

## حذف باکتری اشرشیاکلی از آب‌های آلوده با استفاده از سیستم الکتروشیمیایی دو قطبی

ابوالفضل حسن بیگی<sup>۱</sup>، عباس رضایی<sup>۲\*</sup>، حسین معصوم بیگی<sup>۳</sup>، هوشیار حسینی<sup>۴</sup>

<sup>۱</sup> دانشجوی کارشناسی ارشد مهندسی بهداشت محیط، دانشکده علوم پزشکی، دانشگاه تربیت مدرس، تهران، ایران  
<sup>۲</sup> دانشیار گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده علوم پزشکی، دانشگاه تربیت مدرس، تهران، ایران  
<sup>۳</sup> استادیار مرکز تحقیقات بهداشت نظامی و گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی بقیه ... (عج)، تهران، ایران.

<sup>۴</sup> دانشجوی دکتری مهندسی بهداشت محیط، دانشکده علوم پزشکی، دانشگاه تربیت مدرس، تهران، ایران

\* نویسنده مسئول: دانشکده علوم پزشکی، دانشگاه تربیت مدرس، تهران، ایران

پست الکترونیک: rezaee@modares.ac.ir

### چکیده

**زمینه و هدف:** حضور میکروارگانیسم‌های مختلف بویژه پاتوژن‌های انسانی در آب آشامیدنی مشکلات بهداشتی فراوانی را برای انسان ایجاد می‌نماید. به همین علت گندزدایی آب همواره یکی از اصلی‌ترین مراحل تصفیه آب آشامیدنی می‌باشد. باکتری اشرشیاکلی به عنوان شاخصی مناسب در تعیین کیفیت میکروبی آب و انجام گندزدایی مناسب شناخته شده است. فرآیندهای الکتروشیمیایی از جمله روش‌های توانمند در حذف آلاینده‌ها می‌باشند که توجه زیادی بویژه در حذف آلاینده‌های میکروبی به خود جلب کرده‌اند که این امر به دلیل اثرات زیست‌محیطی اندک، سهولت استفاده و هزینه نسبی پایین آن می‌باشد. هدف از انجام این پژوهش بررسی عملکرد سلول الکتروشیمیایی با پیکربندی دو قطبی در حذف باکتری اشرشیاکلی از آب و نیز بررسی اثر پارامترهای مختلف بر کارایی آن می‌باشد.

**مواد و روش کار:** پس از ساخت راکتور کشت خالص باکتری اشرشیاکلی، کارایی فرآیند در حذف باکتری اشرشیاکلی تحت تاثیر پارامترهای دانسیته جریان، حمایت‌کننده الکترولیتی و جمعیت اولیه باکتری مورد بررسی قرار گرفت.

**یافته‌ها:** بهترین کارایی سیستم در دانسیته جریان  $6 \text{ mA/cm}^2$ ، غلظت  $25/0$  گرم بر لیتر  $\text{NaCl}$  و  $\text{Na}_2\text{SO}_4$  به عنوان حمایت‌کننده الکترولیتی و جمعیت باکتریایی  $100 \text{ cfu/ml}$  حاصل گردید.

**نتیجه‌گیری:** با افزایش دانسیته جریان تا میزان  $6 \text{ mA/cm}^2$ ، راندمان حذف باکتری به مقدار چشمگیری افزایش می‌یافت. در مرحله بررسی اثر نوع و غلظت حمایت‌کننده الکترولیتی، با افزایش غلظت  $\text{NaCl}$  تا حدی مشخص، کارایی حذف اشرشیاکلی افزایش قابل توجهی نشان داد، اما چنین پدیده‌ای در مورد  $\text{Na}_2\text{SO}_4$  مشاهده نگردید. با افزایش جمعیت اولیه باکتری اشرشیاکلی، به مدت زمان بیشتری برای رسیدن به حذف کامل این باکتری نیاز است.

**واژه‌های کلیدی:** الکتروشیمی، اشرشیاکلی، دو قطبی، آب آلوده

وصول: ۹۲/۸/۸

اصلاح: ۹۲/۱۲/۲۶

پذیرش: ۹۳/۳/۵

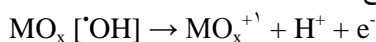
## مقدمه

دسترسی به آب پاک و سالم برای سلامتی انسان ضروری است. حضور عوامل بیماریزا در منابع آب می‌تواند تهدیدی جدی برای سلامتی انسان باشد و تصفیه آب به روشی کارآمد برای رسیدن به استاندارد، یکی از نیازهای اساسی است [۱]. حضور پاتوژن‌های انسانی بویژه انواع قابل تکثیر در سیستم توزیع آب آشامیدنی یکی از نگرانی‌های اصلی مسئولین صنعت آب است. اشرشیاکلی یکی از همین باکتریهاست که از طریق ورود فضولات حیوانی و انسانی به آبهای پذیرنده، منجر به آلودگی آب می‌شود. این باکتری در ارزیابی کیفیت باکتریولوژیک آب آشامیدنی، به عنوان اصلی‌ترین شاخص آلودگی میکروبی مورد استفاده قرار می‌گیرد [۲] و نباید در آب تصفیه شده وجود داشته باشد و حضور آن آب را غیر قابل شرب و نیازمند تصفیه و گندزدایی بیشتر می‌نماید [۳]. گندزدایی آب بخصوص به عنوان فرایند لازم اجرای تصفیه آب شرب و آب مصرفی بعضی صنایع مانند صنایع فرآوری مواد غذایی، شناگاه‌ها یک نیاز اساسی است [۴]. تصفیه متداول آب از طریق ته‌نشینی، انعقاد و فیلتراسیون و گندزدایی با کلر یا ازن انجام می‌گیرد. فرایند گندزدایی در تصفیه متداول بعضاً بصورت اولیه با هدف حذف و کاهش بار میکروبی آب خام وارده به تصفیه خانه آب و گندزدایی ثانویه با هدف حذف عوامل میکروبی باقی مانده و تامین باقیمانده گندزدا جهت حذف آلاینده‌های ثانویه در شبکه توزیع می‌باشد. تا به حال روش‌های مختلفی برای گندزدایی آب استفاده شده است. روش‌هایی از قبیل کلرزی به کمک مشتقات مختلف کلر از مثل گاز کلر، هیپوکلریت کلسیم، مونوکلرآمین و دی‌اکسید کلر، ازن زنی، کاربرد پروکسید هیدروژن، اشعه UV و گندزدایی به کمک فرایندهای فتوکاتالیستی و الکتروشیمیایی قابل ذکر می‌باشند کلرزی مهمترین روش گندزدایی آب در زمان‌های گذشته و حال می‌باشد، اما محصولات فرعی تولیدی ناشی از مصرف کلر باعث ایجاد نگرانی‌های بهداشتی و زیست محیطی بسیاری شده است. ازن اکسید کننده ای قوی می‌باشد که قادر به غیرفعال‌سازی انواع مختلفی از میکروارگانیسم‌ها به طور موثر می‌باشد. مشکلات مربوط به تولید آن و محصولات جانبی آن از جمله عوامل

