

## جذب اورانیوم ( $^{238}\text{U}$ ) از محیط‌های آبی بوسیله زئولایت ایرانی غنی از کلینوپتیلولایت

سعید باقریفام<sup>۱\*</sup> - امیر لکزیان<sup>۲</sup> - میثم رضائی<sup>۳</sup>

تاریخ دریافت: ۸۷/۱۰/۲۱

تاریخ پذیرش: ۸۸/۳/۱۰

### چکیده

اورانیوم فلزی سنگین و رادیو اکتیو است که به طور گسترده در پوسته زمین پراکنده شده است. در بسیاری موارد به علت فعالیت‌های انسانی مقدار آن از حدود مجاز بالاتر رفته و این امر موجب آلودگی آب و خاک با اورانیوم میشود. به منظور بهینه سازی توانایی زئولایت جهت کاهش اورانیوم از محیط‌های آبی از تکنیک شستشو استفاده شد. در این آزمایش بهترین بازدهی جذب به عنوان تابعی از غلظت اولیه اورانیوم در محلول، pH محیط، زمان تماس و وزن بکار برده شده زئولایت برای کاهش اورانیوم موجود در آب بررسی گردید. به منظور مدلسازی جذب اورانیوم توسط زئولایت از دو همدامی جذب سطحی لانگمویر و فروندلیچ استفاده شد. نتایج حاصل از آزمایش نشان داد که بیشترین مقدار جذب اورانیوم توسط زئولایت در غلظت ۲۰۰ mg/L، pH=۵ و زمان تماس ۲۰ ساعت صورت پذیرفت. هم چنین مدل لانگمویر به علت ثابت هماهنگی بالاتر میتواند به خوبی جذب اورانیوم به وسیله زئولایت را پیش بینی کند.

**واژه های کلیدی:** جذب سطحی، اورانیوم، زئولایت، ایزوترم لانگمویر، ایزوترم فروندلیچ

### 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 هسته ای، فعالیت‌های معدنکاری اورانیوم، پسماندهای تولید شده در صنایع هسته ای، استفاده از کودهای فسفوری حاوی اورانیوم در زمین‌های کشاورزی و هوادیدگی کانیهای حاوی اورانیوم میتوانند خاک‌ها را با مقادیر مختلف اورانیوم آلوده کنند (۱، ۲، ۳ و ۴). اورانیوم میتواند در اثر آبهویی شسته شده و آب‌های زیر زمینی را آلوده کند. مقادیر بالای اورانیوم میتوانند 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 (۵). بنابراین کاهش و حذف اورانیوم موجود در آب‌های آلوده در مدیریت پسمانداری هسته ای به لحاظ خطرات فراوان شناخته شده آن برای بشر اهمیت می‌یابد. مطالعات متعدد نشان داده اند که زئولایت طبیعی

یا کلینوپتیلولایت قادر است برخی از رادیو نوکلئوتیدها را از آب‌های آلوده جذب نماید (۶ و ۷). زئولایت آلومینو سیلیکاتی کریستالی و دارای ساختمان سه بعدی است. بیش از ۵۰ نوع زئولایت تا کنون شناخته شده است. زئولایت طبیعی (Clinoptilolite) دارای یک ساختمان سه بعدی است که ساختار مولکولی تیپیک آن  $\text{Na}_6(\text{AlO}_2)_6(\text{SiO}_2)_{30} \cdot 24\text{H}_2\text{O}$  یا  $(\text{Na}_2, \text{K}_2, \text{Ca}, \text{Mg})_3 [(\text{AlO}_2)_6(\text{SiO}_2)_{30}] \cdot 24\text{H}_2\text{O}$  است. (۹و۸). ظرفیت تبادل کاتیونی (CEC) آنها بین ۱۰۰ تا ۳۰۰ (meq/100 g) متغیر است و تمایل فراوانی برای جذب کاتیونها در شبکه سه بعدی خود دارند (۱۰). زئولایت‌ها به طور گسترده به عنوان غربال‌های مولکولی استفاده شده اند. مهم ترین کاربردهای آنها استفاده در کشاورزی و آلودگی زدایی بوسیله جداسازی، جذب، رهاسازی و تبادل یونی است (۱۱). با توجه به وجود منابع عظیم زئولایت در ایران و بهره برداری از این منابع در مناطقی از قبیل سمنان، این منابع میتوانند به طور گسترده ای در حذف آلاینده‌های زیست محیطی مورد استفاده قرار گیرند (۱۲ و ۱۳). با توجه به گسترش صنایع هسته ای در ایران، خطرات ناشی از آلودگی‌های اورانیومی افزایش یافته است. این مطالعه برای اولین بار در ایران و با هدف بررسی توانایی زئولایت ایرانی غنی از (Clinoptilolite) برای حذف اورانیوم از آب‌های آلوده و تعیین اثر عوامل مختلف بر جذب مانند غلظت اولیه اورانیوم، pH محیط، زمان تماس و غلظت اولیه اورانیوم

۱ و ۲ - به ترتیب دانشجوی دکتری و دانشیار گروه علوم خاک، دانشکده کشاورزی، دانشگاه فردوسی مشهد

\* - نویسنده مسئول: (Email:saeed\_bagherifam@yahoo.com)

۳ - دانشجوی سابق کارشناسی ارشد دانشگاه گرگان

صورت پذیرفت.

