

# کارایی براده آهن در حذف آرسنات و آرسنیت از آب آشامیدنی

امیرحسین محوی<sup>۳</sup>  
فروغ واعظی<sup>۵</sup>

سیمین ناصری<sup>۲</sup>  
آذر قصری<sup>۴</sup>

علیرضا عسگری<sup>۱</sup>  
اقدس خیری<sup>۴</sup>

(دریافت ۸۶/۱۰/۲۴ پذیرش ۸۷/۱۱/۱۷)

## چکیده

آلودگی آبهای زیرزمینی به آرسنیک اخیراً به‌عنوان یک مشکل بزرگ مورد توجه قرار گرفته است. گزارشهای متعددی از آلودگی آبهای سطحی و زیرزمینی به آرسنیک و به‌خصوص دو ترکیب آرسنات (آرسنیک پنج ظرفیتی) و آرسنیت (آرسنیک سه ظرفیتی) در دسترس است که در این میان به برخی قسمتهای استان کردستان می‌توان اشاره کرد. فناوری‌های متعددی برای حذف آرسنیک از آب آشامیدنی وجود دارد که عموماً هزینه‌های بالایی را در بر دارند. در این مطالعه از براده‌های آهن به‌عنوان ماده‌ای ارزان و در دسترس برای حذف آرسنات و آرسنیت در سه غلظت ۰/۵، ۱ و ۲ میلی‌گرم در لیتر و در وزن‌های ۰/۲۵، ۰/۵، ۱ و ۱/۵ گرم استفاده گردید و اثر تغییرات زمان، غلظت، pH، وزن جاذب و همچنین اثر تغییر غلظت یون‌های سولفات و کلراید در فرایند حذف بررسی شد. علاوه بر آن، تبعیت فرایند جذب از معادلات فروندلیخ و لانگمیر مورد بررسی قرار گرفت. برای تجزیه و تحلیل داده‌ها از نرم افزار Excel استفاده گردید. نتایج آزمایش‌ها نشان داد که جاذب براده آهن دارای کارایی بالایی در حذف هر دو ترکیب آرسنات و آرسنیت در pH حدود ۷ و زمان تماس ۳۰ دقیقه است. در واقع جاذب در دز ۱ گرم در لیتر، راندمان بالایی در حذف آرسنات و آرسنیت دارد. همچنین نتایج نشان داد که یون‌های سولفات و کلراید تأثیر چندانی در کارایی حذف ندارند. از مشاهدات این پژوهش می‌توان دریافت که آرسنات و آرسنیت با ضریب همبستگی  $R^2 > 0.96$  به‌طور یکسانی از ایزوترم جذب فروندلیخ تبعیت می‌کنند؛ در حالی که در مورد ایزوترم جذب لانگمیر، آرسنات با ضریب همبستگی  $R^2 > 0.96$  نسبت به آرسنیت با داشتن ضریب همبستگی  $R^2 > 0.91$  تبعیت بیشتری را نشان می‌دهد. نتایج همچنین نشان داد که میزان آهن افزوده شده به محیط، چندین برابر بیشتر از مقدار استاندارد ۰/۳ میلی‌گرم در لیتر آب آشامیدنی است. در نهایت از آنجایی که براده آهن به مقدار فراوان و ارزان در دسترس می‌باشد و در ضمن دارای کارایی بالایی در حذف ترکیبات آرسنیک بدون نیاز به اصلاح pH آب است، می‌توان از آن برای حذف آرسنیک در مناطق آلوده کشور استفاده نمود.

**واژه‌های کلیدی:** آرسنات، آرسنیت، براده‌های آهن، فرایند جذب، آب آشامیدنی.

## Effectiveness of Iron Filings in Arsenate and Arsenite Removal from Drinking Water

AliReza Asgari<sup>1</sup>  
Aghdas Kheiri<sup>4</sup>

Simin Nasseri<sup>2</sup>  
Azar Qasri<sup>4</sup>

Amir Hossein Mahvi<sup>3</sup>  
Forough Vaezi<sup>5</sup>

(Received Jan 14, 2008 Accepted Feb. 6, 2009)

### Abstract

Groundwater contamination with arsenic (As) has been recognized as a serious problem and there are various reports from different regions, especially from Kurdistan Province, indicating the presence of As in the form of arsenate and arsenite in water resources. Removal of these compounds can be accomplished by various methods but they are all expensive. In this study, three concentrations (0.5, 1, and 1 mg/L) of iron filings (0.25, 0.5, 1 and 1.5 grams) were used as a cheap and available material for adsorption of As and the effects of contact time and pH as well as chloride and sulfate ion concentrations on removal efficiency were determined. Description of adsorption isotherms (Freundlich and Langmuir) was accomplished. Finally, the data obtained were analyzed using the Excel software. The results indicate that iron filings show a high capability in adsorbing both arsenate and arsenic compounds from polluted water samples at pH 7 over a short contact time of 30 minutes. In fact, this cheap adsorbent shows good treatment when used at doses as low as 1g/L with no considerable interference by interfering anions ( $SO_4^{2-}$  and  $Cl^-$ ). It appears that the adsorbability

1. M.Sc., Faculty of Health, Shahrood University of Medical Sciences  
2. Prof., Faculty of Health, Tehran University of Medical Sciences  
3. Assist. Prof., Faculty of Health, Tehran University of Medical Sciences  
(Corresponding Author) (+98 21) 88951400 ahmahvi@yahoo.com  
4. Environmental health Expert, Faculty of Health, Tehran University of  
Medical Sciences  
5. Assoc. Prof., Faculty of Health, Tehran University of Medical Sciences

۱- کارشناس ارشد، گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی  
شاهرود  
۲- استاد، گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی تهران  
۳- استادیار، گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی تهران  
(نویسنده مسئول) ۰۲۱) ۸۸۹۵۱۴۰۰ ahmahvi@yahoo.com  
۴- کارشناس، گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی تهران  
۵- دانشیار، گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی تهران

of both arsenate and arsenite by iron filings can be expressed by Ferundlich isotherm with  $R^2 > 0.96$ , whereas arsenate adsorption (with a  $R^2$  value of more than 0.96) can be better described by Langmuir isotherm than arsenite (with  $R^2$  value of more than 0.91). Results also indicate that the amount of iron added to water is much more than the standard value of 0.3mg/L set for drinking water. Nevertheless, this method has far greater advantages in terms of costs and availability than similar methods. Besides, as removal by this method is efficient without pH modification, iron filing treatment of drinking water may, therefore, be recommended as a convenient solution to the problem of water resources polluted with As in Iran.

