

Bài báo khoa học

So sánh mức độ ảnh hưởng của một số vật liệu đối với quá trình cố định Asen trong đất bị ô nhiễm

Nguyễn Quốc Tuấn^{1*}, Nguyễn Hồng Quân¹, Nguyễn Thị Hải^{1,2}

¹ Khoa Địa chất, Trường Đại học Khoa học Tự nhiên, Đại học Quốc gia Hà Nội, 334 Nguyễn Trãi, Thanh Xuân, Hà Nội, Việt Nam; nqt18@vnu.edu.vn; nguyenhongquan160198@gmail.com

² Phòng thí nghiệm Trọng điểm Địa môi trường và Ứng phó Biến đổi Khí hậu, trường Đại học Khoa học Tự nhiên, Đại học Quốc gia Hà Nội, 334 Nguyễn Trãi, Thanh Xuân, Hà Nội, Việt Nam; nguyenhai128@vnu.edu.vn

*Tác giả liên hệ: nqt18@vnu.edu.vn; Tel.: +84-345311281

Ban Biên tập nhận bài: 12/9/2023; Ngày phản biện xong: 30/10/2023; Ngày đăng bài: 25/12/2023

Tóm tắt: Nghiên cứu so sánh sự ảnh hưởng của ba vật liệu chính là bentonite (B), than hoạt tính (AC), và vật liệu tổng hợp của chúng (BAC) với tỉ lệ áp dụng 2% đối với khả năng cố định Asen (As) trong đất bị ô nhiễm. Khả năng cố định As trong đất được đánh giá bằng: i) quy trình lọc kết tủa tổng hợp (SPLP), quy trình chiết độc tính (TCLP), và dung dịch 0,1M HCl để đánh giá khả năng rửa trôi; ii) tách chiết tuần tự (Sequential Extraction) để đánh giá các dạng liên kết của As trong đất. Kết quả chỉ ra sự có mặt của các vật liệu đã giúp tăng độ pH của đất và thay đổi tính linh động của As trong đất. Hiệu suất cố định As tăng tới 52% trong đất được xử lý bằng vật liệu BAC. Kết quả cũng chỉ ra As trong dạng tồn tại dễ trao đổi đã được chuyển sang dạng tồn tại bền hơn và ít linh động hơn, đặc biệt đối với đất được xử lý bằng BAC. Nghiên cứu chỉ ra rằng việc kết hợp các vật liệu đem lại hiệu quả cao trong xử lý đất bị ô nhiễm, do đó cần phải được tiếp tục nghiên cứu để đánh giá tính hiệu quả không những đối với As mà còn với các kim loại nặng khác, và xem xét tác động của vật liệu đối với sức khỏe của đất.

Từ khóa: Asen; Bentonite; Than hoạt tính; Cố định Asen trong đất.

1. Mở đầu

Asen (As) là một nguyên tố vô cơ phổ biến, dễ dàng được tìm thấy ở ngoài tự nhiên, cũng như trong sinh hoạt hàng ngày. Ngày nay, với việc phát triển của quá trình công nghiệp hóa, As xuất hiện nhiều trong sản phẩm công nghiệp, ảnh hưởng ô nhiễm đến môi trường sống, và trở thành mối quan tâm lớn ở nhiều khu vực trên thế giới và Việt Nam [1]. Ô nhiễm As trong đất có thể ảnh hưởng tới hệ sinh thái, nước ngầm, môi trường vi sinh vật, thực vật, và theo chuỗi thức ăn có tác hại trực tiếp lên con người. Theo cơ quan Bảo vệ Môi trường Mỹ (USEPA), As là một nguyên tố độc hại nguy hiểm và đã đặt ra nồng độ tối đa cho phép của As trong nước uống là 10 µg/L. Việc cơ thể con người tiếp xúc lâu dài hoặc liều lượng cao với As có thể gây ra hàng loạt bệnh liên quan đến hệ sinh sản và tuần hoàn cũng như nguy cơ ung thư ở nhiều cơ quan [2].

Trên thế giới, các báo cáo về mức độ ô nhiễm As cho thấy thách thức đang ngày càng lớn trong vấn đề xử lý ô nhiễm As. Theo báo cáo khảo sát về mức độ ô nhiễm đất ở Trung Quốc năm 2014, ô nhiễm As đã vượt quá giới hạn cho phép 2,7% [3, 4]. Ở châu Âu, theo khảo sát của dự án Baltic Soil Survey (BSS), hàm lượng As trong đất nông nghiệp ở khoảng 5,7 mg/kg; trong đó, nồng độ As ở phía Nam châu Âu cao gấp 3 lần so với phía Bắc [5]. Tại Hoa Kỳ, theo số liệu báo cáo có khoảng từ 100.000 - 1.000.000 ha đất nông nghiệp có hàm

lượng As trong đất từ 200 ppm trở lên và hàng chục triệu ha có dư lượng As trong đất từ 20 - 30 ppm [6]. Ở Việt Nam, theo nghiên cứu [7], tổng hàm lượng As của khoảng 80% đất nông nghiệp khu vực Đồng Bằng sông Hồng trong phạm vi khảo sát của nghiên cứu vượt quá giới hạn tối đa cho phép đối với đất nông nghiệp Việt Nam (12 mg/kg) gây nguy cơ an toàn lương thực.

Ngày nay, quá trình đô thị hóa, công nghiệp hóa diễn ra rất nhanh và mạnh, là nguyên nhân dẫn đến sự thu hẹp của đất nông nghiệp. Việc tận dụng các khu đất xung quanh các khu khai thác mỏ đã bỏ hoang làm đất nông nghiệp đang là một xu thế của một số quốc gia trên thế giới như Hàn Quốc. Tuy nhiên, đã có nhiều báo cáo liên quan đến ô nhiễm As và kim loại nặng trong đất canh tác xung quanh khu mỏ bỏ hoang, và vấn đề xử lý ô nhiễm As và kim loại nặng cần được quan tâm chú ý đối với các khu vực như này [1].