محدودکننده کاربرد آن اکسیدکننده می‌باشند [۵]. گندزدایی بوسیله حرارت هم، باعث تغییر در طعم، گوارائی و مواد مغذی و املاح آب می‌شود و مصرف انرژی در این روش قابل توجه است و در مقیاس بزرگ قابل استفاده نمی‌باشد [۴]. در کنار این روش‌ها، امروزه در تحقیقات مختلف توجه خاصی به پتانسیل فرایندهای فتوکاتالیستی و الکتروشیمیایی در گندزدایی آب شده است و نشان داده شده که این فرایندها حتی قادر به حذف اووسیت‌های کریپتوسپوریوم پارووم و اسپوره‌های کلسترییدیومپرفرینزنس می‌باشند. این تکنولوژی به دلیل توانایی بالا در تولید اکسیدکننده‌های بسیار قوی در حین الکترولیز، توجه زیادی را به خود جلب کرده است [۳]. فرایندهای الکتروشیمیایی از جمله روش‌های توانمند در حذف آلاینده‌های آلی می‌باشند و بخصوص توجه زیادی را در حذف آلاینده‌های میکروبی به خود جلب کرده‌اند که به دلیل اثرات زیست‌محیطی اندک، سهولت استفاده و هزینه نسبی پایین آنها می‌باشد. این تکنولوژی می‌تواند به منظور معدنی‌سازی مواد آلی و گندزدایی آب حتی در غیاب کلرید و بدون تولید کلر و مشتقات آن مورد استفاده قرار گیرد. دیگر مزیت گندزدایی به روش الکتروشیمیایی تخریب جدار سلولی باکتریایها به نحوی که قابل بازسازی نباشند می‌باشد که بسیار شدیدتر از صدمات ایجاد شده توسط افزودن مواد شیمیایی مانند کلر می‌باشد [۶]. مکانیسم تجزیه الکتروشیمیایی مواد آلی به وسیله کومنینیلیس به شرح ذیل پیشنهاد شده است. آب بوسیله کاتالیز آندی الکترولیز شده و رادیکال‌های هیدروکسیل با قابلیت جذب سطحی تولید می‌شود [۵].



رادیکال‌های هیدروکسیل جذب سطحی شده قادر به تولید اکسیژن فعال می‌باشند که این اکسیژن به صورت شیمیایی جذب سطح شده است.



سپس رادیکال‌های هیدروکسیل با یکدیگر واکنش می‌دهند و اکسیژن مولکولی تولید می‌کنند تا الکترولیز آب را کامل کنند.

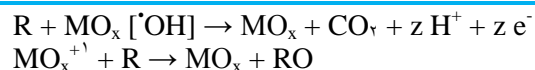


مواد آلی موجود در آب به وسیله رادیکال‌های هیدروکسیل اکسید می‌شوند.

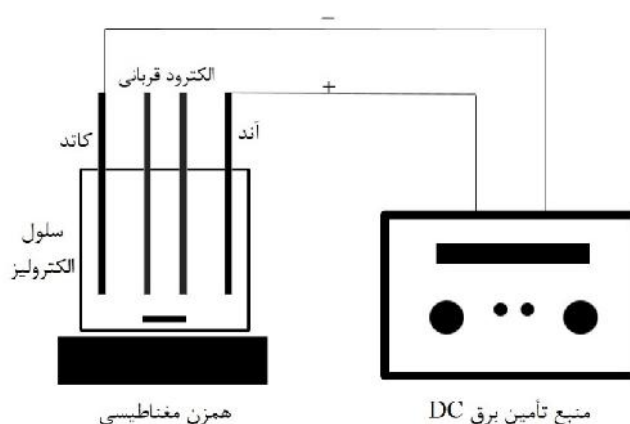
باکتری اشرشیاکلی از آب آلوده تحت تاثیر پیراسنجه های بهره برداری مختلف شامل دانسیته جریان الکتریکی، حمایت کننده الکترولیتی، غلظت اولیه باکتری و زمان واکنش به منظور تعیین شرایط بهینه حذف این باکتری در فن آوری الکتروشیمیایی می باشد.

