



بیست و یکمین کنفرانس هسته‌ای ایران

۷ و ۸ اسفند ماه ۱۳۹۳ دانشگاه اصفهان

بررسی تأثیر غلظت یون‌های اورانیم و کربنات در فرآیند حذف اورانیم از محلول آبی توسط غشای پلی اتر سولفون

مرتضی قاسمی ترک آباد، علیرضا کشتکار*، سید جابر صفدری، ادیب ظاهری
سازمان انرژی اتمی ایران، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، پژوهشکده‌ی چرخه‌ی سوخت هسته‌ای

چکیده

نانوفیلتراسیون فناوری نسبتاً جدید بوده که می‌توان در چرخه‌ی سوخت هسته‌ای از آن جهت جداسازی ترکیبات از محلول‌ها استفاده نمود. لذا در این پژوهش، به بررسی تأثیر غلظت یون‌های اورانیم و کربنات بر عملکرد فرآیند حذف یون‌های اورانیم از محلول آبی توسط غشای نانوفیلتر پلی اتر سولفون پرداخته شد. نتایج به دست آمده نشان داد که با افزایش غلظت اورانیم، شدت جریان عبوری از غشا و ضریب پس‌زنی اورانیم توسط غشا کاهش می‌یابد. هم‌چنین، حضور عامل کمپلکس‌دهنده-ی کربنات باعث افزایش شدت جریان عبوری و ضریب پس‌زنی می‌گردد. به نظر می‌رسد با مطالعه-ی دقیق فرآیند نانوفیلتراسیون امکان استفاده از آن در حذف و جداسازی اورانیم محلول در آب وجود دارد.

کلیدواژه: غشا، اورانیم، نانوفیلتراسیون، پلی اتر سولفون، جداسازی

مقدمه

یکی از روش‌های کارآمدی که در فرآیندهای جداسازی به منظور جداسازی یون‌های فلزی از محیط‌های مایع پیشنهاد می‌شود، استفاده از فرآیندهای غشایی است. به عنوان مثال، مزایای استفاده از روش‌های غشایی به منظور آمایش پسمان‌های هسته‌ای نسبت به فناوری‌های مرسوم که در این زمینه استفاده می‌شود (تبخیر، تبادل یون و رسوب‌دهی) شامل مصرف انرژی کم‌تر، ساختار مدولار، عملکرد پیوسته، نصب و راه‌اندازی آسان و قابلیت اتوماسیون خوب می‌باشد [۱]. هم‌چنین مهم‌ترین عواملی که با استفاده از فرآیندهای جداسازی غشایی باعث صرفه-جویی در هزینه‌ها خواهد شد شامل استفاده‌ی مجدد از مواد شیمیایی بازیابی شده، هزینه انرژی کم، بازیابی آب استفاده شده، بازیابی انرژی حرارتی و کاهش هزینه‌های مربوط به آمایش و دفن پسمان‌ها (به دلیل حجم کم) می-باشد [۲].



بیست و یکمین کنفرانس هفتای ایران

۶ و ۷ اسفند ماه ۱۳۹۳ دانشگاه اصفهان

طیف گسترده‌ای از فرآیندهای جداسازی غشایی وجود دارند که این اختلاف به نوع و شکل غشا، مکانیسم انتقال ترکیبات محلول آبی از غشا، نوع نیروی محرکه‌ی فرآیند و ... بستگی دارد. یک تمایز اصلی بین این فرآیندها، نیروی محرکه‌ی فرآیند می‌باشد. این نیروی محرکه می‌تواند گرادیان فشار، گرادیان غلظت، گرادیان پتانسیل الکتریکی و یا گرادیان دمایی باشد. در بعضی از موارد از بیش از یک نیروی محرکه استفاده می‌شود [۳، ۴]. با در نظر گرفتن نیروی محرکه‌ی گرادیان فشار، فرآیندهای غشایی به چهار گروه میکروفیلتراسیون، اولترافیلتراسیون، نانوفیلتراسیون و اسمز معکوس تقسیم‌بندی می‌شوند [۳، ۴].

