

بررسی مقدار جذب Co^{2+} و رادیونوکلئیدهای ^{58}Co و ^{60}Co به وسیله نانوذرات تیتانوسیلیکات حاوی Nb و Ge

سعید علمدار میلانی¹، نوشین طلایی^{2*} و حمید رضا آقابزرگ³

1- پژوهشکده چرخه سوخت هسته ای، سازمان انرژی اتمی ایران، تهران، ایران

2- دانشکده شیمی، دانشگاه آزاد اسلامی واحد تهران شمال، تهران، ایران

3- پژوهشگاه صنعت نفت، تهران، ایران

دریافت: اسفند 1389 : پذیرش: فروردین 1390

چکیده: نانوذرات تیتانوسیلیکات حاوی نیوبیم و ژرمانیم به روش آب گرمایی سنتز و به وسیله روش های XRD، XRF، BET و SEM شناسایی شدند. الگوی پراش پرتو X نمونه ی سنتز شده نشان می دهد که Nb و Ge در مجموع به مقدار ۲۵٪ درصد وزنی در ساختار نانوذرات تیتانوسیلیکات جایگزین شده است. همچنین نتیجه تجزیه عنصری به دست آمده به وسیله XRF با مقدارهای نظری از همخوانی خوبی برخوردارند. بررسی میزان جذب نمونه ها نشان داد که، بیشترین جذب Co فعال و غیر فعال مربوط به نمونه تیتانوسیلیکات (TS) حاوی Nb و Ge است. به بیان دیگر حضور این دو عنصر در کنار هم، جذب TS را نسبت به حالت هایی که هر کدام از این دو عنصر به تنهایی جایگزین شده باشند، افزایش می دهد.

واژه های کلیدی: تیتانوسیلیکات، نیوبیم- ژرمانیم تیتانوسیلیکات، نانوذرات، رادیونوکلئیدهای ^{60}Co و ^{58}Co .

مقدمه

های اخیر مورد توجه قرار گرفته اند. رادیو ایزوتوپ های ^{60}Co ^{58}Co که ساطع کننده پرتو گاما هستند، در پساب های مراکز صنعتی هسته ای یافت می شوند. این ایزوتوپ ها به ویژه ^{60}Co نیم عمر طولانی دارند. پژوهش های زیادی در مورد حذف این آلاینده های صنعتی ارایه شده است. برای مثال، می توان به کار Kozlowski، Nam kim، Kurucz، Granados، همکارانشان اشاره کرد. آن ها با استفاده از غشاهای پلیمری، بنتونیت و کلینوپتیلولیت توانسته اند این آلاینده را از پسماندهای

در سال های اخیر نانو ذرات به دلیل ویژگی های خاص مانند دانسیته کم، سطح ویژه زیاد، پایداری حرارتی و مکانیکی و نفوذپذیری سطحی آن ها مورد توجه پژوهشگران قرار گرفته اند. تیتانوسیلیکات ها که به دلیل ساختار بلوری لایه ای و حضور کاتیون های تبادله در ساختارشان، از ظرفیت تبادل یونی و جذب فیزیکی-شیمیایی بالایی برخوردار هستند، به عنوان جاذب های طبیعی برای حذف فلزهای سنگین از پساب های صنعتی درسال

صنعتی و هسته ای حذف یا کاهش دهند. در این کار پژوهشی، برای نخستین بار مقدار جذب ^{58}Co Co^{2+} ^{60}Co نانوذرات تیتانوسیلیکات حاوی Nb Ge (1:1) و نیز اثر دما و زمان بر فرایند جذب نمونه‌های ساخته شده مورد بررسی

بخش تجربی

مواد مورد استفاده

تترا اتیل اورتوسیلیکات (TEOS) 99٪، تیتانیم تترا ایزوپروپوکساید (TIPT) 99٪، نیوبیم اکساید Nb_2O_5 99/99٪، ژرمانیم اکساید (GeO_2) 99/99٪، کبالت کلراید (CoCl_2) 99/5٪، سدیم هیدروکساید (NaOH) 99/99٪، هیدروکلریدریک اسید (HCl) 97٪ ساخت شرکت مرک آلمان. از پساب واکنشگاه تهران حاوی رادیونوکلئیدهای ^{58}Co ^{60}Co

