

## ***Removal of High Concentrations of Phenol in Dual Chamber Microbial Fuel Cell***

Ramazan ali Dianati tilaki<sup>1</sup>,  
Morteza Ghalenoeei<sup>2</sup>,  
Masoumeh Eslamifar<sup>3</sup>

<sup>1</sup> Associate Professor, Department of Environmental Health, Faculty of Health, Mazandaran University of Medical Sciences, Sari, Iran

<sup>2</sup> MSc in Environmental Health Engineering, Faculty of Health, Mazandaran University of Medical Sciences, Sari, Iran

<sup>3</sup> PhD Student in Microbiology, Faculty of Medicine, Mazandaran University of Medical Sciences, Sari, Iran

(Received November 7, 2018 ; Accepted May 13, 2020)

### ***Abstract***

**Background and purpose:** Microbial fuel cell is one of the sustainable development technologies that can be used simultaneously for removal of many pollutants and generate electricity. The aim of this study was to determine the removal rate of high concentrations of phenol in a microbial fuel cell.

**Materials and methods:** A dual chamber microbial fuel cell having Nafion proton exchange membrane and carbon cloth as anode and cathode was fabricated and operated in batch mode in incubator at 30°C for 12 weeks. Anode was put in anaerobic chamber containing minimum growth medium and phenol (50-1000ppm) was added as the sole carbon source. Phenol degrading bacterial seed that was supplied by wastewater treatment plant of Tehran Petroleum Refinery was adapted to phenol and used in anaerobic anode chamber. Cathode was put in aerobic chamber containing phosphate buffer. Concentration of remained phenol in different times was analyzed by HPLC method.

**Results:** Maximum amount of phenol degradation occurred in the first 24h of each run. Phenol concentrations up to 800 ppm were completely removed during 96 h, but time to complete removal of 1000 ppm phenol was 120h.

**Conclusion:** By using sludge from wastewater treatment plant of oil refinery adapted to phenol in a microbial fuel cell, it is possible to remove 1000 ppm phenol.

**Keywords:** microbial fuel cell, degradation, phenol, sludge, oil refinery

**J Mazandaran Univ Med Sci 2020; 30 (185): 149-153 (Persian).**

\* Corresponding Author: Ramazan ali Dianati tilaki - Faculty of Health, Mazandaran University of Medical Sciences, Sari, Iran (E-mail: dianati.tilaki@gmail.com)

## حذف فنل در غلظت های زیاد در پیل سوختی میکروبی دو محفظه ای

رمضانعلی دیانته تیلکی<sup>1</sup>مر ترضی قلعه نوئی<sup>2</sup>معصومه اسلامی فر<sup>3</sup>

## چکیده

**سابقه و هدف:** پیل سوختی میکروبی در زمره تکنولوژی های مبتنی بر توسعه پایدار قرار دارد که می تواند هم زمان برای حذف بسیاری از آلاینده ها و تولید الکتریسیته مورد استفاده قرار گیرد. هدف از این تحقیق تعیین میزان حذف فنل در غلظت های زیاد در پیل سوختی میکروبی بود.

**مواد و روش ها:** یک پیل سوختی میکروبی دو محفظه ای مجهز به غشاء تبادل گر پروتون نفیونی و آند و کاتد از جنس پارچه کربنی ساخته شد و در انکوباتور دمای 30 درجه سانتی گراد به مدت 12 هفته به صورت جریان منقطع مورد بهره برداری قرار گرفت. آند در محفظه بی هوازی حاوی محیط کشت حداقل (ترکیبات معدنی) قرار گرفت و فنل به عنوان تنها منبع کربن در غلظت های 50 تا 1000 میلی گرم بر لیتر به آن اضافه شد. بذر باکتریائی تجزیه کننده فنل که از تصفیه خانه فاضلاب پالایشگاه نفت تهران تامین و به فنل آداپته شد و در محفظه آند بی هوازی پیل میکروبی استفاده شد. کاتد در محفظه هوازی حاوی بافر فسفات قرار گرفت. غلظت فنل باقیمانده در زمان های مختلف به وسیله دستگاه HPLC اندازه گیری شد.

**یافته ها:** حداکثر حذف فنل طی 24 ساعت اولیه هر مرحله از آزمایش اتفاق می افتاد. فنل در غلظت های تا 800 ppm طی 96 ساعت به طور کامل حذف شد. اما زمان لازم برای حذف کامل 1000 ppm فنل 120 ساعت بود. **استنتاج:** با استفاده از لجن تصفیه خانه فاضلاب پالایشگاه نفت خو یافته به فنل در پیل سوختی میکروبی، حذف فنل تا غلظت 1000 ppm امکان پذیر شد.