### روش کار

این مطالعه از نوع تجربی آزمایشگاهی است. ابتدا به منظور تهیه رقت های مورد نظر از بذر باکتری اشرشیاکلی، به روش تهیه کدورت مک فارلند، کلنی های رشد یافته بر روی محیط کشت نوترینت آگار در دمای ۳۷ درجه سانتیگراد با استفاده از لوپ در لوله حاوی سرم فیزیولوژی استریل وارد گردید تا زمانی که با مقایسه کدورت آن با کدورت محلول استاندارد نیم مک فارلند، سوسپانسیون میکروبی معادل نیم مک فارلند بدست آید. جذب نوری این سوسپانسیون در طول موج ۶۲۵ نانومتر بایستی حدود ۰/۰۸ تا ۰/۱ باشد که در این صورت تعداد باکتری آن در هر میلی لیتر حدود  $10^8 \times 1/5$  می باشد. سپس با رقیق سازی این نمونه، رقت های لازم باکتریایی برای افزودن به نمونه آب استریل مورد مطالعه تهیه گردید. در ادامه و طی این تحقیق کارایی فرآیند الکتروشیمیایی دو قطبی، در یک راکتور ناپیوسته استوانه ای شکل شیشه ای به قطر ۱۰ و ارتفاع ۱۵ سانتی متر با حجم مفید ۵۰۰ ml جهت حذف باکتری اشرشیاکلی مورد آزمایشات لازم قرار گرفت. در



همچنین در حضور یون های کلرید در فرآیند الکترولیز، در پتانسیل های بالاتر از ۲/۱۸۷ ولت گاز کلر در آند تشکیل می شود. در ادامه با تشکیل گاز کلر، اسید هیپوکلریت طی واکنش های الکترولیزی تولید می شود. اسید هیپوکلریت یک اکسیدکننده قوی دارای قابلیت اکسیداسیون ترکیبات حلقوی موجود در آب است [۷]. در خصوص چگونگی تاثیر این روش بر عوامل میکروبی مکانیزم های مختلفی پیشنهاد شده است. از جمله این مکانیزم ها می توان به تاثیر اکسیدکنندگی و مرگ سلول میکروبی ناشی از مواد اکساینده تولیدی در فرآیندهای الکتروشیمیایی، تراوشدن غیرقابل برگشت غشای سلولی با اعمال میدان الکتریکی و نیز اکسیداسیون الکتروشیمیایی بخش های حیاتی به هنگام مواجهه با جریان الکتروسیسته و یا وارد شدن در میدان الکتریکی اشاره نمود [۸]. غالب ترین روش گندزدایی الکتروشیمیایی استفاده از اکسیدکننده های تولید شده طی فرآیند الکتروشیمیایی می باشد که در این دسته می توان به الکتروکلریناسیون اشاره کرد. تولید اکسیدکننده در این روش به چندین عامل بستگی دارد که می توان از جنس الکترو، ترکیب شیمیایی حمایت کننده الکترولیتی، جریان الکتریکی (یا ولتاژ) مصرفی، pH، دما و نوع فرآیند الکترولیز اشاره نمود [۵]. این مطالعه با هدف ارزیابی توانایی فرآیند الکتروشیمیایی بی پلار در حذف



شکل ۱: شمایی از سیستم الکتروشیمیایی دو قطبی مورد استفاده در این مطالعه

این راکتور الکترودها به صورت عمودی نصب شده بودند. تمامی الکترودهای جانبی و قربانی با توجه به مطالعات گذشته از جنس استیل انتخاب شده بود [۹]. مساحت سطح مفید هر یک از الکترودها برابر ۶۰ سانتی‌متر مربع بود. از نمک های  $\text{NaCl}$  و  $\text{Na}_2\text{SO}_4$  در غلظت‌های مختلف و بصورت جداگانه به عنوان حمایت‌کننده الکترولیتی استفاده شد. کارایی سیستم جهت حذف باکتری اشرشیاکلی در سوسپانسیون محتوی دانسیته میکروبی ۱۰۰-۱۰۰۰۰ عدد کلنی در میلی‌لیتر (CFU/ml) مورد بررسی قرار گرفت. از یک منبع تامین برق مستقیم (DC) با دامنه ولتاژ ۰ تا ۳۲ ولت و دامنه عبور جریان ۰ تا ۵ آمپر جهت تامین برق استفاده شد. مراحل کار به این شکل طراحی شد که در هر مرحله اثر یک پارامتر با ثابت نگه‌داشتن پارامترهای دیگر مشخص شد. با بدست آمدن مقدار بهینه یک پارامتر، این مقدار در مراحل بعدی استفاده شد بلافاصله پس از پایان زمان واکنش نمونه برداشته شده و بر روی محیط کشت نوترینت آگار کشت داده می‌شد تا تعداد باکتری‌های زنده مانده نهایی مورد سنجش قرار گیرد. همچنین جهت کنترل صحت سنجش‌ها قبل از شروع واکنش نمونه برداری انجام گرفته و کشت داده می‌شد. پس از ۲۴ ساعت از قرار دادن محیط‌های کشت در انکوباتور ۳۷ درجه، شمارش کلنی‌های رشد یافته صورت می‌گرفت. هر آزمایش سه نوبت تکرار شد و نتایج روی نمودارها میانگین اعداد بدست آمده سه نوبت تکرار می‌باشد.

