



## مطالعه حذف یون اورانیوم از محلول آبی با استفاده از زئولیت‌های طبیعی ایران

ریحانه، فائقی<sup>۱</sup>؛ عبدالرضا، نیلچی<sup>۲\*</sup>؛ زهرا، شیرینی یکتا<sup>۲</sup>

۱. دانشگاه آزاد اسلامی واحد علوم تحقیقات تهران، دانشکده فنی مهندسی، گروه مهندسی هسته ای

۲. پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، پژوهشکده چرخه سوخت هسته‌ای

### چکیده

یکی از روش‌های استخراج مواد رادیواکتیو از پسمان‌های هسته‌ای استفاده از جاذب‌های طبیعی است. با این رویکرد در این پروژه زئولیت‌های طبیعی مربوط به مناطق فیروزکوه و تبریز با استفاده از دستگاه‌های BET، XRD، FT-IR و XRF شناسایی شدند همچنین خواص تبادل یونی با محاسبه درصد جذب برای یون اورانیوم به روش ناپیوسته بررسی گردید. به همین منظور تأثیر متغیرهای غلظت اولیه، pH و زمان تماس فاز محلول و مبادله کننده بر میزان جذب بررسی و شرایط بهینه برای عملکرد مطلوب مبادله کننده برای جداسازی این یون تعیین گردید. نتایج نشان داد که زئولیت فیروزکوه دارای توانایی بالایی در جذب یون‌های اورانیوم از محلول آبی می‌باشد.

کلید واژه‌ها: زئولیت طبیعی، جذب، اورانیوم

### ۱ مقدمه

اورانیوم سنگین ترین فلز موجود در طبیعت با وزن مخصوص ۱۸/۹ گرم بر سانتی مترمکعب است. در بسیاری از موارد همانند آزمایش تسلیحات هسته‌ای، فعالیت‌های معدنکاری اورانیوم، پسماندهای تولید شده در صنایع هسته‌ای، استفاده از کودهای فسفوری حاوی اورانیوم در زمین‌های کشاورزی و هوازدگی کانیهای حاوی اورانیوم میتواند خاک‌ها را با مقادیر مختلف اورانیوم آلوده کند [۱]. اورانیوم میتواند در اثر آبشویی شسته شده و آب‌های زیر زمینی را آلوده کند [۲]. مقادیر بالای اورانیوم میتواند برای محیط زیست و بشر خطرات فراوانی ایجاد نمایند. اورانیوم به لحاظ شیمیایی میتواند خطرات فراوانی برای کلیه‌ها ایجاد نماید، همچنین اورانیوم باقیمانده در بدن از طریق ایجاد رادیواکتیویته میتواند منجر به افزایش خطر سرطان و مشکلات ژنتیکی شود [۳]. بنابراین کاهش و حذف اورانیوم موجود در آبهای آلوده در مدیریت پسمانداری هسته‌ای به لحاظ خطرات فراوان شناخته شده آن برای بشر اهمیت می‌یابد. مطالعات متعدد نشان داده‌اند که زئولیت طبیعی یا کلینوپتیلولایت قادر است برخی از رادیونوکلئوتیدها را از آبهای آلوده جذب نماید [۴]. زئولیت آلومینوسیلیکاتی کریستالی دارای ساختمان سه بعدی است. زئولیتها به طور گسترده به عنوان غربالهای مولکولی استفاده شده‌اند. مهم ترین کاربرد های آنها استفاده در کشاورزی و آلودگی زدایی بوسیله جداسازی، جذب، رهاسازی و تبادل یونی است [۵]. با توجه به وجود منابع عظیم زئولیت در ایران و بهره برداری از این منابع در مناطق مختلف ایران، این منابع میتوانند به طور گسترده ای در حذف آلاینده های زیست محیطی مورد استفاده قرار گیرند [۶].

## ۲ بخش تجربی

### ۱-۲ مواد شیمیایی و دستگاه‌ها

کلیه واکنشگرهای شیمیایی مورد استفاده با درجه خلوص تجزیه ای بوده و از شرکت‌های Aldrich یا Merck تهیه شده‌اند. برای شناسایی جاذب، تعیین ساختار کریستالی، تعیین مقدار و نوع عناصر، مساحت سطح ویژه و مقدار میانگین قطر حفرات به ترتیب از اسپکتروسکوپی مادون قرمز مدل Brucker-Vector ۲۲، دیفرکتومتر Philips مدل PW ۱۱۳۰، اسپکتروسکوپی فلورسانس اشعه X مدل Oxford ED ۲۰۰۰، تخلخل سنج Quantachrome مدل NovaWin ۲ استفاده شده است. تعیین غلظت عناصر با روش پلاسمای کوپل شده القائی، اسپکترومتر Perkin-Elmer ۵۵۰۰ و تنظیم pH با pH متر ۸۲۷ Metrohm انجام شده است.

