Archive of SID

مطالعه منشاء آلودگی نیترات در سفره آب زیرزمینی شهری شیراز با استفاده از ایزوتوپهای پایدار نیتروژن و اکسیژن

هاله امیری[1]، محمد زارع[2]

1 و 2- **دانشجوی دکتری هیدروژئولوژی، دانشیار گروه آبشناسی- بخش علوم زمین دانشگاه شیراز**

Amiri.haleh@gmail.com

خلاصه

جهت ارزیابی منشاء آلودگی نیترات آب زیرزمینی در دشت آبرفتی شیراز 35 چاه بهره برداری و پیزومتر واقع در مناطق کشاورزی، مسکونی و صنعتی انتخاب و طی دو دوره نمونه برداری در طی سالهای آبی 1390-1389 و 1391-1390 کلیه پارامترهای فیزیکو_شیمیایی، غلظت یونهای اصلی و یون نیترات و ایزوتوپهای پایدار $\delta^{15}N$ و $\delta^{18}O$ نیترات اندازه گیری گردید. بالاترین مقادیر نیترات مربوط به نواحی کشاورزی سپس مناطق مسکونی و تا حدودی مناطق صنعتی میباشد. مقادیر $\delta^{15}N$ به ترتیب در فصول تر و خشک بین 3/9+ تا 12/5+‰ و 9/2+ تا 22/5+‰ و مقادیر $\delta^{18}O$ نیز به ترتیب در طی این دو فصل بین 1/6+ تا 5/8+‰ و 4/1+ تا 19/5+‰ متغیر بوده که افزایش غنی شدگی ایزوتوپی در فصل خشک ناشی از میزان تغذیه کمتر توسط بارش و افزایش جدایش ایزوتوپی میباشد. با استفاده از روش ایزوتوپ دوگانه نیتروژن و اکسیژن، نیترات با منشاء فاضلاب و کود حیوانی در منطقه به عنوان منشاء غالب بوده و اختلاط آن با سایر منشاء های آلودگی نیترات وجود دارد. عامل اصلی غنی شدگی ایزوتوپهای مذکور و عامل طبیعی کاهش غلظت نیترات، پدیده نیترات زدایی(Denitrification) میباشد. احتمال وجود چندین منشاء در ایجاد آلودگی نیترات آب زیرزمینی دشت شیراز با توجه به فقدان رابطه مشخص بین $\delta^{15}N$ و غلظت نیترات نمونه ها در فصول مختلف منطقی است. برای اطمینان از رخداد پدیده نیترات زدایی وکنترل دقیق آلودگی در سفره آبرفتی شیراز، انجام عملیات پایش و اندازه گیری میزان ایزوتوپ پایدار اکسیژن و نیتروژن موجود در نیترات آب زیرزمینی در درازمدت امری ضروری به نظر میرسد.

کلمات کلیدی: آلودگی ، آب زیرزمینی، نیترات، ایزوتوپ پایدار، نیترات زدایی

1. مقدمه

در بسیاری از کشورها آب زیرزمینی منشاء اصلی تأمین آب آشامیدنی میباشد. از طرفی این منابع تحت تأثیر آلاینده های مختلف میباشند. بررسی نوع و حدود آلودگی آبهای زیرزمینی بسیار با اهمیت میباشد. یکی از مهمترین آلاینده ها نیترات و ترکیبات حاصل از آن میباشد. غلظتهای بالای نیترات در آب زیرزمینی یک تهدید جدی برای کیفیت منابع آب زیرزمینی و نتیجتاً برای سلامت عمومی است. شهرنشینی سبب ایجاد بسیاری تغییرات در سفره های آب زیرزمینی واقع در زیر شهرها میگردد. در نواحی شهری آلودگی نیترات در آب زیرزمینی که عمدتا ناشی از فعالیتهای انسانی از جمله فاضلابهای خانگی، استفاده از کودهای شیمیایی نیتراته و فضولات حیوانی در کشاورزی و همچنین فعالیتهای صنعتی می باشد، به یک موضوع زیست محیطی در سراسر جهان تبدیل شده است(Camargo and Alonso 2006). ماکزیمم حد مجاز نیترات در آب آشامیدنی بر اساس استانداردهای جهانی، 10 میلی گرم بر لیتر نیتروژن(حدود 45 میلی گرم بر لیتر نیترات) میباشد. به منظور توسعه مدیریت جهت حفظ و کنترل کیفیت آب، تعیین منشاء های مختلف آلودگی نیترات و درک فرایندهای تاثیرگذار بر روی غلظت نیترات ضروری میباشد(Kendall,1998). تکنیکهای پایش و اندازه گیریهای ایزوتوپی میتواند در تشخیص منشاءهای مختلف آلودگی نیترات موثر باشد. اندازه گیری ایزوتوپ نیتروژن در نیترات محلول در آب یک روش مفید در تعیین منشاء نیترات در آب زیرزمینی میباشد(Feast et al, 1998;Kreitler, 1979; Wells & Krothe, 1989). میزان $\delta^{15}N$ در کود شیمیایی بین 7- تا 5+‰، نیتروژن ارگانیکی خاک بین3- تا 8+ ‰ و در نیتروژن با منشاء فضولات انسانی و حیوانی از 7+ تا 25+‰ متغیر میباشد(Kendall,1998). با توجه به اینکه ایزوتوپ نیتروژن به تنهایی قادر به تفکیک برخی از منشاء های آلودگی نیترات نمیباشد بسیاری از محققان