واژه های کلیدی: پیل سوختی میکروبی، تجزیه، فنل، لجن، پالایشگاه نفت

## مقدمه

میکروبی یافت نشده است. بررسی متون نشان دهنده جدید بودن تحقیقات انجام شده در این زمینه می باشد. در سال 2016 تصفیه فاضلاب پالایشگاه نفت حاوی فنل با غلظت 60 میلی گرم بر لیتر در پیل سوختی میکروبی مورد بررسی قرار گرفت و میزان حذف فنل تعیین شد (2).

فنل در غلظت های بیش از 100 میلی گرم بر لیتر به عنوان بازدارنده رشد میکروبی عمل می کند (1). تحقیقاتی در زمینه حذف فنل در پیل میکروبی انجام شده اما تاکنون تحقیقی در زمینه حذف غلظت های زیاد فنل با استفاده از باکتری های خو یافته پالایشگاه نفت در پیل

**مؤلف مسئول:** رمضانعلی دیانته تیلکی - ساری: کیلومتر 17 جاده فرح آباد، مجتمع دانشگاهی پیامبر اعظم، دانشکده بهداشت E-mail: dianati.tilaki@gmail.com

1. دانشیار، گروه بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی مازندران، ساری، ایران

2. کارشناسی ارشد مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی مازندران، ساری، ایران

3. دانشجوی دکتری میکروبیولوژی، دانشکده پزشکی، دانشگاه علوم پزشکی مازندران، ساری، ایران

تاریخ دریافت: 1397/7/16 تاریخ ارجاع جهت اصلاحات: 1397/7/30 تاریخ تصویب: 1399/2/24

در تحقیق دیگری در سال 2017، حذف فنل در محفظه آند پیل سوختی میکروبی در محدوده غلظت 6/5 تا 13 میلی گرم بر لیتر به عنوان تنها منبع کربن مورد بررسی قرار گرفت (3). حذف فنل در یک پیل سوختی میکروبی بررسی شد که در آن سوپرناتانت لجن فعال تصفیه خانه فاضلاب شهری به عنوان بذر میکروبی در محفظه آند مورد استفاده قرار گرفت. غلظت اولیه فنل در محفظه آند (جداگانه) 5 تا 500 میلی گرم بر لیتر بود، میزان حذف فنل در پیل میکروبی تعیین شد (4). در سال 2018 تجزیه زیستی فنل طی آزمایشات ناپیوسته و پیوسته در پیل میکروبی مورد بررسی قرار گرفت. باکتری مورد استفاده در محفظه آند سودوموناس بود و میزان حذف غلظت‌های مختلف فنل تعیین شد (5). در سال 2016، تجزیه زیستی فنل، زایلنول و کروزل از آب زیر زمینی آلوده در پیل میکروبی بررسی شد. آب زیرزمینی آلوده شده به فنل با غلظت 20 میلی گرم بر لیتر به محفظه آند اضافه شد. در محفظه کاتد آب فاقد آلودگی استفاده شد (6). تاثیر اثرات تشدید و تضعیفی باکتری‌های موجود در فاضلاب پالایشگاه نفت بر یکدیگر و بر کارائی پیل میکروبی در تصفیه فاضلاب پالایشگاه نفت (خروجی واحد شناور سازی) در پیل میکروبی مورد بررسی قرار گرفت (7). با توجه به عدم وجود تحقیق در زمینه کاربرد لجن تصفیه خانه فاضلاب پالایشگاه نفت در پیل میکروبی به منظور حذف فنل در غلظت‌های زیاد (تا 1000 میلی گرم بر لیتر)، این تحقیق صورت گرفت. هدف از این تحقیق، تعیین میزان حذف فنل در غلظت زیاد در پیل میکروبی دو محفظه‌ای غشائی با استفاده از لجن فاضلاب پالایشگاه نفت بود.

## مواد و روش‌ها

این مطالعه از نوع تجربی آزمایشگاهی می‌باشد. پیل میکروبی ساخته شده در این تحقیق از نوع دو محفظه‌ای و از جنس پلکسی گلس و حجم هر یک از محفظه‌های آند و کاتد 800 میلی لیتر بود. محفظه آند به صورت

