

## بررسی مقدار آنتیموان و کبالت وارد شده از ظروف PET به آب‌های بسته‌بندی شده

محمود علی محمدی<sup>۱</sup>، ابراهیم مولایی آقایی<sup>۲</sup>، رامین نبی زاده<sup>۳</sup>، غلامرضا جاهد<sup>۴</sup>، ساسان رضایی<sup>۴</sup>، اکبر گلدسته<sup>۵</sup>، شاهرخ نظم آرا<sup>۶</sup>، حسن اصلانی<sup>۷</sup>  
نویسنده مسئول: تهران، میدان انقلاب، دانشگاه علوم پزشکی تهران، دانشکده بهداشت، گروه بهداشت محیط [em.aqae@gmail.com](mailto:em.aqae@gmail.com)

پذیرش: ۹۰/۱۱/۱۱

دریافت: ۹۰/۰۹/۱۳

### چکیده

**زمینه و هدف:** فلزات سنگین از جمله آنتیموان و کبالت به عنوان دو عامل آلاینده در برخی شرایط از ظروف پلی اتیلن ترفتالات (PET) وارد آب می‌شوند. بنابراین اندازه‌گیری آنها در شرایط مختلف نگهداری مورد توجه قرار گرفت. **روش بررسی:** ۵ تیمار دمایی - زمانی بر روی ۵ نمونه آب انجام گرفت و شرایط انبارش به صورت زیر تعریف شد: در دمای محیط بیرون و تابش نور خورشید، دمای اتاق و  $40^{\circ}\text{C}$  در زمان‌های مختلف برای هشت هفته، دمای  $65^{\circ}\text{C}$  تا شش هفته و دمای  $80^{\circ}\text{C}$  تا هفت روز. اندازه‌گیری با روش ICP-AES و آنالیز نتایج با نرم افزار SPSS انجام گرفت. **یافته‌ها:** غلظت آنتیموان با افزایش زمان انبارش در همه شرایط دمایی و در تمام نمونه‌ها افزایش یافت که البته نسبت افزایش در نمونه‌ها متفاوت بود. در محیط بیرون، دمای اتاق و  $40^{\circ}\text{C}$  افزایش غلظت آنتیموان تا زمان آخر نگهداری پایین تر از حد مجاز بود. اما در دماهای  $65^{\circ}\text{C}$  و  $80^{\circ}\text{C}$  با افزایش زمان مطالعه، میزان آنتیموان از حد مجاز بیشتر شد و به طور مثال اختلاف میان نمونه ۴ و ۵ معنادار بود ( $P \leq 0/05$ ). غلظت کبالت نیز در ابتدا و در طول مطالعه بسیار پایین و کمتر از حد تشخیص دستگاه بود. **نتیجه‌گیری:** با افزایش زمان و دما، میزان نشت آنتیموان به داخل آب زیاد می‌شود. همچنین تابش نور موثر است اما تاثیر دما در این مطالعه قابل توجه نبود و در این بررسی نوع ظرف از نظر شفاف یا رنگی بودن تاثیر معناداری بر میزان نفوذ آنتیموان نداشت ( $P > 0/05$ ).

واژگان کلیدی: آب‌های بطری شده، آنتیموان، کبالت، بطری‌های PET

- ۱- دکترای بهداشت محیط، استادیار دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی تهران
- ۲- دانش‌آموخته کارشناسی ارشد بهداشت و ایمنی مواد غذایی، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی تهران
- ۳- دکترای بهداشت محیط، دانشیار دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی تهران
- ۴- دکترای میکروبیولوژی، دانشیار دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی تهران
- ۵- کارشناس ارشد آمار، دانشکده علوم پایه، دانشگاه علم و فرهنگ تهران
- ۶- کارشناس ارشد بهداشت محیط، مسئول آزمایشگاه هوا دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی تهران
- ۷- دانشجوی دکترای بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی تهران

## مقدمه

امروزه افزایش جمعیت و کمبود آب شرب قابل استفاده در مناطق مختلف سبب گردیده است که مردم بیشتر از آب‌های بطری شده به علت کیفیت خوب، قیمت مناسب و ارزان، حمل آسان و در دسترس بودن بیشتر و از طرفی توجه مصرف‌کنندگان به افزایش آلودگی آب و مشکلات منابع آب شهری نظیر بو، مزه، میزان فلوراید و کلر بالا استفاده نمایند. بنابراین بهداشت و ایمنی شیمیایی و میکروبی آب‌های بطری شده از اهمیت به سزایی برخوردار است (۳-۱). طبق گزارش WHO بیشتر از ۱/۸ میلیون نفر (اکثرا کودکان) هر سال در دنیا در اثر بیماری‌های ناشی از آب می‌میرند که تبدیل به یکی از مهم‌ترین و شایع‌ترین علل مرگومیر شده است (۴ و ۵). بنابراین علاوه بر پیاده‌سازی روش‌های مختلف بهداشتی در طول استحصال و بسته‌بندی آب بطری شده، مانند نظافت تجهیزات و انبارش صحیح ترکیبات بسته‌بندی، دقت ویژه‌ای باید در نگهداری و انتقال محصول نهایی صورت گیرد (۶).