هدف از این پژوهش، بررسی تاثیر غلظت یون‌های اورانیم و حضور یون‌های کربنات (CO_3^{2-}) بر عملکرد فرآیند نانوفیلتراسیون در حذف اورانیم از محلول آبی توسط غشای نانوفیلتر پلی اتر سولفون می‌باشد. فرآیند نانوفیلتراسیون یک فناوری نسبتاً جدید می‌باشد که از اواسط دهه‌ی ۱۹۸۰ میلادی توسعه پیدا کرده است. این فرآیند، فرآیندی مابین فرآیند اولترافیلتراسیون و اسمز معکوس بوده و معمولاً انتخاب‌پذیری خوبی نسبت به جداسازی یون‌های دو ظرفیتی از یون‌های تک ظرفیتی دارد. این موضوع یک مزیت مهم و از جمله دلایل رشد سریع تجاری شدن این فرآیند است. [۵-۸]. به نظر می‌رسد بتوان از نتایج حاصل از این پژوهش در مطالعه و انتخاب فناوری نانوفیلتراسیون جهت کاربرد در صنعت چرخه‌ی سوخت هسته‌ای استفاده نمود.

روش کار

در این پژوهش جهت انجام آزمایش‌ها یک سیستم آزمایشگاهی جریان متقاطع با مدول غشایی قاب و صفحه‌ای طراحی و ساخته شد. در شکل ۱ تصویری از این سیستم آورده شده است. هم‌چنین با توجه به مطالعات انجام شده و امکانات شرکت‌های واردکننده‌ی تجهیزات و مواد آزمایشگاهی، جهت انجام این پژوهش غشای نانوفیلتر پلی اتر سولفون ساخت شرکت Sepro Membranes با MWCO برابر با ۲ KDa تهیه شد.

تمام آزمایش‌ها در دمای محیط انجام شد. محلول‌های مورد نیاز با استفاده از آب بدون یون و نمک نیترات اورانیل ($\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$) ساخته شد. pH محلول‌ها با استفاده از HCl و NaOH یک مولار و به وسیله‌ی یک pH متر در مقادیر دلخواه تنظیم شد. هم‌چنین از نمک کربنات سدیم (Na_2CO_3) جهت اضافه



شکل ۱- تصویری از سیستم آزمایشگاهی ساخته شده



بیست و یکمین کنفرانس هشتاد و یکم ایران

۶ و ۷ اسفند ماه ۱۳۹۳ دانشگاه اصفهان

نمودن عامل کمپلکس دهنده ی کربنات به محلول، استفاده شد. غلظت اورانیم محلول در آب با استفاده از دستگاه طیف سنج نشری اتمی-پلاسمای جفت شده ی القایی (ICP-AES) در طول موج $409/014 \text{ nm}$ اندازه گیری شد.

یکی از پارامترهایی که جهت بررسی عملکرد یک غشا با نیرو محرکه ی فشار لحاظ می گردد، ضریب پس زنی یون ها می باشد. این پارامتر با تعیین غلظت یون ها در جریان خوراک و جریان عبوری از غشا به دست می آید. پس زنی جزء i که با R_i نمایش و به صورت درصد بیان می شود، از رابطه ی ۱ به دست می آید [۹-۱۲].

$$R_i = \left(1 - \frac{C_i^P}{C_i^F}\right) \times 100 \quad (1)$$

پارامترهای C_i^P و C_i^F به ترتیب غلظت جزء محلول i در جریان خوراک و جریان عبوری از غشا می باشد.

نتایج

پارامترهای تاثیرگذار بر عملکرد یک نانوفیلتر شامل بار و اندازه ی یون، اندازه ی حفرات غشا، مواد غشا و بار سطحی آن، شرایط محلول (pH، غلظت و قدرت یونی)، نوع یون های رقیب و شرایط عملیاتی (شدت جریان عبوری از غشا، سرعت مماسی جریان و فشار) می شود [۱۳، ۱۴]. لازم به ذکر است که مطالعه ی اثر تغییرات پارامترهای عملیاتی بر روی عملکرد غشا ابزار مفیدی برای بررسی میزان انتقال ماده ی محلول، خواص جداسازی غشا و هم-چنین انتخاب مقادیر بهینه می باشد [۱۵]. هم چنین لازم به ذکر است غالباً در پژوهش ها، جهت مطالعه ی اثر یک پارامتر، آن پارامتر را تغییر داده و سایر پارامترها ثابت نگه داشته می شود [۱۴].

در این پژوهش جهت مطالعه ی اثر غلظت خوراک و غلظت عامل کمپلکس دهنده ی کربنات، آزمایش هایی مطابق با جداول ۱ و ۲ صورت گرفت. هم چنین، نتایج به دست آمده برای شدت جریان محلول عبوری از غشا و ضریب پس زنی نیز در جداول ۱ و ۲ آورده شده است.