www.SID.ir

Archive of SID

از جمله Bottcher et al. (1990) و Aravena & Robertson(1998) از تکنیک ایزوتوپ دوگانه (بکارگیری ایزوتوپ نیتروژن به همراه ایزوتوپ اکسیژن موجود در نیترات) استفاده کردند.

سفره آب زیرزمینی شیراز در زیر شهر شیراز واقع گردیده است. شهرنشینی، فعالیتهای صنعتی و کشاورزی در این شهر بطور پیوسته انجام میگیرد. نیترات از جمله مهم ترین آلودگیهای آب زیرزمینی ناشی از این فعالیتها میباشد. در شرایطی که بخشی از آب آشامیدنی شهر، از سفره های کارستی اطراف دشت شیراز تأمین میشود، پایین افتادن سطح آب در این سفره ها در سالیان اخیر سبب افزایش انتقال آب آلوده دشت (سفره آبرفتی) به آنها گردیده است، لذا بررسی حدود و منشاء آلودگی نیترات امری ضروری تلقی میگردد. هدف از این مطالعه بررسی آلودگی نیترات در آبخوان دشت شیراز و تعیین منشاء آلودگی نیترات آب زیرزمینی با استفاده از ایزوتوپ های پایدار ^{15}N و ^{18}O موجود در یون نیترات به منظور مدیریت وکنترل آلودگی نیترات میباشد.

2. زمین شناسی و هیدروژئولوژی محدوده مطالعاتی

محدوده دشت شیراز واقع در بخش شهری و مسکونی از حوضه آبریز دریاچه مهارلو می باشد. این محدوده بین ′30 ° 29 تا ′40 ° 29 عرض شمالی و ′30 ° 52 تا ′45 ° 52 طول شرقی واقع شده است. ارتفاع متوسط دشت شیراز از سطح دریا، 1540 متر می باشد. مساحت این دشت تقریبا 988 کیلومتر می باشد، که بیش از 50% آنرا محدوده شهری فرا گرفته است، که چاههای مورد مطالعه عمدتا در بافت شهری واقع شده اند.

دشت شیراز از دو نوع سفره آهکی و آبرفتی تشکیل گردیده است، سفره آبرفتی در محدوده مرکزی دشت و سفره آهکی در حاشیه شمال، شمال غرب، جنوب و جنوب غرب واقع شده است. محدوده مورد مطالعه شامل رسوبات آبرفتی دوران حاضر در کف دشت و سازندهای آهکی در ارتفاعات حاشیه ای دشت می باشد که این سازندها در تاقدیس های اطراف دشت شیراز رخنمون دارند(شکل شماره 1). تاقدیس های باباکوهی و کفترک در شمال، دراک در غرب و سبزپوشان در جنوب دشت شیراز واقع شده اند. ارتفاعات آهکی دشت شیراز از جنس آهکهای دوره میوسن و سنگهای متامورفیک کامبرین و تریاس و آهکهای ماسه دار دوره الیگوسن میباشد. آبرفتهای تشکیل دهنده دشت از سمت غرب به شرق ریزتر شده و نهایتا در جنوب شرقی و اطراف دریاچه مهارلو به صورت خاک رسی ظاهر میگردد. سفره آب زیرزمینی شیراز از نوع آزاد بوده و جهت جریان عمومی آب زیرزمینی در دشت شیراز هم جهت با شیب عمومی توپوگرافی منطقه و از شمال غرب دشت به طرف جنوب شرقی به طرف دریاچه مهارلو می باشد.

