

## بررسی مقایسه‌ی پوسته‌های آهکی مرجان و پوسته‌های آهکی مرجان دریایی پوشش داده شده با سولفات آلومینیوم به عنوان جاذب در حذف آرسنیک از محیط‌های آبی: مطالعه تعادلی و سینتیکی

محمد تقی صمدی<sup>۱</sup>، رقیه نوروزی<sup>۲</sup>، محمد هادی مهدی نژاد<sup>۳</sup>، رضا امین زاده<sup>۴</sup>

پذیرش: ۹۱/۰۶/۱۵

دریافت: ۹۱/۰۳/۱۷

### چکیده

**زمینه و هدف:** غلظت آرسنیک در آب آشامیدنی به دلیل اثرات مضر آن بر روی سلامت انسان بسیار مورد توجه قرار گرفته است. هدف از این تحقیق بررسی تاثیر پوسته‌های آهکی و پوسته‌های آهکی مرجان دریایی پوشش داده شده با سولفات آلومینیوم به عنوان یک جاذب بر کارایی حذف آرسنیک از محیط‌های آبی است.

**روش بررسی:** در این تحقیق که در مقیاس آزمایشگاهی انجام گرفته است، ابتدا طی مراحل متعددی گرانول مرجان آهکی با مش ۳۰ تهیه شد سپس راندمان حذف آرسنات در شرایط مختلف و با تغییر فاکتورهای موثر شامل pH، زمان تماس و مقدار جاذب بدون پوشش و پوشش داده شده با سولفات آلومینیوم مورد بررسی قرار گرفت. همچنین داده‌های حاصل از این تحقیق با مدل لانگمیر و فروندلیچ و داده‌های سینتیکی با مدل‌های pseudo- first order، pseudo- second order و modified pseudo- first order تطبیق داده شده است.

**یافته‌ها:** با افزایش pH محلول از ۳ به ۱۰ در غلظت  $500 \mu\text{g/L}$  آرسنات و  $5 \text{ g/L}$  جاذب و زمان ماند  $120 \text{ min}$  کارایی حذف برای جاذب بدون پوشش و پوشش‌دار به ترتیب از ۱۰۰٪ به ۸۶٪ و ۱۰۰٪ به ۹۲٪ کاهش یافت. با افزایش مقدار این دو ماده جاذب از  $1 \text{ g/L}$  به ۵ و زمان ماند  $120 \text{ min}$  کارایی حذف به ترتیب از ۷۶٪ به ۹۹٪ و ۶۶٪ به ۹۱٪ افزایش یافت. کارایی حذف آرسنات با زمان تماس و مقدار جاذب رابطه مستقیم و با غلظت اولیه آرسنات و pH رابطه معکوس داشته است. همچنین کارایی حذف جاذب پوشش‌دار بیشتر از جاذب بدون پوشش است. بهترین مدل ایزوترم جذب در این دو فرآیند برای آرسنات مدل لانگمیر و سینتیکی جذب با مدل درجه دوم بهتر توصیف شد. **نتیجه‌گیری:** با توجه به راندمان حذف مناسب، هزینه پایین فرآیند و عدم تولید مواد مضر برای محیط زیست می‌توان از مرجان‌های دریایی خلیج فارس به عنوان یک جاذب در حذف آلاینده‌های محیط زیست مانند آرسنات استفاده نمود.

**واژگان کلیدی:** پوسته‌های آهکی، پوسته‌های آهکی مرجان پوشش داده شده، حذف آرسنیک، آرسنات، جذب

۱-دکتری بهداشت محیط، دانشیار دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی همدان

۲-(نویسنده مسئول): کارشناسی ارشد بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی گلستان

۳-دکتری بهداشت محیط، استادیار دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی گلستان

