

HIỆU SUẤT TÁCH URANIUM TRONG MẪU DUNG DỊCH SỬ DỤNG NHỰA TRAO ĐỔI CATION C100

Huỳnh Nguyễn Phong Thu², Ngô Mỹ Hạnh¹, Huỳnh Uyên Chi², Võ Thị Tố Vy², Nguyễn Phạm Tường Minh², Tô Xuân Phương², Lê Thùy Nhi², Nguyễn Lâm Thùy Linh², Nguyễn Văn Thắng², Trần Thị Thùy Linh², Lê Công Hảo²

¹Trường Đại Học Sư Phạm TP Hồ Chí Minh, 280 An Dương Vương, Quận 5, Tp. HCM

²Trường Đại Học Khoa Học Tự Nhiên ĐHQG-HCM, 227 Nguyễn Văn Cừ, Quận 5, Tp. HCM

Email: lchao@hcmus.edu.vn

TÓM TẮT

Trong nghiên cứu này, chúng tôi trình bày phương pháp tách uranium trong dung dịch uranium chuẩn bằng nhựa trao đổi cation C100 có giá thành thấp. Các thông số ảnh hưởng đến quá trình tách như độ pH, thời gian chảy, nồng độ axit rửa giải được khảo sát nhằm tối ưu hoá việc hấp phụ uranium của nhựa C100. Với các điều kiện đã điều chỉnh, hiệu suất quá trình hấp phụ uranium trên nhựa là khá cao và dao động trong khoảng 97-98%, trong khi đó hiệu suất quá trình rửa giải có thể đạt trên 83%.

Từ khóa: tách uranium, hấp phụ uranium, nhựa trao đổi cation C100.

ABSTRACT

1. Giới thiệu:

Trước đây, để tách uranium các nhà khoa học thường sử dụng các chất tách chuyên dụng và đắt tiền như tri-n-octyl phosphine oxide (TOPO) [1] với giá thành thương mại khoảng 3,6 triệu VND cho 100 g [2] hay tri-n-butyl phosphate (TBP) [3] với giá thành khoảng 1,39 triệu VND cho 1 lít dung dịch [4]... Chi phí đắt đỏ là một trong những nguyên nhân dẫn tới việc cần phải nghiên cứu về các loại vật liệu mới cho hiệu quả tách uranium tương đương nhưng giá thành thấp hơn. Vì vậy việc áp dụng khả năng hấp phụ các nguyên tố trên bề mặt của nhựa đã được các nhà khoa học trên thế giới quan tâm và nghiên cứu nhờ các ưu điểm vượt trội về khả năng hấp phụ tốt cũng như tiết kiệm nguyên liệu, giá thành thấp vào khoảng <100 nghìn VND cho 1 kg nhựa. Nhựa anion là đối tượng đầu tiên được chú ý với hàng loạt công trình nghiên cứu đã được thực hiện như nhựa Amberlite IRA-402 [5], Amberlite IRA-425 [6], Dowex-IX8 [7]... Từ những kết quả đạt được từ nhựa anion, các nhà nghiên cứu đã mở rộng phạm vi cho loại nhựa trao đổi ion khác là nhựa trao đổi cation. Tuy nhiên, tùy thuộc vào từng loại nhựa cation khác nhau, tính chất của chúng cũng như điều kiện môi trường hấp phụ từ đó mà có sự thay đổi cho từng loại. Đồng thời, nguyên tố chúng ta khảo sát cũng là một điểm đáng lưu ý bởi các thông số hấp phụ của nhựa cũng thay đổi tùy thuộc vào nguyên tố đó. Một số phương pháp để khảo sát sự bám của uranium lên bề mặt nhựa trao đổi cation đã từng được thử nghiệm trên thế giới như phương pháp động mà trong đó điển hình là nghiên cứu của Kawwassek và cộng sự [8]. Họ đã sử dụng phương pháp khuấy nhựa AHR cùng dung dịch uranium nitrat bằng máy khuấy từ [8] và đạt được kết quả khá tốt. Còn đối với phương pháp tĩnh (sử dụng cột trao đổi) được Bahattacharyya và cộng sự sử dụng trong nghiên cứu về việc tách uranium từ dung dịch thorium bằng nhựa Dowex 50Wx4 và Dowex 50Wx8 sử dụng axit nitric nồng độ trung bình [9].