Chính vì vậy, việc xử lý đất canh tác tại các khu mỏ bỏ hoang bị ô nhiễm As đang ngày càng nhận được sự quan tâm chú ý của các nhà nghiên cứu. Có thể kể đến một số phương pháp để loại bỏ As trong đất như dùng thực vật hấp thụ, vi sinh vật, điện phân [8–10]. Tuy nhiên, các phương pháp này hoặc đòi hỏi thời gian xử lý lâu dài hoặc chi phí xử lý tốn kém. Phương pháp rửa đất có thể mang lại hiệu quả bằng cách sử dụng những dung môi như tartaric acid, citric acid, oxalic acid... nhưng việc xử lý dung dịch sau quá trình rửa đất cũng là một vấn đề hết sức khó khăn [11, 12].

Gần đây, phương pháp cố định sử dụng các vật liệu bổ sung vào đất đang ngày càng được tập trung nghiên cứu vì phương pháp này được đánh giá là một phương pháp đầy hứa hẹn và tiềm năng trong việc xử lý ô nhiễm As và kim loại nặng trong đất [13]. So sánh với các phương pháp xử lý ô nhiễm As trong đất khác như xử lý bằng các biện pháp sinh học (hấp thụ thực vật...), xử lý nhiệt, hay rửa đất, phương pháp cố định As bằng các vật liệu đem lại hiệu quả cao, ổn định, và tiết kiệm chi phí cũng như thời gian xử lý [14]. Tuy nhiên, việc áp dụng vật liệu nào trong việc cố định As cần xem xét kỹ lưỡng để đem lại hiệu quả cao nhất, cũng như dễ tiếp cận, không những có giá thành giá rẻ, mà còn ít tác động tiêu cực đến môi trường.

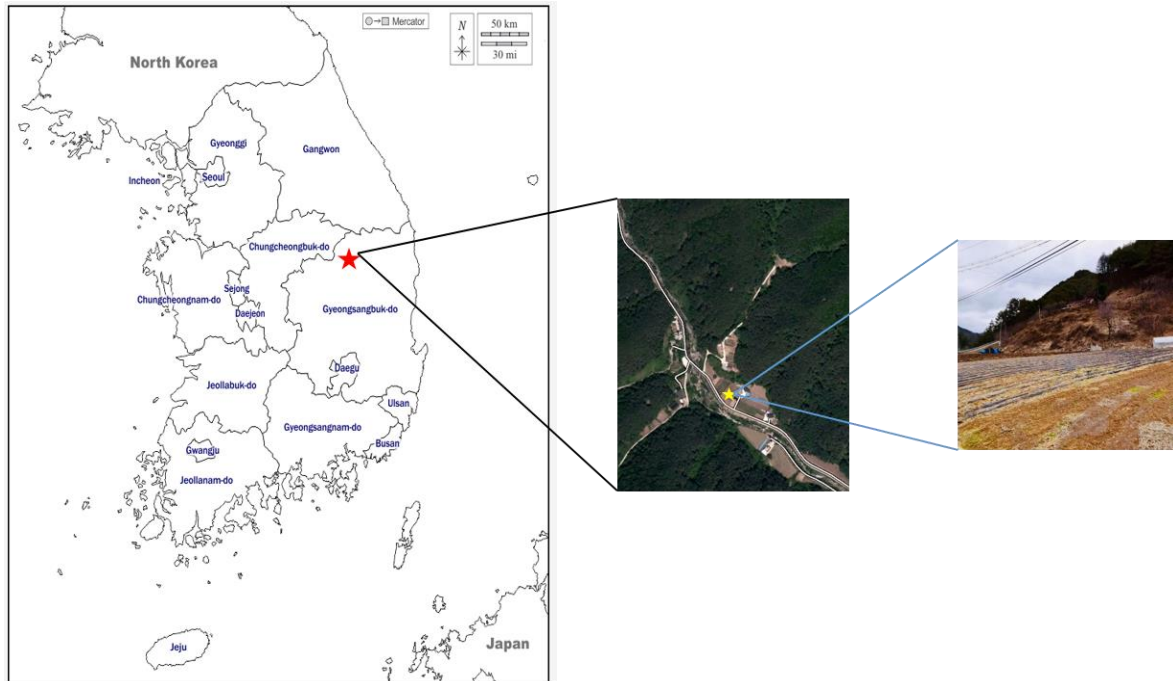
Các hợp chất khoáng sét là một trong những vật liệu hiện đang thu hút sự chú ý do giá thành rẻ, số lượng lớn và diện tích bề mặt, cũng như tính chất hấp phụ tốt [15]. Bentonite là một loại khoáng sét bao gồm các lớp tứ diện Si và bát diện Al liên kết với nhau của các nhóm hydroxyl. Bentonite mang điện tích âm và có thể được trung hòa bởi các cation trao đổi [16]. Do đó, bentonite được dùng nhiều trong xử lý ô nhiễm nước bởi các hợp chất hữu cơ như methylene blue [17]. Bên cạnh đó, than hoạt tính cũng là một vật liệu hấp phụ được dùng nhiều trong quá trình xử lý ô nhiễm vô cơ hay hữu cơ môi trường nước do diện tích bề mặt hấp phụ của chúng lớn, và tính chất thân thiện với môi trường [18]. Tuy nhiên, việc áp dụng bentonite và than hoạt tính trong việc xử lý ô nhiễm As trong đất vẫn chưa có. Đặc biệt, việc kết hợp hai vật liệu này nhằm tăng cường khả năng cố định As trong đất hiện vẫn chưa được nghiên cứu.

Chính vì vậy, nghiên cứu này được thực hiện nhằm đánh giá tính hiệu quả và khả năng của việc áp dụng các vật liệu như bentonite, than hoạt tính, và vật liệu tổng hợp giữa chúng đối với quá trình cố định As trong đất.

