

## حذف بیولوژیکی پروپیلن گلیکول از فاضلاب و تجزیه آن در خاک به کمک باکتری های جدا شده از فرایند لجن فعال

مهدی فرزادکیا<sup>۱</sup>، روشنگ رضایی کلانتری<sup>۵</sup>، سهند جرفی<sup>۲</sup>، امیررضا طلایی<sup>۳</sup>، غلامرضا موسوی<sup>۴</sup>

نویسنده مسئول: تهران، دانشگاه تربیت مدرس، دانشکده علوم پزشکی [moussavi@modares.ac.ir](mailto:moussavi@modares.ac.ir)

پذیرش: ۸۸/۲/۲۸

دریافت: ۸۷/۱۲/۳

### چکیده

**زمینه و هدف:** پروپیلن گلیکول ترکیب اصلی مورد استفاده در ضدیخ ها می باشد. بخش قابل توجهی از این ترکیب پس از مصرف وارد محیط شده و محیط زیست و به ویژه خاک های محل را آلوده می کند. هدف از این مطالعه تعیین حذف بیولوژیکی پروپیلن گلیکول از فاضلاب و خاک به کمک باکتری های جدا شده از فرایند لجن فعال می باشد.

**روش و بررسی:** در این مطالعه لجن فعال حاصل از خط لجن برگشتی یک تصفیه خانه فاضلاب شهری در یک سیستم پایلوت لجن فعال اختلاط کامل برای تجزیه پروپیلن گلیکول سازگار شد. سازگارسازی میکروارگانیسم ها در مدت زمان ۱۱۵ روز با ۴ زمان ماند مختلف ۱۸، ۱۲، ۶ و ۴ ساعت و غلظت COD محلول ورودی  $1000 \text{ mg/L}$  انجام گرفت. پس از این مدت میکروارگانیسم ها به خاکی انتقال داده شدند که به طور مصنوعی به پروپیلن گلیکول آلوده شده بود.

**یافته ها:** میانگین راندمان حذف پروپیلن گلیکول در فاز مایع در زمان ماند های ۱۸، ۱۲، ۸ و ۴ ساعت در شرایط پایداری به ترتیب ۹۸/۶، ۹۷/۱، ۸۶/۴ و ۶۲/۲ درصد بوده است. بیشترین درصد حذف پروپیلن گلیکول در خاک ۹۷/۸ بود.

**نتیجه گیری:** نتایج حاصل از این تحقیق نشان می دهد که پروپیلن گلیکول اساساً دارای ویژگی های تجزیه پذیری بیولوژیکی مناسبی بوده و در محیط های آبی و خاک پس از طی یک دوره نسبتاً کوتاه سازگاری تحت تجزیه بیولوژیکی قرار گرفته و حذف می شود.

**واژگان کلیدی:** پروپیلن گلیکول، تجزیه بیولوژیک، آلودگی خاک، لجن فعال

۱- دکترای بهداشت محیط، استادیار گروه بهداشت محیط حرفه ای دانشگاه تربیت مدرس

۲- دکترای بهداشت محیط، دانشیار دانشکده بهداشت دانشگاه علوم پزشکی ایران

۳- دانشجوی دکترای بهداشت محیط دانشگاه تربیت مدرس

۴- کارشناس ارشد مهندسی محیط زیست (گرایش آب و فاضلاب)

۵- دکترای عمران محیط زیست، استادیار دانشکده بهداشت دانشگاه علوم پزشکی ایران

## مقدمه

در سال های اخیر آلودگی های محیط در اثر مصرف انواع ضد یخ در فرودگاه ها افزایش یافته است. پروپیلن گلیکول ترکیب اصلی این مواد ضد یخ ها می باشد که در ابتدا در امریکا مورد استفاده قرار گرفت. همچنین به دلیل آشکار شدن مخاطرات سمی سایر ترکیبات گلیکول مورد استفاده در مایعات ضد یخ، مصرف پروپیلن گلیکول رو به فزونی نهاده است. برآورد شده که در سال ۱۹۹۰ نزدیک به ۱۱/۵ میلیون گالن پروپیلن گلیکول به این منظور در امریکا مصرف شده است (۱). مقداری از این مایع ضد یخ حاوی پروپیلن گلیکول (بیش از ۸۰ درصد) از طریق تصفیه در محل بازیافت شده و یا وارد شبکه های زهکشی شده و از آنجا به تأسیسات تصفیه فاضلاب شهری می رود. با این وجود بخش قابل توجهی وارد محیط شده و محیط زیست و به ویژه خاک های محل را آلوده می کند (۲). همچنین معضلات ناشی از آلودگی آب های سطحی در رهاسازی کنترل نشده ضد یخ های حاوی پروپیلن گلیکول می تواند منجر به کاهش اکسیژن محلول آب گردد که این امر نیز به نوبه خود منجر به مرگ و میر آبزیان گردیده و بسیار حایز اهمیت است (۳). همچنین این ترکیب آثار پوستی نظیر اریتما، تحریک پذیری پوستی، ادم پوستی و آثار سیستمیک نظیر کاهش هموگلوبین، کاهش هماتوکریت ها و اریتروسیت ها، کاهش گلبول های سفید خون و لنفوسیت ها در زنان، کوچک شدن کلیه و افزایش و کاهش وزن بدن به خارج از محدوده متداول مشاهده می شود (۴،۵). دز کشنده دهانی پروپیلن گلیکول هنوز در انسان گزارش نشده است ولی برآورد می شود که دز کشنده دهانی برای انسان بیشتر از ۱۵ گرم بر کیلوگرم در یک انسان ۷۰ کیلوگرمی باشد (۵،۶). در یک پژوهش که بر روی میمون ها انجام شده بود، از ۲۹ میمونی که طی ۲ هفته در معرض ۳۲ الی ۱۱۲ mg/L پروپیلن گلیکول قرار گرفته بودند، ۱۳ میمون دچار مرگ شدند (۴). اگرچه تصور می شود که پروپیلن گلیکول به آسانی به وسیله روش های هوازی و یا بی هوازی تجزیه می شود، ولی هنوز