**مواد و روش‌ها****ویژگی‌های زئولایت مورد مطالعه**

زئولایت مورد مطالعه از معادن شمال استان سمنان جمع آوری شد. نمونه‌های زئولایت هواخشک شده و از الک ۲ میلی‌متری عبور داده شدند. ویژگی‌های مینرالوژیکی زئولایت مورد مطالعه بوسیله استفاده از آنالیز XRD با استفاده از دستگاه Bruker D8 X-ray diffractometer بوسیله اشعه  $\text{Cu-K}\alpha$  (40 kV and 30mA) در زاویه  $2\theta$  و فواصل زمانی 1s انجام پذیرفت (شکل ۱). نتایج حاصل از آزمایش نشان داد که بنابر پیک استاندارد زئولایت ۸۰ درصد نمونه مورد مطالعه از زئولایت خالص و حدود ۲۰ درصد آن از بنتونیت تشکیل شده است.

pH و EC زئولایت مورد مطالعه در نسبت زئولایت به آب ۱:۲ اندازه گیری شد. ظرفیت تبادل کاتیونی (CEC) بوسیله استات سدیم 1m pH= ۸/۲ اندازه گیری شد (۱۴ و ۱۵). سطح ویژه زئولایت بوسیله متد اتیلن گلیکول مونو اتیل اتر اندازه گیری شد (۱۴ و ۱۶). برای اندازه گیری فرمهای تبدلی و محلول K از نسبت زئولایت به محلول ۱:۲۰ و ۳۰ دقیقه زمان تماس استفاده شد. فرم محلول K با استفاده از آب و فرم تبدلی K بوسیله استات آمونیوم ۱ M در pH = ۷ اندازه گیری شد. نتایج حاصل از آزمایش نشان داد pH زئولایت برابر ۷/۳ و CEC زئولایت برابر با  $74/83 \text{ (cmolc.kg}^{-1}\text{)}$  است. سطح ویژه زئولایت برابر  $35 \text{ (m}^2.\text{g}^{-1}\text{)}$  محاسبه شد. همچنین فرمهای محلول و تبدلی K به ترتیب برابر ۶/۹۷ و  $1983 \text{ (mg.kg}^{-1}\text{)}$  محاسبه شدند. آنالیز عنصری زئولایت مورد مطالعه در جدول ۱ ارائه شده است.

**جدول ۱) - آنالیز عنصری زئولایت مورد مطالعه**

Chemical composition	%
SiO <sub>2</sub>	۶۴/۴
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	۱۲/۸
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	۱/۳۱
TiO <sub>2</sub>	۰/۳۱
CuO	۲/۳۷
MgO	۱/۱۵
Na <sub>2</sub> O	۱/۱۳
K <sub>2</sub> O	۲/۶۴
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	۰/۲۱
LOI*	۱۳/۱۹

\* - اتلاف در اثر گرما

**آزمایشات جذب اورانیوم**

آزمایشات جذب اورانیوم بوسیله زئولایت با استفاده از تکنیک

شستشو انجام پذیرفت. غلظت‌های مشخص اورانیوم بوسیله حل کردن مقادیر مناسب نمک نیترات اورانیوم  $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$  آب مقطر لازم تهیه شد. ۰/۱ گرم زئولایت و ۱۰ ml از محلول نیترات اورانیوم در دمای  $28^\circ\text{C}$  در مدت زمانهای مختلف در تماس قرار داده شدند. pH محلول نیترات اورانیوم بوسیله  $\text{HNO}_3$  یا  $\text{Na}_2\text{CO}_3$  در مقادیر مناسب تنظیم گردید. تمام آزمایشات با سه تکرار صورت پذیرفت. سوسپانسیون تهیه شده پس از رسیدن به زمان تعادل بوسیله کاغذ صافی واتمن ۴۲ صاف شد و سپس مقدار اورانیوم باقیمانده در محلول بوسیله استفاده از محلول آرسنازو III و با استفاده از دستگاه اسپکتروفوتومتر UV-VIS-1601 اندازه گیری شد (۱۷). درصد جذب اورانیوم با استفاده از فرمول زیر محاسبه شد:

$$\times 100 = \frac{\text{مقدار اورانیوم موجود در محلول در زمان تعادل شیمیایی} - \text{مقدار اولیه اورانیوم در محلول}}{\text{مقدار اولیه اورانیوم در محلول}}$$

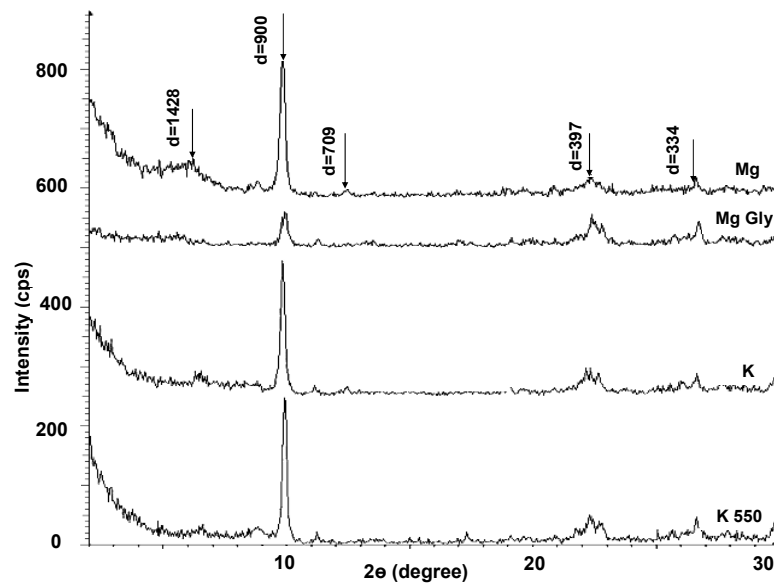
در بخش دیگر آزمایش رهاسازی اورانیوم جذب شده از زئولایت مورد مطالعه قرار گرفت. آزمایشات رهاسازی با تغییر پارامترهایی از قبیل زمان آزمایشات رهاسازی، غلظت عامل رهاسازنده و تعداد مراحل رهاسازی انجام پذیرفت. درصد اورانیوم رهاسازی شده با استفاده از فرمول زیر محاسبه شد:

$$\times 100 = \frac{\text{مقدار اورانیوم جذب شده بر سطح زئولایت}}{\text{مقدار اورانیوم رها سازی شده}}$$