2. Phương pháp nghiên cứu

2.1. Chuẩn bị đất và vật liệu

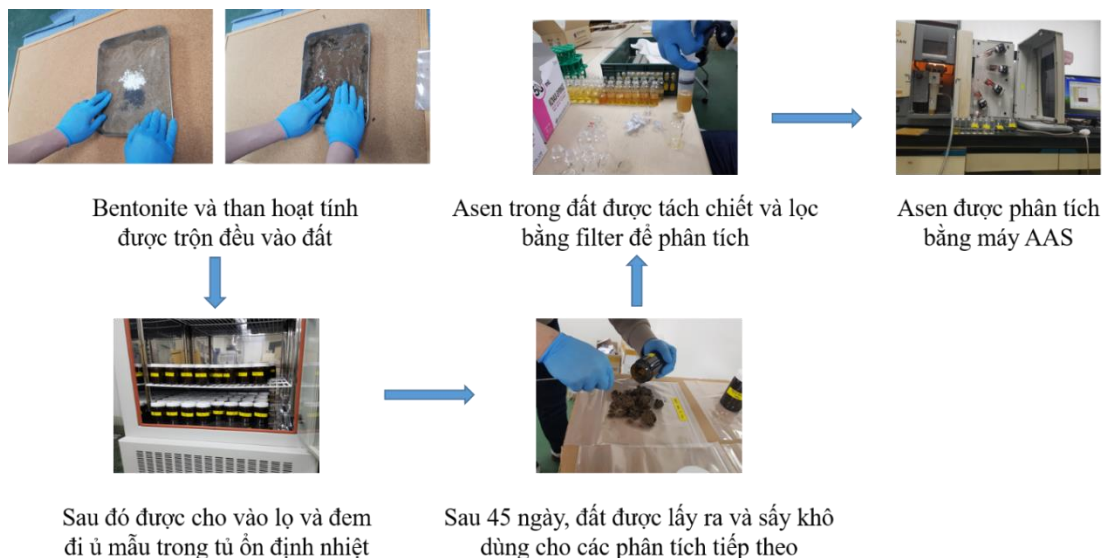
Đất bị ô nhiễm bởi As được lấy từ lớp bề mặt của một khu ruộng gần khu mỏ bỏ hoang ở tỉnh miền Trung Hàn Quốc (Hình 1). Sau khi lấy mẫu, đất được sấy khô ở nhiệt độ phòng trong 7 ngày và được sàng ở cỡ hạt 2 mm để dùng cho các thí nghiệm sau này. Vật liệu dùng trong nghiên cứu này là bentonite (B) và than hoạt tính (AC) được mua thương mại từ công ty Hóa chất Daejung. Vật liệu tổng hợp giữa bentonite và than hoạt tính (BAC) được tạo ra bằng cách trộn đều 2 chất trên theo tỉ lệ 50:50.



Hình 1. Sơ đồ địa điểm lấy mẫu.

2.2. Thiết kế thí nghiệm

Đất bị ô nhiễm bởi As được trộn với các vật liệu ở cùng một tỉ lệ là 2% giữa vật liệu/đất theo khối lượng. Sau khi đất được trộn với vật liệu, đất được cho vào các lọ lần lượt được dán nhãn CTR (đất không trộn vật liệu), B (đất được trộn bentonite), AC (đất được trộn than hoạt tính), BAC (đất được trộn cả bentonite và than hoạt tính). Sau đó, các lọ được đặt vào tủ ổn định nhiệt (incubator) trong 45 ngày và luôn được giữ ẩm ở 70%. Sau 45 ngày, các mẫu đất lần lượt được lấy ra để tiến hành các thí nghiệm về đo độ rửa trôi, và dạng tồn tại của As trong đất. Thí nghiệm được mô tả theo Hình 2.



Hình 2. Quy trình thực hiện nghiên cứu.

2.3. Phân tích mẫu

Để đánh giá khả năng rửa trôi của As trong các mẫu chứa và không chứa các vật liệu, ba phương pháp tách chiết được áp dụng bao gồm phương pháp SPLP (US EPA 1312), TCLP (US EPA 1311), và 0,1M HCl.

Để đánh giá khả năng cố định As của các vật liệu, hiệu số cố định được sử dụng theo công thức sau:

Hiệu suất cố định (%) = $(C_{CTR} - C_i)/C_{CTR}$. Trong đó, C_{CTR} là nồng độ As trong đất không chứa vật liệu, C_i là nồng độ As trong đất đã xử lý bằng các vật liệu B, AC, and BAC.

Để đánh giá các dạng tồn tại của As trong đất, nghiên cứu thực hiện tách chiết tuần tự dựa theo nghiên cứu [19]. Trong đó, As sẽ bám vào và tồn tại ở 5 dạng: dễ trao đổi, bám vào các hợp chất carbonate, bám vào các hợp chất oxit Fe và Mn, bám vào các hợp chất hữu cơ, và bám vào các phần còn lại trong đất. Trong 5 dạng tồn tại đó, dạng dễ trao đổi và các hợp chất carbonate là nơi mà As dễ linh động nhất, và có khả năng bị hấp thụ nhiều nhất bởi thực vật. Do đó, việc xem xét sự dịch chuyển của As trong các dạng tồn tại cũng là một cách hiệu quả trong việc đánh giá sự ảnh hưởng của các vật liệu đối với quá trình cố định As trong đất. Hàm lượng As trong đất được đo bằng máy quang phổ hấp thụ nguyên tử (AAS, AA240, Varian, Australia).

2.3. Phân tích dữ liệu

Nghiên cứu được lặp lại ba lần để lấy dữ liệu phân tích sự khác biệt của các vật liệu. Dữ liệu được phân tích bằng phương pháp ANOVA với kiểm định Tukey ($p < 0,05$) bằng phần mềm thống kê SPSS 20,0. Sau đó, nghiên cứu dùng phần mềm Origin 9,1 mô tả dữ liệu.