هیچ میکروارگانیسمی که قادر به حذف کامل این آلاینده پیش از ورود به آب های زیرزمینی باشد شناسایی نشده است (۲). بنابراین ضرورت حذف پروپیلن گلیکول هم از فاضلاب و هم از خاک های آلوده وجود دارد تا سیستم بهینه برای هر حالت معرفی گردد. تا کنون متخصصان مطالعات متعددی را بر روی فرایندهای بیولوژیکی حذف پروپیلن گلیکول از فاضلاب و خاک انجام داده اند (۷-۱۰). اثبات شده که پروپیلن گلیکول در شرایط هوازی و آنوکسیک قابلیت تجزیه بیولوژیکی داشته و محصولات واسطه سمی در نتیجه تجزیه آن تولید نمی شود (۱۳-۱۰). هدف از این مطالعه بررسی قابلیت تجزیه بیولوژیکی پروپیلن گلیکول در فاضلاب و خاک می باشد. در این مطالعه پس از سازگار نمودن میکروارگانیسم ها با غلظت های بالای پروپیلن گلیکول در یک راکتور بیولوژیکی فاز مایع، این میکروارگانیسم ها به صورت مخلوط و بدون خالص سازی از فاز مایع جدا شده و به محیط خاک انتقال یافتند. سپس با کنترل شرایط محیطی همچون pH، میزان مواد مغذی، درصد رطوبت محیط و میزان هوادهی در خاک، کارایی این میکروارگانیسم ها در تجزیه پروپیلن گلیکول در خاک مورد بررسی قرار گرفت.

## مواد و روش ها

در این مطالعه حذف پروپیلن گلیکول از فاضلاب و خاکی که به شکل مصنوعی آلوده شده بود مطابق روش شناسی که در ادامه شرح داده می شود در دو فاز مایع و جامد انجام شد.

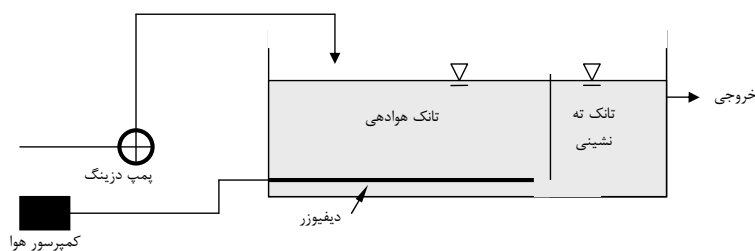
## حذف پروپیلن گلیکول از فاضلاب

## ساختار راکتور بیولوژیکی مورد استفاده در فاز مایع

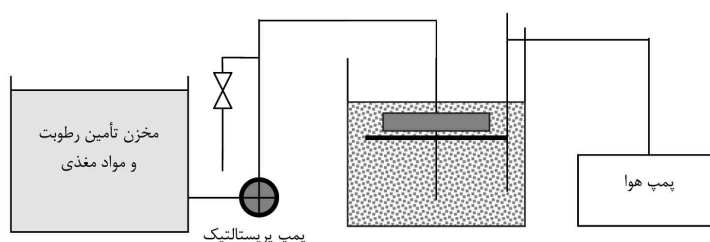
راکتور مورد استفاده در این مطالعه شامل یک مخزن مکعبی شکل به حجم مؤثر ۹ لیتر و از جنس پلاکسی گلاس بوده که ۷ لیتر آن را قسمت هوادهی و ۲ لیتر دیگر نیز به عنوان حوضچه ته نشینی در نظر گرفته شده بود که از طریق یک دیواره مورب با شیب ۸۵ درجه نسبت به افق از قسمت هوادهی جدا

اختلاط در این سیستم با کمک جریان هوای ورودی انجام می پذیرفت. pH سیستم به وسیله یک pH متر دیجیتال به طور مداوم اندازه گیری شده و در صورت کاهش به خارج از محدوده مجاز به وسیله بی کربنات سدیم (جوش شیرین) تعدیل می گردید. فاضلاب ورودی به وسیله یک دزینگ پمپ به ظرفیت ۲۰-۰ لیتر در ساعت به راکتور تزریق می شد. کل مجموعه در دمای اتاق (۲۰-۲۵ درجه سانتیگراد) راهبری می گردید. در شکل ۱ و ۲ نمایی از راکتور مورد استفاده جهت

می شود. قسمت پایینی این دیواره دارای ۱/۵ سانتیمتر فاصله از کف بوده که به منظور برگشت پیوسته لجن ته نشین شده در حوضچه ته نشینی به وسیله نیروی مکش ناشی از هوادهای واحد هوادهی مورد استفاده قرار می گرفت. این سیستم توسط یک پمپ کوچک هوا به ظرفیت هوادهی حداکثر ۱۴ لیتر در دقیقه هوادهی می شد که نظر به هوای مورد نیاز و با توجه به بار آلی ورودی، هوای ورودی تنظیم می شد. تنظیم دبی پمپ هوا با کمک درجه تنظیم پمپ امکان پذیر بود. عمل



شکل ۱: نمایی از راکتور لجن فعال مورد استفاده در فاز مایع حذف پروپیلن گلیکول



شکل ۲: نمایی از راکتور بیولوژیکی مورد استفاده برای حذف پروپیلن گلیکول از خاک

سازگارسازی در محیط مایع را نشان می دهد.

