



Sci. and Tech. note
یادداشت علمی و فنی

غنی‌سازی ایزوتوپ ^{54}Fe به روش جداسازی الکترومغناطیسی ایزوتوپ‌ها

ضراغ اسداللهی*^{۱،۲}، محمدرضا قاسمی^۱، علی هاشمی‌زاده عقدا^۱، پروین سرآبادانی^۱، هوشنگ بختیاری^۱، سید محمود محاطی^۱، هوشیار سیدی^۱، حسین صدری^۱، معصومه شربتداران^۱
۱. پژوهشکده‌ی تحقیقات کشاورزی، پزشکی و صنعتی، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، صندوق پستی: ۳۱۴۸۵-۴۹۸، کرج - ایران
۲. سازمان مرکزی، دانشگاه پیام نور، صندوق پستی: ۱۹۳۹۵-۳۶۹، تهران - ایران

چکیده: برای جمع‌آوری ایزوتوپ‌های آهن، پاکت‌های مسی و صفحه‌ی جلویی گرافیتی جمع‌کننده، طراحی و ساخته شد. پس از انتخاب و آماده‌سازی ماده‌ی اولیه، پارامترهای الکتریکی چشمه‌ی یونی و آهن ربای الکتریکی تعیین شدند. طیف جرمی ایزوتوپ‌های آهن توسط ثابت شد. ایزوتوپ ^{54}Fe انباشته شده در پاکت ابتدا استخراج و سپس با روش‌های الکترولیز، استخراج با حلال و رسوب‌گیری تخلیص شد. خلوص شیمیایی و ایزوتوپی ^{54}Fe ، به ترتیب، با طیف‌سنجی نشر اتمی - پلاسمای جفت شده‌ی القایی (ICP-AES) و طیف‌سنج جرمی یونش گرمایی (TIMS) تعیین شد. با استفاده از پراش پرتو ایکس (XRD) تشکیل $^{54}\text{Fe}_2\text{O}_3$ تأیید شد.

کلیدواژه‌ها: غنی‌سازی، جداسازی الکترومغناطیسی، ایزوتوپ، آهن-۵۴

Enrichment of ^{54}Fe by Electromagnetic Isotope Separator (EMIS)

Z. Asadollahi*^{1,2}, M. Ghasemi¹, S.A. Hashemizadeh², P. Sarabadani¹, H. Bakhtiari¹, S.M. Mohati¹, H. Seyedi¹, H. Sadri¹, M. Sharbatdaran¹

1. Agricultural, Medical and Industrial Research School, Nuclear Science and Technology Research Institute, P.O.Box: 31485-498, Karaj - Iran
2. Department of Physics, Payame Noor University, P.O.Box: 19395-369, Tehran - Iran

Abstract: Electromagnetic Isotopes Separator (EMIS) has been installed in Karaj since 1991 in order to separate isotopes of a wide range of elements. Iron is successfully separated. Iron element has four stable isotopes, ^{58}Fe , ^{57}Fe , ^{56}Fe and ^{54}Fe . The natural abundance of ^{54}Fe is 5.8%. The ^{54}Fe isotope is used for production of radioisotope ^{55}Fe which in turn is used as an electron capture detector and in X-ray fluorescence. The copper pockets and graphite front plate were designed and fabricated for separating and collecting Fe isotopes. After the selection and preparation of charge material, the electrical parameter of ion source and electromagnet were recognized. The mass spectra of iron isotope were recorded. The deposited ^{54}Fe isotope was extracted from copper pocket and purified by electrodeposition, solvent extraction and purification methods. Chemical and enrichment analyses of ^{54}Fe isotope were made by ICP-AES and TIMS, respectively. The formation of $^{54}\text{Fe}_2\text{O}_3$ was confirmed by the X-ray diffraction.

