

Optimization of Process Parameters in the Stripping (Back-Extraction) of Uranium and Thorium: An Experimental Batch-Scale Study

Mohammad Kargar Vajargah¹, Abbas Rashidi², Jaber Safdari³, Mohammad Hassan Mallah⁴

1. Department of Chemical Engineering, Faculty of Engineering and Technology, University of Mazandaran, Babolsar, Iran. E-mail: mohammad.kargar.ir@gmail.com
2. Corresponding author, Department of Chemical Engineering, Faculty of Engineering and Technology, University of Mazandaran, Babolsar, Iran. E-mail: rashidi@umz.ac.ir
3. Department of Processing, Nuclear Fuel Cycle Research School, Nuclear Science and Technology Research Institute, Tehran, Iran. E-mail: jsafdari@aeoi.org.ir
4. Department of Processing, Nuclear Fuel Cycle Research School, Nuclear Science and Technology Research Institute, Tehran, Iran. E-mail: mmallah@aeoi.org.ir

Article Info

Article type: research paper

Article history:

Received 27 December 2025

Received in revised form 13 April 2026

Accepted 1 May 2026

Published online 30 June 2026

ABSTRACT

Objective: The aim of this study is to investigate the stripping (back-extraction) process of uranium and thorium from a loaded organic phase containing tributyl phosphate (TBP) and to evaluate the effect of process parameters on increasing the recovery percentage and improving separation efficiency at the laboratory scale.

Materials and methods: The stripping process was carried out experimentally, and the effects of aqueous solution pH, temperature, contact time, mixing intensity, and organic-to-aqueous (O/A) phase volume ratio were examined.

Results: The results showed that decreasing the hydrogen ion concentration significantly increased the stripping efficiency of uranium, while pH variation had no noticeable effect on thorium behavior. This behavioral difference is qualitatively attributed to the greater dependence of the uranium extraction and stripping equilibrium on process conditions, particularly pH and temperature, whereas thorium behavior is mainly governed by the chemical nature of its nitrate species and exhibits less sensitivity to changes in process parameters. Accordingly, thorium efficiency remained relatively constant within a certain range, while uranium efficiency changed markedly under the influence of process conditions. Increasing the temperature up to 55°C improved uranium stripping efficiency, with no significant change observed at higher temperatures. Investigation of contact time and mixing intensity showed that increasing these parameters had no considerable effect on final efficiency, and beyond a certain point, no noticeable change in mass transfer was observed. Furthermore, the phase ratio of 1:1, while maintaining appropriate efficiency, proved to be more economical in terms of aqueous phase consumption.

Conclusions: Under optimal conditions, including a temperature of 55°C, contact time of 30 minutes, mixing speed of 400 rpm, and phase ratio of 1:1, the stripping percentages of uranium and thorium were 89.3% and 72.4%, respectively, indicating the appropriate efficiency of the process under these conditions.

Keywords:

Uranium
Thorium
Back extraction
Stripping
Tributyl Phosphate

Citation: Kargar Vajargah, Rashidi, Safdari, Mallah (2026). Optimization of Process Parameters in the Stripping (Back-Extraction) of Uranium and Thorium: An Experimental Batch-Scale Study, Journal of Separation Science and Engineering, 18 (1), 1-13. <http://doi.org/10.22103/jsse.2026.5435>



© The Author(s).

Publisher: Shahid Bahonar University of Kerman

بهینه‌سازی پارامترهای فرآیندی در تهی‌سازی (استخراج برگشتی) اورانیوم و توریم: مطالعه تجربی در مقیاس ناپیوسته

محمد کارگر واجارگاه^۱، عباس رشیدی^۲، جابر صفدری^۳، محمد حسن ملاح^۴

۱. گروه مهندسی شیمی، دانشکده مهندسی و فناوری، دانشگاه مازندران، بابلسر، ایران. رایانامه: mohammad.kargar.ir@gmail.com

۲. نویسنده مسئول، گروه مهندسی شیمی، دانشکده مهندسی و فناوری، دانشگاه مازندران، بابلسر، ایران. رایانامه: rashidi@umz.ac.ir

۳. گروه فرآوری، پژوهشکده چرخه سوخت هسته‌ای، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، تهران، ایران. رایانامه: jafdari@aeoi.org.ir

۴. گروه فرآوری، پژوهشکده چرخه سوخت هسته‌ای، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، تهران، ایران. رایانامه: mmallah@aeoi.org.ir

چکیده

هدف: هدف این پژوهش، بررسی فرآیند استخراج برگشتی اورانیوم و توریم از فاز آلی حاوی تری‌بوتیل فسفات (TBP) بارگذاری شده و ارزیابی اثر پارامترهای فرآیندی بر افزایش درصد بازیابی و بهبود راندمان جداسازی در مقیاس آزمایشگاهی می‌باشد.

مواد و روش: فرآیند تهی‌سازی به صورت تجربی انجام گردید و اثر pH محلول آبی، دما، زمان تماس، شدت اختلاط و نسبت حجمی فاز آلی به آبی (O/A) مورد بررسی قرار گرفت.

نتایج: نتایج نشان داد با کاهش غلظت یون هیدروژن، راندمان استریپ اورانیوم به‌طور قابل توجهی افزایش می‌یابد، در حالی که تغییر pH تأثیر محسوسی بر رفتار توریم ندارد. این تفاوت رفتاری به صورت کیفی به وابستگی بیشتر تعادل استخراج و تهی‌سازی اورانیوم به شرایط فرآیندی، به‌ویژه pH و دما، نسبت داده می‌شود، در حالی که رفتار توریم عمدتاً تحت کنترل ماهیت شیمیایی گونه‌های نیتراتی آن بوده و حساسیت کمتری به تغییر پارامترهای فرآیندی نشان می‌دهد. از این رو، بازده توریم در محدوده‌ای نسبتاً ثابت باقی می‌ماند، در حالی که راندمان اورانیوم به‌طور محسوسی تحت تأثیر شرایط فرآیندی تغییر می‌کند. افزایش دما تا ۵۵ درجه سانتی‌گراد موجب بهبود راندمان استریپ اورانیوم گردید و در دماهای بالاتر تغییر قابل توجهی مشاهده نشد. بررسی اثر زمان تماس و شدت اختلاط نشان داد افزایش این پارامترها تأثیر چشمگیری بر راندمان نهایی نداشته و پس از مقدار مشخص، تغییر محسوسی در انتقال جرم مشاهده نمی‌شود. همچنین نسبت فاز آبی ۱:۱ ضمن حفظ بازده مناسب، از نظر مصرف فاز آبی اقتصادی‌تر است.