تهیه نانو ذرات ژرمانیم- نیوبیم تیتانوسیلیکات

سنتز نانوذرات تیتانوسیلیکات حاوی نیوبیم و ژرمانیم به روش آب گرمایی انجام شد. برای تهیه نانو ذرات ژرمانیم- نیوبیم تیتانوسیلیکات با درصد وزنی مساوی ژرمانیم و نیوبیم (در مجموع 25%) 5/7 میلی لیتر تترا اتیل اورتوسیلیکات، 7 میلی لیتر تیتانیم تترا ایزوپروپوکساید، مخلوط 50:50 ژرمانیم اکساید و نیوبیم اکساید (Ge/50 - Nb /50) 100 میلی لیتر محلول سدیم هیدروکساید 33/3

1 خوردن با سرعت بالا بر روی همزن مغناطیسی، به اتوکلاو منتقل 4 روز در کوره در دمای 170 درجه سانتیگراد حرارت داده شدند. سپس مخلوط به دست آمده صاف و نانو ذرات سفید رنگ روی صافی خشک و در 2

3 100 میلی لیتر محلول 1

هیدروکلریدریک اسید در دمای محیط هم زده شد. سپس مخلوط صاف و نانو ذرات خشک شدند. در مرحله دوم شستشو، نانوذرات 100 میلی لیتر محلول 1 مولار سدیم هیدروکساید در دمای 3 40 °C

و خشک شدند.

برای مطالعه جذب کبالت کلراید، 25 میلی لیتر محلول 5700 ppm از این ماده را تهیه کرده و در بشر ریخته و 1/5 گرم از نانو ذرات مورد نظر به آن افزوده شد. این مخلوط به مدت 12 ساعت با همزن مغناطیسی هم زده و سپس مخلوط صاف و شستشو شد. محلول زیر صافی به وسیله جذب اتمی مورد بررسی قرار گرفت. همچنین برای بررسی جذب فعال، 250 میلی لیتر از پساب برای شمارش اولیه مورد آنالیز گاما اسپکتروسکوپی قرار 25 میلی لیتر از پساب با 1/5

12 ساعت روی هم زن مغناطیسی هم زده شدند. سپس مخلوط را صاف و محلول زیر صافی برای بررسی با روش گاما اسپکتروسکوپی مورد استفاده قرار گرفت. کلیه آزمایش های مورد نظر در این بررسی 3 بار تکرار شدند.

روش های شناسایی

نمونه‌های سنتز شده به وسیله پراش پرتو ایکس (XRD) کارگیری یک دستگاه پراش سنج ساخت شرکت فیلیپس PW1800، میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM) شرکت فیلیپس مدل XL30، فلوتورسانس پرتو ایکس (XRF) ساخت آکسفورد مدل ED2000 و دستگاه طیف سنج جذب اتمی (AAS) varian ساخت استرالیا مدل AA100 شناسایی شدند. مساحت سطح نانو ذرات به وسیله دستگاه آنالیز BET کشور ایالات محده آمریکا مدل County coram اندازه گیری شد. همچنین برای بررسی مقدار جذب فعال نمونه ها از دستگاه گاما اسپکتروسکوپی مدل Silena CAT ADC 7412

