



## جذب زیستی اورانیوم از محلول‌های آبی با استفاده از جاذب زیستی تفاله چای

محمد طاهری<sup>۱</sup>، زهرا شیر یکتا<sup>۲</sup>، مریم خواجه نوری<sup>۱</sup>، فاضل ضحاک‌فر<sup>۲\*</sup>

۱. دانشکده مهندسی شیمی، نفت، گاز، دانشگاه سمنان، ۳۵۱۳۱-۱۹۱۱۱، سمنان-ایران

۲. پژوهشکده چرخه سوخت هسته‌ای، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، تهران-ایران

### چکیده:

در این مطالعه بر روی جذب اورانیوم توسط تفاله چای بررسی انجام شد. اورانیوم گسترده‌ترین آلاینده رادیونوکلئید در سیستم‌های طبیعی است و به دلیل نیمه عمر طولانی، توزیع گسترده و سرطان‌زایی تهدیدی جدی برای سلامت انسان است. جداسازی اورانیوم از محلول‌های آبی با استفاده از روش‌های متعددی از جمله استخراج حلالی، الکترودیالیز، تبادل یون، کروماتوگرافی و... صورت می‌گیرد. این روش‌ها دارای معایبی مانند نیاز به تجهیزات فنی و سیستم‌های پایشی، مصرف زیاد انرژی، عدم توجیه اقتصادی، کارایی پایین و... می‌باشند. اما جذب زیستی به دلیل مزیت‌های ظرفیت جذب بالا، در دسترس بودن وسیع مواد بیولوژیکی کم هزینه، تقاضای انرژی پایین و... دارای برتری است. پارامترهای pH، دوز جاذب و غلظت اولیه اورانیوم و زمان تماس بررسی شدند. نقاط بهینه برای جذب اورانیوم pH=4، دوز جاذب 0.4 گرم و 10 ppm از غلظت اولیه اورانیوم و زمان تماس 60 دقیقه است. نتایج نشان داد که جاذب زیستی تفاله چای، عملکرد مطلوبی برای جذب اورانیوم از محلول‌های آبی دارد.

کلیدواژه‌ها: اورانیوم، تفاله چای، جذب زیستی، جذب

## Biosorption of uranium from aqueous solutions using tea waste

Mohammad Taheri<sup>1</sup>, Zahra Shiri-Yekta<sup>2</sup>, Maryam Khajenoori<sup>1</sup>, Fazel Zahakifar<sup>\*2</sup>

1. Faculty of Chemical, Petroleum and Gas Engineering, Semnan University, 35131-19111, Semnan, Iran
2. Nuclear Fuel Cycle Research School, Nuclear Science and Technology Research Institute, Tehran, Iran

### Abstract:

In this study, uranium uptake by tea waste was investigated. Uranium is the most widespread radionuclide pollutant in natural systems and poses a serious threat to human health due to its long half-life, widespread distribution, and carcinogenicity. Separation of uranium from aqueous solutions is done using several methods such as solvent extraction, electro dialysis, ion exchange, chromatography, etc. These methods have disadvantages such as the need for technical equipment and monitoring systems, high energy consumption, lack of economic justification, low efficiency and etc. But biosorption is superior due to the advantages of high adsorption capacity, wide availability of low-cost biological materials, low energy demand, and so on. The parameters of pH, adsorbent dose and initial uranium concentration were investigated. Optimal points for uranium uptake are pH = 4, adsorbent dose 0.4 g and 10 ppm of initial uranium concentration and contact time 60 minutes. The results showed that the tea waste biosorbent has a good performance for uranium adsorption from aqueous solutions.

