



## غنی‌سازی و تخلیص شیمیایی ایزوتوپ پایدار نئودیمیم-۱۴۶ به روش الکترومغناطیسی (EMIS)

امیر حمیدی\*، هوشیار سیدی، معصومه شربتداران، علیرضا گرائیلی، بهروز شیرازی

پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، پژوهشکده فیزیک و شتابگرها، گروه پژوهشی پرتوهای یونی

### چکیده

نئودیمیم دارای هفت ایزوتوپ طبیعی شامل ۵ ایزوتوپ پایدار  $^{142}\text{Nd}$ ،  $^{143}\text{Nd}$ ،  $^{145}\text{Nd}$ ،  $^{146}\text{Nd}$ ،  $^{148}\text{Nd}$  و دو رادیو ایزوتوپ  $^{144}\text{Nd}$  و  $^{150}\text{Nd}$  با طول عمر بسیار زیاد به ترتیب با فراوانی‌های ۲۷/۱۱، ۱۲/۱۷، ۸/۳، ۱۷/۲۲، ۵/۷۳، ۲۳/۸۵ و ۵/۶۲ درصد می‌باشد. در این کار تحقیقاتی غنی‌سازی نئودیمیم-۱۴۶ با فراوانی طبیعی ۱۷/۲۲ جهت کاربرد در باتری‌های اتمی برای اولین بار در ایران با موفقیت انجام شد. جهت غنی‌سازی، از ماده اولیه کلرید نئودیمیم آبدار استفاده و پارامترهای الکتریکی برای چشمه‌یونی کالترون و الکترومگنت تعیین گردید. اجزای کلکتور شامل صفحه جلویی، پاکت‌های گرافیتی، غلاف مسی طراحی و ساخته شد و در موقعیت محاسبه شده نصب گردید. سپس ایزوتوپ‌ها در پاکت‌ها جمع‌آوری و مراحل بازیافت شیمیایی از پاکت‌ها و پالایش انجام شد. کنترل کیفی ایزوتوپ‌ها از طریق آنالیز طیف‌سنجی جرمی و آنالیز عنصری انجام و در صد غنای ایزوتوپی و خلوص عنصری نئودیمیم-۱۴۶ به ترتیب ۸۷/۱۶ درصد و ۹۷/۵۰ درصد اندازه‌گیری گردید.

کلید واژه‌ها: ایزوتوپ پایدار، نئودیمیم، غنی‌سازی، جداکننده الکترومغناطیسی.

## Enrichment and chemical purification of $^{146}\text{Nd}$ by electromagnetic isotope separator (EMIS)

A. Hamidi\*, H. Seyedi, M. Sharbatdaran, A. Graeeli, B. Shirazi

Physics & Accelerators research School, Nuclear Science & Technology Research Institute, P.O.BOX: 31485-498, Karaj, Iran.

### Abstract:

Neodymium has seven natural isotopes with five stable isotopes of  $^{142}\text{Nd}$ ،  $^{143}\text{Nd}$ ،  $^{145}\text{Nd}$ ،  $^{146}\text{Nd}$ ،  $^{148}\text{Nd}$  and two radio isotopes of  $^{144}\text{Nd}$  and  $^{150}\text{Nd}$  with high life time with natural abundance 27.11, 12.17, 8.3, 17.22, 5.73, 23.8 and 5.62 % respectively. In this research enrichment of Neodymium-146 with natural abundance 17.22 % for atomic batteries applications were performed successfully for the first time in Iran. For enrichment, hydrous neodymium chloride was used as a precursor and electrical parameters were determined for calutron ion source and electromagnetic isotopes separator. The collector components, including the front panel, graphite pockets and copper case, were designed and fabricated and installed in the calculated position. Finally, isotopes were collected in pockets and recovering process from the pocket and chemical refining procedures were performed. Isotope quality control was done by mass spectrometric analysis and elemental analysis and the percent isotopic richness and elemental purity of Neodymium-146 were measured 87.16% and 97.50% respectively.

