



## بهینه‌سازی پارامترهای جداسازی پرازئودیمیوم از سریم با هدف تولید رادیوایزوتوپ نشرکننده بتای خالص $^{143}\text{Pr}$ برای کاربرد درمانی در پزشکی هسته‌ای

سیمیندخت شیروانی آرانی\*

پژوهشکده چرخه سوخت هسته‌ای، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، سازمان انرژی اتمی ایران، صندوق پستی: ۸۴۸۶-۱۱۳۶۵، تهران- ایران

\*Email: smshirvani@aeoi.org.ir

مقاله‌ی پژوهشی

تاریخ دریافت مقاله: ۱۴۰۰/۹/۲۳ تاریخ پذیرش مقاله: ۱۴۰۰/۱۲/۱۷

### چکیده

در این تحقیق روش جداسازی مؤثر و کارا جهت جداسازی پرازئودیمیوم از سریم طراحی، بهینه‌سازی و با موفقیت اجرا شد. در روش مذکور از جاذب ویژه جذب لانتانیدها (Ln-Resin با ابعاد ۱۰۰ تا ۱۵۰ میکرون) استفاده شد. از پمپ پرستالتیک و ستون با ابعاد مختلف ۱۵ تا ۴۵ سانتی‌متر) جهت طراحی روش مورد نظر استفاده شد. مطالعات سیستماتیک جهت تعیین غلظت شوینده اسید نیتریک (از ۰٫۱ تا ۱ مولار) انجام شد. از خاصیت اکسید شونده سریم جهت ایجاد تفاوت رفتار شیمیایی لانتانیدها بهره جسته شد. از  $\text{NaBrO}_3$  به‌عنوان اکسند استفاده شد. چون در مطالعات بعدی از ماده هدف سریم غنی شده استفاده خواهد شد، لازم است تا ماده هدف سریمی نیز بازیابی شود. از اسید اسکوربیک به عنوان احیاکننده سریم استفاده شد. پس از تغییر عدد اکسایش سریم با تغییر غلظت اسید نیتریک به‌راحتی امکان شویش پرازئودیمیوم و سریم به‌طور جداگانه و با تفکیک بالا با استفاده از اسیدهای معمول در دسترس و فشارهای پایین ستون با بهره‌گیری ۹۹ درصد حاصل شد. از روش مذکور برای جداسازی پرازئودیمیوم-۱۴۳ از سریم پرتوده‌ی شده در رآکتور و هم‌چنین از برش حاوی لانتانیدهای محصول شکافت به‌طور موفقیت‌آمیز استفاده شد که در گزارش دیگری نتایج آن ارائه خواهد شد.

**کلیدواژه‌ها:** پرازئودیمیوم-۱۴۳، جداسازی، لانتانیدها، کروماتوگرافی

## Optimization of cerium/praseodymium separation parameters with the aim of production of pure beta-emitter radioisotope $^{143}\text{Pr}$ for therapeutic application in nuclear medicine

S. Shirvani-Arani\*

Nuclear Fuel Cycle Research School, Nuclear Science and Technology Research Institute, AEOL, P.O.Box: 11365-8486, Tehran - Iran

Research Article

Received 14.12.2021, Accepted 8.3.2022

### Abstract

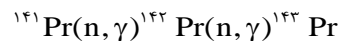
In this study, an effective and efficient separation method for separating praseodymium from cerium was designed, optimized, and successfully implemented. In this method, a special adsorbent for lanthanides (Ln-resin with dimensions of 100 to 150 microns) was used. A peristaltic pump and column with different dimensions (15 to 45 cm) were used to design the desired method. Systematic studies were performed to determine the eluent concentration of nitric acid (from 0.1 to 1 M). The oxidizing properties of cerium were exploited to differentiate the chemical behavior of these two lanthanides.  $\text{NaBrO}_3$  was used as an oxidizer. Because in the continuation of this research, the target material of enriched cerium will be used, it is necessary to recover cerium as well. Ascorbic acid was used for the reduction of cerium. After changing the oxidation number of cerium, by changing the concentration of nitric acid, it is easily possible to wash the praseodymium and cerium separately and in high resolution using the commonly available acids and low column pressures with an efficiency of over 99%. This method was successfully used to separate praseodymium-143 from irradiated cerium in the reactor, and also to separate  $^{143}\text{Pr}$  from the fission-produced lanthanides, the results of which will be presented in another report.

**Keywords:** Praseodymium-143, Separation, Lanthanides, Chromatography

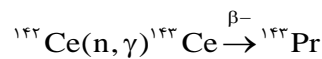


۱. مقدمه

پراژئودیمیوم-۱۴۳ با نیمه‌عمر ۱۳/۵۷ روزه طی گسیل بتا با انرژی (۰.۱۰۰)  $E_{\beta} (max) = 0.937 \text{ MeV}$  به نئودیمیوم-۱۴۳ که پایدار است، واپاشی می‌کند.  $^{143}\text{Pr}$  به دلیل نشر بتای خالص با انرژی مناسب، رادیونوکلید جذابی برای کاربردهای درمانی در پزشکی هسته‌ای خواهد بود که دز اضافی ناشی از پرتوی گاما را به بیمار تحمیل نمی‌کند. پراژئودیمیوم در رآکتور به دو روش مستقیم و غیرمستقیم تولید می‌شود، (شکل ۱). تولید مستقیم  $^{143}\text{Pr}$  شامل فرایند گیراندازی نوترون دو مرحله‌ای بوده و طی واکنش هسته‌ای:



با سطح مقطع جذب نوترونی،  $\sigma$  برابر با ۷/۵ رخ می‌دهد. محصول شامل مخلوطی از  $^{142}\text{Pr}$  و  $^{143}\text{Pr}$  است که نسبت آن‌ها به مدت زمان پرتودهی و مدت زمان واپاشی بستگی دارد. حضور ایزوتوپ دیگری از پراژئودیمیوم،  $^{142}\text{Pr}$  و همچنین ماده هدف پراژئودیمیومی اولیه، منجر به کاهش اکتیویته ویژه محصول می‌شود. به همین دلیل اگر چه فرایند غیرمستقیم سطح مقطع جذب نوترونی پایین‌تری دارد، ۰/۹۵ به دلیل اکتیویته ویژه بالاتر محصول که پس از جداسازی مؤثر از ماده هدف سریمی صورت می‌گیرد، ترجیح داده می‌شود:



پس از ترخیص نمونه از رآکتور، بازه‌ی زمانی سرد شدن چند روزه لازم است تا از واپاشی بیشینه‌ی سریم-۱۴۳ با نیمه‌عمر کوتاه (۳۳/۰۴ ساعت) به محصول نهایی پراژئودیمیوم-۱۴۳، اطمینان حاصل شود. سپس با استفاده از روش جداسازی مناسب می‌توان دو رادیولانتانید را از یک‌دیگر جداسازی نمود [۱]. به این ترتیب پراژئودیمیوم-۱۴۳ را می‌توان به فرم  $nca^1$  (بدون حامل اضافه) به‌دست آورد. پراژئودیمیوم-۱۴۳ جزو گروه لانتانیدها بوده و رفتار شیمیایی مشابه لوتسیم، ساماریوم و هولمیم و ... خواهد داشت؛ در حال حاضر رادیونوکلیدهای این سه لانتانید شامل لوتسیم-۱۷۷، ساماریوم-۱۵۴ و هولمیم-۱۶۶ کاربردهای درمانی بسیاری در پزشکی هسته‌ای دارند [۲-۴]. با وجود خصوصیات مطلوب پراژئودیمیوم-۱۴۳ جهت کاربردهای

درمانی مطالعات محدودی بر روی تولید و کاربرد آن صورت گرفته است [۵-۸] که ممکن است به دلیل دشوار بودن فرایند جداسازی پراژئودیمیوم از سریم در روش ( $\gamma$  و  $n$ ) و محصولات شکافت و همچنین عدم وجود نشر گامای محصول برای آشکارسازی سهل آن باشد. پراژئودیمیوم دارای نیمه‌عمر بیولوژیکی ۵ تا ۱۰ روز بوده و با توجه به انرژی نشر بتا و نیمه‌عمری که دارد، یک مکمل ایده‌آل برای  $^{32}\text{P}$  پرمصرف (با نشر بتای بیشینه با انرژی برابر ۱/۷۱ MeV و نیمه‌عمر ۱۴/۳ روز) به حساب می‌آید (انرژی بتای پایین‌تر و نیمه‌عمر مشابه دارد) و پتانسیل این را دارد که در درمان تومورها و مفاصل ملتهب با اندازه متوسط رو به بزرگ به طور موفق عمل کند [۸]. در مطالعات محدود پیشین [۵-۸] روش جداسازی پراژئودیمیوم بر پایه کروماتوگرافی و استخراج حلالی بوده است. به هر حال با ظهور رادیوداروهای مختلف در عرصه پزشکی هسته‌ای و محدودیت و قیمت بالای تمام شده برای تهیه رادیونوکلیدها لازم است جهت تأمین نیاز جامعه پزشکی هسته‌ای تمام منابع موجود در کشور بررسی و شناسایی شود. تا پیش از مطالعه حاضر در کشور تحقیقی بر روی تولید پراژئودیمیوم-۱۴۳ صورت نگرفته بود. در این تحقیق با هدف تولید صنعتی پراژئودیمیوم-۱۴۳ مطالعات بر روی یافتن روش جداسازی مؤثر پراژئودیمیوم از سریم که ماده هدف مورد استفاده در روش ( $\gamma$  و  $n$ ) است، آغاز شد. لازم به ذکر است در روش شکافت اورانیوم-۲۳۵ که روش معمول در تولید مولیبدن-۹۹ است، نیز پراژئودیمیوم-۱۴۳ تولید می‌شود که در مطالعات بعدی مورد بررسی قرار خواهد گرفت. در این مطالعه از روش جداسازی کروماتوگرافی استخراجی و رزین اختصاصی جاذب لانتانیدها، Ln- رزین، استفاده می‌شود.

Pr 141 100 $\alpha$ 4 + 7.5	Pr 142 14,6 m $\beta^-$ 2.2... $\gamma$ (4) $\epsilon$ 1576... $\sigma$ 20	Pr 143 13,57 d $\beta^-$ 0,9... $\gamma$ (742) $\sigma$ 90	Pr 144 7,2 m 17,3 m $\gamma$ 59 $\beta^-$ ... $\gamma$ (697; 814...) $\beta^-$ 3,0... $\gamma$ 697; (2186...)
Ce 140 88,48 $\alpha$ 0,58	Ce 141 32,50 d $\beta^-$ 0,4; 0,6 $\gamma$ 145 $\sigma$ 29	Ce 142 11,08 $\alpha$ 0,95	Ce 143 33,0 h $\beta^-$ 1,1; 1,4... $\gamma$ 293; 57; 665; 722... $\sigma$ 6,1

شکل ۱. تولید  $^{143}\text{Pr}$  به‌روش مستقیم (فلش قرمز) و غیرمستقیم (فلش سبز).

1. Non-Carrier Added: nca



## ۲. روش کار

## ۱.۲ مواد و دستگاهها

تمام معرفها و مواد شیمیایی از درجه تجزیه‌ای بودند. Ln-رزین (با اندازه ذرات ۱۰۰-۱۵۰ میکرومتر) تولید شرکت تریسکم بود. استانداردهای طیف‌سنجی چند عنصری (ICP-MS) از استانداردهای با درجه خلوص بالا خریداری شدند. برای تهیه نمونه‌های محلول استاندارد مقادیر مناسب از استانداردهای ICP-MS تا خشک شدن تبخیر شده و مجدداً در اسید نیتریک ۰/۰۱ مولار حل شد تا سری محلول با غلظت‌های ۲۰۰ ppb تا ۵۰۰ ppb از دو لانتانید حاصل شود. سپس محلول با استفاده از پمپ پریستالتیک روی ستون بارگذاری شد. به‌دنبال آن محلول‌های شستشو و شویس با حجم‌ها و غلظت‌های مختلف و با سرعت جریان ۲ میلی‌لیتر بر دقیقه (مگر در مواردی که قید خواهد شد) از ستون عبور داده شد. لانتانیدها از ستون تا خشک شدن محلول از ستون شویس شدند تا مرز بین هربار شویس مشخص شود. به این ترتیب مقدار حلال مصرف شده برای هر برش مشخص می‌شود. آنالیز نمونه‌ها با استفاده از ICP-MS انجام شد. غلظت عناصر با استفاده از کالیبراسیون خارجی و محلول‌های استاندارد تعیین شد.

