

بازیافت اورانیوم از پسماند مایع کارخانه UCF اصفهان توسط جاذب‌نانو حفره-MCM

41: بررسی تأثیر حضور بعضی از آنیون ها بر روی جذب اورانیوم

حمید سپهریان^{۱*}، زهرا اسدی^۲، محمد صمدفام^۲، محمدرضا قاسمی^۳

^۱ سازمان انرژی اتمی، پژوهشگاه علوم و فنون هسته ای، پژوهشکده چرخه سوخت

^۲ دانشگاه صنعتی شریف، دانشکده مهندسی انرژی، گروه مهندسی هسته ای

^۳ کارخانه فرآوری اورانیوم

چکیده

در این مقاله، جذب اورانیوم توسط جاذب نانوحفره MCM-41 در حضور بعضی از آنیون ها مورد مطالعه قرار گرفت. نتایج بدست آمده نشان می دهد که حضور غلظت های بالایی از یون های نیترات، سولفات، کلراید و فسفات به تنهایی اثری بر جذب اورانیوم توسط این جاذب ندارند اما حضور یون فلوراید در غلظت بیش از 250 mg/l جذب اورانیوم را تا 40% کاهش می دهد. همچنین حضور فسفات در حدود 300 mg/l در محلول مزاحمت فلوراید را بطور کامل حذف می کند و در ادامه جذب و واجذب اورانیوم از پسماند کارخانه UCF مورد بررسی قرار گرفت. کلمات کلیدی: جاذب نانوحفره MCM-41، جذب اورانیوم، آنیون ها

۱- مقدمه

در طی پروسه های مختلف فیزیکی و شیمیایی انجام شده در کارخانه UCF در اصفهان حجم قابل توجهی پسمان مایع حاوی بیش از ۹۰۰ کیلوگرم اورانیوم تولید می شود که در دو استخر ذخیره پسمان نگه داری می شود که با توجه به اهمیت این ماده از نقطه نظر اقتصادی و همچنین زیست محیطی به نظر می رسد بازیافت آن حائز اهمیت باشد. MCM-41 یک جاذب معدنی مزوپروس می باشد که بطور گسترده در فرآیندهای جداسازی کاربرد دارد. این مواد با پتانسیل فوق العاده بالایی که برای استفاده در فرآیندهای جداسازی دارند، به عنوان یکی از امیدوارکننده ترین روش ها برای اینگونه فرآیندها شناخته شده اند [۱-۴]. این مواد دارای اندازه حفرات متغیر هستند که میتوان آنرا برای ترکیب مولکولی و یا یونی مورد نظر تنظیم کرد. همچنین، میتوان از طریق عاملدار کردن، این مواد را برای فرآیند مورد نظر گزینش پذیر نمود [۵-۸]. از مواد نانو حفره در فرآیندهای جداسازی زیر به صورت گسترده استفاده میشود:

- (۱) جذب سطحی که شامل جذب سطحی گازها، یونهای فلزی سنگین، کمپلکس های سمی و... بوده و حد تشخیص را برای جداسازی اینگونه ترکیبات بالا میبرد [۹-۱۱].
- (۲) از این مواد میتوان به عنوان فاز ثابت در کروماتوگرافی استفاده کرد که به دلیل نسبت سطح به حجم بالا، کارایی روش کروماتوگرافی را بالا میبرند [۱۲].
- (۳) از مواد نانوحفره به طور گسترده به عنوان مبادله کننده یون استفاده میشود. این مواد دسترسی یون مورد نظر را به گروه مبادله شونده تسهیل و تسریع کرده و میتوانند به عنوان یک جایگزین خوب برای مبادله کننده های یون تجارتي که امروزه مورد استفاده قرار دارند معرفی شوند.

۲- مواد و روش ها

۲-۱- مواد

تمامی مواد شیمیایی محصول شرکت MERCK می باشد بجز جاذب نانو حفره MCM-41 که در آزمایشگاه جابراین حیان سنتز شده است.