### راهبری سیستم در فاز مایع

تأمین اکسیژن محلول به میزان ۱-۲ mg/L انجام شد. سیستم در ابتدا بر مبنای COD معادل ۱۰۰۰ mg/L راه اندازی شد که ۸۰۰ mg/L از آن ناشی از گلوکز و ۲۰۰ mg/L آن ناشی از پروپیلن گلیکول بود. در طول یک ماه و به موازات پیوسته کردن سیستم به تدریج از میزان COD ناشی از گلوکز کاسته و به COD ناشی از پروپیلن گلیکول افزوده شد. پس از گذشت ۳۶ روز از راه اندازی سیستم همه ۱۰۰۰ mg/L COD ورودی به سیستم تنها از طریق پروپیلن گلیکول تأمین می شد. فرمول فاضلاب مصنوعی مربوطه در جدول ۱ ارائه شده است.

میکروارگانیسم های مورد نیاز جهت تجزیه بیولوژیکی پروپیلن گلیکول در خاک در مرحله نخست از یک راکتور لجن فعال اختلاط کامل در بارهای آلی ورودی مختلف پرورش داده شدند. به منظور راه اندازی راکتور و تأمین میکروارگانیسم های مورد نیاز آن ۷ لیتر لجن از خط لجن برگشتی تصفیه خانه فاضلاب شهری شهرک غرب تهران برداشت شد. پس از انتقال لجن به راکتور، سیستم به مدت یک هفته به صورت ناپیوسته مورد راهبری قرار گرفت و در این مدت هوادهی به منظور

جدول ۱: ترکیب فاضلاب ساختمانی مورد استفاده در هوادهی و غنی سازی میکروارگانیسم های تجزیه کننده پروپیلن گلیکول

ترکیب تجاری	COD (mg/L)	مقدار مورد نیاز در یک لیتر آب	فرمول شیمیایی
گلوکز	۵۰۰	۰/۴۷۶ گرم	$C_6H_{12}O_6$
پروپیلن گلیکول	۵۰۰	۶ میلی لیتر	$C_3H_8O_2$
کلرور آمونیوم	-	۲۸ میلی گرم	$NH_4Cl$
پتاسیم دی هیدروژن فسفات	-	۵/۶ میلی گرم	$KH_2PO_4$
بی کربنات سدیم	-	۰/۸ گرم	$Na_2CO_3$

می شد. رطوبت مورد نیاز سیستم به کمک یک مخزن حاوی فاضلاب دارای یک محیط معدنی به فرمول زیر در آب شیر تأمین می شد:  $K_2HPO_4$  ۰/۵ g/L،  $KH_2PO_4$  ۰/۵ g/L و  $NaNO_3$  ۱ g/L. برای تنظیم pH خاک از تنظیم pH در مخزن تأمین رطوبت استفاده شد. بدین ترتیب pH سیستم با کمک محلول هیدروکسید سدیم بر روی ۷ تنظیم می گردید. حضور  $K_2HPO_4$  و  $KH_2PO_4$  بطور هم زمان در مخزن تأمین رطوبت باعث ایجاد حالت بافری در محلول شده و جلوی تغییرات شدید pH گرفته می شد.

در این راکتور برای تأمین رطوبت خاک از دیفیوزرهایی از جنس سفال استفاده شد. این دیفیوزرها به دلیل جنس خاص خود مانع ورود بیش از حد رطوبت به سیستم و همچنین پخش مناسب آن در کل مجموعه می گردید. افزایش میزان رطوبت خاک باعث ایجاد مناطق بی هوازی در سیستم می گردد، بنابراین تنظیم رطوبت در این سیستم بسیار مهم است. در این راکتور تبخیر آب تنها از سطح صورت گرفت. آب وارد شده از دیفیوزرها به داخل راکتور در اثر نیروی موینگی از قسمت های زیرین به سطح خاک رسیده و آنجا تبخیر می گردد. به دلیل وجود نوترینت ها در آب ورودی پس از تبخیر، میزان شوری سطح فوقانی مداوماً افزایش می یابد و شرایط رشد میکروارگانیسم های غیر هالوفیل سخت می گردد. بنابر این مخلوط نمودن خاک در زمان های مناسب در طول مدت زمان آزمایش برای تجزیه یکسان در تمام حجم راکتور انجام می شد. منبع کربن مورد نیاز این سیستم از طریق تزریق

جهت رشد بیوماس و تولید و پرورش میکروارگانیسم هایی که توانایی مصرف پروپیلن گلیکول در غلظت های بالا و شرایط مختلف بهره برداری را داشته باشند، سیستم طی ۴ مرحله با زمان های ماند ۱۸، ۱۲، ۸ و ۴ ساعت و غلظت COD محلول ورودی  $1000 \text{ mg/L}$  مورد بهره برداری قرار گرفت و پارامترهای آن شامل COD محلول خروجی، غلظت پروپیلن گلیکول، VSS، دما، اکسیژن محلول و pH تا زمان دستیابی به شرایط پایدار مورد پایش قرار گرفتند. حدوداً هر مرحله سه تا چهار هفته به طول انجامید که کل این مراحل طی ۱۱۵ روز انجام شد. به دلیل رژیم هیدرولیکی اختلاط کامل سیستم، به موازات کاهش زمان ماند، میکروارگانیسم های موجود در راکتور به تدریج در تماس با غلظت های بالاتری از پروپیلن گلیکول قرار می گرفتند. به این ترتیب پس از ۱۱۵ روز، میکروارگانیسم ها توانایی کافی برای رشد مناسب در حضور غلظت های بالایی از پروپیلن گلیکول را پیدا نمودند.