جدول ۱- آزمایش های مربوط به بررسی اثر غلظت اورانیم به همراه نتایج آزمایشگاهی به دست آمده

ضریب پس زنی (%)	شدت جریان عبوری (ml/min)	غلظت کربنات (mM)	غلظت خوراک (mM)	شدت جریان خوراک (l/h)	فشار (bar)	pH	رتبه
۹۸/۶۱	۱۹/۵	۰	۰/۲۵	۸۰	۴	۷	۱
۸۴/۸۴	۶/۲۵	۰	۱	۸۰	۴	۷	۲

جدول ۲- آزمایش های مربوط به بررسی اثر عامل کمپلکس دهنده ی کربنات به همراه نتایج آزمایشگاهی به دست آمده

ضریب پس زنی (%)	شدت جریان عبوری (ml/min)	غلظت کربنات (mM)	غلظت خوراک (mM)	شدت جریان خوراک (l/h)	فشار (bar)	pH	رتبه
۹۱/۵۸	۱۱	۰	۱	۲۰	۸	۷	۱



بیست و یکمین کنفرانس هسته‌ای ایران

۶ و ۷ اسفند ماه ۱۳۹۳، دانشگاه اصفهان

ضریب پس زنی (%)	شدت جریان عبوری (ml/min)	غلظت کربنات (mM)	غلظت خوراک (mM)	شدت جریان خوراک (l/h)	فشار (bar)	pH	تعداد
۹۲/۶۶	۱۲/۲۵	۵	۱	۲۰	۸	۷	۲

بحث و نتیجه گیری

با توجه به نتایج به دست آمده مشخص است که افزایش غلظت یون‌های اورانیم در محلول خوراک باعث کاهش شدت جریان عبوری از غشا و همچنین ضریب پس زنی اورانیم توسط غشا می‌شود. افزایش غلظت یون در محلول از دو طریق بر روی میزان پس زنی آن توسط غشا تاثیر می‌گذارد. هنگامی که غلظت یک یون در محلول اطراف غشا افزایش می‌یابد، نیروی‌های الکترواستاتیک مابین غشا و یون‌های موجود در محلول ضعیف‌تر می‌شود. همچنین، نیروی محرکه‌ی غلظت جهت انتقال یون از غشا افزایش می‌یابد که باعث افزایش نفوذ یون و انتقال آن از غشا می‌شود. لذا این دو موضوع باعث کاهش پس زنی یون‌ها توسط غشا خواهد شد [۱۳، ۱۴].

در یک پژوهش دیگر [۱۵]، نیز بیان شده است که با افزایش غلظت خوراک، فشار اسمزی افزایش می‌یابد. این فشار اسمزی متعاقباً منجر به کاهش شدت جریان عبوری از غشا می‌شود و لذا با کاهش میزان عبور حلال از غشا، میزان پس زنی غشا نیز کاهش می‌یابد (رقیق شدن محلول باقی‌مانده بر روی غشا دلیل کاهش میزان پس زنی یون‌ها از غشا می‌باشد).

یکی از عوامل موثر بر عملکرد فرآیندهای غشاییانیرومحرکه‌یفشار، استفاده از عوامل کمپلکس‌دهنده در محلول فرآیندی می‌باشد. انتخاب نوع کمپلکس‌دهنده، وزن مولکولی و غلظت آن در محلول، شدیداً بر روی میزان جداسازی یون مورد نظر تاثیرگذار خواهد بود. لازم به ذکر است که استفاده از عوامل کمپلکس‌دهنده به همراه فرآیند فیلتراسیون، یک فناوری نسبتاً جدید می‌باشد [۱۶].

در یک پژوهش [۱۷]، از کربنات سدیم (NaHCO_3) به عنوان عامل تشکیل کمپلکس استفاده شد. حضور این ماده در محیط باعث تشکیل کمپلکس‌های مختلفی نظیر $\text{UO}_2(\text{CO}_3)_2^{2-}$ و $\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3^{4-}$ با اورانیم می‌شود. لذا در این پژوهش نیز از یون‌های کربنات به عنوان عامل کمپلکس‌دهنده استفاده شد. نتایج به دست آمده نشان داد که حضور یون‌های کربنات به عنوان عامل کمپلکس‌دهنده، باعث افزایشی در حدود ۱۰ درصد در شدت جریان عبوری از غشا و همچنین تاثیر ناچیزی در افزایش میزان پس زنی یون‌های اورانیم توسط غشا دارد.

