

磁性污泥生物炭的制备及对水溶液中As(III)的吸附性能研究

陈婉玲*, 成思怡, 周杰, 夏永丽, 贾瑞雪, 刘星雨, 付敦#

宿州学院资源与土木工程学院, 安徽 宿州

收稿日期: 2023年12月7日; 录用日期: 2024年1月23日; 发布日期: 2024年1月30日

摘要

以宿州市宿马园区污水处理厂含铁市政污泥为原料制备磁性污泥生物炭(MSB), 用于水中三价砷(As(III))的吸附去除。应用扫描电子显微镜(SEM), 磁性表征(VSM)和X射线衍射光谱(XRD)等技术探究MSB的物理化学性质; 研究了不同炭化温度, 吸附剂投加量, 溶液pH, 共存离子, 反应温度等因素对MSB吸附As(III)的影响。结果表明900°C条件下制备的泥生物炭(MSB900), 其中铁以 α -Fe⁰为主, 有强磁性。在最佳反应条件下(炭化温度900°C, 投加量为0.8 g/L, pH = 3, SO₄²⁻或Cl⁻共存, 反应温度35°C), MSB900对As(III)的最大吸附率为98.3%。以含铁市政污泥为原料制备的磁性污泥生物炭可以作为一种有效且低成本的As(III)吸附材料。

关键词

磁性污泥生物炭, 砷, 吸附, 影响因素

Preparation of Magnetic Sludge Biochar and Study on Its Adsorption Performance for As(III) in Aqueous Solutions

Wanling Chen*, Siyi Cheng, Jie Zhou, Yongli Xia, Ruixue Jia, Xingyu Liu, Dun Fu#

School of Resources and Civil Engineering, Suzhou University, Suzhou Anhui

Received: Dec. 7th, 2023; accepted: Jan. 23rd, 2024; published: Jan. 30th, 2024

*第一作者。

#通讯作者。

文章引用: 陈婉玲, 成思怡, 周杰, 夏永丽, 贾瑞雪, 刘星雨, 付敦. 磁性污泥生物炭的制备及对水溶液中 As(III)的吸附性能研究[J]. 自然科学, 2024, 12(1): 251-259. DOI: 10.12677/ojns.2024.121029

Abstract

Magnetic sludge biochar (MSB) was prepared using iron-containing municipal sludge from the Suma Park sewage treatment plant in Suzhou, Anhui province, as raw material for the adsorption of As(III) in aqueous solutions. Scanning electron microscopy (SEM), magnetic characterization (VSM), and X-ray diffraction spectroscopy (XRD) were used to investigate the physicochemical properties of MSB. The effects of different pyrolysis temperatures, adsorbent dosage, solution pH, coexisting ions, and reaction temperature on the adsorption of As(III) by MSB were studied. The results showed that the magnetic biochar (MSB900) prepared under the pyrolysis temperature of 900°C, in which iron was $\alpha\text{-Fe}^0$ is the main component with strong magnetism. Under the optimal reaction conditions (pyrolysis temperature of 900°C, dosage of 0.8 g/L, pH = 3, coexistence of SO_4^{2-} or Cl^- , reaction temperature of 35°C), the maximum adsorption efficiency of MSB900 for As(III) is 98.3%. Overall, magnetic sludge biochar (MSB900) prepared from iron-containing municipal sludge can serve as an effective and low-cost As(III) adsorption material.

Keywords

Magnetic Sludge Biochar, Arsenic, Adsorption, Influence Factor

Copyright © 2024 by author(s) and Hans Publishers Inc.

This work is licensed under the Creative Commons Attribution International License (CC BY 4.0).