Keywords: Enrichment, Electromagnetic Isotope Separator, Fe-54

**۱. مقدمه**

دستگاه جداکننده الکترومغناطیسی ایزوتوپ‌ها در سال ۱۳۷۰ برای جداسازی ایزوتوپ‌های عناصر مختلف، در پژوهشکدهی کرج نصب و راه‌اندازی شد. با استفاده از این سیستم، غنی‌سازی ایزوتوپ ^{54}Fe با موفقیت انجام شد. عنصر آهن دارای چهار ایزوتوپ پایدار، ^{54}Fe ، ^{56}Fe ، ^{57}Fe ، ^{58}Fe با فراوانی طبیعی، به ترتیب، ۰٫۳، ۲٫۲، ۹۱٫۷ و ۵٫۸ درصد است. یکی از کاربردهای ایزوتوپ ^{54}Fe ، در تولید رادیوایزوتوپ آهن-۵۵ است. از این آخری در آشکارسازی از طریق گیراندازی الکترون و در تصویربرداری فلورسانسی پرتوایکس (X-ray fluorescence) استفاده می‌شود.

غنی‌سازی ایزوتوپی با استفاده از جدایش الکترومغناطیسی از روش‌هایی است که می‌توان با آن ایزوتوپ‌های با درجهی خلوص بسیار بالا تولید کرد [۱، ۲]. در این روش ابتدا اتم‌های عنصر موردنظر، در چشمه‌ی یونی کالترون [۳] بعد از تبخیر حرارتی، به روش برخورد الکترونی، یونیده شده و با یک انرژی ثابت وارد یک میدان مغناطیسی یکنواخت می‌شوند که در آن یک 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 [۴]. چشمه‌ی یونی و جمع‌کننده به یک تانک خلاء که تحت میدان مغناطیسی ثابت قرار گرفته، متصل است. تانک با استفاده از پمپ‌های دورانی و پخش تا 10^{-3} پاسکال خلاء می‌شود. بعد از جمع‌آوری در یک دوره‌ی کاری، ایزوتوپ‌های موجود در پاکت‌ها، به وسیله‌ی فرایند شیمیایی استخراج شده و پس از طی مرحله‌های تصفیه‌ی شیمیایی، ایزوتوپ خالص به دست می‌آید.

۲. بخش تجربی**۱.۲ مواد**

کلرید آهن چهار آبه، $\text{FeCl}_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ ، با درجه‌ی خلوص بالای ۹۹٪ از شرکت آکروس، متیل ایزو بوتیل کتون (MIBK)، ۱ و ۱۰-فنانترولین ۰٫۲٪، هیدروکسیل آمین هیدروکلرید، استیک اسید و آمونیم استات از شرکت مرک تهیه شدند.

۲.۲ دستگاه‌ها

سیستم جداکننده الکترومغناطیسی ایزوتوپ‌ها (مدل CI-۱۴۰)، دستگاه پراش پرتو ایکس

(مدل W-Ka X ray source Stol Stidy-Mp diffractometer)، دستگاه طیف‌سنج نشر اتمی - پلاسما جفت شده‌ی القایی (ICP-AES) (مدل JY-۱۲۴)، دستگاه طیف‌سنج جرمی - یونش گرمایی (مدل LZD-۲۰۷) و کوره‌ی خلاء آتین (مدل ATU(۱۰-۱۰۰)) از جمله‌ی دستگاه‌های مورد استفاده در این کار پژوهشی بودند.

۳.۲ انتخاب و آماده‌سازی ماده‌ی اولیه

ماده‌ی اولیه یک ترکیب شیمیایی از عنصر موردنظر بود که انتخاب آن با توجه به شرایط و محدودیت‌های چشمه‌ی یونی، جمع‌کننده و فرایند تصفیه‌ی شیمیایی، انجام شد. ماده‌ی اولیه باید دارای خلوص شیمیایی بالا، دمای تبخیر در محدوده‌ی ۱۰۰ تا ۸۰۰ درجه‌ی سلیسیوس، پایداری حرارتی در هنگام تبخیر و بدون آب می‌بود. در صورت امکان از خود عنصرها، یا از کلرید و اکسید آن‌ها می‌توان استفاده نمود. برای غنی‌سازی ^{54}Fe از خود عنصر آهن به عنوان ماده‌ی اولیه نمی‌توان استفاده کرد زیرا آهن دارای دمای ذوب ۱۵۳۸ درجه‌ی سلیسیوس در جو است که در محدوده‌ی دمای کارکرد چشمه‌ی یونی کالترون نیست. بنابراین از آهن کلرید ۴ آبه، $\text{FeCl}_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ ، استفاده شد [۵]. ابتدا عمل آب‌گیری بر روی آن انجام شد. برای این کار ماده‌ی اولیه در یک کوره‌ی خلاء به مدت یک ساعت با دمای ۴۰۰ درجه‌ی سلیسیوس حرارت داده شد. آهن کلرید آب‌دار به رنگ سبز است که پس از حرارت دادن به رنگ خاکستری درآمد.