**Keywords:** Stable Isotope, Neodymium, Enrichment, Electromagnetic separator

\* Email: ahamidi03@yahoo.com

## ۱. مقدمه

امروزه ایزوتوپ‌های پایدار کاربرد وسیعی در تحقیقات بنیادی، پزشکی و صنعتی دارند، به طوری که با رشد این تحقیقات نیاز برای ایزوتوپ‌های جدید افزایش یافته است. اکنون ایزوتوپ‌ها جزء مهمی از اقتصاد کشورهای صنعتی می‌باشند که فرصت‌های شغلی فراوانی ایجاد کرده و هر جامعه‌ای نیازمند به یک منبع تأمین کننده ثابت و قابل اعتماد ایزوتوپ‌های پایدار و رادیواکتیو برای کاربردهای پزشکی، کشاورزی و صنعتی می‌باشد [۱].

عنصر نئودیمیم دارای هفت ایزوتوپ طبیعی شامل ۵ ایزوتوپ پایدار  $^{142}\text{Nd}$ ،  $^{143}\text{Nd}$ ،  $^{145}\text{Nd}$ ،  $^{146}\text{Nd}$ ،  $^{148}\text{Nd}$  و دو رادیو ایزوتوپ با طول عمر بسیار زیاد  $^{144}\text{Nd}$  (فروپاشی  $\alpha$  با نیمه عمر  $t_{1/2} = 29/9 \times 10^5$  سال) و  $^{150}\text{Nd}$  (با نیمه عمر  $t_{1/2} = 7 \times 10^{18}$  سال) به ترتیب دارای ۲۷/۱۱، ۱۲/۱۷، ۸/۳، ۱۷/۲۲، ۵/۷۳، ۲۳/۸۵ و ۵/۶۲ درصد فراوانی طبیعی می‌باشند. سایر رادیو ایزوتوپ‌ها دارای زمان نیمه عمر کوتاه تر از ۱۱ روز می‌باشند و بخش عمده آنها نیمه عمری کمتر از ۷۰ ثانیه دارند. این عنصر هم دارای سیزده حالت نیمه پایدار می‌باشد که پایدارترین آنها  $^{139\text{m}}\text{Nd}$  ( $t_{1/2} = 5/5 \text{ h}$ ) و  $^{135\text{m}}\text{Nd}$  ( $t_{1/2} = 5/5 \text{ min}$ ) و  $^{133\text{m}}\text{Nd}$  ( $t_{1/2} = 70 \text{ s}$ ) [۲].

یکی از مهم‌ترین کاربردهای نئودیمیم-۱۴۶، تولید پرومتیم-۱۴۷ جهت استفاده در باتریهای اتمی می‌باشد. پرومتیم-۱۴۷ از طریق تابش نوترونی یک هدف نئودیمیم-۱۴۶ به طور غیر مستقیم تولید می‌شود [۲]. نئودیمیم-۱۴۶ تحت یک واکنش  $(n, \gamma)$  تشکیل  $^{147}\text{Nd}$  را می‌دهد که دارای نیمه عمر ۱۰/۹۸ روز است که متعاقباً به  $^{147}\text{Pm}$  فروپاشی می‌کند. جهت جداسازی پرومتیم از نئودیمیم به یک رزین کروماتوگرافی استخراج نیاز است که دو لانتانید سه ظرفیتی را از یکدیگر جدا کند [۳ و ۴].

جداکننده الکترومغناطیسی ایزوتوپ‌ها، دستگاهی است که برای جداسازی ایزوتوپ‌های عناصر مختلف بکار می‌رود. در این سیستم از یک میدان مغناطیسی برای جداسازی ایزوتوپ‌ها استفاده می‌شود به این صورت که یون‌های با جرم متفاوت ولی با انرژی یکسان را از هم جدا نموده و یون‌های با جرم یکسان ولی با واگرایی اولیه متفاوت را متمرکز می‌کند. یون‌هایی که با جرم یکسان از چشمه یونی به داخل تانک خلأ وارد می‌شوند دارای واگرایی زاویه‌ای اولیه نسبت به پرتو مرکزی می‌باشند. پرتوهای پراکنده شده تحت زاویه  $\pm \alpha$  از پرتو مرکزی انحراف می‌یابند. بنابر این در یک نقطه مشترک با پرتو مرکزی هم کانون نمی‌باشند. برای کانونی کردن (جمع کردن ایزوتوپ‌ها در یک نقطه) این پرتوهای واگرا شده با پرتو مرکزی، می‌توان میدان را برای پرتو مرکزی تقویت و برای پرتوهای کناری تضعیف نمود [۵]. در این مقاله به غنی سازی ایزوتوپ پایدار نئودیمیم-۱۴۶ و پالایش شیمیایی آن پرداخته می‌شود.