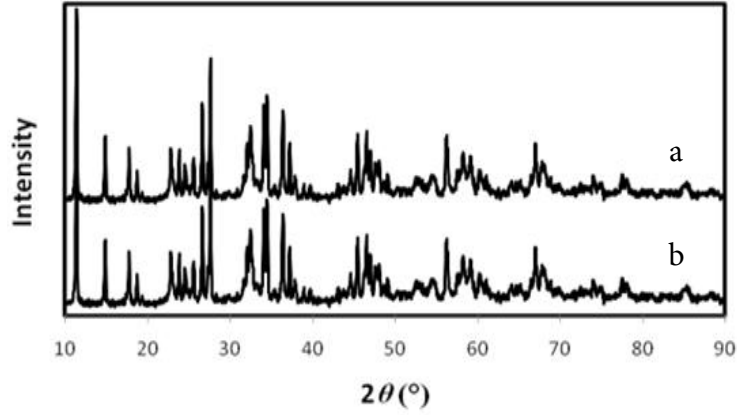
نتیجه ها و بحث

شکل 1 مقایسه الگوی پراش پرتو X نمونه سنتز شده نیوبیم- ژرمانیم تیتانوسیلیکات و نمونه مرجع را نشان می دهد. همان گونه که مشاهده می شود، این الگوها از هم خوانی خوبی برخوردارند. به بیان دیگر Nb Ge () 25% درصد وزنی کل نمونه) در ساختار نانوذرات تیتانوسیلیکات جایگزین شده اند.

... Co^{2+}

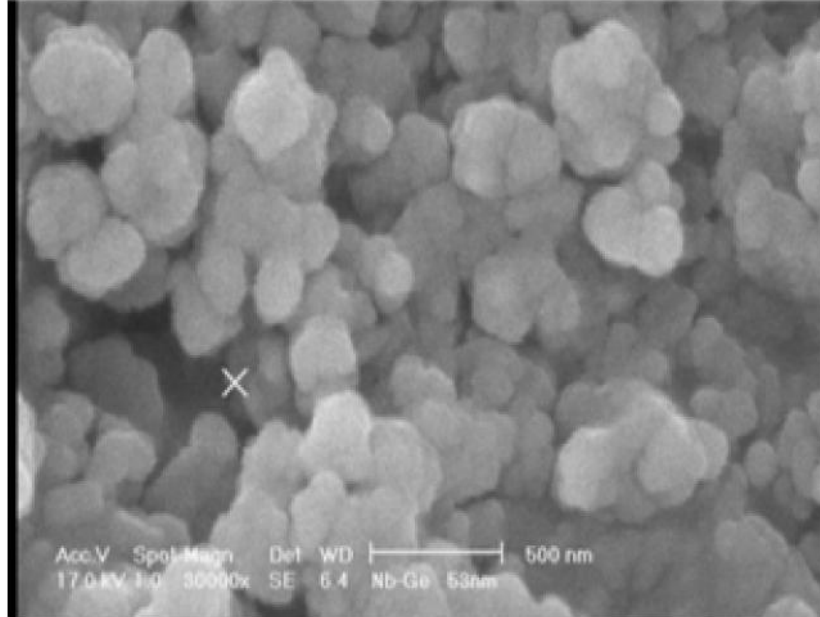
می دهد که اندازه ذرات در مقیاس نانو هستند و از یکنواختی به

شکل 2 تصویر SEM نانو ذرات ژرمانیم-نیوبیم تیتانوسیلیکات (TS 50% Nb- 50%Ge) را نشان می دهد. این تصویر نشان



(b) TS (a) (TS50% Nb- 50%Ge)

شکل 1 الگوی پراش پرتو ایکس (XRD)



شکل 2 تصویر SEM نانو ذرات ژرمانیم-نیوبیم تیتانوسیلیکات

می یابد. همچنین میزان جذب تیتانوسیلیکات به تنهایی کمتر از زمانی است که نیوبیم و ژرمانیم در آن جایگزین شده باشند. افزایش میزان جذب برای نمونه ی تیتانوسیلیکات حاوی ژرمانیم و نیوبیم (50%Nb - 50%Ge) هم خوانی دارد. به بیان دیگر با افزایش مساحت سطح و حجم کل حفره ها، میزان جذب نیز افزایش می یابد.