۴-کارشناس بهداشت محیط، مرکز بهداشت دانشگاه علوم پزشکی کردستان

آرسنیک از جمله آلاینده های فلزی سمی است که در آبهای طبیعی در مقادیر کم برای انسان ها و دیگر موجودات مضر است (۱). آرسنیک از مواد آلاینده ای است که با مقادیر جزئی در منابع آب وجود دارد و از طریق فاضلاب تولیدی از صنایع آلیاژ، ساخت باطری ها، ضد زنگ ها، شیشه سازی، دباغی، کاغذهای رنگی و نیمه هادی ها به محیط زیست، آب های سطحی و زیرزمینی وارد می شود (۲-۴). این ماده در شکل های گوناگون آلی و غیرآلی به صورت آرسنیت (ASIII) و آرسنات (ASV) براساس pH و شرایط محیطی می تواند وجود داشته باشد. آرسنیت به صورت غالب در محیط های احیا کننده و آرسنات در محیط های اکسیدکننده وجود دارد هر دو نوع آرسنیک دارای سمیت هستند اما آرسنیت نسبت به آرسنات سمی تر بوده و در محیط های آبی بیشتر است (۵). سازمان جهانی بهداشت (WHO) و آژانس حفاظت از محیط زیست آمریکا (USEPA) استاندارد  $10 \mu\text{g/L}$  را برای آرسنیک در منابع آب آشامیدنی تعیین کرده است. در معرض آرسنیک قرار گرفتن به مدت طولانی حتی در مقادیر کم ( $0.05 \text{ mg/L}$ ) باعث افزایش خطر ابتلا به سرطان پوست، ریه، مجاری ادراری و مثانه و سرطان کلیه می شود (۶-۸). روش اصلی حذف آرسنیک فرایندهای فیزیکی - شیمیایی است. متداول ترین تکنولوژی های حذف آرسنیک از آب آشامیدنی شامل فرایند ته نشینی شیمیایی، فیلتراسیون، فیلتراسیون مستقیم، انعقاد به همراه میکروفیلتراسیون، انعقاد پیشرفته، فرم سازی با آهک و فرم سازی پیشرفته با آهک، فرایند جذب شامل جذب بر روی کربن فعال، آلومینای فعال، اکسید آهن و منگنز و مدیای فیلتر پوشیده شده با این مواد، فرایند تبادل یونی بویژه تبادل یون آنیونی، فیلتراسیون غشایی شامل نانوفیلتراسیون، اسمز معکوس و الکترودیالیز معکوس است (۹-۱۱). از مهم ترین فاکتورهای موثر بر انتخاب فرایند را می توان عملکرد مناسب، هزینه های سرمایه گذاری و هزینه های طولانی مدت عملیاتی و سادگی فرایند نام برد (۱۲). جذب سطحی از جمله فرایندهای متداول تصفیه آب و فاضلاب است که بر روی گستره وسیعی از

آلاینده ها مورد استفاده قرار گرفته است. از آنجائی که فرایند جذب سطحی ارزان تر بوده و قابلیت اجرایی ساده تری دارد از این رو نسبت به سایر روش ها در اولویت قرار می گیرد. فرایند جذب سطحی امروزه به عنوان مناسب ترین تکنیک در حذف آلاینده های فاضلاب و مناسب کردن کیفیت فاضلاب به منظور استفاده مجدد به لحاظ هزینه کم، طراحی آسان، سهولت در امر بهره برداری و عدم حساسیت نسبت به مواد سمی شناخته شده است (۹). در این تحقیق با در نظر گرفتن استاندارد آب آشامیدنی ایران برای آرسنیک ( $50 \text{ ppb}$ ) و نظر به آلوده بودن آب های مصرفی به آرسنیک در تعدادی از مناطق کشور، کارایی جذب آرسنیک به صورت مقایسه ای با استفاده از پوسته آهکی مرجان و پوسته آهکی مرجان پوشش داده شده با سولفات آلومینیوم مورد مطالعه قرار گرفته است.

#### مواد و روش ها

کلیه مواد شیمیایی مورد استفاده در این پژوهش از شرکت مرک (آلمان) تهیه گردید. در این تحقیق با حل کردن آرسنات سدیم ( $\text{NaHASO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ ) با درصد خلوص ۹۹٪ در آب بدون یون محلول استوک آرسنات تهیه گردید و سپس غلظت های مورد نظر با استفاده از محلول استوک و رقیق کردن آن ساخته شد. جهت تنظیم pH از محلول یک نرمال اسید سولفوریک و سود استفاده گردید. جهت انجام این تحقیق ابتدا مرجان خلیج فارس جمع آوری و پس از شستشو با آب جهت خشک کردن به مدت ۱h در دمای  $105^\circ\text{C}$  در فور قرار داده شد. بعد از خشک شدن مرجان ها را خرد و با الکال ۳۰ مش بندی کرده و مقداری از مرجان های مش بندی شده را به منظور پوشش دار کردن به مدت ۲۴ h در محلول سولفات آلومینیوم ۰/۲٪ قرار داده شد. آزمایشات به صورت ناپیوسته و با تغییر فاکتورهای pH (۳، ۷ و ۱۰)، زمان تماس ( $30, 60, 90, 120 \text{ min}$ )، غلظت اولیه آرسنات ( $50, 500, 1500 \mu\text{g/L}$ )، دوز مرجان های دریایی ( $1, 3, 5 \text{ g/L}$ ) صورت گرفت. همه آزمایشات در حالت ناپیوسته در بشر به حجم  $250 \text{ mL}$  انجام شده است. به منظور حصول اطمینان از نتایج حاصله کلیه آزمایشات سه بار تکرار گردید و از میانگین مقادیر اندازه گیری شده به عنوان غلظت مورد سنجش استفاده گردید. برای اندازه گیری آرسنات از

یون آرسنات (0/05 ms/L، 0/1، 0/2، 0/4، 0/5، 1، 2 و 3) در شرایط pH=7 و زمان ماند 48 h صورت گرفت. در ابتدا 250 mL از نمونه‌های حاوی غلظت مشخصی از یون آرسنات به داخل بشری با حجم 250 mL انتقال داده شد و سپس مقدار 5 g/L از پسته مرجان دریایی به نمونه‌های موجود افزوده گردید. از دستگاه همزن با دور 125 rpm برای 48 h اختلاط نمونه‌ها در حین انجام واکنش استفاده و بعد از 48 h زمان تماس، غلظت آرسنات باقیمانده تعیین گردید.