Trong nghiên cứu này, để tách uranium chúng tôi sử dụng nhựa trao đổi cation C100 có giá thành thấp thay thế cho các loại chất tách riêng biệt đắt tiền đã được nghiên cứu trước đó. Nhựa trao đổi cation C100 là một loại nhựa trao đổi cation axit mạnh, được dùng nhiều trong việc làm mềm nước hoặc loại bỏ kim loại trong nước. Với hình học là hình cầu nhỏ có kích thước 0,3-1,2 mm, nên diện tích tiếp xúc của hạt nhựa với uranium khá lớn [11]. Cùng với việc sử dụng nhựa trao đổi cation mới, các thông số của quá trình thí nghiệm cũng được điều chỉnh để xác định điều kiện phù hợp nhất cho việc tách uranium đạt hiệu quả tối ưu. Hiệu suất của quá trình được đánh giá qua hai giai đoạn là quá trình làm cho uranium hấp phụ lên nhựa và quá trình rửa giải để thu lại lượng uranium lên nhựa. Lượng uranium được xác định nhờ quá trình điện phân uranium lên các đĩa inox và sau đó được đo bằng hệ phổ kế alpha.

Sự ảnh hưởng của các thông số thí nghiệm tác động lên sự hấp phụ uranium của bề mặt nhựa sẽ là tâm điểm của của bài báo này. Các thông số như độ pH của dung dịch, nồng độ axit, tốc độ chảy của dung dịch sẽ được kiểm tra và so sánh để đưa ra điều kiện phù hợp cho nhựa trao đổi cation C100.

2. Bố trí thí nghiệm:

2.1. *Bố trí thí nghiệm hấp phụ uranium trên nhựa và rửa giải uranium:*

Nhựa C100 được sản xuất bởi hãng Purolite với thông số kỹ thuật được trình bày ở bảng 1. Cột được dùng là cột nhựa polypropylene có đường kính trong là 1,2 cm và cao 8 cm. Khối lượng nhựa C100 dùng cho một lần tách là 2 g. Bố trí cột nhựa cho thí nghiệm trao đổi cột được miêu tả như hình 1. Sau khi được cân và cho vào cột (không nhồi chặt), nhựa được rửa sạch nhiều lần với axit hydrochloric nồng độ 2 M và axit nitric nồng độ 1 M để loại bỏ cặn bẩn hoặc nhiễm bẩn (nếu có).

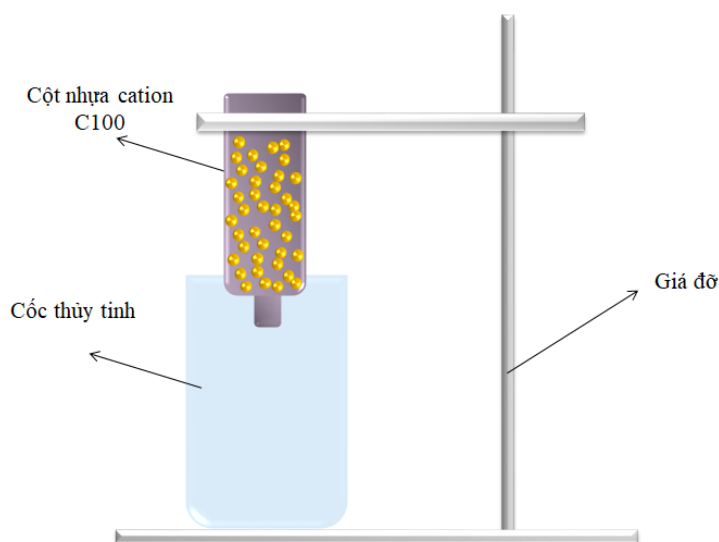
Bảng 1. Đặc tính kỹ thuật của nhựa trao đổi cation axit mạnh C100

