



## جذب اورانیم (VI) از محلول‌های آبی بر روی نانو زئولیت بتای ساخته شده

عبدالرضا نیلچی<sup>۱\*</sup>، فاطمه صیدی<sup>۲</sup>، سمیه رسولی گرمارودی<sup>۱</sup>

۱. پژوهشکده‌ی چرخه سوخت هسته‌ای، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، سازمان انرژی اتمی، صندوق پستی: ۸۴۸۶-۱۱۳۶۵، تهران - ایران  
۲. گروه شیمی، دانشگاه آزاد اسلامی واحد کرج، صندوق پستی: ۳۱۳-۳۱۴۸۵، کرج - ایران

**چکیده:** نانو زئولیت بتا با هدف جداسازی اورانیم از محلول‌های رقیق آبی، در حضور تمپلیت تترااتیل آمونیم هیدروکسید ساخته شده، و با استفاده از تکنیک‌های XRD، BET، TEM و SEM مورد شناسایی قرار گرفت. خواص تبادل یونی نانو زئولیت ساخته شده، با محاسبه‌ی درصد جذب برای اورانیم (VI) به روش ناپیوسته بررسی شد. تأثیر متغیرهای غلظت اولیه، pH محلول و زمان تماس فاز مایع و تبادل گر بر میزان جذب، مطالعه و شرایط بهینه برای عملکرد مطلوب تبادل گر برای جداسازی اورانیم (VI) تعیین شد. براساس نتایج به دست آمده مطلوب‌ترین شرایط جذب، غلظت اولیه‌ی ۸۰ ppm، pH=4 و زمان تماس ۱۲۰ تعیین شد؛ تحت این شرایط، بیشینه‌ی جذب اورانیم ۹۴٪ بود.

**کلیدواژه‌ها:** جذب، اورانیم (VI)، محلول‌های آبی، زئولیت بتا

## Uranium(VI) Adsorption from Aqueous Solutions on the Synthesized Nano- Zeolite Beta

A. Nilchi<sup>1\*</sup>, F. Seidi<sup>2</sup>, S. Rasouli Garmarodi<sup>1</sup>

1. Nuclear Fuel Cycle Research School, Nuclear Science and Technology Research Institute, AEOI, P.O.Box: 11365-8486, Tehran – Iran  
2. Department of Chemistry, Islamic Azad University Karaj Branch, P.O.Box: 31485-313, Karaj – Iran

**Abstract:** In this study nano-crystalline zeolite beta is synthesized with tetraethyl ammonium hydroxide as a template with the aim of separation of Uranium (VI) from radioactive waste, and characterized by XRD, IR, XRF and BET surface area measurements. Furthermore, ion-exchange properties of synthetic nano-crystalline zeolite beta were evaluated for batch system by calculating the percentage of uranium ions adsorption. The effects of variables such as initial concentration, pH and contact time between the exchanger and liquid phase, on the adsorption of the U(VI) ions were investigated and optimized. The results revealed that in the optimal conditions including the initial concentration of 80 ppm, pH=4, and contact time of 120 min, the percentage of U(VI) ions adsorbed by the synthesized zeolite beta was 94%.

**Keywords:** Adsorption, Uranium (VI), Aqueous Solutions, Zeolite Beta



## ۱. مقدمه

با توجه به استفاده‌ی روزافزون اورانیم در صنعت و سمیت آن، کنترل آلودگی ناشی از آن امری حیاتی و مهم است. جداسازی انتخابی اورانیم (VI) از محلول‌های رقیق آبی و نمونه‌های پس‌آب به روش‌های مختلفی از جمله استخراج با حلال، الکترولیز و تبادل یون انجام می‌شود [۱، ۲].