<http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>



Open Access

1. 引言

随着自然释放或矿产开发,大量的砷(As)随主元素的释放逐渐进入环境,长期暴露于砷污染的水体或土壤环境,一定程度上会导致人体急性或慢性中毒[1] [2]。Rodriguez-Lado 等人预测中国有 1960 万人暴露于砷污染的饮用地下水[3]。中国地方性砷中毒分布调查显示内蒙古、山西等地仍为我国饮水型砷中毒重灾区。此外,陕西也已成为我国乃至世界典型的生活燃煤型砷中毒区[4]。因此,开展水体环境中砷污染修复工作迫在眉睫。

目前,对于含砷废水广泛使用的修复方法是吸附,而广泛采用的吸附剂有改性生物炭[5] [6]、天然及改性矿物[7] [8]等。比如董双快等[9]采用 $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 改性棉花秸秆生物炭应用于水体砷的吸附,生物炭改性后缩短了砷的吸附平衡时间,吸附量达 7.63 mg/g,远高于未改性生物炭的吸附量(4.33 mg/g),且随着 Fe 含量的提高,吸附量显著增加。尽管吸附被证实是一种有效的砷去除方法,但吸附完成后,吸附剂回收是吸附法应用的难题之一。鉴于此,磁性生物炭的制备与应用越来越受到研究者的极大关注。Zhang 等[10]制备了 $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$ 改性的棉白杨木生物炭(生物炭/ $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$)于水体 As(V)的去除,研究结果发现改性生物炭具有优异的铁磁性能,负载 As(V)的生物炭/ $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$ 复合材料可以很容易地从溶液中分离出来。因此,猜测以含铁污泥为原料制备磁性生物炭可以作为一种低廉的吸附剂材料用于水中砷污染的修复,并且含铁污泥固体废弃物作为吸附剂原料,既环境友好、可持续,又因其强磁性、高表界面活性以及操作简单等优点,具有广阔的应用前景。

本研究以安徽省宿州市宿马园区污水处理厂的含铁污泥为原料制备磁性污泥生物炭(MSB),利用扫描电子显微镜(SEM),磁滞回线测试(VSM)和 X 射线衍射技术(XRD)探究 MSB 的理化性质;并研究了炭

化温度, MSB 投加量, 溶液 pH, 共存离子和反应温度等对 MSB 吸附水中 As(III)的影响, 以期为水体 As(III)修复提供理论依据。

2. 材料与方 法

2.1. 试剂与仪器

浓盐酸、硼氢化钾、氢氧化钠、硫脲、抗坏血酸、氯化钾、硝酸钠、硫酸钠、氯化钠、碳酸钠、磷酸钾等试剂均为分析纯(AR 级), 购自上海泰坦科技股份有限公司购得。As(III)标准溶液买自国家有色金属及电子材料分析测试中心; 试验用水为超纯水。

单温区开启式真空管式炉(OTF-1200XΦ80, 合肥科晶); 电热恒温鼓风干燥箱(DHG-9146A, 上海精宏); 摇床(上海知楚); 磁力搅拌器(LC-DMS-Pro, 上海力辰); 分析天平(FA2004, 上海力辰); 原子荧光光谱仪(AF-60, 北京吉天)。

2.2. 实验材料的制备及表征

含铁市政污泥取自安徽省宿州市宿马园区污水处理厂。将干燥后的市政污泥置于充满氮气的管式炉中烧制。炭化温度分别设置为 300℃, 400℃, 500℃, 600℃, 700℃, 800℃, 900℃七个不同的温度, 炭化时间为 2 h。炭化完成后将样品洗涤, 烘干, 冷却后破碎, 过 100 目筛, 得到粒径 < 0.15 mm 的磁性污泥生物炭, 标记为 MSBX (X 代表炭化温度, 即 300、400、500、600、700、800 和 900)。

磁性污泥生物炭表面形貌和元素组成利用扫描电子显微镜(TESCAN MIRA LMS, 捷克)检测; 磁滞回线采用振动样品磁强计(7404 型, LakeShore, 美国)进行分析; 材料物相利用 X 射线衍射仪(Rigaku SmartLab SE, 日本)分析。

2.3. 单因素吸附实验

2.3.1. 炭化温度的影响

利用控制单因素的实验方法探究不同因素对 MSB 吸附 As(III)的影响。准确称取 50 mg MSB 分别加入到 100 mL 装有 1 mg/L As(III)溶液(50 mL)的聚乙烯瓶中, 随后将上述聚乙烯瓶放入振荡箱(25℃, 200 rpm)中振荡 2 h。振荡结束后使用一次性注射器取样过 0.45 μm 微孔滤膜至 2 mL 离心管中待测。过滤后样品采用氢化发生 - 原子荧光光谱法测定[11] [12]。该方法的曲线方程为 $y = 115.2904 * x - 6.5240$, 相关系数 $R^2 = 0.9999$; 且计算出 As(III)的检出限为 0.09 μg/L, 加标回收率在 96.0%~114%之间, 方法可行。As(III)的吸附量(q_e , mg/g)和去除率(η)的计算如下[12]:

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

$$\eta(\%) = \frac{(C_0 - C_t)}{C_0} \times 100 \quad (2)$$

式中: C_0 —As(III)初始浓度, mg/L; C_t — t 时刻 As(III)浓度, mg/L; V —溶液体积; m —吸附材料的质量。

2.3.2. 投加量的影响

分别称取一定量的 MSB900 (质量浓度分别为 0.2、0.4、0.6、0.8、1.0、1.2、1.4 和 1.6 g/L)加入到 100 mL 装有 1 mg/L As(III)溶液(50 mL)的聚乙烯瓶中, 将上述聚乙烯瓶放入振荡箱(25℃, 200 rpm)中振荡 2 h。振荡结束后使用一次性注射器取样过 0.45 μm 微孔滤膜至 2 mL 离心管中待测。

2.3.3. 溶液 pH 的影响

分别称取 40 mg 的 MSB900 加入到 100 mL 装有 1 mg/L As(III)溶液(50 mL)的聚乙烯瓶中, 利用 0.1 mmol/L 的盐酸和氢氧化钠将上述混合溶液 pH 分别调至 3、4、5、6、7、8、9、10 和 11, 随后将上述聚乙烯瓶放入振荡箱(25°C, 200 rpm)中振荡 2 h。振荡结束后使用一次性注射器取样过 0.45 μm 微孔滤膜至 2 mL 离心管中待测。

2.3.4. 共存离子的影响

分别称取 40 mg 的 MSB900 加入到 100 mL 装有 1 mg/L As(III)溶液(50 mL)的聚乙烯瓶中, 分别加入 1 mmol/L 的 NO_3^- 、 SO_4^{2-} 、 Cl^- 、 CO_3^{2-} 和 PO_4^{3-} , 随后将上述聚乙烯瓶放入振荡箱(25°C, 200 rpm)中振荡 2 h。振荡结束后使用一次性注射器取样过 0.45 μm 微孔滤膜至 2 mL 离心管中待测。

2.3.5. 反应温度的影响

分别称取 40 mg 的 MSB900 加入到 100 mL 装有 1 mg/L As(III)溶液(50 mL)的聚乙烯瓶中, 随后将上述聚乙烯瓶放入振荡箱(200 rpm)中振荡 2 h, 反应温度分别设置为 5°C、15°C、25°C 和 35°C。振荡结束后使用一次性注射器取样过 0.45 μm 微孔滤膜至 2 mL 离心管中待测。

3. 结果与讨论

3.1. 炭化温度对 MSB 吸附 As(III)的影响

炭化温度对 MSB 吸附水中 As(III)的影响如图 1 所示。在 1 mg/L 的 As(III)初始浓度条件下, 当炭化温度介于 300°C~800°C 时, MSB 对 As(III)的吸附去除率仅为 10%左右。随着炭化温度升高到 900°C 时, MSB900 对 As(III)的吸附效率显著提升至 95.3%, 这可能由于在炭化温度在 900°C 时, MSB900 的物理化学性质发生的改变, 而这种改变有利于水体 As(III)的吸附。Fu 等[13]在前期研究发现随着炭化温度由 300°C 升高至 900°C, MSB 上的铁形态逐渐向零价铁演变。由图 2 可知, 在衍射角分别为 44.76°、65.02°、82.33° 时, 通过与标准卡片(PDF 2004)比对, 该材料的衍射峰与 $\alpha\text{-Fe}^0$ 标准衍射峰完全契合, 这证实了 MSB900 中的 Fe 以零价态存在。很多研究证实零价铁在水体重金属的去除上具有明显优势[14], 其中包括砷。