## ۲. روش کار

حدود ۷۰-۱۰۰ گرم ترکیب کلرید نئودیمیم آبدار برای هر مرتبه کاری، به مدت ۸ ساعت در کوره در دمای  $120^\circ\text{C}$  آب‌زدایی و در بوتله گرافیتی شارژ گردید. چشمه یونی و کلکتور به محفظه خلأ نصب و اتصالات الکتریکی و خنک کننده‌های آن برقرار شد. بر روی درب کلکتور یک دتکتور (فنجان فارادی) نصب شد تا پیک جرمی ایزوتوپ‌های نئودیمیم قبل از عمل جمع‌آوری با یک دستگاه ثبات بر روی کاغذ ثبت شود. این عمل برای کنترل کیفی اولیه و مشاهده صحت جداسازی ایزوتوپ‌ها انجام شد. بعد از رسیدن تانک به خلأ مناسب شرایط کاری، پارامترهای چشمه یونی و مگنت بر روی مقادیر مناسب تنظیم شد. جدول (۱) پارامترهای عملیاتی بهینه شده سیستم جداکننده الکترومغناطیسی ایزوتوپ‌ها را برای جداسازی ایزوتوپ‌های نئودیمیم نشان می‌دهد.

فرآیند بازیافت و تصفیه شیمیایی ایزوتوپ نئودیمیم-۱۴۶ که بر روی سطوح گرافیتی پاکت‌ها جمع‌آوری شد طی پنج مرحله انجام گردید. این مراحل عبارت است از: ۱- جداسازی نئودیمیم فلزی از سطح پاکت گرافیتی ۲- جداسازی پودر گرافیت از نئودیمیم فلزی ۳- تبدیل کلرید نئودیمیم به هیدروکسید نئودیمیم ۴- تبدیل هیدروکسید نئودیمیم به اگزالات نئودیمیم ۵- تولید محصول نهایی اکسید نئودیمیم، که این مراحل در ادامه به تفصیل شرح داده می‌شود.

ابتدا با تراشیدن سطح، مخلوطی از پودر گرافیت و نئودیمیم فلزی به یک بوتله چینی منتقل و در تیوب کوارتزی کوره الکتریکی تحت اتمسفر اکسیژن قرار داده شد و با اعمال دما به همراه دمش گاز اکسیژن در تمام مرحله به درون تیوب، واکنش سوختن گرافیت و تبدیل آن به گاز دی اکسید کربن ( $\text{CO}_2$ ) از محدوده دمای  $450^\circ\text{C}$  شروع و تا  $700^\circ\text{C}$  ادامه یافت. برنامه دمایی کوره به صورت یک ساعت زمان لازم برای رسیدن به دمای  $700^\circ\text{C}$ ، پنج ساعت باقی ماندن در این دما تنظیم گردید. حدوداً ۵ ساعت زمان جهت سرد

شدن کوره مورد نیاز می‌باشد. با حصول اطمینان از تبدیل همه گرافیت (کربن) به  $\text{CO}_2$  نئودیمیم فلزی که به تری اکسید نئودیمیم ( $\text{Nd}_2\text{O}_3$ ) در کوره تبدیل گردید و جهت انجام پالایش شیمیایی آماده شد. ابتدا خاکستر حاصله در اسید کلریدریک غلیظ حل و به مدت ۲۴ ساعت هم زده شد و محلول فیلتر شد. با افزودن محلول آمونیاک، نئودیمیم به صورت رسوب تری هیدروکسید نئودیمیم  $\text{Nd}(\text{OH})_3$  راسب و فیلتر شد. سپس رسوب حاصل در محلول اسید استیک حل و و رقیق شد. سپس با افزودن محلول اسید اگزالیک،  $\text{Nd}_2(\text{C}_2\text{O}_4)_3$  راسب و فیلتر شد. اگزالات نئودیمیم-۱۴۶ تهیه شده در کوره و دمای  $700^\circ\text{C}$  تبدیل به  $\text{Nd}_2\text{O}_3$  پایدار و قابل توزین تبدیل شد.