3. Kết quả và thảo luận

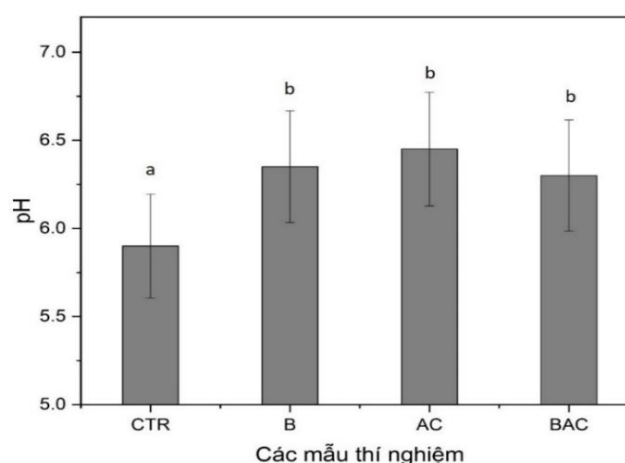
3.1. Ảnh hưởng của vật liệu đến độ pH của đất

Đất dùng trong nghiên cứu là đất bị ô nhiễm As với nồng độ tương đối cao với hàm lượng $58,5 \pm 2,78$ mg/kg (Bảng 1). Đất có độ chua nhẹ ở pH 5,9, hàm lượng hữu cơ thấp 2,2% và có thành phần vật chất chủ yếu ở dạng cát bùn.

Bảng 1. Một số đặc tính lý hóa của đất dùng trong nghiên cứu.

	pH	As (mg/kg)	Hàm lượng hữu cơ (%)	Kết cấu
Đất	$5,9 \pm 0,29$	$58,5 \pm 2,78$	$2,2 \pm 0,28$	Cát bùn

Ảnh hưởng của vật liệu đến các đặc tính lý hóa của đất được đánh giá thông qua độ pH đất (Hình 3). Độ pH của đất là một yếu tố quan trọng ảnh hưởng đến hoạt động của kim loại trong đất và trực tiếp hoặc gián tiếp làm thay đổi tính di động và độc tính của chúng đối với thực vật và vi sinh vật [20]. Nghiên cứu đã chỉ ra rằng các vật liệu như bentonite, than hoạt tính góp phần cải tạo chất lượng đất, làm tăng đáng kể pH trong đất từ $5,9 \pm 0,29$ trong mẫu đất đối sánh (không chứa vật liệu) đến $6,45 \pm 0,32$ trong mẫu đất có chứa than hoạt tính sau 45 ngày trong tủ ổn nhiệt. Kết quả cũng cho thấy pH trong tất cả các mẫu đều có sự khác biệt đáng kể ($p < 0,05$) so với mẫu đất đối sánh. Kết quả này phù hợp với một số nghiên cứu trước đó, phải kể đến [21] báo cáo rằng, bằng việc sử dụng bentonite trong xử lý đất nhiễm chì, pH của đất tăng từ 5,18 lên tới 6,83 sau 2 năm xử

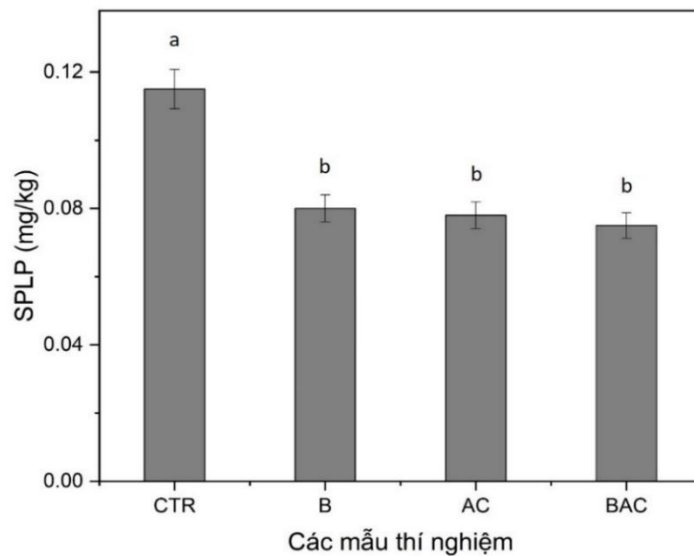


Hình 3. Độ pH của đất trong mỗi mẫu thí nghiệm. (CTR: Đất đối sánh (không có vật liệu), B: Đất có chứa bentonite, AC: Đất có chứa than hoạt tính. BAC: Đất có chứa cả bentonite và than hoạt tính).

lý. Nghiên cứu [18] cũng chỉ ra rằng AC được bổ sung vào đất ô nhiễm đồng, giúp cải thiện pH của đất từ 2,85 lên 4,2 sau 28 ngày.

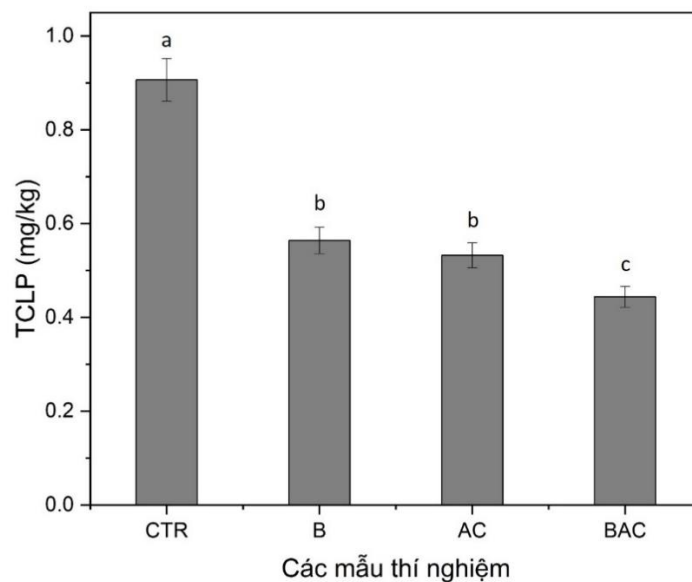
3.2. Ảnh hưởng của vật liệu đến tính rửa trôi của As trong đất

Ảnh hưởng của B, AC, và BAC đến khả năng rửa trôi của As được đánh giá bằng 3 quy trình tách chiết, bao gồm: SPLP, TCLP và HCl 0,1M. Kết quả cho thấy As trong cả 3 quy trình tách chiết đều có sự khác biệt đáng kể ($p < 0,05$) so với mẫu đất đối sánh. Đối với quy trình tách chiết SPLP, đất được xử lý bằng B, AC và BAC có hàm lượng As trung bình là $0,08 \pm 0,001$ mg/kg so với đất đối sánh (CTR) là $0,12 \pm 0,005$ mg/kg (Hình 4).