نتیجه‌گیری: در شرایط بهینه شامل دمای ۵۵ درجه سانتی‌گراد، زمان تماس ۳۰ دقیقه، سرعت اختلاط ۴۰۰ دور بر دقیقه و نسبت فاز آبی ۱:۱، درصد تهی‌سازی اورانیوم و توریم به ترتیب ۸۹٫۳ و ۷۲٫۴ درصد به‌دست آمد که بیانگر کارایی مناسب فرآیند تحت این شرایط است.

اطلاعات مقاله

نوع مقاله: علمی پژوهشی

تاریخچه مقاله:

دریافت: ۱۴۰۴/۱۰/۰۶

دریافت فایل اصلاح شده نهایی: ۱۴۰۵/۰۱/۲۴

پذیرش: ۱۴۰۵/۰۲/۱۱

انتشار: ۱۴۰۵/۰۴/۰۹

کلمات کلیدی:

اورانیوم

توریم

استخراج برگشتی

تهی‌سازی

تری بوتیل فسفات

استناد: کارگر واجارگاه، رشیدی، صفدری، ملاح (۱۴۰۵). بهینه‌سازی پارامترهای فرآیندی در تهی‌سازی (استخراج برگشتی) اورانیوم و توریم:

مطالعه تجربی در مقیاس ناپیوسته. نشریه علوم و مهندسی جداسازی، (۱) ۱۸، ۱-۱۳. <http://doi.org/10.22103/jsse.2026.5435>



© نویسندگان

ناشر: دانشگاه شهید باهنر کرمان

۱- مقدمه

با توجه به مزایای توریم شامل فراوانی بالا، پسماند با پرتوزایی کمتر و پایداری سوخت حاصل از آن، استفاده از این عنصر به عنوان جایگزین بالقوه برای سوخت‌های اورانیومی در چرخه سوخت هسته‌ای آینده مورد توجه بسیاری قرار گرفته است. از این رو توسعه روش‌های مؤثر برای استخراج، تهی‌سازی و بازیافت این دو عنصر ارزشمند نقشی کلیدی در دستیابی به فرآیندهای هسته‌ای پایدار و اقتصادی دارد [۱،۲].

برای انتقال و جداسازی گونه‌های فلزی در سیستم‌های صنعتی و آزمایشگاهی روش‌های متنوعی از جمله استخراج با حلال، تبادل یونی، جذب سطحی، غشاء مایع و رسوب‌دهی شیمیایی مورد استفاده قرار می‌گیرند [۳،۴]. در میان این روش‌ها استخراج حلالی به دلیل سهولت اجرا، هزینه پایین، قابلیت گزینش‌پذیری^۱ بالا و بازده مناسب از کارآمدترین و پرکاربردترین روش‌ها در حوزه‌های مختلف از جمله فناوری‌های هسته‌ای به شمار می‌آید [۵]. این روش به ویژه در جداسازی انتخابی فلزات با خواص شیمیایی مشابه اهمیت ویژه‌ای دارد و در خالص‌سازی عناصری نظیر اورانیوم، توریم، پلوتونیوم، زیرکونیوم، هافتیم، کبالت، نیکل و عناصر نادر خاکی کاربرد گسترده‌ای یافته است [۴،۶]. در فرآیند استخراج حلالی جدا سازی بر پایه توزیع تعادلی حل شونده میان دو فاز آبی و آلی صورت می‌گیرد. این فرآیند شامل مجموعه‌ای از مراحل فیزیکی و شیمیایی است که مهم‌ترین آن‌ها نفوذ، تشکیل کمپلکس‌های آلی فلزی و انتقال گونه‌ها میان فازها می‌باشد. رفتار سینتیکی سیستم به شدت تحت تأثیر عواملی همچون زمان تماس، شدت اختلاط، غلظت فازها، دما و شرایط فیزیکوشیمیایی محیط قرار دارد. شناخت دقیق این پارامترها در طراحی و بهینه‌سازی فرآیند حائز اهمیت است چرا که پارامترهای اقتصادی نظیر زمان ماند، ظرفیت استخراج و میزان مصرف حلال به آن وابسته‌اند [۷-۱۲].

در میان استخراج‌کننده‌های مورد استفاده در فرآیندهای هیدرومتالورژی، ترکیبات فسفوری به ویژه فسفات‌ها و فسفیت‌های آلی به دلیل پایداری شیمیایی بالا و توانایی تشکیل کمپلکس‌های قوی با یون‌های فلزی سنگین کاربرد گسترده‌ای یافته‌اند در این میان تری بوتیل فسفات (TBP) به عنوان یکی از استخراج‌کننده‌های خنثی پر کاربرد نقش مهمی در استخراج و بازفرآوری سوخت‌های هسته‌ای ایفا می‌کند [۱۳]. این ترکیب قادر است در محیط‌های نیتراتی با کمپلکس‌های اورانیوم و توریم واکنش داده و ترکیبات آلی محلولی از نوع $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_3 \cdot 2\text{TBP}$ و $\text{Th}(\text{NO}_3)_4 \cdot 2\text{TBP}$ تشکیل دهد که به فاز آلی انتقال می‌یابند [۱۴-۱۶].

در سال ۲۰۲۵ خان‌رمکی و همکاران به منظور جداسازی توریم از محلول‌های چند جزئی به روش استخراج حلالی عملکرد چند استخراج‌کننده فسفردار شامل TBP، DEHPA و Cyanex ۲۷۲ را بررسی کردند. آزمایش‌ها در محیط نیتراتی انجام شد و تأثیر پارامترهایی چون pH فاز آبی، نوع و غلظت استخراج‌کننده، زمان تماس و نسبت فاز بر درصد استخراج ارزیابی گردید. نتایج نشان داد Cyanex ۲۷۲ بالاترین گزینش‌پذیری و کارایی را در استخراج توریم داشته و ضرایب جداسازی توریم نسبت به اورانیوم، وانادیم و آهن به ترتیب ۶۳،۴، ۳۸۴،۴ و ۶۱۵،۶ گزارش شد. در مرحله‌ی استریپ استفاده از اسید سولفوریک ۴ مولار در شرایط بهینه دمای ۲۵ درجه، زمان ۳۰ دقیقه و نسبت حجمی آلی به آبی ۱ منجر به بازیابی بیش از ۹۴ درصد توریم از فاز آلی گردید [۱۷].

¹Selectivity

با وجود کارایی بالای Cyanex ۲۷۲ در جداسازی توریم، استفاده از استخراج‌کننده‌های اسیدی فسفردار معمولاً با مشکلاتی نظیر حساسیت به pH و احتمال تشکیل امولسیون همراه است. همچنین تمرکز این مطالعه بر مرحله استخراج بوده و تحلیل عمیق مرحله تهی‌سازی در سیستم‌های دو جزئی مورد توجه قرار نگرفته است.

