



Усан орчноос As(V) ионы агуулгыг бууруулах электрокоагуляцийн зохистой нөхцөлийг тогтоох судалгаа

Амарсанаа Алтангэрэл, Дамдин Номин-Эрдэнэ, Даваасамбуу Сарангэрэл*

Химийн тэнхим, Байгалийн Ухааны Салбар, Шинжлэх Ухааны Сургууль,
Монгол Улсын Их Сургууль, Улаанбаатар хот 14201, Монгол улс

*E-mail: sarangerel@num.edu.mn

ORCID: [0000-0002-4820-9538](https://orcid.org/0000-0002-4820-9538)

Хүлээн авсан: 19.04.2021

Хяналтанд: 21.04.2021

Хэвлэлтэнд авсан: 30.12.2021

Хураангуй: Сүүлийн жилүүдэд эрдэс түүхий эдийн олборлолт, арсен агуулсан эрдэс чулуулгийн өгөршилөөр гадаргын болон гүний усан дахь арсени (As) агуулга хүлцэх агууламжаас ихсэх тохиолдлууд гарч байна. Энэ судалгааны ажлаар коагулянтаа орчинд нь тасралтгүй үүсгэдэг, нэмэлт урвалж шаарддаггүй, цахилгааны зарцуулалт багатай электрокоагуляцийн аргаар усан уусмал дахь As(V)-ыг тунадасжуулах зохистой нөхцөлийг тогтоох ажлыг хийж, үр дүнг спектрофотометр, индукцийн холбоост плазм-масс спектрометр, потенциометрийн аргаар тодорхойллоо. Зохистой нөхцөлийг тодорхойлох туршилтын дүнгээс харахад, усан орчноос As(V)-ын тунадасжуулалт рН=4-8-ын утганд >95%, электролитын концентрацийн 0.25 – 0.75 г/л мужид >90%, гүйдлийн нягтын 15 – 60 мА/см² мужид >96% бүтээмжтэй байв. Уусмалын рН ~7, NaCl-ын концентраци 0.5 г/л, гүйдлийн нягт 20 мА/см² үед 50 мг/л концентрацитай As(V)-ын зайлуулалт хамгийн их буюу 99.6% нь усан орчноос тунадасжиж байлаа. Исэлдэх ангижрах потенциал, рН-ын хугацаанаас хамаарах хамаарал, үүссэн тунадсын нил улаан туяаны спектрийн шинжилгээний үр дүнгээр, электрокоагуляциар As(V)-ын зайлуулалт нь химийн тунадасжилт (FeAsO₄), адсорбц (Fe(OH)₃×HAsO₄²⁻)-ийн процессоор явагддагийг тогтоолоо.

Түлхүүр үг: төмөр электрод, коагулянт, адсорбц, арсенат ион

ОРШИЛ

Уул уурхайн олборлолт, баяжуулах үйлдвэрүүд эрчимтэй хөгжиж, хот суурин газруудад хүн амын нягтрал нэмэгдэн, автомашины тоо хэт ихэссэнтэй холбоотой хүрээлэн буй орчны бохирдол тэр дундаа хөрс, усан дахь хүнд металлын бохирдолт ихсэж, хүлцэх агууламжаасаа давсан тохиолдол ихсэж байна. Биосфер дэх бодисууд нь байнгын шилжилт хөдөлгөөнд байдгаас хөрс, усны бохирдолт зөвхөн тэр хэсэгтээ нөлөөлөөд зогсохгүй, хөдөлгөөнд орж хүрээлэн буй орчны бусад хэсэгт тархдаг.

Арсен нь байгаль дээр ихэвчлэн алтыг дагалдан, орчны рН-аас хамааран голчлон арсенат хэлбэрээр агуулагддаг, усан орчинд маш хортой бохирдуулагчийн нэг төдийгүй мутаген болон канцероген үйлчилгээтэй [1, 2]. Усан орчин дахь арсени бохирдолтыг бууруулах химийн коагуляц [3, 4], адсорбц [5], мембран фильтр [6], электродиализ [7], биосорбц [8], ион солилцлын мембран [9], электрокоагуляц [10] зэрэг химийн, физикийн болон биологийн олон арга байдаг. Эдгээрээс электрокоагуляцийн арга нь хэрэглэгдэх тоног төхөөрөмж энгийн, процессын туршид коагулянт нь анодын уусалтаар тасралтгүй үүсдэг, химийн нэмэлт бодис шаардахгүй зэрэг олон давуу талуудтай учраас түгээмэл хэрэглэгддэг аргуудын нэг юм [11, 12]. Электрокоагуляцийн аргаар As(V)-ыг төмөр [11-15],

хөнгөнцагаан [1, 11, 15] болон магни [16] электрод хэрэглэн үйлдвэрийн бохир ус [17], гүний ус [1, 15], ус дамжуулах хоолойн ус [18], ундны ус [11, 12, 13, 14], зохиомол усан орчин [19]-оос тунадасжуулах явцад нөлөөлөх хүчин зүйлсийн зохистой утгыг тодорхойлох олон ажлууд хийгдсэн байдаг.

Б.Кан нарын судлаачид 6 зэрэгцээ байрлуулсан төмөр электродтой электрокоагуляцийн аргаар 50 мг/л концентрацитай арсен агуулсан зохиомол усны дээжин дэх нийт арсени зайлуулалт нь рН=4, гүйдлийн нягт 0.54 мА/см² үед 30 минут явуулахад хамгийн их буюу 99.5%, энергийн зарцуулалт нь 0.165 кВт×цаг/м³ байв. Уусмал дахь арсени анхны концентраци бага, гүйдлийн нягт их байх тусам арсени зайлуулалт их байна гэж үзжээ [14].

Ж.Учар нар төмөр электродтой электрокоагуляцийн аргаар ундны усан дахь As(V)-ыг уусмалын рН=7, гүйдлийн нягт 4.5 мА/см² үед 5 минут тунадасжуулах нь тохиромжтой гэж үзсэн. Тогтоосон нөхцөлд арсени концентраци 0.05 мг/л-аас 0.5 мг/л болж ихсэхэд зайлуулалт 95% – 84% байв. Харин нэмэлт электролит болох NaCl-ын концентраци нь арсени зайлуулалтад нөлөөлөхгүй, зөвхөн гүйдлийн нягтад нөлөөлнө гэж үзсэн [13]. Харин 2019 онд Д.Дейзи нарын судлаачид цэвэр ус дамжуулах хоолойн уснаас 0.1 мг/л концентрацитай As(V)-ыг төмөр электродтой электрокоагуляцийн аргаар 99.4%-тай зайлуулсан бөгөөд зохистой нөхцөлийг рН=7, гүйдлийн нягт

0.431 мА/см², NaCl-ын концентраци 0.33 г/л, 30 минут гэж тодорхойлсон байдаг [18]. Дээрх судлаачдын судалгааны үр дүнг нэгтгэн харахад, маш бага концентрацитай арсен агуулсан ундны ус болон зохиомол усны дээжийг сонгон авч электрокоагуляцийн зохистой нөхцөлийг тогтоосон байна. Арсены анхны концентрацийг ихэсгэхэд гүйдлийн нягт, электрокоагуляцийг явуулах хугацаа хүчтэй нөлөөлөх учир нөлөөлөх хүчин зүйлийг нарийвчлан судлах шаардлагатай.