### حذف پروپیلن گلیکول از خاک آلوده

#### ساختار راکتور بیولوژیکی مورد استفاده در خاک

در این مطالعه با استفاده از یک راکتور که در شکل ۲ نشان داده شده، حذف پروپیلن گلیکول از خاک مورد بررسی قرار گرفت. حجم کل راکتور ۷ لیتر بوده که حاوی ۵ لیتر خاک بود. در این سیستم برای حفظ رطوبت کافی از یک دیفیوزر ساخته شده از سفال، پمپ پرستالتیک و یک شیر بایپس برای تنظیم فشار در دیفیوزر و جلوگیری از فشار زیاد به پمپ استفاده

و کاهش رطوبت خاک می گردید. از طرفی افزایش فعالیت باکتری ها نیاز آنها را به اکسیژن افزایش می داد. بنابراین در طول این مطالعه به طور روزانه غلظت پروپیلن گلیکول، درصد رطوبت، pH و دمای خاک سنجش می شد و بر اساس نتایج به دست آمده هوادهی و دبی آب ورودی به سیستم تنظیم می گردید.

#### روش های آزمایشگاهی

غلظت COD به روش رفلکس برگشتی باز، اکسیژن محلول به روش یدومتری وینکلر، VSS به روش خشک سازی حرارتی، دما به وسیله ترمومتر و pH توسط pH متر دیجیتال ساخت شرکت Hach اندازه گیری می شدند (۱۴). غلظت پروپیلن گلیکول به وسیله دستگاه HPLC سنجش شد. در این مطالعه استخراج پروپیلن گلیکول به روش مایع - مایع و با استفاده از استونیتریل انجام پذیرفت. سپس به کمک فنیل ایزوسیانات مشتق گردید و در نهایت به کمک HPLC و یک دکتکتور UV vis در طول موج ۲۲۲ نانومتر اندازه گیری شد. دستگاه HPLC مورد استفاده در این مطالعه دارای مارک CeCII مدل CE۴۱۰۰ بود که دارای یک ستون به ابعاد ۲۵ سانتی متر و قطر داخلی ۴/۶ میلی متر می باشد. دکتکتور آنالیزگر موجود در دستگاه UV vis می باشد. ۲ پمپ با دبی مجموع ۱ میلی لیتر بر دقیقه جهت تزریق متانل و آب با نسبت ۶ به ۴ جهت انتقال فاز حامل در دستگاه مورد استفاده قرار می گرفت (۱۵).

#### نتایج

#### حذف پروپیلن گلیکول و COD فاضلاب در سیستم لجن فعال

همان طور که ذکر شد سیستم رشد معلق پس از راهبری به صورت پیوسته و تولید جرم سلولی کافی در چهار زمان ماند ۱۸، ۱۲، ۸ و ۴ ساعت و غلظت COD معادل ۱۰۰۰ mg/L تا زمان دستیابی به نتایج پایدار مورد پایش قرار گرفت. روند حذف پروپیلن گلیکول و COD در شکل ۳ نشان داده شده

۱۰ میلی لیتر پروپیلن گلیکول بسیار خالص تأمین گردید. این مقدار پروپیلن گلیکول بطور خالص برابر با ۱/۵۲۳۸ g/Kg می باشد. هوادهی نیز از طریق یک لوله که در طول آن سوراخ های ریزی با قطر ۰/۵ میلی متر تعبیه شده است انجام می شد. دبی هوای ورودی به خاک ۰/۵ لیتر در دقیقه بود و رطوبت خاک بر روی ۵۰ درصد تنظیم شد.

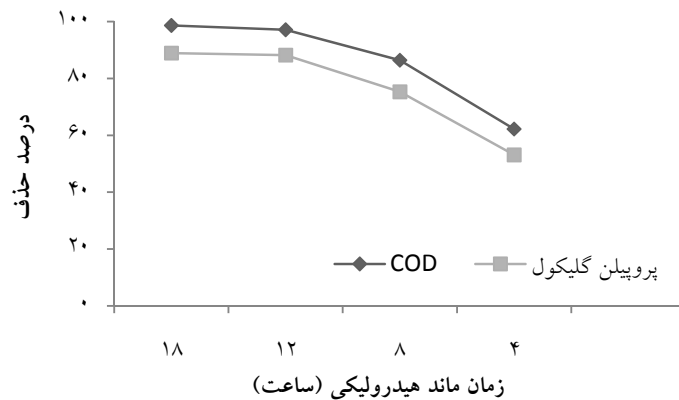
#### راهبری سیستم در فاز جامد

در این مطالعه از شن با دانه بندی حدود ۱ میلی متر استفاده شد. قبل از استفاده از شن در این آزمون، شن به خوبی شسته شده و کلیه مواد آلی موجود در آن با کمک دترجنت ها خارج گردید. از شن به دست آمده به عنوان محیط خاک استفاده می شد.