زئولیت‌ها دسته‌ای از تبادل‌گرهای یونی با ساختار متخلخل‌اند که به طور گسترده در جداسازی فلزات سنگین از جمله اورانیم از پس‌مانده‌های پرتوزا مورد استفاده قرار می‌گیرند. جذب اورانیم بر روی کلینوپتیلولیت و توف‌های زئولیتی نشان داد که عامل‌هایی چون pH، غلظت اولیه‌ی محلول، زمان تماس فاز مایع و جذب و نسبت جذب به محلول بر میزان تبادل یون فلزی تأثیرگذار هستند [۳، ۴].

زئولیت‌ها به دو گروه کانی‌های طبیعی و مصنوعی طبقه‌بندی می‌شوند [۵]. زئولیت بتا یکی از انواع مصنوعی با ساختاری سه بعدی بوده و از اتصال حلقه‌های ۱۲ عضوی به یک‌دیگر شکل گرفته است. بتا اتیل آمونیم (BEA) به دلیل دارا بودن حفره‌های سه بعدی بزرگ، حجم بالا و حضور جای‌گاه‌های فعال در غلظت‌های مختلف، در واکنش‌های کاتالیزگر اسیدی حایز اهمیت است [۶]. کاهش اندازه‌ی ذرات به نانومتر باعث افزایش سطح مقطع خارجی، کوچک‌تر شدن اندازه‌ی حفره‌ها و در نتیجه گزینش‌پذیری در جذب می‌شود [۷، ۸]. نخستین ساخت زئولیت بتا اتیل آمونیم، مربوط به گزارش‌های وادلینگر با ماده‌ای به نام تترا اتیل آمونیم هیدروکسید (TEAOH) است [۹]. در روشی جدید، نانو زئولیت بتای بلوری، تحت پرتو دهی ریزموج در دمای  $150^{\circ}\text{C}$  ساخته شده است [۱۰]. در پژوهش دیگری ساخت بتا اتیل آمونیم، در حضور تترا اتیل آمونیم برمید (TEABr) در فاز بخار به انجام رسیده است [۱۱].

هدف این مقاله، ساخت نانو زئولیت بتا، بررسی تأثیر متغیرهای غلظت اولیه‌ی محلول، pH محلول و زمان تماس فاز مایع و تبادل‌گر ساخته شده بر میزان جذب اورانیم (VI) و بهینه‌سازی شرایط برای عملکرد مطلوب تبادل‌گر برای جداسازی اورانیم (VI) است.

## ۲. بخش تجربی

### ۱.۲ مواد و دستگاه‌ها

مواد مورد استفاده برای ساخت نانو زئولیت بتای بلوری عبارت‌اند از: کلوییدال سیلیکا (۴۰٪ وزنی) محصول شرکت زیگما-آلد ریچ، تترا اتیل آمونیم هیدروکسید (TEAOH)، ۳۵٪ وزنی، آلومینیم سولفات ( $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 18\text{H}_2\text{O}$ ) و سدیم هیدروکسید (NaOH)، محصول شرکت مرک.

شناسایی جذب ساخته شده با استفاده از دستگاه‌های، پراش پرتو ایکس Phillips مدل PW1130، تخلخل‌سنج کوانتاکروم مدل Nova Win ۲، میکروسکوپ الکترون پویشی ایکس فورد مدل S360، میکروسکوپ الکترون عبوری لئوالکترون مدل Leo ۹۱۲-AB به انجام رسید.

### ۲.۲ روش‌ها

#### ۱.۲.۲ ساخت جاذب

جاذب نانو زئولیت بتای بلوری، در حضور فلزات قلیایی، به روش گرما-آبی در دمای  $150^{\circ}\text{C}$  ساخته شد. مولاریته‌ی ترکیب‌های تشکیل‌دهنده‌ی ژل فرآوری شده عبارت است از:



برای ساختن جاذب بتا اتیل آمونیم، ۱ مول از کلوییدال سیلیکا به محلولی از تمپلیت و ریزذرات NaOH اضافه و ترکیب به مدت ۳۰ دقیقه در دمای اتاق بر روی هم‌زن مغناطیسی قرار داده شد تا ژل شفاف به دست آید. سپس  $(\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 18\text{H}_2\text{O})$  حل شده در ۳ مول آب مقطر، به مخلوط در حال هم‌خوردن اضافه شد. ترکیب حاصل به مدت ۲۴ ساعت در دمای اتاق بر روی هم‌زن قرار داده شد و پس از آن به اتوکلاو استیل ۷۵ میلی‌لیتری انتقال یافت و به مدت ۴۸ ساعت در دمای  $150^{\circ}\text{C}$  و فشار بخار ثابت داخل آون قرار گرفت.