۲-۲- روند بررسی اثر یون های مختلف بر روی جذب اورانیوم توسط نانوحفره MCM-41

اثر آنیون ها بر روی جذب اورانیوم در غلظت ثابتی از اورانیوم مورد بررسی قرار گرفت. در آزمایشات انجام شده 20 mg از جاذب در تماس با 10 ml محلول با غلظت اولیه 4 mg/l در حضور غلظت های مختلفی از سولفات ($500-3000\text{ mg/l}$)، فلوراید ($250-5000\text{ mg/l}$)، کلراید ($50-2500\text{ mg/l}$)، نیترات ($10-10000\text{ mg/l}$) و فسفات ($10-300\text{ mg/l}$) قرار گرفت. اختلاط بین جاذب و محلول توسط یک دستگاه شیکر ناپیوسته با دور 200 rpm و دمای 25°C در مدت زمان ۲ ساعت صورت پذیرفت. در ادامه پس از جدا کردن جاذب از محلول به منظور اندازه گیری میزان اورانیوم موجود در نمونه، محلول صاف شده توسط ICP آنالیز گردید.

۲-۳- روند بررسی جذب و واجذب اورانیوم توسط نانوحفره MCM-41

آزمایشات مربوط به جذب اورانیوم توسط MCM-41 بصورت ناپیوسته انجام گردید، بدین ترتیب که 20 mg از رزین مورد نظر در تماس با 10 ml از محلول حاوی اورانیوم با غلظت $3/73\text{ mg/l}$ در حضور غلظت ثابتیاز یون سولفات ($2654/73\text{ mg/l}$) قرار گرفت. اختلاط بین جاذب و محلول توسط یک دستگاه شیکر ناپیوسته با دور 200 rpm به مدت ۲ ساعت صورت پذیرفت. در ادامه پس از جدا کردن جاذب از محلول به منظور اندازه گیری میزان اورانیوم موجود در نمونه، محلول صاف شده توسط ICP آنالیز گردید. پس از جدا

کردن جاذب از محلول در ۵ مرحله توسط آب مقطر شستشو داده شد. پس از خارج شدن آب از MCM-41 و خشک شدن تقریبی آن بمنظور انتخاب شوینده مناسب در تماس با ۵CC اسید کلریدریک با غلظت های ۰/۱۲، ۰/۵ و ۱/۵ مولار، اسیدسولفوریک در محدوده ۰/۱۷۸، ۰/۷۱۲ و ۲/۱۳ مولار و اسیدنیتریک با غلظت های ۰/۱۴، ۰/۵۸ و ۱/۷۴ مولار در دستگاه شیکر ناپیوسته با دور ۲۰۰ rpm و ۲۵°C به مدت ۲۴ ساعت قرار گرفت. پس از آن جاذب از محلول توسط کاغذ صافی جدا و محلول صاف شده توسط ICP آنالیز گردید.

۲-۴- بررسی جذب و واجذب اورانیوم از پسماند مایع کارخانه UCF توسط نانوحفره MCM-41 در این مرحله آزمایشات جذب با نمونه پسماند UCF انجام گرفت، بدین ترتیب که ۲۰ mg از جاذب در تماس با ۱۰ ml محلول پسماند با اسیدیته ۶/۵ به مدت ۲ ساعت در یک دستگاه شیکر ناپیوسته در ۲۵°C و با دور ۲۰۰ rpm قرار گرفت. در ادامه پس از جدا کردن جاذب از محلول به منظور اندازه گیری میزان اورانیوم موجود در نمونه، محلول صاف شده توسط ICP آنالیز گردید. جاذب جدا شده در آزمایشات مربوط به واجذب در تماس با ۵CC اسید کلریدریک با غلظت های ۰/۱۲، ۰/۵ و ۱/۵ مولار قرار گرفت و میزان واجذب اورانیوم مورد بررسی قرار گرفت.