۴.۲ طراحی و ساخت صفحه‌ی جلویی و پاکت‌های مسی**ایزوتوپ‌های آهن**

با توجه به شکل ۱، مسیر پرتوها در میدان مغناطیسی یکنواخت به صورت نیم‌دایره است. حداکثر زاویه‌ی واگرایی پرتوها برای هر ایزوتوپ در چشمه‌ی یونی α فرض شده است. بنابراین پهنای پرتو برای هر ایزوتوپ بر روی محور Xها برابر با $(1 - \cos \alpha)$ $AB = 2R_0$ است که در آن R_0 شعاع پرتو با زاویه‌ی واگرایی، صفر است. این پهنای در روی جمع‌کننده که با محور Xها زاویه‌ی β می‌سازد برابر با $CD = AB / \cos \beta$ خواهد شد. برای افزایش میزان کانونی شدن پرتوهای یک ایزوتوپ که در واقع با کاهش اندازه‌ی AB و به دنبال آن کاهش پهنای پاکت (CD) همراه است، قطعاتی به نام شیم^(۱) با اشکال و ضخامت‌های مناسب (به صورت گوه‌ی دو طرفه) در سطوح داخلی جداره‌های بالایی و پایینی تانک خلاء تعبیه شده‌اند (شکل ۲) که موجب تقویت

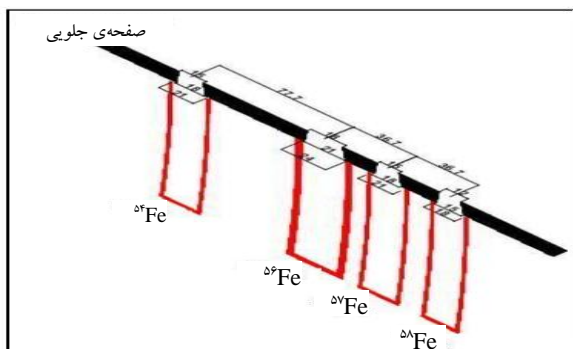


مختصات مرکز هر پاکت از قطع دادن معادله‌های دایره‌های نظیر و خط جمع‌کننده محاسبه شده و پارامتر $C_M = M/M_0$ (نسبت جرم هر ایزوتوپ به جرم ایزوتوپ میانی) برای عنصر آهن با چهار ایزوتوپ پایدار، ^{54}Fe ، ^{56}Fe ، ^{57}Fe ، ^{58}Fe در جدول ۱ نشان داده شده است.