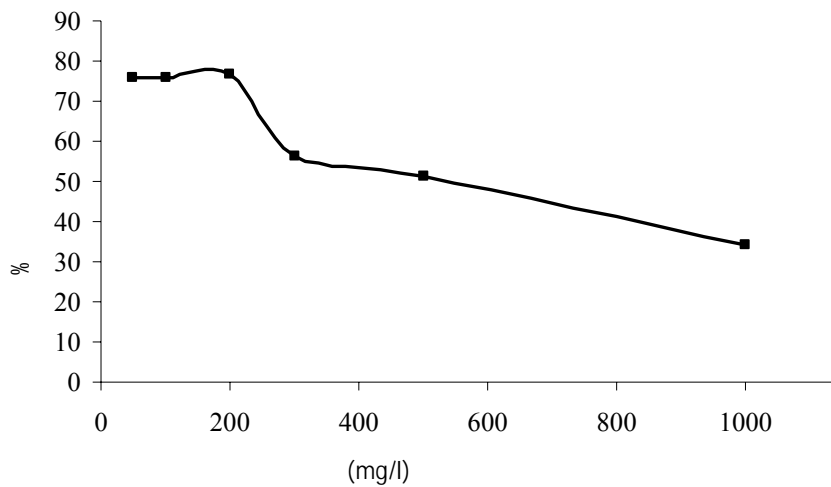
**نتایج و بحث****تأثیر غلظت اولیه اورانیوم در فرآیند جذب**

غلظت اورانیوم در محیط‌های مایع نقش مهمی در توزیع گونه‌های اورانیوم در محلول و چگونگی جذب آن بوسیله زئولایت طبیعی دارد. تأثیر غلظت اولیه اورانیوم بر جذب اورانیوم توسط زئولایت بوسیله استفاده از تکنیک شستشو در محدوده غلظت اولیه  $50-1000 \text{ mg U L}^{-1}$  در دمای  $28^\circ\text{C}$  و در شرایط ثابت نگه داشتن سایر پارامترهای موثر بر جذب صورت پذیرفت (شکل ۲). نتایج حاصل از آزمایش نشان داد که با افزایش غلظت اورانیوم در محلول جذب اورانیوم بوسیله زئولایت طبیعی کاهش می‌یابد. جذب اورانیوم بوسیله کلینوپتیلولایت در محدوده غلظت  $50-200 \text{ mg U L}^{-1}$  و سپس تا غلظت  $1 \text{ mg U L}^{-1}$  به طور محسوسی کاهش می‌یابد. فراهمی یونهای اورانیل  $(\text{UO}_2)^{+2}$  در محلول‌های رقیق تر افزایش می‌یابد، بنابراین بازدهی جذب اورانیوم بوسیله زئولایت طبیعی افزایش خواهد یافت. بالاترین مقدار اورانیوم جذب شده توسط کلینوپتیلولایت در غلظت

$200 \text{ mg U L}^{-1}$  صورت پذیرفت. بنابراین در ادامه آزمایشات  $200 \text{ mg U L}^{-1}$  مورد استفاده قرار گرفت.



(شکل ۱) - الگوی XRD زئولیت مورد مطالعه



(شکل ۲) - تأثیر غلظت اولیه زئولیت بر جذب اورانیوم توسط زئولیت  
(C: 50-1000  $\text{mg U L}^{-1}$ , t: 24 h, T: 28  $^{\circ}\text{C}$ )

سیلیسیوم، آلومینیوم، مس، پتاسوم و منیزیوم تشکیل شده است. بنابراین سطح کلینوپتیلولایت مورد مطالعه از گروه‌های هیدروکسیل پوشیده شده است. بنابراین در مقادیر pH پایین مقادیر بار مثبت در سطح زئولایت افزایش می‌یابد. دامنه افزایش مقادیر بار مثبت بر سطح زئولایت به نقطه ZPC زئولایت طبیعی بستگی دارد. گونه‌های غالب اورانیوم در محلول در pH پایین نیز عمدتاً گونه‌های محلول اورانیل  $(\text{UO}_2)^{+2}$  هستند. بنابراین مقدار اورانیوم جذب شده در مقادیر

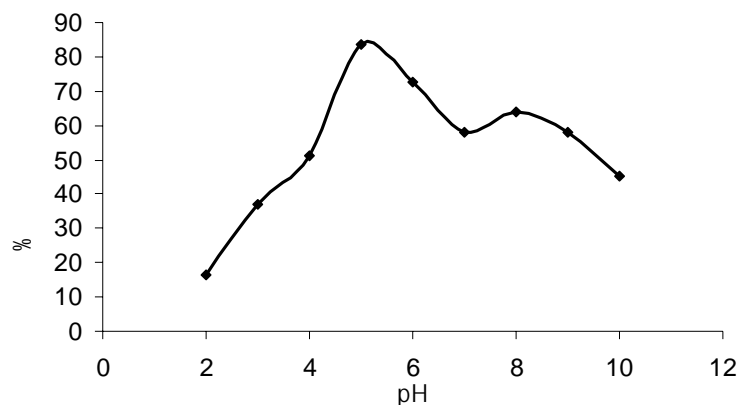
### تأثیر pH محیط بر جذب اورانیوم توسط زئولایت

pH محیط آبی در توزیع گونه‌های اورانیوم در محلول بسیار تأثیر گذار است. تأثیر pH محیط بر جذب اورانیوم بوسیله زئولایت با تغییر pH محیط در محدوده ۱۰-۲ در دمای  $28^{\circ}\text{C}$  و مدت زمان تماس ۲۴ ساعت و با ثابت نگه داشتن سایر پارامترهای موثر بر جذب انجام پذیرفت (شکل ۳). بنابر اطلاعات آنالیز عنصری موجود در جدول ۱ زئولایت مورد مطالعه عمدتاً از انواع مختلف اکسیدها شامل:

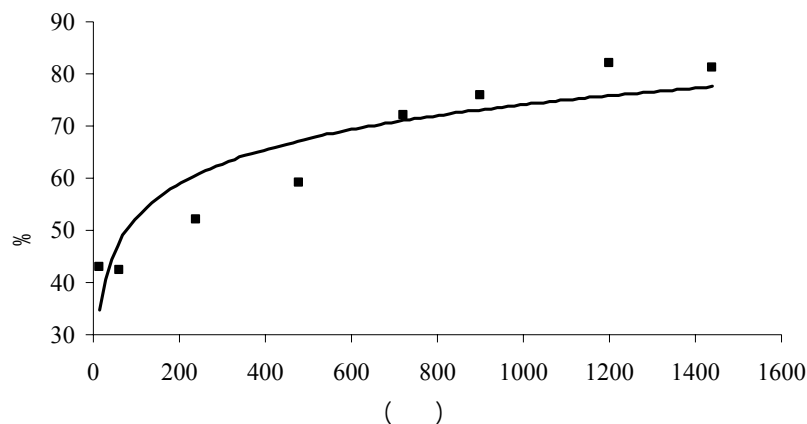
اثر زمان تماس بر جذب اورانیوم توسط زئولایت مورد مطالعه در محدوده زمانی ۱۴۴۰-۱۵ دقیقه و با ثابت نگه داشتن سایر پارامترهای موثر در جذب صورت پذیرفت. نتایج حاصل از آزمایش نشان داد که سرعت جذب اورانیوم بر زئولایت مورد مطالعه پایین است و تعادل شیمیایی پس از ۲۰ ساعت تماس صورت می‌پذیرد (شکل ۴). در بازه زمانی ۲۰ تا ۲۴ ساعت مقدار اورانیوم جذب شده توسط زئولایت مورد مطالعه تقریباً ثابت است که نشان می‌دهد تعادل شیمیایی در زمان ۲۰ ساعت رخ داده است. بنابراین در ادامه آزمایش از مدت زمان تماس ۲۰ ساعت استفاده شد. اکیل و همکاران گزارش کردند که زمان تعادل برای زئولایت نوع X و اورانیوم در ۱۵ دقیقه رخ می‌دهد (۲۳). در مطالعه آیتاس و همکاران زمان تعادل بین زئولایت طبیعی و محلول اورانیوم گزارش شده است (۲۰). تفاوت‌های مشاهده شده در این آزمایش و سایر مطالعات می‌تواند به تفاوت نوع و ترکیب شیمیایی زئولایت‌ها و سایر عوامل تأثیر گذار در جذب مانند غلظت اورانیوم و pH محیط مربوط باشد.

پایین pH کاهش می‌یابد. علاوه بر این کاهش قابل توجه درصد اورانیوم جذب شده در مقادیر pH پایین تر از ۳ می‌تواند به فروپاشی ساختمان زئولایت مربوط باشد (۱۸). درصد اورانیوم جذب شده توسط زئولایت به سرعت در محدوده pH ۲ تا ۵ افزایش یافته و در محدوده pH ۵ تا ۱۰ به آرامی کاهش می‌یابد. شارما و همکاران در مطالعه خود بر روی مزولایت که نوعی زئولایت سنتزی است بهترین بازدهی جذب اورانیوم را pH حدود ۵ گزارش کردند. همچنین کرستو و همکاران در مطالعه خود بر زئولایت طبیعی گزارش کردند که بهترین بازدهی جذب اورانیوم در pH=۵ صورت می‌پذیرد. (۱۹ و ۲۰). کاهش در جذب اورانیوم در مقادیر pH بالاتر می‌تواند به گونه‌های غالب اورانیل کربنات  $\text{UO}_2(\text{CO}_3)_2$  یا  $\text{UO}_2(\text{CO}_3)_4^{4-}$  در pHهای قلیایی مربوط باشد (۲۲-۲۰). بنا بر نتایج حاصل از این آزمایش در pH=۵ در ادامه آزمایش مورد استفاده قرار گرفت.

#### اثر زمان تماس بر مقدار اورانیوم جذب شده توسط زئولایت



(شکل ۳) - اثر pH بر جذب اورانیوم توسط زئولایت  
(C: 200 mg U L<sup>-1</sup>, m: 0.1 g, t: 24 h, V: 10 ml, T: 28 C°)



(شکل ۴) - اثر زمان بر جذب اورانیوم توسط زئولایت  
(C: 200 mg U L<sup>-1</sup>, m: 0.1 g, pH: 5, v: 10 ml, T: 28 C°)

جذب میباید (L mg<sup>-1</sup>) و Q<sup>۰</sup> حداکثر جذب را در شرایطی که سطح جذب با یک لایه از یک لایه اورانیوم پوشیده شده است. همانطور که در شکل ۶ مشاهده میشود Q<sup>۰</sup> و b از شیب و عرض از مبدا نمودار C<sub>e</sub>/q<sub>e</sub> در برابر C<sub>e</sub> محاسبه میشود (۲۰ و ۲۱). معادله فروندلیچ مدلی تجربی است که بر اساس جذب سطحی فیزیکی بین عنصر جذب شونده و ماده جذب بیان شده است. در این مدل فرض بر این است که جذب به صورت چند لایه ای صورت می‌پذیرد و با اضافه شدن مقدار ماده محلول جذب شده، انرژی جذب سطحی به صورت نمایی کاهش می‌یابد. بنا براین، مدل فروندلیچ قادر به پیش بینی حداکثر جذب ماده جذب شونده بر سطح جذب نمی‌باشد (۲۰ و ۲۱). معادله فروندلیچ به صورت زیر بیان میشود: مقادیر q<sub>e</sub> و C<sub>e</sub> نیز مشابه مقادیر عنوان شده در مورد ایزوترم لانگمویر هستند.