در نهایت با توجه به ضریب پس زنی بالایی که برای اورانیم به دست آمد به نظر می‌رسد که با مطالعه‌ی دقیق‌تر فرآیند نسبتاً جدید نانوفیلتراسیون، امکان استفاده از آن در بخش‌های مختلف چرخه‌ی سوخت هسته‌ای به منظور حذف و جداسازی اورانیم محلول در آب وجود دارد.

مراجع



بیست و یکمین کنفرانس هسته ای ایران

۶ و ۷ اسفند ماه ۱۳۹۳ دانشگاه اصفهان

- [1] M. Sancho, J.M. Arnal, G. Verdú, J. Lora, J.I. Villaescusa, Ultrafiltration and reverse osmosis performance in the treatment of radioimmunoassay liquid wastes, *Desalination*, 201:207–215 (2006)
- [2] Y.C. Huang, S.S. Koseoglu, Separation of heavy metals from industrial waste streams by membrane separation technology, *Waste Management*, 13: 481-501 (1993)
- [3] A. Bassil, Industrial Extraction of Uranium Using Ammonium Carbonate and Membrane Separation, in: United States Patent, Andrew Bassil, (2014)
- [4] Application of Membrane Technologies for Liquid Radioactive Waste Processing, in, IAEA, Vienna, pp. 145 (2004)
- [5] W. Zuo, G. Zhang, Q. Meng, H. Zhang, Characteristics and application of multiple membrane process in plating wastewater reutilization, *Desalination* 222: 187–196 (2008)
- [6] L.F. Greenlee, D.F. Lawler, B.D. Freeman, B. Marrot, P. Moulin, Reverse osmosis desalination: Water sources, technology, and today's challenges, *Water Research*, 43: 2317-2348 (2009)
- [7] J. Tanninen, S. Platt, A. Weis, M. Nyström, Long-term acid resistance and selectivity of NF membranes in very acidic conditions, *Journal of Membrane Science* 240: 11–18 (2004)
- [8] B. Van der Bruggena, M. Manttari, M. Nystrom, Drawbacks of applying nanofiltration and how to avoid them: A review *Separation and Purification Technology*, 63: 251-263 (2008)
- [9] A. Favre-Reguillon, G. Lebuzit, D. Murat, J. Foos, C. Mansour, M. Draye, Selective removal of dissolved uranium in drinking water by nanofiltration, *Water Research*, 42: 1160-1166 (2008)
- [10] A. Favre-Reguillon, G. Lebuzit, J. Foos, A. Guy, M. Draye, M. Lemaire, Selective Concentration of Uranium from Seawater by Nanofiltration, *Ind. Eng. Chem. Res.*, 42: 5900-5904 (2003)
- [11] A. Favre-Reguillon, G. Lebuzit, J. Foos, A. Guy, A. Sorin, M. Lemaire, M. Draye, Selective Rejection of Dissolved Uranium Carbonate from Seawater Using Cross-Flow Filtration Technology, *Separation Science and Technology*, 40: 623–631 (2005)
- [12] F. Bi, H. Zhao, L. Zhang, Q. Ye, H. Chen, C. Gao, Discussion on calculation of maximum water recovery in nanofiltration system, *Desalination*, 332: 142–146 (2014)
- [13] Treatment of liquid effluent from uranium mines and mills, in, IAEA, pp. 27-44 (2004)
- [14] F. Chang, W. Liu, X. Wang, Comparison of polyamide nanofiltration and low-pressure reverse osmosis membranes on As(III) rejection under various operational conditions, *Desalination* 334: 10–16 (2014)
- [15] C.V. Gherasim, P. Mikulášek, Influence of operating variables on the removal of heavy metal ions from aqueous solutions by nanofiltration, *Desalination*, 343: 67-74 (2014)
- [16] G. Zakrzewska-Trznadel, Radioactive solutions treatment by hybrid complexation–UF/NF process, *Journal of Membrane Science*, 225: 25–39 (2003)
- [17] O. Raff, R.D. Wilken, Removal of dissolved uranium by nanofiltration, *Desalination*, 122:147-150 (1999)