**Keywords:** Arsenate, Arsenite, Iron Filings, Adsorption Process, Drinking Water.

## ۱- مقدمه

آرسنیک شبه فلز سمی معروفی است که به سه شکل زرد، سیاه و خاکستری یافت می‌شود. آب آشامیدنی به‌عنوان یک منبع قابل توجه برای مواجهه با آرسنیک شناخته شده است [۱ و ۲]. در آب طبیعی آرسنیک به دوشکل آرسنات (V)  $As(V)$  به فرم  $H_2AsO_4^-$  و آرسنیت (III)  $As(III)$  به فرم  $H_2AsO_3$  وجود دارد.  $As(V)$  به‌عنوان گونه غالب آرسنیک در آب سطحی است، در حالی که  $As(III)$  در آب زیرزمینی بیشتر دیده می‌شود.  $As(III)$  برای سیستم‌های بیولوژیکی سمی‌تر از  $As(V)$  می‌باشد [۳ و ۴]. در بسیاری از مناطق دنیا غلظت آرسنیک در آب زیر زمینی و آبهای سطحی بیشتر از استانداردهای ملی و بین‌المللی آب آشامیدنی است [۵]. آرسنیک می‌تواند منجر به یک سری از بیماری‌ها مانند: دیابت، بیماریهای کبدی، بیماریهای قلبی و عروقی، پوستی و سرطان شود [۶]. آژانس حفاظت محیط زیست آمریکا، اخیراً حداکثر غلظت مجاز آرسنیک در آب آشامیدنی را از ۵۰ به ۱۰ میکروگرم در لیتر رسانده است [۷]. فناوری‌های مختلف و مؤثری برای کاهش غلظت آرسنیک در محلولهای آبی مانند انعقاد و زلال‌سازی، اسمز معکوس، تعویض یونی، فیلترهای غشایی و فرایند جذب وجود دارد که هر یک دارای مزایا و معایبی است که از عمده‌ترین مشکلات استفاده از این روشها می‌توان به هزینه‌بر بودن و نیاز به فناوری‌های پیچیده و لزوم قابلیت بالای اپراتور اشاره کرد [۸-۱۰]. در این مطالعه از براده‌های آهن به‌عنوان یک جاذب ارزان، داخلی و در دسترس استفاده شد. هدف از انجام این مطالعه بررسی کارایی جذب آرسنات و آرسنیت توسط این جاذب است زیرا در کشور ما نیز قسمتهایی از استان کردستان مشکل آلودگی طبیعی آب به آرسنیک را دارند [۱۱]. همچنین در این مطالعه اثر یون‌های سولفات و کلراید به‌عنوان دو یون معمول در آب آشامیدنی بر فرایند جذب بررسی گردید. نیکولائوس و همکاران<sup>۲</sup> در سال ۲۰۰۲ مطالعه‌ای در حدود ۸ ماه توسط فیلترهایی با بستر آهن برای حذف آرسنیت از آب زیرزمینی انجام دادند [۱۲]. در این مطالعه نشان داده شد که با استفاده از ستون براده آهن می‌توان غلظت آرسنیک در آب

آشامیدنی را به کمتر از ۰/۰۱ میلی‌گرم در لیتر رساند. لیزنگ<sup>۳</sup> در سال ۲۰۰۳ روشی برای آماده سازی یون‌های آهن سه ظرفیتی به‌عنوان جاذب برای حذف آرسنیک ارائه نمود و در واقع جاذب Fe-Si تهیه گردید و مقدار بهینه نسبت Si/Fe برای داشتن یک ظرفیت بالای جذب آرسنیک حدود ۰/۳۳ ذکر شد [۱۳]. زهنگ<sup>۴</sup> و همکاران در سال ۲۰۰۳ حذف آرسنیک پنج ظرفیتی توسط جاذب Ce-Fe تحت شرایط مختلف را مورد مطالعه قرار دادند. غلظت اولیه آرسنات مورد استفاده ۱ میلی‌گرم در لیتر و ظرفیت جذب آرسنیک در این مطالعه در pH برابر ۷ حدود ۱۶ میلی‌گرم بر گرم از جاذب بود، در حالی که حداکثر ظرفیت جذب در pH برابر ۵/۵ برای جاذب آلومینا ۸/۳ میلی‌گرم در لیتر گزارش شد [۱۴]. هیسنگ و همکاران<sup>۵</sup> در سال ۲۰۰۴ مطالعه در زمینه حذف آرسنیک توسط آهن صفر ظرفیتی انجام دادند [۱۵]. در این مطالعه، غلظت بالای آرسنیک ۵۰ میلی‌گرم در لیتر از نمک سدیم آرسنیت برای مشابه‌سازی شرایط بسیار آلوده آب در ایالات متحده آمریکا استفاده شد. بررسی سینتیکی نشان داد که حذف آرسنیک از نوع واکنش‌های درجه صفر است. ظرفیت جذب آرسنیک توسط آهن مورد استفاده در این مطالعه حدود ۷/۵ میلی‌گرم آرسنیک به ازای هر گرم جاذب گزارش شد. لئوپین و همکاران<sup>۶</sup> در سال ۲۰۰۵ آرسنیک سه ظرفیتی را از آبهای زیر زمینی بنگلادش با استفاده از ماسه‌های پوشیده شده از آهن صفر ظرفیتی مورد اکسیداسیون و حذف قرار دادند و همین‌طور فسفات و سیلیکات را به‌عنوان عوامل مزاحم، مورد مطالعه قرار دادند [۱۶]. غلظت اولیه آرسنیت در آب مورد مطالعه ۰/۵ میلی‌گرم در لیتر و میزان فسفات ۲ تا ۳ میلی‌گرم در لیتر، سیلیکات ۲۰ میلی‌گرم در لیتر و pH آب ۷ بود. آزمایش‌ها نشان داد که چهار مرحله فیلتراسیون با جاذب مورد مطالعه موجب کاهش آرسنیت به کمتر از ۰/۰۵ میلی‌گرم در لیتر خواهد شد. دیسچمپس و همکاران<sup>۷</sup> در سال ۲۰۰۵ حذف آرسنیک سه و پنج ظرفیتی از آب با استفاده از آهن طبیعی و منگنز مورد مطالعه قرار دادند. اندازه ذرات جاذب مورد استفاده در گستره ۳۸ میکرومتر

<sup>3</sup> Le Zeng

<sup>4</sup> Zheng

<sup>5</sup> Hsing et al.