$$q_e = k \cdot C_e^{1/n}$$

شکل خطی این معادله به صورت زیر بیان میشود:

$$\log q_e = \log k + 1/n \log C_e$$

همانطور که در شکل ۷ مشاهده میشود از شیب و عرض از مبدا نمودار log q<sub>e</sub> در برابر log C<sub>e</sub> به ترتیب مقادیر k و n محاسبه میشوند. نتایج حاصل از آزمایش نشان داد که داده‌های جذب با مدل لانگمویر همبستگی بالاتری را نسبت به مدل فروندلیچ نشان میدهد. بنابر معادلات بدست آمده از اشکال ۶ و ۷ ثابت‌های دو معادله لانگمویر و فروندلیچ محاسبه شدند (جدول ۲). در مطالعه آیتاس و همکاران نیز داده‌های حاصل از جذب اورانیوم بر زئولایت طبیعی به خوبی با ایزوترم لانگمویر مطابقت داشتند (۲۰).

#### تأثیر وزن زئولایت بر مقدار اورانیوم جذب شده

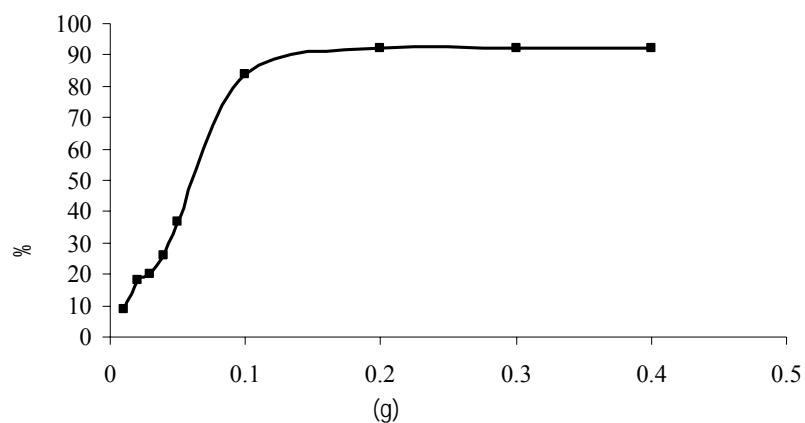
تأثیر وزن زئولایت بر جذب اورانیوم توسط زئولایت طبیعی مطالعه شد (شکل ۵). وزن محلول (۱۰ ml) و سایر شرایط ثابت نگه داشته شد. نتایج حاصل از آزمایش نشان داد که درصد جذب اورانیوم توسط زئولایت طبیعی در محلول حاوی ۲۰۰ mg U L<sup>-1</sup> با افزایش وزن زئولایت مورد استفاده تا ۰/۲ g افزایش یافت و سپس با افزایش مقدار زئولایت ثابت ماند.

#### ایزوترم‌های جذب اورانیوم بوسیله زئولایت

به منظور پی بردن به مکانیزم‌های جذب سطحی اورانیوم توسط زئولایت مورد مطالعه، داده‌های جذب به وسیله دو مدل رایج لانگمویر و فروندلیچ آنالیز شدند. این دو معادله به طور گسترده برای توصیف جذب سطحی در محیط‌های آبی مورد استفاده قرار گرفته است. مدل لانگمویر بیان میدارد که سطح ماده از یک سری مکانهای با قدرت جذبی مشخص تشکیل شده است که گونه‌های عنصری موجود در محلول از طریق پیوندهای کووالانسی یا واندروالس به آن متصل میشوند. در مدل لانگمویر حداکثر جذب هنگامی رخ میدهد که سطح جذب از یک لایه عنصر محلول پوشیده شود. معادله لانگمویر بوسیله معادله زیر بیان میشود:

$$C_e/q_e = 1/b \cdot Q^0 + C_e/Q^0$$

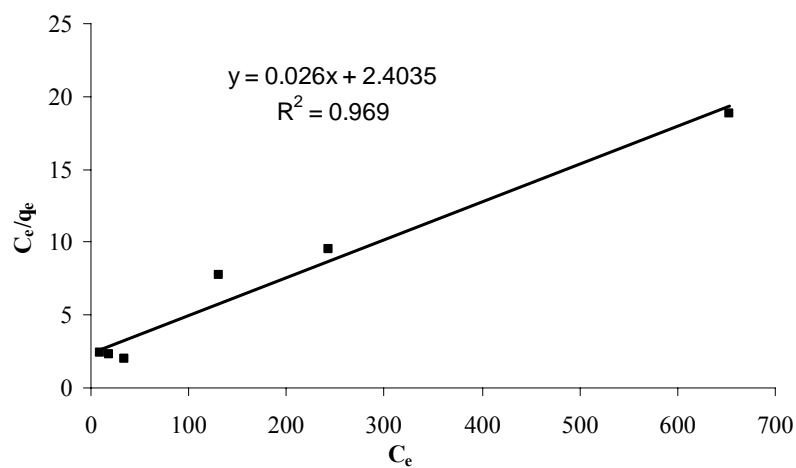
که در آن q<sub>e</sub> مقدار ماده جذب شده در واحد وزن جاذب است (mg g<sup>-1</sup>)، C<sub>e</sub> غلظت اورانیوم موجود در محلول در حال تعادل است (mg L<sup>-1</sup>)، b ثابت لانگمویر است و مربوط به ظرفیت جذب و انرژی