Đặc tính kỹ thuật	
Hình dạng	Hình cầu màu vàng
Cấu trúc	Polystyrene liên kết chéo
Góc ion trao đổi	Na ⁺
Kích thước hạt	0,3-1,2 mm
Độ ẩm	44-48 %
Tỷ trọng	850 g/L
Dung lượng trao đổi	2,0 eq/L
Khoảng pH làm việc	6-10
Nhiệt độ hoạt động	< 80 ⁰ C

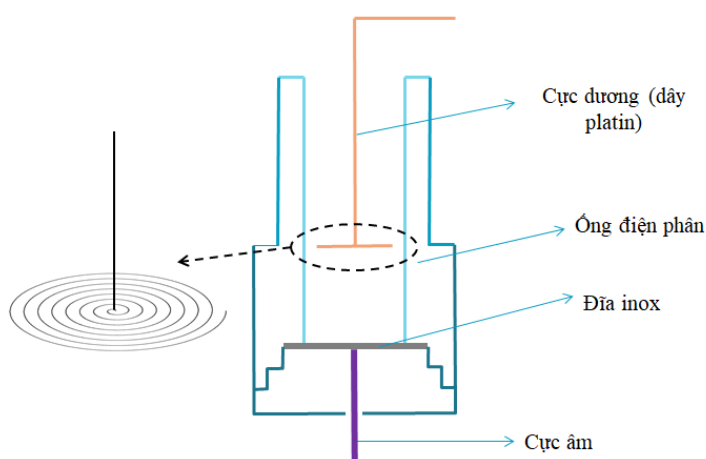
Để thực hiện thí nghiệm, đầu tiên một lượng nhỏ dung dịch uranium chuẩn nồng độ ~ 2 Bq/mL được cô cạn và cuối cùng được hòa với 5 mL dung dịch axit nitric có độ pH~2 [8]. Sau đó cho dung dịch này chảy qua cột nhựa với tốc độ chảy là 1 mL/phút. Cuối cùng, uranium được rửa giải bằng 30 mL axit nitric nồng độ 2 M.

2.2. Tạo mẫu đo:

Dung dịch điện phân bao gồm 1 mL axit nitric 10% và 10 mL ammonium sunphate nồng độ ~ 0,23M (15 g ammonium sunphate pha với 500 mL nước cất) được thêm vào dung dịch axit nitric chứa uranium sau khi đã cô cạn [10]. Dung dịch điện phân được đổ vào bình điện phân có cực dương (anode) làm bằng dây platin, cực âm (cathode) được nối với đĩa inox. Quá trình điện phân diễn ra trong 60 phút với cường độ dòng điện ổn định ở 500 mA [8,10]. Mặt cắt dọc bình điện phân được miêu tả như hình 2.



Hình 1. Bố trí cột nhựa cho thí nghiệm trao đổi cột.



Hình 2. Mặt cắt dọc bình điện phân.

2.3. Đo phổ của uranium và tính hiệu suất quá trình:

Mẫu uranium chuẩn được đo bằng hệ phổ kế Alpha Analyst được sản xuất bởi hãng CANBERA. Hệ phổ kế được điều khiển và xử lý thông qua phần mềm Genie-2000. Ứng

dụng Alpha Acquisition & Analysis là phần mềm đi kèm theo hệ đo, ngoài ra hệ đo được nối với một máy bơm chân không có nhiệm vụ hút chân không buồng đo alpha.

Dựa vào dữ liệu thu được từ phổ, ta tính được hiệu suất hấp phụ uranium của nhựa trao đổi cation C100 và hiệu suất quá trình rửa nhựa.

Hoạt độ đo mẫu được tính theo công thức (1.1)

$$A_{do} = \frac{S}{t \cdot \varepsilon} \quad (1.1)$$

Trong đó, A_{do} (Bq) là hoạt độ đo bằng hệ phổ kế alpha, S (số đếm) là diện tích đỉnh phổ, t (s) là thời gian đo, ε (%) là hiệu suất ghi của detector (trong thí nghiệm này ε có giá trị là $19,90\% \pm 0,71\%$).

Sai số hoạt độ đo được tính theo công thức (1.2)

$$\sigma_{A_{do}} = A_{do} \cdot \sqrt{\left(\frac{\sigma_S}{S}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_\varepsilon}{\varepsilon}\right)^2} \quad (1.2)$$

Với $\sigma_{A_{do}}$ (Bq) là sai số thực nghiệm, σ_S (%) là sai số diện tích đỉnh phổ, σ_ε (%) là sai số hiệu suất detector.