Иймд усан орчноос агууламж ихтэй As(V)-ыг төмөр электродтой электрокоагуляцийн аргаар тунадасжуулахад уусмалын орчин (рН), гүйдлийн нягт, As(V)-ын анхны концентраци, электролитын концентраци зэрэг хүчин зүйлийн нөлөөг судалж, зохистой нөхцөлийг тогтоох зорилгоор энэхүү ажлыг хийж гүйцэтгэлээ.

СУДАЛГААНЫ МАТЕРИАЛ, АРГА ЗҮЙ

Электрокоагуляцийн процесс:

1000 мг/л концентрацитай As(V)-ын эх уусмалыг Na₂HAsO₄×7H₂O (CAS №10048-95-0, UnionLab, цэвэршилт ≥98%) давсыг тохирох хэмжээгээр жинлэн авч 1 л болтол нэрсэн усаар шингэлж бэлтгэсэн. Уусмалын орчныг 1 М-ийн NaOH (CAS №1310-73-2, UnionLab, цэвэршилт ≥99%), эсвэл 1 М HCl (CAS №7647-01-0, Daejung, цэвэршилт ≥99%) -ийн уусмал хэрэглэн рН/ORP-метр (Hanna HI 2211) багажаар тохирууллаа. Анод, катодоор тус бүр 6 см² талбайтай, түгээмэл хэрэглэгддэг, олдоц сайтай төмөр электродыг авч, 250 мл багтаамжтай шилэн аяганд тохирох концентрацитай 200 мл эзлэхүүнтэй As(V)-ын уусмал, цахилгаан дамжуулах чанарыг ихэсгэхийн тулд NaCl-ыг нэмж, соронзон хутгуур (SH-2, Biobase)-аар тогтмол 250 эрг/мин хурдтайгаар хутгаж, тасалгааны температурт электрокоагуляцийг тогтмол гүйдэлтэй (B&K Precision, 9110) нөхцөлд явуулсан.

Электрокоагуляцийн зохистой нөхцөлийг тогтоохдоо гүйдлийн нягтыг 20-60 мА/см² хооронд 5 мА/см² алхамтай, уусмалын рН-ыг 3-10 хооронд рН=1 алхамтай, As(V)-ын концентрацийг 25-200 мг/л, NaCl-ын концентрацийг 0.25–1.50 г/л хооронд 0.25 г/л алхамтай өөрчилж, электрокоагуляцийн дараах уусмал дахь As(V)-ын концентрацийг хугацаанаас хамааруулан судаллаа.

Электрокоагуляцийн дараах холимгийг 45 мкм нягттай цаасан шүүлтүүрээр шүүж, шүүгдэс дэх As(V)-ын концентрацийг электроны спектроскопийн аргаар тодорхойлсон. Төмөр электродыг бүдүүн болон нарийн зүлгүүрээр дэс дараалан зүлгэж, эхлээд азотын хүчлийн шингэрүүлсэн уусмалаар, дараа нь нэрсэн усаар гадаргууг нь угааж цэвэрлэн, 105°C температурт хатаах шүүгээ (LDO-250F, LabTech)-нд 20 минут хатаасан.

Тунадсыг НУТ-ны шингээлтийн спектроскопийн аргаар (FTIR, Bruker IR Alpha) тодорхойлохын тулд

50 мг/л концентрацитай 1000 мл As(V)-ын уусмалд 0.5 г/л NaCl давсыг хуурайгаар нэмж, тасалгааны температурт тогтмол 20 мА/см² гүйдлийн нягттайгаар электрокоагуляцийг 120 минутын турш явуулав. Үүссэн тунадсыг 45 мкм нягттай цаасан шүүлтүүрээр шүүж, 105°C температурт 2 цаг хатаасны дараа 1:100 массын харьцаатай байхаар KBr (CAS №7758-02-3, UnionLab, цэвэршилт ≥99.9%)-той хольж, өндөр даралтаар шахмал дээж бэлтгэн, 4000-400 см⁻¹ долгионы тооны мужид нил улаан туяаны нэвтрүүлэлтийн спектрийг хэмжсэн.

Электрокоагуляцийн энерги зарцуулалтыг тооцох зайлшгүй шаардлагатай байдаг. As(V) агуулсан 1 м³ уусмалд электрокоагуляци явуулж бүрэн тунадасжуулахад шаардлагатай энергийн зарцуулалт (1) томъёогоор илэрхийлэгддэг.

$$C_{\text{энерги}} = \frac{U \cdot I \cdot t}{V} \quad (1)$$

Үүнд: $C_{\text{энерги}}$ - энерги зарцуулалт (кВт·мин/м³),

U - хүчдэл (В), I - гүйдлийн хүч (А),

t - хугацаа (мин), V - уусмалын эзлэхүүн (м³).

Усан уусмал дахь As(V) ионы концентрацийг тодорхойлох:

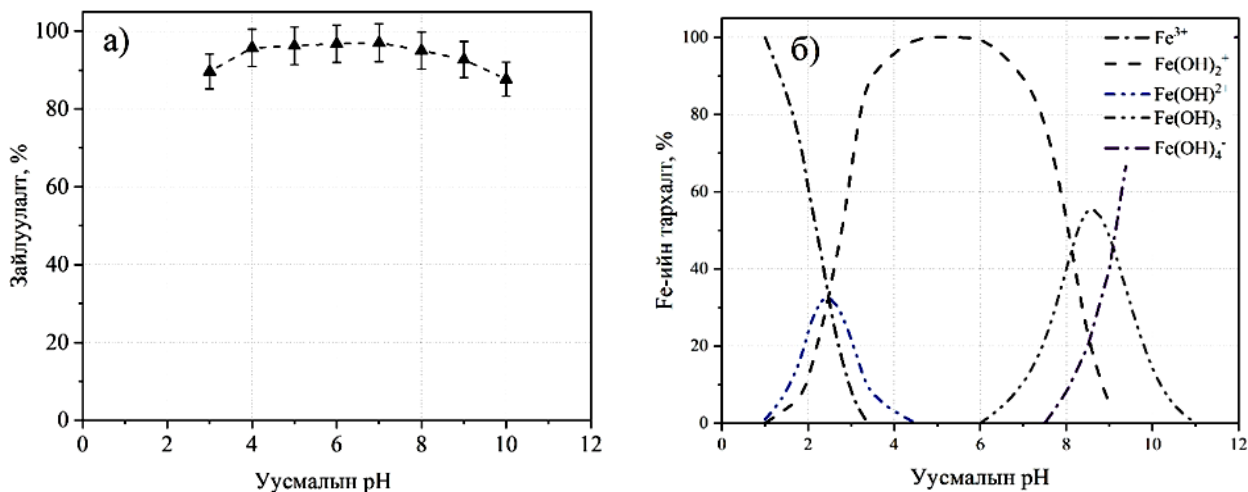
Усан уусмал дахь As(V)-ын концентрацийг тодорхойлох спектрофотометрийн арга нь As(V) ион хүчиллэг орчинд аммоны молибдаттай харилцан үйлчилж, хөх өнгийн комплекс нэгдэл үүсгэх урвалд үндэслэгддэг [20].

