# تحضير أكسيد الألومنيوم النانوي بطريقة خضراء باستخدام مستخلص نبات الصبار (Aloe vera) وتطبيقاته في إزالة اليورانيوم (VI) من المحاليل المائية

د. محمد نور الخضر*

## الملخص

يمثل التلوث بالمواد المشعة، ولا سيما أيونات اليورانيوم (VI)، تهديداً بيئياً وصحياً خطيرا. في هذا السياق، تم تحضير مادة مازة نانوية فعّالة ومستدامة عبر التصنيع الأخضر لأكسيد الألومنيوم النانوي ($Al_2O_3$ NPs) باستخدام مستخلص نبات الصبار (Aloe vera) كعامل مرسب ومثبت حيوي. تم توصيف المادة الناتجة باستخدام مطيافية الأشعة تحت الحمراء (FT–IR) وانعراج الأشعة السينية (XRD)، حيث أكدت النتائج تكوّن طور $\gamma$–$Al_2O_3$ النانوي بمتوسط حجم بلوري قدره 19.42 نانومتر. تم تقييم أداء المادة في امتزاز U(VI) من المحاليل المائية باستخدام منهجية سطح الاستجابة (RSM) بنموذج تصميم التركيب المركزي (CCD). أظهرت النتائج أن كفاءة الإزالة تتأثر بشكل كبير بدرجة الحموضة (pH)، وكمية المادة المازة، والتركيز الابتدائي لليورانيوم، وزمن التماس، مع تحقيق أقصى كفاءة (~70.5%) عند pH ≈ 5، وكمية مادة مازة (0.4 gr)، وتركيز 40 ppm، وزمن تلامس 60 دقيقة. تؤكد هذه النتائج

أن أكسيد الألومنيوم النانوي المُحضّر بطريقة خضراء يُعدّ مرشحاً واعداً لتطبيقات تنقية المياه من الملوثات الإشعاعية.

***الكلمات المفتاحية:*** أكسيد الألومنيوم النانوي، الاصطناع الأخضر، نبات الصبار ( Aloe vera)، امتزاز اليورانيوم (VI)، منهجية سطح الاستجابة (RSM)، التصميم المركزي المدور (CCD)

* قسم الكيمياء–كلية العلوم–جامعة حمص–سوريا

## Preparation of Nano-aluminum Aluminum Oxide via Green Synthesis Using Aloe Vera Extract and Its Applications in Uranium (VI) Removal from Aqueous Solutions

**Dr. Mohammad Nour Alkhoder***

### Abstract

Radioactive contamination, particularly with uranium (VI) ions, poses a significant environmental and health threat. In this context, a highly efficient and sustainable nanomaterial was prepared via the green synthesis of nanostructured aluminum oxide ($Al_2O_3$ NPs) using Aloe vera extract as a precipitating agent and bio-stabilizer.

The resulting material was characterized using Fourier Transform Infrared Spectroscopy (FT-IR) and X-ray Diffraction (XRD), with the results confirming the formation of $\gamma$-$Al_2O_3$ Nano phase with an average crystalline size of $19.42$ nm. The performance of the material in the adsorption of U(VI) from aqueous solutions was evaluated using the Response Surface Methodology (RSM) with Central Composite Design (CCD). The results showed that the removal efficiency was significantly influenced by factors such as pH, adsorbent amount, initial uranium concentration, and contact time, achieving the highest efficiency (~$70.5\%$) at pH $\approx 5$, adsorbent amount of $0.4$ g, $40$ ppm uranium concentration, and a contact time of $60$ minutes. These findings confirm that the green-synthesized nanostructured aluminum oxide is a promising candidate for applications in the removal of radioactive contaminants from water.

***Keywords***: Aluminum oxide nanoparticles, green synthesis, Aloe vera, Uranium (VI) adsorption, Response Surface Methodology (RSM), Central Composite Design (CCD).

* Department of Chemistry – Faculty of Science – Homs University – Syria

## 1. المقدمة

أكسيد الألومنيوم ($Al_2O_3$)، أو الألومينا، يُعدّ أحد أكثر المواد السيراميكية أهميةً من الناحية التكنولوجية، وذلك بفضل مزيجه الاستثنائي من الخصائص التي تشمل الخُمول

الكيميائي، والاستقرار الحراري العالي، والمتانة الميكانيكية البارزة، والخصائص العازلة الممتازة. وقد رسّخت هذه الخصائص الجوهرية مكانته كمادة حاسمة في طيف واسع من التطبيقات المتقدمة. فتطبيقاته تمتد من كونه محفّزًا قويًّا وداعمًا للمحفّزات في عمليات تكرير البتروكيماويات وأنظمة عادم السيارات، إلى استخدامه كمادة كاشطة وطلائية أساسية [1]. علاوةً على ذلك، فإن توافقه الحيوي ومقاومته للتآكل يجعلانه مادةً لا غنى عنها في التطبيقات الطبية الحيوية، مثل زِراعات العظام والأسنان [2]. وفي مجال الإلكترونيات، تجعل قيمة ثابت العزل الكهربائي العالية والناقلية الحرارية الممتازة للألومينا منه مادةً مثاليةً لتصنيع الركائز والطبقات العازلة في الأجهزة الإلكترونية الدقيقة [3].

وقد عزّز ظهور تقنية النانو من إمكانات هذه المادة بشكلٍ أكبر، إذ يُظهر أكسيد الألومنيوم النانوي ($nano-Al_2O_3$) خصائص متفوقة مقارنة بنظيره الكتلي، أبرزها نسبة مساحة السطح إلى الحجم المرتفعة جداً، وزيادة التفاعلية السطحية، وتأثيرات الحصر الكمومي الفريدة [4]. وتفتح هذه التحسينات على المستوى النانوي آفاقا جديدة، خاصةً في معالجة البيئة، حيث تكون مساحة السطح العالية والتفاعلية السطحية عاملَين حاسمين لفعالية عمليات مثل الامتزاز.