### ۲-۲ روش تحقیق

به منظور انتخاب غلظت مناسب محلول برای حداکثر مقدار جذب یون اورانیوم به روی جاذب، ۱/۰ گرم از جاذب به همراه ۲۵ میلی لیتر از محلول حاوی ۲۰ میلی گرم بر لیتر از یون اورانیوم، برای مدت ۲ ساعت با سرعت ۱۵۰ دور در دقیقه در همزن ترموستاتیک قرار داده شد. پس از گذشت زمان تعادل غلظت اورانیوم در محلول‌ها با استفاده از روش (ICP) اندازه گیری و جذب توسط جاذب از رابطه ۱ محاسبه گردید.

$$\text{Adsorption\%} = \frac{C_i - C_f}{C_f} \times 100 \quad (1)$$

$C_i$ : غلظت گونه یونی مورد نظر در محلول قبل از تبادل یونیبر حسب میلی گرم بر لیتر

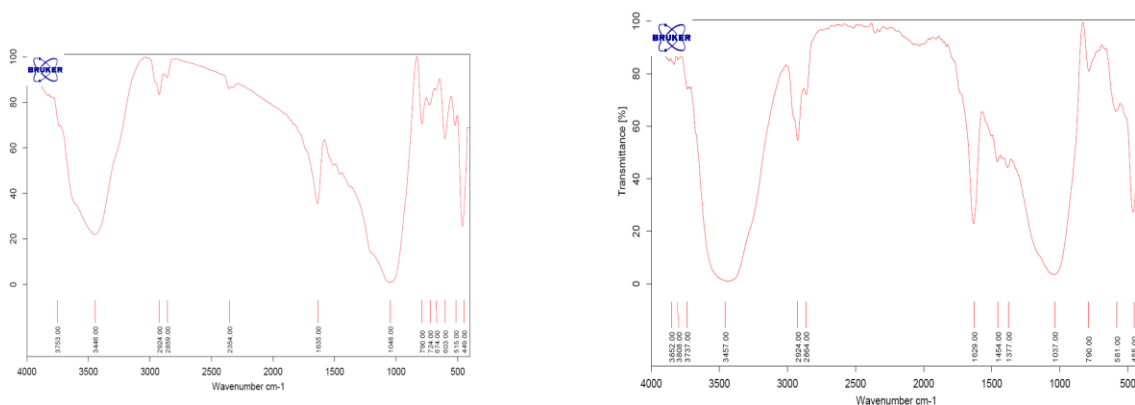
$C_f$ : غلظت همان گونه یونی پس از تبادل یونی و به تعادل رسیدن دو فاز بر حسب میلی گرم بر لیتر

## ۳ نتایج و بحث

### ۱-۳ شناسایی جاذب‌ها

در طیف های IR هر طیف را می توان به دو بخش تقسیم کرد. یک دسته از پیک ها مربوط به ارتعاشات داخلی واحد های اولیه، تتراهدرالهای  $\text{SiO}_4$  و  $\text{AlO}_4$  می باشند و دسته ای دیگر مربوط به اتصالات مابین تتراهدرال ها یا اصطلاحاً شبکه ثانویه ژئولیت می باشند. در طیف مادون قرمز این مبادله کننده که در شکل ۱ نشان داده شده است پیک پهن جذبی در ناحیه  $1300-950 \text{ cm}^{-1}$  و دومین باند قوی در  $500-400 \text{ cm}^{-1}$  به ترتیب مربوط به ارتعاشات کششی و خمشی T-O می باشند. دومین گروه فرکانس ها که به اتصالات بین تتراهدرال و شکل گیری واحدهای ثانویه مربوط می باشد در منطقه  $600-500 \text{ cm}^{-1}$  دیده می شود. این پیک مربوط به حضور حلقه دو تایی در ساختار شبکه ژئولیت می باشد که در تمام ژئولیت های با ساختار حلقه دو تایی ۶ عضوی (double-۶ ring) وجود دارد [۵]. پیک های  $3600-3400 \text{ cm}^{-1}$  و  $1700-1600 \text{ cm}^{-1}$  به ترتیب مربوط به