<sup>6</sup> Leupin et al.

<sup>7</sup> Deschamps et al.

<sup>1</sup> Maximum Concentration Level (MCL)

<sup>2</sup> Nicolaose et al.

تا ۵ میلی متر بود [۱۷]. pH مورد استفاده در این مطالعه در آزمایش‌های ناپیوسته ۳ تا ۸/۵ و در ستون جذب حدود ۷ بود. در pH حدود ۳ تا ۸/۵ حداکثر ظرفیت جذب ۱۴/۷ میلی‌گرم بر گرم گزارش گردید و همچنین در ستون جذب گزارش شد که تا حجم بستر ۴۷۰۰، میزان آرسنیک خروجی کمتر از ۰/۰۱ میلی‌گرم در لیتر می‌باشد. بدر و الزمان و همکاران<sup>۱</sup> در سال ۲۰۰۴ مطالعه‌ای در زمینه حذف آرسنیک توسط گرانول‌های هیدروکسید آهن انجام دادند [۱۸]. در این مطالعه نشان داده شد که جذب آرسنیک توسط گرانول هیدروکسید آهن<sup>۲</sup> از مدل ایزوترم فروندلیخ و لانگمیر تبعیت دارد و در pH برابر ۷، دانسیته جذب ۸ میکروگرم به ازای هر میلی‌گرم جاذب خشک بود.

## ۲- روش کار

### ۲-۱- تهیه و آماده‌سازی جاذب

براده‌های آهن مورد نیاز در این مطالعه از کارگاه‌های تراشکاری سطح شهر تهران تهیه شد. این براده‌ها زائادات حاصل از عملیات تراشکاری بودند که برای سهولت در عملیات تراش فلزات در حین عملیات تراشکاری به روغن و کف صابون آغشته شده بودند. برای زدایش این ناخالصی‌ها از براده‌های تهیه شده، ابتدا براده‌ها توسط شوینده‌های معمولی چندین مرتبه شستشو داده شد تا روغن و کف صابون باقی مانده از سطح آنها پاک شود و سپس به منظور اطمینان از وجود هرگونه روغن باقی مانده، براده‌های مورد نظر در کوره و دمای  $5 \pm 550$  درجه سانتی‌گراد به مدت یک ساعت قرار داده شد و پس از خنک شدن از الک با قطر کمتر از ۱ میلی‌متر عبور کرد.

### ۲-۲- تهیه نمونه‌ها

برای تهیه آرسنات و آرسنیت از نمک‌های آرسنات سدیم  $\text{NaAsO}_2$  و آرسنیت سدیم  $\text{Na}_2\text{HAsO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$  استفاده شد. در ضمن به منظور جلوگیری از اکسیداسیون آرسنیت به آرسنات محلول‌های مورد نظر به صورت روزانه در غلظت‌های ۱، ۰/۵ و ۲ میلی‌گرم در لیتر تهیه می‌شد. محلول‌های سولفات و کلراید در دو غلظت ۲۰۰ و ۴۰۰ میلی‌گرم در لیتر از نمک‌های سولفات پتاسیم ( $\text{K}_2\text{SO}_4$ ) و کلرورسدیم ( $\text{NaCl}$ ) تهیه شد. کلیه محلول‌های ذکر شده با استفاده از آب دی‌یونیزه در آزمایشگاه شیمی گروه مهندسی بهداشت محیط دانشگاه علوم پزشکی تهران تهیه گردیدند.

### ۲-۳- انجام آزمایش‌ها

محلول‌های آرسنات و آرسنیت تهیه شده در غلظت‌های ۱، ۰/۵ و ۲ میلی‌گرم در لیتر در تماس با جاذب براده آهن در ذرات ۰/۲۵

۰/۵، ۱ و ۱/۵ گرم در لیتر در زمان‌های تماس ۵، ۱۰، ۱۵، ۳۰ و ۶۰ دقیقه قرار گرفتند و برای ایجاد اختلاط از دستگاه همزن مدل هیدولف<sup>۳</sup> با سرعت ۳۰۰ دور در دقیقه استفاده شد. برای سنجش غلظت آرسنات و آرسنیت باقی‌مانده پس از فرایند جذب، از کیت سنجش آرسنیک EZ محصول شرکت هک<sup>۴</sup> آمریکا استفاده گردید. کلیه سنجش‌های انجام شده توسط این کیت براساس مطالعه مصدافی‌نیا و همکاران در حجم ۹/۶ میلی‌لیتر با توان سنجش ۳۵، ۷۵، ۱۷۵، ۵۰۰، ۱۵۰۰ و ۴۰۰۰ میکروگرم در لیتر با توجه به تغییر رنگ و مقایسه چشمی با شاخص رنگی موجود در کیت صورت گرفت. به منظور جلوگیری از خطا از افرادی که هیچ اطلاعی از آزمایش‌ها نداشتند در مقایسه چشمی استفاده شد [۱۹]. به منظور بررسی اثر pH از اسید نیتریک و سود سوزآور برای تنظیم pH در حدود ۵، ۵/۵، ۶، ۶/۵، ۷، ۷/۵ و ۸ استفاده گردید و برای سنجش آن از دستگاه pH متر مدل E520 استفاده شد. به منظور بررسی تبعیت فرایند جذب از معادلات ایزوترم فروندلیخ و لانگمیر جاذب در دز ثابت ۵ گرم در لیتر در زمان تماس ۳۰ دقیقه و pH برابر ۷ در غلظت‌های ۰/۲۵، ۰/۵، ۱، ۱/۵، ۲ و ۳ میلی‌گرم در لیتر آرسنات و آرسنیت و با حضور شاهد با سرعت اختلاط ۳۰۰ دور در دقیقه توسط همزن در تماس با هم قرار گرفتند. برای تعیین میلی‌گرم جرم جذب شده آرسنات یا آرسنیت در یک گرم جاذب (qe) از رابطه ۱ استفاده شد. برای سنجش اثر یون‌های سولفات و کلراید در فرایند جذب از دو غلظت ۲۰۰ و ۴۰۰ میلی‌گرم در لیتر آنها در غلظت‌های ۰/۵، ۱ و ۲ میلی‌گرم در لیتر آرسنات و آرسنیت با دز جاذب ۱ گرم در لیتر در زمان تماس ۳۰ دقیقه با pH برابر ۷ و سرعت اختلاط ۳۰۰ دور در دقیقه استفاده گردید. همچنین میزان آهن افزوده شده به آب نیز در حضور و عدم حضور یون‌های سولفات و کلراید در این قسمت توسط دستگاه اسپکتوفتومتر مدل DR/2000 با طول موج ۵۱۰ نانومتر اندازه‌گیری شد. برای سنجش غلظت سولفات باقی‌مانده از دستگاه اسپکتوفتومتر مدل پرکین المر<sup>۵</sup> در طول موج ۴۲۰ نانومتر و برای سنجش غلظت کلراید باقی مانده مطابق روش ذکر شده در کتاب استاندارد متد عمل گردید [۲۰]. کلیه نمونه‌ها (۱۸۲ نمونه) قبل از هرگونه اندازه‌گیری از صافی واتمن ۰/۴۵ میکرون عبور داده شدند. تمامی آزمایش‌ها در دمای محیط آزمایشگاه و حدود ۲۵ درجه سانتی‌گراد انجام شد و در نهایت برای تحلیل داده‌ها از رابطه زیر و نرم‌افزار Excel استفاده گردید:

$$q_e = \frac{(C_0 - C_e)V}{m} \quad (1)$$

<sup>3</sup> Heidolph

<sup>4</sup> HACH

<sup>5</sup> Perkinelmer

<sup>1</sup> Badruzzaman et al.

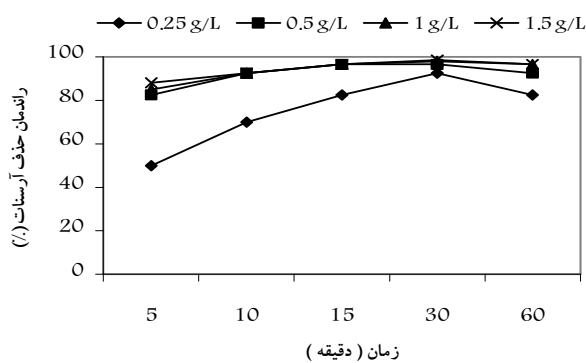
<sup>2</sup> Granular Ferric Hydroxid (GFH)

که در این رابطه:

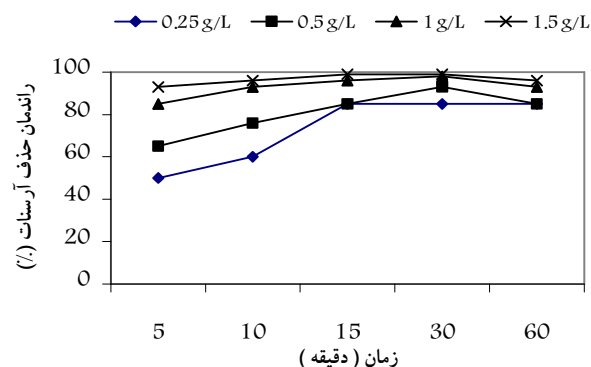
$q_e$  میلی‌گرم جرم جذب شده آرسنات یا آرسنیت در یک گرم جاذب،  $C_0$  غلظت اولیه جذب شونده بر حسب میلی‌گرم در لیتر،  $C_e$  غلظت ثانویه جذب شونده بر حسب میلی‌گرم در لیتر،  $V$  حجم محلول بر حسب لیتر،  $m$  جرم جاذب بر حسب گرم است.

### ۳- نتایج و بحث

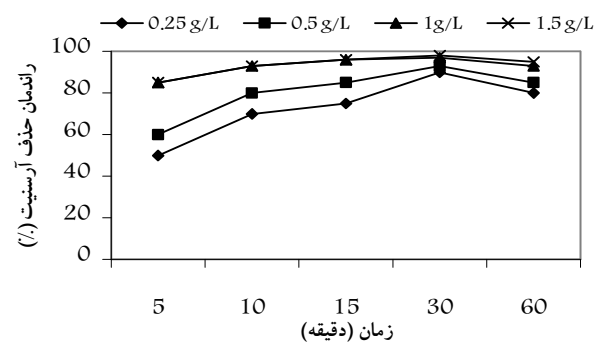
شکل‌های ۱ تا ۶، اثرات تغییرات زمان تماس در گستره ۵ تا ۶۰ دقیقه بر راندمان حذف آرسنات و آرسنیت در غلظت‌های اولیه ۰/۵، ۱ و ۲ میلی‌گرم در لیتر توسط براده آهن در دزهای ۰/۲۵،



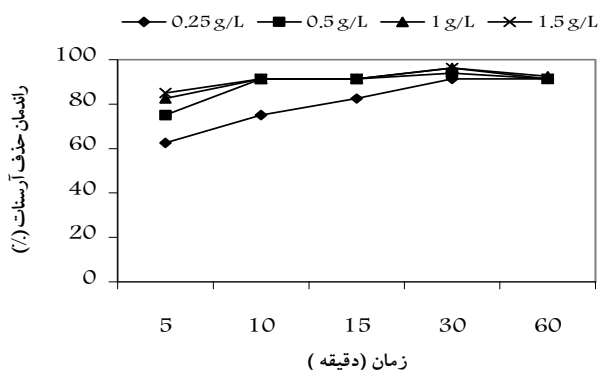
شکل ۴- تأثیر زمان بر راندمان حذف آرسنیت در غلظت اولیه ۰/۵ میلی‌گرم در لیتر



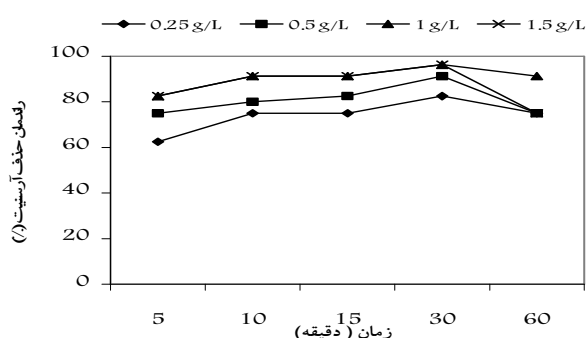
شکل ۱- تأثیر زمان بر راندمان حذف آرسنات در غلظت اولیه ۰/۵ میلی‌گرم در لیتر



