

مطالعه کارایی فرآیند بیوالکتروشیمیایی دارای الکترودهای استیل اسفنجی و کربن پارچه‌ای به منظور حذف فنل در محیط‌های آبی

سمیه دهقانی (Ph.D Candidate)، عباس رضایی* (Ph.D Student)، زهره مقیسه (Ph.D Candidate)، بتول محب راد (Ph.D Candidate)، گروه بهداشت محیط، دانشکده علوم پزشکی دانشگاه تربیت مدرس، تهران، ایران

چکیده

سابقه و هدف: ترکیبات فنلی، مواد شیمیایی صنعتی بوده که به دلیل مخاطرات زیست محیطی و بهداشتی، مورد توجه ویژه قرار دارند. در این مطالعه، کاربرد سیستم بیوالکتروشیمیایی تک محفظه‌ای دارای الکترودهای کربن پارچه‌ای و استیل اسفنجی با بستر ثابت برای حذف فنل بررسی گردید.

مواد و روش‌ها: پژوهش حاضر، یک مطالعه تجربی در مقیاس آزمایشگاهی بود که در راکتور پلکسی‌گلاس با حجم موثر یک لیتر و به صورت ناپیوسته انجام گرفت. پس از راهاندازی راکتور و پایدار شدن عمل کرد سیستم، پارامترهای موثر بر فرآیند شامل نسبت N/C، غلظت اولیه فنل، میزان جریان اعمالی و زمان واکنش سنجش گردید. همچنین تغییرات هدایت الکتریکی، pH و پتانسیل اکسیداسیون احیا (EC/pH/ORP) طی انجام واکنش بررسی شد.

یافته‌ها: نتایج نشان داد که با افزایش میزان جریان اعمالی از ۲ میلی‌آمپر به ۶ میلی‌آمپر (ولتاژ مصرفی ۰/۹ تا ۱/۲ ولت) کارایی فرآیند تجزیه بیوالکتروشیمیایی فنل از ۶۵٪ به ۹۶٪ افزایش یافت و در N/C برابر با ۵ راندمان حذف ۱۰۰٪ فنل حاصل گردید. مقدار انرژی و توان مصرفی سیستم به ترتیب در محدوده 14 KWh/m^3 و $0.1-0.01\text{ m}^3/\text{KWh}$ و $0.23-0.02\text{ m}$ محاسبه گردید.

نتیجه‌گیری: آزمایشات انجام شده نشان دهنده کارایی موثر بیوراکتور الکتروشیمیایی دارای الکترودهای استیل اسفنجی و کربن پارچه‌ای به دلیل رسانایی بالای الکترودها، دارا بودن سطح موثر بیشتر جهت تشکیل بیوفیلم، کاهش دانسیته جریان مورد بهره‌برداری و انرژی مصرفی به منظور حذف فنل از محیط‌های آبی می‌باشد. کارایی این راکتور می‌تواند برای حذف سایر ترکیبات آلی دیر تجزیه پذیر نیز بررسی شود.

واژه‌های کلیدی: فرآیند بیوالکتروشیمیایی، فنل، بیوالکترود، کربن پارچه‌ای، استیل اسفنجی

مقدمه

پالایشگاه‌های نفت، غلظت این ترکیبات در پساب در محدوده $10-4500\text{ mg/L}$ گزارش گردیده است [۴]. ترکیبات فنلی در لیست آلاینده‌های دارای تقدم سازمان حفاظت محیط زیست آمریکا قرار دارند [۵]. لذا EPA استانداردهایی را برای آب‌های معدنی و آشامیدنی (مقدار 0.5 ppb) و برای خروجی فاضلاب به آب‌های سطحی (0.5 ppm) و به سیستم فاضلاب رو (1 ppm) تعیین کرده است [۳]. تاکنون

ترکیبات فنلی از جمله مواد شیمیایی صنعتی بوده که مخاطرات زیست محیطی و بهداشتی زیادی را دارا می‌باشد [۱]. فنل از طریق جذب پوستی، استنشاق بخار، یا گوارشی می‌تواند ایجاد سمیت کند [۲]. صنایع بسیاری مانند صنایع تولید زغال سنگ، پالایشگاه‌ها، حشره‌کش‌ها، پلاستیک، مواد منفجره و علف‌کش‌ها حاوی ترکیبات فنلی می‌باشند [۳]. در

در بیوراکتورهای الکتروشیمیایی، علاوه بر پارامترهای راهبری و محیطی، پیکربندی راکتور به منظور بهبود کارایی فرآیند دارای اهمیت می‌باشد [۱۹]. در این راستا طراحی بیوراکتور دارای الکترودهای سیلندری/صفحه‌ای استیل اسفنجی/کربن پارچه‌ای بدون کاربرد غشاء گران قیمت می‌تواند مبادله آسان‌تر بین بیوالکترودها و سوبسترا را میسر سازد. از طرف دیگر، نیازی به اصلاح الکترودها [۲۰، ۱] جهت تامین اهداف مذکور نمی‌باشد. این پژوهش، با هدف بررسی کارایی سیستم بیوالکتروشیمیایی تک محفظه‌ای دارای الکترودهای سیلندری/صفحه‌ای استیل اسفنجی به عنوان بیوآند و کربن پارچه‌ای به عنوان بیوکاتد به منظور کاهش فنل در محیط‌های آبی انجام گرفت.