در سالهای اخیر با توجه به پایین افتادن سطح آب در آبخوان کارستی نواحی شمالی، جهت جریان از آبرفت به طرف این آبخوان کارستی متمایل شده است. مهم‌ترین رودخانه‌های واقع در محدوده مطالعاتی شیراز خشک و چناراهدار هستند. در دشت شیراز ارتباط هیدرولیکی بین آبهای زیرزمینی و رودخانه خشک وجود نداشته و شیب هیدرولیکی در قسمت شرقی دشت کمتر از قسمت‌های مرکزی و غربی است. عمق سطح آب در قسمت غربی بیشتر و با نزدیکی به دریاچه مهارلو در شرق، عمق سطح آب به کمتر از 3 متر می‌رسد. به طور کلی شیراز دارای یک آب و هوای مدیترانه ای است، بدین معنی که بارندگی آن بیشتر در اواخر پاییز و در طول زمستان و اوایل بهار است و این ناحیه جزء مناطق نیمه خشک محسوب می شود. متوسط درجه حرارت در این منطقه در حدود 17/6سانتی گراد و متوسط بارندگی سالانه حدود 370 میلی متر است(کوچمشکیان 1375).

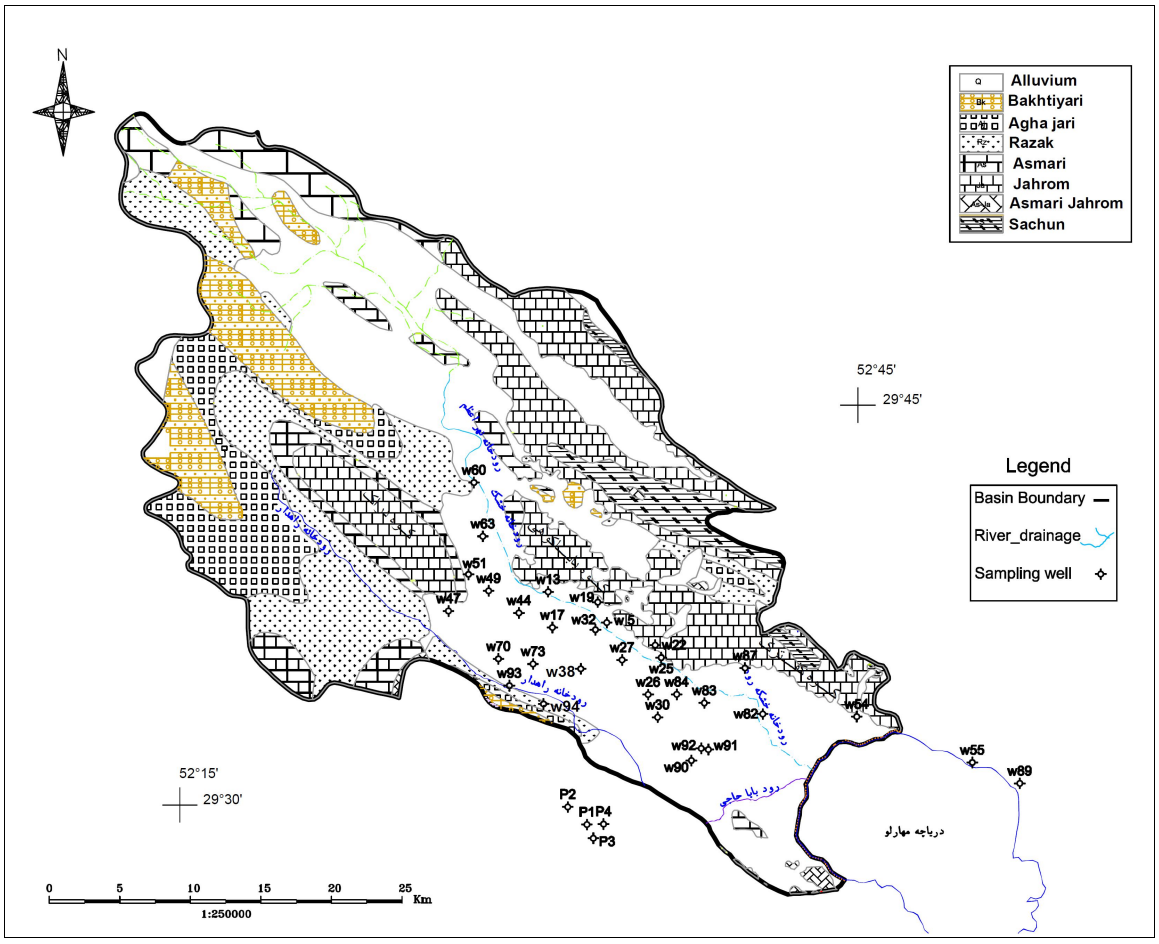
3. روش تحقیق

در این مطالعه 35 چاه بهره برداری و پیزومتر در دشت آبرفتی - شهری شیراز با توجه به نوع کاربری، جهت بررسی منشاء آلودگی نیترات انتخاب گردید بطوریکه 4 چاه کم عمق(W_{54} و W_{55} و W_{87} و W_{89}) در ناحیه شمال شرقی و شرق دشت به عنوان چاههای با کاربری کشاورزی، تعداد 4 پیزومتر (P_1 تا P_4) واقع در شهرک صنعتی در بخش جنوبی شهر به عنوان شاخص محدوده صنعتی و سایر چاههای کم عمیق تا عمیق نیز به عنوان چاههای واقع در مناطق مسکونی انتخاب گردید. طی دو دوره نمونه برداری از منابع مذکور در فصول تر و خشک در طی سالهای آبی 1390-1389 و 1391-1390 کلیه پارامترهای فیزیکو_شیمیایی شامل هدایت الکتریکی، اسیدیته، میزان اکسیژن محلول در آب و همچنین غلظت یونهای اصلی و