برای افزودن میکروارگانیسم های سازگار شده به خاک، از سانتریفوژ با دور ۳۰۰۰ دور در دقیقه استفاده شد و به مدت ۱۵ دقیقه میکروارگانیسم های موجود در ۵۰۰ میلی گرم از محتویات سیستم لجن فعال از فاز مایع جدا شد و مجدداً این میکروارگانیسم ها در ۱۰۰ میلی گرم سرم فیزیولوژیک (۹ گرم نمک در یک لیتر آب مقطر) معلق گشتند. این میکروارگانیسم ها به همراه ۱۰ mL پروپیلن گلیکول به خوبی با خاک موجود در سیستم فوق مخلوط گردید. دما در بخش های مختلف خاک و همچنین درصد حذف پروپیلن گلیکول در این سیستم به مدت ۳۰ روز مورد بررسی قرار گرفت. کل مجموعه در دمای اتاق (۲۵-۲۰ درجه سانتیگراد) راهبری می گردید. در این مطالعه از میکروارگانیسم ها به صورت کشت مخلوط استفاده شد. به دلیل وجود تبخیر در لایه های فوقانی سیستم و ایجاد یک جریان رو به بالا از رطوبت ورودی به سیستم که در اثر نیروی موینگی ایجاد می گردید، ترکیبات معدنی موجود در منبع آب ورودی کم کم بر روی سطح راکتور حاوی خاک به صورت یک لایه سفید رنگ تجمع می یافت. بنابر این تنظیم مناسب ترکیبات معدنی برای جلوگیری از افزایش شوری خاک در طول آزمایش بایستی انجام شود. هوادهی این سیستم نیز بسیار حایز اهمیت می باشد. افزایش هوادهی موجب افزایش تبخیر

عدم تغییرات فاحش VSS، در شرایط کاهش متوالی زمان ماند هیدرولیکی و به تبع آن افزایش بار آلی در غلظت ثابت، پارامتر تعیین کننده مؤثر بر راندمان سیستم زمان ماند هیدرولیکی است. همچنین در طول مدت زمان راهبری راکتور لجن فعال، میانگین مقادیر VSS سیستم در زمان ماندهای ۱۸، ۱۲، ۸ و ۴ ساعت به ترتیب ۲۴۹۵، ۲۴۶۸، ۲۴۱۸ و ۲۳۸۳ mg/L و اکسیژن محلول در محدوده ۱/۲ تا ۲/۱ mg/L قرار داشت. با توجه به نتایج حاصل از این مرحله می توان نتیجه گیری کرد که میکروارگانیسم ها به حد کافی با پروپیلن گلیکول سازگار شده و توانایی کافی جهت تجزیه آن را دارا می باشند.

است. میانگین راندمان حذف COD در زمان ماند ۱۸ ساعت در شرایط پایداری ۹۸/۶٪ با انحراف معیار ۰/۵۸ بود که بهترین بازده حذف مشاهده شده را به خود اختصاص می داد. میانگین حذف در شرایط پایداری در زمان های ماند ۱۲، ۸ و ۴ ساعت به ترتیب ۹۷/۱٪، ۸۶/۴٪ و ۶۲/۲٪ با مقادیر انحراف معیار ۱/۲۱، ۲/۲۹ و ۳/۵۴ بوده است. با توجه به نتایج حاصله می توان نتیجه گیری کرد که به موازات کاهش زمان ماند هیدرولیکی و کاهش زمان مواجهه میکروارگانیسم های تجزیه کننده پروپیلن گلیکول، بازده راکتور کاهش یافته است. با توجه به ثابت بودن غلظت آلاینده ورودی، دمای محیط و



شکل ۳: نمودار حذف COD و پروپیلن گلیکول از فاضلاب در فازهای متوالی راهبری سیستم لجن فعال

شده است. بیشترین میزان حذف این ترکیب از خاک در حدود ۹۷/۸٪ بوده است که پس از ۲۴ روز به دست آمد. پس از این مدت میزان حذف پروپیلن گلیکول از خاک تقریباً ثابت ماند. غلظت پروپیلن گلیکول از ۱/۵۲۳ g/kg به کمتر از ۰/۰۳ g/kg کاهش یافت. با توجه به شکل ۴ روشن است که از روز اول تا دوازدهم میزان حذف این ترکیب در خاک بسیار اندک است. احتمالاً در این مدت میکروارگانیسم ها در حال سازگاری با شرایط جدید بودند. در محدوده روزهای دوازدهم الی بیست و پنجم بیشترین میزان حذف پروپیلن گلیکول حاصل شد و پس از آن تا روز ۳۰ میزان حذف پروپیلن گلیکول تقریباً ثابت ماند. پس از حصول این شرایط و عدم تغییر در غلظت پروپیلن