مواد و روش‌ها

مواد شیمیایی مورد استفاده، تمام مواد و محلول‌های شیمیایی مورد استفاده در این پژوهش شامل: نوتربینت‌های میکروی، اسید فسفریک، هیدروکسید آمونیم، آمینوآنتی‌پارین، پتاسیم فری‌سیانید و بافر فسفات دارای درجه خلوص بالا بوده (تهیه شده از شرکت مرک) و در آب مقطر تهیه گردید. فنل مورد استفاده نیز با درصد خلوص ۹۹٪ (مرک) بوده که ساختار و خصوصیات فیزیکی و شیمیایی آن در جدول ۱ نشان داده شده است.

جدول ۱. خصوصیات فیزیکی، شیمیایی و ساختار فنل [۲۱]

خصوصیات	
C ₆ H ₆ O	فرمول مولکولی
۹۴,۱۱g/mol	جرم مولی
جامد کریستالی سفید رنگ	شكل ظاهری
۱,۰۷g/cm ³	چگالی
۴۰,۵ درجه سانتی گراد	دماه ذوب
۱۸۱,۷°C	دماه جوش
۹,۹۵	اسیدی (pKa)

فرآیندهای مختلفی برای حذف باقیمانده‌های فنلی از محیط‌های آبی مورد بررسی قرار گرفته است. تجزیه بیولوژیکی فنل به دلیل مقبولیت زیست محیطی، دستیابی به محصولات نهایی پایدار و مقرر به صرفه بودن مورد توجه ویژه‌ای قرار دارد [۶، ۱]. Colvin و Rozich گزارش کردند که استفاده از سودوموناس آثروزینوزا بیشترین تجزیه فنل را ممکن می‌سازد [۷]. در این فرآیندها، باکتری می‌تواند تحت شرایط هوایی و بیهوایی از فنل به عنوان منبع کربن و انرژی استفاده کند [۸]. تجزیه در شرایط هوایی در مدت زمان کوتاه‌تری انجام می‌شود [۹، ۱۰]. از طرفی، کاربرد بیومس با بستر ثابت دارای عمل کرد پایدارتری در تجزیه بیولوژیکی، تولید لجن کم‌تر، و تحمل بالاتر در برابر شوک حاصل از فنل می‌باشد [۱۱، ۸]. امروزه سیستم‌های بیوالکتروشیمیایی به عنوان فن‌آوری نوین در تولید هم‌زمان الکتریسیته و تصفیه فاضلاب مورد توجه است [۱۲]. در این سیستم‌ها، از میکروارگانیسم‌ها به منظور انجام واکنش اکسیداسیون و یا احیا [۱۳] و از جریان الکتریکی مستقیم برای افزایش راندمان تجزیه بیولوژیکی استفاده می‌شود [۱۴، ۱۵]. در حال حاضر کاربرد فرآیندهای بیوالکتروشیمیایی با استفاده از جریان الکتریکی با ولتاژ کم به منظور تصفیه آلاینده‌های آلی در حال افزایش است. در خصوص آلاینده‌های هیدروکربنی نفتی مثل فنل به دلیل حلایلت زیاد و محدود شدن روشی مانند الکتروکیتیک، فرآیند بیوالکتروشیمیایی کاربرد زیادی پیدا کرده است [۱۶].

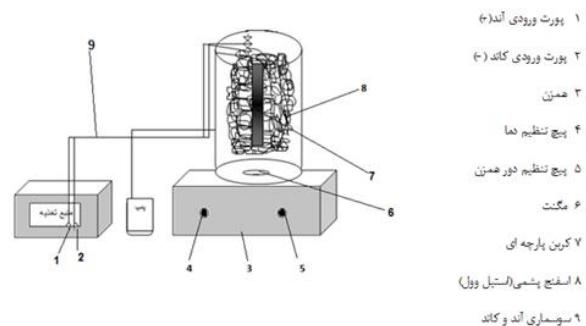
کربن پارچه‌ای از جمله الکترودهای دارای سطح موثر زیاد بوده که می‌تواند موجب بهبود عمل کرد سیستم بیوالکتروشیمیایی شود [۱۷]. این منسوجات در محلول‌های مختلف پایدار و در گستره دمایی بالا کارایی دارند [۱۸]. استیل اسفنجی (steel wool) نیز به دلیل دارا بودن رسانایی بالا، هزینه کم، سطح موثر زیاد جهت تشکیل بیوفیلم، کاهش دانسیته جریان مورد بهره‌برداری، و انرژی مصرفی کم و در نتیجه نرخ بالای اکسیداسیون می‌تواند به عنوان یک گزینه موثر باشد.

