

غنی‌سازی ایزوتوپ ^{54}Fe به روش جداسازی الکترومغناطیسی ایزوتوپ‌ها و تصفیه شیمیایی آن

ضرغام اسدالهی^{۱،*}، محمدرضا قاسمی^۱، مهدی صادقی^۱، علی هاشمی‌زاده عقدا^۲، پروین

سرآبادانی^۱، هوشنگ بختیاری^۱، سیدمحمود محاطی^۱، هوشیار سیدی^۱، معصومه شربتداران^۱

۱- سازمان انرژی اتمی، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، پژوهشکده تحقیقات کشاورزی، پزشکی و صنعتی

۲- دانشگاه پیام نور تهران، واحد پرند، گروه فیزیک

چکیده

با استفاده از سیستم جدا کننده الکترو مغناطیسی ایزوتوپ‌ها، غنی‌سازی ایزوتوپ ^{54}Fe برای اولین بار در ایران انجام شد. یکی از کاربردهای ایزوتوپ ^{54}Fe ، تولید رادیوایزوتوپ آهن-۵۵ می‌باشد که در آشکار سازهای گیرانداز الکترون و در دستگاه تصویر برداری فلورسانس استفاده می‌شود. طراحی و ساخت پاکت‌های مسی و صفحه جلویی گرافیتی کلکتور، آماده سازی ماده اولیه، تعیین پارامترهای الکتریکی چشمه یونی و الکترومگنت انجام و طیف جرمی ایزوتوپ‌های آهن توسط رکورد ثبت شد. ایزوتوپ ^{54}Fe از پاکت استخراج و با روش‌های شیمیایی تخلیص گردید. خلوص شیمیایی و ایزوتوپی ^{54}Fe به ترتیب با ICP و TIMS تعیین و تشکیل $^{54}\text{Fe}_2\text{O}_3$ با XRD تایید شد.

واژه‌های کلیدی: ایزوتوپ‌ها، آهن، جداسازی، تصفیه شیمیایی، الکترو مغناطیسی

۱- مقدمه

با سیستم جدا کننده الکترومغناطیسی می‌توان ایزوتوپ‌هایی با درجه خلوص بسیار بالا تولید کرد [۱]. در این روش ابتدا اتم‌های عنصر مورد نظر در چشمه یونی کالترون [۲] بعد از تبخیر حرارتی، به روش برخورد الکترونی، یونیزه شده و با یک انرژی ثابت وارد میدان مغناطیسی یکنواخت می‌شوند و تحت تاثیر میدان مغناطیسی، میسر نیم‌دایره را می‌پیمایند. با توجه به ثابت بودن انرژی یون‌ها و شدت میدان مغناطیسی، شعاع مسیر برای جرم‌های مختلف متفاوت بوده و در انتهای مسیر یون‌های ایزوتوپ‌های مختلف از هم تفکیک و در پاکت‌های مجزا جمع‌آوری می‌شوند [۳]. ایزوتوپ‌های جمع‌آوری شده در پاکت‌ها، به وسیله فرایند شیمیایی استخراج شده و پس از طی مراحل تصفیه شیمیایی، ایزوتوپ خالص به دست می‌آید.

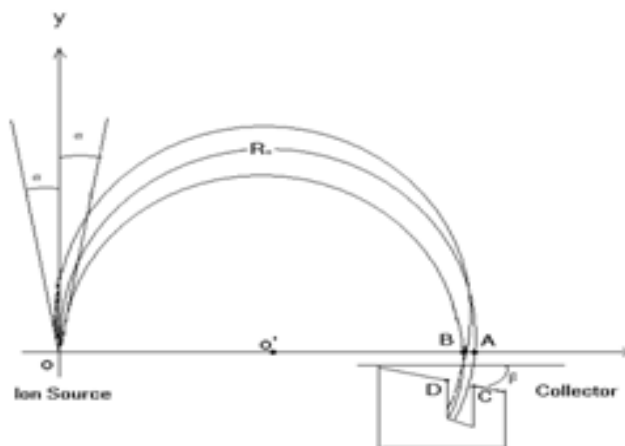
۲- روش انجام کار

۲-۱- انتخاب و آماده سازی ماده اولیه

ماده اولیه باید دارای خلوص شیمیایی بالا، دمای تبخیری در محدوده 100°C تا 800°C ، پایداری حرارتی در هنگام تبخیر و بدون آب باشد. از کلرید آهن سبز رنگ به صورت $\text{FeCl}_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ به عنوان ماده اولیه استفاده شد که پس از حرارت دادن در یک کوره خلاء به مدت یک ساعت با دمای 400°C به رنگ خاکستری بدون آب تبدیل شد [۴].