در سال ۲۰۱۷، علی و همکاران به‌منظور جداسازی انتخابی سریم و توریم از محلول فروشویی اسیدی مونازیت، فرآیند استخراج و استریپینگ این عناصر را مورد بررسی قرار دادند. در این پژوهش از تری‌بوتیل فسفات (TBP) در رقیق‌کننده کروزن استفاده شد و تأثیر متغیرهایی مانند غلظت استخراج‌کننده، زمان تماس، نسبت فازها و نوع رقیق‌کننده ارزیابی گردید. طبق نتایج در شرایط بهینه (غلظت ۵ درصد حجمی TBP، زمان تماس ۵ دقیقه، نسبت فاز ۱:۱ و دمای محیط)، درصد استخراج سریم و توریم به ترتیب ۹۹٫۳ درصد و ۹۷٫۷ درصد به‌دست آمد. در مرحله استریپینگ متوالی، سریم با محلول ۱٫۱ مولار H_2O_2 و سپس توریم با آب مقطر از فاز آلی بازیابی شد، به‌طوری‌که خلوص نهایی سریم ۹۵ درصد و توریم ۸۷ درصد گزارش گردید [۱۸]. اگرچه در این پژوهش بازده استخراج بالا گزارش شده است، فرآیند استریپینگ به‌صورت متوالی و برای عناصر مجزا صورت گرفته و رفتار همزمان چند عنصر در مرحله تهی‌سازی به‌طور سیستماتیک بررسی نشده است.

در سال ۲۰۱۱ رحمتی و همکاران، بازیابی اورانیوم از پسماند راکتور فلوریناسیون کارخانه فرآوری اورانیوم، با استفاده از روش استخراج حلالی را مورد بررسی قرار دادند. در این مطالعه، اثر عوامل موثری مانند دما، زمان تماس، نوع رقیق‌کننده، غلظت اسید و غلظت اولیه اورانیوم بررسی گردید. استخراج در محدوده غلظتی ۴۵۰ تا ۲۲۰۰ میلی‌گرم بر لیتر و با نسبت فازی آلی به آبی ۲ صورت گرفت. نتایج نشان داد که در دماهای پایین‌تر بازده استخراج افزایش یافته و در میان رقیق‌کننده‌های مورد بررسی، کروزن بهترین عملکرد را در انتقال اورانیوم به فاز آلی داشت. همچنین در مرحله تهی‌سازی (استریپینگ)، استفاده از اسید فسفریک با غلظت ۱٫۵ مولار بالاترین راندمان را در بازیابی اورانیوم از فاز آلی نشان داد [۱۹]. این مطالعه نشان داد نوع رقیق‌کننده و شرایط اسیدی نقش مهمی در بازده استخراج ایفا می‌نمایند، با این حال تمرکز اصلی بر مرحله استخراج بوده و تحلیل عمیق مرحله تهی‌سازی در سیستم‌های دو جزئی مورد توجه قرار نگرفته است.

در اغلب مطالعات پیشین، تمرکز اصلی بر مرحله استخراج فلزات از محلول‌های آبی بوده و مرحله استخراج برگشتی عمدتاً به‌صورت مرحله‌ای فرعی و بدون تحلیل نظام‌مند پارامترهای مؤثر مورد بررسی قرار گرفته است. همچنین در خصوص سیستم‌های چندجزئی، اطلاعات محدودی درباره رفتار رقابتی عناصر در مرحله تهی‌سازی و حساسیت فرآیند نسبت به متغیرهای فرآیندی وجود دارد. این در حالی است که مرحله استریپینگ نه تنها تعیین‌کننده میزان بازیابی نهایی فلز است، بلکه نقش کلیدی در احیای فاز آلی ایفا می‌نماید.

افزون بر این، اغلب پژوهش‌های گذشته به جداسازی تک‌جزئی اورانیوم یا توریم محدود شده و تحلیل همزمان رفتار این دو عنصر در یک سیستم دو جزئی، به‌ویژه در مرحله تهی‌سازی، کمتر مورد توجه قرار گرفته است. با وجود گزارش‌های متعدد درباره استخراج اورانیوم یا توریم، مطالعات مقایسه‌ای نظام‌مند در مرحله تهی‌سازی، به‌ویژه در خصوص اثر پارامترهایی نظیر دما، غلظت عامل عریان‌ساز و نسبت فازی در سیستم‌های چندجزئی، محدود بوده است؛ موضوعی که درک جامع از مکانیسم استریپینگ را با چالش مواجه می‌سازد.

در این راستا، پژوهش حاضر با تمرکز بر بهینه‌سازی نظام‌مند مرحله استخراج برگشتی از فاز آلی باردار حاوی اورانیوم و توریم، به بررسی تک‌متغیره و کنترل‌شده پارامترهای فرآیندی پرداخته است. نوآوری اصلی این مطالعه در تحلیل مستقل و جامع مرحله تهی‌سازی در یک سیستم دو جزئی و ارائه ارزیابی مقایسه‌ای از رفتار همزمان دو عنصر

در شرایط فرآیندی مختلف است؛ رویکردی که می‌تواند به بهبود طراحی و بهره‌برداری فرآیندهای استریپ عناصر سنگین در مقیاس صنعتی کمک نماید.

۲- مواد و روش‌ها

۱.۲. مواد

در این پژوهش، از تری بوتیل فسفات (TBP) به‌عنوان استخراج‌کننده و از کروزن به‌عنوان رقیق‌کننده برای تهیه فاز آلی استفاده شد. فاز آلی نهایی حاصل از مرحله استخراج، حاوی تقریباً 1000 mg/l اورانیوم (VI) و 250 mg/l توریم (IV) بوده و به‌عنوان خوراک آزمایش‌های تهی‌سازی مورد استفاده قرار گرفت. محلول نترات اورانیل مورد استفاده محصول واحد UCF اصفهان بوده و پس از رقیق‌سازی با محلول نترات توریم که از انحلال نمک توریم در محلول نترات اورانیل تهیه گردید مخلوط شد تا فاز آبی اولیه برای مرحله استخراج آماده شود. در مرحله عریان‌سازی، از اسید نیتریک و آب دی‌یونیزه به‌عنوان عوامل عریان‌ساز استفاده گردید. محلول‌های اسید نیتریک در محدوده غلظتی ۰ تا ۰٫۶ مولار از طریق رقیق‌سازی اسید نیتریک غلیظ با آب دی‌یونیزه تهیه شدند. غلظت یون H^+ مستقیماً بر اساس مولاریته اسید نیتریک تنظیم گردید و تنظیم غلظت پیش از تماس دو فاز انجام شد. به دلیل ماهیت نیتراتی سیستم، از محلول بافر استفاده نگردید. جزئیات مربوط به تأثیر نوع عامل عریان‌ساز و پارامترهای فرآیندی بر راندمان بازیابی در بخش نتایج ارائه گردیده است.