#### مطالعه روابط سینتیکی

##### الف- شبه درجه یک: pseudo- first order

مدل سینتیک درجه یک کاذب به صورت معادله 4 است که در آن  $q_e$  و  $q_t$  مقدار جاذب به ترتیب در نقطه تعادل و در زمان  $t$ ،  $K_1$  سرعت ثابت (1/min). با انتگرال‌گیری از معادله 3 در لحظه  $t=0$  در  $t=0$  معادله 5 به دست می‌آید (13).

$$Dq_t/dt = k_1(q_e - q_t) \quad (4)$$

$$\text{Log}(1 - q_t/q_e) = -k_1/2.303 \times t \quad (5)$$

##### ب- شبه درجه دو: pseudo- second order

مدل سینتیک pseudo- second order به صورت معادله 6 تعریف می‌شود. در این معادله  $K_2$  سرعت ثابت (g/mgmin)، با انتگرال‌گیری از معادله 6 در لحظه  $t=0$  در  $t=0$  و  $qt=qt$ ،  $t=0$  با جایگزینی این مقادیر در معادله 6 معادله شماره 7 به دست می‌آید. مقادیر  $k_2$  و  $q_e$  به ترتیب می‌تواند شیب خط و عرض از مبدا نمودار  $t/qt$  بر روی  $t$  را مشخص کند (13).

$$Dq_t/dt = k_2(q_e - q_t)^2 \quad (6)$$

$$t/q_t = 1/k_2 q_e^2 + 1/q_e \times t \quad (7)$$

##### ج- شبه درجه یک اصلاح شده: modified pseudo- first order

معادله pseudo- first order که به صورت تجربی توسط Yang و Al-Dury پیشنهاد شد. از نظر تنوری توسط Azizian به صورت معادله 8 دست آمد. با گرفتن لگاریتم از معادله 8 معادله 9 به دست می‌آید (13).

روش سیلور دی اتیل دی تیوکاربامات نقره (SDDC) استفاده و در پایان مقدار باقیمانده آرسنات به روش اسپکترومتری در حداکثر طول موج 520 nm قرائت گردید (7). از نرم افزار Excele برای رسم نمودارها استفاده گردید. برای تعیین ساختار مرجان دریایی خلیج فارس از دستگاه XRD دانشگاه تربیت مدرس استفاده گردید.

#### آزمایشات سینتیک و ایزوترم های جذب

##### مدل ایزوترمی فروندلیچ

مدل ایزوترم فروندلیچ به صورت معادله 1 تعریف می‌شود. در این رابطه  $q_e$  جرم جذب شده از ماده جذب شونده (X) به واحد جرم ماده جاذب (m) در نقطه تعادل،  $k_f$  فاکتور ظرفیت فروندلیچ،  $C_e$  غلظت تعادلی ماده جذب شونده در فاز محلول بعد از جذب سطحی (mg/L)،  $n-1$  پارامتر شدت فروندلیچ است. ثابت‌های ایزوترم فروندلیچ را می‌توان با ترسیم  $\log q_e$  نسبت به  $\log C_e$  از طریق خطی کردن معادله 1 به صورت معادله 2 به دست آورد (13).

$$q_e = x/m = k_f C_e^{1/n} \quad (1)$$

$$\log C_e + \log(q_e) = 1/n \log k_f \quad (2)$$

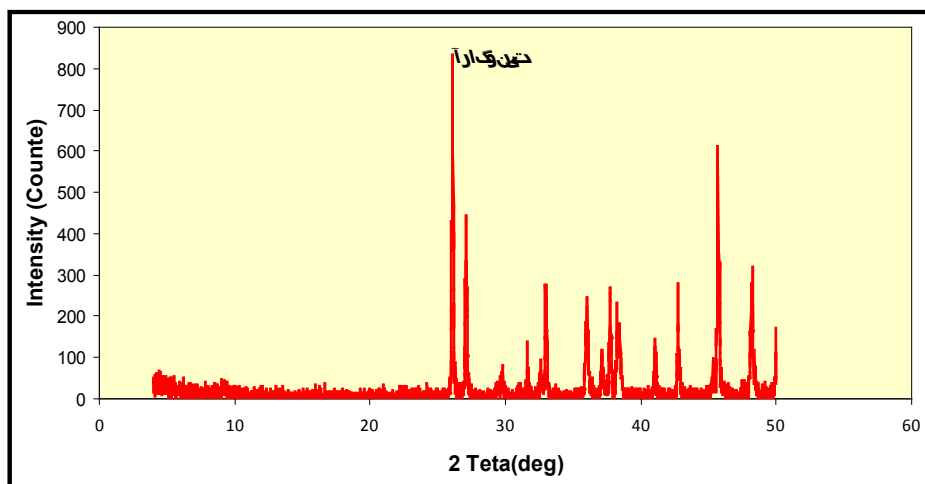
##### مدل ایزوترمی لانگمیر

شکل خطی ایزوترم لانگمیر به صورت معادله 3 است. در این رابطه  $q_e$ : جرم ماده جذب شده به ازای واحد جرم ماده جاذب  $q_m$  (ms/s)،  $q_m$  ماکزیمم ظرفیت جذب ماده جاذب در لحظه تعادل (ms/s)،  $b$ : ثابت تجربی لانگمیر،  $C_e$ : غلظت تعادلی ماده جذب شونده در محلول بعد از برقراری تعادل (mg/L). با ترسیم  $C_e/q_e$  در مقابل  $C_e$  خطی حاصل خواهد شد که مقدار  $q_m$  و  $b$  را از روی شیب خط به دست آمده می‌توان محاسبه کرد (13).

