



امکان سنجی و تولید ایزوتوپ زیر کونیوم-۹۰ به روش جداسازی الکترومغناطیسی ایزوتوپ‌ها هوشیار سیدی*^۱، پروین سرآبادانی^۲، مهدی صادقی^۳، سعید رجبی فر^۴

- ۱- گروه فیزیک، دانشگاه پیام نور، صندوق پستی: ۱۹۳۹۵-۳۶۹۷، تهران - ایران.
- ۲- پژوهشکده فیزیک و شتابگرها، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، صندوق پستی: ۳۱۴۸۵-۴۹۸، کرج - ایران.
- ۳- گروه فیزیک پزشکی، دانشکده‌ی پزشکی، دانشگاه علوم پزشکی ایران، کد پستی: ۱۴۱۵۵-۶۱۸۳.
- ۴- پژوهشکده کاربرد پرتوها، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، صندوق پستی: ۳۱۴۸۵-۴۹۸، کرج - ایران.

چکیده:

جدا سازی ایزوتوپ‌های زیرکونیم با استفاده از روش جدا سازی الکترومغناطیسی ایزوتوپ‌ها (EMIS)، برای اولین بار در ایران با موفقیت انجام شد. زیرکونیم دارای پنج ایزوتوپ پایدار ^{90}Zr ، ^{91}Zr ، ^{92}Zr ، ^{94}Zr ، ^{96}Zr می باشد و فراوانی طبیعی ^{90}Zr ۵۱/۴۵ درصد است. ایزوتوپ ^{90}Zr برای تولید ^{90}Nb طی واکنش $^{90}\text{Zr}(n, p)^{90}\text{Nb}$ بکار می رود که دارای پتانسیل بالا جهت استفاده در نشاندار کردن آنتی بادی ها برای مطالعه تومور ها به روش (PET) می باشد. ساختار ایزوتوپ‌های نهایی بصورت ZrO_2 با استفاده الگوی پراش اشعه ایکس (XRD) تأیید شد. خلوص ایزوتوپی و شیمیایی ^{90}Zr به ترتیب با استفاده از طیف سنج جرمی (TIMS) و روش پیکسی (PIXE)، ۹۷/۷۰ و ۹۹/۸۵ تعیین گردید.

کلمات کلیدی: ایزوتوپ ها، زیرکونیم، جداسازی، تصفیه شیمیایی، الکترو مغناطیسی.

مقدمه:

غنی سازی ایزوتوپ‌ها با استفاده از سیستم جدا کننده الکترومغناطیسی، از روش‌هایی است که می‌توان ایزوتوپ‌هایی با درجه خلوص بسیار بالا تولید کرد [۱]. در این روش ابتدا اتم‌های عنصر مورد نظر در چشمه یونی کاترون 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. چشمه یونی و کلکتور به محفظه خلاء که تحت میدان مغناطیسی ثابت قرار گرفته است متصل می‌باشد، محفظه با استفاده از پمپ‌های روتاری و دیفیوژن به میزان 10^{-3} پاسکال خلاء می‌شود، بعد از جمع‌آوری در یک دوره کاری، ایزوتوپ‌های موجود در پاکت‌ها، به وسیله فرایند شیمیایی استخراج شده و پس از طی مراحل تصفیه شیمیایی، ایزوتوپ خالص به دست می‌آید. در گذشته جداسازی ایزوتوپ‌های عناصر مختلفی مانند روی، نیکل، استرانسیم، تالیم،



مس، مولیبدن، آهن، ساماریوم... انجام شده و محصولات آنها در مراکز مربوط به تولید رادیوداروها و صنایع بکار گرفته شده‌اند [۳،۲].

با استفاده از این سیستم، غنی‌سازی ایزوتوپ ^{90}Zr برای نخستین بار در ایران (مرکز تحقیقات سلامت و کشاورزی البرز - گروه شتابگرها) با موفقیت انجام شد. عنصر زیرکونیم دارای پنج ایزوتوپ پایدار، ^{90}Zr ، ^{91}Zr ، ^{92}Zr ، ^{94}Zr ، ^{96}Zr بوده که به ترتیب دارای فراوانی طبیعی ۲/۷۶، ۱۷/۲۸، ۱۷/۱۹، ۱۱/۳۲ و ۵۱/۴۵ درصد می‌باشد. یکی از کاربردهای ایزوتوپ ^{90}Zr ، تولید رادیوایزوتوپ نیوبیوم-۹۰ می‌باشد که از رادیو ایزوتوپ‌های گسیلنده پوزیترون در تکنیک تصویر برداری PET است و در پزشکی هسته‌ای برای رصد پادتن‌ها، تشخیص و مطالعات بیولوژیکی تومور، پتانسیل بالایی دارد.