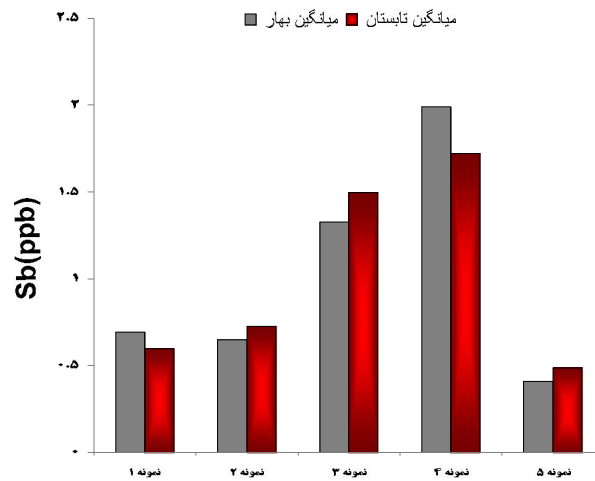
این آب‌ها در ظروفی از جنس پلی اتیلن ترفتالات (Polyethylene Therephthalate-PET) بسته‌بندی می‌شوند که دارای بعضی ترکیبات سمی و خطرناک نظیر فتالیک اسیدها و فلزات سنگین هستند و در برخی موارد این ترکیبات به داخل آب وارد شده و منجر می‌گردد که سلامت انسان به خطر افتد. بطری‌های PET از پلیمریازسیون منومرهای اسید ترفتالیک و اتیلن گلیکول با کاتالیست‌های آنتیموان - تیتانیوم یا ژرمانیوم تولید می‌شوند و در ترکیب خود دارای کبالت نیز هستند. آنتیموان و کبالت به عنوان دو عامل عمده آلاینده آب‌های بطری شده مطرح بوده که از ظروف PET وارد آب می‌شوند. تحقیقات نشان می‌دهد که میزان این دو آلاینده در داخل آب‌های بطری شده در برخی شرایط بالاتر از حد استاندارد است (۴ و ۷).

آنتیموان علاوه بر حالت طبیعی از طریق فعالیت‌های انسانی هم وارد محیط زیست می‌شود. از عوارض جانبی آن بر انسان می‌توان از مشکلات قلبی، ریوی و گوارشی نام برد و مقادیر بیشتر از حداکثر میزان آلاینده (Maximum Contaminant Level-MCL) در کوتاه مدت ایجاد تهوع، استفراغ و اسهال و در بلند مدت افزایش کلسترول خون و کاهش قند خون را به دنبال دارد. تحقیقات نشان‌دهنده اثرات سرطان‌زایی مشابه آن

با آرسنیک است (۸). تری اکسید آنتیموان ( $Sb_2O_3$ ) بیشترین کاربرد را به عنوان کاتالیست در تولید PET دارد و به میزان mg/kg ۱۰۰-۳۰۰ در بطری‌ها یافت می‌شود (۹). در دماهای بالای نگهداری و تابش نور خورشید امکان نفوذ آنتیموان از بطری به داخل آب افزایش می‌یابد (۱۰). کبالت به عنوان کاتالیزور برای مصرف در صنایع شیمیایی و نفتی به کار می‌رود. در اثر آشامیدن آب آلوده به کبالت امکان ایجاد مشکلات تنفسی مانند آسم، خس‌خس سینه و مشکلات قلبی، گوارشی، تهوع و استفراغ، مشکلات بینایی و آسیب به تیروئید وجود دارد. همچنین آژانس بین‌المللی تحقیقات امریکا آن را به عنوان عامل ایجاد سرطان معرفی نموده است (۴ و ۱۱). بررسی‌های اپیدمیولوژیکی نشان‌دهنده ارتباط بین بیماری‌ها و وجود عناصر کم مقدار سمی نظیر  $Pb, Ni, Sb, As, Cd$  همانند مقادیر زیاد میکرونوترینت‌های ضروری مثل  $Co, Zn, Se$  است. گرچه برخی از عناصر کم مقدار مانند کروم، کبالت و سلنیوم برای انسان ضروریست اما تجمع آنها به میزان بیش از حد قطعاً مضر است (۲۰، ۲۱ و ۲۲). مواد اولیه PET از کارخانجات متفاوت با کیفیت‌های مختلف و در برخی مواقع از مواد بازیافتی تهیه می‌گردد و با توجه به این که تا به حال تحقیق مشابه داخل کشور انجام نشده است، لزوم بررسی آلاینده‌های آنتیموان و کبالت موجود در این آب‌ها را دو چندان کرده است.

## مواد و روش‌ها

مطالعه از نوع توصیفی - مقطعی و تحلیلی همراه با اعمال شرایط مختلف نگهداری و انبار است. جهت انتخاب نمونه‌ها از برندهایی استفاده شد که کارخانه تولیدکننده و در واقع نقطه استحصال و منبع و مظهر آب در نقاط مختلف کشور پراکنده باشد و ضمناً جزو برندهای پرمصرف و معتبر به شمار آیند. بنابراین با بررسی سابقه حضور هر یک از برندهای آب بطری شده در بازار مصرف و نیز مراجعه به فروشگاه‌های مواد غذایی در مناطق گوناگون که به طور تصادفی انتخاب شدند ۵ نمونه آب بطری شده ۰/۵ لیتری در بطری‌های PET بی‌رنگ و آبی رنگ از هر منطقه به تعداد ۵۰۰ عدد طی دو فصل خریداری