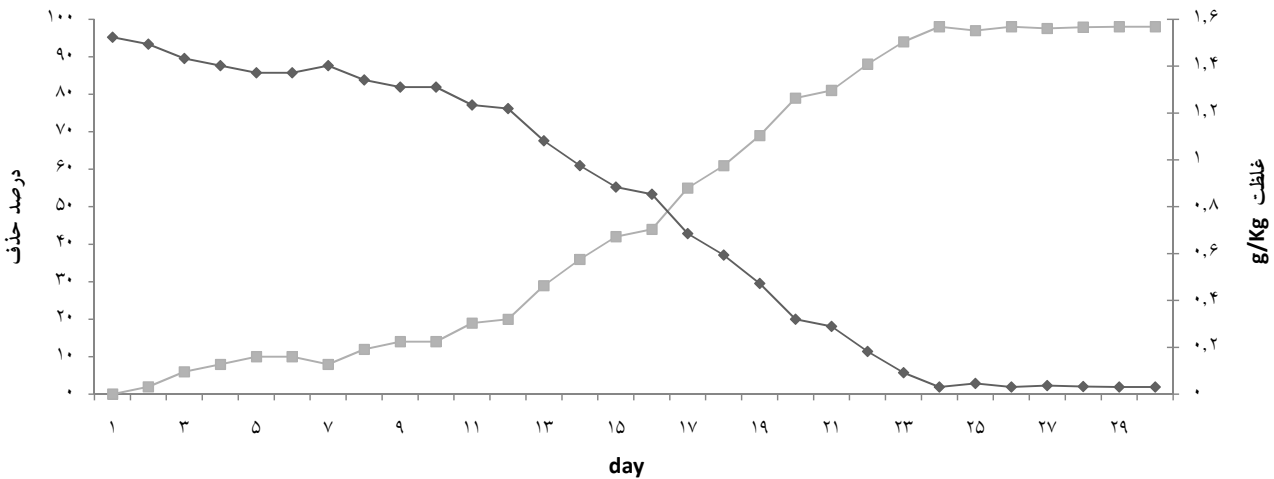
مقادیر غلظت پروپیلن گلیکول خروجی در زمان های ماند ۱۸، ۱۲، ۸ و ۴ ساعت به ترتیب ۱۱۱، ۱۱۸، ۲۴۷ و ۴۶۹ mg/L بوده است. بیشترین بازده حذف در زمان ماند هیدرولیکی ۱۸ ساعت و معادل ۸۸/۹ درصد بوده است. بنابر شکل ۳ به موازات کاهش زمان ماند هیدرولیکی و کاهش زمان مواجهه میکروارگانیسم ها، راندمان راکتور نیز کاهش یافته و بازده حذف پروپیلن گلیکول در زمان های ماند کمتر به ترتیب به ۸۸/۲، ۷۵/۳ و ۵۳/۱ درصد کاهش یافته است.

### حذف پروپیلن گلیکول در خاک

در طول ۳۰ روز آزمایش میزان کاهش غلظت پروپیلن گلیکول اندازه گیری شد. نتیجه این اندازه گیری در شکل ۴ نمایش داده

پروپیلن گلیکول اولیه تنها ۱/۵ mL آن در خاک باقی مانده و ۸/۵ mL آن توسط میکروارگانیسم ها تجزیه شده است.

گلیکول استخراج شده آزمون خاتمه یافت. نتایج نشان می دهد که با توجه به تجزیه بیولوژیکی در محیط خاک، از ۱۰ mL

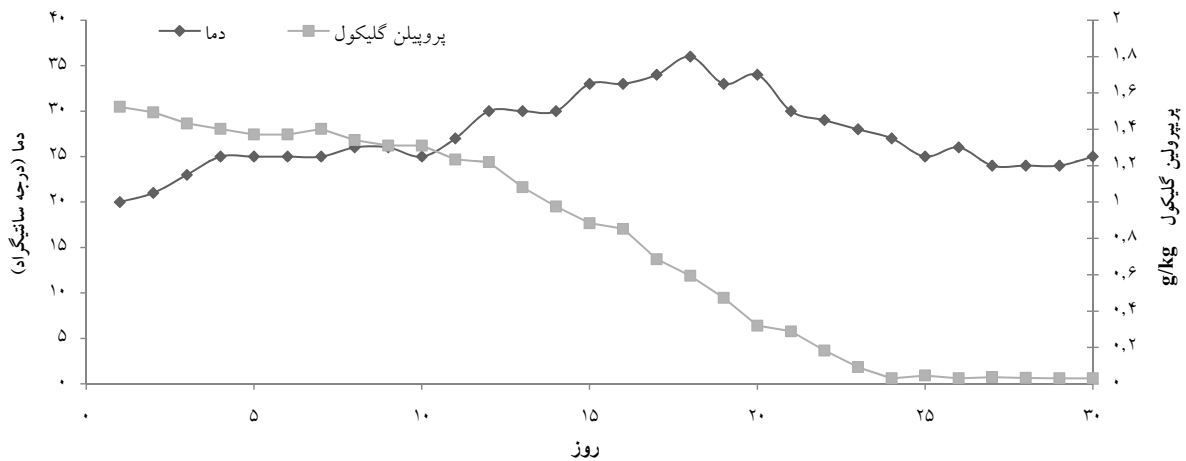


شکل ۴: نمودار کاهش غلظت پروپیلن گلیکول در خاک

گلیکول) می باشد. همان گونه که مشخص است بیشترین افزایش دما در روزهای دهم الی بیست و ششم رخ داده که میکروارگانیسم ها رشد زیادی داشته اند. حداکثر دما در روز هجدهم بوده که دما به ۳۶ درجه سانتی گراد رسید که در این زمان غلظت پروپیلن گلیکول محیط ۰/۵۹ kg/g بود. درصد حذف پروپیلن گلیکول در روز هجدهم که دمای خاک مورد آزمایش به بیشترین مقدار خود رسید، معادل ۶۲ درصد بود. از این روز به بعد و موازات کاهش غلظت پروپیلن گلیکول موجود در خاک، سیر نزولی دما نیز آغاز شده و پس از آنکه غلظت پروپیلن گلیکول موجود در محیط به زیر ۰/۰۴ kg/g رسید دما تقریباً ثابت شد. با اندازه گیری دما در قسمت های مختلف خاک، قسمت های سرد تر به عنوان بخش هایی با فعالیت کم شناخته شده و هوادهی خاک از طریق زیرو رو کردن افزایش داده شد و خلل و فرج خاک ازدیاد یافت. این امر منجر به افزایش یکنواخت دما در کل راکتور می گردید.