محصول به دست آمده پس از صاف شدن تا رسیدن pH به کم‌تر از ۹ با آب مقطر شستشو داده شد. در ادامه جاذب ساخته شده به مدت ۱۰ ساعت داخل آون  $110^{\circ}\text{C}$  قرار داده شد تا کاملاً خشک شود [۱۲].

## ۲.۲.۲ تعیین پارامترهای بهینه جذب

برای تعیین غلظت بهینه محلول برای جذب بیشینه اورانیم (VI) بر روی جاذب، ۰/۱ گرم جاذب به همراه ۲۰ میلی‌لیتر از محلول‌های حاوی ۲۰، ۵۰، ۸۰ و ۱۰۰ میلی‌گرم بر لیتر اورانیم (VI)، به مدت ۲ ساعت در pH=۴، که به عنوان pH پیش فرض در نظر گرفته شده بود، با سرعت ۱۵۰ دور بر دقیقه و در دمای ۲۵°C داخل تکاننده قرار داده شد. پس از گذشت زمان تعیین شده، غلظت اورانیم در محلول‌ها با استفاده از دستگاه طیف‌سنج نشری اتمی - پلاسمای جفت شده‌ی القایی (ICP-AES) مدل پرکین المر ۵۵۰۰ اندازه‌گیری و درصد جذب به وسیله‌ی جاذب چنین محاسبه شد [۱۳]

$$\text{Adsorption \%} = \frac{C_i - C_f}{C_f} \times 100 \quad (1)$$

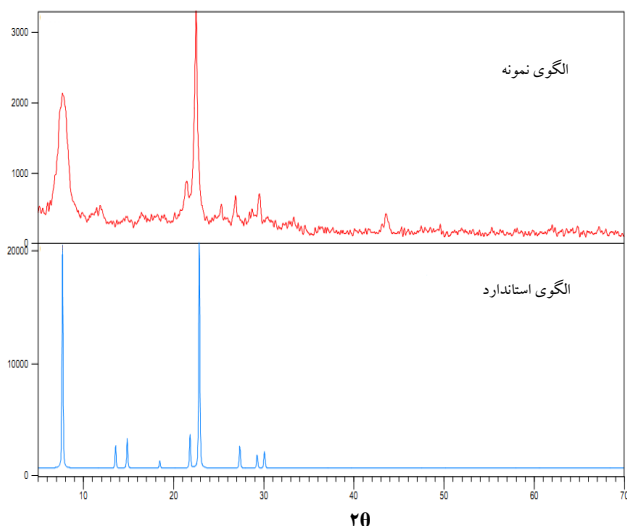
که در آن  $C_i$  و  $C_f$ ، به ترتیب، غلظت اولیه و نهایی یون فلزی در فاز آبی برحسب میلی‌گرم بر لیتر است.