$$\frac{C_e}{q_e} = \frac{C_e}{q_m} + \frac{1}{q_m b} \quad (3)$$

برای تعیین مدل ایزوترم‌های جذب فروندلیچ و لانگمیر آزمایشات جذب با در نظر گرفتن غلظت‌های مشخصی از

نتایج حاصل از تغییرات غلظت اولیه آرسنات اثر تغییرات غلظت اولیه آرسنات بر کارایی حذف آن در  $\text{pH}=7$  و غلظت ثابت  $5 \text{ g/L}$  پوسته آهکی پوشش داده شده با سولفات آلومینیوم در شکل ۳ نشان داده شده است. نتایج حاکی از آن است که با افزایش غلظت اولیه آرسنات از  $50 \mu\text{g/L}$  به  $1500 \mu\text{g/L}$  با استفاده از پوسته آهکی پوشش دار، کارایی حذف از  $100\%$



شکل (۱) منحنی XRD پوسته آهکی مرجان دریایی خلیج فارس

به  $76\%$  و در همان شرایط با استفاده از پوسته آهکی از  $100\%$  به  $69\%$  درصد کاهش یافته است.

نتایج حاصل از تغییرات  $\text{pH}$  بر کارایی حذف آرسنیک شکل شماره ۴ نشان می‌دهد که کارایی حذف آرسنات با استفاده از پوسته آهکی پوشش داده شده با سولفات آلومینیوم با افزایش  $\text{pH}$  از ۳ به ۱۰ کاهش می‌یابد. کارایی حذف در غلظت  $500 \mu\text{g/L}$  آرسنات و دوز جاذب  $5 \text{ g/L}$  در  $\text{pH}$  ۳، ۷ و ۱۰ بعد از گذشت  $120 \text{ min}$  به ترتیب حدود  $100\%$ ،  $99/2\%$  و  $92/2\%$  است و در همان شرایط با افزایش  $\text{pH}$  از ۳ به ۱۰ کارایی حذف آرسنات با استفاده از پوسته آهکی کاهش می‌یابد. و بعد از گذشت  $120 \text{ min}$  به ترتیب حدود  $100\%$ ،  $91/1\%$ ،  $86/2\%$  است.

$$dq_t/dt = km q_e/q_t(q_e - q_t) \quad (8)$$

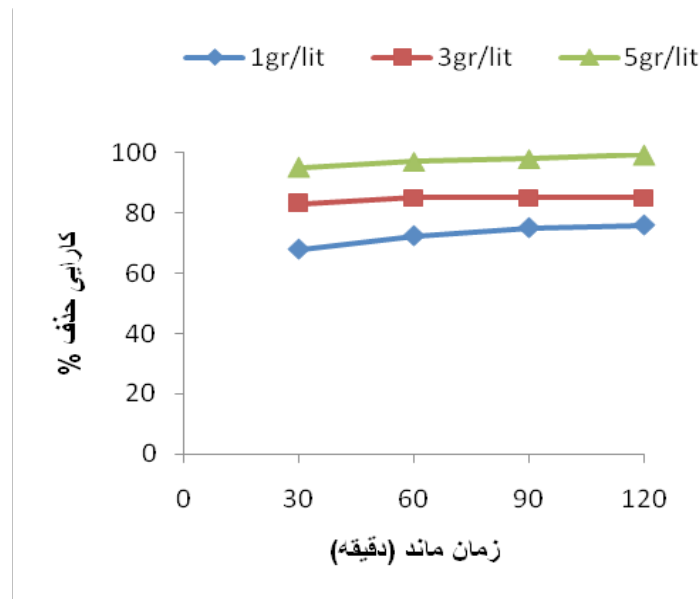
$$\ln(1 - q_t/q_e) + qt/q_e = -k_m t \quad (9)$$

برای تعیین سینتیک واکنش از غلظت  $500 \mu\text{g/L}$  آرسنات و دوز  $1 \text{ g/L}$  پوسته آهکی و پوسته آهکی پوشش داده شده استفاده گردید.