یون نیترات اندازه گیری گردید بطوریکه میزان غلظت نیترات نمونه ها سریعا پس از انتقال به آزمایشگاه توسط دستگاه اسپکتروفتومتر Hach;DR-5000 و در شرایط UV با طول موج 220 نانومتر اندازه گیری گردید. جهت اندازه گیری ایزوتوپهای پایدار ^{15}N و$\delta^{18}O$ ، جمعا 58 نمونه آب از چاهها در فصول تر و خشک و همچنین نمونه ای از آب باران برداشت گردید. نمونه ها بلافاصله با فیلتر 0/45 μ m فیلتر گردیده و در ظروف استریل و تیره 120 میلی لیتری ریخته شدند و در جایی خنک و تاریک نگهداری و در کوتاه ترین زمان ممکن به آزمایشگاه SIGF دانشگاه تگزاس آمریکا ارسال گردید.

www.SID.ir

Archive of SID

اندازه گیری ایزوتوپهای مذکور، بر اساس روش نیترات زدا(Denitrifier Method) میباشد بطوریکه نیترات توسط باکتریهای نیترات زدا (Pseudomonas chlororaphis & Pseudomonas aureofaciens) به گاز NO_2 تبدیل و سپس میزان ایزوتوپ نیتروژن و اکسیژن موجود در یون نیترات اندازه گیری میشود(Casciotti et al., 2002). دستگاه مورد استفاده، Thermo Delta V isotope ratio mass spectrometer (بریمن -آلمان) میباشد.



شکل 1- نقشه زمین شناسی و موقعیت منابع آب منطقه مورد مطالعه

نرخ ایزوتوپ پایدار با علامت δ و در واحد یک در هزار (Permil ; ‰) نسبت به یک استاندارد مرجع بین المللی بیان میگردد. این استاندارد برای $\delta^{15}N$ ، N_2 اتمسفر و برای $\delta^{18}O$، استاندارد VSMOV میباشد بطوریکه:

$$\delta_{sample}(‰) = \left(\frac{R_{sample} - R_{standard}}{R_{standard}} \right) * 1000 \qquad (1)$$

جایی که R نسبت فراوانی ایزوتوپهای سنگین به سبک (N_{15}/N_{14} و O_{18}/O_{16}) نمونه و استاندارد میباشد.