**Keywords:** Uranium, Tea waste, Biosorption, Adsorption

Email: fzahakifar@aeoi.org.ir

## ۱. مقدمه

اورانیوم یک عنصر رادیواکتیو طبیعی است و می‌توان در اشکال مختلف ایزوتوپ‌ها و مواد معدنی مانند پچبلند<sup>۱</sup>، اورانیت<sup>۲</sup>، داویدیت<sup>۳</sup>، کافینیت<sup>۴</sup>، برانریت<sup>۵</sup> و توکولیت<sup>۶</sup> مشاهده کرد [۱]. اورانیوم گسترده‌ترین آلاینده رادیونوکلئید در سیستم‌های طبیعی است و منابع انسانی می‌توانند باعث آلودگی اورانیوم شوند [۲].

پساب‌های حاوی اورانیوم می‌توانند موجب آلودگی در آب‌های سطحی و زیرزمینی شوند. اورانیوم به دلیل نیمه عمر طولانی، توزیع گسترده و سرطان‌زایی تهدیدی جدی برای سلامت انسان است [۳]. سمیت اورانیوم به عوامل مختلفی از جمله غلظت، حلالیت، انواع گونه‌های اورانیوم و همچنین مسیر قرار گرفتن در معرض و زمان تماس بستگی دارد [۴]. خطراتی که اورانیوم برای سلامتی دارد شامل، صدمات جبران ناپذیر به کلیه و در موارد حاد موجب از کار افتادگی کلیه، رادیواکتیویته اورانیوم منجر به افزایش خطر سرطان و مشکلات ژنتیکی و در نهایت باعث مرگ می‌شود [۵، ۶]. همچنین حد مجاز (WHO) اورانیوم برای نوشیدن آب  $1.4 \text{ mg/L}$  است [۵].

جداسازی اورانیوم از محلول‌های آبی با استفاده از روش‌های متعددی از جمله استخراج حلالی، الکترودیالیز، تبادل یون، کروماتوگرافی، شناورسازی و استخراج فاز جامد صورت می‌گیرد [۱، ۳، ۷]. این روش‌ها دارای معایبی مانند نیاز به تجهیزات فنی و سیستم‌های پایشی، مصرف زیاد انرژی، عدم توجیه اقتصادی، کارایی پایین، بهره‌برداری با مشکل بالا، عدم انتخاب پذیری، عدم جداسازی کامل فلزات و بر جای گذاشتن باقی‌مانده‌های آلوده‌کننده می‌باشند. از طرفی این روش‌ها، هنگامی که غلظت یون‌های فلزی کمتر از  $100 \text{ mg/L}$  باشد، به اندازه کافی توانایی حذف فلزات را ندارند.

یکی از روش‌های حذف اورانیوم جذب زیستی است. این روش به دلیل مزیت‌هایی از جمله ظرفیت جذب بالا، راندمان نسبتاً بالا در غلظت کم و زیاد فلز، در دسترس بودن وسیع مواد بیولوژیکی کم هزینه، تقاضای انرژی پایین و سینتیک سریع دارای برتری نسبت به روش‌های ذکر شده است [۵]. هدف این مقاله حذف اورانیوم از محلول آبی با استفاده از جاذب زیستی چای بوده است. برای این منظور اثر پارامترهای زمان تماس، pH، دوز جاذب و غلظت اولیه اورانیوم بر جذب مورد بررسی قرار گرفت. با توجه به بررسی صورت گرفته منجی و همکاران یک تست بر روی تفاله چای که آن را از ضایعات چای کارخانه تولید چای واقع در استان گیلان شهر لاهیجان جمع‌آوری کردند، انجام دادند [۸]. اما آن‌ها بر روی پارامترهای تاثیرگذار بررسی انجام ندادند.