#### تغییرات دمایی در حین تجزیه بیولوژیکی پروپیلن گلیکول در خاک

در شکل ۵ تغییرات دمای اندازه گیری شده در طول آزمایش در برابر تغییرات غلظت پروپیلن گلیکول موجود در خاک نمایش داده شده است. اندازه گیری دمای خاک در حین تجزیه بیولوژیکی پروپیلن گلیکول موجود در آن نشان داد که به دلیل فعالیت های بیولوژیکی دمای خاک بالاتر از محیط اطراف می باشد و بطور میانگین ۲۷ درجه سانتی گراد بود که حدود ۷ درجه سانتی گراد بیشتر از محیط اطراف بود. بنابر شکل ۵ در غلظت های بالای پروپیلن گلیکول در خاک، دمای خاک به طور دایم افزایش یافته است. با کاهش غلظت پروپیلن گلیکول موجود در محیط، دمای خاک نیز در نتیجه کاهش فعالیت میکروارگانیسم های تجزیه کننده پروپیلن گلیکول کاهش چشمگیری یافته است که دلیل آن کاهش جمعیت میکروارگانیسم های فعال در اثر کم شدن منبع کربن (پروپیلن



شکل ۵: نمودار تغییرات دمایی در برابر تغییرات غلظت پروپیلن گلیکول موجود در خاک

## بحث و نتیجه گیری

مطالعات گوناگونی و در شرایط مختلف پیرامون تجزیه بیولوژیکی پروپیلن گلیکول در آب و خاک توسط سایر محققان انجام شده است. آگنیسزکا و همکاران در مطالعه ای تجزیه بیولوژیکی پروپیلن گلیکول را در فاز مایع را مورد بررسی قرار دادند و موفق به حذف ۹۰ درصد پروپیلن گلیکول از فاز مایع شدند (۷) که کمتر از حداکثر مقدار به دست آمده در این مطالعه به میزان ۹۸ درصد بود. جوانا زمبرزوسکا و همکاران در سال ۲۰۰۷ مطالعه ای را به نام اکسیداسیون بیولوژیکی پروپیلن گلیکول در شرایط هوازی در یک راکتور لجن فعال پیوسته انجام دادند. یک پایلوت دو محفظه ای با مرحله دنیتریفیکاسیون به این منظور مورد استفاده قرار گرفت. در این تحقیق مشخص شد که پروپیلن گلیکول ذاتاً تجزیه پذیر بوده و از خود خصوصیات سم زایی بسیار شدیدی پس از فراتر رفتن از حد آستانه  $10 \text{ mg/L}$  نشان می دهد. احتمالاً تجمع متابولیت ها بر روی لجن فعال دلیل اصلی بروز این اثرات سمی می باشد. بیشترین راندمان حذف ۹۴ درصد بود که کمتر از مقادیر به دست آمده در این مطالعه در زمان ماند هیدرولیکی ۱۸ و ۱۲ ساعت با مقادیر حذف به ترتیب ۹۸/۶ و ۹۷/۱ درصد است (۱۶). تجزیه بیولوژیکی پروپیلن گلیکول در خاک نیز مورد بررسی

قرار گرفته است. آنجلا و همکاران مطالعه ای را برای بررسی حذف پروپیلن گلیکول در خاک انجام دادند. آنها توانستند با کمک یک جریان هیدرولیکی پیوسته میزان پروپیلن گلیکول را تا بیش از ۹۹ درصد کاهش دهند (۹) که ۱/۲ درصد بیشتر از مقدار به دست آمده در این مطالعه است اما اختلاف آن چندان قابل توجه نیست.

لام مرطوب در طول مطالعات میکروسکوپی بر روی نمونه های میکروارگانیسم های اضافه شده به خاک تهیه شد که نشان دهنده کاهش شدید فلوک های میکربی لجن فعال اولیه موجود در راکتور بیولوژیکی بود که در زمان راه اندازی راکتور فاز جامد به خاک اضافه شده بود. همچنین به موازات کاهش فلوک ها، تعداد میکروارگانیسم های آزاد در محیط خاک به شدت افزایش یافت. تعداد تک یاخته ها در نمونه گرفته شده پس از گذشت ۳۰ روز به شدت افزایش نشان می داد که این امر با توجه به افزایش تعداد میکروارگانیسم های آزاد که غذای تک یاخته ها را تشکیل می دهند، طبیعی بود.

با توجه به نتایج به دست آمده می توان اظهار کرد که پروپیلن گلیکول اساساً دارای ویژگی های تجزیه پذیری بیولوژیکی مناسبی بوده و در محیط های آبی و خاک پس از طی یک دوره نسبتاً کوتاه سازگارسازی تحت تجزیه بیولوژیکی قرار گرفته و حذف می شود.