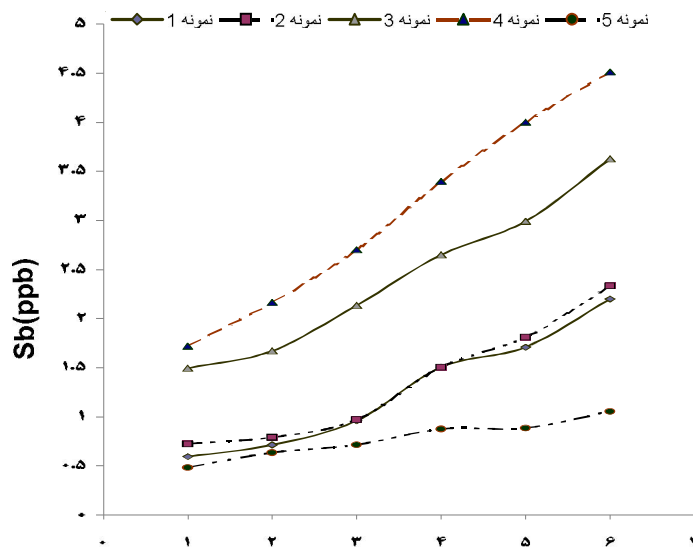


شکل ۱: مقدار میانگین آنتیموان در نمونه‌ها در دو فصل بهار و تابستان

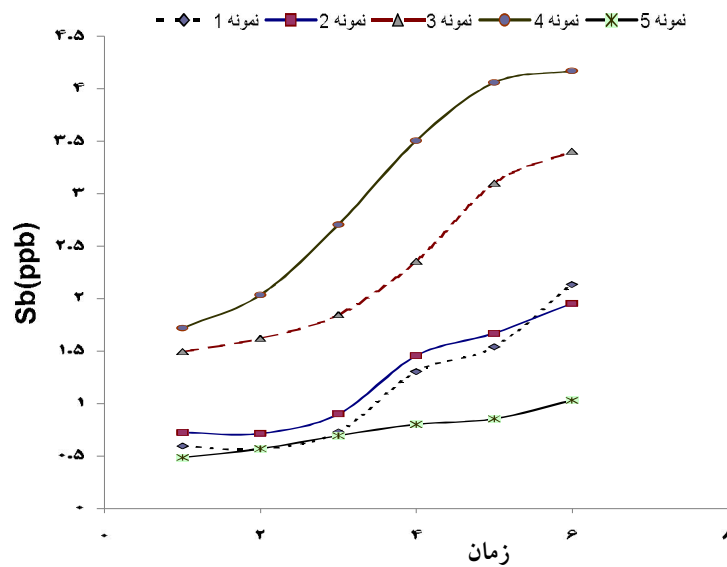
Coupled Plasma-Atomic Emission Spectroscopy

توزیع شد. ۵ تیمار زمانی - دمایی به شرح زیر جهت نگهداری نمونه‌های آب انجام گرفت: دمای محیط بیرون و نور خورشید ( $31 \pm 4/6$  °C) در روز صفر، هفته اول، دوم، چهارم، ششم و هشتم. دمای اتاق ( $25 \pm 2/6$  °C) در روز صفر، هفته اول، دوم، چهارم، ششم و هشتم. دمای  $40$  °C در روز صفر، هفته اول، دوم، چهارم، ششم و هشتم. دمای  $65$  °C در روز صفر، روز ۳، هفته اول، هفته دوم، هفته چهارم، هفته ششم و دمای  $80$  °C در روز صفر، اول، دوم، سوم، چهارم و هفتم. در زمان‌های تعیین شده در هر یک از شرایط، نمونه‌های ۰/۵ لیتری آب با ۱ cc اسید نیتریک ۶۵٪ جهت جلوگیری از رسوب

شد. پراکندگی نقاط تولید شامل استان تهران، گیلان، چهارمحال و بختیاری، آذربایجان شرقی و مازندران بود و جمع آوری آنها از بازار شهر تهران انجام گرفت. تجزیه خود بطری‌های آب در دمای بالای  $180$  °C در بطری‌ها هضم تفلونی با قابلیت تحمل فشار و دمای بالا صورت گرفت. به طوری که بطری‌های آب به قطعات  $8 \times 8$  mm<sup>2</sup> بریده شده و ۱ گرم از آنها توزین شده و در محلول ۴ به ۱ اسید نیتریک خالص ۶۵٪ و اسید کلریدریک به منظور هضم قرار داده شد. سپس محلول نهایی به بطری‌های تفلونی انتقال یافته و در دمای  $180$  °C داخل آن به مدت ۱۵ دقیقه قرار داده شد. پس از سرد شدن محلول حاصل از تجزیه بطری برای اندازه‌گیری فلزات سنگین به دستگاه (Inductively



شکل ۲: تغییرات غلظت آنتیموان در زمان‌های مختلف در شرایط نگهداری در دمای بیرون



شکل ۳: تغییرات غلظت آنتیموان در زمان‌های مختلف در شرایط نگهداری در دمای اتاق

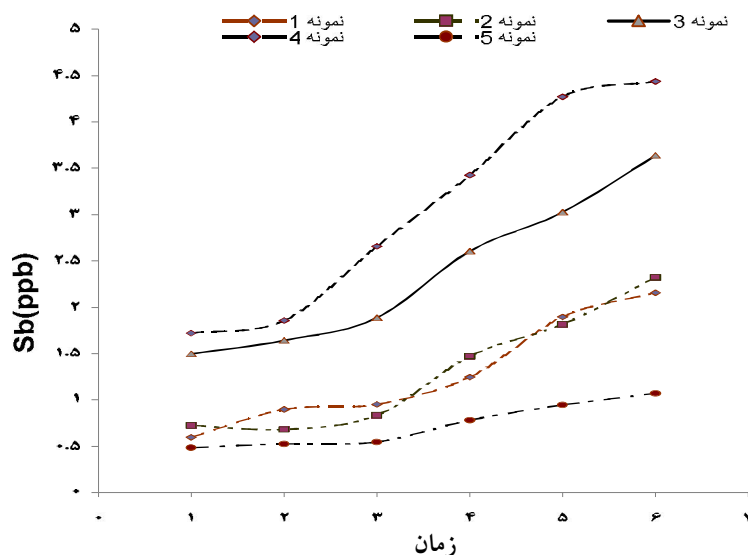
میانگین مقادیر آنتیموان در ۲ فصل بهار و تابستان در ابتدای مطالعه در شکل ۱ نشان داده شده است. همان طور که مشاهده می شود اختلاف بین نمونه‌های ۳ و ۴ با سایر نمونه‌ها معنادار است ( $P \leq 0.05$ ) و مقادیر بالاتری دارند. اما به طور کلی میزان آنتیموان در تمام نمونه‌ها در هر ۲ فصل مطالعه پایین‌تر از حداکثر مقدار مجاز استانداردهای ملی و بین‌المللی ۰/۰۵ ppb است.