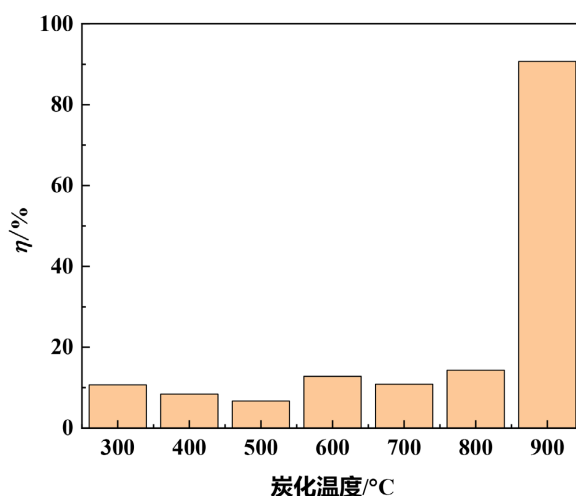


Figure 1. Effect of pyrolysis temperature on As(III) adsorption by MSBs

图 1. 炭化温度对 MSB 吸附去除水中 As(III)的影响

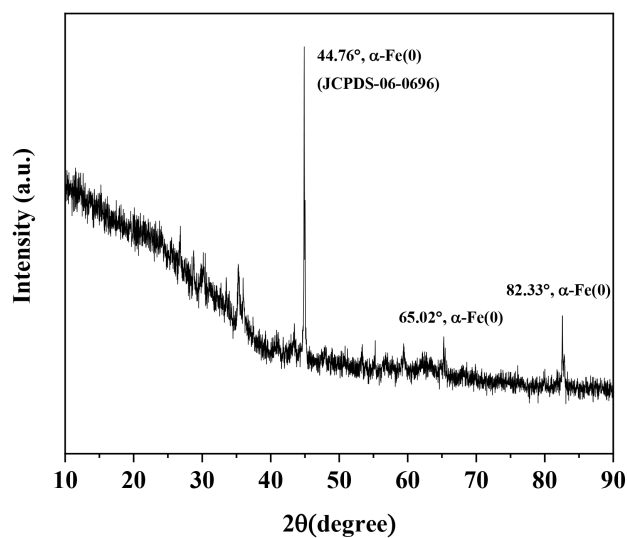


Figure 2. XRD pattern of MSB900

图 2. MSB900 的 XRD 图

由图 3 可知, MSB900 表面粗糙, 呈颗粒状, 主要由 Fe, C, O 等元素组成。此外, 为了说明 MSB900 的磁性, 采用 VSM 磁强计对 MSB900 的磁滞曲线进行了表征(图 4)。根据磁滞回线 MSB900 的磁饱和值(M_s)为 33.06 emu/g, 表明 MSB900 具有强磁性。