400 мг/л концентрацитай Na₂HAsO₄-ын уусмалаас 25 мл багтаамжтай хэмжээст колбонд As(V) ионы концентрацийг 5-100 мг/л байхаар тооцоолон тодорхой эзлэхүүнтэй таслан авч, 0.4% (массын хувиар) аммонийн молибдатын уусмал (0.15 М H₂SO₄-ын уусмалд бэлтгэсэн), 6% (массын хувиар) аскорбины хүчлийн уусмал тус бүр 1.0 мл-ийг нэмж, хэмжээс хүртэл нэрмэл усаар шингэлсэн.

Бэлтгэсэн уусмалд үүссэн комплекс нэгдлийн өнгө тогтмолжтол тасалгааны температурт 3 цаг байлгасны дараа спектрофотометр (UV-VIS Cary 60, Agilent Technologies)-ээр 850 нм долгионы уртад гэрэл шингээлтийг хэмжлээ. As(V)-ын жиших муруйн шугаман хамаарлын тэгшитгэл $A=0.027C(\text{As(V)})+0.021$, корреляцийн коэффициент 0.9981, аргын бүртгэх хязгаар 0.026 μмоль/л байв. Хугацаанаас хамааруулан электрокоагуляцийг тогтоосон зохистой нөхцөлд явуулан, шүүгдэст арсены агуулгыг индукцийн холбоост плазм-масс спектрометр (ICP-MS, Perkin Elmer NeXION 300Q)-ээр MNS-ISO 17294-2:2011 стандарт аргачлалын дагуу тодорхойлсон [21].

ҮР ДҮН, ХЭЛЭЛЦҮҮЛЭГ

Электрокоагуляцийн зохистой нөхцөлийг тогтоох: Электрокоагуляцийн аргаар As(V) ионы агуулгыг бууруулах зохистой нөхцөлийг тогтоох



Зураг 1. а) *As(V)*-ын зайлуулалт болон уусмалын рН-ын хамаарал ($C_0=50$ мг/л, $C_{NaCl}=0.5$ г/л, $t=22^\circ\text{C}$, $\tau=20$ мин, $i=20$ мА/см²), б) Усан уусмалд дахь төмрийн тархалт, уусмалын рН-ын хамаарал [22]

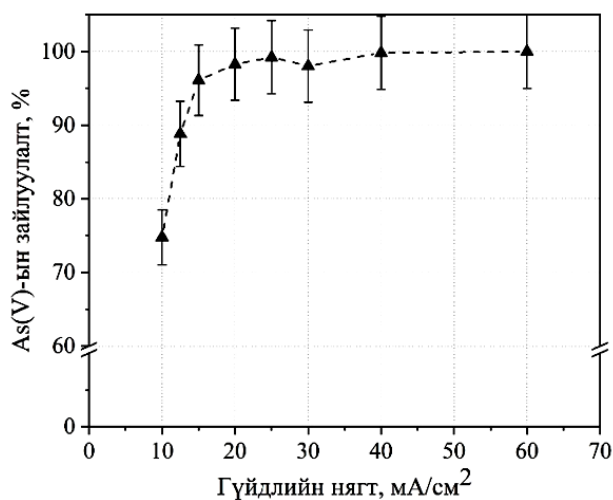
зорилгоор уусмалын анхны рН, гүйдлийн нягт, NaCl-ын концентраци, As(V) ионы анхны концентрацийн нөлөөг судаллаа.

Анхны рН-ын нөлөө: Электрокоагуляцийн явцад усан орчинд үүсэх төмрийн ионы орших хэлбэр рН-аас хамааран харилцан адилгүй байх тул As(V)-ын зайлуулалтанд хүчтэй нөлөөлдөг. Иймд уусмалын анхны рН-ын нөлөөг судлахдаа рН-ыг 3-10 хязгаарт өөрчлөх замаар электрокоагуляцийг явуулж, гарсан үр дүнг Зураг 1а-д нэгтгэн харууллаа. Зураг 1а-аас харахад, уусмалын рН-ыг 3-12 болгон өөрчлөхөд рН=4-8 хооронд арсены зайлуулалт харьцангуй тогтмол (95.7–97.0%) байсан бол рН<4, рН>8 үед харгалзан 87.6%, 89.7% болж бага зэрэг буурч байна. рН-ын харьцангуй өргөн хязгаарт арсены зайлуулалт их байгаа учраас уусмалын анхны рН-ыг тохируулах шаардлагагүй, эх уусмал (уусмалын рН>7)-д шууд электрокоагуляци явуулах боломжтой юм. Зураг 1б-д үзүүлсэн усан орчин дахь төмрийн орших хэлбэр рН-ын утгаас хамаарсан хамаарлаас харахад, төмөр нь Fe(OH)₂⁺, Fe(OH)₂⁺, Fe(OH)₄⁻, Fe³⁺, Fe(OH)₃ зэрэг молекул, ионы хэлбэрээр уусмалд агуулагдаж байна [2, 22]. Электрокоагуляцийн системд рН<3 үед Fe³⁺ ион, рН>10 үед Fe(OH)₄⁻ ион давамгайлсан оршино. Харин рН=4-10 үед Fe(OH)₂⁺, Fe(OH)₂⁺ ионууд болон Fe(OH)₃ молекул хэлбэртэй уусмалд оршиж байгаа тул эерэг цэнэгтэй Fe(OH)₂⁺, Fe(OH)₂⁺ ионууд арсенат ионтой электростатик харилцан үйлчлэх, Fe(OH)₃ коагулянтын гадаргууд арсенат ион физикийн адсорбцид орсноор As(V)-ын зайлуулалт өндөр байна. рН=3 үед усан орчинд Fe³⁺ ион үүссэнээр арсенат ионтой электростатик харилцан үйлчлэх боломжтой боловч зайлуулалтын хувь буурсан байна. Энэ нь электрокоагуляцийн үед арсенат ион Fe³⁺ ионтой электростатик харилцан үйлчлэлийг бодвол Fe(OH)₃ коагулянттай физикийн адсорбцид орох процесс давамгайлсан явагдаж байгаатай холбоотой юм. Ийм учраас электрокоагуляцийн үед төмөр анод уусаж,

гадаргуугийн талбай ихтэй, Fe(OH)₃ коагулянт үүсгэн, энэхүү коллоид жижиг хэсгийн гадаргууд As(V)-ын ион адсорбцлогдож байна [2, 19]. Харин рН>10 үед усан орчинд Fe(OH)₄⁻ ион давамгайлсан оршиж байгаа учраас арсенат ионтой түлхэлцэж, зайлуулалтын хувь буурахад нөлөөлсөн гэж үзлээ.