۲-۲- طراحی و ساخت صفحه جلویی و پاکت‌های ایزوتوپ‌های آهن

با توجه به شکل (۱) مسیر پرتوها در میدان مغناطیسی یکنواخت بصورت دایره است. حداکثر زاویه واگرایی پرتوها برای هر ایزوتوپ در چشمه یونی α فرض شده است. بنابراین پهنای پرتو برای هر ایزوتوپ بر روی محور X برابر با $AB = 2R_0(1 - \cos \alpha)$ است که در آن شعاع پرتو با زاویه واگرایی صفر می‌باشد. این پهنای کلکتور که با محور X زاویه β می‌سازد برابر با $CD = AB / \cos \beta$ خواهد شد. با توجه به اینکه زاویه α برابر 6 درجه می‌باشد، برای بهینه کردن پهنای پاکت (CD) ، زاویه کلکتور با محور X ، 47 درجه در نظر گرفته شده است.



شکل (۱) مسیر طی شده یک ایزوتوپ در میدان مغناطیسی

مختصات مرکز هر پاکت که از قطع دادن معادلات دایره مربوطه و خط کلکتور محاسبه شده و پارامتر $C_M = M/M_0$ (نسبت جرم هر ایزوتوپ به جرم ایزوتوپ میانی) برای عنصر آهن با چهار ایزوتوپ پایدار، ^{56}Fe ، ^{57}Fe ، ^{58}Fe ، ^{60}Fe در جدول شماره (۱) نشان شده است.

جدول (۱) مختصات پاکت‌های ایزوتوپ‌های آهن در کلکتور

^{58}Fe	^{57}Fe	^{56}Fe	^{54}Fe	ایزوتوپ‌های آهن
۰/۳	۲/۲	۹۱/۷	۵/۸	درصد فراوانی
۱/۰۳۵۷	۱/۰۱۷۸	۱	۰/۹۶۴۲	مقدار C_M
۲۸۶۶	۲۸۴۰/۸	۲۸۱۶	۲۷۶۳	مقدار X(mm)
-۱۷۱	-۱۴۴/۵	-۱۱۸	-۶۲/۶	مقدار Y(mm)

با توجه به میزان فراوانی طبیعی برای ایزوتوپ‌های ^{56}Fe و ^{58}Fe بایستی ضخامت ورق پاکت‌ها ۳ میلی‌متر و دارای سیستم آب خنک کننده باشند. برای پاکت‌های دیگر، ضخامت ورقه مسی را ۲ میلی‌متر در نظر گرفته که فاقد خنک کننده می‌باشند. پهنای پاکت برای ایزوتوپ‌های ^{56}Fe ، ^{57}Fe و ^{58}Fe به ترتیب ۲۵، ۲۰، ۱۵ و ۱۵ میلی‌متر در نظر می‌گیریم. با توجه به اینکه ارتفاع تصویر پرتوها روی صفحه جلویی کوچک‌تر یا مساوی با ۱۷۰ میلی‌متر می‌باشد. بنابراین ارتفاع شکاف در صفحه جلویی ۱۹۰ میلی‌متر و به منظور جلوگیری از اتلاف پرتو، ارتفاع پاکت‌ها ۲۱۰ میلی‌متر در نظر گرفته می‌شود تا کل پرتو را پوشش دهد. عمق همه پاکت‌ها ۱۰۰ میلی‌متر انتخاب می‌شود.