## ۲. روش کار

### ۱.۲. آماده سازی جاذب

تفاله چای مورد استفاده در این مطالعه از چای خام از شمال کشور (لاهیجان) تهیه شد. جهت تهیه تفاله چای به صورت شبیه سازی شده در آزمایشگاه، چای خام چندین بار با آب مقطر جوشانده شده شستشو داده شد تا اینکه آب حاصل از شستشوی چای تقریباً بی‌رنگ شده و تفاله چای به دست آید. سپس بر روی یک کاغذ تمیز قرارداده تا در هوای آزاد خشک گردند. در ادامه به مدت ۲۴ ساعت داخل آون در دمای ۷۰ درجه سانتی‌گراد قرار داده و پس از آن توسط آسیاب خرد شده و سپس با الک‌های مش بندی شده در محدوده‌ی ۴۰۰-۲۸۰ میکرومتر دانه بندی شدند. در پایان جاذب به دست آمده داخل ویال‌های شیشه‌ای ریخته شد.

<sup>1</sup> Pitchblende

<sup>2</sup> Uranite

<sup>3</sup> Davidite

<sup>4</sup> Coffinite

<sup>5</sup> Brannerite

<sup>6</sup> Thucholite

## ۲.۲. ساخت محلول

برای ساخت محلول اورانیوم با غلظت ۱۰۰۰ میلی‌گرم در لیتر مقداری مشخص از اورانیوم نیترات شش آب (شرکت مرک) در ۱۰۰۰ میلی‌لیتر آب مقطر حل شد. برای تهیه غلظت‌های کمتر از آب مقطر برای رقیق‌سازی استفاده شد. برای تنظیم pH از محلول‌های ۰/۱ نرمال سدیم هیدروکسید (NaOH) و نیتریک اسید (HNO<sub>3</sub>) استفاده شد.

## ۳.۲. روش انجام آزمایش

روش کار به این صورت است که ابتدا مقدار لازم از جاذب به وسیله ترازو وزن شده و به ظروف پلی‌اتیلن منتقل شد. سپس ۲۰ میلی‌لیتر از محلول حاوی اورانیوم با غلظت مورد نظر که pH آن توسط pH متر تعیین شده بود به ظرف پلی‌اتیلن اضافه شد. در ادامه ظروف پلی‌اتیلن در شیکر با سرعت ۱۵۰ دور در دقیقه قرار داده شد. در ادامه محلول درون ظروف پلاستیکی از کاغذ صافی عبور داده شدند. برای قرائت غلظت یون آلاینده باقی‌مانده در محلول‌ها از دستگاه طیف سنج انتشار اتمی پلاسما به روش القایی (ICP) استفاده شد. درصد حذف اورانیوم در هر آزمایش با استفاده از معادله (۱) محاسبه شد.

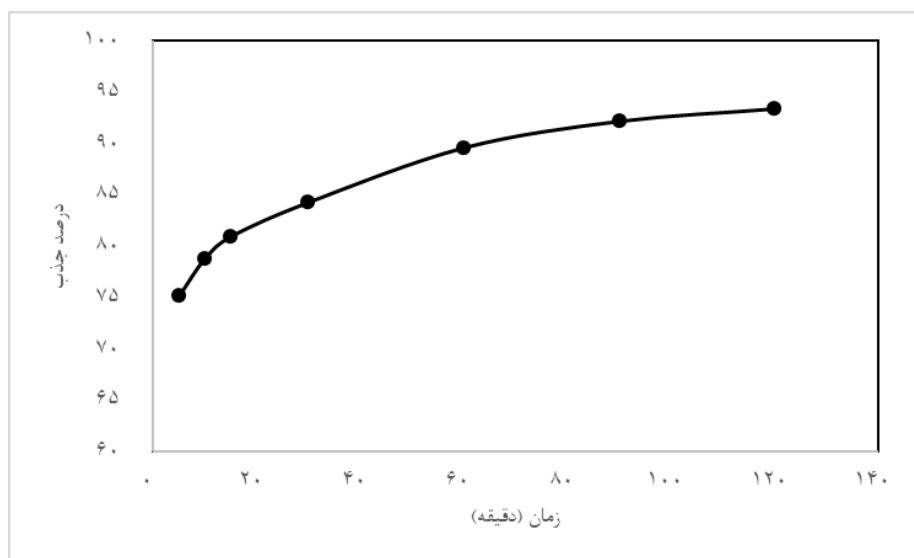
$$E_a = \frac{C_0 - C_e}{C_0} \times 100 \quad (1)$$

که در آن  $E_a$ : راندمان جذب،  $C_0$ : غلظت اولیه یون مورد نظر (mg/L)،  $C_e$ : غلظت تعادلی اورانیوم پس از فرآیند جذب (mg/L) است.

