



جذب توریم توسط کلینوپتیلولیت تابش دیده

رضا جعفری^۱، خدیجه رضایی رضایی ابراهیم سرایی^{۱*}، حسین فقیهیان^۲

^۱دانشگاه اصفهان، دانشکده علوم و فناوری‌های نوین، گروه مهندسی هسته‌ای

^۲دانشگاه آزاد اسلامی واحد شهرضا، دانشکده شیمی

چکیده

در این تحقیق، اثر تابش گاما بر ظرفیت تبادل کاتیونی کلینوپتیلولیت طبیعی و فرم‌های تعویض شده آن بررسی گردیده‌اند. نمونه‌ها تحت تابش گاما ۷۰ تا ۲ مگا گری قرار گرفتند و ظرفیت جذب توریم تحت شرایط مختلف با روش ICP-AES اندازه‌گیری شد. نتایج اندازه‌گیری شده نشان داد که تابش گاما تا دز ۲ مگا گری تأثیری بر ظرفیت جذب فرم‌های مختلف کلینوپتیلولیت ندارد. بیش‌ترین جذب مربوط به فرم کلسیم کلینوپتیلولیت بود که میزان جذب $198/9 \text{ mg/g}$ به‌دست آمد.

کلمات کلیدی: توریم- کلینوپتیلولیت- تابش گاما- مدل‌های فراندلیچ و لانگ‌مویر

مقدمه

از اوایل قرن بیستم و با توسعه‌ی تکنولوژی هسته‌ای، تحقیقات گسترده‌ای برای آمایش پسمان‌های رادیواکتیو از نقطه نظر آلودگی‌های زیست محیطی آغاز شده است. پسمان‌های رادیواکتیو با اکتیویته‌های متفاوت در راکتورهای هسته‌ای، فرآوری سوخت‌های مصرف شده، تهیه و تولید رادیوایزوتوپ‌ها و کاربرد آن‌ها در صنایع مختلف از جمله پزشکی، کشاورزی، هسته‌ای و آزمایشگاه‌های رادیوشیمی به میزان قابل توجهی به‌صورت جامد، مایع و گاز تولید می‌شوند. این پسمان‌ها با توجه به انرژی و نیمه عمر رادیونوکلیدهای موجود در آن‌ها می‌توانند خطر بالقوه‌ای برای محیط زیست باشند. بنابراین پسمان‌های مذکور باید طی فرایند خاصی مورد آمایش، کنترل و دفع نهایی قرار گیرند تا کمترین خطر را برای محیط زیست و موجودات داشته باشند [۱]. روش‌هایی برای حذف رادیوایزوتوپ‌ها از



پساب‌ها توسعه یافته است که شامل رسوب شیمیایی، تبادل یون، فرایندهای بیولوژیک، فرایندهای وابسته به غشا و روش‌های الکتروشیمیایی هستند [۲]. یکی از متداول‌ترین و پاک‌ترین روش‌ها، استفاده از جاذب‌های طبیعی از جمله زئولیت‌ها است. کلینوپتیلولیت یکی از رایج‌ترین زئولیت‌های طبیعی است که با فرمول $Na_6 [(AlO_2)_6 (SiO_2)_6] \cdot 24H_2O$ یا $(SiO_2)_6 \cdot 24H_2O$ شناخته می‌شود [۳-۴]. از جمله خواصی که باعث استفاده وسیع از زئولیت‌ها در این بخش‌ها شده می‌توان به نشت کم در محیط‌های آبی، پایداری حرارتی، تشعشعی و شیمیایی بالا، خواص مکانیکی خوب در برابر فشار و سایش، رسانایی گرمایی بالا، حجم نسبتاً کم و ظرفیت تبادل یونی قابل قبول، قابلیت بازیابی و در نهایت مقاومت بالا در برابر شرایط اسیدی اشاره کرد. زئولیت‌ها در تصفیه پساب‌ها برای حذف عناصر رادیواکتیو و سمی [۵] و برای آمایش پسمان‌های هسته‌ای نیز به کار برده شده است [۶-۸].