Hình 4. Nồng độ As tách chiết bằng quy trình lọc kết tủa tổng hợp (SPLP) trong mỗi mẫu thí nghiệm. (CTR: Đất đối sánh (không có vật liệu), B: Đất có chứa bentonite, AC: Đất có chứa than hoạt tính, BAC: Đất có chứa cả bentonite và than hoạt tính).

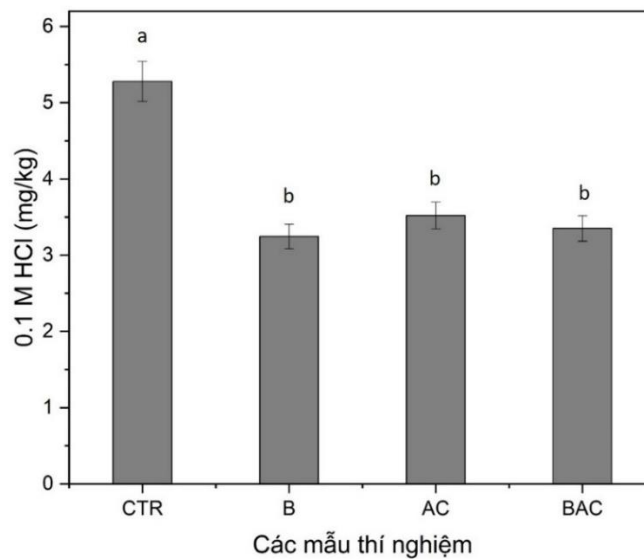
Nồng độ As trong dung dịch tách chiết tăng dần lần lượt đối với quy trình tách chiết TCLP và dung dịch chiết HCl 0,1M. Đối với quy trình tách chiết TCLP, đất được cải tạo bằng BAC cho hiệu quả cao nhất trong việc cố định As trong đất (Hình 5). Nồng độ As trong dung dịch chiết bằng quy trình TCLP trong mẫu đất có chứa BAC cho kết quả thấp nhất với nồng độ ở mức $0,44 \pm 0,02$ mg/kg, so với nồng độ As trong dung dịch chiết từ mẫu đất đối sánh là $0,9 \pm 0,04$ mg/kg. Trong khi đó, đất được xử lý bằng B và AC cho cùng hàm lượng As được chiết bằng quy trình TCLP với hàm lượng lần lượt là $0,56 \pm 0,03$ và $0,53 \pm 0,03$ mg/kg.



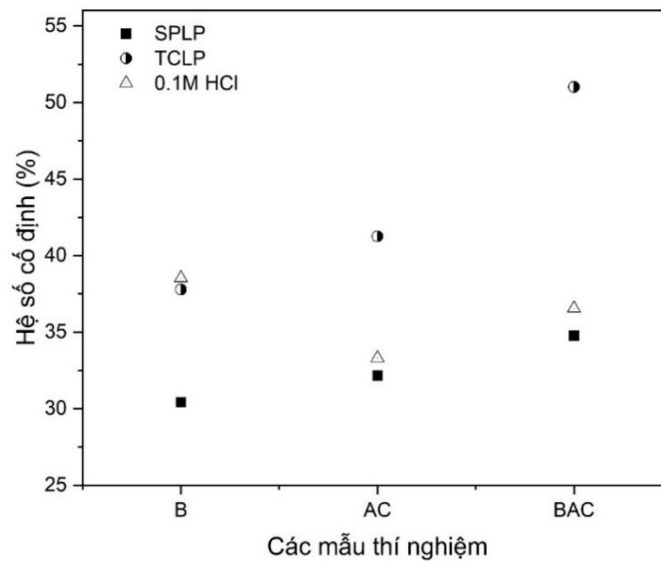
Hình 5. Nồng độ As tách chiết bằng quy trình chiết độc tính (TCLP) trong mỗi mẫu thí nghiệm. (CTR: Đất đối sánh (không có vật liệu), B: Đất có chứa bentonite, AC: Đất có chứa than hoạt tính, BAC: Đất có chứa cả bentonite và than hoạt tính).

Tuy nhiên, bằng quy trình tách chiết với dung dịch HCl 0,1M, đất được xử lý bằng B cho thấy hiệu quả cố định As trong đất cao nhất (Hình 6). Hàm lượng As được chiết bằng

dung dịch HCl 0,1M trong mẫu đất có chứa B thấp nhất với nồng độ $3,2 \pm 0,12$ mg/kg, so với đất đối sánh là $5,28 \pm 0,26$ mg/kg. Từ kết quả này, nghiên cứu chỉ ra rằng bằng cách tăng cường độ ion của dung dịch chiết, nồng độ As trong tất cả các thí nghiệm xử lý đều tăng theo thứ tự các quy trình tách chiết lần lượt từ SPLP < TCLP < 0,1M HCl.



Hình 6. Nồng độ As tách chiết bằng dung dịch 0,1M HCl trong mỗi mẫu thí nghiệm. (CTR: Đất đối sánh (không có vật liệu), B: Đất có chứa bentonite, AC: Đất có chứa than hoạt tính, BAC: Đất có chứa cả bentonite và than hoạt tính).

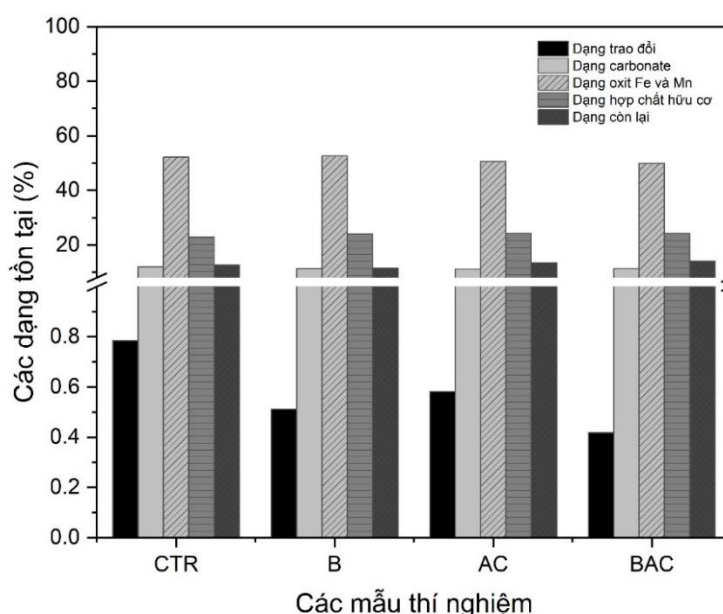


Hình 7. Hệ số cố định của As bằng các quy trình tách chiết trong mỗi mẫu thí nghiệm. (CTR: Đất đối sánh (không có vật liệu), B: Đất có chứa bentonite, AC: Đất có chứa than hoạt tính, BAC: Đất có chứa cả bentonite và than hoạt tính).