سرپوش دار مجهز به یک دریچه کشویی جهت خوراک‌دهی و نمونه‌گیری ساخته شد. هوادهی محفظه کاتد به وسیله یک پمپ هوای آکواریوم انجام می‌شد. غشاء نفیون 117 به ابعاد  $7 \times 7$  سانتی متر برای جدا نمودن محفظه آند و کاتد مورد استفاده قرار گرفت. اکسیژن مورد نیاز در کاتد با تزریق هوا به وسیله یک پمپ هوای آکواریومی انجام می‌شد. بذر میکروبی از تصفیه خانه فاضلاب پالایشگاه نفت تهران اخذ شد. 100 میلی لیتر بذر میکروبی به 400 میلی لیتر محیط کشت حاوی نوترینت برات اضافه شد و با افزودن فنل به آن، غلظت فنل به 50 میلی گرم در لیتر رسید. سپس به مدت دو هفته روی هم‌زن مغناطیسی در انکوباتور دمای 30 درجه سانتی گراد قرار گرفت. در پریدهای زمانی 24 ساعته با افزودن فنل به محیط کشت، غلظت فنل در محیط کشت تا 200 میلی گرم بر لیتر افزایش داده شد. محیط کشت محفظه آند با ترکیب در یک لیتر شامل 100 میلی لیتر از مایع مخلوط مرحله دوم، سدیم اسنات 20 میلی مولار، بافر فسفات 0/1 مولار، فنل 200 میلی گرم بر لیتر، NaCl 5/84 گرم بر لیتر، 0/3 NH<sub>4</sub>Cl گرم بر لیتر و 0/1 KCl گرم بر لیتر تهیه شد. 600 میلی لیتر از محیط کشت مرحله سوم به محفظه آند اضافه شد و در سمت کاتد نیز 600 میلی لیتر محلول بافر فسفات 0/1 مولار با pH=7 اضافه شد (8). برای برقراری اختلاط کامل در محفظه آند از همزن مغناطیسی استفاده شد. در هر بار شارژ محفظه آند، با افزودن فنل غلظت آن به تدریج تا 1000 میلی گرم بر لیتر افزایش داده شد. برای تعیین میزان حذف فنل در دوره‌های زمانی مختلف، نمونه‌گیری از محفظه آند انجام می‌شد و مقدار فنل باقیمانده اندازه‌گیری می‌شد. نمونه‌ها به وسیله سرننگ مجهز به فیلتر 0/2 میکرون گرفته می‌شد. اندازه‌گیری فنل به وسیله دستگاه HPLC با استفاده از ستون C18، فاز متحرک حاوی بافر فسفات (pH برابر 7 و غلظت 20 میلی مولار) و استونیتریل به ترتیب به نسبت 60 و 40 در طول موج 280 نانومتر انجام شد (9).

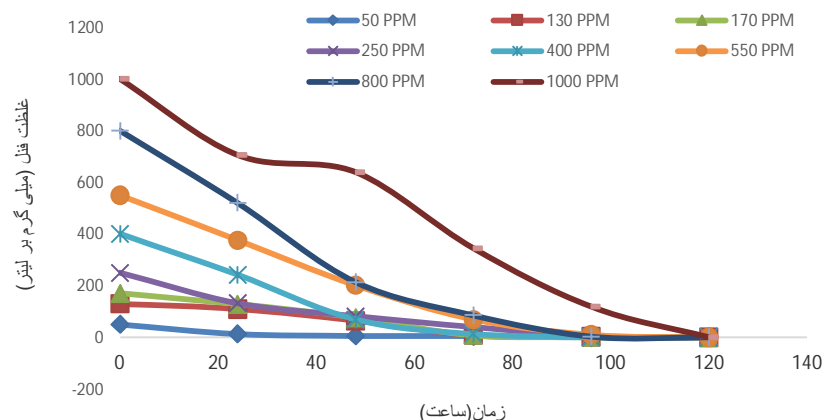
## یافته ها و بحث

در تصویر شماره 1، غلظت باقیمانده فنل بر حسب زمان در پیل میکروبی نشان داده شده است. فنل تا غلظت 800 ppm حداکثر طی 96 ساعت به طور کامل حذف شد. در غلظت 1000 ppm زمان لازم برای حذف کامل فنل 120 ساعت به دست آمد. حداکثر حذف فنل طی 24 ساعت اولیه در هر مرحله از آزمایش مشاهده شد. در تحقیقی که Srikanth و همکاران در سال 2016 به منظور تصفیه فاضلاب پالایشگاه نفت حاوی 60 ppm فنل در پیل میکروبی انجام دادند، بدون آدپتاسیون باکتری، حذف حدود 85 درصد از فنل حدود 45 روز طول کشید (2). در حالی که در تحقیق حاضر با استفاده از روش آدپت کردن باکتری به فنل طی چند مرحله حذف 1000 ppm فنل طی 5 روز صورت گرفت. در تحقیقی که در سال 2017 توسط Zhang و همکاران به منظور حذف فنل در پیل میکروبی انجام شد مشخص شد که برای حذف کامل 14 میلی گرم بر لیتر فنل در پیل میکروبی حدود 48 ساعت زمان لازم است (3). این در حالی است که در تحقیق حاضر با خو دادن باکتری های پالایشگاه نفت به فنل حذف غلظت های زیاد تا 1000 ppm در زمان 5 روز امکان پذیر شد. در تحقیقی که Luo و همکاران از پیل سوختی میکروبی برای حذف فنل استفاده کردند نتایج به دست آمده با این