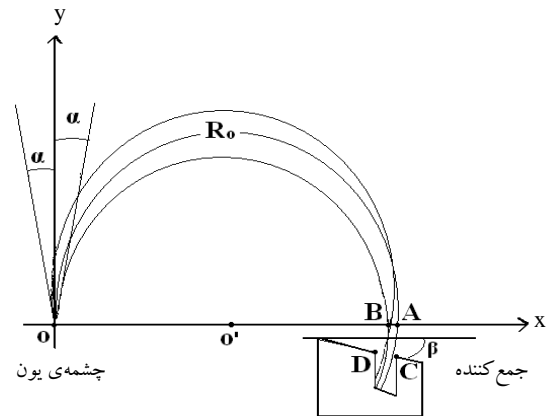
با توجه به مقدار جریانی که به پاکت‌ها می‌رسد می‌توان در ساخت آن‌ها مواردی از قبیل ضخامت ورقه‌ی مسی و لزوم استفاده از خنک‌کننده را در نظر گرفت، مثلاً برای ایزوتوپ‌های ^{56}Fe و ^{57}Fe باید ضخامت ورق پاکت‌ها ۳ میلی‌متر و همچنین پاکت‌ها باید دارای سیستم آب خنک‌کننده باشند. برای پاکت‌های دیگر با جریان دریافتی پایین، ضخامت ورقه‌ی مسی ۲ میلی‌متر در نظر گرفته شد و به سیستم خنک‌کننده نیز نیاز نداشتند. برای ایزوتوپ ^{56}Fe با توجه به جریان نسبتاً بالایی (۸،۵mA) که به پاکت می‌رسد پهنای پاکت ۲۵ میلی‌متر و برای ایزوتوپ ^{54}Fe پهنای پاکت ۲۰ میلی‌متر در نظر گرفته شد. برای ایزوتوپ‌های ^{54}Fe و ^{57}Fe با توجه به جریان یونی پایین، پهنای پاکت‌ها ۱۵ میلی‌متر در نظر گرفته شد. با توجه به این که ارتفاع تصویر پرتوها روی صفحه‌ی جلویی کوچک‌تر یا مساوی با ۱۷۰ میلی‌متر است، ارتفاع شکاف در صفحه‌ی جلویی ۱۹۰ میلی‌متر و به منظور جلوگیری از اتلاف پرتو، ارتفاع پاکت‌ها ۲۱۰ میلی‌متر در نظر گرفته شد تا کل پرتو را پوشش دهد. عمق همی پاکت‌ها ۱۰۰ میلی‌متر انتخاب شد. نقشه‌ی صفحه‌ی جلویی و پاکت‌ها در شکل ۳ نشان داده شده‌اند.

جدول ۱. مختصات پاکت‌های ایزوتوپ‌های آهن در جمع‌کننده

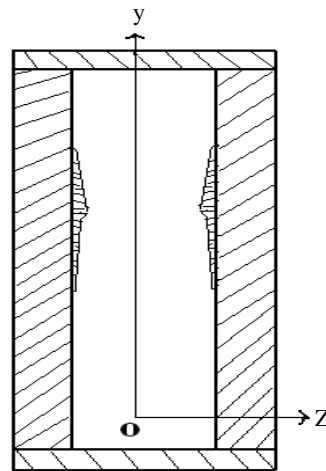
^{54}Fe	^{56}Fe	^{57}Fe	^{58}Fe	ایزوتوپ‌های آهن
۰٫۳	۲٫۲	۹۱٫۷	۵٫۸	درصد فراوانی
۱٫۰۳۵۷	۱٫۰۱۷۸	۱	۰٫۹۶۴۲	C_M مقدار
۲۸۶۶	۲۸۴۰٫۸	۲۸۱۶	۲۷۶۳	مقدار x(mm)
-۱۷۱	-۱۴۴٫۵	-۱۱۸	-۶۲٫۶	مقدار y(mm)



شکل ۳. صفحه‌ی گرافیتی جلویی و محل قرارگیری پاکت‌های مسی در جمع‌کننده.



شکل ۱. مسیر طی شده به وسیله‌ی یک ایزوتوپ در میدان مغناطیسی.

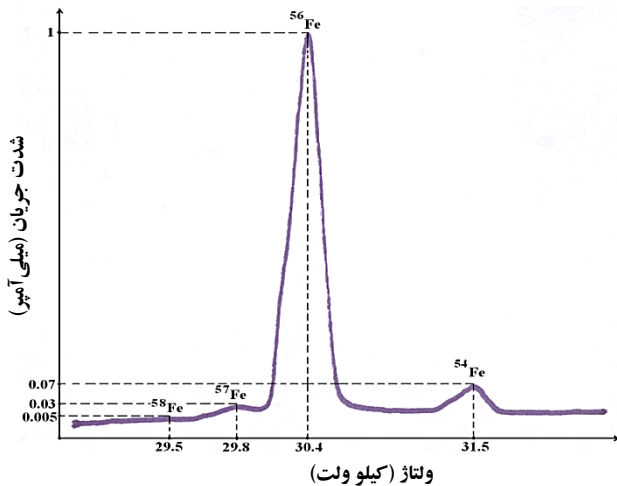


شکل ۲. شیم‌های تعبیه شده در سطوح داخلی تانک خلاء.