پس از تشکیل بیوفیلم، تطابق جمعیت باکتریایی با جریان الکتروسیسته و پایدار شدن عمل کرد سیستم، پارامترهای موثر بر فرآیند شامل نسبت C/N ۱-۶، غلظت اولیه فنل 2600 mg/L -۳۰۰، میزان جریان اعمالی ۱۰-۲ میلی آمپر و زمان واکنش ۲۴-۵۰، میزان جریان اعمالی ۱۰-۲ میلی آمپر و زمان واکنش ۳ ساعت بررسی گردید. همچنین تغییرات هدایت الکتریکی، pH و پتانسیل اکسیداسیون-احیا ($\text{EC}/\text{pH}/\text{ORP}$) طی انجام واکنش مورد بررسی قرار گرفت و میزان انرژی مصرفی و توان مصرفی نیز محاسبه گردید. کلیه آزمایشات به صورت ۲ بار تکرار در دمای آزمایشگاه $26 \pm 1^\circ\text{C}$ درجه سانتی گراد) و با تنظیم pH در محدوده خنثی انجام گرفت. روش اندازه گیری غلظت فنل، جهت حذف تداخل ناشی از کدورت های احتمالی موجود در نمونه، ابتدا نمونه توسط دستگاه سانتریفیوز (مدل 320r Hettich (universal) با دور ۵۰۰۰rpm به مدت ۱۰ دقیقه سانتریفیوز گردید. سپس غلظت فنل باقیمانده مطابق با دستورالعمل استاندارد متود (روش رنگ سنجی) اندازه گیری شد [۲۲]. جذب نمونه ها با استفاده از UV-9200UV/VIS اسپکتروفتو متر (مدل Spectrophotometer در طول موج 500 nm بعد از مدت زمان 15 min قرائت شد و غلظت فنل باقیمانده محاسبه گردید.

نتایج

تأثیر نسبت C/N به منظور بررسی تاثیر نسبت C/N در کارایی تجزیه فنل توسط بیوراکتور الکتروسیمیایی، آزمایش های مورد نظر در محدوده نسبت های C/N برابر با ۱-۶ انجام گردید (شکل ۲). نتایج نشان داد که امکان دستیابی به حذف کامل فنل در دوره زمانی ۱۰ ساعت و C/N برابر با ۵ فراهم می باشد. کارایی فرآیند بیوالکتروسیمیایی در نسبت های C/N : ۱:۱، ۲:۱، ۳:۱، ۴:۱، ۵:۱، ۶:۱ و در زمان واکنش ۱۰ ساعت، به ترتیب برابر با ۹۵٪، ۹۸٪، ۹۹٪ و ۹۹٪ مشاهده گردید.

مشخصات بیوراکتور الکتروسیمیایی. راکتور مورد استفاده در این مطالعه، راکتوری استوانه ای شکل از جنس پلکسی گلاس با قطر حدود 8 cm ، ارتفاع 30 cm و حجم موثر ۱ لیتر حاوی الکترودهایی از جنس کربن پارچه ای و استیل اسفنجی بود که به وسیله یک نگهدارنده ثابت گردید. الکترود کربن پارچه ای دارای عرض 2 cm و ارتفاع موثر 21 cm سطح مقطع 42 cm^2 ، و الکترود استیل اسفنجی دارای قطر 5 cm و فاصله بین الکترودها 1 cm بود. جهت همگن کردن محتویات راکتور از همزن مغناطیسی (Heidolph, MR3001)، و جهت هواهدی از پمپ (HAILEA) با دبی خروجی کمتر از 3 L/min و تناوب زمانی ۳۰ دقیقه استفاده گردید. منبع تغذیه جریان الکتریکی نیز به منظور تامین جریان مستقیم به سیستم به کار گرفته شد. شماتیک راکتور مورد استفاده در شکل ۱ نشان داده شده است.

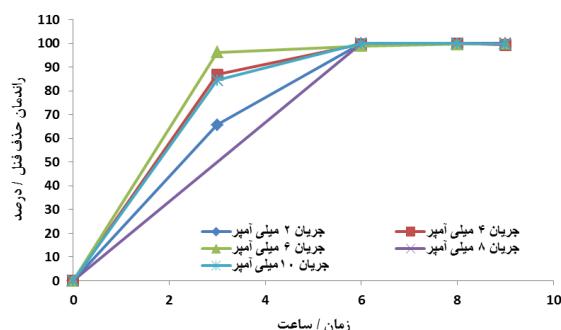


شکل ۱. شماتیک بیوراکتور الکتروسیمیایی

روش انجام کار. این پژوهش یک مطالعه تجربی در مقیاس آزمایشگاهی بود که به صورت جریان منقطع (Batch) در بیوراکتور الکتروسیمیایی انجام گردید. لجن مورد استفاده در این پژوهش از تصفیه خانه فاضلاب شهری تهیه شد و به مدت یک ماه به صورت کومتابولیسم، عملیات خودهی انجام گردید. در این راستا جهت تامین نوترینت های مورد نیاز از NH_4Cl , Na_2HPO_4 , KH_2PO_4 , CaCl_2 , NaCl , MgSO_4 , NaHCO_3 شدن میزان حذف فنل، ۲۰٪ از حجم راکتور توسط لجن مزبور تلقیح گردید (مقدار MLSS اولیه حدود 2600 mg/L بود).

نشان داد. طی انجام واکنش، روند تغییرات صورت گرفته در هدایت الکتریکی (EC)، pH و پتانسیل اکسیداسیون - احیا (ORP) نیز ارزیابی گردید که در شکل ۴ قابل ملاحظه می باشد.