۲.۲. روش انجام آزمایش‌ها

آزمایش‌های مرحله‌ی تهی‌سازی (استخراج برگشتی) به صورت ناپیوسته و در یک بشر شیشه‌ای تحت هم‌زدن مکانیکی انجام گرفتند. فاز آلی مورد استفاده مستقیماً از مرحله‌ی استخراج اورانیوم و توریم تحت شرایط بهینه (شامل نسبت حجمی فاز آلی به آبی ۱:۱، زمان تماس ۲۰ دقیقه، غلظت TBP ۱۵٪ حجمی و pH فاز آبی ۱٫۵ مولار) تهیه گردید و حاوی تقریباً 1000 mg/L اورانیوم و 250 mg/L توریم می‌باشد. آزمایش‌ها کنترل و در هر سری آزمایش مطابق شرایط طراحی شده تنظیم گردید. در مرحله‌ی نخست، آزمایش‌ها به منظور تعیین pH بهینه‌ی عامل عریان‌ساز انجام گردیدند. طراحی آزمایش‌ها براساس روش تک‌متغیره (One-Factor-at-a-Time, OFAT) صورت گرفت؛ به‌گونه‌ای که پس از تعیین مقدار بهینه pH، در هر مرحله تنها یکی از پارامترهای فرآیندی شامل دما، زمان تماس، شدت اختلاط و نسبت حجمی فازها تغییر داده شد، در حالی که سایر پارامترها در مقادیر بهینه پیشین ثابت نگه داشته شدند. این رویکرد به‌منظور بررسی اثر مستقل هر متغیر بر درصد تهی‌سازی و حذف تداخل اثرات متقابل پارامترها در مقیاس آزمایشگاهی انتخاب گردید. با توجه به ماهیت بنیادی مطالعه و تمرکز آن بر تحلیل رفتاری هر عامل به‌صورت مجزا، استفاده از روش تک‌متغیره امکان تفسیر شفاف‌تر نتایج و مقایسه مستقیم اثر هر پارامتر را فراهم نمود. جزئیات مربوط به محدوده تغییر پارامترها در بخش نتایج و بحث ارائه شده است.

جهت کنترل دما از یک حمام آب با دمای تنظیم شده استفاده گردید. پیش از آغاز فرآیند هر دو فاز تا رسیدن به دمای مورد نظر در حمام قرار داده شدند سپس دو فاز در زیر میکسر با سرعت اختلاط کنترل شده مخلوط گردیدند تا تعادل بین فازها برقرار شود پس از اتمام اختلاط، مخلوط به قیف جدا کننده منتقل و دو فاز از یکدیگر جدا گردیدند.

غلظت عناصر در فاز آبی با استفاده از آنالیز ICP مشخص و غلظت یون فلزی در فاز آلی با انجام موازنه جرم تعیین گردید همچنین درصد تهی سازی فلزات از فاز آلی به فاز آبی نیز بر اساس رابطه‌ی زیر محاسبه می‌گردد [۲۰]:

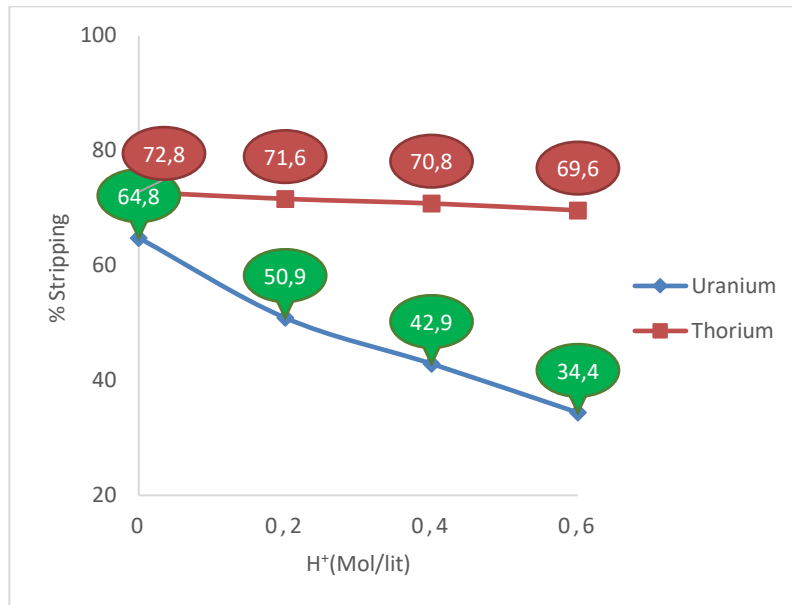
$$\%S = \left(\frac{[M]_{aq} \cdot V_{aq}}{[M]_{org.t} \cdot V_{org}} \right) \times 100 \quad (1)$$

که در این رابطه V_{org} و V_{aq} حجم فازهای آبی و آلی، $[M]_{aq}$ غلظت تعادلی یون فلزی در محلول بازیابی و $[M]_{org.t}$ غلظت کل فلز انتقال یافته به فاز آلی در مرحله استخراج می‌باشد. آنالیز ICP در آزمایشگاه مرکزی معتبر و تحت شرایط کنترل کیفی استاندارد انجام گردید. کالیبراسیون دستگاه با استفاده از محلول‌های استاندارد مرجع و در محدوده غلظتی مرتبط با نمونه‌ها صورت گرفت و عدم قطعیت کلی اندازه‌گیری در این محدوده غلظتی حدود $\pm 1.0\%$ می‌باشد.

۳- نتایج و بحث

۳.۱. تأثیر pH محلول آبی

pH محلول آبی یکی از مهم‌ترین پارامترهای مؤثر در فرآیندهای استخراج مایع - مایع به‌شمار می‌رود. این پارامتر با اثرگذاری بر رفتار یون‌های فلزی و پایداری کمپلکس‌های تشکیل شده میان فاز آبی و آلی، نقش تعیین کننده‌ای در راندمان انتقال جرم ایفا می‌کند. در مرحله استخراج، pH مناسب می‌تواند با ایجاد شرایط مطلوب برای تشکیل کمپلکس بین فلز و استخراج کننده، موجب انتقال مؤثر گونه هدف از فاز آبی به فاز آلی شود. در مقابل، در فرآیند دفع که جهت انتقال جرم معکوس است، تنظیم pH به گونه‌ای صورت می‌گیرد که موجب ناپایداری کمپلکس و تسهیل آزادسازی فلز از فاز آلی به فاز آبی شود. در هر دو حالت، کنترل دقیق pH برای دستیابی به شرایط بهینه‌ی تعادلی و سینتیکی ضروری است. نمودار تغییرات درصد تهی‌سازی در اثر تغییر غلظت یون H^+ در محدوده ۰ تا ۰.۶ مولار، با استفاده از عامل عریان‌ساز اسید نیتریک، در شکل ۱ ارائه شده است.