۲-۵- بدست آوردن شرایط کار

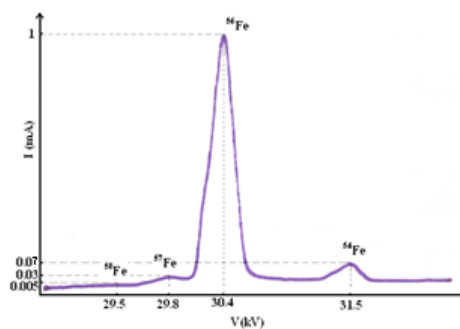
پارامترهای فیزیکی و الکتریکی که باید محاسبه و تعیین شوند، عبارتند از: ولتاژ شتاب‌دهنده که انرژی یون‌های خروجی از چشمه یونی را تعیین می‌کند، ولتاژ متمرکزکننده که به همراه الکتروستاتاب‌دهنده نقش هم‌گرا کننده پرتوهای خروجی را به عهده دارند، سیستم کاتدی شامل جریان فیلمان، ولتاژ و جریان کاتد و ولتاژ آند که انرژی الکترون‌های ساطع شده را کنترل می‌کنند، فشار بخار در محفظه قوس الکتریکی که نقش تعیین کننده در ایجاد پلاسما داشته و توسط هیترهای مربوطه کنترل می‌گردد، اندازه شدت میدان مغناطیسی ۹۳۰ گوس محاسبه گردید که لازم است جریان سیم پیچ مگنت روی ۹۳ آمپر تنظیم شود [۳]. پارامترهای عملیاتی بدست آمده در جدول (۳) آمده است.

جدول (۳) پارامترهای عملیاتی در هنگام جداسازی ایزوتوپ‌های آهن

V_{Acc} (kV)	V_{Foc} (kV)	I_{Fi} (A)	V_{Cat} (V)	I_{Cat} (A)	V_{Anode} (V)	I_{Anode} (A)	I_{Mag} (A)	Temp. (°C)	I_{Total} (mA)
۳۰	۱۱	۶۵	۸۰۰	۰/۴۵	۳۰۰	۰/۴۵	۹۳	۳۸۵	۱۰/۳

۲-۶- جداسازی ایزوتوپ‌های آهن

بعد از تنظیم پارامترها و رسیدن به شرایط مطلوب موفق به دریافت ایزوتوپ‌های تفکیک شده در کلکتور شدیم. شکل (۲) پیک‌های تفکیک شده ایزوتوپ‌های آهن را نشان می‌دهد که توسط یک فنجان فارادی از روی درب کلکتور ثبت شده است. بعد از اطمینان از صحت جداسازی، جمع‌آوری حدود سی ساعت با میانگین جریان کل ۱۰/۳ mA استمرار داشت.



شکل (۲) پیک‌های ثبت شده توسط رکوردی با ولتاژ شتاب‌دهنده

۲-۷- تصفیه شیمیایی ایزوتوپ ^{56}Fe

روش الکترولیز به همراه استخراج با حلال (solvent extraction) به دلیل سادگی، سرعت بالای استخراج و تنوع متدهای استخراج نسبت به سایر روش‌ها ارجح می‌باشد. برای این منظور ابتدا ۵۰ mg ایزوتوپ ^{56}Fe و بقیه ناخالصی‌ها جمع‌آوری شده در پاکت مسی توسط اسید نیتریک ۵۰٪ استخراج گردید. مس با روش الکترولیز تحت جریان ثابت ۲A به صورت مس فلزی بر روی الکتروود پلاتینی ته نشین شده و حذف گردید [۵]. بعد از الکترولیز محلول تا نزدیک خشک شدن حرارت داده شد. به منظور تبدیل نیترات آهن به کلرید آهن چند قطره اسید کلریدریک غلیظ (۱۲ مولار) به آن اضافه نموده و محلول مجدداً خشک گردید. این عمل چهار بار تکرار شد. سپس به ازای ۵۰ mg ایزوتوپ ^{56}Fe موجود حدود ۲۵ میلی‌لیتر از اسید کلریدریک ۷ مولار اضافه گردید. ^{56}Fe توسط ۲۵ میلی‌لیتر متیل ایزو بوتیل کتون (MIBK) به عنوان حلال آلی استخراج‌کننده از فاز آبی به فاز آلی منتقل گردید. تحت این شرایط ناخالصی‌ها در فاز آبی باقی می‌ماند. فاز آبی دور ریخته شده و فاز آلی توسط ۲۵ میلی‌لیتر از اسید کلریدریک ۷ مولار شسته شده و فاز آبی مجدداً دور ریخته می‌شود. سپس با شستشوی فاز آلی توسط آب، کلرید آهن از فاز آلی به فاز آبی استخراج برگشتی می‌شود. فاز آبی حاوی کلرید آهن تا نزدیک خشک شدن حرارت داده شد. به منظور تبدیل آهن (III) به آهن (II) حدود ۲۰۰ میلی‌لیتر هیدروکسیل آمین هیدروکلراید به رسوب اضافه گردید [۶-۸]. با استفاده از بافر اسید استیک