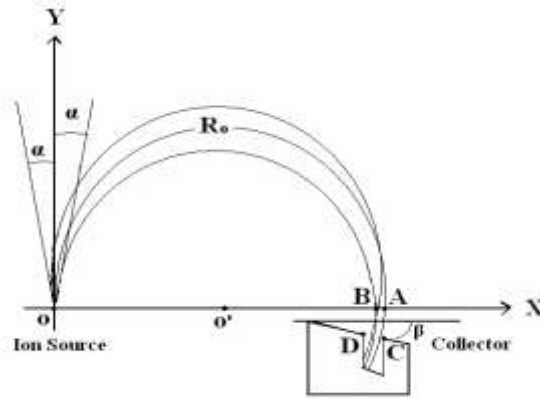
روش کار :

کلرید زیرکونیم به صورت ZrCl_4 با درجه خلوص بالای ۹۸٪ از شرکت MERK، اسید مندلیک، اسید نیتریک، اسید کلریدریک و هیدرواکسید آمونیم از شرکت MERK تهیه گردیدند.

سیستم جدا کننده الکترومغناطیسی ایزوتوپ‌ها مدل CI-140، دستگاه پراش اشعه X (مدل W-Ka X ray source Stol)، دستگاه شتابدهنده الکترواستاتیکی و اندوگراف با باریکه پروتون 2 MeV (PIXE)، دستگاه طیف سنج جرمی مدل LZD-207 و کوره خلاء از جمله دستگاه‌های مورد استفاده در این کار پژوهشی بودند.

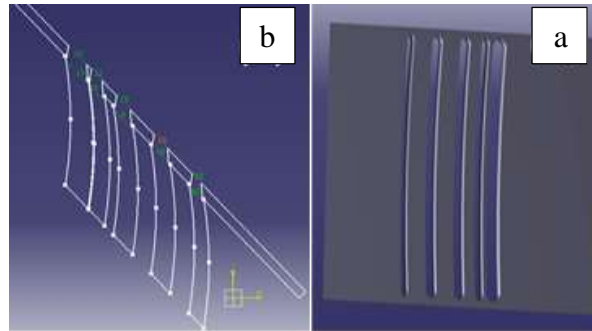
ماده اولیه یک ترکیب شیمیایی از عنصر مورد نظر است که انتخاب آن با توجه به شرایط و محدودیت‌ها در چشمه یونی، کلکتور و فرآیند تصفیه شیمیایی، صورت می‌گیرد. ماده اولیه باید دارای خلوص شیمیایی بالا، دمای تبخیری در محدوده ۱۰۰ تا ۸۰۰ درجه سلیسیوس، پایداری حرارتی در هنگام تبخیر و بدون آب باشد. در صورت امکان از خود عناصر، یا از کلرید و اکسید عناصر می‌توان استفاده نمود. برای غنی‌سازی ^{90}Zr از خود عنصر زیرکونیم به عنوان ماده اولیه نمی‌توان استفاده نمود زیرا زیرکونیم دارای دمای ذوب ۱۸۵۵ درجه سلیسیوس در اتم‌سفر است که در محدوده دمای کارکرد چشمه یونی کالترون نمی‌باشد. بنابراین از کلرید زیرکونیم به صورت ZrCl_4 استفاده شد [۴].

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 $(1-\alpha)$ است که در آن $AB=2R_0 \cos$ شعاع پرتو با زاویه واگرایی صفر می‌باشد. این پهنای در روی کلکتور که با محور X زاویه β می‌سازد برابر با $CD=AB/\cos\beta$ خواهد شد. با توجه به اینکه زاویه α برابر ۶ درجه می‌باشد، برای بهینه کردن پهنای پاکت (CD)، زاویه کلکتور با محور X، ۴۷ درجه در نظر گرفته شده است.



شکل ۱. مسیر طی شده یک ایزوتوپ در میدان مغناطیسی

نقشه صفحه جلویی و پاکت‌ها در شکل شماره (۲) آورده شده‌است.



شکل ۲. صفحه گرافیتی جلویی با شکاف‌های پنجگانه برای پنج ایزوتوپ زیرکونیم (a) و محل قرارگیری پاکت‌های

مسی در پشت صفحه گرافیتی جلویی در کلکتور (b)

نمونه پاکت و صفحه جلویی گرافیتی ساخته شده را در شکل شماره (۳) ملاحظه می‌کنید.