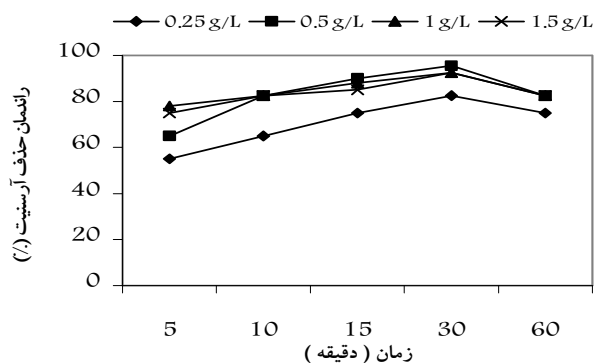
شکل ۵- تأثیر زمان بر راندمان حذف آرسنیت در غلظت اولیه ۱ میلی‌گرم در لیتر



شکل ۲- تأثیر زمان بر راندمان حذف آرسنات در غلظت اولیه ۱ میلی‌گرم در لیتر

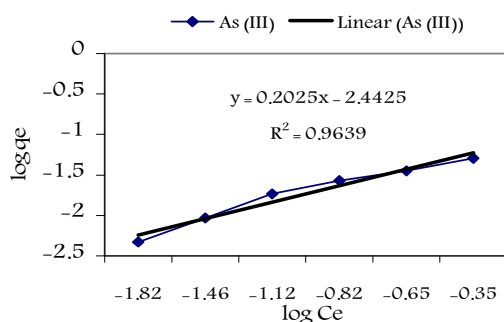


شکل ۶- تأثیر زمان بر راندمان حذف آرسنیت در غلظت اولیه ۲ میلی‌گرم در لیتر

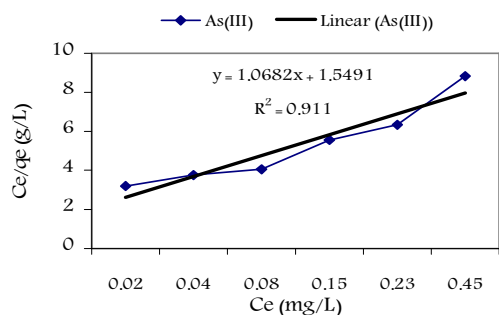


شکل ۳- تأثیر زمان بر راندمان حذف آرسنات در غلظت اولیه ۲ میلی‌گرم در لیتر

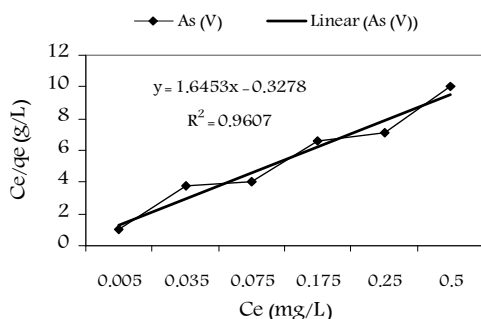
میزان آهن افزوده شده پس از فرایند جذب توسط براده‌های آهن به محیط نیز در حضور و عدم حضور این یون‌ها آورده شده است. همان‌طور که در شکل‌های ۱ تا ۶ مشاهده می‌شود، راندمان حذف آرسنات و آرسنیت در غلظتهای اولیه ۰/۵ (شکل‌های ۱ و ۴)، ۱ (شکل‌های ۲ و ۵) و ۲ میلی‌گرم در لیتر (شکل‌های ۳ و ۶) در زمان تماس ۵ دقیقه در حداقل مقدار خود می‌باشد؛ اما با افزایش زمان، راندمان حذف افزایش چشمگیری را نشان می‌دهد، به طوری که در زمان تماس ۳۰ دقیقه، راندمان حذف آرسنات و آرسنیت توسط براده‌های آهن در هر سه غلظت اولیه به حداکثر مقدار خود می‌رسد و پس از آن، راندمان حذف کاهش می‌یابد.