4. نتایج و بحث

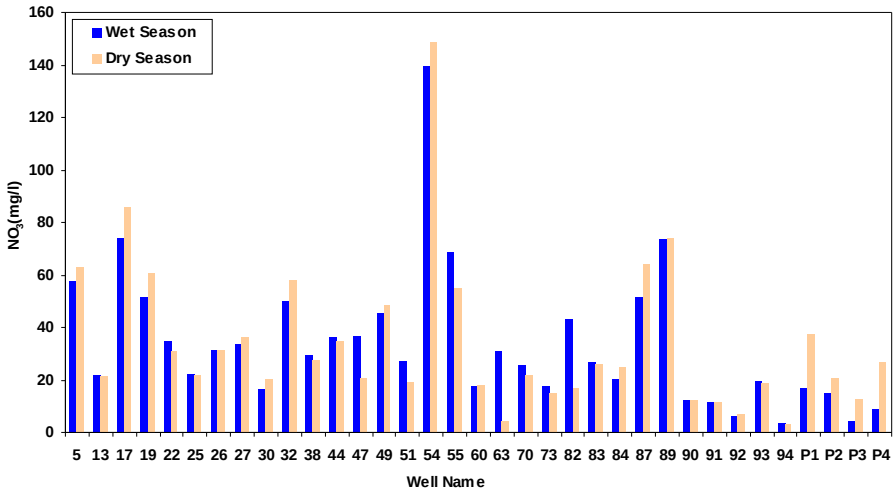
مقادیر غلظت یون نیترات اندازه گیری شده در هریک از چاهها در فصول تر وخشک در شکل شماره 2 ارایه گردیده است. رنج تغییرات غلظت نیترات بطور کلی بین 3 تا 150 میلی گرم بر لیتر میباشد. مقادیر بسیار بالای نیترات مربوط به چاههای واقع در ناحیه با فعالیت کشاورزی ناشی از بکارگیری کود

www.SID.ir

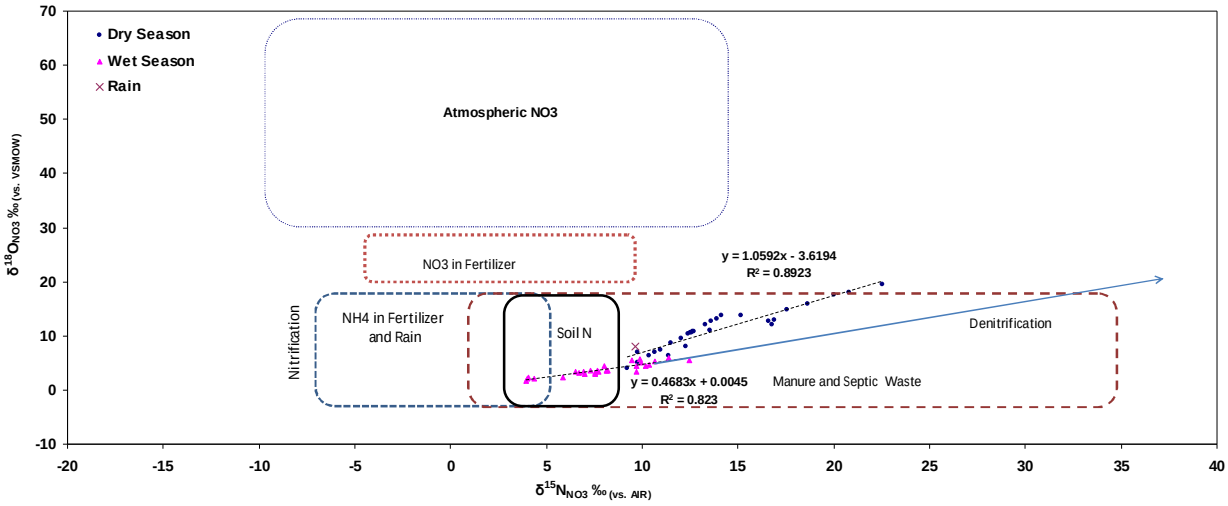
Archive of SID

های شیمیایی نیتراته میباشد. بعلاوه میزان غلظت نیترات چاهها در هر دو فصل تفاوت چندانی را نشان نمیدهد. همچنین توزیع فراوانی غلظت نیترات نشاندهنده این مطلب است که تنها 20% نمونه ها در فصل تر و 30% آنها در فصل خشک، میزان نیترات- نیتروژن پایین تر از 3 میلی گرم بر لیتر را دارا میباشند که به نظر میرسد توسط منابع انسانزاد آلوده نگردیده اند(Madison & Brunett, 1985) .