## ۳. نتایج و بحث

### ۱.۳. زمان تماس

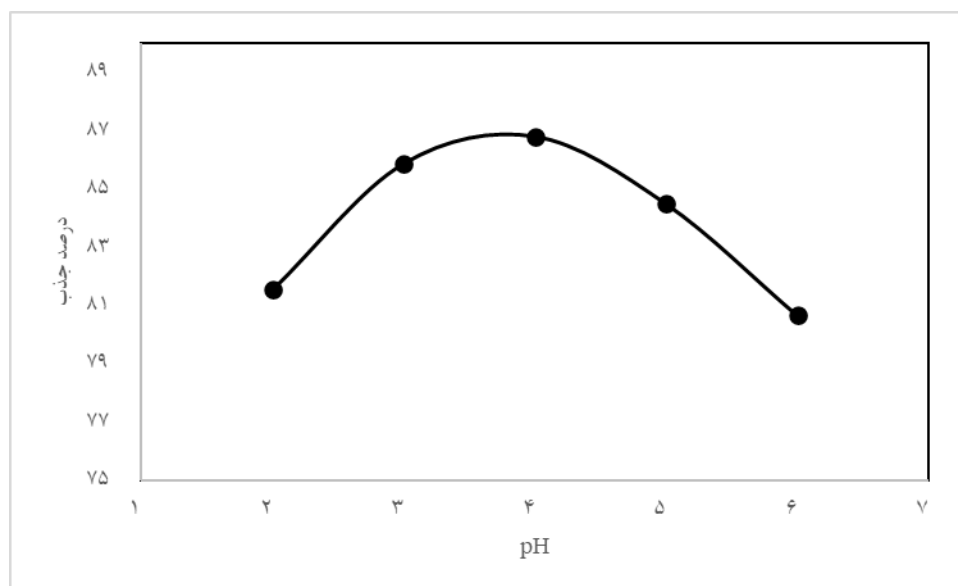
در شکل ۱ اثر زمان تماس نشان داده شده است. برای تعیین اثر زمان تماس بر روی جذب اورانیوم در دمای ۳۵ درجه سانتی‌گراد تغییر زمان از ۵ تا ۱۲۰ دقیقه بررسی شد. همان‌طور که در شکل مشخص است. در ۶۰ دقیقه بیشتر اورانیوم توسط جاذب جذب شد و در ۹۰ دقیقه به تعادل رسید. درصد جذب از ۷۵/۱۵۱ درصد در ۵ دقیقه به ۹۲/۱۲۱ درصد در ۹۰ دقیقه رسید. به عبارت دیگر افزایش ۲۲/۵ درصدی از ۵ دقیقه تا ۹۰ دقیقه داشته است. افزایش زمان تماس بین تفاله چای و اورانیوم به دلیل تماس بیشتر تفاله چای با اورانیوم سبب افزایش درصد جذب می‌شود. در ادامه تمامی آزمایشات در ۶۰ دقیقه انجام شد.