يُعدّ تصنيع أكسيد الألومنيوم النانوي مجالاً بحثياً نشطاً للغاية، وتُصنّف مناهجه عموماً إلى طرائق فيزيائية وكيميائية وحيوية. فعلى الرغم من أن الطرق الفيزيائية التقليدية، مثل التبخير بالليزر والطحن الميكانيكي، قادرة على إنتاج جسيمات نانوية دون تلوث بالمذيبات، فإنها غالبا

ما تعاني من استهلاك طاقة مرتفع، وتوزيع واسع لأحجام الجسيمات، وصعوبة في التحكم في شكل الجسيمات (المورفولوجيا) [5]. أما الطرق الكيميائية مثل التحضير بطريقة (الهلام–محلول) (sol–gel)، الترسيب، والمعالجة الحرارية (المائية/العضوية) (hydrothermal/solvothermal) فهي مستخدمةٌ على نطاق واسع نظراً لتمكنها من التحكم الدقيق في حجم الجسيمات، وشكلها، وطورها البلوري (مثل $\gamma-Al_2O_3$ و $\alpha-Al_2O_3$) [6]. فعلى سبيل المثال، تشتهر تقنية الهلام–المحلول بإنتاج جسيمات نانوية عالية النقاء ومتجانسة، لكنها تعتمد غالباً على مواد باهظة الثمن وسامة [7]. وبالمثل، فإن الترسيب المشترك بسيط وفعال من حيث التكلفة، لكنه قد يواجه صعوبات في التحكم في التكتل [8]. وعلى الرغم من فعالية هذه الطرائق الكيميائية، فإنها تثير مخاوف بيئية كبيرة تتعلق بتوليد نواتج ثانوية خطرة، واستهلاك طاقةٍ مرتفع، واستخدام موارد غير متجددة، مما يتعارض مع مبادئ الكيمياء الخضراء وتكنولوجيا النانو المستدامة.

واستجابةً لهذه التحديات، برز التخليق الأخضر وخاصةً باستخدام مستخلصات النباتات كخيار جذّاب وصديق للبيئة لتصنيع جسيمات أكاسيد المعادن النانوية. تعتمد هذه الطريقة الحيوية على المركبات النباتية الغنية الموجودة في المستخلصات النباتية، مثل البولي فينولات، الفلوفونئيدات، التربينوئيدات، القلويدات، إنزيمات، أحماض أمينيَة، الفيتامينات الذوابة في الماء، الكربوهيدرات، وبعض الأيونات المعدنيَة، حيث يُستخدم مستخلص نبات الصبار (Aloe vera)

كعامل مرسب وعامل توجيه بنيوي، وكذلك كعوامل تغليف (capping agents) تستقر الجسيمات النانوية المتكونة وتمنع تكتلها [9]. ويُنفذ هذا الإجراء عادةً في وعاء واحد تحت ظروف قريبة من الظروف المحيطية، مما يقلل بشكلٍ كبير من استهلاك الطاقة والتكلفة وانتاج النفايات السامة [10]. علاوةً على ذلك، قد تمنح طبقات التغليف الحيوية سطح الجسيمات وظائف فريدة قد تعزز أداءها في تطبيقات معينة، مثل الامتزاز [11]. فعلى سبيل المثال، استُخدم مستخلص أوراق نبات النيم (Azadirachta indica) لتصنيع جسيمات نانوية من $\gamma-Al_2O_3$ بلغت مساحة سطحها النوعية ($148\ m^2/gr$) [12]. وبالمثل، استُخدمت بنجاح مستخلصات نبات عشبة الليمون (Cymbopogon citratus) ونبات الصبار (Aloe vera) لإنتاج جسيمات أكسيد الألومنيوم النانوية المستقرة والكروية الشكل، مما يبرز تنوع المصادر النباتية القابلة للاستخدام [13]. ويجسّد هذا الأنموذج الأخضر التزاماً بأهداف الاستدامة العالمية، ويوفر مسارا قابلاً للتوسع وآمنا لإنتاج المواد النانوية.

يُعد مجال تنقية المياه أحد أكثر تطبيقات أكسيد الألومنيوم النانوي المُصنَع بالطريقة الخضراء إثارة، وتحديداً إزالة المعادن الثقيلة والسامة عبر الامتزاز. ومن بين هذه الملوثات، يشكل اليورانيوم U(VI) خطراً بيئياً وصحياً كبيراً بسبب سميته الكيميائية المشتركة مع خطره الإشعاعي. ويُعد تلوث المياه الجوفية باليورانيوم الناجم عن المصادر الجيولوجية، والأنشطة البشرية في عمليات التعدين، والمياه العادمة من الصناعات النووية قضيةً عالميةً [14]. وقد

جرى استكشاف إزالة اليورانيوم من المحاليل المائية باستخدام مجموعة متنوعة من المواد المازة، بما في ذلك أكاسيد معادن مختلفة. فعلى سبيل المثال، أظهرت جسيمات أكسيد الحديد النانوية، مثل الماجنتيت ($Fe_3O_4$)، سعات امتزاز عالية، لكنها قد تعاني من عدم الاستقرار الكيميائي في الظروف الحمضية [15]. كما تتميز المواد النانوية المبنية على أكسيد المنغنيز بفعالية (أكسدة –ارجاع) ممتازة لتقليل أيونات U(VI)، لكنها غير مستقرة كيميائياً في الأوساط المائية [16]. وأما أكسيد التيتانيوم ($TiO_2$)، فهو مستقرٌ كيميائياً، لكن سعة امتزازه غالباً ما تكون متوسطة [17] ، في حين أن أكسيد الزركونيوم ($ZrO_2$)، رغم فعاليته العالية واستقراره، يتطلب تكاليف مادية كبيرة [18]. وفي هذا السياق التنافسي، تقدم جسيمات أكسيد الألومنيوم النانوية توازناً استثنائياً بين التقارب العالي لامتزاز اليورانيوم، والمتانة الكيميائية والحرارية عبر مجال واسع من قيم درجات الحموضة (pH)، والوفرة الطبيعية، والتكلفة المنخفضة [19]. الخصائص السطحيَة حمض – أساس لأكسيد الألومنيوم، الغني بمجموعات الهيدروكسيل السطحية، تعزز تشكيل معقدات سطحية قوية مع U(VI)، مما يجعله مُزيلاً فعالاً للغاية [20]. وقد بيّنت دراسات سابقة فعالية أكسيد الألومنيوم النانوي المُصنع بالطرق التقليدية؛ فعلى سبيل المثال، بلغت سعة امتزاز اليورانيوم (VI) (100 mg/gr) على أكسيد الألومنيوم المسامي من النوع ($\gamma-Al_2O_3$) [21]، بينما بيّن تقريرٌ آخر أن جسيمات أكسيد الألومنيوم النانوية يمكنها إزالة اليورانيوم بفعالية من مياه البحر [22]. ومع ذلك، لا يزال استخدام أكسيد الألومنيوم النانوي المُصنع بالطريقة

الخضراء والذي قد يمتلك خصائص ذات بنية مساميَة وسطحية فريدة ناتجة عن تأثير الجزيئات الحيوية النباتية في تصنيعه لاستخدامه في إزالة (احتجاز) اليورانيوم مجالاً بحثياً واعداً ولكنه غير مستكشف بشكلٍ كافٍ. فقد لا يقتصر دور الغلاف العضوي النباتي على تثبيت الجسيمات النانوية فحسب، بل قد يوفر أيضاً بنية مسامية ذات سطح نوعي عالي ومسام انتقالي مما يؤدي لمجموعات وظيفية إضافية يمكن أن تعزّز ارتباط اليورانيوم بشكلٍ تآزري عبر تشكيل معقدات على السطح أيونيَة أو تساندِيَة..