بررسی اثر زمان بر کارایی جذب نانو ذرات ژرمانیم- نیوبیم تیتانوسیلیکات (TS 50% Nb- 50%Ge)

شکل 4 تغییرات مقدار جذب نمونه نانو ذرات ژرمانیم- نیوبیم تیتانوسیلیکات (TS 50% Nb- 50%Ge)

نشان می دهد. همان طور که مشاهده می شود با افزایش زمان جذب میزان جذب کبالت، بر نمونه نیز افزایش می یابد به گونه ای که با فرصت دهی بیشتر به نانو ذرات سنتز شده در حضور آلاینده ها تا 72 100% آلاینده ها جذب می شود.

1 نتیجه تجزیه عنصری نمونه های سنتز شده آورده شده است. نتیجه های به دست آمده تطابق خوبی با نسبت های استوکیومتری مورد نظر دارد. همان طور که در بخش های قبلی ذکر شد نیوبیم و ژرمانیم در 25٪ وزنی ساختار کلی تیتانوسیلیکات جایگزین شده اند.

مساحت سطح نمونه ها که به وسیله روش BET 2 آورده شده است. همان گونه که مشاهده می شود مساحت سطح و حجم حفره های نمونه حاوی ژرمانیم و نیوبیم از نمونه های دیگر بیشتر است.

بررسی جذب Co^{2+} بر روی جاذب
شکل 3 روی نانو ذرات تیتانوسیلیکات و تیتانوسیلیکات حاوی Nb Ge 12 می دهد. همان طور که در این شکل مشاهده می شود با افزایش درصد وزنی نیوبیم تا حدود 50٪ میزان جذب این یون نیز افزایش

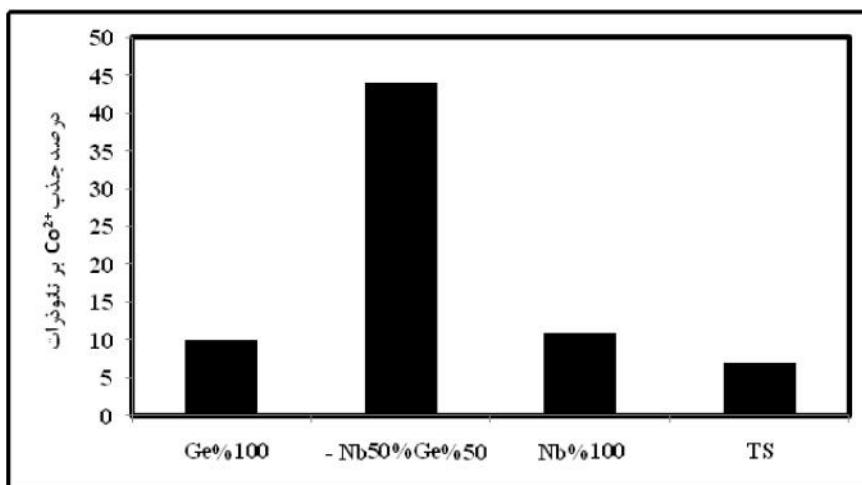
1 نتیجه تجزیه عنصری نمونه ها به وسیله XRF

Nb ₂ O ₅ wt%		GeO ₂ wt%		
		**	*	
11/9	12/5	12/3	12/5	Ge%50 - Nb%50
24/4	25/0	0/0	0/0	Nb%100
0/0	0/0	23/8	25/0	Ge%100

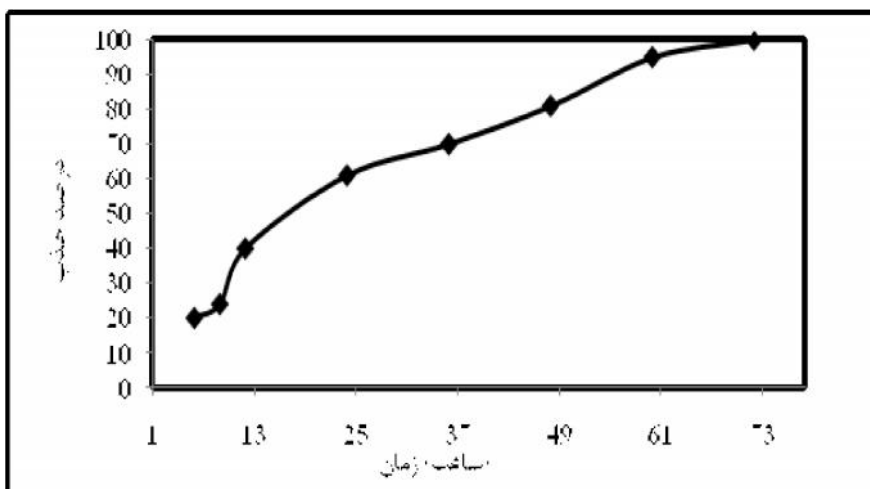
2 نتیجه مساحت سطح ویژه نمونه ها به وسیله BET