خلوص عنصری نئودیمیم-۱۴۶ با استفاده از دستگاه آنالیز عنصری طیف سنجی نشری جفت شده القایی (ICP) اندازه گیری و نتایج در جدول ۲، ارائه شده است. همچنین غنای ایزوتوپ‌های نئودیمیم، با استفاده از طیف سنج جرمی Beifen, LZD-207، مجهز به چشمه یونی حرارتی و آنالیزور جرمی از نوع تک تمرکز (Single Focusing) اندازه‌گیری و طیف جرمی نمونه‌ها با تغییر میدان مغناطیسی ثبت شد. شعاع انحناء پرتو یونی ثابت و با زاویه انحراف  $60^\circ$  درجه برابر با ۲۵ سانتی‌متر است. برای جمع‌آوری یون‌های خروجی از آنالیزور جرمی، از یک آشکار ساز قیف فارادی و برای تقویت جریان الکتریکی ایجاد شده در اثر برخورد یون به دکتور از تقویت کننده DC با مقاومت  $10^{11} \Omega$  استفاده گردید.

جهت اندازه‌گیری در صد غنای ایزوتوپی نئودیمیم، ابتدا اکسید نئودیمیم با استفاده از اسید نیتریک غلیظ در چند مرحله به فرم نیتراته تبدیل شد و پس از به حجم رساندن محلول بر روی فیلمان بارگذاری و در چشمه یونی قرار داده شد. پس از محاسبه میدان مغناطیسی و جاروب میدان در محدوده جرمی عنصر نئودیمیم درصد غنای ایزوتوپی آن اندازه‌گیری گردید. لازم به ذکر است که از نئودیمیم طبیعی به عنوان استاندارد استفاده شد. نتایج در شکل ۱ و جدول ۳ آورده شده است.

### ۳. نتایج :

بعد از رسیدن تانک سیستم جداکننده به خلأ مناسب شرایط کاری، پارامترهای چشمه یونی و مگنت بر روی مقادیر مناسب تنظیم شد. جدول ۱، پارامترهای عملیاتی تعیین شده سیستم جداکننده الکترومغناطیسی ایزوتوپ‌ها را برای جداسازی ایزوتوپ‌های نئودیمیم نشان می‌دهد.

جدول ۱. نتایج حاصل از پارامترهای عملیاتی بهینه شده در سیستم جداکننده الکترومغناطیسی در هنگام جداسازی ایزوتوپ‌های نئودیمیم

$V_{\text{Acc}}$ (kV)	$V_{\text{Foc}}$ (kV)	$I_{\text{Fil}}$ (A)	$V_{\text{Ande}}$ (V)	$I_{\text{Anode}}$ (A)	$I_{\text{Mag.}}$ (A)	$V_{\text{ac.}}$ (Pa)	$I_{\text{Total}}$ (mA)
۳۰	۹/۵	۶۵	۳۳۰	۰/۷	۱۵۴	$3 \times 10^{-2}$	۹

نتایج حاصل از خلوص عنصری نئودیمیم-۱۴۶ در جدول ۲، آورده شده است.

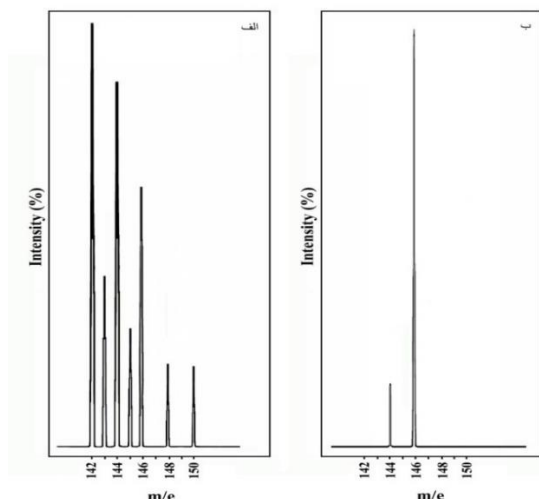
جدول ۲. نتایج حاصل از خلوص عنصری نئودیمیم-۱۴۶