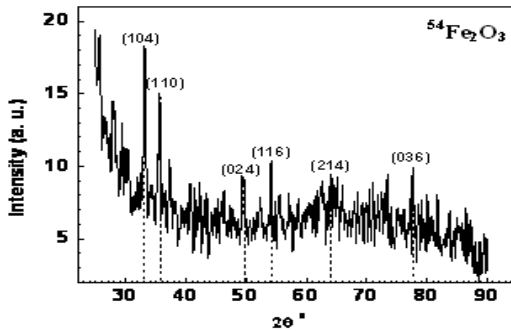
و استات آمونیم pH محلول را در ناحیه ۵-۴ تنظیم نموده و سپس با استفاده از لیگاند او ۱۰-۱ فنانترویلین ۰/۲ %، آهن به صورت کمپلکس قرمز او ۱۰ فنانترویلین - آهن (II) تشکیل می‌شود [۹-۱۱]. با استفاده از دستگاه روتاری، حلال خارج شده و نهایتاً محصول در کوره تحت دمای °C ۷۰۰ به مدت ۷ ساعت کلسینه گردید. در این شرایط کمپلکس او ۱۰ فنانترویلین - آهن (II) به اکسید آهن (III) قهوه‌ای خالص که یک ترکیب پایدار و قابل توزین می‌باشد، تبدیل گردید. تشکیل اکسید آهن (III) توسط پراش اشعه X تایید گردید. خلوص شیمیایی و خلوص ایزوتوپی ایزوتوپ ^{56}Fe به ترتیب توسط دستگاه اسپکترومتر نشری اتمی - پلاسمای جفت شده القایی (ICP-AES) و اسپکترومتر جرمی تعیین گردید.

۳- نتیجه گیری

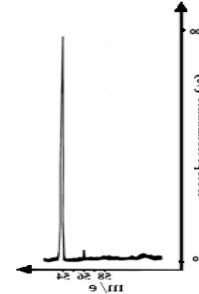
برای اولین بار در ایران ایزوتوپ‌های آهن با روش الکترومغناطیسی جداسازی شدند. ماده اولیه به کار رفته، کلرید آهن با خلوص بالای ۹۹ درصد می‌باشد که قابلیت تبخیر در محدوده دمای کاری چشمه یونی را دارد. تنظیم دقیق پارامترها با استفاده از یک فنجان فارادی که در روی کلکتور تعبیه شده بود، انجام گرفت. در این فرآیند با تغییر ولتاژ شتاب‌دهنده و ثابت نگه داشتن میدان مغناطیسی ایزوتوپ‌های مختلف در داخل فنجان مذکور وارد شده و عمل جداسازی ایزوتوپ‌ها و عدم تداخل آن‌ها بررسی شد. بعد از تعیین پارامترها، جداسازی و جمع‌آوری ایزوتوپ‌ها در پاکت‌های مسی برای مدت سی ساعت و با جریان متوسط یونی ۱۰/۳ میلی‌آمپر برای کل ایزوتوپ‌ها انجام شد. روش استخراج با حلال برای تخلیص آهن بر پایه استخراج توسط تشکیل یون استوار است و به سیستم تشکیل کمپلکس تعلق ندارد. در این روش آهن (III) با یون Cl^- کمپلکس یونی FeCl_4^- تشکیل می‌دهد. سپس کتون (R-C=O) با H^+ ترکیب شده ایجاد یون اکسنیم می‌کند که با FeCl_4^- جفت شده و تشکیل هسته نمک اکسنیم خنثی را می‌نماید که این نمک می‌تواند توسط کتون استخراج شود. به طوری که کتون می‌تواند هم به عنوان حلال و هم به عنوان استخراج کننده عمل نماید. به منظور تشکیل کمپلکس، آهن (III) باید به آهن (II) تبدیل گردد. این کاهش با استفاده از هیدروکسیل آمین هیدروکلراید طی واکنش زیر انجام می‌شود:



سپس آهن (II) با او ۱۰- فنانترویلین واکنش داده و یک کمپلکس قرمز رنگ تشکیل می‌گردد. خلوص شیمیایی و خلوص ایزوتوپی ^{56}Fe توسط اسپکترومتر نشری اتمی و اسپکترومتر جرمی به ترتیب ۹۴/۵، ۹۷/۵۴ درصد تعیین گردید. شکل (۳) پیک مربوط به خلوص ایزوتوپی ^{56}Fe را نشان می‌دهد. تشکیل پودر اکسید ^{56}Fe توسط دستگاه پراش اشعه X مورد تأیید قرار گرفت. شکل (۵) طیف پراش اشعه X مربوط به آنالیز $^{56}\text{Fe}_2\text{O}_3$ را نشان می‌دهد.



شکل (۴) طیف پراش اشعه X آنالیز $^{54}\text{Fe}_2\text{O}_3$



شکل (۳) خلوص ایزوتوپی ^{54}Fe

مراجع

- [۱]. S. M. Mohati, et al. Enrichment of ^{68}Ni by electromagnetic isotope separator, ۵th International conference on isotopes, Brussels (Belgium), April ۲۵-۲۹, (۲۰۰۵).
- [۲]. A. L. Compare and W. L. Griffith, The US Calutron Program for Uranium Enrichment: History, Technology, Operation and production, ORNL-۵۹۲۸ (۱۹۹۱).
- [۳]. J. Koch, Electromagnetic Isotope Separators and Application of Electromagnetically Enriched Isotopes, (۱۹۵۸).
- [۴]. C. W. Sheridan, H. R. Gwinn and L. O. Love, Preparation of Charge Materials for ORNL Electromagnetic Isotopes separator, ORNL- ۳۳۰۱ (۱۹۶۲).
- [۵]. P. Sarabadani, B. Zeynali, J. Gargosi, H. Nourkojouri, M. Pour Amin, A. Satari "Chemical recovery and purification of ^{203}Tl stable isotope enriched by using an electromagnetic isotope separator", Journal of Labeled compounds and Radiopharmaceuticals, ۵۰, ۵-۶ (۲۰۰۷).
- [۶]. S. M. Qaim, R. Weinreich, and H. Ollige, Inter. J. Appl. Rad. & Isotopes, ۳۰, ۸۵ (۱۹۷۵).
- [۷]. M. Todorović, P. Đurđević, V. Antonijević, Optical methods for instrumental analysis, Faculty of Chemistry, Belgrade, (۱۹۹۷).
- [۸]. D. C. Harris, Quantitative chemical analysis, W. H. Freeman and Co., New York, (۱۹۹۶).
- [۹]. H. Tamura, K. Goto, T. A. kao Yotsuyanagi, M. Nagayama, "Spectrophotometric determination of iron(II) with ۱,۱۰-phenanthroline in the presence of large amounts of iron(III)", Talanta, ۲۱, ۳۱۴-۳۱۸ (۱۹۷۴).
- [۱۰]. D. Lazić, B. Škundrić, J. P. Škundrić, S. Sladojević, L. Vasiljević, D. Blagojević, Z. Obrenović, "Stability of tris-۱,۱۰-Phenanthroline iron (II) complex in different composites", Chemical Industry & Chemical Engineering Quarterly, ۱۶, ۱۹۳-۱۹۸ (۲۰۱۰).
- [۱۱]. D. C. Harris, "Determination of Iron with ۱,۱۰-Phenanthroline, in: Quantitative Chemical Analysis", ۶th ed., W. H. Freeman & Company, New York, ۲۵۸-۲۶۱, ۴۰۷-۴۲۲, ۴۵۳, ۴۶۱-۴۷۶, ۷۰۷-۷۰۹ (۲۰۰۳).