Hiệu suất của quá trình được tính theo công thức (1.3)

$$H = \frac{A_{do}}{A_{tt}} \quad (1.3)$$

Trong đó, A_{tt} (Bq) là hoạt độ của nguồn chuẩn.

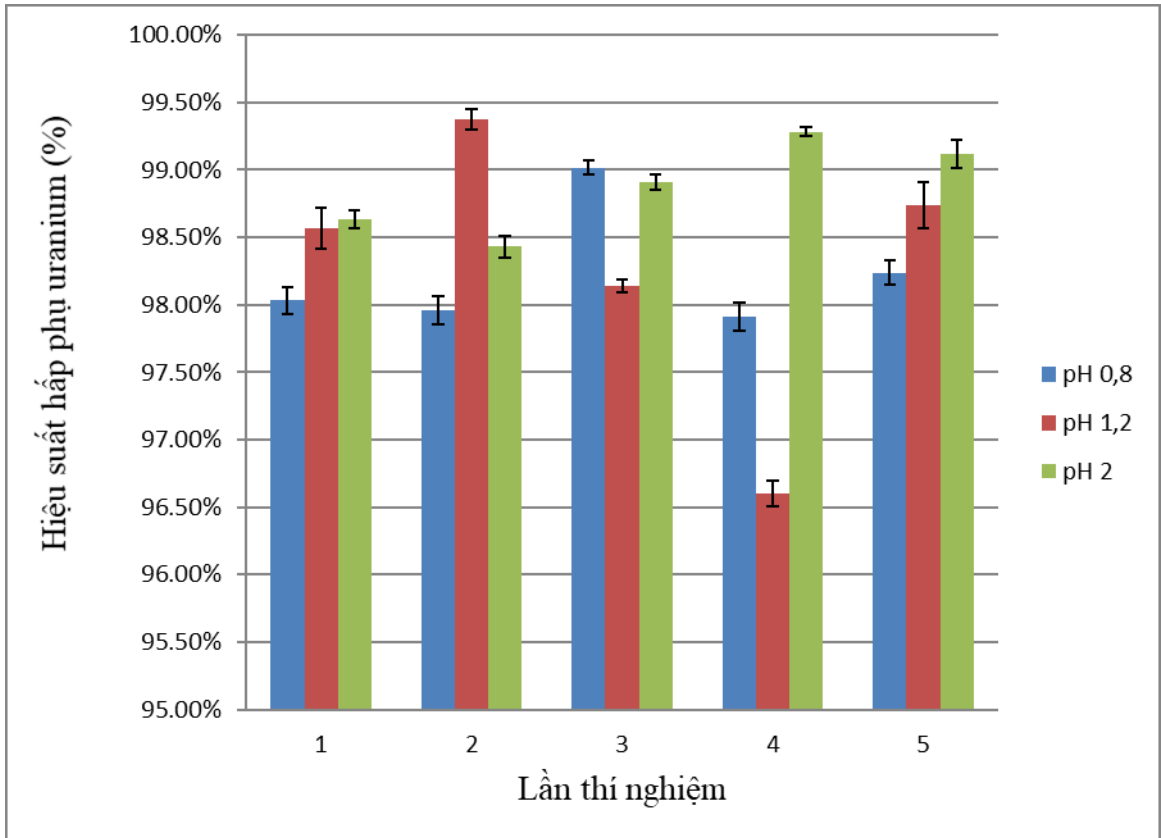
Sai số hiệu suất của quá trình được tính theo công thức (1.4)

$$\sigma_H = H \cdot \sqrt{\left(\frac{\sigma_{A_{do}}}{A_{do}}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_{A_{tt}}}{A_{tt}}\right)^2} \quad (1.4)$$