	میانگین اندازه حفره ها (nm)	حجم کل حفره ها (ml/g)	
(m ² /g)			
7	1	220	Nb%100
52	4	1000	Ge%50 - Nb%50
3	1	200	Ge%100

... Co^{2+}



شکل 3 مقایسه مقدار جذب Co^{2+} روی نانو ذرات تیتانوسیلیکات و تیتانوسیلیکات حاوی Ge Nb



شکل 4 Co^{2+} بر روی نانو ذرات ژرمانیم- نیوبیم تیتانوسیلیکات (50% Nb - 50% Ge)

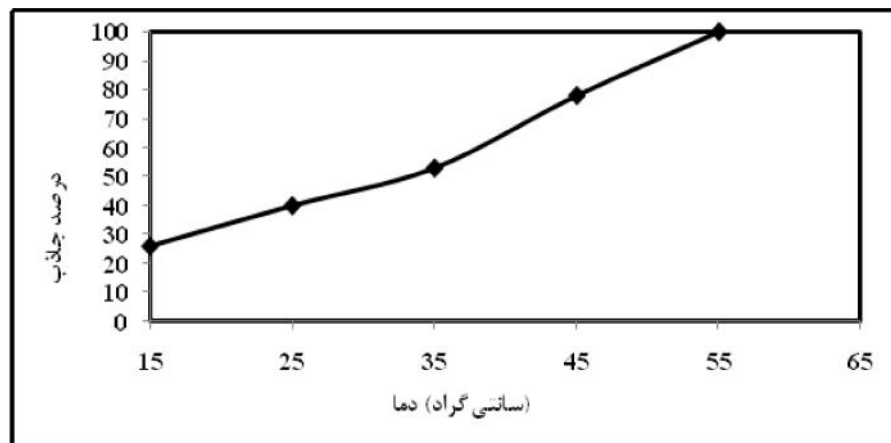
اسپکتروسکوپی
حاوی Nb و TS) $Ge\ 50\% - Nb\ 50\%$ با روش آنالیز گاما

این بررسی بر اساس روش ارایه شده در بخش تجربی انجام شد. برای اطمینان به نتیجه به دست آمده، آزمایش ها 3 بار تکرار شدند. نتیجه های مربوط در جدول های 3 و 4 همان گونه که مشاهده می شود، در هر 3 بار یون های کبالت موجود در پساب مورد بررسی به طور کامل، جذب نانو ذرات مورد

بررسی اثر دما بر مقدار جذب نانو ذرات ژرمانیم- نیوبیم تیتانوسیلیکات ($TS\ 50\% - Nb\ 50\%$)

شکل 5 تغییر مقدار جذب جذب بر حسب دما را نشان می دهد. همان گونه که این شکل نشان می دهد با افزایش دما از دمای محیط تا $55\ ^\circ C$ 80٪ افزایش در میزان جذب مشاهده می شود و جذب به طور کامل صورت می گیرد.