در مورد کبالت نیز نکته قابل توجه آن که در تمام نمونه‌ها و نیز در تمامی شرایط دمایی و زمانی مورد مطالعه، مقدار آن کمتر از ۱ ppb بود. در ضمن مقدار مذکور برای حالت تغلیظ شده نمونه‌هاست، یعنی میزان کبالت موجود در نمونه‌ها بسیار

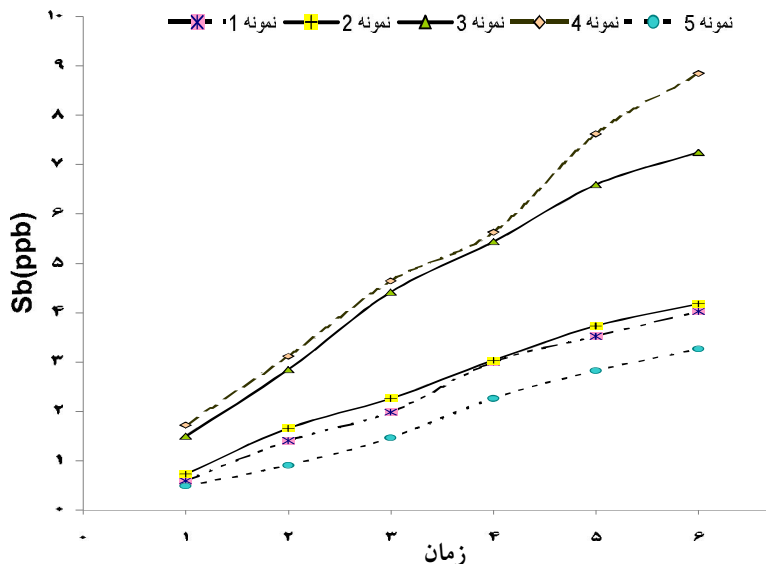
دادن بر روی هیتر برقی تا رسیدن به حجم ۲۵ CC هضم و تغلیظ شدند و به منظور نگهداری جهت آنالیز، pH آنها به زیر ۲ رسانده شد. لازم به ذکر است عملیات تغلیظ جهت تشخیص بهتر مقادیر ناچیز فلزات و در ضمن در حرارت ملایم در زمان طولانی انجام گرفت تا از جوشیدن نمونه‌ها جلوگیری شود (۱۲). سپس نمونه‌های آماده شده، با دستگاه ICP-AES آنالیز شدند. تجزیه و تحلیل نتایج با استفاده از نرم افزار آماری SPSS ویرایش ۱۶ و انجام آزمون‌های ناپارامتری به دلیل عدم توزیع نرمال آلاینده‌ها انجام گرفت.

### یافته‌ها

#### مقایسه وضعیت نمونه‌ها در ابتدای مطالعه



شکل ۴: تغییرات غلظت آنتیموان در زمان‌های مختلف در شرایط نگهداری در دمای ۴۰°C



شکل ۵: تغییرات غلظت آنتیموان در زمان‌های مختلف در شرایط نگهداری در دمای ۶۵ °C

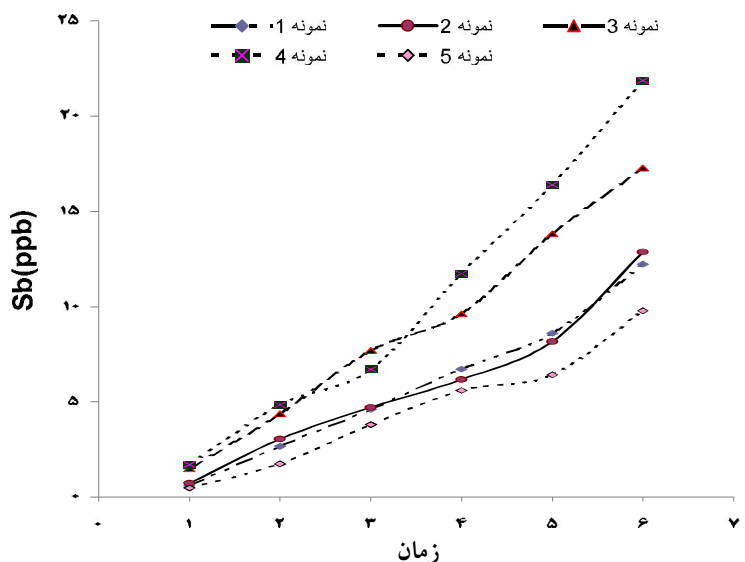
بیان‌گر این است که میزان نشت آنتیموان به داخل محتوی آب در طول زمان ارتباط مستقیمی با مقدار اولیه آن در محصول دارد، بدین معنا که هر چه غلظت اولیه آنتیموان در ابتدا در آب بطری شده بیشتر باشد مقدار آن در ادامه به نسبت سایر نمونه‌ها بیشتر افزایش می‌یابد.

ب. دمای اتاق: متوسط دمای اتاق در مدت انجام آزمایشات برابر  $25 \pm 2/6$  °C بود. مطابق شکل ۳ روند تغییرات همانند شرایط فوق است و اختلاف معناداری بین این دو دما دیده نمی‌شود ( $P > 0/05$ ).

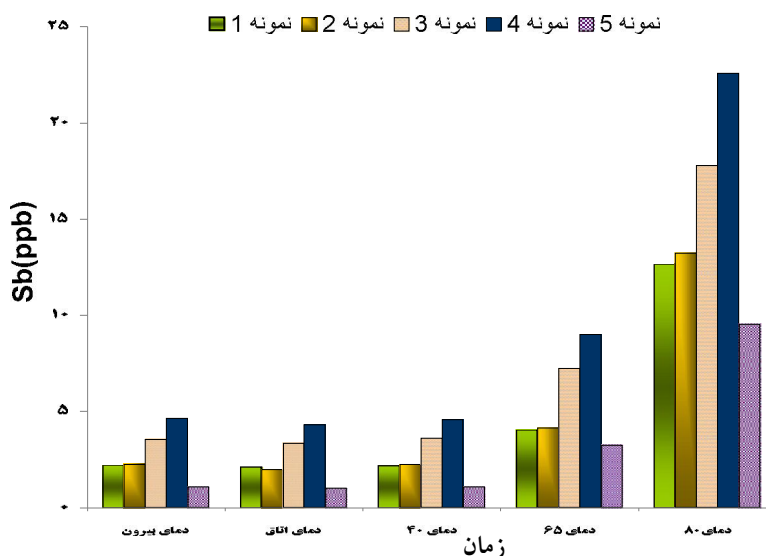
ج. دمای ۴۰ °C: طبق شکل ۴ روند تغییرات همانند دو شرایط فوق است و اختلاف معناداری بین آنها دیده نمی‌شود

کمتر و به نسبت ۱/۲۰ است. این در حالی است که در مورد محلول‌های استاندارد تهیه شده برای کبالت دستگاه به خوبی و با دقت بسیار بالایی مقادیر خیلی پایین و ناچیز را تعیین و خوانش کرده است.