به منظور انتخاب pH بهینه محلول، برای جذب بیشینه اورانیم (VI) بر روی جاذب، ۰/۱ گرم جاذب به همراه ۲۰ میلی‌لیتر محلول حاوی ۲۰ میلی‌گرم بر لیتر اورانیم به مدت ۲ ساعت در دمای ۲۵°C در pHهای مختلف از ۱/۵ تا ۷، داخل تکاننده با سرعت ۱۵۰ دور بر دقیقه قرار داده شد. پس از گذشت زمان تعیین شده، غلظت اورانیم (VI) در محلول با استفاده از دستگاه طیف‌سنج نشری اتمی - پلاسمای جفت شده‌ی القایی اندازه‌گیری و درصد جذب از رابطه‌ی (۱) محاسبه شد. تأثیر زمان تماس بر جذب اورانیم (VI)، با تغییر دادن زمان تماس بین جاذب و محلول حاوی یون فلزی، مورد بررسی قرار گرفت. ۰/۱ گرم جاذب به همراه ۲۰ میلی‌لیتر محلول حاوی ۲۰ میلی‌گرم بر لیتر اورانیم (VI) در pH=۶ و در دمای ۲۵°C، داخل تکاننده با سرعت ۱۵۰ دور بر دقیقه در تماس قرار داده شد. زمان تماس بین محلول و جاذب بین ۶۰ تا ۱۰۸۰ دقیقه متغیر بود.

## ۳. یافته‌ها و نتیجه‌گیری

## ۱.۳ ساختار جاذب

الگوی پراش پرتو ایکس جاذب ساخته شده در شکل ۱، قله‌ی تیز و بلندی را در  $2\theta = 22.4987^\circ$  نشان می‌دهد که حاکی از ساختار بلوری زئولیت است. اندازه‌ی متوسط ذرات از رابطه‌ی دوپای-شرر [۱۴]،  $K \cdot \lambda / W \cos \theta$ ، برابر با ۳۶/۱۶ نانومتر محاسبه شد. در این رابطه K عامل شکل و برابر با ۰/۹،  $\lambda$  طول موج پرتو ایکس و برابر با ۱/۵۴ Å،  $W = W_b - W_s$  تفاوت بین پهنای پهن‌ترین قله‌ی جذبی نمونه‌ی مورد آزمایش و پهنای قله‌ی نمونه‌ی استاندارد بوده و  $2\theta$  مربوط به بالاترین شدت قله است. سطح تماس ماده‌ی جاذب با استفاده از روش تخلخل‌سنجی (BET) اندازه‌گیری و برابر با ۵۷/۸۲ مترمربع بر گرم تعیین شد. شکل ۲. الف، ریزنگار الکترون پویشی (SEM) نانو زئولیت بلوری بتای ساخته شده با ساختاری متخلخل و اسفنجی را نشان می‌دهد. در این ریزنگار، ذرات کلوخه شده به صورت خوشه‌ای به یکدیگر متصل شده‌اند [۱۲، ۱۵]. در شکل ۲. ب، ریزنگار الکترون عبوری (TEM) جاذب به صورت توده‌های پراکنده قابل مشاهده است. توده‌ها از اتصال بلورهایی با اشکال نامنظم شکل گرفته و به صورت خوشه‌ای درآمده‌اند [۱۶].

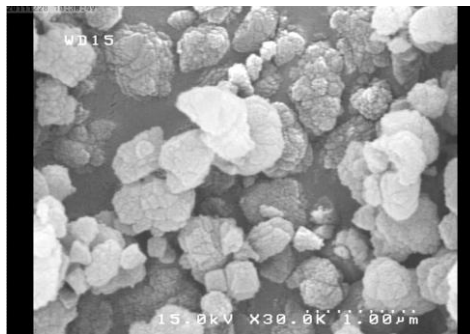


شکل ۱. الگوی پراش پرتو ایکس جاذب نانو زئولیت بتا ساخته شده و نمونه‌ی استاندارد.

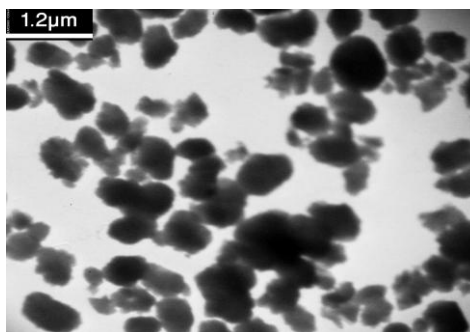


(الف)