## منابع

1. Andrea C, Salvatore D, Roberto S, Emo Chiellini. Degradation of Poly (Ethylene Glycol)-Based Nonionic Surfactants by Different Bacterial Isolates from River Water. *Journal of Environmental Polymer Degradation*. 1998; 6(3): 121-131.
2. Philipp J, Kai U, Totsche, Ingrid K. Transport and anaerobic biodegradation of propylene glycol in gravel-rich soil materials. *Journal of Contaminant Hydrology*. 2006; 85 (3-4): 271-286.
3. Pillard D. Comparative toxicity of formulated glycol deicers and pure ethylene and propylene glycol to *Ceriodaphnia Dubia* and *pimephales promelas*. *Journal of Environ Toxicol Chem*. 1995 ;14(2):311-315.
4. Charles A, John W. An examination of the physical properties, fate, ecotoxicity and potential environmental risks for a series of propylene glycol ethers. *Journal of Chemosphere*. 2002; 49(1): 61-73.
5. Karl K, Rozman, Jatinder B and et al. NTP-CERHR Expert Panel report on the reproductive and developmental toxicity of propylene glycol. *Journal of Reproductive Toxicology*. 2006; 77(6): 485-638.
6. Hamoda M. Aerobic Treatment of Ammonium Fertilizer Effluent in Fixed-film biological system. *Journal of water science and technology*. 1990; 22(9): 75-84.
7. Agnieszka, Tomasz G, Joanna Z, and et al. Biodegradation of poly (propylene glycol)s under the conditions of the OECD screening test. *Journal of Chemosphere*. 2007; 67 (5):928-933.
8. Shupack D, Anderson T. Mineralization of propylene glycol in root zone soil. *Journal of Water, Air, and Soil Pollution*. 2000; 118: (1-2) 53-64.
9. Angela R, Bielefeldta, Tissa I, Megan U, Rosanna L. Biodegradation of propylene glycol and associated hydrodynamic effects in sand. *Journal of Water Research*. 2002; 36 (7) 1707-1714.
10. Veltman S, Schoenberg T, Switzenbaum M. Alcohol and acid formation during the anaerobic decomposition of propylene glycol under methanogenic conditions. *Journal of Biodegradation*. 1998 ; 9: 113-118.
11. Xiaoping H, Akira F, Xin L, Kazuhide K, Fusako K. Isolation of bacteria able to grow on both polyethylene glycol (PEG) and polypropylene glycol (PPG) and their PEG/PPG dehydrogenises. *Journal of Microbial Biotechnology*. 2007; 73:1407-1413.
12. Veltman S, Schoenberg T, Switzenbaum M. Kinetics of anaerobic degradation of glycol-based Type I aircraft deicing fluids. *Journal of Biodegradation*. 2001; 12: 59-68.
13. Thimo K, Andreas K, Kristina L, Straub, Stefan B, Haderlein. Biodegradability and groundwater pollutant potential of organic anti-freeze liquids used in borehole heat exchangers. *Journal of Geothermics*. 2007; 36(4):348-361.
14. APHA. *Standard Methods For the Examination of Water & Wastewater*. 21<sup>th</sup> Edition, Washington DC, USA. 2005.
15. Joanna R, Agnieszka Z, Tomasz, Grze's, Zenon Ł. Isolation of poly (propylene glycol)s from water for quantitative analysis by reversed phase liquid chromatography. *Journal of Chromatography*. 2003; 1021 (1-2) 11-17.
16. Zembrusk J, Zqola A, Grzeskowiak t and et al. Bio-oxidation of tripropylene glycol under aerobic conditions. *Journal of Biodegradation*. 2008; 19 (3): 365-373.

## **Biological Removal of Propylene Glycol from Wastewater and its Degradation in Soil by the Activated Sludge Consortia**

**Farzadkia M.<sup>1</sup>, Rezaee R.<sup>2</sup>, Jorfi S.<sup>2</sup>, Talaei A.R.<sup>4</sup>, \*Moussavi G.R.<sup>2</sup>**

<sup>1</sup> Department of Environmental Health Engineering, Iran University of Medical Sciences, Tehran, Iran

<sup>2</sup> Department of Environmental Health Engineering, Tarbiat Modares University, Tehran, Iran

<sup>3</sup> Jami Institute of Technology, Delijan, Iran

Received 21 February 2009; Accepted 18 May 2009

### **ABSTRACT**

**Background and Objectives:** Propylene glycol is the main compound of anti-freezing chemicals. A significant amount of propylene glycol is released to the environment after application and contaminates the soil. The main objective of this study was to determine the biological removal of propylene glycol from wastewater and its degradation in soil by the isolated bacteria from activated sludge process.

**Materials and Methods:** In the present study, the sludge taken from the return flow in a local activated sludge treatment system was used as the initial seed. The performance of the bioreactor in treating the wastewater was evaluated at four different retention times of 18, 12, 6 and 4 h, all with the inlet COD concentration of 1000 mg/L. This phase lasted around 4 months. Then, a part of the adapted microorganisms were transported from the bioreactor to the soil which was synthetically contaminated to the propylene glycol.

**Results:** The average of propylene glycol removal efficiency from the wastewater in detention times of 18, 12, 8 and 4 h in steady state conditions was 98.6%, 97.1%, 86.4% and 62.2% respectively. Also, the maximum degradation in soil was found to be 97.8%.

**Conclusion:** According to the results obtained from this study, it appears that propylene glycol is inherently well biodegradable and can be biodegraded in liquid phase and soil after a short period of adaptation.

**Keywords:** Propylene glycol, Biodegradation, Soil contamination, Activated sludge

---

\*Corresponding Author: [moussavi@modares.ac.ir](mailto:moussavi@modares.ac.ir)

Tel: +98 21 82883827 Fax: +98 21 82883825