**مقایسه تغییرات غلظت فلز سنگین نمونه‌ها در هر یک از شرایط الف. دمای محیط بیرون و تابش نور خورشید:** میانگین دمای محیط بیرون از آزمایشگاه در فواصل زمانی مختلف برابر با  $31 \pm 4/6$  °C بود. نمونه‌ها در طول روز در معرض تابش مستقیم نور خورشید قرار داشتند. طبق شکل ۲ در تمام نمونه‌ها با گذشت زمان روند صعودی در میزان غلظت آنتیموان قابل مشاهده است. آنچه از نتایج اندازه‌گیری‌ها به دست می‌آید،



شکل ۶: تغییرات غلظت آنتیموان در زمان‌های مختلف در شرایط نگهداری در دمای ۸۰ °C



شکل ۷: مقدار غلظت آنتیموان در روز آخر در هر دما (میانگین بهار و تابستان)

طوری که در نمونه‌های ۳ و ۴ از روز دوم و در سایر نمونه‌ها از روز سوم این اتفاق رخ داده است.

نتایج وضعیت نمونه‌ها در زمان آخر مطالعه برای هر یک از شرایط در میانگین ۲ فصل

مطابق شکل ۷ میزان آنتیموان در انتهای مطالعه در دمای ۰C ۸۰ بیشترین افزایش را داشته و در دماهای ۰C ۴۰، داخل اتاق و فضای بیرون کمترین افزایش دیده می‌شود. ضمن این که اختلاف در این ۳ دما کم بوده و معنادار نیست ( $P > 0.05$ ).

مقایسه میزان فلزات سنگین بطری‌های شفاف و رنگی

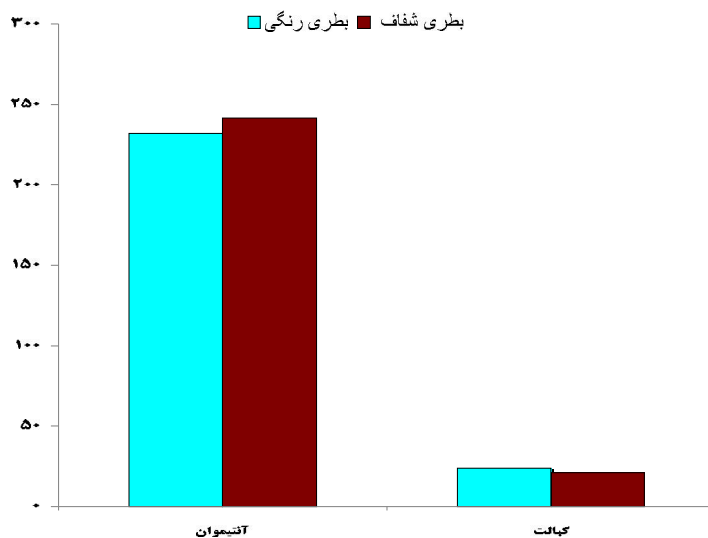
اختلاف معناداری در غلظت آنتیموان و کبالت در اندازه‌گیری

( $P > 0.05$ ). در تمام نمونه‌ها تا این درجه حرارت برای همه

زمان‌ها میزان آنتیموان پایین‌تر از حد استاندارد ۵ ppb بود.

د. دمای ۰C ۶۵: در تمام نمونه‌ها با گذشت زمان روند صعودی در میزان غلظت آنتیموان قابل مشاهده است. طبق شکل ۵ مقدار آنتیموان در نمونه‌های ۳ و ۴ با گذشت زمان افزایش یافته و پس از گذشت دو هفته و بیشتر، مقدار آنتیموان به بالاتر از حد مجاز رسیده است. اما غلظت در سایر نمونه‌ها کماکان تا انتهای هفته ششم کمتر از مقدار استاندارد باقی مانده است.

ث. دمای ۰C ۸۰: طبق شکل ۶ در این دما غلظت آنتیموان تمام نمونه‌ها افزایش و به میزانی بیش از حد استاندارد رسیده‌اند. به