Гүйдлийн нягтын нөлөө: Электрокоагуляциар үүссэн коагулянтын гадаргуугийн талбай, бөөгнөрөл үүсэх зэрэг нь гүйдлийн нягтаас ихээхэн хамаардаг. Тасалгааны температурт электрокоагуляцийн гүйдлийн нягтыг 10 – 60 мА/см² мужид өөрчилж, туршилтын үр дүнг Зураг 2-т харуулав.

Зураг 2-оос харахад, гүйдлийн нягт ихсэхэд Фарадейн хууль ёсоор уусмалд шилжиж байгаа төмөр ионы агуулга, улмаар коагулянтын тоо хэмжээ ихэснэ. Иймд гүйдлийн нягт ихсэхийн хэрээр коагулянт болох Fe(OH)₃-ын тоо хэмжээ ихэссэнтэй холбоотой коагулянтын гадаргууд арсенат ион адсорбцлогдон As(V)-ын зайлуулалт ихсэж байна. Гэхдээ гүйдлийн нягт 10 – 15 мА/см² үед төмөр анодоос уусмалд шилжиж байгаа ионы

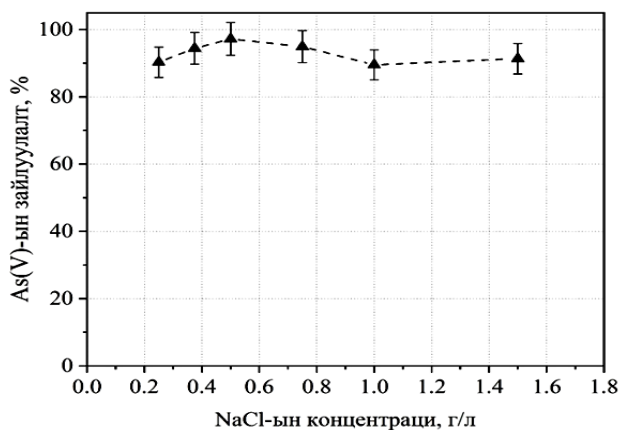


Зураг 2. *As(V)*-ын зайлуулалт болон гүйдлийн нягтын хамаарал ($C_0=50$ мг/л, $C_{NaCl}=0.5$ г/л, $t=22^\circ\text{C}$, $\tau=20$ мин, рН=7)

тоо хэмжээ харьцангуй бага байгаа учир үүсэх коагулянтын тоо хэмжээ мөн адил бага байх тул As(V)-ын зайлуулалт харьцангуй бага (74.3 – 95.0%) байлаа. Энэ нь электрокоагуляцийн үед төмөр анодын уусалтаар Fe^{2+} ($Fe \rightarrow Fe^{2+} + 2e^{-}$, $E^{\circ} = -0.44$ В), улмаар Fe^{3+} ($Fe^{2+} \rightarrow Fe^{3+} + e^{-}$, $E^{\circ} = 0.77$ В) үүссэний дараа коагулянт болох $Fe(OH)_3$ үүсдэгтэй холбоотой. Гүйдлийн нягт 20 mA/cm^2 -аас их үед As(V)-ын зайлуулалт 99.6%-аас 100% хүрсэн. Хэдийгээр гүйдлийн нягт их байх тусам As(V) зайлуулалт ихсэж байгаа ч гүйдлийн нягт ихсэхэд цахилгааны зарцуулалт ихсэж, процессын өртөг зардал нэмэгдэх сөрөг талтай учраас гүйдлийн нягтын зохистой нөхцөлийг 20 mA/cm^2 байхаар сонголоо.

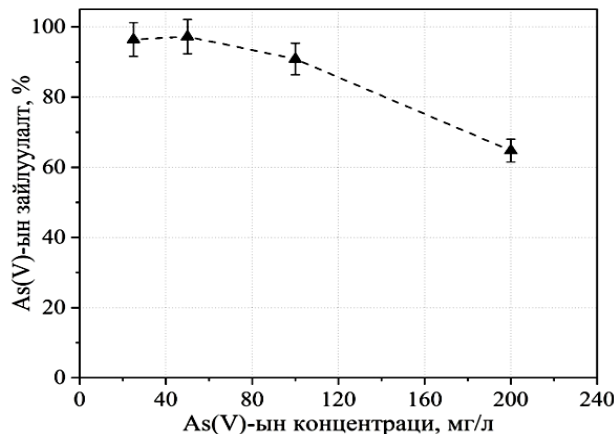
Электролитын концентрацийн нөлөө: Уусмалын цахилгаан дамжуулах чанарыг ихэсгэх, электрокоагуляцийн энерги зарцуулалтыг бууруулах зорилгоор электролит бодисыг нэмдэг бөгөөд хоруу чанар багатай, үнэ хямд шалтгаанаар NaCl-ыг өргөн хэрэглэдэг. Электролит бодисоор NaCl-ыг сонгон авч концентрацийг 0.25 - 1.5 г/л байхаар өөрчилж, гүйдлийн нягт тогтмол 20 mA/cm^2 үед электрокоагуляцийг явууллаа (Зураг 3).

Зураг 3-аас харахад, арсены зайлуулалт харгалзан NaCl-ын концентраци 0.25 г/л үед 90.3%, 0.5 г/л үед 97.3% болж ихэссэнээр цахилгаан энергийн зарцуулалт буурсантай холбоотой өртөг багасах давуу талтай [18]. Харин NaCl-ын концентрацийг цааш ихэсгэн 1.5 г/л болгоход As(V)-ын зайлуулалт буурч 91.4% болсон. Электролитын концентрацийг 0.25 – 1.5 г/л болтол нэмэгдүүлэхэд арсены зайлуулалт харьцангуй бага, 5.9%-аар өөрчлөгдөж байгаа учир төмөр электродтой үед As(V)-ын зайлуулалтад электролитын концентраци бараг нөлөөлөхгүй байна. Электрокоагуляцийн үед NaCl-ыг электролитоор нэмснээр цахилгаан дамжуулалтыг нэмэгдүүлэхээс гадна уусмалд тасралтгүй үүсч байгаа коагулянтын нөлөөгөөр анодын гадаргуу дээр идэвхгүй үе үүсэх, улмаар



Зураг 3. As(V)-ын зайлуулалтад электролитын концентрацийн нөлөө ($C_0=50 \text{ мг/л}$, $t=22^{\circ}\text{C}$, $\tau=20 \text{ мин}$, $\text{pH}=7$)

Омын гүйдлийн уналт бий болохоос сэргийлж процесс тасралтгүй, өндөр бүтээмжтэй явагдахад түлхэц болдог [23]. Электролитын концентрацийг хэт ихэсгэснээр процессын энерги зарцуулалт, өртөг ихсэх учраас As(V)-ын зайлуулалт хамгийн их байгаа 0.5 г/л концентрацийг электролитын зохистой концентраци гэж сонгон авлаа.