تأثیر جریان الکتریکی اعمالی. مطالعه تاثیر شدت جریان های اعمالی (10 mA ، 8 ، 6 ، 4 و 2) در تجزیه بیولوژیکی فنل بر پایه رشد چسبیده در بیوالکترود یکی از اهداف اصلی انجام مطالعه بود. همان طور که در شکل ۵ ملاحظه می شود با افزایش میزان جریان اعمالی از 2 mA به 6 mA (ولتاژ مصرفی $1/27$ تا $1/97$) کارایی تجزیه بیولوژیکی فنل در طی زمان واکنش 3 ساعت از 65% (در جریان 2 mA) به $96/26\%$ (در جریان 6 mA) افزایش یافت. با افزایش بیشتر میزان جریان الکتریکی از 6 mA به 10 mA اگرچه همچنان روند حذف فنل با گذشت زمان افزایشی بود اما نسبت به زمان واکنش مشابه (3 ساعت) در سایر جریان های اعمالی به سیستم، ریزش بیوفیلم و کاهش کارایی فرآیند مشاهده گردید.



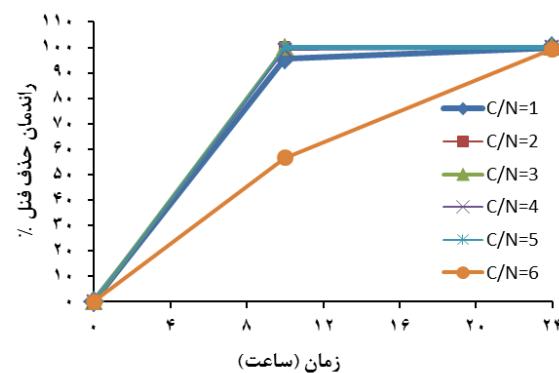
شکل ۵. تأثیر تغییرات جریان الکتریکی اعمالی در راندمان حذف فنل در طی بازه زمانی مورد آزمایش ($T=26^{\circ}\text{C}$, $\text{pH}=7$, $C_0=250\text{ mg/L}$, $I=2\text{ mA}$)

میزان انرژی و توان مصرف در سیستم مورد مطالعه. به منظور محاسبه مقدار انرژی مصرفی در بیوراکتور الکتروشیمیایی مورد مطالعه از معادله ۱ استفاده گردید:

$$\text{معادله ۱:}$$

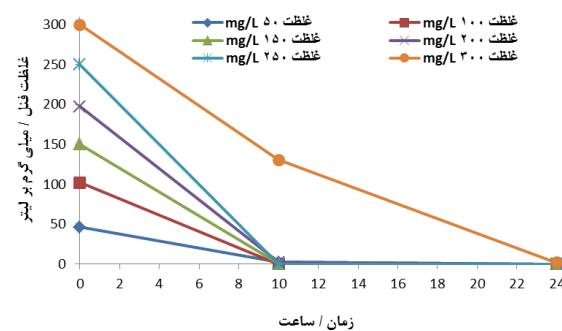
$$E = \frac{vIt}{V}$$

که در این رابطه، E = انرژی الکتریکی مصرفی $= t$ ؛ v = ولتاژ اعمال شده؛ I = شدت جریان (A)؛ (KWh/m^3)

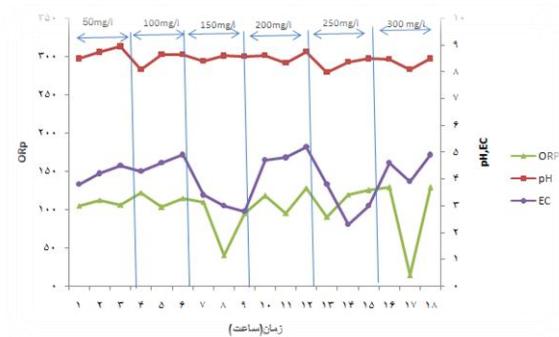


شکل ۲. بررسی تأثیر تغییرات نسبت C/N در راندمان حذف فنل در بیوراکتور الکتروشیمیایی ($T=26^{\circ}\text{C}$, $\text{pH}=7$, $I=2\text{ mA}$)

تأثیر غلظت اولیه فنل. غلظت اولیه فنل در محدوده غلظت های $50-300\text{ mg/L}$ مورد مطالعه قرار گرفت (شکل ۳).



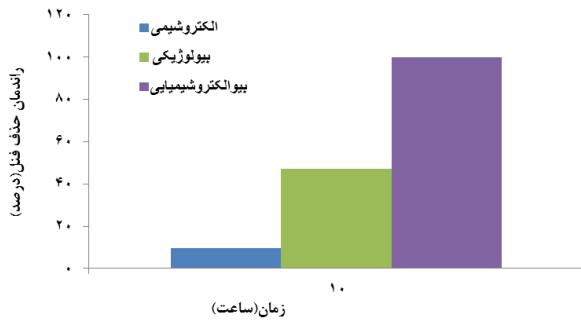
شکل ۳. تغییرات غلظت فنل نسبت به زمان در بازه زمانی مورد آزمایش ($T=26^{\circ}\text{C}$, $\text{pH}=7$, $I=2\text{ mA}$)



شکل ۴. تغییرات پارامترهای هدایت الکتریکی (EC), pH و پتانسیل اکسیداسیون - احیا (ORP) در طی دوره زمانی مورد آزمایش ($\text{pH}=7$, $T=26^{\circ}\text{C}$)

راندمان حذف فنل در غلظت های 50 mg/L تا 500 mg/L و زمان واکنش 10 ساعت، در محدوده 95% تا 100% مشاهده گردید. با افزایش غلظت اولیه فنل تا 300 mg/L راندمان حذف در مدت زمان مشابه (10 ساعت)، روند کاهشی را

الکتروشیمیایی و بیولوژیکی به عنوان کنترل‌های سیستم بیوالکتروشیمیایی (در شرایط مشابه) مورد ارزیابی قرار گرفت (شکل ۷). همان‌طور که مشاهده می‌شود راندمان حذف فنل در سیستم‌های الکتروشیمیایی، بیولوژیکی و بیوالکتروشیمیایی به ترتیب برابر با ۹٪، ۴۷٪ و ۱۰۰٪ حاصل گردید.