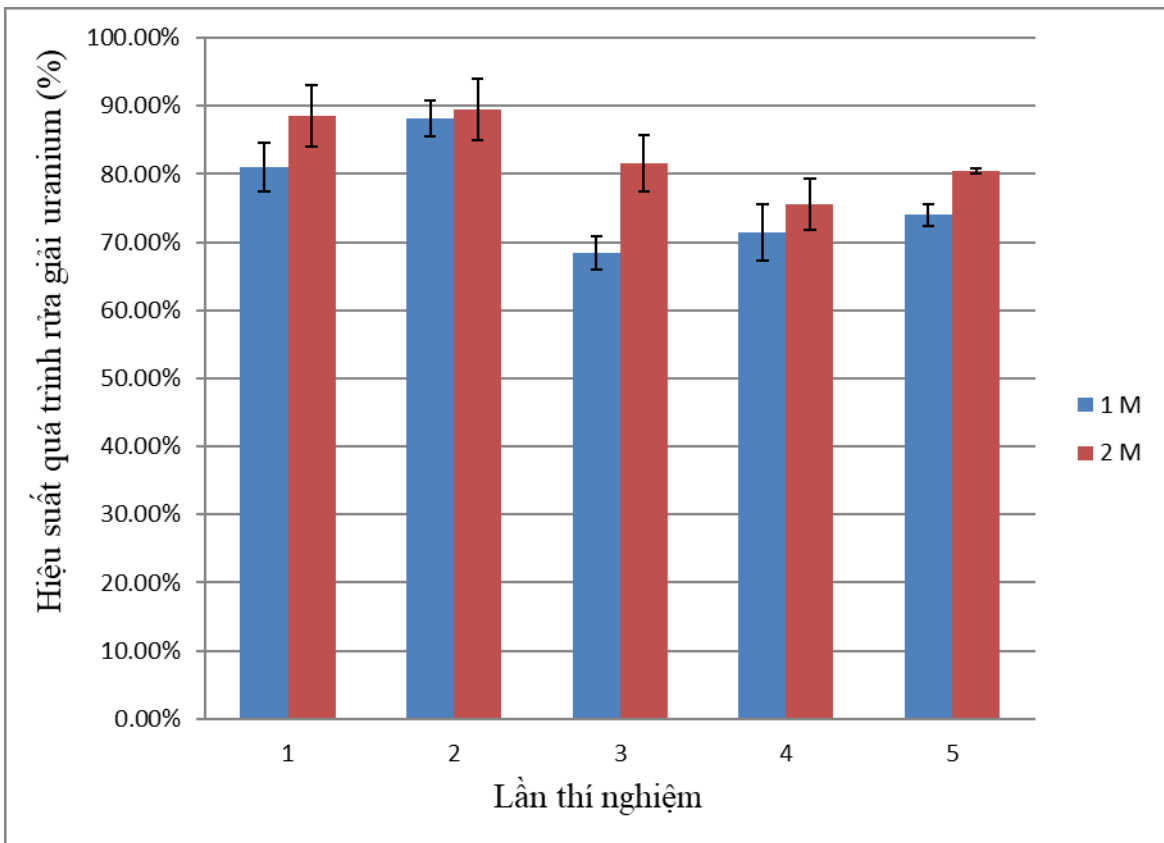
Trong đó $\sigma_{A_{tt}}$ (%) là sai số hoạt độ nguồn chuẩn.

3. Kết quả và thảo luận:

Ảnh hưởng của độ pH lên quá trình hấp phụ uranium của nhựa cation C100 được thể hiện ở hình 3. Nước sau khi chảy qua cột nhựa với tốc độ chảy 1 mL/phút sẽ được cô cạn và điện phân. Lượng uranium có trong nước thải càng thấp chứng tỏ lượng uranium được hấp phụ trên nhựa càng cao. Phần trăm trung bình uranium bám lại trên nhựa theo độ pH=0,8 là $98,20\% \pm 0,09\%$, pH=1,2 là $98,28\% \pm 0,12\%$ và pH=2 là $98,88\% \pm 0,07\%$. Kết quả đối với độ pH bằng 2, nhựa cation C100 sẽ hấp phụ uranium nhiều hơn so với độ pH bằng 1,2 và 0,8. Tuy nhiên sự chênh lệch không lớn cho thấy nhựa cation C100 hấp phụ tốt uranium trong khoảng pH từ 0,8 đến 2 với hiệu suất trung bình xấp xỉ $98,46\% \pm 0,09\%$. Nguyên nhân của sự thăng giáng của các giá trị có thể đến từ việc đồng nhất pH môi trường nhựa chưa được hoàn toàn. Hơn nữa, ở pH khác nhau (tức nồng độ axit khác nhau) hệ số phân bố D của uranium trên nhựa và dung dịch mẫu là khác nhau.