## 2. الهدف من البحث:

بناءً على الحاجة الملحة إلى حلول متقدمة لمعالجة المياه، تهدف هذه الدراسة إلى تصنيع أكسيد الألومنيوم النانوي باستخدام مستخلص نبات الصبار (Aloe vera)، وتقييم أدائه كمادة مازة لإزالة اليورانيوم (VI).

## 3. المواد والأجهزة المستخدمة:

### 1.3. المواد المستخدمة:

تم الحصول على نترات الألومنيوم المائية ($Al(NO_3)_3 \cdot 9H_2O$، بنقاء 98%) من شركة Sigma–Aldrich. وتم جمع أوراق الصبار الطازجة من مصادر محلية. تم تحضير محلول من اليورانيوم (1000 ppm) بإذابة كمية مناسبة من خلات اليورانيل سداسية الماء ($UO_2(CH_3COO)_2 \cdot 6H_2O$، بنقاء 99%) من شركة Riedel deHaen في

الماء منزوع الأيونات. جميع المواد الكيميائية الأخرى المستخدمة كانت بدرجة نقاء كاشف تحليلي. تم استخدام الماء منزوع الأيونات في جميع الإجراءات التجريبية، بما في ذلك التحضير والتمديد والغسيل.

### 2.3. توصيف العينات:

تم حساب التركيب البلوري وحجم الجسيمات النانوية المُصنّعة باستخدام جهاز حيود الأشعة السينية للمساحيق (Philips-PW-1840) (XRD) مع إشعاع (1.5418 Å) Cu-Kα في نطاق 2θ من 20 إلى 80 درجة. بينما تم تحليل التركيب الكيميائي باستخدام مطياف الأشعة تحت الحمراء المزودة بتحويل فورييه (FT-IR نموذج: Jasco Spectrum 4100 FT-IR).

## 4. القسم العملي:

### 1.4. تحضير مستخلص أوراق الصبار:

غُسلت أوراق الصبار الطازجة جيداً بالماء منزوع الأيونات لإزالة أي شوائب عالقة. بعد ذلك، أُزيلت الطبقة الخارجية من الورقة، وعُزل (100 gr) من الهلام الداخلي. سُخن هذا الهلام لاحقاً إلى 60 درجة مئوية لمدة 20 دقيقة، ثم خُلط باستخدام خلاط كهربائي لتكوين معلق مائي. بعد ذلك، خضع المعلق للطرد المركزي عند 6000 دورة في الدقيقة لمدة 15 دقيقة لفصل المكونات غير القابلة للذوبان. استُخدم السائل الرائق الناتج كعامل ترسيب

وتوجيه (Precipitating and Directing Agent) وكعامل مثبت ( Stabilizing Agent) في عملية التحضير اللاحقة لجسيمات أكسيد الألومنيوم النانوية.

### 2.4. تحضير جسيمات أكسيد الألومنيوم النانوية ($Al_2O_3$ NPs):

تم تحضير أكسيد الألومنيوم النانوي ($Al_2O_3$ NPs) باستخدام طريقة الترسيب الخضراء بوساطة نباتية، وذلك باستخدام مستخلص الصبار كمثبت حيوي. بدأت عملية التحضير بتسخين (100 mL) من مستخلص الصبار إلى الدرجة (70°C) مع التحريك المستمر. ثم أضيف بالتنقيط (100 mL) من محلول نترات الألومنيوم المحضر بتركيز (0.1 M)، مع الحفاظ على نسبة حجمية 1:1. تم تحريك مزيج التفاعل لمدة ساعتين، مما أدى إلى تكوين راسب أبيض هلامي، يدل على تكون مركب هيدروكسيد الألومنيوم. بعد ذلك، تُرك الخليط لمدة 12 ساعة في درجة حرارة الغرفة لتسهيل اكتمال تكوين الجسيمات. تم عزل الراسب الناتج عن طريق الطرد المركزي عند 6000 دورة في الدقيقة لمدة 20 دقيقة، ثم غسل جيداً بالماء منزوع الأيونات والإيثانول لإزالة الشوائب الأيونية والمواد العضوية غير المتفاعلة. بعد ذلك، تم تجفيف المادة النقية عند الدرجة (100°C) لمدة 12 ساعة للحصول على مسحوق المادة الأولية. أخيراً، لتحقيق التبلور وتحويل الهيدروكسيد إلى طور الأكسيد، تم تكليس المسحوق في فرن حراري عند الدرجة (500°C) لمدة 3 ساعات. كان المنتج النهائي عبارة عن مسحوق أبيض ناعم من جسيمات $\gamma-Al_2O_3$ النانوية،

والذي تم تخزينه في مجفف للاستخدامات اللاحقة. بلغ مردود إنتاج جسيمات $Al_2O_3$ النانوية 88%.

### 3.4. تحسين امتزاز أيونات اليورانيل ($UO_2^{2+}$):

لتحسين عملية إزالة اليورانيوم، تم استخدام منهج إحصائي منهجي باستخدام منهجية سطح الاستجابة (RSM). تجمع هذه المنهجية بكفاءة عالية بين التصميم التجريبي والنمذجة الرياضية لتقييم التأثيرات الفردية والتفاعلية للمتغيرات المستقلة على كفاءة الامتزاز. وقد تم اختيار التصميم المركزي المركب (CCD) لهذا الغرض، لأنه يوفر إطاراً قوياً لتحديد العلاقات بين العوامل المتعددة بأقل عدد من التجارب [23].

أُجريت جميع تجارب الامتزاز عند درجة حرارة ثابتة تبلغ (25°C). في كل تجربة، تم إضافة كتلة محددة مسبقاً من المادة المازة (جسيمات أكسيد الألومنيوم النانوية، المتغير (A gr)) إلى أرلينة زجاجية سعة (250 mL) تحتوي على (100 mL) من محلول أيونات اليورانيل بتركيز ابتدائي محدد (المتغير (B ppm)).