با توجه به این که کاربرد توریم به عنوان یکی از سوخت‌های قابل شکافت در راکتورهای آتی در صنایع هسته‌ای مطرح است و نیز غلظت بالای آن در پسمان‌های آبی باعث ایجاد سمیت می‌گردد، جدا سازی آن از اهمیت ویژه‌ای برخوردار است [۹-۱۰].

وجود منابع ارزان قیمت و عظیم زئولیتی (به‌ویژه کلینوپتیلولیت و بنتونیت) در مناطق مختلف ایران سبب شد تا در این پژوهش این نوع کانی برای جداسازی و حذف پسمان هسته‌ای از محلول‌های آبی بررسی گردد.

روش کار

کلینوپتیلولیت طبیعی از منطقه سمنان جمع‌آوری شد. نمونه خرد و آسیاب گردید، آنگاه با استفاده از الک‌های استاندارد در اندازه‌های ۷۵-۴۵ میکرون دانه‌بندی شد. نمونه با آب مقطر شستشو داده شد، در آون در دمای ۱۱۰ درجه سانتی‌گراد خشک شد. برای تهیه فرم‌های یکنواخت سدیمی، کلسیمی، پتاسیمی، نقره و سزیمی از چرخه‌ی آمونیومی استفاده شد. برای تهیه فرم تعویض‌شده هیدروژنی کلینوپتیلولیت، تقریباً ۲۰ گرم از نمونه خالص با ۱۰۰ میلی‌لیتر از محلول ۱ مولار NH_4NO_3 در دمای ۶۰ درجه سانتی‌گراد به هم زده شد. نمونه روی صافی جدا



شده با آب مقطر شستشو داده شد و در آون در دمای ۱۱۰ درجه‌ی سانتی‌گراد خشک شد. نمونه‌ی حاصل فرم آمونیومی کلینوپتیلولیت است که آن را به صورت Clino-NH_4^+ نمایش می‌دهیم. Clino-NH_4^+ در کوره‌ی الکتریکی در دمای ۴۵۰ درجه‌ی سانتی‌گراد به مدت ۲ ساعت کلسینه شد. با این کار مولکول‌های آمونیاک آزاد شده، فرم هیدروژنی (Clino-H) به دست آمد. مقدار ۲۰ گرم Clino-H در مجاورت محلول‌های ۱ نرمال سدیم نیترات، کلسیم نیترات، پتاسیم نیترات، نقره نیترات، سزیم نیترات به طور جداگانه قرار گرفت و در تکان دهنده به مدت ۷۲ ساعت در دمای ۶۰ درجه‌ی سانتی‌گراد به هم زده شد. نمونه روی کاغذ صافی جدا شده با آب مقطر شستشو داده شد و در آون در دمای ۱۱۰ درجه‌ی سانتی‌گراد خشک شد. نمونه‌های حاصل فرم سدیمی، کلسیمی، پتاسیمی، نقره، سزیمی کلینوپتیلولیت هستند و آن‌ها را به صورت Clino-Na , Clino-Ca , Clino-K , Clino-Ag , Clino-Cs نمایش می‌دهیم.

دزهای مختلفی از تابش گاما از مقدار ۷۰ کیلو گری تا ۲ مگا گری بر فرم اصلی و فرم‌های کلسیم، سدیم، پتاسیم، سزیم و نقره کلینوپتیلولیت با رادیوایزوتوپ کبالت-۶۰ تاییده شد.

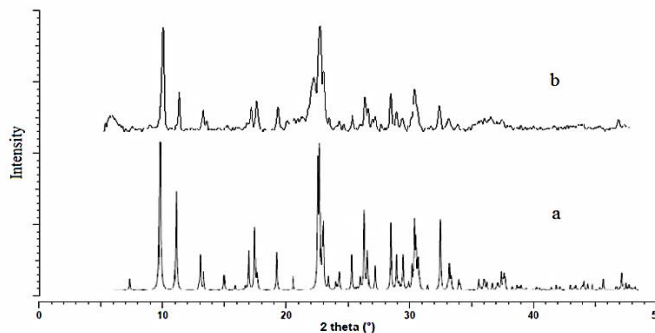
محلول توریم ۳۰۰۰ میلی‌گرم بر لیتر از نمک $\text{Th}(\text{NO}_3)_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$ تهیه شد و به عنوان محلول مادر برای تهیه‌ی محلول‌های دیگر به کار می‌رفت. غلظت توریم با روش ICP اندازه‌گیری شد. طول موج اندازه‌گیری ۲۸۳/۷۳ nm قرار داده شده بود.