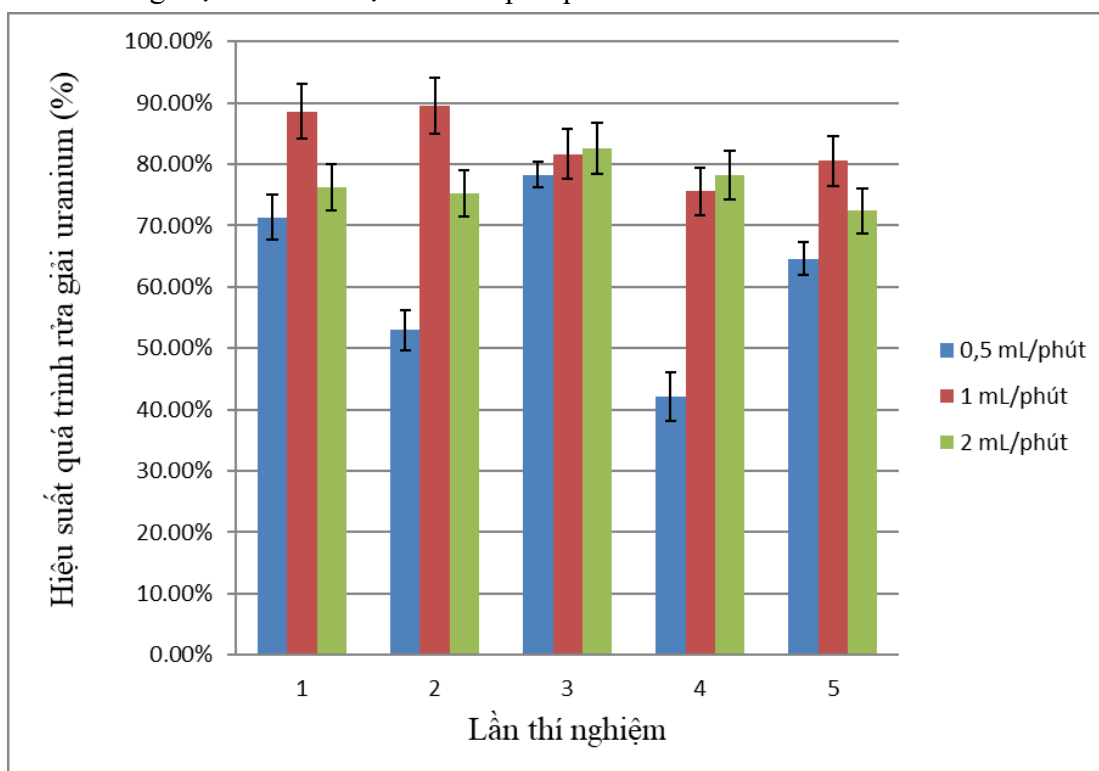


Hình 3. Độ pH ảnh hưởng tới khả năng hấp phụ uranium của nhựa cation.



Hình 4. Nồng độ axit ảnh hưởng tới khả năng rửa giải uranium của nhựa cation C100.