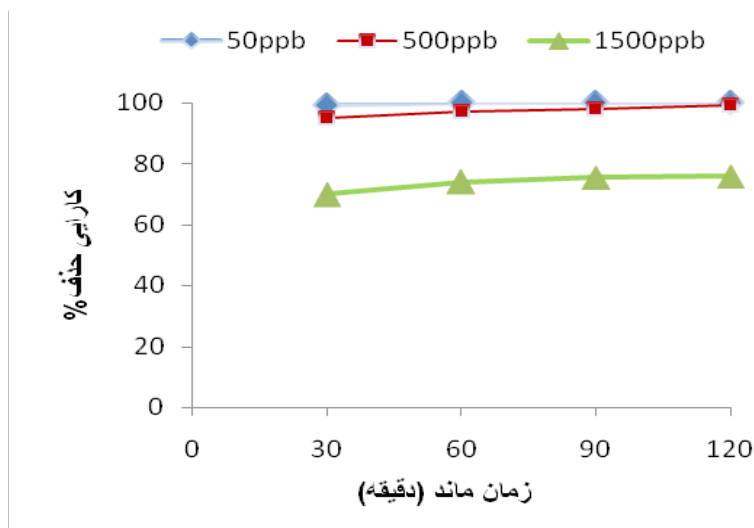
#### یافته ها

نتایج حاصل از تعیین ساختار مرجان دریایی خلیج فارس آنالیز XRD بر روی پوسته آهکی مرجان دریایی خلیج فارس نشان داد که در زاویه‌های  $2\theta = 831/47$  منحنی دارای بالاترین پیک است که در مقایسه با استاندارد ICDD Card مشخص گردید که کانی از نوع آراگونیت ( $\text{CaCO}_3$ ) است.

نتایج حاصل از تغییرات دوز پوسته آهکی مرجان دریایی در این مطالعه از ۳ غلظت پوسته آهکی مرجان دریایی پوشش داده شده با سولفات آلومینیوم و ۳ غلظت پوسته آهکی مرجان دریایی استفاده گردید. اثر تغییرات دوز پوسته آهکی پوشش داده شده بر کارایی حذف آرسنات در  $\text{pH}$  ثابت ۷، غلظت  $5 \text{ g/L}$  جاذب و غلظت  $500 \mu\text{g/L}$  آرسنات، در فاصله زمانی ۳۰ تا  $120 \text{ min}$  در شکل ۲ نشان داده شده است. به طوری که با افزایش دوز جاذب پوشش داده شده از ۱ به  $5 \text{ g/L}$  کارایی حذف آرسنات به ترتیب از  $76\%$  به  $99/2\%$  و در همان شرایط برای پوسته آهکی از  $66/3\%$  به  $91/1\%$  افزایش یافته است.



شکل ۲: تاثیر دوز پوسته آهکی پوشش دار بر کارایی حذف غلظت اولیه آرسنات =  $500 \mu\text{g/L}$ ،  $\text{pH}=7$ ،  $T = 25^\circ\text{C}$



شکل ۳: تاثیر تغییرات غلظت اولیه آرسنات بر کارایی حذف آن با استفاده از پوسته آهکی پوشش دار: (دوز جاذب =  $5 \text{ g/L}$ ،  $T = 25^\circ\text{C}$ ،  $\text{pH} = 7$ )

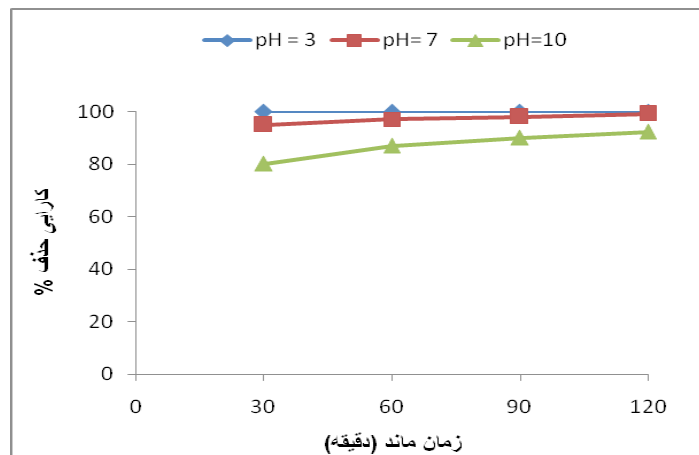
### نتایج حاصل از ایزوترم های جذب

پوشش داده شده با سولفات آلومینیوم و در شکل ۶، انطباق داده های به دست آمده با مدل های (الف) شبه درجه یک (ب) شبه درجه دو (ج) شبه درجه یک اصلاح شده و در جدول ۳ و ۴ پارامترهای مدل های سینتیک واکنش نشان داده شده است.

پارامترهای مدل ایزوترم جذب لانگمیر و فروندلیچ در جدول ۱ و ۲ نشان داده شده است.

### نتایج حاصل از روابط سینتیکی واکنش

در شکل ۵ مقدار جذب آرسنات بر روی پوسته آهکی و



شکل ۴: تاثیر تغییرات pH بر کارایی حذف آرسنات با استفاده از پوسته آهکی پوشش دار: (دوز جاذب=۵ g/L، T = ۲۵ °C، pH = ۷)

در pH = ۳-۷ آرسنات به شکل  $\text{H}_2\text{AsO}_4^-$  و  $\text{HAsO}_2^-$  وجود دارد در حالیکه در این محدوده pH، سولفات آلومینیوم  $(\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 18\text{H}_2\text{O})$  دارای بار مثبت  $\text{Al}_3^+$  است که سبب افزایش نیروی جاذبه بین آرسنات و پوسته آهکی پوشش داده شده با سولفات آلومینیوم می‌گردد و میزان جذب افزایش

بحث:

جذب آرسنات با استفاده از ذرات پوسته آهکی مرجان دریایی پوشش داده شده با سولفات آلومینیوم تحت تاثیر تغییرات pH قرار دارد. نتایج حاصل از انجام آزمایشات مشخص ساخت که بیشترین کارایی حذف در pH = ۳-۷ صورت می‌گیرد.