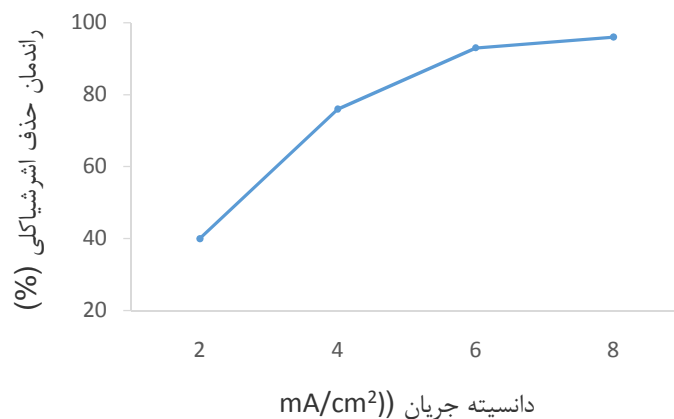
## یافته‌ها

اثر دانسیته جریان بر راندمان حذف باکتری اشرشیاکلی: نمودار ۱، درصد حذف باکتری اشرشیاکلی را در دانسیته جریان‌های  $2-8 \text{ mA/cm}^2$  نشان می‌دهد. در این مرحله از تعداد باکتریایی  $5000 \text{ CFU/ml}$ ، غلظت‌های  $0/2$  گرم بر لیتر  $\text{NaCl}$  و  $\text{Na}_2\text{SO}_4$  و مدت زمان واکنش ۳۰ دقیقه استفاده شد. هیچ‌گونه حذف باکتری اشرشیاکلی طی آزمایشات انجام گرفته در راکتور شاهد بدون استفاده از جریان الکتریکی مشاهده نگردید. مطالعات گذشته نشان می‌دهد که مرگ باکتری‌ها بیشتر به وسیله اکسیدکننده‌ها می‌باشد نه به دلیل جذب سطحی آن‌ها به سطح الکترودها. حداکثر غیرفعال‌سازی بدست آمده

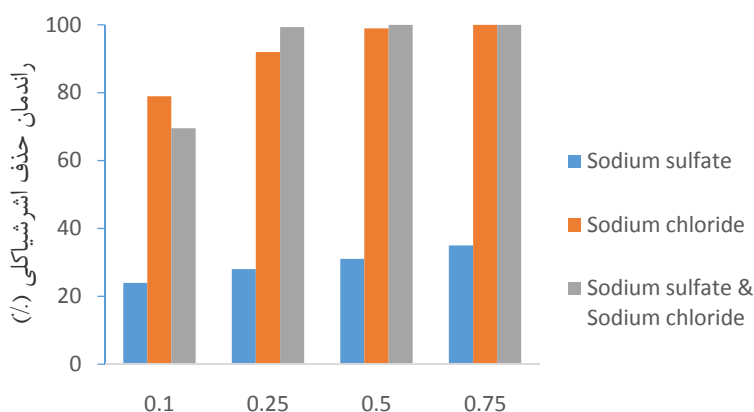
در دانسیته جریان‌های ۲، ۴، ۶ و ۸ میلی‌آمپر بر سانتی-مترمربع بعد از گذشت ۳۰ دقیقه به ترتیب به ۴۱، ۷۴، ۹۱ و ۹۶ درصد می‌رسد. با توجه به نتایج بدست آمده و افزایش ناچیز راندمان حذف باکتری اشرشیاکلی با افزایش دانسیته جریان از ۶ به ۸ میلی‌آمپر بر سانتی‌متر مربع و همچنین به دلیل اهمیت بالای دانسیته جریان الکتریکی از نظر اقتصادی، دانسیته جریان  $6 \text{ mA/cm}^2$  به عنوان مقدار بهینه انتخاب گردید و در مراحل بعدی به کار گرفته شد.

اثر حمایت‌کننده الکترولیتی بر راندمان حذف باکتری اشرشیاکلی: از مهمترین عوامل تاثیرگذار بر کارایی فرآیندهای الکتروشیمیایی، ماهیت و غلظت حمایت‌کننده‌های الکترولیتی موجود در محلول مورد تصفیه می‌باشد. حمایت‌کننده الکترولیتی شامل آنیون‌ها و کاتیون‌هایی است که در محلول مورد تصفیه وجود داشته و یا جهت تامین هدایت الکتریکی محیط به آن اضافه می‌شوند و می‌تواند اثر زیادی بر سرعت انحلال فلزات، ولتاژ مصرفی و بنابراین انرژی مصرفی و پدیده سطح رخ داده بین گونه‌های آلاینده و هیدروکسیدهای فلزی بگذارد. پارامتر تحت تاثیر بعدی پایداری الکتروشیمیایی یون‌های موجود در الکترولیت می‌باشد. انتخاب حمایت‌کننده الکترولیتی نباید تنها با در نظر گرفتن هدایت الکتریکی انجام پذیرد، بلکه توانایی حمایت‌کننده الکترولیتی جهت شرکت در فرآیندهای اکسیداسیون و احیای الکتروشیمیایی از اهمیت بالایی برخوردار است. در نتیجه این امر، بهره‌وری جریان الکتریکی و مصرف انرژی بهبود می‌یابد [۱۰].

راندمان حذف باکتری اشرشیاکلی در غلظت‌های اولیه  $\text{NaCl}$  و  $\text{Na}_2\text{SO}_4$  در نمودار ۲ نشان داده شده است. بعد از الکترولیز به مدت ۳۰ دقیقه میزان حذف باکتری اشرشیاکلی مورد سنجش قرار گرفت. گندزدایی الکتروشیمیایی باکتری اشرشیاکلی نشان می‌دهد که با افزایش غلظت کلر در محلول، راندمان حذف افزایش می‌یابد. نتایج نشان‌دهنده میزان تاثیر کلر تولیدشده به روش الکتروشیمیایی در گندزدایی می‌باشد. همان‌طور که مشاهده می‌شود کارایی حذف نسبت به حالتی که از نمک طعام به عنوان حمایت‌کننده الکترولیتی استفاده شده بود بسیار کمتر می‌باشد. راندمان حذف با افزایش غلظت نمک

