

## **METODE UKLANJANJA FENOLA IZ OTPADNE VODE**

*Vesna Teofilović<sup>1</sup>, Vladan Mičić<sup>2</sup>, Stefan Pavlović<sup>2</sup>, Milovan Jotanović<sup>2</sup>, Ivan Ristić<sup>1</sup>, Jaroslava Budinski-Simendić<sup>1</sup>, Nevena Vukić<sup>1</sup>*

**Izvod:** Fenol je jedan od glavnih polutanata u otpadnoj industrijskoj vodi. Utiče na zdravlje ljudi i taj uticaj se ispoljava kako posle kraćeg tako i posle dužeg prisustva. Za uklanjanje fenola iz otpadne vode koriste se metode kao što su adsorpcija, fotorazgradnja, isparavanje (volatilizacija) kao i biološke i nebiološke metode. U ovom radu daje se prikaz istraživanja o uklanjanju fenola različitim metodama kao što su polimerizacija, elektrokoagulacija, fotorazgradnja, unapređena oksidacija i jonska izmena. Izbor metode za uklanjanje fenola može biti učinjen na osnovu raspoloživog materijala, zahtevanog intenziteta prečišćavanja i osobina fenolnog efluenta.

**Key words:** fenol, efluent, koncentracija, enzim, adsorbent

### **Uvod**

Razvoj tzv. zelene i održive tehnologije za tretman efluenta je veoma važna oblast istraživanja u sadašnjoj eri industrijskog i društvenog razvoja. Jedan od velikih zagađivača kome se poklanja izuzetna pažnja je svakako fenol. Prisutan je u efluentu najvećeg broja procesa hemijske i farmaceutske industrije. Javlja se kao zagađivač otpadnih voda u petrohemijskoj industriji, preradi i proizvodnji nafte, procesima gasifikacije uglja, procesu likvefakcije, proizvodnji smola, sintezama odnosno dobijanju boja, dobijanju papira i celuloze. Prisustvo fenola kod čoveka izaziva kiselost u ustima, dijareju, slabljenje vida, izlučivanje tamnog urina. Kada je prisutan u vodi ima toksičan efekat po vodeni svet. Smrtonosna koncentracija fenola u krvi iznosi oko 150 mg/100 mL. Različiti procesi korišćeni su za uklanjanje i/ ili vraćanje fenola i to su stripovanje sa zagrejanim (toplim) gasovima ili parom, adsorpcija, jonska izmena, ekstrakcija rastvaračem, oksidacija, fazni prenos katalizatora, biološki tretman.

### **Metode za uklanjanje fenola**

#### *Polimerizacija*

Wilberg i sar. (2000) su istraživali uklanjanja fenola metodom polimerizacije. Uklanjanje fenola su vršili reakcijom polimerizacije u prisustvu enzima renperoksida. Prirodni enzim (E) je oksidovan sa peroksidom (H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>) na aktivnom enzimskom položaju. Aromatska jedinjenja su oksidovala na aktivnom položaju enzima. Kao posledica procesa oksidacije dobijeni su slobodni radikali koji su se oslobađali u rastvoru ostavljajući enzim u stanju jedinjenja. Ovo jedinjenje je dalje oksidovalo drugi

---

<sup>1</sup>Univerzitet u Novom Sadu, Tehnološki fakultet Novi Sad, Novi Sad, Srbija (vesnateofilovic@uns.ac.rs)

<sup>2</sup>Univerzitet u Istočnom Sarajevu, Tehnološki fakultet Zvornik, Zvornik, Republika Srpska, Bosna i Hercegovina

aromatični molekul, oslobađajući drugi slobodan radikal i vraćajući enzim u njegovo prirodno stanje usled čega se ciklus zaokruživao. Slobodni radikali formirani za vreme ciklusa difunduju iz enzima u glavni rastvor gde oni reaguju formirajući poliaromatične produkte. Ovi polimeri su nerastvorni u vodi i mogu biti uklonjeni sa operacijama čvrsto – tečno. Mora se pronaći kompromis između smanjenja varijabilnih troškova korišćenjem nekoliko enzima i povećanja investicionih troškova za objekte u kojima će se vršiti tretman. Uticaj ren-peroksidaze i koncentracije  $H_2O_2$  na efikasnost uklanjanja fenola, definisan kao procenat uklonjenog fenola iz rastvora u zavisnosti od vremena istraživan je od Vasudevana i Lia (1996). Oni su našli da se fenol gotovo potpuno istaloži nakon 10 minuta. Efikasnost uklanjanja povećava se sa povećanjem koncentracije renperoksidaze. Nicell i saradnici (1996) su izvršili polimerizaciju fenola i njegovo taloženje korišćenjem polietilen glikola kao aditiva. Rezultati date studije su pokazali značajno produženje života katalizatora u prisustvu polietilen glikola i u šaržnom i u protočnom reaktoru.