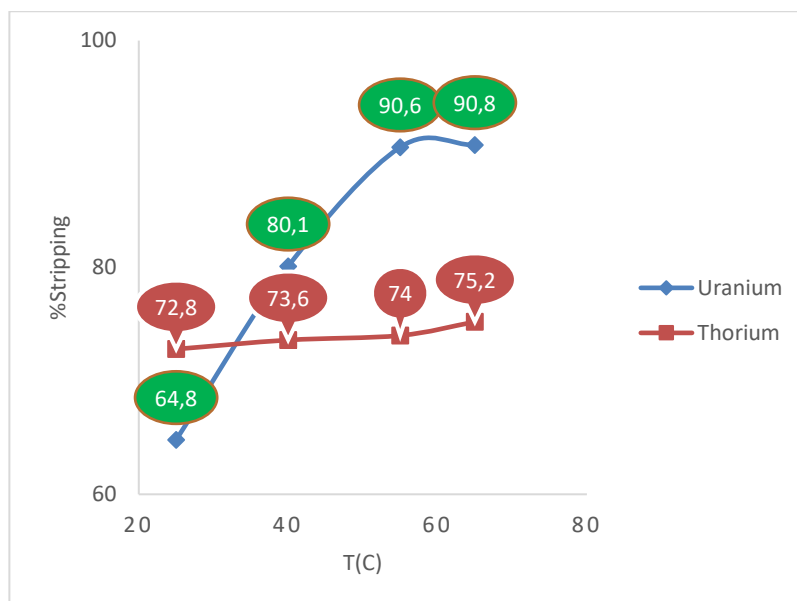


شکل ۱: اثر غلظت یون H^+ بر درصد تهی‌سازی (میزان شدت اختلاط = ۵۰۰ RPM، زمان = ۴۰ min، O/A = ۱، دما = ۲۵°C)

Figure 1: Effect of H^+ Ion Concentration on Stripping Percentage (Mixing Intensity = 500 RPM, Time = 40 min, O/A = 1, Temperature = 25°C)

همان‌طور که در شکل ۱ مشاهده می‌شود، با افزایش غلظت یون H^+ از ۰ تا ۰,۶ مولار، رفتار دو عنصر اورانیوم و توریم در مرحله‌ی تهی‌سازی روندی متفاوت از یکدیگر نشان می‌دهد. درصد تهی‌سازی اورانیوم به‌طور محسوس با افزایش غلظت یون H^+ کاهش یافته است؛ به‌طوری که از ۶۴,۸ درصد در غلظت صفر مولار به ۳۴,۴ درصد در غلظت ۰,۶ مولار رسیده است. این کاهش بیانگر آن است که در محیط‌های اسیدی‌تر، پایداری کمپلکس اورانیوم - استخراج‌کننده افزایش یافته و آزادسازی آن از فاز آلی به فاز آبی دشوارتر می‌شود. بنابراین، می‌توان نتیجه گرفت که در فرآیند تهی‌سازی اورانیوم، استفاده از آب دی‌یونیزه (یا محیط با pH بالا و غلظت پایین یون H^+) به عنوان عامل عریان‌ساز، کارایی بهتری دارد. در مقابل، درصد تهی‌سازی توریم در همین بازه‌ی تغییر غلظت یون H^+ تغییر محسوسی نشان نمی‌دهد و تقریباً در محدوده‌ی ۷۰-۷۲ درصد باقی مانده است. این رفتار حاکی از آن است که فرآیند تهی‌سازی توریم نسبت به تغییرات pH حساسیت کمتری دارد و راندمان آن بیشتر تحت تأثیر ویژگی‌های ذاتی توریم و تمایل آن به تشکیل گونه‌های قابل تهی‌سازی محدود قرار می‌گیرد. غلظت یون H^+ قرار نمی‌گیرد. از این‌رو، برای توریم نیز استفاده از آب دی‌یونیزه می‌تواند به‌عنوان عریان‌ساز مناسب در نظر گرفته شود. این تفاوت رفتار بین اورانیوم و توریم به ساختار و پایداری کمپلکس‌های آن‌ها با TBP مربوط می‌شود. اورانیوم (VI) در فاز آلی تمایل بیشتری به تشکیل کمپلکس‌های قوی‌تر با TBP دارد که در حضور یون H^+ پایدارتر می‌شوند و بنابراین شکست آن‌ها در مرحله تهی‌سازی دشوارتر است. در مقابل، توریم (IV) به صورت طبیعی کمپلکس‌های نسبتاً ضعیف‌تری با TBP تشکیل می‌دهد و ساختار آن‌ها کمتر تحت تأثیر غلظت یون H^+ قرار می‌گیرد، به همین دلیل تغییر pH اثر قابل توجهی بر راندمان تهی‌سازی توریم ندارد. از منظر سطح مولکولی، این تفاوت به تفاوت در هندسه و چگالی الکترونی مرکز فلزی و نحوه تعامل آن با گروه‌های فسفات TBP مرتبط است، که منجر به حساسیت بالاتر اورانیوم نسبت به شرایط اسیدی و رفتار محدودتر توریم در مرحله تهی‌سازی می‌شود. بطور کلی، نتایج نشان می‌دهند که در این سیستم، عامل عریان‌ساز آب دی‌یونیزه بهترین عملکرد را در فرآیند تهی‌سازی هر دو عنصر اورانیوم و توریم دارد.

دما به عنوان یکی از عوامل کلیدی در فرآیندهای استخراج مایع - مایع، به ویژه در مرحله تهی سازی (استخراج برگشتی)، نقش تعیین کننده ای ایفا می کند. افزایش دما موجب افزایش انرژی جنبشی مولکول ها و به تبع آن، تسریع انتقال جرم بین فاز آلی و آبی می گردد. این پدیده، تجزیه کمپلکس فلز - استخراج کننده را تسهیل کرده و انتقال گونه های فلزی به فاز آبی را تسریع می کند. از این رو، کنترل و بهینه سازی دما می تواند تأثیر قابل توجهی بر کارایی و سرعت فرآیند جداسازی داشته باشد [۲۱]. در این پژوهش، تأثیر دما در محدوده ۲۵ تا ۶۵ درجه سانتی گراد بر درصد تهی سازی بررسی شده است. نتایج حاصل از تغییرات دما در شکل ۲ ارائه شده است.