شکل ۱۰- مطالعه ایزوترم جذب فروندلیخ آرسنیت

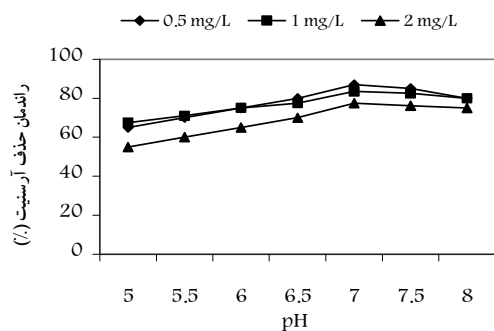


شکل ۱۱- مطالعه ایزوترم جذب لانگمیر آرسنات

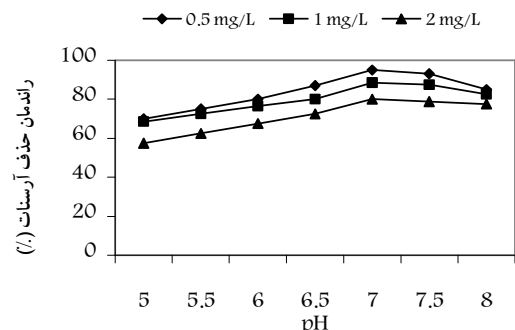


شکل ۱۲- مطالعه ایزوترم جذب لانگمیر آرسنیت

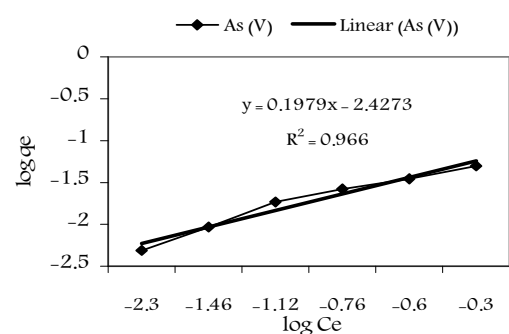
۱/۵ و ۱، ۰/۵ گرم در لیتر را نشان می‌دهد. در شکل‌های ۷ و ۸ اثرات تغییر pH در گستره ۵ تا ۸ بر کارایی حذف آرسنات و آرسنیت در سه غلظت اولیه ۰/۵، ۱ و ۲ میلی‌گرم در لیتر آرسنات و آرسنیت در زمان تماس ۳۰ دقیقه با براده‌های آهن مشاهده می‌شود. در شکل‌های ۹ تا ۱۲ نتایج مطالعه ایزوترم‌های جذب فروندلیخ و لانگمیر را در مورد جذب آرسنات و آرسنیت توسط براده‌های آهن به چشم می‌خورد. در جدول‌های ۱ و ۲، نتایج بررسی اثرات غلظت سولفات و کلراید در غلظتهای اولیه ۲۰۰ و ۴۰۰ میلی‌گرم در لیتر در زمان تماس ۳۰ دقیقه با براده‌های آهن در دز ۱ گرم در لیتر، pH برابر ۷ و غلظتهای اولیه ۰/۵ و ۱، ۲ میلی‌گرم در لیتر آرسنات و آرسنیت و همچنین



شکل ۷- تأثیر pH بر راندمان حذف آرسنیت



شکل ۸- تأثیر pH بر راندمان حذف آرسنات



شکل ۹- مطالعه ایزوترم جذب فروندلیخ آرسنات

جدول ۱- اثر یون‌های سولفات و کلراید در حذف آرسنات و میزان آهن افزوده شده به آب

غلظت اولیه آرسنات (µg/L)	غلظت اولیه سولفات (mg/L)	غلظت اولیه کلراید (mg/L)	باقی‌مانده آرسنات (µg/L)	باقی‌مانده سولفات (µg/L)	باقی‌مانده کلراید (µg/L)	غلظت باقی‌مانده آرسنات در حضور سولفات (mg/L)	غلظت باقی‌مانده سولفات در حضور کلراید (mg/L)	آهن افزوده شده در حضور سولفات (mg/L)	آهن افزوده شده در حضور کلراید (mg/L)
۵۰۰	۲۰۰	۲۰۰	۳۵	۳۵	<۳۵	۷۵/۰۵	۱۶۳/۴۴	۱/۸۵	۲/۱۵
۱۰۰۰	۲۰۰	۲۰۰	۷۵	<۷۵	۷۵	۷۵/۰۵۸	۱۰۸/۸۷	۲/۰۱	۲/۰۶
۲۰۰۰	۲۰۰	۲۰۰	۱۷۵	۱۷۵	۱۷۵	۶۷/۹	۱۸۲/۶۵	۱/۹۵	۲/۱۱
۵۰۰	۴۰۰	۴۰۰	۳۵	<۳۵	۳۵	۸۹/۳۵	۳۱۰/۵۷	۲/۱۱	۲/۱۲
۱۰۰۰	۴۰۰	۴۰۰	۷۵	۷۵	۷۵	۹۱/۱۴	۳۳۰/۱۵	۲/۰۳	۲/۲
۲۰۰۰	۴۰۰	۴۰۰	۱۷۵	۱۷۵	<۱۷۵	۸۲/۲	۳۳۰/۸۹	۲/۲۱	۲/۸۴

جدول ۲- اثر یون‌های سولفات و کلراید در حذف آرسنیت و میزان آهن افزوده شده به آب

غلظت اولیه آرسنات (µg/L)	غلظت اولیه سولفات (mg/L)	غلظت اولیه کلراید (mg/L)	باقی‌مانده آرسنات در حضور کلراید (µg/L)	باقی‌مانده سولفات (mg/L)	باقی‌مانده کلراید (µg/L)	غلظت باقی‌مانده آرسنات در حضور سولفات (mg/L)	غلظت باقی‌مانده سولفات در حضور کلراید (mg/L)	آهن افزوده شده در حضور سولفات (mg/L)	آهن افزوده شده در حضور کلراید (mg/L)
۵۰۰	۲۰۰	۲۰۰	۳۵	۳۵	۳۵	۷۵/۰۵۸	۱۴۰/۴۸	۱/۸۵	۱/۴۵
۱۰۰۰	۲۰۰	۲۰۰	۷۵	۷۵	<۷۵	۹۸/۲۹	۱۷۰/۶۳	۲/۰۱	۱/۷۱
۲۰۰۰	۲۰۰	۲۰۰	۱۷۵	۱۷۵	۱۷۵	۱۰۳/۶۷	۱۶۸/۶۷	۱/۹۵	۲/۲
۵۰۰	۴۰۰	۴۰۰	۳۵	<۳۵	۳۵	۱۰۱/۸۶	۲۹۰/۱۴	۲/۱۱	۱/۴۶
۱۰۰۰	۴۰۰	۴۰۰	۷۵	۷۵	۷۵	۱۲۱/۵	۳۲۰/۰۹	۲/۰۳	۲/۰۲
۲۰۰۰	۴۰۰	۴۰۰	۱۷۵	۱۷۵	<۱۷۵	۱۴۱/۲۲	۲۹۰/۸۷	۲/۲۱	۲/۱۱

حذف آرسنات و آرسنیت در دزهای اولیه ۰/۵ و ۱ و ۲ میلی‌گرم در لیتر آنها در pH حدود ۷ به حداکثر مقدار خود می‌رسد. زهنگ و همکاران در مطالعه‌ای نشان دادند که حذف آرسنات در pH برابر ۴/۵ تا ۶/۵ و در دز جاذب (کانی طبیعی آهن) ۵ گرم در لیتر، حداکثر است [۲۳]. اما در یک مطالعه دیگر توسط دیسچمپس و همکاران حداکثر راندمان حذف آرسنیت و آرسنات در pH برابر ۷ گزارش گردید [۱۷]. در مطالعه دیگری توسط بنگ<sup>۳</sup> و همکاران گزارش شد که در pH برابر ۶/۸ راندمان حذف آرسنات ۹۲/۸ و راندمان حذف آرسنیت ۸۲/۶ پس از ۹ ساعت زمان تماس در ستون پایلوت می‌باشد [۲۴]. در حالی که این مطالعه نشان می‌دهد که راندمان حذف آرسنات و آرسنیت از آب به وسیله براده‌های آهن در pH برابر ۷ و زمان تماس ۳۰ دقیقه نسبتاً برابر است. از مقایسه ضرایب هبستگی به دست آمده از مطالعه ایزوترم جذب فروندلیخ آرسنات و آرسنیت با توجه به شکلهای ۹ و ۱۰ چنین نتیجه می‌شود که آرسنات و آرسنیت با داشتن ضرایب همبستگی  $R^2 > 0/96$  تقریباً به طور یکسانی از این