## ۲.۲ بهینه‌سازی غلظت شوینده: اسید نیتریک

با توجه به تجربه کسب شده از مطالعات پیشین [۹-۱۱] مشخص شده بود که جداسازی لانتانیدهای سنگین‌تر (تریوم تا لوتسیم) را می‌توان در غلظت‌های اسیدی بیش‌تر از ۱/۵ مولار از اسید نیتریک انجام داد. جداسازی لانتانیدهای سبک‌تر نظیر Ce و Pr تاکنون توسط نگارنده مورد بررسی قرار نگرفته بود و به نظر می‌رسید به دلیل چگالی بار سطحی پایین‌تر یونها، غلظت‌های پایین‌تری از اسید نیتریک مناسب باشد. بنابراین مطالعات با غلظت‌هایی در حدود ۱۰ برابر رقیق‌تر از آنچه برای جداسازی رادیولانتانیدهای سنگین‌تر استفاده می‌شود، آغاز شد. جهت بررسی دقیق اثر تفاوت‌های جزئی در غلظت اسید نیتریک در فاکتورهای جداسازی Ce/Pr، ارزیابی سیستماتیک غلظت‌های مختلف اسید به صورت گام به گام با تغییر از ۰/۱ M، ۰/۱۱M، ۰/۱۲M، ۰/۱۳M، ۰/۱۴M، ۰/۱۵M و ۰/۲۵M انجام شد. برای اجرای این آزمایشات با تکیه بر تجربیات قبلی [۹-۱۱]، از ستون با قطر داخلی ۱۰ میلی‌متر و ارتفاع رزین حدود ۲۵ سانتی‌متر استفاده شد.

## ۳.۲ بهینه‌سازی ابعاد ستون

برای ارزیابی اثر عملی افزایش طول ستون طول بر روی میزان جداسازی (قدرت تفکیک پیک‌ها) و بازه زمانی جداسازی، آزمایش‌های جداسازی با استفاده از ستون‌هایی با قطر داخلی ۱ سانتی‌متر و طول ۱۵، ۳۰ و ۴۵ سانتی‌متر حاوی رزین با ارتفاع به‌ترتیب برابر با ۱۲، ۲۲ و ۳۹ سانتی‌متر انجام شد. قدرت تفکیک (Rs) از رابطه زیر محاسبه شد:

$$Rs = \frac{2(V_2 - V_1)}{W_1 + W_2}$$

$V_1$  و  $V_2$  حجم حلال مربوط به قله‌های (پیک‌های) کروماتوگرام پرازئودیوم و سریم است که جهت سنجش فاصله قله (پیک) تا مبدأ مورد استفاده قرار می‌گیرد،  $W_1$  و  $W_2$  پهنای پایه هر قله (پیک) است. جهت رسیدن به موازنه‌ای بین میزان جداسازی (قدرت تفکیک پیک‌ها) و به حداقل رساندن حجم شستشو/شویس و زمان به طور هم‌زمان، ماتریس محلول اسید نیتریکی با غلظت ۰/۱۵ مولار به عنوان شوینده، برای این تست‌ها استفاده شد. هر ستون با رزین ویژه لانتانیدها با اندازه ذرات ۱۰۰-۱۵۰ میکرومتر پر شد.

بر اساس نتایج حاصل از ارزیابی اثر طول ستون، جداسازی بهینه با استفاده از ستونی حاوی ۲۲ سانتی‌متر ارتفاع رزین در ستون با قطر ۱ سانتی‌متر قابل دستیابی خواهد بود. جداسازی‌ها با استفاده از ستون با ابعاد نهایی یاد شده و با استفاده ۱۵ میلی‌لیتر محلول اسید نیتریکی ۰/۰۱ مولار حاوی ۲۰۰ ppb از هر لانتانید جهت بارگذاری ستون، انجام شد. سپس شویس سریم و پرازئودیوم با استفاده از اسید نیتریک ۰/۱۵ مولار انجام شد.

## ۴.۲ اثر معرف‌های اکسیداسیون / احیا

در این مطالعه هدف جداسازی پرازئودیوم بود با این حال چون در مطالعات بعدی ماده هدف غنی شده به کار خواهد رفت و لازم است ماده هدف غنی شده نیز بازیابی شود، سریم نیز باید به طور خالص جداسازی شود. برای بهبود جداسازی از قابلیت اکسایش سریم (III) به سریم (IV) و مجدداً احیا آن به سریم (III) طی شویس استفاده شد.  $\text{NaBrO}_3$  به دلیل توانایی اثبات شده آن جهت اکسایش سریم به عنوان اکسیدکننده انتخاب شد. غلظت بهینه  $\text{NaBrO}_3$  برای این واکنش از طریق مجموعه‌ای از آزمایشات جذب به صورت بیج<sup>۱</sup> تعیین شد. برای این منظور از ضرایب توزیع ( $K_d$ ) سریم روی جاذب به عنوان تابعی از غلظت ماده اکسند مورد استفاده، بهره‌جسته شد.  $K_d$  به عنوان نسبت مقدار آنالیت جذب شده در فاز ثابت (رزین بر



اکتیو مورد استفاده قرار گرفت. و در نهایت معرف اکسنده سریم(III) به سریم(IV) به محلول شستشوی ستون اضافه شد تا از حضور سریم در حالت اکسایش بالاتر در تمام مراحل اطمینان کسب شده و از شویش آن از جاذب به‌همراه پرازئودیمیوم ممانعت شود. لازم به ذکر است که جهت کاهش بازه زمانی جداسازی سرعت جریان در ۴ میلی‌لیتر بر دقیقه تنظیم شد که البته به دلیل فاصله نسبتاً زیاد زمان خروج لانتانیدها از ستون، میزان جداسازی و تفکیک پیک‌ها را تحت تأثیر قرار نداد. به این ترتیب با استفاده از چنین سیستمی جداسازی بهینه سریم/ پرازئودیمیوم به طور موفقیت‌آمیز انجام شد.