#### *Elektrokoagulacija kao metoda za uklanjanje fenola*

Metoda koja se koristi za uklanjanje fenola je i Elektro-koagulacija. Abdelvhab i saradnici (2009) su izvršili istraživanje elektrohemijskog uklanjanja fenola iz otpadnog rafinerijskog ulja. Oni su proučavali mogućnost korišćenja elektro-koagulacije za uklanjanje fenola. Koristili su ćeliju sa horizontalno orijentisanom aluminijumskom katodom i horizontalnom aluminijumskom rešetkastom anodom. Ispitali su uticaj različitih parametara kao što je pH vrednost, vreme rada, gustina struje, početna koncentracija fenola i dodatak NaCl na efikasnost uklanjanja fenola. Zaključili su da je uklanjanje fenola tokom elektro-koagulacije bilo prouzrokovano kombinovanim uticajem koagulacije i adsorpcije. Pri visokoj gustini struje i vrednosti  $pH = 7$  postignuta je visoka efikasnost uklanjanja fenola tako da se pri datim uslovima 97% fenola uklanja već posle 2 sata. Abdelvhab i saradnici su zabeležili da brzina elektro-koagulacije raste sa smanjenjem koncentracije fenola i maksimalna brzina uklanjanja je postignuta pri koncentraciji fenola od 30 mg/L.

#### *Ekstrakcija kao metoda za uklanjanje fenola*

Ekstrakcija je takođe metoda koja se koristi za uklanjanje fenola iz otpadnih voda. Ekstrakcija fenola iz simuliranih otpadnih voda sebacinske kiseline pokušana je od strane Raoa i saradnika (2009). Oni su koristili 1 – heksanol, 1 – heptanol i 1 – oktanol kao rastvarače za uklanjanje fenola. Xu i saradnici (2006) su izvršili istraživanje ekstrakcije fenola iz otpadnih voda korišćenjem koturastih centrifugalnih kontraktora. Oni su izvršili eksperimentalno ispitivanje otpadne vode koja sadrži fenol sa QH-1 ekstraktantom (smeša amina) i koturastim centrifugalnim kontraktorima. Zabeležili su da je brzina ekstrakcije u trostepenoj kaskadi bila veća od 99%. Kada je 15% NaOH korišteno za stripovanje fenola sa QH – 1 ekstraktantom, efikasnost stripovanja trostepene kaskade bila je viša od 99% pod datim eksperimentalnim uslovima.

*Fotorazgradnja kao metoda za uklanjanje fenola*

Fotorazgradnja je jedna od proučavanih metoda za uklanjanje fenola iz otpadnih voda. Istraživanje fotorazgradnje fenola u blizini UV zračenih vodenih  $\text{TiO}_2$  suspenzija izvršeno je od strane Ilisza i saradnika (1999). Oni su istraživali uticaj naelektrisanja preklapajućih vrsta na kinetiku razgradnje fenola. Zapazili su da se heterogenom degradacijom fenola kinetikom nultog reda postiže konverzija preko 70%. Rezultati eksperimenata u prisustvu  $\text{Ag}^+$  jona ukazali su da fototransformacija fenola može da se nastavi preko direktnog prenosa elektrona pri čemu niti rastvoreni kiseonik niti njegov redukovani oblik neigraju značajnu ulogu u mehanizmu degradacije. Akbal i Onar (2003) su proučavali fotokatalitičku degradaciju fenola. Oni su izvršili istraživanje fotokatalitičke degradacije fenola u prisustvu katalizatora  $\text{TiO}_2$  ozračenog UV zracima i  $\text{H}_2\text{O}_2$ .

*Biološke metode za uklanjanje fenola*

Marot i saradnici (2006) su izvršili istraživanje biodegradacije fenola visoke koncentracije sa aktivnim muljem u "bioreaktoru sa uronjenim membranama". Ispitali su uticaj prilagođavanja mešane kulture na degradaciju fenola. Ustanovili su da je biološki tretman bio ekonomičan i praktičan za uklanjanje fenola. Bevilagua i saradnici (2002) su koristili biološki i enzimski postupak za uklanjanje fenola. Proučavani sistemi su bili uobičajeni šaržni sistemi sa biološko aerobnim postupkom kojem je prethodio ili posle kojeg je sledio enzimski tretman. Oni su upotreбили *Tyrosinase* kao enzim. Kao jedan od zaključaka njihovog istraživanja bio je taj da se biološkim tretmanom efikasno uklanja fenol do koncentracije od 420 mg/L. Pradeep (2011) je ispitivao uklanjanje fenola korišćenjem rotirajućih bioloških kontraktora. Ispitali su uticaj procesnih varijabli koncentracije, brzine rotacije i procenta potopljenosti diska na uklanjanje fenola.