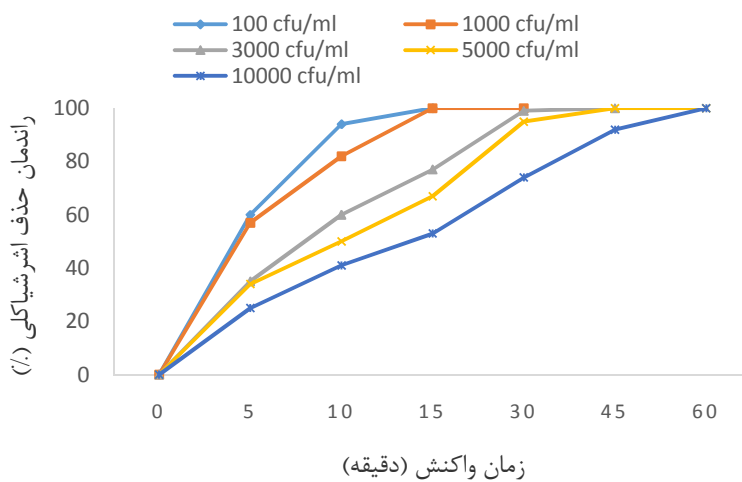


نمودار ۱: اثر دانسیته جریان بر راندمان حذف باکتری اشرشیاکلی



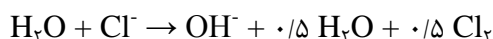
غلظت حمایت کننده الکترولیتی (گرم بر لیتر)

نمودار ۲: اثر حمایت کننده الکترولیتی بر راندمان حذف اشرشیاکلی



نمودار ۳: اثر تعداد باکتری اشرشیاکلی اولیه بر راندمان حذف آن در مدت زمان ۶۰ دقیقه

۲- کل:



بر طبق قانون الکترولیز فارادی مقدار اکسیژن کاهش یافته با میزان جریان الکتریکی عبوری از محلول متناسب می‌باشد. به همان مقداری که جریان الکتریکی از محلول عبور می‌کند تولید عوامل اکسیدکننده رخ می‌دهد و بنابراین راندمان حذف افزایش پیدا می‌کند. با افزایش محتوای نمک محلول میزان انرژی مصرفی به مقدار چشمگیری کاهش پیدا می‌یابد، بنابراین فرآیندهای الکتروشیمیایی برای محلول‌های نمکی مناسب‌تر هستند [۳].

میکروارگانسیم‌ها می‌توانند به صورت الکتروشیمیایی به شکل مستقیم و یا تولید گونه‌های شیمیایی بسیار فعال مانند رادیکال‌های آزاد و دیگر یون‌ها  $[\text{O}]$ ،  $[\text{OH}]$ ،  $\text{HO}_2$ ،  $\text{Cl}_2$ ،  $\text{ClO}$  (غیره) غیرفعال شوند [۱۰]. غیرفعال‌سازی مستقیم شامل جذب الکتریکی باکتری‌ها به سطح الکتروود و تخریب‌های بعدی انجام می‌گیرد. میزان اثر غیرفعال‌سازی مستقیم و غیرمستقیم به خوبی مشخص نشده است و در بسیاری از مطالعاتی که تا کنون انجام گرفته است، نقش هر دو پدیده چشمگیر گزارش شده است [۱۱]. یکی دیگر از دلایل احتمالی راندمان بالاتر فرآیند در زمان‌های ابتدایی واکنش می‌تواند افزایش pH باشد [۵]. طبق نتایج بدست آمده در بخش بررسی اثر دانسیته جریان، دانسیته جریان بالاتر باعث ایجاد pH بالاتر می‌شود که البته نتایج آن به صورت نمودار ارائه نشده است. pH در دقایق ابتدایی واکنش به شدت افزایش یافته و در طی ۱۰ دقیقه به حدود ۸/۵ می‌رسد، اما در ادامه با کاهش روبرو می‌شود و در نهایت به حدود ۷/۵ تا ۷/۸ می‌رسد. افزایش ابتدایی pH می‌تواند به دلیل تولید رادیکال‌های هیدروکسیل در کاتد، و کاهش pH می‌تواند به دلیل مصرف تدریجی آنیون‌های هیدروکسیل و همچنین تولید کاتیون‌های هیدروژن در واکنش‌های تجزیه  $\text{HOCl}$  و  $\text{OCl}^-$  در کنار واکنش  $\text{HOCl}$  در محلول مورد تصفیه باشد. علاوه بر این، تولید اسیدهای آلی مختلف باعث افت pH می‌شود [۱۲]. یکی دیگر از دلایل احتمالی راندمان بالاتر فرآیند در زمان‌های ابتدایی واکنش می‌تواند افزایش pH باشد [۵]. طبق نتایج بدست آمده در بخش بررسی اثر دانسیته جریان،

سولفات سدیم به آرامی افزایش می‌یابد و در حداکثر میزان خود از ۲۵ درصد فراتر نمی‌رود.

اثر حمایت‌کننده الکترولیتی بر راندمان حذف باکتری اشرشیاکلی: با در نظر گرفتن هدایت الکتریکی و ولتاژ کاربردی و همچنین با توجه به اینکه افزایش بیش از حد TDS محلول از نظر کاربردی امری منطقی نمی‌باشد و به دلیل تفاوت ناچیز راندمان حذف با افزایش غلظت  $\text{NaCl}$  از ۰/۲۵ به ۰/۵ گرم بر لیتر، در مراحل بعدی از کلرید سدیم و سولفات سدیم هرکدام به غلظت ۰/۲۵ گرم بر لیتر به عنوان حمایت‌کننده الکترولیتی استفاده گردید.

اثر تعداد اولیه باکتری بر راندمان حذف اشرشیاکلی: نمودار ۳، درصد حذف باکتری اشرشیاکلی در حضور  $10000-100$  CFU/ml عدد باکتری را نشان می‌دهد. در این مرحله از دانسیته جریان  $6 \text{ mA/cm}^2$  و غلظت‌های ۰/۲۵ گرم بر لیتر  $\text{NaCl}$  استفاده گردید. همانطور که در شکل نشان داده شده است در مدت زمان ۶۰ دقیقه راندمان حذف با افزایش تعداد اولیه باکتری از ۱۰۰ به  $10000$  CFU/ml به مقدار زیادی کاهش پیدا می‌کند.