正是基于 900°C 条件下制备的 MSB900 具有强磁性和高表界面活性等优势, 因此在后续的实验中 MSB900 作为水体 As(III)的吸附材料。

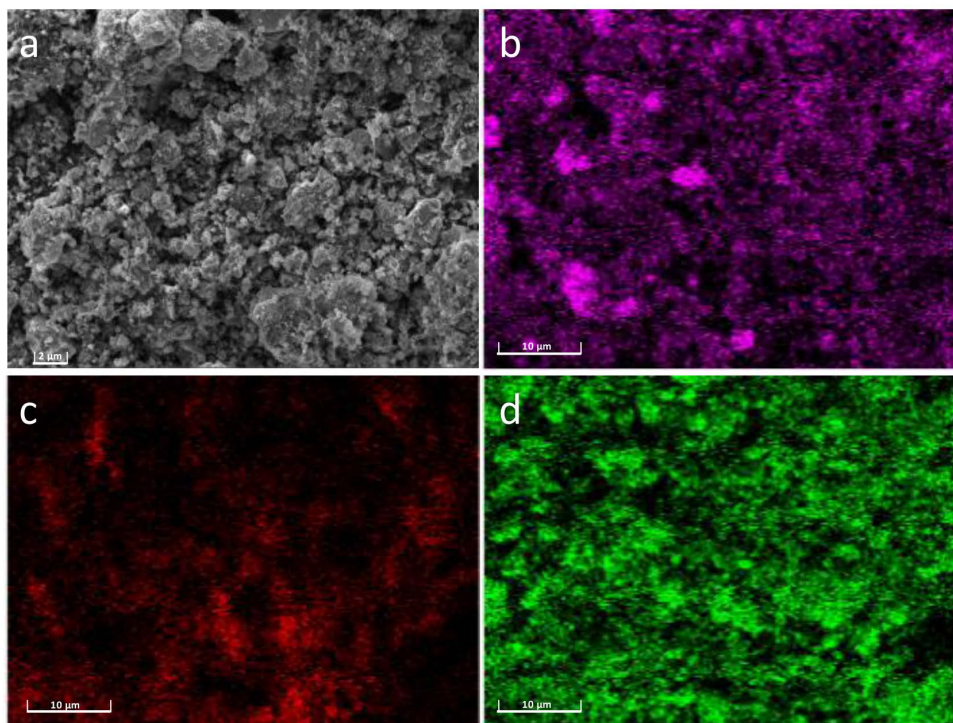


Figure 3. SEM image of MSB900 (a) and mapping images of Fe (b), C (c), and O (d)

图 3. MSB900 的 SEM(a)及 mapping 图(b: Fe; c: C; d: O)

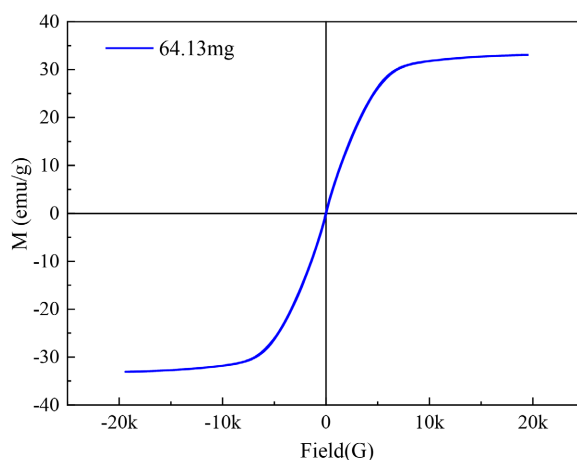


Figure 4. VSM image of MSB900
图 4. MSB900 的 VSM 图

3.2. MSB 投加量的影响

吸附剂投加量对水中 As(III) 吸附的影响如图 5 所示。当 MSB900 投加量从 0.2 g/L 增加到 0.8 g/L 时，MSB900 对 As(III) 的吸附率从 43.2% 提高到 91.3%；继续增加 MSB900 至 1.6 g/L 时，As(III) 吸附率不再增加。前者是由于在 As(III) 初始浓度一定的情况下，随着 MSB900 剂量的增加，As(III) 吸附位点不饱和，使得水中 As(III) 的吸附去除随着 MSB900 投加量的增加而增加[15]。后者则是由于吸附在 MSB900 表面的 As(III) 浓度与液相中的 As(III) 浓度达到了一种动态平衡，随着 MSB900 投加量的增加，水中 As(III) 的吸附去除不再发生改变。因此，最佳的 MSB900 投加量选定为 0.8 g/L。

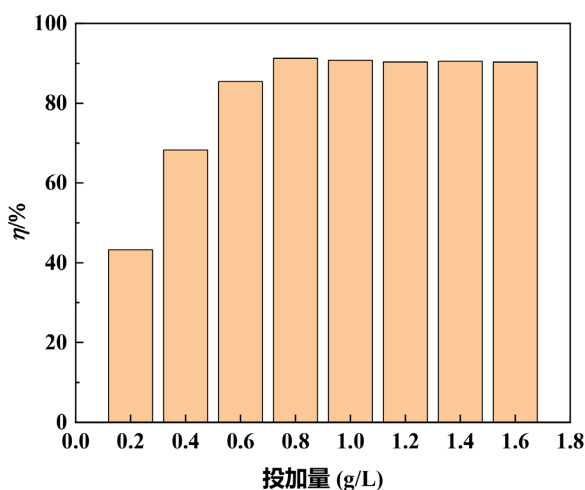


Figure 5. Effect of dosage on As(III) adsorption by MSB900
图 5. 投加量对 MSB900 吸附去除水中 As(III) 的影响

3.3. pH 的影响

在吸附过程中，溶液 pH 不仅影响吸附质的电离程度和形态，还影响吸附剂表面的电荷性[13] [16]。溶液 pH 对 MSB900 吸附 As(III) 的影响如图 6 所示。当 pH 值为 3 时，As(III) 去除率最高，达到 95.3%。pH 值在 4~10 之间，As(III) 去除率变化不大，介于 35%~45%；当 pH 值升高到 11 时，As(III) 去除率继续下降，