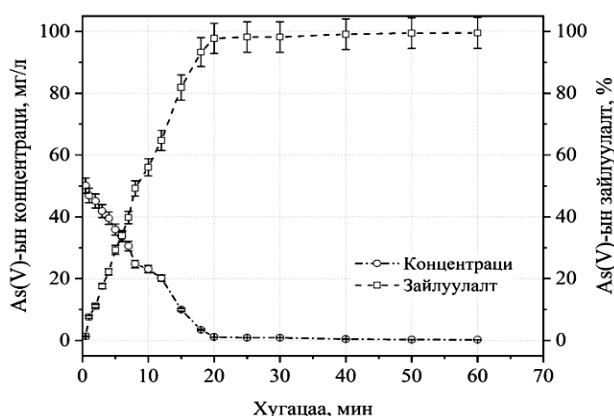


Зураг 4. As(V)-ын зайлуулалт болон анхны концентрацийн хамаарал ($\text{pH}=7$, $C_{\text{NaCl}}=0.5 \text{ г/л}$, $t=22^{\circ}\text{C}$, $\tau=20 \text{ мин}$, $i=20 \text{ mA/cm}^2$)

As(V)-ын анхны концентрацийн нөлөө: Электрокоагуляци нь уусмалын pH, арсены концентраци, цахилгаан химийн урвалаар тасралтгүй үүсэх коагулянтын тоо хэмжээ, гадаргуугийн талбай зэргээс шалтгаалан харилцан адилгүй хурдтай явагддаг байна. As(V)-ын анхны концентрацийг 25 – 200 мг/л болгон өөрчилж, электрокоагуляцийг явуулав (Зураг 4).

Зураг 4-өөс харахад, туршилтыг явуулснаас хойш 20 минутын дараах байдлаар уусмал дахь As(V)-ын анхны концентраци 25 мг/л-ээс 50 мг/л болж ихсэхэд As(V)-ын зайлуулалт 96.4-97.3% байсан бол концентрацийг үргэлжлүүлэн 200 мг/л болтол ихэсгэхэд As(V) зайлуулалт 64.7% болж буурч байв. Арсены анхны концентраци багасах тусам арсены тунадасжуулалт их байх хандлагатай байна [13,14]. Энэ нь As(V)-ын анхны концентраци ихсэхэд электрокоагуляцийг явуулсан 20 минутын хугацаанд үүссэн коагулянтын адсорбцлох чадвар максимум багтаамждаа хүрч, арсенат ионтой харилцан үйлчлэх хангалттай тооны коагулянт үүсэж амжаагүйтэй холбоотой юм. Өөрөөр хэлбэл, As(V) ионы анхны концентрацийг ихэсгэсэн тохиолдолд электрокоагуляцийн явагдах хугацааг уртасгаж, үүсэх коагулянтын тоо хэмжээг нэмэгдүүлэх шаардлагатай болохыг илтгэж байна.

Туршилтын зохистой нөхцөлд хэмжсэн үр дүн: Ийнхүү төмөр электродтой электрокоагуляцийн аргаар As(V) ионыг тунадасжуулах туршилтын зохистой нөхцөлийг 0.5 г/л концентрацитай электролит (NaCl), гүйдлийн нягт 20 mA/cm^2 , саармаг орчинд As(V)-ын анхны концентрацийг



Зураг 5. Зохистой нөхцөлд As(V)-ын зайлуулалт хугацаанаас хамаарах хамаарал ($C_0=50$ мг/л, $C_{NaCl}=0.5$ г/л, $pH=7$, $t=22^\circ C$, $i=20$ мА/см²)

50 мг/л байх үед явуулах нь тохиромжтой гэж үзлээ. Энэхүү зохистой нөхцөлд электрокоагуляцийг явуулан As(V) ионы концентрацийг хугацаанаас хамааруулан ICP-MS багажаар хэмжин, туршилтын дүнг Зураг 5-аар илэрхийллээ.

Туршилтын үр дүн (Зураг 5)-ээс харахад, электрокоагуляцийн дараах шүүгдэст агуулагдах As(V) ионы концентраци хугацаа өнгөрөхийн хэрээр буурч, As(V) ионы зайлуулалт 20 минутаас эхлэн 97.7% –99.6% болтлоо ихэссэн байна. Электрокоагуляцийн аргаар As(V)-ыг зайлуулах процессын зохистой нөхцөлийг Кан [14], Дейзи [18] нарын үр дүнтэй харьцуулан Хүснэгт 1-ээр нэгтгэн харууллаа. Хэдийгээр Кан, Дейзи нарын судалгаанд энергийн зарцуулалт харьцангуй бага байгаа хэдий ч As(V)-ын анхны концентраци маш бага, 0.1 мг/л [18] гэж авсан нь арсены бохирдол ихтэй дээжинд хэрэглэх боломжгүй, анхны pH нь арсен агуулсан дээжийн pH-аас ялгаатай, натрийн хлоридын массыг их авсан [14] нь нэмэлт бодис урвалжийн зарцуулалтыг ихэсгэж процессын үр ашгийг бууруулах зэрэг сөрөг талуудтай байна.

Түүнчлэн Кан, Дейзи нар анодын талбайг их (116 – 1400 см²), нэгж талбайд ногдох гүйдлийн хүчийг бага байхаар сонгон авсан бол бидний судалгаанд

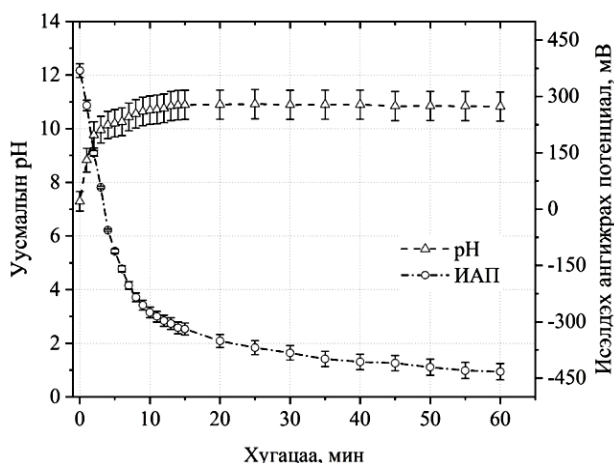
анодын талбай бага (12 см²), нэгж талбайд ногдох гүйдлийн хүчийг их байх нөхцөлийг сонгон авсан. Энэ нөхцөлд 1 г As-ыг зайлуулахад анодоос 1.12 г төмөр уусаж, арсеныг тунадасжуулах учраас электрокоагуляцийн дараах уусмалд төмрийн агуулга бага байх нөхцөл бүрдэж байгаа юм. Кан, Дейзи нарын судалгаатай харьцуулахад их гүйдлийн нягтыг сонгосноор анодын уусалтаар богино хугацаанд Fe²⁺, Fe³⁺ ионууд, улмаар коагулянтууд үүсэж, As(V)-ыг тунадасжуулах боломжтой гэж үзэж байна.