گندزدایی در نتیجه اکسیداسیون مستقیم و تولید رادیکال‌های آزاد در دقایق ابتدایی واکنش به سرعت افزایش می‌یابد و با گذشت زمان با سرعت کمتر و به صورت خطی افزایش پیدا می‌کند. همان‌طور که در شکل مشاهده می‌شود تا غلظت  $3000$  CFU/ml، بیش از ۷۰ درصد حذف تعداد باکتریایی در ۱۵ دقیقه ابتدایی واکنش انجام می‌گیرد. باگذشت زمان واکنش از سرعت حذف اشرشیاکلی کاسته می‌شود و از دقیقه ۴۵ زمان واکنش به بعد راندمان حذف افزایش ناچیزی دارد.

## بحث

طبق روابط ۱، ۲ و ۳ بر روی الکترودهای آند و کاتد بترتیب عمل اکسیداسیون و احیا بصورت زیر انجام می‌پذیرد [۸]:

در کاتد:



۱- در آند:



دانسیته جریان بالاتر باعث ایجاد pH بالاتر می‌شود که البته نتایج آن در شکل ارائه نشده است. pH در دقیق ابتدایی واکنش به شدت افزایش یافته و در طی ۱۰ دقیقه به حدود ۸/۵ می‌رسد، اما در ادامه با کاهش روبرو می‌شود و در نهایت به حدود ۷/۵ تا ۷/۸ می‌رسد. افزایش ابتدایی pH می‌تواند به دلیل تولید رادیکال‌های هیدروکسیل در کاتد، و کاهش pH می‌تواند به دلیل مصرف تدریجی آنیون‌های هیدروکسیل و همچنین تولید کاتیون‌های هیدروژن در واکنش‌های تجزیه HOCl و OCl<sup>-</sup> در کنار واکنش HOCl در محلول مورد تصفیه باشد. علاوه بر این، تولید اسیدهای آلی مختلف باعث افت pH می‌شود [۱۳]. همچنین باید ذکر گردد با افزایش pH به پتانسیل الکتریکی کمتری برای دستیابی به حداکثر حذف باکتری‌ها نیاز است. در محیط قلیایی، هدایت الکتریکی به میزان قابل ملاحظه‌ای بالاتر از هدایت الکتریکی محیط‌های خنثی و اسیدی است. همچنین در شرایط قلیایی نسبت به شرایط اسیدی و خنثی، غیرفعال شدن الکترودها با سرعت پایین‌تری رخ می‌دهد. بنابراین می‌توان نتیجه‌گیری کرد که در دقیق ابتدایی واکنش، توانایی سیستم در گندزدایی الکتروشیمیایی بیشتر است [۵].

واکنش‌های رقابتی بین الکترودها مانند نمو اکسیژن در دانسیته جریان‌های بالاتر منجر به مصرف بار الکتریکی بیشتری می‌شود. دلیل تفاوت اندک میزان دانسیته جریان ۶ و ۸ بر نرخ حذف اشرشیاکلی می‌تواند محدودیت انتقال جرم بین محلول و الکترودها باشد [۱۳]. از مهمترین عوامل تاثیرگذار بر کارایی فرآیندهای الکتروشیمیایی، ماهیت و غلظت حمایت‌کننده‌های الکترولیتی موجود در محلول مورد تصفیه می‌باشد. حمایت‌کننده الکترولیتی شامل آنیون‌ها و کاتیون‌هایی است که در محلول مورد تصفیه وجود داشته و یا جهت تامین هدایت الکتریکی محیط به آن اضافه می‌شوند و می‌تواند اثر زیادی بر سرعت انحلال فلزات، ولتاژ مصرفی و بنابراین انرژی مصرفی و پدیده سطح رخ داده بین گونه‌های آلاینده و هیدروکسیدهای فلزی بگذارد. پارامتر تحت تاثیر بعدی پایداری الکتروشیمیایی یون‌های موجود در الکترولیت می‌باشد. انتخاب حمایت‌کننده الکترولیتی نباید تنها با در

نظر گرفتن هدایت الکتریکی انجام پذیرد، بلکه توانایی حمایت‌کننده الکترولیتی جهت شرکت در فرآیندهای اکسیداسیون و احیای الکتروشیمیایی از اهمیت بالایی برخوردار است. در نتیجه این امر، بهره‌وری جریان الکتریکی و مصرف انرژی بهبود می‌یابد [۱۴]. در مطالعه انجام گرفته توسط کرویک<sup>۱</sup> و همکاران (۲۰۰۵) بر روی اثر ماهیت حمایت‌کننده الکترولیتی بر راندمان حذف باکتری اشرشیاکلی، در غلظت ۰/۰۱ مولار نمک طعام و دانسیته جریان حدود ۵ میلی‌آمپر بر سانتی‌متر مربع در طول ۶۰ دقیقه به راندمان ۱۰۰ درصد می‌توان رسید. در مطالعه انجام گرفته توسط آقای کرویک و همکاران بر روی اثر ماهیت حمایت‌کننده الکترولیتی بر راندمان حذف باکتری اشرشیاکلی، در غلظت ۰/۰۱ مولار نمک طعام و دانسیته جریان حدود ۵ میلی‌آمپر بر سانتی‌متر مربع در طول ۶۰ دقیقه به راندمان ۱۰۰ درصد می‌توان رسید. در غلظت ۰/۰۳۶ مولار NaH<sub>2</sub>PO<sub>4</sub> در دانسیته جریان ۲۷ mA/cm<sup>2</sup> نیز راندمان حذف ۹۹/۹ درصدی بدست آمد [۳]. این نتایج با نتایج مطالعه حاضر هماهنگی زیادی دارد. در مورد گندزدایی در حضور نمک Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>، لی<sup>۲</sup> و همکاران (۲۰۱۱) نشان دادند که اکسیدکننده‌های تولیدی در حضور SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> مانند S<sub>2</sub>O<sub>8</sub><sup>2-</sup> در گندزدایی شرکت می‌کنند [۱۵]. در مطالعه لوپز<sup>۳</sup> و همکاران (۲۰۱۲)، راندمان حذف باکتری اشرشیاکلی در COD بین ۶۰ تا ۸۰۰ میلی‌گرم بر لیتر در عدم حضور نمک طعام بعد از گذشت ۶۰ دقیقه و در حضور نمک طعام بعد از ۱۰ دقیقه، بیش از ۹۹ درصد بدست آمد. همچنین دلت و همکاران (۲۰۰۸) با استفاده از دانسیته جریان ۲۰ mA/cm<sup>2</sup> بعد از گذشت ۵ دقیقه به راندمان حذف ۱۰۰ درصد دست یافتند. در مطالعه آقای لویز و همکاران، راندمان حذف باکتری اشرشیاکلی در COD بین ۶۰ تا ۸۰۰ میلی‌گرم بر لیتر در عدم حضور نمک طعام بعد از گذشت ۶۰ دقیقه و در حضور نمک طعام بعد از ۱۰ دقیقه، بیش از ۹۹ درصد بدست آمد. همچنین آقایان جیما و دلت و همکاران با استفاده از دانسیته جریان ۲۰ mA/cm<sup>2</sup> بعد از گذشت