تم تعديل درجة حموضة المحلول (المتغير C) إلى القيمة المستهدفة باستخدام حمض كلور الماء الممدد (10%) قبل إضافة المادة المازة. ثم تم تحريك الخليط لفترة زمنية محددة (المتغير D بالدقائق). تم تحديد القيم المحددة لهذه المتغيرات الأربعة: جرعة المادة

المازة (A)، والتركيز الأولي لأيونات اليورانيل (B)، ودرجة الحموضة (C)، وزمن التماس (D) وفقاً لمصفوفة التجارب الموضحة في الجدول 1.

**الجدول (1): مستويات ونطاقات المتغيرات المستقلة المطبقة في التصميم المركب المركزي.**

| المتغير | الرمز | الواحدة | $-\alpha$ | $-1$ | 0 | $+1$ | $+\alpha$ |
|---|---|---|---|---|---|---|---|
| **كمية المادة المازة** | (A) | gr | 0.1 | 0.2 | 0.3 | 0.4 | 0.5 |
| **تركيز اليورانيل** | (B) | ppm | 20 | 40 | 60 | 80 | 100 |
| **درجة pH** | (C) | – | 2 | 3 | 4 | 5 | 6 |
| **زمن التماس** | (D) | min | 30 | 40 | 50 | 60 | 70 |

بعد الانتهاء من كل تجربة، تم حساب نسبة إزالة أيونات اليورانيل (R%) باستخدام المعادلة التالية:

$$R(\%) = \frac{C_0 - C_e}{C_0} \times 100 \qquad (1)$$

حيث تمثل $C_0$ و Ce التراكيز الأولية والتوازنية لأيونات اليورانيل في المحلول المائي، على التوالي.

تم تحديد تركيز أيونات اليورانيل باستخدام مطيافية (UV–Vis) بوجود كاشف أحمر الأرسينازو.

## 5. النتائج والمناقشة:

### 1.5. مطيافية الأشعة تحت الحمراء (FT–IR):

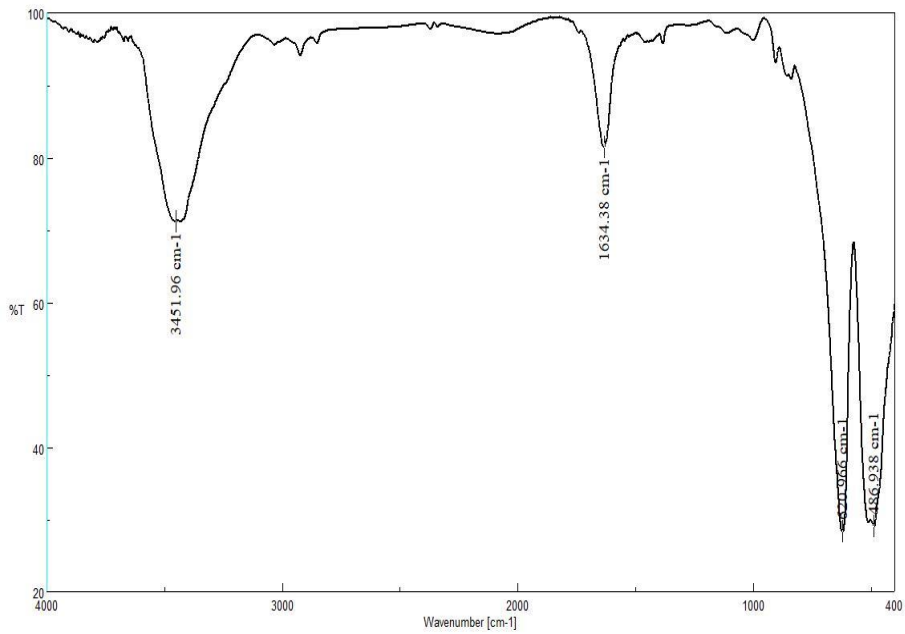
تم استخدام مطيافية الأشعة تحت الحمراء بتحويل فورييه (FT–IR) لتحديد المجموعات الوظيفية الموجودة على الجسيمات النانوية المُصنّعة، ولتأكيد تكوين أكسيد الألومنيوم. يظهر الطيف الناتج في الشكل (1) عدة عصابات امتصاص مميزة تُقدم رؤيةً واضحة للبنية الكيميائية للمادة.

أهم عصابات الامتصاص هي عصابتي الامتصاص عند الأعداد الموجية (620, 486 $cm^{-1}$) والتي تُعزى بشكل قاطع إلى أنماط الاهتزاز لرابطة Al–O في شبكة الألومينا [24] على وجه التحديد، تعود عصابة الامتصاص عند (620 $cm^{-1}$) إلى اهتزازات الامتطاط للرابطة Al–O في الألومنيوم رباعي التساند ($AlO_4$)، بينما يتوافق النطاق عند (486 $cm^{-1}$) اهتزازات الامتطاط للرابطة Al–O في الألومنيوم سداسي التساند ($AlO_6$) . يُعد وجود هذين النمطين من الألومنيوم بصمةً مميزةً للألومينا المتبلور وفق الطور غاما ($\gamma$–$Al_2O_3$) [25].

أما وجود عصابة الامتصاص عند العدد الموجي (3451 $cm^{-1}$) فيعود إلى اهتزاز امتطاط للرابطة O–H لمجموعات الهيدروكسيل (OH–) من جزيئات الماء الممتزة فيزيائياً،

ويُلاحظ وجود عصابة الامتصاص عند العدد الموجي ($1634\ cm^{-1}$) تشير اهتزاز امتطاط للرابطة O–H لمجموعات الهيدروكسيل (–OH) لجزيئات الماء الممتزة داخل المسام، وهو دليل غير مباشر على أن المادة لديها مساحة سطح نوعية عالية،

من المتوقع وجود مجموعات الهيدروكسيل السطحية هذه، وهي سمة رئيسية لأكاسيد المعادن المُحضرة بالطرق الكيميائية الرطبة؛ كما تلعب هذه المجموعات دوراً حاسماً كمواقع نشطة لامتزاز أيونات المعادن من المحاليل المائية.




**الشكل (1)** طيف FT–IR لأكسيد الألومنيوم النانوي

### 2.5. التحليل باستخدام انعراج الأشعة السينية (XRD):

تم التحقق من التركيب البلوري للجسيمات النانوية المُصنعة باستخدام تقنية انعراج الأشعة السينية (XRD). يظهر مخطط الانعراج الناتج في الشكل (2) النمط سلسلة من قمم الانعراج العريضة، وهي سمة مميزة للمواد النانوية قليلة التبلور.