شکل ۷. سهم هر یک فرآیندهای بیولوژیکی / الکتروشیمیایی / بیوالکتروشیمیایی در راکتور مورد بررسی

بحث و نتیجه‌گیری

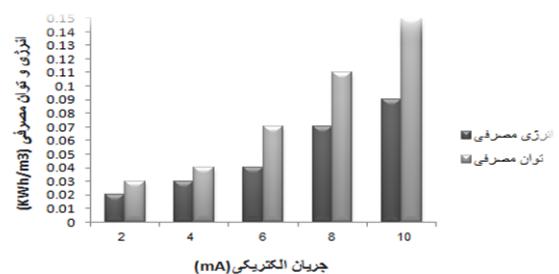
در پژوهش حاضر، قابلیت اکسیداسیون فنل با کاربرد الکترود استیل اسفنجی (steel wool) و ایجاد زنجیره انتقال الکtron با قرار دادن کاتد مناسب (کربن پارچه‌ای) بدون کاربرد غشا و الکترودهای اصلاح شده در سیستم بیوالکتروشیمیایی مورد بررسی قرار گرفت. الکترودهای استیل اسفنجی و کربن پارچه‌ای مورد استفاده در این بیوراکتور، بستر مناسبی برای چسبیدن و رشد بیوفیلم بود. ماهیت، ساختار و رسانایی بالای الکترود آند (استیل اسفنجی) می‌تواند نقش مهمی در انتقال الکtron، استقرار جرم سلولی و دستیابی به راندمان بالای حذف فنل داشته باشد. هم‌چنین، مطالعات انجام شده نشان داد که کاربرد الکترود کربن پارچه‌ای در دانسیته توان 0.844 A/m^3 و 0.712 W/m^3 راندمان بالای حذف هم‌زمان کربن و نیتروزن را حاصل می‌سازد [۲۳]. همان‌طور که در شکل ۲ مشاهده گردید امکان دستیابی به حذف کامل فنل در دوره زمانی ۱۰ ساعت در C/N برابر با ۵ فراهم بود. در حقیقت افزایش نسبت C/N و غلظت فنل موجب گردیده که میکروارگانیسم‌های موجود در

زمان واکنش (h) و $V = \text{حجم فاضلاب تصفیه شده (L)}$ می‌باشد.

$$\text{مقدار توان مصرفی نیز از معادله ۲ محاسبه شد:}$$

$$\text{معادله ۲: } EC = \frac{V/t}{\Delta COD \times V}$$

که در این رابطه، $E = \text{توان مصرفی (W)}$ ؛ $v = \text{ولتاژ اعمال شده}$ ؛ $I = \text{شدت جریان (A)}$ ؛ $t = \text{زمان واکنش (h)}$ ؛ $V = \text{حجم فاضلاب تصفیه شده (L)}$ و $\Delta COD = \text{مقدار نهایی COD می‌باشد. شکل ۶، مقادیر انرژی و توان مصرفی را در بیوراکتور الکتروشیمیایی مورد مطالعه نشان می‌دهد.}$ مقدار انرژی و توان مصرفی سیستم به ترتیب در محدوده $0.014 - 0.010 \text{ KWh/m}^3$ و $0.023 - 0.020 \text{ میلیون جریان وولت (mV)}$ محاسبه گردید. همان‌گونه که مشاهده می‌گردد مقدار انرژی مصرفی به شدت جریان‌های اعمالی و مقدار ولتاژ در بازه زمانی در نظر گرفته شده بستگی دارد و با افزایش مقدار جریان و ولتاژ مصرفی، همان‌گونه که مشاهده می‌گردد مقدار انرژی مصرفی به شدت جریان‌های اعمالی و مقدار ولتاژ در بازه زمانی در نظر گرفته شده بستگی دارد و با افزایش مقدار جریان و ولتاژ مصرفی، افزایش می‌یابد. مقدار توان مصرفی بیوراکتور مورد مطالعه نیز با توجه به شرایط راهبری سیستم با افزایش جریان و ولتاژ مصرفی افزایش یافت.



شکل ۶. میزان انرژی و توان مصرفی در سیستم بیوالکتروشیمیایی مورد مطالعه ($T=26^\circ\text{C}$, $\text{pH}=7$, $\text{C}_0=250 \text{ mg/L}$)

مطالعه سهم هر یک فرآیندهای بیولوژیکی / الکتروشیمیایی / بیوالکتروشیمیایی در بیوراکتور مورد مطالعه به منظور بررسی سهم هر یک از فرآیندهای بیولوژیکی / الکتروشیمیایی / بیوالکتروشیمیایی در کارایی حذف فنل و مطالعه تاثیر سیستم ترکیبی بیوالکتروشیمیایی، دو سیستم