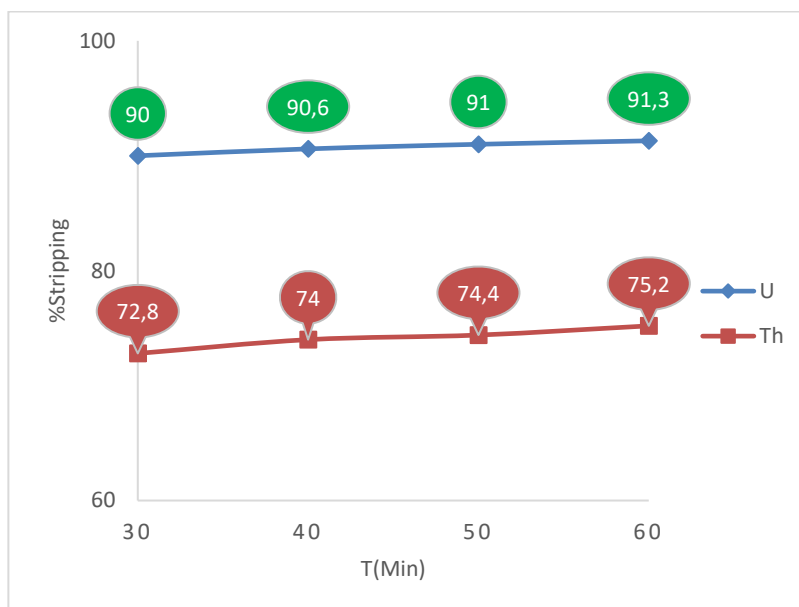
شکل ۲: اثر دما بر درصد تهی سازی (O/A = ۱, H⁺ = ۰, زمان = ۴۰ min, شدت اختلاط = ۵۰۰ RPM)

Figure 2: Effect of Temperature on Stripping Percentage (Mixing Intensity = 500 RPM, Time = 40 min, O/A = 1, H⁺ = 0)

همان طور که در شکل ۲ مشاهده می شود، با افزایش دما از ۲۵ تا ۵۵ درجه سانتی گراد درصد تهی سازی اورانیوم از ۶۴,۸ درصد به بیش از ۹۰ درصد افزایش یافته و سپس در دمای ۶۵ درجه سانتی گراد تغییر محسوسی نشان نمی دهد. این رفتار نشان می دهد که افزایش دما موجب افزایش انرژی جنبشی مولکول ها، کاهش ویسکوزیته فازها و تسهیل تجزیه ی کمپلکس اورانیوم - استخراج کننده شده و در نتیجه، انتقال گونه های فلزی از فاز آلی به فاز آبی را بهبود می بخشد. بنابراین، فرآیند تهی سازی اورانیوم در این سیستم ماهیتی گرماگیر دارد و افزایش دما تا حدود ۵۵ درجه سانتی گراد تأثیر مثبت قابل توجهی بر بازده آن دارد. در مقابل، درصد تهی سازی توریم در کل بازه ی دمایی تغییر اندکی از حدود ۷۲ درصد به ۷۵ درصد نشان داده و بیانگر آن است که افزایش دما تأثیر محسوسی بر کمپلکس میان توریم - استخراج کننده ندارد. این تفاوت رفتار میان اورانیوم و توریم با توجه به ویژگی های ذاتی کمپلکس های TBP - فلز قابل توضیح است؛ اورانیوم تمایل بیشتری به تشکیل کمپلکس های قوی تر دارد که در دماهای بالاتر تجزیه آن ها آسان تر می شود، در حالی که توریم به دلیل تشکیل کمپلکس های ضعیف تر، تحت شرایط تجربی، درصد تهی سازی آن تقریباً ثابت باقی می ماند. با توجه به این یافته ها، دمای ۵۵ درجه سانتی گراد به عنوان دمای بهینه برای این پژوهش انتخاب گردید.

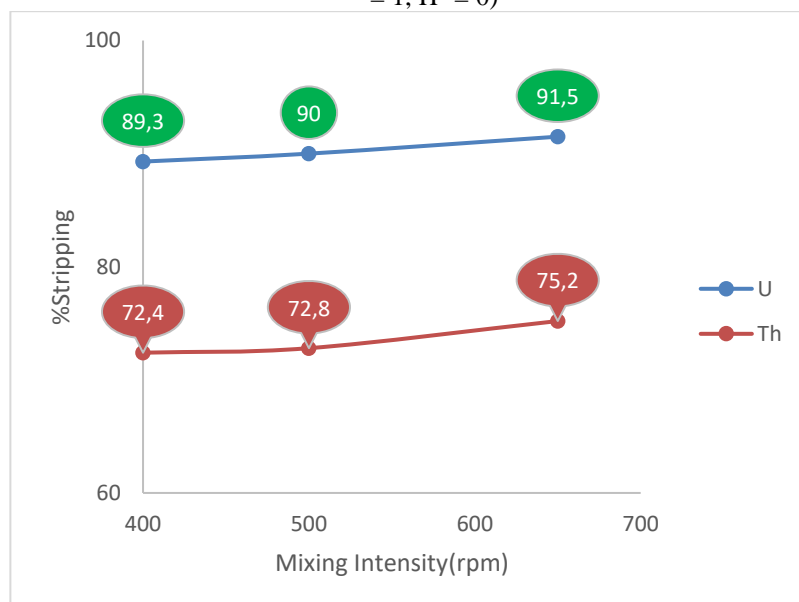
۳.۳. زمان و شدت اختلاط

در فرآیندهای استخراج و تهی سازی، شدت اختلاط و زمان تماس از عوامل تأثیرگذار برانتقال جرم محسوب می شوند. بطور کلی، افزایش سرعت همزدن باعث افزایش سطح تماس بین فازها و کاهش ضخامت لایه ساکن می شود که در نتیجه، انتقال جرم را تسهیل می کند. همچنین، افزایش زمان تماس تا پیش از رسیدن به حالت تعادل، موجب افزایش راندمان جداسازی می گردد. نتایج حاصل از بررسی تأثیر زمان تماس و شدت اختلاط در شکل های ۳ و ۴ ارائه گردیده است.



شکل ۳: اثر زمان تماس بر درصد تهی سازی (O/A = ۱، H⁺ = ۰، دما = ۵۵°C، شدت اختلاط = ۵۰۰ RPM)

Figure 3: Effect of Contact Time on Stripping Percentage (Mixing Intensity = 500 RPM, Temperature = 55°C, O/A = 1, H⁺ = 0)



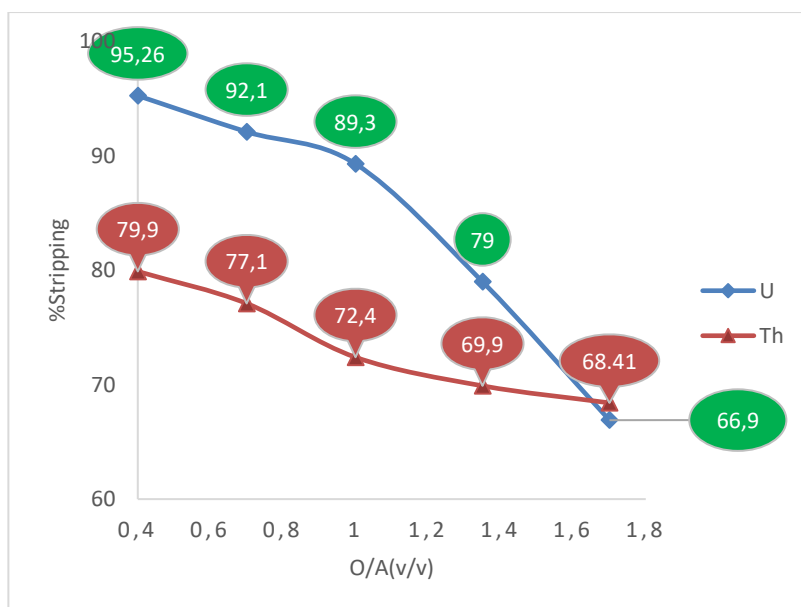
شکل ۴: اثر شدت اختلاط بر درصد تهی سازی (Time = ۳۰ min، دما = ۵۵°C، O/A = ۱، H⁺ = ۰)