به عبارتی با افزایش زمان تماس به بیش از ۳۰ دقیقه، واجذب آرسنات و آرسنیت به محیط آب صورت می‌گیرد. رامسوامی و همکاران<sup>۱</sup> نیز در مطالعه‌ای نشان دادند که حذف آرسنیک در غلظت اولیه ۲ میلی‌گرم در لیتر در زمان تماس ۳۰ دقیقه توسط براده‌های آهن در دز ۰/۶۲۵ تا ۲/۵ میلی‌گرم در لیتر بیش از ۹۳ درصد می‌باشد [۲۱]. همچنین نتایج آزمایش‌ها نشان داد که با افزایش دز جاذب راندمان حذف آرسنات و آرسنیت افزایش می‌یابد و در دز جاذب حدود ۰/۵ تا ۱ گرم در لیتر به حداکثر مقدار حذف می‌رسد و بعد از آن با افزایش دز جاذب به ۱/۵ گرم در لیتر به یک راندمان تقریباً ثابت حذف نزدیک می‌شود. تیورولا<sup>۲</sup> و همکاران نشان دادند که با افزایش دز براده آهن، راندمان حذف هر دو گونه آرسنات و آرسنیت افزایش می‌یابد [۲۲]. لئوپین و همکاران نیز نشان دادند که در غلظت اولیه ۰/۵ میلی‌گرم در لیتر آرسنات و در pH برابر ۷ و ۱/۵ گرم در لیتر براده آهن، غلظت آرسنات باقی مانده به کمتر از ۵۰ میکروگرم در لیتر می‌رسد [۱۶]. در شکلهای ۷ و ۸ دیده می‌شود که راندمان

<sup>3</sup> Bang

<sup>1</sup> Ramaswami et al.

<sup>2</sup> Tyrovola

ایزوترم تبعیت می‌نمایند، در حالی که با توجه به شکل‌های ۱۱ و ۱۲ و مقایسه ضرایب همبستگی  $R^2 > 0.96$  در مورد آرسنات و  $R^2 > 0.91$  در مورد آرسنیت مشخص شد که آرسنات نسبت به آرسنیت تبعیت بیشتری را از ایزوترم جذب لانگمیر نشان می‌دهد. با توجه به جدول‌های ۱ و ۲ مشاهده می‌شود که حضور یون‌های سولفات و کلراید در کارایی حذف آرسنات و آرسنیت تأثیر چندانی ندارند. به علاوه مشاهده شد که براده‌های آهن، کلراید و سولفات را در غلظت‌های به‌کار رفته، کاهش داده است. میزان حداکثر باقی‌مانده کلراید در غلظت‌های اولیه ۲۰۰ و ۴۰۰ میلی‌گرم در لیتر در حضور آرسنات ۷۵/۵۸ و ۹۱/۱۴ و در حضور آرسنیت ۱۰۳/۶۷ و ۱۴۱/۲۲ میلی‌گرم در لیتر می‌باشد که نشان می‌دهد کارایی حذف کلراید در حضور آرسنات اندکی بیشتر از حضور آرسنیت است. میزان باقی‌مانده سولفات در غلظت‌های اولیه ۲۰۰ و ۴۰۰ میلی‌گرم در لیتر در حضور آرسنات حداکثر ۱۶۳/۴۴ و ۳۳۰/۸۹ و در حضور آرسنیت حداکثر ۱۷۰/۶۳ و ۳۲۰/۰۹ میلی‌گرم در لیتر می‌باشد و این نتیجه، نشان می‌دهد که کارایی حذف سولفات در حضور آرسنات و آرسنیت توسط براده‌های آهن بسیار کمتر از کارایی حذف کلراید می‌باشد و براده‌های آهن راندمان بیشتری در حذف کلراید نسبت به سولفات دارند. میزان آهن افزوده شده به آب در حین حذف آرسنات با حضور کلراید حداقل ۲/۰۶ و حداکثر ۲/۸۴ میلی‌گرم در لیتر و با حضور سولفات حداقل ۱/۶۵ و حداکثر ۲/۲۷ میلی‌گرم در لیتر است و چنین استنباط می‌شود که میزان آهن افزوده شده در حضور کلراید بیشتر از میزان آن در حضور سولفات در حین حذف آرسنات می‌باشد. میزان آهن افزوده شده به آب در حین حذف آرسنیت با حضور کلراید حداقل ۱/۴۶ و حداکثر ۲/۱۱ و با حضور سولفات حداقل ۱/۵۷ و حداکثر ۲/۳۳ میلی‌گرم در لیتر می‌باشد و نتیجه می‌شود که میزان آهن افزوده شده به آب تفاوت چندانی در حین حذف آرسنیت توسط یون‌های

کلراید و سولفات را نشان نمی‌دهد. میزان آهن افزوده شده به آب در عدم حضور یون‌های سولفات و کلراید در حین حذف آرسنیت و آرسنات توسط براده‌های آهن حداقل ۱/۸۵ و حداکثر ۲/۲۱ میلی‌گرم در لیتر می‌باشد. مشکلی که در این پژوهش وجود داشت، این بود که میزان آهن افزوده شده به آب در تمامی سنجش‌ها، چندین برابر بیشتر از استاندارد ۰/۳ میلی‌گرم در لیتر آب آشامیدنی بود، در حالی که رامسوامی و همکاران میزان آهن افزوده شده به آب را توسط براده‌های آهن در حین حذف آرسنیک در حدود ۰/۱ تا ۰/۳ میلی‌گرم در لیتر بیان نمودند [۲۱]. علت مغایرت این است که در مطالعه مذکور از براده‌های آهن تجاری استفاده شده بود ولی در این مطالعه از زائدات براده آهن تراشکاری‌ها استفاده گردید.