شکل ۱. اثر زمان تماس بر روی حذف اورانیوم (pH=۴، دما=۳۵ درجه سانتی‌گراد، غلظت=۵۵، دوز جاذب=۰/۲۶ گرم)

## ۲.۳. اثر pH

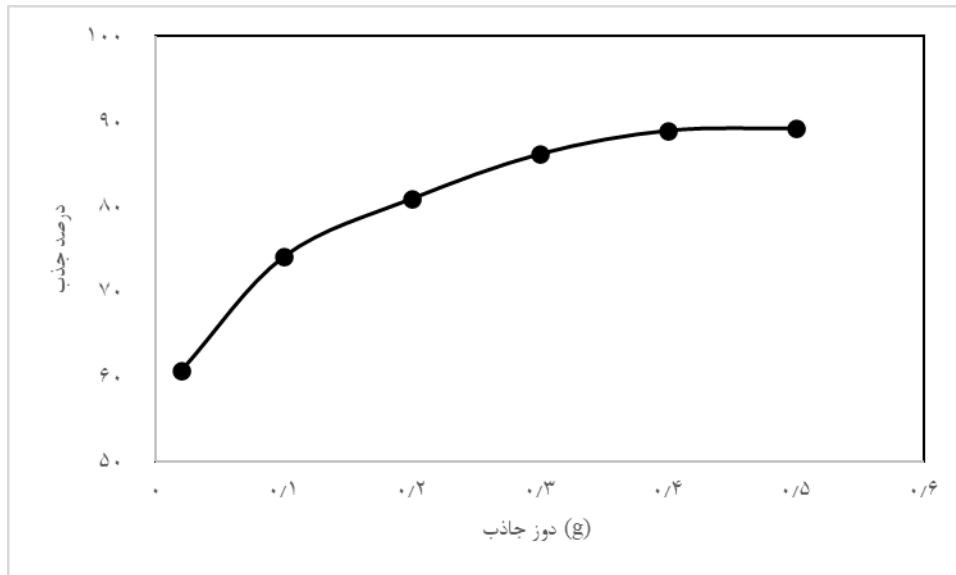
برای تعیین اثر pH بر روی جذب اورانیوم در دمای  $30^{\circ}\text{C}$  با تغییر pH محلول از مقدار ۲ تا ۶ مورد بررسی قرار گرفت که در شکل ۲ نشان داده شده است. همان طور که در شکل مشخص است در  $\text{pH} = 4$  حداکثر جذب یعنی ۸۶/۷۸۵ درصد رسید. در محیط اسیدی ( $\text{pH} < 4$ )، اورانیوم عمدتاً به شکل  $\text{UO}_2^{2+}$  وجود دارد. در  $\text{pH} > 4$ ، هیدرولیز ترکیب گونه‌های یونی ترکیباتی را حاصل می‌کند، مانند  $(\text{UO}_2)_2(\text{OH})_2^{2+}$ ،  $\text{UO}_2\text{OH}^+$  و  $(\text{UO}_2)_3(\text{OH})_5^+$  [۹]. در ضمن در pH پایین به دلیل رقابت  $\text{H}^+$  با اورانیوم باعث درصد جذب کم می‌شود. در pHهای بالا به علت وجود  $\text{OH}^-$  اورانیوم رسوب می‌کند.



شکل ۲. اثر pH بر روی حذف اورانیوم (دما =  $30^{\circ}\text{C}$ ، درجه سانتی‌گراد، غلظت = ۵۵، دوز جذب =  $0.3$  گرم، زمان تماس = ۶۰ دقیقه)