عنصر	نتیجه (mg/l)
Nd	۴۱/۱
Fe	۰/۲۸
Cu	۰/۷۴
Ni	< ۰/۰۳

$$41/1 + 0/28 + 0/74 + 0/03 = 42/15$$

$$97/50 = 42/15 / 41/1 \times 100 = \text{درصد خلوص عنصری}$$

طیف جرمی مربوط به نئودیمیم طبیعی و غنی شده نئودیمیم-۱۴۶ به ترتیب در شکل های (۱- الف) و (۱- ب) و نتایج حاصل از خلوص ایزوتوپی نئودیمیم-۱۴۶ اندازه‌گیری شده به وسیله طیف سنج جرمی یونیزاسیون حرارتی (TIMS) در جدول ۳، آورده شده است.



شکل ۱. طیف های جرمی ثبت شده با استفاده از چشمه یونی حرارتی الف) نئودیمیم طبیعی ب) نئودیمیم-۱۴۶ غنی شده

جدول ۳. نتایج غنای ایزوتوپی نئودیمیم اندازه‌گیری شده به وسیله طیف سنج جرمی یونیزاسیون حرارتی (TIMS)

درصد غنای ایزوتوپی برای پاکت نئودیمیم-۱۴۶	درصد غنای ایزوتوپی برای نمونه نئودیمیم طبیعی	درصد غنای ایزوتوپی برای نئودیمیم طبیعی بر اساس جداول معتبر	ایزوتوپ‌های نئودیمیم
Neg*	۲۸/۰۹	۲۷/۱۱	<sup>142</sup> Nd
Neg	۱۱/۴۱	۱۲/۱۷	<sup>143</sup> Nd
۱۲/۸۴	۲۴/۲۳	۲۳/۸۵	<sup>144</sup> Nd
Neg	۷/۹۷	۸/۳۰	<sup>145</sup> Nd
۸۷/۱۶	۱۷/۲۷	۱۷/۲۲	<sup>146</sup> Nd
Neg	۵/۶۱	۵/۷۳	<sup>148</sup> Nd
Neg	۵/۴۱	۵/۶۲	<sup>150</sup> Nd

\* (negligible) فراوانی ایزوتوپی کمتر از حساسیت دستگاه است.

Abundance sensitivity  $\leq 2 \times 10^{-5}$

Resolution= 300

انحراف استاندارد نسبی (RSD) با استفاده از ماشین حساب برای پنج بار اندازه‌گیری، محاسبه شده است و خطای نسبی برای ایزوتوپ با بیشترین فراوانی با استفاده از فرمول ذیل محاسبه گردید:

$$\%RE = (O-T)/T \times 100$$

O: فراوانی مشاهده شده

T: فراوانی واقعی

$$\%RE (^{142}\text{Nd}) = \frac{28.09 - 27.11}{27.11} \times 100 = 3.61$$

## ۴. بحث و نتیجه گیری

ابتدا جهت دریافت جریان یونی مناسب، پارامترهای چشمه یونی، نظیر جریان فیلمان، ولتاژ کاتد، ولتاژهای شتاب و فوکاس، بهینه گردیده اند. هم‌چنین در هنگام جمع‌آوری یون‌ها، پاکت‌ها، صفحه جلویی و پایه کلکتور جهت جمع‌آوری مطلوب‌تر، نسبت به یکدیگر عایق شده‌اند. لازم به ذکر است که میزان جریان پرتوهای یونی که به وسیله صفحه جلویی و پاکت‌ها نشان داده می‌شوند، بیانگر چگونگی تمرکز یون‌ها است و هنگام جمع‌آوری ایزوتوپ‌ها در پاکت‌های مربوطه، باید نسبت جریان یونی دریافتی هر پاکت به مجموع جریان همه پاکت‌ها متناسب با درصد فراوانی همان ایزوتوپ باشد. در غیر اینصورت با تغییر پارامترهای ذکر شده در جدول ۱، جریان یونی تنظیم می‌گردد. در زمان غنی‌سازی، جهت تأمین فشار بخار مناسب در محفظه قوس الکتریکی، لازم است که دمای بوتله به تدریج افزایش یابد تا کل کلرید نئودیمیم در بوتله چشمه یونی تبخیر شود.