میزان مصرف انرژی الکتریکی، جریان 2 mA به عنوان جریان مناسب به منظور ایجاد تحریک باکتریایی در نظر گرفته شد. در مطالعه حاضر، انرژی و توان مصرفی در بیوراکتور الکتروشیمیایی، با سایر فرآیندهای بر پایه الکتروشیمی مقایسه گردید. مقادیر محاسبه شده در پژوهش حاضر نسبت به مطالعه انجام گرفته توسط El-Ashtoukhy و همکاران با کاربرد روش انعقاد الکتریکی [۳] و مصرف انرژی $16/32 \text{ kWh/g}$ و میزان بسیار کمتری را دارا بود. El-Ashtoukhy و همکاران، به منظور کاهش مقدار انرژی مصرفی در فرآیند حذف فل، غلظت کلرید سدیم را تا مقادیر 1 g/L (در شرایط بهینه) افزایش دادند در حالی که در مطالعه حاضر با کاربرد غلظت $0/2\text{ g/L}$ کلرید سدیم حذف کامل فل حاصل گردید. همان‌طور که در نمودار ۶ مشاهده گردید راندمان حذف فل در سیستم‌های کنترلی بیوالکتروشیمیایی شامل سیستم الکتروشیمیایی و بیولوژیکی، به ترتیب برابر با 9% و 47% بود که نشان‌دهنده کارایی و عمل کرد بسیار مطلوب فرآیند تلفیقی بیوالکتروشیمیایی به منظور حذف فل می‌باشد. Ailijiang و همکاران، میزان تجزیه بیولوژیک توسط بیوفیلم‌های با حامل‌های رسانا را در زمان واکنش 10 ساعت و جریان 2 میلی‌آمپر $80-91\%$ گزارش کردند. رسانا بودن حامل‌های بیوفیلم باعث انتقال جریان مستقیم و تحریک رشد بیوفیلم گردید [۱]. این امر می‌تواند علت کارایی مناسب الکترودهای دارای رسانایی بالا مانند استیل اسفنجی (در مطالعه حاضر) باشد. بررسی حذف فل با به کارگیری فرآیند بیولوژیکی با استفاده از راکتور ناپیوسته بستر متحرک (MSBR) نشان داد که راندمان حذف در میزان بارگذاری $83/4 \text{ g m}^{-3} \text{ h}^{-1}$ فل، به میزان 28% بود [۲۸]. همچنین گزارش گردید فرآیند اکسیداسیون الکتروشیمیایی فل با استفاده از الکترود Ti/PbO_2 در دمای 50°C با اختلاف پتانسیل 5 ولت در $\text{pH}=2$ ، قادر به حذف کامل فل با غلظت 250 mg/L می‌باشد [۲۹]. در مطالعه‌ای دیگر، کاربرد 12 درصدی کاتالیست Mn منجر به تجزیه و تبدیل 70% فل گردید [۲۰]. این در حالی است که در پژوهش حاضر، بیوراکتور الکتروشیمیایی مورد

بیوراکتور محصولات محلول میکروبی (SMPs) را ترشح و انتقال جریان و حذف ترکیب از سیستم افزایش یابد [۲۴]. اما در نسبت‌های بالاتر از مقدار بهینه، فل به عنوان یک آلاینده اثر مهارکنندگی و سمیت بر روی میکروارگانیسم‌های موجود در سیستم داشته و کارایی انتقال الکترون کاهش یافت. بنابراین راندمان سیستم در نسبت $\text{C/N}=6$ و غلظت فل 300 mg/L در بازه زمانی 10 ساعته کاهش یافت. اکسیداسیون و تجزیه فل در آند (به عنوان دهنده الکترون) موجب بروز تغییراتی در هدایت الکتریکی محلول گردید که در نمودار 3 به شکل نوساناتی طی دوره زمانی مورد آزمایش مشاهده شد. با توجه به نمودار 4 افزایش جریان الکتریکی از مقدار 2 mA به 6 mA (ولتاژ مصرفی $1/27$ تا $0/97$) موجب بهبود کارایی تجزیه بیولوژیکی فل از 65% به 96% گردید. این بدان علت است که اعمال جریان الکتریکی در محدوده $2-6\text{ mA}$ موجب تحریک رشد میکروارگانیسم‌های فعال در سیستم شده که بهبود عمل کرد و افزایش راندمان را موجب گردیده است. افزایش جریان به مقادیر بالاتر (8 mA), به دلیل ایجاد اثر نامطلوب بر سیستم، ریزش بیوفیلم و کاهش رشد میکروبی موجب کاهش راندمان حذف گردید. مطالعات انجام شده نیز نشان‌دهنده افزایش فعالیت باکتریایی در جریان‌های اعمالی پایین بود [۲۵]. همچنین گزارش گردید که جریان پایین الکتریکی، در تغییر ترکیب غشا و فعالیت متابولیکی باکتری اثرات منفی نداشت [۲۶]. در سیستم مورد مطالعه، ونشاز اعمالی جهت تحریک رشد میکروبی (در جریان بهینه) مقدار کمی را دارا بود. این امر به دلیل رسانایی بالای الکترودهای مورد استفاده به عنوان آند و کاتد بود که انتقال الکترونی بین الکترودها و جمعیت میکروبی سیستم را افزایش داد [۱]. همچنین خالص نبودن جمعیت میکروبی در سیستم مورد پژوهش و کاربرد مخلوط میکروبی، باعث افزایش راندمان در مدت زمان کوتاه شد که مطابق با مطالعه Cheela و همکاران بود [۲۷]. با توجه به دستیابی به حذف کامل فل طی زمان واکنش 6 ساعت، در جریان اعمالی 2 mA و با در نظر گرفتن

[2] Bruce RM, Santodonato J, Neal MW. Summary review of the health effects associated with phenol. *Toxicol Ind Health* 1987; 3: 535-368.