## ۳.۳. اثر دوز جاذب

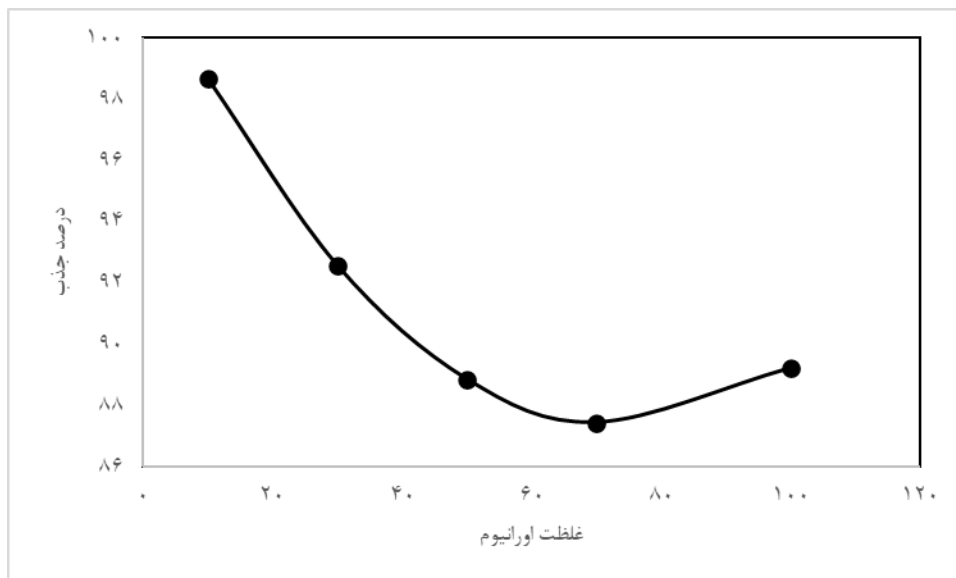
اثر دوز جاذب در شکل ۳ ارایه شده است. برای تعیین اثر دوز جاذب برای جذب اورانیوم از مقدار  $0.02$  تا  $0.5$  گرم، با ثابت نگهداشتن pH، غلظت و زمان تماس، مورد بررسی قرار گرفت. همان طور که در شکل مشخص است، افزایش دوز تفاله چای باعث افزایش جذب اورانیوم شده و سپس تغییری نمی‌کند. درصد جذب از  $60.752$  درصد در  $0.02$  گرم چای به  $88.98$  درصد در  $0.4$  گرم چای می‌رسد و بعد از آن تغییری محسوسی مشاهده نشد. به عبارت دیگر افزایش  $46.5$  درصدی از  $0.02$  به  $0.4$  گرم توسط تفاله چای داشته است. این افزایش جذب به دلیل افزایش سایت‌های فعال برای جذب اورانیوم است. ژانگ و همکارانش نیز این روند را بر روی جذب اورانیوم توسط نی برنج مشاهده کردند [۱۰].



شکل ۳. اثر دوز جاذب بر روی حذف اورانیوم (pH= ۴، دما=۳۰ درجه سانتی‌گراد، غلظت= ۵۵، زمان تماس= ۶۰ دقیقه)

#### ۴.۳. اثر غلظت اولیه اورانیوم

در شکل ۴ اثر غلظت اولیه اورانیوم ارایه شده است. برای تعیین اثر غلظت اولیه اورانیوم از مقدار ۱۰ تا ۱۰۰ ppm با ثابت نگه داشتن بقیه پارامترها مورد بررسی قرار گرفت. همان‌طور که در شکل مشخص است با افزایش غلظت اورانیوم، درصد جذب اورانیوم توسط تفاله چای کاهش یافت. درصد جذب از ۹۸/۶۸۷ درصد در ۱۰ ppm به ۸۹/۲۰۴ درصد در ۱۰۰ ppm رسید. افزایش غلظت اولیه آلاینده میزان آلاینده جذب شده در واحد جرم جاذب را افزایش می‌دهد. اما با افزایش غلظت اولیه آلاینده، کارایی حذف آلاینده (درصد جذب) کاهش می‌یابد [۱۱].



شکل ۴. اثر غلظت اولیه اورانیوم بر روی حذف اورانیوم (pH= ۴، دما=۳۰ درجه سانتی‌گراد، دوز جاذب= ۰/۴ گرم، زمان تماس= ۶۰ دقیقه)

#### ۴.۴. مقایسه پژوهش حاضر با سایر پژوهش‌ها

دینگ و همکارانش بر روی جذب اورانیوم توسط تفاله چای بررسی انجام دادند [۱۲]. آن‌ها حداکثر درصد جذب توسط تفاله چای را ۸۶ درصد گزارش کردند. همچنین پلیس و همکارانش بر روی جذب اورانیوم با استفاده از تفاله چای بر-

رسی انجام دادند [۱۳]. آن‌ها در تست اولیه درصد حذف را ۹۸٫۳ درصد گزارش کردند و به این نکته که تفاله چای در غلظت‌های پایین‌تر درصد جذب بالاتری را دارد، اشاره کردند. با توجه به موارد ذکر شده، پژوهش انجام شده مشابه این موارد است.