۱۵ میلی‌لیتر از محلول حاوی ۵۰۰ ppb از سریم و پرازئودیمیوم در اسید نیتریک با غلظت ۰/۰۱ مولار از ستون عبور داده شد. سپس محلول شستشو که اسید نیتریک ۰/۰۱ مولار حاوی عامل اکسنده با غلظت ۰/۰۵ مولار بود از ستون عبور داده شد تا علاوه بر یک مرحله شستشوی ستون از اکسایش سریم به عدد اکسایش بالاتر و به صورت کمی نیز کسب اطمینان شود. جدول ۱ ترتیب شویش سریم و پرازئودیمیوم و شرایط شویش هر یک از آن‌ها را نشان می‌دهد. در شکل ۲ طرح شماتیکی از فرایند بهینه جهت استحصال پرازئودیمیوم-۱۴۳ به روش (n,γ) نمایش داده شده است که در مطالعه‌ی دیگری ارائه خواهد شد. جنس رزین‌ها، اسیدهای مورد استفاده برای شویش و ترتیب شویش آن‌ها در شکل نمایش داده شده است.

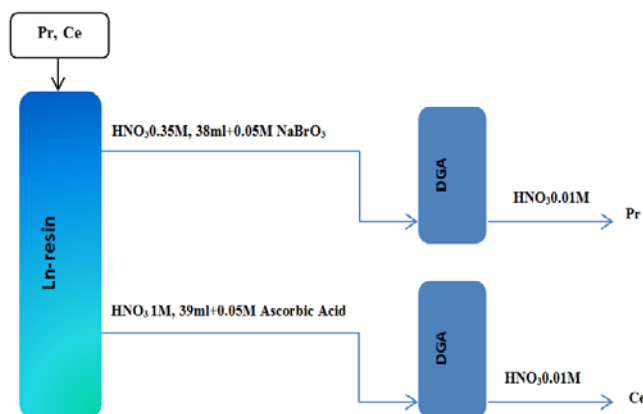
مقدار آنالیت موجود در فاز متحرک (شوینده) تعریف می‌شود. برای این مطالعه از یک سری محلول حاوی سریم با غلظت ثابت ۵۰۰ ppb در اسید نیتریک ۰/۱۵ مولار استفاده شد. به هر نمونه به طور جداگانه برای رسیدن به غلظت  $\text{NaBrO}_3$  در محدوده ۰/۰۱ تا ۰/۱ مولار،  $\text{NaBrO}_3$  اضافه شد. محلول‌ها در ادامه با ۵۰ میلی‌گرم  $\text{Ln}$ -رزین به مدت ۳۰ دقیقه هم خوردند. سپس محلول فیلتر شده و سریم از جاذب شویش شده و مقدار آن با استفاده از ICP-MS اندازه‌گیری شد. قابلیت احیاء مجدد سریم(IV) به سریم(III) بعداً از طریق افزودن اسید اسکوربیک به محلول شویش شده سریم در اسید نیتریک ۱ مولار مورد بررسی قرار گرفت.

## ۵.۲ جداسازی بهینه شده جفت لانتانیدی

بر اساس نتایج مطالعات قبلی، یک سیستم اولیه متشکل از ستون حاوی  $\text{Ln}$ -رزین با ارتفاع ۲۲ سانتی‌متر و قطر داخلی ۱ سانتی‌متر تعبیه شد. با توجه به حساسیت  $\text{Ln}$ -رزین به غلظت اسید، اقدامات احتیاطی متعددی انجام شد. برای مثال چون از  $\text{Ln}$ -رزین بیش از یک مرتبه برای جداسازی استفاده می‌شد، رزین هر بار پیش از این‌که وارد ستون شود با استفاده از اسید نیتریک ۸ مولار کاملاً از هرگونه لانتانیدی که از قبل روی آن جذب شده باشد پاک شده و آماده‌سازی شده و پس از پر شدن ستون با این دوغاب با استفاده از اسید نیتریک ۰/۰۱ مولار شستشو داده شد. هم‌چنین جهت کسب اطمینان از تکرارپذیری نتایج بررسی غلظت مورد نیاز برای شویش سریم و پرازئودیمیوم حجم بسیار زیادی از هر غلظت از اسید تهیه شد و در ابتدا به عنوان شوینده در آزمایشات غیراکتیو و سپس در آزمایشات

جدول ۱. ترتیب و شرایط شویش هر یک از لانتانیدها

ترتیب	عنصر	حجم شوینده (ml)	غلظت اسیدنیتریک، شوینده (M)	غلظت عامل اکسنده/ احیاکننده (M)
۱	پرازئودیمیوم	۳۸	۰/۳۵	مولار $\text{NaBrO}_3$ ۰/۰۵
۲	سریم	۳۹	۱	مولار اسید اسکوربیک ۰/۰۵