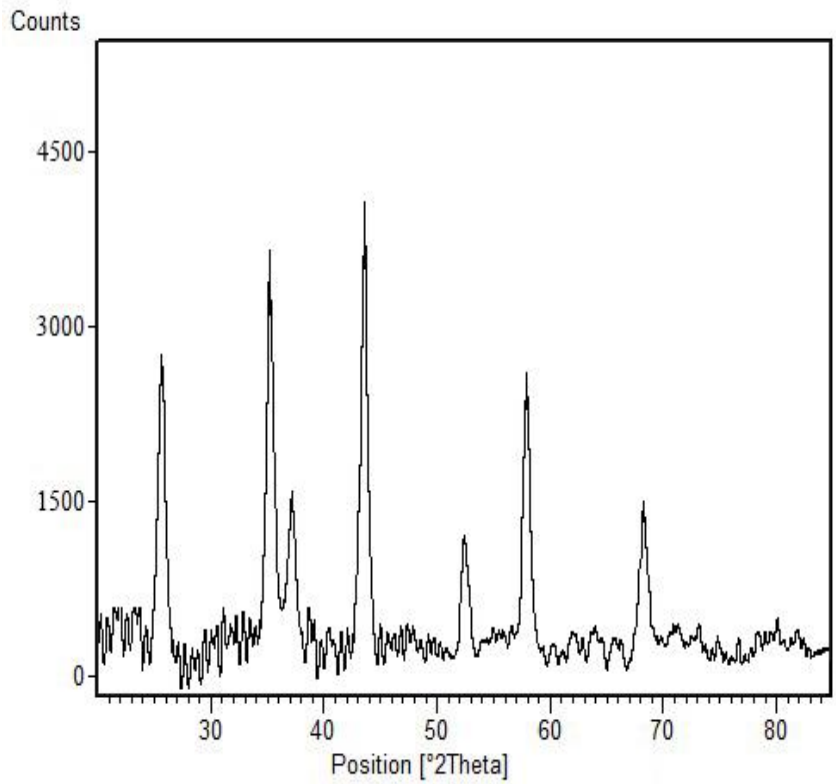
تتوافق قمم زوايا الانعراج المسجلة (°37.6, °39.5, °45.9, °60.9, °67.1) لتتوافق مع المستويات البلورية (311, 222, 400, 511, 440) على التوالي. تتوافق هذه المستويات بشكل ممتاز مع النمط المرجعي القياسي لألومينا ($\gamma-Al_2O_3$) المكعبة ببطاقة مرجعية ذات الرقم (00-010-0173) [26].

يؤكد هذا المخطط أن عملية التكليس عند 500 درجة مئوية قد نجحت في تحويل هيدروكسيد الألومنيوم غير المتبلور إلى $\gamma-Al_2O_3$ البلوري. يُعد هذا الطور مرغوباً للغاية لتطبيقات الامتزاز نظراً لمساحته السطحية العالية وحموضته الذاتية.

يرتبط اتساع قمم الانعراج ارتباطاً مباشراً بالحجم المحدود للبلورات. تم تقدير متوسط حجم البلورات (D) باستخدام معادلة ديباي-شيرر:

$$D = \frac{K\lambda}{\beta \cos\theta} \qquad (2)$$

حيث K هو ثابت شيرر (0.9)، و$\lambda$ هو طول موجة الأشعة السينية المستخدمة (Cu $K\alpha = 1.5406$ Å)، و$\beta$ هو عرض القمة عند نصف الارتفاع الأقصى (FWHM) بالراديان، و$\theta$ هي زاوية الانعراج. وُجد أن متوسط حجم البلورات المحسوب يبلغ (19.42 nm). يُعد هذا البعد النانوي عاملاً رئيسياً يساهم في المساحة السطحية النوعية العالية للمادة، والتي من المتوقع أن توفر عدداً كبيراً من المواقع النشطة لعملية الامتزاز.




الشكل (2) مخطط (XRD) لأكسيد الألومنيوم النانوي

### 3.5. نظرية سطح الاستجابة:

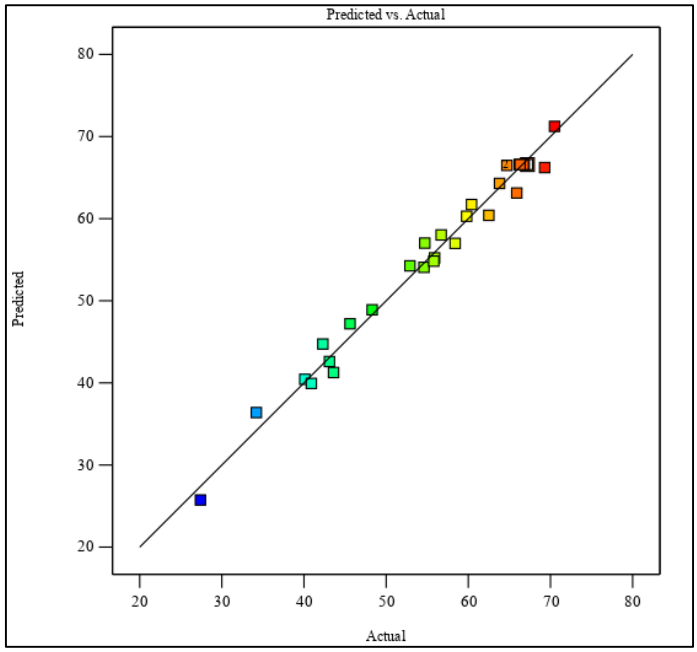
تمت دراسة تجارب امتزاز اليورانيوم باستخدام التصميم المركزي (CCD). أُجري ما مجموعه 30 تجربة، باستخدام مادة الامتزاز النانوية المحضرة من أكسيد الألومنيوم ($Al_2O_3$). وترد القيم التجريبية والمتوقعة في الجدول 2.

وفقاً لمنهجية سطح الاستجابة (RSM) القائمة على تصميم (CCD)، تم تحديد العلاقة بين متغير الاستجابة، وهو كفاءة إزالة أيونات اليورانيل، والمتغيرات المستقلة. وتمثل هذه العلاقة بالنموذج الرياضي التالي (المعادلة 3):

$$R(\%) = 8.66 + 66.58A - 2.75B - 3.93C + 2.075D + 0.025AB - 0.15AD + 0.56BC - 0.18BD - 0.26CD - 5.87A^2 - 1.46B^2 - 4.36C^2 - 1.9D^2 \quad (Eq.3)$$

ساعدت هذه المعادلة الرياضية في تحليل العلاقات بين المتغيرات المستقلة والاستجابات التابعة. وكان الهدف منها تحديد الظروف المثلى لتحقيق أعلى كفاءة في إزالة أيونات اليورانيل.