بحث و نتایج

شناسایی نمونه‌ها

الگوی پراش پرتو ایکس مربوط به کلینوپتیلولیت طبیعی و مرجع در شکل ۱ نشان داده شده است. با مقایسه الگوهای پراش فوق مشخص گردید که نمونه کانی زئولیتی از نوع کلینوپتیلولیت (با خطوط شاخص در ۲θهای ۹/۸۸، ۲۲/۳۶، ۲۲/۴۹، ۲۲/۸۲، ۳۰/۰۵ و ۳۲/۰۱ درجه) است. محاسبات فلورسانس اشعه ایکس نمونه زئولیتی نشان

داد که نسبت Si/Al در آن برابر ۵/۶۹ می‌باشد که بزرگ‌تر از ۴ بوده و به معنای آن است که این نمونه از خانواده‌ی هیولاندیت و از نوع کلینوپتیلولیت است [۱۱].



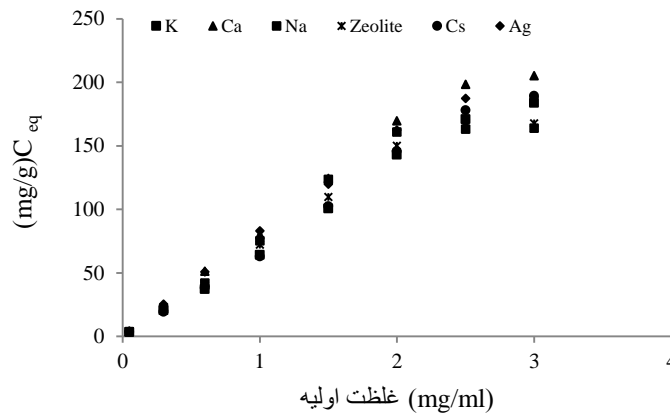
شکل ۱ الگوی XRD کلینوپتیلولیت مرجع (a) و نمونه (b)

آزمایش‌های جذب

به منظور مطالعه رفتار جذبی نمونه‌ها، ۱۰ میلی‌لیتر از محلول توریم در تماس با ۱۰۰ میلی‌گرم جاذب‌ها قرار گرفت. مخلوط به مدت ۲۴ ساعت هم‌زده شد و جاذب از محلول با سانتریفیوژ جدا شد. غلظت توریم در محلول با روش ICP-AES اندازه‌گیری شد. میزان جذب توریم (mg/g) به وسیله معادله ۱ پیش‌بینی می‌شود.

$$a = (C_i - C_f) \times \frac{V}{m} \quad (1)$$

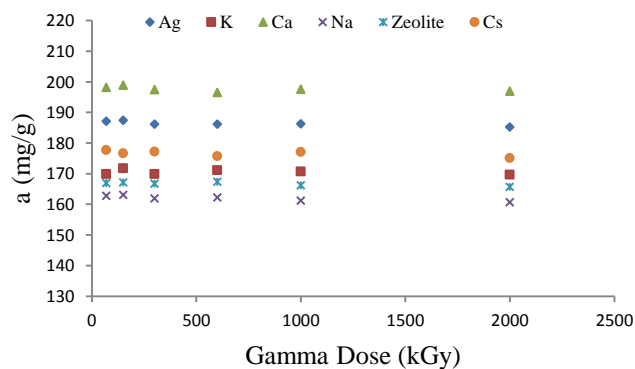
در این رابطه a مقدار یون جذب شده توسط جاذب (mg/g)، C_i و C_f به ترتیب غلظت اولیه کاتیون و غلظت تعادلی آن بعد از فرایند جذب، V حجم محلول در مجاورت زئولیت و m مقدار زئولیت می‌باشد. نتایج حاصل از بررسی غلظت بر میزان جذب توریم قبل از تابش‌دهی برای تمام فرم‌ها در شکل ۲ نشان داده شده است. با افزایش غلظت در ابتدا روند افزایشی در جذب مشاهده می‌شود و سپس روندی ثابتی خواهیم داشت. بیش‌ترین بازده جذب مربوط به فرم کلسیم کلینوپتیلولیت به دست آمد که به میزان ۶۸/۵٪ بود، برای فرم‌های اصلی، سدیم، سزیم، نقره و پتاسیم به ترتیب برابر ۵۴/۳، ۵۶/۳، ۶۳/۲، ۶۲/۹ و ۶۱/۴ درصد بدست آمد.