#### ۵. نتیجه گیری

در این مطالعه بر روی حذف اورانیوم توسط تفاله چای بررسی شده است. پارامترهای pH، دوز جاذب، غلظت اولیه اورانیوم و زمان تماس در دمای ۳۰ درجه سانتی‌گراد توسط جاذب چای مورد بررسی قرار گرفتند. pH بهینه متناسب با حداکثر جذب اورانیوم برابر با ۴ بوده است. حداکثر درصد جذب توسط چای در ۰٫۴ گرم دیده شد. با افزایش غلظت اورانیوم درصد جذب کاهش یافت. در ۶۰ دقیقه بیشترین مقدار اورانیوم جذب شد.

#### ۵. مراجع

۱. Selvakumar, R., et al., *Challenges and complexities in remediation of uranium contaminated soils: A review*. Journal of environmental radioactivity, 2018. **192**: p. 592-603.
۲. Wang, Y.-q., et al., *Adsorption of U (VI) on montmorillonite pillared with hydroxy-aluminum*. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 2018. **317**(1): p. 69-80.
۳. Gupta, N.K., et al., *Biosorption-an alternative method for nuclear waste management: a critical review*. Journal of Environmental Chemical Engineering, 2018. **6**: (2) p. 2159-2175.
۴. Saini, K., P. Singh, and B.S. Bajwa, *Comparative statistical analysis of carcinogenic and non-carcinogenic effects of uranium in groundwater samples from different regions of Punjab, India*. Applied Radiation and Isotopes, 2016. **118**: p. 196-202.
۵. Olawale, S.A., *Biosorption of Heavy Metals: A Mini Review*. Acta Scientific Agriculture, 2019. **3**: p. 22-25.
۶. Ribera, D., et al., *Uranium in the environment: occurrence, transfer, and biological effects*, in *Reviews of environmental contamination and toxicology*. 1996, Springer. p. 53-89.
۷. Aly, M.M. and M.F. Hamza, *A review: studies on uranium removal using different techniques. Overview*. Journal of dispersion science and technology, 2013. **34**(2): p. 182-213.
۸. اکبر، ب.م.، ح.م. محمد، و ق.پ. وانیک، استفاده از عامل کاهنده روی جهت بهبود فرآیند جذب اورانیوم بر روی جاذب‌های زیستی. بیست و یکمین کنفرانس هسته‌ای ایران، ۱۳۹۳.
۹. Wang, J.-s., et al., *The tolerance of Rhizopus arrhizus to U (VI) and biosorption behavior of U (VI) onto R. arrhizus*. Biochemical engineering journal, 2010. **51**(1-2): p. 19-23.
۱۰. Zhang, X., et al., *Adsorption of uranium onto modified rice straw grafted with oxygen-containing groups*. Environmental Engineering Science, 2016. **33**(12): p. 942-950.
۱۱. Taheri, M., et al., *Review of effective parameters on bioabsorption of heavy metals*. The 11th International Chemical Engineering Congress & Exhibition (IChEC 2020), 2020. **1**(551)
۱۲. Ding, D.-X., et al., *Removal and recovery of uranium from aqueous solution by tea waste*. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 2012. **293**(3): p. 735-741.



۱۳. Police, S., et al., *An investigation on the efficiency of low-cost adsorbents in removing uranium from water samples*. Applied Water Science, 2020. **10**(10): p. 1-13.