Hình 7 cho ta thấy hệ số cố định As khác nhau với mỗi quy trình tách chiết và mỗi mẫu đất được xử lý bằng vật liệu khác nhau. Nhìn chung, các vật liệu đều cho thấy khả năng cố định As tương đối tốt trong các quy trình tách chiết khác nhau, trung bình từ 30 - 40%. Đặc biệt, đất được xử lý bằng BAC cho hệ số cố định As cao nhất đối trong quy trình tách chiết bằng TCLP, lên tới 52%. Có thể thấy rằng, việc áp dụng các vật liệu như B hay AC đã góp phần làm thay đổi về tính chất vật lý và hóa học của đất, như pH. Từ đó ảnh hưởng trực tiếp đến tính linh động của As trong đất [22]. Hơn thế nữa, các nhóm chức của B và AC được chỉ ra trong các nghiên cứu trước đây như -OH group, Si-O, H-O-H, C=O đóng vai trò quan trọng trong việc cố định As thông qua trao đổi cation, hấp phụ hoặc tạo phức nhóm chức [23, 24].

3.3. Ảnh hưởng của vật liệu đến các dạng tồn tại của As trong đất

Kết quả của quá trình tách chiết tuần tự cho thấy As chủ yếu tồn tại trong các dạng vật chất hữu cơ và oxit Fe và Mn (Hình 8). Trong tất cả các mẫu có chứa vật liệu và mẫu đối sánh, As tồn tại trong dạng oxit Fe và Mn chiếm trung bình 50% về khối lượng. Phần trăm As tồn tại trong dạng oxit Fe và Mn trong mẫu đối sánh và mẫu đất có chứa B lần lượt là 52,1 và 52,5%; trong khi đó As trong mẫu chứa BAC cho tỉ lệ thấp nhất với 49%. Asen tồn tại trong các dạng hợp chất hữu cơ và dạng carbonate trong đất ở tất cả các mẫu có chứa vật liệu và không chứa vật liệu đều không có sự khác biệt đáng kể, chiếm tỉ lệ trung bình lần lượt là 11% và 24%. Tuy nhiên, sự khác biệt thể hiện rõ nhất ở dạng trao đổi và các dạng bền trong đất. Đối với dạng trao đổi, As chiếm tỉ lệ thấp nhất ở 0,4% trong mẫu đất chứa BAC, và cao nhất là 0,8% trong mẫu đối sánh. Ngược lại, As tồn tại trong các dạng bền trong đất chiếm tỉ lệ cao nhất trong mẫu chứa BAC là 14%, so với mẫu không chứa vật liệu (mẫu đối sánh) là 12%.



Hình 8. Các dạng tồn tại của As trong đất trong mỗi mẫu thí nghiệm. (CTR: Đất đối sánh (không có vật liệu), B: Đất có chứa bentonite, AC: Đất có chứa than hoạt tính, BAC: Đất có chứa cả bentonite và than hoạt tính).

Mặc dù tổng hàm lượng As trong đất biểu thị mức độ chung của ô nhiễm As nhưng nó không cung cấp thông tin về các dạng hóa học hoặc khả năng di chuyển, cũng như tính sinh khả dụng của nó. Trong khi đó, tính sinh khả dụng của As liên quan đến các phân tử bị hấp thụ (ví dụ như các dạng dễ trao đổi và cacbonat) [13]. Kết quả của tách chiết tuần tự As chứng tỏ rằng, các vật liệu đã góp phần chuyển hóa các dạng tồn tại của As trong đất từ dạng dễ trao đổi, sang các dạng tồn tại bền hơn, không còn linh động và dễ dàng thấm vào nước ngầm hay hấp thụ bởi thực vật.

Bảng 2 cho thấy sự so sánh về mức độ cố định As trong đất của một số vật liệu như biochar, carbon foam, hay nanosilica với vật liệu được dùng trong nghiên cứu này. Có thể thấy rằng đây là những vật liệu hoặc là có nguồn gốc hữu cơ tự nhiên như: *hydroxyapatite - biochar from rice straw* và *ferrihydrate - supported animal derived biochar* hoặc là có nguồn gốc nhân tạo như: carbon foam và nano-silica với đặc điểm chung là cho hiệu suất cố định As tương đối cao. Tuy nhiên, đây là các vật liệu có giá thành cao, không có sẵn, quá trình tổng hợp vật liệu phức tạp. Các vật liệu được dùng trong nghiên cứu này tương đối rẻ, dễ dàng tìm thấy trên thị trường. Qua nghiên cứu cũng cho thấy hiệu suất cố định As ở mức tương đối, đặc biệt là đối với vật liệu BAC. Đây là kết quả đầy hứa hẹn cho việc cố định As

trong đất thông qua việc giảm tính linh động của As bằng việc sử dụng các vật liệu giá rẻ, có sẵn, trong đó việc kết hợp hai hay nhiều vật liệu có thể sẽ đem lại hiệu quả cao.

Bảng 2. So sánh khả năng cố định As trong đất của một số vật liệu.