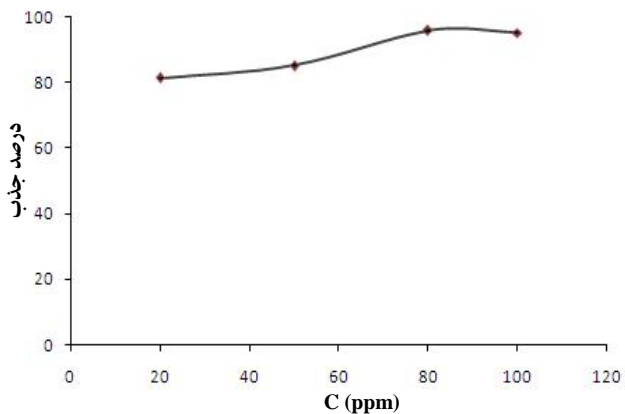
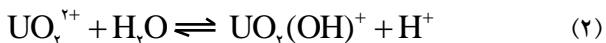
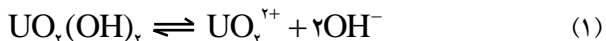
pH=3-5 محصولات‌های چند هسته‌ای  $(OH)_2^{2+} (UO_2)_2$ ،  $(OH)_4^{2+} (UO_2)_3$  و  $(OH)_5^{2+} (UO_2)_4$  تشکیل می‌شوند (رابطه‌های (۳)، (۴) و (۵)). در pH بالای ۵ هیدرولیز شدت بیش‌تری یافته و محصول  $(OH)_7^{2+} (UO_2)_4$  به وجود می‌آید (رابطه‌ی (۶)) [۱۸]. همه‌ی گونه‌های تشکیل شده قابلیت جذب بر روی زئولیت را دارا هستند.



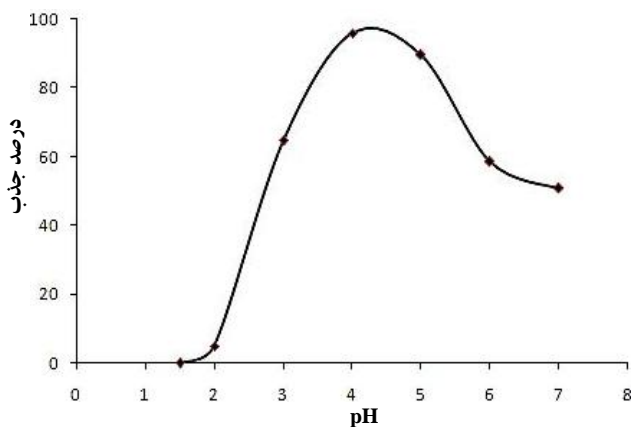
(ب)



شکل ۲. الف) ریزنگار الکترون پویشی (SEM) و ب) ریزنگار الکترون عبوری (TEM) نانو زئولیت بتا.



شکل ۳. تغییرات درصد جذب اورانیم (VI) بر روی نانو زئولیت بتا ساخته شده، برحسب غلظت محلول؛ (شرایط جذب: ۰٫۱ گرم جاذب، زمان تماس ۲ ساعت، pH پیش‌فرض ۴، دما ۲۵°C).



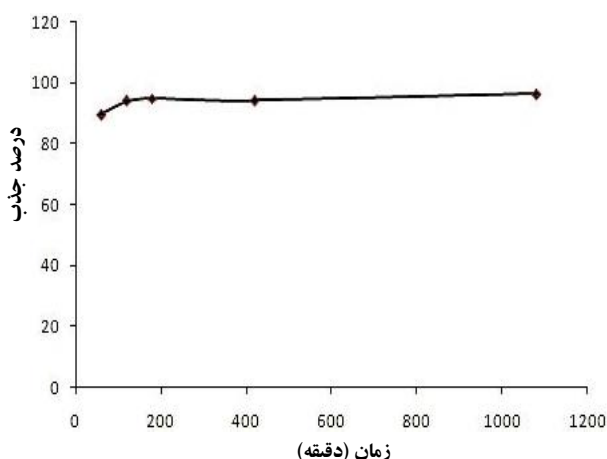
شکل ۴. تغییرات میزان جذب اورانیم (VI) بر روی جاذب نانو زئولیت بتا ساخته شده، برحسب pH (شرایط جذب: ۰٫۱ گرم جاذب، زمان تماس ۲ ساعت، غلظت محلول  $20 \text{ mgL}^{-1}$ ، دما ۲۵°C).