۳- بحث و نتیجه گیری

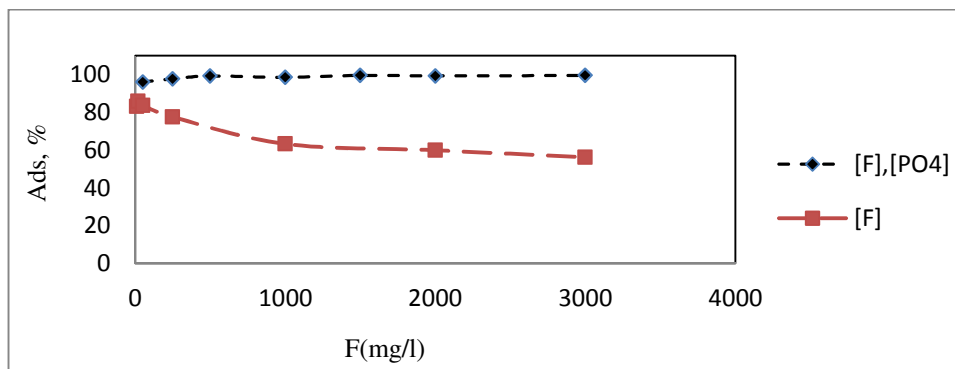
۳-۱- اثر آنیون ها

نتایج بدست آمده از جذب اورانیوم توسط MCM-41 در حضور یون های مختلف نشان می دهد که حضور غلظت های بالایی از یون های نیترات، سولفات، کلراید و فسفات به تنهایی اثری بر جذب اورانیوم توسط این جاذب ندارند اما حضور یون فلوراید در غلظت بیش از ۲۵۰ mg/l جذب اورانیوم را تا ۴۰٪ کاهش می دهد. با بررسی اثر فلوراید بر روی جذب همانگونه که در شکل (۱) مشاهده می شود حضور فسفات در حدود ۳۰۰ mg/l مزاحمت فلوراید را بطور کامل حذف می نماید. در واقع می توان گفت جذب اورانیوم توسط مزوپروس MCM-41 به عنوان یک جاذب معدنی تحت تأثیر یون های موجود در محیط نمی باشد و کاملاً مستقل رفتار می کند. آنالیز نمونه پسماند همانگونه که در جدول (۱) نشان داده شده است حاوی مقادیر قابل توجهی از یون های مختلف می باشد از این رو بنظر می رسد MCM-41 جاذب مناسبی برای جداسازی اورانیوم از پسماند UCF که از ماتریکس پیچیده ای برخوردار است و یون های مختلفی در آن حضور دارد، باشد.

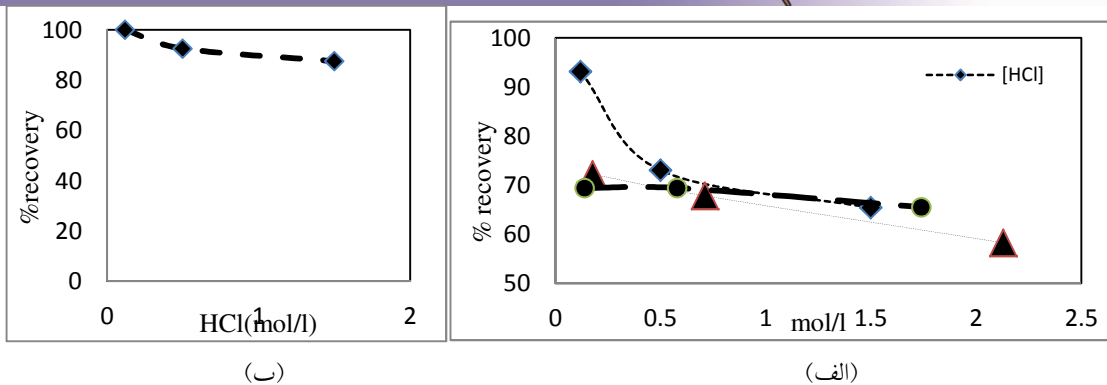
۳-۲- انتخاب شوینده مناسب

نتایج آزمایشات واجذب نمونه سنتزی با محلول های اسیدکلریدریک، اسیدسولفوریک و اسید نیتریک گویای این است که اسیدکلریدریک می تواند شوینده مناسبی برای واجذب اورانیوم از MCM-41 باشد. نتایج حاصل در شکل (۲) آورده شده است. همچنین با افزایش غلظت اسیدکلریدریک از کارایی آن در واجذب اورانیوم کاسته می شود. آزمایشات انجام شده در زمینه واجذب اورانیوم با نمونه واقعی پسماند کارخانه UCF تأیید کننده نتایج بدست آمده با نمونه سنتزی می باشد که در شکل (۲) نشان داده شده است
جدول (۱): نتایج بدست آمده از آنالیز پسماند توسط IC