Figure 4: Effect of Mixing intensity on Stripping Percentage (Time = 30 min, Temperature = 55°C, O/A = 1, H⁺ = 0)

همان گونه که مشاهده می‌شود، تغییرات زمان از ۳۰ تا ۶۰ دقیقه و افزایش شدت اختلاط از ۴۰۰ تا ۶۵۰ دور بر دقیقه، تأثیر قابل توجهی بر درصد تهی‌سازی اورانیوم و توریم نداشته است. بنابراین مقادیر زمان تماس ۳۰ دقیقه و شدت اختلاط ۴۰۰ دور بر دقیقه به عنوان شرایط بهینه برای ادامه آزمایش‌ها انتخاب شدند.

۴,۳. تأثیر نسبت فاز آلی به آبی (O/A)

نسبت حجم دو فاز موجود در فرآیند، «نسبت فازها» گفته می‌شود که نقش مهمی در فرآیند استخراج دارد. با اینکه از نظر تئوری، پایین بودن نسبت فاز آلی به فاز آبی در استخراج (یا نسبت فاز آبی به فاز آلی در دفع)، مزیت محسوب می‌شود، اما در برخی موارد این وضعیت مطلوب نیست؛ چرا که ممکن است باعث کاهش قابل توجه حلال (یا عامل عریان‌ساز) شود. از سوی دیگر، بالا بودن نسبت فاز آلی به فاز آبی (یا نسبت فاز آبی به فاز آلی در دفع) مستلزم استفاده از حجم زیادی از حلال (یا عریان‌ساز) است که این موضوع می‌تواند هزینه‌های اضافی به همراه داشته باشد [۲۲]. نتایج مربوط به بررسی تأثیر نسبت حجمی فاز آلی به فاز آبی (O/A) بر درصد تهی‌سازی اورانیوم و توریم در شکل ۵ ارائه شده است.



شکل ۵: اثر نسبت حجمی فاز آلی به آبی بر درصد تهی‌سازی (O/A) (سرعت اختلاط = ۴۰۰ RPM، زمان = ۳۰ min، دما = ۵۵°C، H⁺ = ۰)

Figure 5: Effect of Organic-to-Aqueous Phase Volume Ratio on Stripping Percentage (Mixing Intensity = 400 RPM, Time = 30 min, Temperature = 55°C, H⁺ = 0)

همان گونه که در شکل مشاهده می‌شود، با کاهش نسبت فاز آلی به فاز آبی از ۱ تا ۰,۴، تغییر چندانی در درصد تهی‌سازی اورانیوم مشاهده نمی‌شود و میزان تهی‌سازی از ۸۹,۳ درصد در نسبت ۱ به ۹۵,۲۶ درصد در نسبت ۰,۴ افزایش یافته است. در مقابل، با افزایش نسبت فاز آلی به فاز آبی، راندمان تهی‌سازی اورانیوم به طور قابل توجهی کاهش می‌یابد که می‌تواند ناشی از کاهش حجم موثر فاز آبی و در نتیجه، محدود شدن مقدار عامل عریان‌ساز در تماس با فاز آلی باشد. برای توریم نیز روند مشابهی مشاهده می‌شود؛ به طوری که در نسبت ۱:۱، ۷۲,۴ درصد از فلز به فاز آبی منتقل شده و با کاهش نسبت فاز آلی به فاز آبی تا ۰,۴، درصد تهی‌سازی به ۷۹,۹ درصد افزایش یافته است. با این حال، این تغییرات نسبتاً جزئی بوده و نشان می‌دهد که افزایش یا کاهش نسبت فازها تأثیر چشم‌گیری بر

تهی‌سازی توریم ندارد. با در نظر گرفتن این نتایج و با هدف بهینه‌سازی مصرف فاز آبی و جلوگیری از افزایش بی‌مورد حجم عریان ساز، نسبت فاز ۱:۱ به عنوان نسبت بهینه انتخاب گردید. با توجه به عدم قطعیت اندازه‌گیری آنالیز ICP (حدود $\pm 10\%$)، اختلاف‌های مشاهده‌شده در این بخش در محدوده خطای اندازه‌گیری قرار می‌گیرند؛ بنابراین انتخاب نسبت بهینه بیشتر بر مبنای ملاحظات عملیاتی و مصرف بهینه فاز آبی صورت گرفته است.

۴- نتیجه‌گیری

نتایج این پژوهش نشان داد که فرآیند استریپینگ اورانیوم و توریم از فاز آلی حاوی تری بوتیل فسفات (TBP) در مقیاس آزمایشگاهی به طور قابل توجهی به پارامترهای فرآیندی وابسته است. بررسی اثر pH نشان داد که استفاده از آب دی‌یونیزه به عنوان عامل عریان‌ساز بیشترین راندمان تهی‌سازی اورانیوم را فراهم می‌کند در حالی که تغییر غلظت یون‌های هیدروژن تأثیر محسوسی بر رفتار توریم ندارد. همچنین افزایش دما تا ۵۵ درجه سانتی‌گراد با تسهیل تجزیه کمپلکس فلز-استخراج‌کننده موجب افزایش درصد استریپ اورانیوم شد. در مقابل، تغییر در شدت اختلاط و زمان تماس تأثیر قابل توجهی بر افزایش راندمان نداشت. این رفتار نشان می‌دهد که فرآیند تحت شرایط آزمایشگاهی تعیین‌شده به یک حالت نزدیک به تعادل رسیده است، به طوری که نرخ انتقال جرم میان فاز آلی و آبی محدود بوده و افزایش بیشتر اختلاط یا زمان تماس تأثیر محسوسی بر درصد تهی‌سازی ندارد. بررسی نسبت حجمی فازها (O/A) نیز نشان داد که نسبت ۱:۱ ضمن دستیابی به راندمان مناسب از نظر مصرف فاز آبی و توازن حجمی بهینه است. به طور کلی می‌توان نتیجه گرفت که شرایط بهینه شامل استفاده از آب دی‌یونیزه، دمای 55°C ، زمان تماس ۳۰ دقیقه، سرعت اختلاط ۴۰۰ RPM و نسبت فاز ۱:۱ منجر به دستیابی به درصد تهی‌سازی ۸۹٫۳ درصد برای اورانیوم و ۷۲٫۴ درصد برای توریم گردید. این نتایج بیانگر آن است که کنترل دقیق پارامترهای فرآیندی حتی در مقیاس آزمایشگاهی می‌تواند مبنای مناسبی برای بهبود کارایی فرآیندهای جداسازی اورانیوم و توریم باشد.