Sau quá trình hấp phụ uranium, nhựa cation C100 được rửa giải bằng axit nitric. Trong nghiên cứu của mình, chúng tôi sử dụng axit nitric với nồng độ 1 M và 2 M để tiến hành rửa giải. Kết quả được thể hiện ở hình 4. Khả năng rửa giải tốt uranium trên nhựa trao đổi cation Dowex 50Wx8 và Dowex 50Wx4 của axit nitric nồng độ 1 M đã được chỉ ra ở nghiên cứu của Bahattacharyya và cộng sự [9]. Trong nghiên cứu của tác giả Bahattacharyya, nhựa Dowex 50Wx4 được rửa giải bằng axit nitric nồng độ 1 M cho hiệu suất lên tới $99,2\% \pm 0,6\%$, hiệu suất này có thể coi là khá cao chứng tỏ khả năng rửa giải uranium của axit nitric. Nhưng khi chúng tôi thực hiện rửa giải tương tự cho nhựa cation C100 thì hiệu suất trung bình của quá trình với axit nitric nồng độ 1 M là $76,61\% \pm 2,88\%$. Điều này chứng tỏ axit nitric nồng độ 1 M có khả năng rửa giải uranium trên nhựa cation C100 tuy nhiên hiệu suất là chưa tốt. Chính vì thế chúng tôi quyết định tăng nồng độ của axit rửa giải lên 2 M để khảo sát. Tuy vậy chúng tôi chỉ tăng nồng độ lên 2 M mà không tăng lên 3 M hay 4 M là vì muốn giữ nồng độ của axit ở mức thấp nhằm hạn chế lượng axit phải sử dụng cũng như chi phí của quá trình rửa giải, đồng thời tiết kiệm thời gian nghiên cứu. Sau khi khảo sát, khả năng rửa giải uranium trên nhựa cation C100 của axit nitric nồng độ 2M là $83,16\% \pm 3,46\%$. Kết quả này cao hơn hẳn kết quả rửa bằng axit nitric nồng độ 1 M là $76,61\% \pm 2,88\%$. Nhận thấy hiệu suất rửa giải uranium trên nhựa cation C100 của axit nitric nồng độ 2 M là tương đối cao, có thể chấp nhận được đồng thời phù hợp tiêu chí vừa tăng hiệu suất vừa hạn chế chi phí quá trình tách.



Hình 5. Tốc độ chảy của axit ảnh hưởng tới khả năng rửa giải uranium của nhựa cation C100.

Ngoài nồng độ axit rửa giải, tốc độ chảy của axit qua nhựa cũng là một trong những thông số chúng tôi quan tâm và tiến hành khảo sát. Để đánh giá sự ảnh hưởng của tốc độ chảy đến khả năng rửa giải uranium của axit, chúng tôi cho 30 mL dung dịch axit nitric 2 M chảy qua cột nhựa với tốc độ chảy là 0,5 mL/phút, 1 mL/phút và 2 mL/phút và kết quả được thể hiện ở hình 5. Rửa giải uranium với tốc độ chảy là 1 mL/phút cho hiệu suất trung bình là $83,16\% \pm 4,20\%$ cao hơn so với tốc độ chảy 0,5 mL/phút là $61,88\% \pm 3,12\%$ và 2 mL/phút là $76,92\% \pm 3,88\%$. Sự thăng giáng trong kết quả thí nghiệm có thể do khi tốc độ chảy quá nhanh, lượng uranium hấp phụ trên bề mặt nhựa không kịp được rửa giải bởi axit chảy qua, vì thế sau khi rửa giải, uranium vẫn còn bám trên bề mặt nhựa. Khi tốc độ chảy quá chậm, hiện tượng bắt giữ ngược lại uranium của nhựa có thể diễn ra khiến uranium thu được sau rửa giải giảm đi và không đồng đều. Mỗi lần thí nghiệm đều chịu một vài yếu tố tác động tới hiệu suất cuối cùng, vì vậy, ứng với mỗi điều kiện thay đổi đều được thực hiện 5 lần và sau đó lấy trung bình kết quả để đưa ra kết luận cuối cùng nhằm đảm bảo tính thống kê của nghiên cứu.

4. Kết luận:

Độ pH của dung dịch có ảnh hưởng mạnh tới khả năng hấp phụ uranium của nhựa cation C100. Các kết quả cho thấy uranium được hấp phụ tốt trong dung dịch có độ pH thấp, khoảng nhỏ hơn 2. Trong khi đó axit nitric có nồng độ 2 M cho khả năng rửa giải uranium hiệu quả hơn nồng độ 1 M trên nhựa cation C100, đồng thời tốc độ chảy của dung dịch rửa giải cũng có ảnh hưởng tới việc rửa giải uranium. Trong các điều kiện của nghiên cứu này, các kết quả nghiên cứu cho thấy, ở tốc độ chảy 1mL/phút việc rửa giải uranium là tối ưu. Như vậy, việc ứng dụng nhựa cation C100 vào việc làm sạch các nguồn nước bị nhiễm phóng xạ uranium hay khảo sát lượng uranium có nguồn gốc từ nước ngầm.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