جدول ۱- پارامترهای مدل های ایزوترمی مورد استفاده برای پوسته آهکی پوشش داده شده با سولفات آلومینیوم

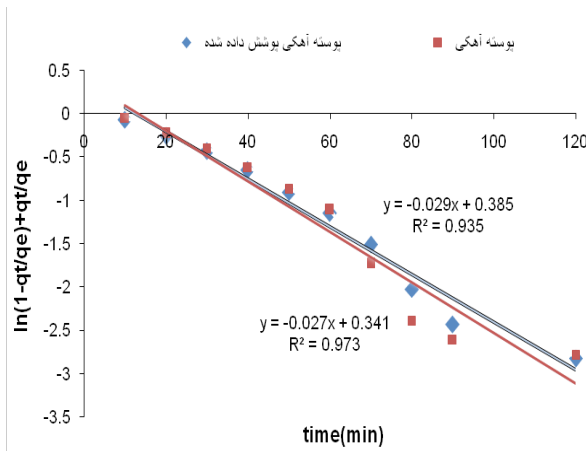
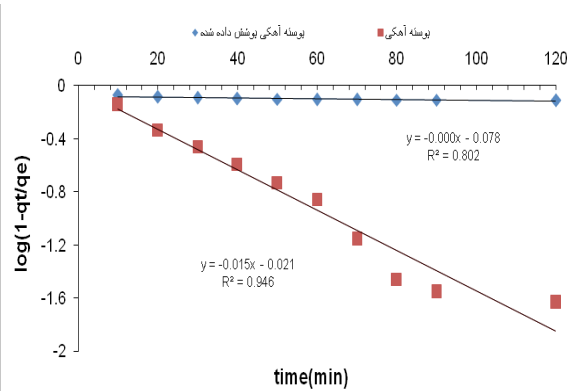
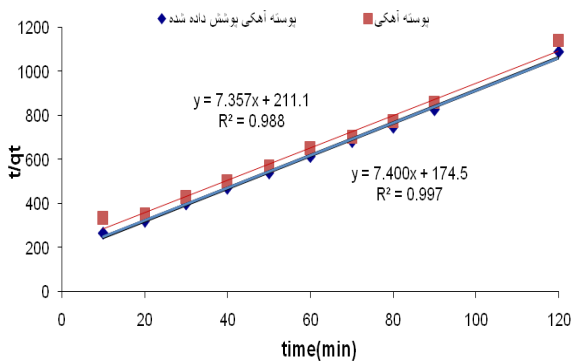
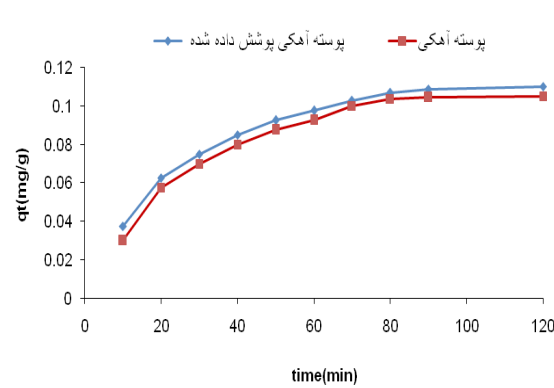
مدل	$Q_m(\text{mg/g})$	$b(\text{L/mg})$	$K_f$	$n$	$R^2$
فروندلیچ	.....	.....	۷/۳۶۶	۲/۹۰۹	۰/۹۹۷۱
لانگمیر	۰/۱۱	۰/۲۸۶۵	.....	.....	۰/۹۹۲۳

جدول ۲- پارامترهای مدل های ایزوترمی مورد استفاده برای پوسته آهکی

مدل	$Q_m(\text{mg/g})$	$b(\text{L/mg})$	$K_f$	$n$	$R^2$
فروندلیچ	.....	.....	۷/۳۶۶	۰/۴۷۵	۰/۹۹۸۷
لانگمیر	۲/۰۹۹	۳۹/۷۸	.....	.....	۰/۹۹۱۸

جدول شماره ۳. پارامترهای مدل های سینتیک داده های به دست آمده برای پوسته آهکی پوشش داده شده با سولفات آلومینیوم

	$K_1$	$K_2$	$K_m$	$q_c$	$R^2$
Pseudo-first order	۰/۰۰۰۳	.....	.....	۰/۱۱۲۵	۰/۸۰۲۸
Pseudo-second order	.....	۰/۰۰۵۷	.....	۰/۱۳۵	۰/۹۹۷۰
Modified pseudo-first order	.....	.....	۰/۰۲۷۵	۰/۱۱۲۵	۰/۹۳۵



شکل ۵: مقدار جذب آرسنات در واحد زمان بر روی پوسته آهکی و پوسته آهکی پوشش داده شده و انطباق داده ها با مدل های (الف) شبه درجه یک (ب) شبه درجه دو (پ) شبه درجه یک اصلاح شده (pH=7، غلظت آرسنات= 500 µg/l، دوز پوسته آهکی = 1 g/L)