至 19%。以上结果表明在强酸性条件下 As(III)去除率要高于强碱性环境,这是由于在 pH 介于 0~9 范围内, As(III)主要以不带电的 H_3AsO_3 形式存在,而在 10~14 范围内主要以 H_2AsO_3^- 、 HAsO_3^{2-} 、 AsO_3^{3-} 形式存在,随着 pH 值的升高,MSB900 表面羟基质子化形成带正电的 OH^{2+} 逐渐去质子化而带负电,其对 As(III)的吸附作用也由静电吸引变为静电斥力[17]。

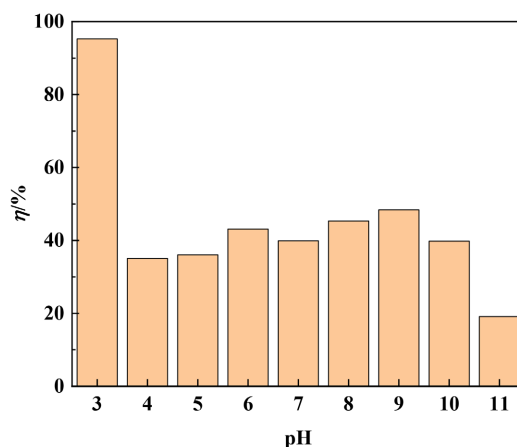


Figure 6. Effect of pH on As(III) adsorption by MSB900

图 6. pH 值对 MSB900 吸附水中 As(III)的影响

3.4. 共存离子的影响

已有研究表明,共存离子也是决定吸附剂去除污染物效果的重要参数[18]。图 7 为共存离子对 MSB900 吸附 As(III)效果的影响。在 SO_4^{2-} 和 Cl^- 共存条件下,MSB900 对 As(III)的吸附率分别为 99.2% 和 99.3%,说明 SO_4^{2-} 和 Cl^- 对 MSB900 吸附 As(III)有一定的促进作用。同时在 NO_3^- 共存条件下,MSB900 对 As(III)的吸附率影响不大。相反,在 CO_3^{2-} 和 PO_4^{3-} 共存条件下,MSB900 对 As(III)的吸附明显收到抑制,呈现出 $\text{PO}_4^{3-} > \text{CO}_3^{2-}$ 的抑制趋势。类似地,Fu 等[19]在研究纳米铁负载碳纤维复合材料($\text{Fe}@C$)去除水中 As(III)的研究中同样发现 PO_4^{3-} 离子具有明显的抑制作用,这是由于 P 与 As 是同一主族元素, PO_4^{3-} 与砷物种具有类似的四面体结构,极易与 As(III)产生竞争吸附[20]。

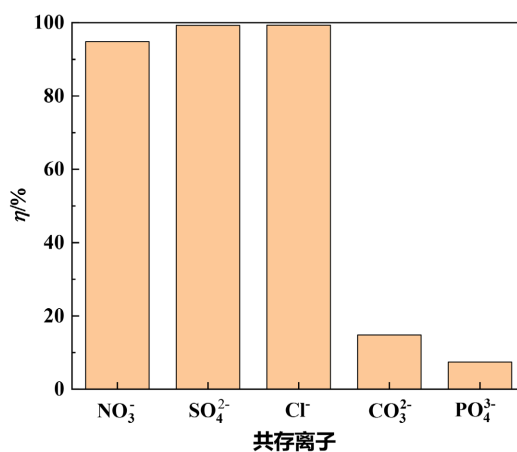


Figure 7. Effect of coexisting ions on As(III) adsorption by MSB900

图 7. 共存离子对 MSB900 吸附 As(III)的影响

3.5. 反应温度的影响

为了明确反应温度对 MSB900 吸附水中 As(III)的影响, 探究了反应温度在 5℃、15℃、25℃和 35℃条件下 MSB900 对 As(III)的吸附率, 结果如图 8 所示。随着反应温度由 5℃升高到 35℃, MSB900 对水中 As(III)的吸附率逐渐升高。在 35℃时, As(III)的吸附率达到最大, 为 98.3%。As(III)吸附率随温度升高而增加的原因可能与 MSB900 的表面性质或砷物种溶解度的变化有关[21]。Naravathna 等[22]在研究磁铁矿改性生物炭吸附 As(III)的过程中也发现 As(III)的吸附量随着反应温度的升高而增加。此外, 高温条件下获得的高 As(III)吸附率可能是由于溶液动力学活性的增加, 导致 As(III)与 MSB900 颗粒接触的速率增加, 从而促进了 MSB900 对 As(III)的吸附。

