร์สออสโมซิสพบว่า ประสิทธิภาพการกักกันไดโคลิพีแนคที่ความดัน 40 และ 60 psi มีค่าการกักกันใกล้เคียงกันได้แก่ 61.90% และ 60.70% ตามลำดับ โดยมีรูปแบบการลดลงของค่าฟลักซ์ในลักษณะเดียวกัน เนื่องจากกลไกการกักกันสารอาศัยการคัดแยกด้วยขนาดเป็นหลัก การศึกษาผลของพีเอช พบว่าที่พีเอช 7 และ 9 มีค่าการกักกัน 61.92% และ 63.07% ตามลำดับซึ่งสูงกว่าที่พีเอช 3 (55.96%) เนื่องจากอาศัยกลไกการคัดแยกด้วยขนาดร่วมกับแรงผลักทางไฟฟ้าสถิต การศึกษาผลของความเข้มข้นเริ่มต้นพบว่า เมื่อเพิ่มความเข้มข้นเริ่มต้นของไดโคลิพีแนคส่งผลให้ประสิทธิภาพการกักกันลดลง และการลดลงของฟลักซ์มีค่าสูงขึ้น โดยที่ค่าความเข้มข้นเริ่มต้นของไดโคลิพีแนคเท่ากับ 1 มิลลิกรัมต่อลิตรให้ประสิทธิภาพการกักกัน 98.86% การศึกษาแบบจำลองอนุกรมความต้านทานพบว่า การลดลงของฟลักซ์เพอร์มิเอทส่วนใหญ่เกิดจากความต้านทานของปรากฏการณ์คอนเซนเตรชันโพลาไรเซชัน ( $R_{cp}$ ) อันเนื่องมาจากการสะสมตัวของสารที่ถูกกักกันบริเวณผิวหน้าของเยื่อกรอง



## กิตติกรรมประกาศ

ขอขอบคุณภาควิชาเทคโนโลยีการจัดการสิ่งแวดล้อม และกองทุนคณะสิ่งแวดล้อม ที่ได้ให้ทุนสนับสนุนการทำวิจัยในครั้งนี้

## เอกสารอ้างอิง

- จตุพล จัยสิน, สุพัฒน์พงษ์ มัตราช และ อติศย์สุดา จำเริญสาร. 2561. ปัจจัยที่ส่งผลต่อประสิทธิภาพการกำจัดเฮกซะวาเลนท์โครเมียมร่วมกับสารอินทรีย์ธรรมชาติด้วยเยื่อกรองนาโน. วารสารวิศวกรรมสิ่งแวดล้อม 32(3): 53-60.
- Brezina, E., Prasse, C., Meyer, J., Mückter, H. 2016. Investigation and risk evaluation of the occurrence of carbamazepine, oxcarbazepine, their human metabolites, and transformation products in the urban water cycle. *Environ. Pollut.* 225: 261-269. doi: 10.1016/j.envpol.2016.10.106.
- Chang, E.-E., Yang, S.Y., Huang, C.P., Liang, C.H., Chiang P.C. 2011. Assessing the fouling mechanisms of high-pressure nanofiltration membrane using the modified Hermia model and the resistance-in-series model. *Sep. Purif. Technol.* 79: 329– 336. doi:10.1016/j.seppur.2011.03.017.
- Cho, J., Amy, G., Pellegrino, J. 2000. Membrane filtration of natural organic matter: comparison of flux decline, NOM rejection, and foulants during filtration with three UF membranes. *Desalination* 127: 83-298. doi: org/10.1016/S0011-9164(00)00017-5.
- Jessica, I. N-J., Torres-Palma, R.A., Botero-Coy, A.M., Hernández, F. 2021. Pharmaceuticals and environmental risk assessment in municipal wastewater treatment plants and rivers from Peru. *Environ. Int.* 155:106674. doi: org/10.1016/j.envint.2021.106674.
- Jiratananon, R., Chanachai, A. 1996. A study of fouling in the ultrafiltration of passion fruit juice. *J. Membr. Sci.* 111(39-48). doi: org/10.1016/0376-7388(95)00270-7.
- Lin, Y.L. 2017. Effects of organic, biological, and colloidal fouling on the removal of pharmaceuticals and personal care products by nanofiltration and reverse osmosis membranes. *J. Membr. Sci.* 542: 342–351. doi: org/10.1016/j.memsci.2017.08.023.
- Mehrdad, T., Brar, S.K., Verm., M., Surampalli, R.Y., Zhang, T.C., Valero, J.R. 2016. Membrane processes for removal of pharmaceutically active compounds (PhACs) from water and wastewaters. *Sci. Total Environ.* 547: 60-77. doi: org/10.1016/j.scitotenv.2015.12.139.
- Niina, V., Sillanpää, M., 2014. Fate of diclofenac in municipal wastewater treatment plant — A review. *Environ. Int.* 69 (2014) 28–39. doi: org/10.1016/j.envint.2014.03.021
- Park, H.G., Kwon, Y.N. 2018. Investigation on the factors determining permeate pH in reverse osmosis membrane processes. *Desalination* 430: 147-158. doi: org/10.1016/j.desal.2017.12.060.
- Rivas, J., Gimeno, O., Borralho, Beltrán, TF. 2010. Influence of oxygen and free radicals promoters on the UV-254nm photolysis of diclofenac. *Chem. Eng. J.* 163:35–40. doi: org/10.1016/j.cej.2010.07.027.