*Unapređeni oksidacioni procesi*

Rubalcaba i saradnici (2007) su koristili unapređene procese oksidacije zajedno sa biološkim tretmanom za remedijaciju fenola. Dobijeni rezultati ovog istraživanja su dali nadu za efikasan tretman otpadnih voda koje sadrže toksična ili biološki ne degradabilna jedinjenja datim postupkom. Slična istraživanja su izvršena i od strane Esplugasa i saradnika (2002). Iako se Fenton reagens pokazao najefikasnijim za uklanjanje fenola ozonizacija je bila jeftinija. Najbolji rezultati su dobijeni sa jednostepenom ozonizacijom. Siedlecka i Stepnowski (2005) su vršili uklanjanje fenola u prisustvu hlorida i sulfata. Oni su proučavali degradaciju tri fenolna jedinjenja: fenola, 2-hlorfenola i 2 – nitrofenola. Roostaei i Tezel (2004) su sproveli eksperimente u cilju ispitivanja adsorpcije fenola iz otpadne vode pomoću silika gela, aktivirane glinice i aktivnog uglja. Eksperimenti su urađeni u cilju analize kapaciteta adsorpcije i kinetike. Njihovi rezultati su upućivali na zaključak da se radi o obećavajućoj metodi za uklanjanje fenola. Uklanjanje fenola iz vodenog rastvora polimernih smola adsorpcijom i mehanizmima jonske razmene vršeno je od strane Caetana i saradnika (2009). Sultani i

saradnici (2012) su izvršili istraživanje karakterizacije uklanjanja fenola iz vodenih rastvora u koloni sa fluidizovanim slojem sa ljuskom od pirinča kao adsorbentom. Kulkarni i saradnici su istraživali uklanjanje fenola iz efluenta pri šaržnom procesu korišćenjem aktivnog uglja u fluidizovanom sloju. U šaržnim procesima oni su proučavali uticaj doziranja adsorbenta, pH i veličine čestica na brzinu adsorpcije. Sorour i saradnici (2006) su ispitali primenu reaktora sa pakovanim slojem za uklanjanje fenola. Proučavanje šaržnog procesa u koloni za uklanjanje fenola pomoću nano gvožđe oksida i alginatnim mikrosferama izvršeno je od strane Sonija i saradnika (2012).

### Zaključak

Mnogi biološki i nebiološki procesi za uklanjanje fenola kao što su polimerizacija, elektro koagulacija, ekstrakcija, fotodekompozicija, proces unapređene oksidacije i adsorpcija su proučavani od strane mnogobrojnih istraživača. Pri optimalnim uslovima efikasnost polimerizacije fenola od oko 90% bila je zabeležena. Uklanjanje fenola tokom procesa elektrokoagulacije bila je u saglasnosti sa kombinovanim uticajem koagulacije i adsorpcije. Sa korišćenjem elektrofenton procesa efikasnost uklanjanje od 96% je postignuta. Operacija adsorpcije sa različitim adsorbentima je takođe jedna od alternativnih metoda primenjenih za uklanjanje fenola iz otpadnih voda. Prednost ove metode ogleda se u širokoj primenljivosti raspoloživih adsorbenata. Na osnovu pregleda datih istraživanja zaključuje se da je adsorpcija jedna od najšire izučavanih operacija za uklanjanje fenola iz otpadnih voda.

### Literatura

Abdelwahab O., Amin N., Ashtouky E. (2009). Electrochemical removal of phenol from oil refinery wastewater. *Journal of Hazardous Materials*. 163: 711-716.

Akbal F., Onar A. N. (2003). Photocatalytic Degradation of Phenol. *Environmental Monitoring and Assessment*. 83: 295-302.

Bevilaqua J. V., Cammarota M. C., Freire D. M. G. (2002). Phenol removal through combined biological and enzymatic treatments. *Brazilian Journal of Chemical Engineering*. 19: 15 – 22.

Caetano M., Valderrama C., Farran A., Cortina J. L. (2009) Phenol removal from aqueous solution by adsorption and ion exchange mechanisms onto polymeric resins. *Journal of Colloid and Interface Science*. 338: 402–409.

Esplugas S., Giménez J., Contreras S., Pascual E., Rodríguez M. (2002). Comparison of different advanced oxidation processes for phenol degradation. *Water Research*. 36: 1034– 1042.