مولکولهای آب درون شبکه‌ای و گروه هیدروکسیل و ارتعاشات تغییر شکل مولکول های آب آزاد موجود در شبکه می باشند. الگوی پراش اشعه ایکس جاذب نیز در محدوده ۰-۷۰ = ۲θ اندازه گیری شد. پیک های تیز و بلند در این محدوده نشان می دهد که زئولیت دارای ساختمان کریستالی می باشد. سایز ذرات از رابطه Scherrer [۷] ،  $nm = K \cdot \lambda / W \cos \theta$  ، برابر با ۳۰ و ۳۸/۷ نانومتر به ترتیب برای فیروزکوه و تبریز محاسبه شده است. ضمناً مشخص شد که ترکیب ها به ترتیب از نوع کلینوپتیلولیت و فرورولیت می باشند. سطح تماس ماده های جاذب با استفاده از BET تعیین شد که مقدار مساحت سطح ویژه اندازه گیری شده از این روش برای زئولیت های فیروزکوه و تبریز به ترتیب برابر با ۲۸/۵۱ و ۴/۷۸ متر مربع بر گرم گزارش شد.



ب

الف

شکل ۱. طیف IR مربوط به زئولیت های (الف) فیروزکوه و (ب) تبریز

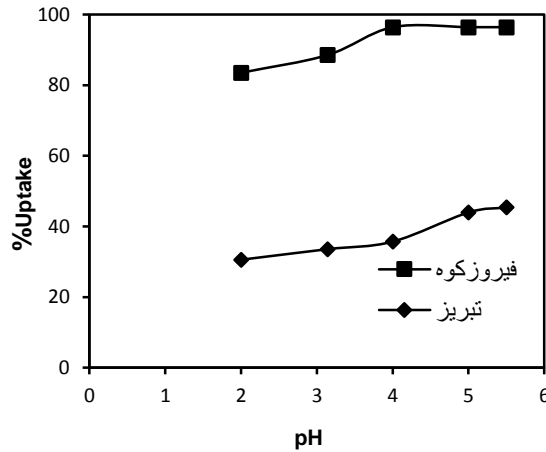
### ۲-۳ بررسی خواص جذبی جاذب ها

خواص جذبی این دو زئولیت برای یون اورانیوم به روش ناپیوسته مورد بررسی قرار گرفت. برای انتخاب pH مناسب محلول، ۱/۰ گرم از جاذب به همراه ۲۰ میلی لیتر از محلول حاوی ۵۰ میلی گرم بر لیتر از یون اورانیوم برای مدت ۲ ساعت در pH های مختلف از ۲ تا ۶ در همزن ترموستاتیک با سرعت ۱۵۰ دور در دقیقه قرار داده شد. پس از گذشت زمان تعادل غلظت اورانیوم در محلول با استفاده از روش (ICP) اندازه گیری و درصد جذب از رابطه ۱ محاسبه گردید. نتایج در شکل ۲ نشان دادند که با افزایش pH در محدوده ۲ تا ۶ میزان جذب یون اورانیوم افزایش یافته و در pH های ۴ و ۵/۵ به ترتیب با استفاده از زئولیت های فیروزکوه و تبریز به بالاترین سطح می رسد. همچنین زئولیت فیروزکوه نسبت به زئولیت تبریز دارای توانایی جذب بالایی برای یون های اورانیوم نشان می دهد که با توجه به سایز ذرات و مساحت سطح زئولیت فیروزکوه قابل توجهی می باشد.