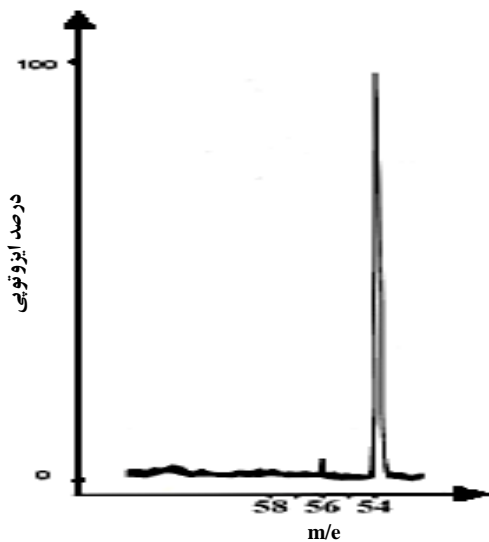
میدان در ناحیه‌ای از تانک خواهند شد که محل عبور پرتو مرکزی هر ایزوتوپ است. در این صورت نقطه‌ی A به طرف نقطه‌ی B جابه‌جا شده و اندازه‌ی AB کاهش پیدا می‌کند. نکته‌ی دیگری که در کاهش اندازه‌ی AB و بهبود راندمان جداسازی ایزوتوپ‌ها قابل ذکر است کاهش شدت میدان مغناطیسی در لبه‌های قطب‌های آهن‌ریا نسبت به قسمت میانی آن است که به دلیل ساختار چنبره‌های مغناطیسی اجتناب‌ناپذیر است. البته این عدم یکنواختی موجب می‌شود که پرتوهایی که زاویه‌ی واگرایی بیشتری داشته و از پرتو مرکزی دور هستند میدان مغناطیسی ضعیف‌تری را تجربه کرده و در نتیجه میزان خمش کم‌تری پیدا کنند. در این صورت نقطه‌ی B به طرف نقطه‌ی A جابه‌جا شده و در این حالت نیز اندازه‌ی AB کاهش پیدا می‌کند که منجر به کانونی شدن بهتر پرتو خواهد شد. با توجه به این که زاویه‌ی α برابر ۶ درجه است، برای بهینه کردن پهنای پاکت (CD)، زاویه‌ی جمع‌کننده با محور xها، ۴۷ درجه در نظر گرفته شد.

**۵.۲ شرایط کار**

آهن تخلیص شده، در pH حدود ۴ تا ۵ با لیگاند ۱ و ۱۰- فنانترولین ($\text{C}_{12}\text{H}_8\text{N}_2$)، ۰.۲٪، کمپلکس قرمز ۱ و ۱۰ فنانترولین- آهن (II) تشکیل داده [۱۰، ۱۱، ۱۲] و سپس در کوره تحت دمای 700°C به مدت ۷ ساعت کلسینه شد. تحت این شرایط کمپلکس ۱ و ۱۰ فنانترولین- آهن (II) به اکسید آهن (III) قهوه‌ای خالص، که یک ترکیب پایدار و قابل توزین است، تبدیل شد. تشکیل اکسید آهن (III) با استفاده از پراش پرتو ایکس تأیید شد (شکل ۵).



شکل ۴. قله‌های ثبت شده به وسیله‌ی ثبت در هنگام پوشش ولتاژ شتاب دهنده.



شکل ۵. قله‌ی ایزوتوپ ^{54}Fe .

در سیستم جداکننده، پارامترهای فیزیکی و الکتریکی زیادی وجود دارد که قبل و هنگام جداسازی هر عنصر باید محاسبه و تعیین شوند. این پارامترها عبارت‌اند از: ولتاژ شتاب که انرژی یون‌های خروجی از چشمه یونی را تعیین می‌کند، ولتاژ متمرکزکننده که به همراه ولتاژ شتاب در سیستم لنزی چشمه‌ی یونی، نقش هم‌گراکننده‌ی پرتوهای خروجی را به عهده دارد، سیستم کاتدی شامل جریان رشته، ولتاژ و جریان کاتد، ولتاژ آند که شدت و انرژی الکترون‌های گسیل شده را کنترل می‌کند، فشار بخار در محفظه‌ی قوس الکتریکی که نقش تعیین‌کننده در ایجاد پلازما را داشته و توسط گرم‌کن‌های مربوطه کنترل می‌شود، اندازه‌ی شدت میدان مغناطیسی که مقدار آن براساس محاسبه‌های نظری، منحنی و جدول‌های سیستم [۱] و با توجه به ثابت بودن ولتاژ شتاب، برای جرم ایزوتوپ میانی تعیین می‌شود. مقدار شدت میدان مغناطیسی حدود ۹۳۰ گوس محاسبه شد که لازم است جریان سیم‌پیچ آهن‌ریا روی ۹۳ آمپر تنظیم شود. پارامترهای عملیاتی به دست آمده در جدول ۲ داده شده‌اند.