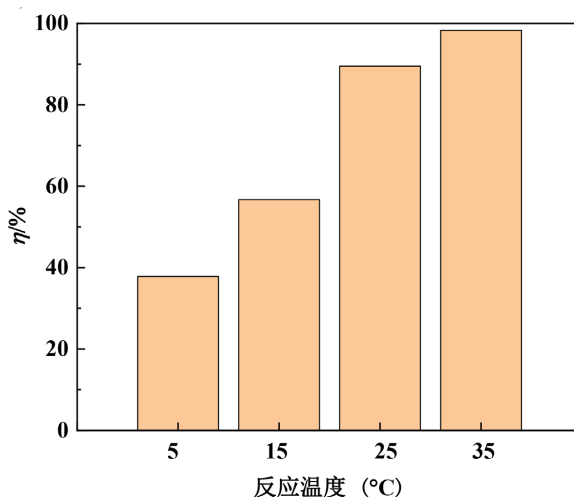


Figure 8. Effect of reaction temperature on As(III) adsorption by MSB900

图 8. 反应温度对 MSB900 吸附 As(III)的影响

4. 结论

(1) 以含铁市政污泥为原料通过一步炭化法(900℃)制备的磁性污泥生物炭(MSB900), 以 $\alpha\text{-Fe}^0$ 为主, 有强磁性, 在 1 mg/L 的 As(III)初始浓度下, MSB900 对 As(III)的吸附最佳反应条件为投加量 0.8 g/L, pH 3, SO_4^{2-} 或 Cl^- 共存, 反应温度 35℃, 此时最大吸附率为 98.3%。

(2) 相较于化学法制备生物炭负载纳米零价铁复合材料, 以含铁市政污泥为原料制备的磁性污泥生物炭具有原料易得、制备方法简单、易回收、除砷效果好等优点, 是一种有效且成本低廉的 As(III)吸附剂。

致 谢

作者感谢科学指南针平台对本研究材料表征的技术支持。

基金项目

本研究由宿州学院博士后科研启动项目(2021bsh002)、宿州学院大学生创新创业训练计划项目(KYLXYBXM22-082, YBXM23-033)提供经费支持。

参考文献

[1] Dradrach, A., Szopka, K. and Karczewska, A. (2019) Ecotoxicity of Pore Water in Soils Developed on Historical Ar-