Ilisz I., László Z., Dombi A. (1999). Investigation of the photodecomposition of phenol in near-UV-irradiated aqueous TiO<sub>2</sub> suspensions. I: Effect of charge-trapping species on the degradation kinetics. *Applied Catalysis A*. 180: 25–33.

Marrot B., Martinez B., Moulin P., Roche N. (2006). Biodegradation of high phenol concentration by activated sludge in an immersed membrane bioreactor. *Biochemical Engineering Journal*. 30: 174–183.

Movahedyan H., Khorsandi H., Salehi R., Nikaeen M. (2009). Detection of phenol degrading bacteria and *Pseudomonas putida* in activated sludge by polymerase chain reaction. *Iranian Journal of Environmental Health Science & Engineering*. 6: 115-120.

Nicell J. A., Saadi K.W., Buchanan I. D. (1995). Phenol polymerization and precipitation by horseradish peroxidase enzyme and an additive. *Bioresource Technology*. 54: 5–16.

Pradeep N.V, Hampannavar. U.S. (2011). Biodegradation of Phenol using Rotating Biological Contactor. *International journal of environmental sciences*. 2: 105-113.

Rao N. N., Singh J. R., Mishra R., Nandi T. (2009). Liquid liquid extraction of phenol from simulated sebacic acid wastewater. *Journal for Scientific and Industrial Research*, 68: 823-829.

Roostaei N., Tezel F. H. (2004). Removal of phenol from aqueous solutions by adsorption. *Journal of Environmental Management*. 70:157-164.

Rubalcaba A., Sua´rez-Ojeda M. E., Stuber F., Fortuny A., Bengoa C., Metcalfé I., Font J., Carrera J., Fabregat A. (2007). Phenol wastewater remediation: advanced oxidation processes coupled to a biological treatment. *Water Science & Technology*, 55: 221–227

Siedlecka E. M., Stepnowski P. (2005). Phenols Degradation by Fenton Reaction in the Presence of Chlorides and Sulfates. *Polish Journal of Environmental Studies*. 14: 823-828.

Soni A., Tiwari A., Bajpai A. K. (2012). Adsorption of o-nitrophenol onto nano iron oxide and alginate microspheres: Batch and column studies. *African Journal of Pure and Applied Chemistry*. 6:161-173

Sorour M. T., Abdelrasoul F., Ibrahim W.A. (2006). Application of adsorption packed-bed reactor model for phenol removal. *Tenth International Water Technology Conference, Alexandria, Egypt*: 131-135

Sultani A., Kadhim F., Seroury F.A. (2012). Characterization the Removal of Phenol from Aqueous Solution in Fluidized Bed Column by Rice Husk Adsorbent. *Research Journal of Recent Sciences*. 1:145-151

Vasudevan P. T., Lee L. O. (1996). Peroxidase catalyzed polymerization of phenol. *Biotechnology*. 60:73-82.

Wilberg, K.Q., Nunes, D.G., Rubio, J. (2000). Removal of phenol by enzymatic oxidation and flotation. *Brazilian Journal of Chemical Engineering*. 17: 907-914.

Xu J., Wu H. D., Xiu Z. Z., Jia Z. Z. (2006). Extraction of phenol in wastewater with annular centrifugal contactors. *Journal of Hazardous Materials*. 131:98–102.

## METHODS FOR REMOVAL OF PHENOL FROM WASTEWATER

*Vesna Teofilović<sup>1</sup>, Vladan Mičić<sup>2</sup>, , Stefan Pavlović<sup>2</sup>, Milovan Jotanović<sup>2</sup>, Ivan Ristić<sup>1</sup>, Jaroslava Budinski-Simendić<sup>1</sup>, Nevena Vukić<sup>1</sup>*

### Abstract

Phenol is a major pollutant in the wastewater because of its presence in the effluent of major processing and refining plants. It has severe effect on human being, both short term and long term. Various methods are used for removal of the phenol from wastewater such as adsorption, photodecomposition, volatilization and other various biological and non-biological methods. In the present study attempt is done to present the survey of the research on the phenol removal by various methods. The methods such as polymerization, electrocoagulation, extraction, photodecomposition, advanced oxidation and ion exchange were used effectively by various investigators. These methods are reported to be efficient for the phenol removal. Suitable method for phenol removal can be selected based on availability of the material, extent of separation required and properties of phenolic effluent.

**Key words:** phenol, effluent, concentration, enzyme, adsorbent

---

<sup>1</sup>University Novi Sad, Faculty of Technology Novi Sad, Novi Sad, Serbia (vesnateofilovic@uns.ac.rs)

<sup>2</sup>University of East Sarajevo, Faculty of Technology Zvornik, Zvornik, Republic of Srpska, Bosnia nad Hercegovina