وتم إثبات صحة النموذج الرياضي وقدرته التنبؤية في الشكل 3، الذي يقارن مخرجات النموذج بالقياسات التجريبية. وتشير درجة التطابق العالية إلى فائدة النموذج كأداة تنبؤية موثوقة.




**الشكل** (3): مقارنة بين القيم المتوقعة من النموذج والقيم المقاسة تجريبياً.

**الجدول (2) بيانات كفاءة الإزالة التجريبية والمتوقعة.**

| Run | A (gr) | B (ppm) | C pH | D (min) | R (%) | Predicted |
|---|---|---|---|---|---|---|
| 1 | 0.3 | 60 | 4 | 50 | 66.3 | 66.5833 |
| 2 | 0.1 | 60 | 4 | 50 | 27.4 | 25.7417 |

| | | | | | | |
|---|---|---|---|---|---|---|
| 3 | 0.4 | 80 | 3 | 40 | 59.8 | 60.2875 |
| 4 | 0.2 | 80 | 5 | 40 | 34.2 | 36.3875 |
| 5 | 0.3 | 60 | 6 | 50 | 43.6 | 41.2583 |
| 6 | 0.4 | 40 | 3 | 40 | 64.7 | 66.4875 |
| 7 | 0.5 | 60 | 4 | 50 | 62.5 | 60.4083 |
| 8 | 0.2 | 40 | 3 | 40 | 48.3 | 48.9042 |
| 9 | 0.2 | 40 | 3 | 60 | 52.9 | 54.2542 |
| 10 | 0.3 | 60 | 2 | 50 | 58.4 | 56.9917 |
| 11 | 0.3 | 60 | 4 | 50 | 66.7 | 66.5833 |
| 12 | 0.3 | 60 | 4 | 30 | 55.8 | 54.825 |
| 13 | 0.3 | 20 | 4 | 50 | 69.3 | 66.225 |
| 14 | 0.2 | 40 | 5 | 40 | 40.1 | 40.4375 |
| 15 | 0.3 | 60 | 4 | 50 | 66.2 | 66.5833 |
| 16 | 0.2 | 80 | 3 | 60 | 45.6 | 47.2042 |
| 17 | 0.2 | 40 | 5 | 60 | 42.3 | 44.7375 |
| 18 | 0.4 | 40 | 5 | 40 | 56.7 | 58.0208 |
| 19 | 0.4 | 40 | 5 | 60 | 60.4 | 61.7208 |
| 20 | 0.4 | 40 | 3 | 60 | 70.5 | 71.2375 |
| 21 | 0.3 | 100 | 4 | 50 | 55.9 | 55.225 |
| 22 | 0.3 | 60 | 4 | 50 | 67.2 | 66.5833 |

| | | | | | | |
|---|---|---|---|---|---|---|
| 23 | 0.4 | 80 | 5 | 40 | 54.6 | 54.0708 |
| 24 | 0.3 | 60 | 4 | 50 | 66.3 | 66.5833 |
| 25 | 0.3 | 60 | 4 | 70 | 65.9 | 63.125 |
| 26 | 0.2 | 80 | 3 | 40 | 43.1 | 42.6042 |
| 27 | 0.4 | 80 | 3 | 60 | 63.8 | 64.2875 |
| 28 | 0.4 | 80 | 5 | 60 | 54.7 | 57.0208 |
| 29 | 0.3 | 60 | 4 | 50 | 66.8 | 66.5833 |
| 30 | 0.2 | 80 | 5 | 60 | 40.9 | 39.9375 |

بعد اجراء التجارب السابقة تم رسم العلاقة بين كفاءة ازالة اليورانيوم والعوامل المؤثرة ويبينها الشكل 4.

إن تفسير الأشكال الثلاثية الأبعاد يُعد جزءاً أساسياً من هذه المنهجية، حيث يوفر رؤية بصرية واضحة للعلاقات المعقدة بين المتغيرات المستقلة والاستجابة. حيث يلاحظ في الشكل (A–4) تأثير تركيز اليورانيوم (B) وكمية المادة المازة (A) على كفاءة الإزالة، يظهر الشكل أن كفاءة الإزالة تزداد مع زيادة كمية المادة المازة (A)، وهو ما يتوافق مع النظرية الأساسية لامتزاز المواد، حيث توفر الكميات الأعلى مساحة سطحية أكبر ومواقع امتزاز متاحة أكثر. ومع ذلك، فإن كفاءة الإزالة تنخفض بشكل ملحوظ مع زيادة تركيز اليورانيوم (B)، مما يشير إلى تشبع مواقع الامتزاز عند التراكيز العالية. هذا السلوك هو خاصية شائعة في عمليات الامتزاز، ويُعرف باسم "تأثير التركيز" أو "تأثير الحمل" [2]. والشكل يوضح أن المنطقة المثلى للكفاءة

العالية للإزالة تقع عند كميات عالية من المادة المازة وتراكيز منخفضة إلى متوسطة من اليورانيوم.

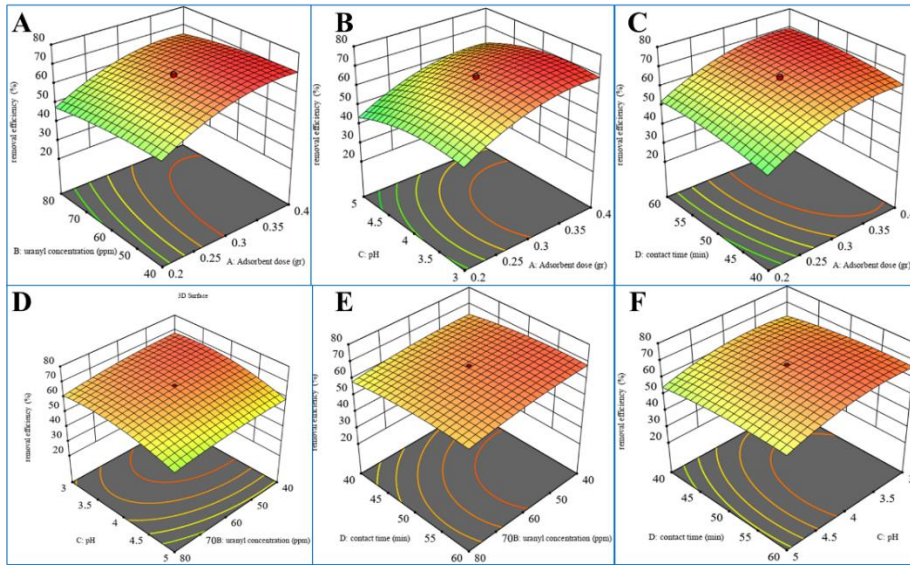
أما الشكل (4–B) فيبين تأثير pH (C) وكمية المادة المازة (A) على كفاءة الإزالة حيث يظهر هذا الشكل تأثيراً كبيراً وملحوظاً لقيمة pH على كفاءة الامتزاز. تصل الكفاءة إلى أقصى قيمة لها عند pH حوالي 5–6، ثم تنخفض عند pH أعلى أو أقل من هذا النطاق. هذا يتوافق تماماً مع طبيعة سطح أكسيد الألومنيوم، والذي يحتوي على مجموعات هيدروكسيل (–OH) يمكنها أن تصبح مشحونة إيجابياً عند pH منخفض (أقل من pH نقطة الشحنة الصفرية) أو سلبياً عند pH مرتفع (أعلى من pH نقطة الشحنة الصفرية) [3].