مقادیر $\delta^{15}N$ به ترتیب در فصول تر و خشک بین 3/9+ تا 12/5+‰ و 9/2+ تا 22/5+‰ و مقادیر $\delta^{18}O$ نیز به ترتیب در طی این دو فصل بین 1/6+ تا 5/8+‰ و 4/1+ تا 19/5+‰ میباشند. میزان ایزوتوپهای نیتروژن و اکسیژن در فصل خشک در مقایسه با فصل تر محدوده وسیع تر و عموما مقادیر بالاتری را دارا میباشند. رابطه بین ایزوتوپهای اکسیژن و نیتروژن نمونه های آب زیرزمینی برای فصول تر وخشک و نیز در نمونه بارش در قالب نمودار شماره 3 ارایه گردیده است. به کمک این شکل میتوان منابع مختلف آلودگی نیترات را از هم تفکیک کرد. با توجه به نمودار، نمونه ها اغلب در محدوده نیترات با منشاء فاضلاب یا کود حیوانی قرار گرفته اند. همچنین رابطه بین میزان $\delta^{15}N$ و $\delta^{18}O$ نسبت به میزان غلظت یون نیترات برای هر دو فصل ترسیم گردید و هیچ گونه ارتباط قابل توجهی بین غلظت نیترات با میزان ایزوتوپها در هیچ یک از فصول مشاهده نگردید(شکل شماره 4).



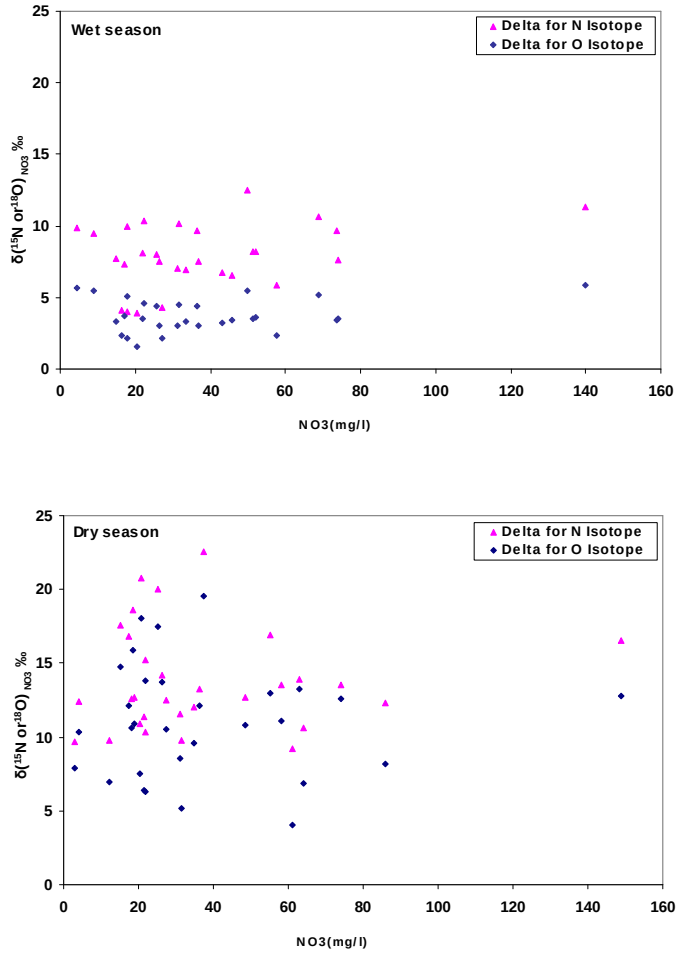
شکل 2 - نمودار ستونی مقادیر غلظت نیترات در دو فصل تر و خشک در هریک از چاهها



شکل 3 - رابطه ایزوتوپ پایدار ^{15}N و ^{18}O نمونه های آب در فصل تر و خشک و آب باران جهت تعیین منشاء های مختلف نیترات
(Kendall, 1998)

www.SID.ir

Archive of SID



شکل 4- نمودار مقادیر $\delta^{15}N$ و $\delta^{18}O$ نسبت به غلظت نیترات در نمونه های آب زیرزمینی در دو فصل تر و خشک