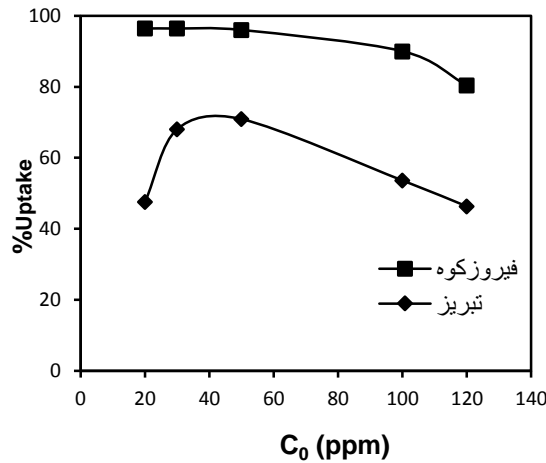
در pH های بهینه با افزایش غلظت یون اورانیوم در محیط آبی میزان جذب توسط جاذب فیروزکوه تا ۵۰ میلی گرم بر لیتر ثابت بوده و پس از آن میزان جذب کاهش می یابد اما برای تبریز تا ۵۰ میلی گرم بر لیتر افزایش و



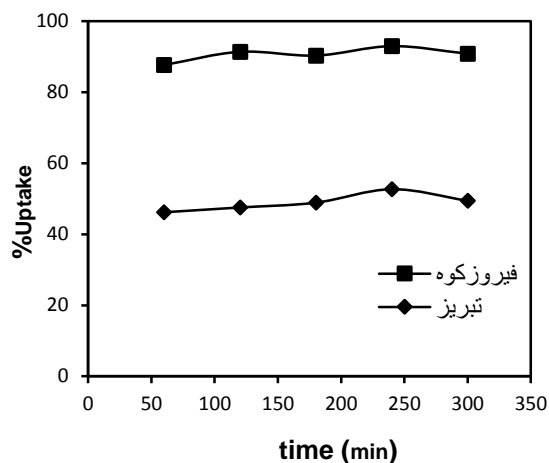
سپس کاهش می یابد. بنابراین میزان غلظت بهینه برای یون اورانیوم ۲۰ و ۵۰ میلی گرم بر لیتر به ترتیب با استفاده از ژئولیت فیروزکوه و تبریز مشاهده می شود (شکل ۳). وابستگی جذب یون اورانیوم نیز توسط جاذب ها با زمان بین ۶۰ تا ۳۰۰ دقیقه مورد مطالعه قرار گرفتند که نتایج در شکل ۴ نشان می دهد که سرعت تغییر جذب با افزایش زمان برای هر دو جاذب یکسان و کند می باشد که حداکثر میزان جذب برای یون اورانیوم در زمان های ۲۴۰ دقیقه اتفاق می افتد.



شکل ۲. بررسی اثر pH بر روی جذب یون اورانیوم بوسیله ژئولیت فیروزکوه و تبریز



شکل ۳. بررسی اثر غلظت بر روی یون اورانیوم بوسیله ژئولیت فیروزکوه و تبریز



شکل ۴. بررسی اثر زمان یون اورانیوم بوسیله زئولیت فیروزکوه و تبریز

## مراجع

- [۱] Schnug E.S., Haneklaus C., Schnier I.C. Scholten, Issues of natural radioactivity in phosphates. Communication in soil science and plant analysis, ۲۷ (۱۹۹۶) ۸۲۹-۸۴۱.
- [۲] Fellows R.J., Ainsworth C.C., J. Driver C., Cataldo D.A., Dynamics and transformations of radionuclides in soils and ecosystem health. Soil chemistry and ecosystem health. Soil Sci. Soc. Am. J, ۵۲ (۱۹۹۸) ۸۵-۱۱۲.
- [۳] Ribera D.F., Labort G., Tisnerat Narbonne J.F., Uranium in the environment: occurrence, transfer and biological effects. Reviews: environmental contamination, ۱۹۹۸.
- [۴] Lepperd D., Heavy metal sorption with clinoptilolite: alternatives for treating contaminated soil and water. Journal of mineral engineering ۱۴۶ (۱۹۹۶) ۵۳-۸۹.
- [۵] Kirk R.E., Othmer D.F., Kirk-Othmer Encyclopedia of chemical Technology. John Wiley, ۱۹۹۸.
- [۶] Rezaei M., Akhzari D., Keshavarzi A., Alaedin M.Z., Taheri V., Movahedi naeni S.A.R., Zeolite and ammonium effect on release and availability of potassium. In: Kazemian, H. (ed) First Iran International Zeolite Conference. Book of abstracts. Amir Kabir univ. press. Tehran. Iran. (In Persian), ۲۰۰۸, pp: ۵۱۰.
- [۷] Cullity B. D., Stock S. R., Elements of X-ray Diffraction , ۳rd ed, Prentice Hall , Upper Saddle River NJ, ۲۰۰۱, pp:۳۸۸.