بينما الشكل (4–C) يظهر تأثير وقت التماس (D) وكمية المادة المازة (A) على كفاءة الإزالة، حيث يُظهر هذا الشكل أن كفاءة الإزالة تزداد مع زيادة وقت التماس، لكن هذا الارتفاع يتوقف عند نقطة معينة (حوالي 50–60 دقيقة)، حيث يصل النظام إلى حالة التوازن الديناميكي. هذا يدلّ على أن عملية الامتزاز تتطلب وقتاً للوصول إلى التوازن، ولكن بعد فترة معينة لا يحدث تغيير ملحوظ في الكفاءة، حتى مع زيادة الوقت. كما يؤكد الشكل أن زيادة الجرعة تؤدي دائماً إلى زيادة الكفاءة، حتى عند أوقات التماس القصيرة، مما يشير إلى أن الجرعة هي عامل تحكم أساسي في عملية الامتزاز [5].

أما الشكل (4–D) فيبين تأثير pH (C) وتركيز اليورانيوم (B) على كفاءة الإزالة، يؤكد هذا الشكل مرة أخرى أهمية pH كعامل حاسم. يظهر أن أقصى كفاءة تحدث عند pH ~5، بغض النظر عن تركيز اليورانيوم. ومع زيادة تركيز اليورانيوم، تنخفض الكفاءة، كما هو ملاحظ في الشكل (4–A). ويظهر بوضوح أن المنطقة المثلى للكفاءة العالية تتركز حول pH 5 وتركيزات منخفضة من اليورانيوم. وبالنسبة للشكل (4–E) فيبين تأثير وقت التماس (D) وتركيز اليورانيوم (B) على كفاءة الإزالة ويظهر في هذا الشكل العلاقة بين زمن الوصول للتوازن وتركيز اليورانيوم. يلاحظ أن الوقت اللازم للوصول إلى التوازن يزداد مع زيادة تركيز اليورانيوم، لأن كمية أكبر من أيونات اليورانيوم تحتاج إلى وقت أطول للتفاعل مع مواقع الامتزاز المتاحة. كما أن الكفاءة الكلية تنخفض مع زيادة التركيز، وهو ما يتوافق مع النتائج السابقة. وفي حالة الشكل (4–F) فإنه يظهر تأثير pH (C) ووقت التماس (D) على كفاءة الإزالة، ونلاحظ فيه أن أفضل كفاءة تحدث عند pH ~5 وفي أوقات تلامس طويلة نسبياً (50–60 دقيقة). في حين أن التغير في pH له تأثير أكبر بكثير من التغير في وقت التماس على الكفاءة الكلية، إلا أن وجودهما معاً في مجالهما الأمثل يحقق أقصى كفاءة ممكنة.

ومن المناقشة السابقة نجد أنَّ كمية المادة المازة هي عامل تحكم رئيسي، حيث تزداد الكفاءة مع زيادة الجرعة في جميع ظروف التشغيل الأخرى. قيمة الـ pH هو المتغير الأكثر تأثيراً على كفاءة الامتزاز، مع وجود نطاق أمثل ضيق (pH ~5) يحقق أقصى كفاءة بسبب التوازن على

سطح أكسيد الألومنيوم. تركيز اليورانيوم يؤثر سلباً على الكفاءة، حيث تنخفض الكفاءة مع زيادة التركيز بسبب تشبع مواقع الامتزاز. وقت التماس مهم للوصول إلى التوازن، لكن تأثيره يصبح ثانوياً بعد الوصول إلى فترة معينة (~60 دقيقة).




الشكل (4) رسومات بيانية لسطح الاستجابة توضح التأثيرات التفاعلية لمتغيرات العملية على كفاءة الإزالة.

## 6. الاستنتاجات:

في ضوء النتائج التي تم الحصول عليها في هذه الدراسة، يمكن الاستنتاج أن أكسيد الألومنيوم النانوي ($Al_2O_3$ NPs) قد تم تصنيعه بنجاح باستخدام طريقة تصنيع خضراء تعتمد على

مستخلص نبات الصبار (Aloe vera) كعامل مرجع ومثبت حيوي. وقد أكد تحليل مطيافية الأشعة تحت الحمراء (FT–IR) وجود روابط Al–O المميزة، إلى جانب مجموعات الهيدروكسيل السطحية التي تلعب دوراً محورياً في تفاعلات الامتزاز. كما بيّن تحليل حيود الأشعة السينية (XRD) أن العينة تتكون من الطور $\gamma$–$Al_2O_3$ البلوري، مع متوسط حجم بلوري قدره 19.42 نانومتر، وهو ما يتوافق مع الخصائص النانوية المرغوبة. عند تطبيق المادة المُحضّرة في امتزاز أيونات اليورانيوم (VI) من المحاليل المائية، أظهرت منهجية سطح الاستجابة (RSM) بنموذج التصميم المركزي (CCD) أن كفاءة الإزالة تتأثر بشكل كبير بدرجة الحموضة (pH)، وكمية المادة المازة، والتركيز الابتدائي لليورانيوم، وزمن التماس. وقد تم تحقيق أقصى كفاءة لإزالة اليورانيوم (70.5%) عند الظروف المثلى التالية: pH ≈ 5، كمية مادة مازة 0.4 غ، تركيز ابتدائي 40 ppm، وزمن تلامس 60 دقيقة. ويعزى الأداء المتميز إلى المساحة السطحية العالية للجسيمات النانوية، وطبيعة سطح الألومينا الغني بمجموعات –OH، بالإضافة إلى التأثير المحتمل للمواد العضوية النباتية المتبقية على السطح والتي قد تُعزّز الامتزاز عبر تكوين روابط مخلبية. وبذلك، يُعدّ أكسيد الألومنيوم النانوي المُحضّر بطريقة خضراء مادةً واعدة ومستدامة لإزالة الملوثات الإشعاعية من المياه، مع إمكانية تطويره لتطبيقات بيئية أوسع في المستقبل.