همانطور که در شکل 2 مشاهده میگردد بیشترین مقادیر نیترات مربوط به چاههای کم عمق مناطق کشاورزی است که به دلیل کاربرد کودهای شیمیایی نیترات دار و بالا بودن سطح آب زیرزمینی در ناحیه شرقی و شمال شرق، افزایش در غلظت نیترات آب زیرزمینی مشاهده میگردد. همچنین میزان نیترات در نواحی میانی دشت به دلیل تمرکز بیشتر مناطق مسکونی افزایش یافته است و در پیزومترهای واقع در منطقه شهرک صنعتی نیز تا حدودی بالا میباشند. پایین ترین مقادیر نیترات عموما متعلق به چاههای واقع در مناطق تغذیه ای و در بالادست دشت میباشد. همچنین میزان نیترات بین دو فصل تفاوت چندانی نشان نمیدهد و میتواند مؤید این موضوع باشد که بارش در دشت شیراز تأثیر غیرمستقیمی بر تغذیه آب زیرزمینی دارد. در نمودار شماره 3 عمده نمونه ها در محدوده نیترات با منشاء فاضلاب یا کود حیوانی قرار دارند که این امر ناشی از تمرکز مناطق مسکونی و فقدان شبکه جمع آوری فاضلاب در اکثر نقاط شهر و نیز کاربرد کودهای حیوانی در مناطق کشاورزی میباشد. نمونه هایی که در بخش هم پوشانی منشاء های مختلف نمودار مذکور قرار دارند نشانگر اختلاط نیترات ناشی از فاضلاب یا کود حیوانی با سایر منشاء ها هستند. در این نمودار ارتباط بسیار خوبی بین ایزوتوپ نیتروژن و اکسیژن نمونه ها در هر دو فصل دیده میشود. در فصل خشک مقادیر ایزوتوپی غنی تر از مقادیر مربوط به فصل تر میباشند. از طرفی نسبت $\delta^{18}O$ به $\delta^{15}N$ بین 0/5 تا 1 نشانگر رخداد پدیده نیترات زدایی یا(Denitrification) میباشد(Aravena & Robertson, 1998). این نسبت در هر دو فصل در همین رنج قرار دارد و احتمال وقوع این پدیده منطقی به نظر میرسد. این فرایند با کاهش میزان غلظت نیترات و غنی شدگی ایزوتوپ نیتروژن موجود در نیترات باقیمانده از فرایند نیتروژن زدایی همراه است. وجود این پدیده در منطقه به عنوان یک عامل طبیعی در کاهش

www.SID.ir

Archive of SID

آلودگی نیترات آب زیرزمینی عمل میکند. دلیل غنی شدگی ایزوتوپهای مذکور در نمونه های فصل خشک نیز میتواند ناشی از طولانی تر بودن زمان ماندگاری آب در خاک و افزایش جدایش ایزوتوپی و یا تغییر حالت نیترات به سایر مشتقات نیتروژن از طریق فرایندهای مختلف از جمله پدیده نیترات زدایی، همچنین میزان تغذیه کمتر و در نتیجه غنی شدگی بیشتر ایزوتوپها باشد درحالیکه کمتر بودن مقدار نسبت $\delta^{18}O$ به $\delta^{15}N$ در فصل تر منعکس کننده رقیق شدگی(Dilution) بیشتر و واکنش ایزوتوپی کمتر و در نتیجه غنی شدگی کمتر میباشد. همچنین پایین بودن میزان $\delta^{18}O$ نمونه باران ناشی از غلظت بسیار کم نیترات موجود در آن بوده که سبب گردیده موقعیت آن در شکل شماره 3 در خارج از محدوده نیترات اتمسفری قرار گیرد.

در نمودار شماره 4 رابطه بین $\delta^{15}N$ و غلظت نیترات در هیچ یک از فصول ارتباط قابل توجهی را نشان نمیدهد. این امر میتواند به دلیل پیچیدگی سفره آبرفتی شیراز ناشی از توسعه شهرنشینی، فعالیتهای کشاورزی و صنعتی و به عبارتی ناشی از عدم وجود یک منشاء واحد از آلودگی نیترات و اختلاط از چندین منشاء با مقادیر متفاوتی از ایزوتوپ نیتروژن باشد.