پس از جمع‌آوری ایزوتوپ نئودیمیم-۱۴۶ بر روی پاکت‌های گرافیتی به دلیل ناخالصیهای موجود در سطح آن، نمی‌توان آنها را مستقیماً به عنوان هدف در واکنش‌های هسته‌ای استفاده کرد لذا عملیات بازیافت ایزوتوپ‌ها از پاکت‌ها و خالص‌سازی آنها انجام شده و ایزوتوپ مورد نظر به صورت یک ترکیب شیمیایی پایدار و قابل توزین تبدیل می‌شود. بعلاوه خلوص شیمیایی ایزوتوپ‌ها دارای اهمیت بسیار زیادی است. زیرا ناخالصی‌های موجود در حد مقادیر کم نیز سبب ایجاد رادیو ایزوتوپ‌های ناخواسته در طی واکنش هسته‌ای می‌شود. منشأ ناخالصی‌ها می‌تواند از قطعات کلکتور، محفظه تانک خلأ در روش غنی‌سازی الکترومغناطیسی باشد.

جهت کنترل کیفی محصول نهایی ایزوتوپ تری اکسید نئودیمیم-۱۴۶ ( $^{146}\text{Nd}_2\text{O}_3$ ) از آنالیز طیف‌سنجی جرمی و آنالیز طیف‌سنجی نثری پلاسما جفت شده القایی استفاده شد.

آنالیز عنصری خلوص ۹۷/۵۰٪ را برای ایزوتوپ مذکور نشان داده است (جدول ۲). ناخالصی آهن و مس به دلیل وجود صفحات مسی و استیل و برخورد پرتو یونی به صفحات مذکور در ایزوتوپ نئودیمیم مشاهده شده است. برای جمع‌آوری یون‌های خروجی از آنالیزور جرمی و ثبت طیف جرمی از یک آشکار ساز قیف فارادی استفاده شده است و جریان یونی ایجاد شده حاصل از یونیزاسیون نمونه نئودیمیم-۱۴۶ بوسیله یک تقویت‌کننده DC با مقاومت  $10^{11} \times 3/3 \Omega$  تقویت شد و طیف جرمی ایزوتوپ غنی شده به وسیله یک دستگاه ثبت ثابت گردید. غنای ایزوتوپی نئودیمیم-۱۴۶، ۸۷/۱۶ با انحراف استاندارد نسبی (RSD) ۰/۱۵ درصد و میزان خطای نسبی (RE) ۳/۶۱ درصد اندازه‌گیری شد (شکل ۱ و جدول ۳). همانگونه که در این جدول مشاهده می‌گردد حدود ۱۳ درصد ناخالصی ایزوتوپی مربوط به ایزوتوپ-۱۴۴ مشاهده می‌شود و برای ایزوتوپ‌های دیگر مانند ۱۴۲، ۱۴۸ و ۱۵۰ به دلیل اینکه فراوانی ایزوتوپی آنها کمتر از حساسیت دستگاه است سیگنالی مشاهده نشده است.

## مراجع

- 1- S. Stürup, H. Rüz, H. B. Gammelgaard, Application of enriched stable isotopes as tracers in biological systems: A critical review, Anal. Bioanal. Chem., **390**, 541 (2008).
- 2- S. E. Hoseini, M. Gannadi Margheh, A. Bahrami Samani, S. Shirvani, H. Salehi, Feasibility study of promethium-147 production as an industrial radionuclide through neutron irradiation of neodymium in Tehran Research Reactor (TRR), **91**, 25 (2020) (In Persian).
- 3- M. Ragheb, radioisotopes power production (2011).
- 4- S. kumar, Atomic Batteries: Energy from Radioactivity, Department of electrical Engineering, Stanford University, CA 94305, USA, 17 Nov (2015).
- 5- E. Newman, W. A. Belljr, W. C. Davis, L. O. Love, W. K. Prater, K. a. Spainhour, J. G. Tracy, A. M. Veach "Some new techniques and developments in isotope separations at Oak Ridge" Original Reasech Article Nuclear Instrument and methods, **139**, 87 (1976).