شکل ۸: مقدار فلزات سنگین بطری‌های شفاف و رنگی

متوسط غلظت در ابتدا  $0/116 \pm 0/195$  ppb بود که بعد از ۳ ماه ننگه‌داری در دمای ۲۲ درجه به  $0/160 \pm 0/226$  ppb رسید. در تحقیق حاضر، متوسط مقدار آنتیموان نمونه‌ها در ابتدای مطالعه و پس از تهیه از بازار برابر با  $0/59 \pm 0/101$  ppb بود که در انتهای مطالعه یعنی بعد از ۸ هفته در دمای اتاق به  $1/58 \pm 2/54$  ppb رسید (شکل ۳). اختلاف قابل مشاهده می‌تواند به دلیل تفاوت کیفیت منابع آب و در نتیجه محتوی فلزات سنگین آنها و نیز کیفیت بطریهای بسته بندی باشد. دما در تابستان در برخی نقاط امریکا در داخل ماشین، پارکینگ و محیط‌های بسته از ۶۵ درجه بیشتر شده و در نتیجه امکان نفوذ آنتیموان به درون آب افزایش می‌یابد. همین شرایط در داخل کشور در مناطق گرمسیری در جنوب کشور به ویژه در فصول گرم سال صدق می‌کند. دمای ۸۰ درجه در ۴۸ ساعت سبب افزایش غلظت از  $0/5$  به  $7$  ppb شده که بعد از ۷ روز به  $14/4$  ppb افزایش یافت. تابش UV باعث افزایش غلظت به  $3-2$  ppb می‌شود. تابش نور خورشید بعد از ۷ روز در دمای آب  $35$  درجه سبب افزایش از  $0/37$  ppb به تنها  $0/61$  ppb و برای نمونه‌های کنترل از  $0/37$  ppb به  $0/56$  ppb می‌شود. در مطالعه حاضر مطابق شکل ۶ در دمای ۸۰ درجه پس از گذشت ۴۸ ساعت غلظت آنتیموان  $3/81$  تا  $7/6$  ppb رسید که بعد از ۷ روز به ترتیب به  $9/79$  تا  $21/88$  ppb افزایش یافت. می‌توان گفت که پس از گذشت زمان ۷ روز در دمای ۸۰ درجه به طور متوسط غلظت آنتیموان  $14/7$  برابر مقدار اولیه آن در مجموع نمونه‌ها شده است.

در شرایط تابش نور خورشید نیز در متوسط دمای محیط طبق شکل ۲ غلظت آنتیموان در مقایسه با نتایج مطالعه فوق پس از ۷ روز، از  $1/05$  به  $4/51$  ppb رسید که این اختلاف ناشی از مقدار اولیه بالاتر آنتیموان در نمونه‌های این مطالعه است. در مورد نمونه‌های کنترل نیز که در واقع همان ننگه‌داری در شرایط اتاق است، در مقایسه با بررسی فوق بعد از ۷ روز غلظت آنتیموان از  $1/03$  به  $4/17$  ppb افزایش یافت (شکل ۳). تفاوت قابل ملاحظه‌ای میان شرایط دمای اتاق و دمای بیرون در معرض نور خورشید همانند مطالعه فوق دیده نمی‌شود ( $p > 0/05$ ). البته این بدین معنا نیست که تابش نور خورشید تاثیری در میزان آزاد شدن و نشت آنتیموان و سایر فلزات

خود بطری‌ها میان بطری‌های شفاف و رنگی مطابق شکل ۸ مشاهده نمی‌شود. مقدار آنتیموان در بطری‌ها در حدود ۱۰ برابر میزان کبالت است. میزان متوسط آنتیموان در بطری‌های شفاف تقریباً  $10$  ppb بالاتر از بطری‌های رنگی بود.

## بحث

همان طور که در شکل ۱ نشان داده شد به طور کلی مقادیر آنتیموان در وضعیت اولیه یعنی زمان صفر در تمام نمونه‌ها کمتر از حد مجاز استانداردهای ملی و بین‌المللی است که مطابق با نتایج سایر مطالعات بررسی شده است. نمونه ۴ مربوط به آذربایجان شرقی بالاترین میزان آنتیموان را به خود اختصاص داده در حالی که نمونه ۵ مربوط به چهارمحال و بختیاری کمترین مقدار را دارد. از دلایل اختلاف میان غلظت آنتیموان نمونه‌ها می‌توان به تفاوت در محل و پراکندگی منبع استحصال و تهیه آب در کشور و بالطبع ویژگی‌های ژئوفیزیکی و شیمیایی لایه‌های زیرزمینی آن محل که بر میزان وجود فلزات سنگین تاثیر می‌گذارند و نیز خود بطری‌های بسته‌بندی اشاره کرد. زیرا طی فرایند تهیه بطری‌های پلاستیکی PET از آنتیموان فلز به عنوان کاتالیست واکنش در قالب ترکیب  $Sb_2O_3$  استفاده می‌شود. در مورد کبالت نیز همانند اکثر مطالعات صورت گرفته در جهان مقادیر آن بسیار کم بوده و در حالت تغلیظ (۲۰ برابر) مقدار آن زیر  $1$  ppb بود. اندازه‌گیری کبالت از آن جهت در این مطالعه اهمیت داشت که اولاً در کشور تا کنون تحقیقی در مورد اندازه‌گیری آن در آب‌های بطری شده انجام نگرفته و نیز هیچ استاندارد ملی برای آن تعیین نشده است. در مطالعه‌ای در ترکیه میزان کبالت  $7-11$  ppb در نمونه‌ها بود. هیچ استاندارد از سوی EPA، WHO یا استاندارد ترکیه در نظر گرفته نشده است. میزان Sb نیز کمتر از  $1$  ppb منظور شد که البته پایین‌تر از حد تشخیص بود (۱۹ و ۱۸).

در سال ۲۰۰۸، در مطالعه (Westerhoff) و همکاران بیان شد که در دماهای بالای ننگه‌داری و تابش نور خورشید امکان نفوذ آنتیموان از بطری به داخل آب افزایش می‌یابد. غلظت آن در نمونه‌ها  $0/521-0/095$  بود که کمتر از حداکثر حد آلاینده اعلام شده از سوی اداره حفاظت محیط زیست امریکا (USEPA) یعنی  $6$  ppb است.

آنتیموان در بطری‌های PET برابر  $290 - 210 \text{ mg/kg}$  گزارش شد (۷). در بررسی دیگری نشان داده شد که بطری‌ها حاوی  $300 - 190 \text{ mg/kg}$  آنتیموان هستند (۱۴). با استفاده از آزمون (man-whitney) برای مقایسه میزان تغییر میزان آنتیموان در بطری‌های شفاف و رنگی در زمان‌های متفاوت نسبت به روز صفر (شروع آزمایش) به تفکیک درجه حرارت نتیجه آن بود که با وجود بیشتر بودن نسبی مقادیر آنتیموان در بطری‌های رنگی نسبت به بطری‌های شفاف تفاوت از لحاظ آماری در هیچ یک از درجه حرارت‌ها معنی‌دار نیست ( $P > 0.05$ ) گرچه میزان نفوذ در بطری‌های رنگی تا حدی بالاتر بود.