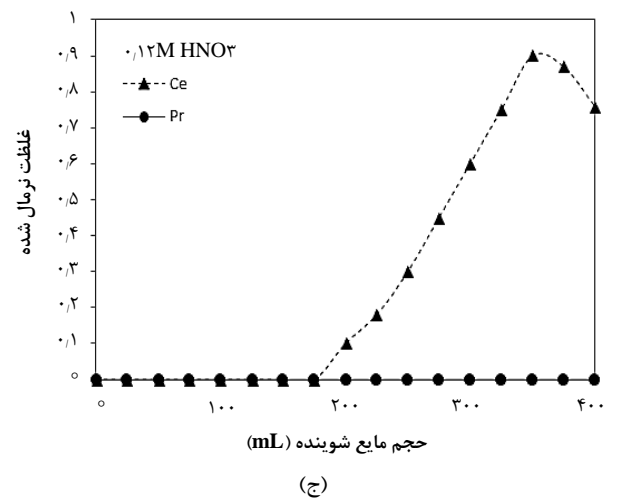
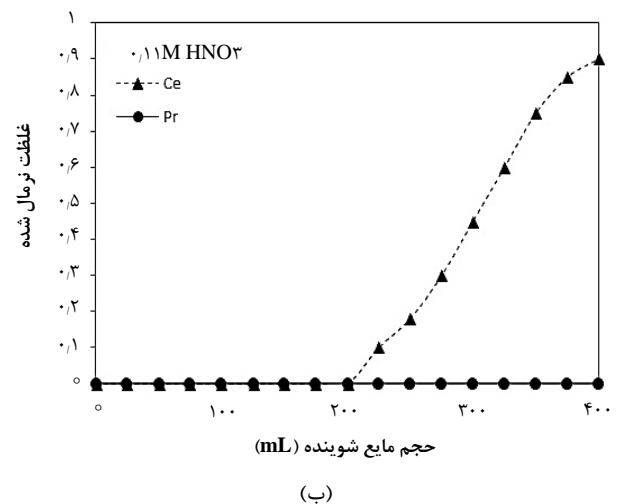
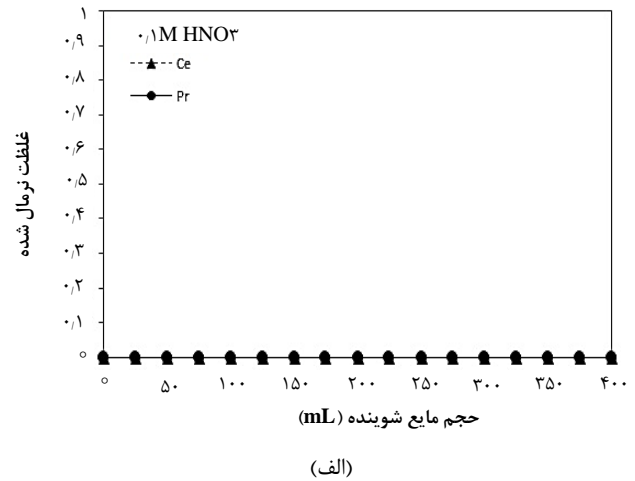
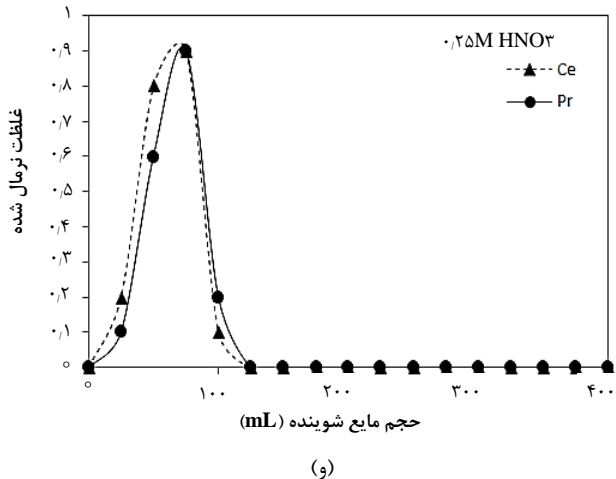
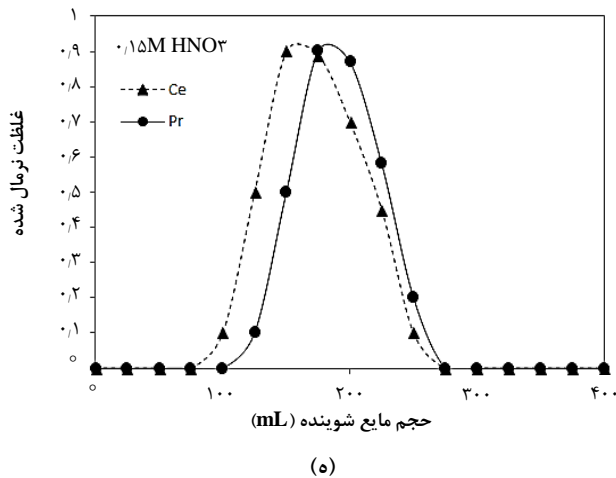
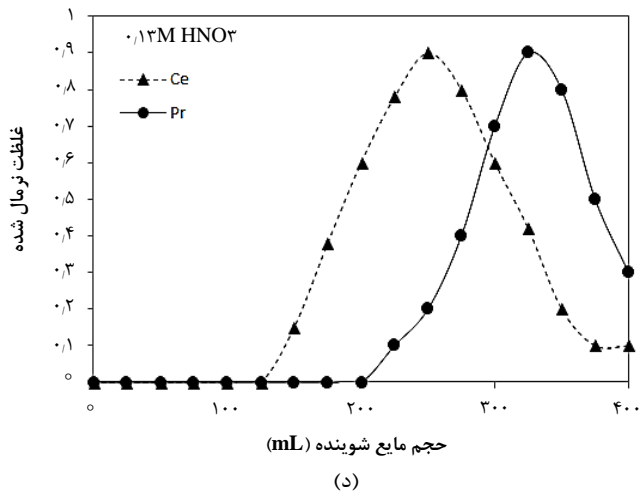


شکل ۲. فرایند جداسازی بهینه جهت استحصال پرازئودیمیوم-۱۴۳ از ماده هدف از جنس سریم.



## ۳. نتایج و بحث

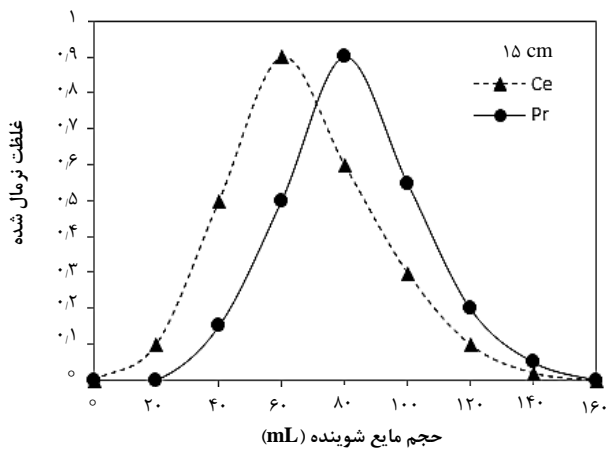
۱.۳ مطالعات بررسی اثر غلظت اسید نیتریک (شوینده) و طول ستون جداسازی سریم/پرازئودیمیوم با استفاده از شویش ایزوکراتیک با غلظت‌های مختلف اسید نیتریک بدون استفاده از عامل اکسنده در شکل‌های ۳ (الف تا و) نشان داده شده است.