بررسی مقدار جذب Co^{60} و Co^{64} بر نانو ذرات تیتانوسیلیکات



شکل 5 Co^{2+} بر روی نانو ذرات ژرمانیم- نیوبیم تیتانوسیلیکات (TS 50% Nb- 50%Ge)

3 ^{60}Co به وسیله دستگاه گاما اسپکتروسکوپی برای نمونه (TS 50% Nb- 50%Ge)

		مرتبۀ آزمایش
0	CPM 2489	1
0	CPM 2681	2
0	CPM 2756	3

4 ^{58}Co به وسیله دستگاه گاما اسپکتروسکوپی برای نمونه (TS 50% Nb- 50%Ge)

		مرتبۀ آزمایش
0	CPM 2203	1
0	CPM 2251	2
0	CPM 2371	3

نتیجه گیری

باشند، افزایش می دهد و به 100٪ می رساند. همچنین بررسی اثر دما بر روی جذب نشان می دهد که میزان جذب در دمای $30^{\circ}C$ 55° کامل می شود و تنها با افزایش $30^{\circ}C$ بهینه دست یافت. همچنین بررسی جذب کبالت فعال نشان می دهد که نانو ذرات سنتز شده به راحتی ^{60}Co ^{58}Co واکنشگاه تهران جذب کرده اند.

بر اساس داده های به دست آمده می توان نتیجه گرفت که، بیشترین جذب یون Co فعال و غیر فعال بر روی نمونه تیتانوسیلیکات (TS) Nb Ge مربوط به حالتی است که این دو عنصر به طور هم زمان در ساختار TS جایگزین شوند. به بیان دیگر، حضور این دو عنصر در کنار هم، جذب TS حالت هایی که هر کدام از این دو عنصر به تنهایی جایگزین شده

... Co²⁺

[6] Nam Kim, G.; Yang, B.; Choi, W.; Lee, K.; Separation and Purification Technology; 68, 222–226(2009).

[7] Kurucz, C.; Waite, T.; Otano, S.; Cooper, W.; Radiation Physics and Chemistry.; 65, 367-378(2002).

[8] Granados, F.; Bertin, V.; Bulbolian, S.; Applied Radiation and Isotopes.; 64, 291-297 (2006).

[9] Altomare, A.; Foadi, J.; Giacobozzo, C.; Moliterni, A.G.G.; Burla, M.c.; Polidori, G.; Appl. Cryst.; 31, 74 (1998).

[10] Talaie, N.; Aghabozorg, H.R.; Milani Alamdar, S.; submitted

مراجع

[1] Manuals Gogotsi, I. Iu. G.; Nano Materials Hand Book, WILEY-VCH, USA; 25-32; 2006.

[2] Rao, C. N. R.; Nath, M.; Inorganic nanoparticles, Dalton trans.; 18, 1-24 (2003).

[3] Tripathi, A.; Medvedev, D. G.; Delgado, J.; Clearfield, A.; Solid state chem.; 177, 2903-2915 (2004).

[4] Puziy, A. M.; Radioanalytical chem.; 237, 73-79 (1998).

[5] Kozłowski, C.; Walkowiak, W.; Pellowski, W.; Desalination.; 242 , 29–37 (2009).

The study of Co^{2+} , ^{60}Co and ^{58}Co radionuclides adsorption onto titanosilicate nanoparticles containing Nb and Ge

S. Alamdar Milani¹, N. Talaie^{2,*} and H. R. Aghabozorg³

1- Nuclear Fuel Cycle Research School, Nuclear Science and Technology Research Institute, Tehran, Iran.

2- Department of chemistry, Islamic Azad University-North Tehran Branch, Tehran, Iran.

3- Research Institute of Petroleum Industry, Tehran, Iran.

Received: March 2011, Revised: March 2011, Accepted: April 2011

Abstract: Titanosilicate nanoparticles containing Nb and Ge were synthesized using a hydrothermal method. The synthesized compounds were characterized by using XRD, XRF, BET and SEM analysis. X ray diffraction patterns of synthesized samples showed that Nb and Ge were doped simultaneously into titanosilicate nanoparticles up to 25 wt%. Elemental analysis results obtained by XRF are in agreement with those of calculated. The adsorption study of samples indicated that the adsorption capacity of the TS samples containing Nb and Ge were more than the others.

Keywords: Titanosilicate; Niobium-Germanium Titanosilicate; nanoparticles, ^{60}Co and ^{58}Co radionuclides, Co Ion.

*E mail: Talaie_2009@yahoo.com