Электрокоагуляцийн аргаар As(V) ионыг тунадасжуулах процессын механизм

Электрокоагуляцийн үед электрохимийн (металл уусах болон ус ангижрах, бохирдолтын цахилгаан исэлдэлт болон ангижрах), химийн (pH-аас хамаарсан хүчил-суурийн тэнцвэр, гидроксидын тунадасжилт, исэлдэх ангижрах процесс г.м.) болон физикийн (физикийн адсорбц, флоац г.м.) процесс зэрэгцэн явагддаг тул механизмыг тайлбарлахад хүндрэлтэй байдаг. Иймд төмөр электродтой электрокоагуляцийн үед үүссэн цахилгаан химийн хэлхээний потенциалыг мөнгөний хлоридын (AgCl) харьцуулах электродыг ашиглан хугацаанаас хамааруулан судаллаа. Хэмжигдэж гарсан потенциалын утган дээр мөнгөний хлорид харьцуулах электродын стандарт потенциалын утга (0.22 В)-ыг нэмж исэлдэх-ангижрах потенциалын утгыг тооцоолсон. Электрокоагуляцийн үед уусмалын исэлдэх-ангижрах потенциал (ИАП) ба уусмалын pH нь хугацаанаас хамаарч өөрчлөгдөх зүй тогтлыг Зураг 6-д нэгтгэн харууллаа. Зураг 6-аас харахад, эхний 10 минутад катод дээр ус ангижирч гидроксид ион үүсгэсэн (Урвал 2)-тэй холбоотой уусмалын pH огцом ихсэж, уусмал суурилаг болохын хэрээр исэлдэх-ангижрах потенциал буурч сөрөг утгатай болж байна. Туршилтын 10 минутаас 20 минутад исэлдэх-ангижрах потенциал аажим буурч, pH аажим ихсэж байснаа 20 минутаас эхлэн тогтмолжиж байлаа. Исэлдэх-ангижрах потенциалын бууралтаас уусмалд хүчтэй

Хүснэгт 1. Электрокоагуляцийн аргаар арсеныг зайлуулах зохистой нөхцөлийн харьцуулсан судалгаа

Зохистой нөхцөл	Кан [14]	Дейзи [18]	Энэ судалгаанд
Уусмалын pH	4	7	7
Гүйдлийн нягт, мА/см ²	0.54	0.431	20
Хугацаа, мин	30	30	20
Анхны концентраци, мг/л	50	0.1	50
NaCl-ын концентраци, г/л	0.8775	0.33	0.5
Зайлуулалт, %	99.5	99.4	99.6
Электродын талбай, см ²	1400	116	12
Уусмалын эзлэхүүн, л	1.4	3	1
Энерги зарцуулалт, кВт×цаг/м ³	0.52	0.00833	3.05
Гүйдлийн хүч, мА	378	50	240
Ионы хүч, моль/л	0.034	0.0116	0.0202
1 г As-ыг зайлуулахад уусмалд үүсэх төмрийн масс, г	2.64	170	1.12

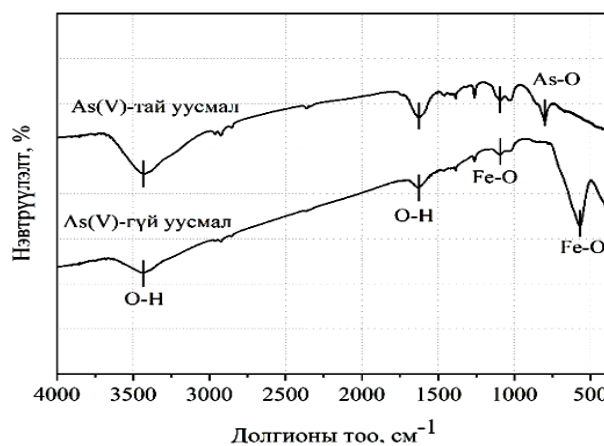


Зураг 6. Исэлдэх-ангижрах потенциал, уусмалын орчин хугацааны хамаарал ($C_0=50$ мг/л, $t=22^\circ\text{C}$, $\tau=20$ мин, $\text{pH}=7$, $i=20$ мА/см²)

ангижруулагч молекул, ион үүссэн болохыг харуулж байна. Туршилтын явцад уусмалын цахилгаан дамжуулах чанарыг хэмжихэд 167 мS/см-ээс 140 мS/см болж харьцангуй бага бууралттай байсан учир үүссэн коагулянт нь арсенат ионтой амархан тунадасжин бууснаар анодын гадаргуу идэвхгүйжих процесс электрокоагуляцид бага нөлөөлсөн гэж үзэж байна. Түүнчлэн анод уусахын хэрээр уусмалд цахилгаан дамжуулах чанар өндөртэй H^+ ионы агуулга багасан цахилгаан дамжуулах чанар багатай OH^- ион тасралтгүй үүсэж байгаатай холбоотой уусмалын цахилгаан дамжуулах чанар багасчээ.

Усан орчин дахь As(V) -ыг төмөр электродтой электрокоагуляцийн аргаар тунадасжуулахад үүссэн тунадасны нил улаан туяаны спектрийг As(V) агуулаагүй уусмалд электрокоагуляци явуулахад үүссэн тунадасны спектртэй харьцуулан Зураг 7-д үзүүлээ. Төмөр электродтой As(V) агуулсан болон As(V) агуулаагүй уусмалын электрокоагуляциар үүссэн тунадасны спектрээс харахад, 3454 см^{-1} долгионы тооны мужид илэрсэн шингээлтийн зурвас нь O-H холбооны суналтын хэлбэлзэл, 1627 см^{-1} орчимд O-H холбооны деформацийн хэлбэлзлийг үзүүлж байна. Харин As(V) агуулаагүй уусмалын электрокоагуляциар үүссэн тунадсанд долгионы тоо 575 см^{-1} үед магнетит (Fe_3O_4)-ын Fe-O холбооны симметр суналтын, 1045 см^{-1} үед лепидокросайт (g-FeOOH)-ын Fe-O холбооны асимметр суналтын хэлбэлзлийг харуулж байна.

А.Г.Гомес нарын судалгаанд эдгээр шингээлтийн зурвас нь харгалзан 575 см^{-1} , 1023 см^{-1} долгионы тооны уганд илэрсэн байгаа нь бидний үр дүнтэй тохирч байна [23]. Харин As(V) агуулсан уусмалын электрокоагуляциар үүссэн тунадасны хувьд, 804 см^{-1} долгионы тооны үед As-O холбооны симметр суналтын хэлбэлзэл илэрсэн. Төмөр электродтой арсены электрокоагуляциар үүссэн тунадаст As(V)-OFe холбооны суналтын хэлбэлзэлд

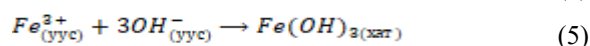
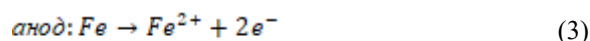
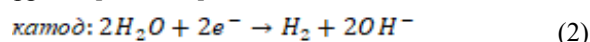


Зураг 7. Электрокоагуляциар үүссэн тунадасны нил улаан туяаны спектр ($C_0=100$ мг/л, $t=22^\circ\text{C}$, $\tau=20$ мин, $\text{pH}=7$)

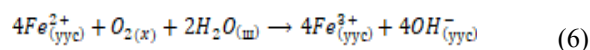
харгалзах шингээлтийн зурвасыг А.Г.Гомес нар 820 см^{-1} -д [23], Е.Жиа нар 808 см^{-1} [24] үед тус тус илэрнэ гэж үзжээ. Эдгээр үр дүн нь бидний гаргасан үр дүнтэй ойролцоо байгаа бөгөөд As-O холбооны симметр суналтын хэлбэлзлийн ажиглагдах долгионы тоо нь уусмалын орчноос хамааран бага зэрэг шилжих боломжтой болохыг харуулж байна.