[3] El-Ashoutkhy E, El-Taweel Y, Abdelwahab O, Nassem E. Treatment of petrochemical wastewatercontaining phenolic compounds by electrocoagulation using a fixed bed electrochemical reactor. *Int J Electrochem Sci* 2013; 8: 1534-1550.

[4] Al-Khalid T, El-Naas MH. Aerobic biodegradation of phenols: a comprehensive review. *Crit Rev Environ Sci Technol* 2012; 42: 1631-1690.

[5] Yadav DK, Joshi A, Harjit J. Determination of Phenolic Compounds in Vegetables by Spectrophotometric Method. *Environments* 2016; 16: 17.

[6] Senthivelan T, Kanagaraj J, Panda RC, Mandal A. Biodegradation of phenol by mixed microbial culture: an eco-friendly approach for the pollution reduction. *Clean Technol Environ Policy* 2014; 16: 113-126.

[7] Rozich AF, Colvin RJ. Effects of glucose on phenol biodegradation by heterogeneous populations. *Biotechnol Bioeng* 1986; 28: 965-971.

[8] Basha KM, Rajendran A, Thangavelu V. Recent advances in the biodegradation of phenol: a review. *Asian J Exp Biol Sci* 2010; 1: 219-234.

[9] Gregory KB, Lovley DR. Remediation and recovery of uranium from contaminated subsurface environments with electrodes. *Environ Sci Technol* 2005; 39: 8943-8947.

[10] Wick LY, Shi L, Harms H. Electro-bioremediation of hydrophobic organic soil-contaminants: A review of fundamental interactions. *Electrochim Acta* 2007; 52: 3441-3448.

[11] Jiang L, Ruan Q, Li R, Li T. Biodegradation of phenol by using free and immobilized cells of *Acinetobacter* sp. BS8Y. *J Basic Microbiol* 2013; 53: 224-230.

[12] Bajracharya S, Sharma M, Mohanakrishna G, Benneton XD, Strik DP, Sarma PM, et al. An overview on emerging bioelectrochemical systems (BESs): Technology for sustainable electricity, waste remediation, resource recovery, chemical production and beyond. *Renewable Energy*. 2016.

[13] Hamelers HV, Ter Heijne A, Sleutels TH, Jeremiassen AW, Strik DP, Buisman CJ. New applications and performance of bioelectrochemical systems. *Appl Microbiol Biotechnol* 2010; 85: 1673-1685.

[14] Liu S, Song H, Wei S, Liu Q, Li X, Qian X. Effect of direct electrical stimulation on decolorization and degradation of azo dye reactive brilliant red X-3B in biofilm-electrode reactors. *Biochem Engin J* 2015; 93: 294-302.

[15] She P, Song B, Xing X-H, Van Loosdrecht M, Liu Z. Electrolytic stimulation of bacteria *Enterobacter* dissolvens by a direct current. *Biochem Engin J* 2006; 28: 23-29.

[16] Friman H, Schechter A, Nitzan Y, Cahan R. Phenol degradation in bio-electrochemical cells. *Int Biodeter Biodegrad* 2013; 84: 155-160.

[17] Mashkour M, Rahimnejad M. Effect of various carbon-based cathode electrodes on the performance of microbial fuel cell. *Biofuel Res J* 2015; 2: 296-300.

[18] Frackowiak E, Beguin F. Carbon materials for the electrochemical storage of energy in capacitors. *Carbon* 2001; 39: 937-950.

[19] Mousavi S, Ibrahim S, Aroua MK, Ghafari S. Development of nitrate elimination by autohydrogenotrophic bacteria in bio-electrochemical reactors—A review. *Biochem Engin J* 2012; 67: 251-264.

[20] Zeyoudi M, Altenaiji E, Ozer LY, Ahmed I, Yousef AF, Hasan SW. Impact of continuous and intermittent supply of electric field on the function and

مطالعه، قادر به حذف کامل غلظت مشابه فنل در دمای 26 ± 1 درجه سانتی‌گراد، اختلاف پتانسیل بسیار کمتر و pH حدود ۸ می‌باشد.

در مجموع می‌توان چنین نتیجه‌گیری کرد که کاربرد سیستم‌های بیوالکتروشیمیایی (به منظور حذف آلاینده‌ها با تلفیقی از تصفیه بیولوژیکی و الکتروشیمی) نه تنها جریان بالای برق مصرفی در روش الکتروشیمی و زمان طولانی خودهی و کارایی کمتر سیستم‌های بیولوژیکی (در شرایط مشابه) را ندارد بلکه می‌توان با انرژی و توان مصرفی کمتر و حتی در مواردی تولید انرژی در سیستم، در عین دستیابی به راندمان مطلوب تصفیه، هزینه‌های فرآیند تصفیه را کاهش داد. البته این در حالی است که در سیستم مورد استفاده، الکترودهای گران‌قیمت و اصلاح شده به کار برده نشود. در مطالعه انجام شده به منظور حذف آلاینده‌های کلردار با استفاده از فرآیندهای ترکیبی همراه با تکنولوژی الکتروشیمی کاربرد الکترودهای گران‌قیمت و با عمل کرد کوتاه‌مدت گزارش گردید [۳۰]. آزمایشات انجام شده نشان‌دهنده کارایی موثر بیوراکتور الکتروشیمیایی دارای الکترودهای استیل اسفنجی و کربن پارچه‌ای به دلیل رسانایی بالای الکترودها، دارا بودن سطح موثر بیشتر جهت تشکیل بیوفیلم، کاهش دانسیته جریان مورد بهره‌برداری و انرژی مصرفی به منظور حذف فنل از محیط‌های آبی بود. کارایی این راکتور می‌تواند برای حذف سایر ترکیبات آلی دیر تجزیه پذیر نیز مورد بررسی قرار گیرد.