شکل ۳. نمونه پاکت‌های مسی ساخته شده (a) و نحوه قرارگیری در پشت شکاف‌های صفحه گرافیتی جلویی و نمای روبرو کلکتور (b, c)

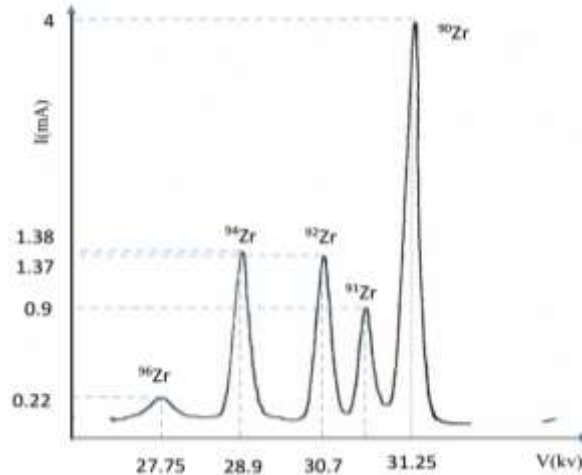
در سیستم جداکننده، پارامترهای فیزیکی و الکتریکی زیادی وجود دارد که قبل و هنگام جدا سازی هر عنصر باید محاسبه و تعیین شوند. این پارامترها عبارتند از: ولتاژ شتاب که انرژی یون‌های خروجی از چشمه یونی را تعیین می‌کند، ولتاژ متمرکزکننده که به همراه الکتروود شتاب در سیستم لنزی چشمه یونی، نقش هم‌گرا کننده پرتوهای خروجی را به عهده دارند، سیستم کاتدی شامل جریان فیلمان، ولتاژ و جریان کاتد، ولتاژ آند که شدت و انرژی الکترون‌های ساطع شده را کنترل می‌کند، فشار بخار در محفظه قوس الکتریکی که نقش تعیین کننده در ایجاد پلاسما داشته و توسط هیترهای مربوطه کنترل می‌گردد، اندازه شدت میدان مغناطیسی که بر اساس محاسبات تئوری، منحنی و جداول سیستم [۲] با توجه به ثابت بودن ولتاژ شتاب، مقدار آن برای جرم ایزوتوپ میانی تعیین می‌شود. مقدار شدت میدان مغناطیسی حدود ۱۷۲۴ گوس محاسبه گردید که لازم است جریان سیم پیچ مگنت روی ۱۲۳ آمپر تنظیم شود. پارامترهای عملیاتی بدست آمده در جدول (۱) آمده است.

جدول ۱. پارامترهای عملیاتی در هنگام جداسازی ایزوتوپ‌های زیرکونیم

V _{Acc} (kV)	V _{Foc} (kV)	I _{Fil} (A)	V _{Cat} (V)	I _{Cat} (A)	V _{Ande} (V)	I _{Anode} (A)	I _{Mag.} (A)	Vac. (Pa)	I _{Total} (mA)
30.8	10.2	63	700	0.48	163	0.83	123	3×10^{-3}	11

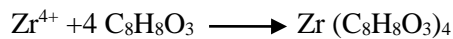
نتایج و بحث :

بعد از تنظیم پارامترهای ذکر شده و رسیدن به شرایط مطلوب موفق به دریافت ایزوتوپ‌های تفکیک شده در کلکتور شدیم شکل (۴) طیف جرمی ایزوتوپ‌های زیرکونیم را نشان می‌دهد که توسط یک فنجان فارادی موجود روی درب کلکتور ثبت شده است. بعد از اطمینان از صحت جدا سازی، شروع به جمع‌آوری ایزوتوپ‌ها در پاکت‌ها کردیم. عمل جمع‌آوری حدود هفتاد و چهار ساعت با میانگین جریان کل ۵/۲ mA استمرار داشت.