References

- [1] Revol, J.-P., Bourquin, M., Kadi, Y., Lillestol, E., de Mestral, J.-C., & Samec, K. (2016). Thorium energy for the world. Proceedings of the ThEC13 conference, CERN.
- [2] Sokolov, F., Fukuda, K., & Nawada, H. (2005). Thorium fuel cycle-Potential benefits and challenges. *IAEA TECDOC, 1450*.
- [3] Habashi, F. (1993). A textbook of hydrometallurgy: Métallurgie extractive. *Quebec, Enrc Canada*.
- [4] Singh, H., & Gupta, C. (2000). Solvent extraction in production and processing of uranium and thorium. *Mineral Processing and Extractive Metallurgy Review, 21*(1-5), 307-349. <https://doi.org/10.1080/08827500008914172>
- [5] Sole, K. C., & Hiskey, J. B. (1995). Solvent extraction of copper by Cyanex 272, Cyanex 302 and Cyanex 301. *Hydrometallurgy, 37*(2), 129-147. [https://doi.org/10.1016/0304-386X\(94\)00023-V](https://doi.org/10.1016/0304-386X(94)00023-V)
- [6] Rydberg, J., Cox, M., Musikas, C., & Choppin, G. (2004). Solvent extraction and practice. In: MARCEL DEKKER Inc.
- [7] Singh, S. K., Dhama, P., Tripathi, S., & Dakshinamoorthy, A. (2009). Studies on the recovery of uranium from phosphoric acid medium using synergistic mixture of (2-Ethyl hexyl) Phosphonic acid, mono (2-ethyl hexyl) ester (PC88A) and Tri-n-butylphos) TBP). *Hydrometallurgy, 95*(1-2), 170-174. <https://doi.org/10.1016/j.hydromet.2008.04.006>
- [8] Giridhar, P., Venkatesan, K., Subramaniam, S., Srinivasan, T., & Rao, P. V. (2008). Extraction of uranium (VI) by 1.1 M tri-n-butylphosphate/ionic liquid and the feasibility of recovery by direct electrodeposition from organic phase. *Journal of Alloys and compounds, 448*(1-2), 104-108. <https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2007.03.115>
- [9] Awwad, N. S. (2004). Equilibrium and kinetic studies on the extraction and stripping of uranium (VI) from nitric acid medium into tri-phenylphosphine oxide using a single drop column technique. *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification, 43*(12), 1503-1509. <https://doi.org/10.1016/j.cep.2004.02.005>
- [10] Singh, H., Mishra, S., & Vijayalakshmi, R. (2004). Uranium recovery from phosphoric acid by solvent extraction using a synergistic mixture of di-nonyl phenyl phosphoric acid and tri-n-butyl phosphate. *Hydrometallurgy, 73*(1-2), 63-70. <https://doi.org/10.1016/j.hydromet.2003.08.006>
- [11] Shadrin, A., Kamachev, V., Murzin, A., & Shafikov, D. (2007). Extraction of nitric acid and uranyl nitrate by TBP in HFC-134a. *The Journal of supercritical fluids, 42*(3), 347-350. <https://doi.org/10.1016/j.supflu.2007.05.005>
- [12] Stas, J., Khuder, A., & Karjou, J. (2008). Direct determination of uranium and co-extracted elements in the organic phases (D2EHPA/TOPO, TBP, TDA) in kerosene by TXRF technique. *Applied Radiation and Isotopes, 66*(4), 450-456. <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2007.10.012>
- [13] Benedict, M., Pigford, T. H., & Levi, H. W. (1981). edition 2. Nuclear chemical engineering.
- [14] Alibrahim, M., & Shlewit, H. (2007). Solvent extraction of uranium (VI) by tributyl phosphate/dodecane from nitric acid medium. *Periodica Polytechnica Chemical Engineering, 51*(2), 57-60. <https://doi.org/10.3311/pp.ch.2007-2.09>
- [15] Tanabe, T., & Kondo, Y. (1976). Solvent extraction of thorium nitrate and nitric acid by tributyl phosphate. *Transactions of the Japan Institute of Metals, 17*(7), 426-434. <https://doi.org/10.2320/matertrans1960.17.426>
- [16] Schulz, W. W., Bender, K. P., Burger, L. L., & Navratil, J. D. (1989). Science and technology of tributyl phosphate.
- [17] Khanramaki, F., Keshtkar, A., & Sohbatzadeh, H. (2025). Separation of thorium from a multi-component aqueous solution by liquid-liquid extraction method: investigation and comparison of different solvents. *Journal of Nuclear Science, Engineering and Technology (JONSAT), 46*(1), 77-84. <https://doi.org/10.24200/nst.2024.1646>
- [18] Ali, A. (2017). Coextraction and successive selective stripping of cerium (IV) and thorium from monazite leach solutions with tributyl phosphate (TBP). *Radiochemistry, 59*(6), 579-586. <https://doi.org/10.1134/S10663622170600054>

-
- [19] Rahmati, A., Ghaemi, A., & Samadfam, M. (2011). Uranium recovery from solid waste of a uranium conversion facility's fluorination reactor by using solvent extraction method. *J Sep Transp Phenom (J School Eng)*, 1, 97-107.
- [20] Torkaman, R., Moosavian, M., Safdari, J., & Torab-Mostaedi, M. (2013). Synergistic extraction of gadolinium from nitrate media by mixtures of bis (2, 4, 4-trimethylpentyl) dithiophosphinic acid and di-(2-ethylhexyl) phosphoric acid. *Annals of Nuclear Energy*, 62, 284-290. <https://doi.org/10.1016/j.anucene.2013.06.028>
- [21] Zahakifar, F., Khanramaki, F., Nejad, D. G., Ghazanfari, V., & Yadollahi, A. (2025). The solvent extraction and stripping process using Alamine 336 with a case study of uranium. *Scientific Reports*, 15(1), 11749. <https://doi.org/10.1038/s41598-025-96421-9>
- [22] Khanramaki, F., Shirani, A., Safdari, J., & Torkaman, R. (2018). Investigation of liquid extraction and thermodynamic studies on uranium from sulfate solution by Alamine 336 as an extractant. *International Journal of Environmental Science And Technology*, 15(7), 1467-1476.