غلظت (mg/l)	
۴۸۴۲-۵۸۲۳	فلوراید
۲۵۲۷-۲۹۷۱	کلراید
۹۹۲۰-۱۰۰۰۰	نیترات
۲۶۵۴-۳۰۳۲	سولفات
۲۴۸-۳۰۰	فسفات



شکل (۱): اثریون فلوراید بر جذب اورانیوم توسط MCM-41 در حضور و عدم حضور یون فسفات



شکل (۲): بررسی میزان واجذب اورانیوم از MCM-41 از (الف) نمونه سنتزی، (ب) نمونه پسماند کارخانه UCF

۴- نتیجه گیری

نتایج بدست آمده نشان می دهد که نانو حفره MCM-41 به عنوان یکی از جاذب های معدنی بطور مؤثری بدون تأثیر از شرایط محلول و حضور یون های موجود در آن از ظرفیت بالایی در جذب اورانیوم برخوردار است. تنها یون فلوراید است که حضور آن در محلول ظرفیت جذب را کاهش می دهد که البته مزاحمت این یون در حضور یون فسفات بطور کامل حذف می گردد. همچنین اسید کلریدریک به عنوان شوینده از ظرفیت بالایی در واجذب اورانیوم از MCM-41 برخوردار است. با افزایش غلظت اسید میزان واجذب اورانیوم به شکل قابل توجهی کاهش می یابد. با توجه به نتایج بدست آمده می توان گفت MCM-41 می تواند به عنوان جاذب مناسبی در زمینه جذب اورانیوم از پسماند کارخانه UCF مورد استفاده قرار گیرد.

- [1] Liu, J. et al "Hybrid Nanoporous Materials with Functionalized Monolayers", *Adv. Mater.*, **10**(2), pp 161-165 (1998).
- [2] Feng, X. et al "Functionalized Monolayers on Ordered Nanoporous Supports", *Science*, **276**(5314), pp 923-926 (1997).
- [3] Fryxell, G.E. "Design and Synthesis of Selective Nanoporous Anion Traps" **11**(8), pp 2148-2154 (1999).
- [4] Shin, Y.S. et al "Investigation of uranyl adsorption on nanoporous titanium-based sorbents", *Radiochim. Acta*, **84**(1), pp 34-42 (1999).
- [5] M. Wazne, X. Meng, G. P. Korfiatis, C. Christodoulatos, Carbonate effects on hexavalent uranium removal from water by nanocrystalline titanium dioxide, *Journal of Hazardous Materials* 136 (2006) 47-52.
- [6] W.Dong, W.P.Ball, C.Liu, Z.Wang, A.T.Stone, J.Bai, J.M.Zachara, Influence of calcite and dissolved calcium on uranium (VI) sorption to a Hanford subsurface sediment, *Environmental Science & Technology*, 2005, 39(20), 7949-7955.
- [7] Walcarius A, Etienne M, Bessiere J *Chem Mater* 2002;14:2757-2766.
- [8] M.W. Mckittrick, C. Jones. *Chem. Mater.* 15(2003)1132.
- [9] H.Y. Huang, R.T. Yang, D. Chinn, C.L. Munson. *Ind. Eng. Chem. Res.* 42(12) (2003)2427.
- [10] K.C.Vranken, P. Van Der Voort, K. Possemiers, E.F. Vansant. *J. Colloid. Interface. Sic.* 174(1995)86.
- [11] E. Angeletti, C. Canepa, G. Martinetti, P. Venturello. *Tetrahedron Lett.* 29(18) (1988)2261.
- [12] Li Q., Creaser D., Sterte J., An investigation of the nucleation/crystallization kinetics of nanosized colloidal Faujasitezeolites, *Chem. Mater.*, Vol. 14, pp.1319, 2002.