شکل ۴. طیف ثبت شده توسط ثبت کننده در هنگام جاروب و لنتاز شتاب دهنده

از آنجایی که وجود هرگونه ناخالصی در ایزوتوپ پایدار زیرکونیم-۹۰ منجر به ایجاد واکنش‌های ناخواسته هسته‌ای در فرآیند تولید رادیو ایزوتوپ نیوبیم-۹۰ در سیکلوترون می‌شود لذا تصفیه شیمیایی ایزوتوپ پایدار زیرکونیم-۹۰ از اهمیت خاصی برخوردار است. با توجه به اینکه یون‌های زیرکونیم بر روی سطح پاکت مسی جمع‌آوری می‌شوند لذا یون‌های مس با روش الکترولیز [۵] و از آلفا-هیدروکسی فینیل استیک اسید با نام تجاری مندلیک اسید به عنوان رسوب دهنده انتخابی برای رسوب دادن یون زیرکونیم استفاده گردید [۶]. در این روش یون زیرکونیم (IV) به طور انتخابی با مندلیک اسید تحت pH=3 واکنش داده و رسوب شیری رنگ مندلات زیرکونیم تحت دمای ۸۵ °C تشکیل می‌گردد. واکنش تشکیل کمپلکس زیرکونیم (IV) با مندلیک اسید به صورت زیر می‌باشد:



مندلات زیرکونیم در کوره تحت دمای ۱۰۰۰ °C به مدت ۶ ساعت حرارت داده شد [۷].

طیف پراش اشعه X محصول نهایی، تشکیل اکسید زیرکونیم-۹۰ ($^{90}\text{ZrO}_2$) را تأیید کرد. آنالیز عنصری به روش پیکسی (PIXE) خلوص ۹۹/۸۵ درصد را برای ایزوتوپ ^{90}Zr نشان داد (جدول ۳). غنای ایزوتوپی ^{90}Zr ، ۹۷/۷۰ درصد با انحراف استاندارد نسبی (RSD) ۰/۰۳ درصد و میزان خطای نسبی (RE) ۳/۰۴ درصد اندازه‌گیری شد (جدول ۲ و ۳).

جدول ۲. نتایج مربوط به آنالیز خلوص ایزوتوپی

Isotope	Peak1 Height	Peak1 Height	Peak1 Height	Peak1 Height	%	%RSD
Zr-90	183.00	183.00	185.00	187.00	97.70	0.03
Zr-91	2.10	2.10	2.20	2.20	1.13	1.49
Zr-92	1.40	1.40	1.40	1.50	0.75	2.60
Zr-94	0.80	0.80	0.80	0.80	0.42	1.06



جدول ۳. نتایج مربوط به آنالیز خلوص شیمیایی به روش (PIXE)

CaO	Fe ₂ O ₃	Cu ₂ O	ZnO	ZrO ₂	ترکیبات موجود
۰/۱۰	۰/۰۵	-	-	۹۹/۸۵	در صد

نتیجه گیری :

جداسازی ایزوتوپ‌ها به روش الکترومغناطیسی، یکی از روش‌های متداول غنی‌سازی همزمان ایزوتوپ‌های عناصر بوده که علی‌رغم تولید کم در مدت زمان کارکرد سیستم، از درجه خلوص ایزوتوپی بسیار بالایی (بیشتر از ۹۷ درصد) برخوردار است. در این پژوهش، برای اولین بار در ایران ایزوتوپ‌های زیرکونیوم با روش الکترومغناطیسی جداسازی شدند. خلوص شیمیایی و خلوص ایزوتوپی ⁹⁰Zr با اندازه‌گیری به روش پیکسی (PIXE) و طیف‌سنجی جرمی به ترتیب ۹۹/۸۵، ۹۷/۷۰ درصد تعیین گردید.

مراجع :

- [1]. J. Koch, Electromagnetic Isotope Separators and Application of Electromagnetically Enriched Isotopes, Interscience Publishers, New York, (1958).
- [2]. Z. Asadollahi et al. "Enrichment of Fe-54 by Electromagnetic Isotope Separator (EMIS)", Journal of Nuclear Sci. and Tech, AEOI, No. 66 (1392) (In Persian).
- [3]. S. M. Mohati, "Enrichment of ⁵⁸Ni by electromagnetic isotope separator, 5th International conference on isotopes", Brussels (Belgium), April 25-29, (2005).
- [4]. C.W. Sheridan, H.R. Gwinn and L.O. Love, "Preparation of Charge Materials for ORNL Electromagnetic Isotopes separator", ORNL- 3301(Aug 8, 1962).
- [5]. P. Sarabadani et al. "Chemical recovery and purification of ²⁰³Tl stable isotope enriched by using an electromagnetic isotope separator", Journal of Labeled compounds and Radiopharmaceuticals, 50, 5-6 (2007).
- [6]. B. Weaver, "Chemical refinement procedure in the electromagnetic separation of isotopes", Oak Ridge National Laboratory, W-7405-eng-26, (1955).
- [7]. J. Stachtchenko and C. Duval, Sur la thermogravimétrie des précipités analytiques Dosage du zirconium, Analytica chimica acta, 5, 410-421 (1951).