## 7. التوصيات:

- نوصي بدراسة تأثير درجة حرارة التكليس على الخصائص السطحية والبنيوية لأكسيد الألمنيوم المحضر.
- دراسة حركية امتزاز أيونات اليورانيوم وتحديد السعة الامتزازية.

## 8. المراجع:

[1] Kim S-M, Lee Y-J, Bae JW, et al. Synthesis and characterization of a highly active alumina catalyst for methanol dehydration to dimethyl ether. *Appl Catal A Gen* 2008; 348: 113–120.

[2] Vaiani L, Boccaccio A, Uva AE, et al. Ceramic Materials for Biomedical Applications: An Overview on Properties and Fabrication Processes. *J Funct Biomater* 2023; 14: 146.

[3] Fallah Nia E, Kouki A. Ceramics for Microelectromechanical Systems Applications: A Review. *Micromachines (Basel)* 2024; 15: 1244.

[4] Yuan N, Zhang X, Zhao A, et al. High-alumina fly ash as sustainable aluminum sources for the in situ preparation of Al-based eco-MOFs. *Colloids Surf A Physicochem Eng Asp* 2022; 640: 128421.

[5] Rasheed SA, Nayef UM, Muayad MW. Synthesis of Al2O3 Nanoparticles via Laser Ablation for Photodetectors Application. *Plasmonics* 2025; 20: 6611–6621.

[6] Li M, Si Z, Wu X, et al. Facile synthesis of hierarchical porous γ–Al2O3 hollow microspheres for water treatment. *J Colloid Interface Sci* 2014; 417: 369–378.

[7] Crişan M, Zaharescu M, Kumari VD, et al. Sol–gel based alumina powders with catalytic applications. *Appl Surf Sci* 2011; 258: 448–455.

[8] Romero Toledo R, Ruiz Santoyo V, Moncada Sánchez CD, et al. Effect of aluminum precursor on physicochemical properties of Al2O3 by hydrolysis/precipitation method. *Nova Scientia* 2018; 10: 83–99.

[9] Sumesh KR, Kanthavel K. Green Synthesis of Aluminium Oxide Nanoparticles and its Applications in Mechanical and Thermal Stability of Hybrid Natural Composites. *J Polym Environ* 2019; 27: 2189–2200.

[10] Sone BT, Diallo A, Fuku XG, et al. Biosynthesized CuO nano-platelets: Physical properties & enhanced thermal

conductivity nanofluidics. *Arabian Journal of Chemistry* 2020; 13: 160–170.

[11] Jeevanandam J, Kiew SF, Boakye-Ansah S, et al. Green approaches for the synthesis of metal and metal oxide nanoparticles using microbial and plant extracts. *Nanoscale* 2022; 14: 2534–2571.

[12] Ikhioya IL, Nkele AC. Green synthesis and characterization of aluminum oxide nanoparticle using neem leaf extract (Azadirachta Indica). *Hybrid Advances* 2024; 5: 100141.

[13] Tran GT, Nguyen NTH, Nguyen NTT, et al. Plant extract-mediated synthesis of aluminum oxide nanoparticles for water treatment and biomedical applications: a review. *Environ Chem Lett* 2023; 21: 2417–2439.

[14] Xiong X, Liu J, Xiao T, et al. Remediation of uranium-contaminated water and soil by biochar-based materials: a review. *Biochar* 2025; 7: 41.

[15] Zong P, Xu X, Shao M, et al. Efficient elimination of uranium by carboxymethyl-β-cyclodextrin nanoparticles decorated iron oxides: Water chemistry influences and mechanism researches. *Int J Hydrogen Energy* 2021; 46: 1370–1384.

[16] Pan N, Li L, Ding J, et al. Preparation of graphene oxide–manganese dioxide for highly efficient adsorption and separation of Th(IV)/U(VI). *J Hazard Mater* 2016; 309: 107–115.

[17] He H, Zong M, Dong F, et al. Simultaneous removal and recovery of uranium from aqueous solution using TiO2 photoelectrochemical reduction method. *J Radioanal Nucl Chem* 2017; 313: 59–67.

[18] Lei Y, Li W, Han Y, et al. Biomimetic ZrO2–modified seaweed residue with excellent fluorine/ bacteria removal and uranium extraction properties for wastewater purification. *Water Res* 2024; 252: 121219.

[19] Jo Y, Lee J–Y, Yun J–I. Adsorption of uranyl tricarbonate and calcium uranyl carbonate onto γ–alumina. *Applied Geochemistry* 2018; 94: 28–34.

[20] Galindo C, Nero M Del, Barillon R, et al. Mechanisms of uranyl and phosphate (co)sorption: Complexation and precipitation at α–Al2O3 surfaces. *J Colloid Interface Sci* 2010; 347: 282–289.

[21] Karmakar R, Singh P, Sen K. Selectivity of Th(IV) adsorption as compared to U(VI), La(III), Ce(III), Sm(III) and Gd(III) using mesoporous Al 2 O 3. *Sep Sci Technol* 2021; 56: 2369–2384.

[22] Xu L, Xu C, Bao H, et al. Selective Capture Mechanism of Radioactive Thorium from Highly Acidic Solution by a Layered Metal Sulfide. *ACS Appl Mater Interfaces* 2021; 13: 37308–37315.

[23] N. Njoku C, K. Otisi S. Application of Central Composite Design with Design Expert v13 in Process Optimization. In: *Response Surface Methodology - Research Advances and Applications*. IntechOpen, 2023, p. 13.

[24] Park YK, Tadd EH, Zubris M, et al. Size-controlled synthesis of alumina nanoparticles from aluminum alkoxides. *Mater Res Bull* 2005; 40: 1506–1512.

[25] Ghanta SR, Muralidharan K. Chemical synthesis of aluminum nanoparticles. *Journal of Nanoparticle Research* 2013; 15: 1715.

[26] Suryavanshi P, Pandit R, Gade A, et al. Colletotrichum sp.-mediated synthesis of sulphur and aluminium oxide nanoparticles and its in vitro activity against selected food-

borne pathogens. *LWT – Food Science and Technology* 2017; 81: 188–194.