#### ۴- نتیجه‌گیری

با توجه به آلودگی آب‌های استان کردستان به آرسنیک و نتایج به دست آمده از این مطالعه، می‌توان از براده‌های آهن برای حذف آرسنیک از آب‌های آشامیدنی منطقه استفاده نمود؛ زیرا براده‌های آهن دارای راندمان بالایی در حذف هر دو گونه آرسنات و آرسنیت در pH طبیعی آب و زمان تماس کوتاه ۳۰ دقیقه می‌باشد. علاوه بر این استفاده از براده‌های آهن دارای هزینه‌های اندک تهیه بوده و نیازی به فناوری‌های پیچیده، گران قیمت و وارداتی ندارد.

#### ۵- تشکر و قدردانی

این تحقیق در قالب پایان نامه کارشناسی ارشد و با حمایت مالی مرکز تحقیقات محیط زیست دانشگاه علوم پزشکی تهران به انجام رسید. لذا به این وسیله از زحمات کلیه مسئولان محترم این مرکز تشکر می‌گردد.

#### ۶- مراجع

- 1- Uddin, M.M., Haurun-Ar-Rashid, A.K.M., Hossain, S.M., Hafiz, M.A., Nahar, M., and Mubin, S.H. (2006). "Slow arsenic poisoning of the contaminated groundwater users." *Int.J. Environ. Sci. Tech.*, 3(4), 447-453.
- 2- Saha, J.C., Dikshit, A.K., Bandyopadhyay, M., and Saha, K.C. (1999). "A review of arsenic poisoning and its effects on human health." *Crit. Rev. Environ. Sci. Technol.*, 29(3), 281-313.
- 3- Korte, N.E., and Fernando, Q. (1991). "A review of Arsenic (III) in groundwater." *Crit Rev. Environ. Control.*, 21(1), 1-9.
- 4- Kelly, B., Payne, T.M., and Abdel, F. (2005). "Adsorption of Arsenate and Arsenite by Iron-treated activated carbon and Zeolites: effects of pH, temperature, and ionic strength." *J. of Environmental Science and Health.*, 40 (4), 723-49.

- 5- Smedley, P.L., and Kinniburgh, D.G.( 2002). "A review of the source, behaviour and distribution of arsenic in natural waters." *J. Appl. Geochem.*, 17 (5), 517-568.
- 6- Lackovic, J.A., Nikolaidis, N.P., and Dobbs, G.M.(2000). "Inorganic arsenic removal by zero-valent iron." *Environ. Eng. Sci.*, 17(1), 29-39.
- 7- Kartinen, E.O., and Martin, C.J.(1995). "An overview of arsenic removal processes." *Desalination*, 103 (1-2), 78-88.
- 8- Bitner, M.J., and Chwirka, J.D.(1994). "Arsenic removal treatment technologies for drinking water supplies." *Proceedings of 39th New Mexico Water Conference*, Albuquerque, N.M, 251-255.
- 9- Pierce, M.L., Moore, C.B.(1992). "Adsorption of arsenite and arsenate on amorphous iron hydroxide." *Water Res.*, 16 (7), 1247-1253.
- 10- Hsia, T.H., Lo, S.L., Lin, C.F.(1994). "Characterization of arsenate adsorption on hydrous iron oxide using chemical and physical methods." *Colloids Surf. A: Physicochem Eng. Aspects.*, 5 (1), 1-7.
- ۱۱- مسافری، م. (۱۳۸۴). "بررسی عوارض بهداشتی ناشی از آرسنیک در آب استان کردستان و روشهای حذف آن." پایان نامه دوره دکترای مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی تهران.
- 12- Nicolaose, N.P., Dobbs, G.M. and Lackovic, J.A. (2003). "Arsenic removal by Zero- Valent iron: field, laboratory and modeling studies." *Water Research*, 37(6), 1417- 1425.
- 13- Zeng, L. (2003). "A method for preparing silica-containing iron(III) oxide adsorbents for arsenic removal." *Water Research*, 37(18), 4351-4358.
- 14- Zhang, Y., Yang, M., and Huang, X. (2003). "Arsenic(V) removal with a Ce(IV)-doped iron oxide adsorbent." *Chemosphere*, 51( 9), 945-952.
- 15- Lien, H. L., and Wilkin, R.T. (2005). "High-level arsenite removal from groundwater by zero- valent iron." *Chemosphere*, 59( 3), 377-380.
- 16-Leupin, O.X., Hug, J.S.(2005). "Oxidation and removal of arsenic(III) from aerated groundwater by filtration through sand and zero-valent iron." *Water Research.*, 39 (9), 1729-1740.
- 17- Deschamps, E., Virginia, S.T., and Wolfgang, H.H. (2005). "Removal of As(III) and As(V) from water using a natural Fe and Mn enriched sample." *Water Research*, 39(20), 5212-5220.
- 18- Badruzzaman.M., Westerhoff.P., and Kanappe.R.U.(2004). "Intraparticle diffusion and adsorption of arsenic of arsenate onto GFH." *Water Research*, 38(18), 4002-4012.
- ۱۹- مصداقی نیا، ع.ر.، مسافری، م.، یونسیان، م.، ناصری، س.، محوی، ا.م. (۱۳۸۴). "سنجش غلظت آرسنیک در آب آشامیدنی یک منطقه آلوده به آرسنیک از طریق راه اندازی روش آزمایشگاهی SDDC و استفاده از یک روش صحرایی به همراه ارزیابی دقت و صحت روش‌ها." حکیم، ۸ (۱)، ۴۳-۵۱.
- 20- APHA., AWWA. and WPCF. (1998). *Standard methods for the examination of water and wastewater*, 20<sup>th</sup> Ed., American Public Health Association, Washington, D.C.
- 21- Ramaswami, A., Tawachsupa, S., and Isleyen, M. (2001). "Batch-Mixed iron treatment of high arsenic waters." *Wat. Res.*, 35 (18), 4474-4479.
- 22- Tyrovola, K., Pperoulaki, E., and Nikolaos, P.N. (2007). "Modeling of arsenic immobilization by zero-valent iron." *European Journal of Soil Biology*, 43(5-6), 356-367.
- 23- Zhang, G., Ou, J., Liu, H., Liu, R., and Wu, R.(2007). "Preparation and evaluation of a novel Fe-Mn binary oxide adsorbent for effective arsenite removal." *Water Research*, 41 (9), 1921-1928.
- 24- Bang, S., Johnson, M.D., Korfiatis, G.P., and Meng, X. (2005). "Chemical reaction between arsenic and zero-valent iron in water." *Water Research*, 39 (5), 763- 770.