### ۲.۳ بررسی اثر غلظت محلول بر میزان جذب

نتایج اثر غلظت محلول اورانیم (VI)، بر میزان جذب آن به وسیله‌ی نانو زئولیت بلوری بتا در شکل ۳ نشان داده شده است. همان‌طور که مشاهده می‌شود، با افزایش غلظت، میزان جذب کاتیون بر روی جاذب افزایش یافته و در غلظت حدود ۸۰ ppm به تعادل می‌رسد. افزایش غلظت محلول، نیروی محرکه برای غلبه بر مقاومت انتقال جرم بین فاز محلول و فاز جامد زیاد شده و در نتیجه میزان جذب افزایش می‌یابد. در غلظت‌های بالاتر از ۸۰ ppm جای‌گاه‌های فعال تبادل یون در سطح جاذب اشباع شده و اصطلاحاً ظرفیت تبادل گر تکمیل می‌شود. در نتیجه درصد جذب کاهش می‌یابد.

### ۳.۳ اثر pH بر میزان جذب

شکل ۴، منحنی تغییرات میزان جذب اورانیم (VI) برحسب pH محلول با غلظت بهینه‌ی پیش از این تعیین شده، را نشان می‌دهد. تغییر در عملکرد جاذب در pHهای مختلف مربوط به حضور محصولات‌های متعدد هیدرولیز اورانیم (VI) به صورت  $(UO_2)_p(OH)_q^{(2p-q)+}$  است [۱۷]. به این ترتیب که در  $pH < 3$  یون اورانیل ( $UO_2^{2+}$ ) یون غالب موجود در محیط است (رابطه‌ی (۱)). در  $pH=3$  هیدرولیز یون اورانیل باعث تشکیل محصول تک‌هسته‌ای  $UO_2(OH)^+$  شده است (رابطه‌ی (۲)). در



**شکل ۵.** تغییرات میزان جذب اورانیم (VI) بر روی جاذب بتا ساخته شده، برحسب زمان (شرایط جذب: ۰/۱ گرم جاذب، زمان تماس ۲ ساعت، غلظت محلول  $۲۰ \text{ mgL}^{-۱}$ ، pH برابر ۶، دمای  $۲۵^\circ\text{C}$ ).

#### ۴. نتیجه‌گیری

بررسی ساختار نانو زئولیت بتا ساخته شده، با استفاده از تکنیک پراش پودری پرتو ایکس (XRD) نشان داد که جاذب ساخته شده دارای ساختار بلوری با اندازه‌ی ذرات  $۳۶/۱۶$  نانومتر بود. اندازه‌گیری سطح ویژه‌ی جاذب ساخته شده با استفاده از تکنیک تخلخل‌سنجی (BET)، سطح ویژه‌ی آن را برابر  $۵۷/۸۲$  مترمربع بر گرم به دست داد. ریزنگار الکترون پویشی (SEM) جاذب، ساختار متخلخل و کلوخه شده‌ی به هم چسبیده‌ای را نشان داد. در ریزنگار الکترون عبوری (TEM)، توده‌های با فاصله‌های نامنظم به صورت خوشه‌ای مشاهده شدند.

بررسی اثر متغیرهای غلظت اولیه، pH و زمان تماس فاز مایع و تبادل‌گر بر میزان جذب اورانیم (VI) نشان داد که مطلوب‌ترین شرایط جذب بالغ بر ۹۴٪، در غلظت  $۸۰ \text{ ppm}$ ، pH برابر ۴ و زمان تماس ۱۲۰ دقیقه بود.