تشکر و قدردانی

بدین وسیله مراتب تشکر و قدردانی خود را از گروه مهندسی بهداشت محیط دانشکده علوم پزشکی دانشگاه تربیت مدرس اعلام می‌نماییم.

منابع

[1] Ailijiang N, Chang J, Liang P, Li P, Wu Q, Zhang X, Huang X. Electrical stimulation on biodegradation of phenol and responses of microbial communities in conductive carriers supported biofilms of the bioelectrochemical reactor. *Bioresour Technol* 2016; 201: 1-7.

- [26] Acuña AJ, Pucci OH, Pucci GN. Electrobioremediation of hydrocarbon contaminated soil from patagonia argentina. *New Technol Oil Gas Industry* 2012; p: 29-48.
- [27] Cheela SV, Kumar SG, Padma D, Subbarao CV. Biodegradation of phenol using pure and mixed Culture Bacteria. 2015.
- [28] Moussavi G, Mahmoudi M, Barikbin B. Biological removal of phenol from strong wastewaters using a novel MSBR. *Water Res* 2009; 43: 1295-1302.
- [29] Saratale RG, Hwang KJ, Song JY, Saratale GD, Kim DS. Electrochemical oxidation of phenol for wastewater treatment using Ti/PbO₂ electrode. *J Environ Engine* 2015; 142: 04015064.
- [30] Cong VH, Sakakibara Y, Komori M, Kishimoto N, Watanabe T, Mishima I, et al. Recent developments in electrochemical technology for water and wastewater treatments. *J Water Environ Technol* 2016; 14: 25-36.
- microbial community of wastewater treatment electro-bioreactors. *Electrochimica Acta* 2015; 181: 271-279.
- [21] De Silva CL. Removal of Phenol from Oil/Gas Wastewater by Catalytic Supercritical Water Treatment: Ohio University; 2016.
- [22] Standard Methods for the Examination of Water and Wastewater. Twentieth ed 1995.
- [23] Sun H, Xu S, Zhuang G, Zhuang X. Performance and recent improvement in microbial fuel cells for simultaneous carbon and nitrogen removal: A review. *J Environ Sci* 2016; 39: 242-248.
- [24] Huang B, Feng H, Wang M, Li N, Cong Y, Shen D. The effect of C/N ratio on nitrogen removal in a bioelectrochemical system. *Bioresour Technol* 2013; 132: 91-98.
- [25] Olszanowski A, Piechowiak K. The use of an electric field to enhance bacterial movement and hydrocarbon biodegradation in soils. *Polish J Environ Stud* 2006; 15: 303-309.

Performance of bioelectrochemical process using steel wool and carbon cloth electrodes to remove phenol in the aquatic environment

Somayeh Dehghani (Ph.D Candidate), Abbas Rezaee (Ph.D)*, Zohreh Moghiseh (Ph.D Student), Batoul Mohebrad (Ph.D Candidate)

Dept. of Environmental Health Engineering, Faculty of Medical Sciences, Tarbiat Modares University, Tehran, Iran

(Received: 27 Sep 2016; Accepted: 19 Nov 2016)

Introduction: Phenolic compounds are industrial chemicals that they are interested in due to the many health and environmental concerns. The aim of this study was to examine bio-electrochemical system performance to remove phenol from synthetic wastewater using a carbon cloth (as a bio-cathode) and steel wool (as a bio - anode) electrodes with a fixed bed.

Materials and methods: The present study was an experimental study in laboratory scale. It was carried out in batch mode using 1literplexiglass reactor. After starting up the system, effective parameters on process efficiency, including the C/N ratio, initial phenol concentration, applied current and reaction time were evaluated. Also, electrical conductivity, pH and redox potential (EC /pH /ORP) were studied during the reaction.

Results: The results showed that with increasing the applied current from 2 mA to 6 mA (0.9 to 1.2 V), the bioelectrochemical degradation efficiency was promoted from 65% to 96.26%. The phenol removal was obtained 100% in C/N=5. The energy and power consumption were calculated 0.01- 0.14KWh/m³ and 0.02-0.23, respectively.

Conclusion: The experiments indicated the efficient removal of phenol in wastewater by electrochemical bioreactor using carbon cloth (as bio-cathode) and steel wool (as bio-anode) electrodes. This efficiency was due to the high bioelectrodes conductivity, more surface area for biofilm formation, operating current density and power consumption reduction. The performance of this reactor can also be considered to eliminate other biodegradable organic compounds.

Keywords: Bio-electrochemical process, Phenol, Bio-electrode, Carbon cloth, Steel wool

* Corresponding author. Tel: +98 21 82883575

rezaee@modares.ac.ir