Vật liệu	Tỉ lệ áp dụng	Hiệu suất cố định	Loại đất	Tài liệu tham khảo
Hydroxyapatite - biochar from rice straw	1%	28%	Đất gần khu công nghiệp	[25]
Ferrihydrite - supported animal derived biochar	3%	40%	Khu vực luyện kim	[26]
Goethite-based carbon foam	20%	80%	Khu vực luyện kim	[27]
Mercapto propyltrimethoxysilane- and ferrous sulfate-modified nano-silica	3%	80%	Đất nông nghiệp	[28]
Bentonite	2%	38%	Đất nông nghiệp gần khu mỏ bỏ hoang	Nghiên cứu này
Than hoạt tính	2%	42%	Đất nông nghiệp gần khu mỏ bỏ hoang	Nghiên cứu này
Bentonite + Than hoạt tính	2%	52%	Đất nông nghiệp gần khu mỏ bỏ hoang	Nghiên cứu này

4. Kết luận

Nghiên cứu đã chỉ ra tiềm năng của B, AC, cũng như vật liệu tổng hợp của chúng (BAC) trong việc cố định As trong đất bị ô nhiễm. Sự kết hợp giữa bentonite và than hoạt tính (BAC) như một phương pháp xử lý đầy hứa hẹn, tăng cường đáng kể khả năng cố định As trong đất và chuyển các dạng tồn tại của As trong đất sang các dạng tồn tại khác có trạng thái ít linh hoạt hơn.

Những phát hiện này góp phần có giá trị trong việc tìm phương án hữu hiệu cho quá trình xử lý đất bị ô nhiễm As cũng như các kim loại nặng khác một cách bền vững, nhằm giảm thiểu ô nhiễm, bảo vệ môi trường, và bảo vệ sức khỏe con người.

Tuy nhiên, bên cạnh tính hiệu quả của việc áp dụng các vật liệu đối với quá trình cố định As trong đất thì cũng cần xem xét đến khía cạnh ảnh hưởng của nó đối với chất lượng đất, hệ sinh thái đất như vi sinh vật, thực vật. Đây cũng là hạn chế của nghiên cứu, cần được bổ sung trong các nghiên cứu sau.

Đóng góp của tác giả: Xây dựng ý tưởng nghiên cứu: N.Q.T.; Lựa chọn phương pháp nghiên cứu: N.Q.T.; Thực hiện thí nghiệm: N.H.Q.; Phân tích mẫu: N.H.Q.; Xử lý số liệu: N.Q.T., N.T.H.; Viết bản thảo bài báo: N.Q.T.; Chỉnh sửa bài báo: N.T.H., N.Q.T.

Lời cảm ơn: Nghiên cứu này được tài trợ bởi Trường Đại học Khoa học Tự nhiên, Đại học Quốc gia Hà Nội trong đề tài mã số TN.23.14.

Lời cam đoan: Tập thể tác giả cam đoan bài báo này là công trình nghiên cứu của tập thể tác giả, chưa được công bố ở đâu, không được sao chép từ những nghiên cứu trước đây; không có sự tranh chấp lợi ích trong nhóm tác giả.

Tài liệu tham khảo

1. Nejad, D.Z.; Kim, J.W.; Jung, M.C. Reclamation of arsenic contaminated soils around mining site using solidification/stabilization combined with revegetation. *Geosci. J.* **2017**. *21*(3), 385–396. Doi:10.1007/s12303-016-0059-0.
2. Agency, U.S.E.P. Arsenic compounds. Available online: epa.gov/sites/default/files/2021-04/documents/arsenic_april_2021.pdf (accessed December 12, 2021). 2021.
3. MEP, M. National soil pollution survey bulletin. Ministry of Environmental Protection and Ministry of Land and Resources Beijing, 2014.

4. Zhang, L.; Hu, J.; Li, C.; Chen, Y.; Zheng, L.; Ding, D.; Shan, S. Synergistic mechanism of iron manganese supported biochar for arsenic remediation and enzyme activity in contaminated soil. *J. Environ. Manage.* **2023**, *347*, 119127. <https://doi.org/10.1016/j.jenvman.2023.119127>.
5. Tarvainen, T.; Albanese, S.; Birke, M.; Poňavič, M.; Reimann, C.; The GEMAS Project Team. Arsenic in agricultural and grazing land soils of Europe. *Appl. Geochem.* **2013**, *28*, 2–10. <https://doi.org/10.1016/j.apgeochem.2012.10.005>.
6. Freeman, G.B.; Schoof, R.A.; Ruby, M.V.; Davis, A.O.; Dill, J.A.; Liao, S.C.; Lapin, C.A.; Bergstrom, P.D. Bioavailability of arsenic in soil and house dust impacted by smelter activities following oral administration in cynomolgus monkeys. *Fundam. Appl. Toxicol.* **1995**, *28*(2), 215–22. Doi:10.1006/faat.1995.1162.
7. Phuong, N.M.; Kang, Y.; Sakurai, K.; Iwasaki, K.; Kien, C.N.; Noi, N.V.; Son, L.T. Arsenic contents and physicochemical properties of agricultural soils from the Red River Delta, Vietnam. *Soil Sci. Plant Nutr.* **2008**, *54*(6), 846–855. Doi:10.1111/j.1747-0765.2008.00312.x.
8. Yang, J. et al. Phytoaccumulation of As by *Pteris vittata* supplied with phosphorus fertilizers under different soil moisture regimes—a field case. *Ecol. Eng.* **2019**, *138*, 274–280.
9. Liang, J. et al. Tolerance and Bioaccumulation of arsenate by *Aspergillus oryzae* TLWK-09 isolated from arsenic-contaminated soils. *Water Air Soil Pollut.* **2018**, *229*, 1–11.
10. Jeon, E.K. et al. In situ electrokinetic remediation of As-, Cu-, and Pb-contaminated paddy soil using hexagonal electrode configuration: a full scale study. *Environ. Sci. Pollut. Res.* **2015**, *22*, 711–720.
11. He, J. et al. Removal of arsenic from contaminated soils by combining tartaric acid with dithionite: An efficient composite washing agent. *J. Environ. Chem. Eng.* **2023**, *11*(3), 109877. <https://doi.org/10.1016/j.jece.2023.109877>.
12. Fazle Bari, A.S.M. et al. Soil washing of arsenic from mixed contaminated abandoned mine soils and fate of arsenic after washing. *Chemosphere* **2022**, *296*, 134053. <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2022.134053>.
13. Palansooriya, K.N. et al. Soil amendments for immobilization of potentially toxic elements in contaminated soils: A critical review. *Environ. Int.* **2020**, *134*, 105046. <https://doi.org/10.1016/j.envint.2019.105046>.
14. Derakhshan Nejad, Z. et al. Effects of fine fractions of soil organic, semi-organic, and inorganic amendments on the mitigation of heavy metal(loid)s leaching and bioavailability in a post-mining area. *Chemosphere* **2021**, *271*, 129538. <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2021.129538>.
15. Nabilah, B. et al. Methylene Blue biodecolorization and biodegradation by immobilized mixed cultures of *Trichoderma viride* and *Ralstonia pickettii* into SA-PVA-Bentonite matrix. *Arabian J. Chem.* **2023**, *16*(8), 104940. <https://doi.org/10.1016/j.arabjc.2023.104940>.
16. Hebbar, R.S.; Isloor, A.M.; Ismail, A. Preparation and evaluation of heavy metal rejection properties of polyetherimide/porous activated bentonite clay nanocomposite membrane. *RSC Adv.* **2014**, *4*(88), 47240–47248.
17. Oussalah, A.; Boukerroui, A. Alginate-bentonite beads for efficient adsorption of methylene blue dye. *Euro-Mediterr. J. Environ. Integr.* **2020**, *5*, 1–10.
18. Quoc, T.N.; Jung, M.C. Sequential Application of Column Leaching and Plant Uptake Tests to Assess the Effect of Various Commercial Amendments on Cu Immobilization in Ultra-High Cu-Contaminated Soil. *Toxics* **2022**, *10*(4), 185. Doi: 10.3390/toxics10040185.