Нил улаан туяаны спектрийн үр дүнгээс электрокоагуляцийн аргаар As(V) нь химийн нэгдэл үүсгэн химийн харилцан үйлчлэлд орсон болох нь батлагдаж байна. Ийнхүү As(V) агуулаагүй дээжийн тунадсанд O-H болон Fe-O холбооны хэлбэлзлийн шингээлтийн зурвас илэрсэн учир электрокоагуляциар Fe(OH)_3 болон магнетит (Fe_3O_4), лепидокросайт ($\gamma\text{-FeO(OH)}$), харин As(V) агуулсан уусмалын электрокоагуляциар үүссэн тунадсанд O-H , As-O , As-OFe холбооны хэлбэлзлийн шингээлтийн зурвас илэрсэн учир төмрийн арсенат (FeAsO_4) үүссэн байх боломжтой гэж үзлээ.

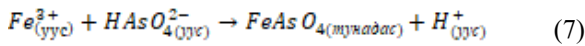
Гарган авсан үр дүнд үндэслэн электрокоагуляцийн үед явагдах процессыг авч үзье. Электрокоагуляцийн (3), (4) урвалаар үүссэн Fe^{3+} ион, катодын урвалаар үүссэн OH^- ионтой харилцан үйлчлэлд орж, Fe(OH)_3 -ын коагулянт (Урвал 5) үүссэн [13,14,18].



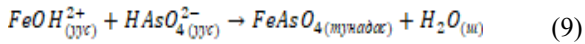
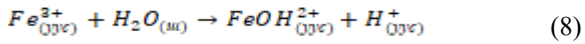
Мөн төмөр анодын уусалтаар үүссэн Fe^{2+} ион ууссан бага хэмжээний хүчилтөрөгчийн нөлөөгөөр Fe^{3+} үүсгэх (Урвал 6) боломжтой [13].



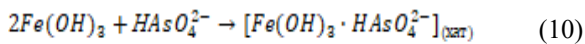
Үүссэн Fe^{3+} ион нь суурилаг орчин гидроарсенат (HAsO_4^{2-}) ионтой шууд харилцан үйлчилж (Урвал 7) төмрийн арсенатыг үүсгэнэ.



Түүнчлэн Fe^{3+} ион нь гидролизод орж $FeOH^{2+}$ үүсгэх (Урвал 8) бөгөөд энэ нь цаашид уусмалд агуулагдах $HAsO_4^{2-}$ -тай харилцан үйлчлэл (Урвал 9)-д орно [14].



Химийн харилцан үйлчлэлээс гадна уусмалд үүссэн коагулянт болох $Fe(OH)_3$ -ын гадаргуу дээр арсенат ион физикийн харилцан үйлчлэлээр адсорбцлогдох (Урвал 10) боломжтой (Ucar, Baskan et al. 2013, Das and Nandi 2019).



ДҮГНЭЛТ

Төмөр электродтой электрокоагуляцийн аргаар анодын уусалтаар орчинд нь коагулянтг үүсгэх замаар усан уусмал дахь As(V)-ыг химийн харилцан үйлчлэлээр төмрийн арсенат үүсгэх, физикийн харилцан үйлчлэлээр төмөр (III)-ийн гидроксидын гадаргууд адсорбцлон маш бага энергийн зарцуулалттайгаар 99.6% хүртэл тунадасжуулах боломжтой болохыг тогтоолоо. Электрокоагуляцийн зохистой нөхцөлийг $pH=7$, $i=20$ мА/см², As(V)-ын анхны концентраци 50 мг/л, электролит бодис NaCl-ын концентраци 0.5 г/л гэж тус тус тогтоов. Төмөр электродтой электрокоагуляцийн арга нь автоматжуулах боломжтой, нэмэлт урвалж шаардагдахгүй, хаягдал багатай, тунадасжилтын хувь их учраас арсен төдийгүй органик болон органик биш бохирдуулагчаар бохирдсон усыг цэвэршүүлэх, усыг дахин эргэлтэд оруулахад хэрэглэж болох аргуудын нэг болох нь харагдаж байна.

ТАЛАРХАЛ

Энэхүү судалгааны ажлыг санхүүжүүлсэн Азийн Судалгааны Төв (Төслийн дугаар, P2018-3580)-д талархал илэрхийлье.

АШИГЛАСАН МАТЕРИАЛ

1. S.T.Lokendra, M.Prasenjit (2017). Simultaneous arsenic and fluoride removal from synthetic and real groundwater by electrocoagulation process: parametric and cost evaluation. *Journal of Environmental Management* 190: p.102-112. <https://doi.org/10.1016/j.jenvman.2016.12.053>
2. P.V.Nidheesh, T.S.Anantha Singh (2017). Arsenic removal by electrocoagulation process: Recent trends and removal mechanism. *Chemosphere* 181: p.418-432. <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2017.04.082>

3. Т.Энхжаргал, Д.Одонцэцэг (2017). Туул голын усны чанар, бохирдлын түвшинг тодорхойлсон судалгааны зарим дүнгээс. *Монгол орны гидрогеологи, инженер геологи, геоэкологийн асуудлууд* 25: х.108-123.
4. L.Divagar, A.Dennis and S.Gautam (2010). Comparative study of arsenic removal by iron using electrocoagulation and chemical coagulation. *Water Research*. 44:5641-5652. <https://doi.org/10.1016/j.watres.2010.06.018>
5. T.T.Q.Nguyen, P.T.Loganathan, T.V.Nguyen and S. Vigneswaran (2020). Removing arsenate from water using modified manganese oxide ore: Column adsorption and waste management. *Journal of Environmental Chemical Engineering* 8:104491. <https://doi.org/10.1016/j.jece.2020.104491>
6. A.Arslan, R.Sam, W.Luuk, V.Peter, G.Case, B.Harry, C.Emile and W.Albert (2020). Mechanisms of arsenate removal and membrane fouling in ferric based coprecipitation-low pressure membrane filtration systems. *Separation and Purification Technology* 241:116644. <https://doi.org/10.1016/j.seppur.2020.116644>
7. M.Aliaskari and A.I.Schafer (2021). Nitrate, arsenic and fluoride removal by electrodialysis from brackish groundwater. *Water Research* 190:116683. <https://doi.org/10.1016/j.watres.2020.116683>
8. R.H.Mohammad, K.D.Kianoush, R.Nahid (2019). Optimization of As(III) and As(V) removal by *Saccharomyces cerevisiae* biomass for biosorption of critical levels in the food and water resources. *Journal of Environmental Chemical Engineering* 7:102949. <https://doi.org/10.1016/j.jece.2019.102949>
9. M.P.Lopes, F.Claudia, G.Joao, V.Svetlozar (2020). Optimisation of arsenate removal from water by an integrated ion-exchange membrane process coupled with Fe co-precipitation. *Separation and Purification Technology* 246:116894. <https://doi.org/10.1016/j.seppur.2020.116894>
10. V.Gilhotra, L.Das, A.Sharma, T.S.Kang, P.Singh, R.S.Dhuria, M.S.Bhatti (2018). Electrocoagulation technology for high strength arsenic wastewater: Process optimization and mechanistic study. *Journal of Cleaner Production* 198:693-703. <https://doi.org/10.1016/j.jclepro.2018.07.023>
11. M.Kobyas, U.Gebologlu, F.Ulu, S.Oncel, E.Demirbas (2011). Removal of arsenic from drinking water by the electrocoagulation using Fe and Al electrodes. *Electrochimica Acta* 56:5060-5070. <https://doi.org/10.1016/j.electacta.2011.03.086>
12. T.Banerji, S.Chaudhari (2016). Arsenic removal from drinking water by electrocoagulation using iron electrodes- an understanding of the process parameters. *Journal of Environmental Chemical Engineering* 4:3990-4000. <https://doi.org/10.1016/j.jece.2016.09.007>