- [1] T. Sato and T. Nishida, "The extraction of uranium(VI) from hydrochloric acid solutions by tri-n-octyl phosphine oxide", *Journal of Inorganic and Nuclear Chemistry*, Vol. 36, 1974, pp. 2087-2089.
- [2] <https://www.fishersci.co.uk/shop/products/tri-n-octylphosphine-oxide-99-acros-organics-3/p-3737674>.
- [3] S. V. Bagawde, P. R. Vasudava Rao, V. V. Ramakrishna and S. K. Patil, "The effect of temperature on the extraction of uranium(VI) from nitric acid by tri-n-butyl-phosphate", *Journal of Inorganic and Nuclear Chemistry*, Vol. 40, 1978, pp. 1913-1918.
- [4] <https://www.sigmaaldrich.com/catalog/product/aldrich/158615?lang=en®ion=VN>.
- [5] M. Abdel Aal, "Purification of uranium concentrate from Abo-Rushied ore material with emphasize upon ion exchange technique", *Faculty of science Ain Shams University*, 2014.
- [6] M. S. Abd El-Ghany, M. A. Mahdy, N. M. Abd Elmonem and N. T. El-Hazek, "Pilot plant studies on the treatment of El Atshan uranium ores, Eastern Desert, Egypt", *International Nuclear Information System*, Vol. 28, 1994, p. 229.
- [7] C. D. Barnes, R. A. da Silva Neves, M. Streat, "Anion exchange of uranium from aqueous sulphuric acid solutions: diffusion kinetics", *Journal of Applied Chemistry and Biotechnology*, Vol. 24, 1974, pp. 787-801.
- [8] Y. M. Kawassek, A. M. Masoud, M. H. Taha and A. E. M. Husein, "Kinetics and thermodynamics of uranium ion adsorption from waste solution using Amberjet 1200 H as

- cation exchanger”, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, Vol. 315, 2017, pp. 493-502.
- [9] A Bhattacharyya, P. K. Mohapatra, P. N. Pathak and V. K. Manchanda, “Cation-exchange separation of uranium from thorium in nitric acid medium”, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, Vol. 268, 2006, pp. 323–328.
- [10] J. S. Oh, P. E. Warwick, I. W. Croudace and S. H. Lee, “Evaluation of three electrodeposition procedures for uranium, plutonium and americium”, *Applied Radiation and Isotopes*, Vol. 87, 2014, pp. 233-237.
- [11] A.A. Elabd, W.I. Zidan, M.M. Abo-Aly, E. Bakier, M.S. Attia, Uranyl ions adsorption by novel metal hydroxides loaded Amberlite IR120, *Journal of Environmental Radioactivity*, Vol. 134, 2014, pp. 99-108.

**SEPARATION EFFICIENCY OF URANIUM FROM STANDARD URANIUM
SOLUTION USING CATION EXCHANGE RESIN**

**Huynh Nguyen Phong Thu², Ngo My Hanh¹, Huynh Uyen Chi², Vo Thi To Vy², Nguyen Pham
Tuong Minh², To Xuan Phuong², Lê Thuy Nhi², Nguyen Lam Thuy Linh², Nguyen Van Thang²,
Tran Thi Thuy Linh², Le Cong Hao²**

¹Ho Chi Minh City University of Pedagogy, 280 An Duong Vuong street, District 5, HCM City

²University of Science, VNU-HCM, 227 Nguyen Van Cu street, District 5, HCM City

Email: lchao@hcmus.edu.vn

ABSTRACT

In this study, we present a method for separating uranium from standard uranium solution using low-cost cation exchange resin C100. Effects of some parameters on the separating such as pH, flow rate, acid concentration were investigated to give best conditions for the adsorption of uranium on the C100 resin. Findings show that the adsorption efficiency of the C100 resin is quite high and ranges from 97% to 98%, while the efficiency of elution of uranium is over 83%.

Keyword: uranium separation, uranium absorption, C100 cation exchange resin.