19. Wenzel, W.W. et al. Arsenic fractionation in soils using an improved sequential extraction procedure. *Anal. Chim. Acta* **2001**, 436(2), 309–323. [https://doi.org/10.1016/S0003-2670\(01\)00924-2](https://doi.org/10.1016/S0003-2670(01)00924-2).
20. Zhong, X. et al. Factors influencing heavy metal availability and risk assessment of soils at typical metal mines in Eastern China. *J. Hazard. Mater.* **2020**, 400, 123289. <https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2020.123289>.
21. Vrînceanu, N.O. et al. Assessment of using bentonite, dolomite, natural zeolite and manure for the immobilization of heavy metals in a contaminated soil: The Copșa Mică case study (Romania). *Catena* **2019**, 176, 336–342. <https://doi.org/10.1016/j.catena.2019.01.015>.
22. Xing, W. et al. Effect of soluble phosphate and bentonite amendments on lead and cadmium bioavailability and bioaccessibility in a contaminated soil. *Sci. Total Environ.* **2023**, 900, 166370. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2023.166370>.
23. Que, W. et al. Appraising the effect of in-situ remediation of heavy metal contaminated sediment by biochar and activated carbon on Cu immobilization and microbial community. *Ecol. Eng.* **2019**, 127, 519–526. <https://doi.org/10.1016/j.ecoleng.2018.10.005>.
24. Zhirong, L.; Uddin, M.A.; Zhanxue, S. FT-IR and XRD analysis of natural Na-bentonite and Cu(II)-loaded Na-bentonite. *Spectrochim. Acta, Part A* **2011**, 79(5), 1013–1016. <https://doi.org/10.1016/j.saa.2011.04.013>.
25. Ahmed, W. et al. Simultaneous immobilization of lead and arsenic and improved phosphorus availability in contaminated soil using biochar composite modified with hydroxyapatite and oxidation: Findings from a pot experiment. *Environ. Res.* **2023**, 235, 116640. <https://doi.org/10.1016/j.envres.2023.116640>.
26. Hong, C. et al. Simultaneous and long-term effective immobilization of lead, cadmium and arsenic in multi-contaminated soil by ferrihydrite-supported animal-derived biochar. *J. Environ. Chem. Eng.* **2023**, 11(3), 109989. <https://doi.org/10.1016/j.jece.2023.109989>.
27. Janeiro-Tato, I. et al. Goethite-based carbon foam nanocomposites for concurrently immobilizing arsenic and metals in polluted soils. *Chemosphere* **2022**, 301, 134645. <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2022.134645>.
28. Cao, P. et al. Mercapto propyltrimethoxysilane- and ferrous sulfate-modified nano-silica for immobilization of lead and cadmium as well as arsenic in heavy metal-contaminated soil. *Environ. Pollut.* **2020**, 266, 115152. <https://doi.org/10.1016/j.envpol.2020.115152>.

Comparing the effect of various amendments for Arsenic immobilization in contaminated soil

Nguyen Quoc Tuan^{1*}, Nguyen Hong Quan¹, Nguyen Thi Hai^{1,2}

¹ Faculty of Geology, Hanoi University of Science, Vietnam National University; nqt18@vnu.edu.vn; nguyenhongquan160198@gmail.com

² VNU Key Laboratory of Geo-environment and Climate change Response, University of Science, Vietnam National University, Hanoi; nguyenhai128@vnu.edu.vn

Abstract: The study compared the effects of three materials: bentonite, activated carbon, and their combination with an application rate of 2% on Arsenic (As) immobilization in contaminated soil. The As immobilization efficiency in soil was evaluated by the following methods: i) Synthetic Precipitation Leaching Procedure (SPLP), Toxicity Characteristic Leaching Procedure (TCLP), and extracted with 0.1M HCl solution to evaluate As leaching behaviour; and ii) Sequential Extraction to evaluate the fractions of As in soil. The results showed that the presence of materials help increase soil pH, and change the mobility of As

in soil. The As immobilization efficiency increased up to 52% in soil treated with combination of bentonite and activated carbon (BAC). The results also showed that As in exchangeable form were transformed into the immobile fraction in soil, especially for BAC treated soil. The study indicates that the combination of materials is highly effective in remediating contaminated soil, so further research needed to evaluate its effectiveness not only against As but also against other heavy metals and consider its impact on soil health.

Keywords: Arsenic; Bentonite; Activated carbon; Heavy metal immobilization in soil.