جدول شماره ۴. پارامترهای مدل های سینتیک داده های به دست آمده برای پوسته آهکی

	$K_1$	$K_2$	$K_m$	$q_e$	$R^2$
Pseudo-first order	0.1745	.....	.....	0.1075	0.946
Pseudo-second order	.....	0.0053	.....	0.124	0.988
Modified pseudo-first order	.....	.....	0.332	0.1075	0.973

### تشکر و قدردانی

این مقاله بخشی از طرح پژوهشی با عنوان "بررسی مقایسه‌ای پوسته آهکی مرجان و پوسته آهکی مرجان دریایی پوشش داده شده با سولفات آلومینیوم به عنوان جاذب در حذف آرسنیک از محیط‌های آبی" در سال ۱۳۸۷ در دوره کارشناسی ارشد، مصوب دانشگاه علوم پزشکی همدان است که با حمایت معاونت پژوهشی دانشگاه علوم پزشکی همدان اجرا گردیده است.

می‌یابد. کارایی حذف با شرایط قلیایی رابطه معکوس دارد. در pH قلیایی یون‌های آلومینیوم با رادیکال‌های هیدروکسیل باعث تولید رسوب هیدروکسید آلومینیوم می‌شود. این رسوب جایگاه‌های فعال سطحی بر روی پوسته آهکی را اشغال نموده و از فعالیت بیشتر ممانعت به عمل می‌آورد (۱۴). تحقیقی که آقای Maeda و همکاران بر روی حذف آرسنیک آلی و غیر آلی با استفاده از پوسته آهکی پوشش داده شده با AL-CL انجام دادند مشخص گردید که بیشترین کارایی حذف در  $\text{pH} = 3-8$  به دست آمده است (۱۵). با افزایش غلظت یون آرسنات کارایی حذف کاهش می‌یابد زیرا تعداد مکان‌های فعال جذب در سطح جاذب برای جذب یون آرسنات کاهش می‌یابد (۱۶). مطالعه انجام شده توسط Maeda و همکاران بر روی حذف آرسنات با استفاده از پوسته آهکی پوشش داده شده با آلومینیوم مشخص ساخت که با افزایش غلظت یون آرسنات کارایی حذف کاهش می‌یابد (۱۵). در تحقیقی که Kanel و همکاران بر روی حذف آرسنات با استفاده از نانو ذرات آهن انجام دادند نتایج حاکی از آن است که با افزایش غلظت آرسنیک در  $\text{pH} = 7$  و دوز جاذب  $5 \text{ g/L}$ ، کارایی حذف از  $0/84$  به  $37\%$  کاهش یافته است (۱۷). همچنین با افزایش دوز پوسته آهکی کارایی حذف یون آرسنات افزایش می‌یابد زیرا با افزایش دوز جاذب تعداد مکان‌های فعال جذب در سطح جاذب افزایش می‌یابد و تعداد یون‌های آزاد آرسنات در محلول کاهش می‌یابد. همچنین با افزایش زمان ماند کارایی حذف افزایش یافته است (۱۶).

### نتیجه گیری

نتایج حاصل از مطالعات ثابت تعادل نشان می‌دهد که جذب یون آرسنات با استفاده از پوسته آهکی و پوسته آهکی پوشش داده شده با سولفات آلومینیوم از مدل لانگمیر (به ترتیب  $R^2 = 0/9918$  و  $R^2 = 0/9923$ ) پیروی می‌کند و سینتیک جذب آرسنات بر روی پوسته آهکی و پوسته آهکی پوشش داده شده با مدل pseudo-second order به ترتیب  $R^2 = 0/9970$  و  $R^2 = 0/988$  بهتر توصیف می‌شود. مقادیر پایین  $K_2$  و  $K_3$  نشان می‌دهد که منافذ داخلی جاذب در حد میکرومتر بوده که باعث ایجاد مقاومت در برابر نفوذ آرسنات شده است. همچنین پوسته آهکی پوشش داده شده با سولفات آلومینیوم راندمان حذف بیشتری نسبت به پوسته آهکی دارد.