۶.۲ جداسازی ایزوتوپ‌های آهن

بعد از تنظیم پارامترهای عملیاتی و حصول شرایط مطلوب، ایزوتوپ‌های تفکیک شده در جمع‌کننده دریافت شدند (شکل ۴). قله‌های تفکیک شده‌ی ایزوتوپ‌های آهن را نشان می‌دهد که به وسیله‌ی فنجان فاراده‌ی موجود روی درب جمع‌کننده ثبت شده است. بعد از اطمینان از صحت جداسازی، جمع‌آوری ایزوتوپ‌ها در پاکت‌ها شروع شد. عمل جمع‌آوری حدود سی ساعت با میانگین جریان کل 10.3 mA استمرار داشت.

۷.۲ تصفیه‌ی شیمیایی ایزوتوپ ^{54}Fe

تخلیص شیمیایی ایزوتوپ غنی شده‌ی ^{54}Fe به کمک روش‌های الکترولیز و استخراج با حلال انجام شد. بدین ترتیب که مس به عنوان عمده‌ترین ناخالصی، با استفاده از الکترولیز [۶] و سایر ناخالصی‌ها به کمک روش استخراج با حلال با استفاده از متیل ایزوبوتیل کتون (MIBK) به عنوان حلال آلی حذف شدند [۷، ۸، ۹].

جدول ۲. پارامترهای عملیاتی 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)	Vacuum (Pa)	Temp ($^\circ\text{C}$)	I_{Total} (mA)
۳۰	۱۱	۶۵	۸۰۰	۰.۴۵	۳۰۰	۰.۴۵	۹۳	2×10^{-3}	۳۸۵	۱۰.۳



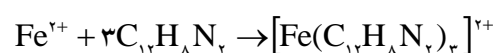
۳. بحث و نتیجه‌گیری

مرجع‌ها

1. A.J. Novinrooz, Separation of Thallium Isotope (^{203}Tl) by 180° Electromagnetic Isotope Separator, J of Nuclear Sci. and Tech, AEOI, No. 28 (1382).
2. S.M. Mohati, Enrichment of ^{58}Ni by electromagnetic isotope separator, 5th International conference on isotopes, Brussels (Belgium), April 25-29 (2005).
3. A.L. Compare, W.L. Griffith, The US Calutron Program for Uranium Enrichment: History, Technology, Operation and production, ORNL-5928 (1991).
4. J. Koch, Electromagnetic Isotope Separators and Application of Electromagnetically Enriched Isotopes (1958).
5. C.W. Sheridan, H.R. Gwinn, L.O. Love, Preparation of Charge Materials for ORNL Electromagnetic Isotopes separator, ORNL-3301 (Aug 8, 1962).
6. P. Sarabadani, B. Zeynali, J. Gagrosi, 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, 50 (2007) 5-6.
7. S.M. Qaim, R. Weinreich, H. Ollige, Production of ^{201}Tl and ^{203}Pb via proton induced nuclear reactions on natural thallium, Int. J. Appl. Rad. Isotopes, 30, 85 (1979).
8. M. Todorović, P. Đurđević, V. Antonijević, Optical methods for instrumental analysis, Faculty of Chemistry, Belgrade (1997).
9. D.C. Harris, Quantitative chemical analysis, W.H. Freeman and Co., New York (1996).
10. H. Tamura, K. Goto, T.A. Kao Yotsuyanagi, M. Nagayama, Spectrophotometric determination of iron(II) with 1,10 phenanthroline in the presence of large amounts of iron(III), Talanta, 21 (1974) 314-318.
11. D. Lazić, B. Škundrić, J.P. Škundri, S. Sladojević, L. Vasiljević, D. Blagojević, Z. Obrenović, Stability of tris -1,10 Phenanthroline iron (II) complex in different composites, Chemical Industry & Chemical Engineering Quarterly, 16 (2010) 193-198.
12. D.C. Harris, Determination of Iron with 1,10 Phenanthroline in: Quantitative Chemical Analysis, 6th ed., W.H. Freeman & Company, New York (2003) 258-261, 407-422, 453, 461-476, 707-709.