5. نتیجه گیری

بررسی آلودگی ناشی از نیترات آب زیرزمینی دشت شیراز به دلیل وجود سفره های کارستی تامین کننده آب آشامیدنی مجاور دشت و با توجه به توسعه شهرنشینی، انجام فعالیتهای کشاورزی و صنعتی در شهر شیراز ضروری میباشد. با بررسی داده های غلظت نیترات مشاهده گردید که بالاترین مقادیر نیترات آب زیرزمینی متعلق به نواحی کشاورزی ناشی از به کارگیری کود شیمیایی سپس نواحی با تمرکز بالای مناطق مسکونی و تا حدودی مناطق با کاربری صنعتی میباشد. با بکارگیری روش ایزوتوپ دوگانه نیتروژن و اکسیژن موجود در نیترات تفکیک منشاء های محتمل آلودگی نیترات در دشت شیراز میسر شد بطوریکه نیترات با منشاء فاضلاب و کود حیوانی به عنوان منشاء اصلی بوده و اختلاط آن با سایر منشاء های آلودگی نیترات محتمل میباشد. همچنین پدیده نیترات زدایی به عنوان عامل اصلی غنی شدگی ایزوتوپهای مذکور و عامل طبیعی کاهش غلظت نیترات در نظر گرفته میشود. تفاوت در میزان غنی شدگی در داده های ایزوتوپ$\delta^{15}N$ و ^{18}O نمونه های آب زیرزمینی در فصول تر وخشک حاکی از میزان تغذیه کمتر توسط بارش در فصول خشک و افزایش جدایش ایزوتوپی وغنی شدگی بیشتر ایزوتوپها نسبت به فصل تر میباشد. عدم وجود رابطه مشخص بین $\delta^{15}N$ و غلظت نیترات نمونه ها در فصول مختلف حاکی از احتمال وجود چندین منشاء در ایجاد آلودگی نیترات آب زیرزمینی است. جهت مدیریت و کنترل آلودگی می بایست با انجام عملیات پایش و اندازه گیری میزان ایزوتوپهای پایدار اکسیژن و نیتروژن موجود در نیترات آب زیرزمینی در درازمدت از رخداد پدیده نیترات زدایی اطمینان حاصل گردد که این امر به کنترل دقیق آلودگی در سفره آبرفتی شیراز کمک شایانی خواهد کرد.

6. مراجع

کوچشمکیان، مسعود.، (1375). "بررسی کیفیت نمک دریاچه مهارلو، بررسی و مدیریت زیست محیطی منابع آب و خاک مطالعه آلودگی ها و منابع آلوده کننده آب دشت شیراز". گزارش اول، جلد ششم، اداره کل حفاظت محیط زیست فارس.

Camargo, J. A.; Alonso, Á. (2006), Ecological and toxicological effects of inorganic nitrogen pollution in aquatic ecosystems: a global assessment. Environment International, 32, 831–849.

Kendall, C. 1998. Tracing nitrogen sources and cycling in catchment in Isotope tracers in catchment hydrology. Edited by C. Kendall and J.J. McDonnell. Elsevier, Amsterdam, the Netherlands, pp. 534–569

Feast, N.A., Hiscock, K.M., Dennis, P.F. and Andrews, J.N., 1998. Nitrogen isotope hydrochemistry and denitrification within the Chalk aquifer system of north Norfolk, UK. Journal of Hydrology, 211, 233–252

Kreitler, C.W., 1979. Nitrogen-isotope ratio studies of soils and groundwater nitrate from alluvial fan aquifers in Texas. Journal of Hydrology, 42, 147–170.

Wells, E.R. and Krothe, N.C., 1989. Seasonal fluctuation in $\delta^{15}N$ of groundwater nitrate in a mantled karst aquifer due to macropore transport of fertilizer-derived nitrate. Journal of Hydrology, 112, 191–201.

Böttcher, J., Strebel, O., Voerkelius, S. and Schmidt, H.L., 1990. Using isotope fractionation of nitrate-nitrogen and nitrate-oxygen for evaluation of microbial denitrification in a sandy aquifer. Journal of Hydrology, 114, 413–424.

Aravena, R., and Robertson W.D. (1998), Use of multiple isotope tracers to evaluate denitrification in ground water:study of nitrate from a large-flux septic system plume. Ground Water, vol. 36, no. 6, 975-982.

www.SID.ir

Archive of SID

Casciotti, K. L., D. M. Sigman, M. Hastings, J. K. Bohlke, and A. Hilkert. 2002. Measurement of the oxygen isotopic composition of nitrate in seawater and freshwater using the denitrifier method. *Analytical Chemistry* 74:4905.

Madison, R.J. and Brunett, J.O., 1985,Overview of the occurrence of nitrate in ground water of US, National Water Summary 1984 Hydrologic Events, Selected Water-Quality trends, and ground-Water Resources. U.S. Geological Survey Water- Supply Paper 2275, 93_105.

www.SID.ir