### نتیجه‌گیری

نتایج تحقیق حاضر نشان داد که غلظت آنتیموان نمونه‌ها در وضعیت اولیه کمتر از حد مجاز استاندارد بود. هر چه دما و زمان افزایش یابد میزان نشت آنتیموان به داخل آب نیز بیشتر می‌شود. در همه برندها در دماهای اتاق، محیط بیرون و  $40^\circ\text{C}$  میزان آنتیموان زیر حد استاندارد است. میزان افزایش در درجات  $80^\circ\text{C}$  و  $65^\circ\text{C}$  محسوس‌تر است و هرچه به انتها نزدیک‌تر می‌شویم بیشتر از حد استاندارد می‌شود. نوع بطری از نظر کدر یا شفاف بودن در شرایط اعمال شده در این مطالعه تاثیر قابل توجهی بر میزان نشت آنتیموان نداشت گرچه در مجموع مقدار نفوذ در بطری‌های آبی رنگ بیشتر بود. تابش نور خورشید در شرایط دمایی این بررسی اثر کمی داشته اما معنادار نبود. لازم به ذکر است تابش نور در دماهای بالاتر انبارش برای مثال در مناطق گرمسیری کشور که این محصولات در محیط بیرون از فروشگاه‌ها یا در نزد مصرف‌کننده نگهداری می‌شوند اثر هم‌افزایی خواهد داشت.

### تشکر و قدردانی

این مقاله حاصل طرح تحقیقاتی با عنوان "بررسی فلزات سنگین وارد شده از بسته‌بندی آب‌های بطری‌شده مصرفی ایران" مصوب دانشگاه علوم پزشکی و خدمات بهداشتی، درمانی تهران در سال ۱۳۹۱ با کد ۰۱-۱۹-۲۷-۱۷۳۰۸ است که با حمایت دانشگاه علوم پزشکی و خدمات بهداشتی، درمانی تهران اجرا شده است.

سنگین از جمله سرب و کادمیوم ندارد (۱۰ و ۱۳)، بلکه احتمالاً در دماهای بالاتر تابش نور اثر هم‌افزایی در میزان نفوذ فلزات سنگین به داخل بطری خواهد داشت.

در مطالعه (Cheng) و همکاران در سال ۲۰۱۰ نتایج نشان داد که گرما دادن و میکروویو باعث افزایش قابل توجه آنتیموان و کبالت نشت یافته در محتویات بطری‌ها شده که در برخی موارد بالاتر از حداکثر مقدار مجاز بود. انکوباسیون با آب با PH پایین، تابش نور خورشید در محیط بیرون و نگهداری داخل ماشین اثر معناداری بر میزان نشت نداشته و میزان فلزات سنگین کمتر از حداکثر مقدار مجاز (MCL) بود. هم‌چنین سرد کردن هم اثر چندانی در این مورد نداشت. در مورد ۱۵ فلز سنگین دیگر که شامل  $\text{Al, V, Cr, Mn, Co, Ni, Cu, As, Se, Mo, Ag, Cd, Ba, Tl, Pb}$  است نشت معناداری مشاهده نشد یا مقدار آن کمتر از MCL بود. اختلاف میزان Sb نشت یافته در نمونه‌های با بطری‌های شست‌وشو شده و شست‌وشو نشده بزرگتر از صفر بود که در نمونه‌های شست‌وشو نشده این مقدار بالاتر بود (۱۵). نتایج تحقیق حاضر تا حدود زیادی همانند نتایج به دست آمده از مطالعه فوق برای شرایط‌های مشابه است. مقایسه تراکم طبیعی Sb در آب‌های زیرزمینی، آب‌های بطری شده، آنالیز آب مبداء قبل از بطری پرکنی و افزودن آب غیرآلوده به بطری‌های PET در سال ۲۰۰۶ توسط (Shotyk) و همکاران نشان‌دهنده نشت Sb از بسته‌بندی بود (۱۶). در مطالعه (Hansen) در سال ۲۰۱۰ میزان نشت آنتیموان در آب معدنی گازدار بالاتر از آب‌های بدون گاز بود که به علت اختلاف pH است (۱۷).

در بررسی حاضر مطابق شکل ۸ مقدار به دست آمده برای آنتیموان در تجزیه خود بطری‌ها برابر با  $336/61 \pm 6/89 \text{ mg/kg}$  بود و مقدار کبالت نیز در تجزیه بطری‌ها برابر با  $27/34 \pm 7/69 \text{ mg/kg}$  به دست آمد. هضم مایکروویو نشان داد که PET مورد استفاده در یک برند حاوی  $13 \pm 35 \text{ mg/kg}$  آنتیموان بود. میزان آزاد شدن Sb و Co متناسب با نسبت سطح به حجم در تماس با مایع است و در نهایت این‌که امکان افزایش نشت Sb و Co در دمای بالاتر از  $60^\circ\text{C}$  درجه وجود داشته و در مورد سایر فلزات سنگین میزان نشت از نظر آماری چندان معنادار نبوده است (۸). در مطالعه‌ای دیگر در سال ۲۰۰۹ میزان