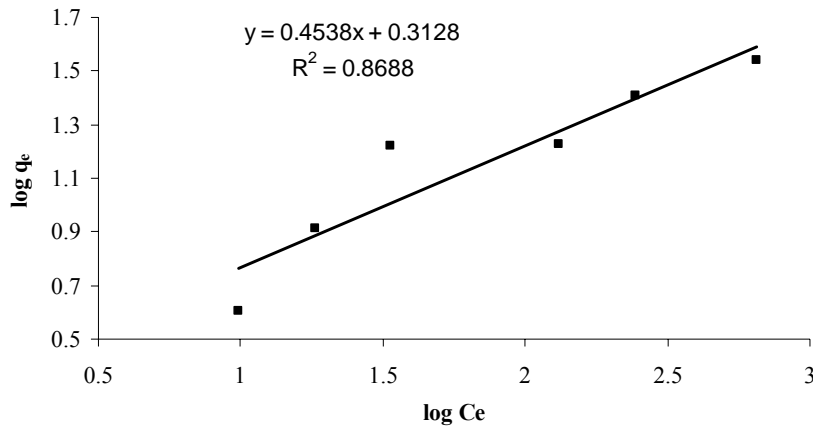
(شکل ۵) - اثر مقدار زئولایت بر جذب اورانیوم  
(C: 200 mg U L<sup>-1</sup>, t: 20 h, pH: 5, v: 10 ml, T: 28 C°)

(جدول ۲) - ثابت‌های لانگمویر و فروندلیچ برای زئولایت طبیعی

Zeolite	Langmuir model			Frenundlich model		
	R <sup>2</sup>	Q <sup>*</sup> (mg g <sup>-1</sup> )	b (L g <sup>-1</sup> )	R <sup>2</sup>	k <sub>f</sub> (mg g <sup>-1</sup> )	n
	۴۹/۹۸	۰/۹۶	۱۰/۸	۱/۹۰	۰/۸۶	۲/۲۰



(شکل ۶) - مدل لانگمویر برای زئولایت مورد مطالعه



(شکل ۷) - معادله فروندلیچ برای زئولایت مورد مطالعه

(جدول ۳) - تأثیر عوامل شیمیایی مختلف بر رهاسازی اورانیوم از

زئولایت مورد مطالعه	
محلول رهاسازنده	در صد رهاسازی %
1M HNO <sub>3</sub>	۵۲/۰۸
1M NaOH	۱۰/۷۵
0.1M EDTA	۴۱/۳۲
1M Na <sub>2</sub> CO <sub>3</sub>	۱۷/۲۴
H <sub>2</sub> O	۰/۰۳

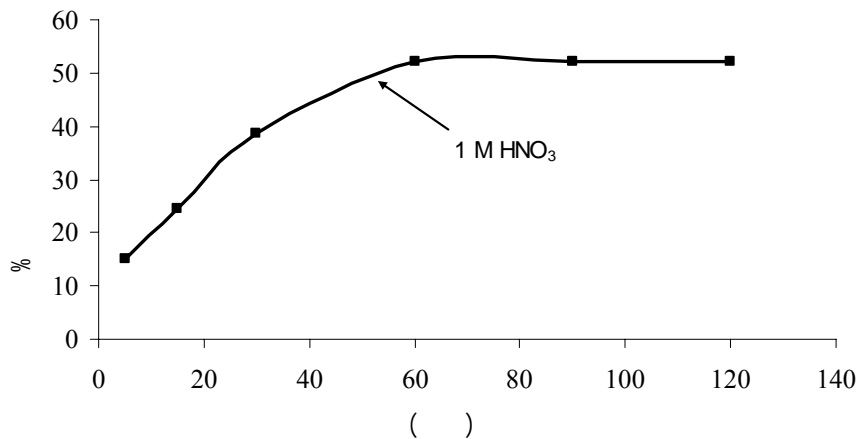
#### اثر زمان بر مقدار اورانیوم رهاسازی شده

رهاسازی اورانیوم جذب شده از زئولایت مورد مطالعه به عنوان تابعی از زمان رهاسازی در بازه زمان ۱۲۰ تا ۵ دقیقه مطالعه شد. نتایج حاصل از آزمایش نشان داد که بازه رهاسازی تا ۱ ساعت افزایش می یابد و سپس ثابت می ماند (شکل ۸). بنابراین در آزمایشات بعدی ۱ ساعت زمان رهاسازی مورد استفاده قرار گرفت.

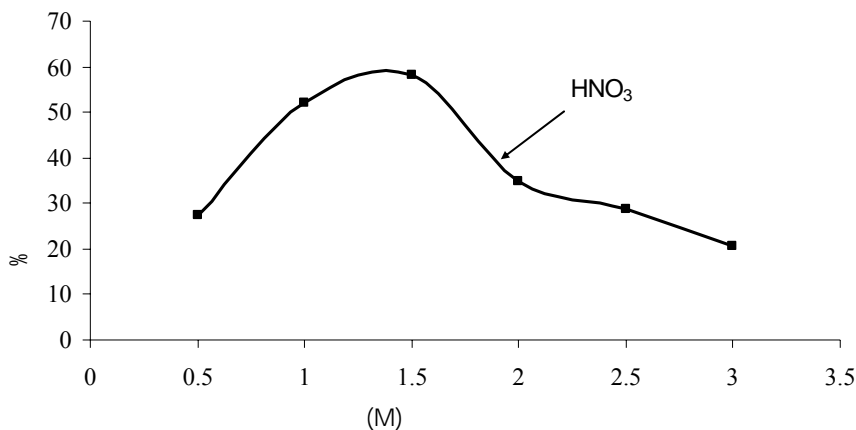
#### رهاسازی اورانیوم جذب شده

رهاسازی اورانیوم جذب شده بر روی زئولایت مورد مطالعه نیز بوسیله تکنیک شستشو بررسی گردید. رهاسازی اورانیوم جذب شده از زئولایت به عنوان تابعی از زمان رهاسازی، غلظت ماده رهاسازنده و مراحل رهاسازی مطالعه شد. پس از اینکه  $200 \text{ mg U L}^{-1}$  در بهترین شرایط بوسیله زئولایت جذب شد، اورانیوم جذب شده بر سطح جاذب به وسیله ۱۰ ml عوامل شیمیایی مختلف در زمان تماس ۱ ساعت و در دمای  $28^\circ \text{C}$  رهاسازی شد. جدول درصد اورانیوم رهاسازی شده توسط عوامل شیمیایی مختلف را نشان میدهد.