مطالعه تطبیق داشته به طوری که راندمان تجزیه فنل به بالای 95 درصد در 60 ساعت رسیده بود (10).  
Ghangrekar و همکاران نیز در پژوهش خود به بازده 90 درصد حذف فنل دست یافتند (11).  
باکتری های خو یافته به فنل نقش به سزایی را به عنوان بیوکاتالیست زنده در پیل های سوختی میکروبی ایفا می نمایند. به طوری که استفاده از مخلوط باکتریایی در محفظه بی هوازی آند نشان داد این میکروارگانیسم ها توانایی بسیار خوبی جهت رشد در شرایط بی هوازی و تجزیه فنل به عنوان تنها منبع کربن را دارا می باشند. این میکروارگانیسم ها توانستند طی حدود 96 ساعت فنل موجود در سیستم را مصرف نمایند. برتری این روش در تصفیه پساب حاوی مواد سخت تجزیه پذیر و تولید انرژی به صورت همزمان بدون انتشار هیچ گونه ماده آلاینده دیگری می باشد.

## سپاسگزاری

نویسندگان مقاله مراتب تشکر خود را از معاونت محترم تحقیقات و فناوری دانشگاه علوم پزشکی مازندران به جهت حمایت مالی و تصویب طرح تحقیقاتی به شماره 2132 که مقاله حاضر (با کد اخلاق: IR.MAZUMS.REC.1397.213) از آن استخراج شده است اعلام می دارند.



تصویر شماره 1: حذف فنل در غلظت های مختلف در طی زمان

## References

1. Pradeep N, Anupama S, Navya K, Shalini H, Idris M, Hampannavar U. Biological removal of phenol from wastewaters: a mini review. *Appl Water Sci* 2015; 5(2): 105-112.
2. Srikanth S, Kumar M, Singh D, Singh M, Das B. Electro-biocatalytic treatment of petroleum refinery wastewater using microbial fuel cell (MFC) in continuous mode operation. *Bioresour Technol* 2016; 221: 70-77.
3. Zhang D, Li Z, Zhang C, Zhou X, Xiao Z, Awata T, et al. Phenol-degrading anode biofilm with high coulombic efficiency in graphite electrodes microbial fuel cell. *J Biosci Bioeng* 2017; 123(3): 364-369.
4. Wu H, Fu Y, Guo C, Li Y, Jiang N, Yin C. Electricity generation and removal performance of a microbial fuel cell using sulfonated poly (ether ether ketone) as proton exchange membrane to treat phenol/acetone wastewater. *Bioresour Technol* 2018; 260: 130-134.
5. Moreno L, Nemati M, Predicala B. Biodegradation of phenol in batch and continuous flow microbial fuel cells with rod and granular graphite electrodes. *Environ Technol* 2018; 39(2): 144-156.
6. Hedbavna P, Rolfe SA, Huang WE, Thornton SF. Biodegradation of phenolic compounds and their metabolites in contaminated groundwater using microbial fuel cells. *Bioresour Technol* 2016; 200: 426-434.
7. Guo X, Zhan Y, Chen C, Zhao L, Guo S. The influence of microbial synergistic and antagonistic effects on the performance of refinery wastewater microbial fuel cells. *J Power Sources* 2014; 251: 229-236.
8. Jafary T, Ghoreyshi AA, Najafpour GD, Fatemi S, Rahimnejad M. Investigation on performance of microbial fuel cells based on carbon sources and kinetic models. *Int J Energy Res* 2013; 37(12): 1539-1549.
9. Sambe H, Hoshina K, Hosoya K, Haginaka J. Direct injection analysis of bisphenol A in serum by combination of isotope imprinting with liquid chromatography-mass spectrometry. *Analyst* 2005; 130(1): 38-40.
10. Luo H, Liu G, Zhang R, Jin S. Phenol degradation in microbial fuel cells. *Chem Eng J* 2009; 147(2-3): 259-264.
11. Ghangrekar M, Shinde V, editors. Wastewater treatment in microbial fuel cell and electricity generation: a sustainable approach. 12<sup>th</sup> International sustainable development research conference; 2006 April 6-8; Hong Kong.