در pHهای اسیدی (۱/۵-۲) به دلیل غلظت بالای کاتیون  $\text{H}^+$ ، بار سطحی جاذب مثبت شده و در نتیجه امکان جذب کاتیون بر روی جاذب کاهش می‌یابد. همچنین یون  $\text{H}^+$  برای جذب شدن بر روی تبادل‌گر با کاتیون  $\text{U}^{۶+}$  وارد رقابت می‌شود. با کاهش غلظت یون  $\text{H}^+$  در محیط، میزان جذب اورانیم (VI) بر روی جاذب به تدریج افزایش یافته و به حداکثر می‌رسد [۱۳]. برای بالا بردن pH محلول‌های اسیدی یون اورانیل از باز ضعیف آمونیاک استفاده شد. کاهش مشاهده شده در منحنی به دلیل هیدرولیز آمونیاک و تشکیل کاتیون  $\text{NH}_4^+$  است که برای جذب شدن بر روی جاذب با اورانیم (VI) رقابت می‌کند. در pH برابر ۶/۵ تا ۷، رسوب پایدار  $\text{UO}_2(\text{OH})_2$  تشکیل می‌شود و در نتیجه اورانیم (VI) برای جذب شدن بر روی جاذب باید با واکنش تشکیل رسوب رقابت نماید [۱۹]. در pH بالای ۶، گونه‌های  $\text{UO}_2(\text{OH})^+$ ،  $\text{UO}_2(\text{OH})_2^{۲+}$  و  $\text{UO}_2(\text{OH})_3^{۲+}$  دیگر در محیط حضور ندارند و گونه  $\text{UO}_2(\text{OH})_3^{۲+}$  به تدریج کاهش یافته و با افزایش pH از بین می‌رود [۴، ۱۳]. در pHهای قلیایی بیش از ۹ هیچ یک از گونه‌های حاصل از هیدرولیز پایدار نیست.

#### ۴.۳ اثر زمان تماس فاز مایع و تبادل‌گر

اثر زمان تماس محلول حاوی اورانیم (VI) و نانو زئولیت بلوری بتا ساخته شده با تری اتیل آمونیم هیدروکسید، بر روی درصد جذب اورانیم (VI) با ثابت نگه‌داشتن pH و غلظت بهینه‌ی پیش از این تعیین شده مورد بررسی قرار گرفت. نتایج حاصل در شکل ۵، نشان می‌دهد که با افزایش زمان تماس تبادل‌گر و محلول، جذب افزایش می‌یابد و پس از گذشت مدت زمان کوتاه حدود ۲ ساعت بین دو فاز تعادل برقرار می‌شود. سازوکار جذب یون‌های فلزی بر روی جاذب ساخته شده را می‌توان به این ترتیب توضیح داد که یون‌ها ابتدا با سرعت بالا جذب جای‌گاه‌های فعال سطحی شده و پس از اشباع شدن این جای‌گاه‌ها، وارد حفرات داخلی شده‌اند که اصطلاحاً به آن نفوذ درونی ذرات گفته می‌شود. با توجه به این که در واحد جرم تبادل‌گر تعداد جای‌گاه‌های فعال مشخص و میزان معینی از یون‌های قابل تبادل وجود دارد، با گذشت زمان این جای‌گاه‌ها اشباع شده و در زمان مشخصی جذب به بیشینه‌ی مقدار خود می‌رسد؛ در این حالت و با ایجاد تعادل بین دو فاز، میزان جذب ثابت می‌شود [۲۰، ۲۱].