بیشترین رهاسازی اورانیوم جذب شده از زئولایت بوسیله 1M HNO<sub>3</sub> صورت گرفت (۵۲/۰۸٪). آزمایشات بعدی به منظور بهینه کردن رهاسازی اورانیوم از زئولایت مورد مطالعه صورت پذیرفت (جدول ۳).



(شکل ۸) - اثر زمان تماس در رهاسازی اورانیوم از زئولایت مورد مطالعه



(شکل ۹) - اثر غلظت حلال در رهاسازی اورانیوم جذب شده توسط زئولایت

اورانیوم رها شده در طی مرحله اول از سطح زئولایت رهاسازی شد (شکل ۱۰).

نتایج حاصل از این آزمایش نشان داد که جذب اورانیوم از محیط‌های آبی بوسیله غلظت‌های اولیه اورانیوم، pH محیط، مدت زمان تماس و غلظت اولیه زئولایت تحت تأثیر قرار می‌گیرد. همچنین نتایج نشان داد که جذب اورانیوم از محیط‌های آبی به شدت از pH محیط تأثیر پذیرفته و حداکثر جذب در  $\text{PH}=5$  رخ می‌دهد. همچنین با توجه به مطابقت بالای جذب اورانیوم توسط زئولایت با مدل لانگمویر، اورانیوم به طریق جذب سطحی شیمیایی یک لایه ای جذب شده است. نتایج حاصل از آزمایشات رهاسازی اورانیوم نشان داد که بهترین بازدهی رهاسازی در محلول اسید نیتریک  $1/5 \text{ M}$  و مدت زمان تماس یک ساعت صورت می‌پذیرد. بنابر نتایج مشاهده شده در این مطالعه زئولایت غنی از کلینوپتیلولایت به عنوان یک منبع طبیعی و غنی در ایران می‌تواند به عنوان گزینه ای موثر در پالایش اورانیوم از محیط‌های آبی مورد استفاده قرار گیرد.

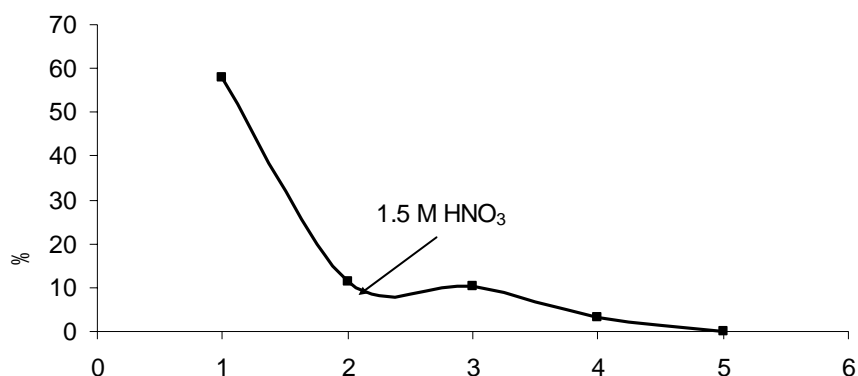
#### اثر غلظت ماده رهاسازنده بر رهاسازی اورانیوم از زئولایت

رهاسازی اورانیوم از زئولایت باقیمانده حاصل از جذب  $200 \text{ mg U L}^{-1}$  بوسیله  $10 \text{ ml}$  غلظت‌های  $0/5 \text{ HNO}_3$  تا  $3 \text{ M}$  مورد بررسی قرار گرفت (شکل ۹). مقدار اورانیوم رها شده بوسیله محلول  $1/5 \text{ M}$  در بالاترین بازدهی رهاسازی را نشان داد در حالی که در غلظت‌های  $\text{HNO}_3$  بالاتر و پایین تر از  $1/5 \text{ M}$  بازدهی رهاسازی کاهش یافت.

#### اثر مراحل مختلف رهاسازی بر رهاسازی اورانیوم از زئولایت

زئولایت باقیمانده حاصل از جذب  $200 \text{ mg U L}^{-1}$  در مراحل مختلف بوسیله  $10 \text{ ml}$  از محلول  $1/5 \text{ HNO}_3$  شستشو داده شد. نتایج حاصل از آزمایش نشان داد که  $82/7\%$  از اورانیوم جذب شده بر سطح زئولایت مورد مطالعه پس از ۴ مرحله از سطح زئولایت رهاسازی شد. نتایج حاصل از آزمایش نشان داد که بیش از نیمی از