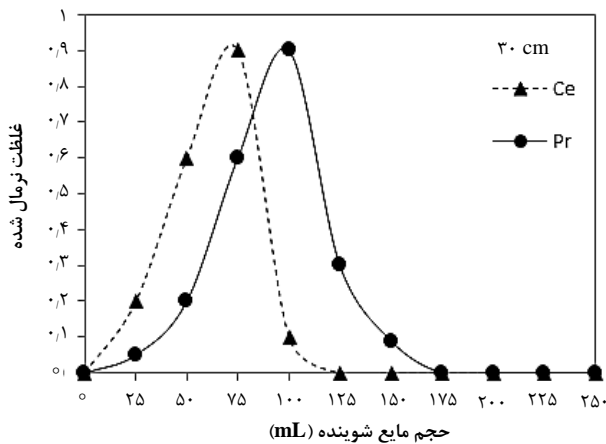
شکل ۳. الف) شویش سریم/پرازئودیمیوم با استفاده از نیتریک اسید (۰٫۱) (ب) شویش سریم/پرازئودیمیوم با استفاده از نیتریک اسید (۰٫۱۱) مولار بدون استفاده از عامل اکسنده، ج) شویش سریم/پرازئودیمیوم با استفاده از نیتریک اسید (۰٫۱۲) مولار بدون استفاده از عامل اکسنده، د) شویش سریم/پرازئودیمیوم با استفاده از نیتریک اسید (۰٫۱۳) مولار بدون استفاده از عامل اکسنده، ه) شویش سریم/پرازئودیمیوم با استفاده از نیتریک اسید (۰٫۱۵) مولار بدون استفاده از عامل اکسنده، و) شویش سریم/پرازئودیمیوم با استفاده از نیتریک اسید (۰٫۲۵) مولار بدون استفاده از عامل اکسنده.



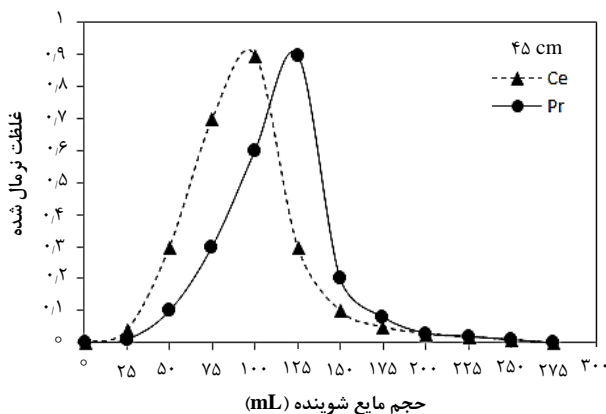




(الف)



(ب)



(ج)

شکل ۴. الف) شویش سریم/ پرازئودیمیوم با اسید نیتریک ۰٫۱۵ مولار از ستون با طول ۱۵ سانتی‌متر (ارتفاع رزین ۱۲ سانتی‌متر) و قطر داخلی ۱ سانتی‌متر، ب) شویش سریم/ پرازئودیمیوم با اسید نیتریک ۰٫۱۵ مولار از ستون با طول ۳۰ سانتی‌متر (ارتفاع رزین ۲۲ سانتی‌متر) و قطر داخلی ۱ سانتی‌متر، ج) شویش سریم/ پرازئودیمیوم با اسید نیتریک ۰٫۱۵ مولار از ستون با طول ۴۵ سانتی‌متر (ارتفاع رزین ۳۹ سانتی‌متر) و قطر داخلی ۱ سانتی‌متر.

هم‌چنین، میزان تفکیک محاسبه شده هر آنالیت نیز در جدول ۲ ارائه شده است. همان‌طور که مشاهده می‌شود، با استفاده از غلظت‌های پایین‌تر نیتریک اسید با استفاده از حجم بالایی از اسید و بنابراین پیک شستشوی پهن تفکیک بالاتری برای پرازئودیمیوم و سریم مشاهده شد. با استفاده از نیتریک اسید ۰٫۱۳ مولار، هم‌پوشانی قابل توجهی بین پیک‌های سریم و پرازئودیمیوم مشاهده شد. هر چند که بهبود جداسازی پیک‌های پرازئودیمیوم و سریم با سرعت بیش‌تری نسبت به پهن شدن پیک حاصل شد. بنابراین با کاهش غلظت نیتریک اسید تا زیر ۰٫۱۵ مولار تنها بهبودی جزئی در جداسازی پیک مشاهده شد.

به این ترتیب به دلیل حجم بالای مورد نیاز شوینده جهت دستیابی به تفکیک مطلوب، پیشرفت قابل توجهی در جداسازی این دو عنصر در غلظت‌های زیر تقریباً ۰٫۱۵ مولار پایه صورت نگرفته و روش در این شرایط، عملی به نظر نمی‌رسید. مشخص شد برای دستیابی به جداسازی مطلوب روش شویش ایزوکراتیک مفید به نظر نمی‌رسد. با بهره‌گیری از امکان تبدیل سریم (III) به سریم (VI) می‌توان اختلاف بیش‌تری در رفتار و عملکرد این دو لانتانید مجاور ایجاد کرد. که در ادامه به ارائه نتایج آن پرداخته می‌شود. پیش از آن اثر افزایش ستون گزارش شده و سپس نتایج روش بهینه‌نهایی آورده می‌شود.

شکل ۴ (الف تا ج) تأثیر طول ستون (و در واقع ارتفاع رزین داخل ستون) بر مشخصات شستشوی دو لانتانید سبک سریم و پرازئودیمیوم را نشان می‌دهد. مقادیر  $R_s$  هم‌چنین در جدول ۲ گزارش شده است. فاکتور بازداری/نگهداری<sup>۱</sup> پرازئودیمیوم (III) و سریم (III) بر روی Ln-رزین در غلظت‌های مختلف اسید نیتریک بسیار به هم نزدیک است. بنابراین با افزایش طول ستون و در نتیجه ارتفاع رزین تنها تا حدی می‌توان قدرت تفکیک را افزایش داد. به این ترتیب دو و سه برابر شدن طول ستون منجر به افزایش تفکیک لانتانیدی قابل توجهی در زوج سریم/ پرازئودیمیوم نشد و این موضوع بیانگر جداسازی ناقص تحت این شرایط است. همان‌طور که در بخش ارزیابی اکسیداسیون سریم نشان داده شد، سریم را می‌توان از طریق روش اکسیداسیون با معرف  $\text{NaBrO}_2$  جداسازی نمود که این امر منجر به رسیدن به تفکیک بهتری برای زوج سریم و پرازئودیمیوم خواهد شد.