1 - Kerwick

2 - Li

3 - Lopez

به ۱۰۰۰۰، زمان مورد نیاز برای رسیدن به حذف کامل این باکتری از کمتر از ۱۵ دقیقه به حدود ۶۰ دقیقه افزایش یافت. نتایج این مطالعه نشان می‌دهد در صورت بهینه سازی پارامترهای موثر بر فرآیند گندزدایی الکتروشیمیایی، این روش می‌تواند خود را به عنوان یکی از گزینه‌های مناسب از نظر اقتصادی و زیست‌محیطی جهت گندزدایی آب در صنایع مختلف مطرح کند.

### تشکر و قدردانی

بدین‌وسیله از دانشگاه تربیت مدرس به دلیل فراهم نمودن امکانات انجام این تحقیق در چهارچوب پایان نامه کارشناسی ارشد با کد پ ز ۳۳۰۲۳۱۶ تشکر و قدردانی می‌گردد.

۵ دقیقه به راندمان حذف ۱۰۰ درصد دست یافتند. دلیل احتمالی راندمان کمتر مطالعه حاضر در حذف باکتری، کاربرد جریان الکتریکی پایین‌تر و تعداد اولیه باکتریایی بالاتر می‌باشد [۱۴]. همانطور که در شکل ۳ مشاهده شد، راندمان حذف اشرشیاکلی در غلظت‌های مختلف NaCl و Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> و دانسیته جریان‌های یکسان ارایه شده است. تعداد باکتریایی در طول زمان واکنش با کاهش روبرو می‌شود و با افزایش غلظت NaCl حذف باکتری‌ها افزایش می‌یابد. همچنین تاثیر استفاده از Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> به عنوان حمایت‌کننده الکترولیتی در حذف الکتروشیمیایی اشرشیاکلی کمتر از نمک NaCl می‌باشد که با نتایج لی و همکاران (۲۰۰۲) مطابقت دارد [۱۶]. این نتایج پیشنهاد می‌کند NaCl با اکسید شدن به HOCl می‌تواند حذف باکتری اشرشیاکلی را افزایش دهد. قابل ذکر است پتانسیل الکتریکی سیستم در حین الکترولیز افزایش می‌یابد، اگرچه مقدار آن قابل توجه نیست. علت این امر می‌تواند تولید HOCl ناشی از تجزیه NaCl باشد که در طول زمان منجر به کاهش هدایت الکتریکی محلول می‌شود [۵]. همچنین با افزایش غلظت باکتری در محلول از میزان جریان الکتریکی عبوری کاسته می‌شود. این امر می‌تواند به این دلیل باشد که با افزایش غلظت اولیه باکتری، غیرفعال‌سازی سطح الکترودها قوت بیشتری می‌گیرد. در غلظت‌های بالاتر اشرشیاکلی، رقابت بین باکتری‌ها و محصولات میانی برای جذب به مناطق فعال سطح الکترودها افزایش می‌یابد. همچنین ممکن است این ترکیبات میانی در آب نامحلول باشند و با رسوب کردن بر سطح الکترودها باعث غیرفعال‌سازی الکترودها شوند [۱۷].

### نتیجه‌گیری

کارایی تکنیک الکتروشیمیایی در حذف باکتری اشرشیاکلی تحت تاثیر پیراسنجه‌های دانسیته جریان، حمایت‌کننده الکترولیتی و تعداد باکتریایی مختلف نشان داد با افزایش دانسیته جریان تا ۶ mA/cm<sup>2</sup>، راندمان حذف باکتری اشرشیاکلی تا ۹۳٪ افزایش می‌یابد. از طرفی در حضور غلظت بهینه NaCl یعنی ۰/۲۵ گرم در لیتر، کارایی حذف اشرشیاکلی به مقدار زیادی افزایش می‌یابد، اما چنین پدیده‌ای در مورد Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> مشاهده نگردد. با افزایش تعداد اولیه باکتری اشرشیاکلی از ۱۰۰