(شکل ۱۰) - اثر مراحل رهاسازی در مقدار اورانیوم رهاسازی شده از زئولیت مورد مطالعه

## منابع

- 1- Fellows R.J., Ainsworth C.C., J.Driver C., Cataldo D.A. 1998. Dynamics and transformations of radionuclides in soils and ecosystem health. *Soil chemistry and ecosystem health. Soil Sci. Soc. Am. J.*, 52: 85-112
- 2- Entray J.A.N., Vance C., Hamilton M.A., Zabowask M.A., Zabowask D., Watrud L.S., Adrino D.C. 1996. Phytoremediation of soil contaminated with low concentrations of radionuclides, *Water, Soil and Air pollution*. 88 : 167-176.
- 3- Schnug E.S., Haneklaue C., and Schnier I.C. Scholten. 1996. Issues of natural radioactivity in phosphates. *Communication in soil science and plant analysis*, 27:829-841.
- 4- UNEP II. 2001. Depleted uranium in Kosovo. post-conflict environmental assessment.
- 5- Ribera D.F., Labort G., and Tisnerat Narbonne J.F. 1998. Uranium in the environment: occurrence, transfer and biological effects. *Reviews: environmental contamination*.
- 6- Loizidou M., and Townsend R.P. 1987. ion-exchange properties of natural clinoptilolite ferrierite and mordenite: part II. Lead sodium and lead ammonium equilibria. *Zeolites* 7 : 153-159.
- 7- Lepperd D. 1996. Heavy metal sorption with clinoptilolite: alternatives for treating contaminated soil and water. *Journal of mineral engineering* (june). 146:53-89.
- 8- Breck D.W., 1974. *Zeolite Molecular Sieves*, Wiley, NY, London, Sydney, Toronto
- 9- Haggerty G.M. and Bowman R.S. 1994. Sorption of chromate and other inorganic anions by organo-zeolite, *Environ. Sci. Technol.* 28: 452-458.
- 10- Ames L. 1967. Zeolites removal of ammonium ions from agricultural waste waters. In: *Proc.13 pacific Northwest Indust. Waste Conf. Washington states Univ. Pullman, Washington*, pp.35-152
- 11- Kirk R. E., and Othmer D.F. 1998. *Kirk-Othmer Encyclopedia of chemical Technology*. John Wiley.
- 12- Rezaei M., Akhbari D., Keshavarzi A., Alaedin M.Z., Taheri V., and Movahedi naeni S.A.R. 2008. 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)*, pp: 510.
- 13- Tehrani R.M.A. and Salari A.A. 2005. The study of dehumidifying of carbon monoxide and ammonia adsorption by Iranian natural clinoptilolite zeolite *Applied Surface Science*. 252: 866-870.
- 14- Rezaei M., and Movahedi Naeini S.A.R. 2009. effect of ammonium and Iranian natural zeolite on potassium adsorption and desorption kinetics in loess soils, *international journal of soil science*, 4:27-45.
- 15- Chapman H.D. 1965. Cation-exchange capacity. In: C. A. Black et al. (ed.) *Method of soil analysis .Part 2. Agron. Monogr. 9. ASA. Madison, WI. bache*, pp. 891-901
- 16- Carter D.L., Heilman M.D., and Gonzalez C.L. 1965. Ethelene glycol monoethyl ether for determining surface area of silicate minerals. *Soil Science*, 100: 356-360.
- 17- Onishi H., *Photometric Determination of Trace Metals, Part IIB*, John Wiley and Sons Inc., U.S.A., 1989, p. 821.
- 18- Sharma P., and Tomar R. 2008. Synthesis and application of an analogue of mesolite for the removal of uranium(VI), thorium(IV), and europium(III) from aqueous waste, *Microporous and Mesoporous Materials* 116 : 641-652.
- 19- Krestou A., Xenidas A., and Panias D. 2003. Mechanism of aqueous uranium (VI) uptake by natural zeolitic tuff, *minerals engineering* 16: 1363-1370.
- 20- Aytas S., Akyil S. and Eral M. 2004. Adsorption and thermodynamic behavior of uranium on natural zeolite, *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 260: 119-125.

- 21- Akyil S.G., Aslan A.i, and M. Eral. 2003. Sorption characteristics of uranium onto composite ion exchangers, J. Radioanal. Nucl. Chem. 256: 45-51.
- 22- Sorg T.J. 1991. Removal of Uranium from Drinking Water by Conventional Methods. In Radon, Radium and Uranium in Drinking Water, C.R. Cothorn and P. A. Rebers (Eds), Lewis Publishers, USA, 1991, p. 173.
- 23- Akyil, S., Mahmoud A.A., Aslani S., Ayta O. 1998. Distribution of uranium on zeolite X and investigation of thermodynamic parameters for this system, Journal of Alloys and Compounds 271: 769–773.



## Uranium Removal from Aqueous Solutions by Iranian Natural Zeolite – Riched Clinoptilolite

S. Bagherifam<sup>1\*</sup> - A. Lakzian<sup>2</sup> – M. Rezaei<sup>3</sup>

### Abstract

Uranium is a natural heavy metal widely dispersed across the earth crust. In many cases due to anthropogenic disturbance, it has been found beyond its natural abundance which resulted in soil-water pollution. The objective of this study was to investigate the capability of Iranian natural zeolite clinoptilolite for removal of uranium (VI) from aqueous solutions. In order to optimize removal efficiency of uranium, bath techniques were used as a function of various parameters, i.e., initial uranium concentration, pH solution, shaking time and dose of zeolite. The sorption of uranium was investigated by using Langmuir and Freundlich model. Maximum uranium uptake by zeolite achieved at 200 mg U L<sup>-1</sup>, pH 5 and 20 h contact time. The results of the experiment also revealed that Langmuir model was able to predict uranium adsorption mechanisms by zeolite more accurate than Freundlich model. Considering low cost and great natural resource of zeolite in Iran, it is suitable for environmental applications.

**Keywords:** Uranium, Zeolite, Langmuri, Freundlich

---

1,2 - PhD Student and associated Prof, Respectively, Dept. Of Soil Science College of Agriculture, Ferdowsi University of Mashhad

(\*- Corresponding author Email: Saeed\_bagherifam@yahoo.com)

3- Graduated Student of Soil Science, Gorgan University