- senic Mine Dumps: The effects of Forest Litter. *Ecotoxicity and Environmental Safety*, **181**, 202-213. <https://doi.org/10.1016/j.ecoenv.2019.05.079>
- [2] Ran, H., Guo, Z., Yi, L., *et al.* (2021) Pollution Characteristics and Source Identification of Soil Metal (Loid)s at an Abandoned Arsenic-Containing Mine, China. *Journal of Hazardous Materials*, **413**, Article ID: 125382. <https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2021.125382>
- [3] Rodriguez-Lado, L., Sun, G., Berg, M., *et al.* (2013) Groundwater Arsenic Contamination throughout China. *Science*, **341**, 866-868. <https://doi.org/10.1126/science.1237484>
- [4] 崔成宝, 李晓茜, 杨敏, 等. 陕西省燃煤污染型砷中毒病区防治效果评价[J]. 中国地方病防治, 2023, 38(4): 309-310+313.
- [5] 陈文敏, 谭志强, 张家泉, 等. 铁氧化物改性玉米芯生物炭对水体中砷的吸附特性研究[J]. 安全与环境工程, 2023, 30(5): 266-272+288.
- [6] 殷慧卿, 郭成, 胡筋, 等. 生物质基材料吸附水中砷离子的研究进展[J]. 化学工业与工程, 2022, 39(4): 71-82.
- [7] 田周炆, 郑倩, 杜晓丽, 等. 天然含铁锰矿对砷的高效去除性能与机制研究[J]. 环境工程技术学报, 2023, 13(6): 2143-2153.
- [8] 刘思言, 杨潇, 冯依涛, 等. 改性褐铁矿对砷吸附的强化机制和效果研究[J]. 环境科学学报, 2022, 42(3): 418-430.
- [9] 董双快, 贾宏涛, 吴福飞. 改性生物炭的光谱表征及砷的吸附效果研究[J]. 水资源与水工程学报, 2020, 31(5): 51-55+61.
- [10] Zhang, M., Gao, B., Varnosfaderani, S., *et al.* (2013) Preparation and Characterization of a Novel Magnetic Biochar for Arsenic Removal. *Bioresource Technology*, **130**, 457-462. <https://doi.org/10.1016/j.biortech.2012.11.132>
- [11] Fu, D., Kurniawan, T.A., Lin, L., *et al.* (2021) Arsenic Removal from Aqueous Solutions Using FeS₂. *Journal of Environmental Management*, **286**, Article ID: 112246. <https://doi.org/10.1016/j.jenvman.2021.112246>
- [12] 李丰, 付敦, 崔福田, 等. FeS₂/生物炭复合材料对 As(III)的吸附和氧化去除性能研究[J]. 地球与环境, 2021, 49(5): 578-585.
- [13] Fu, D., Kurniawan, T.A., Wang, Y.Q., *et al.* (2023) Applicability of Magnetic Biochar Derived from Fe-Enriched Sewage Sludge for Chromate Removal from Aqueous Solution. *Chemical Engineering Science*, **281**, Article ID: 119145. <https://doi.org/10.1016/j.ces.2023.119145>
- [14] Yin, L., Liu, L., Lin, S., *et al.* (2022) Synthesis and Characterization of Nanoscale Zero-Valent Iron (nZVI) as an Adsorbent for the Simultaneous Removal of As(III) and As(V) from Groundwater. *Journal of Water Process Engineering*, **47**, Article ID: 102677. <https://doi.org/10.1016/j.jwpe.2022.102677>
- [15] 嵇梦圆, 胡逸文, 梁程, 等. 农林废弃物基生物炭对重金属铅和镉的吸附特性[J]. 生态与农村环境学报, 2020, 36(1): 106-114.
- [16] Deng, Y., Li, M., Zhang, Z., *et al.* (2021) Comparative Study on Characteristics and Mechanism of Phosphate Adsorption on Mg/Al Modified Biochar. *Journal of Environmental Chemical Engineering*, **9**, Article ID: 105079. <https://doi.org/10.1016/j.jece.2021.105079>
- [17] 黄智研, 郑俊, 马雅倩, 等. 原位铁氧化物载铁活性炭的制备及其对水中 As(III)的去除性能[J]. 环境工程学报, 2022, 16(4): 1154-1164.
- [18] 于洁璇. 埃洛石基磁性复合材料制备及其对水中砷吸附性能研究[D]: [硕士学位论文]. 北京: 华北电力大学, 2022 .
- [19] Fu, D., Kurniawan, T.A., Gui, H., *et al.* (2022) Treatment of As(III)-Laden Contaminated Water Using Iron-Coated Carbon Fiber. *Materials*, **15**, Article 4365. <https://doi.org/10.3390/ma15124365>
- [20] Wei, Y., Wei, S., Liu, C., *et al.* (2019) Efficient Removal of Arsenic from Groundwater Using Iron Oxide Nanoneedle Array-Decorated Biochar Fibers with High Fe Utilization and Fast Adsorption Kinetics. *Water Research*, **167**, Article ID: 115107. <https://doi.org/10.1016/j.watres.2019.115107>
- [21] Shipley, H.J., Yean, S., Kan, A.T., *et al.* (2009) Adsorption of Arsenic to Magnetite Nanoparticles: Effect of Particle Concentration, pH, Ionic Strength, and Temperature. *Environmental Toxicology and Chemistry*, **28**, 509-515. <https://doi.org/10.1897/08-155.1>
- [22] Navarathna, C.M., Karunanayake, A.G., Gunatilake, S.R., *et al.* (2019) Removal of Arsenic (III) from Water Using Magnetite Precipitated onto Douglas Fir Biochar. *Journal of Environmental Management*, **250**, Article ID: 109429. <https://doi.org/10.1016/j.jenvman.2019.109429>