جدول ۲. مقادیر تفکیک،  $R_s$ ، برای جفت سریم/پرازئودیمیوم برای شویش از ستون با قطر ۱ سانتی‌متر و طول‌های متفاوت از ارتفاع Ln-رزین

تفکیک ( $R_s$ )	۱۲ سانتی‌متر	۲۲ سانتی‌متر	۳۹ سانتی‌متر
	۰٫۱	۰٫۲	۰٫۲

### 1. Retention Factor



## ۳.۲ اثر اکسایش سریم

مطالعات ستونی بعدی نشان داد که اکسیداسیون سریم (III) به سریم (IV) می‌تواند مستقیماً روی ستون انجام شود و کاهش سریم (IV) به سریم (III) می‌تواند روی ستون با استفاده از اسید اسکوربیک  $0.05$  مولار انجام شود. افزایش قابل توجه مقادیر  $K_d$  در نتیجه افزودن  $\text{NaBrO}_3$ ، پتانسیل قابل توجهی را برای بهبود فاکتورهای جداسازی  $\text{Ce/Pr}$  با استفاده از این رویکرد نشان می‌دهد.

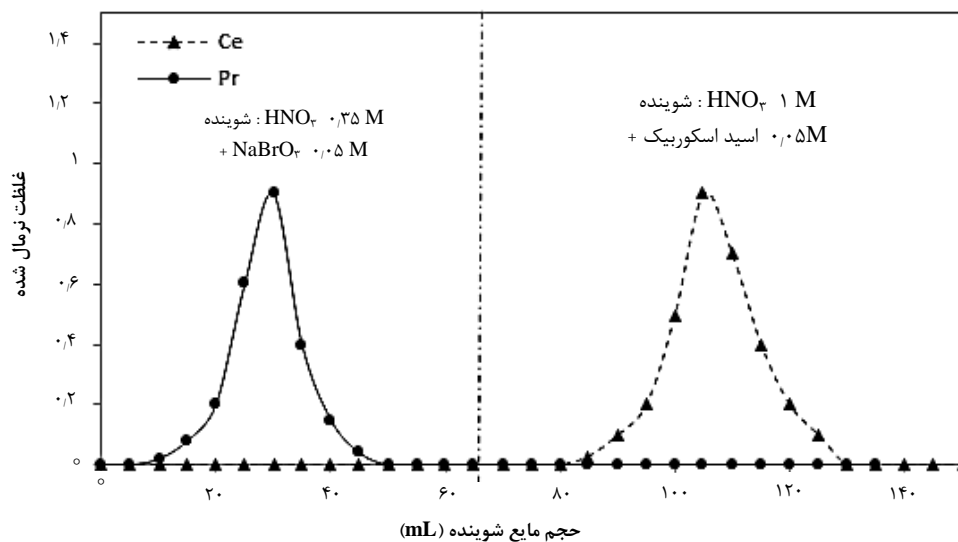
## ۳.۳ جداسازی لاتانید در شرایط بهینه و پیش تغلیظ محلول حاوی لاتانید

در شکل ۵ جداسازی پرازئودیمیوم و سریم در شرایط بهینه نشان داده شده است. جداسازی پایه سریم از پرازئودیمیوم با استفاده از سیستم  $\text{NaBrO}_3$ /اسید اسکوربیک که قبلاً توضیح داده شد، به راحتی حاصل می‌شود.

جدول ۳ مقادیر  $K_d$  سریم در مجاورت جاذب (Ln-رزین) را به عنوان تابعی از غلظت  $\text{NaBrO}_3$  نشان می‌دهد. مشاهده می‌شود با افزایش غلظت  $\text{NaBrO}_3$  مقادیر  $K_d$  مربوط به  $\text{Ce}$  افزایش می‌یابد تا زمانی که غلظت به  $0.05$  مولار از  $\text{NaBrO}_3$  می‌رسد، در غلظت‌های بالاتر از آن مقدار کمی کاهش می‌یابد. افزایش ماندگاری/بازداری  $\text{Ce}$  بر روی جاذب، با افزایش  $\text{NaBrO}_3$  غلظت تا  $0.05$  مولار به احتمال زیاد به دلیل اکسیداسیون سریم (III) به سریم (IV) است. از آنجایی که HDEHP یک استخراج‌کننده کاتیونی است، در غلظت‌های بالاتر از  $0.05$  مولار  $\text{NaBrO}_3$  میزان نگهداری/بازداری سریم از  $\text{Ce}$  بر روی رزین را کاهش می‌دهد که احتمالاً نتیجه حضور کاتیون سدیم است که با سریم برای نشستن در جایگاه‌های استخراج‌کننده کاتیونی فعال جهت جذب رقابت می‌کند.

جدول ۳. مقادیر  $K_d$  سریم به عنوان تابعی از غلظت  $\text{HNO}_3$  در غیاب  $\text{NaBrO}_3$  در مقایسه با  $K_d$  سریم به عنوان تابعی از غلظت  $\text{NaBrO}_3$  در غلظت ثابت  $\text{HNO}_3$   $0.15$  مولار

$K_d$	در غیاب $\text{NaBrO}_3$		$K_d$	$\text{HNO}_3$ غلظت ثابت $0.15$ مولار	
	$[\text{HNO}_3]$			$[\text{NaBrO}_3]$	
$\sim 20000$	$0.01$ مولار		$\sim 20$	$0.001$ مولار	
$\sim 2000$	$0.04$ مولار		$50$	$0.01$ مولار	
$\sim 200$	$0.1$ مولار		$200$	$0.05$ مولار	
$10 \sim$	$0.5$ مولار		$35$	$0.1$ مولار	



شکل ۵. جداسازی  $\text{Pr/Ce}$  در شرایط بهینه، ستون با قطر ۱ سانتی متر و حاوی رزین با ارتفاع ۲۲ سانتی متر، رزین با ابعاد ۱۰۰ تا ۲۰۰ میکرومتر.