13. C.Ucar, M.B.Baskan, A.Pala (2013). Arsenic removal from drinking water by electrocoagulation using iron electrodes. *Korean Journal of Chemical Engineering* 30(10):1889-1895. <https://doi.org/10.1007/s11814-013-0128-2>
14. B.Z.Can, R.Boncukcuoglu, A.E.Yilmaz, A.Fil.B (2014). Effect of some operational parameters on the arsenic removal by electrocoagulation using iron electrodes. *Journal of Environmental Health Science & Engineering* 12:95. <https://doi.org/10.1186/2052-336X-12-95>
15. P.I.Omwene, M.Celen, M.S.Oncel, M.Kobyay (2019). Arsenic removal from naturally arsenic contaminated groundwater by packed-bed electrocoagulator using Al and Fe scrap anodes. *Process Safety and Environmental Protection* 121:20-31. <https://doi.org/10.1016/j.psep.2018.10.003>
16. S.Vasudevan, J.Lakshmi, G.Sozhan (2012). Studies on the removal of arsenate from water through electrocoagulation using direct and alternating current. *Desalination and Water Treatment* 48:163-173. <https://doi.org/10.1080/19443994.2012.698809>
17. R.Daniel, R.Prabhakara (2012). An Efficient removal of arsenic from industrial effluents using electro-coagulation as clean technology option. *International Journal of Environmental Resource* 6 (3):711-718. <https://doi.org/10.1080/01932691.2019.1681280>
18. D.Das, B.K.Nandi (2019). Arsenic removal from tap water by electrocoagulation: investigation of process parameters, kinetic analysis, and operating cost. *Journal of Dispersion Science and Technology* 42: 1681280. <https://doi.org/10.1080/01932691.2019.1681280>
19. N.Balasubramanian, T.Kojima, C.A.Basha, C.Srinivasakannan (2009). Removal of arsenic from aqueous solution using electrocoagulation. *Journal of Hazardous Materials* 167:966-969. <https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2009.01.081>
20. D.L.Johnson, M.E.Pilson (1972). Spectrophotometric determination of arsenite, arsenate and phosphate in natural waters. *Analytica Chimica Acta* 58:289-299. [https://doi.org/10.1016/S0003-2670\(72\)80005-9](https://doi.org/10.1016/S0003-2670(72)80005-9)
21. MNS-ISO 17294-2:2011 (2011). Усны чанар: Индукцийн холбоот плазм бүхий масс спектрометр (ICP-MS)-ийн арга, 2-р хэсэг, 62 элементийг тодорхойлох, Монгол Улсын стандарт.
22. O.Oriekhova, S.Stoll (2014). Investigation of FeCl₃ induced coagulation processes using electrophoretic measurement, nanoparticle tracking analysis and dynamic light scattering: Importance of pH and colloid surface charge. *Colloids and Surface A: Physicochemical and Engineering Aspects* 461:212-219. <https://doi.org/10.1016/j.colsurfa.2014.07.049>
23. J.A.Gomes, P.Daida, M.Kesmez, M.Weir, H.Moreno, J.R.Parga, G.Irwin, H.McWhinney, T.Grady, E.Peterson, D.L.Cocke (2007). Arsenic removal by electrocoagulation using combined Al-Fe electrode system and characterization of products. *Journal of Hazardous Materials* B139:220-231. <https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2005.11.108>
24. Y.Jia, L.Xu, X.Wang, G.P.Demopoulos (2007). Infrared spectroscopic and X-ray diffraction characterization of the nature of adsorbed arsenate on ferrihydrite. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 71:1643-1654. <https://doi.org/10.1016/j.gca.2006.12.021>

Optimization of electrocoagulation condition for the removal of As(V) ions from aqueous media

Amarsanaa Altangerel, Damdin Nomin-Erdene, Davaasambuu Sarangerel*

Department of Chemistry, Natural Sciences Division, School of Arts and Sciences,
National University of Mongolia, Ulaanbaatar 14201, Mongolia

*E-mail: sarangerel@num.edu.mn

ORCID: [0000-0002-4820-9538](https://orcid.org/0000-0002-4820-9538)

Submitted: 19.04.2021

Reviewed: 21.04.2021

Accepted: 30.12.2021

Abstract: In recent years, the arsenic content of groundwater and soil due to the mining processes and natural and/or anthropogenic sources exceeds the permissible level, leading to adverse effects on human health and the ecosystem. The paper provides the optimized condition for the arsenic removal from the aqueous media using electrocoagulation, which is no additional reagents/chemicals, in situ generation of coagulants continuously, low energy consumption. The optimal conditions were found to be as follows: pH 7, electrolyte concentration NaCl 0.5 g L⁻¹, current density 20 mA cm⁻², and operational time 20 minutes, initial concentration of arsenic 50 mg L⁻¹. Under the optimal condition, the maximum removal efficiency was 99.6%. Generally, the experimental results showed that the removal efficiency of As(V) from the aqueous medium was higher than 95% at pH = 4-8 ranges, 90% at the electrolyte concentration in the range of 0.25 g L⁻¹ to 0.75 g L⁻¹, and 96% at the current density in the range of 15 mA cm⁻² - 60 mA cm⁻² respectively. Considering the variation of oxidation-reduction potential and pH during the electrocoagulation and FTIR spectra of solid residue, we found that As(V) was removed through the chemical precipitation (FeAsO₄) and adsorption (Fe(OH)₃×HAsO₄²⁻).

Keywords: *iron electrode, coagulant, adsorption, arsenate ion.*

© The Author(s). 2021 **Open Access** This article is distributed under the terms of the Creative Commons Attribution 4.0 International License (<https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>), which permits unrestricted use, distribution, and reproduction in any medium, provided you give appropriate credit to the original author(s) and the source, provide a link to the Creative Commons license, and indicate if changes were made.

DOI: <https://doi.org/10.5564/bicct.v4i9.1811>