1. A. Mellah, S. Chegrouche, M. Barkat, The removal of uranium (VI) from aqueous solutions onto activated carbon: kinetic and thermodynamic investigations, *J. Colloid, Interface, Sci.*, 296 (2006) 434-441.
2. E.A. Dellianni, D.N. Bakoyannakis, A.I. Zouboulis, K.A. Matis, Sorption of As(V) ions by alaganeite-type nanocrystals, *Chemosph.*, 50 (2003) 155-163.
3. L. Camacho, S. Deng, R. Parra, Uranium removal from groundwater by natural clinoptilolite zeolite: Effects of pH and feed concentration, *J. Hazard. Mater.*, 175 (2010) 393-398.
4. A. Krestou, A. Xenidis, D. Panias, Mechanism of aqueous uranium (VI) uptake by natural zeolitic tuff, *Min. Eng.*, 16 (2003) 1363-1370.
5. D.W. Breck, *Zeolite Molecular Sieves-Structure, Chemistry and Use*, John Wiley and Sons (1974).
6. S. Altwasser, C. Welker, Y. Traa, J. Weitkamp, Catalytic cracking of n-octane on small-pore zeolites, *Micropor. Mesopor. Mater.*, 83 (2005) 345-356.
7. J. Weitkamp, Zeolites and catalysis, *Solid State Ion.*, 131 (2000) 175-188.
8. P. Botella, A. Corma, J.M. Lopez-Nieto, S. Valencia, R. Jacquot, Acylation of Toluene with Acetic Anhydride over Beta Zeolites: Influence of Reaction Conditions and Physicochemical Properties of the Catalyst, *J. Catal.*, 195 (2000) 161-168.
9. R.L. Wadlinger, G.T. Kerr, E.J. Rosinski, Mobil Oil Corp., US Patent No. 3, 308, 069, (1967).
10. D. Sung Kim, J.S. Chang, J.S. Hwang a, S.E. Park, J.M. Kim, Synthesis of zeolite beta in fluoride media under microwave irradiation, *Micropor. Mesopor. Mater.*, 68 (2004) 77-82.
11. T. Niu, Y. Li, J. Li, B. Chen, Synthesis of Zeolite Beta by the Vapour-Phase Transport Method Using Tetraethylammonium Bromide as the Organic Template, *J. Catal.* 30 (2009) 191-195.
12. B. Modhera, M. Chakraborty, P.A. Parikh, R. V. Jasra, Synthesis of nano-crystalline zeolite  $\beta$ : Effects of crystallization parameters *Cryst. Res. Technol.* 44 (2009) 379-385.
13. S. Yusan, S. Akyil, Sorption of uranium(VI) from aqueous solutions by akaganeite, *J. Hazard. Mater.* 160 (2008) 388-395.
14. B.D. Cullity, S.R. Stock, *Elements of X-ray Diffraction* (3rd ed), Prentice Hall: Upper Saddle River NJ (2001) 388.
15. A. Gedeon, P. Massiani, F. Babonneau, *Zeolites and Related Materials: Trends, Targets and challenges*, Elsevier (2008) 225-228.
16. L. Ding, Z. Zheng, Effect of template concentration and gel dilution on crystallization and particle size of zeolite beta in the absence of alkali cations, *Micropor. Mesopor. Mater.* 103 (2007) 94-101.
17. C.F. Baes Jr., R.E. Mesmer, *The Hydrolysis Of Cations*, John Wiley & Sons (1976) 489.
18. P. Misaelides, A. Godelitsas, A. Filippidis, D. Charistos, I. Anousis, Thorium and uranium uptake by natural zeolitic materials, *Sci. Total Environ.* 173 (1995) 237-246.
19. M.J. Kang, B.E. Han, P.S. Hahn, Precipitation and Adsorption of Uranium (VI) Under Various Aqueous Conditions, *Environ. Eng. Res.* 7 (2002) 149-157.
20. R. Han, W. Zou, Y. Wang, L. Zhu, Removal of uranium(VI) from aqueous solutions by manganese oxide coated zeolite: discussion of adsorption isotherms and pH effect, *J. Environ. Rad.* 93 (2007) 127-143.
21. S. Aytasa, M. Yurtlua, R. Donat, Adsorption characteristic of U(VI) ion onto thermally activated bentonite, *J. Hazard. Mater.* 172 (2009) 667-674.