شکل ۲ ایزوترم جذب توریم

اثر تابش بر جذب توریم

اثر تابش گاما بر ظرفیت تبادل کاتیونی سدیم، کلسیم، سزیم، پتاسیم و نقره در شکل ۳ نشان داده شده است. همان‌طور که مشاهده می‌شود تابش تأثیری روی جذب توریم توسط کلینوپتیلولیت نمی‌گذارد. بیشترین میزان جذب برای فرم کلسیم کلینوپتیلولیت بود که میزان ۱۹۸/۹ mg/g در غلظت ۲۵۰۰ PPM بدست آمد. شکل ۳ نشان می‌دهد که میزان جذب برای فرم‌های کلسیم، نقره، سزیم، پتاسیم، اصلی و سدیم به ترتیب کاهش می‌یابد.



شکل ۳ اثر تابش بر جذب توریم برای فرم‌های کلینوپتیلولیت

نتیجه گیری

رفتار زئولیت برای جذب یون‌های توریم و کروم بررسی شد. در این تحقیق مشخص گردید که استفاده از فرم‌های مختلف کلینوپتیلولیت در جذب توریم اقتصادی بوده و دارای بازده بالایی می‌باشد. اثر تابش گاما نیز بر جذب زئولیت بررسی شد. مشخص گردید که دز تابشی تا مقدار 2 MGy اثری بر جذب توریم توسط فرم‌های مختلف زئولیت نمی‌گذارد.

مراجع

- [۱] اسماعیلی خراسانی، آشنایی با فیزیک بهداشت، نشر نقطه ۱۳۷۷.
- [۲] Doina Humelnicu, M. V. D., Ecaterina Stela Dragan, "Adsorption characteristics of UO_2^{2+} and Th^{4+} ions from simulated radioactive solutions onto chitosan/clinoptilolite sorbents." *Journal of Hazardous Materials*: ۴۴۷-۴۵۵, ۲۰۱۱.
- [۳] Breck DW Zeolite molecular sieves, structure, chemistry and use, Wiley, New York, ۱۹۷۴.
- [۴] Haggerty GM, Bowman RS *Environ Sci Technol* ۲۸: ۴۵۲, ۹۹۴.
- [۵] Reddy, R. G.; Cai, Z. In *Light Metals: Proceedings of Sessions, TMS Annual Meeting (Warrendale, Pennsylvania)* p ۱۱۷۳, ۱۹۹۶.
- [۶] Borai, E. H.; Harjula, R.; Malinen, L.; Paajanen, A. J. *Hazard. Mater*, ۱۷۲, ۴۱۶, ۲۰۰۹.
- [۷] Elizondo, N. V.; Ballesteros, E.; Kharisov, B. I. *Appl. Radiat. Isot.* ۵۲, ۲۷, ۲۰۰۰.
- [۸] Sharma, P.; Singh, G.; Tomar, R. J. *Colloid Interface Sci*, ۳۳۲, ۲۹۸, ۲۰۰۹.
- [۹] Metaxas, M., "Thorium removal by different adsorbents." *Journal of Hazardous Materials*: ۷۱-۸۲, ۲۰۰۳.
- [۱۰] Deb, A. K. S., "Adsorptive removal of thorium from aqueous solution using diglycolamide functionalized multi-walled carbon nanotubes." *Radioanal Nucl Chem*, ۲۰۱۲.
- [۱۱] Gottardi, G.; Galli, E. *Natural Zeolite Spriger*: Berlin, ۱۹۸۵.