منابع

1. Kelly B, Payne M, Tarek M, Fattah A. Adsorption of arsenate and arsenite by iron-treated activated carbon and zeolites: Effects of pH, temperature, and ionic strength. *Journal of Environmental Science and Health*. 2005;40:723–49.
2. Yuan T, Hu JY, Ong SL, Luo QF, Ng WJ. Arsenic removal from household drinking water by adsorption. *Journal of Environmental Science and Health. Part A, Toxic/Hazardous Substances and Environmental Engineering*. 2002;37(9):1721–36.
3. Subramanian V, Avan N, Naqvi S. Arsenic in our environment: a critical review. *Environmental Hazards in South Asia*. 2002;5:189–214.
4. Shahtaheri SJ, Afshari D. *Occupational Toxicology*. Tehran: Publications for Tomorrow; 2009.
5. Lamm SH, Engel A, Kruse MB, Feinleib M, Byrd DM, Lai S, Wilson R. Arsenic in drinking water and bladder cancer mortality in the United States: an analysis based on 133 U.S. counties and 30 years of observation. *Journal of Occupational and Environmental Medicine*. 2004;46:298–306.
6. Hopenhayn C. *Arsenic in drinking water: Impact on human health*. Kentuck: College of public health, University of Kentuck; 2006.
7. APHA, AWWA, WEF. *Standard Methods for the Examination of Water and Wastewater*. 21st ed. Washington DC: American Public Health Association; 2005.
8. Klein AK, Vorhees FA. Determination of arsenic (in foods). *Journal of the Association of Official Analytical Chemists*. 1939;22:121–25.
9. Weifang C, Robert P, Jiying Z, Brian A. Arsenic removal by iron-modified activated carbon. *Water Research*. 2007;41(9):1851–58.
10. Bitner MJ, Chwirka JD. Arsenic removal treatment technologies for drinking water supplies. *Proceedings of 39th New Mexico Water Conference*. Albuquerque, New Mexico; 1994.
11. Pierce ML, Moore CB. Adsorption of arsenite and arsenate on amorphous iron hydroxide. *Water Research*. 1982;16:1247–53.
12. Kanel SR, Manning B, Charlet L, Choi H. Removal of Arsenic(III) from groundwater by nanoscale zero-valent iron. *Environmental Science and Technology*. 2005;39:1291–98.
13. Azizian S. Kinetic models of sorption: a theoretical analysis. *Journal of Colloids and Interface Science*. 2004;276(1):47–52.
14. Shu HY, Chang MC, Yu HH, Chen WH. Reduction of an azo dye acid black 24 solution using synthesized nanoscale zero valent iron particles. *Journal of Colloid and Interface Science*. 2007;314:89–97.
- 15- Maeda S, Ohki A, Saikoji S. Iron(III) hydroxide-loaded coral limestone as an adsorbent for arsenic(III) and arsenic(V). *Journal of Separation Science and Technology*. 1992;27:681–89.
16. Konstantina T, Elpida P, Nikolaos PN. Modeling of arsenic immobilization by zero valent iron. *European Journal of Soil Biology*. 2007;43:356–67.
17. Kanel SR, Greneche JM, Choi H. Arsenic removal from groundwater using nano zero- valent iron as a colloidal reactive barrier material. *Environmental Science and Technology*. 2006;40(6):2045–50.

# Investigation Comparison of Coral Limestone and Aluminium Sulfat-Coated Coral Limestone as an Adsorbent in Arsenic(V) removal of aqueous solution: Equilibrium and Kinetic Study

Mohamad Taghi Samadi<sup>1</sup>, \*Roghaye Nourozi<sup>2</sup>, Mohamad Hadi Mehdinejad<sup>2</sup>, Reza Aminzadeh<sup>3</sup>

<sup>1</sup>Department of Environmental Health Engineering, Faculty of Health, Hamadan University of Medical Sciences, Hamadan, Iran.

<sup>2</sup>Department of Environmental Health Engineering, Faculty of Health, Golestan University of Medical Sciences, Gorgan, Iran.

<sup>3</sup> Health Center, Kurdistan University of Medical Sciences, Kurdistan, Iran.

Received; 6 June 2012

Accepted; 5 September 2012

## Abstract

**Backgrounds and Objectives:** Determination of arsenic(As) in drinking water has received increasing interest due to its detrimental effects on health. The aim of this research is to investigate effect of coating coral limestone using aluminum sulfate as an adsorbent on the arsenic(V) removal efficiency from aqueous solution.

**Materials and Methods:** In this laboratory scale study, we prepared coral lime granules using mesh 30 during several stages. Then, we investigated the arsenate removal efficiency under different conditions and changing main factors including pH, contact time and amount of no coated and aluminum sulfate-coated adsorbent. Moreover, we fitted our results with Langmuir and Freundlich models and kinetic data with pseudo- first order, pseudo- second order and modified pseudo- first order models.

**Results:** We found that increasing pH from 3 to 10 at arsenate concentration of 500 ppb and 5 g/l adsorbent and 120 min contact time, removal efficiency for no coated and coated adsorbent was reduced from 100 to 86.2% and from 100 to 92.2% respectively. Increasing concentration of both adsorbents from 1 to 5 g/l at contact time 120 min increased the removal efficiency from 76 to 99.2% and from 66.3 to 91.1% respectively. Arsenate removal efficiency was directly proportional with the amount of adsorbent and contact time and reversely proportional with the initial concentration of arsenate and pH. The removal efficiency of the coated adsorbent was more than uncoated adsorbent. Langmuir was the best sorption isotherm model for arsenate in these two processes and absorption kinetic was well described with second order models.

**Conclusion:** Excellent removal efficiency, cost-effectiveness process, and lack of environmentally harmful substances make application of the Persian Gulf offshore corals a reasonable adsorbent to remove environmental contaminants such as arsenate.

**Keyword:** Coral Limestone, Coated Coral Limestone, Arsenic removal, Arsenate, Adsorption.

---

\*Corresponding Author: [dr.norozi@yahoo.com](mailto:dr.norozi@yahoo.com)

Tel: +98 9183127532 Fax: +98 1714421663