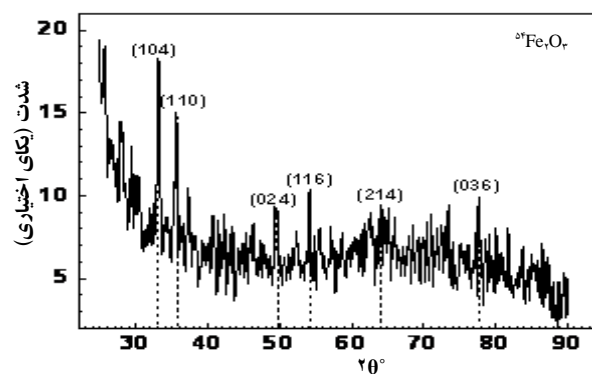
جداسازی ایزوتوپ‌ها به روش الکترومغناطیسی، یکی از روش‌های متداول غنی‌سازی هم‌زمان ایزوتوپ‌های عناصر است که با وجود تولید کم در مدت زمان کارکرد سیستم، از درجه‌ی خلوص ایزوتوپی بسیار بالایی (بیش‌تر از ۹۷ درصد) برخوردار است. در این پژوهش، ایزوتوپ‌های آهن با روش الکترومغناطیسی جداسازی شدند. ماده‌ی اولیه به کار رفته، آهن کلرید با خلوص بالای ۹۹ درصد بود که قابلیت تبخیر در محدوده‌ی دمای کاری چشمه‌ی یونی را دارا بود. تنظیم دقیق پارامترهای جداکننده‌ی الکترومغناطیسی با استفاده از یک فنجان فاراده که در روی جمع‌کننده تعیبه شده بود، انجام شد. در این فرایند با تغییر ولتاژ شتاب‌دهنده و ثابت نگه داشتن میدان مغناطیسی، ایزوتوپ‌های مختلف به داخل فنجان مذکور وارد شده و عمل جداسازی و عدم تداخل آن‌ها بررسی شد. بعد از تعیین مقادیر بهینه‌ی پارامترها، جداسازی و جمع‌آوری ایزوتوپ‌ها در پاکت‌های مسی برای مدت سی ساعت و با جریان متوسط یونی 10^3 میلی‌آمپر برای کل ایزوتوپ‌ها انجام شد.

در فرایند استخراج با حلال، آهن (III) با یون Cl^- کمپلکس یونی FeCl_4^- تشکیل داده، کتون $(\text{R}-\text{C}=\text{O})$ با H^+ ترکیب و ایجاد یون اکسنیم می‌کند که با FeCl_4^- جفت شده و تشکیل هسته‌ی نمک اکسنیم خنثی را می‌نماید که می‌تواند با کتون استخراج شود. لذا، کتون هم به عنوان حلال و هم به عنوان استخراج‌کننده عمل می‌نماید. واکنش تشکیل کمپلکس آهن (II) با ۱ و ۱۰- فنانترویلین چنین است



خلوص شیمیایی و خلوص ایزوتوپی، به ترتیب، برابر با ۹۴٫۵، ۹۷٫۵۴ درصد تعیین شد.

تشکیل پودر اکسید ^{54}Fe توسط دستگاه پراش پرتو ایکس مورد تأیید قرار گرفت. شکل ۶ طیف پراش پرتو ایکس $^{54}\text{Fe}_2\text{O}_3$ را نشان می‌دهد.



شکل ۶. طیف پراش پرتو ایکس $^{54}\text{Fe}_2\text{O}_3$