## منابع

- 1 - Kokkinakis EN, Fragkiadakis GA, Kokkinaki AN. Monitoring microbiological quality of bottled water as suggested by HACCP methodology. *Food Control*. 2008;19:957-61.
- 2-Venieri D, Vantarakis A, Komninou G, Papapetropoulou M. Microbiological evaluation of bottled non-carbonated (still) water from domestic brands in Greece. *International Journal of Food Microbiology*. 2006;107:68-72.
- 3 - Benito Armas A, Sutherland JP. A survey of the microbiological quality of bottled water sold in the UK and changes occurring during storage. *International Journal of Food Microbiology*. 1999;48:59-65.
- 4 -Krachler M, Shotyck W. Trace and ultra trace metals in bottled waters: Survey of sources worldwide and comparison with refillable metal bottles. *Science of the Total Environment*. 2009;407:1089-96.
- 5 - Yousefi Z, Ziaei Hezarjaribi H, Enayati AA, Mohammadpoor RA. Parasitic contamination of wells drinking water in Mazandaran Province. *Iranian Journal of Environmental Health Sciences and Engineering*. 2009;6:241-46.
- 6-Filho N, Santana AS, Cruz AG. Commercialization conditions and practices influence the microbiological quality of mineral waters. *Journal of Food Protection*. 2008;71:1253-57.
- 7 -Kereszte S, Tatar E, Mihucz VG, Virag I, Majdik C, Zaray G. Leaching of antimony from polyethylene terephthalate (PET) bottles into mineral water. *Science of the Total Environment*. 2009;407:4731-35.
- 8-Westerhoffa P, Prapaipong P, Shock E, Hillaireau A. Antimony leaching from polyethylene terephthalate (PET) plastic used for bottled drinking water. *Water Research*. 2008;42:551-56.
- 9 - Cheng X, Shi H, Adams C, Yinfu M. Assessment of metal contaminations leaching out from recycling plastic bottles upon treatments. *Environmental Science Pollution Research*. 2010;17:1323-30.
- 10- Shotyck W, Krachler M. Contamination of bottled waters with antimony leaching from polyethylene terephthalate (PET) increases upon Storage. *Environmental Science and Technology*. 2007;41:1560-63.
- 11 - Al-Saleh I, Al-Doush I. Survey of trace elements in household and bottled drinking water samples collected in Riyadh, Saudi Arabia. *Science of the Total Environment*. 1998;216:181-192.
- 12 - Soupioni M J, Symeopoulos BD, Papaefthymiou HV. Determination of trace elements in bottled water in Greece by instrumental and radiochemical neutron activation analyses. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*. 2006;268:441-44.
- 13- Saleh MA, Ewane E, Jones J, Wilson BL. Chemical Evaluation of Commercial Bottled Drinking Water from Egypt. *Journal of Food Composition and Analysis*. 2001;14:127-52.
- 14 - Hansen H, Pergantis S. Detection of antimony species in citrus juices and drinking water stored in PET containers. *Journal of Analytical Atomic Spectrometry*. 2006;21:731-33.
- 15 - Cheng X, Shi H, Adams C. Assessment of metal contaminations leaching out from recycling plastic bottles upon treatments. *Environmental Sciences Pollution Research*. 2010;17:1323-30.
- 16 - Shotyck W, Krachler M, Chen B. Contamination of Canadian and European bottled waters with antimony from PET containers. *Journal of Environmental Monitoring*. 2006;8:288-92.
- 17 - Hansen C, Tsirigotaki A, Bak SA, Pergantis SA, Sturup S, Gammelgaard B, et al. Elevated antimony concentrations in commercial juices. *Journal of Environmental Monitoring*. 2010;12:822-24.
- 18 - Baba A, Erees FS, Hicsonmez U, Cam S. An assessment of the quality of various bottled mineral water marketed in Turkey. *Environmental Monitoring and Assessment*. 2008;139:277-85.
- 19- Guler C. Evaluation of maximum contaminant levels in Turkish bottled drinking waters utilizing parameters reported on manufacturer's labeling and government-issued production licenses. *Journal of Food Composition and Analysis*. 2007;20:262-72.
- 20- Ahmad M, Bajahlan A. Quality comparison of tap water vs. bottled water in the industrial city of Yanbu (Saudi Arabia). *Environmental Monitoring and Assessment*. 2009;159:1-14.
- 21- Jahed Khaniki GR, Mahdavi M, Ghasri A, Saeednia S. Investigation of nitrate concentrations in some bottled water available in Tehran. *Iranian Journal of Health and Environment*. 2008;1(1):45-50.

## Suvey of Antimony and Cobalt Leaching into Bottled Waters Packaged by PET

Mahmood Alimohamadi<sup>1</sup>, Ebrahim Aghaee Molaei<sup>1</sup>, Ramin Nabizadeh Nodehi<sup>1</sup>, Gholam Reza Jahed<sup>1</sup>, Sasan Rezaee<sup>1</sup>,

Akbar Goldasteh<sup>2</sup>, Shahrokh Nazmara<sup>1</sup>, Hassan Aslani<sup>1</sup>

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

<sup>2</sup>Department of Statistics, Faculty of Basic Sciences, University of Sciences and Culture, Tehran, Iran

Received; 04 December 2011 Accepted; 31 January 2012

### ABSTRACT

**Background and Objectives:** Heavy metals including antimony and cobalt as two contaminant factors leach from polyethylene terephthalate packages into water under some conditions. Therefore, their detection was concerned at different storage conditions.

**Materials and Methods:** Five time-temperature treatments were carried out for 5 water samples. Storage conditions were defined as following: at outdoor and sunlight ambient temperature, room temperature, and at 40°C at different intervals for 8 weeks, at 65°C for 6 weeks and 80°C for 7 days. Detection was performed by ICP-AES method and the data analysis was processed by SPSS software.

**Results:** Antimony concentration increased by storage time at all temperatures and for all samples, however enhancing proportion was different in samples. At outdoor, 40°C and room temperature, concentration increase was below the MCL by the end of storage period. But at 65°C and 85°C, antimony concentration exceeded MCL by study time and the difference between samples 4 and 5, for example, was significant ( $p \leq 0.05$ ). Cobalt concentration at the beginning and during the study was also too less and lower than the detection limit.

**Conclusion:** By increasing temperature and time, leaching of antimony into water increases. Moreover, sunlight has effect but not noticeable at the temperature of present study. In this study, blue or clear packaging had no significant effect on antimony leakage ( $P > 0.05$ ).

**Key words:** Bottled water, Antimony, Cobalt, PET bottles

---

\*Corresponding Author: [em.aqae@gmail.com](mailto:em.aqae@gmail.com)

Tel: +98 21 88951582, Fax: +98 21 88992666