## ۴. نتیجه‌گیری

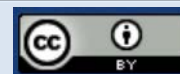
پرازئودیمیوم-۱۴۳ یک نشرکننده بتای خالص است که دارای قابلیت کاربرد به عنوان یک رادیونوکلید درمانی است. با این حال تا امروز خیلی مورد توجه واقع نشده است. با توجه به شرایط کنونی کشور و همچنین نیاز فزاینده جامعه پزشکی به رادیونوکلیدهای درمانی و همچنین احتمال عدم دسترسی به رادیونوکلیدهای مختلف برای درمان بیماران سرطانی لازم است تمام پتانسیل‌های موجود در کشور بررسی شده و مورد استفاده قرار گیرد. روش‌های تولید پرازئودیمیوم-۱۴۳ شامل جداسازی از محصولات حاصل از شکافت اورانیم-۲۳۵ و دیگری پرتودهی سریم در رآکتور و جداسازی پرازئودیمیوم-۱۴۳ حاصل از ماده هدف سریمی است. سریم و پرازئودیمیوم دو لانتانید مجاور هستند که جداسازی‌شان نیازمند یک روش جداسازی بسیار مؤثر است. پس از بررسی هر دو روش تولید تصمیم بر آن شد تا ابتدا تولید به روش فعال‌سازی ماده هدف سریمی در رآکتور تحقیقاتی تهران اجرا شود. طی شکافت اورانیم-۲۳۵ در رآکتور، رادیوایزوتوپ‌های مختلفی از گروه‌های مختلف جدول تناوبی و از جمله لانتانیدها تولید می‌شوند. بنابراین جهت استحصال پرازئودیمیوم-۱۴۳، باید به صورت مرحله به مرحله گروه‌های مختلف از رادیوایزوتوپ‌ها جداسازی شوند. با جداسازی برش لانتانیدها از پاره‌های شکافت یکی از دشوارترین مراحل جداسازی رادیوسریم‌ها از رادیوپرازئودیمیوم است که همان فرایندی است که در تولید پرازئودیمیوم-۱۴۳ از ماده هدف سریمی باید اجرا شود. به این ترتیب به عنوان گام اول در این مسیر، در این مطالعه پارامترهای اساسی فرایند جداسازی پرازئودیمیوم از سریم بهینه شد. بدین منظور از خاصیت جذاب و ویژه اکسیدشوندگی سریم بهره جسته شد و قدرت تفکیک بالایی از جداسازی پرازئودیمیوم از سریم حاصل شد. همچنین ماده هدف از جنس سریم در رآکتور پرتودهی شد و پرازئودیمیوم-۱۴۳ تولیدی به طور موفقیت‌آمیز جداسازی شد. نتایج آن به دلیل بالا بودن حجم داده‌ها در گزارش دیگری به تفصیل ارائه خواهد شد. به هر حال روش بهینه گزارش شده معایبی نیز دارد. قیمت بالای رزین گزینشی برای لانتانیدها، استهلاک آن پس از ۲-۳ مرتبه استفاده از معایب روش جداسازی یاد شده است. در صورت استفاده از روش برای تولید پرازئودیمیوم-۱۴۳، بهتر است از ماده هدف غنی شده سریم-۱۴۲ استفاده شود که خود هزینه بالایی را تحمیل خواهد کرد. همچنین با توجه به این که رادیونوکلید محصول نشرکننده بتای خالص است، آنالیز هسته‌ای آن زمان‌بر و دشوار است.

## مراجع

1. S. Shirvani Arani, M. Ghannadi Maragheh, *Translation of Chemistry and Analysis of Radionuclides, Laboratory Methods and Teaching Methods, Published by the Research Institute of Nuclear Sciences and Technologies, Iran, (2013) (In Persian).*
2. Sharad Lohar, et al, *A kit based methodology for convenient formulation of <sup>166</sup>Ho-Chitosan complex for treatment of liver cancer, Applied Radiation and Isotopes, 161, 109161 (2020).*
3. Agathe Deville, et al, *Peptide Receptor Radionuclide Therapy by <sup>177</sup>Lu-DOTATATE a Secreting Cervical Paraganlioma, Jeremie Tordo Clin Nucl Med, 47, 71 (1 Jan 2022).*
4. Clemens Kratochwil, et al, *[<sup>153</sup>Sm]Samarium-labeled FAPI-46 radioligand therapy in a patient with lung metastases of a sarcoma, Eur J Nucl Med Mol Imaging, 48, 3011 (2021).*
5. D.F. Peppard, G. Mason, S.W. Moline, *The use of dioctyl phosphoric acid extraction in the isolation of carrier-free <sup>90</sup>Y, <sup>140</sup>La, <sup>144</sup>Ce, <sup>143</sup>Pr, and <sup>144</sup>Pr, Chemistry Journal of Inorganic and Nuclear Chemistry, 5, 141 (1957).*
6. Tomitaro Ishimori, Yoshii Kobayashi, *Praseodymium-143 from Neutron-Irradiated Uranium, Journal of Nuclear Science and Technology, 2, 181 (1965).*
7. K.V. Vimalnath, et al, *Prospects and problems in the production of <sup>143</sup>Pr for radionuclide therapy applications, Radiochim. Acta, 93, 419-426 (2005).*
8. K.V. Vimalnath, et al, *Production Logistics and Prospects of <sup>142</sup>Pr and <sup>143</sup>Pr for Radionuclide Therapy (RNT) Applications, 5th International Conference on Isotopes, F425R0149, 103-108.*
9. S.E. Hosseini, M. Ghannadi-Maragheh, A. Bahrami-Samani, S. Shirvani-Arani, *Evaluation of promethium-147 production as a by-product of the fission molybdenum-99 process in Tehran research reactor, Radiochimica Acta, 109(4), 295-300 (2021).*
10. S. Vosoughi, et al, *Production of no-carrier-added Ho-166 for targeted therapy purposes, Iranian Journal of Nuclear Medicine, 25, 15-20 (2017).*
11. N. Salek, et al, *Comparative studies of extraction chromatography and electroamalgamation separation to produce no-carrier added <sup>177</sup>Lu by Tehran research reactor, Iranian Journal of Nuclear Medicine, 25(1), 23-33 (2017).*

## COPYRIGHTS

©2021 The author(s). This is an open access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution (CC BY 4.0), which permits unrestricted use, distribution, and reproduction in any medium, as long as the original authors and source are cited. No permission is required from the authors or the publishers.



## استناد به این مقاله

سیمیندخت شیروانی آرانی (۱۴۰۲)، بهینه‌سازی پارامترهای جداسازی پرازئودیمیوم از سریم با هدف تولید رادیوایزوتوپ نشرکننده بتای خالص <sup>143</sup>Pr برای کاربرد درمانی در پزشکی هسته‌ای، ۱۰۵، ۶۹-۷۶

DOI: 10.24200/nst.2023.1374

Url: [https://jonsat.nstri.ir/article\\_1374.html](https://jonsat.nstri.ir/article_1374.html)