## References

1. Weiner RE, Matthews R, Environmental engineering. 4th ed. UK: Butterworth-Heinemann, 2003, 1-50.
2. Delaedt Y, Daneels A, Declerck P, Behets J, Ryckeboer J, Peters E, "et al", The impact of electrochemical disinfection on Escherichia coli and Legionella pneumophila in tap water, Microbiol Research, 2008;163:192-199.
3. Kerwick MI, Reddy SM, Chamberlain AHL, Holt DM. Electrochemical disinfection, an environmentally acceptable method of drinking water disinfection, Electrochim Acta, 2005;50:5270-5277.
4. Kim BR, Anderson JE, Mueller SA, Gaines WA, Kendall AM, Literature review efficacy of various disinfectants against Legionella in water systems, Water Res. 2002; 36(18): 4433-4444.
5. Jeong J, Kim JY, Cho M, Choi W, Yoon J, Inactivation of Escherichia coli in the electrochemical disinfection process using a Pt anode, Chemosphere, 2007;67:652-659.
6. Chizuko M, Sano K, Morimatsu S, Kiura H, Goto T, Kohno T, Hong W, Disinfection potential of electrolyzed solutions containing sodium chloride at low concentrations, Journal of Virological Methods. 2000; 85(1): 163-174.
7. Michele M, Vacca A, Polcaro AM, Palmas S, Ruiz JR, Pozzo AD, Electrochemical treatment of phenolic waters in presence of chloride with boron-doped diamond (BDD) anodes: experimental study and mathematical model, J Hazard Mater, 2010; 174(1): 314-322.
8. Rahmani AR, JonidiJafari A, Mahvi AH, Investigation of water disinfection by electrolysis, Pakistan Journal of Biological Sciences, 2005;8(6):910-13 [Persian]
9. Deza MA, Araujo M, Garrido MJ, Inactivation of Escherichia coli, Listeria monocytogenes, Pseudomonas aeruginosa and Staphylococcus aureus on stainless steel and glass surfaces by neutral electrolyzed water, Lett Appl Microbiol, 2005; 40(5): 341-346.
10. Drees K, Abbaszadegan M, Maier R, Comparative electrochemical inactivation of bacteria and bacteriophage, Water Res. 2003;37:2291-2300.
11. Matsunaga T, Nakasono S, Kitajima Y, Horiguchi K, Electrochemical disinfection of bacteria in drinking water using activated carbon fibers, Biotechnol Bioeng, 1994;43(5):429-433.
12. Stoner GE, Cahen GL, Sachyani M, Gileadi E, 457—The mechanism of low frequency electrochemical disinfection, J Electroanal Chem Interfacial Electrochem, 1982; 141(3): 229-243.
13. Lopez Galvez F, Posada Izquierdo GD, Selma MV, Perez Rodriguez F, Gobet J, Gil MI, "et al", Electrochemical disinfection: An efficient treatment to inactivate Escherichia coli O157:H7 in process wash water containing organic matter, Food Microbiol, 2012;30:146-156.
14. Yıldız YŞ, Koparal AS, Keskinler B. Effect of initial pH and supporting electrolyte on the treatment of water containing high concentration of humic substances by electrocoagulation, Chemical Engineering Journal, 2008; 138(1): 63-72.
16. Li XY, Lo PSY, Ding F, Sin SHP, Electrochemical disinfection of saline wastewater effluent, journal of environmental engineering, 2002;128( 8):697- 704.
17. Li M, Feng C, Zhang Z, Lei X, Chen R, Yang Y, "et al", Simultaneous reduction of nitrate and oxidation of by-products using electrochemical method, J Hazard Mater, 2009;171:724-730.

# Removal of *Escherichia coli* from Contaminated Water Using Bipolar Electrochemical Systems

Hasanbiki A<sup>1</sup>, Rezaee A<sup>2\*</sup>, Masoumbigi H<sup>3</sup>, Hossini H<sup>4</sup>

<sup>1</sup>Department of Environmental Health, Faculty of Medical Sciences, Tarbiat Modares university, Tehran, Iran.

<sup>2</sup>Department of Environmental Health, Faculty of Medical Sciences, Tarbiat Modares university, Tehran, Iran.

<sup>3</sup>Health Research Center and Environmental Health engineering department, Faculty of Health, Baqiyatallah University of Medical Science, Tehran, Iran

<sup>4</sup>Department of Environmental Health, Faculty of Medical Sciences, Tarbiat Modares university, Tehran, Iran.

\* **Corresponding author:** Faculty of Medical Sciences, Tarbiat Modares university, Tehran, Iran

Email: rezaee@modares.ac.ir

## Abstract

**Background & objectives:** Presence of various microorganism, particularly human pathogens, in drinking water causes many health problems. Therefore, the water disinfection has been one of the main drinking water treatment processes. *E. coli* bacteria is known as an appropriate microbial water quality indicator. Electrochemical processes are very powerful for the removal of pollutants, particularly microbial contaminants, due to low environmental effects, ease of use and relative costs down for it. The aim of this study was to investigate the performance of electrochemical process in *E. coli* bacteria removal from water as well as the effect of various parameters on the performance of it.

**Material & Methods:** The electrochemical reactor was constructed and *E. coli* bacteria removal performance of under the influence of current density, initial bacteria population and supporting electrolyte type and concentration have evaluated.

**Results:** The best performance of the electrochemical system was obtained in the current density of 6 mA/cm<sup>2</sup>, concentrations of 0.25 g/l for each NaCl and Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> as supporting electrolyte and CFU/100 ml initial bacterial population.

**Conclusion:** With the increasing current density up to 6 mA/cm<sup>2</sup>, efficiency of bacteria removal was significantly increased. In investigation on effect of supporting electrolyte type and concentration were shown that by increasing the concentration of NaCl, the performance showed a significant increase *E. coli* removal. This performance has not been obtained in the case of Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> as supporting electrolyte. With increasing of the initial bacteria number, higher time were needs to the complete elimination *E. coli*, when the initial bacterial number were increased.

**Key words:** Electrochemical techniques, *Escherichia coli*, Polluted water